

(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2004-345960

(P2004-345960A)

(43) 公開日 平成16年12月9日(2004.12.9)

(51) Int.Cl.⁷

C07C 211/61

C07D 209/86

C09K 11/06

H05B 33/14

H05B 33/22

F I

C07C 211/61

C07D 209/86

C09K 11/06 620

C09K 11/06 645

C09K 11/06 690

テーマコード (参考)

3K007

4C204

4H006

審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全 32 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2003-138769 (P2003-138769)

(22) 出願日 平成15年5月16日 (2003.5.16)

(31) 優先権主張番号 特願2003-87560 (P2003-87560)

(32) 優先日 平成15年3月27日 (2003.3.27)

(33) 優先権主張国 日本国 (JP)

(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

(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 塚田 英孝

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 島村 武彦

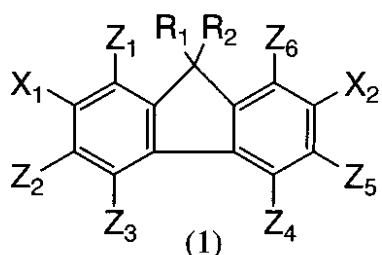
千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 三井化学株式会社内

最終頁に続く

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

(57) 【要約】 (修正有)

【解決手段】 一般式(1)で表されるアミン化合物、および一対の電極間に一般式(1)で表される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。



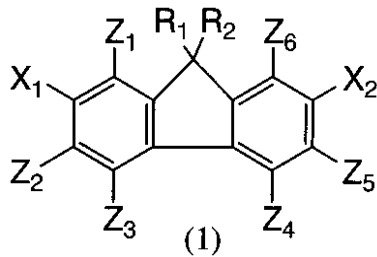
〔式中、 X_1 はN-カルbazolリル基あるいは $-NAr_1Ar_2$ (但し、 Ar_1 および Ar_2 はアリール基を表す) を表し、 X_2 は $-NAr_3Ar_4$ (但し、 Ar_3 および Ar_4 はアリール基を表す) を表し、 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 、 Z_5 および Z_6 は、水素原子、ハロゲン原子または $-(O)_n-Z$ 基 (式中 Z は、直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、あるいはアリール基を表し、 n は0または1を表す) を表し、 R_1 および R_2 は水素原子、直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、アリール基、あるいは、アラルキル基を表し、 $Ar_1 \sim Ar_4$ の少なくとも一つはフェナントレニル基を表す〕

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

一般式 (1) (化 1) で表されるアミン化合物。

【化 1】



10

〔式中、 X_1 は置換または未置換の N-カルbazolリル基あるいは $-NAr_1Ar_2$ (但し、 Ar_1 および Ar_2 は置換または未置換のアリール基を表す) を表し、 X_2 は $-NAr_3Ar_4$ (但し、 Ar_3 および Ar_4 は置換または未置換のアリール基を表す) を表し、 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 、 Z_5 および Z_6 は、水素原子、ハロゲン原子または $-(O)_n-Z$ 基 (式中 Z は、置換または未置換の直鎖、分岐鎖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、 n は 0 または 1 を表す) を表し、 R_1 および R_2 は水素原子、直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは、置換または未置換のアラルキル基を表し、 $Ar_1 \sim Ar_4$ の少なくとも一つは置換または未置換のフェナントリル基を表す〕

20

【請求項 2】

X_1 が置換または未置換の N-カルbazolリル基である請求項 1 記載のアミン化合物。

【請求項 3】

ガラス転移温度が 130°C 以上である請求項 1 又は 2 記載のアミン化合物。

【請求項 4】

一对の電極間に、請求項 1～3 記載の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 5】

請求項 1～3 記載の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 4 記載の有機電界発光素子。

30

【請求項 6】

請求項 1～3 記載のアミン化合物を含有する層が、発光層である請求項 4 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、発光層を有する請求項 4～6 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【請求項 8】

一对の電極間に、さらに、電子注入輸送層を有する請求項 4～6 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

40

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

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

【0002】

【従来の技術】

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

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

50

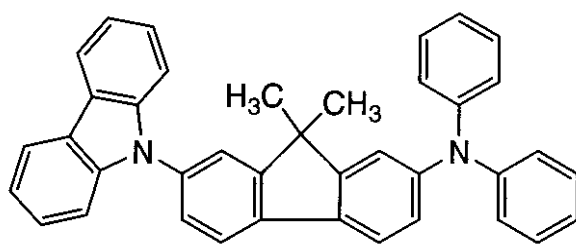
、発光材料に有機材料を用いた有機電界発光素子（有機エレクトロルミネッセンス素子：有機EL素子）の正孔注入輸送材料として有用であることが提案されている〔例えば、特許文献1〕。

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、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〔非特許文献2〕。

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〕。しかしながら、これらのアミン化合物を正孔注入輸送材料と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。また、特許文献2には安定性、耐久性の改良された有機電界発光素子を提供するために、下記式(a)(化2)で表される化合物を少なくとも1種含有する層を少なくとも1層挟持してなる有機電界発光素子が開示されている。

【0003】

【化2】



(a)

【0004】

しかしながら、特許文献2に記載された化合物に関し、本発明者等が有機電界発光素子材料としての有用性に関して検討したところ、耐熱性の点でまだ満足できるものではないことが判明した。

現在では、安定性、耐久性に優れ、且つ、耐熱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、有機電界発光素子の構成材料として使用した際に優れた特性を示す新規なアミン化合物が望まれている。

【0005】

【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

【特許文献2】特開平11-144873号公報

【0006】

【発明が解決しようとする課題】

本発明の課題は、アミン化合物および該化合物を含有する有機電界発光素子を提供することである。さらに詳しくは、有機電界発光素子の正孔注入輸送材料等に適した、耐熱性の

10

20

30

40

50

高いアミン化合物、および該アミン化合物を使用した、安定性、耐久性に優れ、且つ耐熱性に優れた有機電界発光素子を提供することである。

【0007】

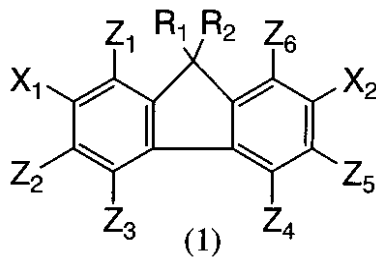
【課題を解決するための手段】

本発明者らは、上記課題を解決するために、種々のアミン化合物および有機電界発光素子に関して鋭意検討を行った結果、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)(化3)で表されるアミン化合物、

【0008】

【化3】



10

【0009】

〔式中、 X_1 は置換または未置換のN-カルbazリル基あるいは $-NAr_1Ar_2$ (但し、 Ar_1 および Ar_2 は置換または未置換のアリール基を表す) を表し、 X_2 は $-NAr_3Ar_4$ (但し、 Ar_3 および Ar_4 は置換または未置換のアリール基を表す) を表し、 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 、 Z_5 および Z_6 は、水素原子、ハロゲン原子または $-(O)_n-Z$ 基 (式中 Z は、置換または未置換の直鎖、分岐鎖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、 n は0または1を表す) を表し、 R_1 および R_2 は水素原子、直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは、置換または未置換のアラルキル基を表し、 $Ar_1 \sim Ar_4$ の少なくとも一つは置換または未置換のフェントリル基を表す〕

20

▲2▼ X_1 が置換または未置換のN-カルbazリル基である▲1▼記載のアミン化合物、

▲3▼ ガラス転移温度が130℃以上である▲1▼または▲2▼記載のアミン化合物、

30

▲4▼ 一对の電極間に、▲1▼～▲3▼記載の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、

▲5▼ ▲1▼～▲3▼記載のアミン化合物を含有する層が、正孔注入輸送層である▲4▼記載の有機電界発光素子、

▲6▼ ▲1▼～▲3▼記載のアミン化合物を含有する層が、発光層である▲4▼記載の有機電界発光素子、

▲7▼ 一对の電極間に、さらに、発光層を有する▲4▼～▲6▼のいずれかに記載の有機電界発光素子、

▲8▼ 一对の電極間に、さらに、電子注入輸送層を有する▲4▼～▲6▼のいずれかに記載の有機電界発光素子を提供するものである。

40

【0010】

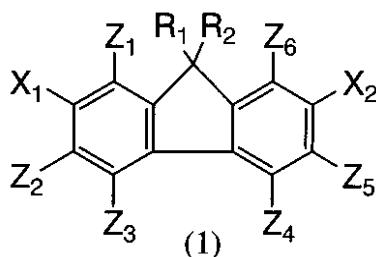
【発明の実施の形態】

以下、本発明に関し詳細に説明する。

本発明のアミン化合物は一般式(1)(化4)で表される化合物である。

【0011】

【化4】



【0012】

〔式中、 X_1 は置換または未置換のN-カルバゾリル基あるいは $-NAr_1Ar_2$ （但し、 Ar_1 および Ar_2 は置換または未置換のアリール基を表す）を表し、 X_2 は $-NAr_3Ar_4$ （但し、 Ar_3 および Ar_4 は置換または未置換のアリール基を表す）を表し、 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 、 Z_5 および Z_6 は、水素原子、ハロゲン原子または $-(O)_n-Z$ 基（式中 Z は、置換または未置換の直鎖、分岐鎖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、 n は0または1を表す）を表し、 R_1 および R_2 は水素原子、直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは、置換または未置換のアラルキル基を表し、 $Ar_1 \sim Ar_4$ の少なくとも一つは置換または未置換のフェナントリル基を表す〕

