

(19)日本国特許庁（J P）

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2001－230080

(P2001－230080A)

(43)公開日 平成13年8月24日(2001.8.24)

(51)Int.Cl ⁷	識別記号	F I	テームコード [*] (参考)
H 0 5 B 33/14		H 0 5 B 33/14	B 3 K 0 0 7
C 0 7 C 13/62		C 0 7 C 13/62	4 H 0 0 6
C 0 9 K 11/06	610	C 0 9 K 11/06	610
H 0 5 B 33/22		H 0 5 B 33/22	D
			B
審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全 53数)			

(21)出願番号 特願2000－42550(P2000－42550)

(22)出願日 平成12年2月21日(2000.2.21)

(71)出願人 000005887

三井化学株式会社

東京都千代田区霞が関三丁目2番5号

(72)発明者 石田 努

千葉県袖ヶ浦市長浦580番地32 三井化学株式会社内

(72)発明者 島村 武彦

千葉県袖ヶ浦市長浦580番地32 三井化学株式会社内

(74)代理人 100076613

弁理士 苗村 新一 (外 1 名)

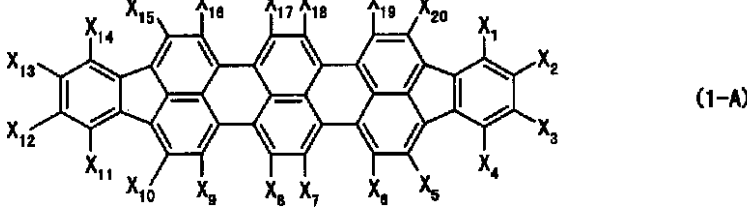
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 炭化水素化合物および有機電界発光素子

(57)【要約】

び該化合物を使用する電界発光素子。

【解決手段】 一般式（1－A）で表される化合物およ



（式中、X₁～X₂₀はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは、置換または

未置換のアリール基を表す。）

【効果】 発光効率に優れ、高輝度に発光する有機電界発光素子を提供する。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 一对の電極間に、ベンゾ[rst]ジフルオレノ[9,1,2-cde:2',1',9'-klm]ペンタフェン誘導体を少なくとも一種含有する層を、少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子。

【請求項2】 ベンゾ[rst]ジフルオレノ[9,1,2-cde:2',1',9'-klm]ペンタフェン誘導体を含有する層が、発光層である請求項1記載の有機電界発光素子。

【請求項3】 ベンゾ[rst]ジフルオレノ[9,1,2-cde:2',1',9'-klm]ペンタフェン誘導体を含有する層が、さらに、発光性有機金属錯体を含有することを特徴とする請求項1または2記載の有機電界発光素子。

【請求項4】 ベンゾ[rst]ジフルオレノ[9,1,2-cde:2',1',9'-klm]ペンタフェン誘導体を含有する層が、さ

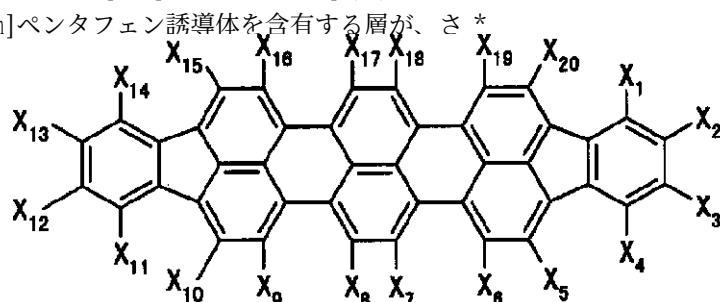
*らに、トリアリールアミン誘導体を含有することを特徴とする請求項1または2記載の有機電界発光素子。

【請求項5】 一对の電極間に、さらに、正孔注入輸送層を有する請求項1～4のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【請求項6】 一对の電極間に、さらに、電子注入輸送層を有する請求項1～5のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【請求項7】 ベンゾ[rst]ジフルオレノ[9,1,2-cde:2',1',9'-klm]ペンタフェン誘導体が、一般式(1-A)(化1)で表される化合物である請求項1～6のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【化1】

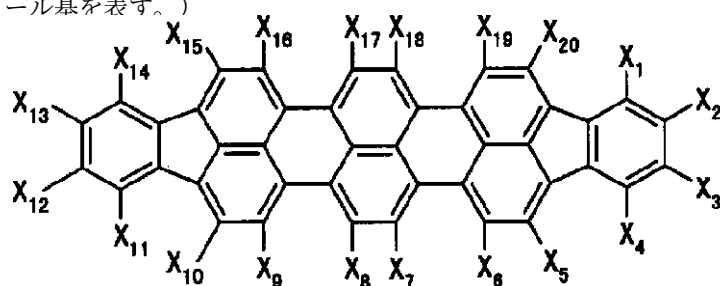


(1-A)

(式中、 $X_1 \sim X_{20}$ はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは、置換または未置換のアリール基を表す。)

【請求項8】 一般式(1-A)(化2)で表される化合物。

【化2】



(1-A)

(式中、 $X_1 \sim X_{20}$ はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは、置換または未置換のアリール基を表す。)

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、有機電界発光素子および該発光素子に好適に使用できる新規な炭化水素化合物に関する。

【0002】

【従来の技術】従来、無機電界発光素子は、例えば、バックライトなどのパネル型光源として使用されてきたが、該発光素子を駆動させるには、交流の高電圧が必要である。最近になり、発光材料に有機材料を用いた有機電界発光素子(有機エレクトロルミネッセンス素子:有機EL素子)が開発された[Appl.Phys.Lett., 51,913(1 50

987)]。有機電界発光素子は、蛍光性有機化合物を含む薄膜を、陽極と陰極間に挟持された構造を有し、該薄膜に電子および正孔(ホール)を注入して、再結合させることにより励起子(エキシトン)を生成させ、この励起子が失活する際に放出される光を利用して発光する素子である。有機電界発光素子は、数V～数十V程度の直流の低電圧で、発光が可能であり、また蛍光性有機化合物の種類を選択することにより種々の色(例えば、赤色、青色、緑色)の発光が可能である。このような特徴を有する有機電界発光素子は、種々の発光素子、表示素子等への応用が期待されている。しかしながら、一般に、発光輝度が低く、実用上十分ではない。

【0003】発光輝度を向上させる方法として、発光層として、例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムをホスト化合物、クマリン誘導体、ピラン誘導体をゲスト化合物(ドーパント)として用いた有機電界発

光素子が提案されている[J. Appl. Phys., 65, 3610 (1989)]. また、発光層として、例えば、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(4-フェニルフェノラート)アルミニウムを宿主化合物、アクリドン誘導体(例えば、N-メチル-2-メトキシアクリドン)をゲスト化合物として用いた有機電界発光素子が提案されている(特開平8-67873号公報)。しかしながら、これらの発光素子も十分な発光輝度を有しているとはいえない。現在では、一層高輝度に発光する有機電界発光素子が望まれている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明の課題は、発光効率に優れ、高輝度に発光する有機電界発光素子を提供することである。さらには、該発光素子に好適に使用できる新規な炭化水素化合物を提供することである。

【0005】

【課題を解決するための手段】本発明者等は、有機電界発光素子に関して鋭意検討した結果、本発明を完成するに到った。すなわち本発明は、

①一対の電極間に、ベンゾ[rst]ジフルオレノ[9,1,2-c de:2',1',9'-klm]ペンタフェン誘導体を少なくとも一種含有する層を、少なくとも一層挟持してなる有機電界発*

*光素子、

②ベンゾ[rst]ジフルオレノ[9,1,2-cde:2',1',9'-klm]ペンタフェン誘導体を含有する層が、発光層である前記

①記載の有機電界発光素子、

③ベンゾ[rst]ジフルオレノ[9,1,2-cde:2',1',9'-klm]ペンタフェン誘導体を含有する層が、さらに、発光性有機金属錯体を含有することを特徴とする前記①または②記載の有機電界発光素子、

④ベンゾ[rst]ジフルオレノ[9,1,2-cde:2',1',9'-klm]

10 ペンタフェン誘導体を含有する層が、さらに、トリアールアミン誘導体を含有することを特徴とする前記①または②記載の有機電界発光素子、

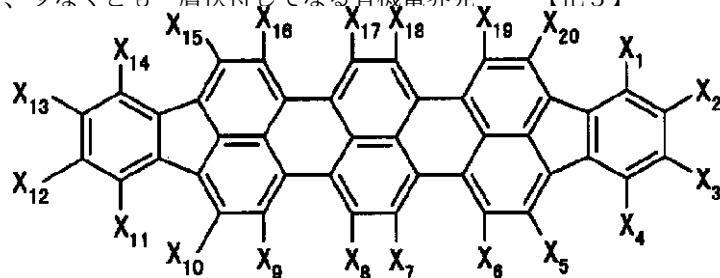
⑤一対の電極間に、さらに、正孔注入輸送層を有する前記①～④のいずれかに記載の有機電界発光素子、

⑥一対の電極間に、さらに、電子注入輸送層を有する前記①～⑤のいずれかに記載の有機電界発光素子、

⑦ベンゾ[rst]ジフルオレノ[9,1,2-cde:2',1',9'-klm]ペンタフェン誘導体が、一般式(1-A)(化3)で表される化合物である前記①～⑥のいずれかに記載の有機電界発光素子、

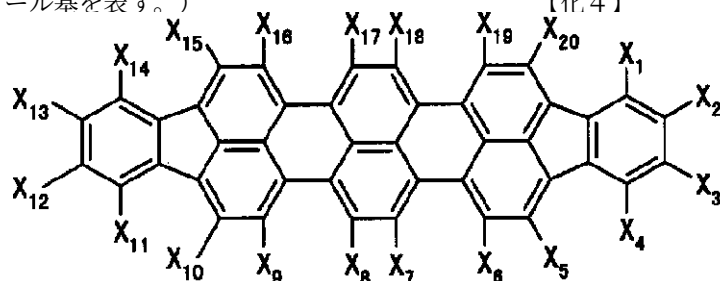
【0006】

【化3】



(1-A)

(式中、 $X_1 \sim X_{20}$ はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは、置換または未置換のアリール基を表す。)



(1-A)

(式中、 $X_1 \sim X_{20}$ はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは、置換または未置換のアリール基を表す。)

【0008】

【発明の実施の形態】以下、本発明に関して、詳細に説明する。本発明の有機電界発光素子は、一対の電極間に、ベンゾ[rst]ジフルオレノ[9,1,2-cde:2',1',9'-klm] 50

さらに、本発明は、⑧一般式(1-A)(化4)で表される化合物、に関するものである。

【0007】

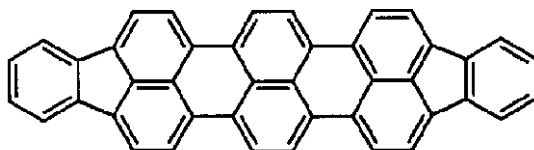
【化4】

m]ペンタフェン誘導体を少なくとも一種含有する層を少なくとも一層挟持してなるものである。本発明に係るベンゾ[rst]ジフルオレノ[9,1,2-cde:2',1',9'-klm]ペンタフェン誘導体(以下、本発明に係る化合物Aと略記する)とは、一般式(1)(化5)で表される骨格を有する化合物を表すものである。一般式(1)で表される骨格は、種々の置換基で置換されていてもよく、本発明に係る化合物Aは、好ましくは、一般式(1-A)(化

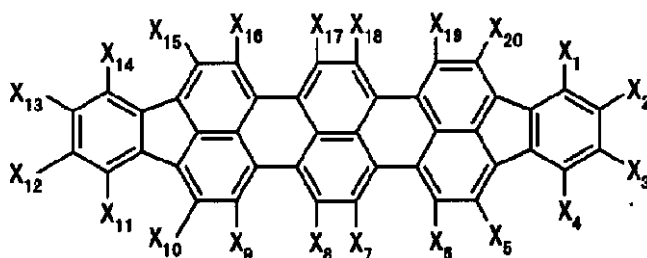
5) で表される化合物である。

【化5】

【0009】



(1)



(1-A)

(式中、 $X_1 \sim X_{20}$ はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは、置換または未置換のアリール基を表す。)

【0010】一般式(1-A)で表される化合物において、 $X_1 \sim X_{20}$ はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは、置換または未置換のアリール基を表す。尚、本発明において、アリール基とは、例えば、フェニル基、ナフチル基などの炭素環式芳香族基、例えば、フリル基、チエニル基、ピリジル基などの複素環式芳香族基を表す。一般式(1-A)で表される化合物において、好ましくは、 $X_1 \sim X_{20}$ は水素原子、ハロゲン原子、炭素数1~20の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数1~20の直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、あるいは炭素数4~20の置換または未置換のアリール基を表す。

【0011】一般式(1-A)における、 $X_1 \sim X_{20}$ の具体例としては、例えば、水素原子、例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子などのハロゲン原子；例えば、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基、*n*-ペンチル基、イソペンチル基、ネオペンチル基、*tert*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、1-メチルペンチル基、4-メチル-2-ペンチル基、3, 3-ジメチルブチル基、2-エチルブチル基、*n*-ヘプチル基、1-メチルヘキシル基、シクロヘキシルメチル基、*n*-オクチル基、*tert*-オクチル基、1-メチルヘプチル基、2-エチルヘキシル基、2-プロピルペンチル基、*n*-ノニル基、2, 2-ジメチルヘプチル基、2, 6-ジメチル-4-ヘプチル基、3, 5, 5-トリメチルヘキシル基、*n*-デシル基、*n*-ウンデシル基、1-メチルデシル基、*n*-ドデシル基、*n*-トリデシル基、1-ヘキシルヘプチル基、*n*-テトラデシル基、*n*-ペンタデシル基、*n*-ヘキサデシル基、*n*-ヘプタデ

シル基、*n*-オクタデシル基、*n*-エイコシル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、4-メチルシクロヘキシル基、4-*tert*-ブチルシクロヘキシル基、シクロヘプチル基、シクロオクチル基などの直鎖、分岐または環状のアルキル基；

【0012】例えば、メトキシ基、エトキシ基、*n*-プロポキシ基、イソプロポキシ基、*n*-ブトキシ基、イソブトキシ基、*sec*-ブトキシ基、*n*-ペンチルオキシ基、ネオペンチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、*n*-ヘキシルオキシ基、3, 3-ジメチルブチルオキシ基、2-エチルブチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、*n*-ヘプチルオキシ基、*n*-オクチルオキシ基、2-エチルヘキシルオキシ基、*n*-ノニルオキシ基、*n*-デシルオキシ基、*n*-ウンデシルオキシ基、*n*-ドデシルオキシ基、*n*-トリデシルオキシ基、*n*-テトラデシルオキシ基、*n*-ペンタデシルオキシ基、*n*-ヘキサデシルオキシ基、*n*-ヘプタデシルオキシ基、*n*-オクタデシルオキシ基、*n*-エイコシルオキシ基などの直鎖、分岐または環状のアルコキシ基；

【0013】例えば、フェニル基、2-メチルフェニル基、3-メチルフェニル基、4-メチルフェニル基、4-エチルフェニル基、4-*n*-プロピルフェニル基、4-イソプロピルフェニル基、4-*n*-ブチルフェニル基、4-イソブチルフェニル基、4-*tert*-ブチルフェニル基、4-イソペンチルフェニル基、4-*tert*-ペンチルフェニル基、4-*n*-ヘキシルフェニル基、4-シクロヘキシルフェニル基、4-*n*-ヘプチルフェニル基、4-*n*-オクチルフェニル基、4-*n*-ノニルフェニル基、4-*n*-デシルフェニル基、4-*n*-ウンデシルフェニル基、4-*n*-ドデシルフェニル基、4-*n*-テトラデシルフェニル基、2, 3-ジメチルフェニル基、2, 4-ジメチルフェニル基、2, 5-ジメチルフェニル基、2, 6-ジメチルフェニル基、3, 4-ジメチルフェニル基、3, 5-ジメチルフェニル基、3, 4, 5-トリメチルフェニル基、2, 3, 5, 6-テ

ラメチルフェニル基、5-インダニル基、1, 2, 3, 4-テトラヒドロ-5-ナフチル基、1, 2, 3, 4-テトラヒドロ-6-ナフチル基、2-メトキシフェニル基、3-メトキシフェニル基、4-メトキシフェニル基、3-エトキシフェニル基、4-エトキシフェニル基、4-n-プロポキシフェニル基、4-イソプロポキシフェニル基、4-n-ブトキシフェニル基、4-イソブトキシフェニル基、4-n-ペンチルオキシフェニル基、4-n-ヘキシルオキシフェニル基、4-シクロヘキシルオキシフェニル基、4-n-ヘプチルオキシフェニル基、4-n-オクチルオキシフェニル基、4-n-ノニルオキシフェニル基、4-n-デシルオキシフェニル基、4-n-ウンデシルオキシフェニル基、4-n-ドデシルオキシフェニル基、4-n-テトラデシルオキシフェニル基、

【0014】2, 3-ジメトキシフェニル基、2, 4-ジメトキシフェニル基、2, 5-ジメトキシフェニル基、3, 4-ジメトキシフェニル基、3, 5-ジメトキシフェニル基、3, 5-ジエトキシフェニル基、2-メトキシ-4-メチルフェニル基、2-メトキシ-5-メチルフェニル基、2-メチル-4-メトキシフェニル基、3-メチル-4-メトキシフェニル基、3-メチル-5-メトキシフェニル基、2-フルオロフェニル基、3-フルオロフェニル基、4-フルオロフェニル基、2-クロロフェニル基、3-クロロフェニル基、4-クロロフェニル基、4-ブロモフェニル基、4-トリフルオロメチルフェニル基、2, 4-ジフルオロフェニル基、2, 4-ジクロロフェニル基、3, 4-ジクロロフェニル基、3, 5-ジクロロフェニル基、2-メチル-4-クロロフェニル基、2-クロロ-4-メチルフェニル基、3-クロロ-4-メチルフェニル基、2-クロロ-4-メトキシフェニル基、3-メトキシ-4-フルオロフェニル基、3-メトキシ-4-クロロフェニル基、3-

フルオロ-4-メトキシフェニル基、4-フェニルフェニル基、3-フェニルフェニル基、4-(4'-メチルフェニル)フェニル基、4-(4'-メトキシフェニル)フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-エトキシ-1-ナフチル基、6-n-ブチル-2-ナフチル基、6-メトキシ-2-ナフチル基、7-エトキシ-2-ナフチル基、2-フリル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-ピリジル基、3-ピリジル基、4-ピリジル基などの置換または未置換のアリール基を挙げることができる。

【0015】より好ましくは、水素原子、フッ素原子、塩素原子、炭素数1~10のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、あるいは、炭素数6~12のアリール基であり、さらに好ましくは、水素原子、フッ素原子、塩素原子、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~6のアルコキシ基、あるいは、炭素数6~10のアリール基である。

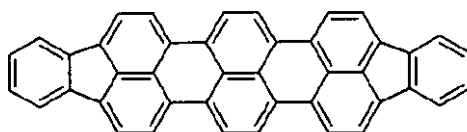
【0016】本発明の有機電界発光素子においては、ベンゾ[rst]ジフルオレノ[9,1,2-cde:2',1',9'-klm]ペンタフェン誘導体を少なくとも一種使用することが特徴であり、例えば、ベンゾ[rst]ジフルオレノ[9,1,2-cde:2',1',9'-klm]ペンタフェン誘導体を発光成分として発光層に用いると、従来にはない、高輝度で耐久性に優れた赤色に発光する有機電界発光素子を提供することが可能となる。また、他の発光成分と組み合わせて発光層を形成すると、高輝度で耐久性に優れた白色に発光する有機電界発光素子も提供することが可能となる。本発明に係る化合物Aの具体例としては、例えば、以下の化合物(化6~化35)を挙げることができるが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0017】

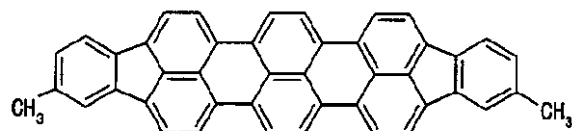
【化6】

例示化合物番号

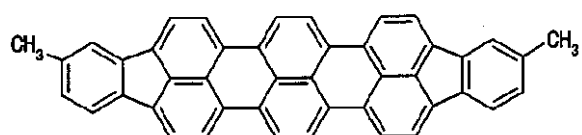
A-1



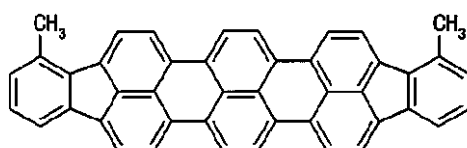
A-2



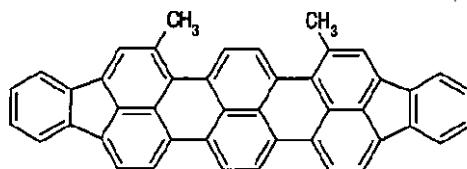
A-3



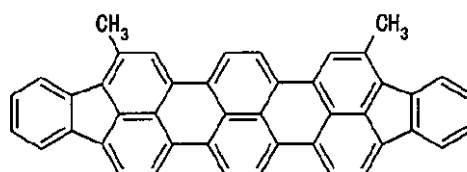
A-4



A-5

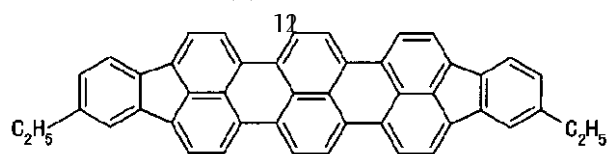


A-6

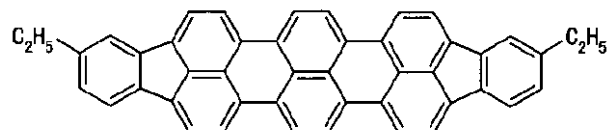


(7)

