

(51)Int.Cl ⁷	識別記号	F I	テ-マコード [*] (参考)
C 0 7 C211/54		C 0 7 C211/54	3 K 0 0 7
211/58		211/58	4 H 0 0 6
211/61		211/61	
C 0 9 K 11/06	620	C 0 9 K 11/06	620
	645		645
審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 43数) 最終頁に続く			

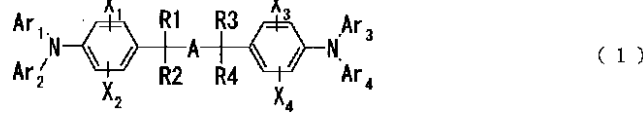
(21)出願番号	特願2001 - 265321(P2001 - 265321)	(71)出願人	000005887 三井化学株式会社 東京都千代田区霞が関三丁目2番5号
(22)出願日	平成13年9月3日(2001.9.3)	(72)発明者	島村 武彦 千葉県袖ヶ浦市長浦580 - 32 三井化学株式 会社内
		(72)発明者	石田 努 千葉県袖ヶ浦市長浦580 - 32 三井化学株式 会社内
		(72)発明者	田辺 良満 千葉県袖ヶ浦市長浦580 - 32 三井化学株式 会社内
		最終頁に続く	

(54)【発明の名称】 アミン化合物および該化合物を有する有機電界発光素子

(57)【要約】

【課題】新規なアミン化合物の提供、および安定性、耐久性が優れた有機電界発光素子を提供する。

【解決手段】一般式（ 1 ）で表される化合物、および



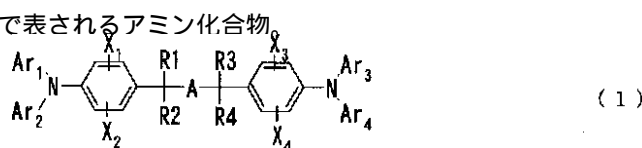
[式中、X₁ ~ X₄は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、置換または未置換のアラルキル基、あるいは置換または未置換のアリール基を表し、R 1 ~ R 4 は、それぞれ独立に、直鎖、分岐または環状のアルキル基、あるいは置換または未置換のアラ

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

ルキル基を表し、Aは、置換または未置換のアリーレン基を表し、A r₁ ~ A r₄は、それぞれ独立に、置換または未置換のアリール基を表し、ただし、A r₁ ~ A r₄の少なくとも 1 つは、置換または未置換の縮合多環系アリール基を表す。]

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 一般式 (1) で表されるアミン化合物



[式中、 $X_1 \sim X_4$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、置換または未置換のアラルキル基、あるいは置換または未置換のアリール基を表し、 $R_1 \sim R_4$ は、それぞれ独立に、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ラルキル基を表し、 A は、置換または未置換のアリーレン基を表し、 $Ar_1 \sim Ar_4$ は、それぞれ独立に、置換または未置換のアリール基を表し、ただし、 $Ar_1 \sim Ar_4$ の少なくとも1つは、置換または未置換の縮合多環系アリール基を表す。]

【請求項 2】 一般式 (1) において、 $Ar_1 \sim Ar_4$ が、置換または未置換の縮合多環系アリール基である請求項第 1 項に記載のアミン化合物。

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

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

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

【請求項 6】 一对の電極間に、さらに、電子注入輸送層を有する請求項 3 ~ 5 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、新規なアミン化合物に関し、また該化合物を有する有機電界発光素子に関する。

【0002】

【従来の技術】近年、各種の有機化合物が、表示材料や記録材料など、種々の機能を有する材料として盛んに開

*【化 1】

*発が進められている。

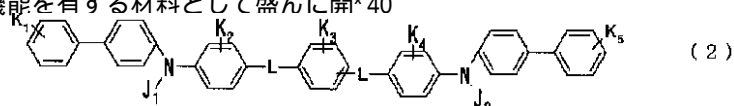
【0003】例えば、最近では、素子の構成材料に有機化合物を用いた有機電界発光素子（有機エレクトロルミネッセンス素子；有機 EL 素子）が開発された〔Appl. Phys. Lett., 51, 913 (1987)〕。有機電界発光素子は、蛍光性有機化合物を含む薄膜を、陽極と陰極の間に挟持された構造を有し、該薄膜に電子および正孔（ホール）を注入して、再結合させることにより励起子（エキシトン）を生成させ、この励起子が失活する際に放出される光を利用して発光する素子である。有機電界発光素子は、数 V ~ 数十 V 程度の直流の低電圧で発光が可能であり、また蛍光性有機化合物を選択することにより、種々の色（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、表示素子など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難点がある。さらに発光輝度が低く、実用上充分でない。