10

【0013】

一般式（1）で表されるアミン化合物において、 X_1 は置換または未置換のN-カルバゾリル基あるいは $-NAr_1Ar_2$ （但し、 Ar_1 および Ar_2 は置換または未置換のアリール基を表す）を表し、 X_2 は $-NAr_3Ar_4$ （但し、 Ar_3 および Ar_4 は置換または未置換のアリール基を表す）を表す。

20

Ar_1 、 Ar_2 、 Ar_3 および Ar_4 は、好ましくは、未置換、もしくは、置換基として、例えば、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、あるいはアリール基で単置換または多置換されてもよい総炭素数6～20の炭素環式芳香族化合物または総炭素数3～20の複素環式芳香族基であり、より好ましくは、未置換、もしくは、ハロゲン原子、炭素数1～14のアルキル基、炭素数1～14のアルコキシ基、あるいは炭素数6～10のアリール基で単置換または多置換されていてもよい総炭素数6～20の炭素環式芳香族基であり、さらに好ましくは、未置換、もしくは、ハロゲン原子、炭素数1～4のアルキル基、炭素数1～4のアルコキシ基、あるいは炭素数6～10のアリール基で単置換あるいは多置換されていてもよい総炭素数6～16の炭素環式芳香族基であり、 $Ar_1 \sim Ar_4$ の少なくとも一つは置換または未置換のフェナントリル基を表す。

30

X_1 で表される置換または未置換のN-カルバゾリル基の具体例としては、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-ブチル-N-カルバゾリル基、3-n-ヘキシル-N-カルバゾリル基、3-n-オクチル-N-カルバゾリル基、3-n-デシル-N-カルバゾリル基、3,6-ジメチル-N-カルバゾリル基、2-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-イソプロピルオキシ-N-カルバゾリル基、3-n-ブチルオキシ-N-カルバゾリル基、3-n-オクチルオキシ-N-カルバゾリル基、3-n-デシルオキシ-N-カルバゾリル基、3-フェニル-N-カルバゾリル基、3-(4'-メチルフェニル)-N-カルバゾリル基、3,6-ジフェニル-N-カルバゾリル基、3,6-ビス(4'-シクロヘキシルフェニル)-N-カルバゾリル基、3,6-ビス(4'-フェニルフェニル)-N-カルバゾリル基、3-クロロ-N-カルバゾリ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。

40

【0014】

X_1 および X_2 における Ar_1 、 Ar_2 、 Ar_3 および Ar_4 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、9-メチル-10-アントラセニル基、9-フェニル-10-アントラセニル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナ

50

ントリル基、9-フェナントリル基、9-メチル-10-フェナントリル基、9-フェニ
 ル-10-フェナントリル基、1-メチル-9-フェナントリル基、1-フェニル-9-
 フェナントリル基、2-メチル-9-フェナントリル基、2-フェニル-9-フェナン
 トリル基、1, 8-ジメチル-9-フェナントリル基、1, 8-ジフェニル-9-フェナン
 トリル基、2-クロロ-9-フェナントリル基、2-フルオロ-9-フェナントリル基、
 2, 7-ジクロロ-9-フェナントリル基、2, 7-ジメチル-9-フェナントリル基、
 2, 7-ジフェニル-9-フェナントリル基、2, 7, 9-トリメチル-10-フェナン
 トリル基、2, 7, 9-トリフェニル-10-フェナントリル基、4-キノリニル基、1
 -ピレニル基、4-ピリジニル基、3-ピリジニル基、2-ピリジニル基、3-フラニル
 基、2-フラニル基、3-チエニル基、2-チエニル基、2-オキサゾリル基、2-チア
 ズリル基、2-ベンゾオキサズリル基、2-ベンゾチアズリル基、2-ベンゾイミダズリ
 ル基、4-メチルフェニル基、3-メチルフェニル基、2-メチルフェニル基、4-エチ
 ルフェニル基、3-エチルフェニル基、2-エチルフェニル基、4-n-プロピルフェニ
 ル基、4-イソプロピルフェニル基、2-イソプロピルフェニル基、4-n-ブチルフェ
 ニル基、4-イソブチルフェニル基、4-sec-ブチルフェニル基、2-sec-ブチ
 ルフェニル基、4-tert-ブチルフェニル基、3-tert-ブチルフェニル基、2
 -tert-ブチルフェニル基、4-n-ペンチルフェニル基、4-イソペンチルフェニル
 基、2-ネオペンチルフェニル基、4-tert-ペンチルフェニル基、4-n-ヘキシ
 ルフェニル基、4-(2'-エチルブチル)フェニル基、4-n-ヘプチルフェニル基、
 4-n-オクチルフェニル基、4-(2'-エチルヘキシル)フェニル基、4-tert
 -オクチルフェニル基、4-n-デシルフェニル基、4-n-ドデシルフェニル基、4-
 n-テトラデシルフェニル基、4-シクロペンチルフェニル基、4-シクロヘキシルフェ
 ニル基、4-(4'-メチルシクロヘキシル)フェニル基、4-(4'-tert-ブチ
 ルシクロヘキシル)フェニル基、3-シクロヘキシルフェニル基、2-シクロヘキシルフ
 ェニル基、4-エチル-1-ナフチル基、6-n-ブチル-2-ナフチル基、2, 4-ジ
 メチルフェニル基、3, 5-ジメチルフェニル基、2, 6-ジメチルフェニル基、2, 4-
 ジエチルフェニル基、2, 3, 5-トリメチルフェニル基、2, 3, 6-トリメチルフ
 ェニル基、3, 4, 5-トリメチルフェニル基、2, 6-ジエチルフェニル基、2, 5-
 ジイソプロピルフェニル基、2, 6-ジイソブチルフェニル基、2, 4-ジ-tert-
 ブチルフェニル基、2, 5-ジ-tert-ブチルフェニル基、4, 6-ジ-tert-
 ブチル-2-メチルフェニル基、5-tert-ブチル-2-メチルフェニル基、4-tert
 -ブチル-2, 6-ジメチルフェニル基、
 4-メトキシフェニル基、3-メトキシフェニル基、2-メトキシフェニル基、4-エト
 キシフェニル基、3-エトキシフェニル基、2-エトキシフェニル基、4-n-プロポキ
 シフェニル基、3-n-プロポキシフェニル基、4-イソプロポキシフェニル基、3-イ
 ソプロポキシフェニル基、2-イソプロポキシフェニル基、4-n-ブトキシフェニル基
 、4-イソブトキシフェニル基、2-sec-ブトキシフェニル基、4-n-ペンチルオ
 キシフェニル基、4-イソペンチルオキシフェニル基、2-イソペンチルオキシフェニル
 基、4-ネオペンチルオキシフェニル基、2-ネペンチルオキシフェニル基、4-n-ヘ
 キシルオキシフェニル基、2-(2'-エチルブチルオキシ)フェニル基、4-n-オク
 チルオキシフェニル基、4-n-デシルオキシフェニル基、4-n-ドデシルオキシフェ
 ニル基、4-n-テトラデシルオキシフェニル基、4-シクロヘキシルオキシフェニル基
 、2-シクロヘキシルオキシフェニル基、2-メトキシ-1-ナフチル基、4-メトキシ
 -1-ナフチル基、4-n-ブトキシ-1-ナフチル基、5-エトキシ-1-ナフチル基
 、6-メトキシ-2-ナフチル基、6-エトキシ-2-ナフチル基、6-n-ブトキシ-
 2-ナフチル基、6-n-ヘキシルオキシ-2-ナフチル基、7-メトキシ-2-ナフチ
 ル基、7-n-ブトキシ-2-ナフチル基、2-メチル-4-メトキシフェニル基、2-
 メチル-5-メトキシフェニル基、3-メチル-5-メトキシフェニル基、3-エチル-
 5-メトキシフェニル基、2-メトキシ-4-メチルフェニル基、3-メトキシ-4-メ
 チルフェニル基、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,