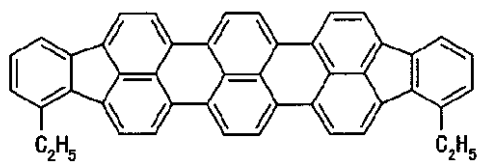
A-7



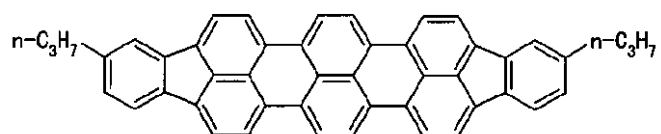
A-8



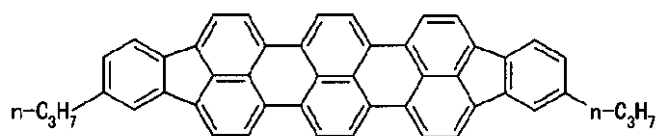
A-9



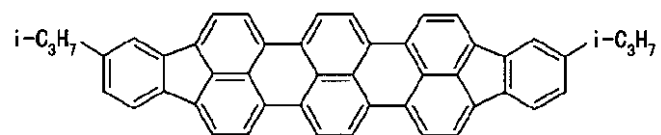
A-10



A-11



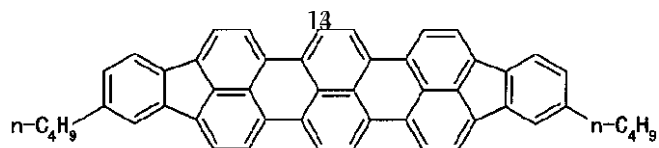
A-12



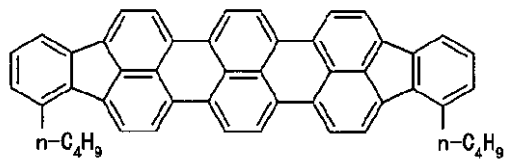
【0019】

【化8】

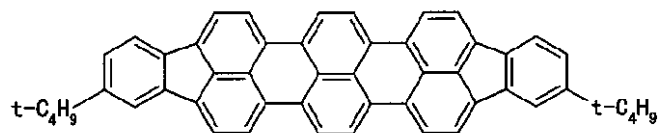
A-13



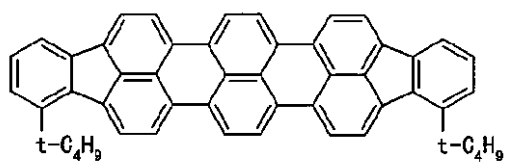
A-14



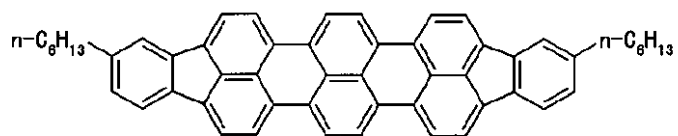
A-15



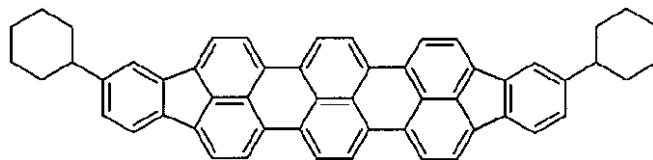
A-16



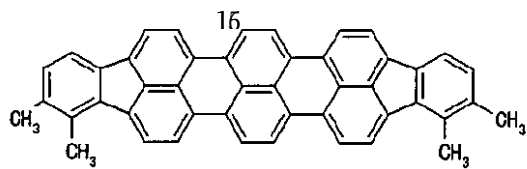
A-17



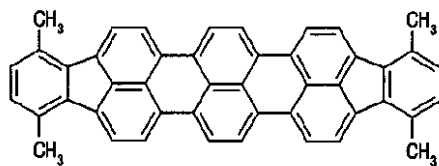
A-18



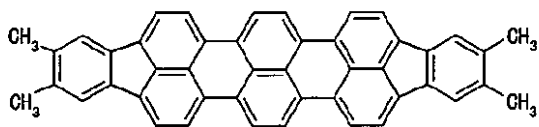
A-19



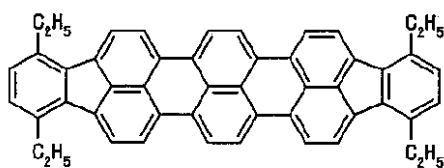
A-20



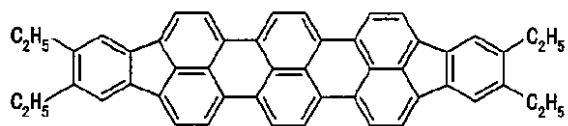
A-21



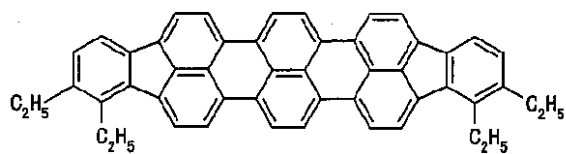
A-22



A-23



A-24

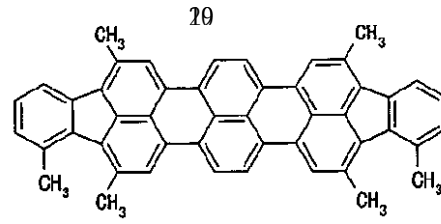


The chemical structure shows a central chain of five fused benzene rings. This central chain is flanked by two indane-like units, each consisting of a benzene ring fused to a five-membered ring. Each of these four outer benzene rings has two $t\text{-C}_4\text{H}_9$ groups attached at the 1 and 3 positions. The entire molecule is symmetrical.

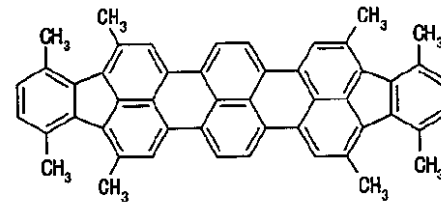
The chemical structure shows a repeating unit of a polyarylether. It consists of a central naphthalene ring system (two fused benzene rings) linked by ether bonds to four phenyl rings. Each phenyl ring is substituted with an alkoxy group, represented as $n\text{-C}_6\text{H}_{13}$. The structure is symmetrical and represents a segment of a polymer chain.

The chemical structure shows a linear chain of four phenylene rings connected by four biphenyl-like linkages. Each of the four outer phenylene rings has two $n\text{-C}_8\text{H}_{17}$ substituents, one at the top and one at the bottom position, for a total of eight substituents.

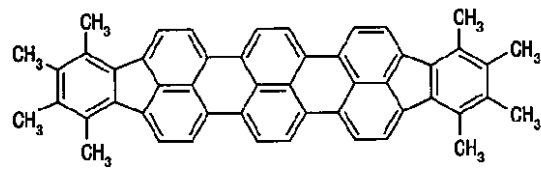
A-31



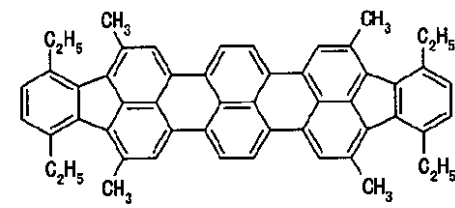
A-32



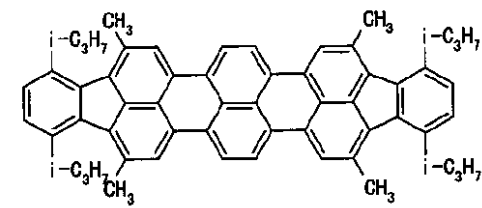
A-33



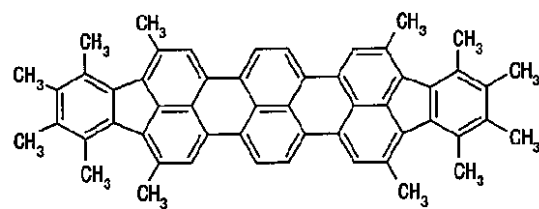
A-34



A-35



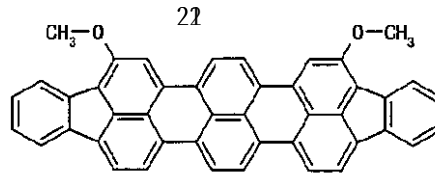
A-36



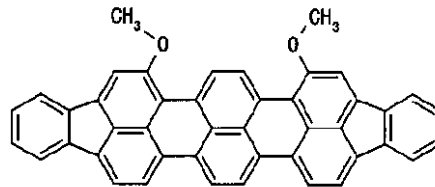
(12)

