

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4220644号  
(P4220644)

(45) 発行日 平成21年2月4日(2009.2.4)

(24) 登録日 平成20年11月21日(2008.11.21)

(51) Int.Cl.		F I
<b>C07C 211/61</b>	<b>(2006.01)</b>	C O 7 C 211/61
<b>C07C 217/94</b>	<b>(2006.01)</b>	C O 7 C 217/94
<b>C07D 209/86</b>	<b>(2006.01)</b>	C O 7 D 209/86
<b>C07D 213/74</b>	<b>(2006.01)</b>	C O 7 D 213/74
<b>C07D 265/38</b>	<b>(2006.01)</b>	C O 7 D 265/38

請求項の数 6 (全 87 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2000-34477 (P2000-34477)	(73) 特許権者	000005887
(22) 出願日	平成12年2月14日(2000.2.14)		三井化学株式会社
(65) 公開番号	特開2001-226331 (P2001-226331A)		東京都港区東新橋一丁目5番2号
(43) 公開日	平成13年8月21日(2001.8.21)	(74) 代理人	100105050
審査請求日	平成16年5月28日(2004.5.28)		弁理士 鷲田 公一
前置審査		(72) 発明者	島村 武彦
			千葉県袖ヶ浦市長浦580番地32 三井化学株式会社内
		(72) 発明者	中塚 正勝
			千葉県袖ヶ浦市長浦580番地32 三井化学株式会社内
		(72) 発明者	石田 努
			千葉県袖ヶ浦市長浦580番地32 三井化学株式会社内

最終頁に続く

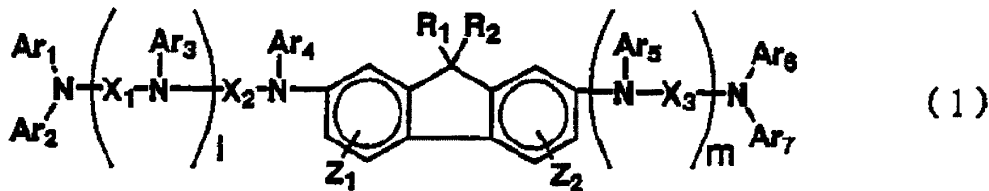
(54) 【発明の名称】 アミン化合物および該化合物を含有する有機電界発光素子

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

一般式(1)で表されるアミン化合物。

【化1】



(式中、Ar<sub>1</sub> ~ Ar<sub>7</sub> は未置換もしくは置換基として、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基で単置換または多置換されていてもよい炭素環式芳香族基または複素環式芳香族基を表し、さらに、Ar<sub>1</sub>とAr<sub>2</sub>およびAr<sub>6</sub>とAr<sub>7</sub>は結合している窒素原子と共に含窒素複素環を形成していてもよく、

R<sub>1</sub>およびR<sub>2</sub>は水素原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、未置換もしくは置換基として、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基で単置換または多置換されていてもよいアリール基、または、未置換もしくは置換基として、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基で単置換または多置換されていてもよいアラールキル基を表し、

Z<sub>1</sub>およびZ<sub>2</sub>は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖

、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは未置換もしくは置換基として、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基で単置換または多置換されていてもよいアリール基を表し、

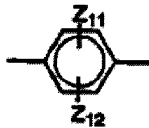
$X_{11} \sim X_{13}$  は  $-(A_1 - X_{11})_n - A_2 -$  を表し

(式中、 $A_1$  および  $A_2$  は未置換、もしくは、置換基としてハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基で単置換または多置換されていてもよい、下記式(2-a)または(2-b)で示されるフェニレン基; 未置換もしくは、置換基としてハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基で単置換または多置換されていてもよい、下記式(2-c)、(2-d)または(2-e)で示されるナフチレン基; または未置換もしくは、置換基としてハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基で単置換または多置換されていてもよい、下記式(2-g)で示されるフルオレン-ジイル基を表し、

$X_{11}$  は単結合、酸素原子または硫黄原子を表し、 $n$  は 0 または 1 を表す。)、

$1$  および  $m$  は 0 または 1 を表す。(但し、 $1$  が 1 の場合、 $m$  は 0、 $1$  が 0 の場合、 $m$  は 1 を示す。)

【化 2】



(2-a)

(式中、 $Z_{11}$  および  $Z_{12}$  は水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基を表す)

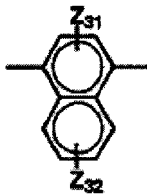
【化 3】



(2-b)

(式中、 $Z_{21}$  および  $Z_{22}$  は水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基を表す)

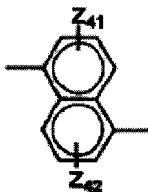
【化 4】



(2-c)

(式中、 $Z_{31}$  および  $Z_{32}$  は水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基を表す)

【化 5】



(2-d)

(式中、 $Z_{41}$  および  $Z_{42}$  は水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基を表す)

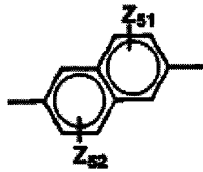
10

20

30

40

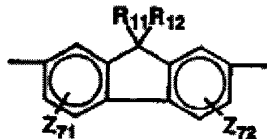
【化 6】



(2-e)

(式中、 $Z_{51}$  および  $Z_{52}$  は水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基を表す)

【化 7】

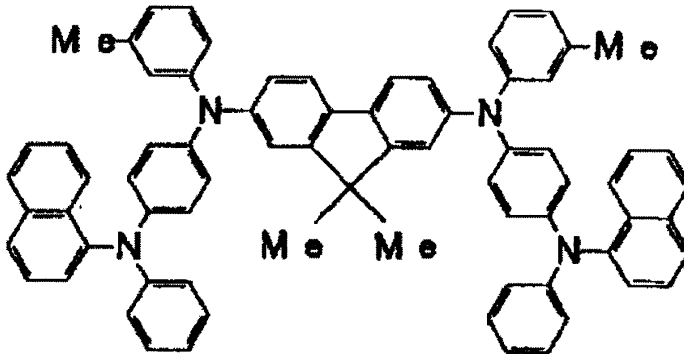


(2-g)

(式中、 $Z_{71}$  および  $Z_{72}$  は水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基を表し、 $R_{11}$  および  $R_{12}$  は水素原子、アルキル基、アリール基、あるいはアラルキル基を表す)

但し、

【化 8】

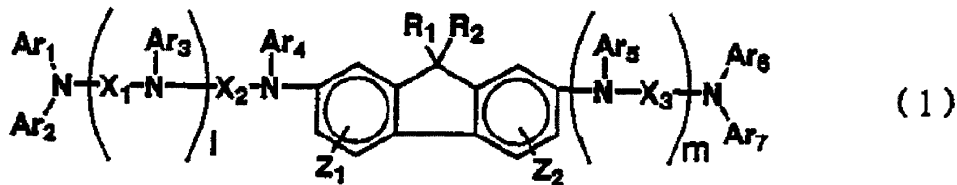


である場合を除く。)

【請求項 2】

一対の電極間に、一般式 (1) で表される化合物を少なくとも 1 種含有する層を少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子。

【化 9】



(1)

(式中、 $Ar_1 \sim Ar_7$  は未置換もしくは置換基として、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基で単置換または多置換されていてもよい炭素環式芳香族基または複素環式芳香族基を表し、さらに、 $Ar_1$  と  $Ar_2$  および  $Ar_6$  と  $Ar_7$  は結合している窒素原子と共に含窒素複素環を形成していてもよく、

$R_1$  および  $R_2$  は水素原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、未置換もしくは置換基として、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基で単置換または多置換されていてもよいアリール基、または、未置換もしくは置換基として、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基で単置換または多置換されていてもよいアラルキル基を表し、

10

20

30

40

50

$Z_1$  および  $Z_2$  は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは未置換もしくは置換基として、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基で単置換または多置換されていてもよいアリール基を表し、

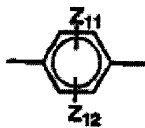
$X_1 \sim X_3$  は  $-(A_1 - X_{11})_n - A_2 -$  を表し

(式中、 $A_1$  および  $A_2$  は未置換、もしくは、置換基としてハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基で単置換または多置換されていてもよい、下記式(2-a)または(2-b)で示されるフェニレン基；未置換もしくは、置換基としてハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基で単置換または多置換されていてもよい、下記式(2-c)、(2-d)または(2-e)で示されるナフチレン基；または未置換もしくは、置換基としてハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基で単置換または多置換されていてもよい、下記式(2-g)で示されるフルオレン-ジイル基を表し、

$X_{11}$  は単結合、酸素原子または硫黄原子を表し、 $n$  は 0 または 1 を表す。)、

$l$  および  $m$  は 0 または 1 を表す。(但し、 $l$  が 1 の場合、 $m$  は 0、 $l$  が 0 の場合、 $m$  は 1 を示す。)

【化10】



(2-a)

10

20

(式中、 $Z_{11}$  および  $Z_{12}$  は水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基を表す)

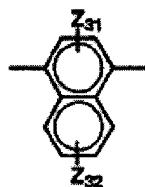
【化11】



(2-b)

(式中、 $Z_{21}$  および  $Z_{22}$  は水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基を表す)

【化12】

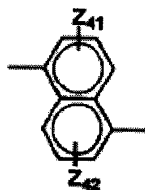


(2-c)

30

(式中、 $Z_{31}$  および  $Z_{32}$  は水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基を表す)

【化13】

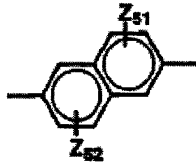


(2-d)

40

(式中、 $Z_{41}$  および  $Z_{42}$  は水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基を表す)

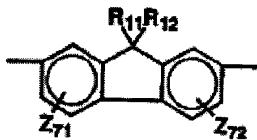
## 【化 1 4】



(2-e)

(式中、 $Z_{51}$  および  $Z_{52}$  は水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基を表す)

## 【化 1 5】

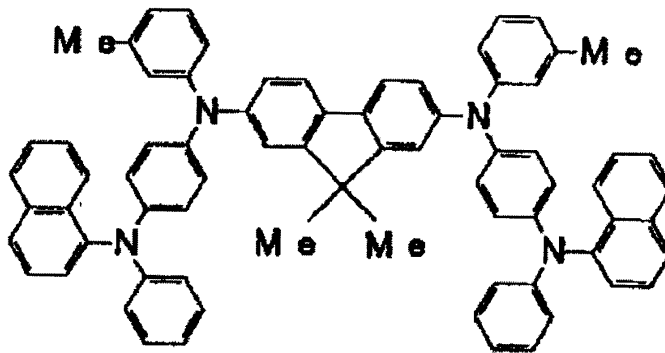


(2-g)

(式中、 $Z_{71}$  および  $Z_{72}$  は水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基を表し、 $R_{11}$  および  $R_{12}$  は水素原子、アルキル基、アリール基、あるいはアラルキル基を表す)

但し、

## 【化 1 6】



である場合を除く。)

## 【請求項 3】

一般式(1)で表される化合物を含有する層が、正孔注入輸送層である請求項2記載の有機電界発光素子。

## 【請求項 4】

一般式(1)で表される化合物を含有する層が、発光層である請求項2記載の有機電界発光素子。

## 【請求項 5】

一对の電極間に、さらに、発光層を有する請求項2または3のいずれかに記載の有機電界発光素子。

## 【請求項 6】

一对の電極間に、さらに、電子注入輸送層を有する請求項2~5のいずれかに記載の有機電界発光素子。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

## 【発明の属する技術分野】

本発明は、新規なアミン化合物および該アミン化合物を含有してなる有機電界発光素子に関する。

## 【0002】

## 【従来の技術】

従来、アミン化合物は、各種色素の製造中間体、あるいは各種の機能材料として使用され

10

20

30

40

50

てきた。

【0003】

機能材料としては、例えば、電子写真感光体の電荷輸送材料に使用されてきた。さらに、最近では、発光材料に有機材料を用いた有機電界発光素子（有機エレクトロルミネッセンス素子：有機EL素子）の正孔注入輸送材料として有用であることが提案されている。〔例えば、Appl. Phys. Lett., 51, 913(1987)〕。

【0004】

正孔注入輸送材料として、4, 4'-ビス〔N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ〕ビフェニルを用いることが提案されている〔Jpn. J. Appl. Phys., 27, L269(1988)〕。

また、正孔注入輸送材料として、例えば、9, 9-ジアルキル-2, 7-ビス(N, N-ジフェニルアミノ)フルオレン誘導体〔例えば、9, 9-ジメチル-2, 7-ビス(N, N-ジフェニルアミノ)フルオレン〕を用いることが提案されている（特開平5-25473号公報）。

しかしながら、これらのアミン化合物を正孔注入輸送材料とする有機電界発光素子も、安定性、耐久性に乏しいなどの難点がある。

現在では、一層改良された有機電界発光素子が望まれており、そのためにも新規なアミン化合物が望まれている。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

本発明の課題は、新規なアミン化合物および該化合物を含有する有機電界発光素子を提供することである。さらに詳しくは、有機電界発光素子の正孔注入輸送材料などに適した新規なアミン化合物、および安定性、耐久性の改良された有機電界発光素子を提供することである。

【0006】

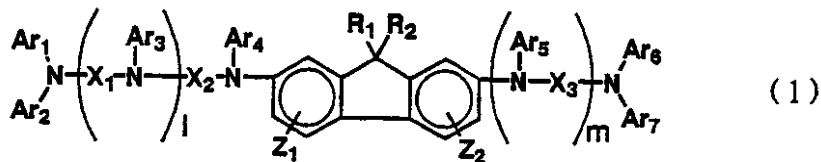
【課題を解決するための手段】

本発明者等は、種々のアミン化合物および有機電界発光素子に関して鋭意検討した結果、本発明を完成するに至った。すなわち、本発明は、

- 1 一般式(1)で表されるアミン化合物、

【0007】

【化3】



【0008】

〔式中、Ar<sub>1</sub> ~ Ar<sub>7</sub> は置換または未置換のアリール基を表し、さらに、Ar<sub>1</sub> と Ar<sub>2</sub> および Ar<sub>6</sub> と Ar<sub>7</sub> は結合している窒素原子と共に含窒素複素環を形成していてもよいを表し、R<sub>1</sub> および R<sub>2</sub> は水素原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、Z<sub>1</sub> および Z<sub>2</sub> は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表し、X<sub>1</sub> ~ X<sub>3</sub> は置換または未置換のアリーレン基を表し、l および m は 0 または 1 を表す。（但し、l が 1 の場合、m は 0、l が 0 の場合、m は 1 を示す。）〕

2 一般式(1)で表される化合物において、X<sub>1</sub> ~ X<sub>3</sub> が一般式(2)で表される基である 1 項記載の化合物、



10

20

30

40

50

(式中、 $A_1$  および  $A_2$  は置換または未置換のフェニレン基、置換または未置換のナフチレン基、あるいは置換または未置換のフルオレン-ジイル基を表し、 $X_{11}$  は単結合、酸素原子または硫黄原子を表し、 $n$  は 0 または 1 を表す)

3 一对の電極間に、一般式(1)で表される化合物を少なくとも1種含有する層を少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子、

4 一般式(1)で表される化合物を含有する層が、正孔注入輸送層である 3 項記載の有機電界発光素子、

5 一般式(1)で表される化合物を含有する層が、発光層である 3 項記載の有機電界発光素子、

6 一对の電極間に、さらに、発光層を有する 3 または 4 項のいずれかに記載の有機電界発光素子、 10

7 一对の電極間に、さらに、電子注入輸送層を有する 3 ~ 6 項のいずれかに記載の有機電界発光素子、に関するものである。

【0009】

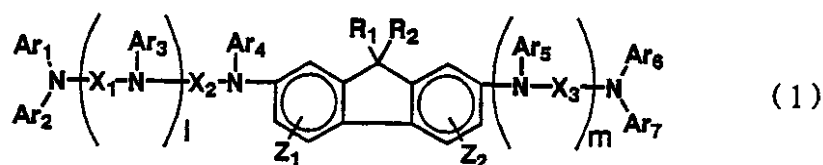
【発明の実施の形態】

以下、本発明に関して詳細に説明する。

本発明のアミン化合物は、一般式(1)で表される化合物である。

【0010】

【化4】



【0011】

(式中、 $Ar_1 \sim Ar_7$  は置換または未置換のアリール基を表し、さらに、 $Ar_1$  と  $Ar_2$  および  $Ar_6$  と  $Ar_7$  は結合している窒素原子と共に含窒素複素環を形成していてもよいを表し、 $R_1$  および  $R_2$  は水素原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、 $Z_1$  および  $Z_2$  は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表し、 $X_1 \sim X_3$  は置換または未置換のアリール基を表し、 $l$  および  $m$  は 0 または 1 を表す。(但し、 $l$  が 1 の場合、 $m$  は 0、 $l$  が 0 の場合、 $m$  は 1 を示す。))

【0012】

$Ar_1 \sim Ar_7$  は、好ましくは、未置換、もしくは、置換基として、例えば、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基で単置換または多置換されていてもよい総炭素数 3 ~ 25 のアリール基であり、より好ましくは、未置換、もしくは、ハロゲン原子、炭素数 1 ~ 14 のアルキル基、炭素数 1 ~ 14 のアルコキシ基、あるいは炭素数 6 ~ 10 のアリール基で単置換または多置換されていてもよい総炭素数 6 ~ 25 の炭素環式芳香族基または総炭素数 3 ~ 25 の複素環式芳香族基であり、さらに好ましくは、未置換、もしくは、ハロゲン原子、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基、炭素数 1 ~ 4 のアルコキシ基、あるいは炭素数 6 ~ 10 のアリール基で単置換あるいは多置換されていてもよい総炭素数 6 ~ 16 の炭素環式芳香族基である。

【0013】

$Ar_1 \sim Ar_7$  の具体例としては、例えば、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、2-アントリル基、9-アントリル基、2-フルオレニル基、4-キノリル基、4-ピリジル基、3-ピリジル基、2-ピリジル基、3-フリル基、2-フリル基、3-チエニル基、2-チエニル基、2-オキサゾリル基、2-チアゾリル基、2-ベンゾオキサゾ 50

リル基、2 - ベンゾチアゾリル基、2 - ベンゾイミダゾリル基、4 - メチルフェニル基、  
 3 - メチルフェニル基、2 - メチルフェニル基、4 - エチルフェニル基、3 - エチルフェ  
 ニル基、2 - エチルフェニル基、4 - n - プロピルフェニル基、4 - イソプロピルフェニ  
 ル基、2 - イソプロピルフェニル基、4 - n - ブチルフェニル基、4 - イソブチルフェニ  
 ル基、4 - sec - ブチルフェニル基、2 - sec - ブチルフェニル基、4 - tert - ブチルフェ  
 ニル基、3 - tert - ブチルフェニル基、2 - tert - ブチルフェニル基、4 - n - ペンチ  
 ルフェニル基、4 - イソペンチルフェニル基、2 - ネオペンチルフェニル基、4 - tert -  
 ペンチルフェニル基、4 - n - ヘキシルフェニル基、4 - ( 2 ' - エチルブチル ) フェニ  
 ル基、4 - n - ヘプチルフェニル基、4 - n - オクチルフェニル基、4 - ( 2 ' - エチル  
 ヘキシル ) フェニル基、4 - tert - オクチルフェニル基、4 - n - デシルフェニル基、4  
 - n - ドデシルフェニル基、4 - n - テトラデシルフェニル基、4 - シクロペンチルフェ  
 ニル基、4 - シクロヘキシルフェニル基、4 - ( 4 ' - メチルシクロヘキシル ) フェニル  
 基、4 - ( 4 ' - tert - ブチルシクロヘキシル ) フェニル基、3 - シクロヘキシルフェニ  
 ル基、2 - シクロヘキシルフェニル基、4 - エチル - 1 - ナフチル基、6 - n - ブチル -  
 2 - ナフチル基、2 , 4 - ジメチルフェニル基、2 , 5 - ジメチルフェニル基、3 , 4 -  
 ジメチルフェニル基、3 , 5 - ジメチルフェニル基、2 , 6 - ジメチルフェニル基、2 ,  
 4 - ジエチルフェニル基、2 , 3 , 5 - トリメチルフェニル基、2 , 3 , 6 - トリメチル  
 フェニル基、3 , 4 , 5 - トリメチルフェニル基、2 , 6 - ジエチルフェニル基、2 , 5  
 - ジイソプロピルフェニル基、2 , 6 - ジイソブチルフェニル基、2 , 4 - ジ - tert - ブ  
 チルフェニル基、2 , 5 - ジ - tert - ブチルフェニル基、4 , 6 - ジ - tert - ブチル - 2  
 - メチルフェニル基、5 - tert - ブチル - 2 - メチルフェニル基、4 - tert - ブチル - 2  
 , 6 - ジメチルフェニル基、

10

20

## 【 0 0 1 4 】

9 - メチル - 2 - フルオレニル基、9 - エチル - 2 - フルオレニル基、9 - n - ブチル -  
 2 - フルオレニル基、9 - n - ヘキシル - 2 - フルオレニル基、9 , 9 - ジメチル - 2 -  
 フルオレニル基、9 , 9 - ジエチル - 2 - フルオレニル基、9 , 9 - ジ - n - プロピル -  
 2 - フルオレニル基、9 , 9 - ジイソプロピル - 2 - フルオレニル基、9 , 9 - ジ - n -  
 ブチル - 2 - フルオレニル基、9 , 9 - ジ - n - ペンチル - 2 - フルオレニル基、9 , 9  
 - ジ - n - ヘキシル - 2 - フルオレニル基、9 - メチル - 9 - エチル - 2 - フルオレニル  
 基、9 - メチル - 9 - n - ブチル - 2 - フルオレニル基、9 - エチル - 9 - n - ブチル -  
 2 - フルオレニル基、

30

## 【 0 0 1 5 】

4 - メトキシフェニル基、3 - メトキシフェニル基、2 - メトキシフェニル基、4 - エト  
 キシフェニル基、3 - エトキシフェニル基、2 - エトキシフェニル基、4 - n - プロポキ  
 シフェニル基、3 - n - プロポキシフェニル基、4 - イソプロポキシフェニル基、2 - イ  
 ソプロポキシフェニル基、4 - n - ブトキシフェニル基、4 - イソブトキシフェニル基、  
 2 - sec - ブトキシフェニル基、4 - n - ペンチルオキシフェニル基、4 - イソペンチル  
 オキシフェニル基、2 - イソペンチルオキシフェニル基、4 - ネオペンチルオキシフェニ  
 ル基、2 - ネオペンチルオキシフェニル基、4 - n - ヘキシルオキシフェニル基、2 - ( 2  
 ' - エチルブチル ) オキシフェニル基、4 - n - オクチルオキシフェニル基、4 - n -  
 デシルオキシフェニル基、4 - n - ドデシルオキシフェニル基、4 - n - テトラデシルオ  
 キシフェニル基、4 - シクロヘキシルオキシフェニル基、2 - シクロヘキシルオキシフェ  
 ニル基、2 - メトキシ - 1 - ナフチル基、4 - メトキシ - 1 - ナフチル基、4 - n - ブト  
 キシ - 1 - ナフチル基、5 - エトキシ - 1 - ナフチル基、6 - メトキシ - 2 - ナフチル基  
 、6 - エトキシ - 2 - ナフチル基、6 - n - ブトキシ - 2 - ナフチル基、6 - n - ヘキシ  
 ルオキシ - 2 - ナフチル基、7 - メトキシ - 2 - ナフチル基、7 - n - ブトキシ - 2 - ナ  
 フチル基、

40

2 - メチル - 4 - メトキシフェニル基、2 - メチル - 5 - メトキシフェニル基、3 - メチ  
 ル - 4 - メトキシフェニル基、3 - メチル - 5 - メトキシフェニル基、3 - エチル - 5 -  
 メトキシフェニル基、2 - メトキシ - 4 - メチルフェニル基、3 - メトキシ - 4 - メチル

50



フェニル基、2, 4 - ジメトキシフェニル基、2, 5 - ジメトキシフェニル基、2, 6 - ジメトキシフェニル基、3, 4 - ジメトキシフェニル基、3, 5 - ジメトキシフェニル基、3, 5 - ジエトキシフェニル基、3, 5 - ジ - n - ブトキシフェニル基、2 - メトキシ - 4 - エトキシフェニル基、2 - メトキシ - 6 - エトキシフェニル基、3, 4, 5 - トリメトキシフェニル基、

【0016】

4 - フェニルフェニル基、3 - フェニルフェニル基、2 - フェニルフェニル基、4 - (4' - メチルフェニル)フェニル基、4 - (3' - メチルフェニル)フェニル基、4 - (4' - エチルフェニル)フェニル基、4 - (4' - イソプロピルフェニル)フェニル基、4 - (4' - tert - ブチルフェニル)フェニル基、4 - (4' - n - ヘキシルフェニル)フェニル基、4 - (4' - n - オクチルフェニル)フェニル基、4 - (4' - メトキシフェニル)フェニル基、4 - (4' - n - ブトキシフェニル)フェニル基、4 - (4' - n - ヘキシルオキシフェニル)フェニル基、2 - (2' - メトキシフェニル)フェニル基、4 - (4' - クロロフェニル)フェニル基、3 - メチル - 4 - フェニルフェニル基、3 - メトキシ - 4 - フェニルフェニル基、

9 - フェニル - 2 - フルオレニル基、9, 9 - ジフェニル - 2 - フルオレニル基、9 - メチル - 9 - フェニル - 2 - フルオレニル基、9 - エチル - 9 - フェニル - 2 - フルオレニル基、

4 - フルオロフェニル基、3 - フルオロフェニル基、2 - フルオロフェニル基、4 - クロロフェニル基、3 - クロロフェニル基、2 - クロロフェニル基、4 - ブロモフェニル基、2 - ブロモフェニル基、4 - クロロ - 1 - ナフチル基、4 - クロロ - 2 - ナフチル基、6 - ブロモ - 2 - ナフチル基、2, 3 - ジフルオロフェニル基、2, 4 - ジフルオロフェニル基、2, 5 - ジフルオロフェニル基、2, 6 - ジフルオロフェニル基、3, 4 - ジフルオロフェニル基、3, 5 - ジフルオロフェニル基、2, 3 - ジクロロフェニル基、2, 4 - ジクロロフェニル基、2, 5 - ジクロロフェニル基、3, 4 - ジクロロフェニル基、3, 5 - ジクロロフェニル基、2, 5 - ジブロモフェニル基、2, 4, 6 - トリクロロフェニル基、2, 4 - ジクロロ - 1 - ナフチル基、1, 6 - ジクロロ - 2 - ナフチル基、

2 - フルオロ - 4 - メチルフェニル基、2 - フルオロ - 5 - メチルフェニル基、3 - フルオロ - 2 - メチルフェニル基、3 - フルオロ - 4 - メチルフェニル基、2 - メチル - 4 - フルオロフェニル基、2 - メチル - 5 - フルオロフェニル基、3 - メチル - 4 - フルオロフェニル基、2 - クロロ - 4 - メチルフェニル基、2 - クロロ - 5 - メチルフェニル基、2 - クロロ - 6 - メチルフェニル基、2 - メチル - 3 - クロロフェニル基、2 - メチル - 4 - クロロフェニル基、3 - クロロ - 4 - メチルフェニル基、3 - メチル - 4 - クロロフェニル基、2 - クロロ - 4, 6 - ジメチルフェニル基、2 - メトキシ - 4 - フルオロフェニル基、2 - フルオロ - 4 - メトキシフェニル基、2 - フルオロ - 4 - エトキシフェニル基、2 - フルオロ - 6 - メトキシフェニル基、3 - フルオロ - 4 - エトキシフェニル基、3 - クロロ - 4 - メトキシフェニル基、2 - メトキシ - 5 - クロロフェニル基、3 - メトキシ - 6 - クロロフェニル基、5 - クロロ - 2, 4 - ジメトキシフェニル基などを挙げることができるが、これらに限定されるものではない。

【0017】

一般式(1)で表される化合物において、さらに、 $Ar_1$  と  $Ar_2$  および  $Ar_6$  と  $Ar_7$  は結合している窒素原子と共に含窒素複素環を形成していてもよく、好ましくは、-N $Ar_1$   $Ar_2$  および -N $Ar_6$   $Ar_7$  は、置換または未置換の -N - カルバゾリイル基、置換または未置換の -N - フェノキサジニル基、あるいは置換または未置換の -N - フェノチアジニル基を形成していてもよく、好ましくは、未置換、もしくは、置換基として、例えば、ハロゲン原子、炭素数1~10のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、あるいは炭素数6~10のアリール基で単置換または多置換されていてもよい -N - カルバゾリイル基、-N - フェノキサジニル基、あるいは -N - フェノチアジニル基であり、より好ましくは、未置換、もしくは、ハロゲン原子、炭素数1~4のアルキル基、炭素数1~4のアルコキシ基、あるいは炭素数6~10のアリール基で単置換あるいは多

10

20

30

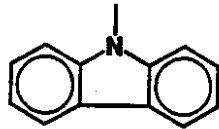
40

50

置換されていてもよいN - カルバゾリイル基、N - フェノキサジニル基、あるいはN - フェノチアジニル基であり、さらに好ましくは、式(3) ~ (5)で表される未置換の - N - カルバゾリイル基、未置換の - N - フェノキサジニル基、あるいは未置換の - N - フェノチアジニル基である。

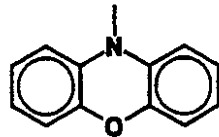
【0018】

【化5】

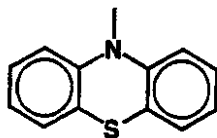


(3)

10



(4)



(5)

20

【0019】

- NAr<sub>1</sub> Ar<sub>2</sub> および - NAr<sub>6</sub> Ar<sub>7</sub> は、含窒素複素環を形成していてもよく、具体例としては、例えば、- N - カルバゾリイル基、2 - メチル - N - カルバゾリイル基、3 - メチル - N - カルバゾリイル基、4 - メチル - N - カルバゾリイル基、3 - n - ブチル - N - カルバゾリイル基、3 - n - ヘキシル - N - カルバゾリイル基、3 - n - オクチル - N - カルバゾリイル基、3 - n - デシル - N - カルバゾリイル基、3, 6 - ジメチル - N - カルバゾリイル基、2 - メトキシ - N - カルバゾリイル基、3 - メトキシ - N - カルバゾリイル基、3 - エトキシ - N - カルバゾリイル基、3 - イソプロポキシ - N - カルバゾリイル基、3 - n - ブトキシ - N - カルバゾリイル基、3 - n - オクチルオキシ - N - カルバゾリイル基、3 - n - デシルオキシ - N - カルバゾリイル基、3 - フェニル - N - カルバゾリイル基、3 - (4' - メチルフェニル) - N - カルバゾリイル基、3 - (4' - tert - ブチルフェニル) - N - カルバゾリイル基、3 - クロロ - N - カルバゾリイル基、- N - フェノキサジニル基、- N - フェノチアジニル基、2 - メチル - N - フェノチアジニル基などを挙げる事ができる。

30

【0020】

一般式(1)で表される化合物において、R<sub>1</sub> および R<sub>2</sub> は水素原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、

好ましくは、水素原子、炭素数1 ~ 16の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数3 ~ 25の置換または未置換のアリール基、あるいは炭素数5 ~ 16の置換または未置換のアラルキル基であり、

40

より好ましくは、水素原子、炭素数1 ~ 8の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数6 ~ 12の置換または未置換のアリール基、あるいは炭素数7 ~ 12の置換または未置換のアラルキル基であり、

さらに好ましくは、R<sub>1</sub> および R<sub>2</sub> は炭素数1 ~ 8の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数6 ~ 10の炭素環式芳香族基、あるいは炭素数7 ~ 10の炭素環式アラルキル基である。

【0021】

尚、R<sub>1</sub> および R<sub>2</sub> の置換または未置換のアリール基の具体例としては、例えば、Ar<sub>1</sub>

50

~ Ar<sub>7</sub> の具体例として挙げた置換または未置換のアリール基を例示することができる。R<sub>1</sub> および R<sub>2</sub> の直鎖、分岐または環状のアルキル基の具体例としては、例えば、メチル基、エチル基、n - プロピル基、イソプロピル基、n - ブチル基、イソブチル基、sec - ブチル基、tert - ブチル基、n - ペンチル基、イソペンチル基、ネオペンチル基、tert - ペンチル基、シクロペンチル基、n - ヘキシル基、2 - エチルブチル基、3, 3 - ジメチルブチル基、シクロヘキシル基、n - ヘプチル基、シクロヘキシルメチル基、n - オクチル基、tert - オクチル基、2 - エチルヘキシル基、n - ノニル基、n - デシル基、n - ドデシル基、n - テトラデシル基、n - ヘキサデシル基などを挙げるができるが、これらに限定されるものではない。