10

20

30

40

50

6-ジメトキシフェニル基、3, 4-ジメトキシフェニル基、3, 5-ジメトキシフェニル基、3, 5-ジエトキシフェニル基、3, 5-ジ-n-ブトキシフェニル基、2-メトキシ-4-エトキシフェニル基、2-メトキシ-6-エトキシフェニル基、3, 4, 5-トリメトキシフェニル基、4-フェニルフェニル基、3-フェニルフェニル基、2-フェニルフェニル基、4-(4'-メチルフェニル)フェニル基、4-(3'-メチルフェニル)フェニル基、4-(4'-メトキシフェニル)フェニル基、4-(4'-n-ブトキシフェニル)フェニル基、2-(2'-メトキシフェニル)フェニル基、4-(4'-クロロフェニル)フェニル基、3-メチル-4-フェニルフェニル基、3-メトキシ-4-フェニルフェニル基、4-フルオロフェニル基、3-フルオロフェニル基、2-フルオロフェニル基、4-クロロフェニル基、3-クロロフェニル基、2-クロロフェニル基、4-ブromoフェニル基、3-ブromoフェニル基、2-ブromoフェニル基、4-クロロ-1-ナフチル基、4-クロロ-2-ナフチル基、6-ブromo-2-ナフチル基、2, 3-ジフルオロフェニル基、2, 5-ジフルオロフェニル基、2, 6-ジフルオロフェニル基、3, 4-ジフルオロフェニル基、3, 5-ジフルオロフェニル基、2, 3-ジクロロフェニル基、2, 4-ジクロロフェニル基、2, 5-ジクロロフェニル基、3, 4-ジクロロフェニル基、3, 5-ジクロロフェニル基、2, 5-ジブromoフェニル基、2, 4, 6-トリクロロフェニル基、2, 4-ジクロロ-1-ナフチル基、1, 6-ジクロロ-2-ナフチル基、2-フルオロ-4-メチルフェニル基、2-フルオロ-5-メチルフェニル基、3-フルオロ-2-メチルフェニル基、3-フルオロ-4-メチルフェニル基、2-メチル-4-フルオロフェニル基、2-メチル-5-フルオロフェニル基、3-メチル-4-フルオロフェニル基、2-クロロ-4-メチルフェニル基、2-クロロ-4-メチルフェニル基、2-クロロ-5-メチルフェニル基、2-クロロ-6-メチルフェニル基、2-メチル-3-クロロフェニル基、2-メチル-3-クロロフェニル基、2-メチル-4-クロロフェニル基、3-メチル-4-クロロフェニル基、2-クロロ-4, 6-ジメチルフェニル基、2-メトキシ-4-フルオロフェニル基、2-フルオロ-4-メトキシフェニル基、2-フルオロ-4-エトキシフェニル基、2-フルオロ-6-メトキシフェニル基、3-フルオロ-4-エトキシフェニル基、3-クロロ-4-メトキシフェニル基、2-メトキシ-5-クロロフェニル基、3-メトキシ-6-クロロフェニル基、5-クロロ-2, 4-ジメトキシフェニル基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。

一般式(1)で表されるアミン化合物において、 $Ar_1 \sim Ar_4$ は、それぞれが同種であってもよく、また、すべてが異なっても良い。一般式(1)で表されるアミン化合物において Ar_1 、 Ar_2 、 Ar_3 および Ar_4 は、少なくとも一つがフェナントリル基である。

一般式(1)で表されるアミン化合物において、 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 、 Z_5 および Z_6 は水素原子、ハロゲン原子または $-(O)_n-Z$ 基(式中 Z は、置換または未置換の直鎖、分岐鎖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、 n は0または1を表す)を表し、好ましくは、水素原子、ハロゲン原子または $-(O)_n-Z$ 基(式中 Z は、置換または未置換の炭素数1~16の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、あるいは置換または未置換の炭素数4~12のアリール基を表し、 n 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 $-(O)_n-Z$ 基(式中 Z は、置換または未置換の炭素数1~8の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、あるいは置換または未置換の炭素数6~12のアリール基を表し、 n は0または1を表す)を表し、さらに好ましくは、水素原子、ハロゲン原子、置換または未置換の炭素数1~8の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、炭素数6~10のアリール基を表す。

尚、 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 、 Z_5 および Z_6 の $-(O)_n-Z$ 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_1 、 Ar_2 、 Ar_3 および Ar_4 の具体例として挙げた置換または未置換のアリール基を挙げることができる。

Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 、 Z_5 および Z_6 の $-(O)_n-Z$ 基の Z である置換または未置換の直鎖、分岐鎖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

10

20

30

40

50

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*-ブトキシメチル基、*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*-ブトキシエチル基、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、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*-ペンチルオキシ)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

10

20

30

40

50

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'-ブromo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、ジフルオロメチル基、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-クロロヘプチル基、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-

10

20

30

40

50

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-ヒドロキシヘプチル基、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、分岐鎖または環状のアルキ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。 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 、 Z_5 および Z_6 の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。

一般式(1)で表されるアミン化合物において、 R_1 および R_2 は水素原子、直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは、置換または未置換のアラルキル基を表し、好ましくは、水素原子、炭素数1~16の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、炭素数4~16の置換または未置換のアリール基、あるいは、炭素数5~16の置換または未置換のアラルキル基を表し、より好ましくは、水素原子、炭素数1~8の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、炭素数6~12の置換または未置換のアリール基、あるいは、炭素数7~12の置換または未置換のアラルキル基を表す。

R_1 および R_2 の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基の具体例としては、 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 、 Z_5 および Z_6 の具体例として挙げた直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基を挙げることができる。

R_1 および R_2 の置換または未置換のアリール基の具体例としては、 Ar_1 、 Ar_2 、 Ar_3 および Ar_4 の具体例として挙げた置換または未置換のアリール基を挙げることができる。

R_1 および R_2 の置換または未置換のアラルキル基の具体例としては、例えば、ベンジル基、 α -メチルベンジル基、 α -エチルベンジル基、フェネチル基、 α -メチルフェネチル基、 β -メチルフェネチル基、 α 、 α -ジメチルベンジル基、 α 、 α -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-ヘプ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ラルキル基を挙げることができる。

【0015】

本発明に係る一般式(1)で表される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。

1. N, N, N'-トリフェニル-N'-(9'-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9H-フルオレン
2. N, N, N'-トリフェニル-N'-(9'-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
3. N, N, N'-トリフェニル-N'-(9'-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジシクロヘキシル-9H-フルオレン
4. N, N, N'-トリ(4'-メチルフェニル)-N'-(9"-フェナントリル)-

- 2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
5. N, N, N'-トリ(1'-ナフチル)-N'-(9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
6. N, N, N'-トリ(2'-ナフチル)-N'-(9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
7. N, N, N'-トリ(4'-フェノキシフェニル)-N'-(9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジシクロヘキシル-9H-フルオレン
8. N, N, N'-トリ(2'-メチルフェニル)-N'-(9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジシクロペンチル-9H-フルオレン
9. N, N, N'-トリフェニル-N'-(9'-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジフェニル-9H-フルオレン 10
10. N, N, N'-トリ(1'-ナフチル)-N'-(9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジベンジル-9H-フルオレン
11. N, N, N'-トリ(2'-ナフチル)-N'-(9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジシクロヘキシル-9H-フルオレン
12. N, N, N'-トリ(4'-メトキシフェニル)-N'-(10"-フェニル-9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-n-ジオクチル-9H-フルオレン
13. N, N, N'-トリ(2'-フェニルフェニル)-N'-(10"-メチル-9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
14. N, N, N'-トリ(2, 4-ジフェニルフェニル)-N'-(10"-メチル-9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジシクロペンチル-9H-フルオレン 20
15. N, N, N'-トリフェニル-N'-(9'-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジフェニル-9H-フルオレン
16. N, N, N'-トリフェニル-N'-(9'-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジ(1"-ナフチル)-9H-フルオレン
17. N, N, N'-トリフェニル-N'-(9'-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-3, 6-ジフェニル-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
18. N, N, N'-トリフェニル-N'-(9'-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-3, 6-ジメチル-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン 30
19. N, N, N'-トリフェニル-N'-(9'-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-3-フェニル-9, 9-ジシクロヘキシル-9H-フルオレン
20. N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(9'-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9H-フルオレン
21. N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(9'-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
22. N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(9'-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジシクロヘキシル-9H-フルオレン
23. N, N'-ジ(2'-ナフチル)-N, N'-ジ(9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン 40
24. N, N'-ジ(1'-ナフチル)-N, N'-ジ(9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
25. N, N'-ジ(4'-メチルフェニル)-N, N'-ジ(9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジシクロペンチル-9H-フルオレン
26. N, N'-ジ(2'-メチルフェニル)-N, N'-ジ(9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジ-n-プロピル-9H-フルオレン
27. N, N'-ジ(3'-エチルフェニル)-N, N'-ジ(9"-フェニル-10"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
28. N, N'-ジ(1'-ナフチル)-N, N'-ジ(9"-メチル-10"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン 50