【0004】正孔注入輸送材料として、4, 4' - ビス〔N - フェニル - N - (3 - メチルフェニル) アミノ〕ビフェニルを用いることが提案されている〔Jpn. J. Appl. Phys., 27, L269 (1988)〕。しかしながら、この化合物を正孔注入輸送材料とする有機電界発光素子も、安定性、耐久性に乏しいなどの難点がある。

【0005】また、特開平 3 - 269084 号公報において、正孔注入輸送層に、 α 、 α 、 α' 、 α' - ビス（4 - ジ - パラ - トリルアミノフェニル） - パラ - キシレンを含むことを特徴とする有機薄膜 EL 素子が、特開平 5 - 105651 号公報において、感光体、エレクトロルミネッセンス素子の電荷輸送材料として使用可能な有機化合物として、一般式 (2) で表される化合物

【0006】

【化 2】



【0007】[式中、 J_1 および J_2 はそれぞれ、置換基を有してもよいアルキル基、アラルキル基、アリール基、ビフェニル基または複素環式基； K_1 、 K_2 、 K_3 、 K_4 、 K_5 はそれぞれ水素原子、アルキル基、アルコキシ基またはハロゲン原子； L は - O -、- S - または、一般式 (3) で表される基を表す。

【0008】

【化 3】

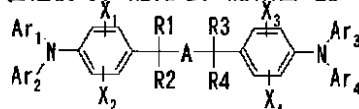


【0009】(K_6 および K_7 はそれぞれ水素原子、置換

基を有していてもよいアルキル基、またはアリール基；
n は 1 ~ 4 の整数を表す）] が開示されているが、これ
らの化合物を有機電界発光素子の正孔注入輸送層として
使用する場合、素子中の他の材料との適合性、素子の安
定性、耐久性を満足するものではない。現在では、一層
改良された有機電界発光素子が望まれており、新規な有
機材料が求められている。

【0010】

【発明が解決しようとする課題】本発明の課題は、新規
なアミン化合物を提供することにある。加えて、該化合

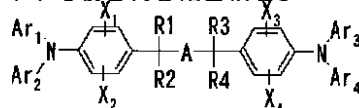


(1)

【0013】[式中、 $X_1 \sim X_4$ は、それぞれ独立に、水
素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキ
ル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、置換また
は未置換のアラルキル基、あるいは置換または未置換の
アリール基を表し、 $R_1 \sim R_4$ は、それぞれ独立に、直
鎖、分岐または環状のアルキル基、あるいは置換または
未置換のアラルキル基を表し、A は、置換または未置換
のアリーレン基を表し、 $Ar_1 \sim Ar_4$ は、それぞれ独立
に、置換または未置換のアリール基を表し、ただし、 A
 $r_1 \sim Ar_4$ の少なくとも 1 つは、置換または未置換の縮
合多環系アリール基を表す。]

一般式 (1) において、 $Ar_1 \sim Ar_4$ が、置換または
未置換の縮合多環系アリール基である請求項第 1 項に記
載のアミン化合物、

一対の電極間に、一般式 (1) で表される化合物を少



(1)

【0016】[式中、 $X_1 \sim X_4$ は、それぞれ独立に、水
素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキ
ル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、置換また
は未置換のアラルキル基、あるいは置換または未置換の
アリール基を表し、 $R_1 \sim R_4$ は、それぞれ独立に、直
鎖、分岐または環状のアルキル基、あるいは置換または
未置換のアラルキル基を表し、A は、置換または未置換
のアリーレン基を表し、 $Ar_1 \sim Ar_4$ は、それぞれ独立
に、置換または未置換のアリール基を表し、ただし、 A
 $r_1 \sim Ar_4$ の少なくとも 1 つは、置換または未置換の縮
合多環系アリール基を表す。]