また、R<sub>1</sub> および R<sub>2</sub> の置換または未置換のアラルキル基の具体例としては、例えば、ベンジル基、フェネチル基、 $\alpha$  - メチルベンジル基、 $\beta$  - ジメチルベンジル基、1 - ナフチルメチル基、2 - ナフチルメチル基、フルフリル基、2 - メチルベンジル基、3 - メチルベンジル基、4 - メチルベンジル基、4 - エチルベンジル基、4 - イソプロピルベンジル基、4 - tert - ブチルベンジル基、4 - n - ヘキシルベンジル基、4 - ノニルベンジル基、3, 4 - ジメチルベンジル基、3 - メトキシベンジル基、4 - メトキシベンジル基、4 - エトキシベンジル基、4 - n - ブトキシベンジル基、4 - n - ヘキシルオキシベンジル基、4 - ノニルオキシベンジル基、4 - フルオロベンジル基、3 - フルオロベンジル基、2 - クロロベンジル基、4 - クロロベンジル基などのアラルキル基などを挙げるができるが、これらに限定されるものではない。

#### 【0022】

Z<sub>1</sub> および Z<sub>2</sub> は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表し、好ましくは、水素原子、ハロゲン原子、炭素数 1 ~ 16 の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数 1 ~ 16 の直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは炭素数 3 ~ 25 の置換または未置換のアリール基であり、

より好ましくは、水素原子、ハロゲン原子、炭素数 1 ~ 8 の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数 1 ~ 8 の直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは炭素数 6 ~ 12 の置換または未置換のアリール基であり、さらに好ましくは、水素原子である。

#### 【0023】

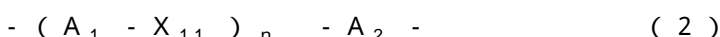
尚、Z<sub>1</sub> および Z<sub>2</sub> の直鎖、分岐または環状のアルキル基の具体例としては、例えば、R<sub>1</sub> および R<sub>2</sub> の具体例として挙げた直鎖、分岐または環状のアルキル基を例示することができる。

また、Z<sub>1</sub> および Z<sub>2</sub> の置換または未置換のアリール基の具体例としては、例えば、Ar<sub>1</sub> ~ Ar<sub>7</sub> の具体例として挙げた置換または未置換のアリール基を例示することができる。

Z<sub>1</sub> および Z<sub>2</sub> のハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基の具体例としては、例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子などのハロゲン原子、例えば、メトキシ基、エトキシ基、n - プロポキシ基、イソプロポキシ基、n - ブトキシ基、イソブトキシ基、sec - ブトキシ基、n - ペンチルオキシ基、イソペンチルオキシ基、ネオペンチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、n - ヘキシルオキシ基、2 - エチルブトキシ基、3, 3 - ジメチルブトキシ基、シクロヘキシルオキシ基、n - ヘプチルオキシ基、シクロヘキシルメチルオキシ基、n - オクチルオキシ基、2 - エチルヘキシルオキシ基、n - ノニルオキシ基、n - デシルオキシ基、n - ドデシルオキシ基、n - テトラデシルオキシ基、n - ヘキサデシルオキシ基などのアルコキシ基を挙げるができる。

#### 【0024】

一般式(1)で表される化合物において、X<sub>1</sub> ~ X<sub>3</sub> は置換または未置換のアリーレン基を表し、好ましくは、一般式(2)で表されるアリーレン基である。



(式中、A<sub>1</sub> および A<sub>2</sub> は置換または未置換のフェニレン基、置換または未置換のナフレン基、あるいは置換または未置換のフルオレン - ジイル基を表し、X<sub>11</sub> は単結合、酸

10

20

30

40

50

素原子または硫黄原子を表し、 $n$ は0または1を表す)

【0025】

一般式(2)において、 $A_1$  および  $A_2$  は置換または未置換のフェニレン基、置換または未置換のナフチレン基、あるいは置換または未置換のフルオレン-ジイル基を表し、好ましくは、置換または未置換の1,2-フェニレン基、置換または未置換の1,3-フェニレン基、置換または未置換の1,4-フェニレン基、置換または未置換の1,4-ナフチレン基、置換または未置換の1,5-ナフチレン基、置換または未置換の2,6-ナフチレン基、置換または未置換の2,7-ナフチレン基、あるいは置換または未置換のフルオレン-2,7-ジイル基であり、より好ましくは、置換または未置換の1,3-フェニレン基、置換または未置換の1,4-フェニレン基、置換または未置換の1,4-ナフチレン基、置換または未置換の1,5-ナフチレン基、置換または未置換の2,6-ナフチレン基、あるいは置換または未置換のフルオレン-2,7-ジイル基である。

10

一般式(2)において、 $X_{11}$  は単結合、酸素原子または硫黄原子を表す。

一般式(2)において、 $n$ は0または1を表す。

一般式(2)において、 $n$ が1を表す時、より好ましくは、 $A_1$  は置換または未置換の1,4-フェニレン基である。

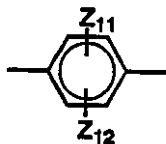
【0026】

一般式(1)で表される化合物において、 $X_1 \sim X_3$  としては、より好ましくは、一般式(2-a)~一般式(2-i)で表されるアリーレン基である。

【0027】

20

【化6】



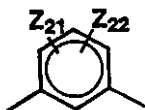
(2-a)

(式中、 $Z_{11}$  および  $Z_{12}$  は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表す)

30

【0028】

【化7】



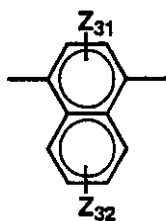
(2-b)

(式中、 $Z_{21}$  および  $Z_{22}$  は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表す)

40

【0029】

【化8】

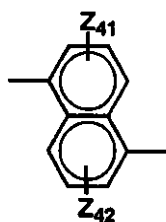


(2-c)

(式中、 $Z_{31}$  および  $Z_{32}$  は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表す)

【0030】

【化9】

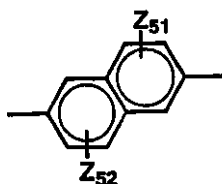


(2-d)

(式中、 $Z_{41}$  および  $Z_{42}$  は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表す)

【0031】

【化10】

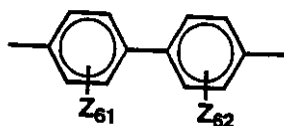


(2-e)

(式中、 $Z_{51}$  および  $Z_{52}$  は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表す)

【0032】

【化11】



(2-f)

(式中、 $Z_{61}$  および  $Z_{62}$  は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表す)

【0033】

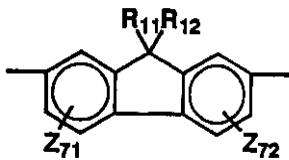
【化12】

10

20

30

40



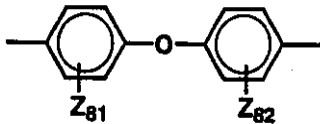
(2-g)

(式中、 $Z_{71}$  および  $Z_{72}$  は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表し、 $R_{11}$  および  $R_{12}$  は水素原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表す)

【0034】

【化13】

10



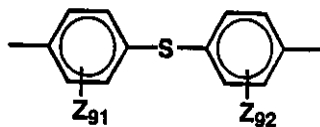
(2-h)

(式中、 $Z_{81}$  および  $Z_{82}$  は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表す)

【0035】

【化14】

20



(2-i)

(式中、 $Z_{91}$  および  $Z_{92}$  は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表す)

【0036】

一般式(2-a)~一般式(2-i)において、 $Z_{11}$ 、 $Z_{12}$ 、 $Z_{21}$ 、 $Z_{22}$ 、 $Z_{31}$ 、 $Z_{32}$ 、 $Z_{41}$ 、 $Z_{42}$ 、 $Z_{51}$ 、 $Z_{52}$ 、 $Z_{61}$ 、 $Z_{62}$ 、 $Z_{71}$ 、 $Z_{72}$ 、 $Z_{81}$ 、 $Z_{82}$ 、 $Z_{91}$  および  $Z_{92}$  (以下、 $Z_{11}$  ~  $Z_{92}$  と略記する)は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは置換または未置換のアリール基を表し、好ましくは、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1~16の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数1~16の直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは炭素数3~25の置換または未置換のアリール基であり、より好ましくは、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1~8の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数1~8の直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは炭素数6~12の置換または未置換のアリール基であり、さらに好ましくは、水素原子である。

【0037】

$Z_{11}$  ~  $Z_{92}$  の直鎖、分岐または環状のアルキル基の具体例としては、例えば、 $R_1$  および  $R_2$  の具体例として挙げた直鎖、分岐または環状のアルキル基を例示することができる。

また、 $Z_{11}$  ~  $Z_{92}$  の置換または未置換のアリール基の具体例としては、例えば、 $Ar_1$  ~  $Ar_7$  の具体例として挙げた置換または未置換のアリール基を例示することができる。

$Z_{11}$  ~  $Z_{92}$  のハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基の具体例としては、

30

40

50

例えば、 $Z_1$  および  $Z_2$  の具体例として挙げたハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基を例示することができる。

【0038】

一般式(2-g)で表される基において、 $R_{11}$  および  $R_{12}$  は水素原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換アラルキル基を表し、好ましくは、水素原子、炭素数1~16の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数3~25の置換または未置換のアリール基、あるいは炭素数5~16の置換または未置換のアラルキル基であり、

より好ましくは、水素原子、炭素数1~8の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数6~12の置換または未置換のアリール基、あるいは炭素数7~12の置換または未置換のアラルキル基であり、さらに好ましくは、 $R_{11}$ および $R_{12}$ は炭素数1~8の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数6~10の炭素環式芳香族基、あるいは炭素数7~10の炭素環式アラルキル基である。

【0039】

尚、 $R_{11}$  および  $R_{12}$  の置換または未置換のアリール基の具体例としては、例えば、 $Ar_1 \sim Ar_7$  の具体例として挙げた置換または未置換のアリール基を例示することができる。

$R_{11}$  および  $R_{12}$  の直鎖、分岐または環状のアルキル基の具体例としては、例えば  $R_1$  および  $R_2$  の具体例として挙げた置換または未置換のアルキル基を例示することができる。また、 $R_{11}$  および  $R_{12}$  の置換または未置換のアラルキル基の具体例としては、例えば、 $R_1$  および  $R_2$  の具体例として挙げた置換または未置換のアラルキル基を例示することができる。

【0040】

本発明に係る一般式(1)で表される化合物の具体例としては、例えば、以下の化合物を挙げることができるが、本発明はこれらに限定されるものではない。尚、式中、Phはフェニル基を、Bzはベンジル基を表す。