29. N, N'-ジ(2'-フェニルフェニル)-N, N'-ジ(1", 8"-ジメチル-9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
30. N, N'-ジ(4'-フェノキシフェニル)-N, N'-ジ(1", 8"-ジフェニル-9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
31. N, N'-ジ(2'-フェニルフェニル)-N, N'-ジ(9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジシクロヘキシル-9H-フルオレン
32. N, N'-ジ(2', 5'-ジフェニルフェニル)-N, N'-ジ(9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジシクロペンチル-9H-フルオレン
33. N, N'-ジ(2', 5'-ジメチルフェニル)-N, N'-ジ(9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン 10
34. N, N'-ジ(4'-フェニルフェニル)-N, N'-ジ(9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
35. N, N'-ジ(4'-シアノフェニル)-N, N'-ジ(9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジシクロヘキシル-9H-フルオレン
36. N, N'-ジ(4'-フェニルフェニル)-N, N'-ジ(9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジシクロヘキシル-9H-フルオレン
37. N, N'-ジ(4'-フェニルフェニル)-N, N'-ジ(9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジベンジル-9H-フルオレン
38. N, N'-ジ(4'-tert-ブチルフェニル)-N, N'-ジ(9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジベンジル-9H-フルオレン 20
39. N, N'-ジ(4'-シクロヘキシルフェニル)-N, N'-ジ(9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
40. N, N'-ジフェニル-N, N'-(9'-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジフェニル-9H-フルオレン
41. N, N'-ジフェニル-N, N'-(9'-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジ(4"-フェニルフェニル)-9H-フルオレン
42. N, N'-ジフェニル-N, N'-(9'-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジ(1"-ナフチル)-9H-フルオレン
43. N, N'-ジ(1'-ナフチル)-N, N'-(9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジフェニル-9H-フルオレン 30
44. N, N'-ジフェニル-N', N'-ジ(9'-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
45. N, N'-ジ(2'-メチルフェニル)-N', N'-ジ(9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
46. N, N'-ジ(2'-メトキシフェニル)-N', N'-ジ(9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
47. N, N'-ジ(2', 5'-ジメチルフェニル)-N', N'-ジ(9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
48. N, N'-ジ(4'-クロロフェニル)-N', N'-ジ(10"-メチル-9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン 40
49. N, N'-ジ(4'-シクロヘキシルフェニル)-N', N'-ジ(9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
50. N, N'-ジ(4'-シクロヘキシルフェニル)-N', N'-ジ(10"-メチル-9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
51. N, N'-ジ(4'-tert-ブチルフェニル)-N', N'-ジ(10"-メチル-9"-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジシクロヘキシル-9H-フルオレン
52. N, N'-ジフェニル-N', N'-ジ(9'-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジフェニル-9H-フルオレン 50

53. N, N-ジフェニル-N', N'-ジ(9'-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジ(4'-シクロヘキシルフェニル)-9H-フルオレン
54. N, N-ジフェニル-N', N'-ジ(9'-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジ(4'-フェニルフェニル)-9H-フルオレン
55. N, N-ジフェニル-N', N'-ジ(9'-フェナントリル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジ(2'-フェニルフェニル)-9H-フルオレン
56. N-フェニル-N-(9'-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
57. N-(1'-ナフチル)-N-(9"-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
58. N-(2'-ナフチル)-N-(9"-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
59. N-(4'-フェニルフェニル)-N-(9"-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
60. N-(2'-メチルフェニル)-N-(9"-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
61. N-(2', 5'-ジメチルフェニル)-N-(9"-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
62. N-(4'-シクロヘキシルフェニル)-N-(9"-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
63. N-フェニル-N-(9'-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジ-isopropyl-9H-フルオレン
64. N-フェニル-N-(9'-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジ-n-ヘキシル-9H-フルオレン
65. N-フェニル-N-(9'-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジシクロヘキシル-9H-フルオレン
66. N-フェニル-N-(9'-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-tert-ブチル-9H-フルオレン
67. N-フェニル-N-(9'-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジベンジル-9H-フルオレン
68. N-フェニル-N-(9'-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジ(4"-メトキシベンジル)-9H-フルオレン
69. N-フェニル-N-(9'-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジ(4"-フェニルベンジル)-9H-フルオレン
70. N-(4'-フェニルフェニル)-N-(9"-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジシクロヘキシル-9H-フルオレン
71. N-(1'-ナフチル)-N-(9"-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジシクロペンチル-9H-フルオレン
72. N-(2'-ナフチル)-N-(9"-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジ(1"-アダマンチル)-9H-フルオレン
73. N-(1'-ナフチル)-N-(9"-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジシクロプロピル-9H-フルオレン
74. N-フェニル-N-(9'-フェナントリル)-2-N'-(2", 7"-ジメチルカルバゾリル)-7-アミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
75. N-フェニル-N-(9'-フェナントリル)-2-N'-(2", 7"-ジフェニルカルバゾリル)-7-アミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
76. N-フェニル-N-(9'-フェナントリル)-2-N'-(3", 6"-ジメチルカルバゾリル)-7-アミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
77. N-フェニル-N-(9'-フェナントリル)-2-N'-(3", 6"-ジフェニルカルバゾリル)-7-アミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン

10

20

30

40

50

78. N-フェニル-N-(9'-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジフェニル-9H-フルオレン
79. N-フェニル-N-(9'-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジ(4"-フェニルフェニル)-9H-フルオレン
80. N-フェニル-N-(9'-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジ(4"-ジメチルフェニル)-9H-フルオレン
81. N-フェニル-N-(9'-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジ(4"-シクロヘキシルフェニル)-9H-フルオレン
82. N-(1'-ナフチル)-N-(9"-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジフェニル-9H-フルオレン
83. N-(2'-ナフチル)-N-(9"-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジフェニル-9H-フルオレン
84. N, N-ジ(9'-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
85. N, N-ジ(9'-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジシクロヘキシル-9H-フルオレン
86. N, N-ジ(9'-フェナントリル)-2-N'-(2", 7"-ジメチルカルバゾリル)-9, 9-ジシクロヘキシル-9H-フルオレン
87. N, N-ジ(9'-フェナントリル)-2-N'-(2", 7"-ジフェニルカルバゾリル)-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
88. N, N-ジ(9'-フェナントリル)-2-N'-(3", 6"-ジフェニルカルバゾリル)-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
89. N, N-ジ(9'-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジフェニル-9H-フルオレン
90. N, N-ジ(9'-フェナントリル)-2-N'-カルバゾリル-7-アミノ-9, 9-ジ(4"-フェニルフェニル)-9H-フルオレン
91. N, N, N'-トリ(9'-フェナントリル)-N-フェニル-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
92. N, N, N'-トリ(9'-フェナントリル)-N-(1"-ナフチル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
93. N, N, N'-トリ(9'-フェナントリル)-N-(2"-ナフチル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
94. N, N, N'-トリ(9'-フェナントリル)-N-(4"-フェニルフェニル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
95. N, N, N'-トリ(9'-フェナントリル)-N-(4"-シクロヘキシルフェニル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
96. N, N, N'-トリ(9'-フェナントリル)-N-フェニル-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジシクロヘキシル-9H-フルオレン
97. N, N, N'-トリ(9'-フェナントリル)-N-フェニル-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジシクロペンチル-9H-フルオレン
98. N, N, N'-トリ(9'-フェナントリル)-N-(1"-ナフチル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジフェニル-9H-フルオレン
99. N, N, N'-トリ(9'-フェナントリル)-N-(2"-ナフチル)-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジ(4"-フェニルフェニル)-9H-フルオレン
100. N, N, N'-トリ(9'-フェナントリル)-N-(4"-フェニルフェニル)-2, 7-ジアミノ-3, 6-ジメチル-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン
101. N, N, N'-トリ(9'-フェナントリル)-N-(4"-シクロヘキシルフェニル)-2, 7-ジアミノ-3, 6-ジメチル-9, 9-ジフェニル-9H-フルオレン
102. N, N, N'-トリ(9'-フェナントリル)-N-(4"-メチルフェニル)