特開2001-230080

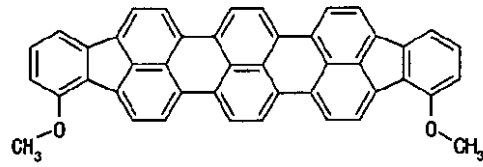
B-1



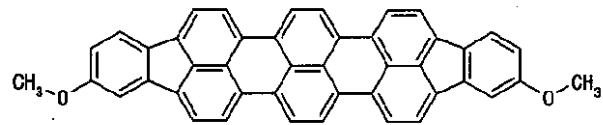
B-2



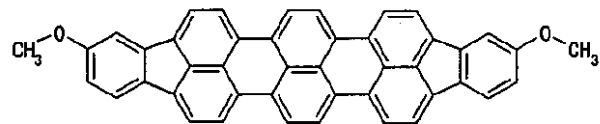
B-3



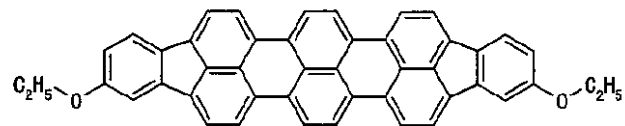
B-4



B-5



B-6



【0024】

【化13】

23

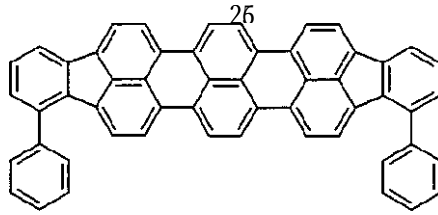
$n\text{-C}_4\text{H}_9\text{-O-}$

c1ccc2c(c1)c3ccc4c5ccc6c7ccc8c9ccc()cc9c8c7c6c5c4c3c2COC1=CC=C2C=C1C3=C2C4=CC=CC=C4C5=CC=CC=C3C6=CC=CC=C5C7=CC=CC=C6C8=CC=CC=C7C9=CC=C(C(=C9)Cl)OCCCOC1=CC=C2C3=C1C(=C4C3=CC=CC=C4C5=CC=CC=C5C6=CC=CC=C6C7=CC=CC=C7C8=CC=CC=C8C9=CC=C(C=C9)C(=C10C9=CC=CC=C10C=C11C(=C12C11=CC=CC=C12C=C13C(=C14C13=CC=CC=C14C=C15C(=C16C15=CC=CC=C16C=C17C(=C18C17=CC=CC=C18C=C19C(=C20C19=CC=CC=C20C=C21C(=C22C21=CC=CC=C22C=C23C(=C24C23=CC=CC=C24C=C25C(=C26C25=CC=CC=C26C=C27C(=C28C27=CC=CC=C28C=C29C(=C30C29=CC=CC=C30C=C31C(=C32C31=CC=CC=C32C=C33C(=C34C33=CC=CC=C34C=C35C(=C36C35=CC=CC=C36C=C37C(=C38C37=CC=CC=C38C=C39C(=C40C39=CC=CC=C40C=C41C(=C42C41=CC=CC=C42C=C43C(=C44C43=CC=CC=C44C=C45C(=C46C45=CC=CC=C46C=C47C(=C48C47=CC=CC=C48C=C49C(=C50C49=CC=CC=C50C=C51C(=C52C51=CC=CC=C52C=C53C(=C54C53=CC=CC=C54C=C55C(=C56C55=CC=CC=C56C=C57C(=C58C57=CC=CC=C58C=C59C(=C60C59=CC=CC=C60C=C61C(=C62C61=CC=CC=C62C=C63C(=C64C63=CC=CC=C64C=C65C(=C66C65=CC=CC=C66C=C67C(=C68C67=CC=CC=C68C=C69C(=C70C69=CC=CC=C70C=C71C(=C72C71=CC=CC=C72C=C73C(=C74C73=CC=CC=C74C=C75C(=C76C75=CC=CC=C76C=C77C(=C78C77=CC=CC=C78C=C79C(=C80C79=CC=CC=C80C=C81C(=C82C81=CC=CC=C82C=C83C(=C84C83=CC=CC=C84C=C85C(=C86C85=CC=CC=C86C=C87C(=C88C87=CC=CC=C88C=C89C(=C90C89=CC=CC=C90C=C91C(=C92C91=CC=CC=C92C=C93C(=C94C93=CC=CC=C94C=C95C(=C96C95=CC=CC=C96C=C97C(=C98C97=CC=CC=C98C=C99C(=C100C99=CC=CC=C100C=C101C(=C102C101=CC=CC=C102C=C103C(=C104C103=CC=CC=C104C=C105C(=C106C105=CC=CC=C106C=C107C(=C108C107=CC=CC=C108C=C109C(=C110C109=CC=CC=C110C=C111C(=C112C111=CC=CC=C112C=C113C(=C114C113=CC=CC=C114C=C115C(=C116C115=CC=CC=C116C=C117C(=C118C117=CC=CC=C118C=C119C(=C120C119=CC=CC=C120C=C121C(=C122C121=CC=CC=C122C=C123C(=C124C123=CC=CC=C124C=C125C(=C126C125=CC=CC=C126C=C127C(=C128C127=CC=CC=C128C=C129C(=C130C129=CC=CC=C130C=C131C(=C132C131=CC=CC=C132C=C133C(=C134C133=CC=CC=C134C=C135C(=C136C135=CC=CC=C136C=C137C(=C138C137=CC=CC=C138C=C139C(=C140C139=CC=CC=C140C=C141C(=C142C141=CC=CC=C142C=C143C(=C144C143=CC=CC=C144C=C145C(=C146C145=CC=CC=C146C=C147C(=C148C147=CC=CC=C148C=C149C(=C150C149=CC=CC=C150C=C151C(=C152C151=CC=CC=C152C=C153C(=C154C153=CC=CC=C154C=C155C(=C156C155=CC=CC=C156C=C157C(=C158C157=CC=CC=C158C=C159C(=C160C159=CC=CC=C160C=C161C(=C162C161=CC=CC=C162C=C163C(=C164C163=CC=CC=C164C=C165C(=C166C165=CC=CC=C166C=C167C(=C168C167=CC=CC=C168C=C169C(=C170C169=CC=CC=C170C=C171C(=C172C171=CC=CC=C172C=C173C(=C174C173=CC=CC=C174C=C175C(=C176C175=CC=CC=C176C=C177C(=C178C177=CC=CC=C178C=C179C(=C180C179=CC=CC=C180C=C181C(=C182C181=CC=CC=C182C=C183C(=C184C183=CC=CC=C184C=C185C(=C186C185=CC=CC=C186C=C187C(=C188C187=CC=CC=C188C=C189C(=C190C189=CC=CC=C190C=C191C(=C192C191=CC=CC=C192C=C193C(=C194C193=CC=CC=C194C=C195C(=C196C195=CC=CC=C196C=C197C(=C198C197=CC=CC=C198C=C199C(=C200C199=CC=CC=C200C=C201C(=C202C201=CC=CC=C202C=C203C(=C204C203=CC=CC=C204C=C205C(=C206C205=CC=CC=C206C=C207C(=C208C207=CC=CC=C208C=C209C(=C210C209=CC=CC=C210C=C211C(=C212C211=CC=CC=C212C=C213C(=C214C213=CC=CC=C214C=C215C(=C216C215=CC=CC=C216C=C217C(=C218C217=CC=CC=C218C=C219C(=C220C219=CC=CC=C220C=C221C(=C222C221=CC=CC=C222C=C223C(=C224C223=CC=CC=C224C=C225C(=C226C225=CC=CC=C226C=C227C(=C228C227=CC=CC=C228C=C229C(=C230C229=CC=CC=C230C=C231C(=C232C231=CC=CC=C232C=C233C(=C234C233=CC=CC=C234C=C235C(=C236C235=CC=CC=C236C=C237C(=C238C237=CC=CC=C238C=C239C(=C240C239=CC=CC=C240C=C241C(=C242C241=CC=CC=C242C=C243C(=C244C243=CC=CC=C244C=C245C(=C246C245=CC=CC=C246C=C247C(=C248C247=CC=CC=C248C=C249C(=C250C249=CC=CC=C250C=C251C(=C252C251=CC=CC=C252C=C253C(=C254C253=CC=CC=C254C=C255C(=C256C255=CC=CC=C256C=C257C(=C258C257=CC=CC=C258C=C259C(=C260C259=CC=CC=C260C=C261C(=C262C261=CC=CC=C262C=C263C(=C264C263=CC=CC=C264C=C265C(=C266C265=CC=CC=C266C=C267C(=C268C267=CC=CC=C268C=C269C(=C270C269=CC=CC=C270C=C271C(=C272C271=CC=CC=C272C=C273C(=C274C273=CC=CC=C274C=C275C(=C276C275=CC=CC=C276C=C277C(=C278C277=CC=CC=C278C=C279C(=C280C279=CC=CC=C280C=C281C(=C282C281=CC=CC=C282C=C283C(=C284C283=CC=CC=C284C=C285C(=C286C285=CC=CC=C286C=C287C(=C288C287=CC=CC=C288C=C289C(=C290C289=CC=CC=C290C=C291C(=C292C291=CC=CC=C292C=C293C(=C294C293=CC=CC=C294C=C295C(=C296C295=CC=CC=C296C=C297C(=C298C297=CC=CC=C298C=C299C(=C300C299=CC=CC=C300C=C301C(=C302C301=CC=CC=C302C=C303C(=C304C303=CC=CC=C304C=C305C(=C306C305=CC=CC=C306C=C307C(=C308C307=CC=CC=C308C=C309C(=C310C309=CC=CC=C310C=C311C(=C312C311=CC=CC=C312C=C313C(=C314C313=CC=CC=C314C=C315C(=C316C315=CC=CC=C316C=C317C(=C318C317=CC=CC=C318C=C319C(=C320C319=CC=CC=C320C=C321C(=C322C321=CC=CC=C322C=C323C(=C324C323=CC=CC=C324C=C325C(=C326C325=CC=CC=C326C=C327C(=C328C327=CC=CC=C328C=C329C(=C330C329=CC=CC=C330C=C331C(=C332C331=CC=CC=C332C=C333C(=C334C333=CC=CC=C334C=C335C(=C336C335=CC=CC=C336C=C337C(=C338C337=CC=CC=C338C=C339C(=C340C339=CC=CC=C340C=C341C(=C342C341=CC=CC=C342C=C343C(=C344C343=CC=CC=C344C=C345C(=C346C345=CC=CC=C346C=C347C(=C348C347=CC=CC=C348C=C349C(=C350C349=CC=CC=C350C=C351C(=C352C351=CC=CC=C352C=C353C(=C354C353=CC=CC=C354C=C355C(=C356C355=CC=CC=C356C=C357C(=C358C357=CC=CC=C358C=C359C(=C360C35CCCC1=CC=C2C3=CC=CC=C3C4=CC=CC=C4C5=CC=CC=C5C6=CC=CC=C6C7=CC=CC=C7C8=CC=CC=C8C9=CC=CC=C9C=C10C11=CC=CC=C11C12=CC=CC=C12C=C13C14=CC=CC=C14C15=CC=CC=C15C=C16C17=CC=CC=C17C=C18C19=CC=CC=C19C=C20C21=CC=CC=C21C=C22C23=CC=CC=C23C=C24C25=CC=CC=C25C=C26C27=CC=CC=C27C=C28C29=CC=CC=C29C=C30C31=CC=CC=C31C=C32C33=CC=CC=C33C=C34C35=CC=CC=C35C=C36C37=CC=CC=C37C=C38C39=CC=CC=C39C=C40C41=CC=CC=C41C=C42C43=CC=CC=C43C=C44C45=CC=CC=C45C=C46C47=CC=CC=C47C=C48C49=CC=CC=C49C=C50C51=CC=CC=C51C=C52C53=CC=CC=C53C=C54C55=CC=CC=C55C=C56C57=CC=CC=C57C=C58C59=CC=CC=C59C=C60C61=CC=CC=C61C=C62C63=CC=CC=C63C=C64C65=CC=CC=C65C=C66C67=CC=CC=C67C=C68C69=CC=CC=C69C=C70C71=CC=CC=C71C=C72C73=CC=CC=C73C=C74C75=CC=CC=C75C=C76C77=CC=CC=C77C=C78C79=CC=CC=C79C=C80C81=CC=CC=C81C=C82C83=CC=CC=C83C=C84C85=CC=CC=C85C=C86C87=CC=CC=C87C=C88C89=CC=CC=C89C=C90C91=CC=CC=C91C=C92C93=CC=CC=C93C=C94C95=CC=CC=C95C=C96C97=CC=CC=C97C=C98C99=CC=CC=C99C=C100C101=CC=CC=C101C=C102C103=CC=CC=C103C=C104C105=CC=CC=C105C=C106C107=CC=CC=C107C=C108C109=CC=CC=C109C=C110C111=CC=CC=C111C=C112C113=CC=CC=C113C=C114C115=CC=CC=C115C=C116C117=CC=CC=C117C=C118C119=CC=CC=C119C=C120C121=CC=CC=C121C=C122C123=CC=CC=C123C=C124C125=CC=CC=C125C=C126C127=CC=CC=C127C=C128C129=CC=CC=C129C=C130C131=CC=CC=C131C=C132C133=CC=CC=C133C=C134C135=CC=CC=C135C=C136C137=CC=CC=C137C=C138C139=CC=CC=C139C=C140C141=CC=CC=C141C=C142C143=CC=CC=C143C=C144C145=CC=CC=C145C=C146C147=CC=CC=C147C=C148C149=CC=CC=C149C=C150C151=CC=CC=C151C=C152C153=CC=CC=C153C=C154C155=CC=CC=C155C=C156C157=CC=CC=C157C=C158C159=CC=CC=C159C=C160C161=CC=CC=C161C=C162C163=CC=CC=C163C=C164C165=CC=CC=C165C=C166C167=CC=CC=C167C=C168C169=CC=CC=C169C=C170C171=CC=CC=C171C=C172C173=CC=CC=C173C=C174C175=CC=CC=C175C=C176C177=CC=CC=C177C=C178C179=CC=CC=C179C=C180C181=CC=CC=C181C=C182C183=CC=CC=C183C=C184C185=CC=CC=C185C=C186C187=CC=CC=C187C=C188C189=CC=CC=C189C=C190C191=CC=CC=C191C=C192C193=CC=CC=C193C=C194C195=CC=CC=C195C=C196C197=CC=CC=C197C=C198C199=CC=CC=C199C=C200C201=CC=CC=C201C=C202C203=CC=CC=C203C=C204C205=CC=CC=C205C=C206C207=CC=CC=C207C=C208C209=CC=CC=C209C=C210C211=CC=CC=C211C=C212C213=CC=CC=C213C=C214C215=CC=CC=C215C=C216C217=CC=CC=C217C=C218C219=CC=CC=C219C=C220C221=CC=CC=C221C=C222C223=CC=CC=C223C=C224C225=CC=CC=C225C=C226C227=CC=CC=C227C=C228C229=CC=CC=C229C=C230C231=CC=CC=C231C=C232C233=CC=CC=C233C=C234C235=CC=CC=C235C=C236C237=CC=CC=C237C=C238C239=CC=CC=C239C=C240C241=CC=CC=C241C=C242C243=CC=CC=C243C=C244C245=CC=CC=C245C=C246C247=CC=CC=C247C=C248C249=CC=CC=C249C=C250C251=CC=CC=C251C=C252C253=CC=CC=C253C=C254C255=CC=CC=C255C=C256C257=CC=CC=C257C=C258C259=CC=CC=C259C=C260C261=CC=CC=C261C=C262C263=CC=CC=C263C=C264C265=CC=CC=C265C=C266C267=CC=CC=C267C=C268C269=CC=CC=C269C=C270C271=CC=CC=C271C=C272C273=CC=CC=C273C=C274C275=CC=CC=C275C=C276C277=CC=CC=C277C=C278C279=CC=CC=C279C=C280C281=CC=CC=C281C=C282C283=CC=CC=C283C=C284C285=CC=CC=C285C=C286C287=CC=CC=C287C=C288C289=CC=CC=C289C=C290C291=CC=CC=C291C=C292C293=CC=CC=C293C=C294C295=CC=CC=C295C=C296C297=CC=CC=C297C=C298C299=CC=CC=C299C=C300C301=CC=CC=C301C=C302C303=CC=CC=C303C=C304C305=CC=CC=C305C=C306C307=CC=CC=C307C=C308C309=CC=CC=C309C=C310C311=CC=CC=C311C=C312C313=CC=CC=C313C=C314C315=CC=CC=C315C=C316C317=CC=CC=C317C=C318C319=CC=CC=C319C=C320C321=CC=CC=C321C=C322C323=CC=CC=C323C=C324C325=CC=CC=C325C=C326C327=CC=CC=C327C=C328C329=CC=CC=C329C=C330C331=CC=CC=C331C=C332C333=CC=CC=C333C=C334C335=CC=CC=C335C=C336C337=CC=CC=C337C=C338C339=CC=CC=C339C=C340C341=CC=CC=C341C=C342C343=CC=CC=C343C=C344C345=CC=CC=C345C=C346C347=CC=CC=C347C=C348C349=CC=CC=C349C=C350C351=CC=CC=C351C=C352C353=CC=CC=C353C=C354C355=CC=CC=C355C=C356C357=CC=CC=C357C=C358C359=CC=CC=C359C=C360C361=CC=CC=C361C=C362C363=CC=CC=C363C=C364C365=CC=CC=C365C=C366C367=CC=CC=C367C=C368C369=CC=CC=C369C=C370C371=CC=CC=C371C=C372C373=CC=CC=C373C=C374C375=CC=CC=C375C=C376C377=CC=CC=C377C=C378C379=CC=CC=C379C=C380C381=CC=CC=C381C=C382C383=CC=CC=C383C=C384C385=CC=CC=C385C=C386C387=CC=CC=C387C=C388C389=CC=CC=C389C=C390C391=CC=CC=C391C=C392C393=CC=CC=C393C=C394C395=CC=CC=C395C=C396C397=CC=CC=C397C=C398C399=CC=CC=C399C=C400C401=CC=CC=C401C=C402C403=CC=CC=C403C=C404C405=CC=CC=C405C=C406C407=CC=CC=C407C=C408C409=CC=CC=C409C=C410C411=CC=CC=C411C=C412C413=CC=CC=C413C=C414C415=CC=CC=C415C=C416C417=CC=CC=C417C=C418C419=CC=CC=C419C=C420C421=CC=CC=C421C=C422C423=CC=CC=C423C=C424C425=CC=CC=C425C=C426C427=CC=CC=C427C=C428C429=CC=CC=C429C=C430C431=CC=CC=C431C=C432C433=CC=CC=C433C=C434C435=CC=CC=C435C=C436C437=CC=CC=C437C=C438C439=CC=CC=C439C=C440C441=CC=CC=C441C=C442C443=CC=CC=C443C=C444C445=CC=CC=C445C=C446C447=CC=CC=C447C=C448C449=CC=CC=C449C=C450C451=CC=CC=C451C=C452C453=CC=CC=C453C=C454C455=CC=CC=C455C=C456C457=CC=CC=C457C=C458C459=CC=CC=C459C=C460C461=CC=CC=C461C=C462C463=CC=CC=C463C=C464C465=CC=CC=C465C=C466C467=CC=CC=C467C=C468C469=CC=CC=C469C=C470C471=CC=CC=C471C=C472C473=CC=CC=C473C=C474C475=CC=CC=C475C=C476C477=CC=CC=C477C=C478C479=CC=CC=C479C=C480C481=CC=CC=C481C=C482C483=CC=CC=C483C=C484C485=CC=CC=C485C=C486C487=CC=CC=C487C=C488C489=CC=CC=C489C=C490C491=CC=CC=C491C=C492C493=CC=CC=C493C=C494C495=CC=CC=C495C=C496C497=CC=CC=C497C=C498C499=CC=CCCCOc1ccc2c3c4c5ccc6c7ccc8c9ccc10c2c11ccc12ccc13ccc14ccc15ccc16ccc17ccc18ccc19ccc20ccc21ccc22ccc23ccc24ccc25ccc26ccc27ccc28ccc29ccc30ccc31ccc32ccc33ccc34ccc35ccc36ccc37ccc38ccc39ccc40ccc41ccc42ccc43ccc44ccc45ccc46ccc47ccc48ccc49ccc50ccc51ccc52ccc53ccc54ccc55ccc56ccc57ccc58ccc59ccc60ccc61ccc62ccc63ccc64ccc65ccc66ccc67ccc68ccc69ccc70ccc71ccc72ccc73ccc74ccc75ccc76ccc77ccc78ccc79ccc80ccc81ccc82ccc83ccc84ccc85ccc86ccc87ccc88ccc89ccc90ccc91ccc92ccc93ccc94ccc95ccc96ccc97ccc98ccc99ccc100ccc101ccc102ccc103ccc104ccc105ccc106ccc107ccc108ccc109ccc110ccc111ccc112ccc113ccc114ccc115ccc116ccc117ccc118ccc119ccc120ccc121ccc122ccc123ccc124ccc125ccc126ccc127ccc128ccc129ccc130ccc131ccc132ccc133ccc134ccc135ccc136ccc137ccc138ccc139ccc140ccc141ccc142ccc143ccc144ccc145ccc146ccc147ccc148ccc149ccc150ccc151ccc152ccc153ccc154ccc155ccc156ccc157ccc158ccc159ccc160ccc161ccc162ccc163ccc164ccc165ccc166ccc167ccc168ccc169ccc170ccc171ccc172ccc173ccc174ccc175ccc176ccc177ccc178ccc179ccc180ccc181ccc182ccc183ccc184ccc185ccc186ccc187ccc188ccc189ccc190ccc191ccc192ccc193ccc194ccc195ccc196ccc197ccc198ccc199ccc200ccc201ccc202ccc203ccc204ccc205ccc206ccc207ccc208ccc209ccc210ccc211ccc212ccc213ccc214ccc215ccc216ccc217ccc218ccc219ccc220ccc221ccc222ccc223ccc224ccc225ccc226ccc227ccc228ccc229ccc230ccc231ccc232ccc233ccc234ccc235ccc236ccc237ccc238ccc239ccc240ccc241ccc242ccc243ccc244ccc245ccc246ccc247ccc248ccc249ccc250ccc251ccc252ccc253ccc254ccc255ccc256ccc257ccc258ccc259ccc260ccc261ccc262ccc263ccc264ccc265ccc266ccc267ccc268ccc269ccc270ccc271ccc272ccc273ccc274ccc275ccc276ccc277ccc278ccc279ccc280ccc281ccc282ccc283ccc284ccc285ccc286ccc287ccc288ccc289ccc290ccc291ccc292ccc293ccc294ccc295ccc296ccc297ccc298ccc299ccc300ccc301ccc302ccc303ccc304ccc305ccc306ccc307ccc308ccc309ccc310ccc311ccc312ccc313ccc314ccc315ccc316ccc317ccc318ccc319ccc320ccc321ccc322ccc323ccc324ccc325ccc326ccc327ccc328ccc329ccc330ccc331ccc332ccc333ccc334ccc335ccc336ccc337ccc338ccc339ccc340ccc341ccc342ccc343ccc344ccc345ccc346ccc347ccc348ccc349ccc350ccc351ccc352ccc353ccc354ccc355ccc356ccc357ccc358ccc359ccc360ccc361ccc362ccc363ccc364ccc365ccc366ccc367ccc368ccc369ccc370ccc371ccc372ccc373ccc374ccc375ccc376ccc377ccc378ccc379ccc380ccc381ccc382ccc383ccc384ccc385ccc386ccc387ccc388ccc389ccc390ccc391ccc392ccc393ccc394ccc395ccc396ccc397ccc398ccc399ccc400ccc401ccc402ccc403ccc404ccc405ccc406ccc407ccc408ccc409ccc410ccc411ccc412ccc413ccc414ccc415ccc416ccc417ccc418ccc419ccc420ccc421ccc422ccc423ccc424ccc425ccc426ccc427ccc428ccc429ccc430ccc431ccc432ccc433ccc434ccc435ccc436ccc437ccc438ccc439ccc440ccc441ccc442ccc443ccc444ccc445ccc446ccc447ccc448ccc449ccc450ccc451ccc452ccc453ccc454ccc455ccc456ccc457ccc458ccc459ccc460ccc461ccc462ccc463ccc464ccc465ccc466ccc467ccc468ccc469ccc470ccc471ccc472ccc473ccc474ccc475ccc476ccc477ccc478ccc479ccc480ccc481ccc482ccc483ccc484ccc485ccc486ccc487ccc488ccc489ccc490ccc491ccc492ccc493ccc494ccc495ccc496ccc497ccc498ccc499ccc500ccc501ccc502ccc503ccc504ccc505ccc506ccc507ccc508ccc509ccc510ccc511ccc512ccc513ccc514ccc515ccc516ccc517ccc518ccc519ccc520ccc521ccc522ccc523ccc524ccc525ccc526ccc527ccc528ccc529ccc530ccc531ccc532ccc533ccc534ccc535ccc536ccc537ccc538ccc539ccc540ccc541ccc542ccc543ccc544ccc545ccc546ccc547ccc548ccc549ccc550ccc551ccc552ccc553ccc554ccc555ccc556ccc557ccc558ccc559ccc560ccc561ccc562ccc563ccc564ccc565ccc566ccc567ccc568ccc569ccc570ccc571ccc572ccc573ccc574ccc575ccc576ccc577ccc578ccc579ccc580ccc581ccc582ccc583ccc584ccc585ccc586ccc587ccc588ccc589ccc590ccc591ccc592ccc593ccc594ccc595ccc596ccc597ccc598ccc599ccc600ccc601ccc602ccc603ccc604ccc605ccc606ccc607ccc608ccc609ccc610ccc611ccc612ccc613ccc614ccc615ccc616ccc617ccc618ccc619ccc620ccc621ccc622ccc623ccc624ccc625ccc626ccc627ccc628ccc629ccc630ccc631ccc632ccc633ccc634ccc635ccc636ccc637ccc638ccc639ccc640ccc641ccc642ccc643ccc644ccc645ccc646ccc647ccc648ccc649ccc650ccc651ccc652ccc653ccc654ccc655ccc656ccc657ccc658ccc659ccc660ccc661ccc662ccc663ccc664ccc665ccc666ccc667ccc668ccc669ccc670ccc671ccc672ccc673ccc674ccc675ccc676ccc677ccc678ccc679ccc680ccc681ccc682ccc683ccc684ccc685ccc686ccc687ccc688ccc689ccc690ccc691ccc692ccc693ccc694ccc695ccc696ccc697ccc698ccc699ccc700ccc701ccc702ccc703ccc704ccc705ccc706ccc707ccc708ccc709ccc710ccc711ccc712ccc713ccc714ccc715ccc716ccc717ccc718ccc719ccc720ccc721ccc722ccc723ccc724ccc725ccc726ccc727ccc728ccc729ccc730ccc731ccc732ccc733ccc734ccc735ccc736ccc737ccc738ccc739ccc740ccc741ccc742ccc743ccc744ccc745ccc746ccc747ccc748ccc749ccc750ccc751ccc752ccc753ccc754ccc755ccc756ccc757ccc758ccc759ccc760ccc761ccc762ccc763ccc764ccc765ccc766ccc767ccc768ccc769ccc770ccc771ccc772ccc773ccc774ccc775ccc776ccc777ccc778ccc779ccc780ccc781ccc782ccc783ccc784ccc785ccc786ccc787ccc788ccc789ccc790ccc791ccc792ccc793ccc794ccc795ccc796ccc797ccc798ccc799ccc800ccc801ccc802ccc803ccc804ccc805ccc806ccc807ccc808ccc809ccc810ccc811ccc812ccc813ccc814ccc815ccc816ccc817ccc818ccc819ccc820ccc821ccc822ccc823ccc824ccc825ccc826ccc827ccc828ccc829ccc830ccc831ccc832ccc833ccc834ccc835ccc836ccc837ccc838ccc839ccc840ccc841ccc842ccc843ccc844ccc845ccc846ccc847ccc848ccc849ccc850ccc851ccc852ccc853ccc854ccc855ccc856ccc857ccc858ccc859ccc860ccc861ccc862ccc863ccc864ccc865ccc866ccc867ccc868ccc869ccc870ccc871ccc872ccc873ccc874ccc875ccc876ccc877ccc878ccc879ccc880ccc881ccc882ccc883ccc884ccc885ccc886ccc887ccc888ccc889ccc890ccc891ccc892ccc893ccc894ccc895ccc896ccc897ccc898ccc899ccc900ccc901ccc902ccc903ccc904ccc905ccc906ccc907ccc908ccc909ccc910ccc911ccc912ccc913ccc914ccc915ccc916ccc917ccc918ccc919ccc920ccc921ccc922ccc923ccc924ccc925ccc926ccc927ccc928ccc929ccc930ccc931ccc932ccc933ccc934ccc935ccc936ccc937ccc938ccc939ccc940ccc941ccc942ccc943ccc944ccc945ccc946ccc947ccc948ccc949ccc950ccc951ccc952ccc953ccc954ccc955ccc956ccc957ccc958ccc959ccc960ccc961ccc962ccc963ccc964ccc965ccc966ccc967ccc968ccc969ccc970ccc971ccc972ccc973ccc974ccc975ccc976ccc977ccc978ccc979ccc980ccc981ccc982ccc983ccc984ccc985ccc986ccc987ccc988ccc989ccc990ccc991ccc992ccc993ccc994ccc995ccc996ccc997ccc998ccc999ccc1000ccc1001ccc1002ccc1003ccc1004ccc1005ccc1006ccc1007ccc1008ccc1009ccc1010ccc1011ccc1012ccc1013ccc1014ccc1015ccc1016ccc1017ccc1018ccc1019ccc1020ccc1021ccc1022ccc1023ccc1024ccc1025ccc1026ccc1027ccc1028ccc1029ccc1030ccc1031ccc1032ccc1033ccc1034ccc1035ccc1036ccc1037ccc1038ccc1039ccc1

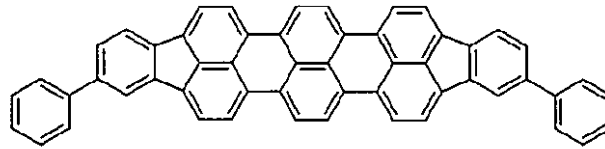
(14)

