

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2004-196716

(P2004-196716A)

(43) 公開日 平成16年7月15日(2004.7.15)

(51) Int. Cl. <sup>7</sup>	F I	テーマコード (参考)
C07C 211/54	C07C 211/54	3K007
C07C 211/58	C07C 211/58	4H006
C09K 11/06	C09K 11/06 625	
H05B 33/14	C09K 11/06 645	
H05B 33/22	C09K 11/06 690	

審査請求 未請求 請求項の数 7 O L (全 69 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2002-367559 (P2002-367559)	(71) 出願人	000005887 三井化学株式会社 東京都港区東新橋一丁目5番2号
(22) 出願日	平成14年12月19日 (2002.12.19)	(72) 発明者	戸谷 由之 千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 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580-32 三井化学株式会社内
		(72) 発明者	田辺 良満 千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 三井化学株式会社内
		(72) 発明者	塚田 英孝 千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 三井化学株式会社内

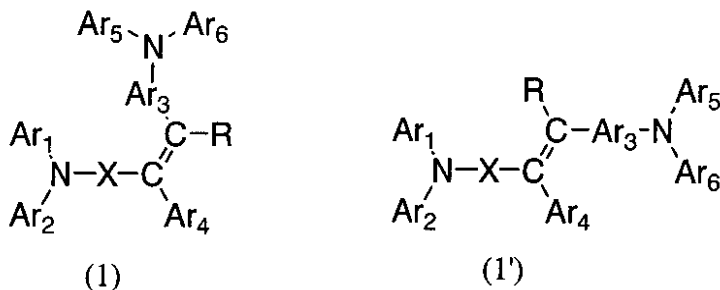
最終頁に続く

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

(57) 【要約】

【解決手段】 一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物、および一对の電極間に一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物を少なくとも1種含有する層を少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子。

【化1】



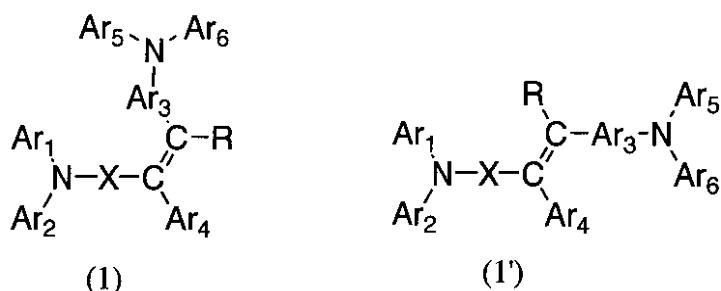
〔式中、Ar<sub>1</sub>、Ar<sub>2</sub>、Ar<sub>4</sub>、Ar<sub>5</sub>およびAr<sub>6</sub>は置換または未置換の芳香族炭化水素基、置換または未置換の芳香族複素環基を表し、Ar<sub>1</sub>とAr<sub>2</sub>、および/またはAr<sub>5</sub>とAr<sub>6</sub>は互いに結合して含窒素複素環を形成していてもよく、Rは水素原子、シアノ基、ハロゲン原子、置換または未置換の直鎖、分岐または環状のアルキル基、置換または未置換の芳香族炭化水素基、あるいは、置換または未置換の芳香族複素環基を表し、Xおよび

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

一般式 (1) および / または (1') で表されるジアミン化合物。

## 【化 1】



10

〔式中、 $Ar_1$ 、 $Ar_2$ 、 $Ar_4$ 、 $Ar_5$  および  $Ar_6$  は置換または未置換の芳香族炭化水素基、置換または未置換の芳香族複素環基を表し、 $Ar_1$  と  $Ar_2$ 、および / または  $Ar_5$  と  $Ar_6$  は互いに結合して含窒素複素環を形成していてもよく、 $R$  は水素原子、シアノ基、ハロゲン原子、置換または未置換の直鎖、分岐または環状のアルキル基、置換または未置換の芳香族炭化水素基、あるいは、置換または未置換の芳香族複素環基を表し、 $X$  および  $Ar_3$  は 2 価の芳香族炭化水素基または 2 価の芳香族複素環基を表す〕

## 【請求項 2】

一般式 (1) および / または (1') で表されるジアミン化合物において、 $Ar_3$  がフェニレン基であり、 $Ar_4$  がフェニル基である請求項 1 記載のジアミン化合物。

20

## 【請求項 3】

一对の電極間に、一般式 (1) および / または (1') で表されるジアミン化合物を少なくとも 1 種含有する層を少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子。

## 【請求項 4】

一般式 (1) および / または (1') で表されるジアミン化合物を含有する層が、発光層である請求項 3 記載の有機電界発光素子。

## 【請求項 5】

一般式 (1) および / または (1') で表されるジアミン化合物を含有する層が、正孔注入輸送層である請求項 3 記載の有機電界発光素子。

30

## 【請求項 6】

一对の電極間に、さらに、正孔注入輸送層を有する請求項 3、4 または 5 に記載の有機電界発光素子。

## 【請求項 7】

一对の電極間に、さらに、電子注入輸送層を有する請求項 3 ~ 6 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、新規なジアミン化合物および該ジアミン化合物を含有してなる有機電界発光素子に関する。

40

## 【0002】

## 【従来の技術】

従来、ジアミン化合物は各種色素の製造中間体、医農薬分野における製造中間体、あるいは各種の機能材料として使用されてきた。機能材料としては、例えば、電子写真感光体の電荷輸送材料に使用されてきた。最近では、発光材料に有機材料を用いた有機電界発光素子（有機エレクトロルミネッセンス素子：有機 EL 素子）の正孔注入輸送材料として有用であることが提案されている（例えば、非特許文献 1 参照）。

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した構造を有し、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

50

シントン)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、有機電界発光素子は、安定性、耐久性に乏しいなどの欠点を有している。有機電界発光素子の蛍光性有機化合物を含む薄膜への正孔の注入輸送を効率よく行う目的で、正孔注入輸送材料として、4,4'-ビス[N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ]ビフェニルを用いることが提案されている(例えば、非特許文献2参照)。

また、正孔注入輸送材料として、例えば、9,9-ジアルキル-2,7-ビス(N,N-ジフェニルアミノ)フルオレン誘導体(例えば、9,9-ジメチル-2,7-ビス(N,N-ジフェニルアミノ)フルオレン)を用いることも提案されている(特許文献1参照)。

しかしながら、これらのジアミン化合物を正孔注入輸送材料として使用した有機電界発光素子も、安定性、耐久性に乏しいなどの難点があった。

現在では、安定性、耐久性に優れた有機電界発光素子が求められており、そのため、有機電界発光素子として使用した際に優れた特性を示す新規なジアミン化合物が望まれている。

【0003】

【非特許文献1】Appl.Phys.lett.,51,913(1987)

【非特許文献2】Jpn.J.Appl.Phys.,27,L269(1988)

【特許文献1】特開平5-25473号公報

【0004】

【発明が解決しようとする課題】

本発明の課題は、新規なジアミン化合物を提供することである。さらに詳しくは、例えば、有機電界発光素子の発光材料として、好適に使用することができるジアミン化合物を提供することである。

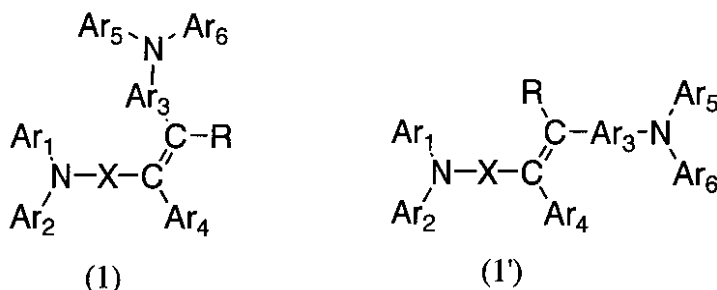
【0005】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、上記課題を解決するために、種々のジアミン化合物、特に、有機電界発光素子の発光材料に好適に使用できるジアミン化合物に関して鋭意検討を行った結果、本発明を完成させるに至った。すなわち、本発明は、1一般式(1)および/または(1')

【0006】

【化2】



〔式中、Ar<sub>1</sub>、Ar<sub>2</sub>、Ar<sub>4</sub>、Ar<sub>5</sub>およびAr<sub>6</sub>は置換または未置換の芳香族炭化水素基、置換または未置換の芳香族複素環基を表し、Ar<sub>1</sub>とAr<sub>2</sub>、および/またはAr<sub>5</sub>とAr<sub>6</sub>は互いに結合して含窒素複素環を形成していてもよく、Rは水素原子、シアノ基、ハロゲン原子、置換または未置換の直鎖、分岐または環状のアルキル基、置換または未置換の芳香族炭化水素基、あるいは、置換または未置換の芳香族複素環基を表し、XおよびAr<sub>3</sub>は2価の芳香族炭化水素基または2価の芳香族複素環基を表す〕

10

20

30

40

50

2 一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物において、 $Ar_3$ がフェニレン基であり、 $Ar_4$ がフェニル基である請求項1記載のジアミン化合物、

3 一对の電極間に、一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物を少なくとも1種含有する層を少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子、

4 一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物を含有する層が、発光層である 3 記載の有機電界発光素子、

5 一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物を含有する層が、正孔注入輸送層である 3 記載の有機電界発光素子、

6 一对の電極間に、さらに、正孔注入輸送層を有する 3、4 および 5 に記載の有機電界発光素子、

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

10

【0007】

【発明の実施の形態】

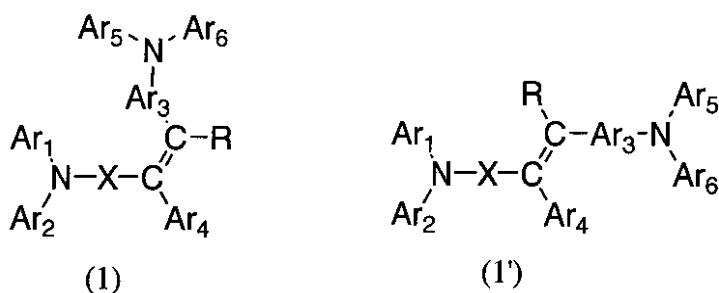
以下、本発明に関し詳細に説明する。

本発明のジアミン化合物は一般式(1)および/または(1')で表される化合物である。

【0008】

【化3】

20



式中、 $Ar_1$ 、 $Ar_2$ 、 $Ar_4$ 、 $Ar_5$ および $Ar_6$ は置換または未置換の芳香族炭化水素基、置換または未置換の芳香族複素環基を表し、 $Ar_1$ と $Ar_2$ 、および/または $Ar_5$ と $Ar_6$ は互いに結合して含窒素複素環を形成していてもよく、 $R$ は水素原子、シアノ基、ハロゲン原子、置換または未置換の直鎖、分岐または環状のアルキル基、置換または未置換の芳香族炭化水素基、あるいは、置換または未置換の芳香族複素環基を表し、 $X$ および $Ar_3$ は2価の芳香族炭化水素基または2価の芳香族複素環基を表す

30

一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物において、 $Ar_1$ 、 $Ar_2$ 、 $Ar_4$ 、 $Ar_5$ および $Ar_6$ は好ましくは、炭素数6~20の置換または未置換の芳香族炭化水素環基、炭素数4~20の置換または未置換の芳香族複素環基を表し、より好ましくは、炭素数6~15の置換または未置換の芳香族炭化水素環基、炭素数4~20の置換または未置換の芳香族複素環基を表し、さらに好ましくは、炭素数6~12の置換又は未置換の芳香族炭化水素環基、炭素数4~12の置換または未置換の芳香族複素環基を表す

40

$Ar_1$ 、 $Ar_2$ 、 $Ar_4$ 、 $Ar_5$ および $Ar_6$ の具体例としては、例えば、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、フルオレニル基、4-キノリル基、4-ピリジル基、3-ピリジル基、2-ピリジル基、3-フリル基、2-フリル基、3-チエニル基、2-チエニル基、2-オキサゾリル基、2-チアゾリル基、2-ベンゾオキサゾリル基、2-ベンゾチアゾリル基、2-ベンゾイミダゾリル基、

4-メチルフェニル基、3-メチルフェニル基、2-メチルフェニル基、4-エチルフェニル基、3-エチルフェニル基、2-エチルフェニル基、4-n-プロピルフェニル基、

50

4 - イソプロピルフェニル基、2 - イソプロピルフェニル基、4 - n - ブチルフェニル基、4 - イソブチルフェニル基、4 - sec - ブチルフェニル基、2 - sec - ブチルフェニル基、4 - tert - ブチルフェニル基、3 - tert - ブチルフェニル基、2 - tert - ブチルフェニル基、4 - n - ペンチルフェニル基、4 - イソペンチルフェニル基、4 - tert - ペンチルフェニル基、4 - n - 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 - (2' - エチルヘキシル)フェニル基、4 - tert - オクチルフェニル基、4 - n - ノニルフェニル基、4 - n - デシルフェニル基、4 - n - ドデシルフェニル基、4 - n - テトラデシルフェニル基、4 - n - ヘキサデシルフェニル基、4 - n - オクタデシルフェニル基、4 - シクロペンチルフェニル基、4 - シクロヘキシルフェニル基、4 - (4' - tert - ブチルシクロヘキシル)フェニル基、4 - (4' - メチルシクロヘキシル)フェニル基、3 - シクロヘキシルフェニル基、2 - シクロヘキシルフェニル基、

10

4 - エチル - 1 - ナフチル基、6 - n - ブチル - 2 - ナフチル基、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、3, 4 - ジメチルフェニル基、3, 5 - ジメチルフェニル基、2, 6 - ジメチルフェニル基、2, 3, 5 - トリメチルフェニル基、3, 4, 5 - トリメチルフェニル基、2, 4 - ジエチルフェニル基、2, 3, 6 - トリメチルフェニル基、2, 4, 6 - トリメチルフェニル基、2, 6 - ジエチルフェニル基、2, 6 - ジイソプロピルフェニル基、2, 6 - ジイソブチルフェニル基、2, 4 - ジ - tert - ブチルフェニル基、2, 5 - ジ - tert - ブチルフェニル基、3, 5 - ジ - tert - ブチルフェニル基、2, 4 - ジネオペンチルフェニル基、2, 5 - ジ - tert - ペンチルフェニル基、4, 6 - ジ - tert - ブチル - 2 - メチルフェニル基、5 - tert - ブチル - 2 - メチルフェニル基、4 - tert - ブチル - 2, 6 - ジメチルフェニル基、2, 3, 5, 6 - テトラメチルフェニル基、

20

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、

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

30

2 - メトキシ - 1 - ナフチル基、4 - メトキシ - 1 - ナフチル基、4 - n - ブトキシ - 1 - ナフチル基、5 - エトキシ - 1 - ナフチル基、6 - エトキシ - 2 - ナフチル基、6 - n - ブトキシ - 2 - ナフチル基、6 - n - ヘキシルオキシ - 2 - ナフチル基、7 - メトキシ - 2 - ナフチル基、7 - n - ブトキシ - 2 - ナフチル基、

40

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

4 - フルオロフェニル基、3 - フルオロフェニル基、2 - フルオロフェニル基、4 - クロロフェニル基、3 - クロロフェニル基、2 - クロロフェニル基、4 - プロモフェニル基、

50

- 2 - プロモフェニル基、4 - クロロ - 1 - ナフチル基、4 - クロロ - 2 - ナフチル基、6 - プロモ - 2 - ナフチル基、2, 3 - ジフルオロフェニル基、2, 4 - ジフルオロフェニル基、2, 5 - ジフルオロフェニル基、2, 6 - ジフルオロフェニル基、3, 4 - ジフルオロフェニル基、3, 5 - ジフルオロフェニル基、2, 3 - ジクロロフェニル基、2, 4 - ジクロロフェニル基、2, 5 - ジクロロフェニル基、2, 6 - ジクロロフェニル基、3, 4 - ジクロロフェニル基、3, 5 - ジクロロフェニル基、2, 5 - ジプロモフェニル基、2, 4, 6 - トリクロロフェニル基、2, 3, 6 - トリプロモフェニル基、3, 4, 5 - トリフルオロフェニル基、2, 4 - ジクロロ - 1 - ナフチル基、1, 6 - ジクロロ - 2 - ナフチル基、
- 2 - フルオロ - 4 - メチルフェニル基、2 - フルオロ - 5 - メチルフェニル基、3 - フルオロ - 2 - メチルフェニル基、3 - フルオロ - 4 - メチルフェニル基、4 - フルオロ - 2 - メチルフェニル基、5 - フルオロ - 2 - メチルフェニル基、2 - クロロ - 4 - メチルフェニル基、2 - クロロ - 5 - メチルフェニル基、2 - クロロ - 6 - メチルフェニル基、3 - クロロ - 2 - メチルフェニル基、4 - クロロ - 2 - メチルフェニル基、4 - クロロ - 3 - メチルフェニル基、2 - クロロ - 4, 6 - ジメチルフェニル基、2 - フルオロ - 4 - メトキシフェニル基、2 - フルオロ - 6 - メトキシフェニル基、3 - フルオロ - 4 - エトキシフェニル基、5 - クロロ - 2 - メトキシフェニル基、6 - クロロ - 3 - メトキシフェニル基、5 - クロロ - 2, 4 - ジメトキシフェニル基、2 - クロロ - 4 - ニトロフェニル基、4 - クロロ - 2 - ニトロフェニル基、
- 4 - トリフルオロメチルフェニル基、3 - トリフルオロメチルフェニル基、2 - トリフルオロメチルフェニル基、3, 5 - ビス(トリフルオロメチル)フェニル基、
- 4 - トリフルオロメチルオキシフェニル基、
- 4 - アリルフェニル基、2 - アリルフェニル基、2 - イソプロペニルフェニル基、4 - ベンジルフェニル基、2 - ベンジルフェニル基、4 - (4' - メチルベンジル)フェニル基、4 - クミルフェニル基、4 - (4' - メトキシクミル)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、2 - フェニルフェニル基、4 - (4' - メチルフェニル)フェニル基、4 - (4' - エチルフェニル)フェニル基、4 - (4' - イソプロピルフェニル)フェニル基、4 - (4' - tert - ブチルフェニル)フェニル基、4 - (4' - n - ヘキシルフェニル)フェニル基、4 - (4' - n - オクチルフェニル)フェニル基、
- 4 - (4' - メトキシフェニル)フェニル基、4 - (4' - エトキシフェニル)フェニル基、4 - (4' - n - ブトキシフェニル)フェニル基、2 - (2' - メトキシフェニル)フェニル基、4 - (4' - フルオロフェニル)フェニル基、4 - (4' - クロロフェニル)フェニル基、3 - メチル - 4 - フェニル基、2 - メトキシ - 5 - フェニルフェニル基、3 - メトキシ - 4 - フェニルフェニル基、
- 4 - メトキシメチルフェニル基、4 - エトキシメチルフェニル基、4 - n - ブトキシメチルフェニル基、3 - メトキシメチルフェニル基、4 - (2' - メトキシエチル)フェニル基、4 - (2' - エトキシエチルオキシ)フェニル基、4 - (2' - n - ブトキシエチルオキシ)フェニル基、4 - (3' - エトキシプロピルオキシ)フェニル基、4 - ビニルオキシフェニル基、4 - アリルオキシフェニル基、3 - アリルオキシフェニル基、4 - (4' - ペンテニルオキシ)フェニル基、4 - アリルオキシ - 1 - ナフチル基、
- 4 - アリルオキシメチルフェニル基、4 - (2' - アリルオキシエチルオキシ)フェニル基、
- 4 - ベンジルオキシフェニル基、2 - ベンジルオキシフェニル基、4 - フェネチルオキシフェニル基、4 - (4' - クロロベンジルオキシ)フェニル基、4 - (4' - メチルベンジルオキシ)フェニル基、4 - (4' - メトキシベンジルオキシ)フェニル基、4 - (3' - エトキシベンジルオキシ)フェニル基、4 - ベンジルオキシ - 1 - ナフチル基、5 - (4' - メチルベンジルオキシ) - 1 - ナフチル基、6 - ベンジルオキシ - 2 - ナフチル基、6 - (4' - メチルベンジルオキシ) - 2 - ナフチル基、7 - ベンジルオキシ - 2 - ナフチル基、4 - (ベンジルオキシメチル)フェニル基、4 - (2' - ベンジルオキシエ

チルオキシ)フェニル基、

4 - フェニルオキシフェニル基、3 - フェニルオキシフェニル基、2 - フェニルオキシフェニル基、4 - (4' - メチルフェニルオキシ)フェニル基、4 - (4' - メトキシフェニルオキシ)フェニル基、4 - (4' - クロロフェニルオキシ)フェニル基、4 - フェニルオキシ - 1 - ナフチル基、6 - フェニルオキシ - 2 - ナフチル基、7 - フェニルオキシ - 2 - ナフチル基、4 - フェニルオキシメチルフェニル基、4 - (2' - フェニルオキシエチルオキシ)フェニル基、4 - {2' - (4' - メチルフェニルオキシ)エチルオキシ}フェニル基、4 - {2' - (4' - メトキシフェニルオキシ)エチルオキシ}フェニル基、4 - {2' - (4' - クロロフェニルオキシ)エチルオキシ}フェニル基、

4 - アセチルフェニル基、3 - アセチルフェニル基、2 - アセチルフェニル基、4 - エチルカルボニルフェニル基、2 - エチルカルボニルフェニル基、4 - n - ブチルカルボニルフェニル基、4 - n - ヘキシルカルボニルフェニル基、4 - n - オクチルカルボニルフェニル基、4 - シクロヘキシルカルボニルフェニル基、4 - アセチル - 1 - ナフチル基、6 - アセチル - 2 - ナフチル基、6 - n - ブチルカルボニル - 2 - ナフチル基、4 - アリルカルボニルフェニル基、4 - ベンジルカルボニルフェニル基、4 - (4' - メチルベンジル)カルボニルフェニル基、4 - フェニルカルボニルフェニル基、4 - (4' - メチルフェニル)カルボニルフェニル基、4 - (4' - クロロフェニル)カルボニルフェニル基、4 - フェニルカルボニル - 1 - ナフチル基、

4 - メトキシカルボニルフェニル基、2 - メトキシカルボニルフェニル基、4 - エトキシカルボニルフェニル基、3 - エトキシカルボニルフェニル基、4 - n - プロポキシカルボニルフェニル基、4 - n - ブトキシカルボニルフェニル基、4 - n - ヘキシルオキシカルボニルフェニル基、4 - n - デシロキシカルボニルフェニル基、4 - シクロヘキシルオキシカルボニルフェニル基、4 - エトキシカルボニル - 1 - ナフチル基、6 - メトキシカルボニル - 2 - ナフチル基、6 - n - ブトキシカルボニル - 2 - ナフチル基、4 - アリルオキシカルボニルフェニル基、4 - ベンジロキシカルボニルフェニル基、4 - (4' - クロロベンジル)オキシカルボニルフェニル基、4 - フェネチルオキシカルボニルフェニル基、6 - ベンジロキシカルボニル - 2 - ナフチル基、4 - フェニルオキシカルボニルフェニル基、4 - (4' - エチルフェニル)オキシカルボニルフェニル基、4 - (4' - クロロフェニル)オキシカルボニルフェニル基、4 - (4' - エトキシフェニル)オキシカルボニルフェニル基、6 - フェニルオキシカルボニル - 2 - ナフチル基、

4 - アセチルオキシフェニル基、3 - アセチルオキシフェニル基、2 - アセチルオキシフェニル基、4 - エチルカルボニルオキシフェニル基、2 - エチルカルボニルオキシフェニル基、4 - n - プロピルカルボニルオキシフェニル基、4 - n - ペンチルカルボニルオキシフェニル基、4 - n - オクチルカルボニルオキシフェニル基、4 - シクロヘキシルカルボニルオキシフェニル基、3 - シクロヘキシルカルボニルオキシフェニル基、4 - アセチルオキシ - 1 - ナフチル基、4 - n - ブチルカルボニルオキシ - 1 - ナフチル基、5 - アセチルオキシ - 1 - ナフチル基、6 - エチルカルボニルオキシ - 2 - ナフチル基、7 - アセチルオキシ - 2 - ナフチル基、4 - アリルカルボニルオキシフェニル基、4 - ベンジルカルボニルオキシフェニル基、4 - フェネチルカルボニルオキシフェニル基、6 - ベンジルカルボニルオキシ - 2 - ナフチル基、

4 - フェニルカルボニルオキシフェニル基、4 - (4' - メチルフェニル)カルボニルオキシフェニル基、4 - (2' - メチルフェニル)カルボニルオキシフェニル基、4 - (4' - クロロフェニル)カルボニルオキシフェニル基、4 - (2' - クロロフェニル)カルボニルオキシフェニル基、4 - フェニルカルボニルオキシ - 1 - ナフチル基、6 - フェニルカルボニルオキシ - 2 - ナフチル基、7 - フェニルカルボニルオキシ - 2 - ナフチル基

、  
4 - メチルチオフェニル基、2 - メチルチオフェニル基、2 - エチルチオフェニル基、3 - エチルチオフェニル基、4 - n - プロピルチオフェニル基、2 - イソプロピルチオフェニル基、4 - n - ブチルチオフェニル基、2 - イソブチルチオフェニル基、2 - ネオペンチルフェニル基、4 - n - ヘキシルチオフェニル基、4 - n - オクチルチオフェニル基、

10

20

30

40

50

4 - シクロヘキシルチオフェニル基、  
 4 - ベンジルチオフェニル基、3 - ベンジルチオフェニル基、2 - ベンジルチオフェニル基、4 - (4' - クロロベンジルチオ)フェニル基、4 - フェニルチオフェニル基、3 - フェニルチオフェニル基、2 - フェニルチオフェニル基、4 - (4' - メチルフェニルチオ)フェニル基、4 - (3' - メチルフェニルチオ)フェニル基、4 - (4' - メトキシフェニルチオ)フェニル基、4 - (4' - クロロフェニルチオ)フェニル基、2 - エチルチオ - 1 - ナフチル基、4 - メチルチオ - 1 - ナフチル基、6 - エチルチオ - 2 - ナフチル基、6 - フェニルチオ - 2 - ナフチル基、  
 4 - ニトロフェニル基、3 - ニトロフェニル基、2 - ニトロフェニル基、3, 5 - ジニトロフェニル基、4 - ニトロ - 1 - ナフチル基、4 - ホルミルフェニル基、3 - ホルミルフェニル基、2 - ホルミルフェニル基、4 - ホルミル - 1 - ナフチル基、1 - ホルミル - 2 - ナフチル基、  
 4 - ピロリジノフェニル基、4 - ピペリジノフェニル基、4 - モルフォリノフェニル基、4 - (N - エチルピペラジノ)フェニル基、4 - ピロリジノ - 1 - ナフチル基、  
 4 - アミノフェニル基、3 - アミノフェニル基、2 - アミノフェニル基、  
 4 - (N - メチルアミノ)フェニル基、3 - (N - メチルアミノ)フェニル基、4 - (N - エチルアミノ)フェニル基、2 - (N - イソプロピルアミノ)フェニル基、4 - (N - n - プチルアミノ)フェニル基、2 - (N - n - プチルアミノ)フェニル基、4 - (N - n - オクチルアミノ)フェニル基、4 - (N - n - ドデシルアミノ)フェニル基、4 - (N - ベンジルアミノ)フェニル基、4 - (N - フェニルアミノ)フェニル基、2 - (N - フェニルアミノ)フェニル基、  
 4 - (N, N - ジメチルアミノ)フェニル基、3 - (N, N - ジメチルアミノ)フェニル基、4 - (N, N - ジエチルアミノ)フェニル基、2 - (N, N - ジメチルアミノ)フェニル基、2 - (N, N - ジエチルアミノ)フェニル基、4 - (N, N - ジ - n - プチルアミノ)フェニル基、4 - (N, N - ジ - n - ヘキシルアミノ)フェニル基、4 - (N - シクロヘキシル - N - メチルアミノ)フェニル基、4 - (N, N - ジエチルアミノ) - 1 - ナフチル基、4 - (N - ベンジル - N - フェニルアミノ)フェニル基、4 - (N, N - ジフェニルアミノ)フェニル基、4 - [N - フェニル - N - (4 - メチルフェニル)アミノ]フェニル基、4 - [N, N - ジ(3' - メチルフェニル)アミノ]フェニル基、4 - [N, N - ジ(4' - メチルフェニル)アミノ]フェニル基、4 - [N, N - ジ(4' - メトキシフェニル)アミノ]フェニル基、2 - (N, N - ジフェニルアミノ)フェニル基、  
 4 - ヒドロキシフェニル基、3 - ヒドロキシフェニル基、2 - ヒドロキシフェニル基、4 - メチル - 3 - ヒドロキシフェニル基、6 - メチル - 3 - ヒドロキシフェニル基、2 - ヒドロキシ - 1 - ナフチル基、8 - ヒドロキシ - 1 - ナフチル基、4 - ヒドロキシ - 1 - ナフチル基、1 - ヒドロキシ - 2 - ナフチル基、6 - ヒドロキシ - 2 - ナフチル基、4 - シアノフェニル基、2 - シアノフェニル基、4 - シアノ - 1 - ナフチル基、6 - シアノ - 2 - ナフチル基などの置換または未置換の芳香族炭化水素環基、および、置換または未置換の芳香族複素環基を挙げることができる。

