

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第4882908号
(P4882908)

(45) 発行日 平成24年2月22日 (2012. 2. 22)

(24) 登録日 平成23年12月16日 (2011. 12. 16)

(51) Int. Cl.

F I

H O 1 L 51/50 (2006. 01)

H O 5 B 33/14

B

C O 8 G 63/68 (2006. 01)

H O 5 B 33/22

B

C O 9 K 11/06 (2006. 01)

H O 5 B 33/22

D

G O 9 F 9/30 (2006. 01)

C O 8 G 63/68

H O 1 L 27/32 (2006. 01)

C O 9 K 11/06

6 9 0

請求項の数 7 (全 82 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2007-205763 (P2007-205763)

(22) 出願日 平成19年8月7日 (2007. 8. 7)

(65) 公開番号 特開2009-43847 (P2009-43847A)

(43) 公開日 平成21年2月26日 (2009. 2. 26)

審査請求日 平成21年8月24日 (2009. 8. 24)

(73) 特許権者 000005496

富士ゼロックス株式会社

東京都港区赤坂九丁目7番3号

(74) 代理人 100079049

弁理士 中島 淳

(74) 代理人 100084995

弁理士 加藤 和詳

(74) 代理人 100085279

弁理士 西元 勝一

(74) 代理人 100099025

弁理士 福田 浩志

(72) 発明者 堀場 幸治

神奈川県南足柄市竹松1600番地 富士

ゼロックス株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機電界発光素子及び表示装置

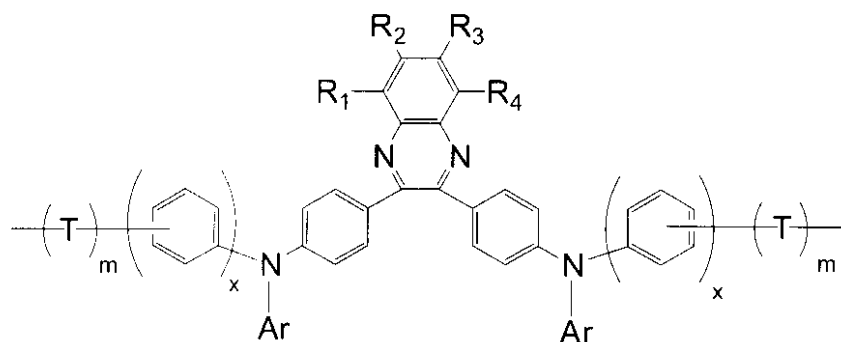
(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

少なくとも一方が透明又は半透明である陽極及び陰極よりなる一対の電極と、前記一対の電極間に挟持された一つ又は複数の有機化合物層と、を含んで構成され、

前記有機化合物層の少なくとも一層が、下記一般式 (I - 1) で示される構造から選択された少なくとも1種を部分構造として含む繰り返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルを少なくとも1種含有することを特徴とする有機電界発光素子。

【化 1】



(I-1)

(一般式(Ⅰ-1)中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、及び R_4 は、それぞれ独立に、水素原子、置換若しくは未置換の炭素数1以上10以下の1価の炭化水素基、置換若しくは未置換の1価のフェニル基、ハロゲン原子、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の多核芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の縮合芳香族炭化水素、又は置換若しくは未置換の1価の芳香族複素環を表す。 Ar は、置換若しくは未置換の1価のフェニル基、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の多核芳香族炭化水素、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の縮合多環芳香族炭化水素、置換若しくは未置換の1価の芳香族複素環、又は少なくとも一種の芳香族複素環を含む1価の芳香族基を表す。 x は、1以上3以下の整数を示す。 T は、炭素数1以上10以下の2価の直鎖状炭化水素基、又は炭素数2以上10以下の2価の分枝鎖状炭化水素基を表す。 m は、0以上3以下の整数を表す。)

10

【請求項2】

前記有機化合物層が、少なくとも、発光層と、電子輸送層及び電子注入層の少なくとも1層とを含み、前記発光層、電子輸送層及び電子注入層から選択された少なくとも1層が、前記一般式(Ⅰ-1)で示される構造から選択された少なくとも1種を部分構造として含む繰り返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルを少なくとも1種以上含有することを特徴とする請求項1に記載の有機電界発光素子。

【請求項3】

前記有機化合物層が、少なくとも、発光層と、正孔輸送層及び正孔注入層の少なくとも1層とを含み、前記発光層、正孔輸送層及び正孔注入層から選択された少なくとも1層が、前記一般式(Ⅰ-1)で示される構造から選択された少なくとも1種を部分構造として含む繰り返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルを少なくとも1種以上含有することを特徴とする請求項1に記載の有機電界発光素子。

20

【請求項4】

前記有機化合物層が、少なくとも、発光層と、正孔輸送層及び正孔注入層の少なくとも1層と、電子輸送層及び電子注入層の少なくとも1層とを含み、前記発光層、正孔輸送層、正孔注入層、電子輸送層及び電子注入層から選択された少なくとも1層が、前記一般式(Ⅰ-1)で示される構造から選択された少なくとも1種を部分構造として含む繰り返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルを少なくとも1種以上含有することを特徴とする請求項1に記載の有機電界発光素子。

30

【請求項5】

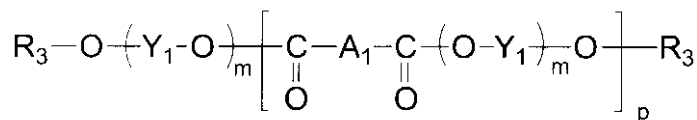
前記有機化合物層が、電荷輸送機能を持つ発光層のみから構成され、前記電荷輸送機能を持つ発光層が、前記一般式(Ⅰ-1)で示される構造から選択された少なくとも1種を部分構造として含む繰り返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルを少なくとも1種以上含有することを特徴とする請求項1に記載の有機電界発光素子。

【請求項6】

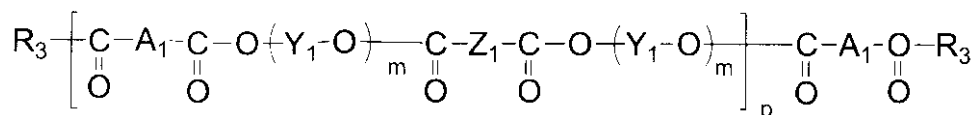
前記一般式(Ⅰ-1)で示される構造から選択された少なくとも1種を部分構造として含む繰り返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルが、下記一般式(Ⅱ-1)又は(Ⅱ-2)で示される電荷輸送性ポリエステルであることを特徴とする請求項1に記載の有機電界発光素子。

40

【化 2】



(II-1)



(II-2)

(一般式(II-1)及び(II-2)中、 A_1 は前記一般式(I-1)で示される構造から選択された少なくとも1種以上を表す。 Y_1 は2価のアルコール残基を表す。 Z_1 は2価のカルボン酸残基を表す。 m は、1以上5以下の整数を表す。 p は5以上5000以下の整数を表す。 R_3 は、それぞれ独立に水素、 $-O-(Y_1-O)_m-H$ 、 $-O-(Y_1-O)_m-CO-Z_1-CO-OR'$ で表される基を表す(但し、 R' は、水素原子、アルキル基、置換若しくは未置換のアリール基、又は、置換若しくは未置換のアラルキル基を表す。 Y_1 、 Z_1 、 m は上記と同義である。))。

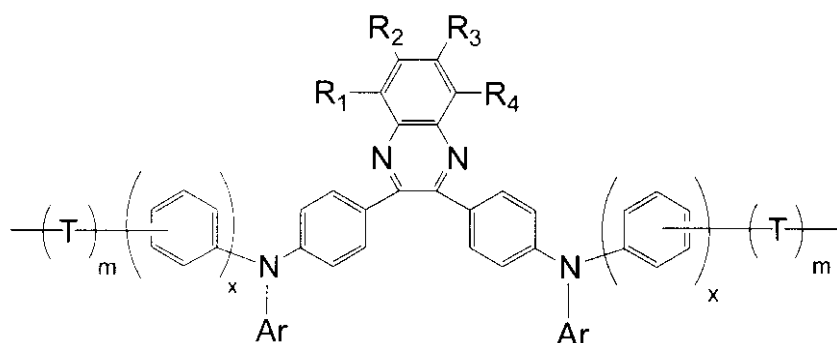
【請求項7】

少なくとも一方が透明又は半透明である陽極及び陰極よりなる一对の電極と、前記一对の電極間に挟持された一つ又は複数の有機化合物層と、を含んで構成され、前記有機化合物層の少なくとも一層が、下記一般式(I-1)で示される構造から選択された少なくとも1種を部分構造として含む繰り返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルを少なくとも1種含有し、マトリックス状及びセグメント状の少なくとも1一方で配列された有機電界発光素子と、

マトリックス状及びセグメント状の少なくとも1一方で配列された前記有機電界発光素子を駆動させる駆動手段と、

を備えることを特徴とする表示装置。

【化 3】



(I-1)

(一般式(I-1)中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、及び R_4 は、それぞれ独立に、水素原子、置換若しくは未置換の炭素数1以上10以下の1価の炭化水素基、置換若しくは未置換の1価のフェニル基、ハロゲン原子、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の多核芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の縮合芳香族炭化水素、又は置換若しくは未置換の1価の芳香族複素環を表す。 Ar は、置換若しく

10

20

30

40

50

は未置換の 1 価のフェニル基、置換若しくは未置換の芳香環数 2 以上 10 以下の 1 価の多核芳香族炭化水素、置換若しくは未置換の芳香環数 2 以上 10 以下の 1 価の縮合多環芳香族炭化水素、置換若しくは未置換の 1 価の芳香族複素環、又は少なくとも一種の芳香族複素環を含む 1 価の芳香族基を表す。x は、1 以上 3 以下の整数を示す。T は、炭素数 1 以上 10 以下の 2 価の直鎖状炭化水素基、又は炭素数 2 以上 10 以下の 2 価の分枝鎖状炭化水素基を表す。m は、0 以上 3 以下の整数を表す。)

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、有機電界発光素子、及び表示装置に関するものである。

10

【背景技術】

【0002】

電界発光素子は、自発光性の全固体素子であり、視認性が高く衝撃にも強いため、広く応用が期待されている。現在は無機蛍光体を用いたものが主流であり広く使用されているが、駆動に 200V 以上、50Hz 以上 1000Hz 以下の交流電圧を必要とするためランニングコストが高く、また輝度が不十分であるなどの問題点を有している。一方、有機化合物を用いた電界発光素子研究は、最初アントラセン等の単結晶を用いて始まったが、膜厚が 1mm 程度と厚く、100V 以上の駆動電圧が必要であった。そのため蒸着法による薄膜化が試みられている（例えば、非特許文献 1 参照）。

【0003】

20

これら素子の発光は、電極の一方から電子が注入され、もう一方の電極から正孔が注入されることにより、素子中の発光材料が高いエネルギー準位に励起され、励起された発光体が基底状態に戻る際の余分なエネルギーを光として放出する現象である。

【0004】

一方、1987年にTangらにより透明基板上に正孔輸送性有機低分子化合物と電子輸送能を持つ蛍光性有機低分子化合物を真空蒸着法により極めて薄い薄膜を順次積層した機能分離型の有機電界発光素子で、10V程度の低電圧で1000cd/m²以上の高輝度が得られるものが報告され（例えば、特許文献1又は非特許文献2参照）、以来、有機電界発光素子の研究・開発が活発に行われている。

【0005】

30

これら積層構造の電界発光素子は、有機発光体と電荷輸送性の有機物（電荷輸送材料）を電極に積層した構造であり、それぞれの正孔と電子が電荷輸送材料中を移動して、再結合することにより発光する。有機発光体としては8-キノリノールアルミニウム錯体やクマリン化合物など蛍光を発する有機色素などが用いられる。また、電荷輸送材料としては、N,N-ジ(m-トリル)N,N'-ジフェニルベンジジンや1,1-ビス[N,N-ジ(p-トリル)アミノフェニル]シクロヘキサンといったジアミノ化合物や、4-(N,N-ジフェニル)アミノベンズアルデヒド-N,N-ジフェニルヒドラゾン化合物等が挙げられる。

【0006】

ところで、電界発光素子の熱安定性に関する問題の解決のために、ガラス転移温度を向上し、安定なアモルファスガラス状態が得られるα-ナフチル基を導入したN,N-ジ(1-ナフチル)N,N'-ジフェニルベンジジン（例えば、非特許文献3参照）、スターバーストアミン（例えば、非特許文献4参照）を用いた有機電界発光素子が報告されている。

40

【0007】

一方、低分子化合物の代わりに高分子材料を用いる電界発光素子についても研究・開発が進められ、ポリ(p-フェニレンビニレン)等の導電性高分子素子（例えば、特許文献2又は非特許文献5参照）、ポリフォスファゼンの側鎖にトリフェニルアミンを導入した高分子素子（例えば、非特許文献6参照）、正孔輸送性ポリビニルカルバゾール中に電子輸送材料と蛍光色素を混入した素子（例えば、非特許文献7参照）が提案されている。な

50

お、前記「導電性高分子」とは体積抵抗率が 1×10^8 以上 1×10^{10} 以下の範囲である高分子のことを意味する。

【0008】

また、作製法においては、製造の簡略化、加工性、大面積化、コスト等の観点から塗布方式が望ましく、キャストイング法によっても素子が得られることが報告されている（例えば、非特許文献8及び9参照）。しかし、電荷輸送材料の溶剤や樹脂に対する溶解性、相溶性が悪いため、結晶化しやすく製造上あるいは特性上に欠陥があった。

【特許文献1】特開昭59-194393号公報

【特許文献2】特開平10-92576号公報

【非特許文献1】Thin Solid Films, 94, 171 (1982)

10

【非特許文献2】Appl. Phys. Lett., 51, 913 (1987)

【非特許文献3】電子情報通信学会技術研究報告、OME95-54 (1995)

【非特許文献4】第40回応用物理学関係連合講演会予稿集30a-SZK-14 (1993)

【非特許文献5】Nature, 357, 477 (1992)

【非特許文献6】第42回高分子討論会予稿集20J21 (1993)

【非特許文献7】第38回応用物理学関係連合講演会予稿集31p-G-12 (1991)

【非特許文献8】第50回応用物理学学会学術講演予稿集, 29p-ZP-5 (1989)

【非特許文献9】第51回応用物理学学会学術講演予稿集, 28a-PB-7 (1990)

20

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

本発明の課題は、発光強度が大きく、発光効率が高く、素子寿命が長く、かつ製造が容易な有機電界発光素子を提供することである。また、本発明の課題は、上記有機電界発光素子を利用した表示装置を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0010】

上記課題は、以下の手段により解決される。即ち、本発明は、請求項1に係る発明は、

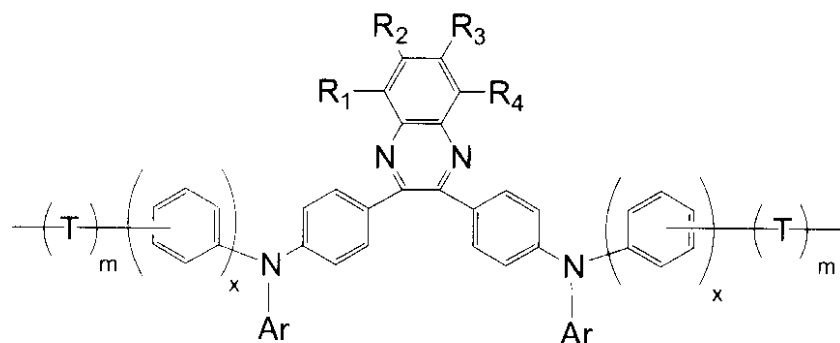
30

少なくとも一方が透明又は半透明である陽極及び陰極よりなる一対の電極と、前記一対の電極間に挟持された一つ又は複数の有機化合物層と、を含んで構成され、

前記有機化合物層の少なくとも一層が、下記一般式(I-1)で示される構造から選択された少なくとも1種を部分構造として含む繰返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルを少なくとも1種含有することを特徴とする有機電界発光素子。

【0011】

【化1】



40

(I-1)

【0012】

50

(一般式(Ⅰ-1)中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、及び R_4 は、それぞれ独立に、水素原子、置換若しくは未置換の炭素数1以上10以下の1価の炭化水素基、置換若しくは未置換の1価のフェニル基、ハロゲン原子、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の多核芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の縮合芳香族炭化水素、又は置換若しくは未置換の1価の芳香族複素環を表す。 Ar は、置換若しくは未置換の1価のフェニル基、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の多核芳香族炭化水素、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の縮合多環芳香族炭化水素、置換若しくは未置換の1価の芳香族複素環、又は少なくとも一種の芳香族複素環を含む1価の芳香族基を表す。 x は、1以上3以下の整数を示す。 T は、炭素数1以上10以下の2価の直鎖状炭化水素基、又は炭素数2以上10以下の2価の分枝鎖状炭化水素基を表す。 m は、0以上3以下の整数を表す。)

10

【0013】

請求項2に係る発明は、

前記有機化合物層が、少なくとも、発光層と、電子輸送層及び電子注入層の少なくとも1層とを含み、前記発光層、電子輸送層及び電子注入層から選択された少なくとも1層が、前記一般式(Ⅰ-1)で示される構造から選択された少なくとも1種を部分構造として含む繰り返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルを少なくとも1種以上含有することを特徴とする請求項1に記載の有機電界発光素子。

【0014】

請求項3に係る発明は、

前記有機化合物層が、少なくとも、発光層と、正孔輸送層及び正孔注入層の少なくとも1層とを含み、前記発光層、正孔輸送層及び正孔注入層から選択された少なくとも1層が、前記一般式(Ⅰ-1)で示される構造から選択された少なくとも1種を部分構造として含む繰り返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルを少なくとも1種以上含有することを特徴とする請求項1に記載の有機電界発光素子。

20

【0015】

請求項4に係る発明は、

前記有機化合物層が、少なくとも、発光層と、正孔輸送層及び正孔注入層の少なくとも1層と、電子輸送層及び電子注入層の少なくとも1層とを含み、前記発光層、正孔輸送層、正孔注入層、電子輸送層及び電子注入層から選択された少なくとも1層が、前記一般式(Ⅰ-1)で示される構造から選択された少なくとも1種を部分構造として含む繰り返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルを少なくとも1種以上含有することを特徴とする請求項1に記載の有機電界発光素子。

30

【0016】

請求項5に係る発明は、

前記有機化合物層が、電荷輸送機能を持つ発光層のみから構成され、前記電荷輸送機能を持つ発光層が、前記一般式(Ⅰ-1)で示される構造から選択された少なくとも1種を部分構造として含む繰り返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルを少なくとも1種以上含有することを特徴とする請求項1に記載の有機電界発光素子。

【0017】

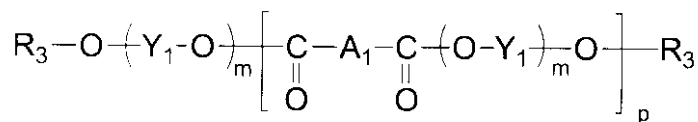
請求項6に係る発明は、

前記一般式(Ⅰ-1)で示される構造から選択された少なくとも1種を部分構造として含む繰り返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルが、下記一般式(Ⅱ-1)又は(Ⅱ-2)で示される電荷輸送性ポリエステルであることを特徴とする請求項1に記載の有機電界発光素子。

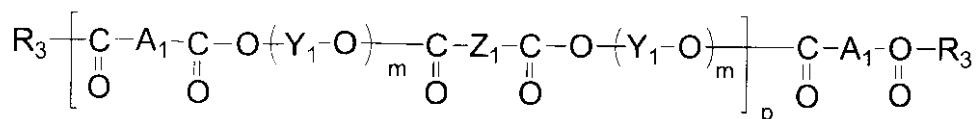
40

【0018】

【化2】



(II-1)



(II-2)

【0019】

(一般式(II-1)及び(II-2)中、 A_1 は前記一般式(I-1)で示される構造から選択された少なくとも1種以上を表す。 Y_1 は2価のアルコール残基を表す。 Z_1 は2価のカルボン酸残基を表す。 m は、1以上5以下の整数を表す。 p は5以上5000以下の整数を表す。 R_3 は、それぞれ独立に水素、 $-O-(Y_1-O)_m-H$ 、 $-O-(Y_1-O)_m-CO-Z_1-CO-OR'$ で表される基を表す(但し、 R' は、水素原子、アルキル基、置換若しくは未置換のアリール基、又は、置換若しくは未置換のアラルキル基を表す。 Y_1 、 Z_1 、 m は上記と同義である。))。

【0020】

請求項7に係る発明は、

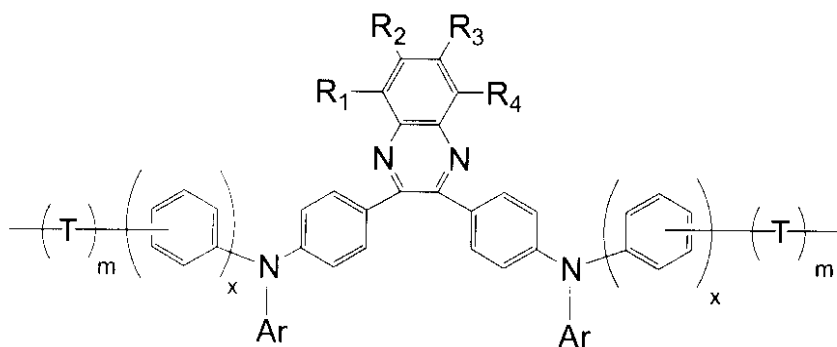
少なくとも一方が透明又は半透明である陽極及び陰極よりなる一対の電極と、前記一対の電極間に挟持された一つ又は複数の有機化合物層と、を含んで構成され、前記有機化合物層の少なくとも一層が、下記一般式(I-1)で示される構造から選択された少なくとも1種を部分構造として含む繰返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルを少なくとも1種含有し、マトリックス状及びセグメント状の少なくとも1一方で配列された有機電界発光素子と、

マトリックス状及びセグメント状の少なくとも1一方で配列された前記有機電界発光素子を駆動させる駆動手段と、

を備えることを特徴とする表示装置。

【0021】

【化3】



(I-1)

【0022】

(一般式(I-1)中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、及び R_4 は、それぞれ独立に、水素原子、置

10

20

30

40

50

換若しくは未置換の炭素数 1 以上 10 以下の 1 価の炭化水素基、置換若しくは未置換の 1 価のフェニル基、ハロゲン原子、置換若しくは未置換の芳香環数 2 以上 10 以下の 1 価の多核芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の芳香環数 2 以上 10 以下の 1 価の縮合芳香族炭化水素、又は置換若しくは未置換の 1 価の芳香族複素環を表す。Ar は、置換若しくは未置換の 1 価のフェニル基、置換若しくは未置換の芳香環数 2 以上 10 以下の 1 価の多核芳香族炭化水素、置換若しくは未置換の芳香環数 2 以上 10 以下の 1 価の縮合多環芳香族炭化水素、置換若しくは未置換の 1 価の芳香族複素環、又は少なくとも一種の芳香族複素環を含む 1 価の芳香族基を表す。x は、1 以上 3 以下の整数を示す。T は、炭素数 1 以上 10 以下の 2 価の直鎖状炭化水素基、又は炭素数 2 以上 10 以下の 2 価の分枝鎖状炭化水素基を表す。m は、0 以上 3 以下の整数を表す。)

10

【発明の効果】

【0023】

請求項 1 に係る発明によれば、発光強度が大きく、発光効率が高く、素子寿命が長く、かつ製造が容易である、といった効果を奏する。

【0024】

請求項 2 に係る発明によれば、他の層構成に比べ、製造容易性と発光効率との両立が図られる、といった効果を奏する。

【0025】

請求項 3 に係る発明によれば、他の構成に比べ、製造容易性と耐久性との両立が図れる、といった効果を奏する。

20

【0026】

請求項 4 に係る発明によれば、他の層構成の素子に比べ、発光効率が高く、低電圧駆動が可能となる、といった効果を奏する。

【0027】

請求項 5 に係る発明によれば、他の層構成に比べ、素子の大面積化及び製造が容易である、といった効果を奏する。

【0028】

請求項 6 に係る発明によれば、より効果的に、発光強度が大きく、発光効率が高く、素子寿命が長く、かつ製造が容易である、といった効果を奏する。

【0029】

請求項 7 に係る発明によれば、発光強度が大きく、発光効率が高く、素子寿命が長く、かつ製造が容易である、といった効果を奏する。

30

【発明を実施するための最良の形態】

【0030】

以下、本発明の実施形態について詳細に説明する。

【0031】

本実施の形態に係る有機電界発光素子は、

少なくとも一方が透明又は半透明である陽極及び陰極よりなる一对の電極と、前記一对の電極間に挟持された一つ又は複数の有機化合物層と、を含んで構成され、

前記有機化合物層の少なくとも一層が、後述する下記一般式 (I - 1) で示される構造から選択された少なくとも 1 種を部分構造として含む繰り返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステル (以下、単に電荷輸送性ポリエステルと称する場合がある) を少なくとも 1 種含有することを特徴とする有機電界発光素子である。

40

【0032】

上記電荷輸送性ポリエステルは、有機電界発光素子として好適な電荷注入特性、電荷移動度、薄膜形成能、発光特性に加え、発光時の熱安定性、保存安定性を有する。このため、本実施形態に係る有機電界発光素子は、有機化合物層の少なくとも一層が前記電荷輸送性ポリエステルを含有してなることで、発光強度が大きく、及び発光効率が高く、素子寿命が長くなる。