特開2001-230080

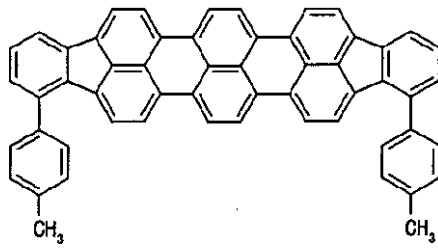
C-1



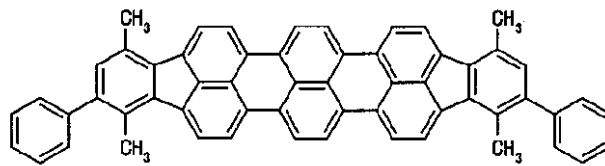
C-2



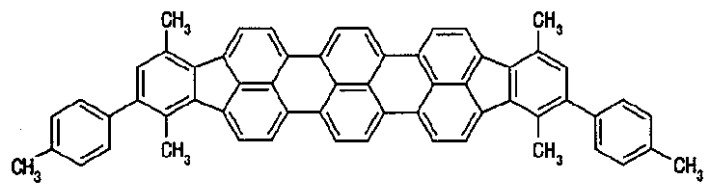
C-3



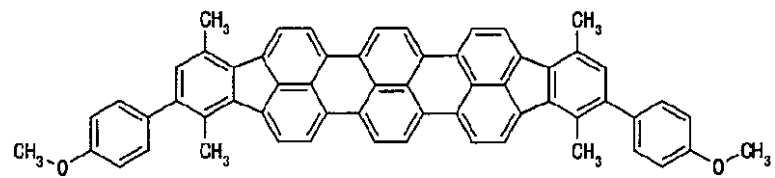
C-4



C-5



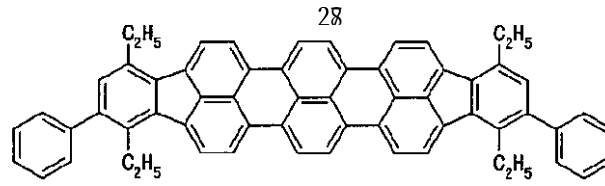
C-6



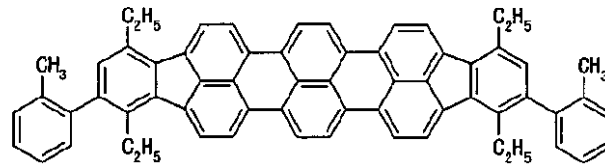
【0026】

【化15】

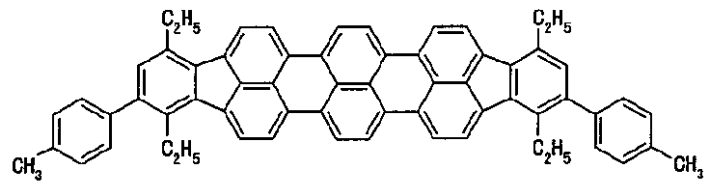
C-7



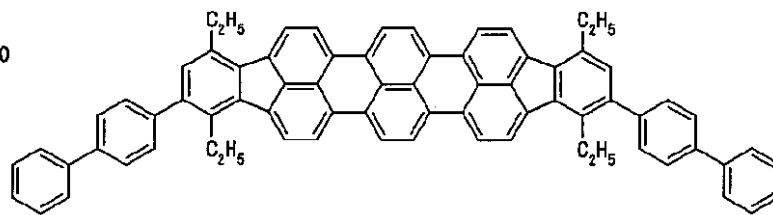
C-8



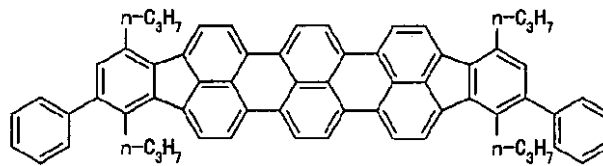
C-9



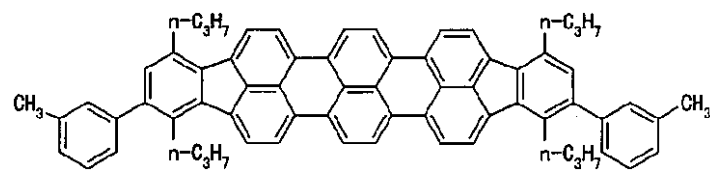
C-10



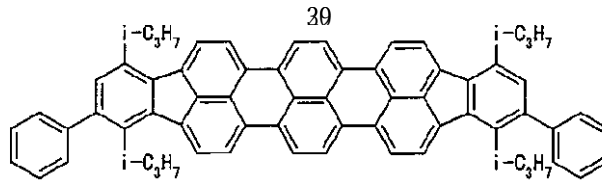
C-11



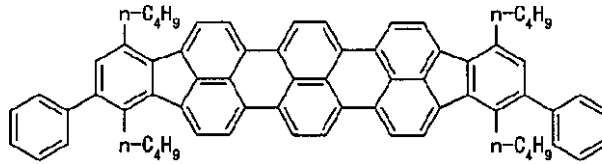
C-12



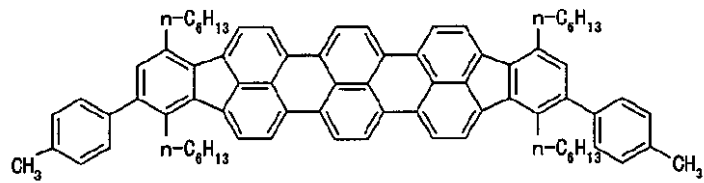
C-13



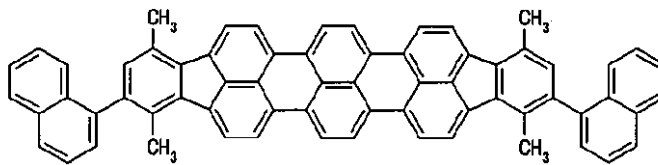
C-14



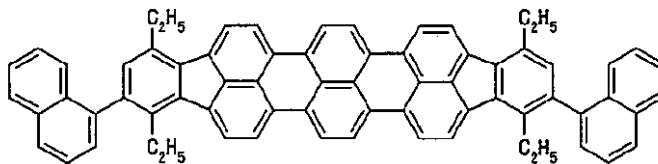
C-15



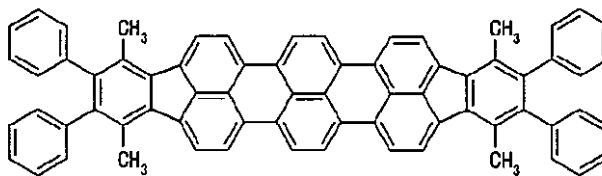
C-16

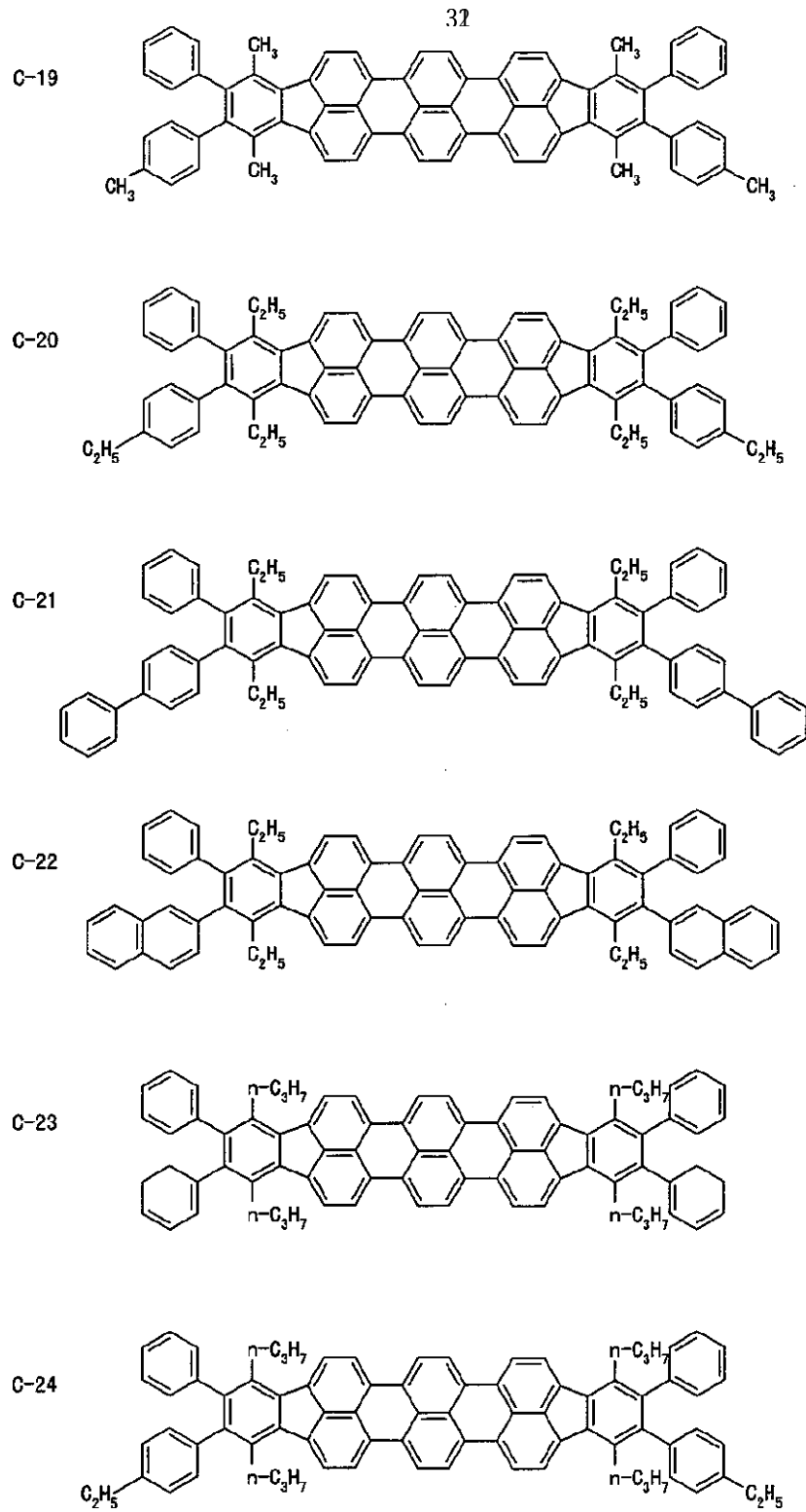


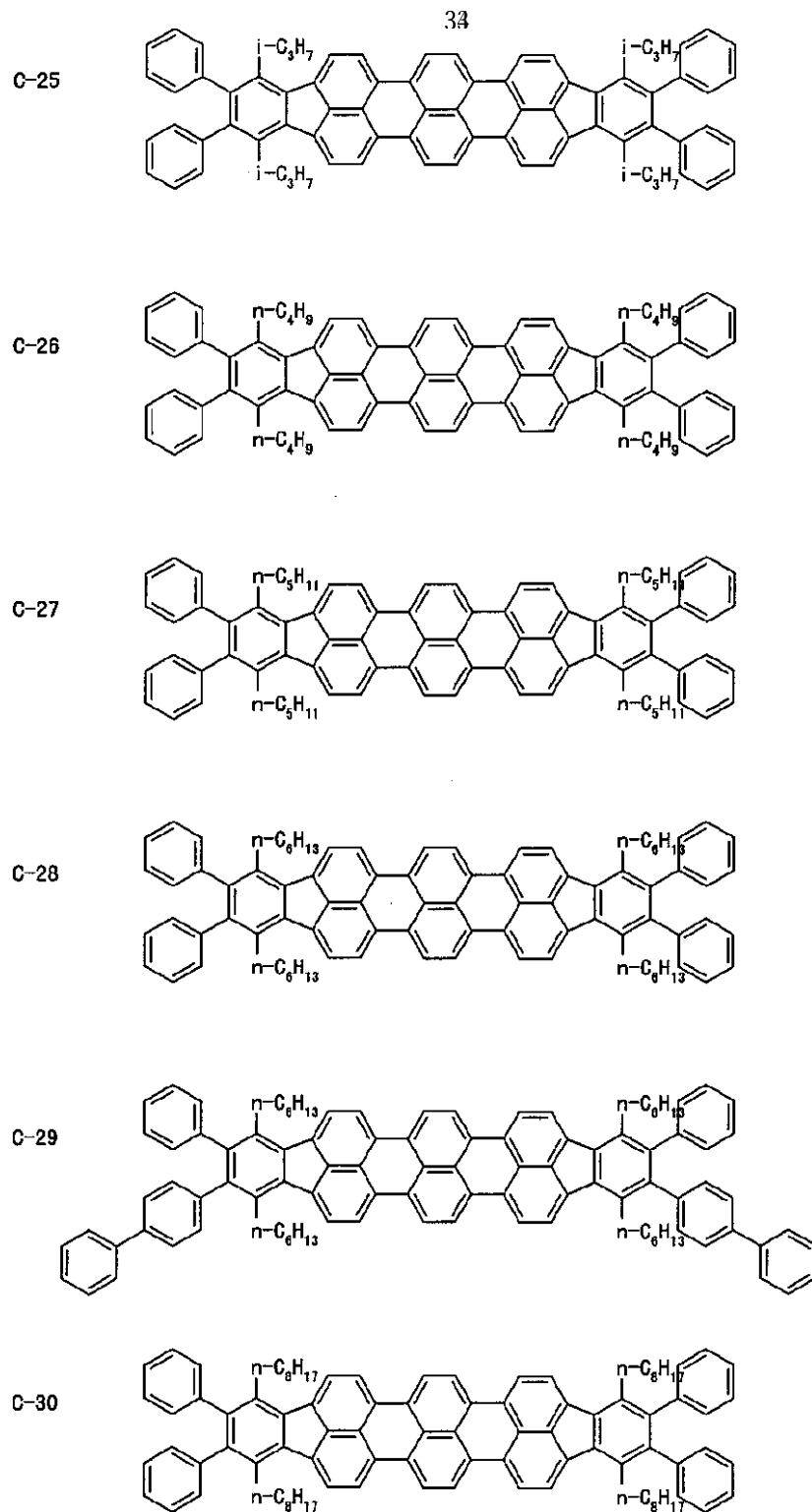
C-17

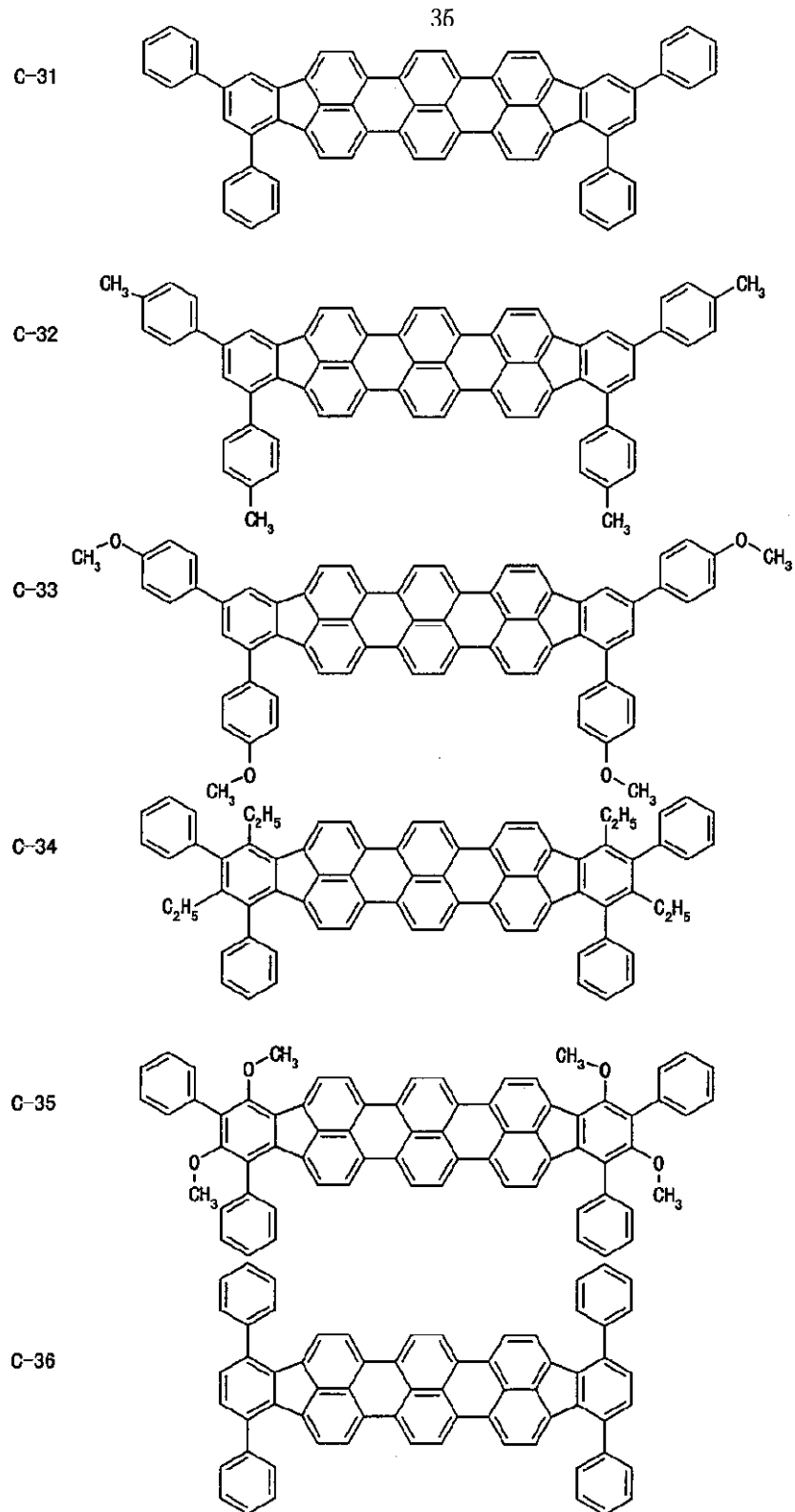


C-18







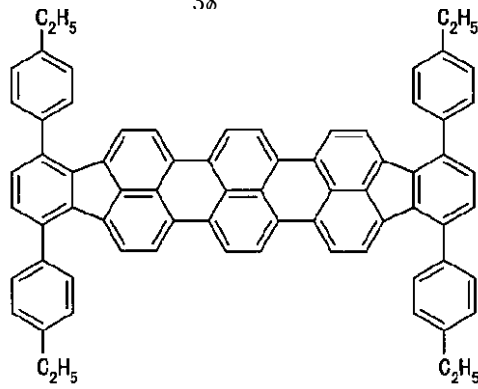


(20)