【0041】

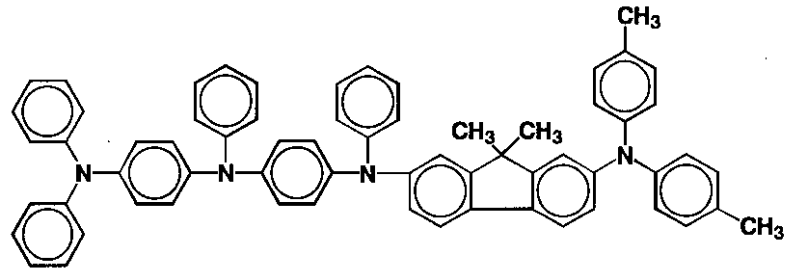
【化15】

10

20

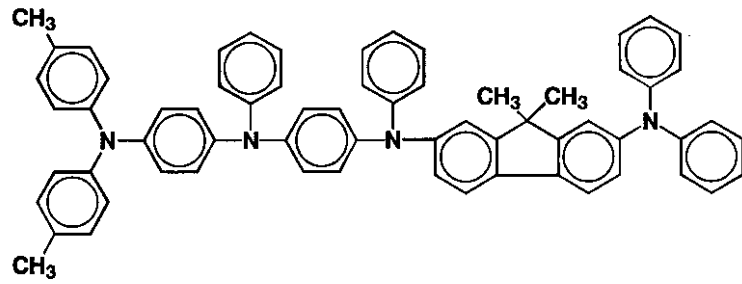
例示化合物  
番号

A-1



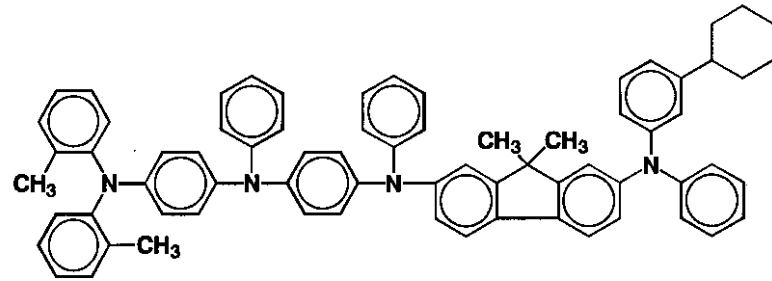
10

A-2



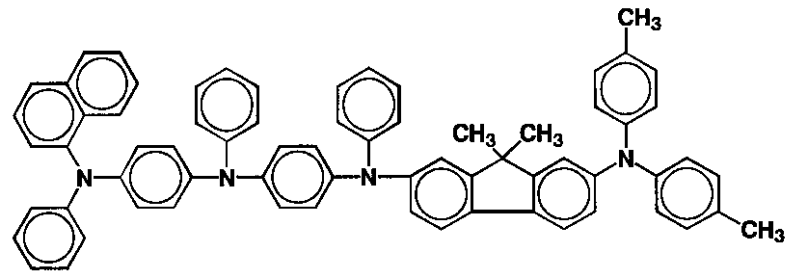
20

A-3



30

A-4



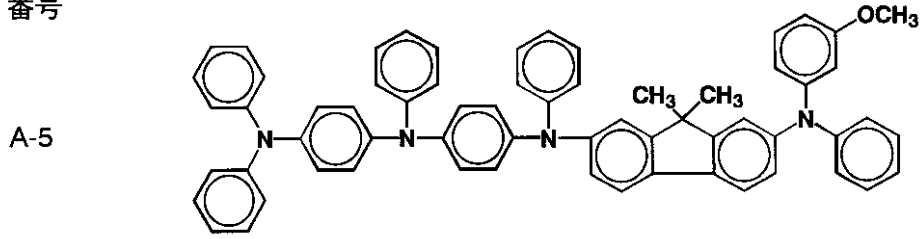
【 0 0 4 2 】

【 化 1 6 】

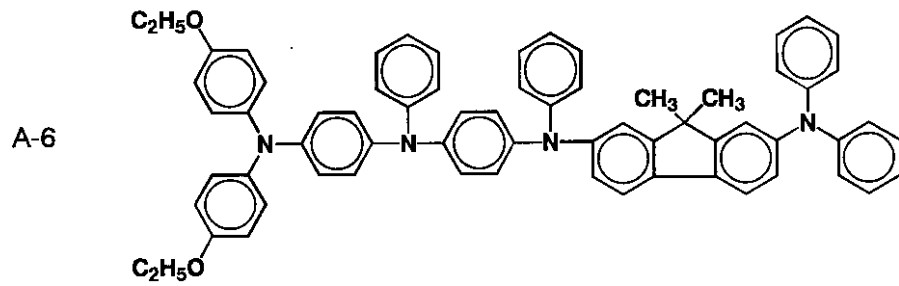
40



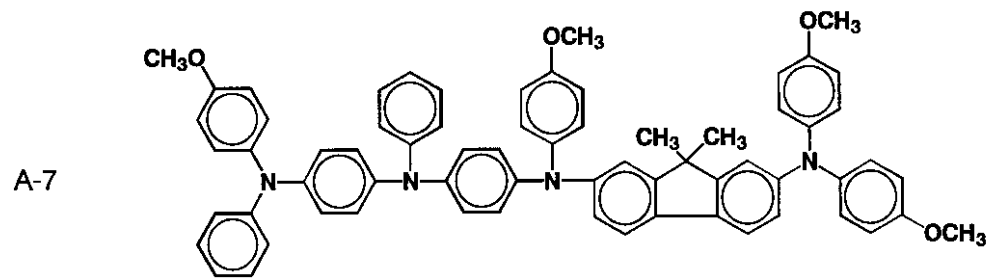
例示化合物  
番号



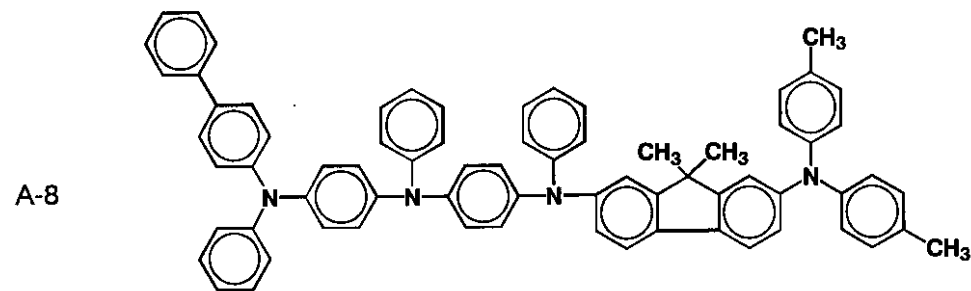
10



20



30

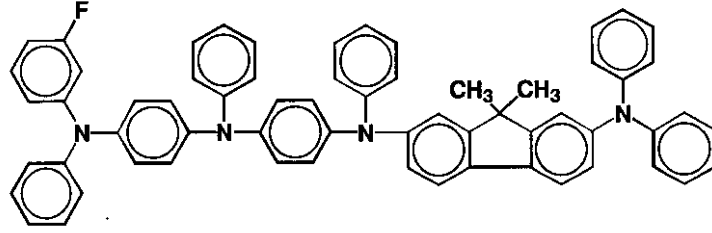


40

【 0 0 4 3 】  
【 化 1 7 】

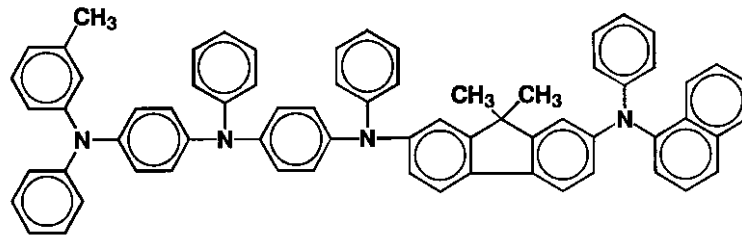
例示化合物  
番号

A-9



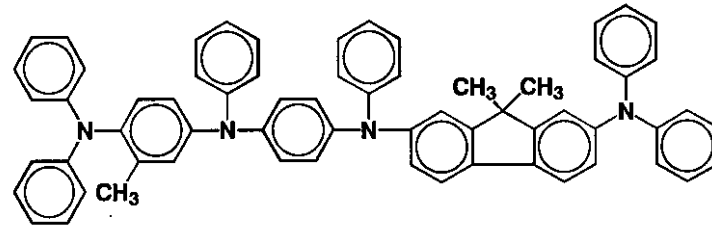
10

A-10



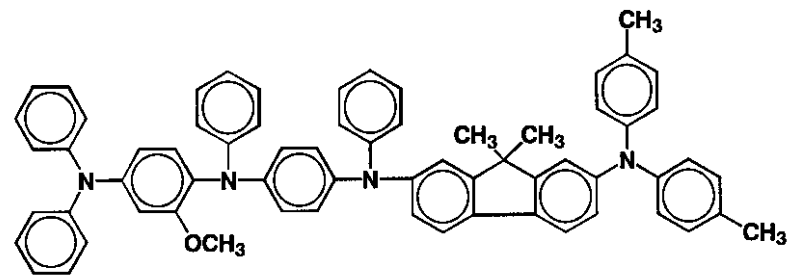
20

A-11



30

A-12



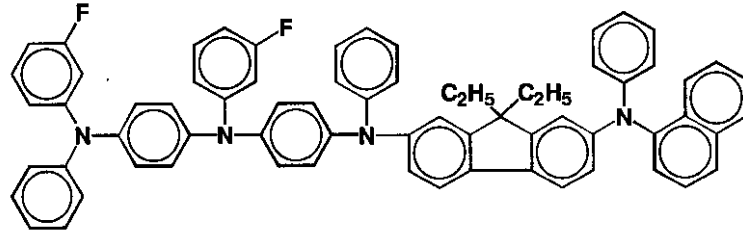
40

【 0 0 4 4 】

【 化 1 8 】

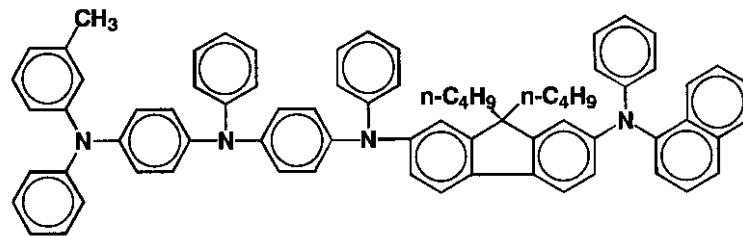
例示化合物  
番号

A-13



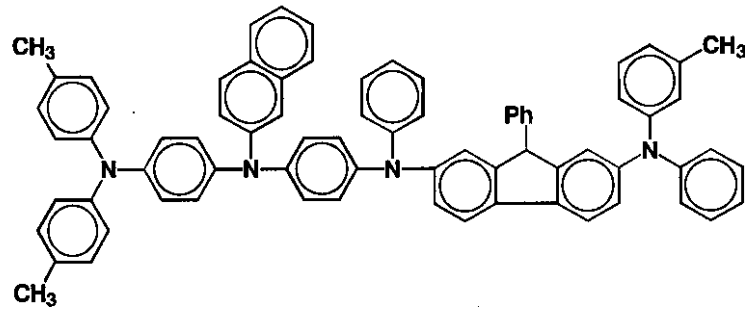
10

A-14



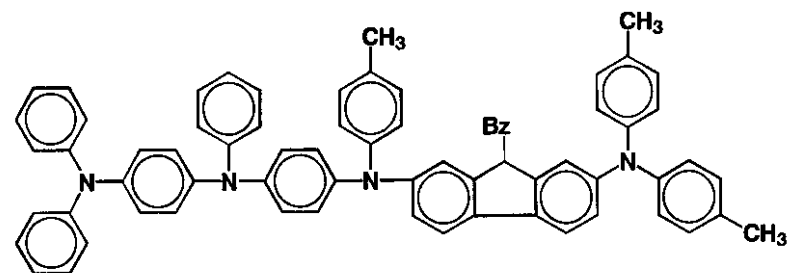
20

A-15



30

A-16



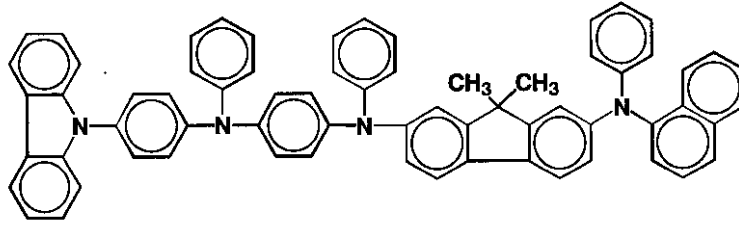
【 0 0 4 5 】

【 化 1 9 】

40

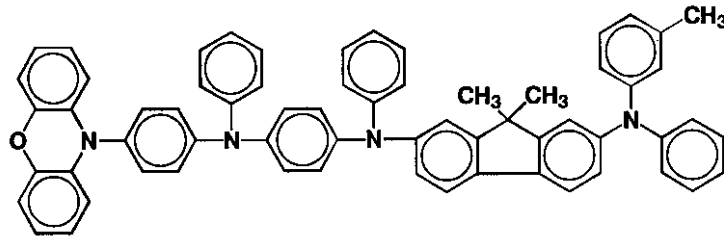
例示化合物  
番号

A-17



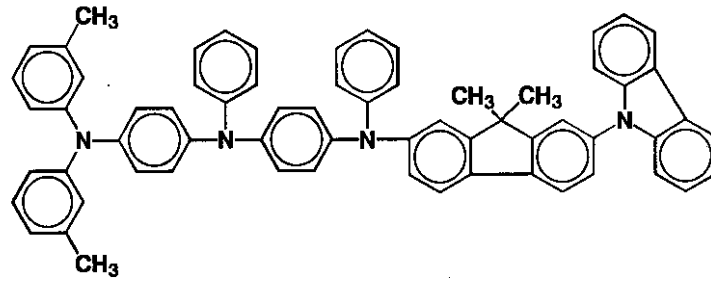
10

A-18



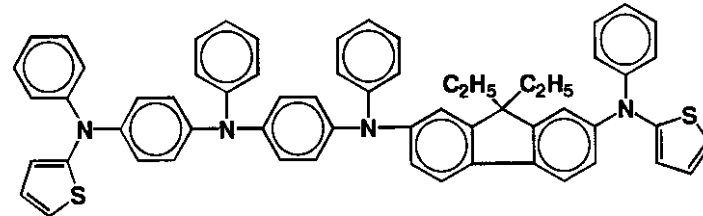
20

A-19



30

A-20



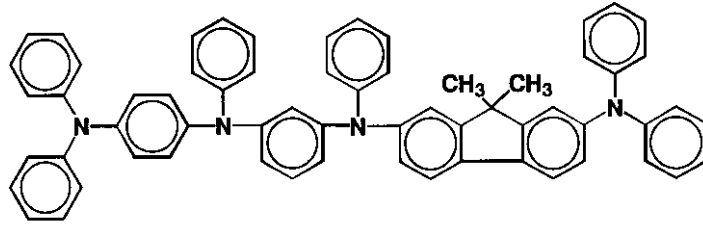
40

【 0 0 4 6 】

【 化 2 0 】

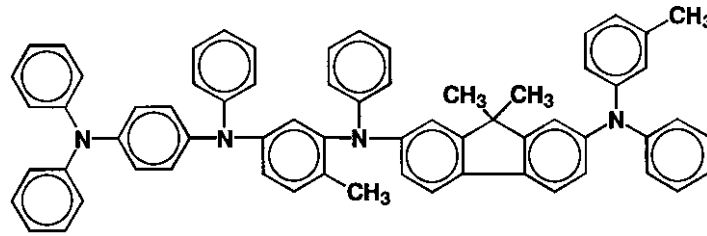
例示化合物  
番号

A-21



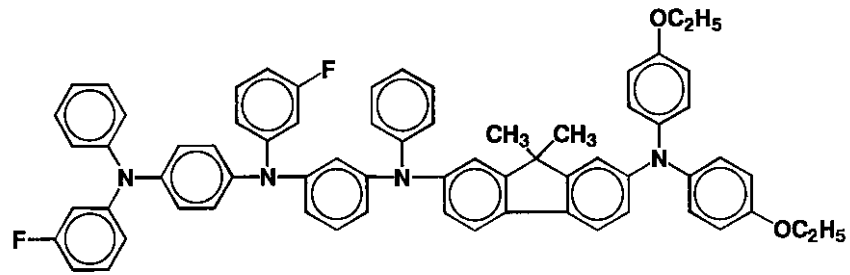
10

A-22



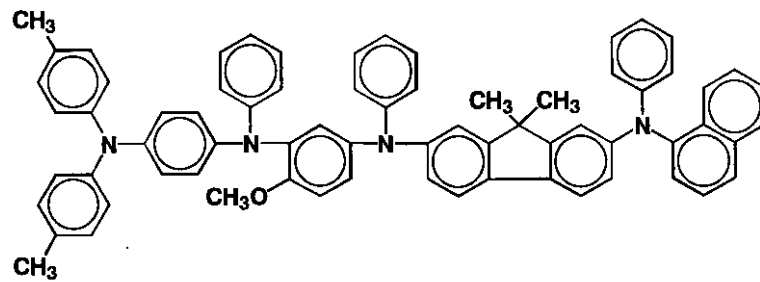
20

A-23



30

A-24

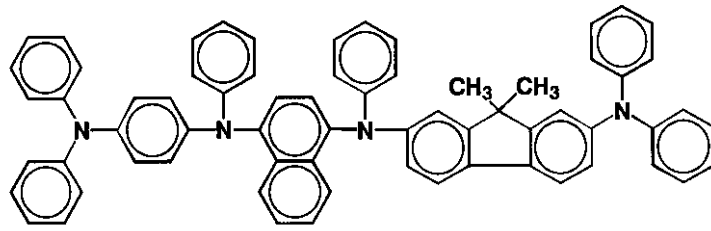


【 0 0 4 7 】  
【 化 2 1 】

40

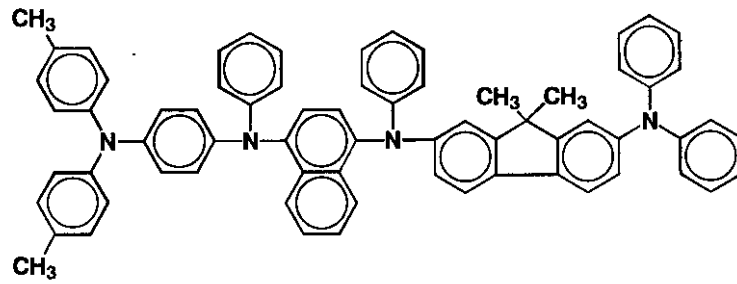
例示化合物  
番号

A-25



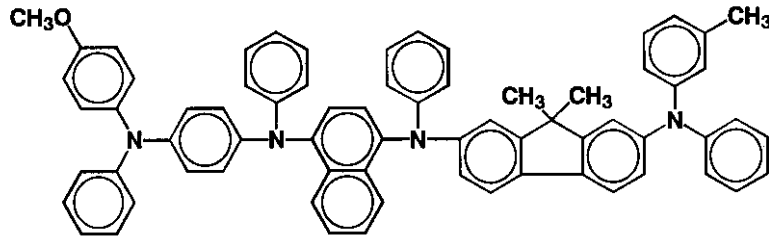
10

A-26



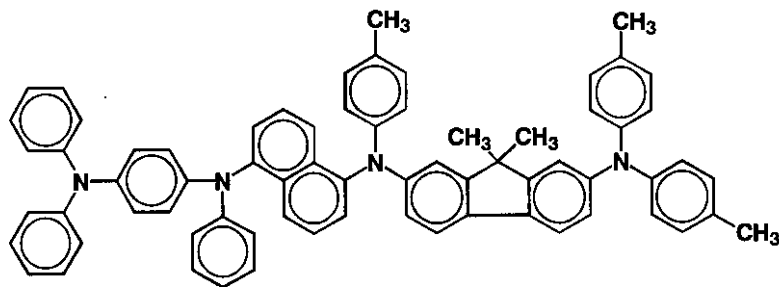
20

A-27



30

A-28

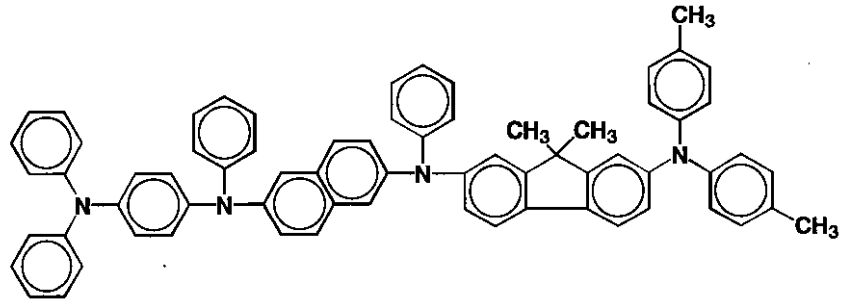


40

【 0 0 4 8 】  
【 化 2 2 】

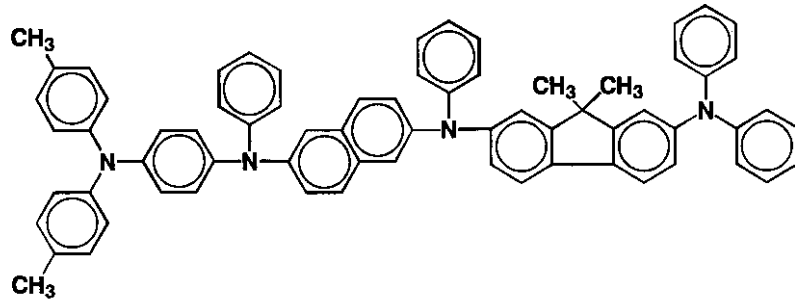
例示化合物  
番号

A-29



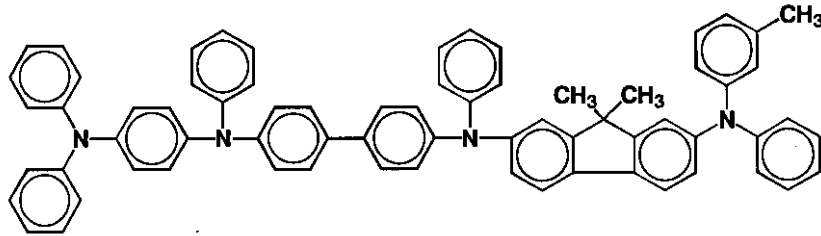
10

A-30



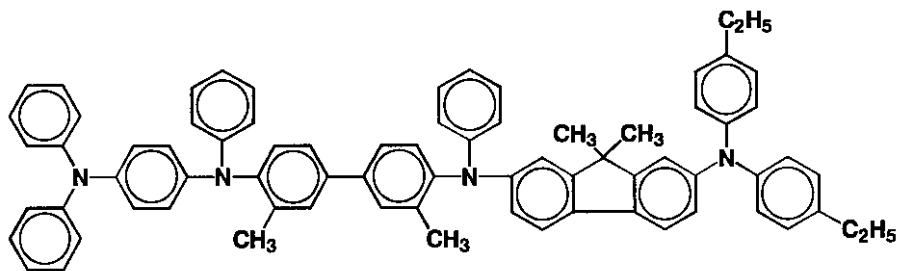
20

A-31



30

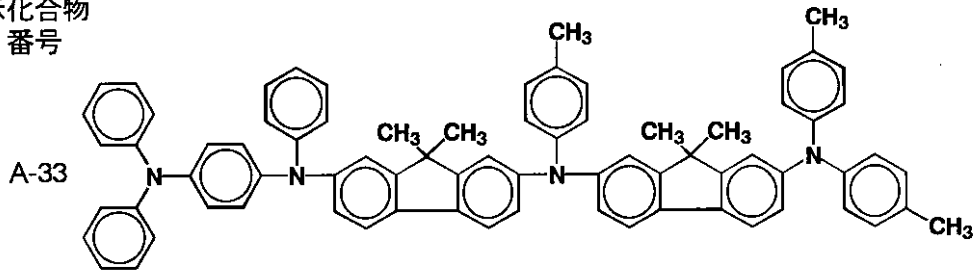
A-32



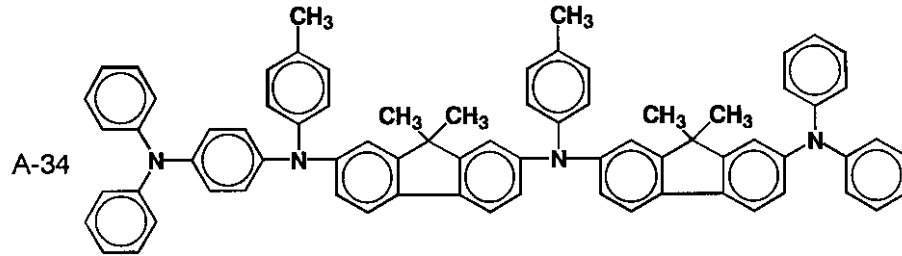
【 0 0 4 9 】  
【 化 2 3 】

40

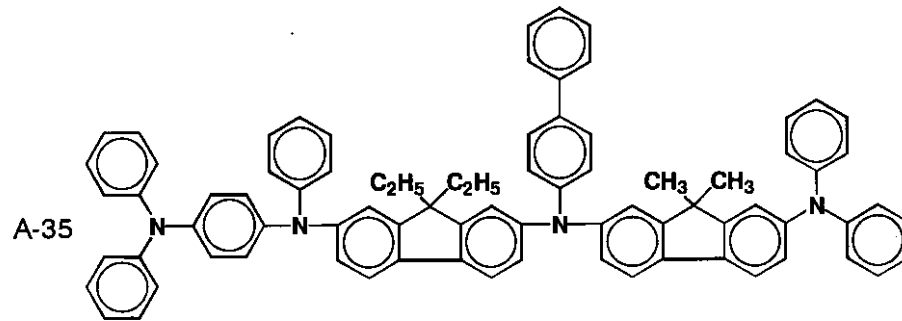
例示化合物  
番号



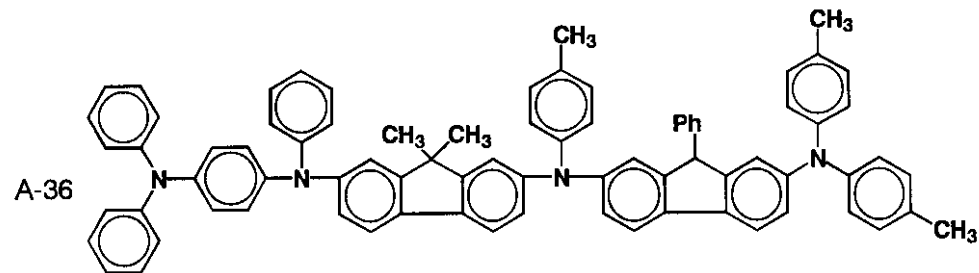
10



20



30



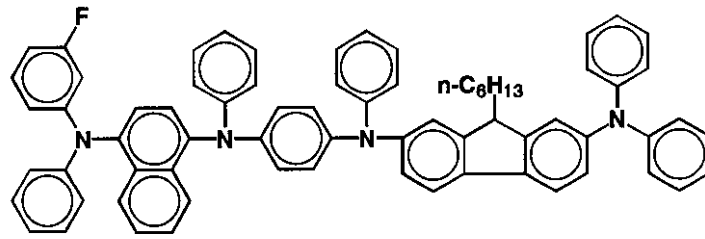