【0033】

50

さらに、上記電荷輸送性ポリエステルを用いることで、大面積化すること可能であり、容易に製造することが可能となる。加えて、前記電荷輸送性ポリエステルは、溶剤や樹脂に対する溶解性及び相溶性にも優れている。本実施形態に係る有機電界発光素子は、より高い製造容易性が実現される。

【0034】

ここで、上記電荷輸送性ポリエステルは、その構造を選択することで、当該電荷輸送性ポリエステルに正孔輸送能、電子輸送能のいずれの機能をも付与される。このため、目的に応じて正孔輸送層、発光層、電子輸送層等のいずれの層にも用いられる。また、当該電荷輸送性ポリエステルは、電極として用いられるITOからの電荷注入性がよく電気伝導度が高いことから、本実施形態に係る有機電界発光素子は所望の特性が得られる。

10

【0035】

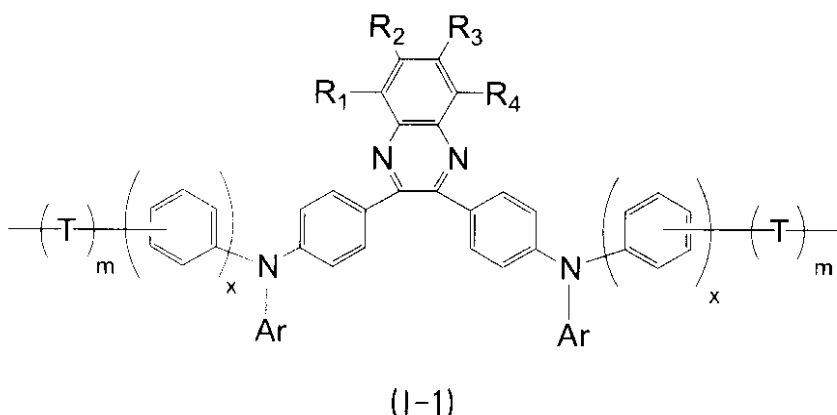
以下、本実施形態を詳細に説明するにあたり、まず電荷輸送性ポリエステルについて詳述する。

【0036】

上記電荷輸送性ポリエステルは、下記一般式(I-1)で示される構造から選択された少なくとも1種を部分構造として含む繰り返し単位を有するものである。

【0037】

【化4】



20

30

【0038】

一般式(I-1)中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、及び R_4 は、それぞれ独立に、水素原子、置換若しくは未置換の炭素数1以上10以下の1価の炭化水素基、置換若しくは未置換の1価のフェニル基、ハロゲン原子、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の多核芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の縮合芳香族炭化水素、又は置換若しくは未置換の1価の芳香族複素環を表す。 Ar は、置換若しくは未置換の1価のフェニル基、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の多核芳香族炭化水素、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の縮合多環芳香族炭化水素、置換若しくは未置換の1価の芳香族複素環、又は少なくとも一種の芳香族複素環を含む1価の芳香族基を表す。 x は、1以上3以下の整数を示す。 T は、炭素数1以上10以下の2価の直鎖状炭化水素基、又は炭素数2以上10以下の2価の分枝鎖状炭化水素基を表す。 m は、0以上3以下の整数を表す。

40

【0039】

一般式(I-1)中、 R_1 乃至 R_4 を表す構造として選択される炭化水素基は、直鎖状であってもよいし、分鎖状であってもよい。

直鎖状炭化水素基を構成する炭素数は、望ましくは1以上8以下であり、さらに望ましくは1以上6以下である。

一方、分枝鎖状炭化水素基を構成する炭素数は、望ましくは、3以上7以下であり、さらに望ましくは3以上5以下である。

【0040】

50

一般式 (I - 1) 中、 R_1 乃至 R_4 及び A_r を表す構造として選択される多核芳香族炭化水素及び縮合芳香族炭化水素を構成する芳香環の数は、2 以上 10 以下であるが、縮合芳香族炭化水素においては 1 以上 5 以下のものが望ましい。

【0041】

尚、当該多核芳香族炭化水素、縮合芳香族炭化水素、芳香族複素環、芳香族複素環を含む芳香族基とは、本実施形態においては、具体的には以下に定義される芳香族のことを意味する。

【0042】

即ち、「多核芳香族炭化水素」とは、炭素と水素から構成される芳香環が 2 個以上存在し、環同士が炭素 - 炭素結合によって結合している炭化水素を表す。具体的には、ビフェニル、ターフェニル等が挙げられる。

10

【0043】

「縮合芳香族炭化水素」とは、炭素と水素から構成される芳香環が 2 個以上存在し、これらの芳香環同士が 1 対の隣接して結合する炭素原子を共有している炭化水素化合物を表す。具体的には、ナフタレン、アントラセン、ピレン、フェナントレン、ペリレン、フルオレン等が挙げられる。

【0044】

「芳香族複素環」とは、炭素と水素以外の元素も含む芳香環を表す。芳香環に複素環が置換しているもの、複素環に芳香環が置換しているもの何れも含む。複素環は、その環骨格を構成する原子数 (N_r) が、 $N_r = 5$ や $N_r = 6$ が望ましく用いられる。また、環骨格を構成する炭素原子以外の原子 (異種原子) の種類及び数は特に限定されないが、例えば、硫黄原子、窒素原子、酸素原子等が望ましく用いられ、前記環骨格中には 2 種類以上や 2 個以上の異種原子が含まれてもよい。特に 5 員環構造をもつ複素環として、チオフェン、ピロール及びフラン、又は、前記化合物の 3 位及び 4 位の炭素を窒素で置き換えた複素環が望ましく用いられ、6 員環構造を持つ複素環として、ピリジンが望ましく用いられる。芳香環としては、フェニル基に加え、多核芳香族炭化水素、縮合芳香族炭化水素が挙げられる。

20

【0045】

「芳香族複素環を含む芳香族基」は、骨格を形成する原子団中に、少なくとも 1 種の前記芳香族複素環を含む結合基を表す。

30

【0046】

なお、これらは全てが共役系で構成されたもの、あるいは一部が共役系で構成されたもののいずれでもよいが、電荷輸送性や発光効率の点で、全てが共役系で構成されたものが望ましい。

【0047】

一般式 (I - 1) 中、 R_1 乃至 R_4 及び A_r を表す構造として選択される各基に置換可能な置換基としては、水素原子、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、アラルキル基、置換アミノ基、ハロゲン原子等が挙げられる。前記アルキル基としては、炭素数 1 以上 10 以下のものが望ましく、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基等が挙げられる。前記アルコキシ基としては、炭素数 1 以上 10 以下のものが望ましく、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基等が挙げられる。前記アリール基としては、炭素数 6 以上 20 以下のものが望ましく、例えば、フェニル基、トルイル基等が挙げられる。前記アラルキル基としては、炭素数 7 以上 20 以下のものが望ましく、例えば、ベンジル基、フェネチル基等が挙げられる。前記置換アミノ基の置換基としては、アルキル基、アリール基、アラルキル基等が挙げられ、具体例は前述の通りである。

40

【0048】

これらの中でも、イオン化ポテンシャルを高くするためには、 A_r を表す構造として選択される各基に置換可能な置換基としてはフェニル基、ビフェニル基、フッ素、トリフルオロメチル基が望ましい。また、イオン化ポテンシャルを低くするためには、 A_r を表す

50

構造として選択される各基に置換可能な置換基としてはトリフェニルアミノ基などの置換アミノ基又は、メトキシ基などのアルコキシ基が望ましい。また、溶剤や樹脂に対する溶解性及び相溶性をより向上させるためには、 R_1 乃至 R_4 を表す構造として選択される各基に置換可能な置換基としてはメチル基、ヘキシル基、オクチル基などのアルキル基が望ましく、さらに望ましくはヘキシル基である。

【0049】

一般式(I-1)中、 X は1以上3以下の整数を示すが、溶剤、樹脂に対する溶解性及び相溶性の観点から、望ましくは、1以上2以下である。特に、電荷注入特性、電荷移動度、薄膜形成能、発光特、発光時の熱安定性、及び保存安定性の各特性の向上をバランス良く実現するためには、 $X = 2$ であることが望ましい。

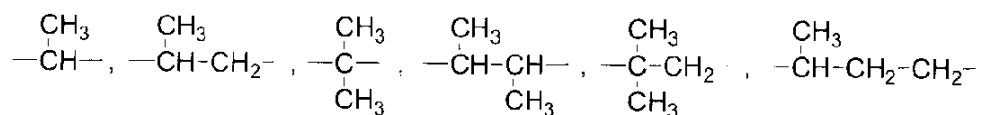
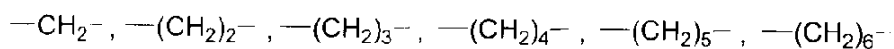
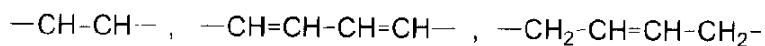
10

【0050】

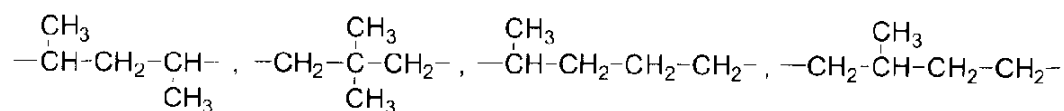
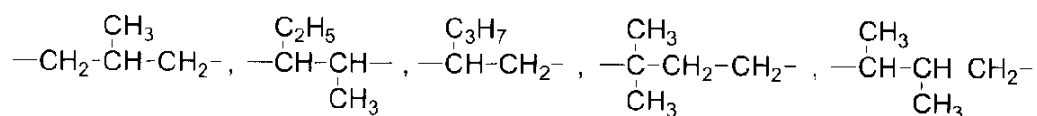
一般式(I-1)中、 T は、炭素数1以上10以下の2価の直鎖状炭化水素基又は炭素数2以上10以下の2価の分枝鎖状炭化水素基を表し、望ましくは炭素数が2以上6以下の2価の直鎖状炭化水素基及び炭素数3以上7以下の2価の分枝鎖状炭化水素基より選択される。これらの中でもより具体的には、以下に示す2価の炭化水素基が特に望ましい。

【0051】

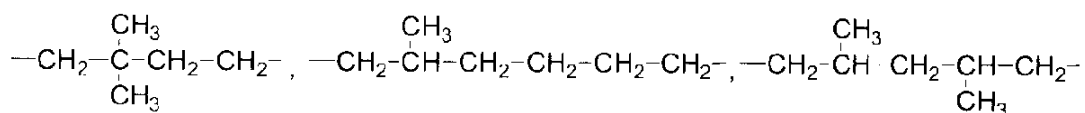
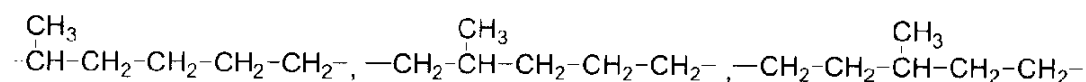
【化 5】



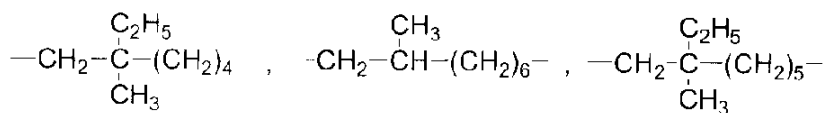
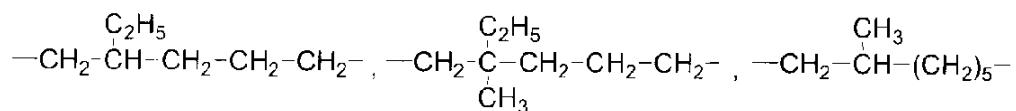
10



20



30



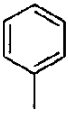
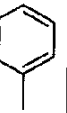
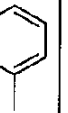
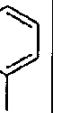
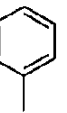
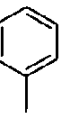
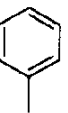
【 0 0 5 2 】

40

ここで、前記一般式（I - 1）で示される構造の具体例を、以下に示す。

【 0 0 5 3 】

【化 6】

構造	Ar	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	X	m	T	結合位置
1		-H	-H	-H	-H	1	1	$-(CH_2)_2-$	3
2		-H	-H	-H	-H	1	1	$-(CH_2)_2-$	4
3		-H	-CH ₃	-H	-H	1	1	$-(CH_2)_2-$	3
4		-H	-CH ₃	-CH ₃	-H	2	1	$-(CH_2)_2-$	4,4'
5		-H	-F	-H	-H	1	1	$-(CH_2)_2-$	4
6		-H	-CH ₂ CH ₃	-H	-H	1	1	$-(CH_2)_2-$	4
7		-H	-CH ₃	-H	-H	3	1	$\begin{array}{c} CH_3 \\ \\ -C- \\ \\ CH_3 \end{array}$	4,4'
8		-CH ₃	-H	-H	-H	1	1	$-(CH_2)_2-$	4

【 0 0 5 4 】

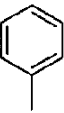
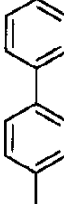
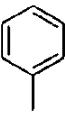
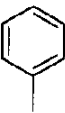
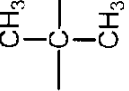
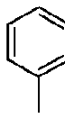
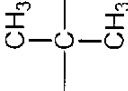
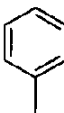
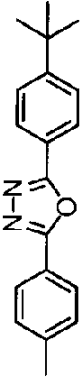
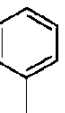
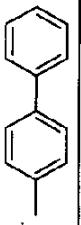
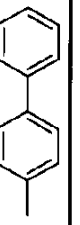
10

20

30

40

【化 7】

構造	Ar	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	X	m	T	結合位置
9		-H		-H	-H	1	1	$-(CH_2)_2-$	4
10		-H		-H	-H	1	1	$-(CH_2)_2-$	4
11		-CH ₃	-CH ₃	-H	-H	1	1		4
12		-H		-H	-H	1	1		4
13		-H		-H	-H	1	1	$-(CH_2)_2-$	4
14		-H	$-CH_2CH_2CH_2CH_2CH_2CH_3$	-H	-H	2	1	$-(CH_2)_2-$	4,4'
15		-H	-H	-H	-H	1	1	$-(CH_2)_2-$	3
16		-H	-H	-H	-H	1	1	$-(CH_2)_2-$	4

【 0 0 5 5 】

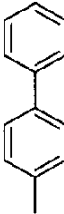
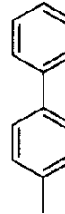
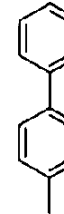
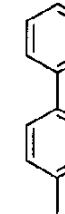
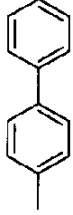
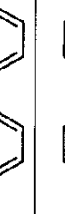
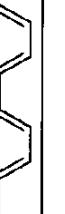
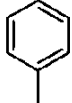
10

20

30

40

【化 8】

構造	Ar	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	X	m	T	結合位置
17		-H	-CH ₃	-H	-H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
18		-H	-CH ₃	-CH ₃	-H	2	1	—(CH ₂) ₂ —	4,4'
19		-H	-F	-H	-H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
20		-H	-CH ₂ CH ₃	-H	-H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
21		-CH ₂ CH ₃	-H	-H	-H	2	1	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ \\ \text{---CH---CH}_2\text{---CH}_2\text{---} \end{array}$	4,4'
22		-H		-H	-H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
23		H		H	-H	1	1	—(CH ₂) ₃ —	4
24		-H		-H	-H	1	1	—(CH ₂) ₃ —	4
25		-H		-H	-H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4

【 0 0 5 6 】

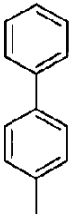
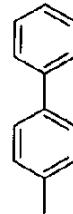
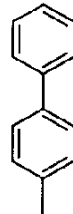
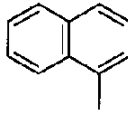
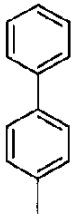
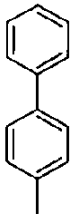
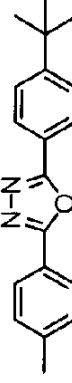
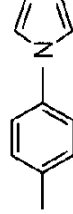
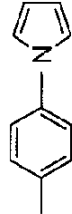
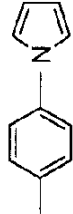
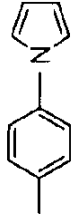
10

20

30

40

【化 9】

構造	Ar	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	X	m	T	結合位置
26		H	-F	-H	-H	1	1	$-(CH_2)_3-$	4
27		-H	-F	-F	-H	1	1	$-(CH(CH_3)-CH_2-CH_2)-$	4
28		-H		-H	-H	1	1	$-(CH_2)_2-$	4
29		-H	$-CH_2CH_2CH_2CH_2CH_2CH_3$	-H	-H	2	1	$-(CH_2)_2-$	4,4'
30		-H		-H	-H	1	1	$-(CH_2)_2-$	4
31		-H	-H	-H	-H	1	1	$-(CH_2)_2-$	3
32		-H	-H	-H	-H	1	1	$-(CH_2)_2-$	4
33		-H	-CH ₃	-H	-H	1	1	$-(CH_2)_3-$	4
34		-H	-CH ₃	-CH ₃	-H	2	1	$-(CH_2)_4-$	4,4'

【 0 0 5 7 】

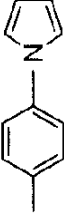
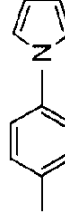
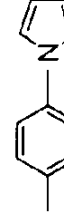
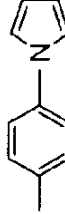
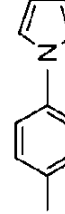
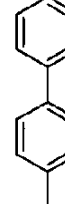
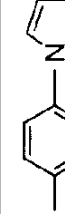
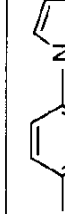
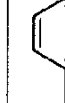
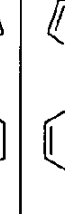
10

20

30

40

【化 1 0】

構造	Ar	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	X	m	T	結合位置
35		-H	-F	-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₄ -	4
36		-H	-CH ₂ CH ₃	-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₂ -	4
37		-CH ₂ CH ₃	-H	-H	-H	2	1	-(CH ₂) ₂ -	4,4'
38		-H		-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₂ -	4
39		-H		-H	-H	1	1	-CH ₂ -	4
40		-H		-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₂ -	4
41		-H		-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₂ -	4
42		-H	-F	-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₂ -	4
43		-H	-F	-H	-H	1	1	-CH ₂ -	4

【 0 0 5 8】

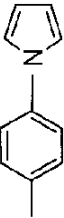
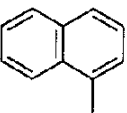
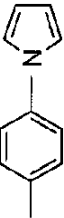
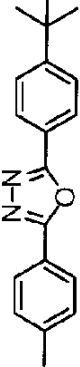
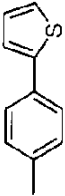
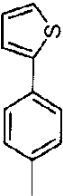
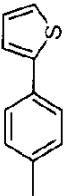
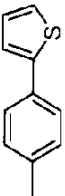
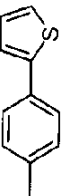
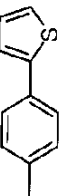
10

20

30

40

【化 1 1】

構造	Ar	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	X	n	T	結合位置
44		-H		-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₆ -	4
45		-H		-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₂ -	4
46		-H	-H	-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₂ -	3
47		-H	-H	-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₂ -	4
48		-H	-CH ₃	-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₂ -	4
49		-H	-CH ₃	-H	-H	2	1	-(CH ₂) ₂ -	4,4'
50		-H	-F	-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₂ -	4
51		-H	-CH ₂ CH ₃	-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₂ -	4
52		-CH ₂ CH ₃	-H	-H	-H	2	1	-(CH ₂) ₂ -	4,4'

【 0 0 5 9 】

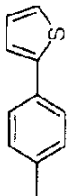
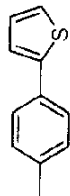
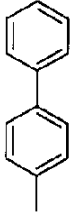
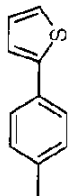
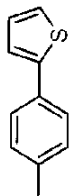
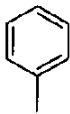
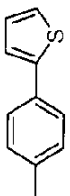
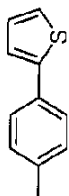
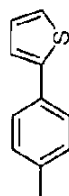
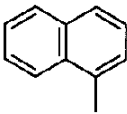
10

20

30

40

【化 1 2】

構造	Ar	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	X	m	T	結合位置
53		H		H	H	1	1	$-(CH_2)_4-$	4
54		H		H	H	1	1	$-(CH_2)_8-$	4
55		H		H	H	1	1	$\begin{array}{c} CH_3 \\ \\ -C- \\ \\ CH_3 \end{array}$	4
56		H		H	H	1	1	$-(CH_2)_8-$	4
57		H	F	H	H	1	1	$\begin{array}{c} CH_3 \\ \\ -CH- \\ \end{array}$	4
58		H	F	H	H	1	1	$\begin{array}{c} CH_3 \\ \\ -C-CH_2- \\ \\ CH_3 \end{array}$	4
59		H		H	H	1	1	$\begin{array}{c} CH_3 \\ \\ -C- \\ \\ CH_3 \end{array}$	4

【 0 0 6 0 】

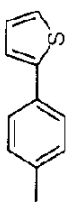
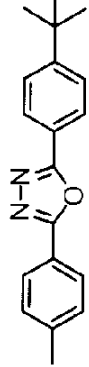
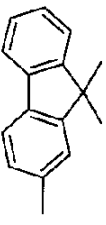
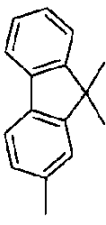
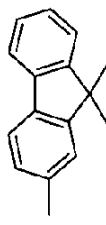
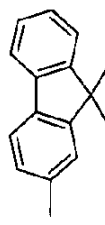
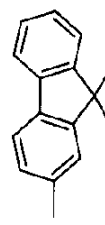
10

20

30

40

【化 1 3】

構造	Ar	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	X	m	T	結合位置
60		H		H	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
61		H	H	H	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	3
62		H	H	H	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
63		H	—CH ₃	H	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
64		H	—CH ₃	—CH ₃	H	2	1	—(CH ₂) ₂ —	4,4'
65		H	F	H	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4

【 0 0 6 1】

10

20

30

40

【化 1 4】

構造	Ar	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	X	m	T	結合位置
66		-H	-CH ₂ CH ₃	-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₄ -	4
67		-CH ₂ CH ₃	-H	-H	-H	2	1	-(CH ₂) ₂ -	4,4'
68		-H		-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₂ -	4
69		-H		-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₄ -	4
70		-H		-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₆ -	4
71		-H		-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₂ -	4

【 0 0 6 2 】

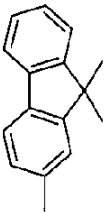
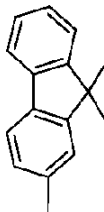
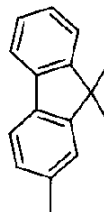
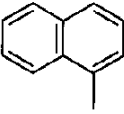
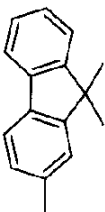
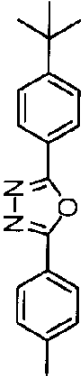
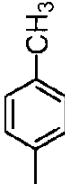
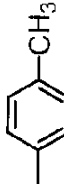
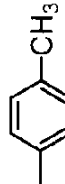
10

20

30

40

【化 1 5】

構造	Ar	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	X	m	T	結合位置
72		H	F	H	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
73		H	F	F	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
74		H		H	H	1	1	—(CH ₂) ₄ —	4
75		H		H	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
76		H	H	H	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	3
77		H	H	H	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
78		H	—CH ₃	H	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4

【 0 0 6 3 】

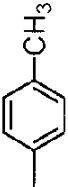
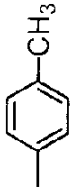
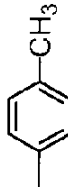
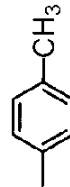
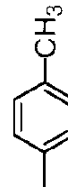
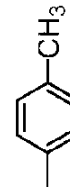
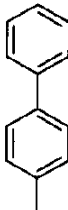
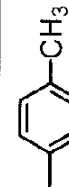
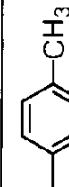
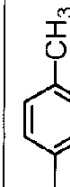
10

20

30

40

【化 1 6】

構造	Ar	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	X	m	T	結合位置
79		-H	-CH ₃	-CH ₃	-H	2	1	—(CH ₂) ₂ —	4,4'
80		-H	-F	-H	-H	1	2	—(CH ₂) ₂ —	4
81		-H	-CH ₂ CH ₃	-H	-H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
82		-CH ₂ CH ₃	-H	-H	-H	2	1	—(CH ₂) ₂ —	4,4'
83		-H		-H	-H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
84		-H		-H	-H	1	1	—(CH ₂) ₆ —	4
85		-H		-H	-H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
86		-H		-H	-H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
87		-H	-F	-H	-H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4

【 0 0 6 4】

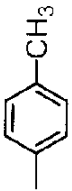
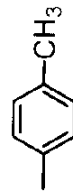
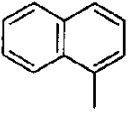
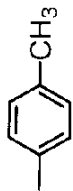
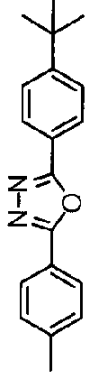
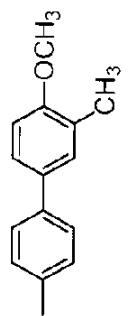
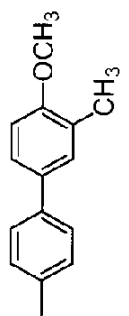
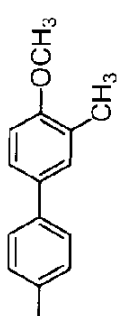
10