さらに、Ar<sub>1</sub>とAr<sub>2</sub>、Ar<sub>5</sub>とAr<sub>6</sub>は互いに結合して結合している窒素原子と共に含窒素複素環を形成していても良い。ここで、含窒素複素環としては、例えば、N - カルバゾリル基、2 - メチル - N - カルバゾリル基、3 - メチル - N - カルバゾリル基、4 - メチル - N - カルバゾリル基、3 - n - プチル - N - カルバゾリル基、3 - n - ヘキシル - N - カルバゾリル基、3, 6 - ジメチル - N - カルバゾリル基、3 - メトキシ - N - カルバゾリル基、3 - エトキシ - N - カルバゾリル基、3 - イソプロポキシ - N - カルバゾリル基、3 - フェニル - N - カルバゾリル基、4 - フェニル - N - カルバゾリル基、N - カルボリニル基、4 - メチル - N - カルボリニル基、4 - n - オクチル - N - カルボリニル基、4 - フェニル - N - カルボリニル基、4, 5 - ジフェニル - N - カルボリニル基、4, 5 - ジメチル - N - カルボリニル基、N - カルボリニル基、3 - メチル - N - カルボリニル基、3 - フェニル - N - カルボリニル基、2, 3 - ジメチル - N - カルボリニル基、2, 3 - ジフェニル - N - カルボリニル基

10

20

30

40

50

、N-フェノキサジニル基、N-フェノチアジニル基、2-メチル-N-フェノチアジニル基、2-クロロ-N-フェノチアジニル基、2-トリフルオロメチル-N-フェノチアジニル基、N-ジベンゾ[b,f]アゼピニル基、10,11-ジヒドロ-N-ジベンゾ[b,f]アゼピニル基を挙げることができるが、これらに限定されるものではない。

また、Ar<sub>1</sub>、Ar<sub>2</sub>、Ar<sub>4</sub>、Ar<sub>5</sub>およびAr<sub>6</sub>の置換基としては、例えば、ハロゲン原子または-(O)<sub>q</sub>-Z基(式中Zは、置換または未置換の直鎖、分岐または環状のアルキル基、あるいは、置換または未置換のアリール基を表し、qは0または1を表す)を表す。好ましくは、水素原子、ハロゲン原子または-(O)<sub>q</sub>-Z基(式中Zは、炭素数1~16の置換または未置換の直鎖、分岐または環状のアルキル基、あるいは炭素数4~12の置換または未置換のアリール基を表し、qは0または1を表す)を表し、より好ましくは、水素原子、ハロゲン原子または-(O)<sub>q</sub>-Z基(式中Zは、炭素数1~8の置換または未置換の直鎖、分岐または環状のアルキル基、あるいは炭素数6~12の置換または未置換のアリール基を表し、qは0または1を表す)を表す。

尚、(O)<sub>q</sub>-Z基のZである置換または未置換のアリール基の具体例としては、例えば、Ar<sub>1</sub>、Ar<sub>2</sub>、Ar<sub>4</sub>、Ar<sub>5</sub>およびAr<sub>6</sub>の具体例として挙げた置換または未置換の芳香族炭化水素基および置換または未置換の芳香族複素環基を挙げることができる。

(O)<sub>q</sub>-Z基のZである置換または未置換の直鎖、分岐または環状のアルキル基の具体例としては、例えば、

メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、n-ペンチル基、イソペンチル基、ネオペンチル基、tert-ペンチル基、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、2-エチルブチル基、n-ヘプチル基、1-メチルヘキシル基、n-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、1-エチルオクチル基、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、1-ヘプチルオクチル基、n-ヘキサデシル基、n-ヘプタデシル基、1-オクチルノニル基、n-オクタデシル基、1-ノニルデシル基、1-デシルウンデシル基、n-エイコシル基、n-ドコシル基、n-テトラコシル基、シクロヘキシルメチル基、(1-イソプロピルシクロヘキシル)メチル基、2-シクロヘキシルエチル基、ボルネル基、イソボルネル基、1-ノルボルニル基、2-ノルボルナンメチル基、1-ビスシクロ[2.2.2]オクチル基、1-アダマンチル基、3-ノルアダマンチル基、1-アダマンチルメチル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、1-メチルシクロペンチル基、シクロヘキシル基、4-メチルシクロヘキシル基、3-メチルシクロヘキシル基、2-メチルシクロヘキシル基、2,3-ジメチルシクロヘキシル基、2,5-ジメチルシクロヘキシル基、2,6-ジメチルシクロヘキシル基、3,4-ジメチルシクロヘキシル基、3,5-ジメチルシクロヘキシル基、2,4,6-トリメチルシクロヘキシル基、3,3,5-トリメチルシクロヘキシル基、2,6-ジイソプロピルシクロヘキシル基、4-tert-ブチルシクロヘキシル基、3-tert-ブチルシクロヘキシル基、4-フェニルシクロヘキシル基、2-フェニ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、シクロデシル基、シクロドデシル基、シクロテトラデシル基、

メトキシメチル基、エトキシメチル基、n-プトキシメチル基、n-ヘキシルオキシメチル基、(2-エチルブチルオキシ)メチル基、n-オクチルオキシメチル基、n-デシルオキシメチル基、2-メトキシエチル基、2-エトキシエチル基、2-n-プロポキシエチル基、2-イソプロポキシエチル基、2-n-プトキシエチル基、2-n-ペンチルオキシエチル基、2-n-ヘキシルオキシエチル基、2-(2'-エチルブチルオキシ)エチル基、2-n-ヘプチルオキシエチル基、2-n-オクチルオキシエチル基、2-(2'-エチルヘキシルオキシ)エチル基、2-n-デシルオキシエチル基、2-n-ドデシルオキシエチル基、2-n-テトラデシルオキシエチル基、2-シクロヘキシルオキシエチル基、2-メトキシプロピル基、3-メトキシプロピル基、3-エトキシプロピル基、

10

20

30

40

50

3 - n - プロポキシプロピル基、3 - イソプロポキシプロピル基、3 - (n - ブトキシ)プロピル基、3 - (n - ベンチルオキシ)プロピル基、3 - (n - ヘキシルオキシ)プロピル基、3 - (2' - エチルブトキシ)プロピル基、3 - (n - オクチルオキシ)プロピル基、3 - (2' - エチルヘキシルオキシ)プロピル基、3 - (n - デシルオキシ)プロピル基、3 - (n - ドデシルオキシ)プロピル基、3 - (n - テトラデシルオキシ)プロピル基、3 - シクロヘキシルオキシプロピル基、4 - メトキシブチル基、4 - エトキシブチル基、4 - n - プロポキシブチル基、4 - イソプロポキシブチル基、4 - n - ブトキシブチル基、4 - n - ヘキシルオキシブチル基、4 - n - オクチルオキシブチル基、4 - n - デシルオキシブチル基、4 - n - ドデシルオキシブチル基、5 - メトキシペンチル基、5 - エトキシペンチル基、5 - n - プロポキシペンチル基、6 - エトキシヘキシル基、6 - イソプロポキシヘキシル基、6 - n - ブトキシヘキシル基、6 - n - ヘキシルオキシヘキシル基、6 - n - デシルオキシヘキシル基、4 - メトキシシクロヘキシル基、7 - エトキシヘプチル基、7 - イソプロポキシヘプチル基、8 - メトキシオクチル基、10 - メトキシデシル基、10 - n - ブトキシデシル基、12 - エトキシドデシル基、12 - イソプロポキシドデシル基、テトラヒドロフルフリル基、

2 - (2' - メトキシエトキシ)エチル基、2 - (2' - エトキシエトキシ)エチル基、2 - (2' - n - ブトキシエトキシ)エチル基、3 - (2' - エトキシエトキシ)プロピル基、2 - アリルオキシエチル基、2 - (4' - ペンテニルオキシ)エチル基、3 - アリルオキシプロピル基、3 - (2' - ヘキセニルオキシ)プロピル基、3 - (2' - ヘプテニルオキシ)プロピル基、3 - (1' - シクロヘキセニルオキシ)プロピル基、4 - アリルオキシブチル基、

ベンジルオキシメチル基、2 - ベンジルオキシエチル基、2 - フェネチルオキシエチル基、2 - (4' - メチルベンジルオキシ)エチル基、2 - (2' - メチルベンジルオキシ)エチル基、2 - (4' - フルオロベンジルオキシ)エチル基、2 - (4' - クロロベンジルオキシ)エチル基、3 - ベンジルオキシプロピル基、3 - (4' - メトキシベンジルオキシ)プロピル基、4 - ベンジルオキシブチル基、2 - (ベンジルオキシメトキシ)エチル基、2 - (4' - メチルベンジルオキシメトキシ)エチル基、

フェニルオキシメチル基、4 - メチルフェニルオキシメチル基、3 - メチルフェニルオキシメチル基、2 - メチルフェニルオキシメチル基、4 - メトキシフェニルオキシメチル基、4 - フルオロフェニルオキシメチル基、4 - クロロフェニルオキシメチル基、2 - クロロフェニルオキシメチル基、2 - フェニルオキシエチル基、2 - (4' - メチルフェニルオキシ)エチル基、2 - (4' - エチルフェニルオキシ)エチル基、2 - (4' - メトキシフェニルオキシ)エチル基、2 - (4' - クロロフェニルオキシ)エチル基、2 - (4' - プロモフェニルオキシ)エチル基、2 - (1' - ナフチルオキシ)エチル基、2 - (2' - ナフチルオキシ)エチル基、3 - フェニルオキシプロピル基、3 - (2' - ナフチルオキシ)プロピル基、4 - フェニルオキシブチル基、4 - (2' - エチルフェニルオキシ)ブチル基、5 - (4' - tert - ブチルフェニルオキシ)ペンチル基、6 - (2' - クロロフェニルオキシ)ヘキシル基、8 - フェニルオキシオクチル基、10 - フェニルオキシデシル基、10 - (3' - クロロフェニルオキシ)デシル基、2 - (2' - フェニルオキシエトキシ)エチル基、3 - (2' - フェニルオキシエトキシ)プロピル基、4 - (2' - フェニルオキシエトキシ)ブチル基、

n - ブチルチオメチル基、n - ヘキシルチオメチル基、2 - メチルチオエチル基、2 - エチルチオエチル基、2 - n - ブチルチオエチル基、2 - n - ヘキシルチオエチル基、2 - n - オクチルチオエチル基、2 - n - デシルチオエチル基、3 - メチルチオプロピル基、3 - エチルチオプロピル基、3 - n - ブチルチオプロピル基、4 - エチルチオブチル基、4 - n - プロピルチオブチル基、4 - n - ブチルチオブチル基、5 - エチルチオペンチル基、6 - メチルチオヘキシル基、6 - エチルチオヘキシル基、6 - n - ブチルチオヘキシル基、8 - メチルチオオクチル基、2 - (2' - メトキシエチルチオ)エチル基、4 - (3' - エトキシプロピルチオ)ブチル基、2 - (2' - エチルチオエチルチオ)エチル基、2 - アリルチオエチル基、2 - ベンジルチオエチル基、3 - (4' - メチルベンジルチ

オ) プロピル基、4 - ベンジルチオブチル基、2 - (2' - ベンジルオキシエチルチオ)エチル基、3 - (3' - ベンジルチオプロピルチオ)プロピル基、

2 - フェニルチオエチル基、2 - (4' - メトキシフェニルチオ)エチル基、2 - (2' - フェニルオキシエチルチオ)エチル基、3 - (2' - フェニルチオエチルチオ)プロピル基、

フルオロメチル基、3 - フルオロプロピル基、6 - フルオロヘキシル基、8 - フルオロオクチル基、トリフルオロメチル基、1, 1 - ジヒドロ - パーフルオロエチル基、1, 1 - ジヒドロ - パーフルオロ - n - プロピル基、1, 1, 3 - トリヒドロ - パーフルオロ - n - プロピル基、1, 1 - ジヒドロ - パーフルオロ - n - ブチル基、1, 1 - ジヒドロ - パーフルオロ - n - ペンチル基、1, 1 - ジヒドロ - パーフルオロ - n - ヘキシル基、6 - フルオロヘキシル基、4 - フルオロシクロヘキシル基、1, 1 - ジヒドロ - パーフルオロ - n - オクチル基、1, 1 - ジヒドロ - パーフルオロ - n - デシル基、1, 1 - ジヒドロ - パーフルオロ - n - ドデシル基、1, 1 - ジヒドロ - パーフルオロ - n - テトラデシル基、1, 1 - ジヒドロ - パーフルオロ - n - ヘキサデシル基、パーフルオロ - n - ヘキシル基、ジクロロメチル基、2 - クロロエチル基、3 - クロロプロピル基、4 - クロロシクロヘキシル基、7 - クロロヘブチル基、8 - クロロオクチル基、2, 2, 2 - トリクロロエチル基、

2 - ヒドロキシエチル基、2 - ヒドロキシプロピル基、3 - ヒドロキシプロピル基、3 - ヒドロキシブチル基、4 - ヒドロキシブチル基、6 - ヒドロキシヘキシル基、5 - ヒドロキシヘブチル基、8 - ヒドロキシオクチル基、10 - ヒドロキシデシル基、12 - ヒドロキシドデシル基、2 - ヒドロキシシクロヘキシル基などの置換または未置換の直鎖、分岐または環状のアルキル基、

例えば、ベンジル基、 - メチルベンジル基、 - エチルベンジル基、フェネチル基、 - メチルフェネチル基、 - メチルフェネチル基、 , - ジメチルベンジル基、 , - ジメチルフェネチル基、4 - メチルフェネチル基、4 - メチルベンジル基、3 - メチルベンジル基、2 - メチルベンジル基、4 - エチルベンジル基、2 - エチルベンジル基、4 - イソプロピルベンジル基、4 - tert - ブチルベンジル基、2 - tert - ブチルベンジル基、4 - tert - ペンチルベンジル基、4 - シクロヘキシルベンジル基、4 - n - オクチルベンジル基、4 - tert - オクチルベンジル基、4 - アリルベンジル基、4 - ベンジルベンジル基、4 - フェネチルベンジル基、4 - フェニルベンジル基、4 - (4' - メチルフェニル)ベンジル基、4 - メトキシベンジル基、2 - メトキシベンジル基、2 - エトキシベンジル基、4 - n - ブトキシベンジル基、4 - n - ヘブチルオキシベンジル基、4 - n - デシルオキシベンジル基、4 - n - テトラデシルオキシベンジル基、4 - n - ヘプタデシルオキシベンジル基、

3, 4 - ジメトキシベンジル基、4 - メトキシメチルベンジル基、4 - イソブトキシメチルベンジル基、4 - アリルオキシベンジル基、4 - ビニルオキシメチルベンジル基、4 - ベンジルオキシベンジル基、4 - フェネチルオキシベンジル基、4 - フェニルオキシベンジル基、3 - フェニルオキシベンジル基、

4 - ヒドロキシベンジル基、3 - ヒドロキシベンジル基、2 - ヒドロキシベンジル基、4 - ヒドロキシ - 3 - メトキシベンジル基、4 - フルオロベンジル基、2 - フルオロベンジル基、4 - クロロベンジル基、3 - クロロベンジル基、2 - クロロベンジル基、3, 4 - ジクロロベンジル基、2 - フルフリル基、ジフェニルメチル基、1 - ナフチルメチル基、2 - ナフチルメチル基などのアリール基で置換されたアルキル基等を挙げることができる。

。

ハロゲン原子の具体例としては、例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子などのハロゲン原子を挙げることができる。

#### 【0009】

本発明の一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物において、Rは水素原子、シアノ基、ハロゲン原子、置換または未置換の直鎖、分岐または環状のアルキル基、置換または未置換の芳香族炭化水素基、あるいは、置換または未置換の芳香族複素

10

20

30

40

50

環基を表す。Rは好ましくは、水素原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、置換または未置換の芳香族炭化水素基を表し、より好ましくは、水素原子、炭素数1~20の置換または未置換の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数6~30の置換または未置換の芳香族炭化水素基を表す。さらに好ましくは、水素原子、炭素数1~10の置換または未置換の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数6~20置換または未置換の芳香族炭化水素基を表す。

一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物において、Rで表される置換または未置換の直鎖、分岐または環状のアルキル基の具体例としては、例えば、Ar<sub>1</sub>、Ar<sub>2</sub>、Ar<sub>4</sub>、Ar<sub>5</sub>およびAr<sub>6</sub>の置換基として-(O)q-Z基のZ基で挙げた、置換または未置換の直鎖、分岐または環状のアルキル基の具体例を挙げることができる。 10

一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物において、Rの置換または未置換の芳香族炭化水素基の具体例としては、例えば、Ar<sub>1</sub>、Ar<sub>2</sub>、Ar<sub>4</sub>、Ar<sub>5</sub>およびAr<sub>6</sub>の具体例として挙げた、置換または未置換の芳香族炭化水素基を挙げることができる。

一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物において、XおよびAr<sub>3</sub>は好ましくは、炭素数6~20の置換または未置換の2価の芳香族炭化水素環基、炭素数4~20の置換または未置換の2価の芳香族複素環基を表し、より好ましくは、炭素数6~18の置換または未置換の2価の芳香族炭化水素環基、炭素数4~18の置換または未置換の2価の芳香族複素環基を表し、さらに好ましくは、炭素数6~15の置換または未置換の2価の芳香族炭化水素環基、炭素数4~15の置換または未置換の2価の芳香族複素環基を表す。 20

XおよびAr<sub>3</sub>で表される2価の芳香族炭化水素環基および2価の芳香族複素環基の具体例としては、例えば、

1,2-フェニレン基、1,3-フェニレン基、1,4-フェニレン基、2,5-ジメチル-1,4-フェニレン基、2,3,5,6-テトラメチル-1,4-フェニレン基、2,5-ジメトキシ-1,4-フェニレン基、2,5-ジフェニル-1,4-フェニレン基、1,4-ナフチレン基、1,5-ナフチレン基、2,6-ナフチレン基、2,7-ナフチレン基、9,10-アントラセニレン基、1,4-アントラセニレン基、4,4'-ピフェニレン基、3,3'-ピフェニレン基、2,2'-ピフェニレン基、ジベンゾチオフェン-3,6-ジイル基、ジベンゾフラン-3,6-ジイル基、9,10-ジヒドロフエナントレン-2,7-ジイル基、9H-フルオレン-2,7-ジイル基、9-メチル-9H-フルオレン-2,7-ジイル基、9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2,7-ジイル基、2,2'-ジメチル-4,4'-ピフェニレン基、2,2'-ジメトキシ-4,4'-ピフェニレン基、2,2'-ジフェニル-4,4'-ピフェニレン基、2,2'-ジフェノキシ-4,4'-ピフェニレン基、2,2'-ビス(トリフルオロメチル)-4,4'-ピフェニレン基、1-(1'-ナフタレン-4'-イル)-4-フェニル基、1-(1'-ナフタレン-4'-イル)-4-ナフチル基、1-(9'-アントラセン-10'-イル)-4-フェニル基、1-(5'-1',2',3',4'-テトラヒドロナフタレン-8'-イル)-4-フェニル基、N-フェニル-カルバゾール-2,7-ジイル基、N-エチル-カルバゾール-2,7-ジイル基、N-メチル-カルバゾール-2,7-ジイル基、N-フェニル-カルバゾール-3,6-ジイル基、N-メチル-カルバゾール-3,6-ジイル基、N-エチル-カルバゾール-3,6-ジイル基、ジベンゾチオフェン-2,7-ジイル基、9-(4'-ピフェニル-4"-イル)-10-アントラセニル基、4-(2'-9",9"-ジメチル-9'H-フルオレニル-7'-イル)-1-フェニル基、1,4-ビス(4'-フェニレニル)ナフタレン基、9,10-ビス(4'-フェニレニル)アントラセン基、ターフェニレン基等を挙げることができる。 30 40

#### 【0010】

本発明に係る一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物は、それぞれ一般式(1)で表される化合物の単品、一般式(1')で表される化合物の単品であってもよく、また、一般式(1)で表される化合物と一般式(1')で表される化合物の混 50

化合物であっても良い。尚、一般式(1)で表される化合物と一般式(1')で表される化合物の混合物である場合、その混合比は特に限定されるものではなく、モル比で、1:99~99:1のモル比であることが好ましく、5:95~95:5のモル比であることがより好ましい。

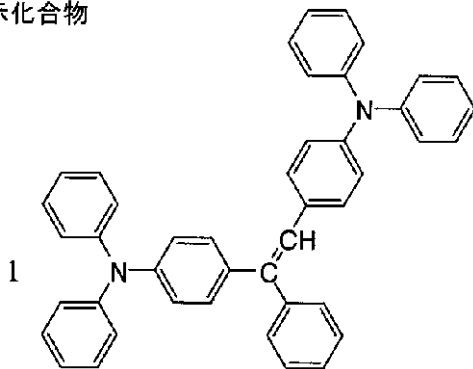
本発明に係る一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物の具体例としては、例えば、以下に示す化合物(化4~化43)を挙げることができるが、本発明はこれらに限定されるものではない。尚、以下の例示化合物においては一般式(1)および/または(1')の化合物は区別無く記載しているが、本発明においては、これらの化合物はどちらも好適に使用することが可能である。

【0011】

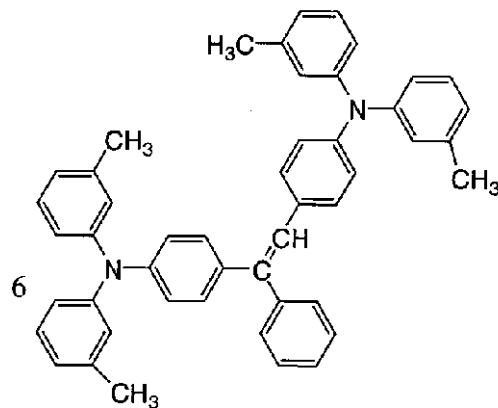
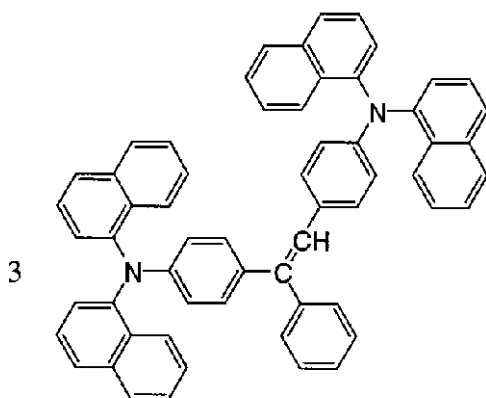
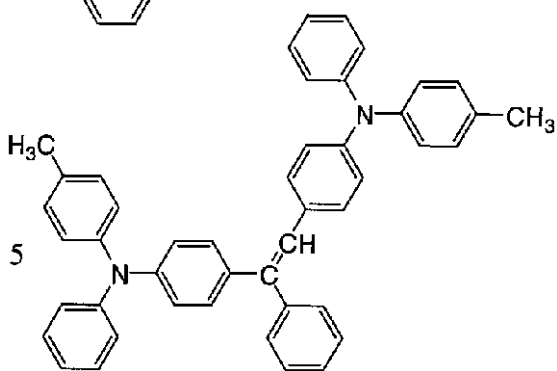
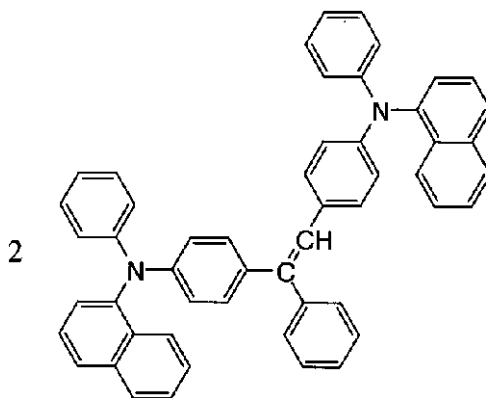
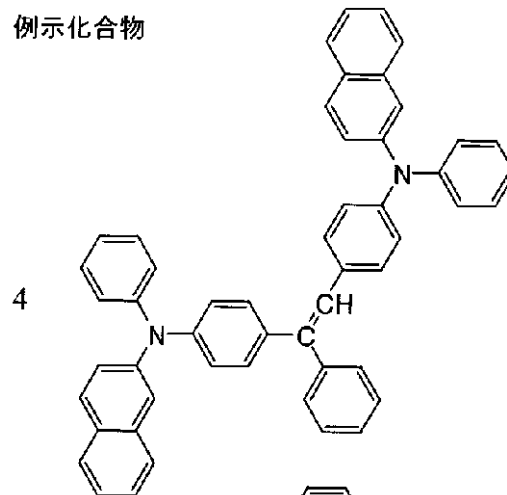
10

【化4】

例示化合物



例示化合物



【0012】

【化5】

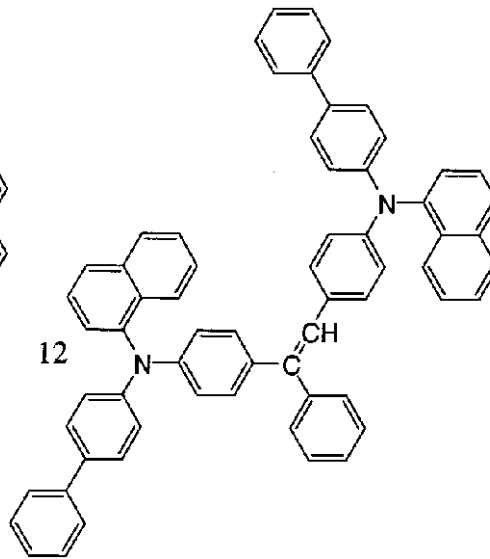
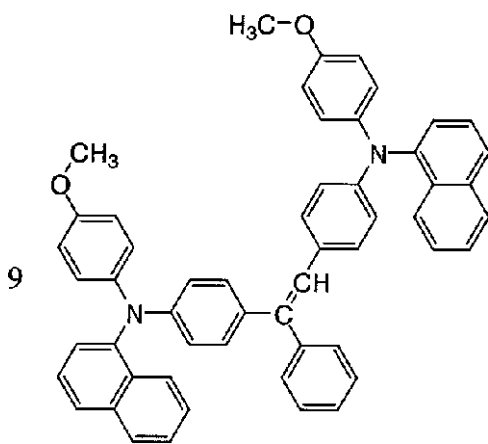
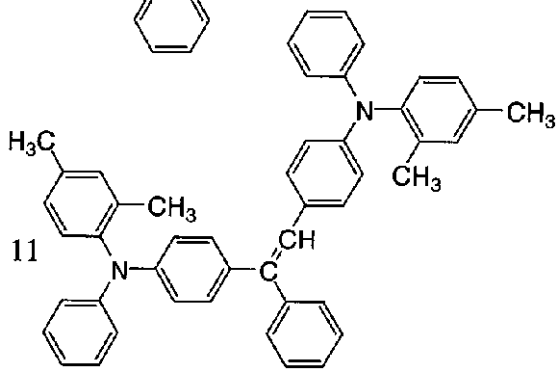
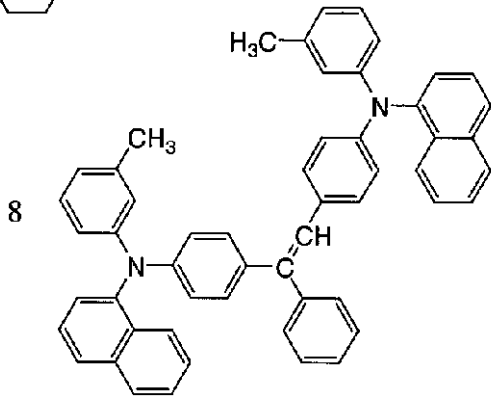
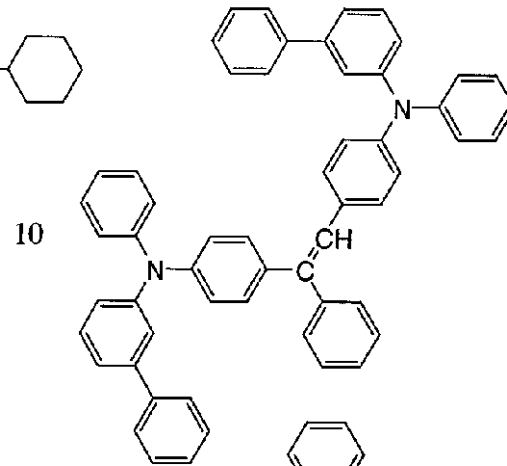
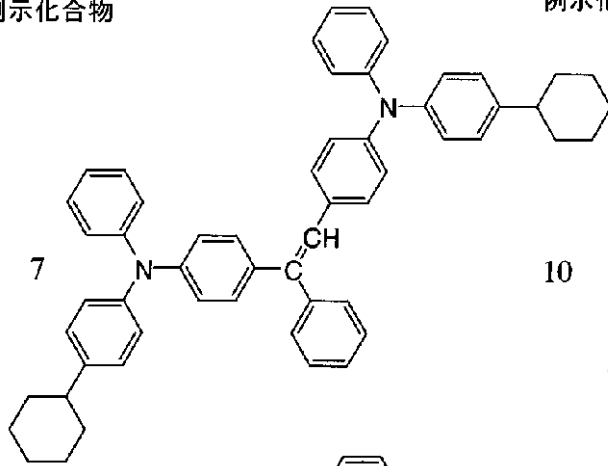
20