【0017】なお、アリール基とは、フェニル基、縮合
多環系炭化水素の 1 価基（例えば、ナフチル基、フルオ
レニル基、アントリル基、フェナントリル基、フルオラ
ンテニル基、ピレニル基、テトラセニル基、ペリレニル
基など）、芳香族複素環系（例えば、フリル基、チエニ
ル基、ピリジル基など）、および縮合複素多環系の 1 価

*物を用いた、安定性、耐久性の改良された有機電界発
光素子を提供することにある。

【0011】

【課題を解決するための手段】本発明者等は、種々の化
合物に関して鋭意検討した結果、本発明を完成するに至
った。すなわち、本発明は、

一般式 (1) で表されるアミン化合物、

【0012】

【化 4】

*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、

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

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

一対の電極間に、さらに、電子注入輸送層を有する前
記 ~ 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。

【0014】

【発明の実施の形態】以下、本発明に関して詳細に説明
する。本発明のアミン化合物は、一般式 (1) で表され
る化合物である。

【0015】

【化 5】

基（例えば、インドリル基、カルバゾリル基、キノリル
基、イソキノリル基、ベンゾチエニル基など）を表す。
縮合多環系アリール基とは、縮合多環系炭化水素の 1 価
基、および縮合複素多環系の 1 価基を表す。また、アリ
ーレン基とは、フェニレン基、縮合多環系炭化水素の 2
価基、芳香族複素環の 2 価基、および縮合複素多環系の
2 価基を表す。

【0018】 $X_1 \sim X_4$ として、好ましくは、水素原子、
ハロゲン原子（例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原
子）、

【0019】炭素数 1 ~ 16 の直鎖、分岐または環状の
アルキル基（例えば、メチル基、エチル基、n - プロピ
ル基、イソプロピル基、n - ブチル基、イソブチル基、
sec - ブチル基、tert - ブチル基、n - ペンチル基、イ
ソペンチル基、ネオペンチル基、tert - ペンチル基、シ
クロペンチル基、n - ヘキシル基、3, 3 - ジメチルブ
チル基、シクロヘキシル基、n - ヘプチル基、シクロヘ

キシルメチル基、n - オクチル基、tert - オクチル基、2 - エチルヘキシル基、n - ノニル基、n - デシル基、n - ドデシル基、n - テトラデシル基、n - ヘキサデシル基など)、

【0020】炭素数1～16の直鎖、分岐または環状のアルコキシ基(例えば、メトキシ基、エトキシ基、n - プロポキシ基、イソプロポキシ基、n - ブトキシ基、イソブトキシ基、sec - ブトキシ基、tert - ブトキシ基、n - ペンチルオキシ基、イソペンチルオキシ基、ネオペンチルオキシ基、tert - ペンチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、n - ヘキシルオキシ基、3, 3 - ジメチルブチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、n - ヘプチルオキシ基、シクロヘキシルメトキシ基、n - オクチルオキシ基、tert - オクチルオキシ基、2 - エチルヘキシルオキシ基、n - ノニルオキシ基、n - デシルオキシ基、n - ドデシルオキシ基、n - テトラデシルオキシ基、n - ヘキサデシルオキシ基など)、

【0021】炭素数5～16の置換または未置換のアラルキル基(例えば、ベンジル基、フェネチル基、 α - メチルベンジル基、 α , α - ジメチルベンジル基、1 - ナフチルメチル基、2 - ナフチルメチル基、フルフリル基、2 - メチルベンジル基、3 - メチルベンジル基、4 - メチルベンジル基、3 - エチルベンジル基、4 - エチルベンジル基、4 - イソプロピルベンジル基、4 - n - ブチルベンジル基、4 - tert - ブチルベンジル基、4 - n - ヘキシルベンジル基、4 - n - ノニルベンジル基、2, 4 - ジメチルベンジル基、3, 4 - ジメチルベンジル基、3 - メトキシベンジル基、4 - メトキシベンジル基、4 - エトキシベンジル基、4 - n - ブトキシベンジル基、4 - n - ヘキシルオキシベンジル基、4 - n - オクチルオキシベンジル基、3, 4 - ジメトキシベンジル基、3 - フルオロベンジル基、4 - フルオロベンジル基、2 - クロロベンジル基、3 - クロロベンジル基、4 - クロロベンジル基、3, 4 - ジクロロベンジル基など)、