20

30

40

【化 17】

構造	Ar	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	X	m	T	結合位置
88		H	F	F	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
89		H		H	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
90		H		H	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
91		H	H	H	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	3
92		H	H	H	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
93		H	—CH ₃	H	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4

【0065】

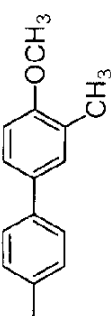
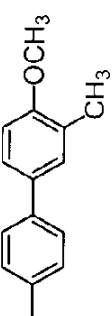
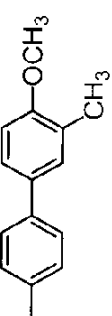
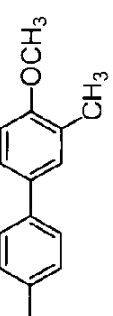
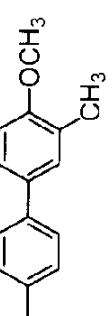
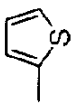
10

20

30

40

【化 1 8】

構造	Ar	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	X	m	T	結合位置
94		-H	-CH ₃	-CH ₃	-H	2	1	—(CH ₂) ₂ —	4,4'
95		-H	-F	-H	-H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
96		-H	-CH ₂ CH ₃	-H	-H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
97		-CH ₂ CH ₃	-H	-H	-H	2	1	—(CH ₂) ₂ —	4,4'
98		-H		-H	-H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4

【 0 0 6 6 】

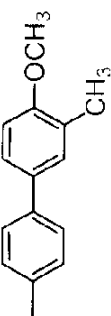
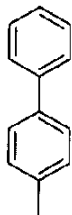
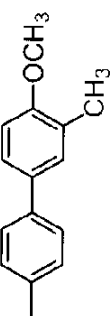
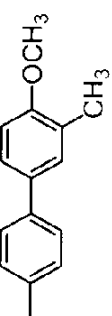
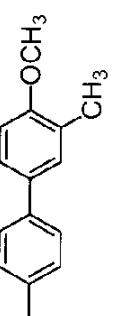
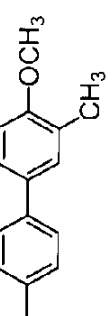
10

20

30

40

【化 1 9】

構造	Ar	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	X	m	T	結合位置
99		-H		-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₂ -	4
100		-H		-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₂ -	4
101		-H		-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₂ -	4
102		-H	-F	-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₂ -	4
103		-H	-F	-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₂ -	4

【 0 0 6 7 】

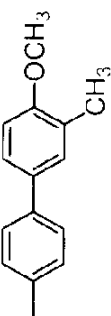
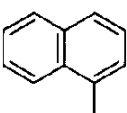
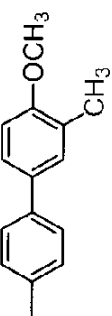
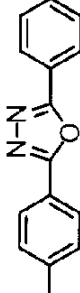
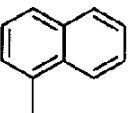
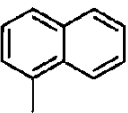
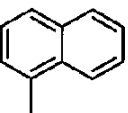
10

20

30

40

【化 2 0】

構造	Ar	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	X	m	T	結合位置
104		-H		-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₂ -	4
105		-H		-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₂ -	4
106		-H	-H	-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₄ -	3
107		-H	-H	-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₄ -	4
108		-H	-CH ₃	-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₄ -	4

【 0 0 6 8】

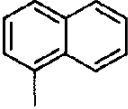
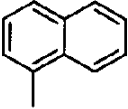
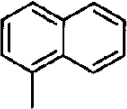
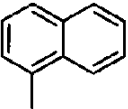
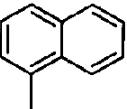
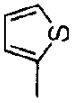
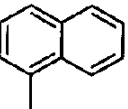
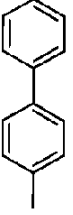
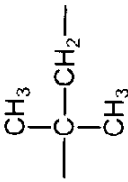
10

20

30

40

【化 2 1】

構造	Ar	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	X	m	T	結合位置
109		-H	-CH ₃	-CH ₃	-H	2	3	-(CH ₂) ₄ -	4,4'
110		-H	-F	-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₄ -	4
111		-H	-CH ₂ CH ₃	-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₄ -	4
112		-CH ₂ CH ₃	-H	-H	-H	2	1	-(CH ₂) ₈ -	4,4'
113		-H		-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₄ -	4
114		-H		-H	-H	1	2		4

【 0 0 6 9 】

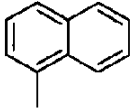
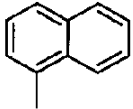
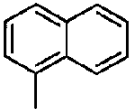
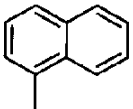
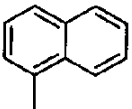
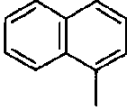
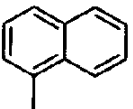
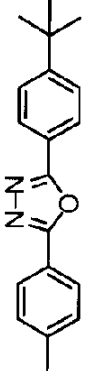
10

20

30

40

【化 2 2】

構造	Ar	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	X	m	T	結合位置
115		H		H	H	1	1	$-(CH_2)_2-$	4
116		H		H	H	1	1	$-(CH_2)_2-$	4
117		H	F	H	H	1	1	$-(CH_2)_4-$	4
118		H	F	H	H	1	1	$-(CH_2)_2-$	4
119		H		H	H	1	2	$-(CH_2)_4-$	4
120		H		H	H	1	1	$-(CH_2)_4-$	4

【 0 0 7 0】

【化 2 3】

構造	Ar	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	X	n	T	結合位置
121		H	H	H	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	3
122		H	H	H	H	1	1	—(CH ₂) ₄ —	4
123		H	—CH ₃	H	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
124		H	—CH ₃	—CH ₃	H	2	1	—(CH ₂) ₂ —	4,4'
125		H	F	H	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
126		H	—CH ₂ CH ₃	H	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
127		—CH ₂ CH ₃	H	H	H	2	1	—(CH ₂) ₂ —	4,4'

【 0 0 7 1】

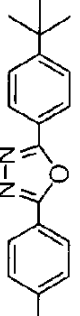
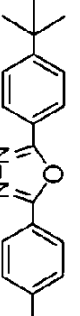
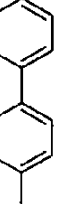
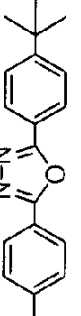
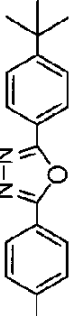
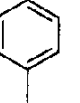
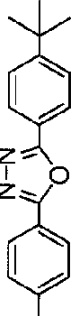
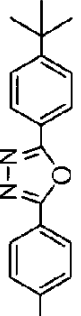
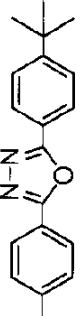
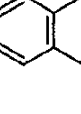
10

20

30

40

【化 2 4】

構造	Ar	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	X	m	T	結合位置
128		H		H	H	1	1	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ \\ -\text{C}-\text{CH}_2- \\ \\ \text{CH}_3 \end{array}$	4
129		H		H	H	1	2	$-(\text{CH}_2)_8-$	4
130		H		H	H	1	1	$-(\text{CH}_2)_2-$	4
131		H		H	H	1	1	$-(\text{CH}_2)_2-$	4
132		H	F	H	H	1	1	$-(\text{CH}_2)_2-$	4
133		H	F	H	H	1	1	$-(\text{CH}_2)_2-$	4
134		H		H	H	1	1	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ \\ -\text{C}-\text{CH}_2- \\ \\ \text{CH}_3 \end{array}$	4

【 0 0 7 2】

10

20

30

40

【化 2 5】

構造	Ar	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	X	m	T	結合位置
135		H		H	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
136		H	H	H	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	3
137		H	H	H	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
138		H	—CH ₃	H	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
139		H	—CH ₃	H	H	2	1	—(CH ₂) ₂ —	4,4'

【 0 0 7 3】

10

20

30

40

【化 2 6】

構造	Ar	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	X	m	T	結合位置
140		H	F	H	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
141		H	—CH ₂ CH ₃	H	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
142		—CH ₂ CH ₃	H	H	H	2	1	—(CH ₂) ₂ —	4,4'
143		H		H	H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4

【 0 0 7 4 】

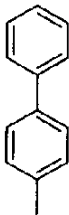
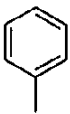
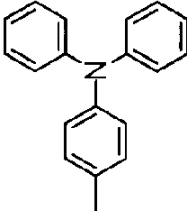
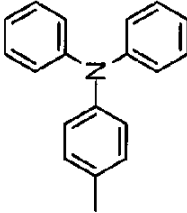
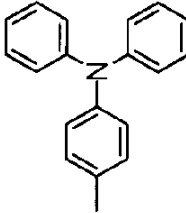
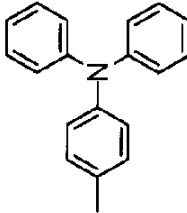
10

20

30

40

【化 2 7】

結合位置	4	4	4	4
T	$-(\text{CH}_2)_2-$	$-(\text{CH}_2)_2-$	$-(\text{CH}_2)_2-$	$-(\text{CH}_2)_2-$
m	1	1	1	1
X	1	1	1	1
R ₄	H	H	H	H
R ₃	H	H	H	H
R ₂				F
R ₁	H	H	H	H
Ar				
構造	144	145	146	147

【 0 0 7 5 】

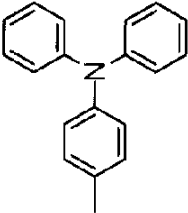
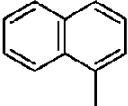
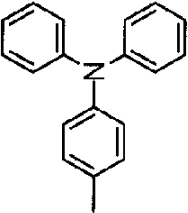
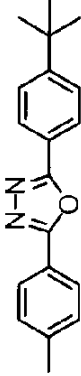
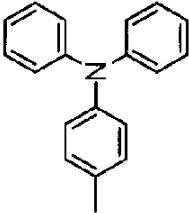
10

20

30

40

【化 2 8】

結合位置	T	m	X	R ₄	R ₃	R ₂	R ₁	Ar	構造
4	$-(CH_2)_2-$	1	1	H	F	H	H		148
4	$-(CH_2)_2-$	1	1	H	H		H		149
4	$-CH_2-$	1	1	H	H		H		150
3	$-(CH_2)_8-$	1	1	H	H	H	H		151
4	$-(CH_2)_6-$	1	1	H	H	H	H		152

【 0 0 7 6 】

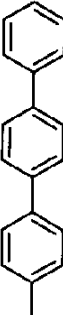
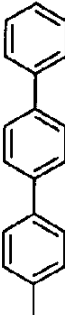
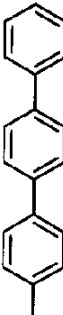
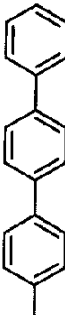
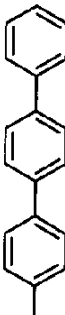
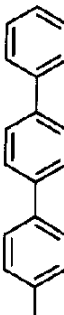
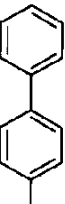
10

20

30

40

【化 2 9】

構造	Ar	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	X	m	T	結合位置
153		-H	-CH ₃	-H	-H	1	1	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ \\ \text{---CH---CH}_2\text{---CH}_2\text{---} \end{array}$	4
154		-H	-CH ₃	-CH ₃	-H	2	1	$\text{---(CH}_2\text{)}_8\text{---}$	4,4'
155		-H	-F	-H	-H	1	1	$\text{---(CH}_2\text{)}_6\text{---}$	4
156		-H	-CH ₂ CH ₃	-H	-H	1	1	$\text{---(CH}_2\text{)}_6\text{---}$	4
157		-CH ₂ CH ₃	-H	-H	-H	2	1	$\text{---(CH}_2\text{)}_6\text{---}$	4,4'
158		-H		-H	-H	1	1	$\text{---(CH}_2\text{)}_6\text{---}$	4
159		-H		-H	-H	1	2	$\text{---(CH}_2\text{)}_8\text{---}$	4

【 0 0 7 7】

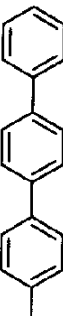
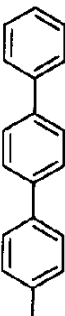
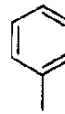
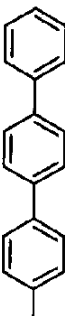
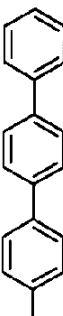
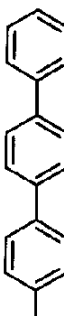
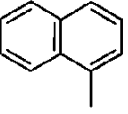
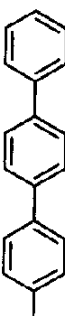
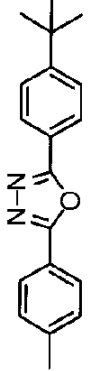
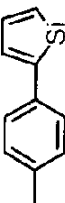
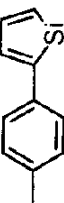
10

20

30

40

【化 3 0】

構造	Ar	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	X	m	T	結合位置
160		-H		-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₆ -	4
161		-H		-H	-H	1	1	-(CH ₂) ₆ -	4
162		H	-F	H	-H	1	1	-(CH ₂) ₆ -	4
163		H	-F	H	-H	1	1	-(CH ₂) ₆ -	4
164		H		H	H	1	1	-(CH ₂) ₈ -	4
165		H		H	H	1	1	-(CH ₂) ₆ -	4
166		H	-H	H	H	1	1	-(CH ₂) ₈ -	3
167		H	-H	H	H	1	1	-(CH ₂) ₂ -	4

【 0 0 7 8】

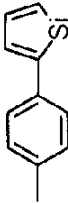
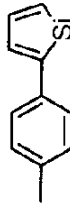
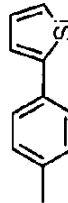
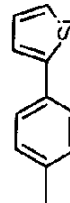
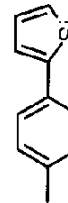
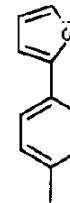
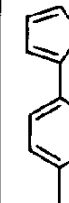
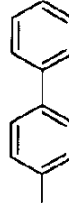
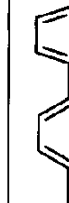
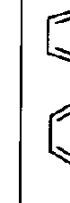
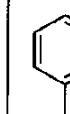
10

20

30

40

【化 3 1】

構造	Ar	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	X	m	T	結合位置
168		-H	-CH ₃	-H	-H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
169		-H	-CH ₃	-H	-CH ₃	2	1	—(CH ₂) ₂ —	4,4'
170		-H	-F	-H	-H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
171		-H	-CH ₂ CH ₃	-H	-H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
172		-CH ₂ CH ₃	-H	-H	-H	2	1	—(CH ₂) ₂ —	4,4'
173		-H		-H	-H	1	1	—(CH ₂) ₈ —	4
174		-H		-H	-H	1	2	—(CH ₂) ₈ —	4
175		-H		-H	-H	1	1	—(CH ₂) ₈ —	4
176		-H		-H	-H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4

【 0 0 7 9 】

10

20

30

40

【化 3 2】

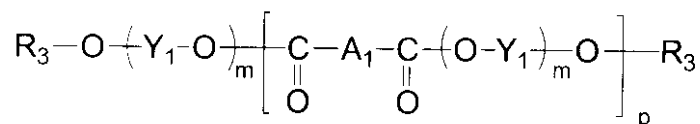
構造	Ar	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	X	m	T	結合位置
177		-H	-F	-H	-H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
178		-H	-F	-F	-H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
179		-H		-H	-H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4
180		-H		-H	-H	1	1	—(CH ₂) ₂ —	4

【0080】

一般式(Ⅰ-1)で示される構造から選択された少なくとも1種を部分構造として含む繰返し構造を有する電荷輸送性ポリエステルとしては、下記一般式(Ⅱ-1)及び(Ⅱ-2)で示されるものが好適に使用される。

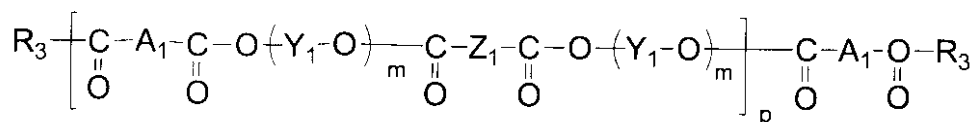
【0081】

【化 3 3】



(II-1)

10



(II-2)

【0082】

一般式(II-1)及び(II-2)中、 A_1 は前記一般式(I-1)で示される構造から選択された少なくとも1種以上を表す。 Y_1 は2価のアルコール残基を表す。 Z_1 は2価のカルボン酸残基を表す。 m は、1以上5以下の整数を表す。 p は5以上5000以下の整数を表す。 R_3 は、それぞれ独立に水素、 $-O-(Y_1-O)_m-H$ 、 $-O-(Y_1-O)_m-CO-Z_1-CO-OR'$ で表される基を表す(但し、 R' は、水素原子、アルキル基、置換若しくは未置換のアリール基、又は、置換若しくは未置換のアラルキル基を表す。 Y_1 、 Z_1 、 m は上記と同義である。)。なお、アリール基、アラルキル基の例示としては、前述の通りである。

20

【0083】

一般式(II-1)及び(II-2)中、 A_1 は、前記一般式(I-1)で示される構造から選択された少なくとも1種を表し、一般式(II-1)及び(II-2)で表される電荷輸送性ポリエステル中に存在する複数の A_1 は、同一の構造であっても、異なった構造であってもよい。

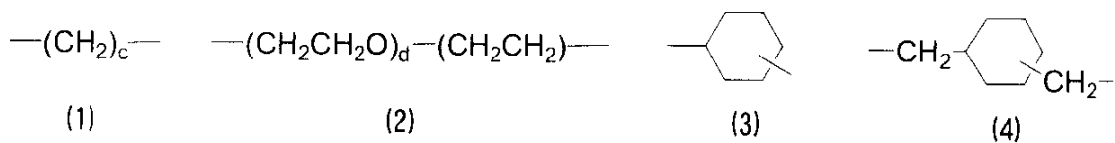
【0084】

一般式(II-1)及び(II-2)中、 Y_1 及び Z_1 は、具体的には下記の式(1)乃至(6)から選択された基が挙げられる。

30

【0085】

【化 3 4】



40



【0086】

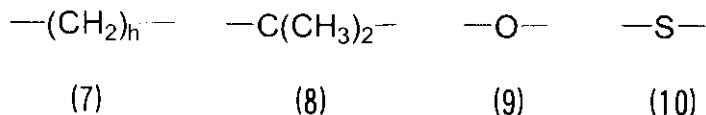
式(1)乃至(7)中、 R_{11} は、水素原子、炭素数1以上20以下のアルキル基、炭素数1以上4以下のアルコキシ基、置換若しくは未置換のフェニル基、置換若しくは未

50

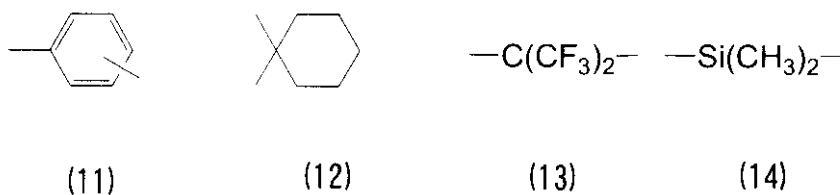
置換のアラルキル基、又はハロゲン原子を表す（各基を置換可能な置換基は上述した置換基と同様である）。c 及び d はそれぞれ 1 以上 10 以下の整数を意味し、e 及び g はそれぞれ 0 又は 1 を意味し、f は 0 以上 6 以下の整数を意味し、V は以下の（7）乃至（17）から選択された基が挙げられる。

【0087】

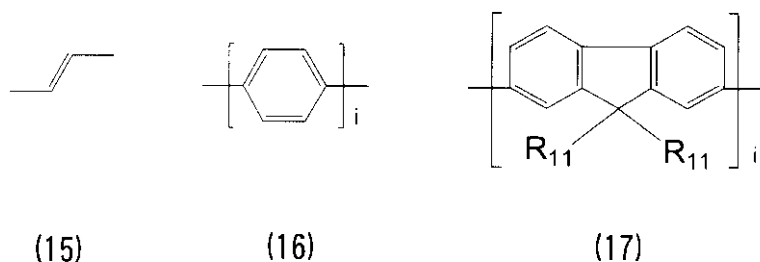
【化35】



10



20



30

【0088】

式（7）乃至（17）中、i はそれぞれ 1 以上 10 以下の整数を表す。R₁₁ は上記と同義である。

【0089】

ここで、電荷輸送性ポリエステルは、以下の構成が望ましい。

一般式（I - 1）において、

R₁、R₂、R₃、及び R₄ は、水素、メチル基、フェニル基、エチル基、ヘキシル基、ビフェニル基、ナフチル基、チエニル基、フッ素原子、を表す。

Ar は、フェニル基、ビフェニル基、トルイル基、メトキシ基、9,9 - ジメチル - 2 - フルオレニル基、トリフェニルアミノ基、ピロール基、ターフェニル基、2 - フェニル - 5 - p - tert - ブチルフェニル（1,3,4）オキサジアゾール基を表す。

40

x は 1 以上 2 以下の整数を示す。

T は、メチレン基、エチレン基、ブチレン基、ヘキシレン基、イソプロピレン基を表す。

。

m は 1 の整数を表す。

且つ、一般式（II - 1）及び（II - 2）において、

A₁ は前記一般式（I - 1）で示される構造から選択された少なくとも 1 種以上を表す。

。

Y₁ はメチレン基、エチレン基、フェニレン基、ヘキシレン基を表す。

Z₁ はメチレン基、エチレン基、フェニレン基、ヘキシレン基を表す。

50

m は、1以上2以下の整数を表す。

p は、10以上1000以下の整数を表す。

R_3 は、水素原子、メチル基、フェニル基を表す。

【0090】

また、電荷輸送性ポリエステルは、以下の構成がさらに望ましい。

一般式(I-1)において、

R_1 、 R_2 、 R_3 、及び R_4 は、水素原子、メチル基、フェニル基、フッ素原子を表す。

A_r はフェニル基、ピフェニル基、ピロール基、9,9-ジメチル-2-フルオレニル基、2-フェニル-5-p-tert-ブチルフェニル(1,3,4)オキサジアゾール基を表す。

10

x は1の整数を示す。

T はエチレン基を表す。

m は1の整数を表す。

且つ、一般式(II-1)及び(II-2)において、

A_1 は前記一般式(I-1)で示される構造から選択された少なくとも1種以上を表す。

。

Y_1 はエチレン基、ヘキシレン基を表す。

Z_1 はエチレン基を表す。

m は、1以上2以下の整数を表す。

20

p は10以上500以下の整数を表す。

R_3 は、水素原子を表す。

【0091】

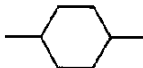
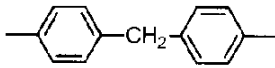
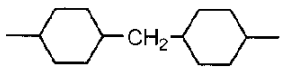
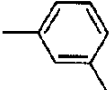
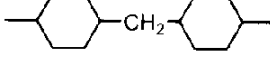
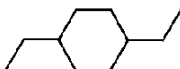
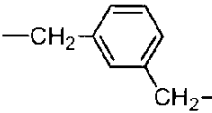
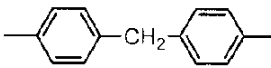
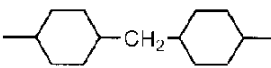
以下、一般式(II-1)及び(II-2)で示される上記の電荷輸送性ポリエステルの具体例を示すが、本実施形態はこれらの具体例に限定されるものではない。

なお、下記表において、モノマーの列の A_1 の欄の番号は、前記一般式(I-1)で示される構造の具体例の構造番号に対応している。また、 Z_1 の欄が「-」であるものは一般式(II-1)で示される電荷輸送性ポリエステルの具体例を示し、その他は一般式(II-2)で示される電荷輸送性ポリエステルの具体例を示す。また、下記表において化合物番号を付した電荷輸送性ポリエステルの各具体例に関し、例えば、15の番号を付した具体例については「例示化合物(15)」という。また、末端基 R_3 は、それぞれ独立に水素、 $-O-(Y_1-O)_m-H$ 、 $-O-(Y_1-O)_m-CO-Z_1-CO-OR'$ で表される基を表す(但し、 R' は、水素原子、アルキル基、置換若しくは未置換のアリール基、又は、置換若しくは未置換のアラルキル基を表す。 Y_1 、 Z_1 、 m は上記と同義である。)。

30

【0092】

【化 3 6】

ポリマー	A ₁ (I-1) の構造 (NO.)	比率	Y ₁	Z ₁	m	P
1	2	-	$-(CH_2)_2-$	-	1	76
2	2	-		$-(CH_2)_2-$	1	65
3	2	-		-	1	55
4	2	-		-	1	53
5	2	-			1	78
6	2	-		-	1	66
7	2	-		-	1	64
8	2	-	$-(CH_2)_6-$	-	1	82
9	16	-	$-(CH_2)_2-$	-	1	86
10	16	-		-	1	51
11	16	-		-	1	49
12	16	-		-	1	73