【 0 0 5 0 】  
【 化 2 4 】

40



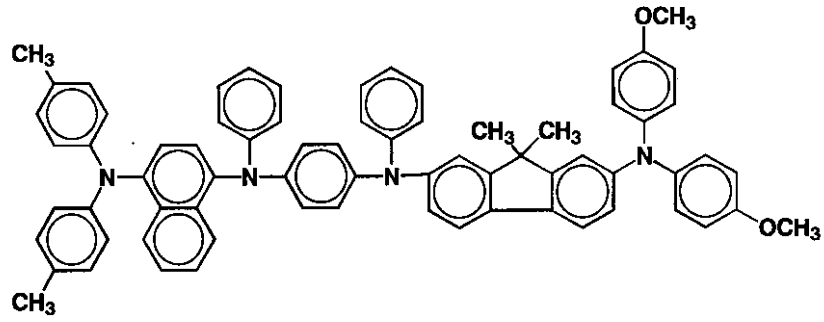
例示化合物  
番号

B-1



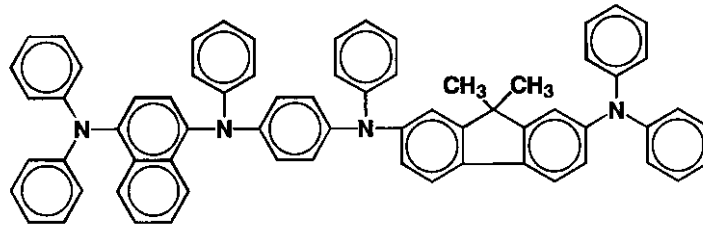
10

B-2



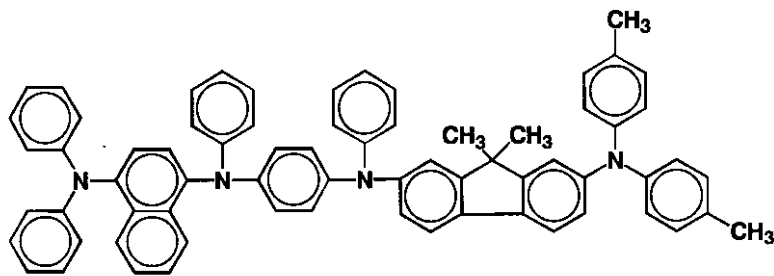
20

B-3



30

B-4

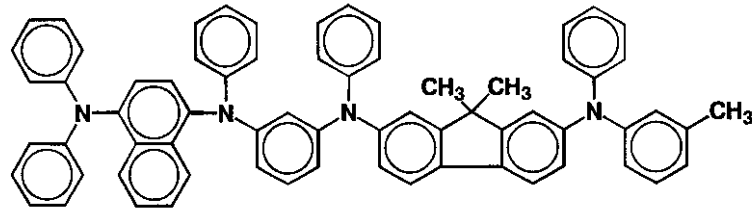


【 0 0 5 1 】  
【 化 2 5 】

40

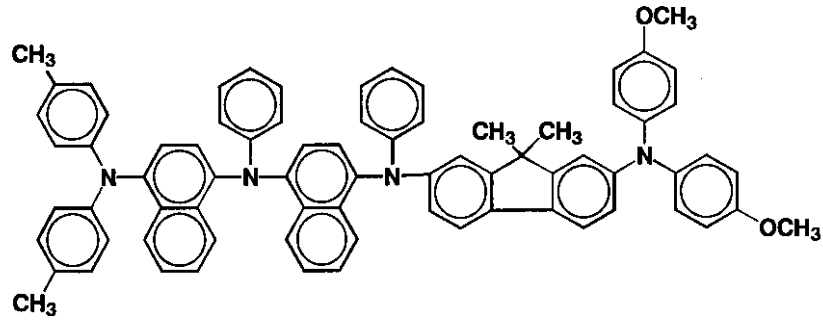
例示化合物  
番号

B-5



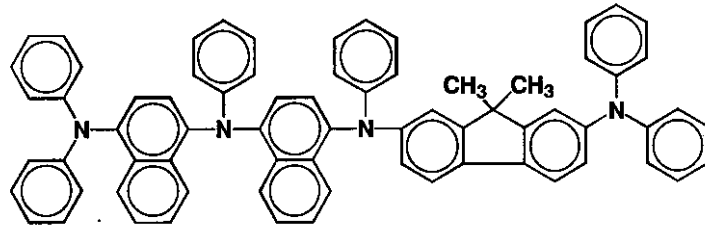
10

B-6



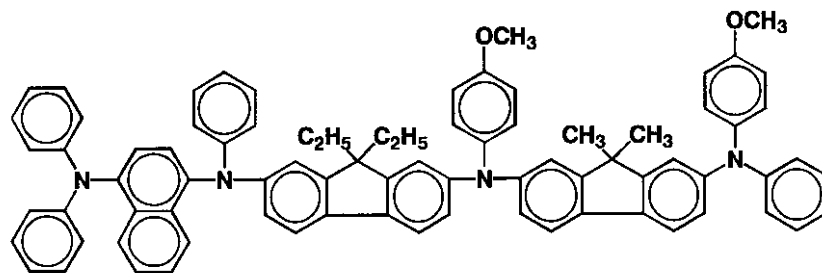
20

B-7



30

B-8

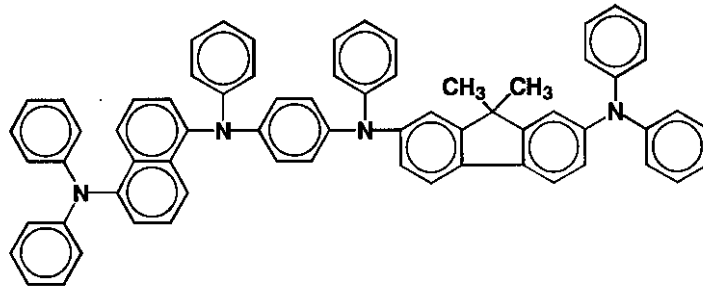


40

【 0 0 5 2 】  
【 化 2 6 】

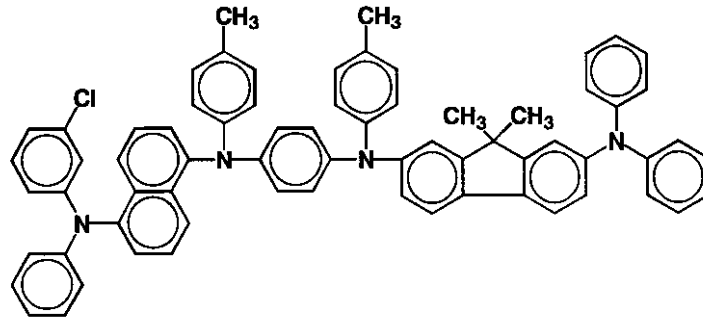
例示化合物  
番号

C-1



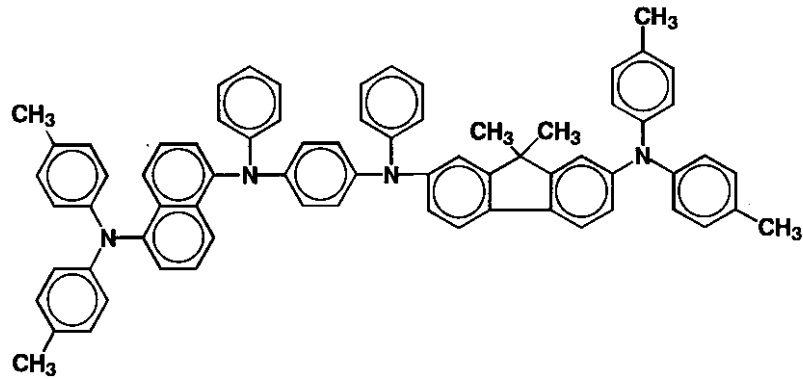
10

C-2



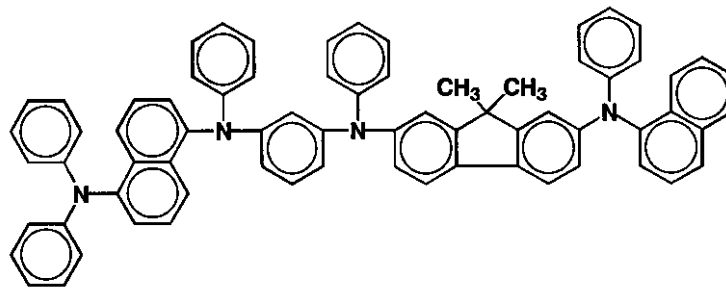
20

C-3



30

C-4

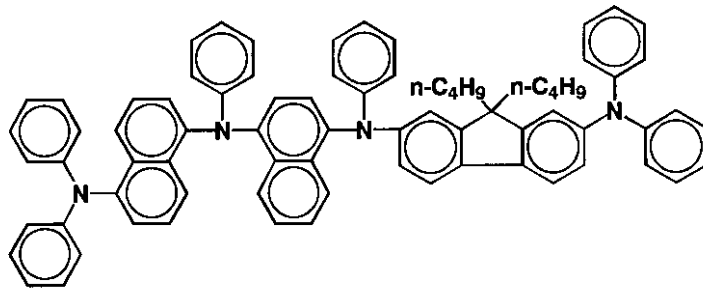


【 0 0 5 3 】  
【 化 2 7 】

40

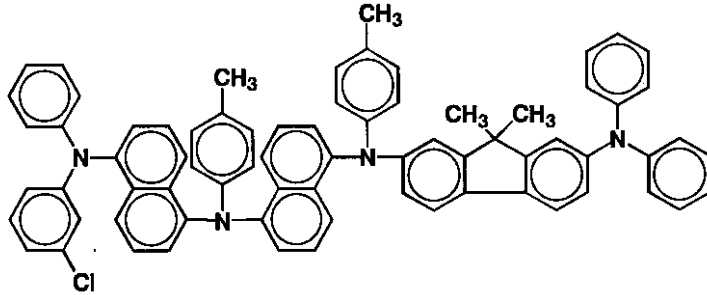
例示化合物  
番号

C-5



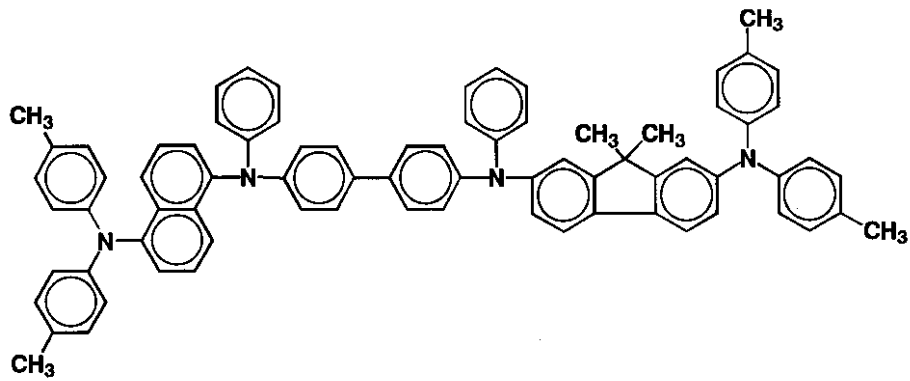
10

C-6



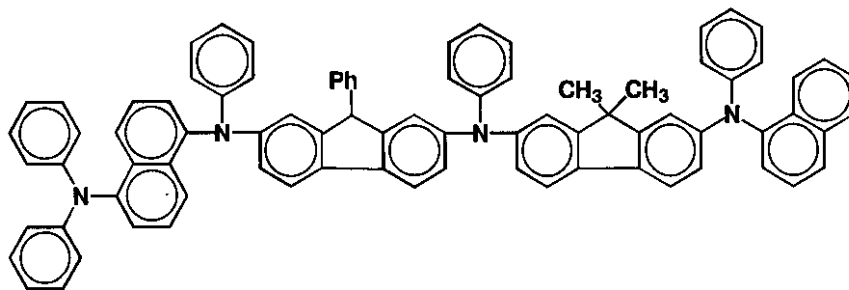
20

C-7



30

C-8

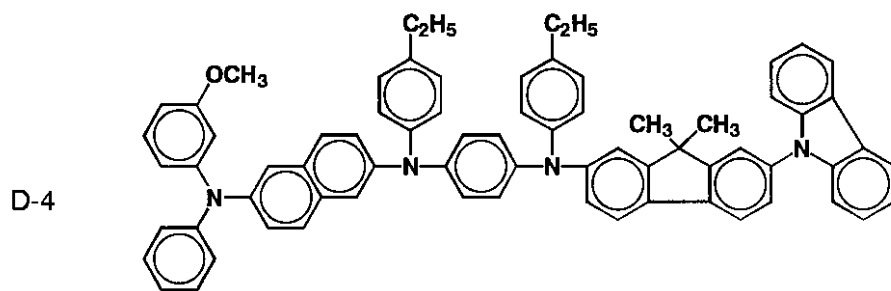
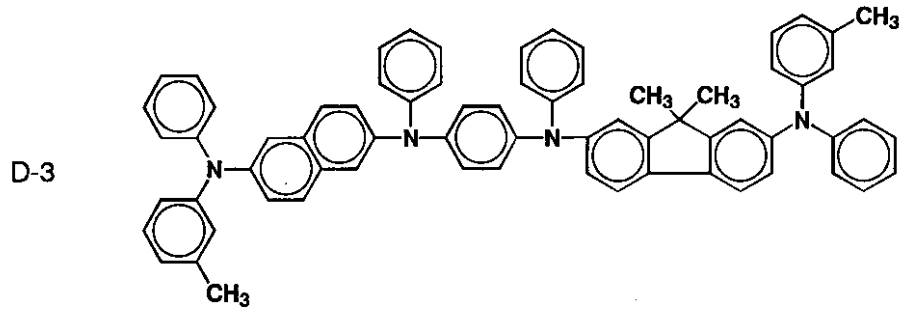
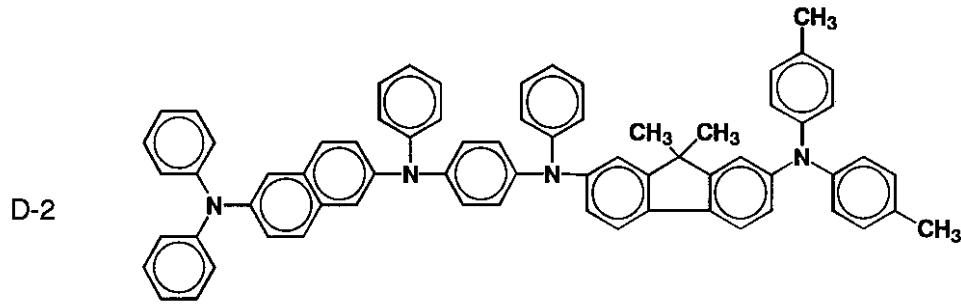
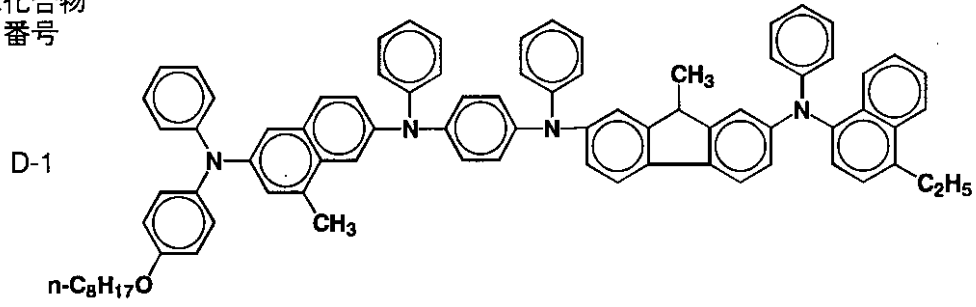


40

【 0 0 5 4 】

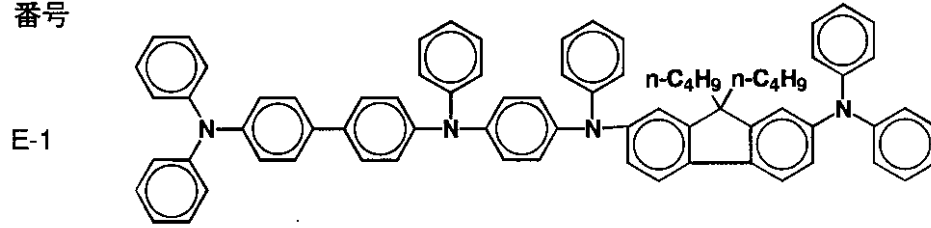
【 化 2 8 】

例示化合物  
番号

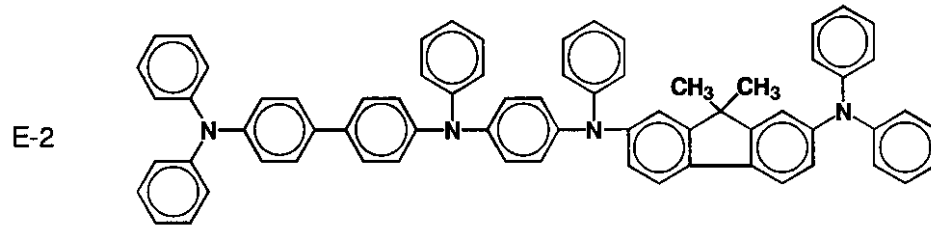


【 0 0 5 5 】  
【 化 2 9 】

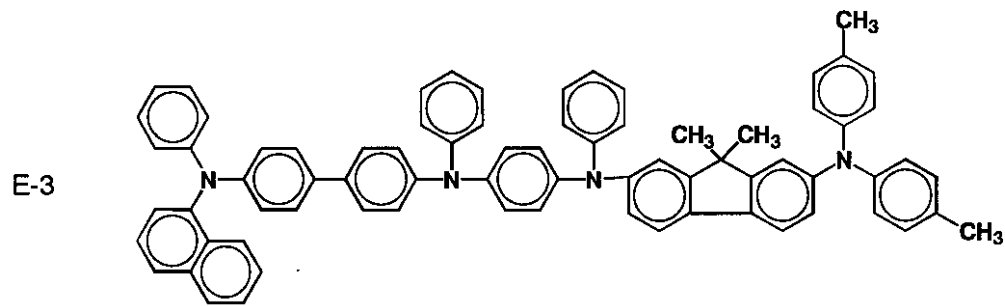
例示化合物  
番号



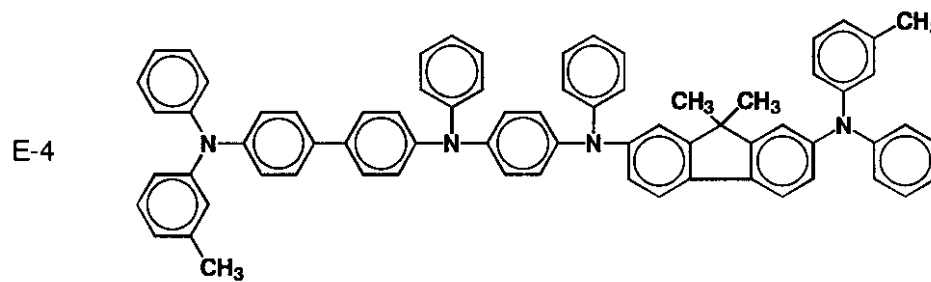
10



20



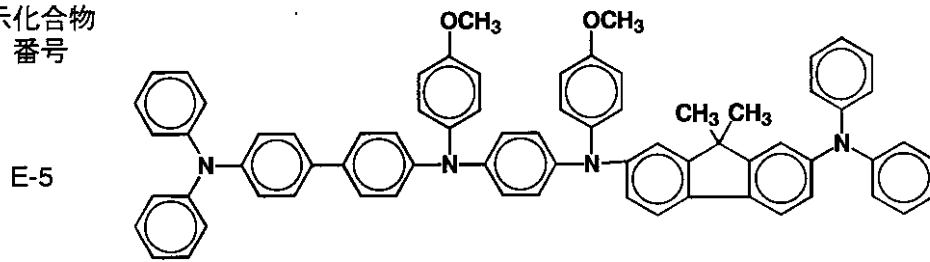
30



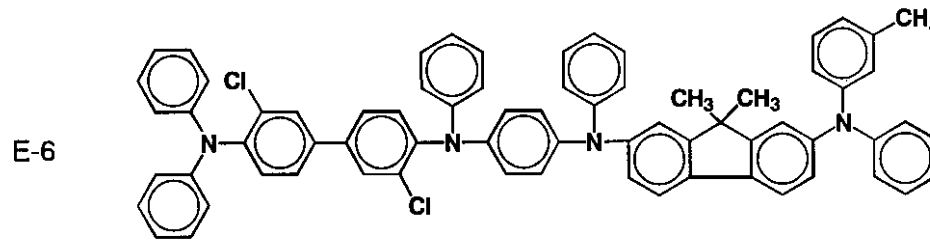
40

【 0 0 5 6 】  
【 化 3 0 】

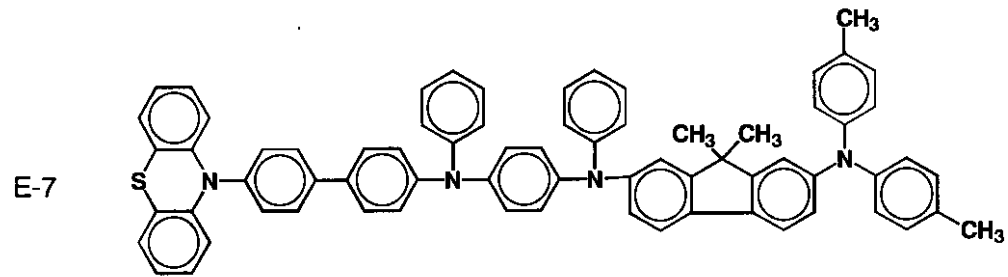
例示化合物  
番号



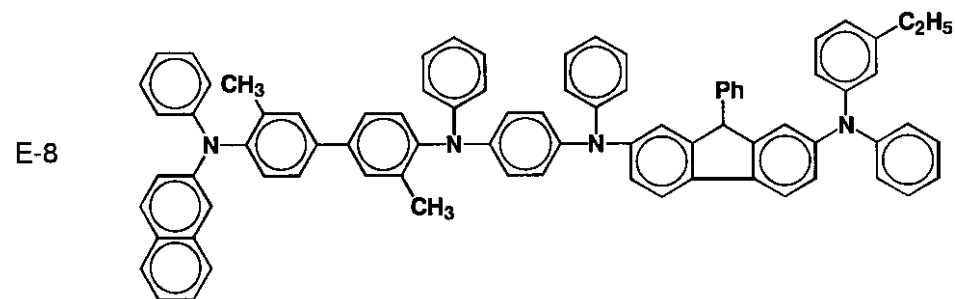
10



20



30

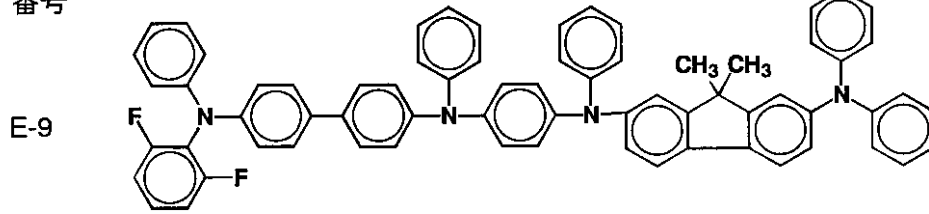


40

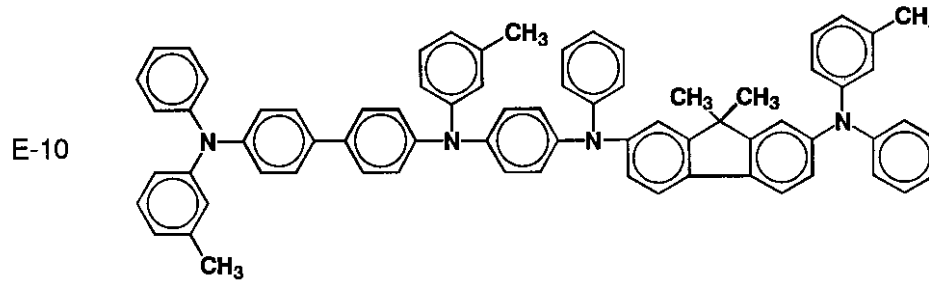
【 0 0 5 7 】

【 化 3 1 】

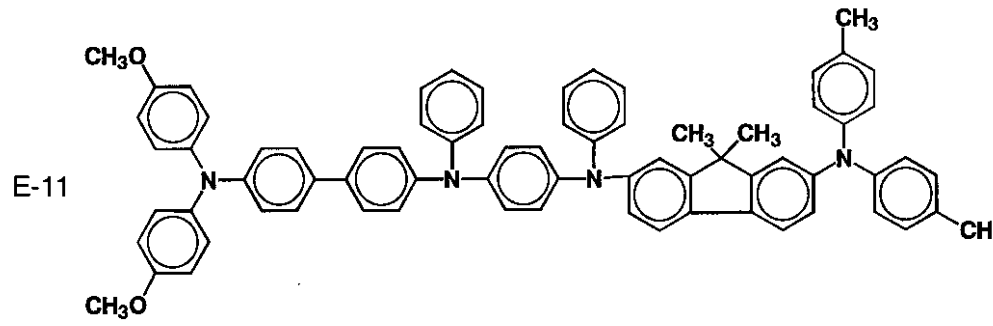
例示化合物  
番号



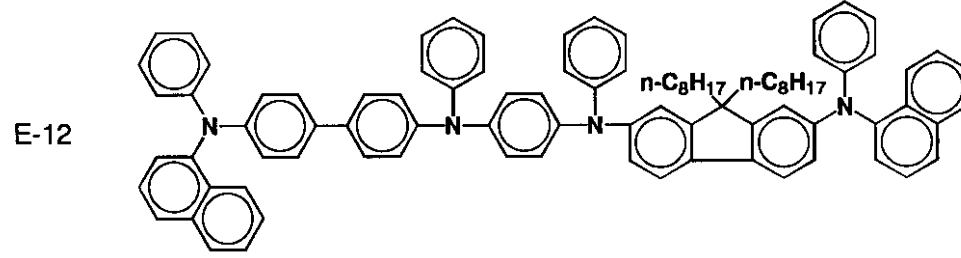
10



20



30

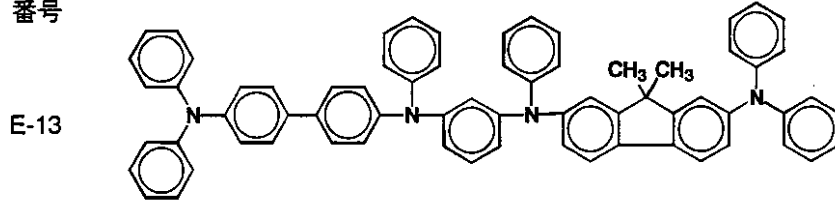


40

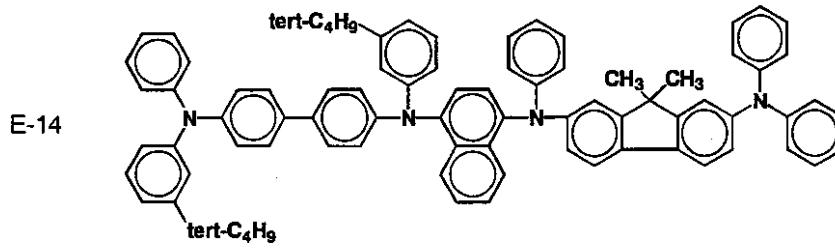
【 0 0 5 8 】  
【 化 3 2 】



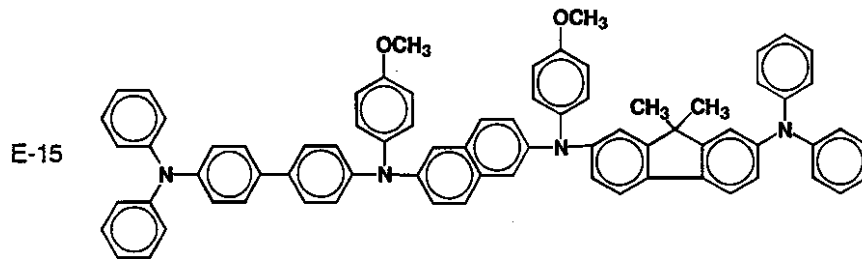
例示化合物  
番号



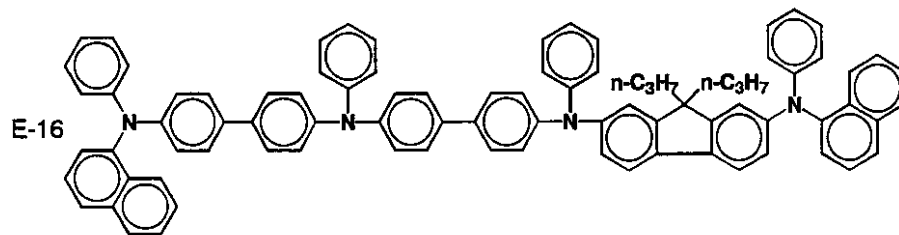
10



20



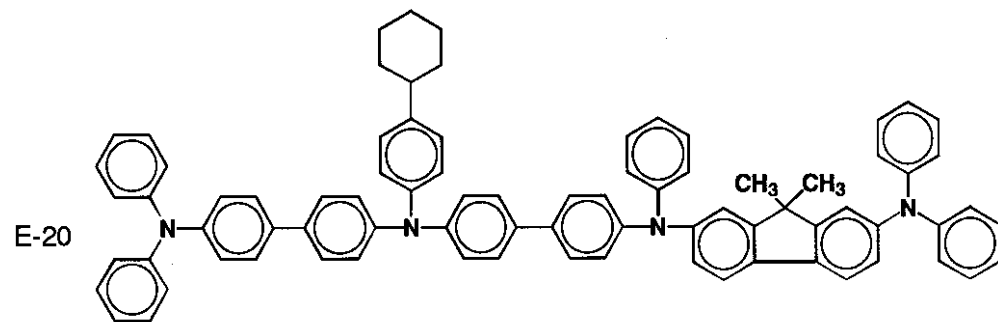
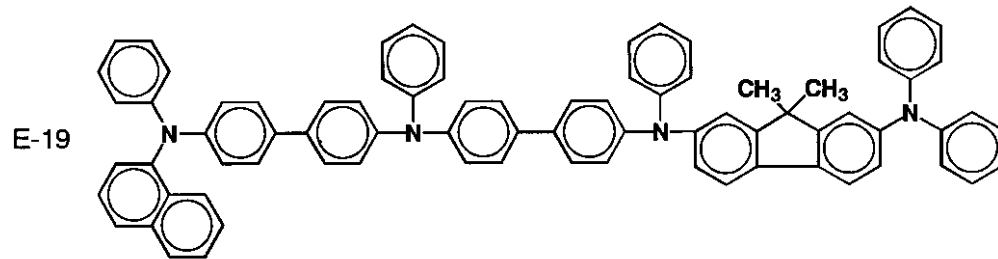
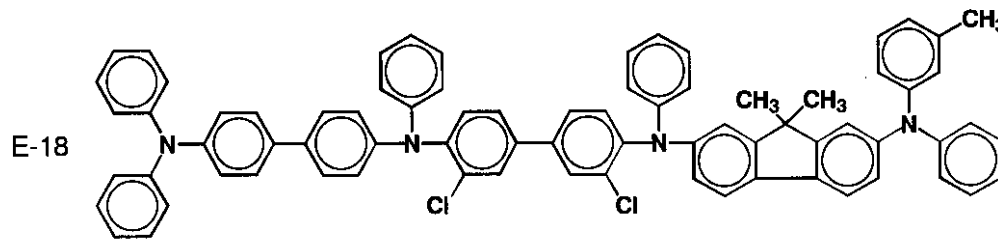
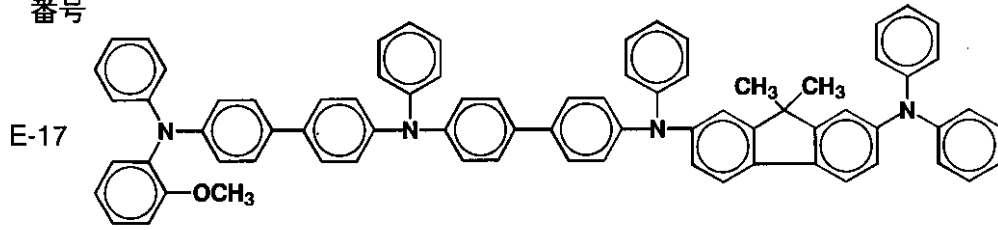
30