10

20

30

40

50

－ 2, 7－ジアミノ－ 3, 6－ジフェニル－ 9, 9－ジシクロヘキシル－ 9 H－フルオレン

103. N, N, N', N'－テトラ (9'－フェナントリル)－ 2, 7－ジアミノ－ 9, 9－ジメチル－ 9 H－フルオレン

104. N, N, N', N'－テトラ (9'－フェナントリル)－ 2, 7－ジアミノ－ 9, 9－ジシクロヘキシル－ 9 H－フルオレン

105. N, N, N', N'－テトラ (9'－フェナントリル)－ 2, 7－ジアミノ－ 9, 9－ジフェニル－ 9 H－フルオレン

106. N, N, N', N'－テトラ (9'－フェナントリル)－ 2, 7－ジアミノ－ 9, 9－ジベンジル－ 9 H－フルオレン

10

107. N, N, N', N'－テトラ (10'－メチル－ 9'－フェナントリル)－ 2, 7－ジアミノ－ 9, 9－ジベンジル－ 9 H－フルオレン

108. N, N, N', N'－テトラ (10'－フェニル－ 9'－フェナントリル)－ 2, 7－ジアミノ－ 9, 9－ジシクロオクチル－ 9 H－フルオレン

109. N, N, N', N'－テトラ (10'－フェニル－ 9'－フェナントリル)－ 2, 7－ジアミノ－ 3－フェニル－ 9, 9－ジメチル－ 9 H－フルオレン

110. N, N, N', N'－テトラ (9'－フェナントリル)－ 2, 7－ジアミノ－ 3, 6－ジメチル－ 9, 9－ジメチル－ 9 H－フルオレン

111. N, N, N', N'－テトラ (9'－フェナントリル)－ 2, 7－ジアミノ－ 9, 9－ジ (2'', 5''－ジフェニルフェニル)－ 9 H－フルオレン

20

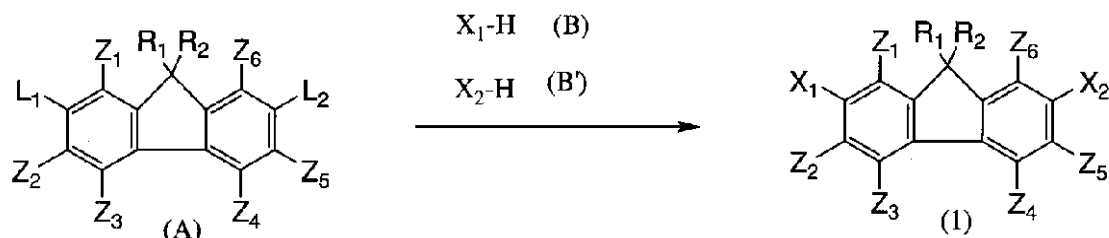
【0016】

本発明の一般式 (1) で表されるアミン化合物は其自体公知の方法により製造することができる。

一般式 (1) で表されるアミン化合物の製造 (化 5)

【0017】

【化 5】



30

【0018】

〔式中、 X_1 、 X_2 、 Z_1 、 Z_2 、 Z_3 、 Z_4 、 Z_5 、 Z_6 、 R_1 および R_2 は一般式 (1) と同様の意味を表し、 L_1 および L_2 は塩素、臭素、ヨウ素等のハロゲン原子またはトリフルオロメタンスルホニルオキシ基等の脱離基を表す〕

すなわち、一般式 (A) で表される化合物に、一般式 (B) および／または一般式 (B') で表される化合物を反応させることにより製造することができる。

40

尚、一般式 (A) で表される化合物と一般式 (B) および／または一般式 (B') で表される化合物の反応は▲ 1 ▼塩基 (例えば炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸水素カリウム) および銅触媒の存在下に、所望により極性溶媒 (例えば、N－メチルピロリドン、N, N－ジメチルホルムアミド、N, N－ジメチルアセトアミド、N, N－ジメチルイミダゾリジノン、o－ジクロロベンゼン) 中で、一般式 (A) で表される化合物と一般式 (B) および／または一般式 (B') で表される化合物を反応させる方法、▲ 2 ▼塩基 (例えば、tert－ブトキシナトリウム、tert－ブトキシカリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム) およびパラジウム触媒〔例えば、テトラキス (トリフェニルホスフィン) パラジウム、パラジウム／炭素、酢酸パラジウム／トリ－tert－ブチルホスフィン、酢酸パラジウム／ジシクロヘキシルフェニルホスフィン、トリス (ジ

50

ベンジリデンアセトン)ジパラジウム／トリ－t e r t－ブチルホスフィン〕の存在下に、一般式(A)で表される化合物と一般式(B)および／または一般式(B')で表される化合物を反応させる方法により実施することができる。

【0019】

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)で表される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。 10

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。 20

本発明の有機電界発光素子において、一般式(1)で表されるアミン化合物で表されるアミン化合物は、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、正孔注入輸送層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)で表されるアミン化合物で表されるアミン化合物は、単独で使用してもよく、また複数併用してもよい。

【0020】

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、(EL-1)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)、(EL-2)陽極／正孔注入輸送層／発光層／陰極型素子(図2)、(EL-3)陽極／発光層／電子注入輸送層／陰極型素子(図3)、(EL-4)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(EL-5)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、(EL-4)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、(EL-6)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)、(EL-7)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)、(EL-8)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。 30 40

【0021】

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。

【0022】

好ましい有機電界発光素子の構成は、(EL-1)型素子、(EL-2)型素子、(EL 50

－５）型素子、（ＥＬ－６）型素子または（ＥＬ－７）型素子であり、より好ましくは、（ＥＬ－１）型素子、（ＥＬ－２）型素子または（ＥＬ－７）型素子である。

【００２３】

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（ＥＬ－１）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。

【００２４】

（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、ボ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（ In_2O_3 ）、酸化錫（ 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。

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 $\Omega/\square$ 以下、より好ましくは、 $5\sim50\Omega/\square$ 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、 $5\sim1000\text{nm}$ 程度、より好ましくは、 $10\sim500\text{nm}$ 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。

本発明の電界発光素子の正孔注入輸送層は、一般式（１）で表される化合物および／または他の正孔注入輸送機能を有する化合物（例えば、フタロシアニン誘導体、トリアリールアミン誘導体、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。

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。

【００２５】

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）で表される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）で表される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”

ーメチルフェニル) 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
 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。

一般式 (1) で表される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) で表される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) で表されるアミン化合物および/または他の発光機能を有する化
 合物を少なくとも一種用いて形成することができる。

一般式 (1) で表されるアミン化合物以外の発光機能を有する化合物としては、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) 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
 ゴ [h] キノリノラート) ベリリウム、2- (2'-ヒドロキシフェニル) ベンゾチアゾ
 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]、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) で表されるアミン化合物以外の発光機能を有する化合物としては、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

10

20

30

40

50

しい。本発明の有機電界発光素子は、発光層に一般式(1)で表されるアミン化合物を含有していることが好ましい。

一般式(1)で表される化合物と一般式(1)で表されるアミン化合物以外の発光機能を有する化合物を併用する場合、発光層中に占める一般式(1)で表される化合物の割合は、好ましくは、0.001~99.999重量%に調節する。また、発光層は、J. Appl. Phys., 65、3610(1989)、特開平5-214332号公報に記載のように、ホスト化合物とゲスト化合物(ドーパント)から形成することも可能である。一般式(1)で表されるアミン化合物は発光層のホスト化合物として使用することもでき、またゲスト化合物として使用することも可能である。一般式(1)で表されるアミン化合物をホスト化合物として発光層を形成する場合、ゲスト化合物としては、例えば、前記のほかの発光機能を有する化合物を挙げることができ、中でも多環芳香族化合物は好ましい。

10

一般式(1)で表されるアミン化合物をホスト化合物として発光層を形成する場合、一般式(1)で表されるアミン化合物に対して、ゲスト化合物は、好ましくは、0.001から40重量%、より好ましくは、0.01~30重量%、さらに好ましくは0.1~20重量%使用する

発光層は、一般式(1)で表されるアミン化合物をホスト材料として、一般式(1)で表される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る。

本発明の有機電界発光素子は、好ましくは、発光層に一般式(1)で表されるアミン化合物をホスト材料として含有する。

20

一般式(1)で表されるアミン化合物ホスト材料として、他の発光機能を有する化合物と併用する場合、発光層中に占める一般式(1)で表されるアミン化合物は、好ましくは、40.0%~99.9%であり、より好ましくは、60.0~99.9重量%である。

ゲスト材料の使用量は、一般式(1)で表されるアミン化合物に対して0.001~40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。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。

【0026】

一般式(1)で表されるアミン化合物を、ゲスト材料として用いて発光層を形成する場合、ホスト材料としては、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。

30

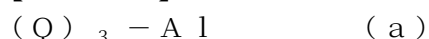
一般式(1)で表されるアミン化合物をゲスト材料として使用する場合、一般式(1)で表されるアミン化合物を、好ましくは、0.001~40重量%、より好ましくは、0.01~30重量%、さらに好ましくは、0.1~20重量%使用する。