【 0 0 9 3 】

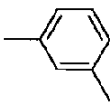
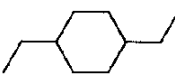
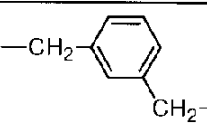
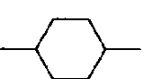
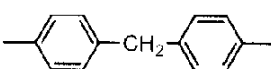
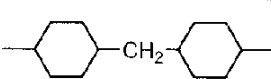
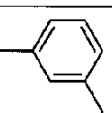
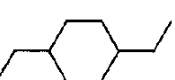
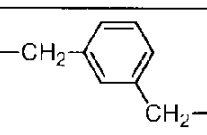
10

20

30

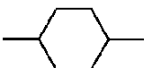
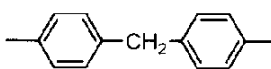
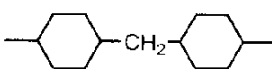
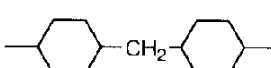
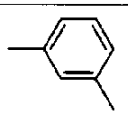
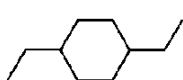
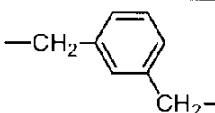
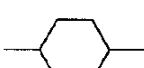
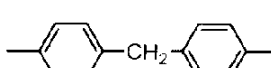
40

【化 3 7】

ポリマー	A ₁ (I-1) の構造 (NO.)	比率	Y ₁	Z ₁	m	P
13	16	-		-	1	86
14	16	-		-	1	49
15	16	-		-	1	57
16	16	-	$-(CH_2)_6-$	-	1	71
17	17	-	$-(CH_2)_2-$	-	1	80
18	17	-		-	1	90
19	17	-		-	1	65
20	17	-		-	1	78
21	17	-		-	1	78
22	17	-		-	1	75
23	17	-		-	1	46

【 0 0 9 4 】

【化 3 8】

ポリマー	A ₁ (I-1) の構造 (NO.)	比率	Y ₁	Z ₁	m	P
24	17	-	$-(CH_2)_6-$	-	1	69
25	25	-	$-(CH_2)_2-$	-	1	72
26	25	-		-	1	76
27	25	-			1	80
28	25	-		-	1	96
29	25	-		-	1	102
30	25	-		-	1	79
31	25	-		-	1	68
32	25	-	$-(CH_2)_6-$	-	1	61
33	32	-	$-(CH_2)_2-$	-	1	59
34	32	-		-	1	49
35	32	-		-	1	58

【 0 0 9 5 】

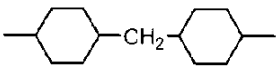
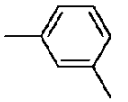
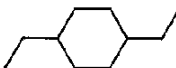
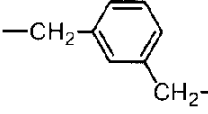
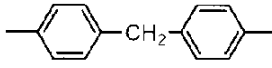
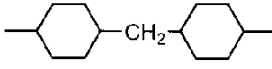
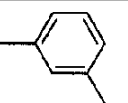
10

20

30

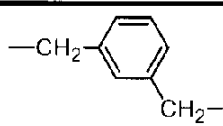
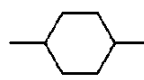
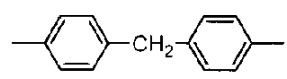
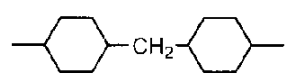
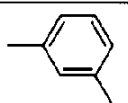
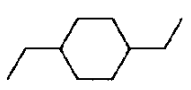
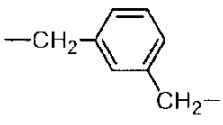
40

【化 3 9】

ポリマー	A ₁ (I-1) の構造 (NO.)	比率	Y ₁	Z ₁	m	P
36	32	-		-	1	67
37	32	-		-	1	89
38	32	-		-	1	57
39	32	-		-	1	58
40	32	-	$-(CH_2)_6-$	-	1	86
41	47	-	$-(CH_2)_2-$	-	1	84
42	47	-		-	1	93
43	47	-		-	1	97
44	47	-		-	1	82
45	47	-		-	1	58
46	47	-		-	1	50

【 0 0 9 6 】

【化 4 0】

ポリマー	A ₁ (I-1) の構造 (NO.)	比率	Y ₁	Z ₁	m	P
47	47	-		-	1	79
48	47	-	$-(CH_2)_6-$	-	1	78
49	47	-	$-(CH_2)_2-$	-	1	49
50	47	-		-	1	100
51	47	-		-	1	92
52	47	-		-	1	94
53	47	-		-	1	80
54	47	-		-	1	86
55	47	-		-	1	94
56	47	-	$-(CH_2)_6-$	$-(CH_2)_2-$	1	96
57	63	-	$-(CH_2)_2-$	-	1	92

【 0 0 9 7 】

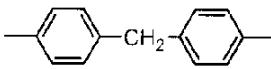
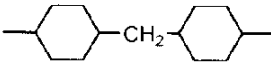
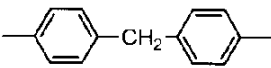
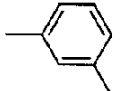
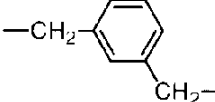
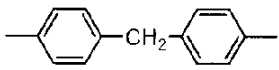
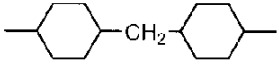
10

20

30

40

【化 4 1】

ポリマー	A ₁ (I-1) の構造 (NO.)	比率	Y ₁	Z ₁	m	P
58	63	-		-	1	80
59	63	-		-	1	72
60	63	-			1	79
61	63	-		-	1	78
62	63	-		-	1	98
63	63	-		-	1	97
64	63	-	$-(CH_2)_6-$	-	1	82
65	73	-	$-(CH_2)_2-$	-	1	97
66	73	-		-	1	92
67	73	-		-	1	68
68	73	-		-	1	69

【 0 0 9 8 】

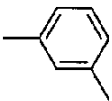
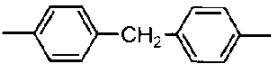
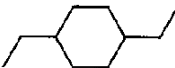
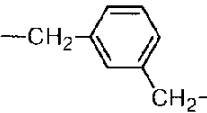
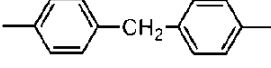
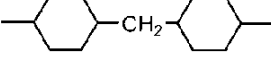
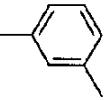
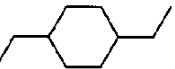
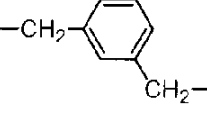
10

20

30

40

【化 4 2】

ポリマー	A ₁ (I-1) の構造 (NO.)	比率	Y ₁	Z ₁	m	P
69	73	-			1	98
70	73	-		-	1	79
71	73	-		-	1	88
72	73	-	$-(CH_2)_6-$	-	1	86
73	79	-	$-(CH_2)_2-$	-	1	66
74	79	-		-	1	63
75	79	-		-	1	70
76	79	-		-	1	74
77	79	-		-	1	75
78	79	-		-	1	83
79	79	-		-	1	82

【 0 0 9 9 】

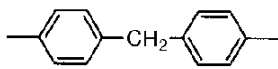
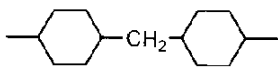
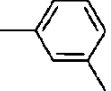
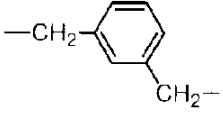
10

20

30

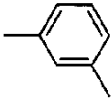
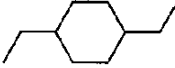
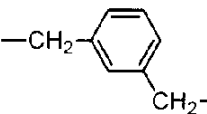
40

【化 4 3】

ポリマー	A ₁ (I-1) の構造 (NO.)	比率	Y ₁	Z ₁	m	P
80	79	-	$-(CH_2)_6-$	-	1	96
81	93	-	$-(CH_2)_2-$	-	1	56
82	116	-	$-(CH_2)_2-$	-	1	50
83	133	-	$-(CH_2)_2-$	-	1	80
84	137	-	$-(CH_2)_2-$	-	1	91
85	137	-		-	1	97
86	137	-		-	1	85
87	137	-		-	1	82
88	137	-		-	1	79
89	137	-		-	1	90
90	137	-		-	1	105

【 0 1 0 0 】

【化 4 4】

ポリマー	A ₁ (I-1) の構造 (NO.)	比率	Y ₁	Z ₁	m	P
91	137	-	$-(CH_2)_6-$	$-(CH_2)_2-$	1	106
92	145	-		-	1	85
93	145	-		-	1	107
94	145	-		-	1	56
95	145	-	$-(CH_2)_6-$	-	1	49
96	153	-	$-(CH_2)_2-$	-	1	82
97	167	-	$-(CH_2)_2-$	-	1	85
98	2/16	1/1	$-(CH_2)_2-$	-	1	38
99	16/17	1/1	$-(CH_2)_2-$	-	1	48
100	16/25	1/1	$-(CH_2)_2-$	-	1	40
101	16/32	2/1	$-(CH_2)_2-$	-	1	38
102	2/17/32	1/1/1	$-(CH_2)_2-$	-	1	58

【 0 1 0 1】

前記電荷輸送性ポリエステルの重量平均分子量M_wは、5,000以上300,000以下の範囲にあるものが望ましい。また、電荷輸送性ポリエステルのガラス転移点(T_g)は60以上であることが望ましい。

上記重量平均分子量M_wは以下の方法により測定される。すなわち重量平均分子量は、電荷輸送性ポリエステルの1.0質量%THF溶液を調製し、示差屈折率検出器(RI)

10

20

30

40

50

を用いて、ゲル浸透クロマトグラフィー（GPC）により、標準サンプルとしてスチレンポリマーを用いて測定した。

またガラス転移点は、示差走査型熱量計により α -Al₂O₃ をリファレンスとし、サンプルをゴム状態になるまで昇温し、液体窒素に浸し急冷した後、再度昇温速度 10 / 分の条件で昇温して測定される。

【0102】

以下、前記電荷輸送性ポリエステルの合成方法について説明する。

前記電荷輸送性ポリエステルの合成方法は、所望する構造に応じて公知の方法を組み合わせることで利用することができ、特に限定されるものではないが、具体例として前記一般式（I-1）で示される構造から選択された少なくとも 1 種を部分構造として含む繰り返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルが、前記一般式（II-1）又は（II-2）で示されるポリエステルである場合について以下に詳細に説明する。

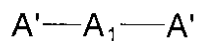
10

【0103】

前記電荷輸送性ポリエステルが、前記一般式（II-1）又は（II-2）で示される電荷輸送性ポリエステルである場合は、下記一般式（I-2）で示されるモノマーを、例えば、第 4 版実験化学講座第 28 巻（丸善，1992）等に記載された公知の方法で重合させることによって合成される。

【0104】

【化 45】



20

(I-2)

【0105】

但し、一般式（I-2）において、A₁ は前記一般式（I-1）で示される構造から選択された少なくとも 1 種以上を表し、A' は水酸基、ハロゲン原子、又は、基 - O - R₅ を表し、R₅ はアルキル基、置換若しくは未置換のアリール基、又は、アラールキル基を表す。

【0106】

具体的には、一般式（I-2）で示されるモノマーは、例えば、以下のように合成される。

30

【0107】

公知の方法を用いて置換若しくは未置換の 1, 2-フェニレンジアミンと 4, 4'-ジプロモベンジルとをピリジン又はトリエチルアミンなどの弱塩基、アルコール溶媒存在下室温（25℃）で反応させキノキサリン骨格を合成する。次に、ヨードフェニルプロピオン酸メチルエステルとアミン化合物との Ullmann 反応によりジアリールアミンを合成する。前記キノキサリン骨格とジアリールアミンとのパラジウムカップリング反応を経て一般式（I-2）で示されるモノマー A₁ が得られる。なお、一般式（I-2）で示されるモノマーの合成手法はこれに限定するものではない。

40

【0108】

これら一般式（I-2）で示されるモノマーを用いて前記電荷輸送性ポリエステルは、次のようにして合成される。

【0109】

A' が水酸基の場合には、モノマーに HO - (Y₁ - O)_m - H（Y₁、m は一般式（II-1）及び（II-2）の Y₁、m と同義、以下同様である。）で示される 2 価アルコール類を当量混合し、酸触媒を用いて重合する。酸触媒としては、硫酸、トルエンスルホン酸、トリフルオロ酢酸等、通常のエステル化反応に用いるものが使用でき、モノマー 1 重量部に対して、1/10、0.00 重量部以上 1/10 重量部以下、望ましくは 1/1、0.00 重量部以上 1/50 重量部以下の範囲で用いられる。重合中に生成する水を除去

50

するために、水と共沸可能な溶剤を用いることが望ましく、トルエン、クロロベンゼン、1-クロロナフタレン等が有効であり、モノマー1重量部に対して、1重量部以上100重量部以下、望ましくは2重量部以上50重量部以下の範囲で用いられる。反応温度は任意に設定されるが、重合中に生成する水を除去するために、溶剤の沸点で反応させることが望ましい。

【0110】

反応終了後、溶剤を用いなかった場合には溶解可能な溶剤に溶解させる。溶剤を用いた場合には、反応溶液をそのまま、メタノール、エタノール等のアルコール類や、アセトン等のポリマーが溶解しにくい貧溶剤中に滴下し、ポリエステルを析出させ、ポリエステルの分離した後、水や有機溶剤で十分洗浄し、乾燥させる。更に、必要であれば適当な有機溶剤に溶解させ、貧溶剤中に滴下し、ポリエステルの析出させる再沈殿処理を繰り返してもよい。再沈殿処理の際には、メカニカルスターラー等で、効率よく攪拌しながら行うことが望ましい。再沈殿処理の際にポリエステルの溶解させる溶剤は、ポリエステル1重量部に対して、1重量部以上100重量部以下、望ましくは2重量部以上50重量部以下の範囲で用いられる。また、貧溶剤はポリエステル1重量部に対して、1重量部以上1,000重量部以下、望ましくは10重量部以上500重量部以下の範囲で用いられる。

【0111】

A'が-O-R₅の場合には、モノマーに、HO-(Y₁-O)_m-Hで示される2価アルコール類を過剰に加え、硫酸、リン酸等の無機酸、チタンアルコキシド、カルシウム及びコバルト等の酢酸塩或いは炭酸塩、亜鉛や鉛の酸化物を触媒に用いて加熱し、エステル交換により合成される。2価アルコール類はモノマー1当量に対して、2等量以上100当量以下、望ましくは3等量以上50当量以下の範囲で用いられる。触媒はモノマー1重量部に対して、1/10,000重量部以上1重量部以下、望ましくは1/1,000重量部以上1/2重量部以下の範囲で用いられる。反応は、反応温度200以上300

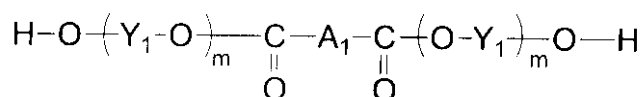
以下で行い、基-O-R₆から基-O-(Y₁-O)_m-Hへのエステル交換終了後は、HO-(Y₁-O)_m-Hの脱離による重合を促進するため、減圧下で反応させることが望ましい。また、HO-(Y₁-O)_m-Hと共沸可能な1-クロロナフタレン等の高沸点溶剤を用いて、常圧下でHO-(Y₁-O)_m-Hを共沸で除きながら反応させてもよい。

【0112】

また、次のようにして電荷輸送性ポリエステルの合成してもよい。上記それぞれの場合において、2価アルコール類を過剰に加えて反応させることによって下記一般式(I-3)で示される化合物を生成した後、この化合物を前記一般式(I-2)で示したモノマーの代わりとして用いて上記(A'が-O-R₅の場合)と同様の方法で、2価カルボン酸又は2価カルボン酸ハロゲン化物等と反応させればよく、それによってポリエステルが得られる。

【0113】

【化46】



(I-3)

【0114】

但し、一般式(I-3)中、A₁は前記一般式(I-1)で示される構造から選択された少なくとも1種以上を表し、Y₁は2価のアルコール残基を表し、mは1以上5以下の整数を表す。

【0115】

また、前記電荷輸送性ポリエステルの末端に任意の分子を導入することを行なってもよ

い。その場合、次の方法が挙げられる。すなわち、一般式(Ⅰ-2)で示されるモノマーのA'が水酸基の場合、末端導入化合物のモノカルボン酸を共重合させるか、ポリマーの重合反応後の化合物にモノカルボン酸を仕込んで反応させ導入させる。

【0116】

また、A'がハロゲンの場合、末端導入化合物のモノ酸塩化物を共重合させるか、ポリマーの重合反応後、末端導入化合物のモノ酸塩化物を仕込んで反応させ導入させる。A'が-O-R₅の場合には、末端導入化合物のモノエステルを共重合させるか、ポリマーの重合反応後、末端導入化合物のモノエステルを仕込んで反応させ導入させる。

【0117】

次に、本実施形態に係る有機電界発光素子の構成について詳述する。

10

本実施形態に係る有機電界発光素子は、少なくとも一方が透明又は半透明である一対の電極と、それら電極間に挟持された一つ又は複数の有機化合物層より構成され、該有機化合物層の少なくとも一層に上記に説明した電荷輸送性ポリエステルを少なくとも1種含有してなるものであればその層構成は特に限定されない。

【0118】

本実施形態に係る有機電界発光素子においては、有機化合物層が1つの場合は、有機化合物層は電荷輸送能を持つ発光層を意味し、該発光層が前記電荷輸送性ポリエステルを含有してなる。ここで、発光層のみから構成される場合では、他の層構成に比べ、素子の大面積化及び製造が容易である。これは、層数が少なく、例えば湿式塗布等により作製されるためである。

20

【0119】

一方、有機化合物層が複数の場合(即ち、各層が異なる機能を有する機能分離型の場合)は、少なくともいずれか一層が発光層からなり、この発光層は電荷輸送能を持つ発光層であってもよい。この場合、前記発光層あるいは前記電荷輸送能を持つ発光層と、その他の層からなる層構成の具体例としては、下記(1)乃至(3)が挙げられる。

【0120】

(1) 発光層と、電子輸送層及び電子注入層の少なくとも1層と、から構成される層構成。ここで、発光層と、及び電子輸送層及び電子注入層の少なくとも1層とを含む構成では、他の層構成に比べ、製造容易性と発光効率との両立が図られる。これは、全て機能分離した層構成に比べ層数が少ない一方で、一般に正孔に比較して移動度が低い電子の注入効率を補い、発光層での電荷の均衡が図られるためであると考えられる。

30

(2) 正孔輸送層及び正孔注入層の少なくとも1層と、発光層と、電子輸送層及び電子注入層の少なくとも1層と、から構成される層構成。ここで、正孔輸送層及び正孔注入層の少なくとも1層と、発光層と、電子輸送層及び電子注入層の少なくとも1層とを含む構成では、他の層構成の素子に比べ、発光効率に優れ、低電圧駆動が可能となる。これは、全て機能分離することで、他の層構成に比べ、電荷の注入効率が最も高くなり、発光層で電荷が再結合可能であるためであると考えられる。

(3) 正孔輸送層及び正孔注入層の少なくとも1層と、発光層と、から形成される層構成。ここで、正孔輸送層及び正孔注入層の少なくとも1層と、発光層とを含む構成では、他の構成に比べ、製造容易性と耐久性との両立が図れる。これは、全て機能分離した層構成に比べ層数が少ない一方で、発光層への正孔の注入効率が向上し、発光層で過剰な電子の注入が抑制されるためであると考えられる。

40

【0121】

これら層構成(1)乃至(3)の発光層及び電荷輸送能を持つ発光層以外の層は、電荷輸送層や電荷注入層としての機能を有する。なお、層構成(1)乃至(3)のいずれの層構成においても、いずれか一層に前記電荷輸送性ポリエステルが含まれていればよい。

【0122】

また、本実施形態に係る有機電界発光素子において、発光層、正孔輸送層、正孔注入層、電子輸送層、電子注入層は、前記電荷輸送性ポリエステル以外の電荷輸送性化合物(正孔輸送材料、電子輸送材料)を更に含んでもよい。この電荷輸送性化合物の詳細について

50

は後述する。

【 0 1 2 3 】

以下、図面を参照しつつ、より詳細に説明するが、本実施形態はこれらに限定されるわけではない。なお、図 1、図 2、図 3 の場合は、有機化合物層が複数の場合の一例であり、図 4 の場合は、有機化合物層が 1 つの場合の例を示す。なお、図 1 乃至図 4 において、同様の機能を有するものは同じ符号を付して説明する。

【 0 1 2 4 】

図 1 に示す有機電界発光素子 10 は、透明絶縁体基板 1 上に、透明電極 2、発光層 4、電子輸送層及び電子注入層の少なくとも 1 層 5 並びに背面電極 7 が順次積層されたもので、層構成 (1) に相当するものである。但し、符号 5 で示される層が、電子輸送層及び電子注入層からなる場合には、発光層 4 の背面電極 7 側に、電子輸送層、電子注入層、背面電極 7 がこの順に積層される。

10

【 0 1 2 5 】

図 2 に示す有機電界発光素子 10 は、透明絶縁体基板 1 上に、透明電極 2、正孔輸送層及び正孔注入層の少なくとも 1 層 3、発光層 4、電子輸送層及び電子注入層の少なくとも 1 層 5 並びに背面電極 7 が順次積層されたもので、層構成 (2) に相当するものである。但し、符号 3 で示される層が、正孔輸送層及び正孔注入層からなる場合には、透明電極 2 の背面電極 7 側に、正孔注入層、正孔輸送層、発光層 4 がこの順に積層される。また、符号 5 で示される層が、電子輸送層及び電子注入層からなる場合には、発光層 4 の背面電極 7 側に、電子輸送層、電子注入層、背面電極 7 がこの順に積層される。

20

【 0 1 2 6 】

図 3 に示す有機電界発光素子 10 は、透明絶縁体基板 1 上に、透明電極 2、正孔輸送層及び正孔注入層の少なくとも 1 層 3、発光層 4 並びに背面電極 7 が順次積層されたもので、層構成 (3) に相当するものである。但し、符号 3 で示される層が、正孔輸送層及び、正孔注入層からなる場合には、透明電極 2 の背面電極 7 側に、正孔注入層、正孔輸送層、発光層 4 がこの順に積層される。

【 0 1 2 7 】

図 4 に示す有機電界発光素子 10 は、透明絶縁体基板 1 上に、透明電極 2、電荷輸送能を持つ発光層 6 及び背面電極 7 が順次積層されたものである。

また、トップエミッション構造や陰極・陽極共に透明電極を用いて透過型にする場合、さらには図 1 乃至図 4 の層構成を複数段積重ねた構造とすることも可能である。

30

【 0 1 2 8 】

以下、各々を詳しく説明する。

図 1 から図 4 に示される有機電界発光素子の層構成の場合、透明絶縁体基板 1 は、発光を取り出すため透明なものが望ましく、ガラス、プラスチックフィルム等が用いられる。当該透明とは、可視領域の光の透過率が 10 % 以上であることを意味し、更に透過率が 75 % 以上であることが望ましい。透明電極 2 は、透明絶縁体基板と同様に発光を取り出すため透明であって、かつ正孔の注入を行うため仕事関数の大きなものが良く、仕事関数が 4 eV 以上のものが望ましい。

具体例として、酸化スズインジウム (ITO)、酸化スズ (NESA)、酸化インジウム、酸化亜鉛、酸化インジウム亜鉛等の酸化膜、及び蒸着或いはスパッタされた金、白金、パラジウム等が用いられる。電極のシート抵抗は、低いほど望ましく、数百 $\Omega/\square$ 以下が望ましく、さらには 100 $\Omega/\square$ 以下がより望ましい。また、透明絶縁体基板同様に、可視領域の光の透過率が 10 % 以上で、更に透過率が 75 % 以上であることが望ましい。

40

【 0 1 2 9 】

また、有機電界発光素子の耐久性向上或いは発光効率の向上を目的として、本実施形態に用いられる電荷輸送性ポリエステルに対して正孔移動度を調節するための前記電荷輸送性ポリエステル以外の正孔輸送材料を 0.1 質量 % ないし 50 質量 % の範囲で混合分散して形成されてもよい。この正孔輸送材料としては、テトラフェニレンジアミン誘導体、トリフェニルアミン誘導体、カルバゾール誘導体、スチルベン誘導体、アリアルヒドラゾン

50

誘導体、ポルフィリン系化合物が挙げられるが、電荷輸送性ポリエステルとの相溶性が良いことから、テトラフェニレンジアミン誘導体、トリフェニルアミン誘導体が望ましい。

【0130】

また、同様に、電子移動度を調整する場合は、電荷輸送性ポリエステルに対して電子輸送材料を0.1質量%から50質量%の範囲で混合分散して形成されてもよい。この電子輸送材料として、オキサジアゾール誘導体、ニトロ置換フルオレノン誘導体、ジフェノキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、シロール誘導体、キレート型有機金属錯体、多核又は縮合芳香環化合物、ペリレン誘導体、トリアゾール誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体等が挙げられる。

また、正孔移動度及び電子移動度の両方の調整が必要な場合は、前記電荷輸送性ポリエステルに正孔輸送材料及び電子輸送材料の両方を一緒に混在させてもよい。

10

【0131】

さらに、成膜性の向上、ピンホール防止等のため、適切な樹脂（ポリマー）、添加剤を加えても良い。具体的な樹脂としては、ポリカーボネート樹脂、ポリエステル樹脂、メタクリル樹脂、アクリル樹脂、ポリ塩化ビニル樹脂、セルロース樹脂、ウレタン樹脂、エポキシ樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリビニルアセテート樹脂、スチレンブタジエン共重合体、塩化ビニリデン-アクリロニトリル共重合体、塩化ビニル-酢酸ビニル-無水マレイン酸共重合体、シリコン樹脂、ポリ-N-ビニルカルバゾール樹脂、ポリシラン樹脂、ポリチオフェン、ポリピロール等の導電性樹脂等を用いられる。また、添加剤としては、公知の酸化防止剤、紫外線吸収剤、可塑剤等を用いられる。