【0022】あるいは炭素数4～16の置換または未置換のアリール基(例えば、フェニル基、2 - メチルフェニル基、3 - メチルフェニル基、4 - メチルフェニル基、4 - エチルフェニル基、4 - n - プロピルフェニル基、4 - イソプロピルフェニル基、4 - n - ブチルフェニル基、4 - tert - ブチルフェニル基、4 - イソペンチルフェニル基、4 - tert - ペンチルフェニル基、4 - n - ヘキシルフェニル基、4 - シクロヘキシルフェニル基、4 - n - オクチルフェニル基、4 - n - デシルフェニル基、2, 3 - ジメチルフェニル基、2, 4 - ジメチルフェニル基、2, 5 - ジメチルフェニル基、2, 6 - ジメチルフェニル基、3, 4 - ジメチルフェニル基、3, 5 - ジメチルフェニル基、3, 4, 5 - トリメチルフェニル基、2, 3, 5, 6 - テトラメチルフェニル基、5 - インダニル基、1, 2, 3, 4 - テトラヒドロ

5 - ナフチル基、1, 2, 3, 4, - テトラヒドロ - 6 - ナフチル基、2 - メトキシフェニル基、3 - メトキシフェニル基、4 - メトキシフェニル基、3 - エトキシフェニル基、4 - n - プロポキシフェニル基、4 - イソプロポキシフェニル基、4 - n - ブトキシフェニル基、4 - tert - ブトキシフェニル基、4 - イソペンチルオキシフェニル基、4 - n - ヘキシルオキシフェニル基、4 - シクロヘキシルオキシフェニル基、4 - n - デシルオキシフェニル基、2, 3 - ジメトキシフェニル基、2, 4 - ジメトキシフェニル基、2, 5 - ジメトキシフェニル基、3, 4 - ジメトキシフェニル基、3, 5 - ジメトキシフェニル基、3, 5 - ジエトキシフェニル基、2 - メトキシ - 4 - メチルフェニル基、2 - メトキシ - 5 - メチルフェニル基、2 - メチル - 4 - メトキシフェニル基、3 - メトキシ - 4 - メチルフェニル基、2 - メチル - 4 - エトキシフェニル基、2 - フルオロフェニル基、3 - フルオロフェニル基、4 - フルオロフェニル基、2 - クロロフェニル基、3 - クロロフェニル基、4 - クロロフェニル基、4 - プロモフェニル基、4 - トリフルオロメチルフェニル基、2, 4 - ジフルオロフェニル基、2, 4 - ジクロロフェニル基、3, 4 - ジクロロフェニル基、3, 5 - ジクロロフェニル基、2 - メチル - 4 - クロロフェニル基、2 - クロロ - 4 - メチルフェニル基、3 - クロロ - 4 - メチルフェニル基、2 - クロロ - 4 - メトキシフェニル基、3 - メトキシ - 4 - フルオロフェニル基、3 - メトキシ - 4 - クロロフェニル基、3 - フルオロ - 4 - メトキシフェニル基、4 - フェニルフェニル基、3 - フェニルフェニル基、4 - (4' - メチルフェニル)フェニル基、4 - (4' - メトキシフェニル)フェニル基、1 - ナフチル基、2 - ナフチル基、4 - メチル - 1 - ナフチル基、4 - エトキシ - 1 - ナフチル基、6 - n - ブチル - 2 - ナフチル基、6 - tert - ブチル - 2 - ナフチル基、7 - エチル - 2 - ナフチル基、1, 6 - ジメチル - 2 - ナフチル基、5 - アセナフテニル基、6 - メトキシ - 2 - ナフチル基、6 - エトキシ - 2 - ナフチル基、6 - フルオロ - 2 - ナフチル基、6 - クロロ - 2 - ナフチル基、1 - アントリル基、2 - アントリル基、9 - アントリル基、10 - フルオロ - 9 - アントリル基、9, 10 - ジフルオロ - 1 - アントリル基、9 - メチル - 10 - アントリル基、9, 10 - ジメチル - 2 - アントリル基、9 - エトキシ - 10 - アントリル基、