【 0 0 5 9 】

【 化 3 3 】

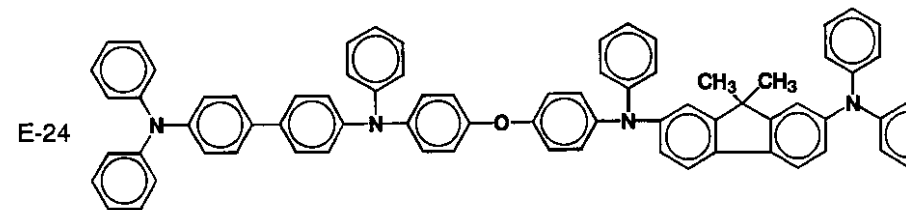
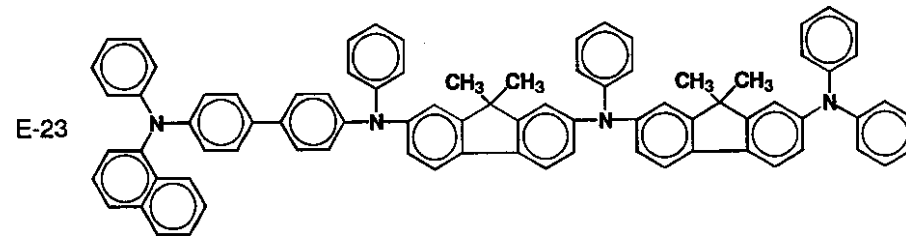
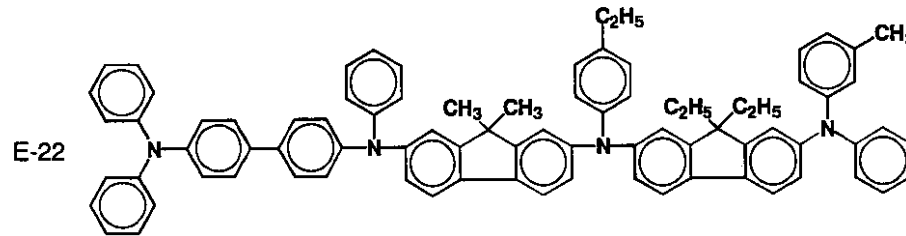
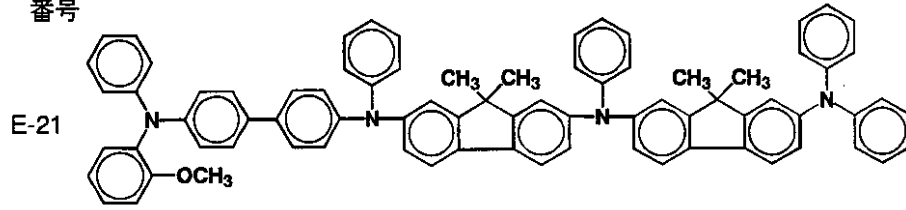
例示化合物  
番号



【 0 0 6 0 】

【 化 3 4 】

例示化合物  
番号



10

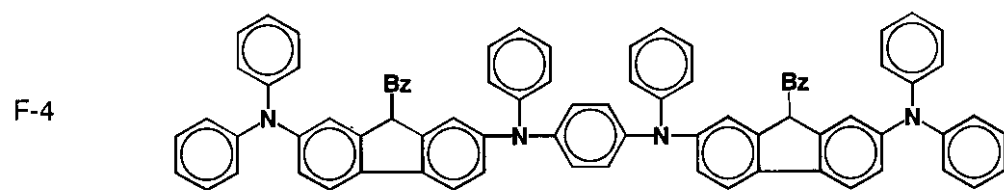
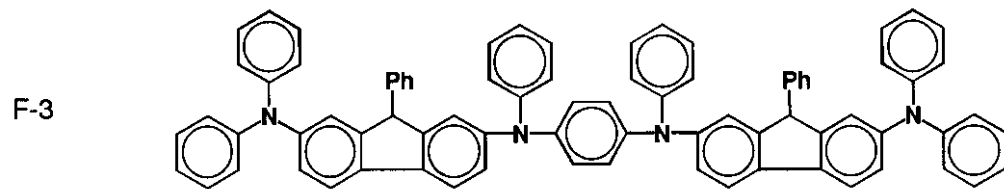
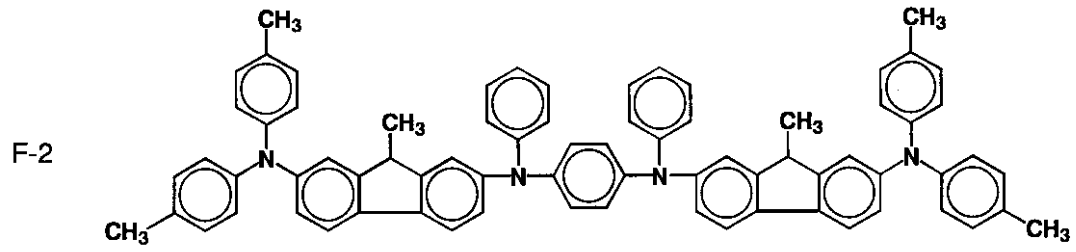
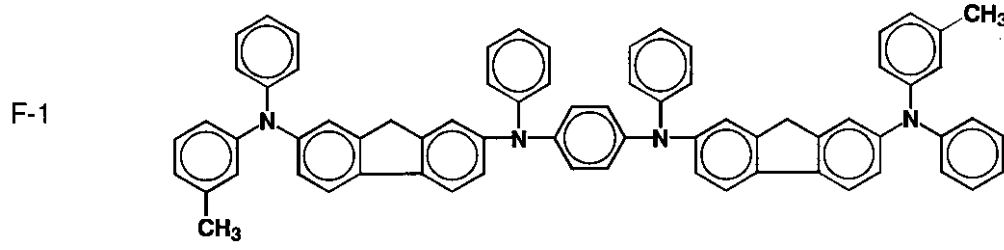
20

30

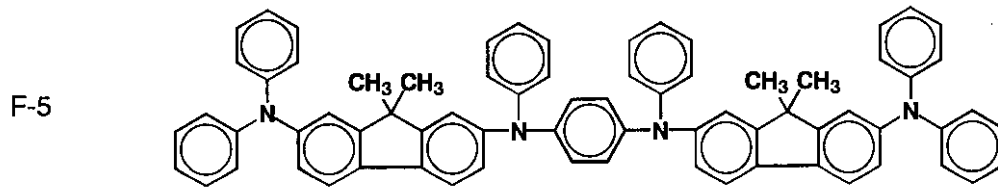
【 0 0 6 1 】

【 化 3 5 】

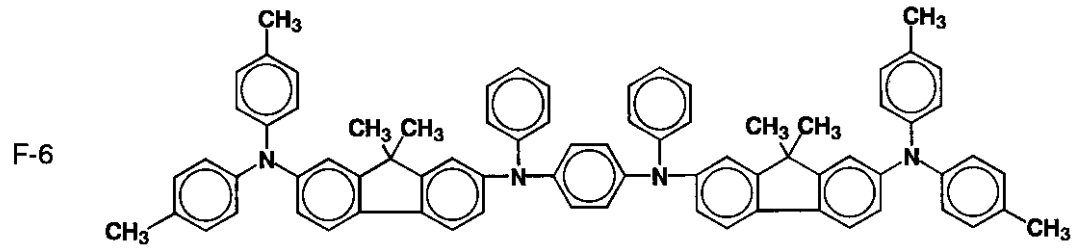
例示化合物  
番号



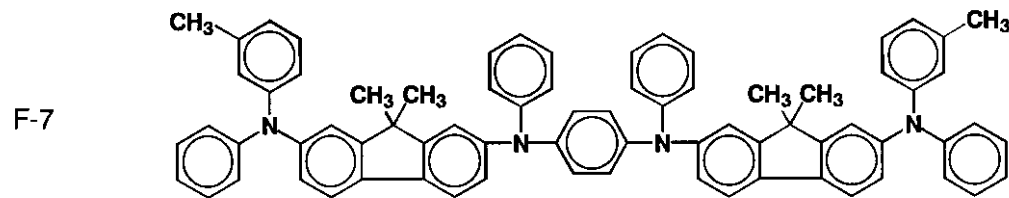
例示化合物  
番号



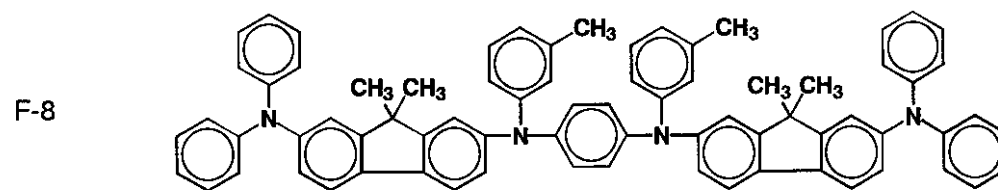
10



20

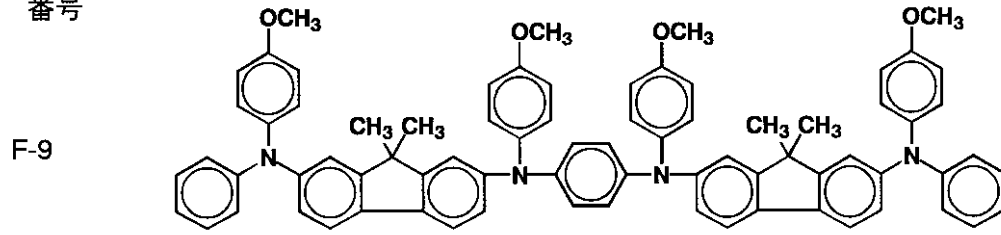


30

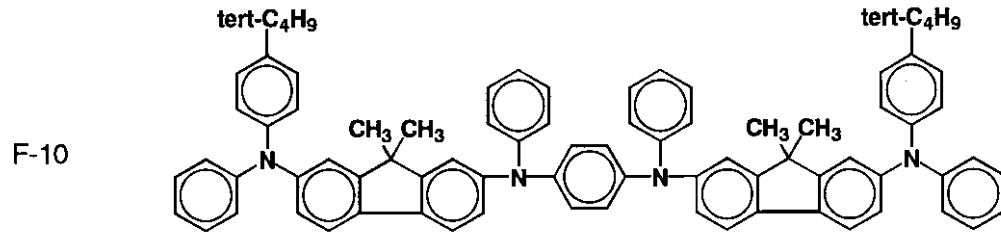


【 0 0 6 3 】  
【 化 3 7 】

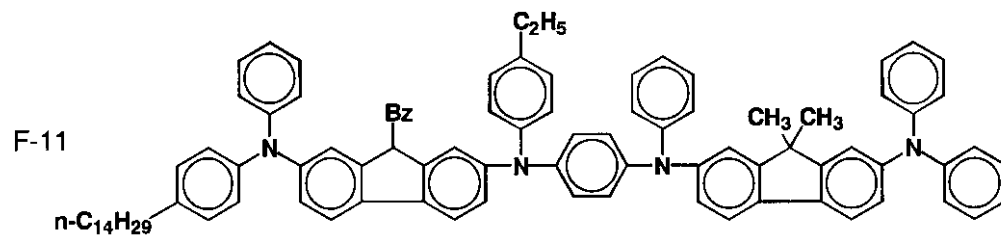
例示化合物  
番号



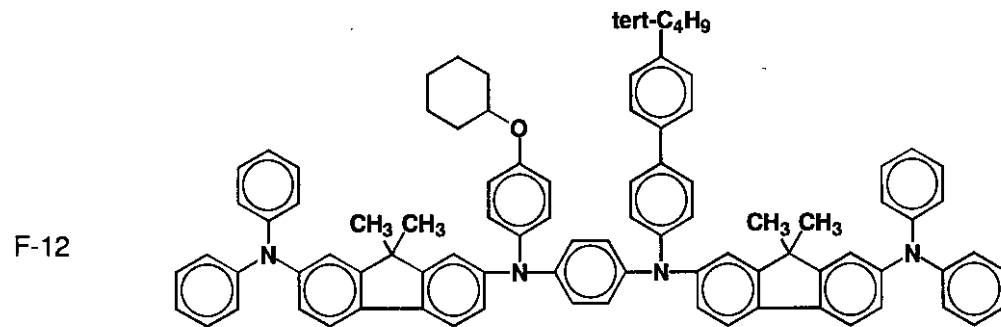
10



20

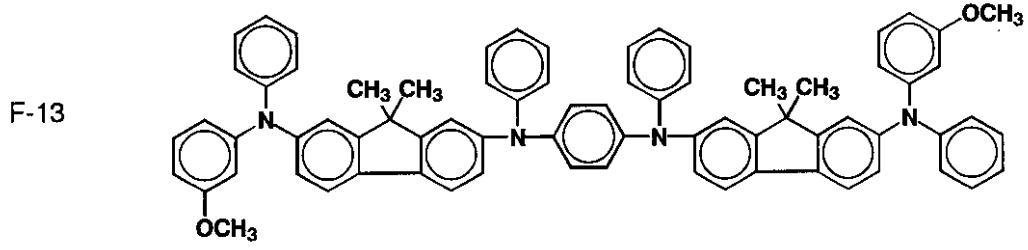


30

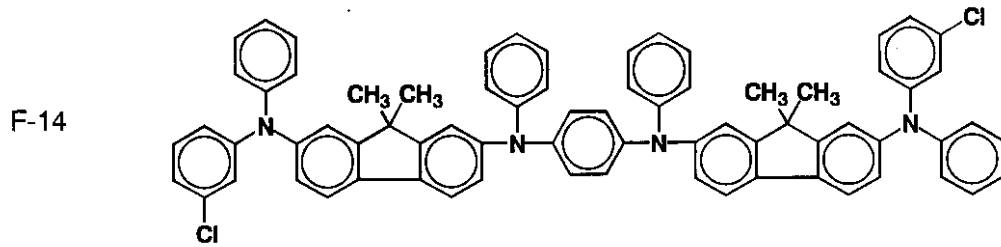


【 0 0 6 4 】  
【 化 3 8 】

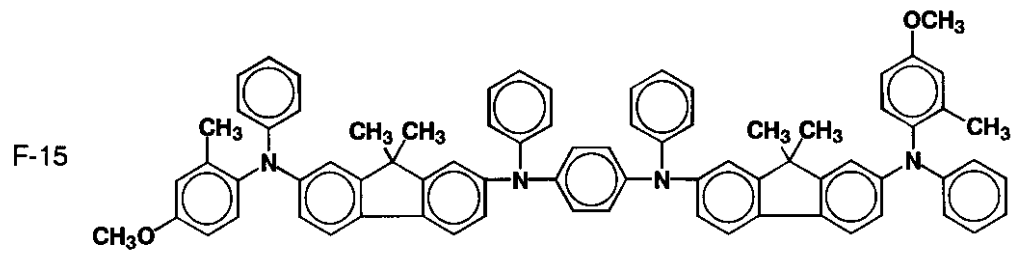
例示化合物  
番号



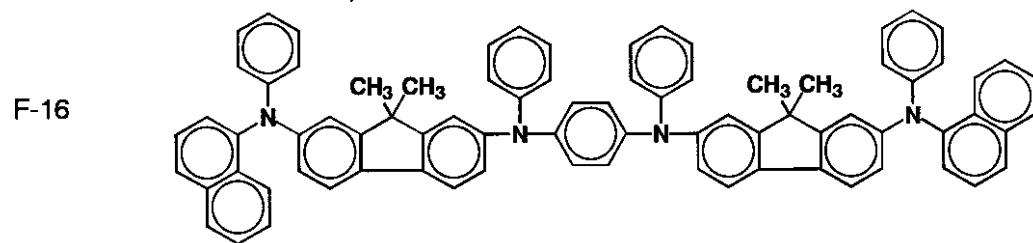
10



20



30

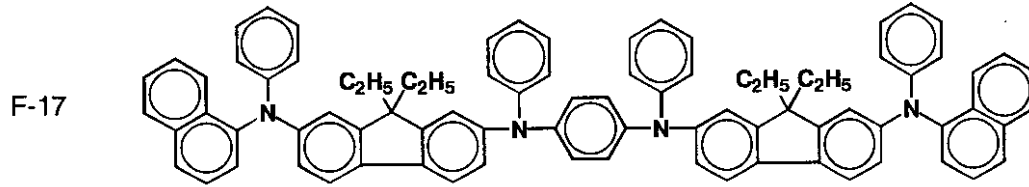


【 0 0 6 5 】

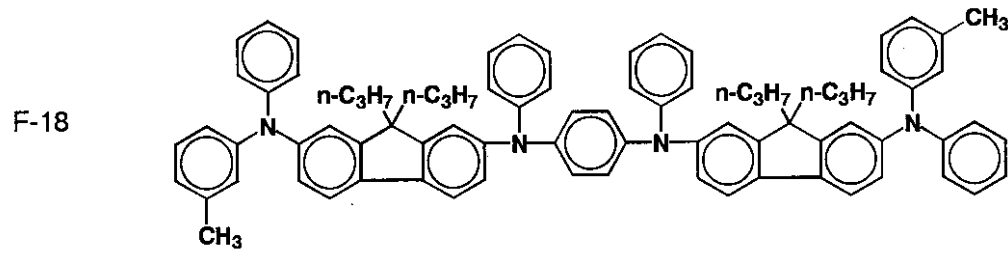
【 化 3 9 】

40

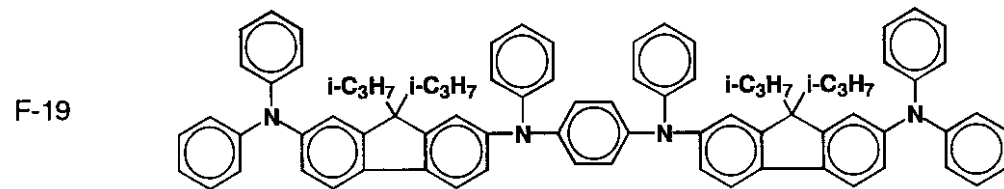
例示化合物  
番号



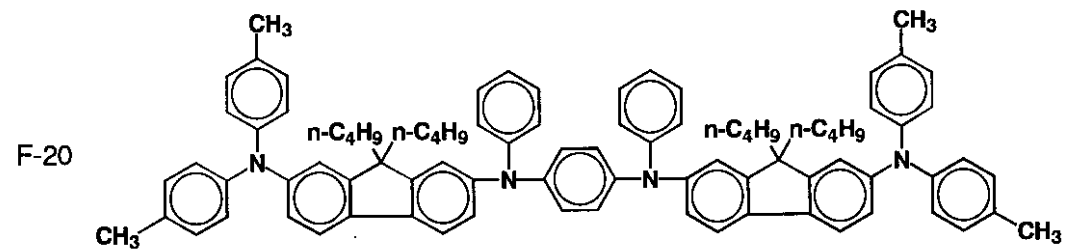
10



20



30



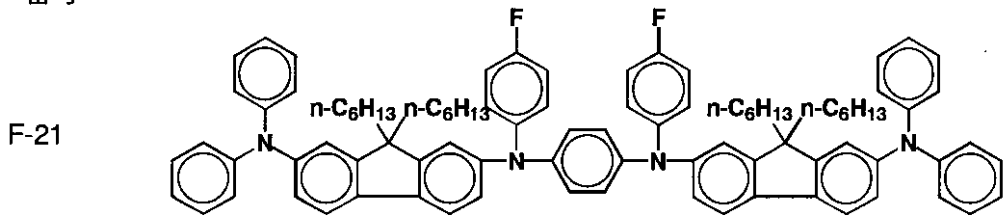
【 0 0 6 6 】

【 化 4 0 】

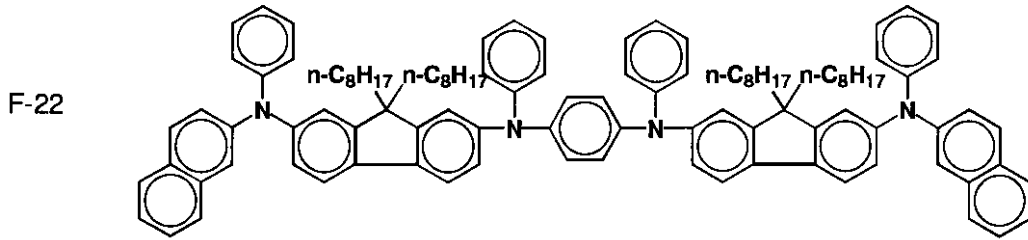
40



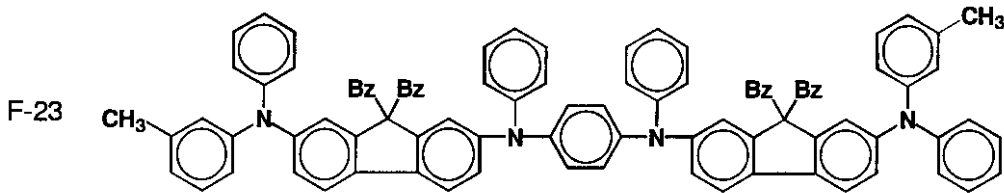
例示化合物  
番号



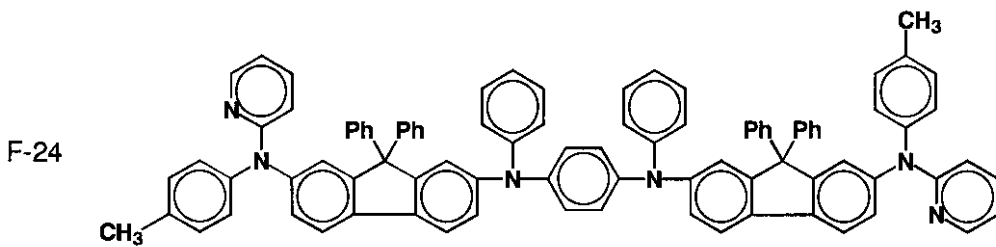
10



20



30

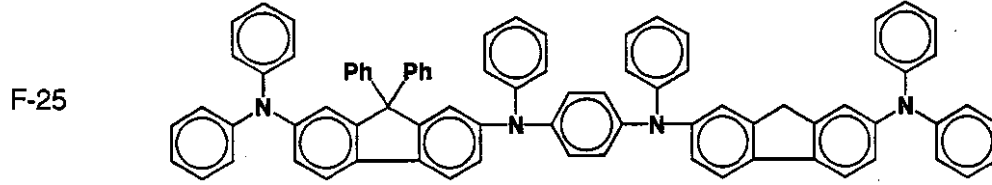


【 0 0 6 7 】

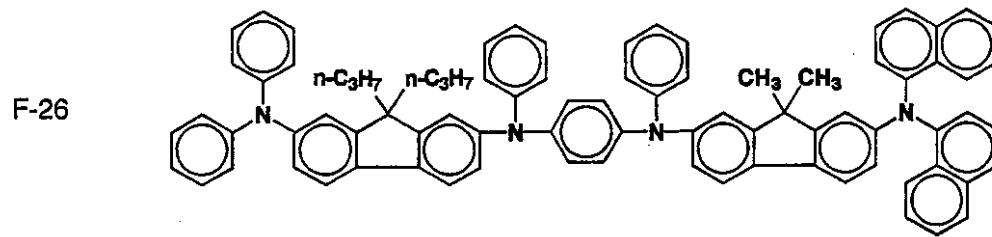
【 化 4 1 】

40

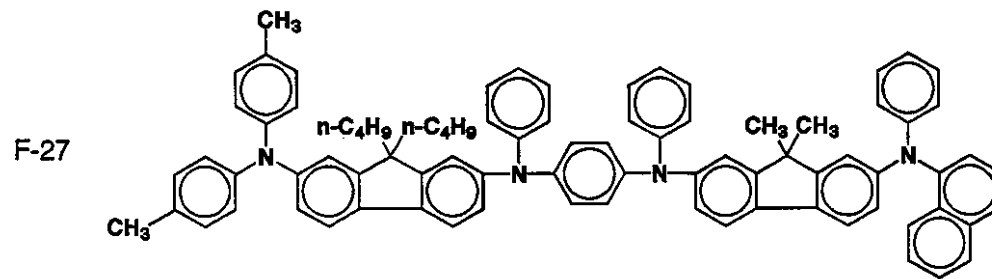
例示化合物  
番号



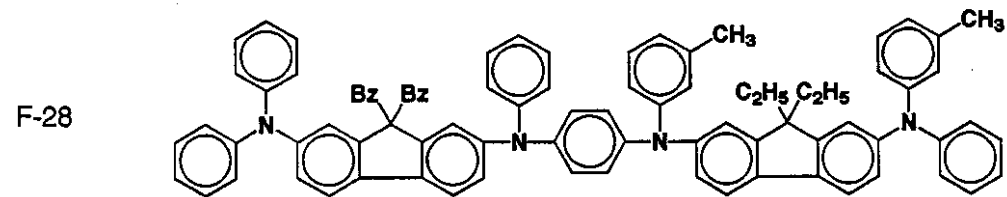
10



20

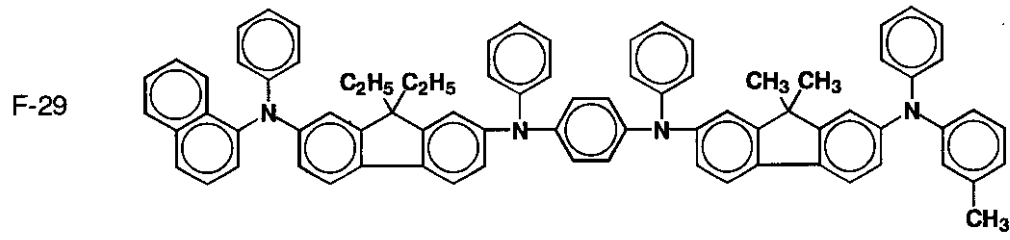


30

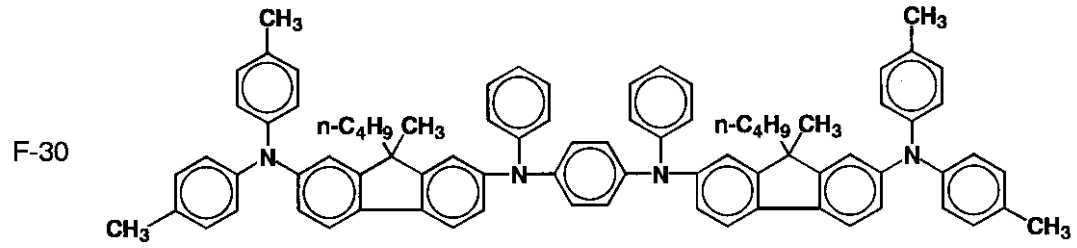


【 0 0 6 8 】  
【 化 4 2 】

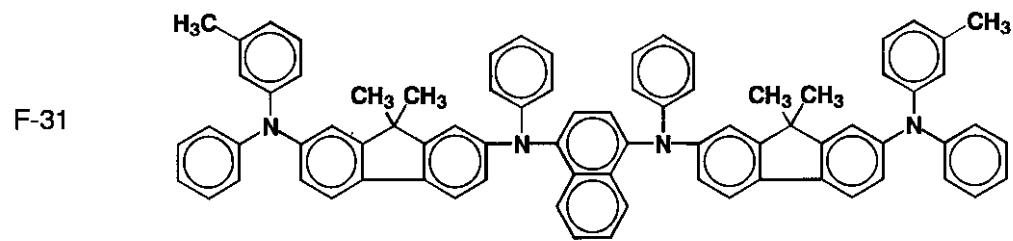
例示化合物  
番号



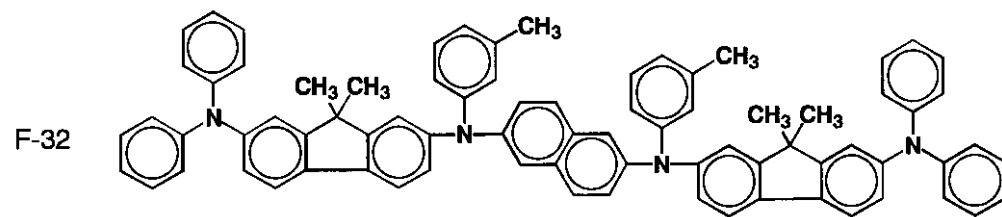
10



20



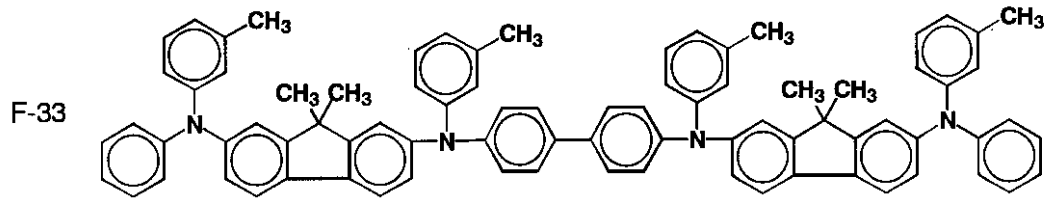
30



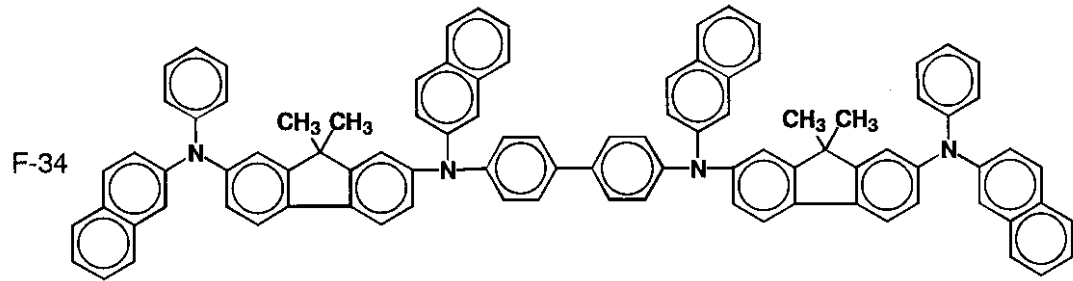
【 0 0 6 9 】

【 化 4 3 】

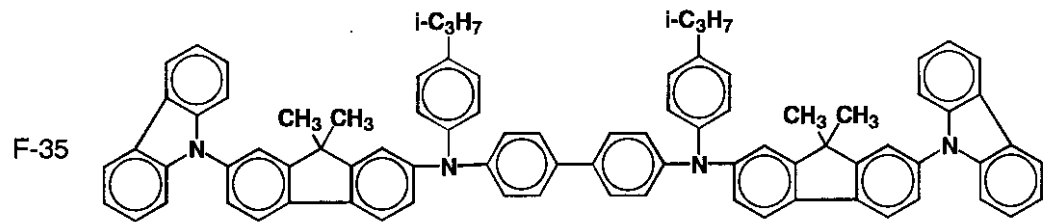
例示化合物  
番号



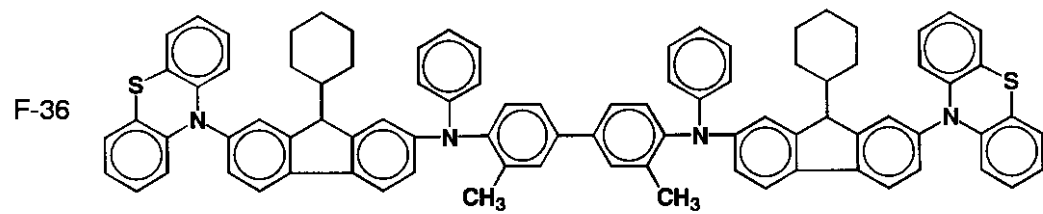
10



20

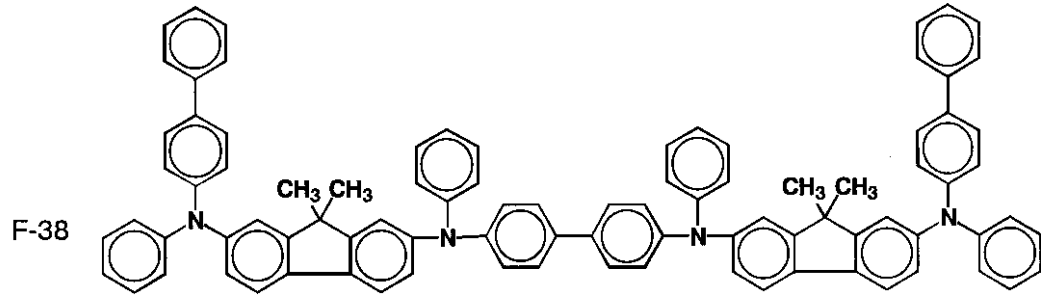
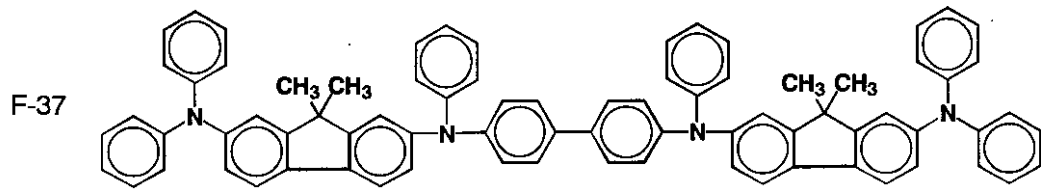