20

【0132】

また、電荷注入性を向上させる場合は、正孔注入層及び/又は電子注入層を用いる場合があるが、正孔注入材料としては、フェニレンジアミン誘導体、フタロシアニン誘導体、インダンスレン誘導体、ポリアルキレンジオキシチオフェン誘導体等が用いられる。また、これらには、ルイス酸、スルホン酸等を混合してもよい。電子注入材料としては、Li、Ca、Sr等の金属やLiF、MgF₂等の金属フッ化物、MgO、Al₂O₃、LiO等の金属酸化物が用いられる。

【0133】

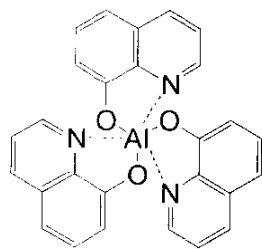
また、前記電荷輸送性ポリエステルの発光機能以外で用いる場合は、発光性化合物を発光材料として用いる。発光材料としては、固体状態で高い発光量子効率を示す化合物を用いる。発光材料は、低分子化合物又は高分子化合物どちらでもよく、有機低分子である場合の好適な例としては、キレート型有機金属錯体、多核又は縮合芳香環化合物、ペリレン誘導体、クマリン誘導体、スチリルアリーレン誘導体、シロール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサチアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体等が、高分子の場合、ポリパラフェニレン誘導体、ポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリチオフェン誘導体、ポリアセチレン誘導体等が用いられる。好適な具体例として、下記の発光材料(IV-1)から(IV-17)が用いられるが、これらに限られるものではない。なお、発光材料(IV-13)から(IV-17)中、Vは前記示した官能基、n及びjは1又は2以上の整数を示す。

30

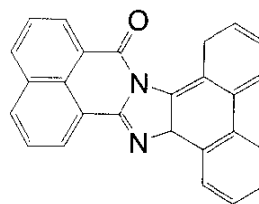
【0134】

40

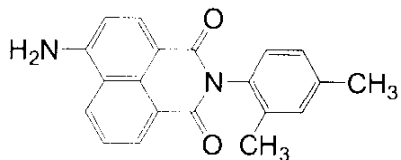
【化 4 7】



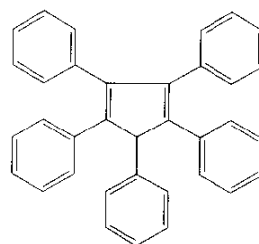
(IV-1)



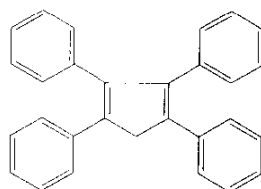
(IV-2)



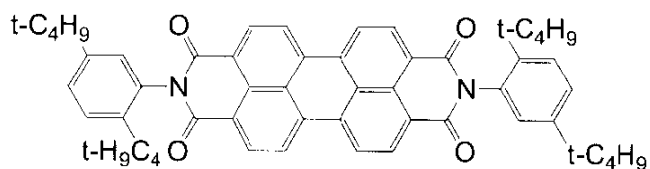
(IV-3)



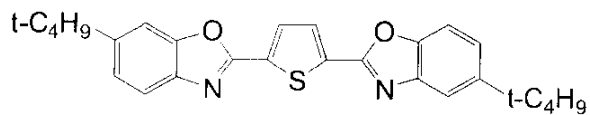
(IV-4)



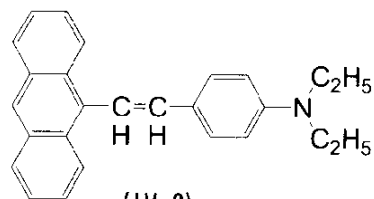
(IV-5)



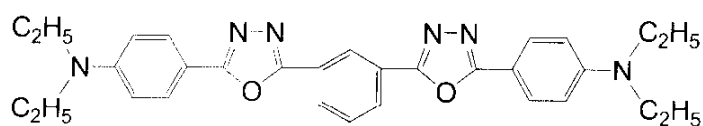
(IV-6)



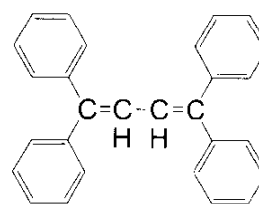
(IV-7)



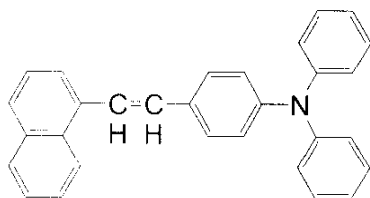
(IV-8)



(IV-9)



(IV-10)



(IV-11)

【 0 1 3 5】

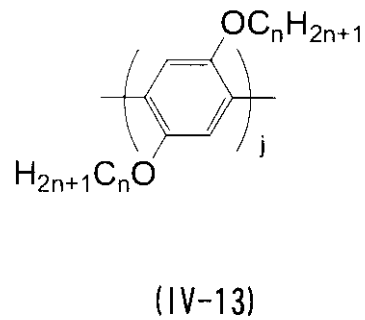
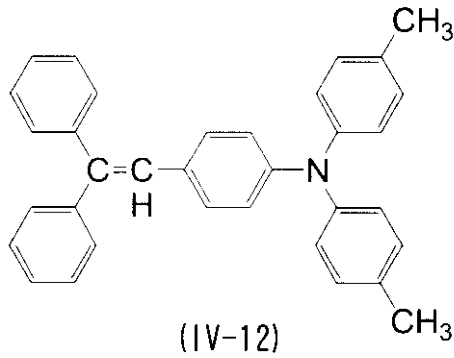
10

20

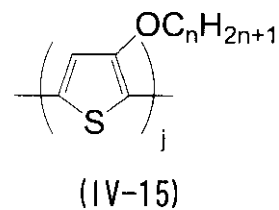
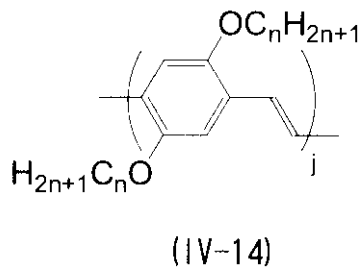
30

40

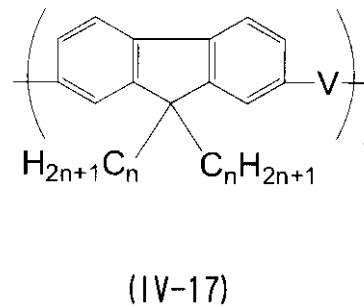
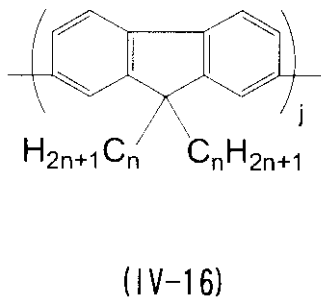
【化 4 8】



10



20



30

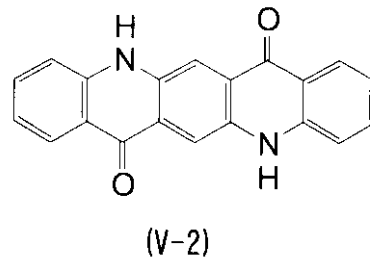
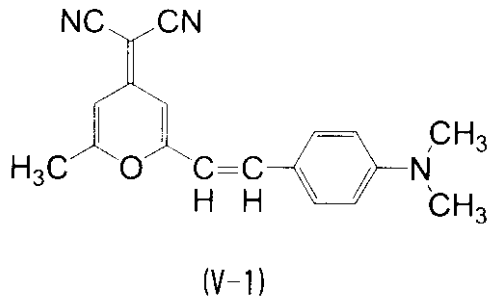
【 0 1 3 6 】

また、素子の耐久性の向上あるいは発光効率の向上を目指して、上記発光材料又は前記電荷輸送性ポリエステルの中にゲスト材料として発光材料とはことなる色素化合物をドーピングしてもよい。色素化合物のドーピングの割合としては 0.001 質量%以上 40 質量%以下程度、望ましくは 0.001 質量%以上 10 質量%以下程度である。このドーピングに用いられる色素化合物としては、発光材料及び電荷輸送性ポリエステルとの相容性が良く、かつ発光層の良好な薄膜形成を妨げない有機化合物が用いられ、好適にはクマリン誘導体、DCM 誘導体、キナクリドン誘導体、ルブレン誘導体、ボルフィリン誘導体、Ir、Eu、Pt などの金属錯体化合物等が用いられる。好適な具体例として、下記の色素化合物 (V-1) 乃至 (V-6) があげられるが、これらに限られるものではない。

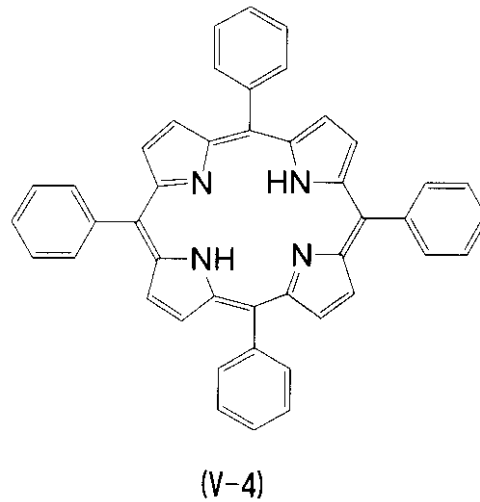
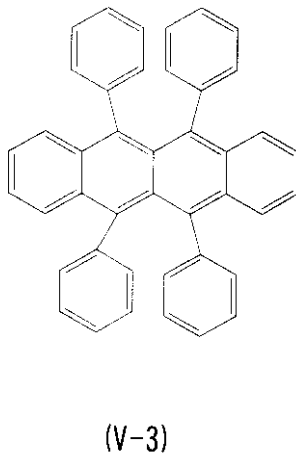
40

【 0 1 3 7 】

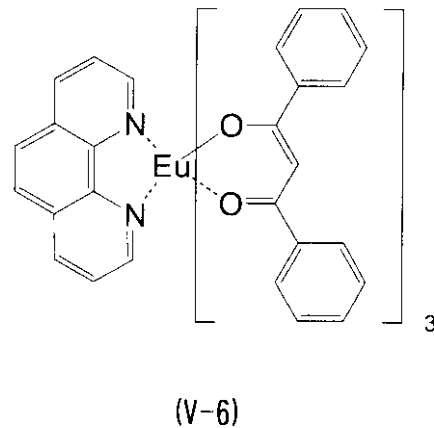
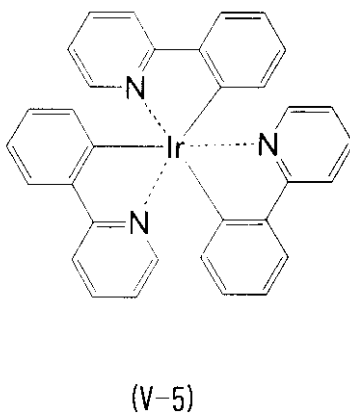
【化 4 9】



10



20



30

【 0 1 3 8 】

図 1 から図 4 に示される有機電界発光素子の層構成の場合、背面電極 7 には、真空蒸着可能で、電子注入を行うため仕事関数の小さな金属、金属酸化物、金属フッ化物等が使用される。金属としてはマグネシウム、アルミニウム、金、銀、インジウム、リチウム、カルシウム及びこれらの合金が挙げられる。金属酸化物としては、酸化リチウム、酸化マグネシウム、酸化アルミニウム、酸化スズインジウム、酸化スズ、酸化インジウム、酸化亜鉛、酸化インジウム亜鉛等が挙げられる。また、金属フッ化物としては、フッ化リチウム、フッ化マグネシウム、フッ化ストロンチウム、フッ化カルシウム、フッ化アルミニウムが挙げられる。また、背面電極 7 上には、さらに水分や酸素による有機電界発光素子の劣化を防ぐために保護層を設けてもよい。

40

具体的な保護層の材料としては、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al等の金属、MgO、SiO₂、TiO₂等の金属酸化物、ポリエチレン樹脂、ポリウレタ樹脂、ポ

50

リイミド樹脂等の樹脂が挙げられる、保護層の形成には、真空蒸着法、スパッタリング法、プラズマ重合法、CVD法、コーティング法が適用される。

【0139】

これら図1乃至図4に示される有機電界発光素子は、まず透明電極2の上に各有機電界発光素子の層構成に応じた個々の層を順次形成することにより作製される。なお、正孔輸送層及び正孔注入層の少なくとも1層3、発光層4、電子輸送層及び電子注入層の少なくとも1層5、或いは、電荷輸送能を持つ発光層6は、上記各材料を真空蒸着法、もしくは、適切な有機溶媒に溶解或いは分散し、得られた塗布液を用いて前記透明電極上にスピンコーティング法、キャスト法、ディップ法、インクジェット法等により形成される。尚、このうち、所望の画素の位置に必要な量だけの層形成材料を塗布することができ、無駄になる材料がわずかであること、それに伴い地球環境にもやさしいこと、高精細なパターンニングが可能であること、大型パネル化が容易であること、印刷対象の自由度が大きいこと等の理由から、前記インクジェット法を用いることが望ましく、具体的には、有機電界発光素子の製造方法として、有機化合物層の構成成分を溶媒中に溶解させた塗布溶液をインクジェット法により塗布する塗布工程を有することが特に望ましい。

【0140】

インクジェット法を用いる場合、インクの代わりに、有機化合物層用塗布液を用いて、液滴吐出ヘッドのノズルから液滴状の有機化合物層用塗布液を吐出させることによって、基板上の所望の位置に所望の膜厚・形状の有機化合物層が形成される。

また、液滴吐出ヘッドとしても、基本的な構成や原理は、インクジェットプリンターに用いられている記録ヘッドと同様のものが利用される。すなわち、有機化合物層用塗布液に圧力や熱等の外部刺激を付与することによって、有機化合物層用塗布液をノズルから液滴状に吐出する方法（いわゆる圧電素子を用いたピエゾインクジェット方式、熱沸騰現象を利用した熱インクジェット方式等）が利用される。

【0141】

しかしながら、本実施形態に係る有機電界発光素子の製造に際しては、外部刺激は熱よりも圧力であることがより望ましい。外部刺激が熱である場合には、有機化合物層用塗布液のノズルからの吐出から、基板上へ着弾した有機化合物層用塗布液の溶媒の揮発による塗膜の形成（固化）というインクジェット印刷プロセスにおいて、有機化合物層用塗布液の粘度が熱によって大きく変化してしまうため、レベリング性やパターンニング精度の制御が困難になる場合がある。これに加えて、耐熱性に劣る電荷輸送性ポリエーテルが利用できなくなり、材料選択肢が狭くなってしまう場合がある。

【0142】

また、インクジェット法を利用した本実施形態に係る有機電界発光素子の製造に用いられる装置としては、上述した液滴吐出ヘッドの他に、必要に応じて、例えば、有機電界発光素子を形成する対象である基板等の固定あるいは搬送手段や、液滴吐出ヘッドを基板平面方向に対して走査する液滴吐出ヘッド走査手段等を有していてもよい。

【0143】

なお、有機化合物層用塗布液は、その組成や物性は特に限定されるものではないが、有機化合物層用塗布液の粘度は、25において0.01cps以上1000cps以下の範囲内であることが望ましく、1cps以上100cps以下の範囲内であることが望ましい。

粘度が0.01cps未満である場合には、基板上に着弾した有機化合物層用塗布液が、基板平面方向に広がり易く、膜厚の制御が困難となったり、パターンニング精度が劣化してしまう場合がある。また、粘度が1000cpsを超える場合には、有機化合物層用塗布液の粘性が高すぎるために吐出不良を起こしやすくなる場合がある。

【0144】

なお、有機化合物層用塗布液の粘度は、電荷輸送性ポリエステルや、必要に応じて添加されるその他の添加剤成分の含有量や、電荷輸送性ポリエステルの分子量等を制御することによって、所望の値に調整される。

【0145】

正孔輸送層及び正孔注入層の少なくとも1層3、発光層4、電子輸送層及び電子注入層の少なくとも1層5、並びに、電荷輸送能を持つ発光層6の膜厚は、各々10 μm 以下、特に0.001 μm 以上5 μm 以下の範囲であることが望ましい。上記各材料（前記非共役系高分子、発光材料等）の分散状態は分子分散状態でも微結晶などの粒子状態でも構わない。塗布液を用いた成膜法の場合、分子分散状態とするために分散溶媒は上記各材料の分散性及び溶解性を考慮して選択する必要がある。粒子状に分散するためには、ボールミル、サンドミル、ペイントシェイカー、アトライター、ホモジナイザー、超音波法等が利用される。

また、図1及び図2に示す有機電界発光素子の場合には、電子輸送層及び電子注入層の少なくとも1層5の上に背面電極7を真空蒸着法、スパッタリング法等により形成することにより本実施形態に係る有機電界発光素子が得られる。また、図3に示す有機電界発光素子の場合には、発光層4の上に、図3に示す有機電界発光素子の場合には、電荷輸送能を持つ発光層6の上に背面電極7を真空蒸着法、スパッタリング法等により形成することにより本実施形態に係る有機電界発光素子が得られる。

【0146】

なお、本実施形態に係る有機電界発光素子は、例えば、表示装置、電子ペーパー、バックライト、照明光源、電子写真用露光装置、標識、看板等の分野に好適に使用される。

【0147】

次に、本実施形態に係る表示装置の構成について詳述する。

本実施の形態の表示装置は、上記本実施の形態の有機電界発光素子と、有機電界発光素子を駆動するための駆動手段と、を有する。

表示装置として具体的には例えば、図1乃至4に示すように、有機電界発光素子の一对の電極（電極2、背面電極7）に連結され、当該一对の電極間に直流電圧を印加するための電圧印加装置9を、駆動手段として備えたものが挙げられる。

電圧印加装置9を用いた有機電界発光素子の駆動方法としては、例えば、一对の電極間に、4V以上20V以下で、電流密度1 mA/cm^2 以上200 mA/cm^2 以下の直流電圧を印加することによって有機電界発光素子を発光させる。

【0148】

また、本実施の形態の有機電界発光素子は、最小単位（1画素単位）の構成について説明したが、例えば、当該1画素単位（有機電界発光素子）をマトリクス状及びセグメント状の少なくとも一方で配置した表示装置に適用される。有機電界発光素子をマトリクス状に配置する場合、電極のみをマトリクス状に配置する態様であってもよいし、電極及び有機化合物層の両方をマトリクス状に配置する態様であってもよい。また、本実施形態において有機電界発光素子をセグメント状に配置する場合、電極のみをセグメント状に配置する態様であってもよいし、電極及び有機化合物層の両方をセグメント状に配置する態様であってもよい。なお、マトリクス状又はセグメント状の有機化合物層は、前述したインクジェット法を用いることにより容易に形成可能である。

また、表示装置の駆動方式としては、従来公知の技術、例えば複数の行電極及び列電極を配し、行電極を走査駆動しながら各行電極に対応する画像情報に応じて列電極を一括して駆動させる単純マトリクス駆動や、各画素毎に配された画素電極によるアクティブマトリクス駆動等が利用される。

【実施例】

【0149】

以下、本発明を、実施例を挙げてさらに具体的に説明する。ただし、これら各実施例は、本発明を制限するものではない。

【0150】

（実施例1）

- 合成例1 -

10

20

30

40

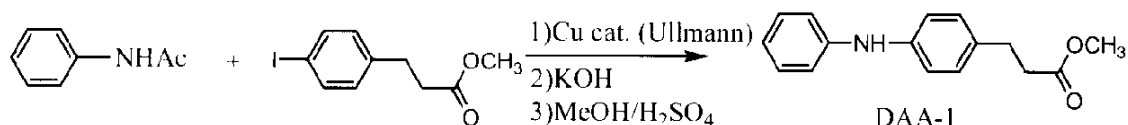
50

アセトアニリド (25.0 g)、4-ヨードフェニルプロピオン酸メチル (64.4 g)、炭酸カリウム (38.3 g)、硫酸銅 5 水和物 (2.3 g)、n-トリデカン (50 ml) を 500 ml の三口フラスコに入れ、窒素気流下、230 で 20 時間加熱撹拌した。反応終了後、水酸化カリウム (15.6 g) をエチレングリコール (300 ml) に溶解したものを加え、窒素気流下で 3.5 時間加熱還流した後、室温 (25) まで冷却し、反応液を 1 L の蒸留水に注ぎ、塩酸で中和し、結晶を析出させた。結晶を吸引ろ過によりろ取し、水洗した後、1 L のフラスコに移した。これに、トルエン (500 ml) を加え、加熱還流し、共沸により水を除去した後、濃硫酸 (1.5 ml) のメタノール (300 ml) 溶液を加え、窒素気流下で 5 時間加熱還流した。反応後、トルエンで抽出し、有機層を蒸留水で洗浄した。次いで、無水硫酸ナトリウムで乾燥後、溶剤を減圧下留去し、ヘキサンから再結晶することにより DAA-1 を 36.5 g 得た。

10

【0151】

【化50】



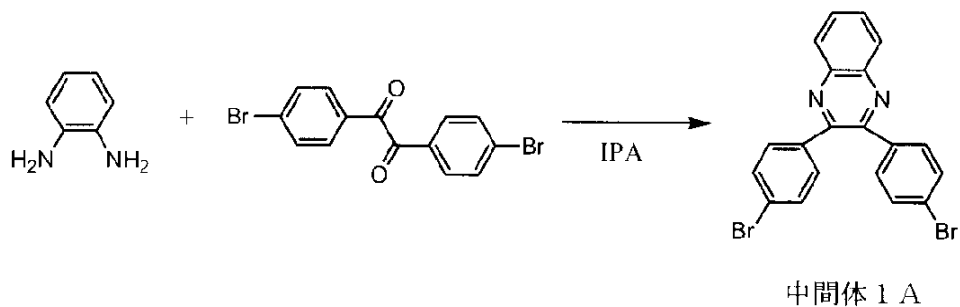
【0152】

次に、温度計、コンデンサ、マグネチックスタラを備えた 500 ml 三口フラスコに 1,2-フェニレンジアミン (2.9 g)、4,4'-ジブロモベンジル (10 g) を入れ、これをイソプロピルエーテル 200 ml に溶解させた。1 時間加熱還流磁気撹拌した。TLC (ヘキサン/酢エチ = 3/1) にて 1,2-フェニレンジアミンのスポットが消失しているのを確認後、室温 (25) まで冷却した。反応中に結晶が析出してきたのでこれを吸引ろ過により濾取した。さらにメタノール 50 ml で洗浄した後、70 で真空乾燥を 15 時間行い、キノキサリンジハロゲン体 [中間体 1A] を (10 g) 得た。

20

【0153】

【化51】



30

【0154】

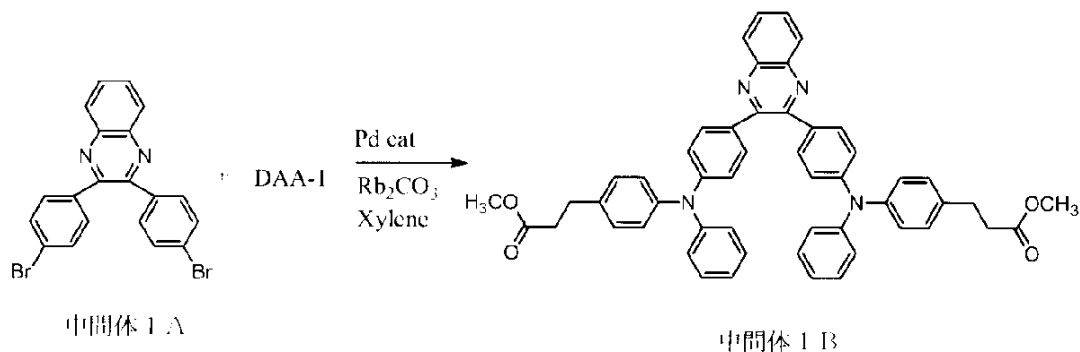
次に、温度計、コンデンサ、マグネチックスタラを備えた 200 ml 三口フラスコに DAA-1 (8.0 g)、[中間体 1A] (6.3 g)、酢酸パラジウム (II) (150 mg)、炭酸ルビジウム (19.6 g) を入れ、キシレン 50 ml に溶解させた。トリタリルホスフィン (420 mg) をすばやく加え、窒素雰囲気下 9 時間加熱還流磁気撹拌した。TLC (ヘキサン/酢エチ = 3/1) にて [中間体 1A] のスポットが消失しているのを確認後、室温 (25) まで冷却した。セライト吸引ろ過により無機物を除去した後、希塩酸 100 ml、水 200 ml × 3、飽和食塩水 200 ml × 1 の順に中性になるまで洗浄した。無水硫酸ナトリウムで乾燥後、シリカゲルカラムクロマトグラフィ (ヘキサン/酢エチ = 3/1) により精製を行い、次いで 70 で真空乾燥を 15 時間行い、[中間体 1B] を (5.2 g) 収率 46% 得た。[中間体 1B] の融点は 135 以上 136 以下であった。