【0023】2 - フルオレニル基、3 - フルオレニル基、7 - メチル - 2 - フルオレニル基、9 - メチル - 2 - フルオレニル基、9 - エチル - 2 - フルオレニル基、9, 9 - ジメチル - 2 - フルオレニル基、7 - フルオロ - 2 - フルオレニル基、3 - フリル基、2 - チエニル基、3 - チエニル基、2 - ピリジル基、3 - ピリジル基、4 - ピリジル基、5 - クロロ - 2 - ピリジル基、5 - インドリル基、3 - キノリル基、8 - キノリル基、4

- イソキノリル基、5 - イソキノリル基、5 - インドリル基、3 - カルバゾリル基、N - エチル - 3 - カルバゾリル基など) が挙げられる。

【0024】より好ましくは、水素原子、フッ素原子、塩素原子、炭素数 1 ~ 10 の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数 1 ~ 10 の直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、炭素数 7 ~ 13 の置換または未置換のアラルキル基、炭素数 6 ~ 12 の置換または未置換のアリール基であり、さらに好ましくは、水素原子、フッ素原子、塩素原子、炭素数 1 ~ 6 の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数 1 ~ 6 の直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、炭素数 7 ~ 11 の置換または未置換のアラルキル基、炭素数 6 ~ 10 の置換または未置換のアリール基であり、特に好ましくは、水素原子、フッ素原子、塩素原子、炭素数 1 ~ 4 の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数 1 ~ 4 の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数 7 ~ 11 のアラルキル基、炭素数 6 ~ 10 のアリール基である。

【0025】R1 ~ R4 は、それぞれ独立に、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ラルキル基を表し、好ましくは、炭素数 1 ~ 8 の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数 5 ~ 16 の置換または未置換のアラルキル基であり、さらに好ましくは、炭素数 1 ~ 6 の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数 7 ~ 11 の置換または未置換のアラルキル基であり、特に好ましくは、炭素数 1 ~ 4 の直鎖または分岐のアルキル基である。

【0026】R1 ~ R4 の直鎖、分岐または環状のアルキル基、および置換または未置換のアラルキル基の具体的例としては、例えば、X₁ ~ X₄ の具体的例として挙げた、直鎖、分岐または環状のアルキル基、および置換または未置換のアラルキル基の具体的例を例示することができる。

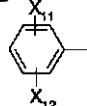
【0027】A は置換または未置換のアリーレン基を表し、好ましくは、置換または未置換のフェニレン基、あるいは置換または未置換のナフチレン基であり、より好ましくは、置換または未置換の 1, 3 - フェニレン基、置換または未置換の 1, 4 - フェニレン基、置換または未置換の 1, 5 - フェニレン基、あるいは置換または未置換の 2, 6 - ナフチレン基であり、さらに好ましくは置換または未置換の 1, 3 - フェニレン基、あるいは置換または未置換の 1, 4 - フェニレン基であり、特に好ましくは、未置換の 1, 3 - フェニレン基、あるいは未置換の 1, 4 - フェニレン基である。

【0028】Ar₁ ~ Ar₄ は、置換または未置換のアリール基を表し、好ましくは、置換または未置換のフェニル基、置換または未置換のナフチル基、置換または未置換のフルオレニル基、置換または未置換のアントリル基、あるいは置換または未置換のフェナントリル基であ

*り、より好ましくは、置換または未置換のフェニル基、置換または未置換の 1 - ナフチル基、置換または未置換の 2 - ナフチル基、置換または未置換の 2 - フルオレニル基、あるいは置換または未置換の 9 - フェナントリル基であり、さらに好ましくは、一般式 (4 - a) ~ 一般式 (4 - e) で表される基である。

【0029】

【化 6】

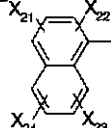


(4 - a)

【0030】(式中、X₁₁ および X₁₂ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、置換または未置換のアラルキル基、あるいは置換または未置換のアリール基を表す。)

【0031】

【化 7】

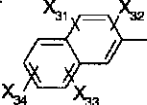


(4 - b)

【0032】(式中、X₂₁ ~ X₂₄ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、置換または未置換のアラルキル基、あるいは置換または未置換のアリール基を表す。)