30

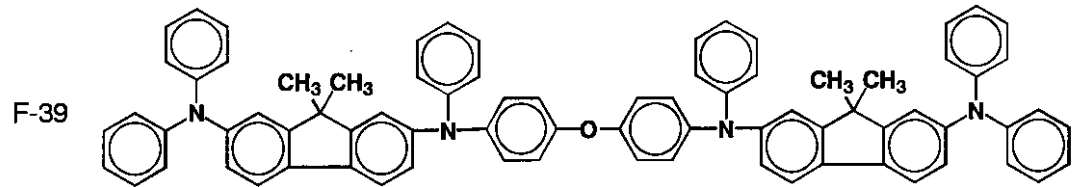


【 0 0 7 0 】  
【 化 4 4 】

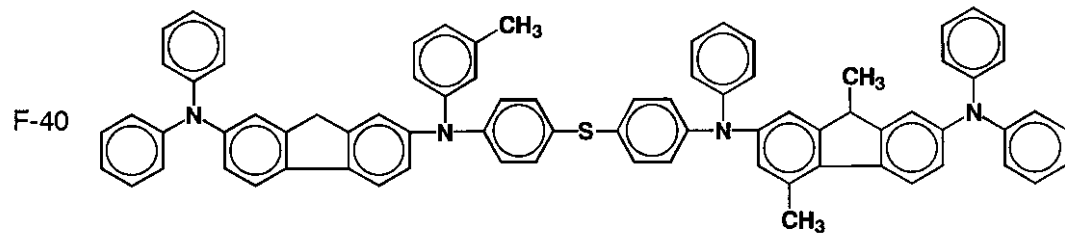
例示化合物  
番号



10



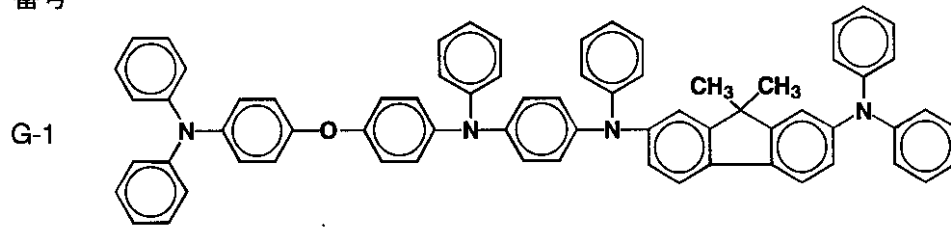
20



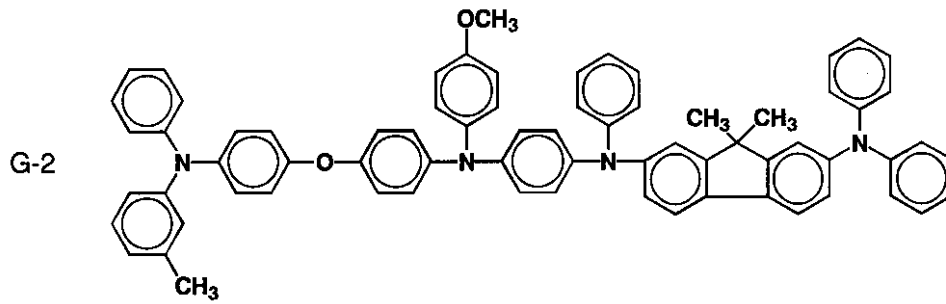
30

【 0 0 7 1 】  
【 化 4 5 】

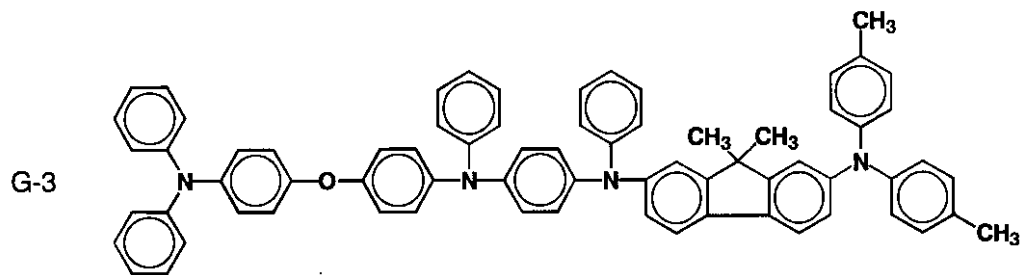
例示化合物  
番号



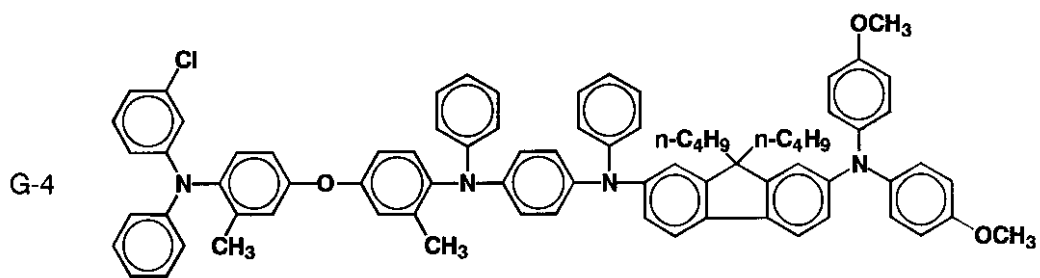
10



20



30

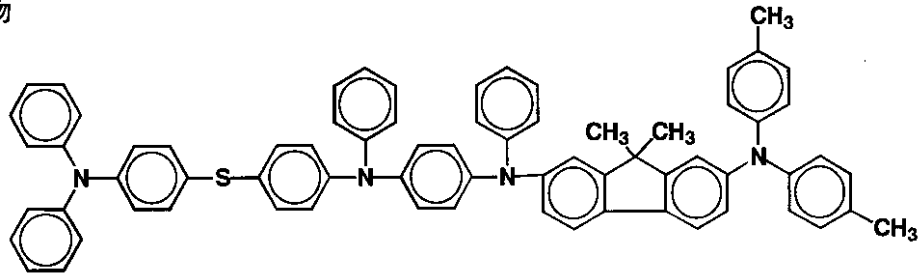


【 0 0 7 2 】

【 化 4 6 】

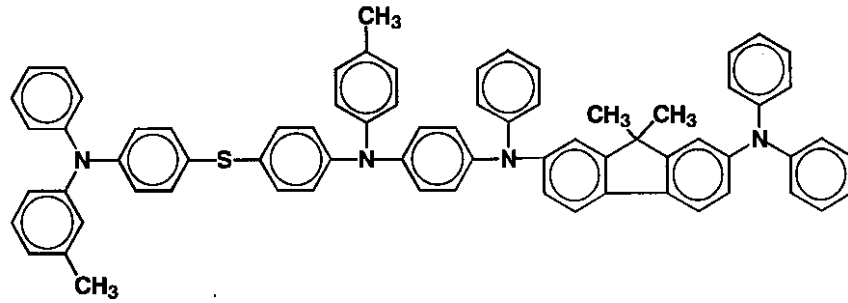
例示化合物  
番号

H-1



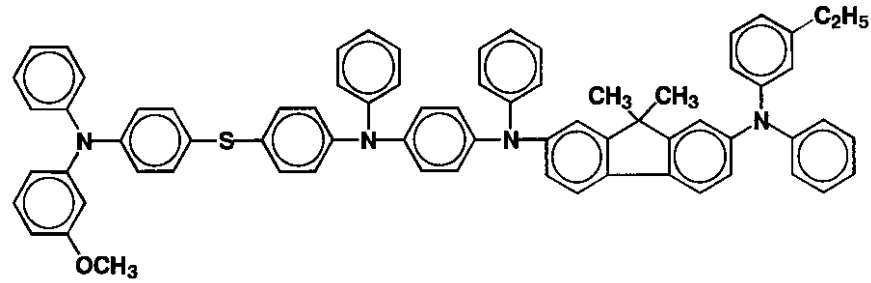
10

H-2



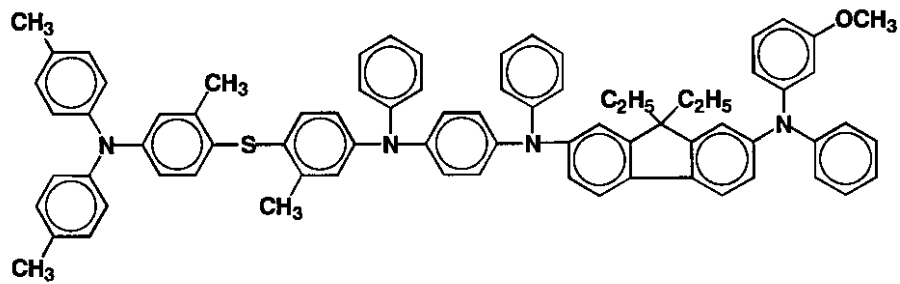
20

H-3



30

H-4

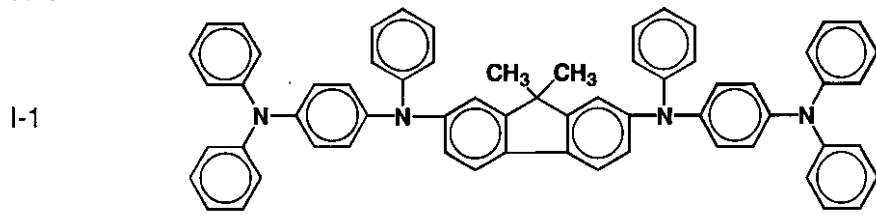


【 0 0 7 3 】

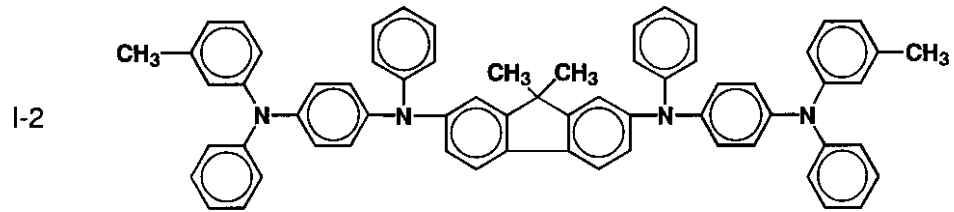
【 化 4 7 】

40

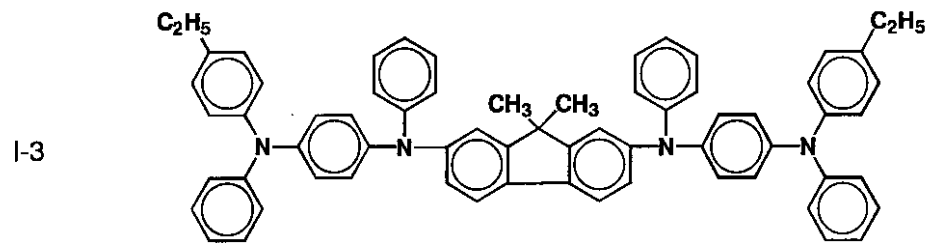
例示化合物  
番号



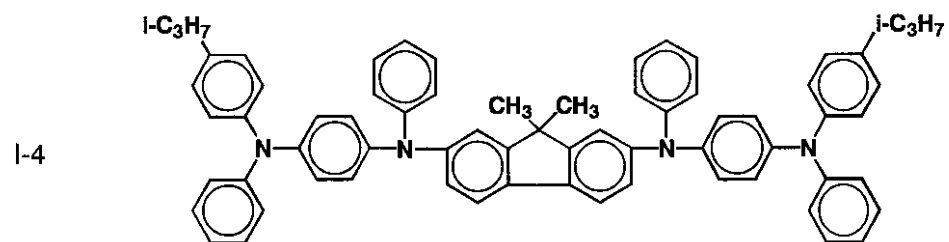
10



20



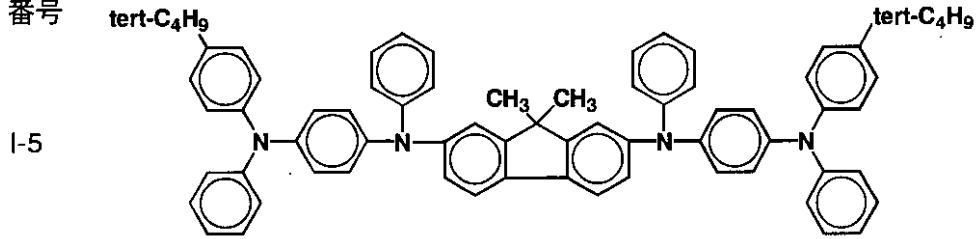
30



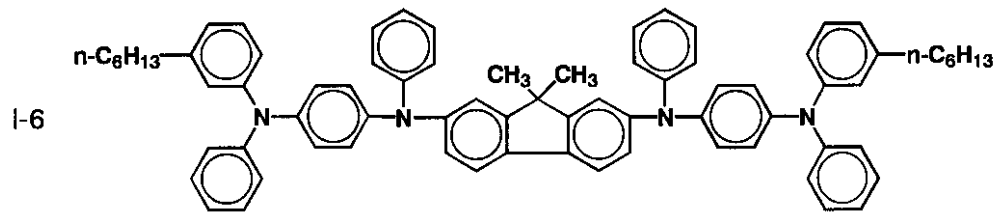
【 0 0 7 4 】  
【 化 4 8 】



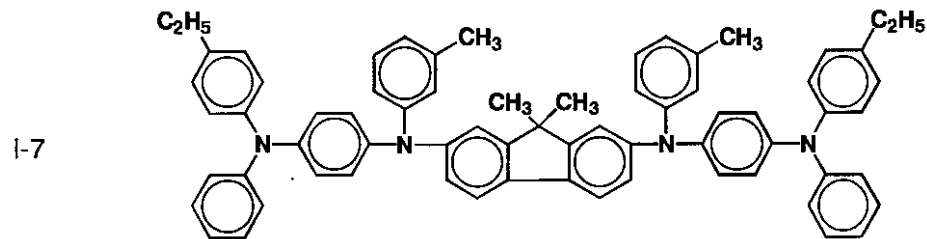
例示化合物  
番号



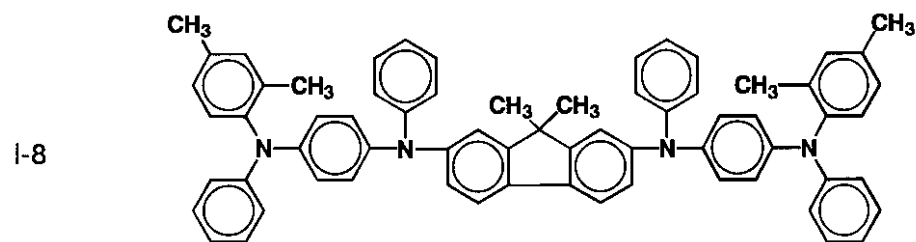
10



20



30

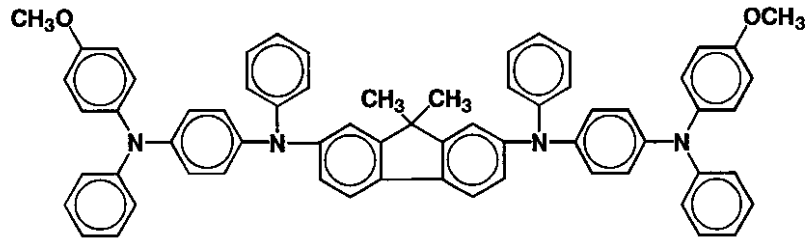


【 0 0 7 5 】

【 化 4 9 】

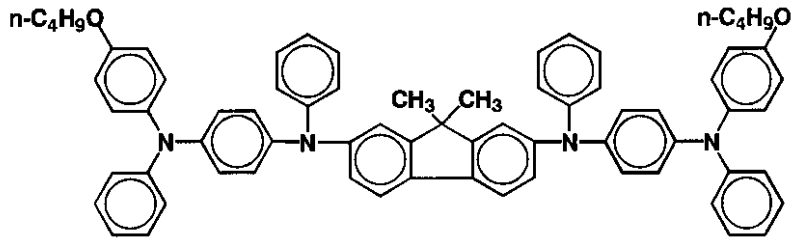
例示化合物  
番号

I-9



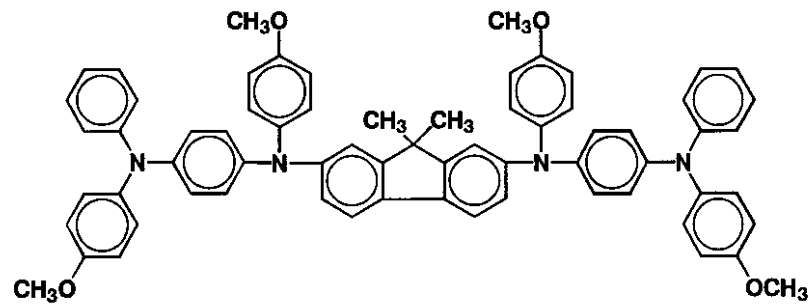
10

I-10



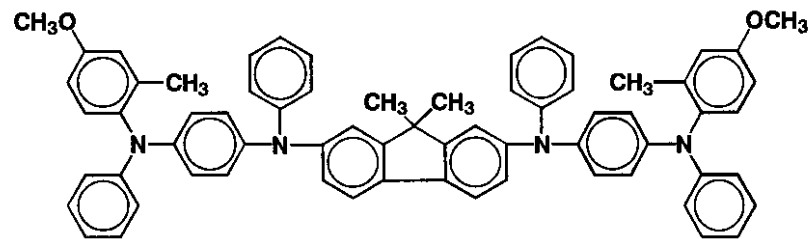
20

I-11



30

I-12

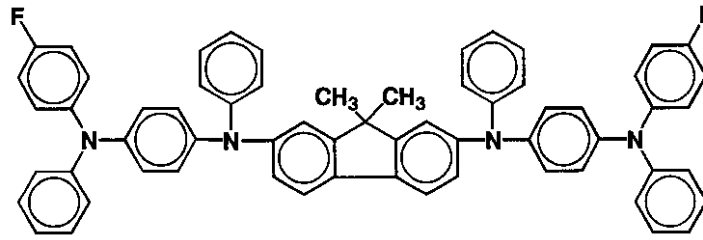


【 0 0 7 6 】

【 化 5 0 】

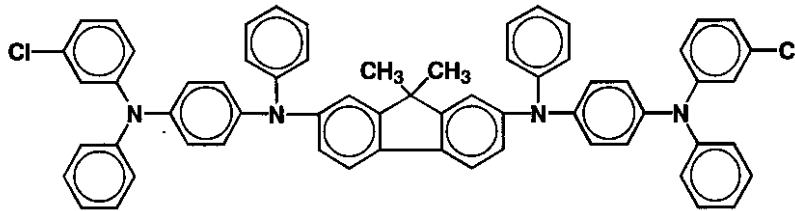
例示化合物  
番号

I-13



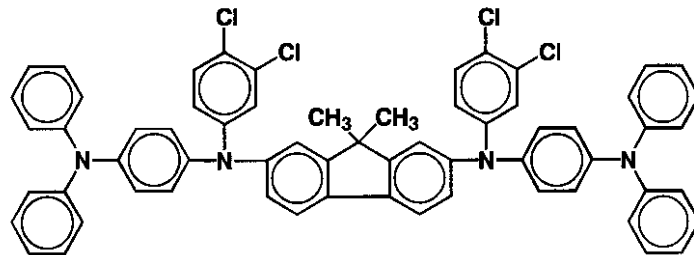
10

I-14



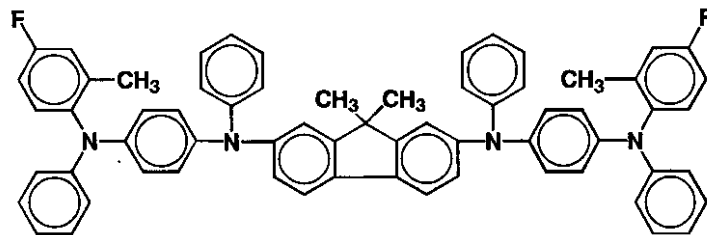
20

I-15



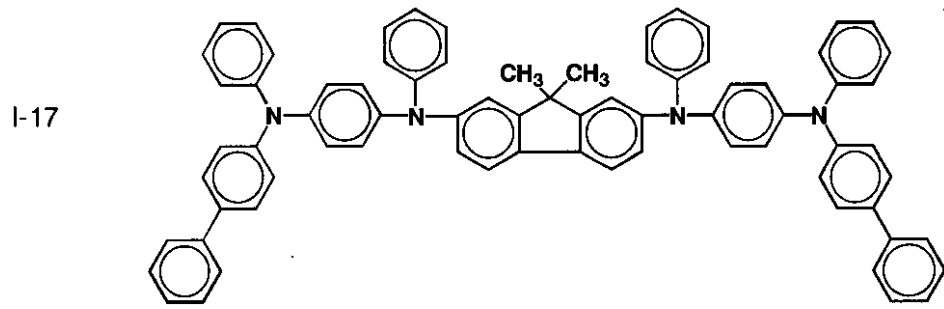
30

I-16

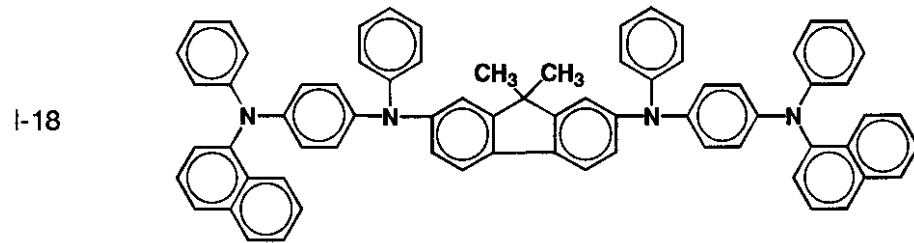


【 0 0 7 7 】  
【 化 5 1 】

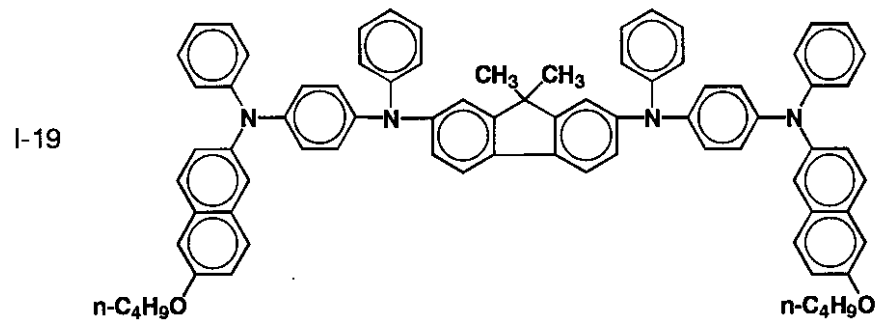
例示化合物  
番号



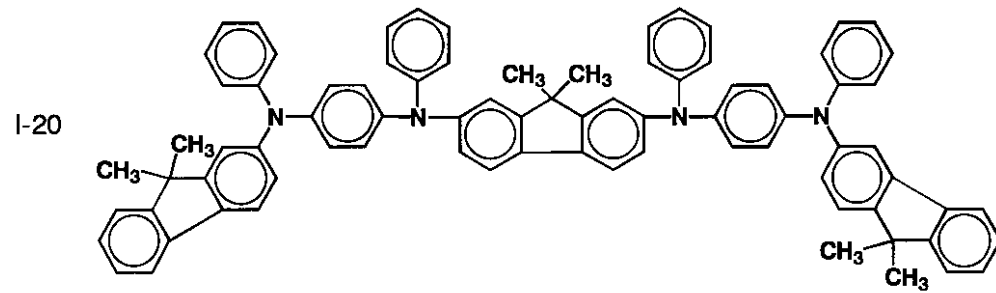
10



20



30



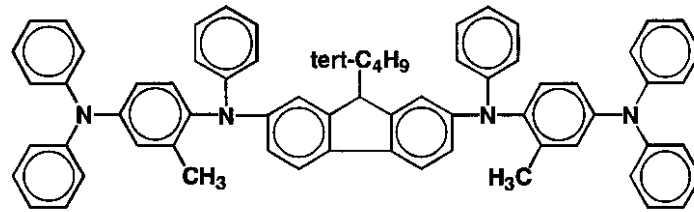
【 0 0 7 8 】

【 化 5 2 】

40

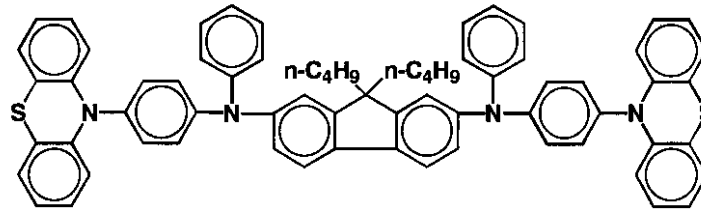
例示化合物  
番号

I-21



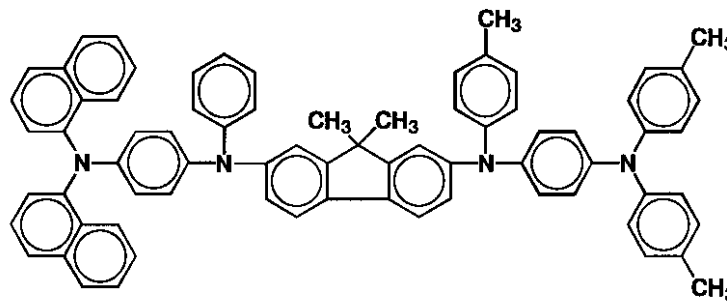
10

I-22



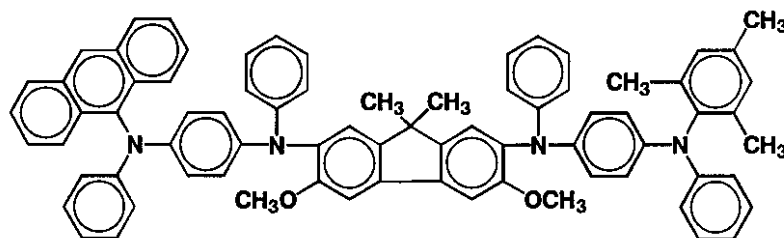
20

I-23



30

I-24

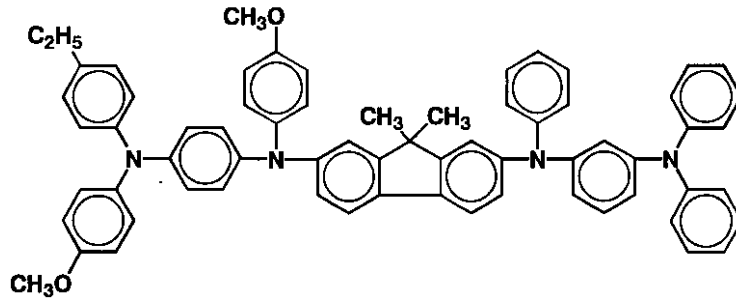


【 0 0 7 9 】

【 化 5 3 】

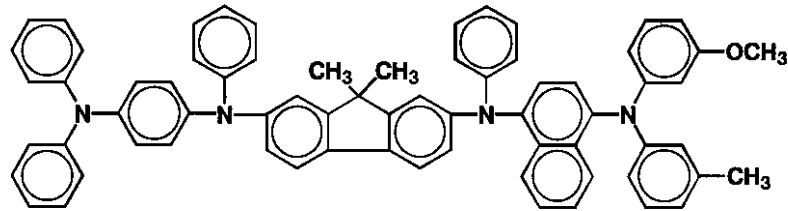
例示化合物  
番号

I-25



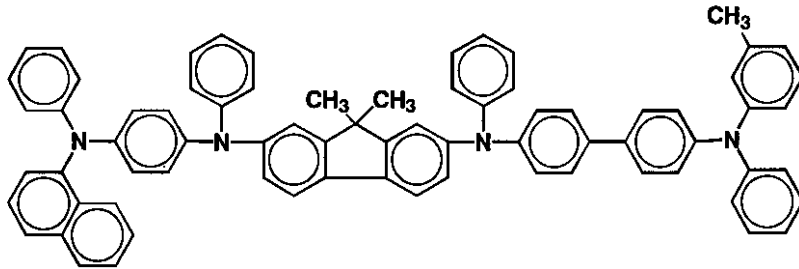
10

I-26



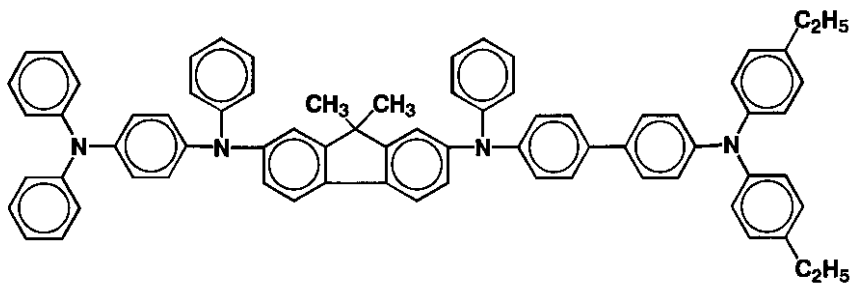
20

I-27



30

I-28

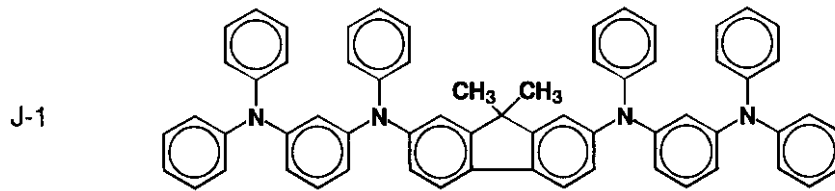


【 0 0 8 0 】

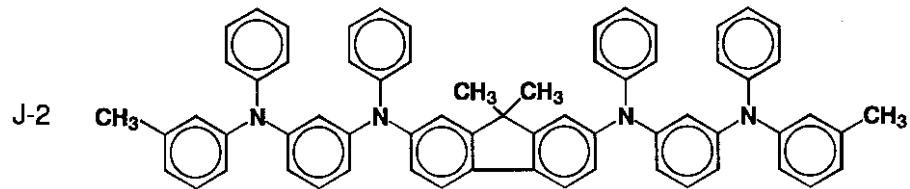
【 化 5 4 】

40

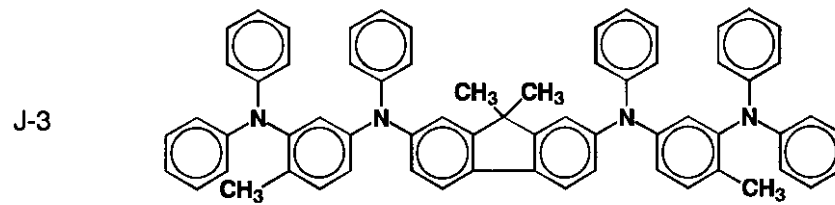
例示化合物  
番号



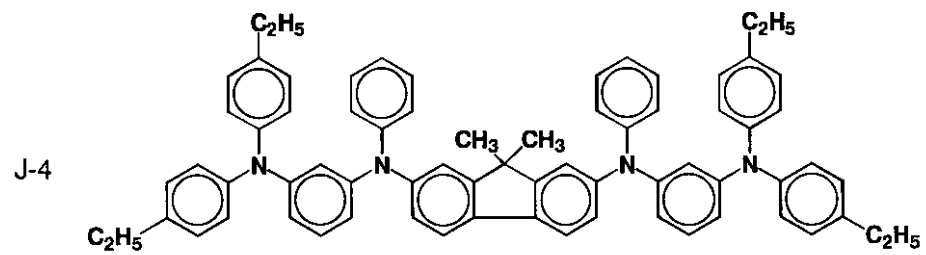
10



20



30

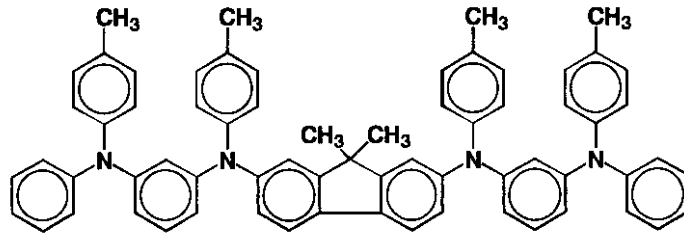


【 0 0 8 1 】

【 化 5 5 】

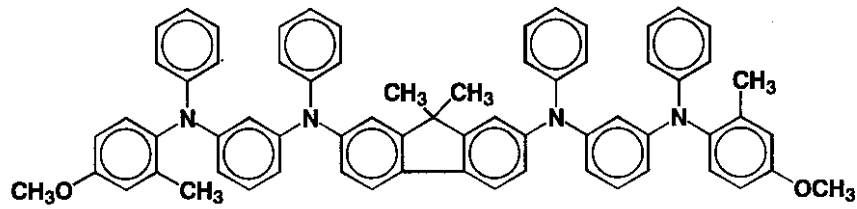
例示化合物  
番号

J-5



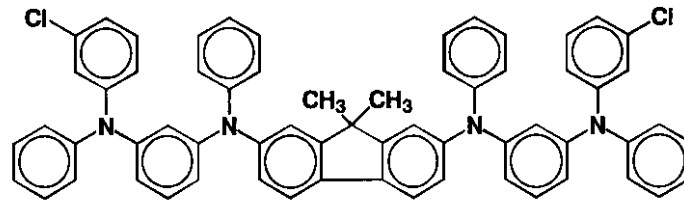
10

J-6



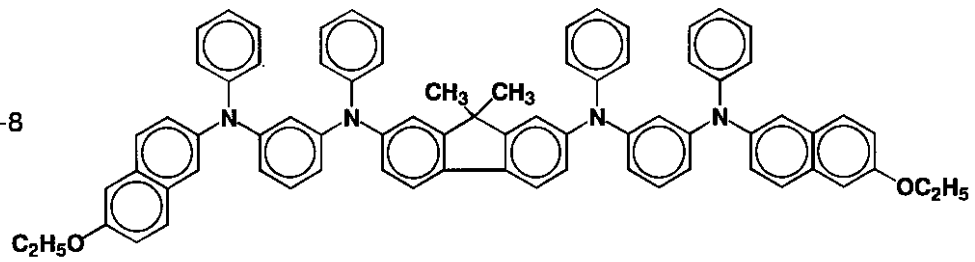
20

J-7



30

J-8



【 0 0 8 2 】

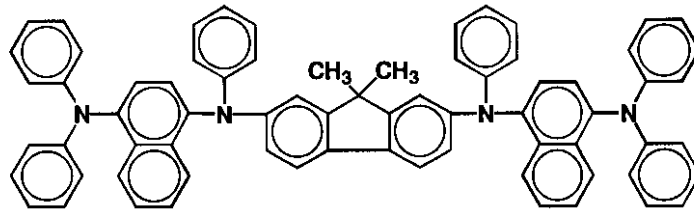
【 化 5 6 】

40



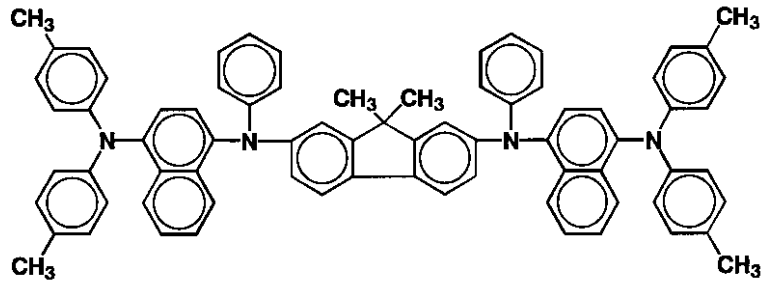
例示化合物  
番号

K-1



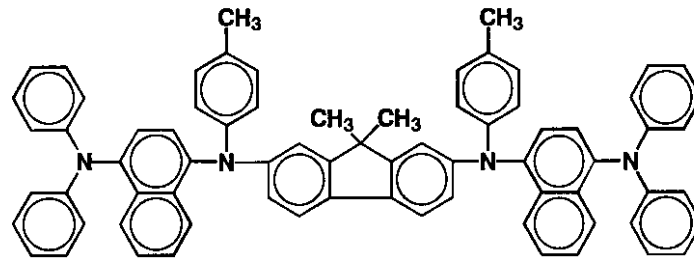
10

K-2



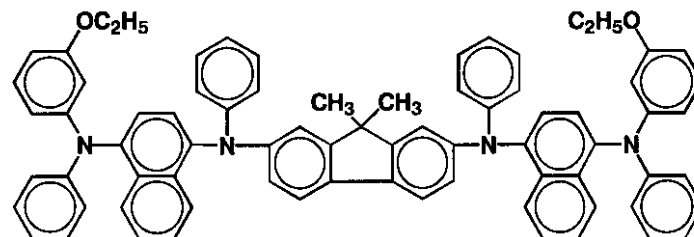
20

K-3



30

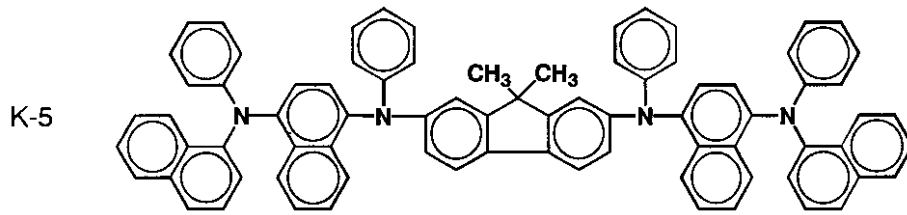
K-4



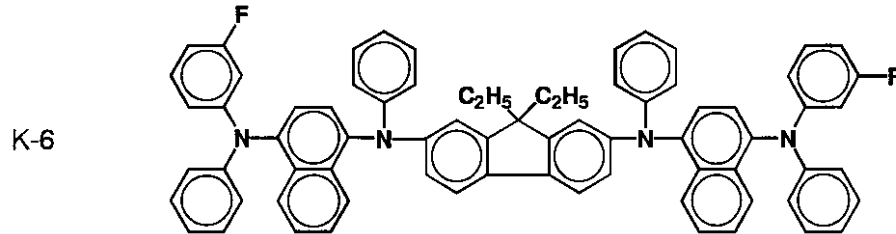
【 0 0 8 3 】

【 化 5 7 】

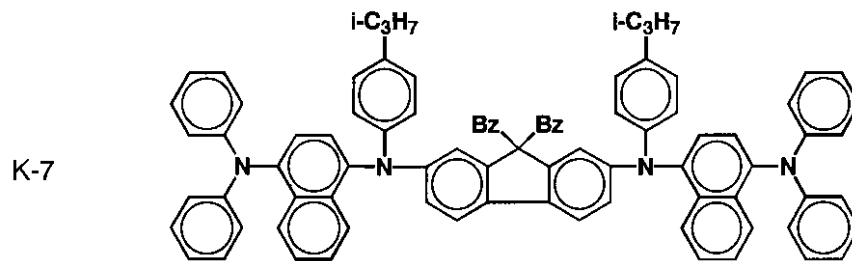
例示化合物  
番号



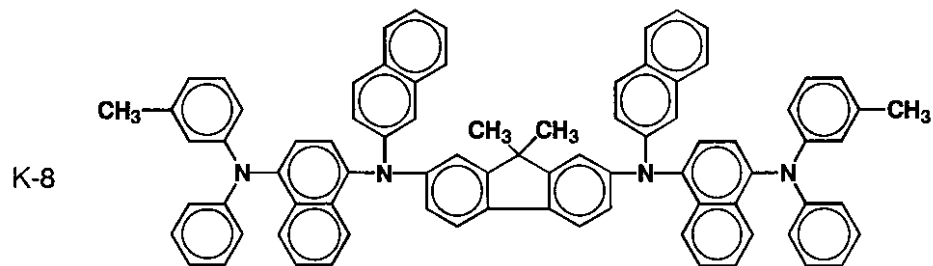
10



20



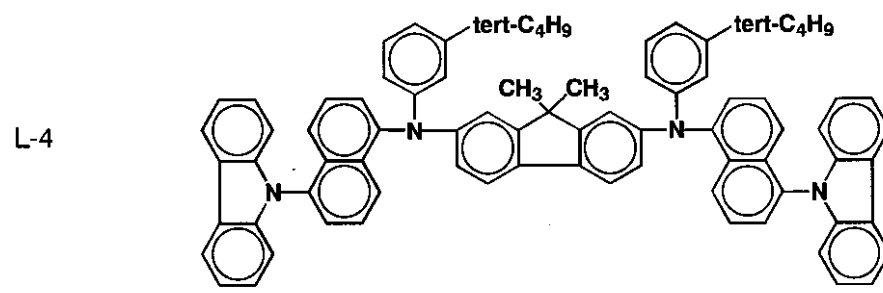
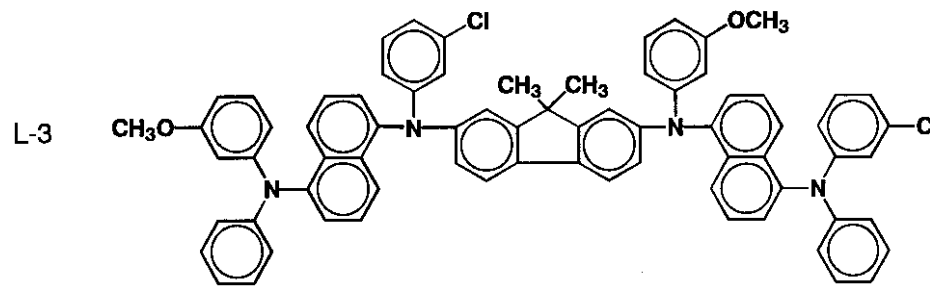
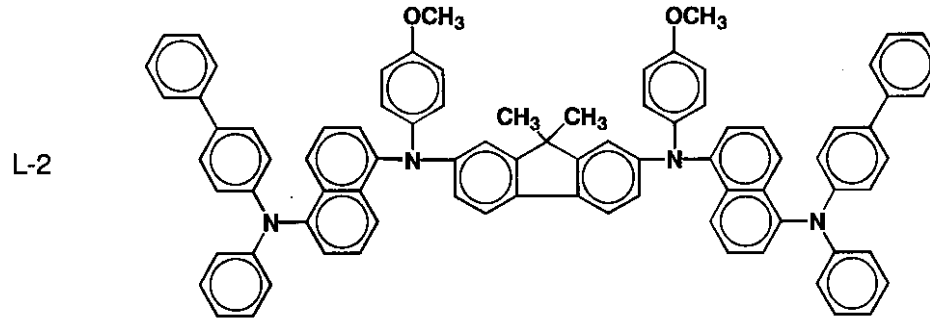
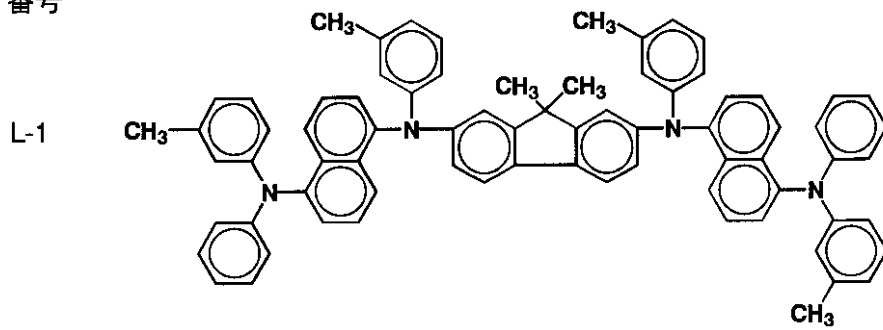
30



【 0 0 8 4 】

【 化 5 8 】

例示化合物  
番号



【 0 0 8 5 】

【 化 5 9 】

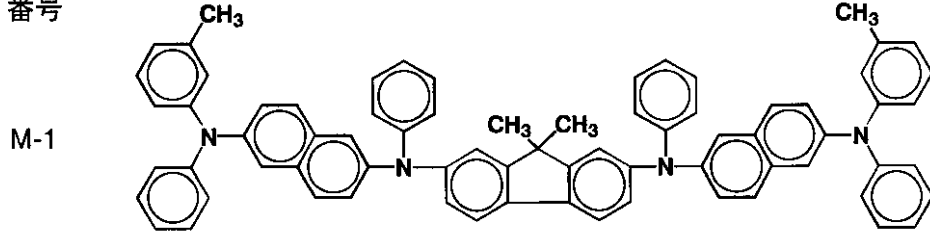
10

20

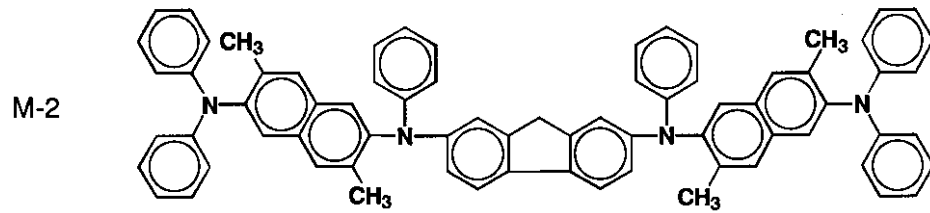
30

40

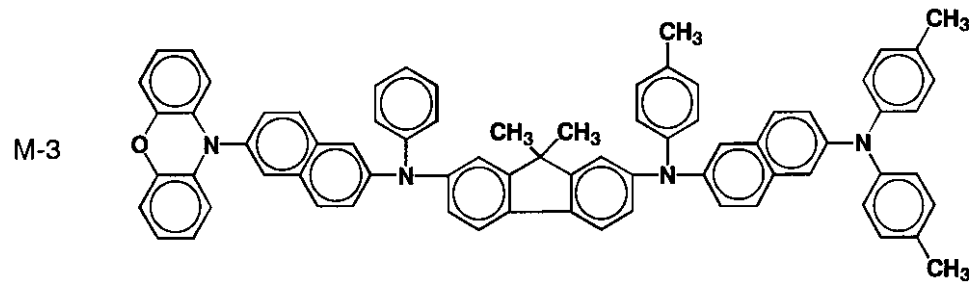
例示化合物  
番号



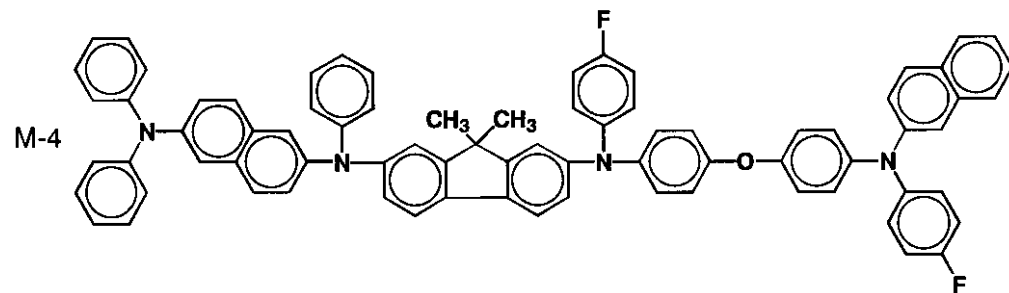
10



20



30

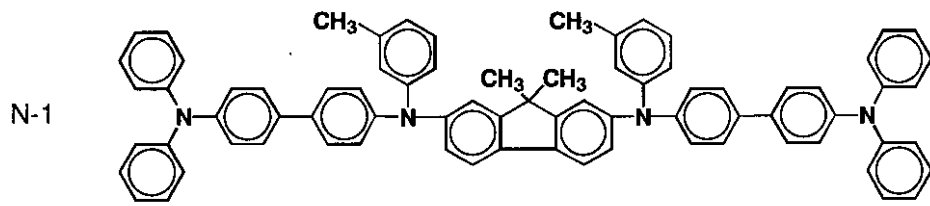


【 0 0 8 6 】

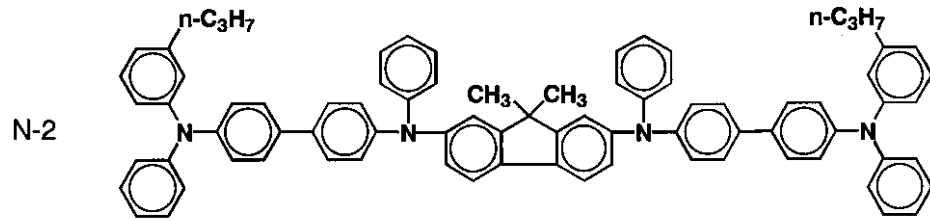
【 化 6 0 】

40

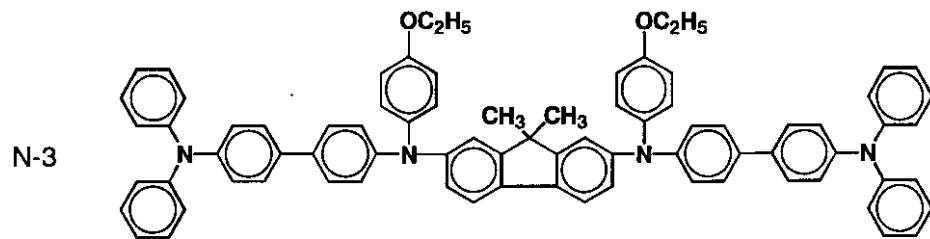
例示化合物  
番号



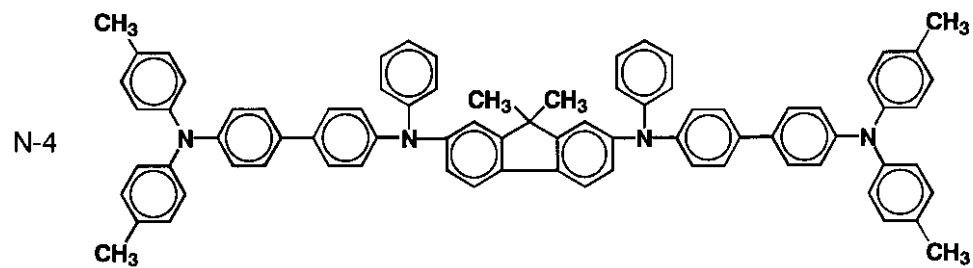
10



20



30

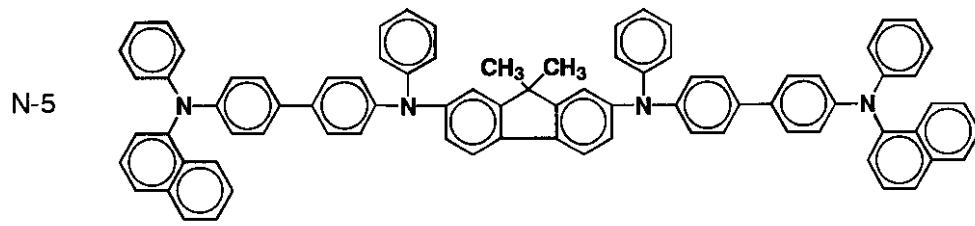


【 0 0 8 7 】

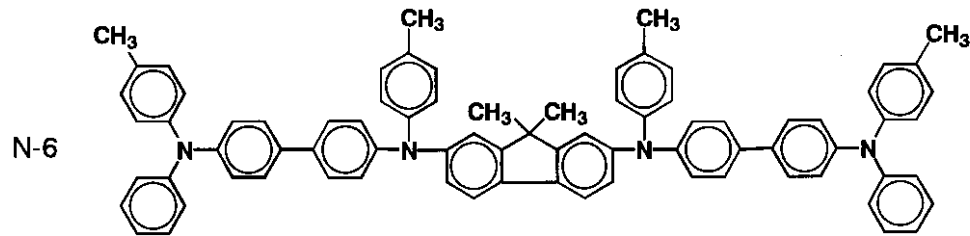
【 化 6 1 】

40

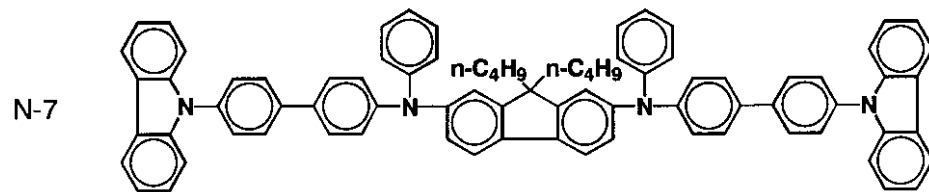
例示化合物  
番号



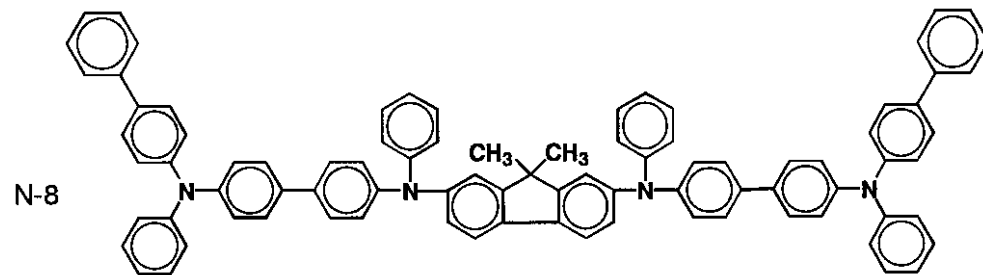
10



20



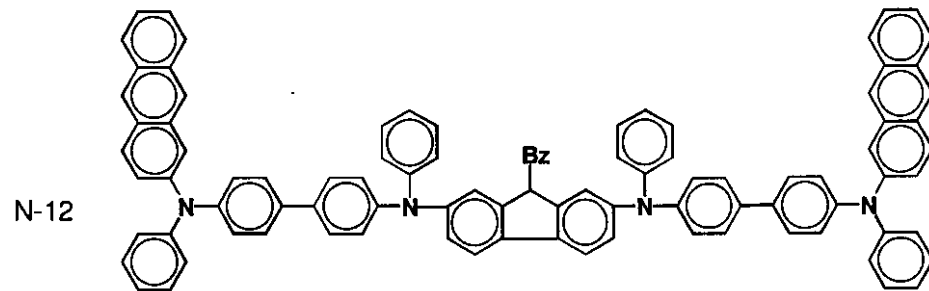
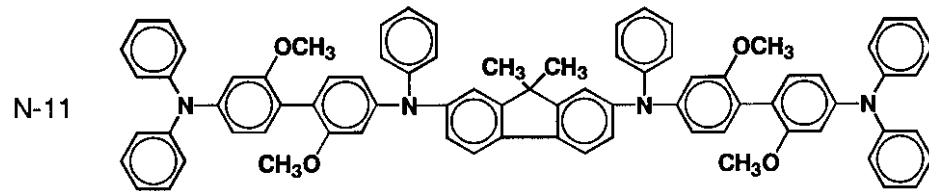
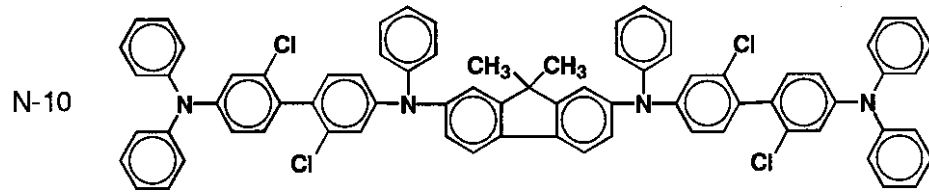
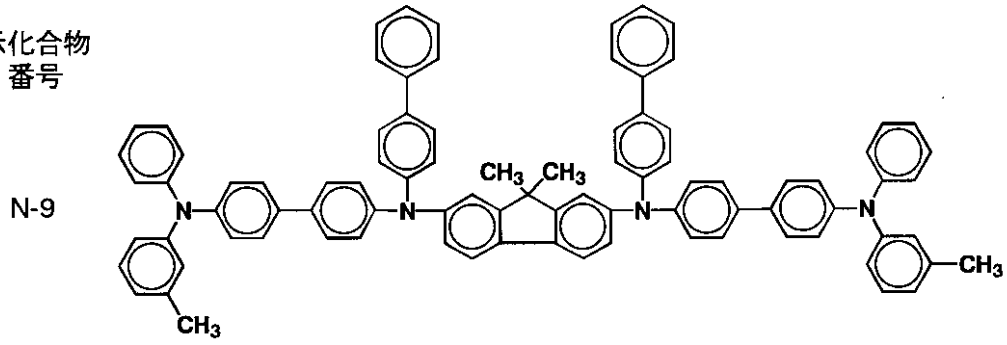
30