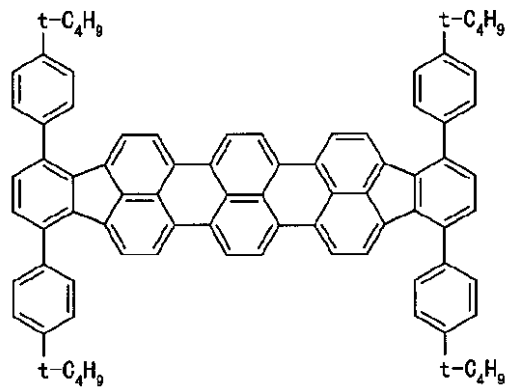
特開2001-230080

38

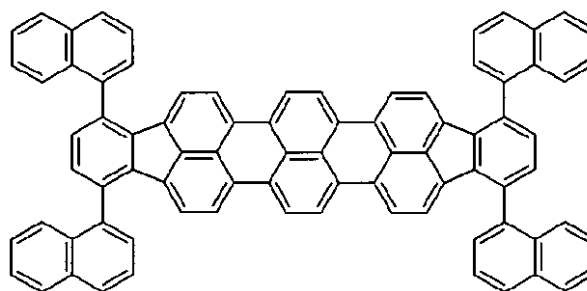
C-37



C-38



C-39

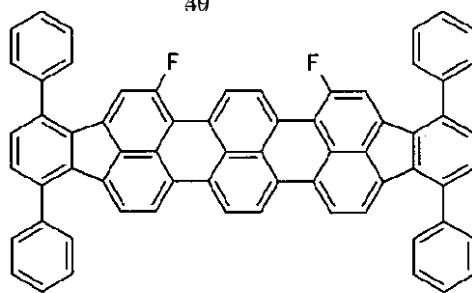


【0032】

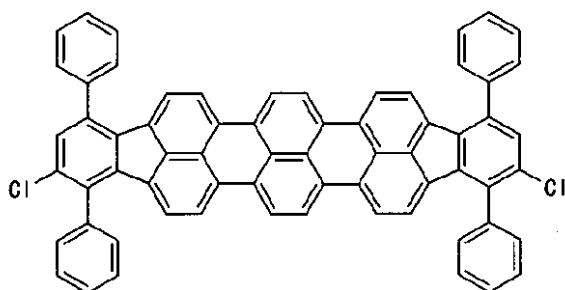
【化21】

39

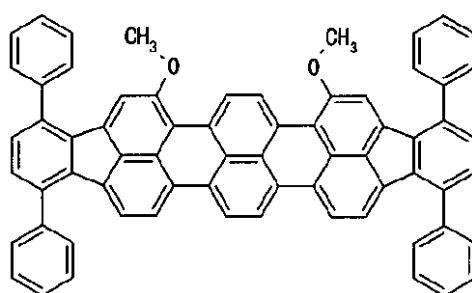
C-40



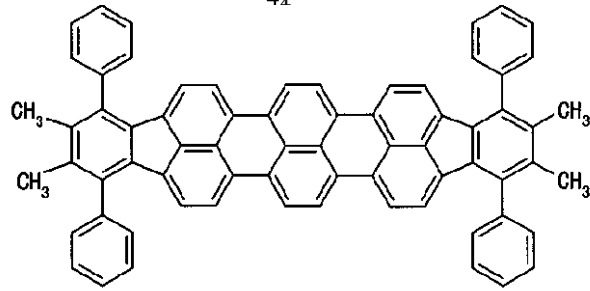
C-41



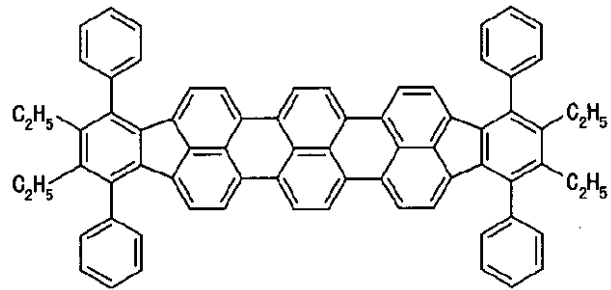
C-42



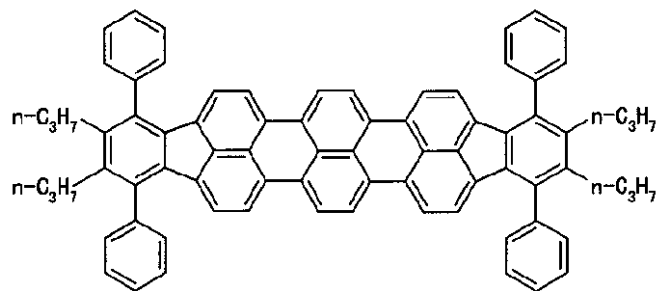
C-43



C-44



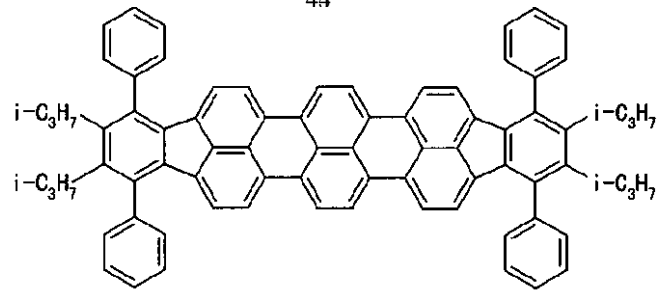
C-45



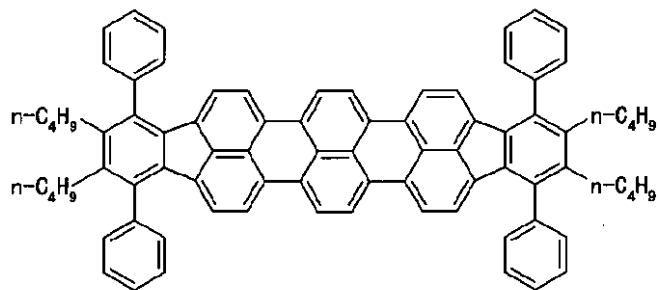
【0034】

【化23】

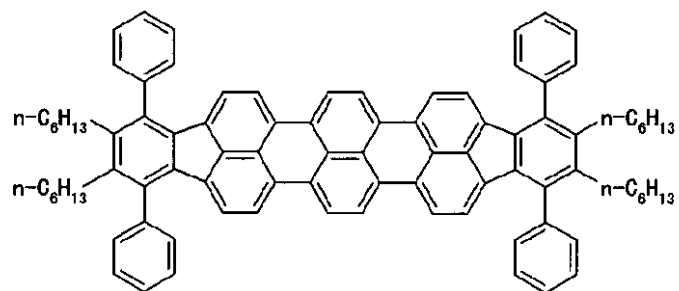
C-46



C-47



C-48

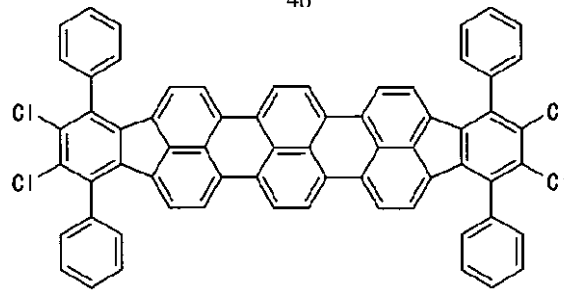


【0035】

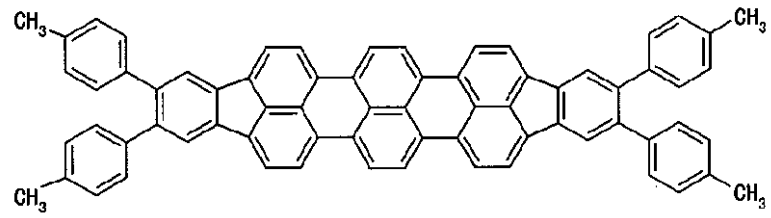
【化24】

46

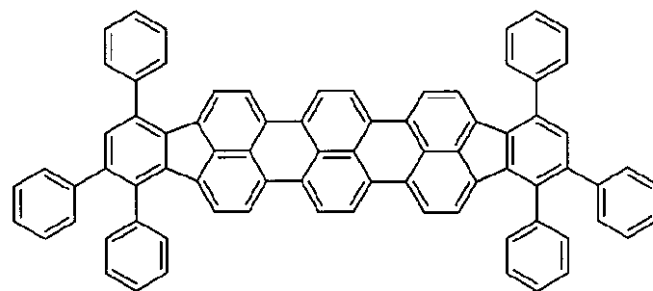
C-49



C-50



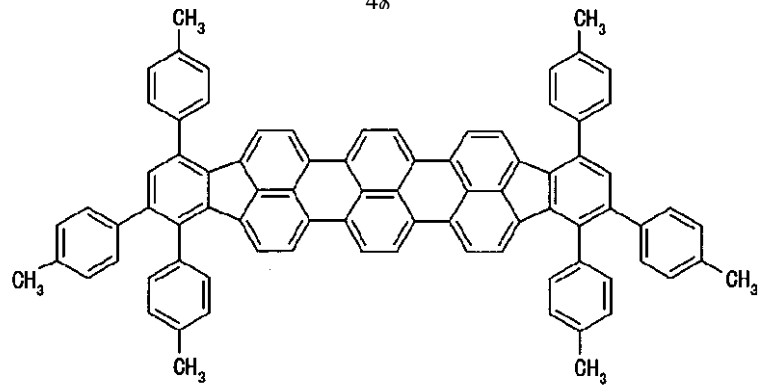
C-51



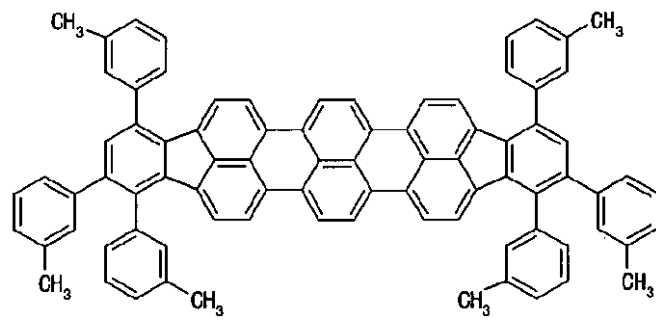
【0036】

【化25】

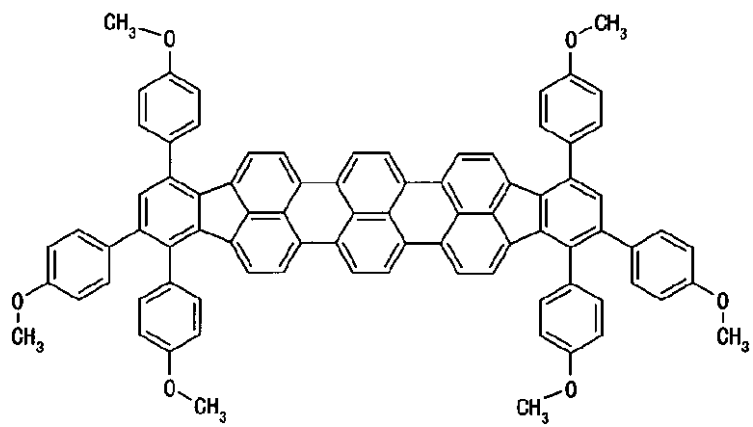
C-52



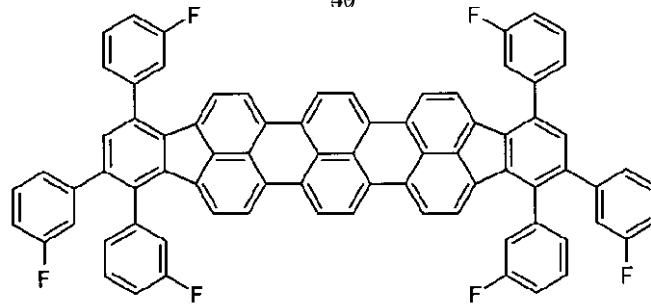
C-53



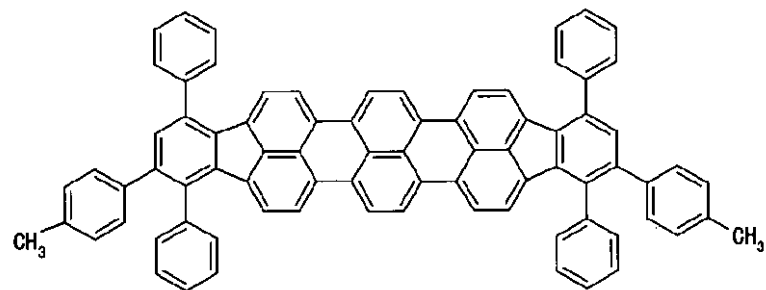
C-54



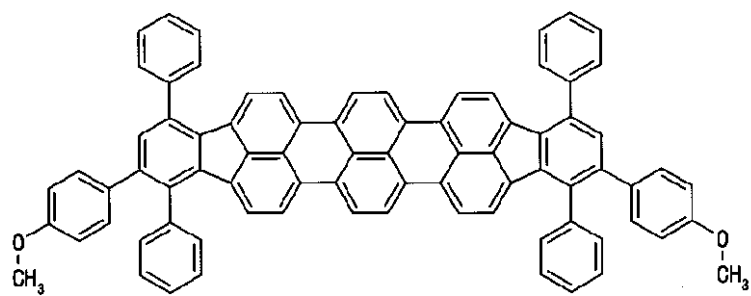
C-55



C-56

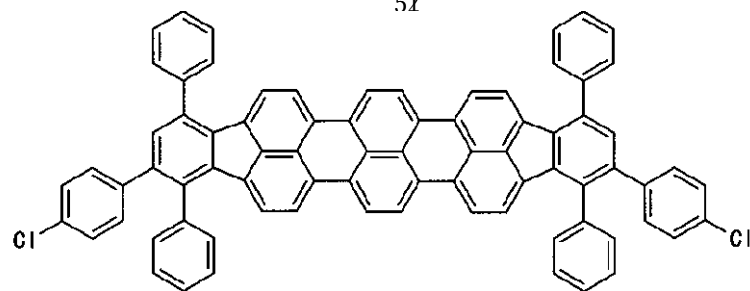


C-57

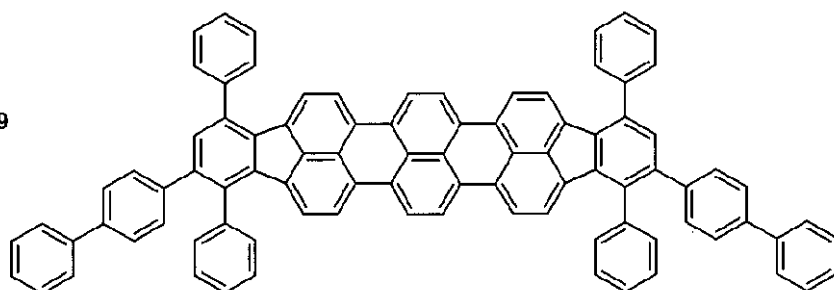


52

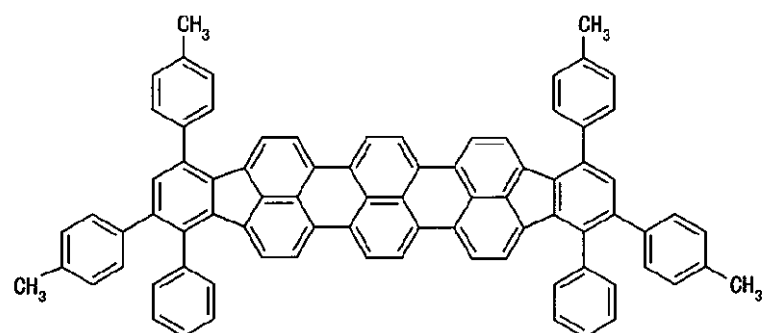
C-58



C-59



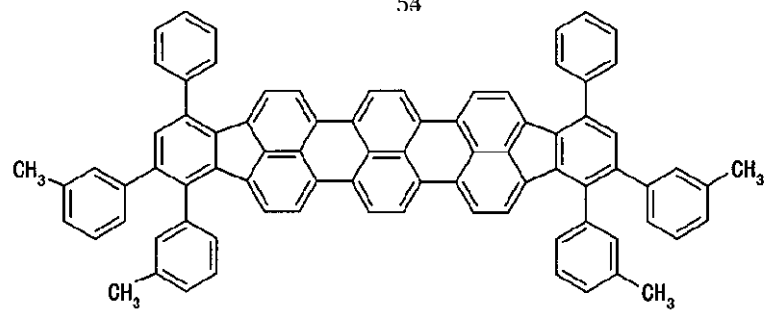
C-60



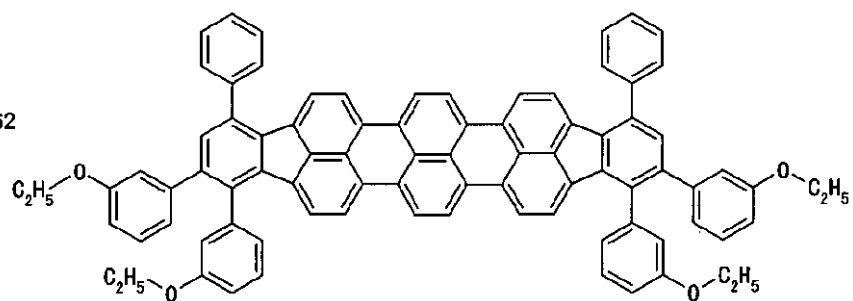
【0039】

【化28】

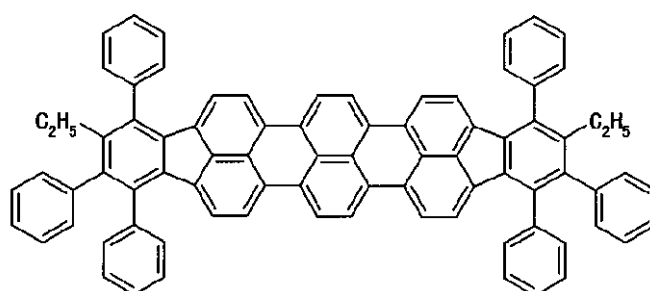
C-61



C-62



C-63

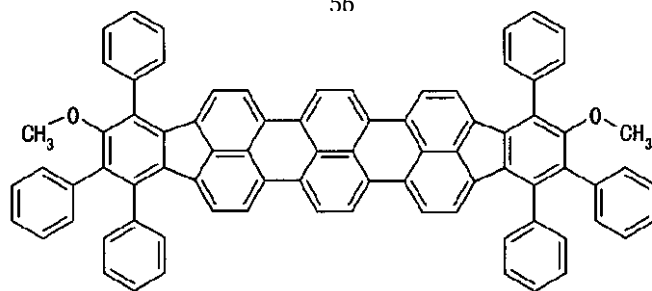


【0040】

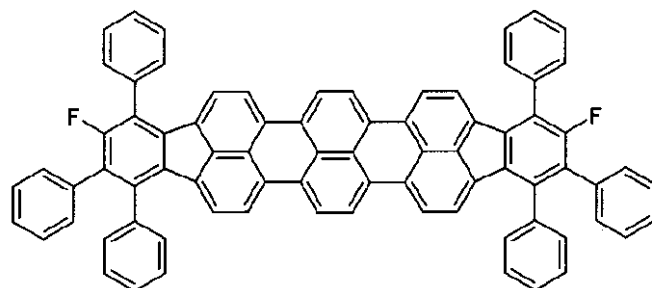
【化29】

56

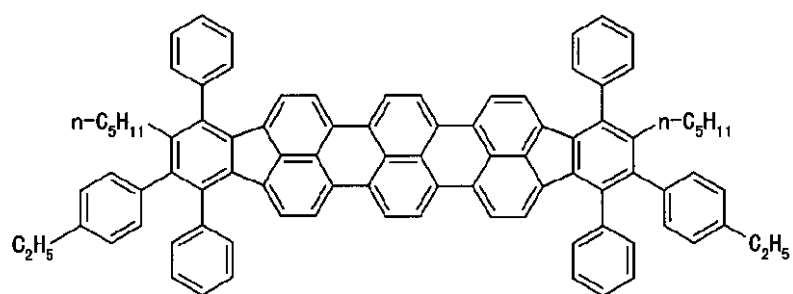
C-64



C-65



C-66

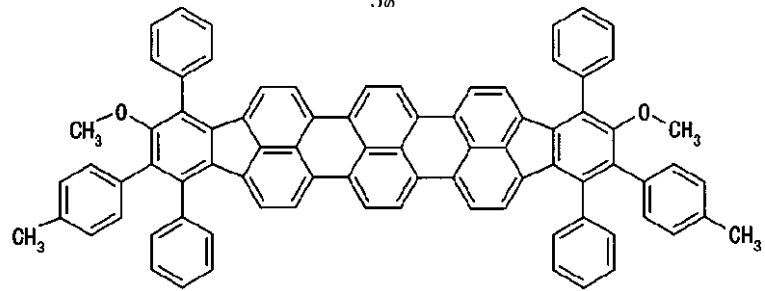


【0041】

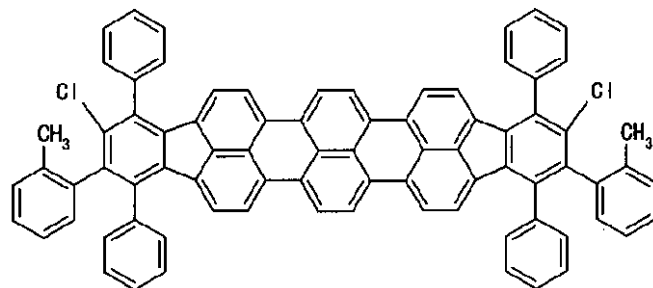
【化30】

58

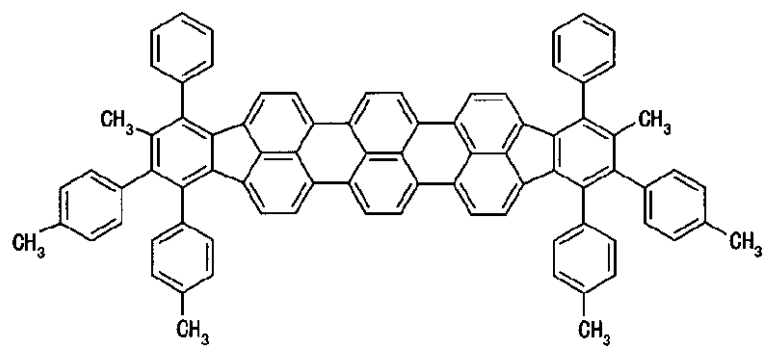
C-67



C-68



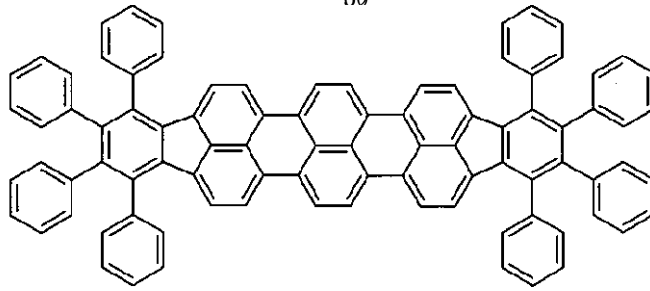
C-69



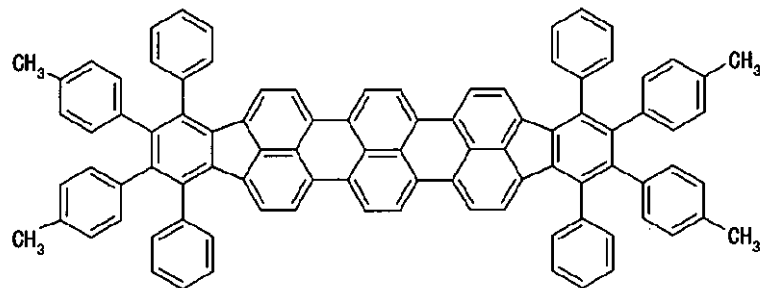
【0042】

【化31】

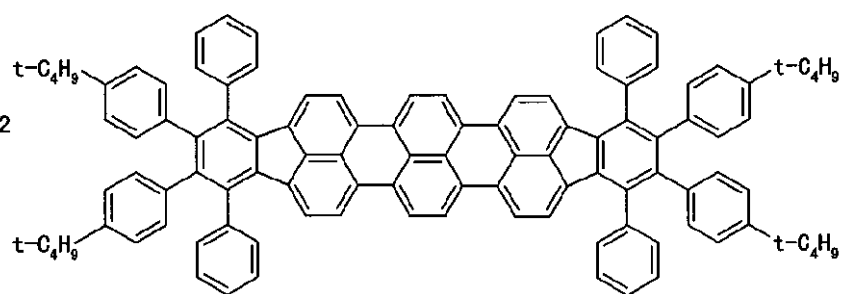
C-70



C-71



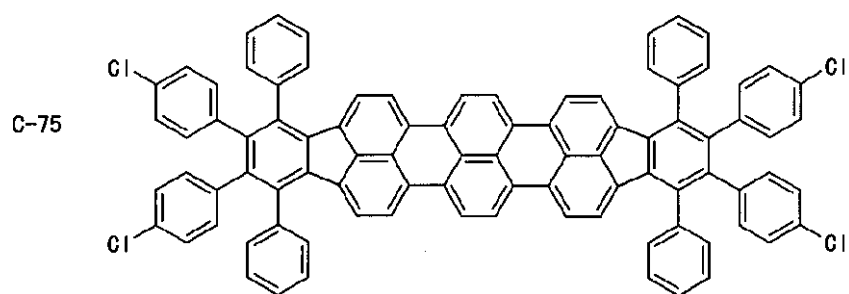
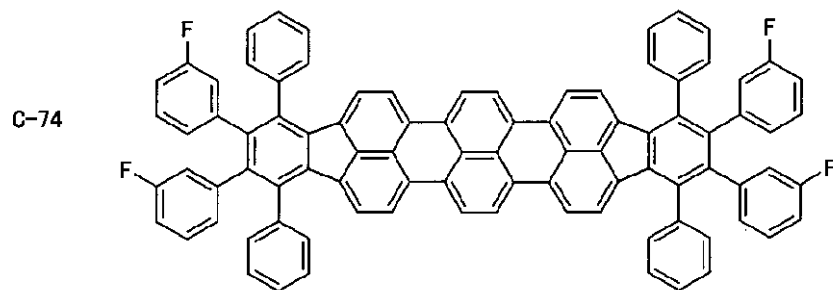
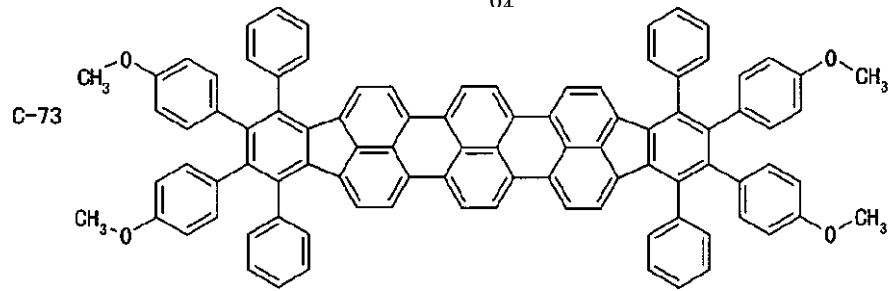
C-72