40

【0155】

50

【化 5 2】



10

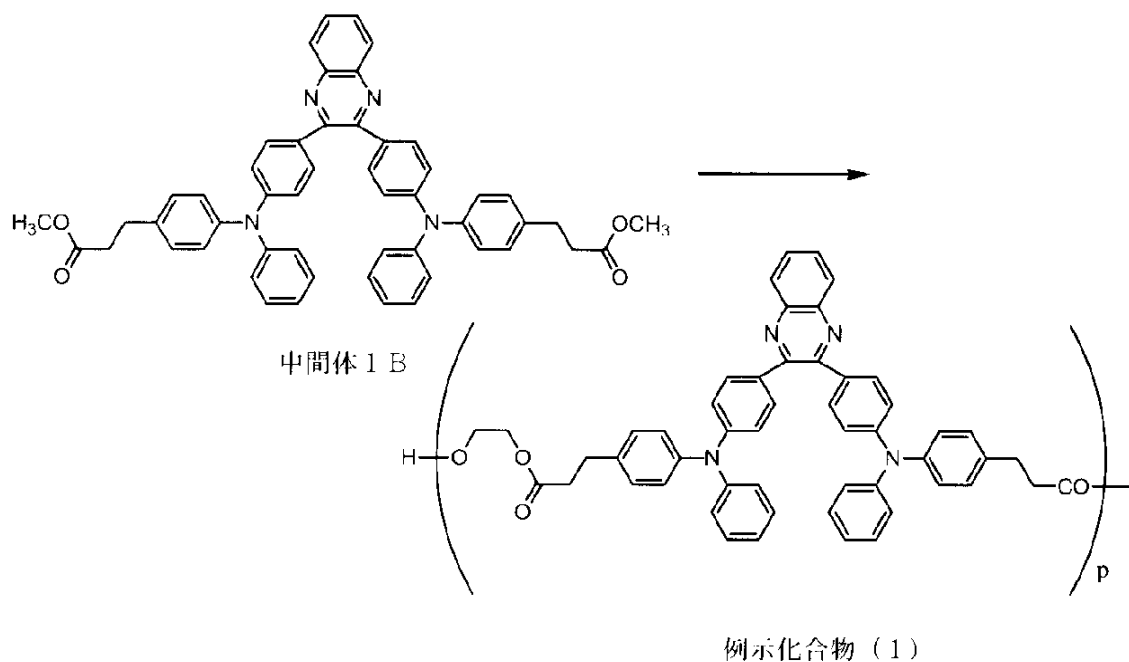
【 0 1 5 6】

次に、[中間体 1 B] : 1.5 g、エチレングリコール 10 ml 及びテトラブトキシチタン 0.02 g を 50 ml の三口ナスフラスコに入れ、窒素雰囲気下、200 で 5 時間加熱撹拌した。原料 1 が消失したのを TLC により確認した後 50 Pa に減圧してエチレングリコールを留去しながら 210 に加熱し、6 時間反応を続けた。その後、室温 (25) まで冷却し、テトラヒドロフラン 50 ml に溶解し、不溶物を 0.5 μl のポリテトラフルオロエチレン (PTFE) フィルターにてろ過し、ろ液を減圧下留去した後、モノクロロベンゼン 300 ml に溶解させ、1 N - HCl 300 ml、水 500 ml 化 × 3 の順に洗浄した。モノクロロベンゼン溶液を 30 ml まで減圧下留去して、酢酸エチル / メタノール = 1 / 3 : 800 ml 中に滴下し、ポリマーを再沈殿させた。得られたポリマーをろ過し、メタノールで洗浄した後、60 で 16 時間真空乾燥させ、0.9 g のポリマー〔例示化合物 (1)〕を得た。このポリマーの分子量をゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) (東ソー社製、HLC-8120 GPC) にて測定したところ、 $MW = 6.1 \times 10^4$ (スチレン換算)、 $MW / Mn = 1.01$ であり、モノマーの分子量から求めた重合度 p は 76 であった。

20

【 0 1 5 7】

【化 5 3】



30

40

【 0 1 5 8】

- 素子の作製 -

透明絶縁基板上に形成された ITO (三容真空社製) を短冊状のフォトマスクを用いてフォトリソグラフィによりパターニングし、さらにエッチング処理することにより短冊状

50

のITO電極（幅2mm）を形成した。次に、このITOガラス基板を中性洗剤、純水、アセトン（電子工業用、関東化学製）及びイソプロパノール（電子工業用、関東化学製）で超音波を各5分間加えて洗浄した後、スピナーで乾燥させた。前記基板に、正孔輸送層として、電荷輸送性ポリエステル〔例示化合物（1）〕を5重量%モノクロロベンゼン溶液に調製し、0.1μmのPTFEフィルターで濾過した後、ディップ法により厚さ0.050μmの薄膜を形成した。発光材料として前記例示化合物（IV-1）を蒸着して、厚さ0.055μmの発光層を形成した。続いて短冊状の穴が設けられている金属性マスクを用いて、最後にこのマスクを設置してMg-Ag合金を共蒸着により蒸着して、2mm幅、0.15μm厚の背面電極をITO電極と交差するように形成した。形成された有機電界発光素子の有効面積は0.04cm²であった。

10

【0159】

（実施例2）

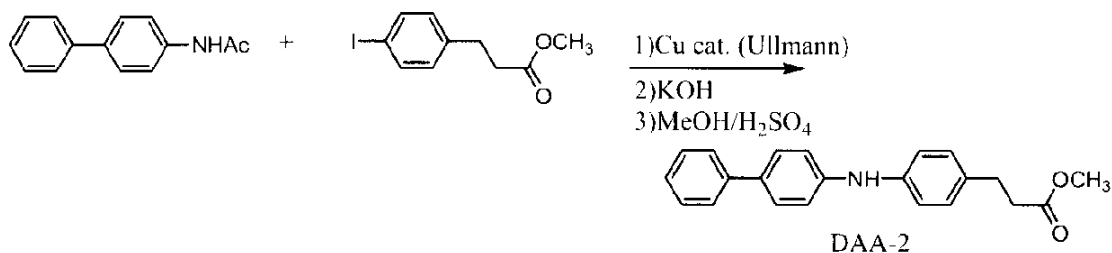
- 合成例2 -

温度計、コンデンサ、マグネチックスタラを備えた100ml三口フラスコに4-フェニルアセトアニリド（4.0g）、4-ヨードフェニルプロピオン酸メチル（6.4g）、炭酸カリウム（3.9g）、硫酸銅5水和物（0.40g）を入れ、o-ジクロロベンゼン（20ml）に溶解させた。窒素雰囲気下、185℃で13時間加熱撹拌した。反応終了後、水酸化カリウム（1.3g）をエチレングリコール（25ml）に溶解したものを加え、窒素雰囲気下、5時間加熱還流した。反応終了後、室温（25℃）まで冷却し、これを水（200ml）に注ぎ、塩酸で中和して、結晶を析出させた。これをろ過し、水洗した後、1Lのフラスコに移した。これにトルエン（300ml）を加えて、加熱還流し、水を共沸により除去した後、メタノール（100ml）、濃硫酸（0.5ml）を加えて、窒素気流下で、3時間加熱還流した。反応終了後、蒸留水にあげ、トルエン抽出後した。トルエン層を蒸留水で洗浄し、次いで、無水硫酸ナトリウムで乾燥後、溶剤を減圧下留去し、酢酸エチル/ヘキサン混合液から再結晶することによりDAA-2を3.2g得た。

20

【0160】

【化54】



30

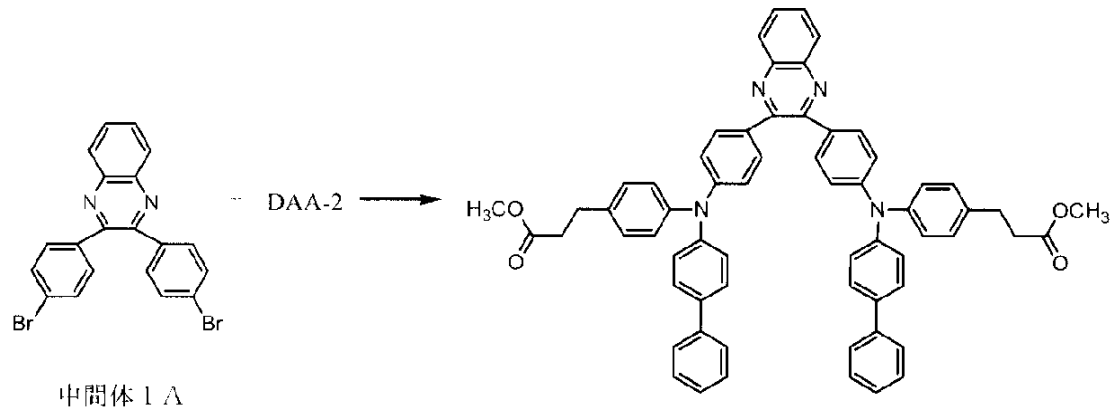
【0161】

次に、温度計、コンデンサ、マグネチックスタラを備えた200ml三口フラスコにDAA-2（2.1g）、〔中間体1A〕（1.4g）、酢酸パラジウム（II）（36mg）、炭酸ルビジウム（4.4g）を入れ、キシレン30mlに溶解させた。トリタ-シャリ-ブチルホスフィン（97mg）をすばやく加え、窒素雰囲気下5時間加熱還流磁気撹拌した。TLC（ヘキサン/酢エチ=3/1）にて〔中間体1A〕のスポットが消失しているのを確認後、室温（25℃）まで冷却した。セライト吸引ろ過により無機物を除去した後、希塩酸20ml、水50ml×3、飽和食塩水50ml×1の順に中性になるまで洗浄した。無水硫酸ナトリウムで乾燥後、シリカゲルカラムクロマトグラフィ-（ヘキサン/酢エチ=3/1）、アセトン/メタノール混合溶液100mlで煮洗いを行い、次いで70℃で真空乾燥を15時間行い、〔中間体2A〕を（0.5g）収率17%得た。〔中間体2A〕の融点は177以上178℃以下であった。

40

【0162】

【化 5 5】



中間体 1 A

中間体 2 A

【 0 1 6 3】

〔中間体 2 A〕 1.2 g、エチレングリコール 10 ml 及びテトラブトキシタン 0.02 g を 50 ml の三口ナスフラスコに入れ、窒素雰囲気下、200℃で 7 時間加熱攪拌した。原料が消失したのを TLC により確認した後 50 Pa に減圧してエチレングリコールを留去しながら 210℃に加熱し、6 時間反応を続けた。その後、室温（25℃）まで冷却し、テトラヒドロフラン 50 ml に溶解し、不溶物を 0.5 μm のポリテトラフルオロエチレン（PTFE）フィルターにてろ過し、ろ液を減圧下留去した後、モノクロロベンゼン 300 ml に溶解させ、1 N-HCl 300 ml、水 500 ml 化×3 の順に洗浄した。モノクロロベンゼン溶液を 30 ml まで減圧下留去して、酢酸エチル/メタノール = 1/3 : 800 ml 中に滴下し、ポリマーを再沈殿させた。得られたポリマーをろ過し、メタノールで洗浄した後、60℃で 16 時間真空乾燥させ、0.9 g のポリマー〔例示化合物（9）〕を得た。この例示化合物（9）の分子量を GPC ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）にて測定したところ、Mw は 1.0×10^5 （スチレン換算）、Mw/Mn は 1.3 であり、モノマーの分子量から求めた重合度 p は 86 であった。

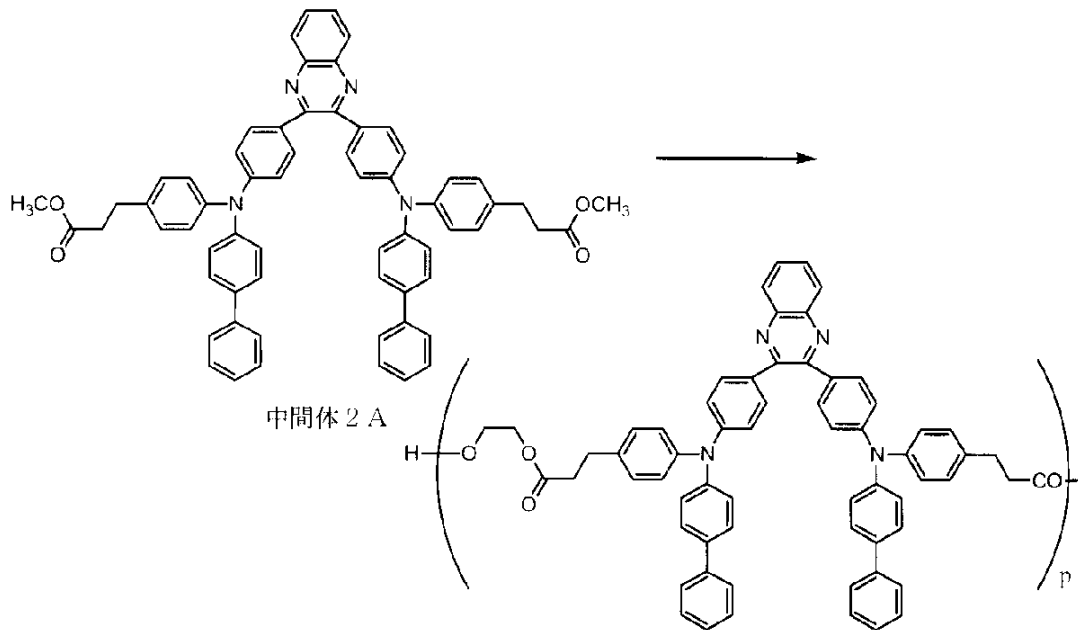
【 0 1 6 4】

10

20

30

【化 5 6】



10

20

【0165】

- 素子の作製 -

実施例 1 同様にエッチング、洗浄した ITO ガラス基板に、電荷輸送性ポリエステル〔例示化合物 (9)〕1 重量部、ポリ (N - ビニルカルバゾール) 4 重量部、前記例示化合物 (IV - 1) を、10 重量%ジクロロエタン溶液を調製し、0.1 μm の PTFE フィルターで濾過した。この溶液を用いて、2 mm 幅の短冊型 ITO 電極をエッチングにより形成したガラス基板上に、スピンコーター法により膜厚 0.15 μm の電荷輸送能を有する発光層を形成した。充分乾燥させた後、Mg - Ag 合金を共蒸着により蒸着して、2 mm 幅、0.15 μm 厚の背面電極を ITO 電極と交差するように形成した。形成された有機電界発光素子の有効面積は 0.04 cm² であった。

30

【0166】

(実施例 3)

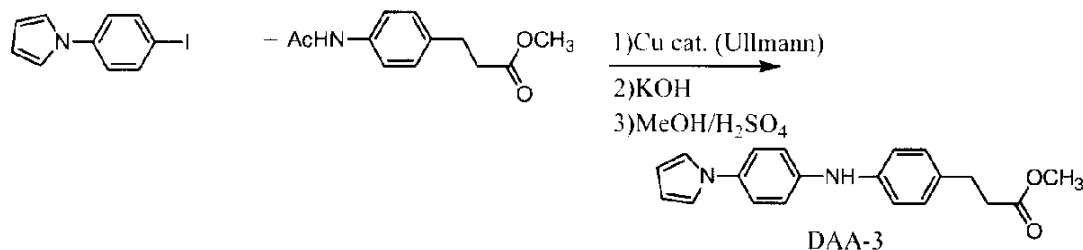
- 合成例 3 -

温度計、コンデンサ - 、マグネチックスタ - ラ - を備えた 300 ml 三口フラスコに N - (4 - ヨ - ドフェニル)ピロ - ル (16 g)、3 - (4 - アセトアミドフェニル)プロピオン酸メチル (14 g)、炭酸カリウム (8.3 g)、硫酸銅 5 水和物 (1.3 g) を入れ、o - ジクロロベンゼン (50 ml) に溶解させた。窒素雰囲気下、180 で 24 時間加熱攪拌した。反応終了後、水酸化カリウム (4.5 g) をエチレングリコール (100 ml) に溶解したものを加え、窒素雰囲気下、4 時間加熱還流した。反応終了後、室温 (25) まで冷却し、これを水 (300 ml) に注ぎ、塩酸で中和して、結晶を析出させた。これをろ過し、水洗した後、1 L のフラスコに移した。これにトルエン (300 ml) を加えて、加熱還流し、水を共沸により除去した後、メタノール (400 ml)、p - トルエンスルホン酸 (1.0 g) を加えて、窒素気流下で、4 時間加熱還流した。反応終了後、蒸留水 1.0 L にあけ、トルエンで抽出した。トルエン層を蒸留水で洗浄し、次いで、無水硫酸ナトリウムで乾燥後、溶剤を減圧下留去し、活性白土 10 g で処理した後、トルエン / ヘキサン混合液から再結晶することにより DAA - 3 を 13 g 得た。

40

【0167】

【化 5 7】



【0168】

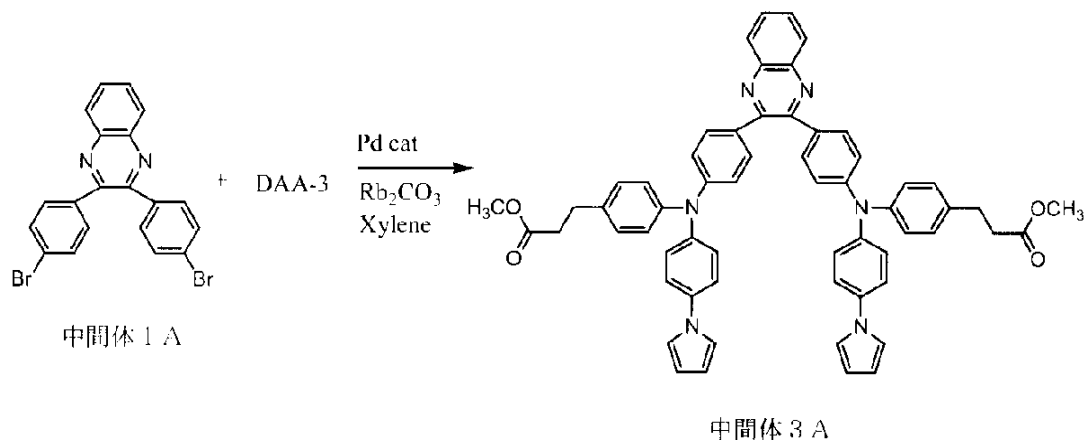
10

次に、温度計、コンデンサ -、マグネチックスタ - ラ - を備えた 100 ml 三口フラスコに DAA - 3 (1.4 g)、[中間体 1 A] (0.9 g)、酢酸パラジウム (II) (22 mg)、炭酸ルビジウム (2.8 g) を入れ、キシレン 50 ml に溶解させた。トリ - タ - シアリ - プチルホスフィン (100 mg) をすばやく加え、窒素雰囲気下 8 時間加熱還流磁気撹拌した。TLC (ヘキサン / 酢エチ = 3 / 1) にて [中間体 1 A] のスポットが消失しているのを確認後、室温 (25) まで冷却した。セライト吸引ろ過により無機物を除去した後、希塩酸 20 ml、水 50 ml × 3、飽和食塩水 50 ml × 1 の順に中性になるまで洗浄した。無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下、溶媒を留去して活性白土 2.0 g で処理を行うことで色成分たる不純物を除去、ついでメタノール 100 ml で洗浄し、70 で真空乾燥を 15 時間行い、[中間体 3 A] を (1.2 g) 収率 65 % で得た。

20

【0169】

【化 5 8】



30

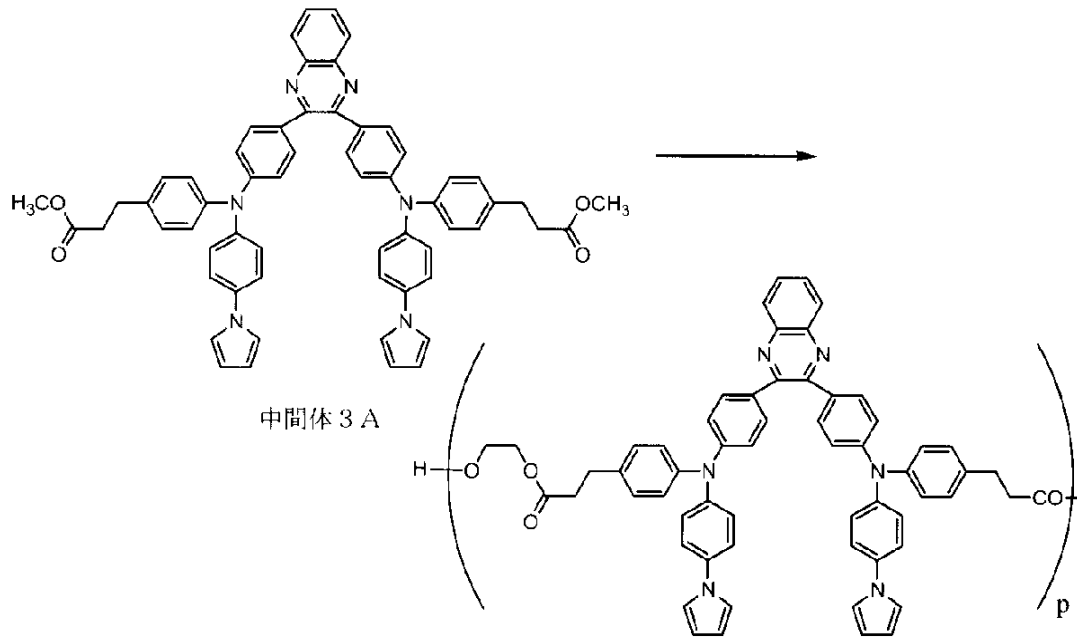
【0170】

この [中間体 3 A] 1.2 g を 50 ml の三口ナスフラスコに入れ、窒素雰囲気下エチレングリコール (10 ml) オルトチタン酸テトラブチルモノマー (10 mg) を加え、脱気後 200 で 5 時間反応を行なう。その後 40 Pa の減圧下、230 で 5 時間加熱反応。その後、室温 (25) まで冷却し、モノクロロベンゼン 50 ml に加熱溶解し、不溶物を 0.5 μm の PTFE フィルターにて加圧ろ過し、ろ液を撹拌している酢酸エチル / メタノール 700 ml 中に滴下し、ポリマーを再沈殿させた。得られたポリマーを吸引ろ過によりろ取、次いでメタノール 500 ml で洗浄した後、乾燥させ、0.9 g のポリマー [例示化合物 (33)] を得た。この [例示化合物 33] の分子量を GPC ゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) にて測定したところ、Mw は 8.5 × 10⁴ (スチレン換算)、Mw / Mn は 1.8 であり、モノマーの分子量から求めた重合度 p は 59 であった。

40

【0171】

【化 5 9】



10

20

【 0 1 7 2 】

- 素子の作製 -

実施例 1 同様にエッチング、洗浄した I T O ガラス基板に、実施例 1 同様に正孔輸送層として、電荷輸送性ポリエステル〔例示化合物 (3 3)〕を厚さ $0.050\ \mu\text{m}$ を形成した。発光層として前記例示化合物 (I V - 1) と前記例示化合物 (V - 1) を厚さ $0.065\ \mu\text{m}$ 、電子輸送層として前記例示化合物 (I V - 9) を厚さ $0.030\ \mu\text{m}$ で形成した。続いて M g - A g 合金を共蒸着により蒸着して、 $2\ \text{mm}$ 幅、 $0.15\ \mu\text{m}$ 厚の背面電極を I T O 電極と交差するように形成した。形成された有機電界発光素子の有効面積は $0.04\ \text{cm}^2$ であった。

30

【 0 1 7 3 】

(実施例 4)

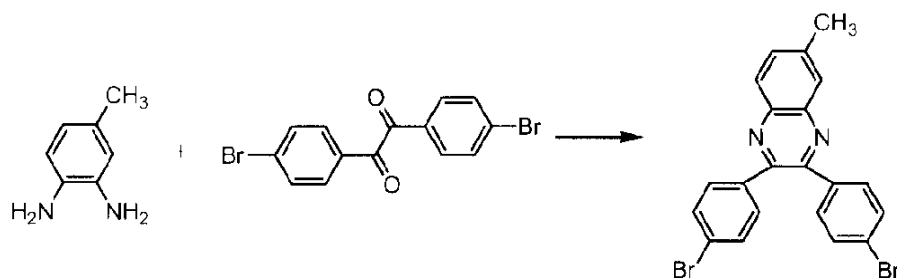
- 合成例 4 -

温度計、コンデンサ - 、マグネチックスタ - ラ - を備えた $500\ \text{m l}$ 三口フラスコに 3 , 4 - ジアミノトルエン ($3.3\ \text{g}$)、4 , 4 ' - ジプロモベンジル ($10\ \text{g}$) を入れ、これをイソプロピルエーテル $200\ \text{m l}$ に溶解させた。1 時間加熱還流磁気攪拌した。T L C (ヘキサン / 酢エチ = 3 / 1) にて 3 , 4 - ジアミノトルエンのスポットが消失しているのを確認後、室温 (25°C) まで冷却した。反応中に結晶が析出してきたのでこれを吸引ろ過により濾取した。さらにメタノール $50\ \text{m l}$ で洗浄した後、 70°C で真空乾燥を 1 5 時間行い、[中間体 4 A] を ($8.5\ \text{g}$) 得た。