30

40

例示化合物

例示化合物



10

20

30

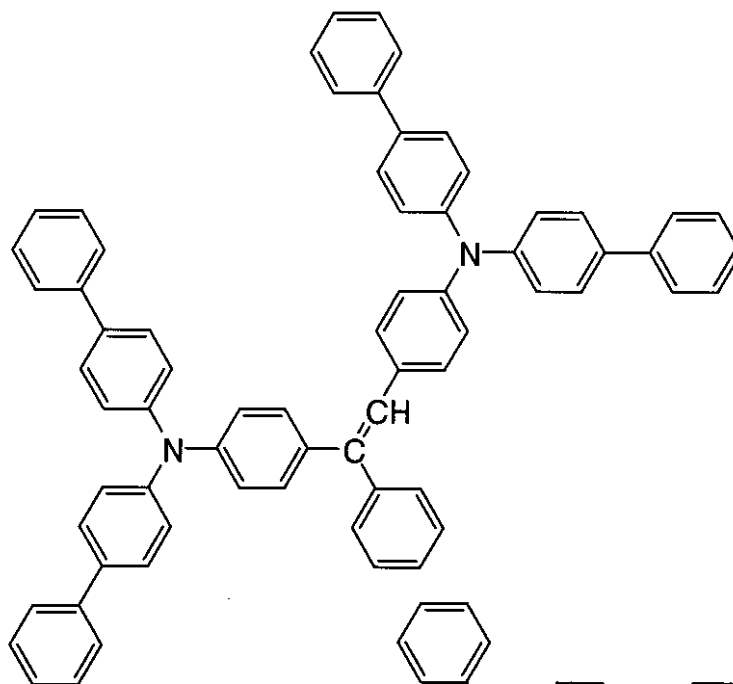
40

【 0 0 1 3 】

【 化 6 】

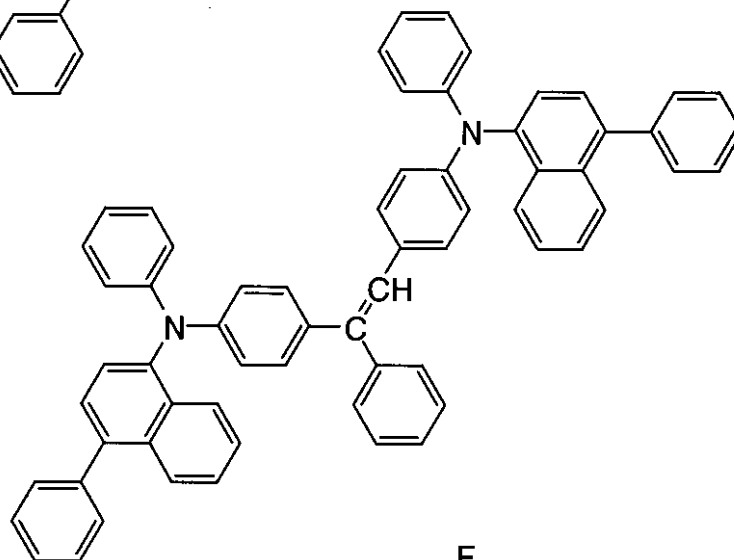
例示化合物

13



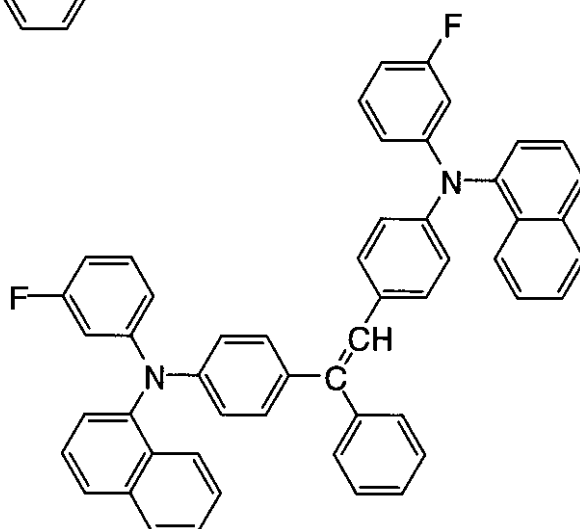
10

14



20

15



30

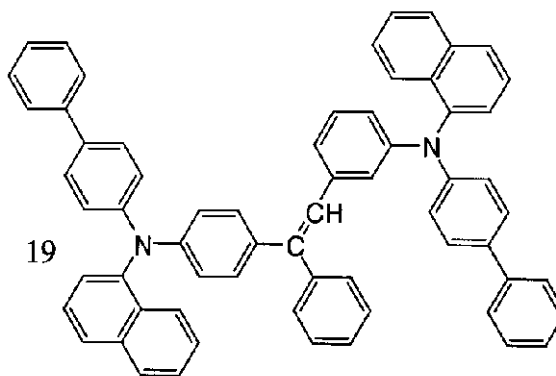
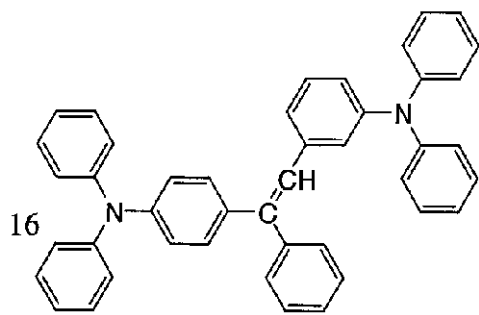
40

【 0 0 1 4 】

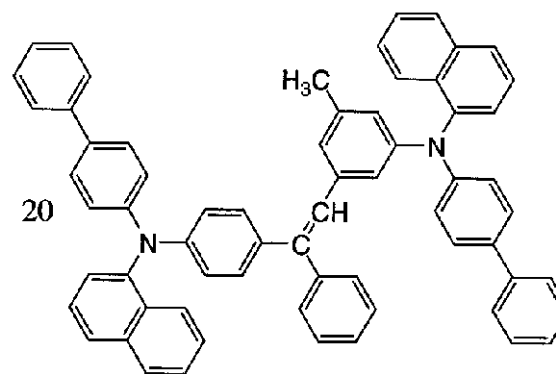
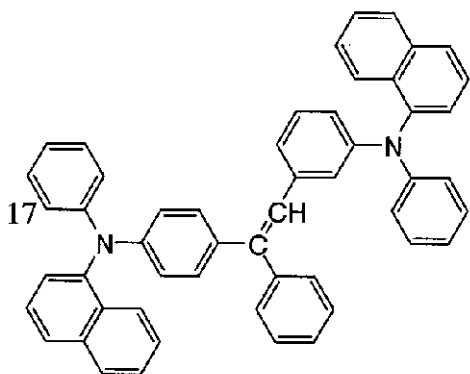
【 化 7 】

例示化合物

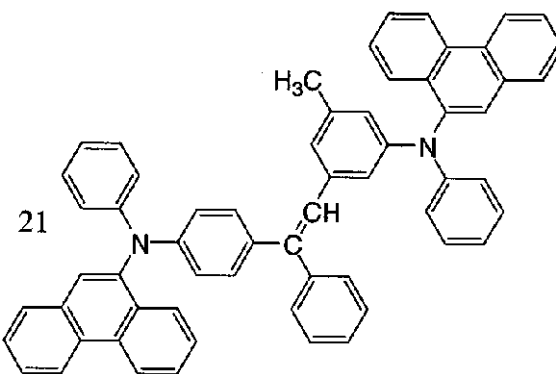
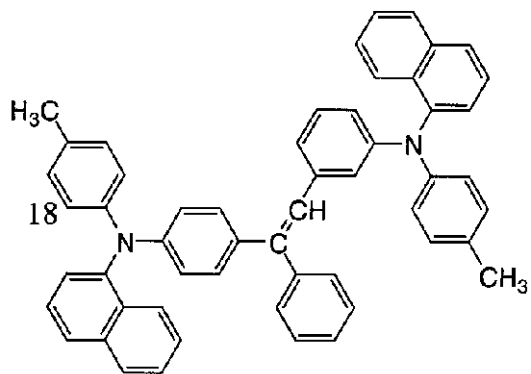
例示化合物