【0043】

【化32】

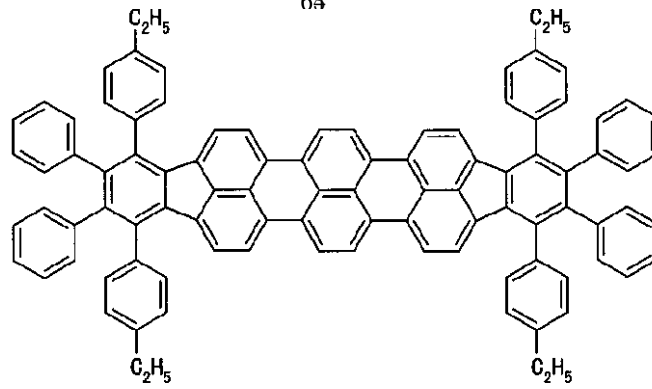
62



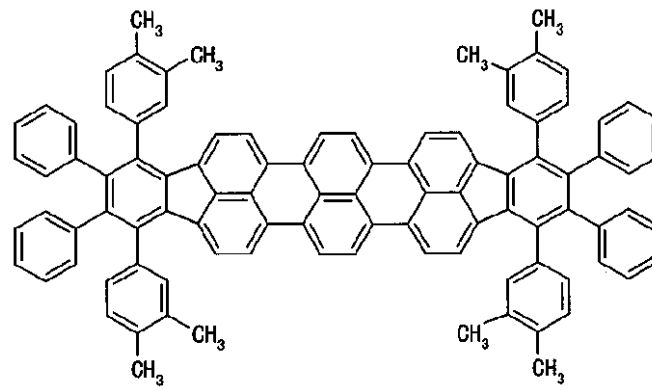
【0044】

【化33】

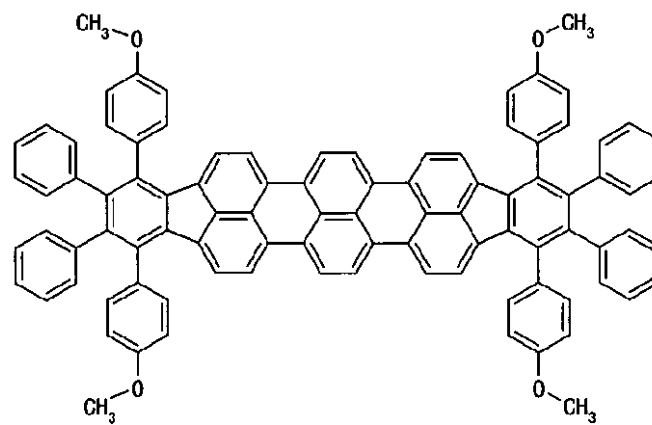
C-76



C-77

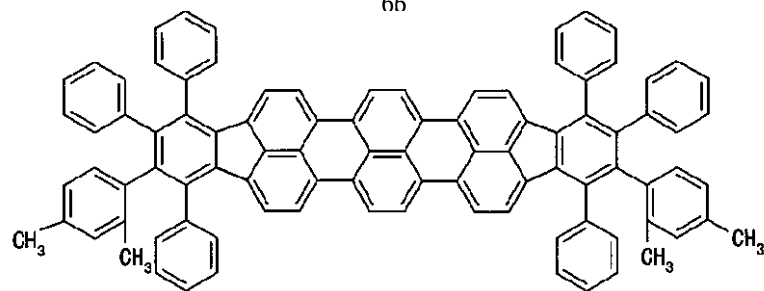


C-78

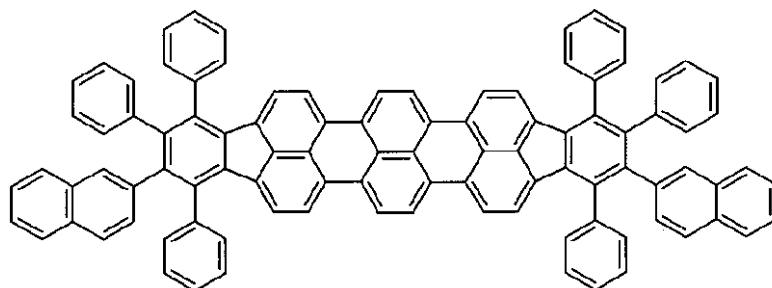


65

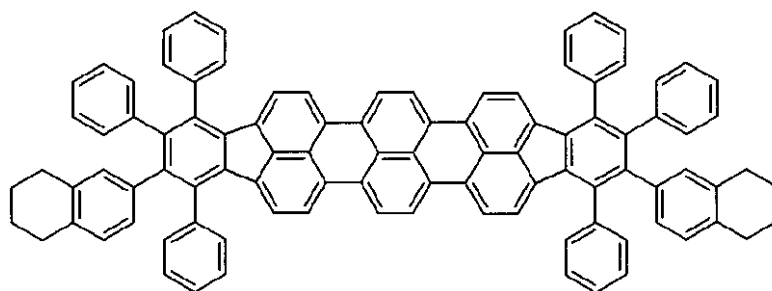
C-79



C-80

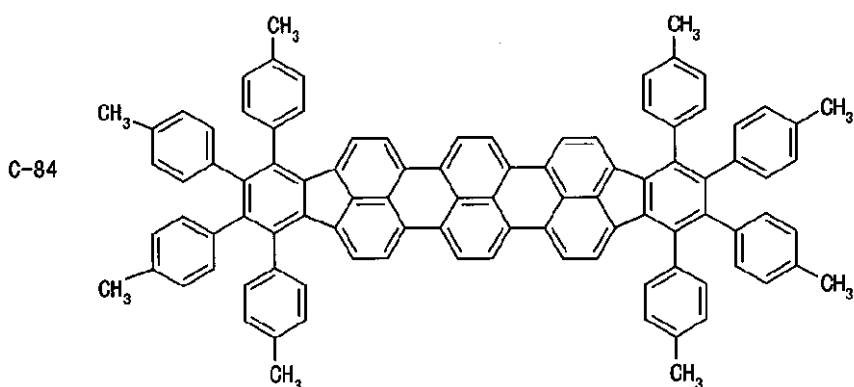
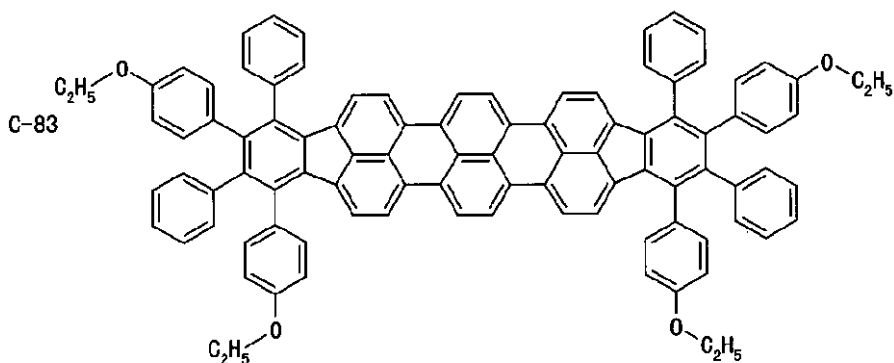
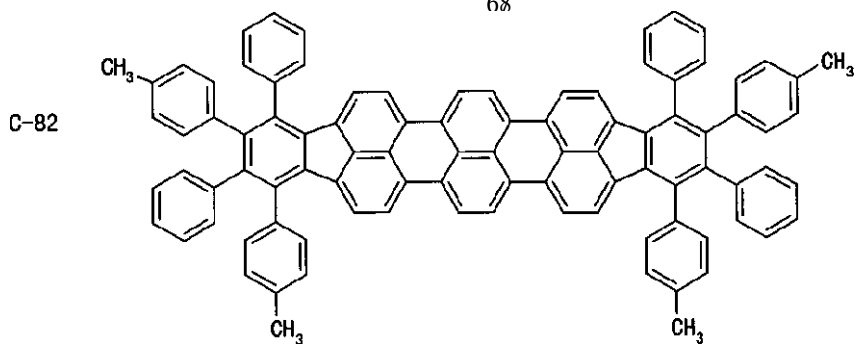


C-81



【0046】

【化35】

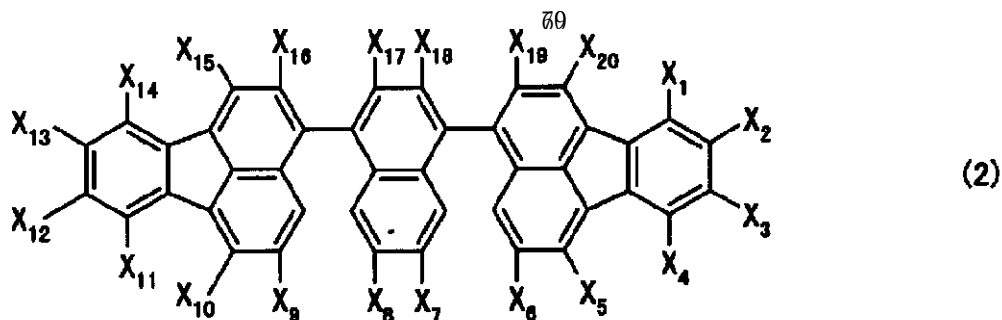


【0047】本発明に係る化合物A、例えば、一般式(1-A)で表される化合物は、例えば、以下の方法により製造することができる。すなわち、例えば、一般式(2)(化36)で表される1,4-ジ(3'-フルオランテニル)ナフタレン誘導体を、酸化剤(例えば、塩化アルミニウム/塩化第二銅、塩化アルミニウム/塩化ナトリウム、三フッ化コバルト、トリフルオロ酢酸タリ

ウム、四酢酸鉛、または塩化第二鉄)の存在下で反応させて閉環する〔例えば、J. Amer. Chem. Soc., 102, 6504 (1980)、Chem. Rev., 87, 357 (1987)に記載の方法を参考にすることができる〕ことにより製造することができる。

【0048】

【化36】

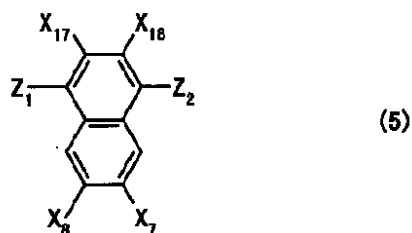
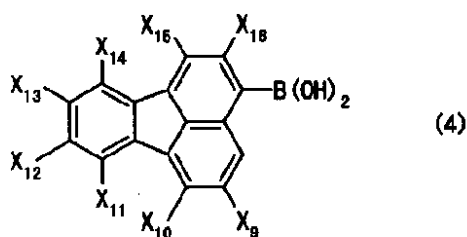
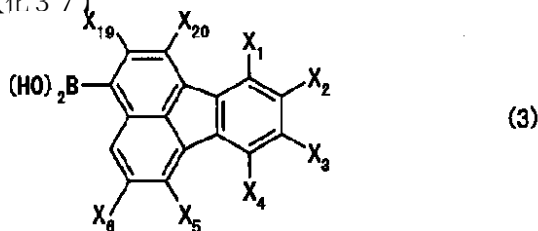


〔上式中、 $X_1 \sim X_{20}$ は、一般式(1-A)の場合と同じ意味を表す〕

【0049】尚、一般式(2)で表される化合物は、例えば、一般式(3)(化37)および一般式(4)(化37)で表されるホウ酸化合物を、一般式(5)(化37)で表されるジハログエノナフタレン誘導体と、例えば、パラジウム化合物〔例えば、テトラキス(トリフェニルフォスフィン)パラジウム、ビス(トリフェニルフォスフィン)パラジウムクロライド〕および塩基(例えば、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、トリエチルアミン)の存在下で反応させる〔例えば、Chem. Rev., 95, 2457 (1995)に記載の方法を参考にする〕ことにより製造することができる。

【0050】

〔化37〕

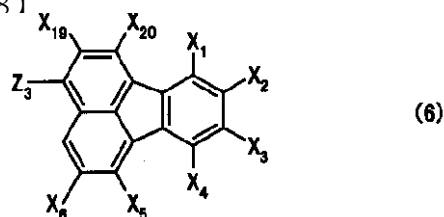


〔上式中、 $X_1 \sim X_{20}$ は、一般式(1-A)の場合と同じ意味を表し、 Z_1 および Z_2 はハロゲン原子を表す〕
一般式(5)において、 Z_1 および Z_2 はハロゲン原子を表し、好ましくは、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子

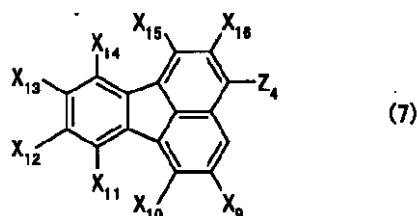
【0051】尚、一般式(3)および一般式(4)で表される化合物は、例えば、一般式(6)(化38)および一般式(7)(化38)で表される化合物より、例えば、n-ブチルリチウム、金属マグネシウムを作用させて調製できるリチオ化合物またはグリニャール試薬と、例えば、トリメトキシホウ素、トリイソプロポキシホウ素などにより調整することができる〔例えば、Chem. Rev., 95, 2457 (1995)に記載の方法を参考にする〕ことができる〕。

【0052】

〔化38〕



20



〔上式中、 $X_1 \sim X_6$ 、 $X_9 \sim X_{16}$ 、 $X_{19} \sim X_{20}$ は、一般式(1-A)の場合と同じ意味を表し、 Z_3 および Z_4 はハロゲン原子を表す〕

一般式(6)および一般式(7)において、 Z_3 および Z_4 はハロゲン原子を表し、好ましくは、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子を表す。

【0053】本発明に係る化合物Aは、場合により使用した溶媒(例えば、トルエンなどの芳香族炭化水素系溶媒)との溶媒和を形成した形で製造されることがあるが、本発明においては、本発明に係る化合物Aはこのような溶媒和物を包含するものである。勿論、溶媒を含有しない無溶媒和物をも包含するものである。本発明の有機電界発光素子には、本発明に係る化合物Aの無溶媒和物は勿論、このような溶媒和物をも使用することができる。尚、本発明に係る化合物Aを有機電界発光素子に使用する場合、再結晶法、カラムクロマトグラフィー法、昇華精製法などの精製方法、あるいはこれらの方法を併

用して、純度を高めた化合物を使用することは好ましいことである。

【0054】有機電界発光素子は、通常、一对の電極間に、少なくとも一種の発光成分を含有する発光層を、少なくとも一層挟持してなるものである。発光層に使用する化合物の正孔注入および正孔輸送、電子注入および電子輸送の各機能レベルを考慮し、所望に応じて、正孔注入輸送成分を含有する正孔注入輸送層および／または電子注入輸送成分を含有する電子注入輸送層を設けることもできる。例えば、発光層に使用する化合物の正孔注入機能、正孔輸送機能および／または電子注入機能、電子輸送機能が良好な場合には、発光層が正孔注入輸送層および／または電子注入輸送層を兼ねた型の素子の構成とすることができる。勿論、場合によっては、正孔注入輸送層および電子注入輸送層の両方の層を設けない型の素子（一層型の素子）の構成とすることもできる。また、正孔注入輸送層、電子注入輸送層および発光層のそれぞれの層は、一層構造であっても、また、多層構造であってもよく、正孔注入輸送層および電子注入輸送層は、それぞれの層において、注入機能を有する層と輸送機能を有する層を別々に設けて構成することもできる。

【0055】本発明の有機電界発光素子において、本発明に係る化合物Aは、正孔注入輸送成分、発光成分または電子注入輸送成分に用いることが好ましく、正孔注入輸送成分または発光成分に用いることがより好ましく、発光成分に用いることが特に好ましい。本発明の有機電界発光素子においては、本発明に係る化合物Aは、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0056】本発明の有機電界発光素子の構成としては、特に限定するものではなく、例えば、(A) 陽極／正孔注入輸送層／発光層／電子注入輸送層／陰極型素子（図1）、(B) 陽極／正孔注入輸送層／発光層／陰極型素子（図2）、(C) 陽極／発光層／電子注入輸送層／陰極型素子（図3）、(D) 陽極／発光層／陰極型素子（図4）などを挙げることができる。さらには、発光層を電子注入輸送層で挟み込んだ型の素子である(E) 陽極／正孔注入輸送層／電子注入輸送層／発光層／電子注入輸送層／陰極型素子（図5）とすることもできる。

(D)型の素子構成としては、発光成分を一層形態で一对の電極間に挟持させた型の素子を包含するものであるが、さらには、例えば、(F) 正孔注入輸送成分、発光成分および電子注入輸送成分を混合させた一層形態で一对の電極間に挟持させた型の素子（図6）、(G) 正孔注入輸送成分および発光成分を混合させた一層形態で一对の電極間に挟持させた型の素子（図7）、(H) 発光成分および電子注入輸送成分を混合させた一層形態で一对の電極間に挟持させた型の素子（図8）がある。

【0057】本発明の有機電界発光素子においては、これらの素子構成に限るものではなく、それぞれの型の素子において、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層

を複数層設けたりすることができる。また、それぞれの型の素子において、正孔注入輸送層と発光層との間に、正孔注入輸送成分と発光成分の混合層および／または発光層と電子注入輸送層との間に、発光成分と電子注入輸送成分の混合層を設けることもできる。より好ましい有機電界発光素子の構成は、(A)型素子、(B)型素子、(C)型素子、(E)型素子、(F)型素子、

(G)型素子または(H)型素子であり、さらに好ましくは、(A)型素子、(B)型素子、(C)型素子、

(F)型素子、または(H)型素子である。本発明の有機電界発光素子としては、例えば、(図1)に示す

(A) 陽極／正孔注入輸送層／発光層／電子注入輸送層／陰極型素子について説明する。(図1)において、1は基板、2は陽極、3は正孔注入輸送層、4は発光層、5は電子注入輸送層、6は陰極、7は電源を示す。

【0058】本発明の電界発光素子は、基板1に支持されていることが好ましく、基板としては、特に限定するものではないが、透明ないし半透明であることが好ましく、例えば、ガラス板、透明プラスチックシート（例えば、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリスルホン、ポリメチルメタクリレート、ポリプロピレン、ポリエチレンなどのシート）、半透明プラスチックシート、石英、透明セラミックスあるいはこれらを組み合わせた複合シートからなるものを挙げることができる。さらに、基板に、例えば、カラーフィルター膜、色変換膜、誘電体反射膜を組み合わせ、発光色をコントロールすることもできる。

【0059】陽極2としては、比較的仕事関数の大きい金属、合金または電気伝導性化合物を電極物質として使用することが好ましい。陽極に使用する電極物質としては、例えば、金、白金、銀、銅、コバルト、ニッケル、パラジウム、バナジウム、タングステン、酸化錫、酸化亜鉛、ITO（インジウム・ティン・オキサイド）、ポリチオフェン、ポリピロールなどを挙げることができる。これらの電極物質は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。陽極は、これらの電極物質を用いて、例えば、蒸着法、スパッタリング法などの方法により、基板の上に形成することができる。また、陽極は一層構造であってもよく、あるいは多層構造であってもよい。陽極のシート電気抵抗は、好ましくは、数百Ω／□以下、より好ましくは、5～500Ω／□程度に設定する。陽極の厚みは、使用する電極物質の材料にもよるが、一般に、5～1000nm程度、より好ましくは、10～500nm程度に設定する。

【0060】正孔注入輸送層3は、陽極からの正孔（ホール）の注入を容易にする機能、および注入された正孔を輸送する機能を有する化合物を含有する層である。正孔注入輸送層は、本発明に係る化合物Aおよび／または他の正孔注入輸送機能を有する化合物（例えば、フタロシアニン誘導体、トリアリールメタン誘導体、トリアリ

ールアミン誘導体、オキサゾール誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、ピラゾリン誘導体、ポリシラン誘導体、ポリフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリ-N-ビニルカルバゾール誘導体など)を少なくとも一種用いて形成することができる。尚、正孔注入輸送機能を有する化合物は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0061】本発明において用いる他の正孔注入輸送機能を有する化合物としては、トリアリールアミン誘導体 (例えば、4, 4'-ビス[N-フェニル-N-(4'-メチルフェニル)アミノ]ビフェニル、4, 4'-ビス[N-フェニル-N-(3'-メチルフェニル)アミノ]ビフェニル、4, 4'-ビス[N-フェニル-N-(3'-メトキシフェニル)アミノ]ビフェニル、4, 4'-ビス[N-フェニル-N-(1'-ナフチル)アミノ]ビフェニル、3, 3'-ジメチル-4, 4'-ビス[N-フェニル-N-(3'-メチルフェニル)アミノ]ビフェニル、1, 1'-ビス[4'-[N, N-ジ(4'-メチルフェニル)アミノ]フェニル]シクロヘキサ 20 キサン、9, 10-ビス[N-(4'-メチルフェニル)-N-(4'-n-ブチルフェニル)アミノ]フェナントレン、3, 8-ビス(N, N-ジフェニルアミノ)-6-フェニルフェナントリジン、4-メチル-N, N-ビス[4'', 4'''-ビス[N', N'-ジ(4'-メチルフェニル)アミノ]ビフェニル-4-イル]アニリン、N, N'-ビス[4-(ジフェニルアミノ)フェニル]-N, N'-ジフェニル-1, 3-ジアミノベンゼン、N, N'-ビス[4-(ジフェニルアミノ)フェニル]-N, N'-ジフェニル-1, 4-ジア 30 ミノベンゼン、5, 5'-ビス[4-(ビス[4'-メチルフェニル]アミノ)フェニル]-2, 2':5', 2''-ターチオフェン、1, 3, 5-トリス(ジフェニルアミノ)ベンゼン、4, 4', 4''-トリス(N-カルバゾリル)トリフェニルアミン、4, 4', 4'''-トリス[N-(3'''-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン、4, 4', 4''-トリス[N, N-ビス(4'''-tert-ブチルビフェニル-4'''-イル)アミノ]トリフェニルアミン、1, 3, 5-トリス[N-(4'-ジフェニルアミノフェニル)- 40 N-フェニルアミノ]ベンゼンなど)、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリ-N-ビニルカルバゾール誘導体が好ましい。本発明に係る化合物Aと他の正孔注入輸送機能を有する化合物を併用する場合、正孔注入輸送層中に占める本発明に係る化合物Aの割合は、好ましくは、0.1~40重量%程度に調製する。

【0062】発光層4は、正孔および電子の注入機能、それらの輸送機能、正孔と電子の再結合により励起子を生成させる機能を有する化合物を含有する層である。発光層は、本発明に係る化合物Aおよび/または他の発光 50

機能を有する化合物(例えば、アクリドン誘導体、キナクリドン誘導体、ジケトピロロピロール誘導体、多環芳香族化合物[例えば、ルブレン、アントラセン、テトラセン、ピレン、ペリレン、クリセン、デカシクレン、コロネン、テトラフェニルシクロペンタジエン、ペンタフェニルシクロヘキサジエン、9, 10-ジフェニルアントラセン、9, 10-ビス(フェニルエチニル)アントラセン、1, 4-ビス(9'-エチニルアントラセニル)ベンゼン、4, 4'-ビス(9''-エチニルアントラセニル)ビフェニル]、トリアリールアミン誘導体 [例えば、正孔注入輸送機能を有する化合物として前述した化合物を挙げることができる]、有機金属錯体[例えば、トリス(8-キノリレート)アルミニウム、ビス(10-ベンゾ[h]キノリノレート)ベリリウム、2-(2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾオキサゾールの亜鉛塩、2-(2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾチアゾールの亜鉛塩、4-ヒドロキシアクリジンの亜鉛塩、3-ヒドロキシフラボンの亜鉛塩、5-ヒドロキシフラボンのベリリウム塩、5-ヒドロキシフラボンのアルミニウム塩]、スチルベン誘導体[例えば、1, 1, 4, 4-テトラフェニル-1, 3-ブタジエン、4, 4'-ビス(2, 2-ジフェニルビニル)ビフェニル、4, 4'-ビス[(1, 1, 2-トリフェニル)エテニル]ビフェニル、

【0063】クマリン誘導体[例えば、クマリン1、クマリン6、クマリン7、クマリン30、クマリン106、クマリン138、クマリン151、クマリン152、クマリン153、クマリン307、クマリン311、クマリン314、クマリン334、クマリン338、クマリン343、クマリン500]、ピラン誘導体 [例えば、DCM1、DCM2]、オキサゾン誘導体 [例えば、ナイルレッド]、ベンゾチアゾール誘導体、ベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ピラジン誘導体、ケイ皮酸エステル誘導体、ポリ-N-ビニルカルバゾールおよびその誘導体、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリフェニレンおよびその誘導体、ポリフルオレンおよびその誘導体、ポリフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリターフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリナフチレンビニレンおよびその誘導体、ポリチエニレンビニレンおよびその誘導体など)を、少なくとも一種用いて形成することができる。

【0064】本発明の有機電界発光素子においては、発光層に本発明に係る化合物Aを含有していることが好ましい。本発明に係る化合物Aと他の発光機能を有する化合物を併用する場合、発光層中に占める本発明に係る化合物Aの割合は、好ましくは、0.001~99.999重量%程度、より好ましくは、0.01~99.99重量%程度、さらに好ましくは、0.1~99.9重量%程度に調製する。