40

【 0 1 7 4 】

【化 6 0】



中間体 4 A

10

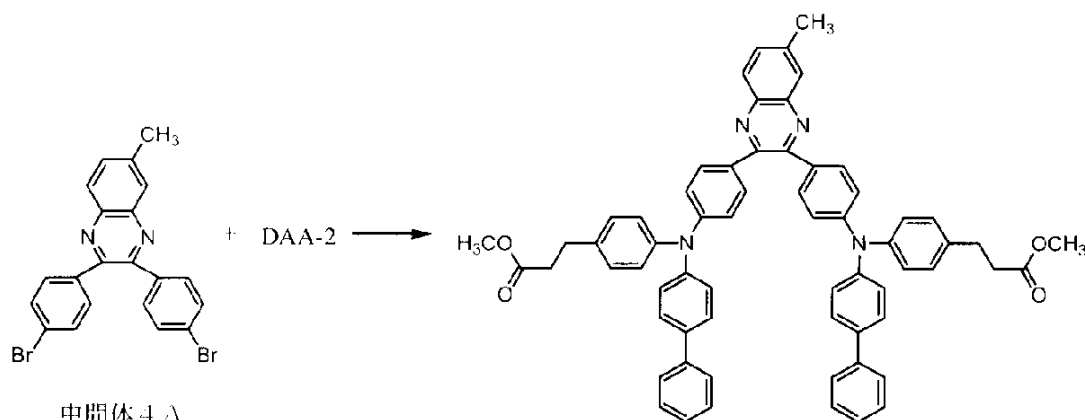
【 0 1 7 5】

次に、温度計、コンデンサ -、マグネチックスタ - ラ - を備えた 5 0 0 m l 三口フラスコに D A A - 2 (6 . 7 g)、〔中間体 4 A〕(4 . 5 g)、酢酸パラジウム (I I) (1 1 0 m g)、炭酸ルビジウム (1 4 g) を入れ、キシレン 2 0 0 m l に溶解させた。トリ - タ - シャリ - ブチルホスフィン (8 0 0 m g) をすばやく加え、窒素雰囲気下 9 時間加熱還流磁気撹拌した。T L C (ヘキサン / 酢エチ = 3 / 1) にて〔中間体 4 A〕のスポットが消失しているのを確認後、室温 (2 5) まで冷却した。セライト吸引ろ過により無機物を除去した後、希塩酸 1 0 0 m l、水 2 0 0 m l × 3、飽和食塩水 2 0 0 m l × 1 の順に中性になるまで洗浄した。無水硫酸ナトリウムで乾燥後、シリカゲルカラムクロマト

20

【 0 1 7 6】

【化 6 1】



中間体 4 A

中間体 4 B

30

【 0 1 7 7】

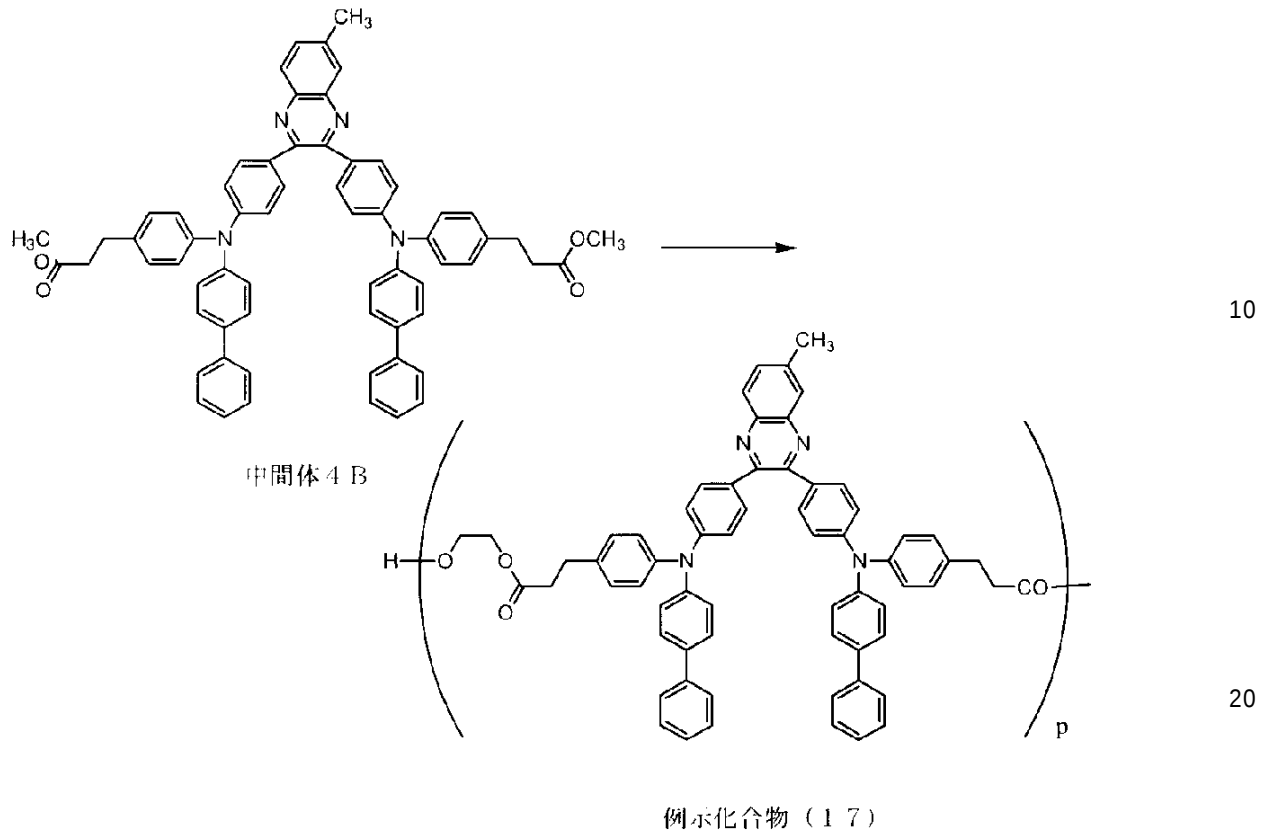
この〔中間体 4 B〕 1 . 2 g を 5 0 m l の三口ナスフラスコに入れ、窒素雰囲気下エチレングリコール (1 0 m l) オルトチタン酸テトラブチルモノマー (1 0 m g) を加え、脱気後 2 0 0 で 6 時間反応を行なう。その後 5 6 P a の減圧下、2 3 0 で 7 時間加熱反応。その後、室温 (2 5) まで冷却し、モノクロロベンゼン 5 0 m l に加熱溶解し、不溶物を 0 . 5 μ m の P T F E フィルターにて加圧ろ過し、ろ液を撹拌している酢酸エチル / メタノール 8 0 0 m l 中に滴下し、ポリマーを再沈殿させた。得られたポリマーを吸引ろ過によりろ取、次いでメタノール 5 0 0 m l で洗浄した後、乾燥させ、1 . 0 g のポリマー〔例示化合物 (1 7)〕を得た。この〔例示化合物 (1 7)〕の分子量を G P C ゲルパーミエーションクロマトグラフィー (G P C) にて測定したところ、M w は 7 . 6 × 1 0 ⁴ (スチレン換算)、M w / M n は 1 , 5 であり、モノマーの分子量から求めた重合度 p は 8 0 であった。

40

【 0 1 7 8】

50

【化 6 2】



【 0 1 7 9 】

- 素子の作製 -

実施例 1 同様にエッチング、洗浄した ITO ガラス基板に、実施例 1 同様に正孔輸送層として、電荷輸送性ポリエステル〔例示化合物 (17)〕を厚さ $0.050\ \mu\text{m}$ でインクジェット法により形成した。発光層として前記例示化合物 (IV-17) と前記例示化合物 (V-5) を厚さ $0.065\ \mu\text{m}$ でスピンコーター法により形成した。充分乾燥させた後、Ca を厚さ $0.08\ \mu\text{m}$ 、Al を厚さ $0.15\ \mu\text{m}$ に蒸着して、 $2\ \text{mm}$ 幅、合計 $0.23\ \mu\text{m}$ 厚の背面電極を ITO 電極と交差するように形成した。形成された有機電界発光素子の有効面積は $0.04\ \text{cm}^2$ であった。

【 0 1 8 0 】

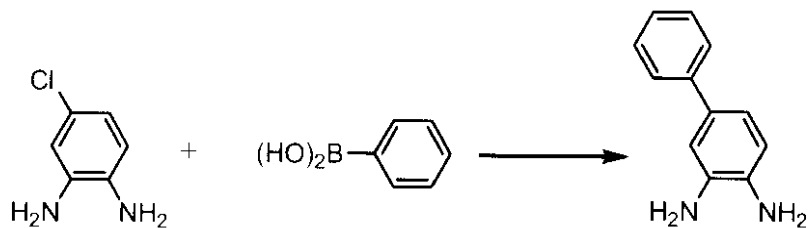
(実施例 5)

- 合成例 5 -

窒素雰囲気下、 $300\ \text{ml}$ 三口フラスコヘトリフェニルホスフィンパラジウム (0) $2.9\ \text{g}$ 、4-クロロ-1,2-フェニレンジアミン $7.0\ \text{g}$ 、 $2\ \text{M}$ 炭酸水素ナトリウム水溶液 $50\ \text{ml}$ 、フェニルホウ酸 $6.1\ \text{g}$ を加え、トルエン $100\ \text{ml}$ に溶解させた。5 時間還流撹拌したのち、TLC にて反応終了確認。その後水で中性まで洗浄し硫酸ナトリウムで乾燥させた。溶媒を減圧下留去しエタノールから再結晶してジアミノ体 $4.6\ \text{g}$ を得た。

【 0 1 8 1 】

【化 6 3】



ジアミノ体

10

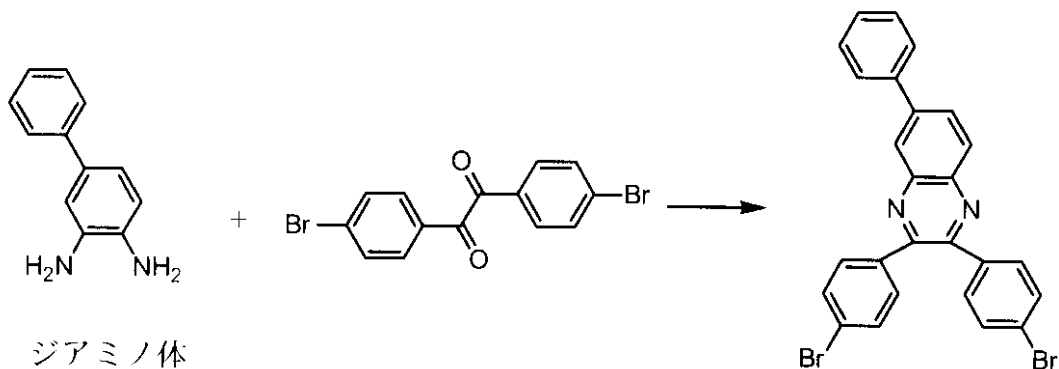
【0182】

次に、温度計、コンデンサ - 、マグネチックスタ - ラ - を備えた 500 ml 三口フラスコにジアミノ体 (3.6 g)、4,4'-ジプロモベンジル (7.8 g) を入れ、これをイソプロピルエーテル 200 ml に溶解させた。1 時間加熱還流磁気攪拌した。TLC (ヘキサン/酢エチ = 3/1) にて 1,2-フェニレンジアミンのスポットが消失しているのを確認後、室温 (25) まで冷却した。反応中に結晶が析出してきたのでこれを吸引る過により濾取した。さらにメタノール 100 ml で洗浄した後、70 で真空乾燥を 15 時間行い、[中間体 5 A] を (8.0 g) 得た。

【0183】

【化 6 4】

20



ジアミノ体

中間体 5 A

30

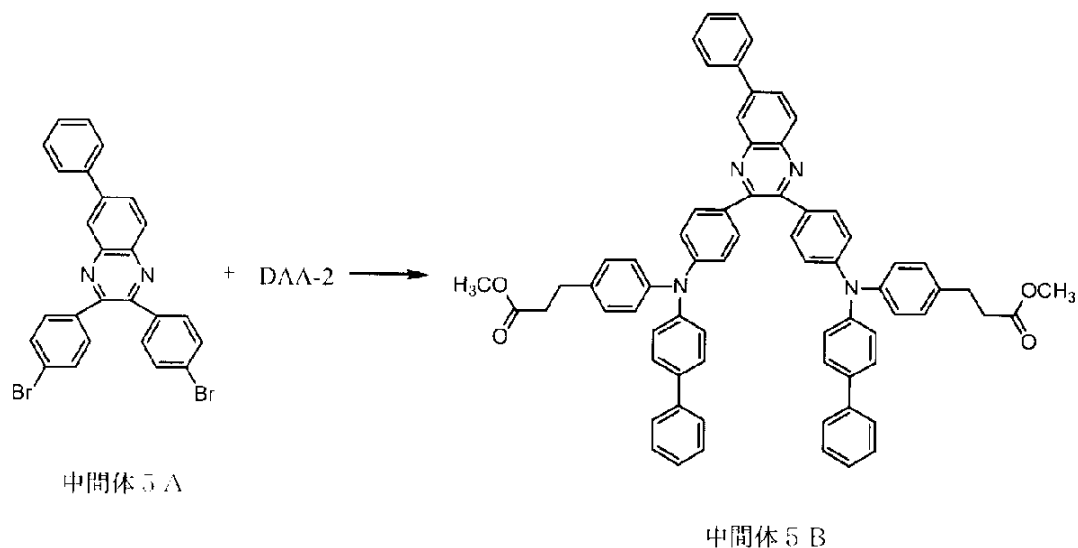
【0184】

次に、温度計、コンデンサ - 、マグネチックスタ - ラ - を備えた 300 ml 三口フラスコに DAA-2 (6.7 g)、[中間体 5 A] (5.1 g)、酢酸パラジウム (II) (110 mg)、炭酸ルビジウム (14 g) を入れ、キシレン 200 ml に溶解させた。トリ - タ - シャリ - ブチルホスフィン (800 mg) をすばやく加え、窒素雰囲気下 12 時間加熱還流磁気攪拌した。TLC (ヘキサン/酢エチ = 3/1) にて [中間体 5 A] のス

40

【0185】

【化 6 5】



10

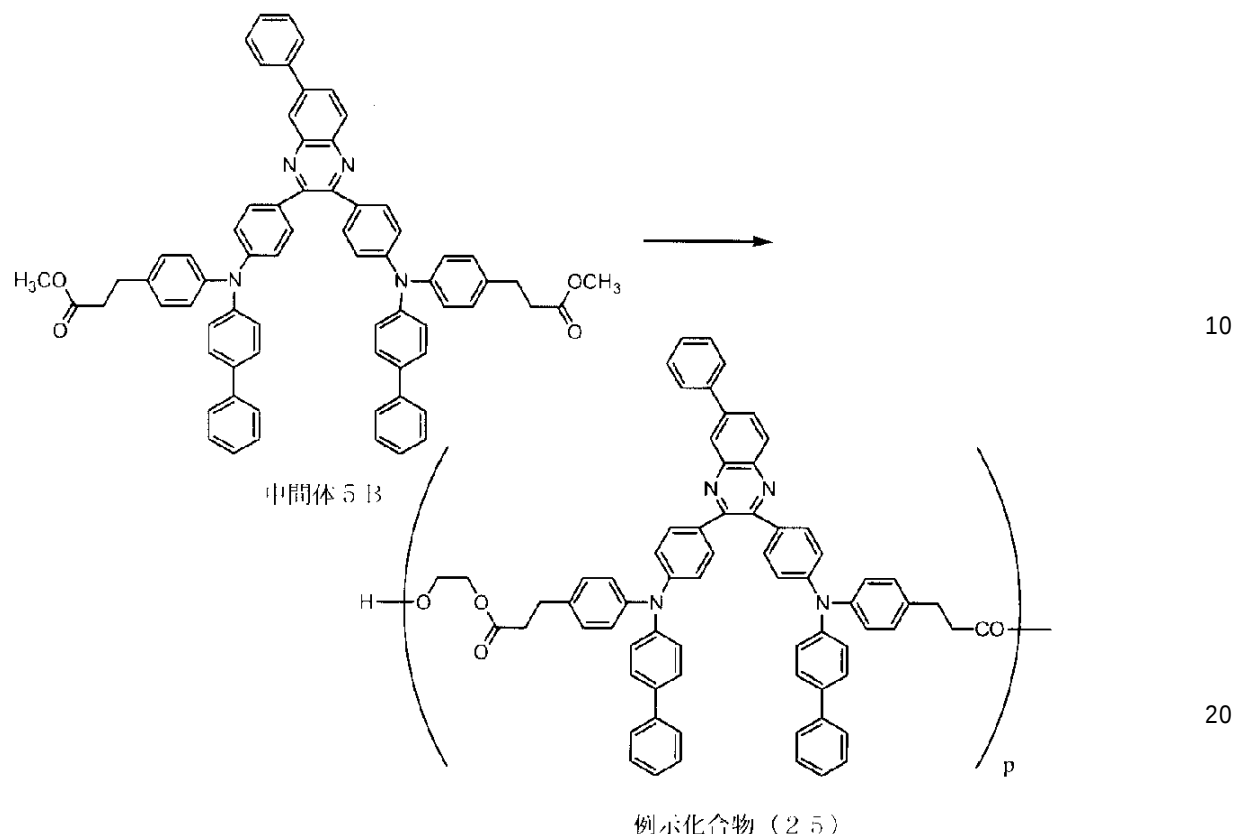
【 0 1 8 6】

この【中間体 5 B】 1.0 g を 50 ml の三口ナスフラスコに入れ、窒素雰囲気下エチレングリコール (10 ml) オルトチタン酸テトラブチルモノマー (10 mg) を加え、脱気後 200 で 5 時間反応を行なう。その後 45 Pa の減圧下、210 で 7 時間加熱反応。その後、室温 (25) まで冷却し、モノクロロベンゼン 50 ml に加熱溶解し、不溶物を 0.5 μm の PTFE フィルターにて加圧ろ過し、ろ液を攪拌しているメタノール 1000 ml 中に滴下し、ポリマーを再沈殿させた。得られたポリマーを吸引ろ過によりろ取、次いで酢酸エチル/メタノール 500 ml で洗浄した後、乾燥させ、0.8 g のポリマー〔例示化合物 (25)〕を得た。この例示化合物 (25) の分子量を GPC ゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) にて測定したところ、Mw は 7.3×10^4 (スチレン換算)、Mw/Mn は 1.6 であり、モノマーの分子量から求めた重合度 p は 72 であった。

20

【 0 1 8 7】

【化 6 6】



【 0 1 8 8 】

- 素子の作製 -

実施例 1 同様にエッチング、洗浄した ITO ガラス基板に、電荷輸送性ポリエステル〔例示化合物 (25)〕1.5 重量部 % ジクロロエタン溶液を調製し、0.1 μm の PTFE フィルターで濾過した。この溶液を用いて、正孔輸送層として、2 mm 幅の短冊型 ITO 電極をエッチングにより形成したガラス基板上に、インクジェット法により膜厚 0.05 μm の薄膜を形成した。発光材料として前記例示化合物 (IV-14) をインクジェット法により厚さ 0.050 μm の発光層を形成した。充分乾燥させた後、Ca を厚さ 0.08 μm、Al を厚さ 0.15 μm に蒸着して、2 mm 幅、合計 0.23 μm 厚の背面電極を ITO 電極と交差するように形成した。形成された有機電界発光素子の有効面積は 0.04 cm² であった。

【 0 1 8 9 】

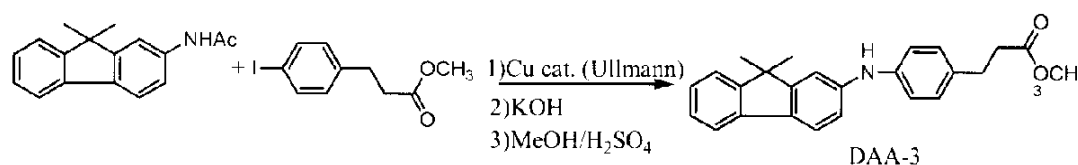
(実施例 6)

- 合成例 6 -

温度計、コンデンサ -、マグネチックスタ - ラ - を備えた 100 ml 三口フラスコに 9, 9 - ジメチル - 2 - アセトアミドフルオレン (5.0 g)、4 - ヨードフェニルプロピオン酸メチル (6.0 g)、炭酸カリウム (4.1 g)、硫酸銅 5 水和物 (0.41 g) を入れ、o - ジクロロベンゼン (20 ml) に溶解させた。窒素雰囲気下、185 で 13 時間加熱撹拌した。反応終了後、水酸化カリウム (1.5 g) をエチレングリコール (30 ml) に溶解したものを加え、窒素雰囲気下、5 時間加熱還流した。反応終了後、室温 (25) まで冷却し、これを水 (200 ml) に注ぎ、塩酸で中和して、結晶を析出させた。これをろ過し、水洗した後、1 L のフラスコに移した。これにトルエン (300 ml) を加えて、加熱還流し、水を共沸により除去した後、メタノール (100 ml)、濃硫酸 (0.5 ml) を加えて、窒素気流下で、3 時間加熱還流した。反応終了後、蒸留水にあげ、トルエン抽出後した。トルエン層を蒸留水で洗浄し、次いで、無水硫酸ナトリウムで乾燥後、溶剤を減圧下留去し、酢酸エチル / ヘキサン混合液から再結晶することにより DAA - 3 を 5.0 g 得た。

【0190】

【化67】

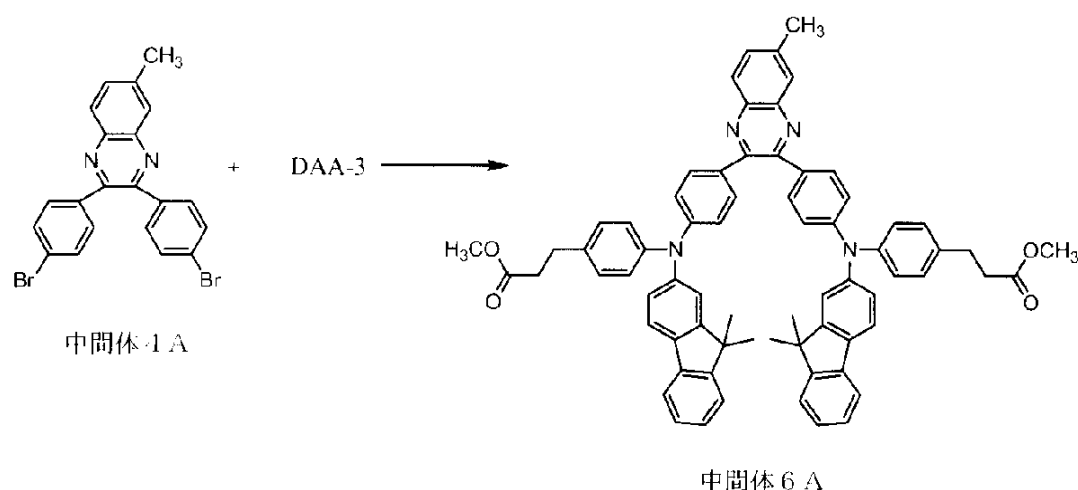


【0191】

次に、温度計、コンデンサ -、マグネチックスタ - ラ - を備えた 300 ml 三口フラスコに DAA - 3 (7.8 g)、[中間体 4 A] (4.5 g)、酢酸パラジウム (II) (110 mg)、炭酸ルビジウム (14 g) を入れ、キシレン 200 ml に溶解させた。トリ - タ - シアリ - ブチルホスフィン (800 mg) をすばやく加え、窒素雰囲気下 12 時間加熱還流磁気撹拌した。TLC (ヘキサン/酢エチ = 3/1) にて [中間体 4 A] のスポットが消失しているのを確認後、室温 (25) まで冷却した。セライト吸引ろ過により無機物を除去した後、希塩酸 100 ml、水 200 ml × 3、飽和食塩水 200 ml × 1 の順に中性になるまで洗浄した。無水硫酸ナトリウムで乾燥後、シリカゲルカラムクロマトグラフィー - (ヘキサン/酢エチ = 3/1) により精製を行い、次いで 70 で真空乾燥を 15 時間行い、[中間体 6 A] を (6.2 g) 収率 60% 得た。