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。

40

【0027】



(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)

50

(Q)₂ - A1 - 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)₂ - A1 - O - A1 - (Q)₂ (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、

10

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、

20

30

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-μ-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-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。

40

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

50

ウムーインジウム合金、ナトリウム、ナトリウムーカリウム合金、カルシウム、マグネシウム、マグネシウムー銀合金、マグネシウムーインジウム合金、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、アルミニウムーリチウム合金、アルミニウムーカルシウム合金、アルミニウムーマグネシウム合金、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。

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5~1000nm、好ましくは、10~500nm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。

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・ブロッジェット法、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。

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

10

20

30

40

50

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。

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。

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、5 nm～5 μm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、フタロシアニ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。

【0028】

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、TF T（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、2～30 V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。

【0029】

【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。

尚、各実施例中のガラス転移温度は、示差走査熱量計により測定した。

【0030】

実施例1：例示化合物2の製造

▲1▼N-(9-フェナントリル)アニリンの製造

アニリン37.2g(0.4mol)、9-ブロモフェナントレン102.8g(0.4mol)、tert-ブトキシナトリウム50.4g(0.525mol)、[1,1'-ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン]ジクロロパラジウム(II)・ジクロロメタン錯体0.38g、1,1'-ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン0.84gおよびテトラヒドロフラン120gよりなる混合物を、窒素雰囲気下、60℃に加熱し、同温度で8時間加熱攪拌した。その後、反応混合物を室温に冷却し、テトラヒドロフラン300gを添加し、セライトろ過し、ろ液からテトラヒドロフランを減圧下に留去した。残渣をトルエンから2回再結晶し、目的とするN-(9-フェナントリル)アニリン89.3gを得た。

▲2▼N,N-ジフェニル-2-アミノ-7-クロロ-9,9-ジメチル-9H-フルオレンの製造

2-クロロ-7-ヨード-9,9-ジメチル-9H-フルオレン546.7g(1.54mol)、炭酸カリウム273.7g(1.98mol)、N,N-ジフェニルアミン248.4g(1.47mol)、塩化銅4.37g、18-8-クラウンエーテル8.75g、o-ジクロロベンゼン1640gおよびトルエン183gよりなる混合物を165~170℃に加熱し、同温度で10時間加熱攪拌した。その後反応混合物を室温に冷却し、無機物をろ別し、さらにトルエン730gで洗浄した。ろ液から減圧下にトルエンおよびo-ジクロロベンゼンを留去した。残渣に活性炭8.2gおよびトルエン1300gを添加し、60℃で30分間攪拌した後、活性炭を60℃でろ別した。ろ液から110℃でトルエンを留去し、結晶の析出が確認された時点で濃縮を終了し、室温まで冷却して晶析を行い、N,N-ジフェニル-2-アミノ-7-クロロ-9,9-ジメチル-9H-フルオレン440gを得た。

▲3▼例示化合物2の製造

N,N-ジフェニル-2-アミノ-7-クロロ-9,9-ジメチル-9H-フルオレン3.95g(0.01mol)、N-(9-フェナントリル)アニリン3.76g(0.014mol)、tert-ブトキシナトリウム1.34g(0.014mol)およびトルエン30gよりなる混合物に、窒素気流下、酢酸パラジウム31mgおよびトリ-tert-ブチルホスフィン0.08mlを添加し、110℃で6時間加熱攪拌した。その後、反応混合物を室温に冷却し、トルエン相を水洗した。トルエン相から減圧下にトルエンを留去し、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、その後、トルエン/n-ヘキサン=3/2(vol/vol)で2回再結晶し、目的とする例示化合物2の化合物を淡黄色結晶として3.91g得た。さらにこの化合物を370℃、 2×10^{-4} Paで8時間かけて昇華精製した。

この化合物のガラス転移温度は142℃であった。

【0031】

実施例2：例示化合物21の製造

2,7-ジヨード-9,9-ジメチル-9H-フルオレン4.46g(0.01mol)、N-(9-フェナントリル)アニリン6.46g(0.024mol)、tert-ブトキシナトリウム2.5g(0.026mol)、酢酸パラジウム45mg、トリ-tert-ブチルホスフィン0.12ml、およびトルエン30gよりなる混合物をアルゴン気流下で、100℃に加熱し、同温度で9時間加熱攪拌した。その後、反応混合物を室温

に冷却しメタノールに排出した。生成した固体を水洗、メタノール洗浄し、さらにトルエン／*n*-ヘキサンから2回再結晶して例示化合物21の化合物を淡黄色結晶として3.58 g得た。さらにこの化合物を380℃、 2×10^{-4} Paで8時間かけて昇華精製した。この化合物のガラス転移温度は152℃であった。

【0032】

実施例3：例示化合物22の製造

実施例2において、2,7-ジヨード-9,9-ジメチル-9H-フルオレン4.46 g (0.01 mol)を使用する代わりに、2,7-ジブロモ-9,9-ジシクロヘキシル-9H-フルオレン4.88 g (0.01 mol)を使用した以外は、実施例2に記載の操作に従い、例示化合物22を淡黄色結晶として3.05 g得た。さらにこの化合物を420℃、 2×10^{-4} Paで8時間かけて昇華精製した。この化合物のガラス転移温度は164℃であった。

10

【0033】

実施例4：例示化合物24の製造

▲1▼N-(9'-フェナントリル)-1-ナフチルアミンの製造

実施例1の▲1▼において、アニリン37.2 g (0.4 mol)を使用する代わりに、1-ナフチルアミン57.2 g (0.4 mol)を使用した以外は、実施例1の▲1▼に記載の操作に従い、N-(9'-フェナントリル)-1-ナフチルアミン103.4 gを得た。

▲2▼例示化合物24の製造

20

実施例2において、N-(9'-フェナントリル)アニリン6.46 g (0.024 mol)を使用する代わりに、N-(9'-フェナントリル)-1-ナフチルアミン7.66 g (0.024 mol)を使用した以外は、実施例2に記載の操作に従い、例示化合物24を淡黄色結晶として4.10 g得た。さらにこの化合物を380℃、 3×10^{-4} Paで8時間かけて昇華精製した。

この化合物のガラス転移温度は165℃であった。

【0034】

実施例5：例示化合物34の製造

▲1▼N-(9'-フェントレニル)-4-フェニルアニリンの製造

実施例1の▲1▼において、アニリン37.2 g (0.4 mol)を使用する代わりに、4-フェニルアニリン67.6 g (0.4 mol)を使用した以外は、実施例1の▲1▼に記載の操作に従い、N-(9'-フェナントリル)-4-フェニルアニリン93.8 gを得た。

30

▲2▼例示化合物34の製造

実施例2において、N-(9'-フェナントリル)アニリン6.46 g (0.024 mol)を使用する代わりに、N-(9'-フェナントリル)-4-フェニルアニリン8.28 g (0.024 mol)を使用した以外は、実施例2に記載の操作に従い、例示化合物34を淡黄色結晶として3.62 g得た。さらにこの化合物を420℃、 2×10^{-4} Paで6時間かけて昇華精製した。

この化合物のガラス転移温度は159℃であった。

40

【0035】

実施例6：例示化合物36の製造

実施例2において、2,7-ジヨード-9,9-ジメチル-9H-フルオレン4.46 g (0.01 mol)およびN-(9'-フェナントリル)アニリン6.46 g (0.024 mol)を使用する代わりに、2,7-ジブロモ-9,9-ジシクロヘキシル-9H-フルオレン4.88 g (0.01 mol)およびN-(9'-フェナントリル)-4-フェニルアニリン8.28 g (0.024 mol)を使用した以外は、実施例2に記載の操作に従い、例示化合物36を淡黄色結晶として4.31 g得た。さらにこの化合物を430℃、 4×10^{-4} Paで6時間かけて昇華精製した。

この化合物のガラス転移温度は166℃であった。

50

【0036】

実施例7：例示化合物37の製造

実施例2において、2,7-ジヨード-9,9-ジメチル-9H-フルオレン4.46g (0.01mol) およびN-(9-フェナントリル)アニリン6.46g (0.024mol) を使用する代わりに、2,7-ジブromo-9,9-ジベンジル-9H-フルオレン5.04g (0.01mol) およびN-(9'-フェナントリル)-4-フェニルアニリン8.28g (0.024mol) を使用した以外は、実施例2に記載の操作に従い、例示化合物37を淡黄色結晶として4.16g得た。さらにこの化合物を440℃、 2×10^{-4} Paで8時間かけて昇華精製した。