【0065】本発明において用いる他の発光機能を有する化合物としては、発光性有機金属錯体が好ましい。例えば、J. Appl. Phys., 65, 3610 (1989)、特開平5-214332号公報に記載のように、発光層をホスト化合物とゲスト化合物（ドーパント）とより構成することもできる。本発明に係る化合物Aを、ホスト化合物として用いて発光層を形成することができ、さらには、ゲスト化合物として用いて発光層を形成することもできる。本発明に係る化合物Aを、ゲスト化合物として用いて発光層を形成する場合、ホスト化合物としては、例えば、前記の他の発光機能を有する化合物を挙げることができ、例えば、発光性有機金属錯体またはトリアリールアミンは、より好ましい。この場合、発光性有機金属錯体*

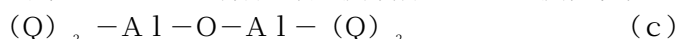


(式中、Qは置換または未置換の8-キノリノラート配位子を表す)



(式中、Qは置換8-キノリノラート配位子を表し、O-Lはフェノラート配位

子であり、Lはフェニル部分を含む炭素数6～24の炭化水素基を表す)



【0067】発光性有機金属錯体置換体例としては、例えば、トリス（8-キノリノラート）アルミニウム、トリス（4-メチル-8-キノリノラート）アルミニウム、トリス（5-メチル-8-キノリノラート）アルミニウム、トリス（3, 4-ジメチル-8-キノリノラート）アルミニウム、トリス（4, 5-ジメチル-8-キノリノラート）アルミニウム、トリス（4, 6-ジメチル-8-キノリノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（フェノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（2-メチルフェノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（3-メチルフェノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（4-メチルフェノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（2-フェニルフェノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（3-フェニルフェノラート）アルミニウム、ビス（2, 4-ジメチル-8-キノリノラート）（4-フェニルフェノラート）アルミニウム、ビス（2, 4-ジメチル-8-キノリノラート）（3, 5-ジメチルフェニルフェノラート）アルミニウム、ビス（2, 4-ジメチル-8-キノリノラート）（3, 5-ジ-tert-ブチルフェニルフェノラート）アルミニウム、

【0068】ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（2, 3-ジメチルフェノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（2, 6-ジメチルフェノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（3, 4-ジメチルフェノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（3, 5-ジメチルフェノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（3, 5-ジ-tert-ブチルフェノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（2, 6-ジフェニルフェノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-8-

*またはトリアリールアミン誘導体に対して、本発明に係る化合物Aを、好ましくは、0.001～40重量%程度、より好ましくは、0.01～30重量%程度、特に好ましくは、0.1～20重量%程度使用する。

【0066】本発明に係る化合物Aと併用する発光性有機金属錯体としては、特に限定するものではないが、発光性有機アルミニウム錯体が好ましく、置換または未置換の8-キノリノラート配位子を有する発光性有機アルミニウム錯体が、より好ましい。好ましい発光性有機金属錯体としては、例えば、下記一般式（a）～一般式（c）で表される発光性有機アルミニウム錯体を挙げることができる。

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

【0069】ビス（2-メチル-8-キノリノラート）アルミニウム-μ-オキソ-ビス（2-メチル-8-キノリノラート）アルミニウム、ビス（2, 4-ジメチル-8-キノリノラート）アルミニウム-μ-オキソ-ビス（2, 4-ジメチル-8-キノリノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-4-エチル-8-キノリノラート）アルミニウム-μ-オキソ-ビス（2-メチル-4-エチル-8-キノリノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-4-メトキシ-8-キノリノラート）アルミニウム-μ-オキソ-ビス（2-メチル-4-メトキシ-8-キノリノラート）アルミニウム、ビス（2-メチル-5-シアノ-8-キノリノラート）アルミニウム

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

【0070】電子注入輸送層5は、陰極からの電子の注入を容易にする機能、そして注入された電子を輸送する機能を有する化合物を含有する層である。電子注入輸送層は、本発明に係る化合物Aおよび/または他の電子注入輸送機能を有する化合物(例えば、有機金属錯体[例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(10-ベンゾ[h]キノリノラート)ベリリウム、5-ヒドロキシフラボンのベリリウム塩、5-ヒドロキシフラボンのアルミニウム塩]、オキサジアゾール誘導体[例えば、1, 3-ビス[5'-(p-tert-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール-2'-イル]ベンゼン]、トリアゾール誘導体[例えば、3-(4'-tert-ブチルフェニル)-4-フェニル-5-(4"-ビフェニル)-1, 2, 4-トリアゾール]、トリアジン誘導体、ペリレン誘導体、キノリン誘導体、キノキサリン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、ニトロ置換フルオレノン誘導体、チオピランジオキサイド誘導体など)を少なくとも一種用いて形成することができる。本発明に係る化合物Aと他の電子注入輸送機能を有する化合物を併用する場合、電子注入輸送層中に占める本発明に係る化合物Aの割合は、好ましくは、0.1~40重量%程度に調製する。本発明において、本発明に係る化合物Aと有機金属錯体[例えば、前記一般式(a)~一般式(c)で表される化合物]を併用して、電子注入輸送層を形成することは好ましい。

【0071】陰極6としては、比較的工作関数の小さい金属、合金または電気伝導性化合物を電極物質として使用することが好ましい。陰極に使用する電極物質としては、例えば、リチウム、リチウム-インジウム合金、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、カルシウム、マグネシウム、マグネシウム-銀合金、マグネシウム-インジウム合金、インジウム、ルテニウム、チタニウム、マンガ、ン、イットリウム、アルミニウム、アルミニウム-リチウム合金、アルミニウム-カルシウム合金、アルミニウム-マグネシウム合金、グラファイト薄膜などを挙げることができる。これらの電極物質は、単独で使用してもよく、あるいは、複数併用してもよい。陰極は、これらの電極物質を用いて、例えば、蒸着法、スパッタリング法、イオン化蒸着法、イオンプレーティング法、クラスターイオンビーム法などの方法により、電子注入輸送層の上に形成することができる。また、陰極は一層構造であってもよく、あるいは多層構造であってもよい。尚、陰極のシート電気抵抗は、数百Ω/□以下に設

定することが好ましい。陰極の厚みは、使用する電極物質の材料にもよるが、一般に、5~1000nm程度、より好ましくは、10~500nm程度に設定する。尚、有機電界発光素子の発光を効率よく取り出すために、陽極または陰極の少なくとも一方の電極が、透明ないし半透明であることが好ましく、一般に、発光光の透過率が70%以上となるように陽極の材料、厚みを設定することがより好ましい。

【0072】また、本発明の有機電界発光素子においては、その少なくとも一層中に、一重項酸素クエンチャーが含有されていてもよい。一重項酸素クエンチャーとしては、特に限定するものではなく、例えば、ルブレン、ニッケル錯体、ジフェニルイソベンゾフランなどが挙げられ、特に好ましくは、ルブレンである。一重項酸素クエンチャーが含有されている層としては、特に限定するものではないが、好ましくは、発光層または正孔注入輸送層であり、より好ましくは、正孔注入輸送層である。尚、例えば、正孔注入輸送層に一重項クエンチャーを含有させる場合、正孔注入輸送層中に均一に含有させてもよく、正孔注入輸送層と隣接する層(例えば、発光層、発光機能を有する電子注入輸送層)の近傍に含有させてもよい。一重項酸素クエンチャーの含有量としては、含有される層(例えば、正孔注入輸送層)を構成する全体量の0.01~50重量%、好ましくは、0.05~30重量%、より好ましくは、0.1~20重量%である。

【0073】正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の形成方法に関しては、特に限定するものではなく、例えば、真空蒸着法、イオン化蒸着法、溶液塗布法(例えば、スピンコート法、キャスト法、ディップコート法、バーコート法、ロールコート法、ラングミュア・プロゼット法、インクジェット法など)により薄膜を形成することにより作成することができる。真空蒸着法により、各層を形成する場合、真空蒸着の条件は、特に限定するものではないが、 10^{-5} Torr 程度の真空下で、50~600℃程度のボート温度(蒸着源温度)、-50~300℃程度の基板温度で、0.005~50nm/sec程度の蒸着速度で実施することが好ましい。この場合、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層などの各層は、真空下で、連続して形成することにより、諸特性に一層優れた有機電界発光素子を製造することができる。真空蒸着法により、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層などの各層を、複数の化合物を用いて形成する場合、化合物を入れた各ボートを個別に温度制御して、共蒸着することが好ましい。

【0074】溶液塗布法により、各層を形成する場合、各層を形成する成分あるいはその成分とバインダー樹脂を、溶媒に溶解、または分散させて塗布液とする。正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の各層に使用するバインダー樹脂としては、例えば、ポリ-N-ビニル

カルバゾール、ポリアリレート、ポリスチレン、ポリエステル、ポリシロキサン、ポリメチルアクリレート、ポリメチルメタクリレート、ポリエーテル、ポリカーボネート、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリパラキシレン、ポリエチレン、ポリフェニレンオキサイド、ポリエーテルスルホン、ポリアニリンおよびその誘導体、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリフルオレンおよびその誘導体、ポリチエニレンビニレンおよびその誘導体などの高分子化合物が挙げられる。バインダー樹脂は、単独で使用してもよく、あるいは、複数併用してもよい。

【0075】溶液塗布法により、各層を形成する場合、各層を形成する成分あるいはその成分とバインダー樹脂を、適当な有機溶媒（例えば、ヘキサン、オクタン、デカン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、1-メチルナフタレンなどの炭化水素系溶媒、例えば、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノンなどのケトン系溶媒、例えば、ジクロロメタン、クロロホルム、テトラクロロメタン、ジクロロエタン、トリクロロエタン、テトラクロロエタン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、クロロトルエンなどのハロゲン化炭化水素系溶媒、例えば、酢酸エチル、酢酸ブチル、酢酸アミルなどのエステル系溶媒、例えば、メタノール、プロパノール、ブタノール、ペンタノール、ヘキサノール、シクロヘキサノール、メチルセロソルブ、エチルセロソルブ、エチレングリコールなどのアルコール系溶媒、例えば、ジブチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、アニソールなどのエーテル系溶媒、例えば、N, N-ジメチルホルムアミド、N, N-ジメチルアセトアミド、1-メチル-2-ピロリドン、1-メチル-2-イミダゾリジノン、ジメチルスルフォキシドなどの極性溶媒）および／または水に溶解、または分散させて塗布液とし、各種の塗布法により、薄膜を形成することができる。

【0076】尚、分散する方法としては、特に限定するものではないが、例えば、ボールミル、サンドミル、ペイントシェーカー、アトライター、ホモジナイザーなどを用いて微粒子状に分散することができる。塗布液の濃度に関しては、特に限定するものではなく、実施する塗布法により、所望の厚みを作成するに適した濃度範囲に設定することができ、一般には、0.1～50重量%程度、好ましくは、1～30重量%程度の溶液濃度である。尚、バインダー樹脂を使用する場合、その使用量に関しては、特に制限するものではないが、一般には、各層を形成する成分に対して（一層型の素子を形成する場合には、各成分の総量に対して）、5～99.9重量%程度、好ましくは、10～99.9重量%程度、より好ましくは、15～90重量%程度に設定する。正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の膜厚に関しては、特

に限定するものではないが、一般に、5 nm～5 μm程度に設定することが好ましい。

【0077】尚、作製した素子に対し、酸素や水分との接触を防止する目的で、保護層（封止層）を設けたり、また、素子を、例えば、パラフィン、流動パラフィン、シリコンオイル、フルオロカーボン油、ゼオライト含有フルオロカーボン油などの不活性物質中に封入して保護することができる。保護層に使用する材料としては、例えば、有機高分子材料（例えば、フッ素化樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂、エポキシシリコン樹脂、ポリスチレン、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリパラキシレン、ポリエチレン、ポリフェニレンオキサイド）、無機材料（例えば、ダイヤモンド薄膜、アモルファスシリカ、電気絶縁性ガラス、金属酸化物、金属窒化物、金属炭素化合物、金属硫化物）、さらには光硬化性樹脂などを挙げることができ、保護層に使用する材料は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。保護層は、一層構造であってもよく、また多層構造であってもよい。

【0078】また、電極に保護層として、例えば、金属酸化膜（例えば、酸化アルミニウム膜）、金属フッ化膜を設けることもできる。また、例えば、陽極の表面に、例えば、有機リン化合物、ポリシラン、芳香族アミン誘導体、フタロシアニン誘導体から成る界面層（中間層）を設けることもできる。さらに、電極、例えば、陽極はその表面を、例えば、酸、アンモニア／過酸化水素、あるいはプラズマで処理して使用することもできる。

【0079】本発明の有機電界発光素子は、一般に、直流駆動型の素子として使用されるが、パルス駆動型または交流駆動型の素子としても使用することができる。尚、印可電圧は、一般に、2～30 V程度である。本発明の有機電界発光素子は、例えば、パネル型光源、各種の発光素子、各種の表示素子、各種の標識、各種のセンサーなどに使用することができる。

【0080】

【実施例】以下、製造例および実施例により、本発明を更に詳細に説明するが、勿論、本発明はこれらにより限定されるものではない。

製造例1 例示化合物A-1の化合物の製造

1, 4-ジ(3'-フルオランテニル)ナフタレン5.79 gと三フッ化コバルト11.59 gをトリフルオロ酢酸100 ml中、室温にて、5時間攪拌した。水500 mlを加えた後、析出している結晶を濾取し、水で洗浄した。この結晶をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶出液：トルエン）で処理した。トルエンを減圧下に留去した後、残渣をトルエンとアセトンの混合溶媒より再結晶し、例示化合物A-1の化合物を紫色の結晶として4.4 g得た。融点250℃以上。尚、この化合物は、500℃、 10^{-5} Torrの条件下で昇華することが

できた。

吸収極大（トルエン中）538nm

元素分析：C...H...として

	C	H
計算値 (%)	96.16	3.84
実測値 (%)	96.28	3.72

分子量分析：m/z = 524

【0081】製造例2～41

製造例1において、1,4-ジ(3'-フルオランテニル)ナフタレンを使用する代わりに、種々の1,4-ジ

(3'-フルオランテニル)ナフタレン誘導体を使用した以外は、製造例1に記載した方法に従い、種々のベン*

*ゾ[rst]ジフルオレノ[9,1,2-cde:2',1',9'-klm]ペンタフェン誘導体を製造した。第1表（表1～表5）には使用した1,4-ジ(3'-フルオランテニル)ナフタレン誘導体、および製造したベンゾ[rst]ジフルオレノ[9,1,2-cde:2',1',9'-klm]ペンタフェン誘導体を例示化合物番号で示した。また、トルエン中の吸収極大(nm)も併せて示した。尚、製造された化合物は、いずれも紫色の結晶であり、それらの化合物の融点は250℃以上であった。

【0082】

【表1】

第1表

製造例	1,4-ジ(3'-フルオランテニル)ナフタレン誘導体	例示化合物番号	吸収極大(nm)
2	1,4-ジ(9'-メチル-3'-フルオランテニル)ナフタレン	A-3	537
3	1,4-ジ(10'-メチル-3'-フルオランテニル)ナフタレン	A-4	538
4	1,4-ジ(8'-エチル-3'-フルオランテニル)ナフタレン	A-7	540
5	1,4-ジ(9'-n-プロピル-3'-フルオランテニル)ナフタレン	A-10	540
6	1,4-ジ(9'-n-ヘキシル-3'-フルオランテニル)ナフタレン	A-17	540
7	1,4-ジ(9'-シクロヘキシル-3'-フルオランテニル)ナフタレン	A-18	543
8	1,4-ジ(8',9'-ジメチル-3'-フルオランテニル)ナフタレン	A-21	539
9	1,4-ジ(7',10'-ジエチル-3'-フルオランテニル)ナフタレン	A-22	537
10	1,4-ジ(8',9'-ジエチル-3'-フルオランテニル)ナフタレン	A-23	537
11	1,4-ジ(7',10'-ジ-n-プロピル-3'-フルオランテニル)ナフタレン	A-25	538

【0083】

【表2】

第1表(続き)

製造例	1,4 -ジ (3' -フルオランテニル) ナフタレン誘導体	例示化合 物番号	吸収極大 (nm)
12	1,4 -ジ (7',10' -ジ-n-ヘキシル-3' -フルオランテニル) ナフタレン	A-29	539
13	1,4 -ジ (7',8',9',10' -テトラメチル -3' -フルオランテニル) ナフタレン	A-33	542
14	1,4 -ジ (7' -メトキシ-3' -フルオラ ンテニル) ナフタレン	B-3	545
15	1,4 -ジ (8' -エトキシ-3' -フルオラ ンテニル) ナフタレン	B-6	543
16	1,4 -ジ (8' -n-ブチルオキシ-3' - フルオランテニル) ナフタレン	B-7	540
17	1,4 -ジ (8' -tert-ブチルオキシ-3' -フルオランテニル) ナフタレン	B-12	543
18	1,4 -ジ (7' -フェニル-3' -フルオラ ンテニル) ナフタレン	C-1	545
19	1,4 -ジ (7' - (4"-メチルフェニル) -3' -フルオランテニル) ナフタレン	C-3	545
20	1,4 -ジ (7',10' -ジメチル-8' -フェ ニル-3' -フルオランテニル) ナフタレ ン	C-4	546

【0084】

【表3】

第1表(続き)

製造例	1,4-ジ(3'-フルオランテニル) ナフタレン誘導体	例示化合物 番号	吸収極大 (nm)
21	1,4-ジ(7',10'-ジエチル-8'-フェ ニル-3'-フルオランテニル)ナフタレ ン	C-7	548
22	1,4-ジ(7',10'-ジ-n-プロピル-8' -フェニル-3'-フルオランテニル)ナ フタレン	C-11	543
23	1,4-ジ(7',10'-ジメチル-8',9'-ジ フェニル-3'-フルオランテニル)ナフ タレン	C-18	548
24	1,4-ジ(7',10'-ジメチル-8'-(4" -メチルフェニル)-9'-フェニル-3' -フルオランテニル)ナフタレン	C-19	548
25	1,4-ジ(7',10'-ジ-n-プロピル-8' ,9'-ジフェニル-3'-フルオランテニ ル)ナフタレン	C-23	552
26	1,4-ジ(7',10'-ジ-iso-プロピル- 8',9'-ジフェニル-3'-フルオランテ ニル)ナフタレン	C-25	552
27	1,4-ジ(7',10'-ジ-n-ヘキシル-8' ,9'-ジフェニル-3'-フルオランテニ ル)ナフタレン	C-28	550

【0085】

【表4】

第1表(続き)

製造例	1,4-ジ(3'-フルオランテニル) ナフタレン誘導体	例示化合物番号	吸収極大 (nm)
28	1,4-ジ(7',10'-ジフェニル-8',9'-ジメチル-3'-フルオランテニル)ナフタレン	C-43	555
29	1,4-ジ(7',10'-ジフェニル-8',9'-ジエチル-3'-フルオランテニル)ナフタレン	C-44	555
30	1,4-ジ(7',10'-ジフェニル-8',9'-ジ-n-ブチル-3'-フルオランテニル)ナフタレン	C-47	553
31	1,4-ジ(7',10'-ジフェニル-8',9'-ジ-n-ヘキシル-3'-フルオランテニル)ナフタレン	C-48	554
32	1,4-ジ(7',8',10'-トリフェニル-3'-フルオランテニル)ナフタレン	C-51	558
33	1,4-ジ(7',8',10'-トリ(4"-メチルフェニル)-3'-フルオランテニル)ナフタレン	C-52	556
34	1,4-ジ(7',8',10'-トリ(4"-メトキシフェニル)-3'-フルオランテニル)ナフタレン	C-54	558

【0086】

【表5】

第1表(続き)

製造例	1,4-ジ(3'-フルオランテニル)ナフタレン誘導体	例示化合物番号	吸収極大(nm)
35	1,4-ジ[7',10'-ジフェニル-8'-(4"-メチルフェニル)-3'-フルオランテニル]ナフタレン	C-56	555
36	1,4-ジ[7',10'-ジフェニル-8'-(4"-フェニルフェニル)-3'-フルオランテニル]ナフタレン	C-59	559
37	1,4-ジ(7',8',10'-トリフェニル-9'-エチル-3'-フルオランテニル)ナフタレン	C-63	552
38	1,4-ジ[7',10'-ジフェニル-8'-(4"-エチルフェニル)-9'-n-ペンチル-3'-フルオランテニル]ナフタレン	C-66	553
39	1,4-ジ(7',8',9',10'-テトラフェニル-3'-フルオランテニル)ナフタレン	C-70	558
40	1,4-ジ[7',10'-ジフェニル-8',9'-ジ(4"-メチルフェニル)-3'-フルオランテニル]ナフタレン	C-71	557
41	1,4-ジ[7',10'-ジ(4"-エチルフェニル)-8',9'-ジフェニル-3'-フルオランテニル]ナフタレン	C-76	556

【0087】実施例1

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を 3×10^{-6} Torrに減圧した。まず、ITO透明電極上に、4,4'-ビス[N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ]ビフェニルを蒸着速度0.2nm/secで75nmの厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(4-フェニルフェノラート)アルミニウムとベンゾ[rst]ジフルオレノ[9,1,2-cde:2',1',9'-klm]ペンタフェン(例示化合物番号A-1の化合物)を、異なる蒸着源から、蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに共蒸着(重量比100:0.5)し、発光層とした。次に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを、蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着(重量比2010:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、12

Vの直流電圧を印加したところ、 $5.2\text{mA}/\text{cm}^2$ の電流が流れた。輝度 $2430\text{cd}/\text{m}^2$ の赤色の発光が確認された。