【0192】

【化68】

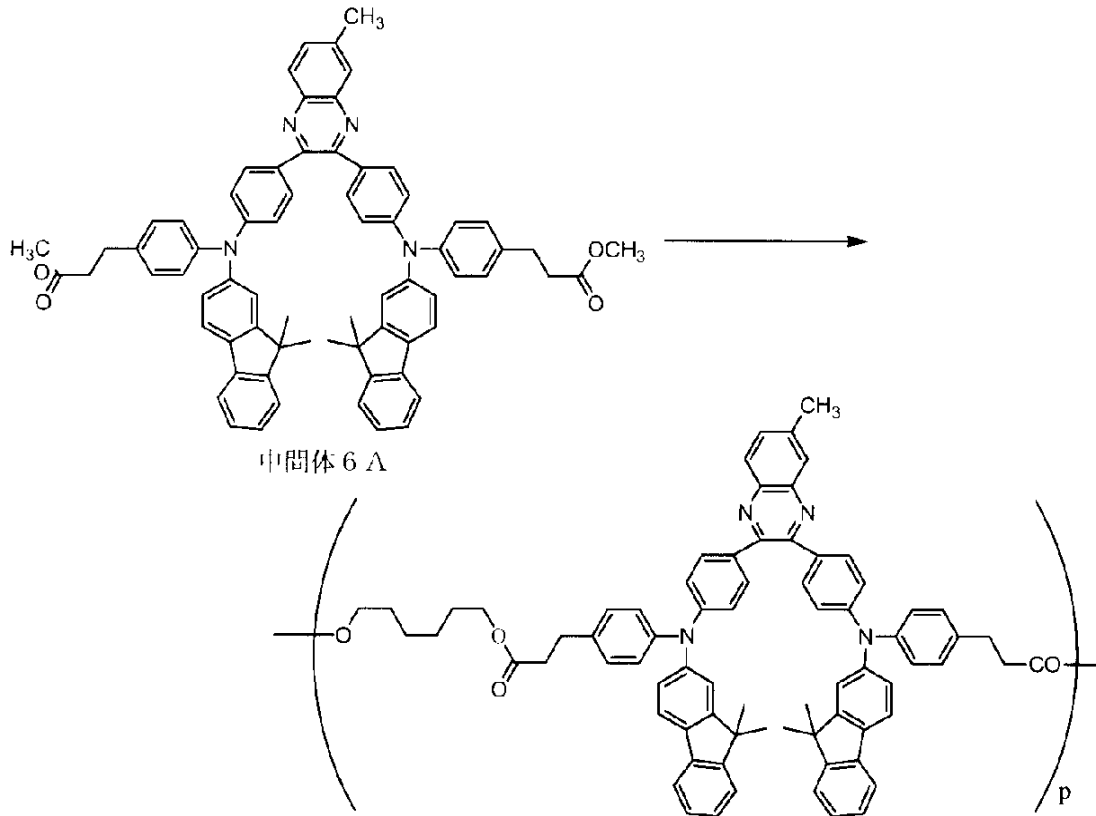


【0193】

この [中間体 6 A] 1.0 g を 50 ml の三口ナスフラスコに入れ、窒素雰囲気下ヘキシレングリコール (10 ml) オルトチタン酸テトラブチルモノマー (10 mg) を加え、脱気後 200 で 5 時間反応を行なう。その後 42 Pa の減圧下、200 で 6 時間加熱反応。その後、室温 (25) まで冷却し、モノクロロベンゼン 50 ml に加熱溶解し、不溶物を 0.5 μm の PTFE フィルターにて加圧ろ過し、ろ液を撹拌している酢酸エチル/メタノール 1000 ml 中に滴下し、ポリマーを再沈殿させた。得られたポリマーを吸引ろ過によりろ取、次いで酢酸エチル/メタノール 500 ml で洗浄した後、乾燥させ、0.8 g のポリマー [例示化合物 (64)] を得た。この例示化合物 (64) の分子量を GPC ゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) にて測定したところ、Mw は 8.6×10^4 (スチレン換算)、Mw/Mn は 1.4 であり、モノマーの分子量から求めた重合度 p は 82 であった。

【0194】

【化 6 9】



10

20

【0195】

- 素子の作製 -

実施例 1 同様にエッチング、洗浄した ITO ガラス基板に、実施例 1 同様に正孔輸送層兼発光層として、非共役系高分子〔例示化合物 (6 4)〕を厚さ $0.050\ \mu\text{m}$ を形成した。電子輸送層として前記例示化合物 (IV-9) を厚さ $0.030\ \mu\text{m}$ を形成した。続いて $2\ \text{mm}$ 幅で LiF を $0.005\ \mu\text{m}$ 、Al を $0.15\ \mu\text{m}$ 厚の背面電極を ITO 電極と交差するように形成した。形成された有機 EL 素子の有効面積は $0.04\ \text{cm}^2$ であった。

30

【0196】

(実施例 7)

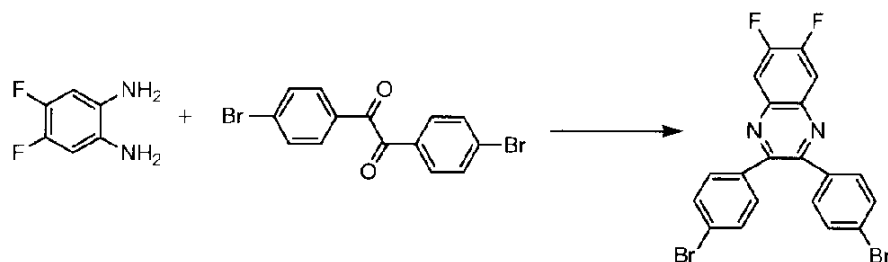
—合成例 7—

温度計、コンデンサ、マグネチックスタラを備えた $500\ \text{mL}$ 三口フラスコに 4,5-ジフルオロ-1,2-フェニレンジアミン ($2.9\ \text{g}$)、4,4'-ジプロモベンジル ($3.7\ \text{g}$) を入れ、これをイソプロピルエーテル $200\ \text{mL}$ に溶解させた。1 時間加熱還流磁気攪拌した。TLC (ヘキサン/酢エチ = 3/1) にて 4,5-ジフルオロ-1,2-フェニレンジアミンのスポットが消失しているのを確認後、室温 (25°C) まで冷却した。反応中に結晶が析出してきたのでこれを吸引ろ過により濾取した。さらにメタノール $50\ \text{mL}$ で洗浄した後、 70°C で真空乾燥を 15 時間行い、キノキサリンジハロゲン体 [中間体 7 A] を ($4.3\ \text{g}$) 得た。

40

【0197】

【化 70】



中間体 7 A

10

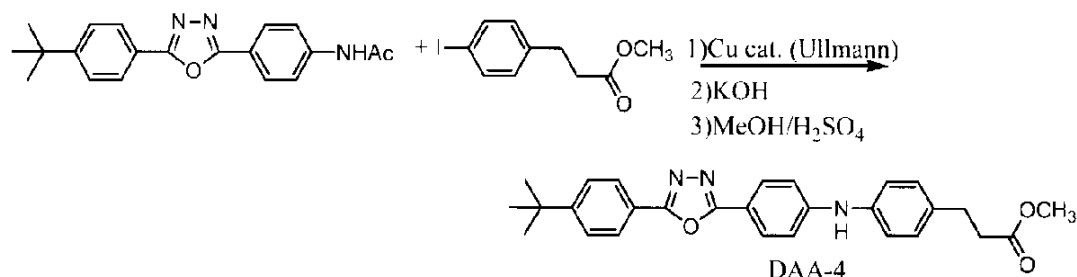
【0198】

温度計、コンデンサ -、マグネチックスタ - ラ - を備えた 100 ml 三口フラスコに 2 - (4 - アセトアミドフェニル) - 5 - p - tert - ブチルフェニル (1, 3, 4) オキサジアゾール (3.4 g)、4 - ヨードフェニルプロピオン酸メチル (3.0 g)、炭酸カリウム (2.0 g)、硫酸銅 5 水和物 (0.20 g) を入れ、o - ジクロロベンゼン (20 ml) に溶解させた。窒素雰囲気下、185 で 13 時間加熱撹拌した。反応終了後、水酸化カリウム (0.76 g) をエチレングリコール (30 ml) に溶解したものを加え、窒素雰囲気下、5 時間加熱還流した。反応終了後、室温 (25) まで冷却し、これを水 (200 ml) に注ぎ、塩酸で中和して、結晶を析出させた。これをろ過し、水洗した後 500 ml のフラスコに移した。これにトルエン (200 ml) を加えて、加熱還流し、水を共沸により除去した後、メタノール (100 ml)、濃硫酸 (0.5 ml) を加えて、窒素気流下で、3 時間加熱還流した。反応終了後、蒸留水にあげ、トルエン抽出後した。トルエン層を蒸留水で洗浄し、次いで、無水硫酸ナトリウムで乾燥後、溶剤を減圧下留去し、酢酸エチル / ヘキサン混合液から再結晶することにより DAA - 4 を 3.2 g 得た。

20

【0199】

【化 71】



30

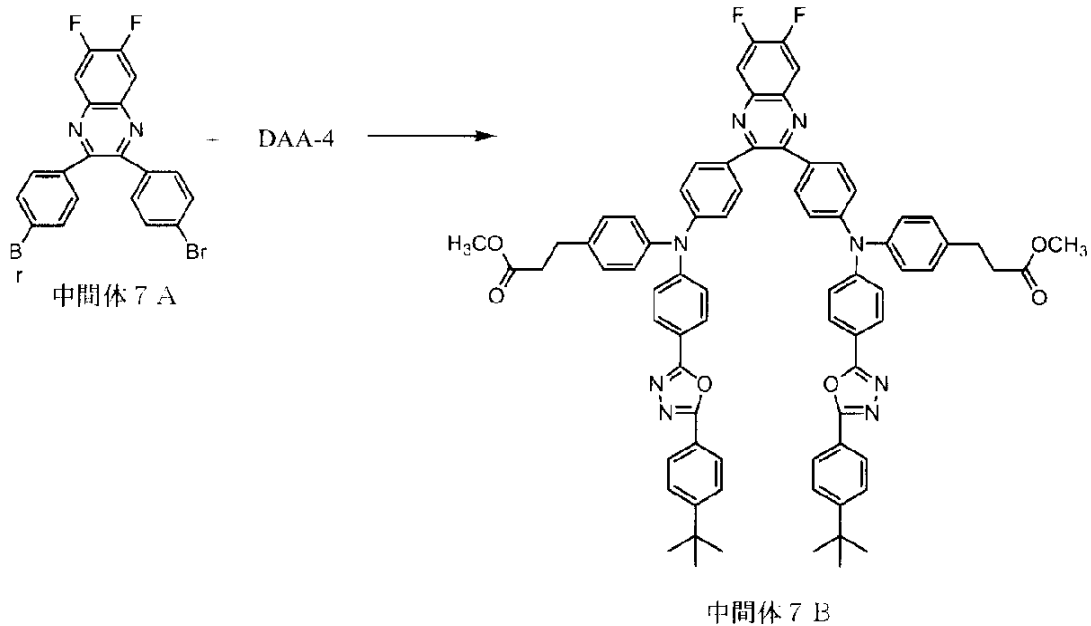
【0200】

次に、温度計、コンデンサ -、マグネチックスタ - ラ - を備えた 200 ml 三口フラスコに DAA - 4 (2.3 g)、[中間体 7 A] (1.0 g)、酢酸パラジウム (II) (22 mg)、炭酸ルビジウム (2.9 g) を入れ、キシレン 50 ml に溶解させた。トリ - タ - シャリ - ブチルホスフィン (170 mg) をすばやく加え、窒素雰囲気下 10 時間加熱還流磁気撹拌した。TLC (ヘキサン / 酢エチ = 3 / 1) にて [中間体 7 A] のスポットが消失しているのを確認後、室温 (25) まで冷却した。セライト吸引ろ過により無機物を除去した後、希塩酸 50 ml、水 50 ml × 3、飽和食塩水 50 ml × 1 の順に中性になるまで洗浄した。無水硫酸ナトリウムで乾燥後、シリカゲルカラムクロマトグラフィ - (ヘキサン / 酢エチ = 3 / 1) により精製を行い、次いで 70 で真空乾燥を 15 時間行い、[中間体 7 B] を (1.5 g) 収率 59% 得た。

40

【0201】

【化 7 2】



10

【 0 2 0 2 】

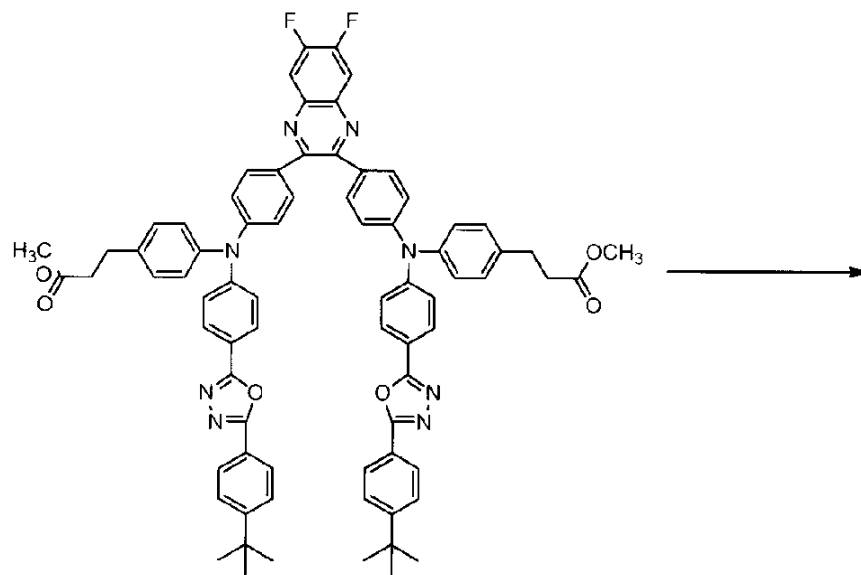
20

この〔中間体 7 B〕 1.0 g を 50 ml の三口ナスフラスコに入れ、窒素雰囲気下エチレングリコール (10 ml) オルトチタン酸テトラブチルモノマー (10 mg) を加え、脱気後 200 で 5 時間反応を行なう。その後 70 Pa の減圧下、180 で 6 時間加熱反応。その後、室温 (25) まで冷却し、モノクロロベンゼン 50 ml に加熱溶解し、不溶物を 0.5 μm の PTFE フィルターにて加圧ろ過し、ろ液を攪拌している酢酸エチル/メタノール 1000 ml 中に滴下し、ポリマーを再沈殿させた。得られたポリマーを吸引ろ過によりろ取、次いで酢酸エチル/メタノール 500 ml で洗浄した後、乾燥させ、0.9 g のポリマー〔例示化合物 (83)〕を得た。この例示化合物 (83) の分子量を GPC ゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) にて測定したところ、 M_w は 9.9×10^4 (スチレン換算)、 M_w / M_n は 2.2 であり、モノマーの分子量から求めた重合度 p は 80 であった。

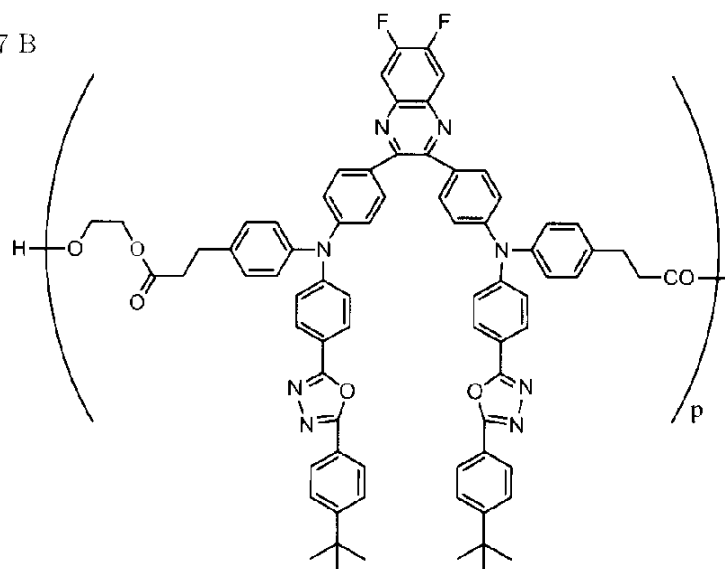
30

【 0 2 0 3 】

【化 7 3】



中間体 7 B



例示化合物 (8 3)

【 0 2 0 4 】

- 素子の作製 -

実施例 1 同様にエッチング、洗浄した ITO ガラス基板に、実施例 1 同様に正孔輸送層兼発光層兼電子輸送層として、電荷輸送性ポリエステル〔例示化合物 (8 3)〕 1 . 5 重量部 % ジクロロエタン溶液を調製し、0 . 1 μ m の PTFE フィルターで濾過した。この溶液を用いて 2 mm 幅の短冊型 ITO 電極をエッチングにより形成したガラス基板上に、インクジェット法により膜厚 0 . 0 5 μ m の薄膜を形成した。続いて 2 mm 幅で LiF を 0 . 0 0 5 μ m、Al を 0 . 1 5 μ m 厚の背面電極を ITO 電極と交差するように形成した。形成された有機 EL 素子の有効面積は 0 . 0 4 c m² であった。

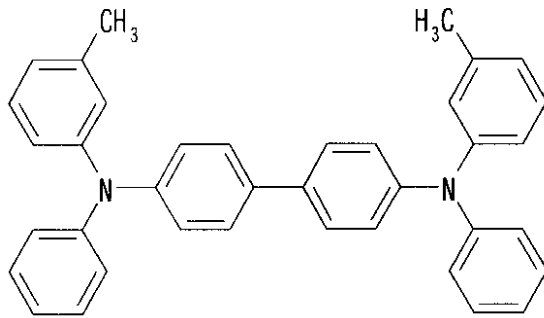
【 0 2 0 5 】

(比較例 1)

上記実施例 1 で用いた例示化合物 (1) の代わりに下記構造式 (V I) で示される化合物を用いた他は実施例 1 と同様に素子を作製した。

【 0 2 0 6 】

【化 7 4】



(VI)

10

【0207】

(比較例2)

電荷輸送性ポリマーとしてポリビニルカルバゾール(PVK)2重量部、発光材料として前記例示化合物(V-1)を0.1重量部、電子輸送材料として前記化合物(IV-9)を1重量部混合し、10重量%ジクロロエタン溶液を調製し、0.1 μ mのPTFEフィルターで濾過した。この溶液を用いて、2mm幅の短冊型ITO電極をエッチングにより形成したガラス基板上に、ディップ法により塗布して膜厚0.15 μ mのホール輸送層を形成した。十分乾燥させた後、Mg-Ag合金を共蒸着により蒸着して、2mm幅、0.15 μ m厚の背面電極をITO電極と交差するように形成した。形成された有機EL素子の有効面積は0.04 cm^2 であった。

20

【0208】

(評価)

以上のように作製した有機EL素子を、乾燥窒素中で接着剤によりガラスで封止し、ITO電極側をプラス、Mg-Ag背面電極をマイナスとして測定を行なった。

発光特性は、直流駆動方式(DC駆動)で初期輝度を400 cd/m^2 としたときの駆動電流密度により比較を行った。また、発光寿命の評価は、室温(25 $^{\circ}\text{C}$)において、比較例1の素子の輝度(初期輝度 L_0 :400 cd/m^2)が輝度 L /初期輝度 $L_0=0.5$ となった時点の駆動時間を1.0とした場合の相対時間、及び、素子の輝度が輝度 L /初期輝度 $L_0=0.5$ となった時点での電圧上昇分(=電圧/初期駆動電圧)により評価した。結果を表1に示す。

30

【0209】

また、以上のように作製した有機電界発光素子を、真空中($1.33 \times 10^{-1} \text{Pa}$)でITO電極側をプラス、背面電極側をマイナスとして5Vの直流電圧を印加し、発光について測定を行い、このときの最高輝度、及び発光色を評価した。結果を表1に示す。

【0210】

40

【表 1】

表 1

	最高輝度 (cd/m ²)	発光色	駆動電流密度 (mA/cm ²)	電圧上昇 (L/L ₀ =0.5)	相対時間 (L/L ₀ =0.5)
実施例 1	1 8 5 0 0	黄	1 4. 8	1. 1 0	1. 4 7
実施例 2	1 6 3 0 0	黄	1 5. 5	1. 0 9	1. 3 3
実施例 3	2 0 5 0 0	黄	1 5. 1	1. 0 7	1. 7 0
実施例 4	1 6 5 0 0	黄	1 6. 3	1. 1 1	1. 6 2
実施例 5	1 9 3 0 0	黄	1 6. 1	1. 0 8	1. 5 5
実施例 6	2 0 4 0 0	黄	1 6. 5	1. 1 2	1. 3 0
実施例 7	2 1 5 0 0	黄	1 7. 3	1. 2 0	1. 4 5
比較例 1	1 1 0 0 0	緑	1 4. 6	1. 3 2	1. 0 0
比較例 2	8 7 5 0	緑	1 5. 7	1. 2 5	1. 0 8

【 0 2 1 1 】

表 3 から、本実施例では、電荷輸送性ポリエステルが電荷注入特性、電荷移動度、薄膜形成能、発光特性に加え、発光時の熱安定性、保存安定性を有し、これを用いた有機電界発光素子は、発光強度が大きく、及び発光効率が高く、素子寿命が長いことがわかる。

【図面の簡単な説明】

【 0 2 1 2 】

【図 1】本実施形態に係る表示装置を示した概略構成図である。

【図 2】他の本実施形態に係る表示装置を示した概略構成図である。

【図 3】他の本実施形態に係る表示装置を示した概略構成図である。

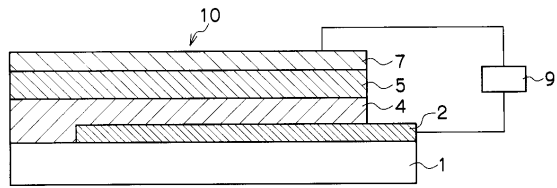
【図 4】他の本実施形態に係る表示装置を示した概略構成図である。

【符号の説明】

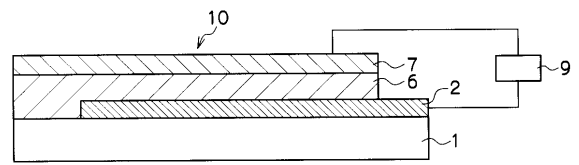
【 0 2 1 3 】

- 1 透明絶縁体基板
- 2 透明電極
- 3 正孔輸送層及び正孔注入層の少なくとも 1 層
- 4 発光層
- 5 電子輸送層及び電子注入層の少なくとも 1 層
- 6 電荷輸送能を有する発光層
- 7 背面電極
- 9 電圧印加装置
- 1 0 有機電界発光素子

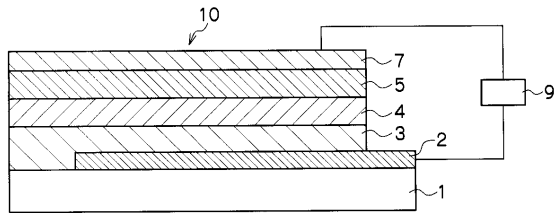
【図 1】



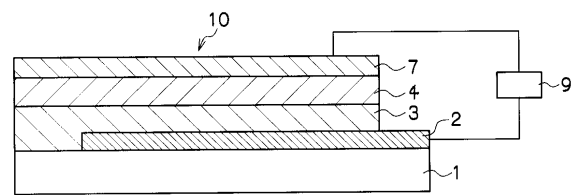
【図 4】



【図 2】



【図 3】



フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I
C 0 9 K 11/06 6 8 0
G 0 9 F 9/30 3 6 5 Z

(72)発明者 廣瀬 英一
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内
(72)発明者 関 三枝子
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内
(72)発明者 阿形 岳
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内
(72)発明者 今井 彰
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内
(72)発明者 佐藤 克洋
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内
(72)発明者 真下 清和
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内
(72)発明者 米山 博人
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内
(72)発明者 石井 徹
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内
(72)発明者 奥田 大輔
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内
(72)発明者 尾崎 忠義
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内
(72)発明者 西野 洋平
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内

審査官 東松 修太郎

(56)参考文献 特開 2 0 0 2 - 1 2 4 3 8 8 (J P , A)
国際公開第 2 0 0 4 / 0 9 4 3 8 9 (W O , A 1)

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)
H 0 1 L 5 1 / 5 0 - 5 1 / 5 6
C 0 8 G 6 3 / 6 8
C 0 9 K 1 1 / 0 6
G 0 9 F 9 / 3 0
H 0 1 L 2 7 / 3 2

专利名称(译)	有机电致发光器件和显示器件		
公开(公告)号	JP4882908B2	公开(公告)日	2012-02-22
申请号	JP2007205763	申请日	2007-08-07
[标]申请(专利权)人(译)	富士施乐株式会社		
申请(专利权)人(译)	富士施乐株式会社		
当前申请(专利权)人(译)	富士施乐株式会社		
[标]发明人	堀場幸治 廣瀬英一 関三枝子 阿形岳 今井彰 佐藤克洋 真下清和 米山博人 石井徹 奥田大輔 尾崎忠義 西野洋平		
发明人	堀場 幸治 廣瀬 英一 関 三枝子 阿形 岳 今井 彰 佐藤 克洋 真下 清和 米山 博人 石井 徹 奥田 大輔 尾崎 忠義 西野 洋平		
IPC分类号	H01L51/50 C08G63/68 C09K11/06 G09F9/30 H01L27/32		
CPC分类号	C09K11/06 C07D413/14 C09K2211/1007 C09K2211/1011 C09K2211/1014 C09K2211/1029 C09K2211/1044 C09K2211/1048 C09K2211/1092 H01L51/0035 H01L51/5012 H01L51/5048 H05B33/14 Y10T428/31786		
FI分类号	H05B33/14.B H05B33/22.B H05B33/22.D C08G63/68 C09K11/06.690 C09K11/06.680 G09F9/30.365.Z G09F9/30.365 H01L27/32		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC02 3K107/CC04 3K107/CC21 3K107/CC45 3K107/DD53 3K107/DD62 3K107/DD71 3K107/DD73 3K107/DD74 3K107/DD76 3K107/DD79 3K107/EE02 3K107/EE03 3K107/EE08 4J029/AA01 4J029/AB07 4J029/AE04 4J029/AE18 4J029/DA02 4J029/DA09 5C094/AA10 5C094/AA31 5C094/AA43 5C094/BA27 5C094/CA19		
代理人(译)	中岛敦 福田浩		
其他公开文献	JP2009043847A		

摘要(译)

要解决的问题：提供具有高亮度，高发光效率和更长工作寿命的发光元件。
ŽSOLUTION：发光元件包括一对电极，其至少具有透明或半透明阳极和阴极;在这对电极之间有一个或多个有机化合物层。至少一层有机化合物层是具有至少一种电荷传输性聚酯的有机电致发光元件，所述聚酯具有包含选自喹啉三苯胺结构中的至少一种作为部分结构的重复单元。Ž