10



20



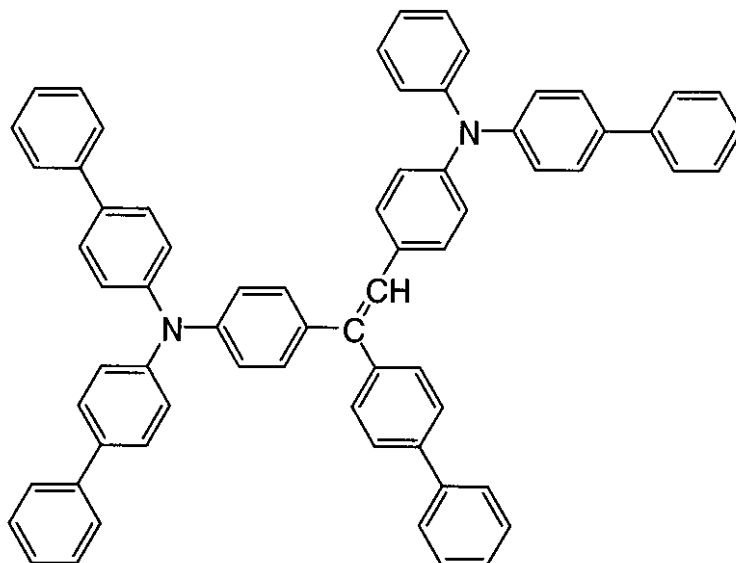
30

【 0 0 1 5 】

【 化 8 】

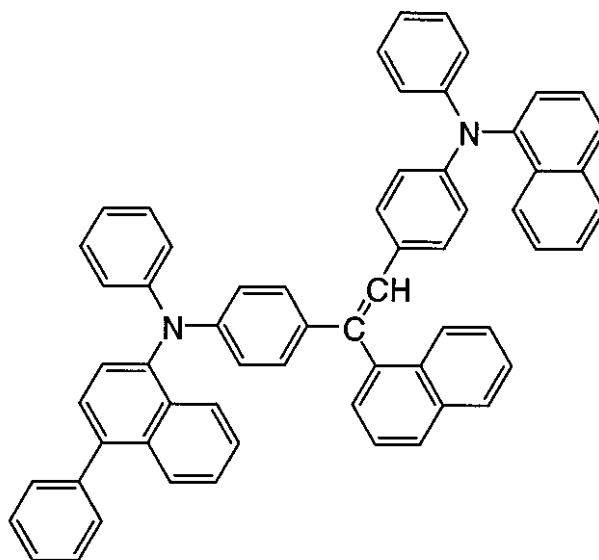
例示化合物

22



10

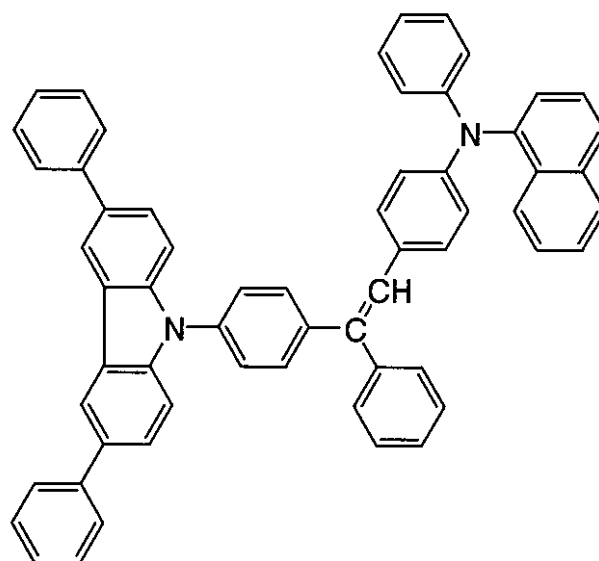
23



20

30

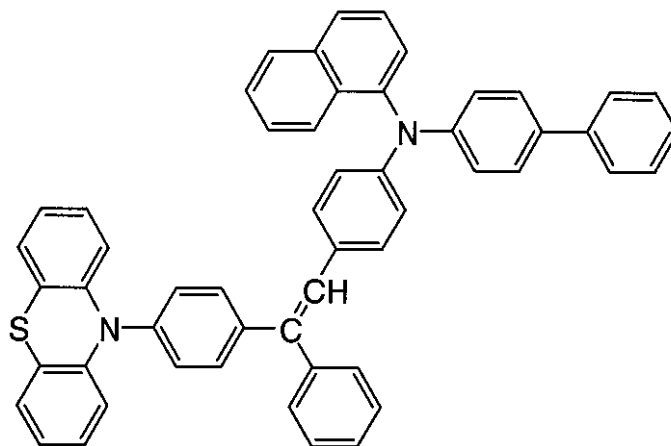
24



40

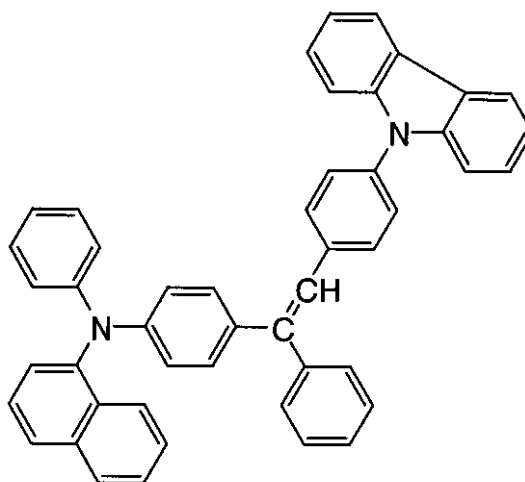
例示化合物

25



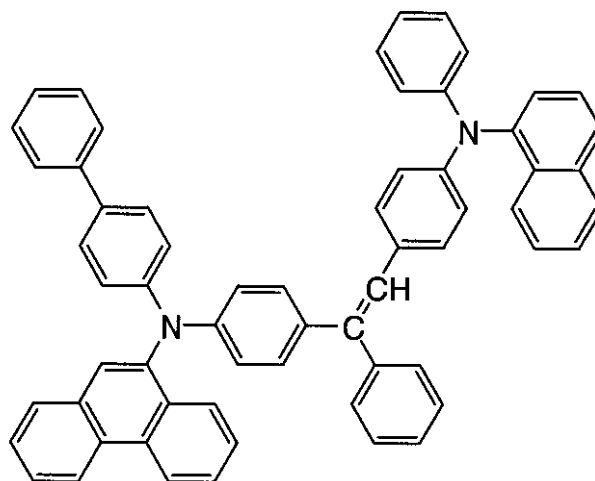
10

26



20

27



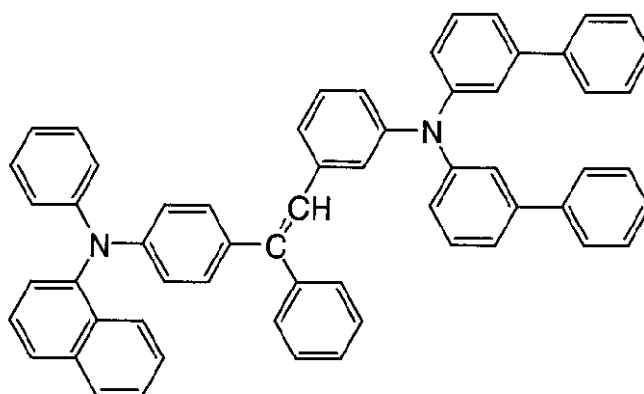
30

40

【 0 0 1 7 】  
【 化 1 0 】

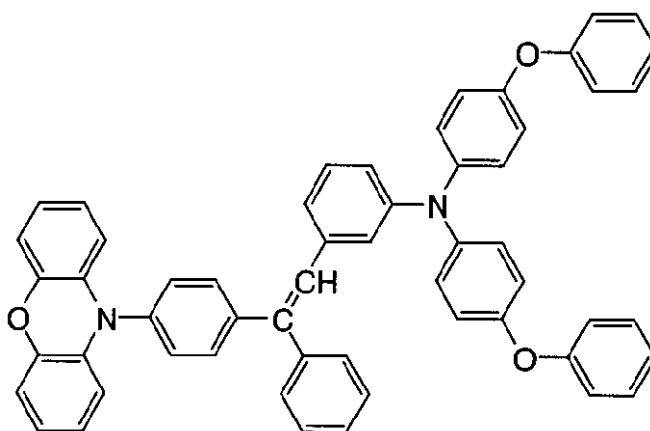
## 例示化合物

28



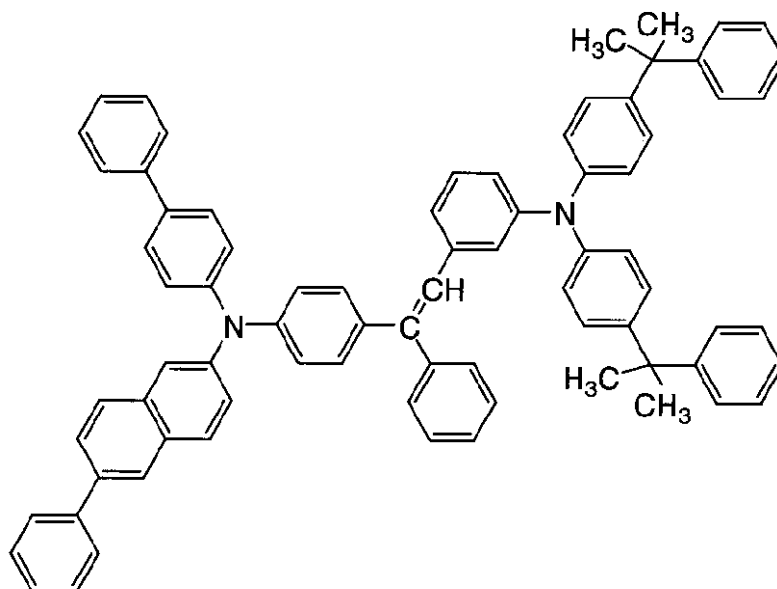
10

29



20

30



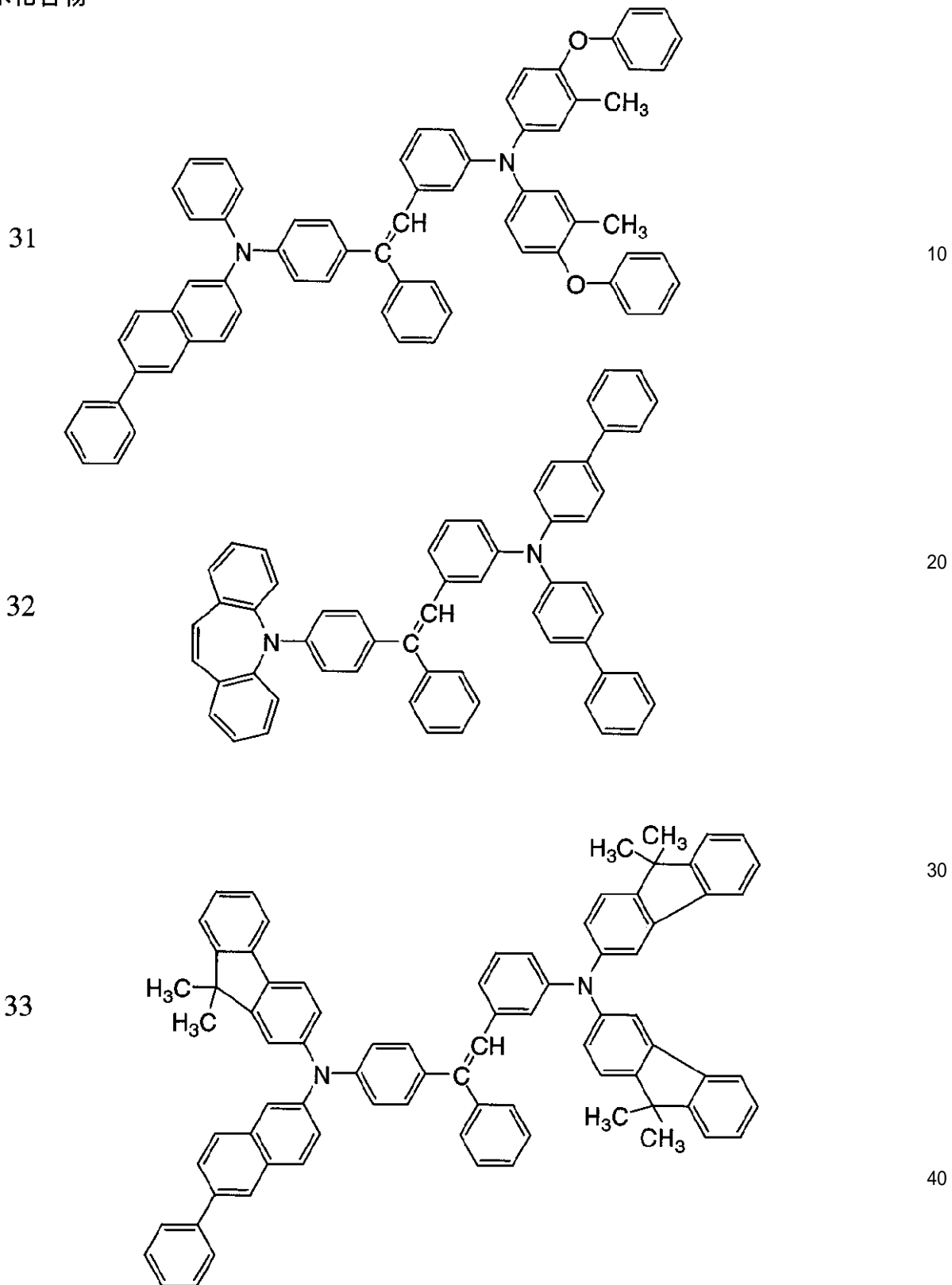
30

40

【 0 0 1 8 】

【 化 1 1 】

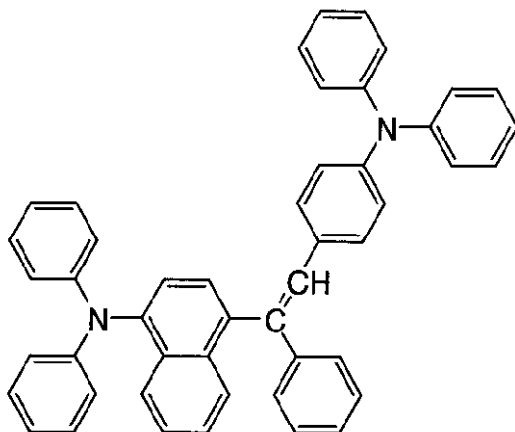
例示化合物



【 0 0 1 9 】  
【 化 1 2 】

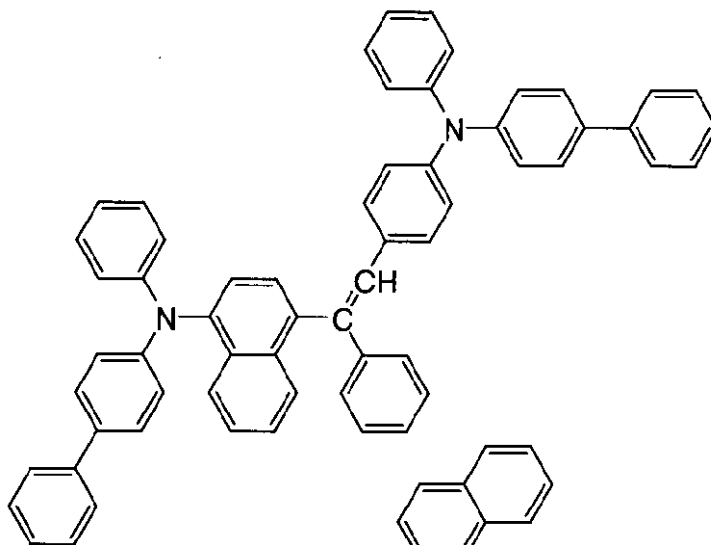
例示化合物

34



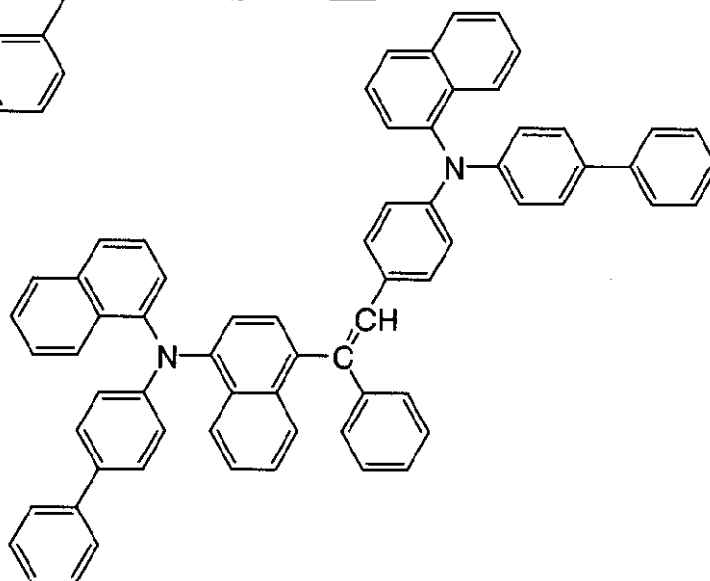
10

35



20

36



30

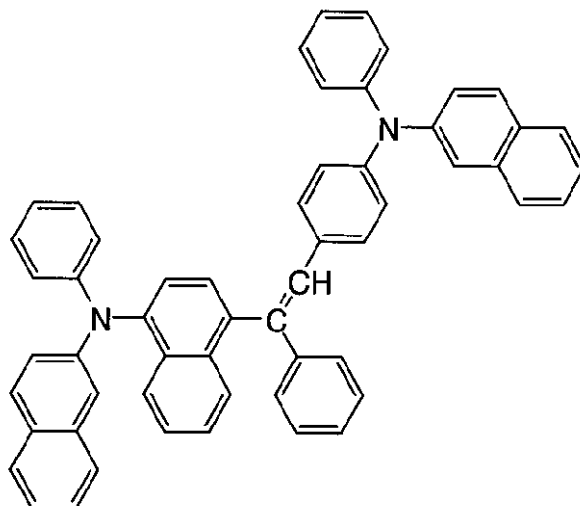
40

【 0 0 2 0 】

【 化 1 3 】

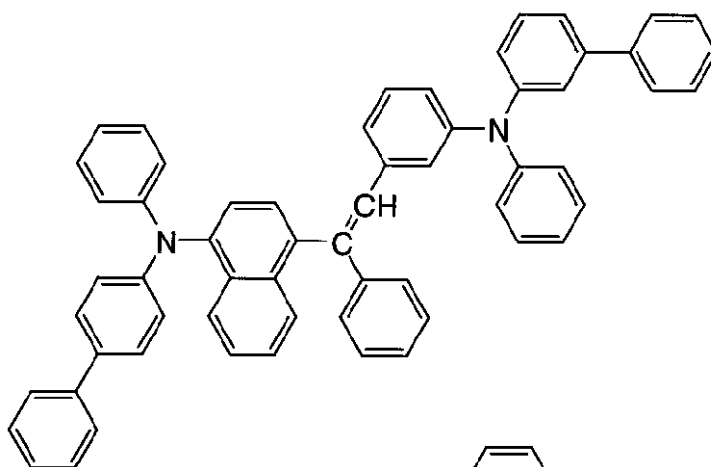
例示化合物

37



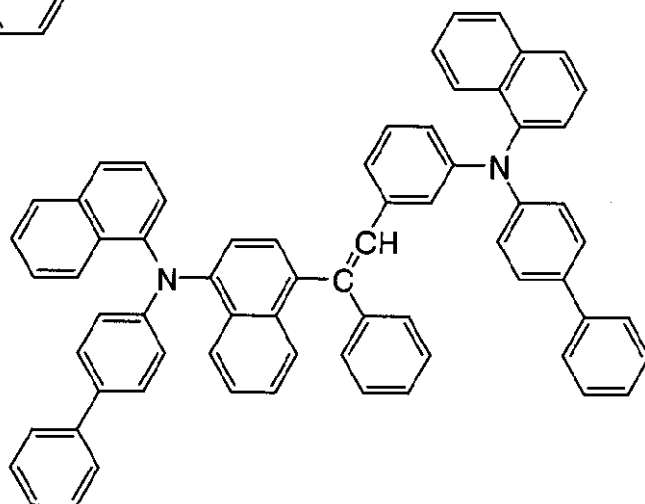
10

38



20

39



30

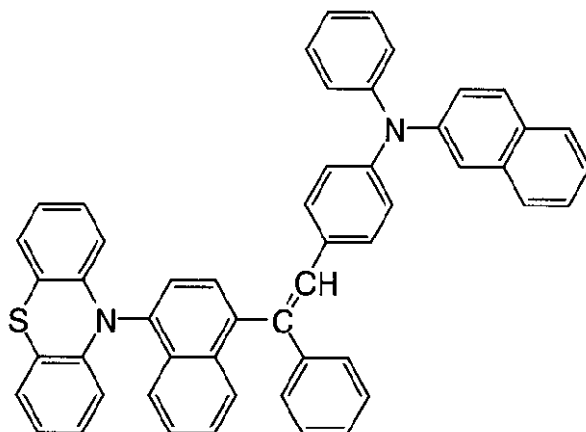
40

【 0 0 2 1 】

【 化 1 4 】

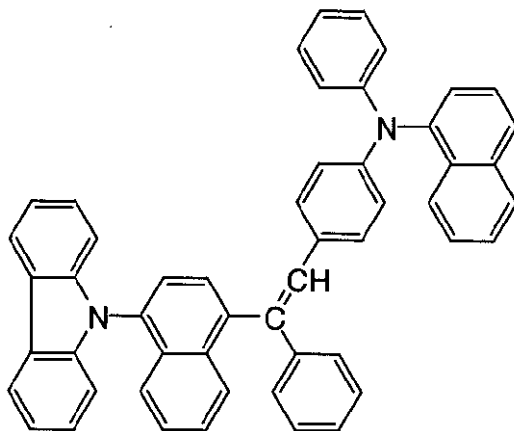
例示化合物

40



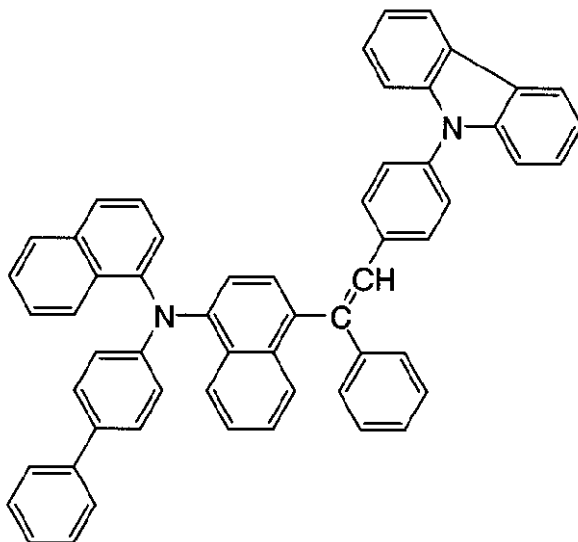
10

41



20

42



30

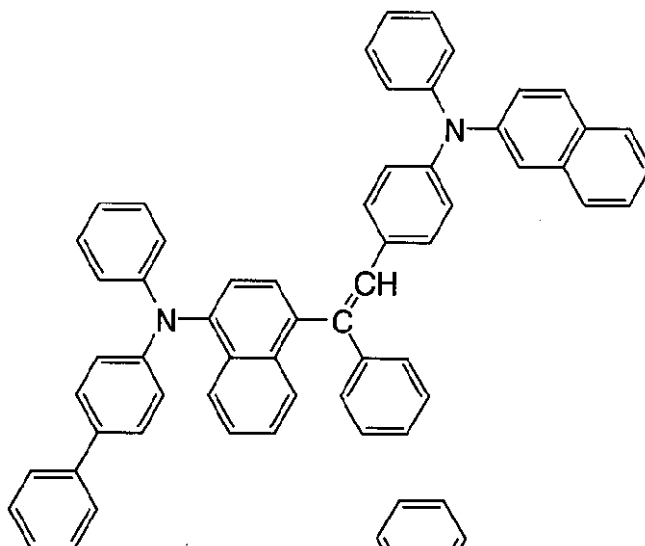
40

【 0 0 2 2 】

【 化 1 5 】

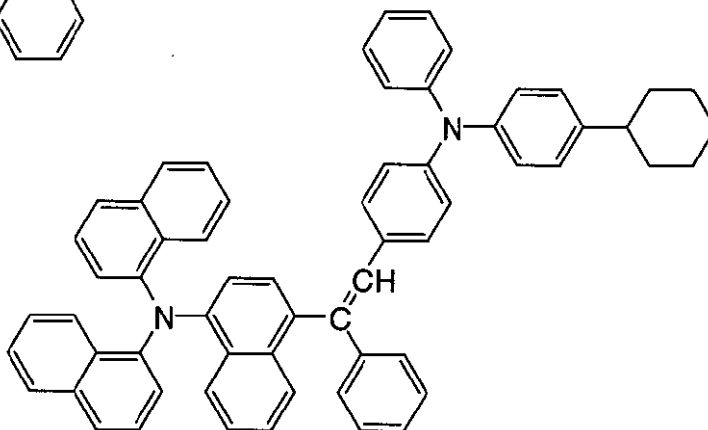
例示化合物

43



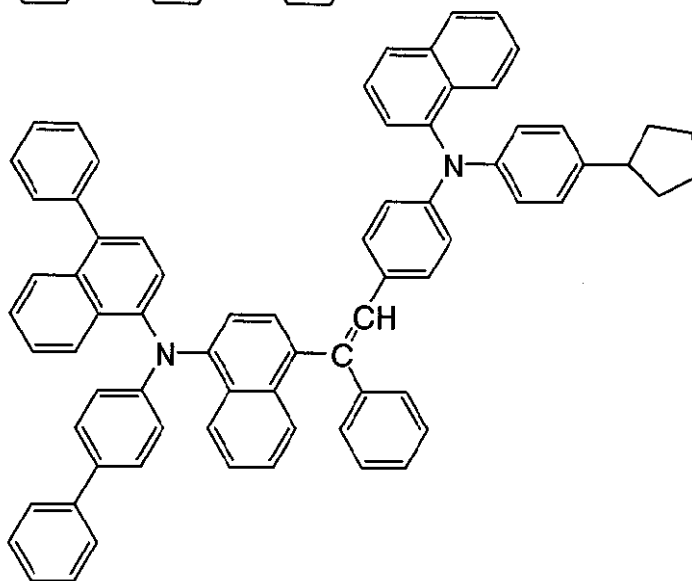
10

44



20

45



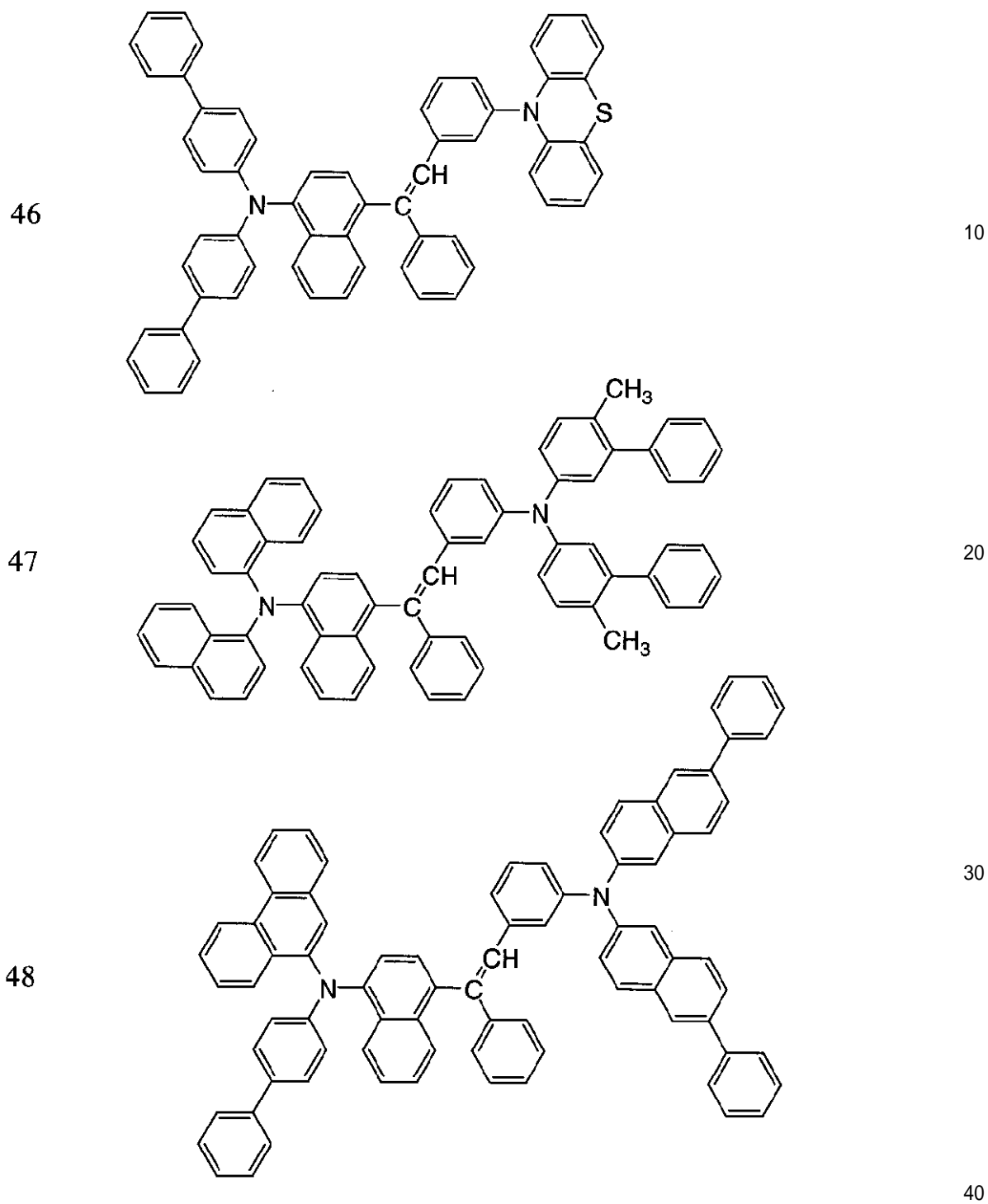
30

40

【 0 0 2 3 】

【 化 1 6 】

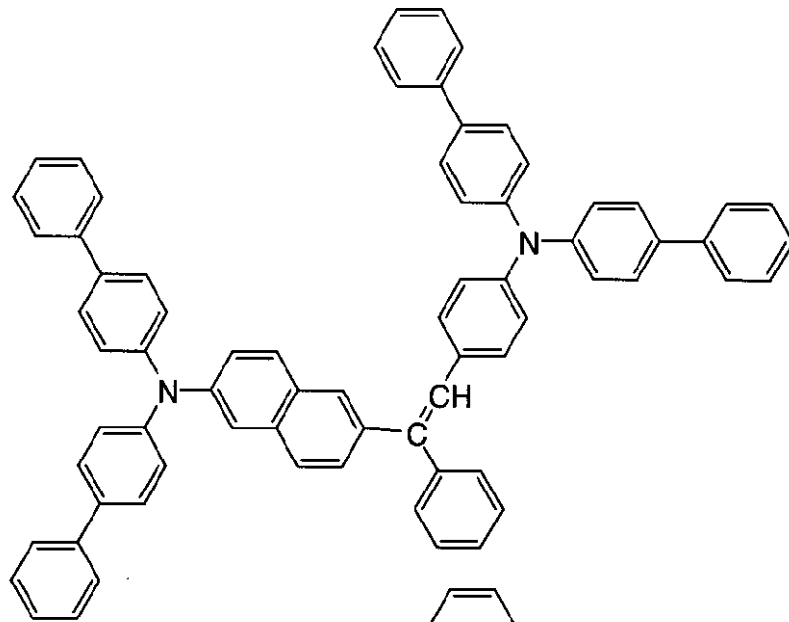
例示化合物



【 0 0 2 4 】  
【 化 1 7 】

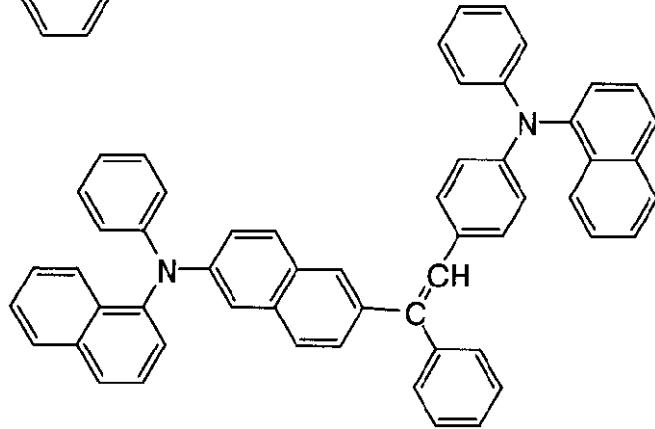
例示化合物

49



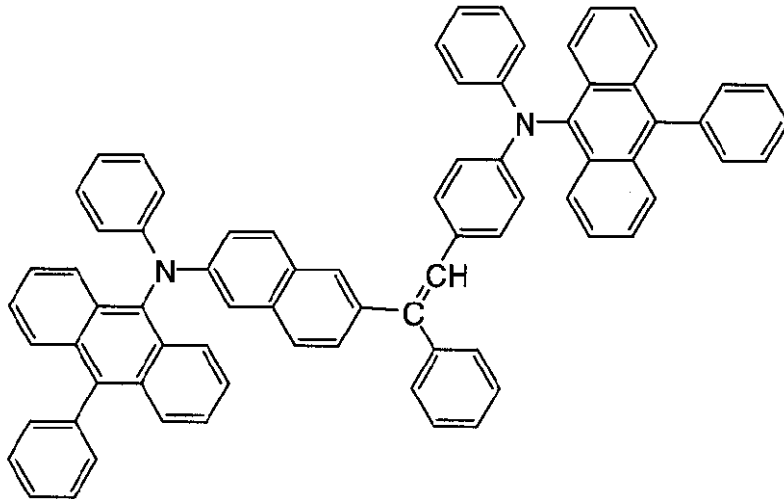
10

50



20

51



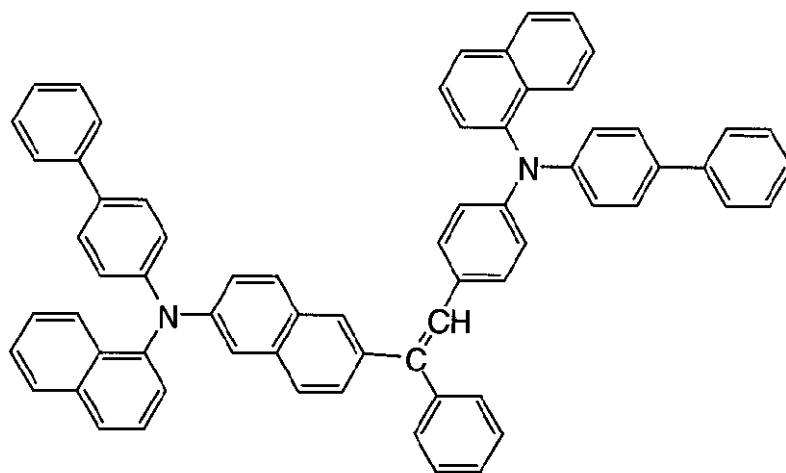
30

40

【 0 0 2 5 】  
【 化 1 8 】

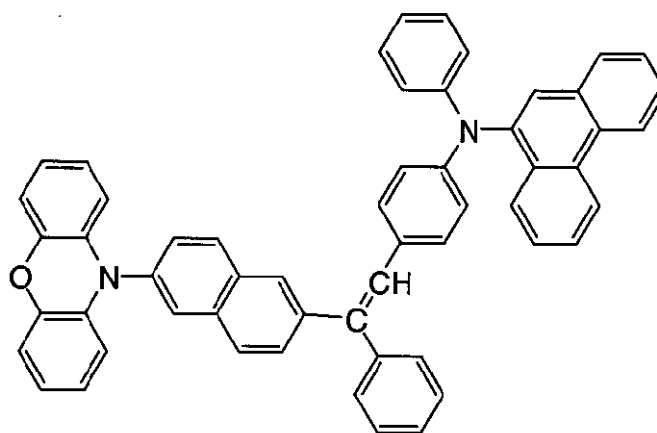
例示化合物

52



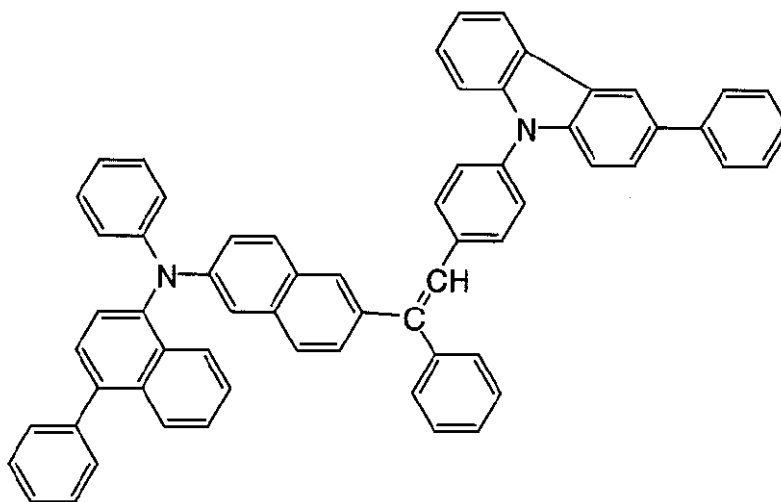
10

53



20

54



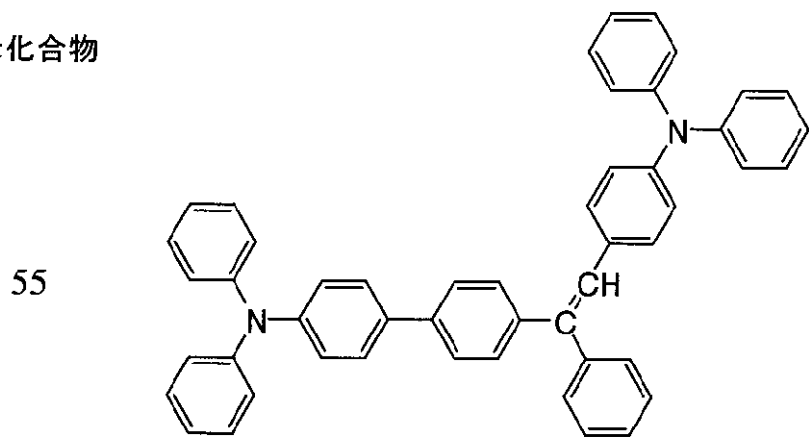
30

40

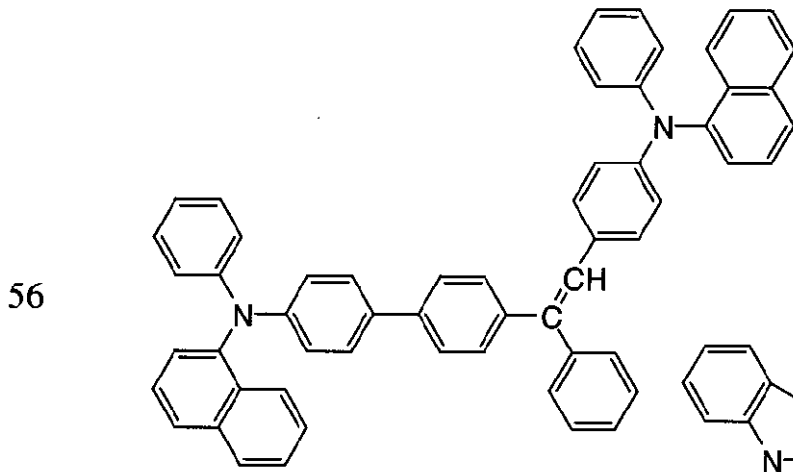
【 0 0 2 6 】

【 化 1 9 】

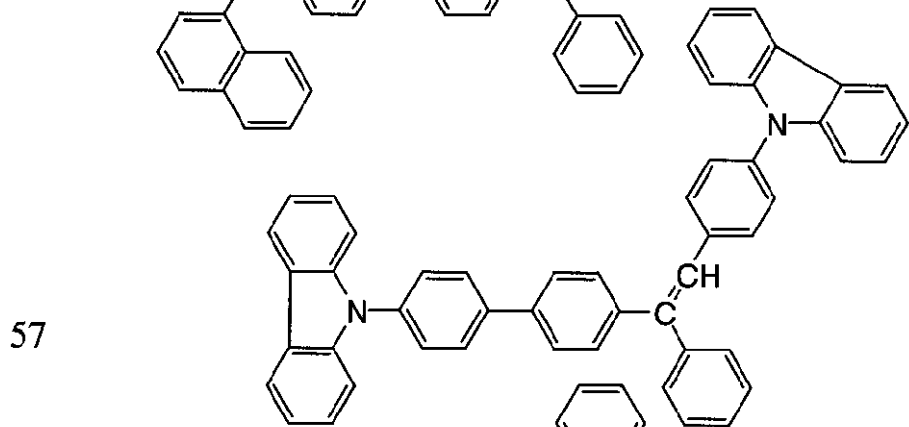
例示化合物



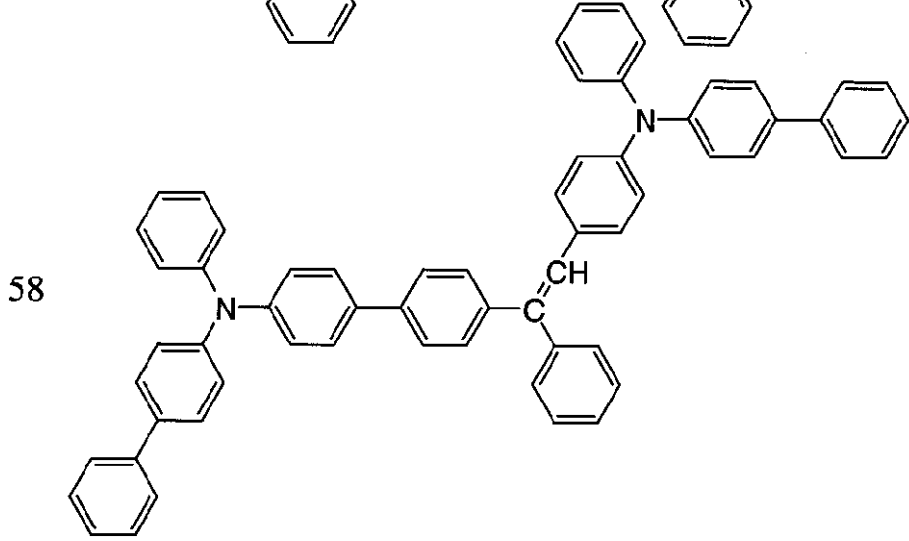
10



20



30



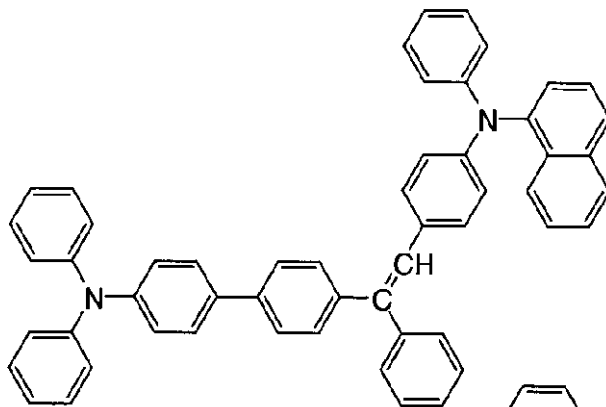
40

【 0 0 2 7 】

【 化 2 0 】

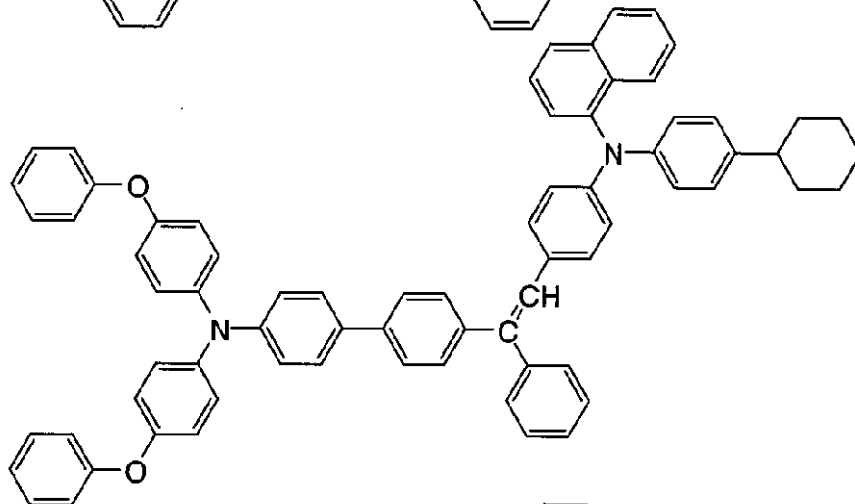
例示化合物

59



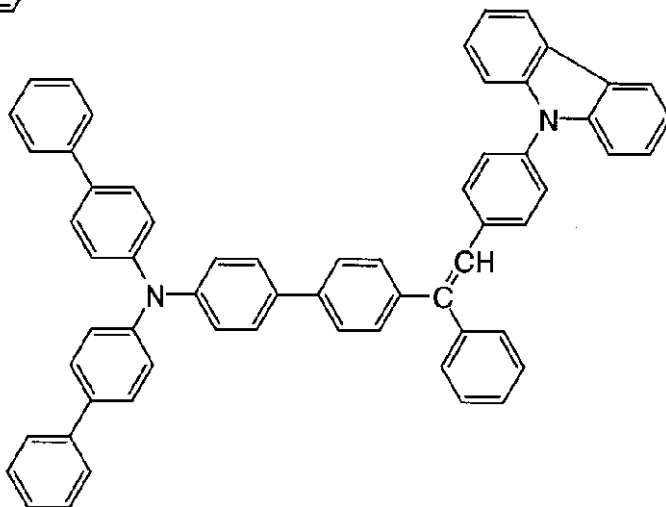
10

60



20

61



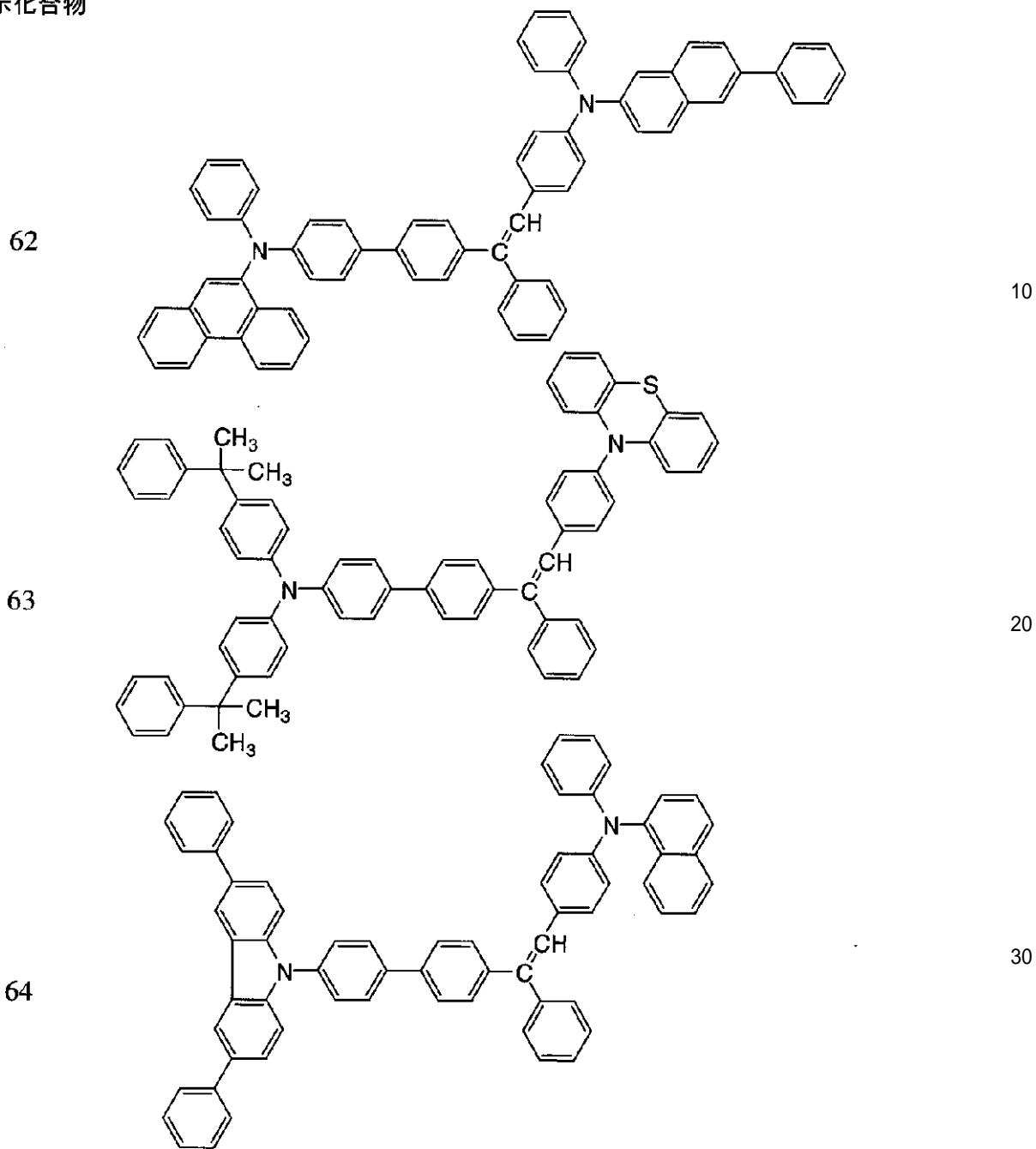
30

【 0 0 2 8 】

【 化 2 1 】

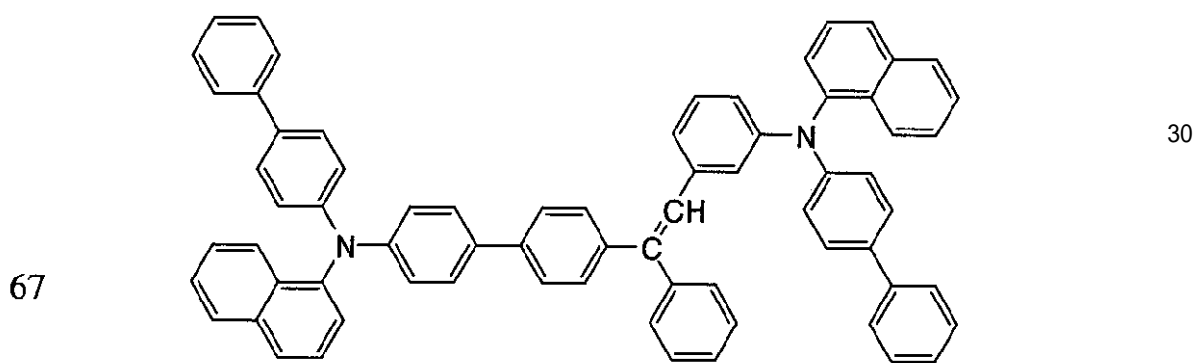
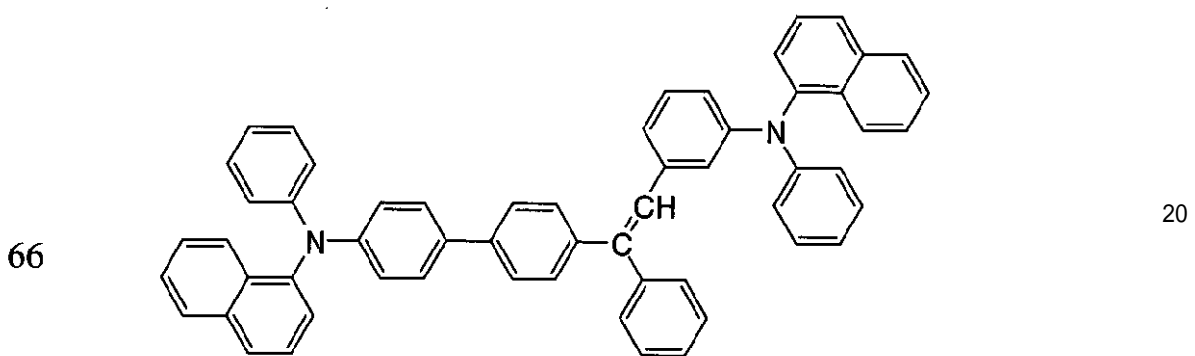
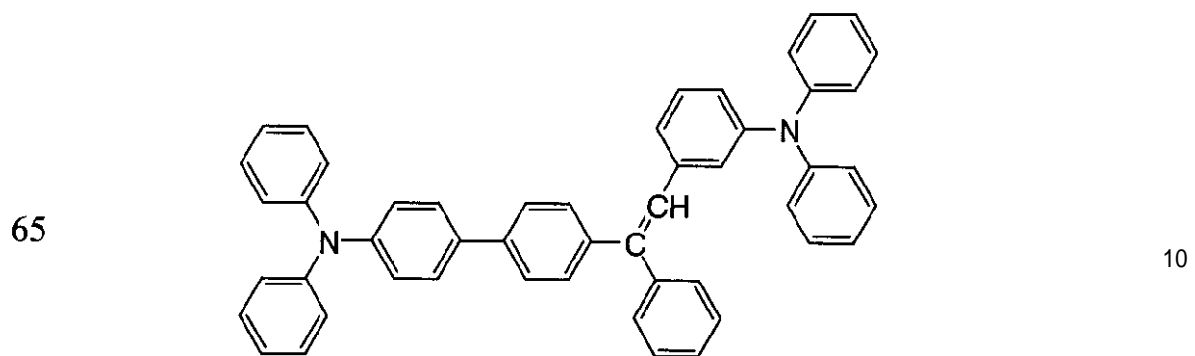
40