【0088】実施例2~41

実施例1において、発光層の形成に際して、例示化合物A-1の化合物を使用する代わりに、例示化合物番号A-3の化合物(実施例2)、例示化合物番号A-4の化合物(実施例3)、例示化合物番号A-7の化合物(実施例4)、例示化合物番号A-10の化合物(実施例5)、例示化合物番号A-17の化合物(実施例6)、例示化合物番号A-18の化合物(実施例7)、例示化合物番号A-21の化合物(実施例8)、例示化合物番号A-22の化合物(実施例9)、例示化合物番号A-23の化合物(実施例10)、例示化合物番号A-25の化合物(実施例11)、例示化合物番号A-29の化合物(実施例12)、例示化合物番号A-33の化合物(実施例13)、例示化合物番号B-3の化合物(実施例14)、例示化合物番号B-6の化合物(実施例15)、例示化合物番号B-7の化合物(実施例16)、例示化合物番号B-12の化合物(実施例17)、例示化合物番号C-1の化合物(実施例18)、例示化合物番号C-3の化合物(実施例19)、例示化合物番号C-4の化合物(実施例20)、例示化合物番号C-7の

第2表

化合物（実施例21）、例示化合物番号C-11の化合物（実施例22）、例示化合物番号C-18の化合物（実施例23）、例示化合物番号C-19の化合物（実施例24）、例示化合物番号C-23の化合物（実施例25）、例示化合物番号C-25の化合物（実施例26）、例示化合物番号C-28の化合物（実施例27）、例示化合物番号C-43の化合物（実施例28）、例示化合物番号C-44の化合物（実施例29）、例示化合物番号C-47の化合物（実施例30）、例示化合物番号C-48の化合物（実施例31）、例示化合物番号C-51の化合物（実施例32）、例示化合物番号C-52の化合物（実施例33）、例示化合物番号C-54の化合物（実施例34）、例示化合物番号C-56の化合物（実施例35）、例示化合物番号C-59の化合物（実施例36）、例示化合物番号C-63の化合物（実施例37）、例示化合物番号C-66の化合物（実施例38）、例示化合物番号C-70の化合物（実施例39）、例示化合物番号C-71の化合物（実施例40）、例示化合物番号C-76の化合物（実施例41）
 を使用した以外は、実施例1に記載の方法により有機電界発光素子を作製した。それぞれの素子に、乾燥雰囲気下、12Vの直流電圧を印加したところ、赤色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第2表（表6～表7）に示した。

【0089】比較例1

実施例1において、発光層の形成に際して、例示化合物番号A-1の化合物を使用せずに、ビス（2-メチルー8-キノリノラート）（4-フェニルフェノラート）アルミニウムだけを用いて、50nmの厚さに蒸着し、発光層とした以外は、実施例1に記載の方法により有機電界発光素子を作製した。この素子に、乾燥雰囲気下、12Vの直流電圧を印加したところ、青色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第2表に示した。

【0090】比較例2

実施例1において、発光層の形成に際して、例示化合物番号A-1の化合物を使用する代わりに、N-メチルー2-メトキシアクリドンを使用した以外は、実施例1に記載の方法により有機電界発光素子を作製した。この素子に、乾燥雰囲気下、12Vの直流電圧を印加したところ、青色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第2表に示した。

【0091】

【表6】

有機電界 発光素子	輝度 (cd/m ²)	電流密度 (mA/cm ²)
実施例 2	2450	53
実施例 3	2330	55
実施例 4	2400	56
実施例 5	2440	54
実施例 6	2380	56
実施例 7	2320	53
実施例 8	2440	54
実施例 9	2430	54
実施例 10	2370	56
実施例 11	2350	55
実施例 12	2420	54
実施例 13	2470	54
実施例 14	2500	55
実施例 15	2450	53
実施例 16	2470	54
実施例 17	2460	56
実施例 18	2420	53
実施例 19	2490	56
実施例 20	2380	54
実施例 21	2420	56
実施例 22	2390	53
実施例 23	2380	54
実施例 24	2430	54
実施例 25	2410	55
実施例 26	2380	53
実施例 27	2320	53
実施例 28	2340	55

【0092】

【表7】

第2表(続き)

93

有機電界 発光素子	輝度 (cd/m^2)	電流密度 (mA/cm^2)
実施例29	2380	52
実施例30	2420	56
実施例31	2360	53
実施例32	2330	52
実施例33	2420	55
実施例34	2440	54
実施例35	2320	54
実施例36	2380	53
実施例37	2420	55
実施例38	2380	53
実施例39	2390	56
実施例40	2440	53
実施例41	2330	55
比較例 1	1170	82
比較例 2	1550	74

【0093】実施例42

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を 3×10^{-6} Torr に減圧した。まず、ITO透明電極上に、4, 4'-ビス[N-フェニル-N-(3'-メチルフェニル)アミノ]ビフェニルを蒸着速度0.2nm/secで75nmの厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(4-フェニルフェノラート)アルミニウムと例示化合物番号A-3の化合物を、異なる蒸着源から、蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに共蒸着(重量比100:1.0)し、発光層とした。次に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを、蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、12Vの直流電圧を印加したところ、 $54\text{mA}/\text{cm}^2$ の電流が流れた。輝度 $2380\text{cd}/\text{m}^2$ の赤色の発光が確認された。

【0094】実施例43

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

94

に固定した後、蒸着槽を 3×10^{-6} Torr に減圧した。まず、ITO透明電極上に、4, 4'-ビス[N-フェニル-N-(3'-メチルフェニル)アミノ]ビフェニルを蒸着速度0.2nm/secで75nmの厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム-μ-オキソビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウムと例示化合物番号A-4の化合物を、異なる蒸着源から、蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに共蒸着(重量比100:2.0)し、発光層とした。次に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを、蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、12Vの直流電圧を印加したところ、 $54\text{mA}/\text{cm}^2$ の電流が流れた。輝度 $2400\text{cd}/\text{m}^2$ の赤色の発光が確認された。

【0095】実施例44

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を 3×10^{-6} Torr に減圧した。まず、ITO透明電極上に、4, 4'-ビス[N-フェニル-N-(3'-メチルフェニル)アミノ]ビフェニルを蒸着速度0.2nm/secで75nmの厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム-μ-オキソビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウムと例示化合物番号A-7の化合物を、異なる蒸着源から、蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに共蒸着(重量比100:4.0)し、発光層とした。次に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを、蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、12Vの直流電圧を印加したところ、 $57\text{mA}/\text{cm}^2$ の電流が流れた。輝度 $2320\text{cd}/\text{m}^2$ の赤色の発光が確認された。

【0096】実施例45

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

に固定した後、蒸着槽を 3×10^{-6} Torr に減圧した。まず、ITO透明電極上に、4, 4'-ビス〔N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ〕ビフェニルを蒸着速度 0.2 nm/sec で 75 nm の厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムと例示化合物番号 A-10 の化合物を、異なる蒸着源から、蒸着速度 0.2 nm/sec で 50 nm の厚さに共蒸着(重量比 $10:6.0$)し、発光層とした。次に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを、蒸着速度 0.2 nm/sec で 50 nm の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度 0.2 nm/sec で 200 nm の厚さに共蒸着(重量比 $10:1$)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、 12 V の直流電圧を印加したところ、 55 mA/cm^2 の電流が流れた。輝度 2230 cd/m^2 の赤色の発光が確認された。

【0097】実施例46

厚さ 200 nm のITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を 3×10^{-6} Torr に減圧した。まず、ITO透明電極上に、4, 4'-ビス〔N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ〕ビフェニルを蒸着速度 0.2 nm/sec で 75 nm の厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムと例示化合物番号 C-47 の化合物を、異なる蒸着源から、蒸着速度 0.2 nm/sec で 50 nm の厚さに共蒸着(重量比 $10:10$)し、発光層とした。次に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを、蒸着速度 0.2 nm/sec で 50 nm の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度 0.2 nm/sec で 200 nm の厚さに共蒸着(重量比 $10:1$)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、 12 V の直流電圧を印加したところ、 60 mA/cm^2 の電流が流れた。輝度 2420 cd/m^2 の赤色の発光が確認された。

【0098】実施例47

厚さ 200 nm のITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を 3×10^{-6} Torr に減圧した。まず、ITO透明電極上に、4, 4'-ビス〔N-フェ

ニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ〕ビフェニルを蒸着速度 0.2 nm/sec で 75 nm の厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムと例示化合物番号 C-70 の化合物を、異なる蒸着源から、蒸着速度 0.2 nm/sec で 50 nm の厚さに共蒸着(重量比 $10:1.0$)し、電子注入輸送層を兼ねた発光層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度 0.2 nm/sec で 200 nm の厚さに共蒸着(重量比 $10:1$)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、 12 V の直流電圧を印加したところ、 54 mA/cm^2 の電流が流れた。輝度 2220 cd/m^2 の赤色の発光が確認された。

【0099】実施例48

厚さ 200 nm のITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を 3×10^{-6} Torr に減圧した。まず、ITO透明電極上に、4, 4'-ビス〔N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ〕ビフェニルを蒸着速度 0.2 nm/sec で 75 nm の厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、例示化合物番号 C-70 の化合物を、蒸着速度 0.2 nm/sec で 50 nm の厚さに蒸着し、発光層とした。次いで、その上に、1, 3-ビス〔5'-(p-tert-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール-2'-イル〕ベンゼンを、蒸着速度 0.2 nm/sec で 50 nm の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度 0.2 nm/sec で 200 nm の厚さに共蒸着(重量比 $10:1$)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、 14 V の直流電圧を印加したところ、 41 mA/cm^2 の電流が流れた。輝度 1850 cd/m^2 の赤色の発光が確認された。

【0100】実施例49

厚さ 200 nm のITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を 3×10^{-6} Torr に減圧した。まず、ITO透明電極上に、例示化合物番号 A-22 の化合物を蒸着速度 0.2 nm/sec で 55 nm の厚さに蒸着し、発光層とした。次いで、その上に、1, 3-ビス〔5'-(p-tert-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール-2'-イル〕ベンゼンを、蒸着速度 0.2 nm/sec で 75 nm の厚さに蒸着し、電子注

入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2 nm/sec で200 nmの厚さに共蒸着（重量比10:1）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、14 Vの直流電圧を印加したところ、63 mA/cm² の電流が流れた。輝度1320 cd/m² の赤色の発光が確認された。

【0101】実施例50

厚さ200 nmのITO透明電極（陽極）を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を3×10⁻⁶ Torr に減圧した。まず、ITO透明電極上に、4, 4', 4"-トリス〔N-(3'-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ〕トリフェニルアミンを蒸着速度0.1 nm/sec で、50 nmの厚さに蒸着し、第一正孔注入輸送層とした。次いで、4, 4', -ビス〔N-フェニル-N-(1"-ナフチル)アミノ〕ビフェニルと例示化合物番号A-1の化合物を、異なる蒸着源から、蒸着速度0.2 nm/sec で20 nmの厚さに共蒸着（重量比10:5）し、第二正孔注入輸送層を兼ねた発光層とした。次いで、その上に、トリス（8-キノリノラート）アルミニウムを、蒸着速度0.2 nm/sec で50 nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2 nm/sec で200 nmの厚さに共蒸着（重量比10:1）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、15 Vの直流電圧を印加したところ、68 mA/cm² の電流が流れた。輝度2680 cd/m² の赤色の発光が確認された。

【0102】実施例51～63

実施例50において、例示化合物番号A-1の化合物を使用する代わりに、例示化合物番号A-2の化合物（実施例51）、例示化合物番号A-4の化合物（実施例52）、例示化合物番号A-17の化合物（実施例53）、例示化合物番号A-21の化合物（実施例54）、例示化合物番号A-25の化合物（実施例55）、例示化合物番号A-29の化合物（実施例56）、例示化合物番号B-7の化合物（実施例57）、例示化合物番号B-12の化合物（実施例58）、例示化合物番号C-18の化合物（実施例59）、例示化合物番号C-28の化合物（実施例60）、例示化合物番号C-44の化合物（実施例61）、例示化合物番号C-48の化合物（実施例62）、例示化合物番号C-59の化合物（実施例63）を使用した以外は、実施例50に記載の方法により有機電界発光素子を作製した。それぞれの素子に、乾燥雰囲気下、12 Vの直流電圧を印

*加したところ、赤色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第3表（表8）に示した。

【0103】

【表8】

第3表

有機電界 発光素子	輝度 (cd/m ²)	電流密度 (mA/cm ²)
実施例51	2480	55
実施例52	2520	56
実施例53	2680	53
実施例54	2590	53
実施例55	2720	56
実施例56	2430	54
実施例57	2650	55
実施例58	2720	57
実施例59	2610	53
実施例60	2420	55
実施例61	2760	58
実施例62	2570	57
実施例63	2550	56

【0104】実施例64

厚さ200 nmのITO透明電極（陽極）を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した。次に、ITO透明電極上に、ポリ-N-ビニルカルbazool（重量平均分子量150000）、1, 1, 4, 4, -テトラフェニル1, 3-ブタジエン（青色の発光成分）、クマリン6〔3-(2'-ベンゾチアゾリル)-7-ジエチルアミノクマリン〕（緑色の発光成分）、および例示化合物番号A-10の化合物を、それぞれ重量比100:5:3:2の割合で含有する3重量%のジクロロエタン溶液を用いて、ディップコート法により、400 nmの発光層を形成した。次に、この発光層を有するガラス基板を、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を3×10⁻⁶ Torr に減圧した。さらに、発光層の上に、3-(4'-tert-ブチルフェニル)-4-フェニル-5-(4"-ビフェニル)1, 2, 4-トリアゾールを蒸着速度0.2 nm/sec で20 nmの厚さに蒸着した後、さらにその上に、トリス（8-キノリノラート）アルミニウムを、蒸着速度0.2 nm/sec で30 nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2 nm/sec で200 nmの厚さに共蒸着（重量比10:1）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、12 Vの直流電圧を印加したところ、68 mA/cm² の電流が流れた。輝度1240 cd/m² の白色の発光が確認された。

【0105】実施例65～70

実施例64において、例示化合物番号A-10の化合物を用いる代わりに、例示化合物番号A-18の化合物（実施例65）、例示化合物番号A-29の化合物（実施例66）、例示化合物番号C-4の化合物（実施例67）、例示化合物番号C-23の化合物（実施例68）、例示化合物番号C-28の化合物（実施例69）、例示化合物番号C-54の化合物（実施例70）を使用した以外は、実施例64に記載の方法により有機電界発光素子を作製した。それぞれの素子に、乾燥雰囲気下、12Vの直流電圧を印加したところ、白色の発光が観察された。さらにその特性を調べ、結果を第4表（表9）に示した。

【0106】

【表9】

第4表

有機電界 発光素子	輝度 (cd/m^2)	電流密度 (mA/cm^2)
実施例65	1240	73
実施例66	1260	75
実施例67	1250	76
実施例68	1240	77
実施例69	1250	76
実施例70	1240	74

【0107】実施例71

厚さ200nmのITO透明電極（陽極）を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した。次に、ITO透明電極上に、ポリ-N-ビニルカルバゾール（重量平均分子量150000）、1,3-ビス〔5'-（p-tert-ブチルフェニル）-1,3,4-オキサジアゾール-2'-イル〕ベンゼン、および例示化合物番号A-3の化合物を、それぞれ重量比100:30:3の割合で含有する3重量%のジクロロエタン溶液を用いて、ディップコート法により、300nmの発光層を形成した。次に、この発光層を有するガラス基板を、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を 3×10^{-6} Torrに減圧した。さらに、発光層の上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着（重量比10:1）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、15Vの直流電圧を印加したところ、74mA/cm²の電流が流れた。輝度1340cd/m²の赤色の発光が確認された。

【0108】比較例3

実施例71において、発光層の形成に際して、例示化合物番号A-3の化合物の代わりに、1,1,4,4-テトラフェニル-1,3-ブタジエンを使用した以外は、

実施例71に記載の方法により有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、15Vの直流電圧を印加したところ、86mA/cm²の電流が流れた。輝度750cd/m²の青色の発光が確認された。

【0109】実施例72

厚さ200nmのITO透明電極（陽極）を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した。次に、ITO透明電極上に、ポリカーボネート（重量平均分子量50000）、4,4'-ビス〔N-フェニル-N-（3'-メチルフェニル）アミノ〕ビフェニル、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）アルミニウム-μ-オキソ-ビス（2-メチル-8-キノリノラート）アルミニウムおよび例示化合物番号C-18の化合物を、それぞれ重量比100:40:60:1の割合で含有する3重量%のジクロロエタン溶液を用いて、ディップコート法により、300nmの発光層を形成した。次に、この発光層を有するガラス基板を、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を 3×10^{-6} Torrに減圧した。さらに、発光層の上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着（重量比10:1）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、15Vの直流電圧を印加したところ、65mA/cm²の電流が流れた。輝度890cd/m²の赤色の発光が確認された。

【0110】

【発明の効果】本発明により、発光輝度が優れた有機電界発光素子を提供することが可能になった。さらに、該発光素子に適した炭化水素化合物を提供することが可能になった。

【図面の簡単な説明】

【図1】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【図2】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【図3】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【図4】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【図5】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【図6】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【図7】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【図8】有機電界発光素子の一例の概略構造図である。

【符号の説明】

1 : 基板

2 : 陽極

3 : 正孔注入輸送層

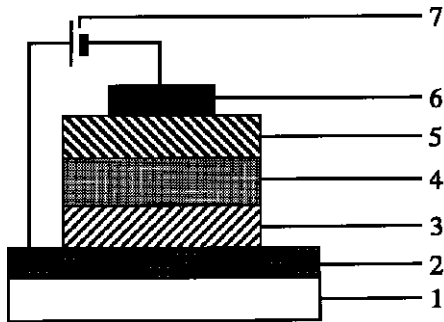
5a: 電子注入輸送成分

6: 陰極

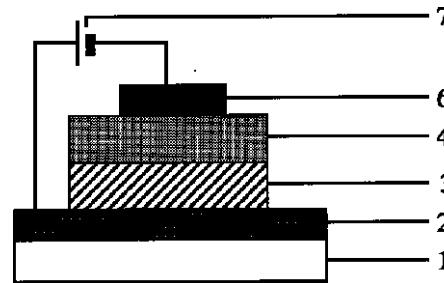
*7: 電源

*

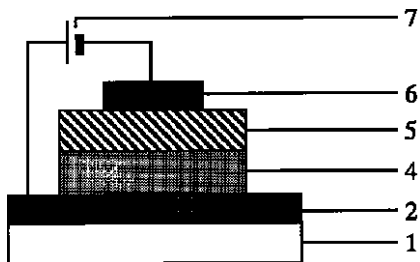
【図1】



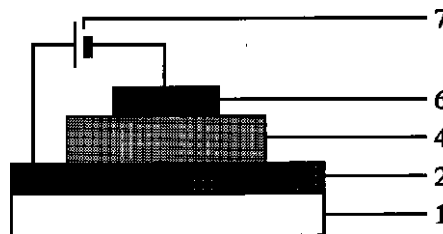
【図2】



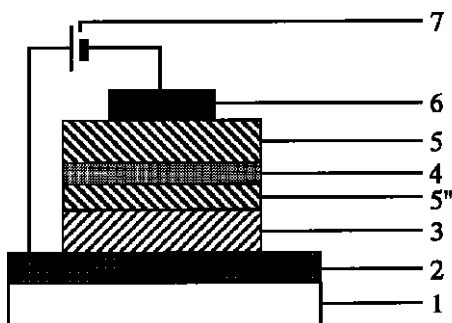
【図3】



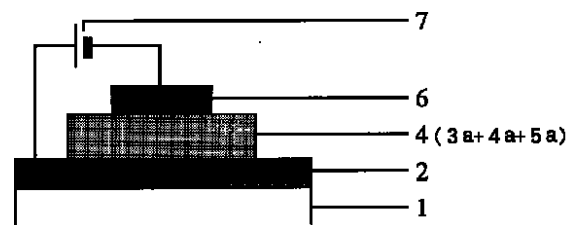
【図4】



【図5】



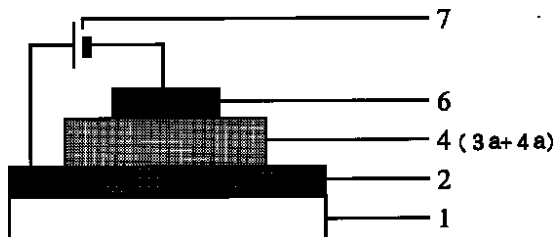
【図6】



【図8】



【図7】



フロントページの続き

(72)発明者 中塚 正勝

千葉県袖ヶ浦市長浦580番地32 三井化学

株式会社内

Fターム(参考) 3K007 AB02 AB03 AB06 BB06 CA01

CA02 CA05 CA06 CB01 DA00

DA01 DB03 EB00 FA01

4H006 AA03 AB92 EA37

专利名称(译)	烃化合物和有机电致发光器件		
公开(公告)号	JP2001230080A	公开(公告)日	2001-08-24
申请号	JP2000042550	申请日	2000-02-21
[标]申请(专利权)人(译)	三井化学株式会社		
申请(专利权)人(译)	三井化学株式会社		
[标]发明人	石田 努 島村 武彦 中塚 正勝		
发明人	石田 努 島村 武彦 中塚 正勝		
IPC分类号	C09K11/06 C07C13/62 H01L51/50 H05B33/14 H05B33/22		
CPC分类号	Y02B20/181		
FI分类号	H05B33/14.B C07C13/62 C09K11/06.610 H05B33/22.D H05B33/22.B		
F-TERM分类号	3K007/AB02 3K007/AB03 3K007/AB06 3K007/BB06 3K007/CA01 3K007/CA02 3K007/CA05 3K007/CA06 3K007/CB01 3K007/DA00 3K007/DA01 3K007/DB03 3K007/EB00 3K007/FA01 4H006/AA03 4H006/AB92 4H006/EA37 3K107/AA01 3K107/BB02 3K107/BB03 3K107/CC02 3K107/CC04 3K107/DD53 3K107/DD59 3K107/DD64 3K107/DD68 3K107/DD69 3K107/DD71 3K107/DD74		
其他公开文献	JP3998391B2		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

通式 (1-A) 表示的化合物和使用该化合物的电致发光器件。(式中, X1 ~X20分别独立地为氢原子, 卤素原子, 直链, 支链或环状的烷基, 直链, 支链或环状的烷氧基, 或取代或未取代的基团)。代表的芳基[效果]提供一种具有优异的发光效率并且发射具有高亮度的光的有机电致发光器件。

一般式 (1 - A) で表される化合物およ