【 0 0 8 8 】

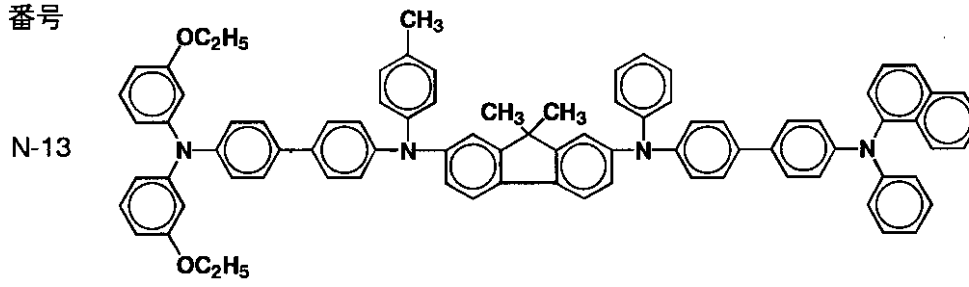
【 化 6 2 】

例示化合物  
番号

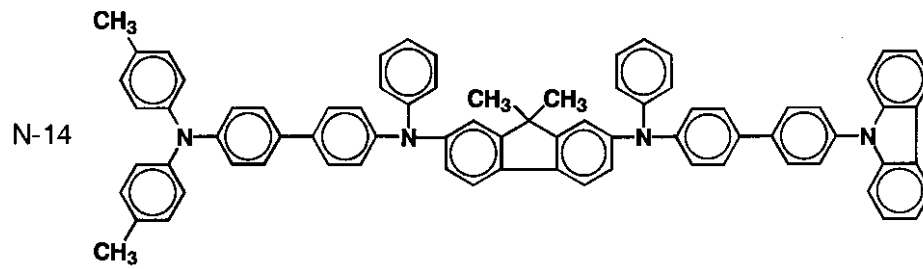


【 0 0 8 9 】  
【 化 6 3 】

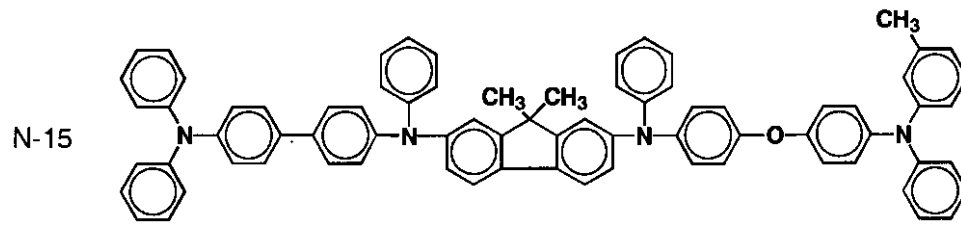
例示化合物  
番号



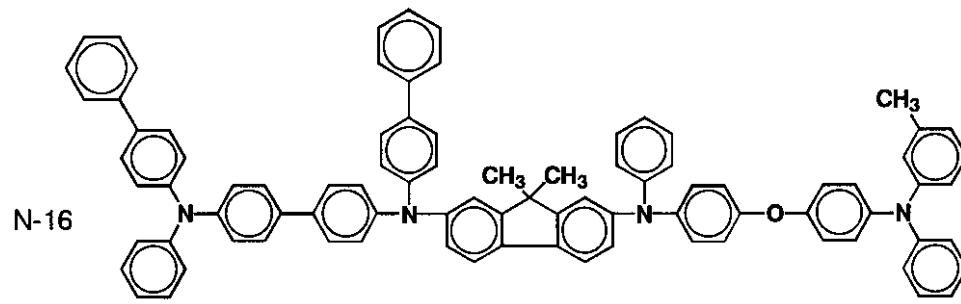
10



20



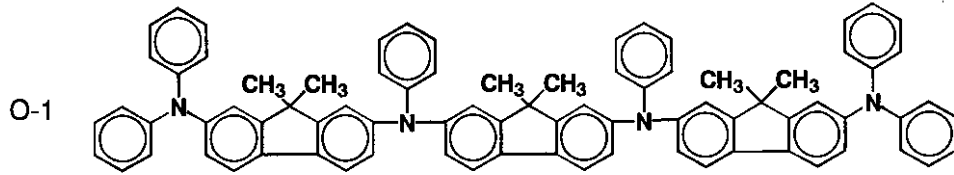
30



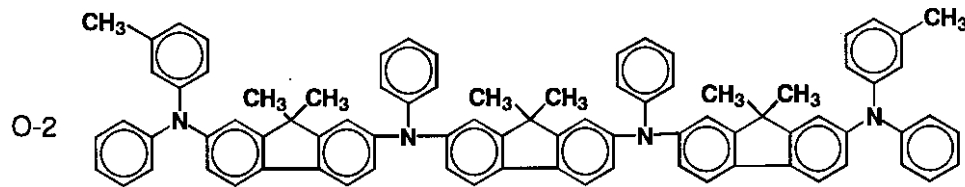
【 0 0 9 0 】  
【 化 6 4 】



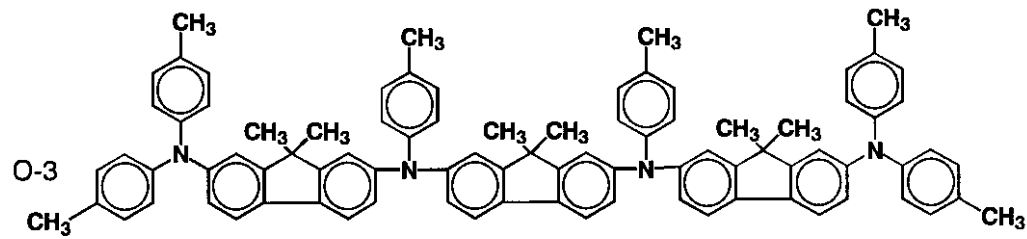
例示化合物  
番号



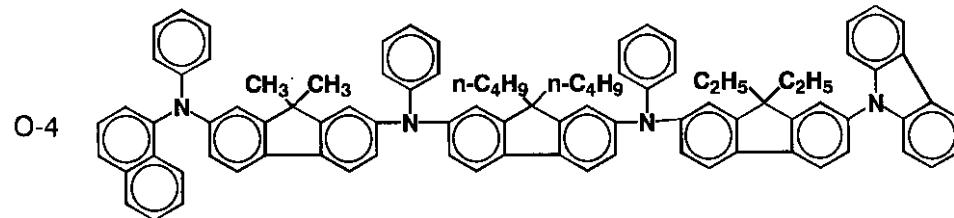
10



20

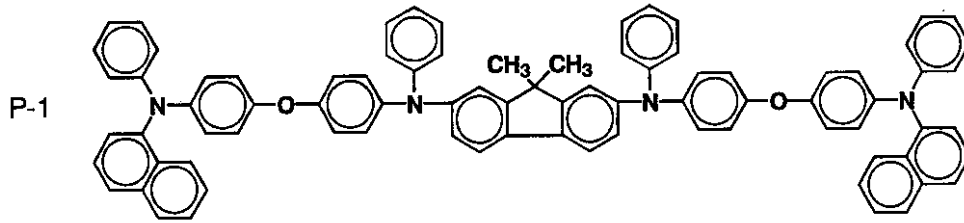


30

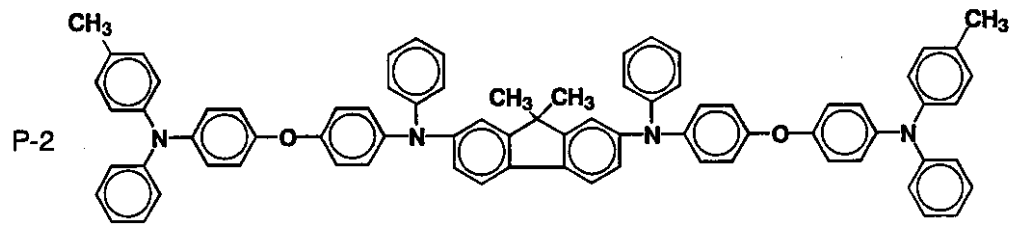


【 0 0 9 1 】  
【 化 6 5 】

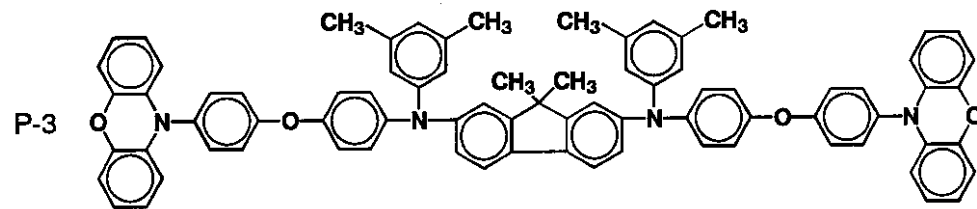
例示化合物  
番号



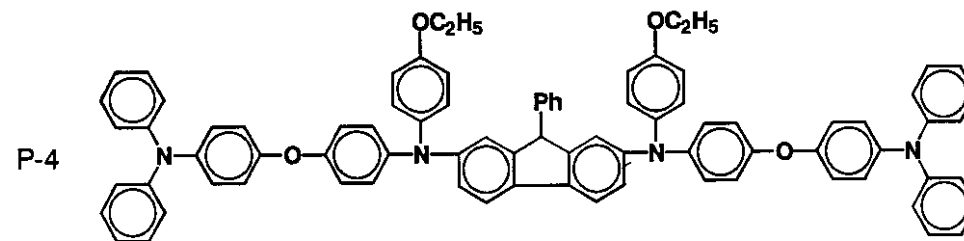
10



20



30

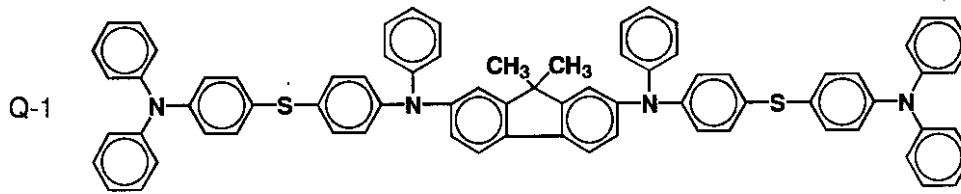


【 0 0 9 2 】

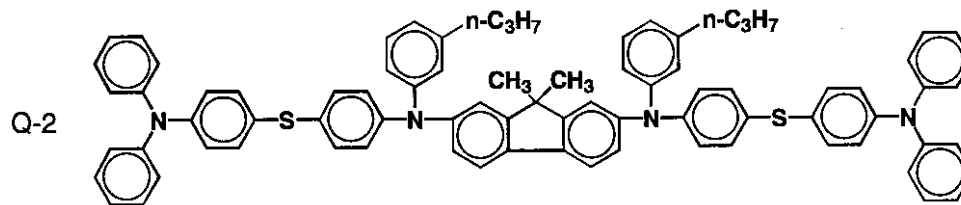
【 化 6 6 】

40

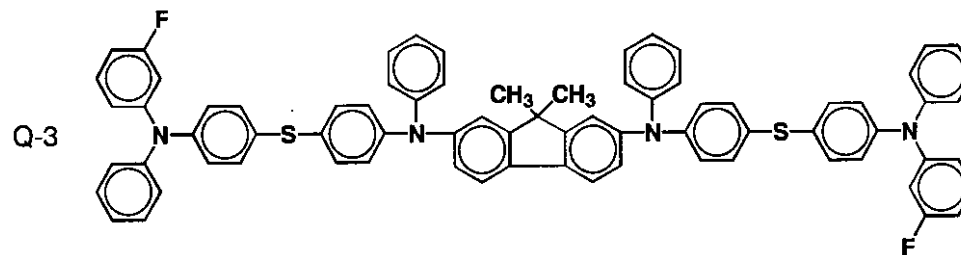
例示化合物  
番号



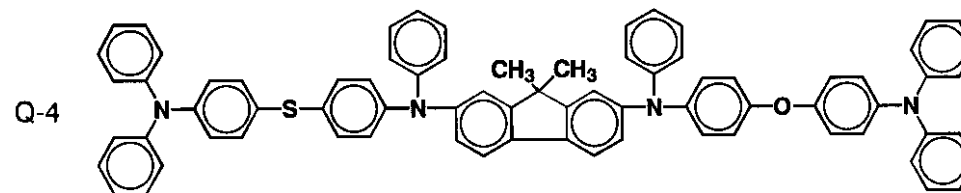
10



20



30



【0093】

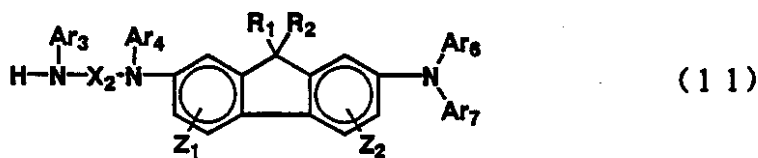
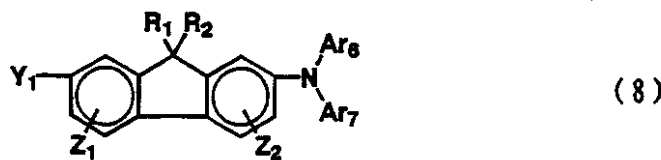
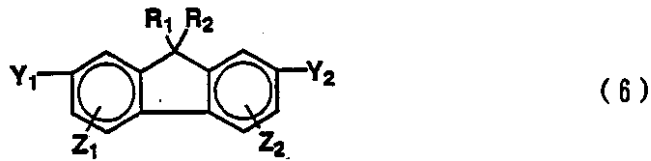
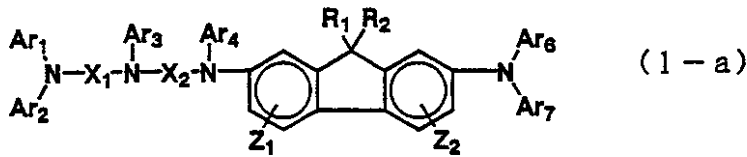
本発明に係る一般式(1)で表される化合物は、其自体公知の方法により製造することができる。すなわち、例えば、一般式(1)で表される化合物において、 $l$ が1であり、且つ $m$ が0である一般式(1-a)で表される化合物は、例えば、一般式(6)で表される化合物と、一般式(7)で表される化合物を、銅化合物の存在下で反応(ウルマン反応)させることにより製造される一般式(8)で表される化合物と、一般式(9)の化合物を、銅化合物の存在下で反応(ウルマン反応)させることにより製造することができる。また、例えば、一般式(8)で表される化合物と、一般式(10)で表される化合物を、銅化合物の存在下で反応(ウルマン反応)させることにより製造される一般式(11)で表される化合物と、一般式(12)で表される化合物を、銅化合物の存在下で反応(ウルマン反応)させることにより製造することができる。

40

【0094】

【化67】

50



〔式中、 $Y_1 \sim Y_3$  はハロゲン原子を表し、 $Ar_1 \sim Ar_4$ 、 $Ar_6$ 、 $Ar_7$ 、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $Z_1$ 、 $Z_2$ 、 $X_1$  および  $X_2$  は一般式(1)と同じ意味を表す。〕また、例えば、一般式(1)で表される化合物において、 $l$ が0であり、且つ $m$ が1である一般式(1-b)で表される化合物を製造する場合において、例えば、一般式(6)で表される化合物と、一般式(13)で表される化合物および一般式(14)で表される化合物を、銅化合物の存在下で反応(ウルマン反応)させることにより製造することができる。また、例えば、一般式(15)で表される化合物と、一般式(16)で表される化合物および一般式(17)で表される化合物を、銅化合物の存在下で反応(ウルマン反応)させることにより製造することができる。

【0095】

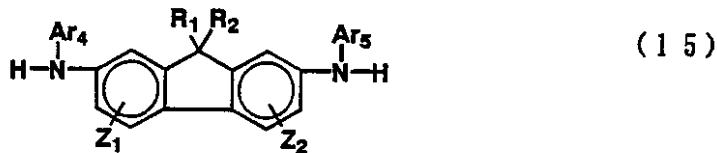
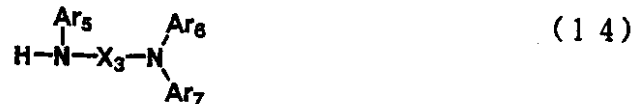
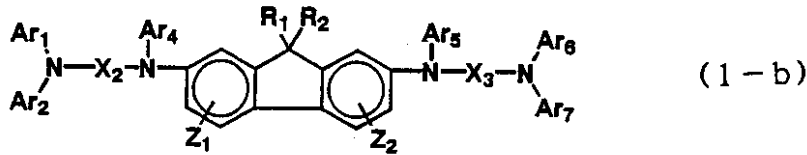
【化68】

10

20

30

40



## 【0096】

〔式中、 $Y_4 \sim Y_5$  はハロゲン原子を表し、 $Ar_1$ 、 $Ar_2$ 、 $Ar_4 \sim Ar_7$ 、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $Z_1$ 、 $Z_2$ 、 $X_2$  および  $X_3$  は一般式(1)と同じ意味を表す。〕一般式(6)、(8)、(12)、(16)、(17)において、 $Y_1 \sim Y_5$ で表されるハロゲン原子としては、好ましくは、塩素原子、臭素原子またはヨウ素原子であり、より好ましくは、臭素原子またはヨウ素原子である。

## 【0097】

有機電界発光素子は、通常、一对の電極間に、少なくとも1種の発光成分を含有する発光層を少なくとも一層挟持してなるものである。発光層に使用する化合物の正孔注入および正孔輸送、電子注入および電子輸送の各機能レベルを考慮し、所望に応じて、正孔注入輸送成分を含有する正孔注入輸送層および/または電子注入輸送成分を含有する電子注入輸送層を設けることもできる。

例えば、発光層に使用する化合物の正孔注入機能、正孔輸送機能および/または電子注入機能、電子輸送機能が良好な場合には、発光層が正孔注入輸送層および/または電子注入輸送層を兼ねた型の素子の構成とすることができる。勿論、場合によっては、正孔注入輸送層および電子注入輸送層の両方の層を設けない型の素子(一層型の素子)の構成とすることもできる。

また、正孔注入輸送層、電子注入輸送層および発光層のそれぞれの層は、一層構造であっても多層構造であってもよく、正孔注入輸送層および電子注入輸送層は、それぞれの層において、注入機能を有する層と輸送機能を有する層を別々に設けて構成することもできる。

## 【0098】

本発明の有機電界発光素子において、一般式(1)で表される化合物は、正孔注入輸送成分および/または発光成分に用いることが好ましく、正孔注入輸送成分に用いることがより好ましい。

10

20

30

40

50

本発明の有機電界発光素子においては、一般式(1)で表される化合物は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0099】

本発明の有機電界発光素子の構成としては、特に限定するものではなく、例えば、(A)陽極/正孔注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子(図1)、(B)陽極/正孔注入輸送層/発光層/陰極型素子(図2)、(C)陽極/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子(図3)、(D)陽極/発光層/陰極型素子(図4)などを挙げることができる。さらには、発光層を電子注入輸送層で挟み込んだ型の素子である(E)陽極/正孔注入輸送層/電子注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子(図5)とすることもできる。(D)型の素子構成としては、発光成分を一層形態で一对の電極間に挟持させた型の素子は勿論であるが、さらには、例えば、(F)正孔注入輸送成分、発光成分および電子注入輸送成分を混合させた一層形態で一对の電極間に挟持させた型の素子(図6)、(G)正孔注入輸送成分および発光成分を混合させた一層形態で一对の電極間に挟持させた型の素子(図7)、(H)発光成分および電子注入輸送成分を混合させた一層形態で一对の電極間に挟持させた型の素子(図8)がある。

10

【0100】

本発明の有機電界発光素子は、これらの素子構成に限るものではなく、それぞれの型の素子において、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層を複数層設けたりすることができる。また、それぞれの型の素子において、正孔注入輸送層と発光層との間に、正孔注入輸送成分と発光成分の混合層および/または発光層と電子注入輸送層との間に、発光成分と電子注入輸送成分の混合層を設けることもできる。

20

より好ましい有機電界発光素子の構成は、(A)型素子、(B)型素子、(E)型素子、(F)型素子または(G)型素子であり、さらに好ましくは、(A)型素子、(B)型素子または(G)型素子である。

【0101】

本発明の有機電界発光素子としては、例えば、(図1)に示す(A)陽極/正孔注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子について説明する。

(図1)において、1は基板、2は陽極、3は正孔注入輸送層、4は発光層、5は電子注入輸送層、6は陰極、7は電源を示す。

【0102】

本発明の有機電界発光素子は、基板1に支持されていることが好ましく、基板としては、特に限定するものではないが、透明ないし半透明であることが好ましく、例えば、ガラス板、透明プラスチックシート(例えば、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリスルホン、ポリメチルメタクリレート、ポリプロピレン、ポリエチレンなどのシート)、半透明プラスチックシート、石英、透明セラミックスあるいはこれらを組み合わせた複合シートからなるものを挙げることができる。

30

さらに、基板に、例えば、カラーフィルター膜、色変換膜、誘電体反射膜を組み合わせ、発光色をコントロールすることもできる。

【0103】

陽極2としては、比較的仕事関数の大きい金属、合金または電気電導性化合物を電極物質として使用することが好ましい。

40

陽極に使用する電極物質としては、例えば、金、白金、銀、銅、コバルト、ニッケル、パラジウム、バナジウム、タングステン、酸化錫、酸化亜鉛、ITO(インジウム・ティン・オキサイド)、ポリチオフェン、ポリピロールなどを挙げることができる。これらの電極物質は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

陽極は、これらの電極物質を、例えば、蒸着法、スパッタリング法等の方法により、基板の上に形成することができる。

また、陽極は一層構造であってもよく、あるいは多層構造であってもよい。

陽極のシート電気抵抗は、好ましくは、数百 / 以下、より好ましくは、5 ~ 50 / 程度に設定する。

50

陽極の厚みは、使用する電極物質の材料にもよるが、一般に、5 ~ 1000 nm程度、より好ましくは、10 ~ 500 nm程度に設定する。

【0104】

正孔注入輸送層3は、陽極からの正孔（ホール）の注入を容易にする機能、および注入された正孔を輸送する機能を有する化合物を含有する層である。

正孔注入輸送層は、一般式(1)で表される化合物および/または他の正孔注入輸送機能を有する化合物（例えば、フタロシアニン誘導体、トリアリールメタン誘導体、トリアリールアミン誘導体、オキサゾール誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、ピラゾリン誘導体、ポリシラン誘導体、ポリフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリ-N-ビニルカルバゾール誘導体など）を少なくとも1種用いて形成することができる。

尚、正孔注入輸送機能を有する化合物は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

本発明の有機電界発光素子においては、正孔注入輸送層に一般式(1)で表される化合物を含有していることが好ましい。

【0105】

本発明において用いる他の正孔注入輸送機能を有する化合物としては、トリアリールアミン誘導体（例えば、4,4'-ビス〔N-フェニル-N-(4"-メチルフェニル)アミノ〕ビフェニル、4,4'-ビス〔N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ〕ビフェニル、4,4'-ビス〔N-フェニル-N-(3"-メトキシフェニル)アミノ〕ビフェニル、4,4'-ビス〔N-フェニル-N-(1"-ナフチル)アミノ〕ビフェニル、3,3'-ジメチル-4,4'-ビス〔N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ〕ビフェニル、1,1'-ビス〔4'-〔N,N-ジ(4"-メチルフェニル)アミノ〕フェニル〕シクロヘキサン、9,10-ビス〔N-(4'-メチルフェニル)-N-(4"-n-ブチルフェニル)アミノ〕フェナントレン、3,8-ビス(N,N-ジフェニルアミノ)-6-フェニルフェナントリジン、4-メチル-N,N-ビス〔4",4"'-ビス〔N',N'-ジ(4-メチルフェニル)アミノ〕ビフェニル-4-イル〕アニリン、N,N'-ビス〔4-(ジフェニルアミノ)フェニル〕-N,N'-ジフェニル-1,3-ジアミノベンゼン、N,N'-ビス〔4-(ジフェニルアミノ)フェニル〕-N,N'-ジフェニル-1,4-ジアミノベンゼン、5,5"-ビス〔4-(ビス〔4-メチルフェニル〕アミノ)フェニル〕-2,2':5',2"-ターチオフェン、1,3,5-トリス(ジフェニルアミノ)ベンゼン、4,4',4"-トリス(N-カルバゾイル)トリフェニルアミン、4,4',4"-トリス〔N-(3"'-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ〕トリフェニルアミン、4,4',4"-トリス〔N,N-ビス(4"-tert-ブチルビフェニル-4"-イル)アミノ〕トリフェニルアミン、1,3,5-トリス〔N-(4'-ジフェニルアミノフェニル)-N-フェニルアミノ〕ベンゼンなど）、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリ-N-ビニルカルバゾール誘導体がより好ましい。

一般式(1)で表される化合物と他の正孔注入輸送機能を有する化合物を併用する場合、正孔注入輸送層中に占める一般式(1)で表される化合物の割合は、好ましくは、0.1重量%以上、より好ましくは、0.1~99.9重量%程度、さらに好ましくは、1~99重量%程度、特に好ましくは、5~95重量%程度に調製する。

【0106】

発光層4は、正孔および電子の注入機能、それらの輸送機能、正孔と電子の再結合により励起子を生成させる機能を有する化合物を含有する層である。

発光層は、一般式(1)で表される化合物および/または他の発光機能を有する化合物（例えば、アクリドン誘導体、キナクリドン誘導体、ジケトピロロピロール誘導体、多環芳香族化合物〔例えば、ルブレン、アントラセン、テトラセン、ピレン、ペリレン、クリセン、デカシクレン、コロネン、テトラフェニルシクロペンタジエン、ペンタフェニルシクロペンタジエン、9,10-ジフェニルアントラセン、9,10-ビス(フェニルエチニ

10

20

30

40

50

ル)アントラセン、1,4-ビス(9'-エチルアントラセニル)ベンゼン、4,4'-  
 -ビス(9"-エチルアントラセニル)ピフェニル)、トリアリールアミン誘導体〔例  
 えば、正孔注入輸送機能を有する化合物として前述した化合物を挙げることができる〕、  
 有機金属錯体〔例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(10-ベン  
 ゴ[h]キノリノラート)ベリリウム、2-(2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾオキサゾ  
 ールの亜鉛塩、2-(2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾチアゾールの亜鉛塩、4-ヒド  
 ロキシアクリジンの亜鉛塩、3-ヒドロキシフラボンの亜鉛塩、5-ヒドロキシフラボン  
 のベリリウム塩、5-ヒドロキシフラボンのアルミニウム塩〕、スチルベン誘導体〔例  
 えば、1,1,4,4-テトラフェニル-1,3-ブタジエン、4,4'-ビス(2,2-  
 ジフェニルビニル)ピフェニル、4,4'-ビス[(1,1,2-トリフェニル)エテニ  
 ル]ピフェニル)、クマリン誘導体〔例えば、クマリン1、クマリン6、クマリン7、ク  
 マリン30、クマリン106、クマリン138、クマリン151、クマリン152、クマ  
 リン153、クマリン307、クマリン311、クマリン314、クマリン334、クマ  
 リン338、クマリン343、クマリン500〕、ピラン誘導体〔例えば、DCM1、D  
 CM2〕、オキサゾン誘導体〔例えば、ナイルレッド〕、ベンゾチアゾール誘導体、ベン  
 ゴオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ピラジン誘導体、ケイ皮酸エステル  
 誘導体、ポリ-N-ビニルカルバゾールおよびその誘導体、ポリチオフェンおよびその誘  
 導体、ポリフェニレンおよびその誘導体、ポリフルオレンおよびその誘導体、ポリフェニ  
 レンビニレンおよびその誘導体、ポリピフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリター  
 フェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリナフチレンビニレンおよびその誘導体、ポリ  
 チエニレンビニレンおよびその誘導体など)を少なくとも1種用いて形成することができ  
 る。

10

20

## 【0107】

本発明の有機電界発光素子においては、発光層に一般式(1)で表される化合物を含有し  
 ていることが好ましい。

一般式(1)で表される化合物と他の発光機能を有する化合物を併用する場合、発光層中  
 に占める一般式(1)で表される化合物の割合は、好ましくは、0.001~99.99  
 9重量%程度に調製する。

## 【0108】

本発明において用いる他の発光機能を有する化合物としては、多環芳香族化合物、発光性  
 有機金属錯体がより好ましい。例えば、J. Appl. Phys., 65, 3610 (1989)、特開平5-  
 214332号公報に記載のように、発光層をホスト化合物とゲスト化合物(ドーパント  
 )とより構成することもできる。

30

一般式(1)で表される化合物を、ホスト化合物として発光層を形成することができ、さ  
 らにはゲスト化合物として発光層を形成することもできる。

一般式(1)で表される化合物を、ホスト化合物として発光層を形成する場合、ゲスト化  
 合物としては、例えば、前記の他の発光機能を有する化合物を挙げることができ、中  
 でも多環芳香族化合物は好ましい。

この場合、一般式(1)で表される化合物に対して、他の発光機能を有する化合物を、0  
 .001~40重量%程度、好ましくは、より好ましくは、0.1~20重量%程度使用  
 する。

40

一般式(1)で表される化合物と併用する多環芳香族化合物としては、特に限定するもの  
 ではないが、例えば、ルブレン、アントラセン、テトラセン、ピレン、ペリレン、クリセ  
 ン、デカシクレン、コロネン、テトラフェニルシクロペンタジエン、ペンタフェニルシク  
 ロペンタジエン、9,10-ジフェニルアントラセン、9,10-ビス(フェニルエチニ  
 ル)アントラセン、1,4-ビス(9'-エチルアントラセニル)ベンゼン、4,4'-  
 -ビス(9"-エチルアントラセニル)ピフェニルなどを挙げることができる。勿論、  
 多環芳香族化合物は単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

## 【0109】

一般式(1)で表される化合物を、ゲスト化合物として用いて発光層を形成する場合、ホ

50



スト化合物としては、発光性有機金属錯体が好ましい。

この場合、発光性有機金属錯体に対して、一般式(1)で表される化合物を、好ましくは、0.001~40重量%程度、より好ましくは、0.1~20重量%程度使用する。

一般式(1)で表される化合物と併用する発光性有機金属錯体としては、特に限定するものではないが、発光性有機アルミニウム錯体が好ましく、置換または未置換の8-キノリノラート配位子を有する発光性有機アルミニウム錯体がより好ましい。

好ましい発光性有機金属錯体としては、例えば、一般式(a)~一般式(c)で表される発光性有機アルミニウム錯体を挙げるができる。

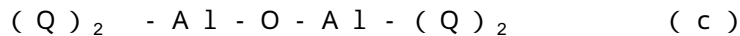


(式中、Qは置換または未置換の8-キノリノラート配位子を表す)

10



(式中、Qは置換8-キノリノラート配位子を表し、O-Lはフェノラート配位子であり、Lはフェニル部分を含む炭素数6~24の炭化水素基を表す)



(式中、Qは置換8-キノリノラート配位子を表す)

#### 【0110】

発光性有機金属錯体の具体例としては、例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(5-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(3,4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4,5-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4,6-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、

20

ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(フェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2-メチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3-メチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(4-メチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(4-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,3-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,6-ジメチルフェノラート)アルミニウム、

30

ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3,4-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3,5-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3,5-ジ-tert-ブチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,6-ジフェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,4,6-トリフェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,4,6-トリメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,4,5,6-テトラメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(1-ナフトラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2-ナフトラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)(2-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)(3-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)(4-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)(3,5-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)(3,5-ジ-tert-ブチルフェノラート)アルミニウム、

40

ビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム-μ-オキソ-ビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム-μ-オキソ-ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-4-エチル-8-キノリノラート)アルミニウム-μ-オキソ-

50

ビス(2-メチル-4-エチル-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-4-メトキシ-8-キノリノラート)アルミニウム- $\mu$ -オキソ-ビス(2-メチル-4-メトキシ-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-5-シアノ-8-キノリノラート)アルミニウム- $\mu$ -オキソ-ビス(2-メチル-5-シアノ-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラート)アルミニウム- $\mu$ -オキソ-ビス(2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラート)アルミニウムなどを挙げることができる。勿論、発光性有機金属錯体は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

#### 【0111】

電子注入輸送層5は、陰極からの電子の注入を容易にする機能、そして注入された電子を輸送する機能を有する化合物を含有する層である。

10

電子注入輸送層に使用される電子注入輸送機能を有する化合物としては、例えば、有機金属錯体〔例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(10-ベンゾ[h]キノリノラート)ベリリウム、5-ヒドロキシフラボンのベリリウム塩、5-ヒドロキシフラボンのアルミニウム塩〕、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、トリアジン誘導体、ペリレン誘導体、キノリン誘導体、キノキサリン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、ニトロ置換フルオレノン誘導体、チオピランジオキサイド誘導体などを挙げることができる。尚、電子注入輸送機能を有する化合物は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

#### 【0112】

20

陰極6としては、比較的仕事関数の小さい金属、合金または電気電導性化合物を電極物質として使用することが好ましい。

陰極に使用する電極物質としては、例えば、リチウム、リチウム-インジウム合金、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、カルシウム、マグネシウム、マグネシウム-銀合金、マグネシウム-インジウム合金、インジウム、ルテニウム、チタニウム、マンガン、イットリウム、アルミニウム、アルミニウム-リチウム合金、アルミニウム-カルシウム合金、アルミニウム-マグネシウム合金、グラファイト薄膜等を挙げることができる。これらの電極物質は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

陰極は、これらの電極物質を、例えば、蒸着法、スパッタリング法、イオン化蒸着法、イオンプレーティング法、クラスターイオンビーム法等の方法により、電子注入輸送層の上に形成することができる。

30

また、陰極は一層構造であってもよく、あるいは多層構造であってもよい。

尚、陰極のシート電気抵抗は、数百  $\Omega$  以下に設定するのが好ましい。

陰極の厚みは、使用する電極物質の材料にもよるが、一般に、5~1000nm程度、より好ましくは、10~500nm程度に設定する。

尚、有機電界発光素子の発光を効率よく取り出すために、陽極または陰極の少なくとも一方の電極が、透明ないし半透明であることが好ましく、一般に、発光光の透過率が70%以上となるように陽極の材料、厚みを設定することがより好ましい。

#### 【0113】

また、本発明の有機電界発光素子においては、その少なくとも一層中に、一重項酸素クエンチャーが含有されていてもよい。

40

一重項酸素クエンチャーとしては、特に限定するものではなく、例えば、ルブレン、ニッケル錯体、ジフェニルイソベンゾフランなどが挙げられ、特に好ましくは、ルブレンである。

一重項酸素クエンチャーが含有されている層としては、特に限定するものではないが、好ましくは、発光層または正孔注入輸送層であり、より好ましくは、正孔注入輸送層である。尚、例えば、正孔注入輸送層に一重項酸素クエンチャーを含有させる場合、正孔注入輸送層中に均一に含有させてもよく、正孔注入輸送層と隣接する層(例えば、発光層、発光機能を有する電子注入輸送層)の近傍に含有させてもよい。

一重項酸素クエンチャーの含有量としては、含有される層(例えば、正孔注入輸送層)を

50

構成する全体量の 0.01 ~ 50 重量%、好ましくは、0.05 ~ 30 重量%、より好ましくは、0.1 ~ 20 重量%である。

【0114】

正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の形成方法に関しては、特に限定するものではなく、例えば、真空蒸着法、イオン化蒸着法、溶液塗布法（例えば、スピンコート法、キャスト法、ディップコート法、バーコート法、ロールコート法、ラングミュア・プロゼット法、インクジェット法など）により薄膜を形成することにより作製することができる。真空蒸着法により、各層を形成する場合、真空蒸着の条件は、特に限定するものではないが、 $10^{-5}$ Torr程度以下の真空下で、50 ~ 400 程度のポート温度（蒸着源温度）、-50 ~ 300 程度の基板温度で、0.005 ~ 50 nm/sec 程度の蒸着速度で実施

10

することが好ましい。この場合、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層は、真空下で、連続して形成することにより、諸特性に一層優れた有機電界発光素子を製造することができる。

真空蒸着法により、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層を、複数の化合物を用いて形成する場合、化合物を入れた各ポートを個別に温度制御して、共蒸着することが好ましい。

【0115】

溶液塗布法により、各層を形成する場合、各層を形成する成分あるいはその成分とバインダー樹脂等を、溶媒に溶解、または分散させて塗布液とする。

正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の各層に使用しうるバインダー樹脂としては、例えば、ポリ-N-ビニルカルバゾール、ポリアリレート、ポリスチレン、ポリエステル、ポリシロキサン、ポリメチルアクリレート、ポリメチルメタクリレート、ポリエーテル、ポリカーボネート、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリパラキシレン、ポリエチレン、ポリフェニレンオキサイド、ポリエーテルスルホン、ポリアニリンおよびその誘導体、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリフルオレンおよびその誘導体、ポリチエニレンビニレンおよびその誘導体等の高分子化合物が挙げられる。バインダー樹脂は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