例示化合物



【 0 0 2 9 】  
【 化 2 2 】

## 例示化合物

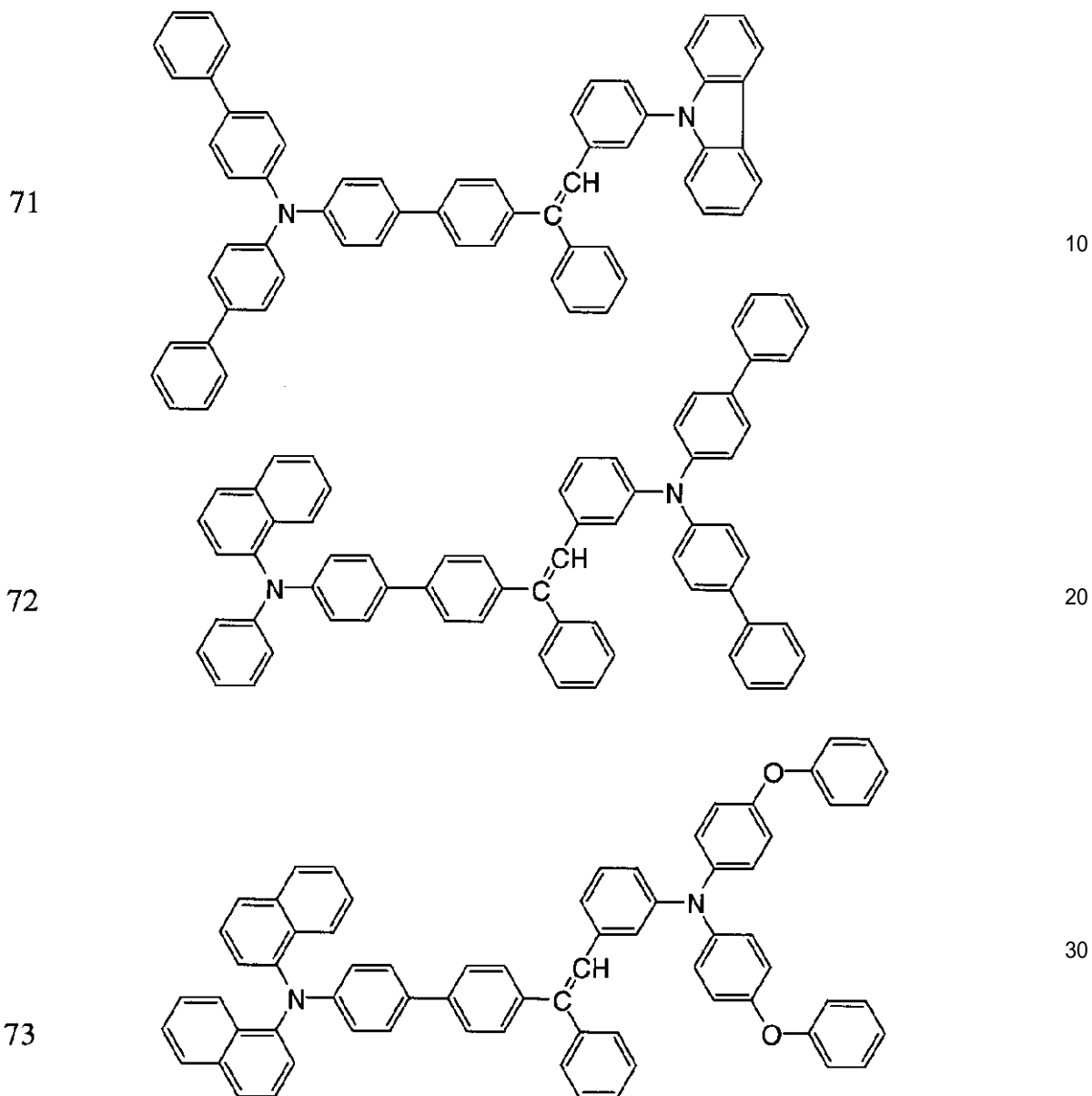


【 0 0 3 0 】

【 化 2 3 】



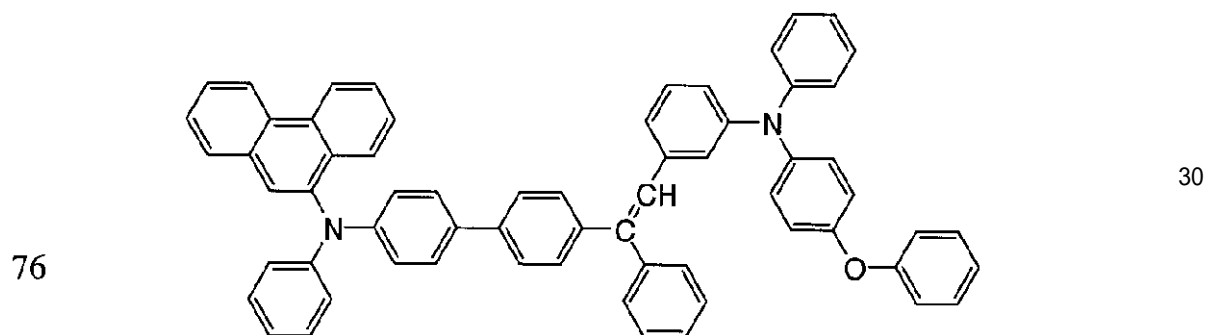
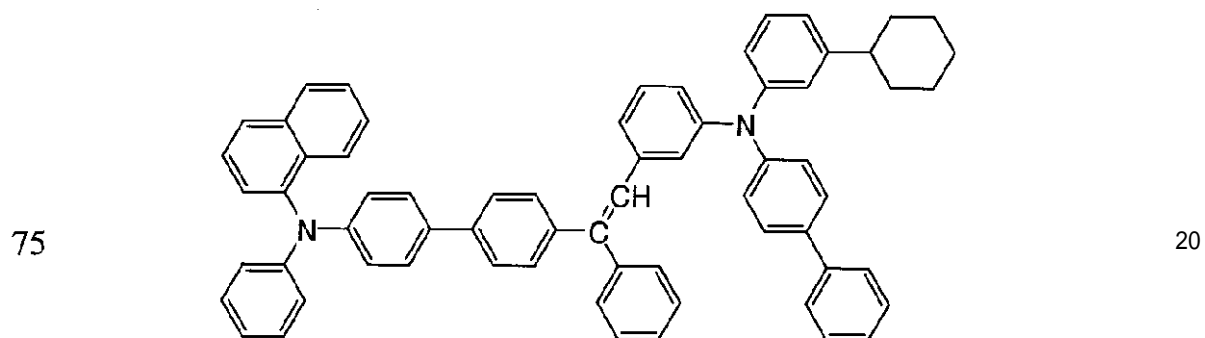
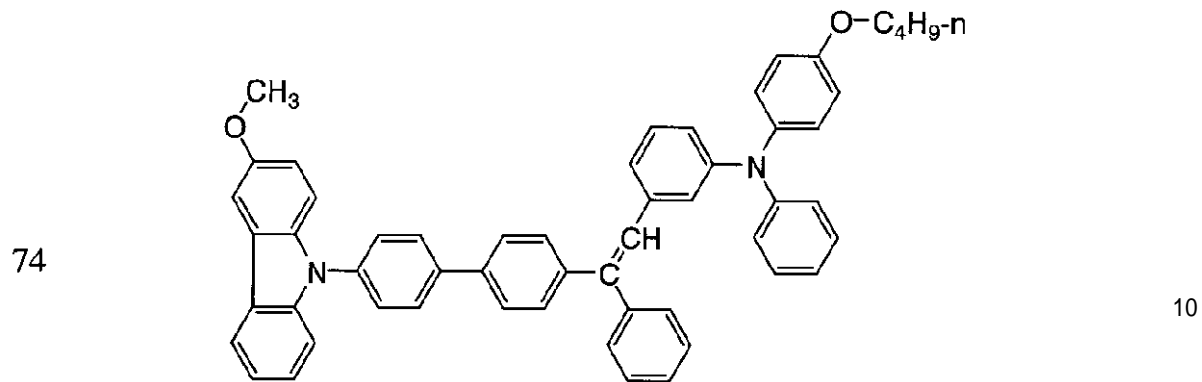
例示化合物



【 0 0 3 2 】

【 化 2 5 】

## 例示化合物

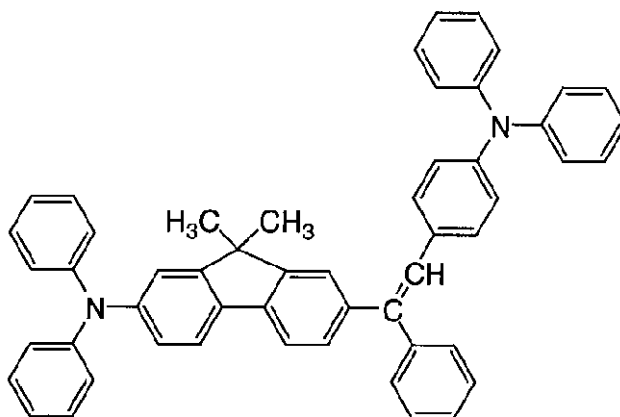


【 0 0 3 3 】

【 化 2 6 】

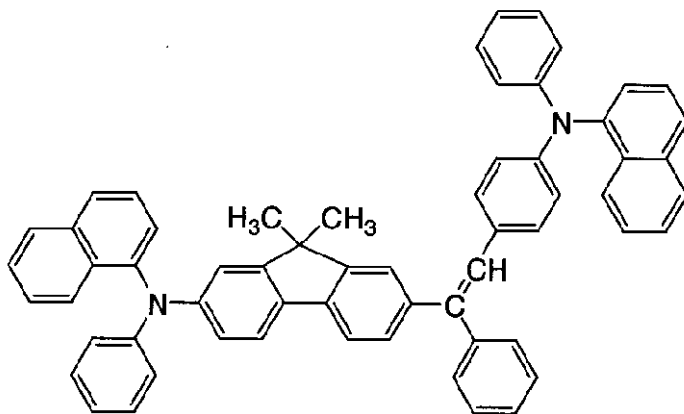
例示化合物

77



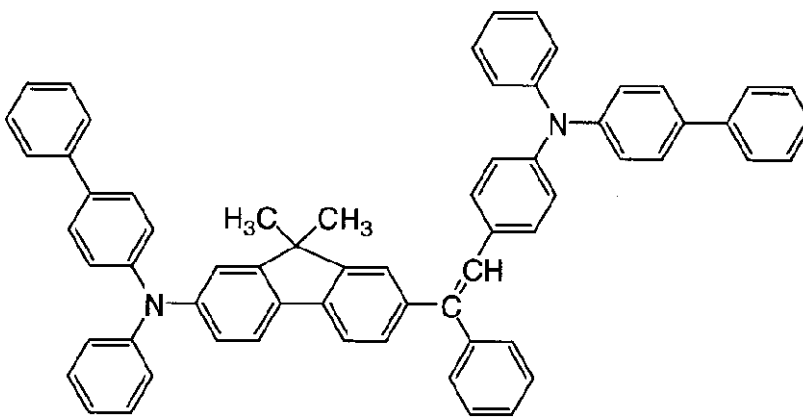
10

78



20

79



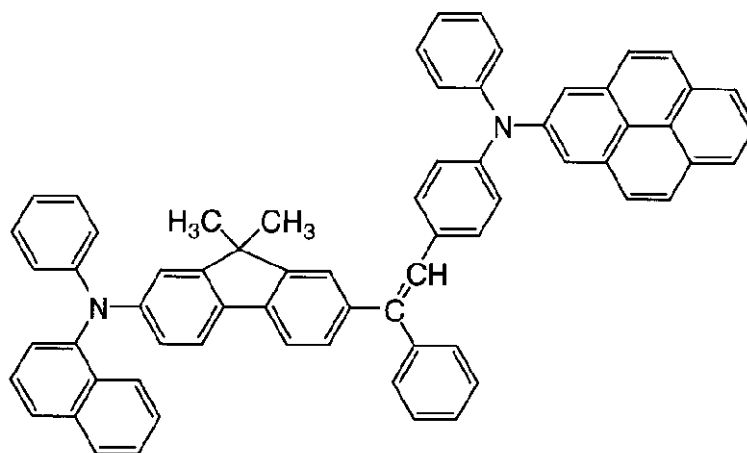
30

【 0 0 3 4 】

【 化 2 7 】

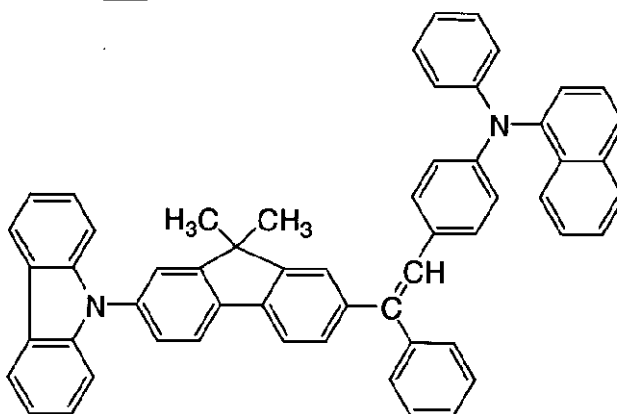
## 例示化合物

80



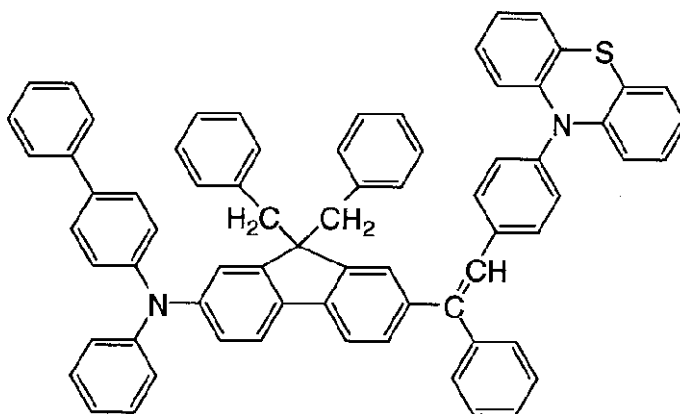
10

81



20

82



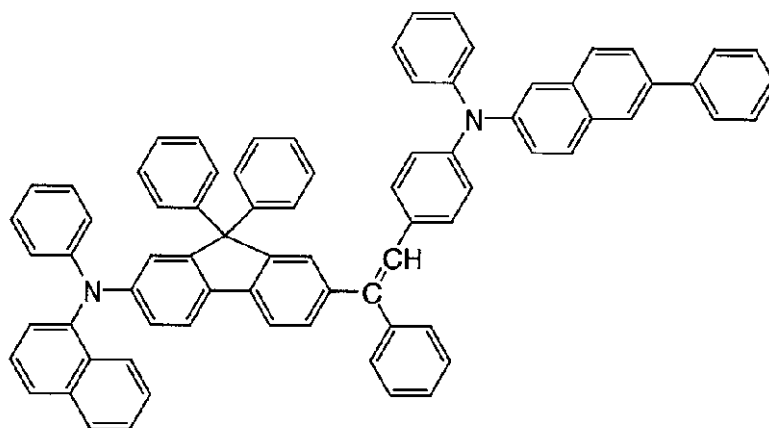
30

【 0 0 3 5 】

【 化 2 8 】

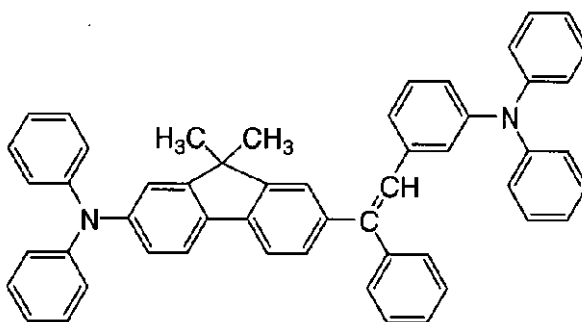
## 例示化合物

83



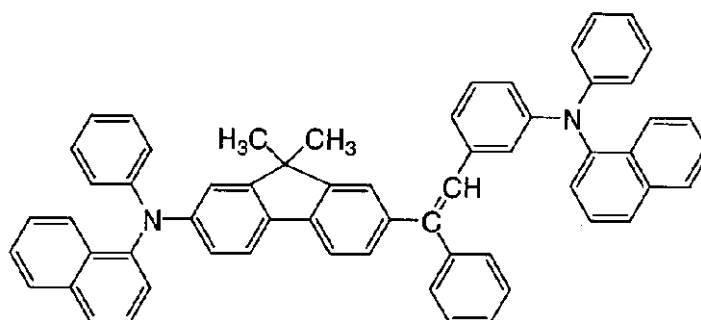
10

84



20

85

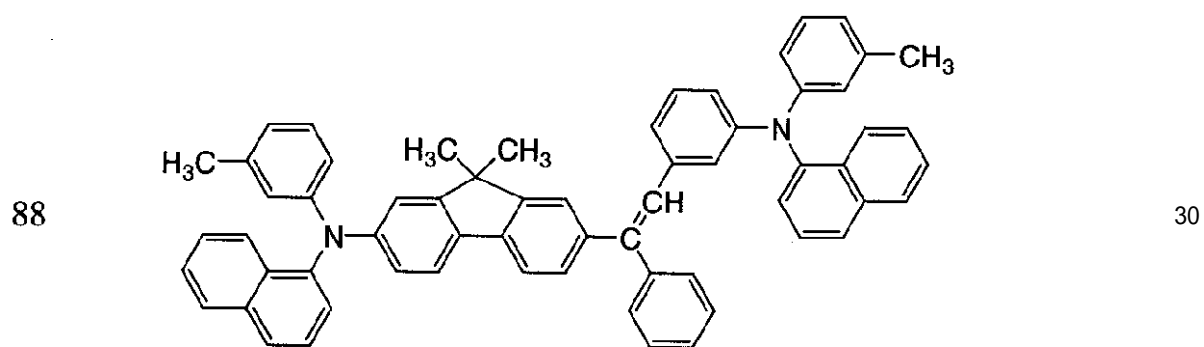
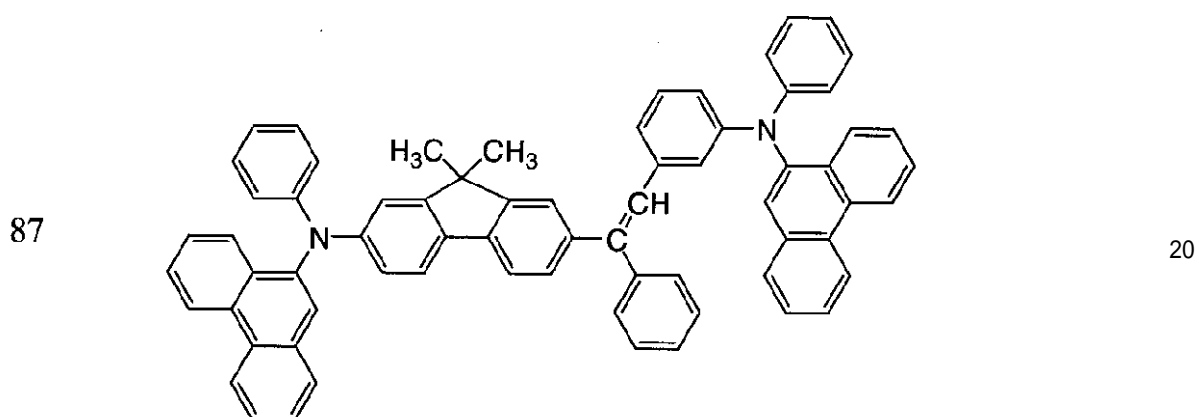
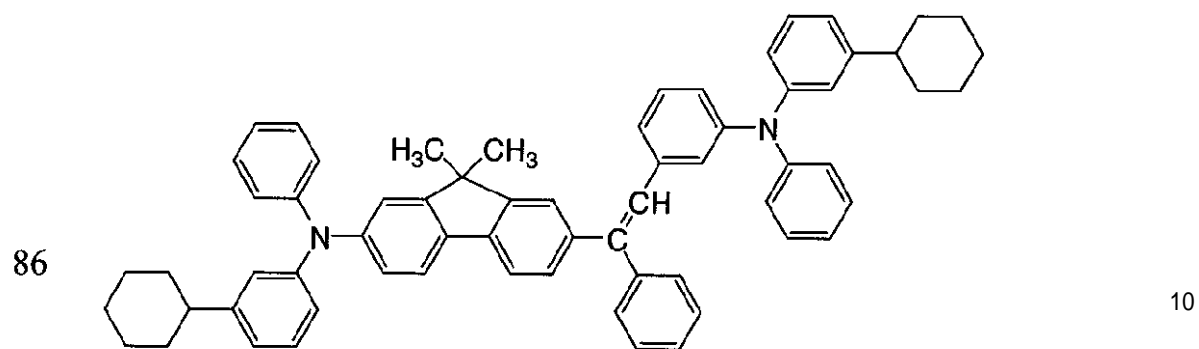


30

【 0 0 3 6 】

【 化 2 9 】

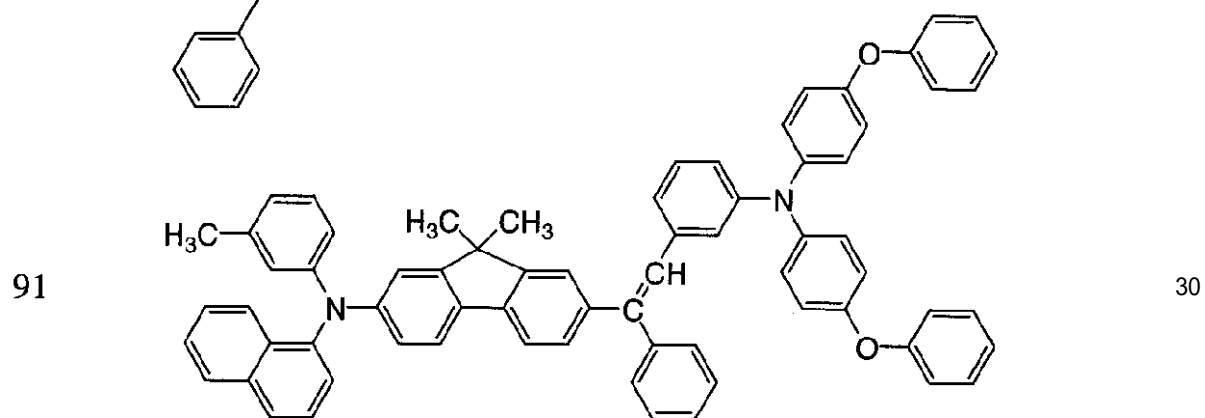
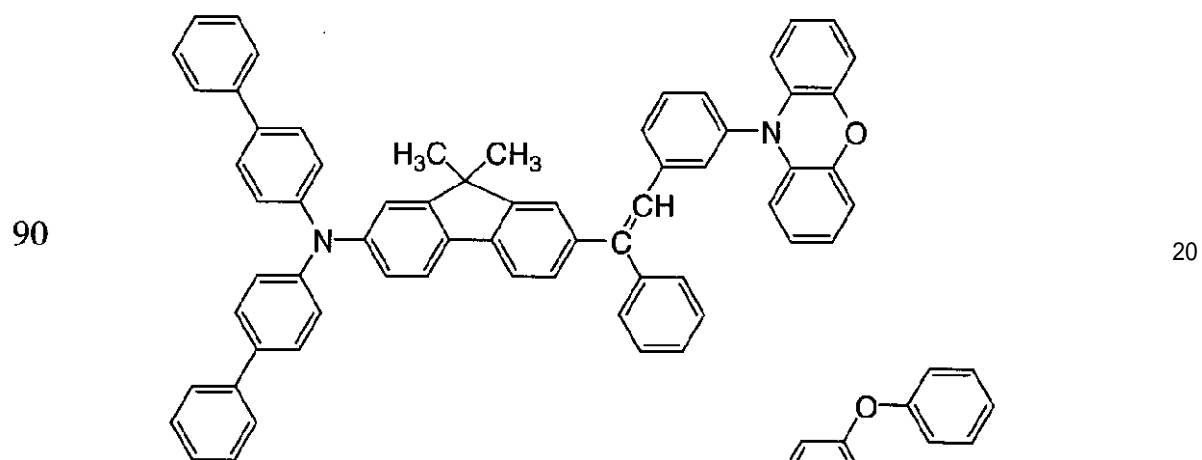
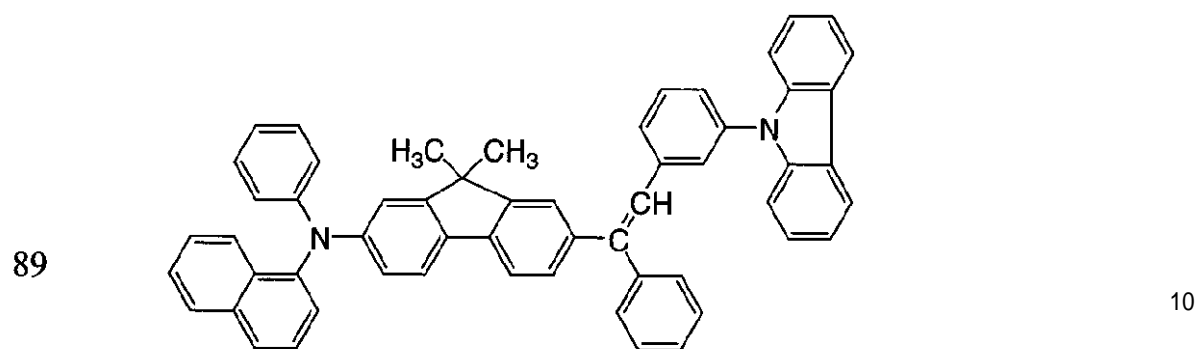
## 例示化合物



【 0 0 3 7 】

【 化 3 0 】

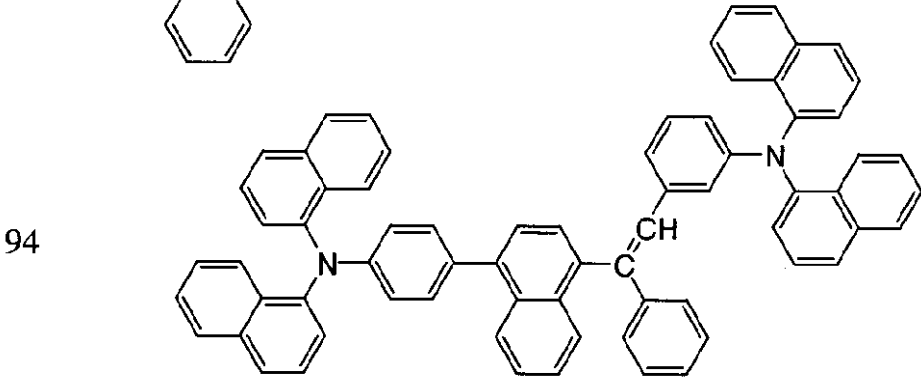
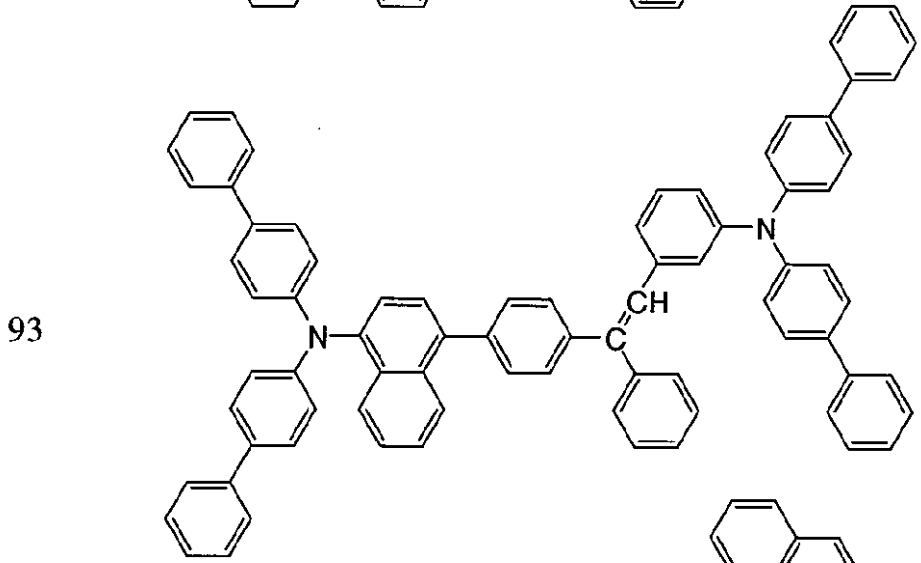
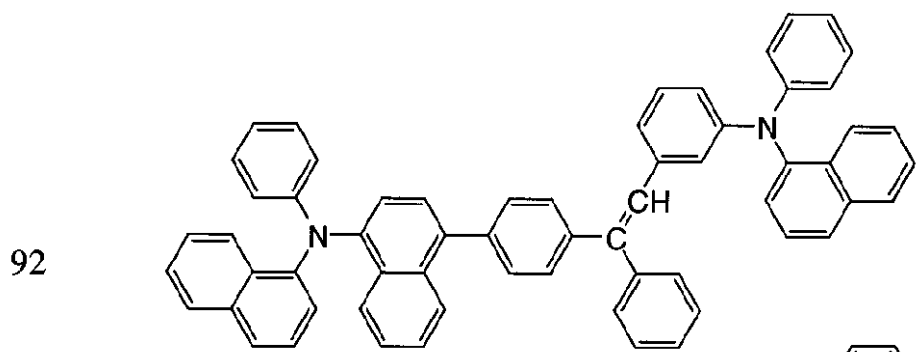
## 例示化合物