【0033】

【化 8】

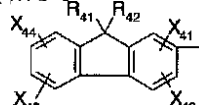


(4 - c)

【0034】(式中、X₃₁ ~ X₃₄ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、置換または未置換のアラルキル基、あるいは置換または未置換のアリール基を表す。)

【0035】

【化 9】



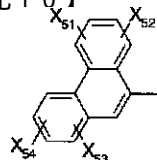
(4 - d)

【0036】(式中、R₄₁ および R₄₂ は、それぞれ独立に、水素原子、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ラルキル基を表し、X₄₁ ~ X₄₄ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、直

鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、置換または未置換のアラルキル基、あるいは置換または未置換のアリール基を表す。)

【0037】

【化10】



(4-e)

【0038】(式中、 $X_{51} \sim X_{54}$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、置換または未置換のアラルキル基、あるいは置換または未置換のアリール基を表す。)

【0039】 $Ar_1 \sim Ar_4$ の内、少なくとも1つは縮合多環アリール基であり、好ましくは、置換または未置換のナフチル基、置換または未置換のフルオレニル基、置換または未置換のアントリル基、あるいは置換または未置換のフェナントリル基であり、より好ましくは、置換または未置換の1-ナフチル基、置換または未置換の2-ナフチル基、置換または未置換の2-フルオレニル基、あるいは置換または未置換の9-フェナントリル基であり、さらに好ましくは、一般式(4-b)~一般式(4-e)で表される基であり、 $Ar_1 \sim Ar_4$ の内、縮合多環アリール基である数は、少なくとも1つであり、2つ以上がより好ましく、4つ全てが縮合多環アリール基であることが特に好ましい。

【0040】一般式(4-a)~一般式(4-e)で表される基において、 X_{11} 、 X_{12} 、 X_{21} 、 X_{22} 、 X_{23} 、 X_{24} 、 X_{31} 、 X_{32} 、 X_{33} 、 X_{34} 、 X_{41} 、 X_{42} 、 X_{43} 、 X_{44} 、 X_{51} 、 X_{52} 、 X_{53} および X_{54} (以下 $X_{11} \sim X_{54}$ と略す。)は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、置換または未置換のアラルキル基、あるいは置換または未置換のアリール基を表し、好ましくは、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1~16の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数1~16の直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、炭素数5~21の置換または未置換のアラルキル基、あるいは炭素数4~20の置換または未置換のアリール基であり、より好ましくは、水素原子、フッ素原子、塩素原子、炭素数

1~10の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数1~10の直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、炭素数7~13の置換または未置換のアラルキル基、あるいは炭素数6~12の置換または未置換のアリール基であり、さらに好ましくは、水素原子、フッ素原子、塩素原子、炭素数1~4の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数1~4の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数7~11のアラルキル基、あるいは炭素数6~10のアリール基である。

10 【0041】 $X_{11} \sim X_{54}$ のハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、置換または未置換のアラルキル基、および置換または未置換のアリール基の具体的例としては、例えば、 $X_1 \sim X_4$ の具体的例として挙げたハロゲン原子、直鎖、分岐または環状のアルキル基、直鎖、分岐または環状のアルコキシ基、置換または未置換のアラルキル基、および置換または未置換のアリール基の具体的例を例示することができる。

【0042】一般式(4-d)で表される基において、 R_{41} および R_{42} は、それぞれ独立に、水素原子、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ラルキル基を表し、好ましくは、水素原子、炭素数1~8の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数5~16の置換または未置換のアラルキル基であり、さらに好ましくは、水素原子、炭素数1~6の直鎖、分岐または環状のアルキル基、炭素数7~11の置換または未置換のアラルキル基であり、特に好ましくは、水素原子、炭素数1~4の直鎖または分岐のアルキル基である。