20

【0116】

溶液塗布法により、各層を形成する場合、各層を形成する成分あるいはその成分とバインダー樹脂等を、適当な有機溶媒（例えば、ヘキサン、オクタン、デカン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、1-メチルナフタレン等の炭化水素系溶媒、例えば、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン系溶媒、例えば、ジクロロメタン、クロロホルム、テトラクロロメタン、ジクロロエタン、トリクロロエタン、テトラクロロエタン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、クロロトルエン等のハロゲン化炭化水素系溶媒、例えば、酢酸エチル、酢酸ブチル、酢酸アミル等のエステル系溶媒、例えば、メタノール、プロパノール、ブタノール、ペンタノール、ヘキサノール、シクロヘキサノール、メチルセロソルブ、エチルセロソルブ、エチレングリコール等のアルコール系溶媒、例えば、ジブチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、アニソール等のエーテル系溶媒、例えば、N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド、1-メチル-2-ピロリドン、1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン、ジメチルスルフォキサイド等の極性溶媒）および/または水に溶解、または分散させて塗布液とし、各種の塗布法により、薄膜を形成することができる。

30

【0117】

尚、分散する方法としては、特に限定するものではないが、例えば、ボールミル、サンドミル、ペイントシェーカー、アトライター、ホモジナイザー等を用いて微粒子状に分散することができる。

塗布液の濃度に関しては、特に限定するものではなく、実施する塗布法により、所望の厚みを作製するに適した濃度範囲に設定することができ、一般には、0.1 ~ 50 重量%程度、好ましくは、1 ~ 30 重量%程度の溶液濃度である。

40

50

尚、バインダー樹脂を使用する場合、その使用量に関しては、特に限定するものではないが、一般には、各層を形成する成分に対して（一層型の素子を形成する場合には、各成分の総量に対して）、5～99.9重量%程度、好ましくは、10～99重量%程度、より好ましくは、15～90重量%程度に設定する。

#### 【0118】

正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の膜厚に関しては、特に限定するものではないが、一般に、5nm～5μm程度に設定することが好ましい。

尚、作製した素子に対し、酸素や水分等との接触を防止する目的で、保護層（封止層）を設けたり、また素子を、例えば、パラフィン、流動パラフィン、シリコンオイル、フルオロカーボン油、ゼオライト含有フルオロカーボン油などの不活性物質中に封入して保護することができる。

保護層に使用する材料としては、例えば、有機高分子材料（例えば、フッ素化樹脂、エポキシ樹脂、シリコーン樹脂、エポキシシリコーン樹脂、ポリスチレン、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリパラキシレン、ポリエチレン、ポリフェニレンオキサイド）、無機材料（例えば、ダイヤモンド薄膜、アモルファスシリカ、電気絶縁性ガラス、金属酸化物、金属窒化物、金属炭素化物、金属硫化物）、さらには光硬化性樹脂などを挙げることができ、保護層に使用する材料は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。保護層は、一層構造であってもよく、また多層構造であってもよい。

#### 【0119】

また、電極に保護膜として、例えば、金属酸化膜（例えば、酸化アルミニウム膜）、金属フッ化膜を設けることもできる。

また、例えば、陽極の表面に、例えば、有機リン化合物、ポリシラン、芳香族アミン誘導体、フタロシアン誘導体から成る界面層（中間層）を設けることもできる。

さらに、電極、例えば、陽極はその表面を、例えば、酸、アンモニア/過酸化水素、あるいはプラズマで処理して使用することもできる。

#### 【0120】

本発明の有機電界発光素子は、一般に、直流駆動型の素子として使用されるが、パルス駆動型または交流駆動型の素子としても使用することができる。

尚、印加電圧は、一般に、2～30V程度である。

本発明の有機電界発光素子は、例えば、パネル型光源、各種の発光素子、各種の表示素子、各種の標識、各種のセンサーなどに使用することができる。

#### 【0121】

##### 【実施例】

以下、実施例により本発明をさらに詳細に説明するが、勿論、本発明はこれらに限定されるものではない。

##### （実施例1） 例示化合物番号A-2の製造

7-ヨード-9,9-ジメチル-2-ジフェニルアミノ-9H-フルオレン61g、N-(4'-[N'',N''-ジ(4''-メチルフェニル)アミノ]フェニル)-N,N'-ジフェニル-1,4-ジアミノベンゼン73g、金属銅粉32g、および無水炭酸カリウム70gをo-ジクロロベンゼン(100g)中、170℃で20時間攪拌した。反応混合物を100℃に冷却後、熱濾過した後、濾液をメタノール500gに排出し、析出した淡黄色の固体を濾過、洗浄、乾燥した。

この固体をアルミナカラムクロマトグラフィー（溶出液：トルエン）で処理した後、トルエンとn-ヘキサンの混合溶媒を用いて2回再結晶し、淡黄色の結晶として、例示化合物番号A-2の化合物39gを得た。融点は300℃以上であった。

#### 【0122】

##### （実施例2） 例示化合物番号A-4の製造

7-プロモ-2-[N,N-ジ(4'-メチルフェニル)アミノ]-9,9-ジメチル-9H-フルオレン47g、N'-(1-ナフチル)-N-[4-(N''-フェニルアミノ]

フェニル〕 - N , N ' - ジフェニル - 1 , 4 - ジアミノベンゼン 6 0 g、金属銅粉 3 2 g、および無水炭酸カリウム 7 0 g をスルフォラン ( 2 0 0 g ) 中、2 2 0 で 1 0 時間攪拌した。反応混合物を冷却後、水 1 0 0 0 g に排出し、トルエン 1 0 0 0 g で抽出を行った。この抽出液を濃縮し、アルミナカラムクロマトグラフィー ( 溶出液 : トルエン ) で処理した後、トルエンと n - ヘキサンの混合溶媒を用いて 2 回再結晶を行い、淡黄色の結晶として、例示化合物番号 A - 4 の化合物 4 2 g を得た。融点は 3 0 0 以上であった。

## 【 0 1 2 3 】

( 実施例 3 ) 例示化合物番号 A - 2 3 の製造

7 - [ N , N - ジ ( 4 ' - エトキシフェニル ) アミノ ] - 2 - [ N ' - ( 3 " - ヨードフェニル ) - N ' - フェニルアミノ ] - 9 , 9 - ジメチル - 9 H - フルオレン 7 3 g、N , N ' - ジ ( 3 ' - フルオロフェニル ) - N - フェニル - 1 , 4 - ジアミノベンゼン 4 5 g、金属銅粉 3 2 g、無水炭酸カリウム 7 0 g をスルフォラン ( 2 0 0 g ) 中、2 2 0 で 1 0 時間攪拌した。反応混合物を冷却後、水 1 0 0 0 g に排出し、トルエン 1 0 0 0 g で抽出を行った。この抽出液を濃縮後、アルミナカラムクロマトグラフィー ( 溶出液 : トルエン ) で処理した後、トルエンと n - ヘキサンの混合溶媒を用いて 2 回再結晶を行い、淡黄色の結晶として、例示化合物番号 A - 2 3 の化合物 3 3 g を得た。融点は 3 0 0 以上であった。

## 【 0 1 2 4 】

( 実施例 4 ) 例示化合物番号 B - 4 の製造

9 , 9 - ジメチル - 2 - [ N , N - ジ ( 4 ' - メチルフェニル ) アミノ ] - 7 - フェニルアミノ - 9 H - フルオレン 7 0 g、N - ( 4 ' - ブロモフェニル ) - N , N ' , N ' - トリフェニル - 1 , 4 - ジアミノナフタレン 5 4 g、金属銅粉 3 2 g、および無水炭酸カリウム 7 0 g を、1 , 2 , 4 - トリクロロベンゼン ( 1 8 0 g ) 中、2 0 0 で 3 0 時間攪拌した。反応混合物を 1 0 0 に冷却後、熱濾過した後、濾液をメタノール 5 0 0 g に排出し、析出した淡黄色の固体を濾過、洗浄、乾燥した。

この固体をアルミナカラムクロマトグラフィー ( 溶出液 : トルエン ) で処理した後、トルエンと n - ヘキサンの混合溶媒を用いて 2 回再結晶し、淡黄色の結晶として、例示化合物番号 B - 4 の化合物 4 2 g を得た。融点は 3 0 0 で以上あった。

## 【 0 1 2 5 】

( 実施例 5 ) 例示化合物番号 E - 3 の製造

7 - ヨード - 2 - [ N , N - ジ ( 4 ' - メチルフェニル ) アミノ ] - 9 , 9 - ジメチル - 9 H - フルオレン 4 7 g、N , N ' - ジフェニル - 1 , 4 - ジアミノベンゼン 2 6 g、金属銅粉 3 2 g、および無水炭酸カリウム 7 0 g を、スルフォラン ( 2 0 0 g ) 中、2 0 0 で 1 2 時間加熱攪拌した。続いて、4 ' - ヨード - 4 - [ N - ( 1 - ナフチル ) - N - フェニルアミノ ] ビフェニル 5 0 g を加え、2 2 0 で 1 0 時間攪拌した。反応混合物を 1 0 0 に冷却、熱濾過した後、濾液をメタノール 5 0 0 g に排出し、析出した淡黄色の固体を濾過、洗浄、乾燥した。

この固体をアルミナカラムクロマトグラフィー ( 溶出液 : トルエン ) で処理した後、トルエンと n - ヘキサンの混合溶媒を用いて 2 回再結晶し、淡黄色の結晶として、例示化合物番号 E - 3 の化合物 2 9 g を得た。融点は 3 0 0 で以上あった。

## 【 0 1 2 6 】

( 実施例 6 ) 例示化合物番号 E - 4 の製造

N - ( 4 - フェニルアミノ ) フェニル - N ' - ( 3 - メチルフェニル ) - N , N ' - ジフェニル - 9 , 9 - ジメチル - 9 H - 2 , 7 - ジアミノフルオレン 8 2 g、4 - ヨード - 4 ' - [ N - ( 3 - メチルフェニル ) - N - フェニルアミノ ] ビフェニル 4 7 g、金属銅粉 6 4 g、および無水炭酸カリウム 7 0 g を、1 , 2 , 4 - トリクロロベンゼン ( 1 0 0 g ) 中、2 1 0 で 1 5 時間攪拌した。反応混合物を 1 0 0 に冷却、熱濾過した後、濾液をメタノール 5 0 0 g に排出し、析出した淡黄色の固体を濾過、洗浄、乾燥した。

この固体をアルミナカラムクロマトグラフィー ( 溶出液 : トルエン ) で処理した後、トルエンと n - ヘキサンの混合溶媒を用いて 2 回再結晶し、淡黄色の結晶として、例示化合物

10

20

30

40

50

番号 E - 4 の化合物 37 g を得た。融点は 300 以上であった。

【0127】

(実施例 7) 例示化合物番号 E - 16 の製造

7 - ヨード - 2 - [ N - ( 1 ' - ナフチル ) - N - フェニルアミノ ] - 9 , 9 - ジ ( n - プロピル ) - 9 H - フルオレン 59 g、N - ( 4 " ' - フェニルアミノピフェニル - 4 " - イル ) - N ' - ( 1 " " - ナフチル ) - N , N ' - ジフェニル - 4 , 4 ' - ジアミノピフェニル 90 g、金属銅粉 32 g、および無水炭酸カリウム 70 g を、ジメチルスルフォキシド ( 150 g ) 中、180 で 25 時間攪拌した。反応混合物を冷却後、水 1500 g に排出し、その後、酢酸エチル 1100 g で抽出を行った。この抽出液を濃縮し、析出した淡黄色の固体を濾過、洗浄、乾燥した。

10

この固体をアルミナカラムクロマトグラフィー ( 溶出液 : トルエン ) で処理した後、トルエンと n - ヘキサン の混合溶媒を用いて 2 回再結晶し、淡黄色の結晶として、例示化合物番号 E - 16 の化合物 41 g を得た。融点は 300 以上であった。

【0128】

(実施例 8) 例示化合物番号 F - 1 の製造

N - ( 3 ' - メチルフェニル ) - N , N ' - ジフェニル - 9 H - フルオレン - 2 , 7 - ジアミン 100 g、1 , 4 - ジブromoベンゼン 24 g、金属銅粉 48 g、および無水炭酸カリウム 72 g を、スルフォラン ( 120 g ) 中、220 で 14 時間攪拌した。反応混合物を冷却し、水 1200 g に排出した。トルエン ( 1200 g ) で抽出を行った。この抽出液を濃縮後、アルミナカラムクロマトグラフィー ( 溶出液 : トルエン ) で処理した後、トルエンと n - ヘキサンの混合溶媒で 2 回再結晶し、黄色の結晶として、例示化合物番号 F - 1 の化合物 36 g を得た。融点は 300 以上であった。

20

【0129】

(実施例 9) 例示化合物番号 F - 16 の製造

7 - ヨード - 2 - [ N - ( 1 ' - ナフチル ) - N - フェニルアミノ ] - 9 , 9 - ジメチル - 9 H - フルオレン 120 g、1 , 4 - ビス ( フェニルアミノ ) ベンゼン 26 g、金属銅粉 64 g、および無水炭酸カリウム 100 g を、スルフォラン ( 200 g ) 中、220 で 10 時間攪拌した。反応混合物を室温まで冷却後、水 1800 g に排出し、トルエン 1200 g で抽出を行った。この抽出液を濃縮後、これをアルミナカラムクロマトグラフィー ( 溶出液 : トルエン ) で処理した後、トルエンと n - ヘキサン混合溶媒を用いて 2 回再結晶し、黄色の結晶として、例示化合物番号 F - 16 の化合物を 26 g 得た。融点は 300 以上であった。

30

【0130】

(実施例 10) 例示化合物番号 F - 35 の製造

7 - ( N - カルバゾリル ) - 9 , 9 - ジメチル - 2 - [ 4 - ( i s o - プロピルフェニル ) アミノ ] - 9 H - フルオレン 100 g、4 , 4 ' - ジヨードピフェニル 40 g、金属銅粉 64 g、および無水炭酸カリウム 100 g を、スルフォラン ( 200 g ) 中、220 で 10 時間攪拌した。反応混合物を室温まで冷却後、水 1800 g に排出し、トルエン 1000 g で抽出を行った。この抽出液を濃縮後、アルミナカラムクロマトグラフィー ( 溶出液 : トルエン ) で処理した後、トルエンと n - ヘキサン混合溶媒を用いて 2 回再結晶し、黄色の結晶として、例示化合物番号 F - 35 の化合物を 42 g 得た。融点は 300 以上であった。

40

【0131】

(実施例 11) 例示化合物番号 I - 1 の製造

2 , 7 - ジヨード - 9 , 9 - ジメチル - 9 H - フルオレン 45 g、N , N , N ' - トリフェニル - 1 , 4 - ジアミノベンゼン 100 g、金属銅粉 64 g、および無水炭酸カリウム 140 g を、o - ジクロロベンゼン ( 250 g ) 中、180 で 24 時間攪拌した。反応混合物を 100 まで冷却して熱濾過後、メタノール 800 g に排出し、析出した淡黄色の固体を濾過、洗浄、乾燥した。

この固体をアルミナカラムクロマトグラフィー ( 溶出液 : トルエン ) で処理した後、トル

50

エンとn-ヘキサンの混合溶媒を用いて2回再結晶し、淡黄色の結晶として、例示化合物番号I-1の化合物34gを得た。融点は300以上であった。

【0132】

(実施例12) 例示化合物番号I-18の製造

実施例11においてN,N,N'-トリフェニル-1,4-ジアミノベンゼンを用いる代わりに、N-(1'-ナフチル)-N,N'-ジフェニル-1,4-ジアミノベンゼンを使用する以外は、実施例11と同様の操作を行い、淡黄色の結晶として、例示化合物番号I-18の化合物37gを得た。融点は300以上であった。

【0133】

(実施例13) 例示化合物番号J-3の製造

実施例11においてN,N,N'-トリフェニル-1,4-ジアミノベンゼンを用いる代わりに、4-メチル-N,N,N'-トリフェニル-1,3-ジアミノベンゼンを使用する以外は、実施例11と同様の操作を行い、淡黄色の結晶として、例示化合物番号J-3の化合物37gを得た。融点は300以上であった。

【0134】

(実施例14) 例示化合物番号N-4の製造

2,7-ジ(フェニルアミノ)-9,9-ジメチル-9H-フルオレン38g、4'-ヨード-4-[N,N-ジ(4"-メチルフェニル)アミノ]ピフェニル120g、金属銅粉64g、および無水炭酸カリウム140gを、スルフォラン(100g)中、12時間攪拌した。反応混合物を冷却後、水1000gに排出し、トルエン1000gで抽出を行った。この抽出液を濃縮後、アルミナカラムクロマトグラフィー(溶出液:トルエン)で処理した後、トルエンとn-ヘキサンの混合溶媒を用いて2回再結晶し、淡黄色の結晶として、例示化合物番号N-4の化合物37gを得た。融点は300以上であった。

【0135】

(実施例15) 例示化合物番号O-1の製造

実施例14において4'-ヨード-4-[N,N-ジ(4"-メチルフェニル)アミノ]ピフェニルを用いる代わりに、2-ヨード-7-ジフェニルアミノ-9,9-ジメチル-9H-フルオレンを使用する以外は、実施例14と同様の操作を行い、淡黄色の結晶として、例示化合物番号O-1の化合物35gを得た。融点は300以上であった。

【0136】

(実施例16) 有機電界発光素子の作製

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$ Torrに減圧した。

まず、ITO透明電極上に、例示化合物番号A-2の化合物を、蒸着速度0.2nm/secで75nmの厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。

次いで、その上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを、蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層を兼ねた発光層とした。

さらにその上に、陰極として、マグネシウムと銀を蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。

作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、50、乾燥雰囲気下、10mA/cm<sup>2</sup>の定電流密度で連続駆動させた。初期には、6.5V、輝度470cd/m<sup>2</sup>の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は550時間であった。

【0137】

(実施例17~58)

実施例16において、正孔注入輸送層の形成に際して、例示化合物番号A-2の化合物を使用する代わりに、例示化合物番号A-4の化合物(実施例17)、例示化合物番号A-10の化合物(実施例18)、例示化合物番号A-13の化合物(実施例19)、例示化

10

20

30

40

50

化合物番号 A - 17 の化合物 (実施例 20)、例示化合物番号 A - 23 の化合物 (実施例 21)、例示化合物番号 A - 32 の化合物 (実施例 22)、例示化合物番号 A - 35 の化合物 (実施例 23)、

例示化合物番号 B - 4 の化合物 (実施例 24)、例示化合物番号 C - 3 の化合物 (実施例 25)、例示化合物番号 D - 2 の化合物 (実施例 26)、例示化合物番号 E - 3 の化合物 (実施例 27)、例示化合物番号 E - 4 の化合物 (実施例 28)、例示化合物番号 E - 8 の化合物 (実施例 29)、例示化合物番号 E - 12 の化合物 (実施例 30)、例示化合物番号 E - 16 の化合物 (実施例 31)、

例示化合物番号 F - 1 の化合物 (実施例 32)、例示化合物番号 F - 6 の化合物 (実施例 33)、例示化合物番号 F - 14 の化合物 (実施例 34)、例示化合物番号 F - 16 の化合物 (実施例 35)、例示化合物番号 F - 31 の化合物 (実施例 36)、例示化合物番号 F - 35 の化合物 (実施例 37)、

例示化合物番号 G - 3 の化合物 (実施例 38)、例示化合物番号 H - 4 の化合物 (実施例 39)、

例示化合物番号 I - 1 の化合物 (実施例 40)、例示化合物番号 I - 12 の化合物 (実施例 41)、例示化合物番号 I - 13 の化合物 (実施例 42)、例示化合物番号 I - 18 の化合物 (実施例 43)、例示化合物番号 I - 20 の化合物 (実施例 44)、例示化合物番号 I - 22 の化合物 (実施例 45)、例示化合物番号 I - 28 の化合物 (実施例 46)、例示化合物番号 J - 3 の化合物 (実施例 47)、例示化合物番号 J - 5 の化合物 (実施例 48)、例示化合物番号 K - 3 の化合物 (実施例 49)、例示化合物番号 M - 1 の化合物 (実施例 50)、

例示化合物番号 N - 3 の化合物 (実施例 51)、例示化合物番号 N - 4 の化合物 (実施例 52)、例示化合物番号 N - 7 の化合物 (実施例 53)、例示化合物番号 N - 10 の化合物 (実施例 54)、例示化合物番号 N - 14 の化合物 (実施例 55)、

例示化合物番号 O - 1 の化合物 (実施例 56)、例示化合物番号 P - 3 の化合物 (実施例 57)、例示化合物番号 Q - 3 の化合物 (実施例 58) を使用した以外は、実施例 16 に記載の方法により有機電界発光素子を作製した。各素子からは緑色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第 1 表に示した。

【0138】

(比較例 1 ~ 2)

実施例 1 において、正孔注入輸送層の形成に際して、例示化合物番号 A - 2 の化合物を使用する代わりに、4,4'-ビス〔N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ〕ピフェニル(比較例 1)、9,9-ジメチル-2,7-ビス(N,N-ジフェニルアミノ)フルオレン(比較例 2)を使用した以外は、実施例 1 に記載の方法により有機電界発光素子を作製した。各素子からは緑色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第 1 表に示した。

【0139】

【表 1】

10

20

30



第1表

有機電界 発光素子	初期特性 (50℃)		半減期 (50℃) (hr)
	輝度	電圧	
	(cd/m <sup>2</sup> )	(V)	
実施例17	450	6.6	530
実施例18	460	6.8	540
実施例19	450	6.6	520
実施例20	480	6.5	550
実施例21	460	6.8	530
実施例22	450	6.7	530
実施例23	470	6.4	540
実施例24	470	6.5	530
実施例25	450	6.4	530
実施例26	480	6.6	540
実施例27	470	6.5	550
実施例28	450	6.5	560
実施例29	460	6.4	560
実施例30	480	6.6	530
実施例31	470	6.5	520
実施例32	450	6.4	540
実施例33	470	6.6	550
実施例34	460	6.8	530
実施例35	450	6.7	520
実施例36	440	6.4	540
実施例37	480	6.6	530
実施例38	460	6.8	530

10

20

30

40

【0140】

【表2】

第1表 (続き)

有機電界 発光素子	初期特性 (50℃)		半減期 (50℃) (hr)
	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	電圧 (V)	
実施例 39	490	6.7	520
実施例 40	480	6.8	560
実施例 41	460	6.5	520
実施例 42	430	6.4	530
実施例 43	470	6.5	550
実施例 44	460	6.4	520
実施例 45	470	6.5	530
実施例 46	480	6.6	540
実施例 47	490	6.7	510
実施例 48	430	6.6	540
実施例 49	470	6.4	520
実施例 50	460	6.5	520
実施例 51	450	6.6	530
実施例 52	480	6.4	550
実施例 53	470	6.7	540
実施例 54	450	6.6	550
実施例 55	440	6.5	530
実施例 56	460	6.6	520
実施例 57	470	6.5	510
実施例 58	460	6.4	550
比較例 1	300	6.6	5
比較例 2	450	6.5	100

10

20

30

40

## 【0141】

(実施例 59)

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$ Torrに減圧した。

まず、ITO透明電極上に、ポリ(チオフェン-2,5-ジイル)を蒸着速度0.1nm/secで、20nmの厚さに蒸着し、第一正孔注入輸送層とした。

次いで、例示化合物番号A-2の化合物を、蒸着速度0.2nm/secで55nmの厚さ

50

に蒸着し、第二正孔注入輸送層とした。

次いで、その上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを、蒸着速度0.2 nm/secで50 nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層を兼ねた発光層とした。

さらにその上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2 nm/secで200 nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。

作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、10 mA/cm<sup>2</sup>の定電流密度で連続駆動させた。初期には、6.3 V、輝度480 cd/m<sup>2</sup>の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は1300時間であった。

【0142】

(実施例60)

厚さ200 nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を3×10<sup>-6</sup>Torrに減圧した。

まず、ITO透明電極上に、4,4',4"-トリス[N-(3"-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミンを蒸着速度0.1 nm/secで、50 nmの厚さに蒸着し、第一正孔注入輸送層とした。

次いで、例示化合物番号F-16の化合物とルブレンを、異なる蒸発源から、蒸着速度0.2 nm/secで20 nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)し、第二正孔注入輸送層を兼ねた発光層とした。

次いで、その上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを蒸着速度0.2 nm/secで50 nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。

さらにその上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2 nm/secで200 nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。

作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、10 mA/cm<sup>2</sup>の定電流密度で連続駆動させた。初期には、6.6 V、輝度460 cd/m<sup>2</sup>の黄色の発光が確認された。輝度の半減期は1200時間であった。

【0143】

(実施例61)

厚さ200 nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を3×10<sup>-6</sup>Torrに減圧した。

まず、ITO透明電極上に、ポリ(チオフェン-2,5-ジイル)を蒸着速度0.1 nm/secで、20 nmの厚さに蒸着し、第一正孔注入輸送層とした。蒸着槽を大気圧下に戻した後、再び蒸着槽を3×10<sup>-6</sup>Torrに減圧した。

次いで、例示化合物番号I-1の化合物とルブレンを、異なる蒸発源から、蒸着速度0.2 nm/secで55 nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)し、第二正孔注入輸送層を兼ねた発光層とした。

減圧状態を保ったまま、次いで、その上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを蒸着速度0.2 nm/secで50 nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。

減圧状態を保ったまま、さらにその上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2 nm/secで200 nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。

作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、10 mA/cm<sup>2</sup>の定電流密度で連続駆動させた。初期には、6.2 V、輝度470 cd/m<sup>2</sup>の黄色の発光が確認された。輝度の半減期は1500時間であった。

【0144】

10

20

30

40

50

## (実施例62)

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$ Torrに減圧した。

まず、ITO透明電極上に、例示化合物番号A-17の化合物を蒸着速度0.1nm/secで、20nmの厚さに蒸着し、第一正孔注入輸送層とした。

次いで、例示化合物番号A-23の化合物とルブレンを、異なる蒸発源から、蒸着速度0.2nm/secで55nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)し、第二正孔注入輸送層を兼ねた発光層とした。

さらに、その上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。

さらにその上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。

作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、10mA/cm<sup>2</sup>の定電流密度で連続駆動させた。初期には、6.2V、輝度530cd/m<sup>2</sup>の黄色の発光が確認された。輝度の半減期は1500時間であった。

## 【0145】

## (実施例63)

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$ Torrに減圧した。

まず、ITO透明電極上に、例示化合物番号O-1の化合物を、蒸着速度0.2nm/secで55nmの厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。

次いで、その上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムと例示化合物番号B-1の化合物を、蒸着速度0.2nm/secで40nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)し、発光層とした。

さらに、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを、蒸着速度0.2nm/secで30nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。

さらにその上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。

作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、10mA/cm<sup>2</sup>の定電流密度で連続駆動させた。初期には、6.3V、輝度570cd/m<sup>2</sup>の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は1600時間であった。

## 【0146】

## (実施例64)

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した。

次に、ITO透明電極上に、ポリカーボネート(重量平均分子量50000)、と例示化合物番号J-3の化合物を、重量比100:50の割合で含有する3重量%ジクロロエタン溶液を用いて、ディップコート法により、40nmの正孔注入輸送層とした。次に、この正孔注入輸送層を有するガラス基板を、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$ Torrに減圧した。

次いで、その上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを、蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層を兼ねた発光層とした。

さらに、発光層の上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2nm/secで200nmの

10

20

30

40

50

厚さに共蒸着（重量比 10 : 1）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。  
作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、10 V の直流電圧を印加したところ、90 mA/cm<sup>2</sup> の電流が流れた。輝度 970 cd/m<sup>2</sup> の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は 250 時間であった。

【0147】

（実施例 65）

厚さ 200 nm の ITO 透明電極（陽極）を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらに UV / オゾン洗浄した。

次に、ITO 透明電極上に、ポリメチルメタクリレート（重量平均分子量 25000）、  
例示化合物番号 F-1 の化合物、トリス（8-キノリノラート）アルミニウムを、それぞ  
れ重量比 100 : 50 : 0.5 の割合で含有する 3 重量%ジクロロエタン溶液を用いて、  
ディップコート法により、100 nm の発光層を形成した。

次に、この発光層を有するガラス基板を、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽  
を  $3 \times 10^{-6}$  Torr に減圧した。

さらに、発光層の上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度 0.2 nm/sec で 200 nm の  
厚さに共蒸着（重量比 10 : 1）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。

作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、15 V の直流電圧を印加したところ、85  
mA/cm<sup>2</sup> の電流が流れた。輝度 540 cd/m<sup>2</sup> の緑色の発光が確認された。輝度の半  
減期は 300 時間であった。

【0148】

【発明の効果】

本発明により、新規なアミン化合物、および発光寿命が長く、耐久性に優れた有機電界発  
光素子を提供することが可能になった。

【図面の簡単な説明】

【図 1】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【図 2】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【図 3】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【図 4】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【図 5】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【図 6】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【図 7】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【図 8】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【符号の説明】

1 : 基板

2 : 陽極

3 : 正孔注入輸送層

3 a : 正孔注入輸送成分

4 : 発光層

4 a : 発光成分

5 : 電子注入輸送層

5 " : 電子注入輸送層

5 a : 電子注入輸送成分

6 : 陰極

7 : 電源

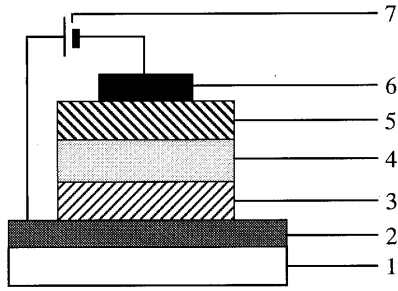
10

20

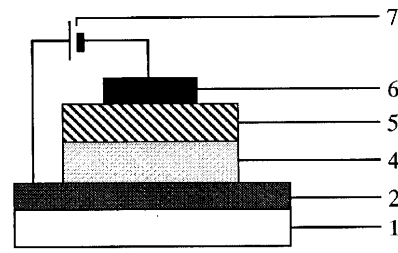
30

40

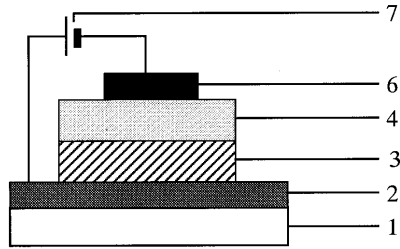
【図1】



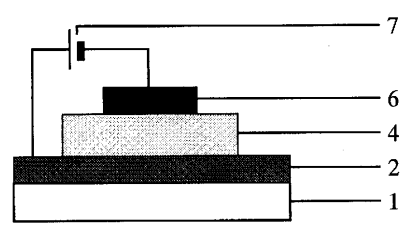
【図3】



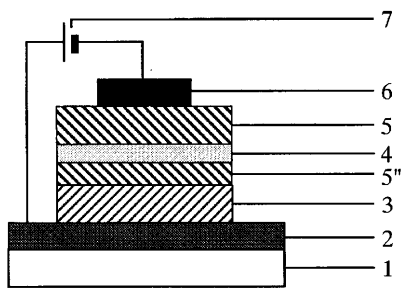
【図2】



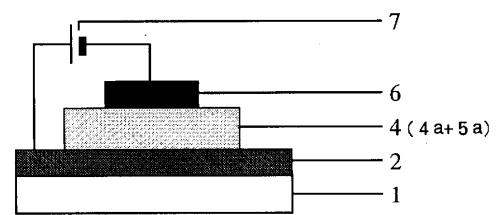
【図4】



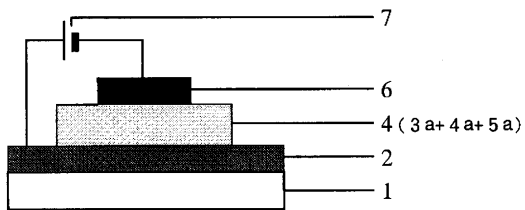
【図5】



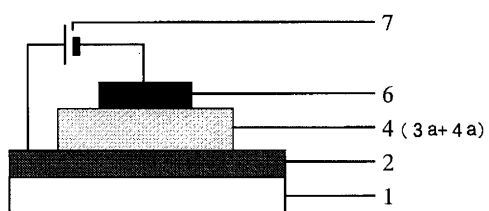
【図8】



【図6】



【図7】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I	
<i>C 0 7 D 279/26</i>	<i>(2006.01)</i>	C 0 7 D 279/26	
<i>C 0 7 D 333/36</i>	<i>(2006.01)</i>	C 0 7 D 333/36	
<i>C 0 9 K 11/06</i>	<i>(2006.01)</i>	C 0 9 K 11/06	6 2 0
<i>H 0 1 L 51/50</i>	<i>(2006.01)</i>	H 0 5 B 33/14	B
		H 0 5 B 33/22	D

審査官 野口 勝彦

(56)参考文献 特開平 1 1 - 1 8 5 9 6 5 ( J P , A )  
 特開平 1 1 - 1 7 6 5 7 4 ( J P , A )  
 特開 2 0 0 0 - 3 0 9 5 6 6 ( J P , A )  
 特開平 1 1 - 1 5 4 5 9 4 ( J P , A )  
 特開平 1 1 - 1 6 7 9 9 2 ( J P , A )

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B名)

C07C 211/61  
 CA(STN)  
 REGISTRY(STN)