この化合物のガラス転移温度は164℃であった。

10

【0037】

実施例8：例示化合物39の製造

▲1▼N-(9'-フェントレニル)-4-シクロヘキシルアニリンの製造

実施例1の▲1▼において、アニリン37.2g (0.4mol) を使用する代わりに、4-シクロヘキシルアニリン70g (0.4mol) を使用した以外は、実施例1の▲1▼に記載の操作に従い、N-(9'-フェナントリル)-4-シクロヘキシルアニリン100.5gを得た。

▲2▼例示化合物39の製造

実施例2において、N-(9-フェナントリル)アニリン6.46g (0.024mol) を使用する代わりに、N-(9'-フェナントリル)-4-シクロヘキシルアニリン8.42g (0.024mol) を使用した以外は、実施例2に記載の操作に従い、例示化合物39を淡黄色結晶として2.95g得た。さらにこの化合物を400℃、 4×10^{-4} Paで6時間かけて昇華精製した。

20

この化合物のガラス転移温度は161℃であった。

【0038】

実施例9：例示化合物56の製造

▲1▼2-クロロ-7-N-カルバゾリル-9,9-ジメチル-9H-フルオレンの製造
2-クロロ-7-ヨード-9,9-ジメチル-9H-フルオレン546.7g (1.54mol)、炭酸カリウム273.7g (1.98mol)、カルバゾール245.8g (1.47mol)、塩化銅4.37g、18-8-クラウンエーテル8.75g、o-ジクロロベンゼン1640gおよびトルエン183gよりなる混合物を165~170℃に加熱し、同温度で10時間加熱攪拌した。その後反応混合物を室温に冷却し、無機物をろ別し、さらにトルエン730gで洗浄した。ろ液から減圧下にトルエンおよびo-ジクロロベンゼンを留去した。残渣に活性炭8.2gおよびトルエン1300gを添加し、60℃で30分間攪拌した後、活性炭を60℃でろ別した。ろ液から110℃でトルエンを留去し、結晶の析出が確認された時点で濃縮を終了し、室温まで冷却して晶析を行い、2-クロロ-7-N-カルバゾリル-9,9-ジメチル-9H-フルオレン425gを得た。

30

▲2▼例示化合物56の製造

実施例1の▲3▼において、N,N-ジフェニル-2-アミノ-7-クロロ-9,9-ジメチル-9H-フルオレン3.95g (0.01mol) を使用する代わりに、2-クロロ-7-N-カルバゾリル-9,9-ジメチル-9H-フルオレン3.94g (0.01mol) を使用した以外は、実施例1の▲3▼に記載の操作に従い、例示化合物56を淡黄色結晶として3.27g得た。さらにこの化合物を380℃、 2×10^{-4} Paで6時間かけて昇華精製した。

40

この化合物のガラス転移温度は151℃であった。

【0039】

実施例10：例示化合物57の製造

実施例1の▲3▼において、N,N-ジフェニル-2-アミノ-7-クロロ-9,9-ジメチル-9H-フルオレン3.95g (0.01mol) およびN-(9-フェナントリル)アニリン3.76g (0.014mol) を使用する代わりに、2-クロロ-7-N

50

ーカルバゾリル-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン3, 94 g (0.01 mol) およびN-(9'-フェナントリル)-1-ナフチルアミン7.66 g (0.024 mol) を使用した以外は、実施例1の▲3▼に記載の操作に従い、例示化合物57を淡黄色結晶として3.76 g得た。さらにこの化合物を390℃、 4×10^{-4} Paで8時間かけて昇華精製した。

この化合物のガラス転移温度は161℃であった。

【0040】

実施例11：例示化合物59の製造

実施例1の▲3▼において、N, N-ジフェニル-2-アミノ-7-クロロ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン3, 95 g (0.01 mol) およびN-(9'-フェナントリル)アニリン3.76 g (0.014 mol) を使用する代わりに、2-クロロ-7-N-カルバゾリル-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン3, 94 g (0.01 mol) およびN-(9'-フェナントリル)4-フェニルファニリン8.28 g (0.024 mol) を使用した以外は、実施例1の▲3▼に記載の操作に従い、例示化合物59を淡黄色結晶として3.95 g得た。さらにこの化合物を410℃、 1×10^{-4} Paで8時間かけて昇華精製した。

10

この化合物のガラス転移温度は158℃であった。

【0041】

実施例12：例示化合物62の製造

実施例1の▲3▼において、N, N-ジフェニル-2-アミノ-7-クロロ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン3, 95 g (0.01 mol) およびN-(9'-フェナントリル)アニリン3.76 g (0.014 mol) を使用する代わりに、2-クロロ-7-N-カルバゾリル-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン3, 94 g (0.01 mol) およびN-(9'-フェナントリル)4-シクロヘキシルアニリン8.42 g (0.024 mol) を使用した以外は、実施例1の▲3▼に記載の操作に従い、例示化合物62を淡黄色結晶として3.52 g得た。さらにこの化合物を420℃、 2×10^{-4} Paで8時間かけて昇華精製した。

20

この化合物のガラス転移温度は156℃であった。

【0042】

実施例13：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、セミコクリーン（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 3×10^{-6} Torrに減圧した。まず、ITO透明電極上に、例示化合物2の化合物を蒸着速度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 nm/secで50 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 nm/secで200 nmの厚さに共蒸着（重量比10：1）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、50℃、乾燥雰囲気下、10 mA/cm² の定電流密度で連続駆動させた。初期には、5.8 V、輝度490 cd/m² の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は830時間であった。

30

さらに、該素子を100℃で1時間放置し、発光特性に大きな変化が無いことを確認した。

【0043】

実施例14～21：有機電界発光素子の作製

実施例13において、正孔注入輸送層の形成に際して、例示化合物2の化合物を使用する代わりに、例示化合物21の化合物（実施例14）、例示化合物22の化合物（実施例15）、例示化合物24の化合物（実施例16）、例示化合物34の化合物（実施例17）

50

、例示化合物 36 の化合物（実施例 18）、例示化合物 39 の化合物（実施例 19）、例示化合物 56 の化合物（実施例 20）、例示化合物 57 の化合物（実施例 21）を使用した以外は、実施例 13 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。また、各素子は 100℃で 1 時間放置した後も発光特性には大きな変化は確認されなかった。

【0044】

比較例 1：

実施例 13 において、正孔注入輸送層の形成に際して、例示化合物 2 の化合物を使用する代わりに、N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(3"-メチルフェニル)-4, 4'-ジアミノビフェニルを使用した以外は、実施例 13 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。また、該素子を 100℃で 1 時間放置したところ、素子からの発光は確認できない程度減衰していた。

10

【0045】

比較例 2：

実施例 13 において、正孔注入輸送層の形成に際して、例示化合物 2 の化合物を使用する代わりに、N, N, N', N'-テトラフェニル-2, 7-ジアミノ-9, 9-ジメチル-9H-フルオレンを使用した以外は、実施例 13 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。また、該素子を 100℃で 1 時間放置したところ、素子からの発光が減衰していることが確認された。

20

【0046】

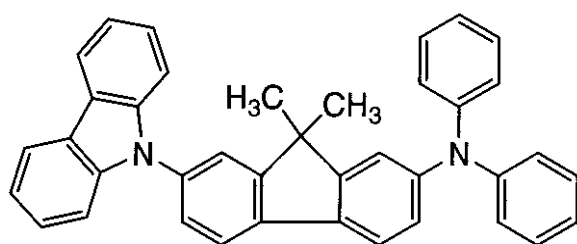
比較例 3：

実施例 13 において、正孔注入輸送層の形成に際して、例示化合物 2 の化合物を使用する代わりに、式 (a) (化 6) で表される N, N-ジフェニル-2-アミノ-7-((N-カルバゾリル-9, 9-ジメチル-9H-フルオレン)を使用した以外は、実施例 13 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。また、該素子を 100℃で 1 時間放置したところ、素子からの発光が減衰していることが確認された。

30

【0047】

【化 6】



(a)

40

【0048】

【表 1】

第1表

有機電界発光素子	初期特性(50°C)		半減期(50°C)
	輝度 (cd/cm ²)	電圧 (V)	
実施例14	510	5.6	810
実施例15	520	5.7	830
実施例16	510	5.9	820
実施例17	490	5.4	810
実施例18	530	5.2	830
実施例19	520	5.5	820
実施例20	620	6.1	850
実施例21	630	6.2	860
比較例1	300	6.6	5
比較例2	450	6.5	100
比較例3	480	6.5	540

10

20

30

40

50

【0049】

実施例22：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 3×10^{-6} Torrに減圧した。

まず、ITO透明電極上に、ポリ（チオフェン-2，5-ジイル）を蒸着速度0.1nm/secで、20nmの厚さに蒸着し、第1正孔注入輸送層を形成した。次いで、例示化合物24の化合物を蒸着速度0.2nm/secで55nmの厚さに蒸着し、第2正孔注入輸送層を形成した。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0.2nm/secで50nm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0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着（重量比10：1）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、10mA/cm²の定電流密度で連続駆動させた。初期には、5.7V、輝度520cd/m²の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は1600時間であった。