【 0 0 3 8 】

【 化 3 1 】

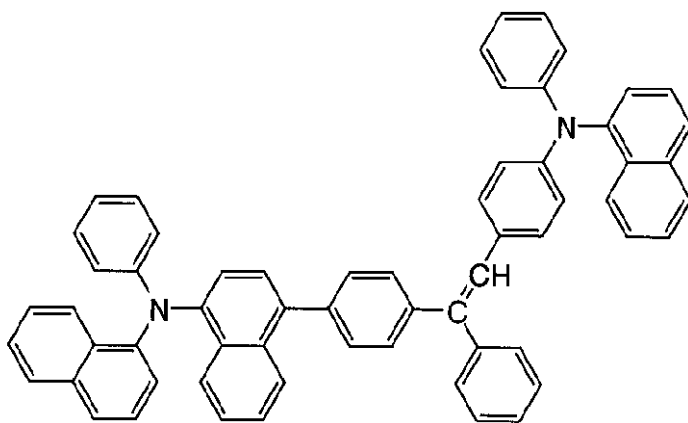
例示化合物



【 0 0 3 9 】  
【 化 3 2 】

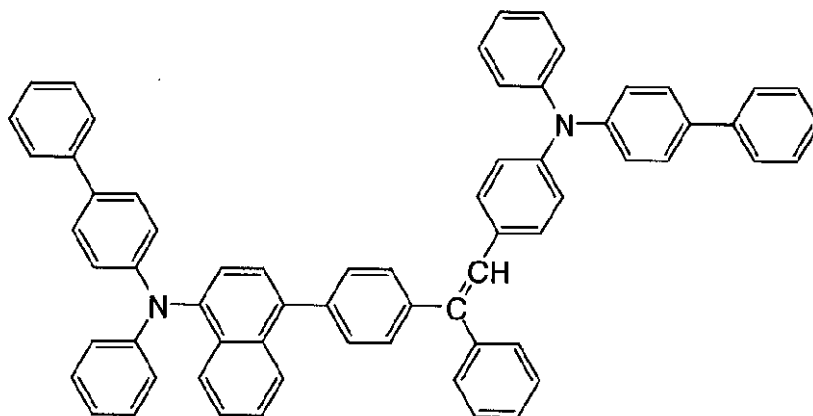
例示化合物

95



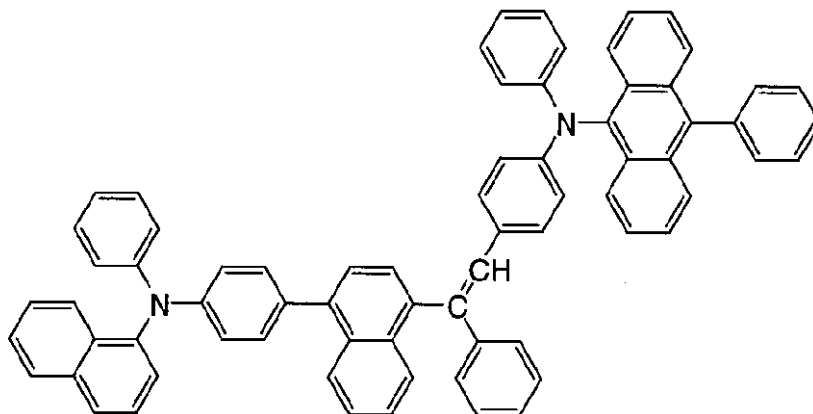
10

96



20

97

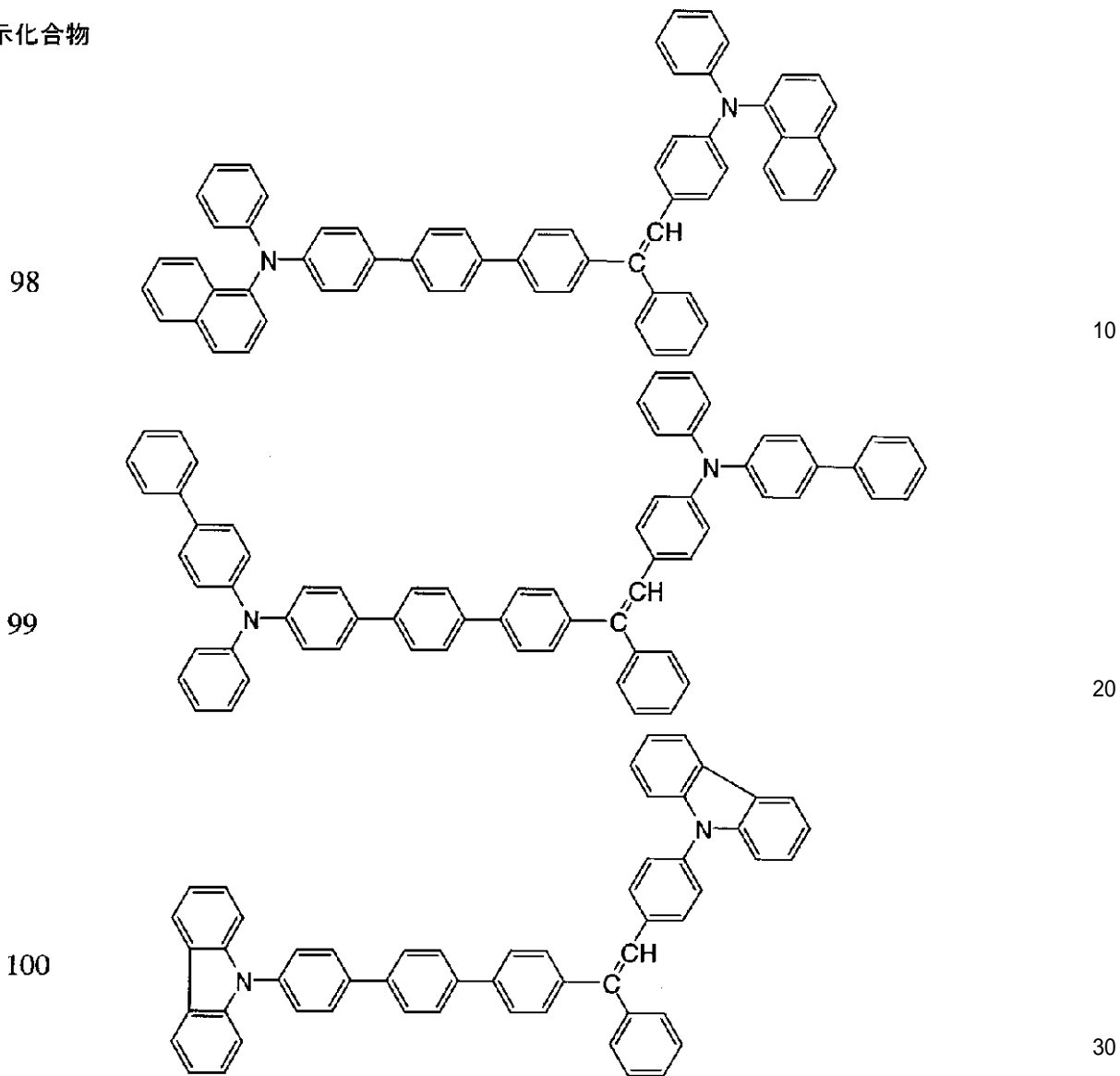


30

【 0 0 4 0 】

【 化 3 3 】

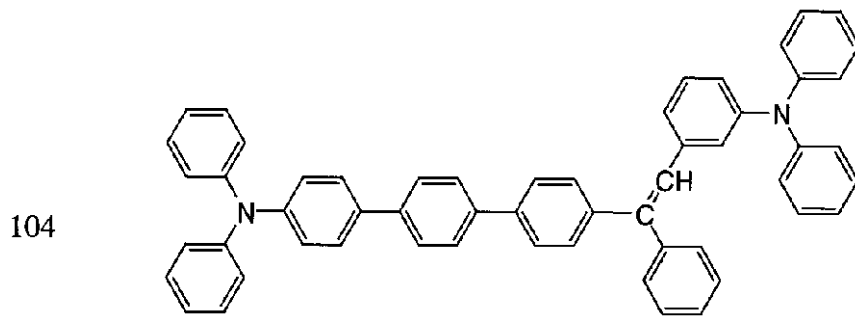
例示化合物



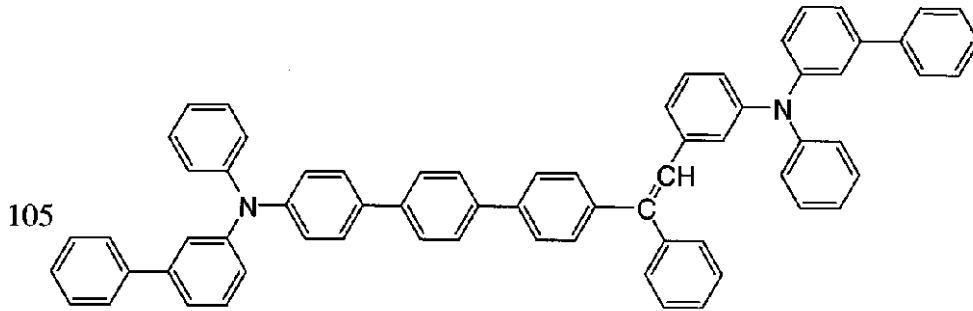
【 0 0 4 1 】  
【 化 3 4 】



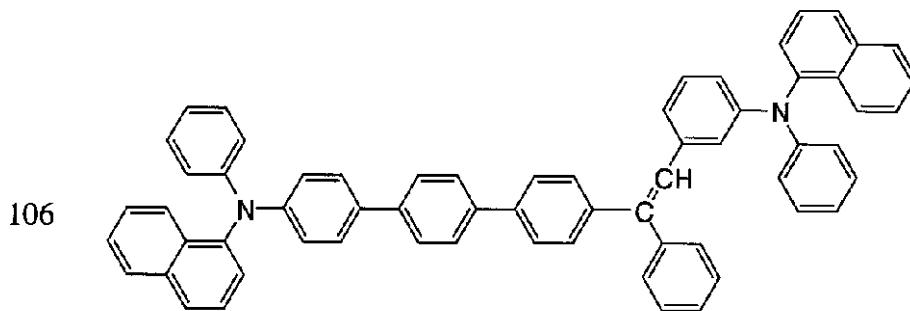
例示化合物



10



20

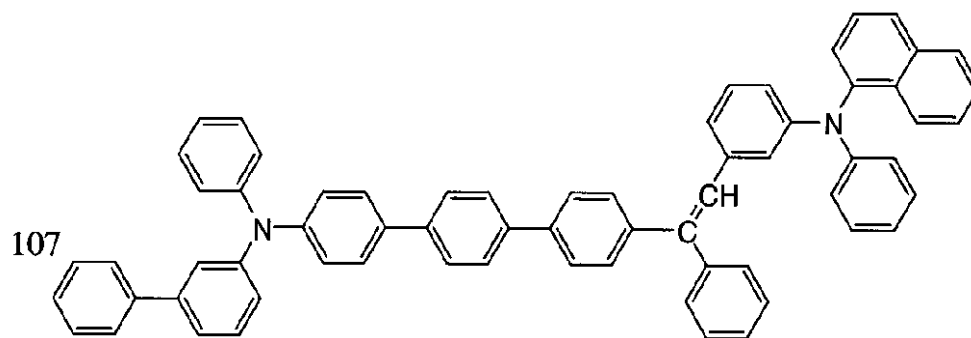


30

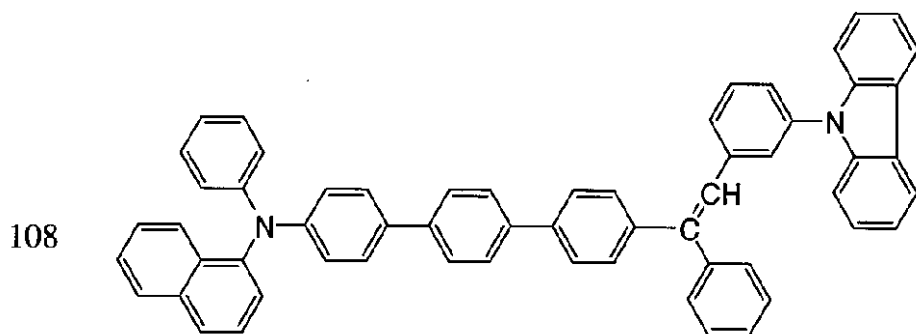
【 0 0 4 3 】

【 化 3 6 】

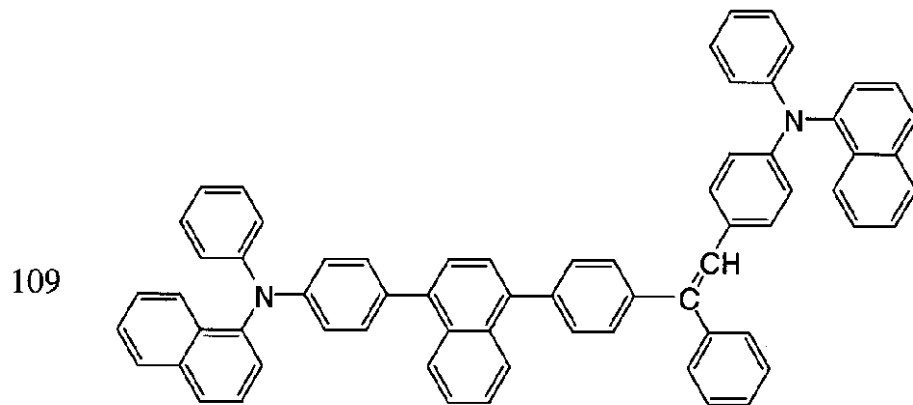
例示化合物



10



20

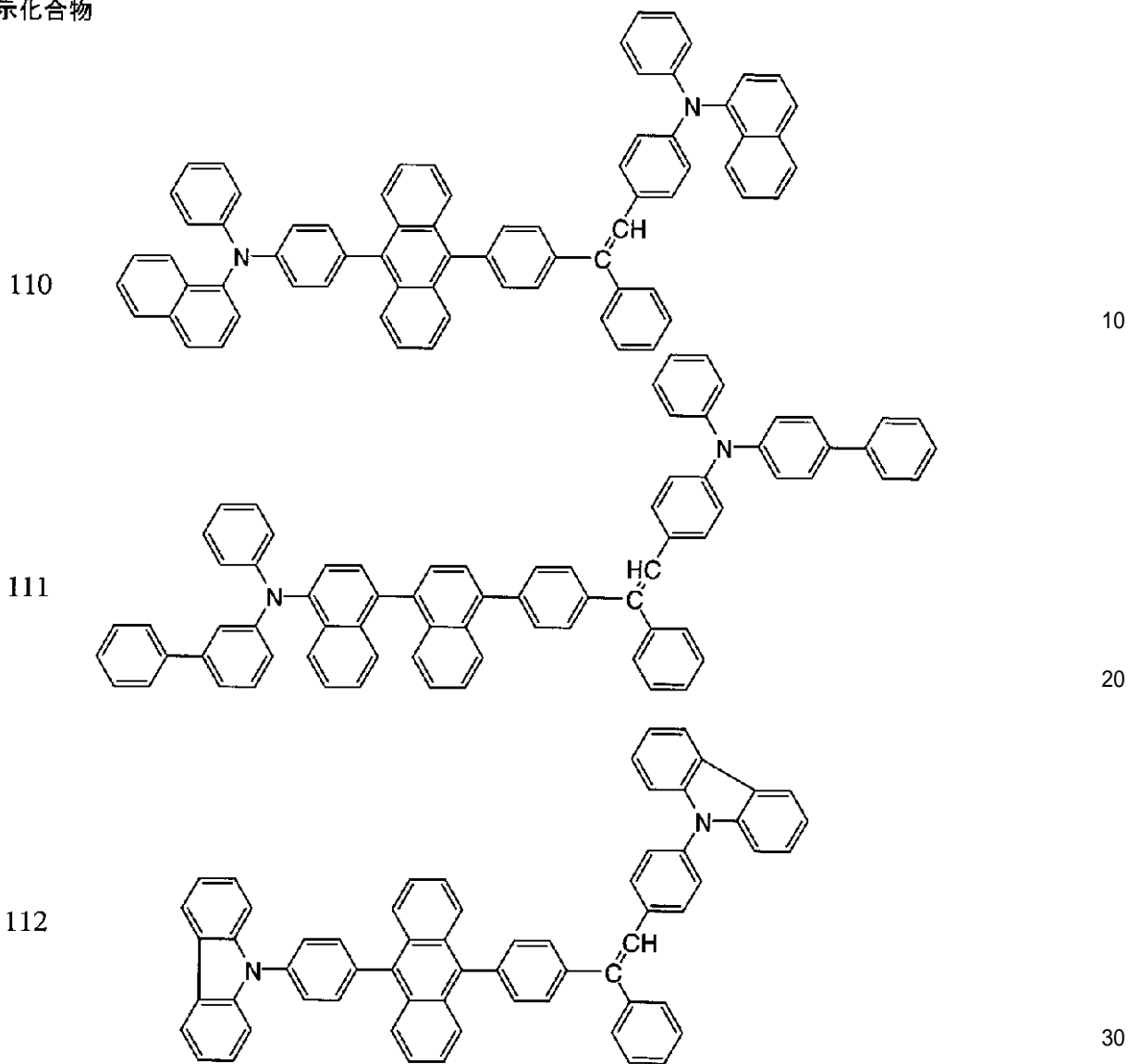


30

【 0 0 4 4 】

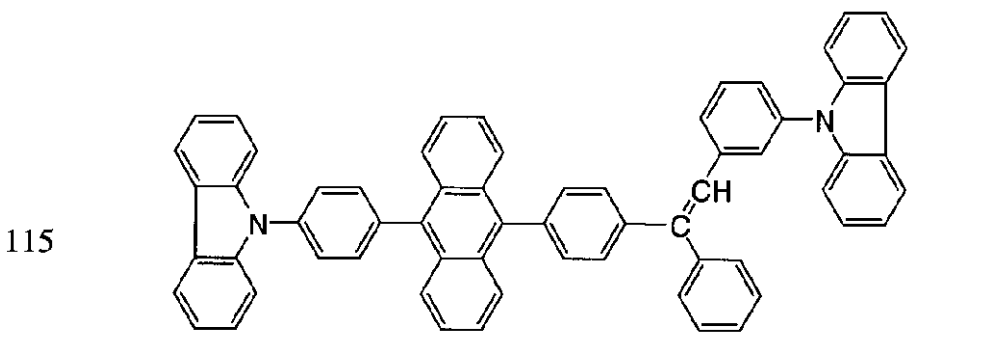
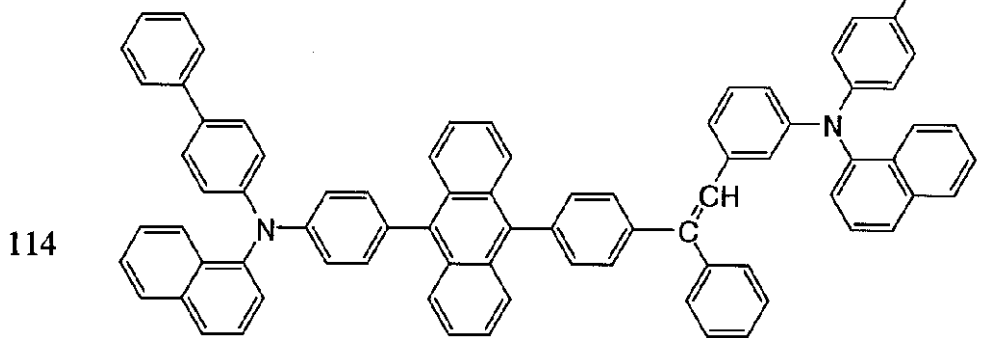
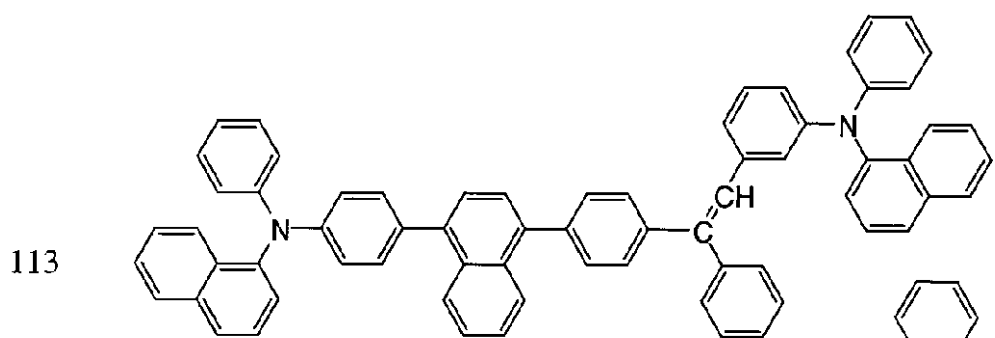
【 化 3 7 】