さらに、該素子を100°Cで1時間放置し、発光特性に大きな変化が無いことを確認した。

【0050】

実施例23：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 3×10^{-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0.1nm/secで、50nm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62の化合物とルブレンを、異なる蒸着源から、蒸着速度0.2nm/secで20nm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 nm/sec で 50 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 nm/sec で 200 nm の厚さに共蒸着（重量比 $10:1$ ）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、 10 mA/cm^2 の定電流密度で連続駆動させた。初期には、 6.3 V 、輝度 620 cd/m^2 の黄色の発光が確認された。輝度の半減期は 1400 時間であった。さらに、該素子を 100°C で 1 時間放置し、発光特性に大きな変化が無いことを確認した。

【0051】

実施例 24：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、セミコクリーン（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。先ず、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。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 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 nm/sec で 55 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 nm/sec で 50 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 nm/sec で 200 nm の厚さに共蒸着（重量比 $10:1$ ）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、 10 mA/cm^2 の定電流密度で連続駆動させた。初期には、 6.0 V 、輝度 570 cd/m^2 の黄色の発光が確認された。輝度の半減期は 1600 時間であった。さらに、該素子を 100°C で 1 時間放置し、発光特性に大きな変化が無いことを確認した。

【0052】

実施例 25：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、セミコクリーン（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。先ず、ITO 透明電極上に、例示化合物 37 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。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 59 の化合物とルブレンを、異なる蒸着源から、蒸着速度 0.2 nm/sec で 55 nm の厚さに共蒸着（重量比 $10:1$ ）し、第 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 nm/sec で 50 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 nm/sec で 200 nm の厚さに共蒸着（重量比 $10:1$ ）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧印加し、乾燥雰囲気下、 10 mA/cm^2 の定電流密度で連続駆動させた。初期には、 5.7 V 、輝度 610 cd/m^2 の黄色の発光が確認された。輝度の半減期は 1750 時間であった。さらに、該素子を 100°C で 1 時間放置し、発光特性に大きな変化が無いことを確認した。

【0053】

実施例 26：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、セミコクリーン（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 22 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 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 3×10^{-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 nm/sec で 50 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 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、10 V の直流電圧を印加したところ、 92 mA/cm^2 の電流が流れた。輝度 990 cd/m^2 の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は 380 時間であった。 10

【0054】

実施例 27：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、セミコクリーン（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 24 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 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 3×10^{-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 nm/sec で 200 nm の厚さに共蒸着（重量比 10 : 1）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に乾燥雰囲気下、15 V の直流電圧を印加したところ、 92 mA/cm^2 の電流が流れた。輝度 580 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

【0055】

【発明の効果】

本発明により、新規なアミン化合物、および発光寿命が長く、耐久性に優れ、かつ耐熱性の高い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。
- 【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】

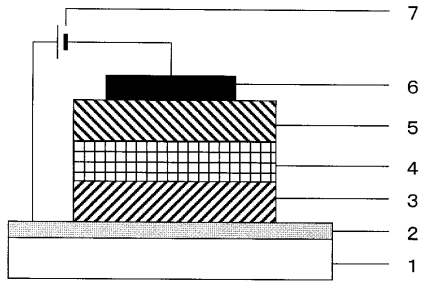
- 1：基板
- 2：陽極
- 3：正孔注入輸送層
- 3a：正孔注入輸送成分
- 4：発光層
- 4a：発光成分
- 5：電子注入輸送層
- 5'：電子注入輸送層
- 5a：電子注入輸送成分
- 6：陰極
- 7：電源

30

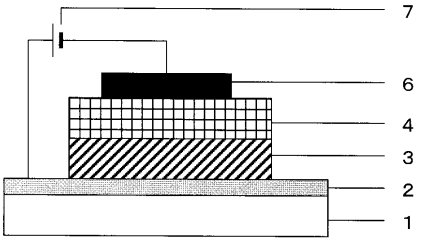
40

50

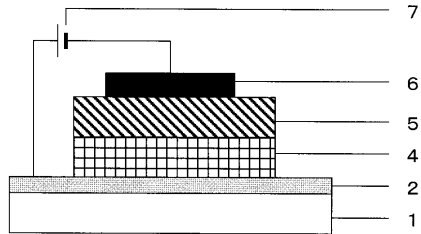
【図 1】



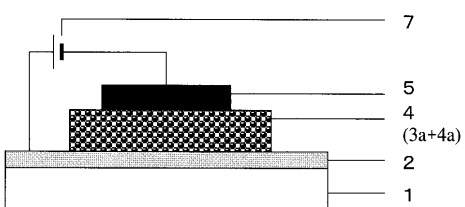
【図 2】



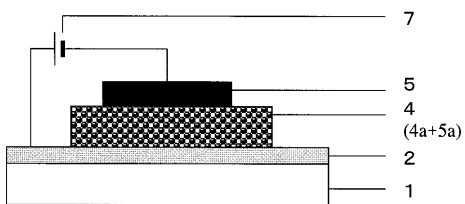
【図 3】



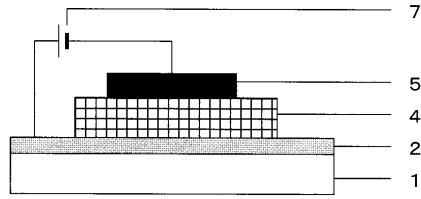
【図 7】



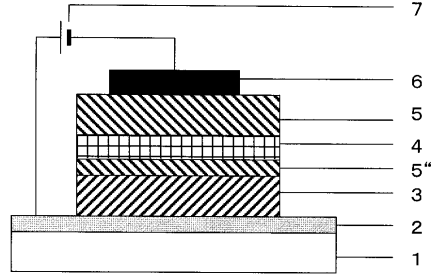
【図 8】



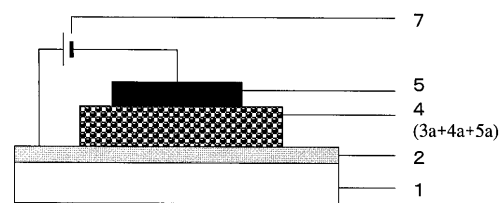
【図 4】



【図 5】



【図 6】



フロントページの続き

(51)Int.Cl. ⁷	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 AB02 AB06 AB11 AB14 DB03
4C204 BB05 BB09 CB25 DB01 EB01 FB16 GB01
4H006 AA01 AA03 AB91

【要約の続き】

【効果】新規なアミン化合物、耐熱性に優れ、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。

【選択図】 なし

专利名称(译)	胺化合物和含有该化合物的有机电致发光元件		
公开(公告)号	JP2004345960A	公开(公告)日	2004-12-09
申请号	JP2003138769	申请日	2003-05-16
[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 塚田英孝 田辺良満 島村武彦		
发明人	戸谷 由之 塚田 英孝 田辺 良満 島村 武彦		
IPC分类号	H01L51/50 C07C211/61 C07D209/86 C09K11/06 H05B33/14 H05B33/22		
FI分类号	C07C211/61 C07D209/86 C09K11/06.620 C09K11/06.645 C09K11/06.690 H05B33/14.B H05B33/22.D		
F-TERM分类号	3K007/AB02 3K007/AB06 3K007/AB11 3K007/AB14 3K007/DB03 4C204/BB05 4C204/BB09 4C204/CB25 4C204/DB01 4C204/EB01 4C204/FB16 4C204/GB01 4H006/AA01 4H006/AA03 4H006/AB91 3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC21 3K107/CC24 3K107/DD58 3K107/DD71 3K107/DD74 3K107/FF05		
优先权	2003087560 2003-03-27 JP		
其他公开文献	JP4177707B2		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

解决方案：有机电致发光包括由通式(1)表示的胺化合物和至少一层夹在一对电极之间的层，该层包含至少一种由通式(1)表示的胺化合物。元素。(式中，X1表示N-唑基或-NAr1Ar2(假设Ar1和Ar2表示芳基)，X2表示-。NAr3Ar4(假设Ar3和Ar4代表芳基)，Z1，Z2，Z3，Z4，Z5和Z6是氢原子，卤素原子或a-(O)nZ基团(其中Z表示直链，支链或环状烷基或芳基，且n为0或1)。代表氢原子，R1和R2代表氢原子，直链，支链或环状烷基，芳基或芳烷基Ar1~Ar4至少一个代表菲基][效果]可以提供新型的胺化合物，耐热性优异，发光寿命长，耐久性优异的有机电致发光元件。[选择图]无