例示化合物



【 0 0 4 5 】  
【 化 3 8 】

例示化合物

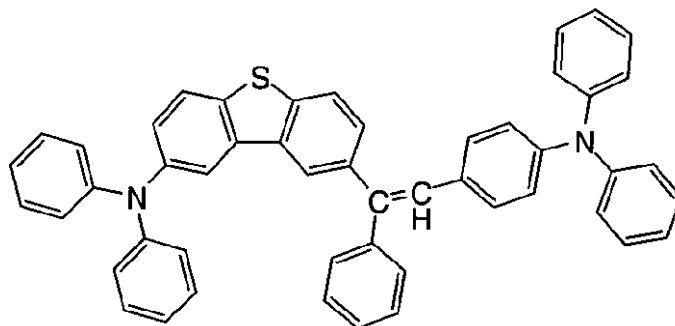


【 0 0 4 6 】

【 化 3 9 】

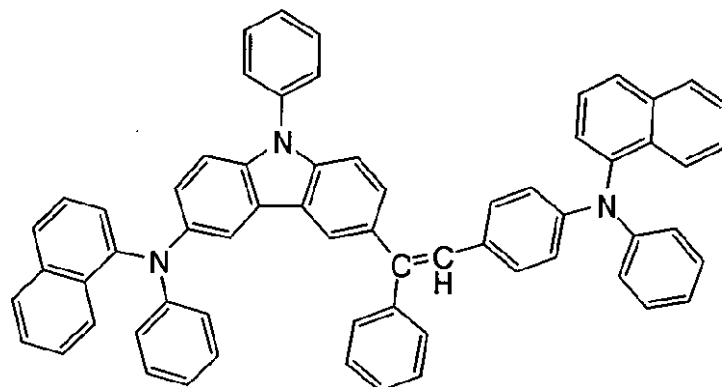
## 例示化合物

116



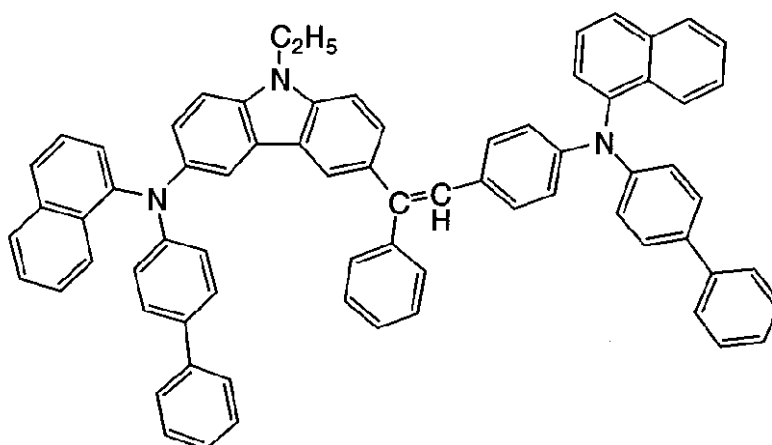
10

117



20

118



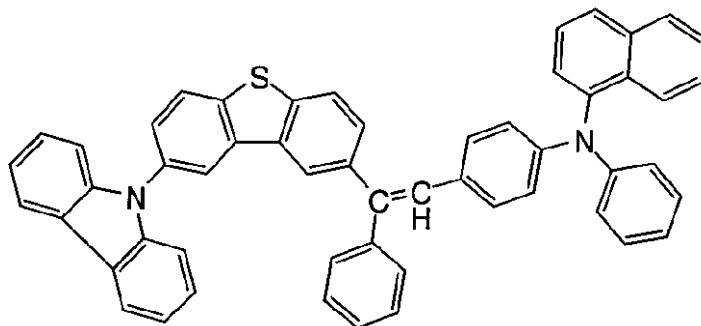
30

【 0 0 4 7 】

【 化 4 0 】

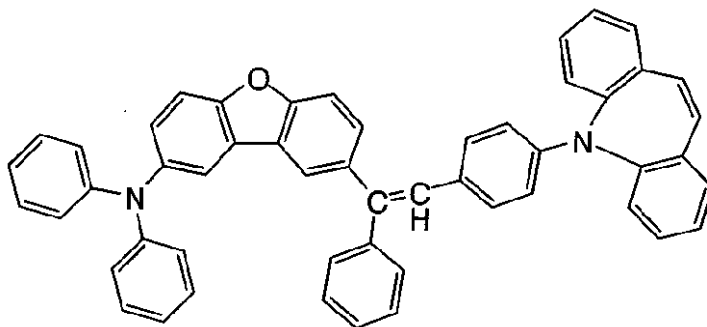
## 例示化合物

119



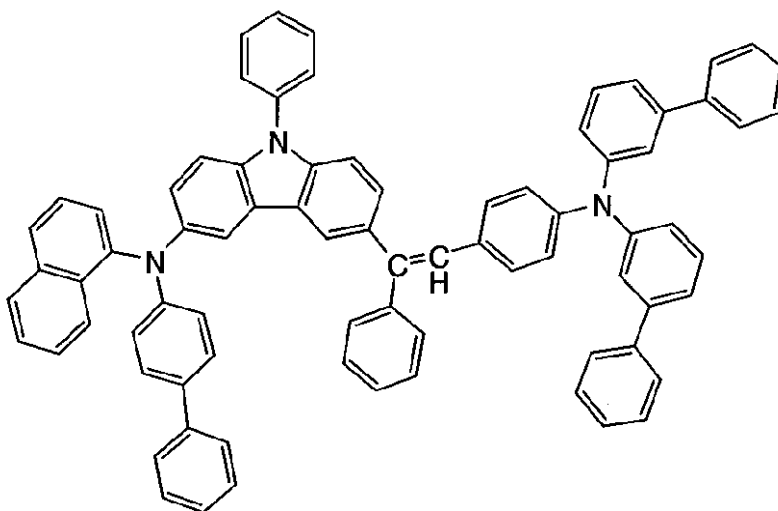
10

120



20

121



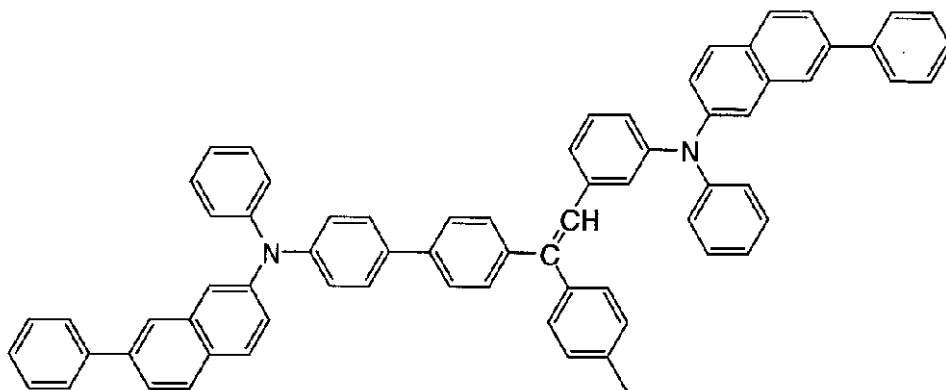
30

【 0 0 4 8 】

【 化 4 1 】

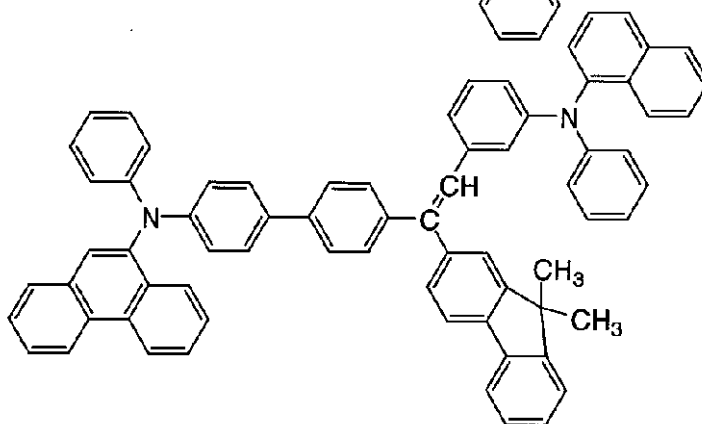
例示化合物

122



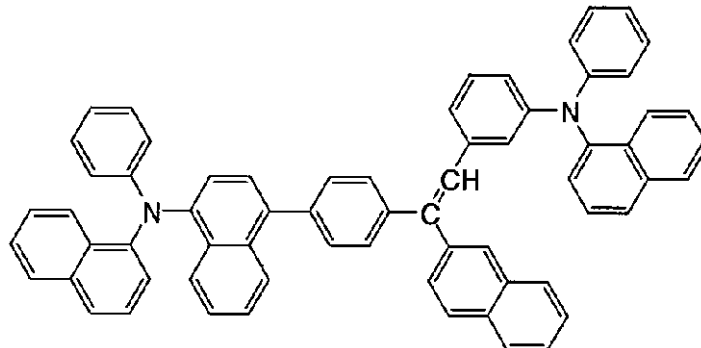
10

123



20

124

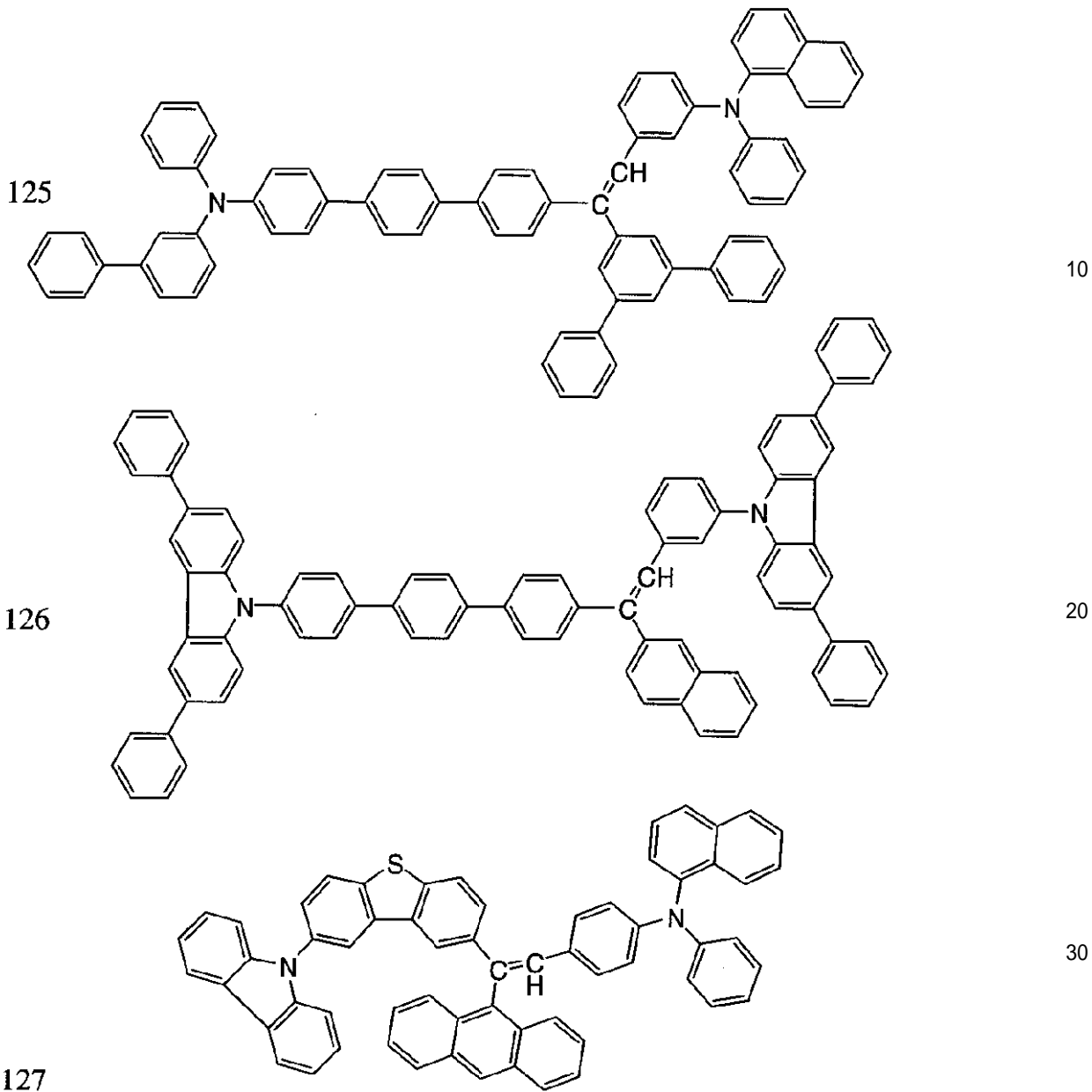


30

【 0 0 4 9 】

【 化 4 2 】

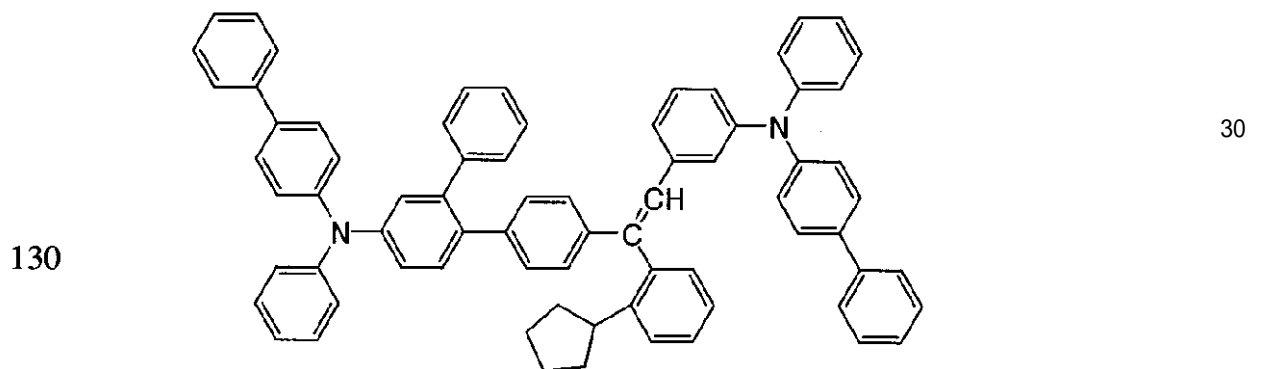
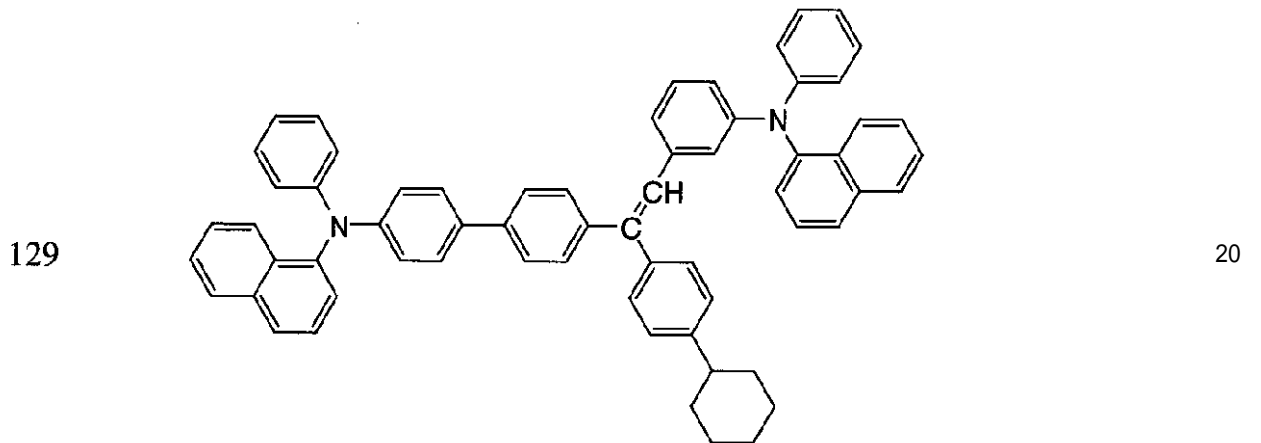
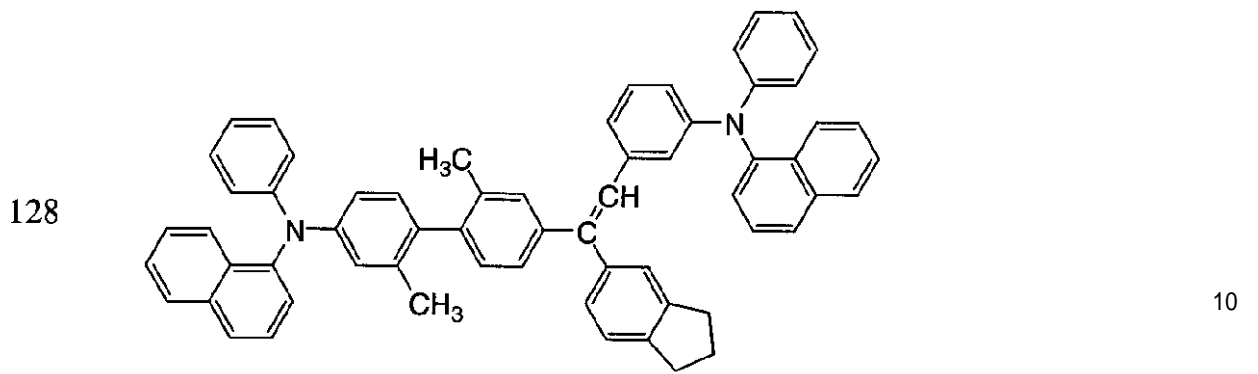
例示化合物



【 0 0 5 0 】

【 化 4 3 】

## 例示化合物



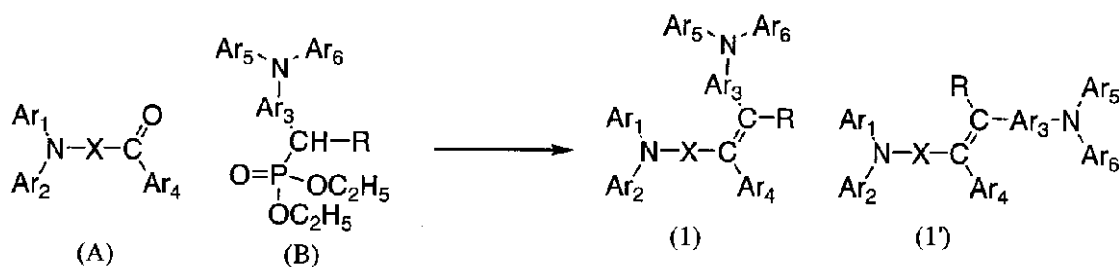
【 0 0 5 1 】

本発明の一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物は例えば、以下に示す工程により製造することができる。

一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物の製造(化44)

【 0 0 5 2 】

【 化 4 4 】



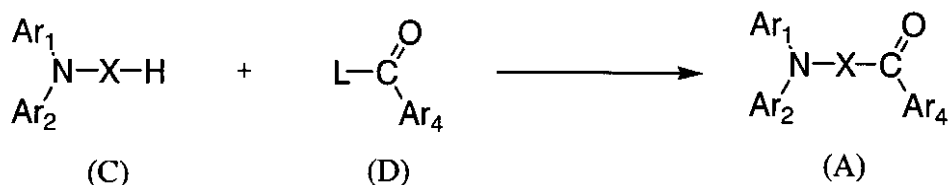
〔式中、 $Ar_1$ 、 $Ar_2$ 、 $Ar_3$ 、 $Ar_4$ 、 $Ar_5$ 、 $Ar_6$ 、 $R$ および $X$ は一般式(1)および/または(1')と同義である〕

すなわち、一般式(A)で表されるカルボニル化合物と、一般式(B)で表される化合物を塩基(例えば、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、*tert*-ブトキシナトリウム、*tert*-ブトキシカリウム)の存在下に反応させることにより製造することができる。

尚、一般式(A)で表される化合物は、例えば、以下の工程(化45)により製造することができる。

【0053】

【化45】



〔式中、 $Ar_1$ 、 $Ar_2$ 、 $Ar_4$ および $X$ は一般式(1)および/または(1')と同義であり、 $L$ はハロゲン原子を表す〕

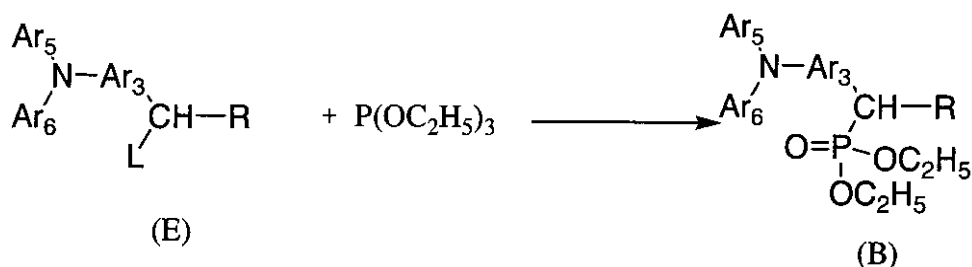
すなわち、一般式(C)で表されるアミン化合物と一般式(D)で表されるカルボン酸ハロゲン化物を塩化アルミニウム、塩化亜鉛等のルイス酸の存在下に反応させることにより製造することができる。

【0054】

また、一般式(B)で表される化合物は、例えば、以下の工程(化46)により製造することができる。

【0055】

【化46】



〔式中、 $Ar_3$ 、 $Ar_5$ 、 $Ar_6$ および $R$ は一般式(1)および/または(1')と同義であり、 $L$ はハロゲン原子を表す〕

すなわち、一般式(E)で表される化合物と、亜リン酸トリエチルを加熱して反応させることにより、一般式(B)で表される化合物を製造することができる。

【0056】

また一般式(1)または(1')で表されるジアミン化合物は、 $Ar_1$ および $Ar_2$ と $Ar_5$ および $Ar_6$ が同一である場合、別法として、以下の工程(化47)によっても製造することができる。

10

20

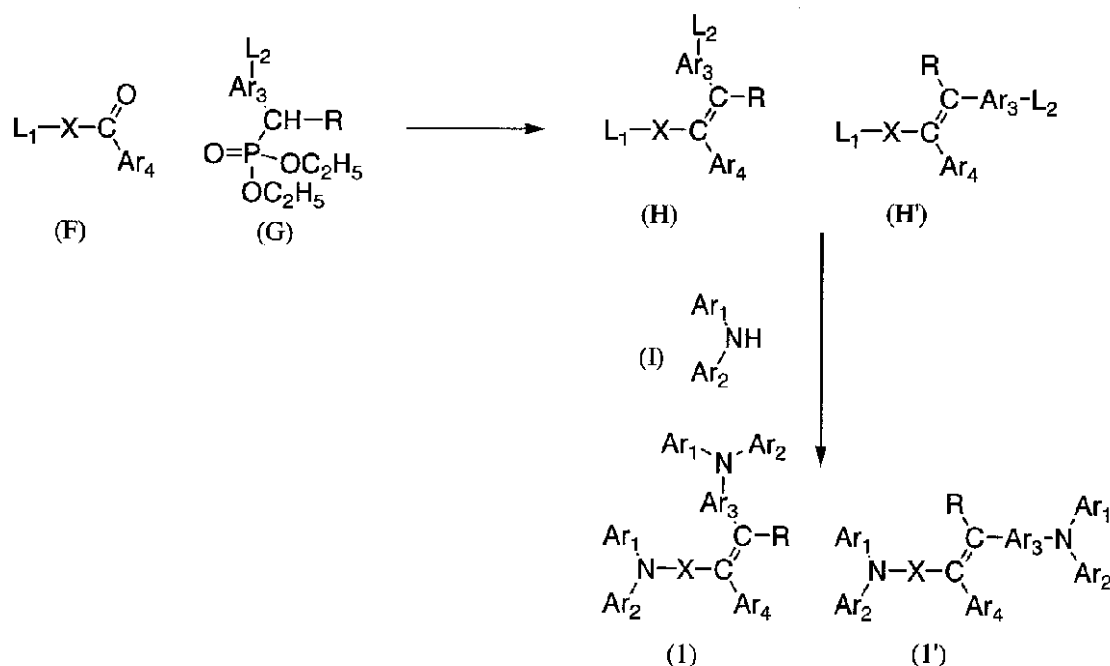
30

40

50

【 0 0 5 7 】

【 化 4 7 】



10

20

30

40

50

〔式中、 $Ar_1$ 、 $Ar_2$ 、 $Ar_3$ 、 $Ar_4$ 、 $R$ および $X$ は一般式(1)および/または(1')と同義であり、 $L_1$ 、 $L_2$ はハロゲン原子を表す〕

すなわち、一般式(F)で表されるハロゲン置換のカルボニル化合物と一般式(G)で表される化合物を塩基(例えば、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水素化ナトリウム、tert-ブトキシカリウム、tert-ブトキシナトリウム)の存在下反応させ、一般式(H)および/または(H')で表される化合物を製造し、その後、一般式(I)で表されるアミン化合物と反応させることで一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物において、 $Ar_1$ および $Ar_2$ が $Ar_5$ および $Ar_6$ と同一である化合物を製造することができる。

尚、一般式(H)および/または(H')で表される化合物と、一般式(I)で表されるアミン化合物との反応は、パラジウム触媒〔例えば、酢酸パラジウム、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム〕およびリン配位子(例えばジ-tert-ブチル-*o*-ピフェニルホスフィン、ジシクロヘキシルフェニルホスフィン、トリス-tert-ブチルホスフィン)、あるいは、銅触媒(例えば、銅粉末、ヨウ化銅、塩化銅、臭化銅)を触媒として、塩基(例えば、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸セシウム、炭酸ルビジウム、ナトリウム-tert-ブトキシド、カリウム-tert-ブトキシド)の存在下に反応させることにより実施することができる。

【 0 0 5 8 】

次に本発明の有機電界発光素子について説明する。本発明の有機電界発光素子は、一对の電極間に、一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物を少なくとも1種含有する層を少なくとも一層挟持してなるものである。有機電界発光素子は、通常一对の電極間に少なくとも1種の発光成分を含有する発光層を少なくとも一層挟持してなるものである。発光層に使用する化合物の正孔注入および正孔輸送、電子注入および電子輸送の各機能レベルを考慮し、所望に応じて、正孔注入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構成として一層型の素子構成とすることができる。また、発光層が正孔注入機能および/または正孔輸送機能に乏しい場合には発光層の陽極側に正孔注入

輸送層を設けた二層型の素子構成、発光層が電子注入機能および/または電子輸送機能に乏しい場合には発光層の陰極側に電子注入輸送層を設けた二層型の素子構成とすることができる。さらには発光層を正孔注入輸送層と電子注入輸送層で挟み込んだ構成の三層型の素子構成とすることも可能である。

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

本発明の有機電界発光素子において、一般式(1)および/または(1')で表されるジ  
アミン化合物は、正孔注入輸送層および/または発光層の構成成分として使用することが  
好ましく、正孔注入輸送相の構成成分として使用することがより好ましい。

本発明の有機電界発光素子において、一般式(1)および/または(1')で表されるジ  
アミン化合物は、単独で使用してもよく、また複数併用してもよい。

#### 【0059】

本発明の有機電界発光素子の構成としては、特に限定されるものではないが、例えば、(EL1)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)、(EL2)陽極/正孔注入輸送層/発光層/陰極型素子(図2)、(EL3)陽極/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子(図3)、(EL4)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形の(EL5)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。また、(EL6)の型の素子構成としては、発光層として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、(EL7)発光層として正孔注入輸送成分、発光成分および電子注入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)、(EL8)発光層として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)、(EL9)発光層として発光成分および電子注入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)のいずれであってもよい。

#### 【0060】

本発明の有機電界発光素子は、これらの素子構成に限定されるものではなく、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設けることも可能である。また、それぞれの型の素子において、正孔注入輸送層を発光層との間に、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。

#### 【0061】

好ましい有機電界発光素子の構成は、(EL1)型素子、(EL2)型素子、(EL5)型素子、(EL6)型素子または(EL7)型素子であり、より好ましくは、(EL1)型素子、(EL2)型素子または(EL7)型素子である。

#### 【0062】

以下、本発明の有機電界発光素子の構成要素に関し、詳細に説明する。なお、例として(図1)に示す(EL1)陽極/正孔注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子を取り上げて説明する。

#### 【0063】

(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。

本発明の有機電界発光素子は基板1に支持されていることが好ましく、基板としては、特に限定されるものではないが、透明ないし半透明である基板が好ましく、材質としては、ソーダライムガラス、ポロシリケートガラス等のガラスおよびポリエステル、ポリカーボネート、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、ポリアクリレート、ポリメチルメタクリレート、ポリプロピレン、ポリエチレン等の透明性高分子が挙げられる。また、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

10

20

30

40

50

からなる基板を使用することもできる。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て、発光色をコントロールすることもできる。陽極2としては、仕事関数の比較的大きい金属、合金または導電性化合物を電極材料として使用することが好ましい。陽極に使用する電極材料としては、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、酸化インジウム ( $\text{In}_2\text{O}_3$ )、酸化錫 ( $\text{SnO}_2$ )、酸化亜鉛、ITO (インジウム・チン・オキサイド: Indium Tin Oxide)、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。陽極は、これらの電極材料を、例えば、蒸着法、スパッタリング法等の方法により、基板の上に形成することができる。

10

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  $\Omega$  以下、より好ましくは、5 ~ 50  $\Omega$  程度に設定する。

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

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

正孔注入輸送層は、一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物、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、トリアリールアミン誘導体、トリアリールメタン誘導体、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など)を少なくとも1種使用して形成することができる。

20

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、または複数併用してもよい。

#### 【0064】

本発明の有機電界発光素子は、好ましくは、正孔注入輸送層に一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物を含有する。本発明の有機電界発光素子において使用することができる本発明の一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物以外の正孔注入輸送機能を有する化合物としては、トリアリールアミン誘導体(例えば、4,4'-ビス[N-フェニル-N-(4"-メチルフェニル)アミノ]ビフェニル、4,4'-ビス[N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ]ビフェニル、4,4'-ビス[N-フェニル-N-(3"-メトキシフェニル)アミノ]ビフェニル、4,4'-ビス[N-フェニル-N-(1"-ナフチル)アミノ]ビフェニル、3,3'-ジメチル-4,4'-ビス[N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ]ビフェニル、1,1'-ビス[4'-[N,N-ジ(4"-メチルフェニル)アミノ]フェニル]シクロヘキサン、9,10-ビス[N-(4'-メチルフェニル)-N-(4"-n-ブチルフェニル)アミノ]フェナントレン、3,8-ビス(N,N-ジフェニルアミノ)-6-フェニルフェナントリジン、4-メチル-N,N-ビス[4"-、4"'-ビス[N',N'-ジ(4-メチルフェニル)アミノ]ビフェニル-4-イル]アニリン、N,N'-ビス[4-(ジフェニルアミノ)フェニル]-N,N'-ジフェニル-1,3-ジアミノベンゼン、N,N'-ビス[4-(ジフェニルアミノ)フェニル]-N,N'-ジフェニル-1,4-ジアミノベンゼン、5,5"-ビス[4-(ビス[4-メチルフェニル]アミノ)フェニル-2,2':5',2"-ターチオフェン、1,3,5-トリス(ジフェニルアミノ)ベンゼン、4,4',4"-トリス(N-カルバゾリル)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)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およびその誘導体がより好ましい。

30

40

#### 【0065】

50

一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物と他の正孔注入機能を有する化合物を併用する場合、正孔注入輸送層中に占める一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物の含有量は、好ましくは、0.1重量%以上、より好ましくは、0.5~99.9重量%、さらに好ましくは3~97重量%である。

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

発光層は、一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物を宿主材料として、一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物以外の発光機能を有する化合物を少なくとも1種ゲスト材料として使用して形成することができ、また、一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物以外の発光機能を有する化合物を少なくとも1種宿主材料として、一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物をゲスト材料として使用して形成することもできる。

10

#### 【0066】

一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物以外の発光機能を有する化合物(ゲスト材料・宿主材料)としては、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、デカサイクレン、コロネン、テトラフェニルシクロペンタジエン、ペンタフェニルシクロペンタジエン、9,10-ジフェニルアントラセン、9,10-ビス(フェニルエチニル)アントラセン、1,4-ビス(9'-エチニルアントセニル)ベンゼン、4,4'-ビス(9"-エチニルアントラセニル)20  
 ビフェニル、ジベンゾ[f,f]ジインデノ[1,2,3-cd:1',2',3'-lm]ペリレン誘導体〕、トリアリールアミン誘導体(例えば、正孔注入輸送機能を有する化合物として前述した化合物を挙げることができる)、有機金属錯体〔例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(10-ベンゾ[h]キノリノラート)ベリリウム、2-(2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾ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)エチニル]ビフェニル〕、クマリン誘導体(例えば、クマリン1、クマリン6、クマリン7、クマリン30、クマリン106、クマリン138、クマリン151、クマリン152、クマリン153、クマリン307、クマリン311、クマリン314、クマリン334、クマリン338、クマリン343、クマリン500)、ピラン誘導体(例えば、DCM1、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タ動体、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、ポリビ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等を挙げることができる。一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物以外の発光機能を有する化合物(ゲスト材料・宿主材料)としては、アクリドン誘導体、キナクリドン誘導体、多環芳香族化合物、トリアリールアミン誘導体、有機金属錯体およびスチルベン誘導体が好ましく、多環芳香族化合物、有機金属錯体がより好ましい。

20

30

40

#### 【0067】

一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物を宿主材料として、他の発光機能を有する化合物(ゲスト材料)と併用する場合、発光層中に占める一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物の含有量は、この好ましくは99.9~80重量%であり、より好ましくは99.0~90重量%である。

#### 【0068】

50

一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物をゲスト材料として、他の発光機能を有する化合物(ホスト材料)と併用する場合、発光層中に占める一般式(1)および/または(1')で表されるジアミン化合物の含有率は、好ましくは、0.01~20重量%であり、より好ましくは、0.1~10重量%である。

ホスト材料は、単独で使用してもよく、複数併用してもよい。

また、ゲスト材料は単独で使用してもよく、複数併用してもよい。

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および/または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。

電子注入輸送層に使用される電子注入機能を有する化合物としては、例えば、有機金属錯体、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、トリアジン誘導体、ペリレン誘導体、キノリン誘導体、キノキサリン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、ニトロ置換フルオレノン誘導体、チオピランジオキサイド誘導体などを挙げることができる。また、有機金属錯体としては、例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム等の有機アルミニウム錯体、ビス(10-ベンゾ[h]キノリノラート)ベリリウム等の有機ベリリウム錯体、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等を挙げることができる。好ましくは、有機アルミニウム錯体であり、より好ましくは、置換または未置換の8-キノリノラート配位子を有する有機アルミニウム錯体である。置換または未置換の8-キノリノラート配位子を有する有機アルミニウム錯体としては、例えば、一般式(a)~一般式(c)で表される化合物を挙げることができる。

【0069】

(Q)<sub>3</sub>-Al (a)

(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)

(Q)<sub>2</sub>-Al-O-L' (b)

(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し、O-L'はフェノラート配位子を表し、L'はフェニル基を有する炭素数6~24の炭化水素基を表す)

(Q)<sub>2</sub>-Al-O-Al-(Q)<sub>2</sub> (c)

(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)

置換または未置換の8-キノリノラート配位子を有する有機アルミニウム錯体の具体例としては、例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(5-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(3,4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4,5-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4,6-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、

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

10

20

30

40

50

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

ビス(2 - メチル - 8 - キノリノラート) アルミニウム -  $\mu$  - オキソ - ビス(2 - メチル - 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 -  $\mu$  - 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 -  $\mu$  - 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 -  $\mu$  - オキソ - ビス(2 - メチル - 4 - メトキシ - 8 - キノリノラート) アルミニウム、ビス(2 - メチル - 5 - シアノ - 8 - キノリノラート) アルミニウム -  $\mu$  - オキソ - ビス(2 - メチル - 5 - シアノ - 8 - キノリノラート) アルミニウム、ビス(2 - メチル - 5 - トリフルオロメチル - 8 - キノリノラート) アルミニウム -  $\mu$  - オキソ - ビス(2 - メチル - 5 - トリフルオロメチル - 8 - キノリノラート) アルミニウムを挙げることができる。

電子注入機能を有する化合物は単独で使用してもよく、また複数併用してもよい。陰極6 20  
としては、比較的仕事関数の小さい金属、合金または導電性化合物を電極材料として使用することが好ましい。陰極に使用する電極材料としては、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、グラファイト薄を挙げることができる。これらの電極材料は単独で使用してもよく、また複数併用してもよい。

陰極はこれらの電極材料を、例えば、蒸着法、スパッタリング法、イオン蒸着法、イオンプレーティング法、クラスターイオンビーム法により電子注入輸送層の上に形成することができる。 30

また、陰極は一層構造であってもよく、多層構造であってもよい。陰極のシート電気抵抗は数百  $\Omega$  /  $\square$  以下とするのが好ましい。陰極の厚みは、使用する電極材料にもよるが、通常5 ~ 1000 nm、好ましくは、10 ~ 500 nmとする。本発明の有機電界発光素子の発光を高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は、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または陰極の材料、厚みを設定することが好ましい。

また、本発明の有機電界発光素子は、正孔注入輸送層、発光層および電子注入輸送層の少なくとも一層中に、一重項酸素クエンチャーを含有していてもよい。一重項酸素クエンチャーとしては、特に限定されるものではないが、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が挙げられ、好ましくは、ルブレンである。 40

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

一重項酸素クエンチャーの含有量としては、含有される層(例えば、正孔注入輸送層)を構成する全体量の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。

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、特に限定されるものではなく、例えば、真空蒸着法、イオン化蒸着法、溶液塗布法(例えば、スピコート法、 50

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・プロジェクト法、インクジェット法)を使用することができる。真空蒸着法により正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層を形成する場合、真空蒸着の条件は、特に限定されるものではないが、通常、 $10^{-5}$  Torr程度以下の真空下で、50~500程度のポート温度(蒸着源温度)、-50~300程度の基板温度で、0.005~50nm/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、電子注入輸送層等の各層は、真空下で、連続して形成することが好ましい。連続で形成することにより諸特性に優れた有機電界発光素子を製造することが可能となる。真空蒸着法により、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層を、複数の化合物を使用して形成する場合、化合物を入れた各ポートを個別に温度制御して、共蒸着することが好ましい。 10

溶液塗布法により各層を形成する場合、各層を形成する成分あるいはその成分とバインダー樹脂等とを、溶媒に溶解または分散させて塗布液とする。溶媒としては、例えば、有機溶媒(ヘキサン、オクタン、デカン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、1-メチルナフタレン等の炭化水素系溶媒、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン系溶媒、ジクロロメタン、クロロホルム、テトラクロロメタン、ジクロロエタン、トリクロロエタン、テトラクロロエタン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、クロロトルエン等のハロゲン化炭化水素系溶媒、酢酸エチル、酢酸ブチル、酢酸アミル、乳酸エチル等のエステル系溶媒、メタノール、プロパノール、ブタノール、ペンタノール、ヘキサノール、シクロヘキサノール、メチルセロソルブ、エチルセロソルブ、エチレングリコール等のアルコール系溶媒、ジブチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジメトキシエタン、アニソール等のエーテル系溶媒、N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド、1-メチル-2-ピロリドン、1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン、ジメチルスルホキシド等の極性溶媒)、水を挙げることができる。溶媒は単独で使用してもよく、また複数併用してもよい。正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の各層の成分を溶媒に分散させる場合には、分散方法として、例えば、ボールミル、サンドミル、ペイントシェーカー、アトライター、ホモジナイザー等を使用して微粒子状に分散する方法を使用することができる。 20

また、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層に使用しうるバインダー樹脂としては、ポリ-N-ビニルカルバゾール、ポリアリーレート、ポリスチレン、ポリエステル、ポリシロキサン、ポリメチルメタクリレート、ポリメチルアクリレート、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、ポリチオフエ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を挙げることができる。バインダー樹脂は単独で使用してもよく、また、複数併用してもよい。塗布液の濃度は、特に限定されるものではないが、実施する塗布法により所望の厚みを作製するに適した濃度範囲に設定することができ、通常、0.1~50重量%、好ましくは、1~30重量%に設定する。バインダー樹脂を使用する場合、その使用量は特に限定されるものではないが、通常、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層を形成する成分とバインダー樹脂の総量に対してバインダー樹脂の含有率が(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%、好ましくは、10~99重量%となるように使用する。 40

正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層の膜厚は、特に限定されるものではないが、通常、5nm~5 $\mu$ mとする。

また、上記の条件で作製した本発明の有機電界発光素子は、酸素や水分等との接触を防止する目的で、保護層(封止層)を設けたり、また、素子を不活性物質中(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)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、フッ素樹脂、エポキシ樹脂、シリコーン樹脂、エポキシシリ 50

コーン樹脂、ポリスチレン、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリパラキシレン、ポリエチレン、ポリフェニレンオキサイド)、無機材料(例えば、ダイヤモンド薄膜、アモルファスシリカ、電気絶縁性ガラス、金属酸化物、金属窒化物、金属炭化物、金属硫化物)、さらには、光硬化性樹脂を挙げることができる。保護層に使用する材料は単独で使用してもよく、また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。

また、本発明の有機電界発光素子は、電極に保護膜として金属酸化物膜(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。

本発明の有機電界発光素子は、陽極の表面に界面層(中間層)を設けることもできる。界面層の材質としては、有機リン化合物、ポリシラン、芳香族アミン誘導体、フタロシアン誘導体等を挙げることができる。

さらに、電極、例えば、陽極はその表面を、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。

#### 【0070】

本発明の有機電界発光素子は、通常、直流駆動型の素子として使用することができるが、交流駆動型の素子としても使用することができる。また、本発明の有機電界発光素子は、セグメント型、単純マトリック駆動型等のパッシブ駆動型であってもよく、TFT(薄膜トランジスタ)型、MIM(メタル-インスレーター-メタル)型等のアクティブ駆動型であってもよい。駆動電圧は通常、2~30Vである。本発明の有機電界発光素子は、パネル型光源(例えば、時計、液晶パネル等のバックライト)、各種の発光素子(例えば、LED等の発光素子の代替)、各種の表示素子[例えば、情報表示素子(パソコンモニター、携帯電話・携帯端末用表示素子)]、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。

#### 【0071】

##### 【実施例】

以下、実施例を挙げて本発明をさらに詳細に説明するが、本発明は、以下の実施例に限定されるものではない。

実施例1：例示化合物1の製造

1 N,N-ジフェニルアニリン24.5gおよびエチレンジクロライド100gよりなる混合物を、5に冷却した、塩化アルミニウム13.3g、ベンゾイルクロライド14.05gおよびエチレンジクロライド100gよりなる混合物に30分間かけて滴下した。その後、室温に昇温し、さらに、70まで昇温した後、同温度で4時間加熱攪拌した。その後、反応混合物を室温まで冷却し、希塩酸水溶液に排出した。得られたエチレンジクロライド相を分離し、減圧下にエチレンジクロライドを留去した。残渣をさらにシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、目的とする4-N,N-ジフェニルアミノベンゾフェノン23.4gを得た

2 4-N,N-ジフェニルアミノベンゾフェノン6.98g、4-N,N-ジフェニルアミノベンジルホスホン酸ジエチル7.95gおよびtert-ブトキシカリウム2.24gよりなる混合物に5でジメチルスルホキシド30gを添加し、その後室温まで昇温して同温度で9時間攪拌した。その後反応混合物にメタノール200gを添加して、生じた固体をろ別した。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、目的とする例示化合物1の化合物を淡黄結晶として8.4g得た。

#### 【0072】

実施例2：例示化合物2の製造

1 4-プロモベンゾフェノン26.1g、4-プロモベンジルホスホン酸ジエチル31.0gおよびジメチルスルホキシド120gよりなる混合物を5に冷却し、窒素気流下、tert-ブトキシカリウム11.2gを添加した。その後反応混合物を室温まで昇温し、同温度で12時間攪拌した。反応混合物にメタノール200mlを添加して、生じた固体をろ別した。得られた固体をイソプロパノールから再結晶し、4-[1'-フェニル-2'-(4"-プロモフェニル)ビニル]プロモベンゼン31.1gを無色の結晶とし

10

20

30

40

50

て得た。

2 4 - { 1' - フェニル - 2' - ( 4" - ブロモフェニル ) ビニル } ブロモベンゼン 8.28 g、N - フェニル - 1 - ナフチルアミン 10.51 g、tert-ブトキシナトリウム 5.76 g、酢酸パラジウム 88 mg およびトルエン 100 g よりなる混合物に窒素気流下、トリ-tert-ブチルホスフィン 240 mg を添加し、90 に加熱し、さらに同温度で6時間加熱攪拌した。その後、不溶物をろ別し、ろ液を水洗した後、トルエンを減圧下に留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、さらにメチルセロソルブより再結晶して目的とする例示化合物 2 の化合物を淡黄色結晶として 7.50 g 得た。

【 0 0 7 3 】

実施例 3：例示化合物 7 の製造

実施例 2 の 2 において、N - フェニル - 1 - ナフチルアミン 10.51 g を使用する代わりに、N - ( 4 - シクロヘキシルフェニル ) アニリン 12.04 g を使用した以外は、実施例 2 の 2 に記載の操作に従い、例示化合物 7 の化合物を淡黄色結晶として 8.59 g 得た。

【 0 0 7 4 】

実施例 4：例示化合物 13 の製造

実施例 2 の 2 において、N - フェニル - 1 - ナフチルアミン 10.51 g を使用する代わりに、N, N - ジ ( 4 - フェニルフェニル ) アミン 15.41 g を使用した以外は、実施例 2 の 2 に記載の操作に従い、例示化合物 13 の化合物を淡黄色結晶として 10.9 g 得た。

【 0 0 7 5 】

実施例 5：例示化合物 26 の製造

1 4 - ブロモベンゾフェノン 26.1 g、4 - N - カルバゾリルベンジルホスホン酸ジエチル 39.3 g およびジメチルスルホキシド 150 g よりなる混合物を 5 に冷却し、窒素気流下、tert-ブトキシカリウム 11.2 g を添加した。その後反応混合物を室温まで昇温し、同温度で 10 時間攪拌した。反応混合物にメタノール 300 ml を添加して、生じた固体をろ別した。得られた固体をメチルセロソルブから再結晶し、4 - { 1' - フェニル - 2' - ( 4" - N - カルバゾリルフェニル ) ビニル } ブロモベンゼン 34.0 g を無色の結晶として得た。

2 4 - { 1' - フェニル - 2' - ( 4" - N - カルバゾリルフェニル ) ビニル } ブロモベンゼン 10.00 g、N - フェニル - 1 - ナフチルアミン 10.51 g、tert-ブトキシナトリウム 5.76 g、酢酸パラジウム 88 mg およびトルエン 100 g よりなる混合物に窒素気流下、トリ-tert-ブチルホスフィン 240 mg を添加し、90 に加熱し、さらに同温度で 8 時間加熱攪拌した。その後、不溶物をろ別し、ろ液を水洗した後、トルエンを減圧下に留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、さらにメチルセロソルブより再結晶して目的とする例示化合物 26 の化合物を淡黄色結晶として 7.40 g 得た。

【 0 0 7 6 】

実施例 6：例示化合物 55 の製造

1 4 - ( 4 - ブロモフェニル ) ベンゾフェノン 33.7 g、4 - ブロモベンジルホスホン酸ジエチル 31.0 g およびジメチルスルホキシド 150 g よりなる混合物を 5 に冷却し、窒素気流下、tert-ブトキシカリウム 11.2 g を添加した。その後反応混合物を室温まで昇温し、同温度で 11 時間攪拌した。反応混合物にメタノール 300 ml を添加して、生じた固体をろ別した。得られた固体をメチルセロソルブから再結晶し、4 - { 4' - { 1" - フェニル - 2" - ( 4" ' - ブロモフェニル ) ビニル } フェニル } ブロモベンゼン 32.3 g を無色の結晶として得た。

2 4 - { 4' - { 1" - フェニル - 2" - ( 4" ' - ブロモフェニル ) ビニル } フェニル } ブロモベンゼン 9.80 g、N, N - ジフェニルアミン 8.10 g、tert-ブトキシナトリウム 5.76 g、酢酸パラジウム 88 mg およびトルエン 100 g よりなる混合

10

20

30

40

50

物に窒素気流下、トリ-tert-ブチルホスフィン240mgを添加し、90 に加熱し、さらに同温度で9時間加熱攪拌した。その後、不溶物をろ別し、ろ液を水洗した後、トルエンを減圧下に留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、さらにメチルセロソルブより再結晶して目的とする例示化合物55の化合物を淡黄色結晶として8.38g得た。

【0077】

実施例7：例示化合物56の製造

実施例6の2においてN,N-ジフェニルアミン8.10gを使用する代わりに、N-フェニル-1-ナフチルアミン10.51gを使用した以外は、実施例6の2に記載の操作に従い、例示化合物56の化合物を淡黄色結晶として9.04g得た。

10

【0078】

実施例8：例示化合物57の製造

実施例6の2において、N,N-ジフェニルアミン8.10gを使用する代わりに、カルバゾール8.02gを使用した以外は、実施例6の2に記載の操作に従い、例示化合物57の化合物を淡黄色結晶として8.47g得た。

【0079】

実施例9：例示化合物61の製造

1 4-(4-プロモフェニル)ベンゾフェノン33.7g、4-N-カルバゾリルベンジルホスホン酸ジエチル39.5gおよびジメチルスルホキシド150gよりなる混合物を5 に冷却し、窒素気流下、tert-ブトキシカリウム11.2gを添加した。その後 20  
反応混合物を室温まで昇温し、同温度で10時間攪拌した。反応混合物にメタノール300mlを添加して、生じた固体をろ別した。得られた固体をメチルセロソルブから再結晶し、4-{4'-[1"-フェニル-2"-(4"'-N-カルバゾリルフェニル)ピニル]フェニル}プロモベンゼン40.90gを無色の結晶として得た。

20

2 4-{4'-[1"-フェニル-2"-(4"'-N-カルバゾリルフェニル)ピニル]フェニル}プロモベンゼン10.10g、N,N-ジ(4-フェニルフェニル)アミン15.41g、tert-ブトキシナトリウム5.76g、酢酸パラジウム88mgおよびトルエン100gよりなる混合物に窒素気流下、トリ-tert-ブチルホスフィン240mgを添加し、90 に加熱し、さらに同温度で9時間加熱攪拌した。その後、不溶物をろ別し、ろ液を水洗した後、トルエンを減圧下に留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、さらにトルエン/ヘキサンより再結晶して目的とする例示化合物61の化合物を淡黄色結晶として11.58g得た。

30

【0080】

実施例10：有機電界発光素子の作製

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、セミコクリン(フルウチ化学製)、超純水、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。こ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、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$ Torrに減圧した。まず、ITO透明電極上に、例示化合物56を蒸着速度0.2nm/secで75nmの厚さに蒸着し、正孔注入輸送層を形成した。次に、正孔注入輸送層の上に発光層として、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15nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層を形成した。さらに、その上に、陰極としてマグネシウムと銀を蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、50、乾燥雰囲気下、10mA/cm<sup>2</sup>の定電流密度で連続駆動させた。初期には、5.4V、輝度520cd/m<sup>2</sup>の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は900時間であった。

40

【0081】

実施例11~18：有機電界発光素子の作製

実施例10において、発光層の形成に際して、例示化合物56の化合物を使用する代わり

50

に、例示化合物 1 の化合物（実施例 1 1）、例示化合物 2 の化合物（実施例 1 2）、例示化合物 7 の化合物（実施例 1 3）、例示化合物 1 3 の化合物（実施例 1 4）、例示化合物 2 6 の化合物（実施例 1 5）、例示化合物 5 5 の化合物（実施例 1 6）、例示化合物 5 7 の化合物（実施例 1 7）、例示化合物 6 1 の化合物（実施例 1 8）を使用した以外は、実施例 1 0 に記載の操作に従い、有機電界発光素子を作製した。各素子からは緑色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第 1 表（表 1）に示した。

【0082】

比較例 1：

実施例 1 0 において、正孔注入輸送層の形成に際して、例示化合物 5 6 の化合物を使用する代わりに、4, 4'-ビス〔N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ〕ビフェニルを使用した以外は実施例 1 0 に記載の操作に従い、有機電界発光素子を作製した。素子からは緑色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第 1 表（表 1）に示した。

10

【0083】

比較例 2：

実施例 1 0 において、正孔注入輸送層の形成に際して、例示化合物 5 6 の化合物を使用する代わりに、9, 9-ジメチル-2, 7-ビス(N, N-ジフェニルアミノ)フルオレンを使用した以外は実施例 1 0 に記載の操作に従い、有機電界発光素子を作製した。各素子からは緑色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第 1 表（表 1）に示した。

20

【0084】

【表 1】

第1表

有機電界発光素子	初期特性(50°C)		半減期(50°C) (hr)
	輝度 (cd/cm <sup>2</sup> )	電圧 (V)	
実施例11	520	5.4	820
実施例12	510	5.7	760
実施例13	530	5.6	740
実施例14	550	5.5	690
実施例15	510	5.5	810
実施例16	530	5.3	630
実施例17	510	5.7	710
実施例18	560	5.2	840
比較例1	300	6.6	5
比較例2	450	6.5	100

30

40

【0085】

実施例 1 9：有機電界発光素子の作製

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、セミコクリン（フルウチ化学製）、超純水、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。こ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、蒸着槽を  $3 \times 10^{-6}$  Torr に減圧した。

まず、ITO 透明電極上に、ポリ（チオフェン-2, 5-ジイル）を蒸着速度 0.1 nm / sec で、20 nm の厚さに蒸着し、第 1 正孔注入輸送層を形成した。次いで、例示化合物 1 3 の化合物を蒸着速度 0.2 nm / sec で 55 nm の厚さに蒸着し、第 2 正孔注入

50

輸送層を形成した。次に、正孔注入輸送層の上にトリス(8-キノリノラート)アルミニウムを蒸着速度 $0.2\text{ nm/sec}$ で $50\text{ nm}$ の厚さに蒸着し、電子注入輸送層を兼ね備えた発光層を形成した。さらに、その上に、陰極としてマグネシウムと銀を蒸着速度 $0.2\text{ nm/sec}$ で $200\text{ nm}$ の厚さに共蒸着(重量比 $10:1$ )して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、 $10\text{ mA/cm}^2$ の定電流密度で連続駆動させた。初期には、 $5.5\text{ V}$ 、輝度 $530\text{ cd/m}^2$ の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は $1700$ 時間であった。

#### 【0086】

実施例20：有機電界発光素子の作製

厚さ $200\text{ nm}$ のITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、セミコクリン(フルウチ化学製)、超純水、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。こ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、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}\text{ Torr}$ 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 $0.1\text{ nm/sec}$ で、 $50\text{ nm}$ の厚さに蒸着し、第1正孔注入輸送層を形成した。次いで、例示化合物1の化合物とルブレンを、異なる蒸着源から、蒸着速度 $0.2\text{ nm/sec}$ で $20\text{ nm}$ の厚さに共蒸着(重量比 $10:1$ )し、第2正孔注入輸送層を兼ね備えた発光層を形成した。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 $0.2\text{ nm/sec}$ で $50\text{ nm}$ の厚さに蒸着し、電子注入輸送層を兼ね備えた発光層を形成した。さらに、その上に、陰極としてマグネシウムと銀を蒸着速度 $0.2\text{ nm/sec}$ で $200\text{ nm}$ の厚さに共蒸着(重量比 $10:1$ )して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、 $10\text{ mA/cm}^2$ の定電流密度で連続駆動させた。初期には、 $5.2\text{ V}$ 、輝度 $530\text{ cd/m}^2$ の黄色の発光が確認された。輝度の半減期は $1650$ 時間であった。

#### 【0087】

実施例21：有機電界発光素子の作製

厚さ $200\text{ nm}$ のITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、セミコクリン(フルウチ化学製)、超純水、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。こ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、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}\text{ Torr}$ に減圧した。まず、ITO透明電極上に、ポリ(チオフェン-2,5-ジイル)を蒸着速度 $0.1\text{ nm/sec}$ で、 $20\text{ nm}$ の厚さに蒸着し、第1正孔注入輸送層を形成した。蒸着槽を大気圧下に戻した後、再び蒸着槽を $3 \times 10^{-6}\text{ Torr}$ に減圧した。次いで、例示化合物26の化合物とルブレンを、異なる蒸着源から、蒸着速度 $0.2\text{ nm/sec}$ で $55\text{ nm}$ の厚さに共蒸着(重量比 $10:1$ )し、第2正孔注入輸送層を兼ね備えた発光層を形成した。減圧状態を保ったまま、次に、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 $0.2\text{ nm/sec}$ で $50\text{ nm}$ の厚さに蒸着し、電子注入輸送層を形成した。減圧状態を保ったまま、さらに、その上に、陰極としてマグネシウムと銀を蒸着速度 $0.2\text{ nm/sec}$ で $200\text{ nm}$ の厚さに共蒸着(重量比 $10:1$ )して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、 $10\text{ mA/cm}^2$ の定電流密度で連続駆動させた。初期には、 $5.3\text{ V}$ 、輝度 $590\text{ cd/m}^2$ の黄色の発光が確認された。輝度の半減期は $1900$ 時間であった。

#### 【0088】

実施例22：有機電界発光素子の作製

厚さ $200\text{ nm}$ のITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、セミコクリン(フルウチ化学製)、超純水、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。こ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、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}\text{ Torr}$ に減圧した。まず、ITO透明電極上に、例示化合物26を蒸着速度 $0.1\text{ nm/sec}$ で、 $20\text{ nm}$ の厚さに蒸着し、第1正孔注入輸送層を

10

20

30

40

50

形成した。蒸着槽を大気圧下に戻した後、再び蒸着槽を  $3 \times 10^{-6}$  Torr に減圧した。次いで、例示化合物 57 の化合物とルブレンを、異なる蒸着源から、蒸着速度  $0.2 \text{ nm/s}$  で  $55 \text{ nm}$  の厚さに共蒸着（重量比  $10:1$ ）し、第 2 正孔注入輸送層を兼ね備えた発光層を形成した。次に、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  $0.2 \text{ nm/s}$  で  $50 \text{ nm}$  の厚さに蒸着し、電子注入輸送層を形成した。さらに、その上に、陰極としてマグネシウムと銀を蒸着速度  $0.2 \text{ nm/s}$  で  $200 \text{ nm}$  の厚さに共蒸着（重量比  $10:1$ ）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧印加し、乾燥雰囲気下、 $10 \text{ mA/cm}^2$  の定電流密度で連続駆動させた。初期には、 $5.3 \text{ V}$ 、輝度  $560 \text{ cd/m}^2$  の黄色の発光が確認された。輝度の半減期は  $1500$  時間であった。

10

#### 【0089】

##### 実施例 23：有機電界発光素子の作製

厚さ  $200 \text{ nm}$  の ITO 透明電極（陽極）を有するガラス基板を、中性洗剤、セミコクリン（フルウチ化学製）、超純水、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。こ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  $39000$ ）と例示化合物 56 の化合物を重量比  $100:50$  の割合で含有する 3 重量% ジクロロエタン溶液を用いてスピンコート法により、 $40 \text{ nm}$  の正孔注入輸送層を形成した。次にこの正孔注入輸送層を有するガラス基板を、蒸着装置の基板ホルダーに固定し、蒸着層を  $3 \times 10^{-6}$  Torr に減圧した。次に、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  $0.2 \text{ nm/s}$  で  $50 \text{ nm}$  の厚さに蒸着し、電子注入輸送層を兼ね備えた発光層を形成した。さらに、その上に、陰極としてマグネシウムと銀を蒸着速度  $0.2 \text{ nm/s}$  で  $200 \text{ nm}$  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、 $10 \text{ V}$  の直流電圧を印加したところ、 $86 \text{ mA/cm}^2$  の電流が流れた。輝度  $900 \text{ cd/m}^2$  の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は  $540$  時間であった。

20

#### 【0090】

##### 実施例 24：有機電界発光素子の作製

厚さ  $200 \text{ nm}$  の ITO 透明電極（陽極）を有するガラス基板を、中性洗剤、セミコクリン（フルウチ化学製）、超純水、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。この基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらに UV/オゾン洗浄した。次に、ITO 透明電極上に、ポリメチルメタクリレート（重量平均分子量  $25000$ ）、例示化合物 7 の化合物、トリス（8-キノリノラート）アルミニウムをそれぞれ重量比  $100:50:0.5$  の割合で含有する 3 重量% ジクロロエタン溶液を用いてスピンコート法により、 $100 \text{ nm}$  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、蒸着層を  $3 \times 10^{-6}$  Torr に減圧した。発光層の上に、陰極としてマグネシウムと銀を蒸着速度  $0.2 \text{ nm/s}$  で  $200 \text{ nm}$  の厚さに共蒸着（重量比  $10:1$ ）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に乾燥雰囲気下、 $15 \text{ V}$  の直流電圧を印加したところ、 $85 \text{ mA/cm}^2$  の電流が流れた。輝度  $550 \text{ cd/m}^2$  の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は  $800$  時間であった。

30

40

#### 【0091】

##### 【発明の効果】

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

##### 【図面の簡単な説明】

【図 1】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。

【図 2】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。

【図 3】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。

【図 4】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。

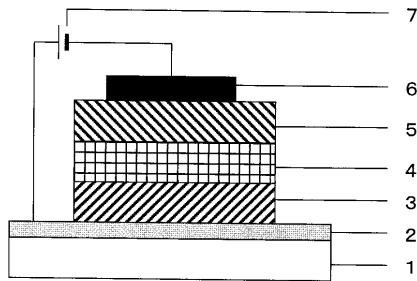
50

- 【図5】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。
- 【図6】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。
- 【図7】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。
- 【図8】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。

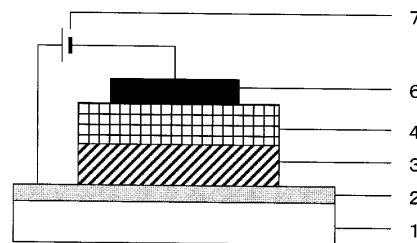
【符号の説明】

- 1：基板
- 2：陽極
- 3：正孔注入輸送層
- 3 a：正孔注入輸送成分
- 4：発光層
- 4 a：発光成分
- 5：電子注入輸送層
- 5”：電子注入輸送層
- 5 a：電子注入輸送成分
- 6：陰極
- 7：電源

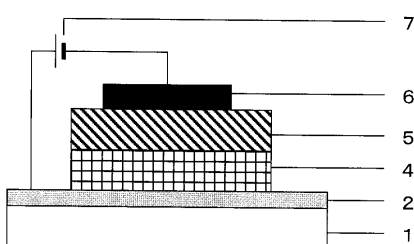
【図1】



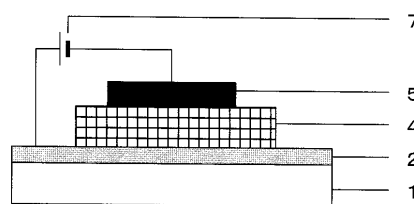
【図2】



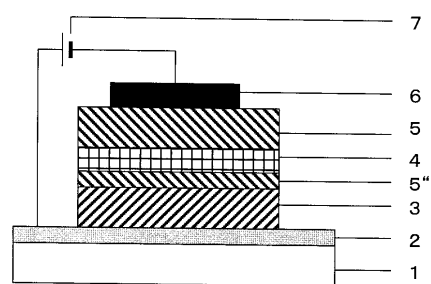
【図3】



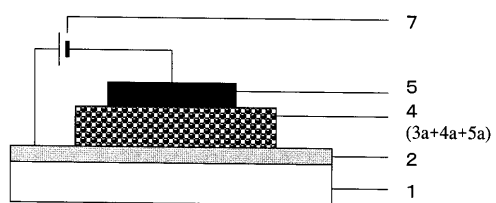
【図4】



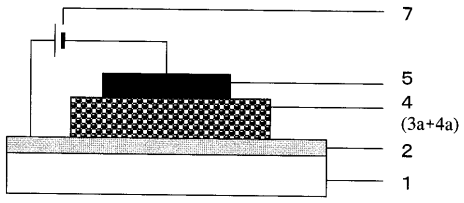
【図5】



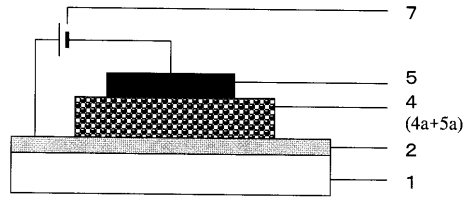
【図6】



【 図 7 】



【 図 8 】



---

フロントページの続き

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	F I	テーマコード(参考)
	H 0 5 B 33/14	B
	H 0 5 B 33/22	D

F ターム(参考) 3K007 AB11 DB03 FA01  
4H006 AA01 AA03 AB92

【要約の続き】

A r<sub>3</sub>は2価の芳香族炭化水素基または2価の芳香族複素環基を表す]

【効果】新規なアミン化合物、および駆動電圧が低く、発光寿命が長く、耐久性に優れた有機電界発光素子を提供する。

【選択図】 なし

专利名称(译)	二胺化合物和含有二胺化合物的有机电致发光元件		
公开(公告)号	<a href="#">JP2004196716A</a>	公开(公告)日	2004-07-15
申请号	JP2002367559	申请日	2002-12-19
[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	戸谷由之 島村武彦 田辺良満 塚田英孝		
发明人	戸谷 由之 島村 武彦 田辺 良満 塚田 英孝		
IPC分类号	H01L51/50 C07C211/54 C07C211/58 C09K11/06 H05B33/14 H05B33/22		
FI分类号	C07C211/54 C07C211/58 C09K11/06.625 C09K11/06.645 C09K11/06.690 H05B33/14.B H05B33/22.D		
F-TERM分类号	3K007/AB11 3K007/DB03 3K007/FA01 4H006/AA01 4H006/AA03 4H006/AB92 3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/BB02 3K107/BB03 3K107/BB06 3K107/CC21 3K107/DD53 3K107/DD59 3K107/DD71 3K107/DD72 3K107/DD73 3K107/DD78		
其他公开文献	JP4181399B2		
外部链接	<a href="#">Espacenet</a>		

摘要(译)

在一对电极之间设置有至少一种通式(1)和/或(1')表示的二胺化合物和至少一种通式(1)和/或(1')表示的二胺化合物。一种有机电致发光器件,包括至少一层包含种子的层。[化学1](式中,Ar1,Ar2,Ar4,Ar5和Ar6是取代或未取代的芳香族烃基,以及取代或未取代的芳香族杂环基。表示Ar1和Ar2,和/或Ar5和Ar6可以相互键合形成含氮杂环,R为氢原子,氰基表示卤素原子,取代或未取代的直链,支链或环状烷基,取代或未取代的芳族烃基或取代或未取代的芳族杂环基,以及X和Ar3表示2价的芳香族烃基或2价的芳香族杂环基)[效果]为了提供新型的胺化合物,提供一种具有低驱动电压,长发光寿命和优异耐久性的有机电致发光器件。[选择图]无