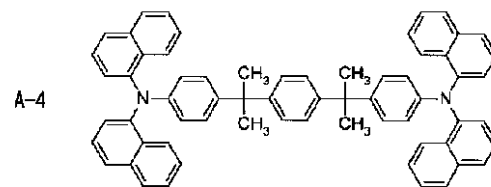
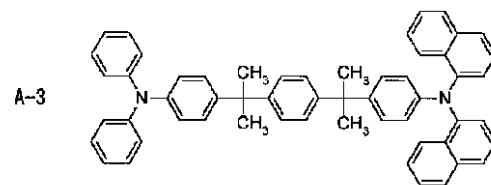
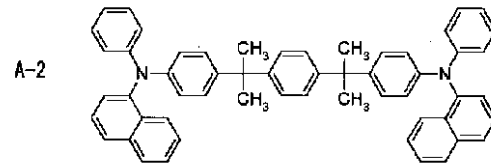
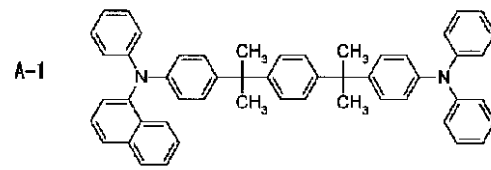
【0043】 R_{41} および R_{42} の直鎖、分岐または環状のアルキル基、および置換または未置換のアラルキル基の具体的例としては、例えば、 $X_1 \sim X_4$ の具体的例として挙げた、直鎖、分岐または環状のアルキル基、および置換または未置換のアラルキル基の具体的例を例示することができる。

【0044】本発明に係る一般式(1)で表される化合物の具体例としては、例えば、以下の化合物を挙げることができるが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0045】

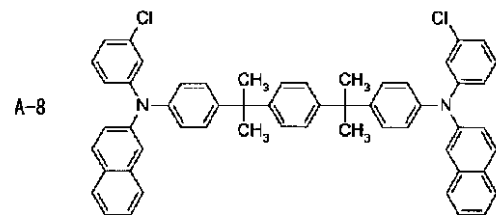
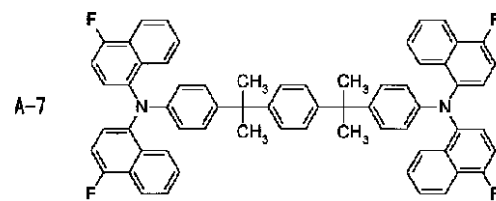
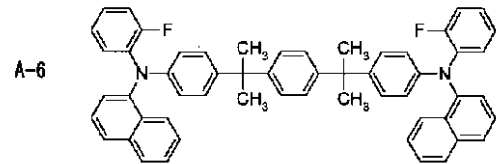
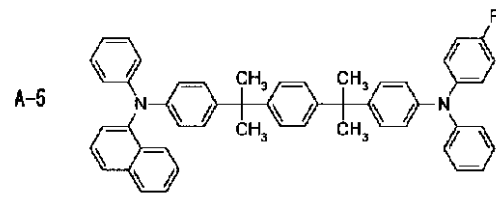
【化11】

例示化合物番号



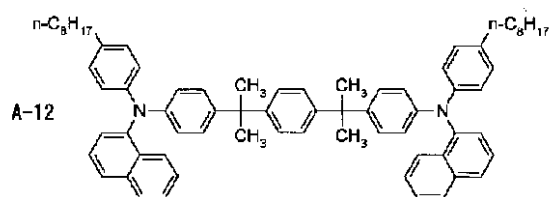
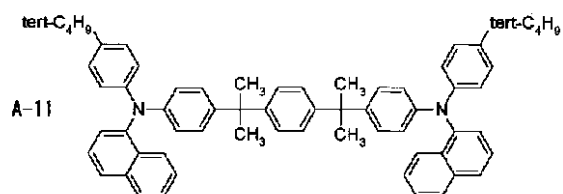
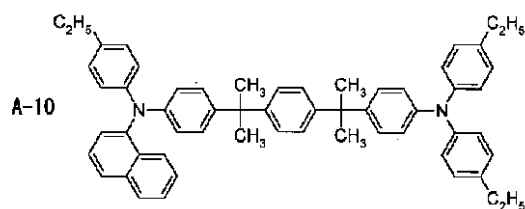
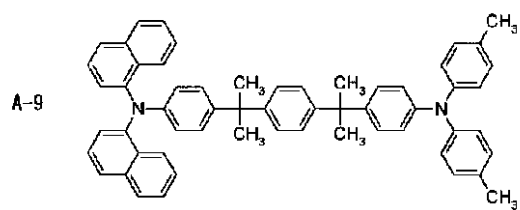
【 0 0 4 6 】

例示化合物番号



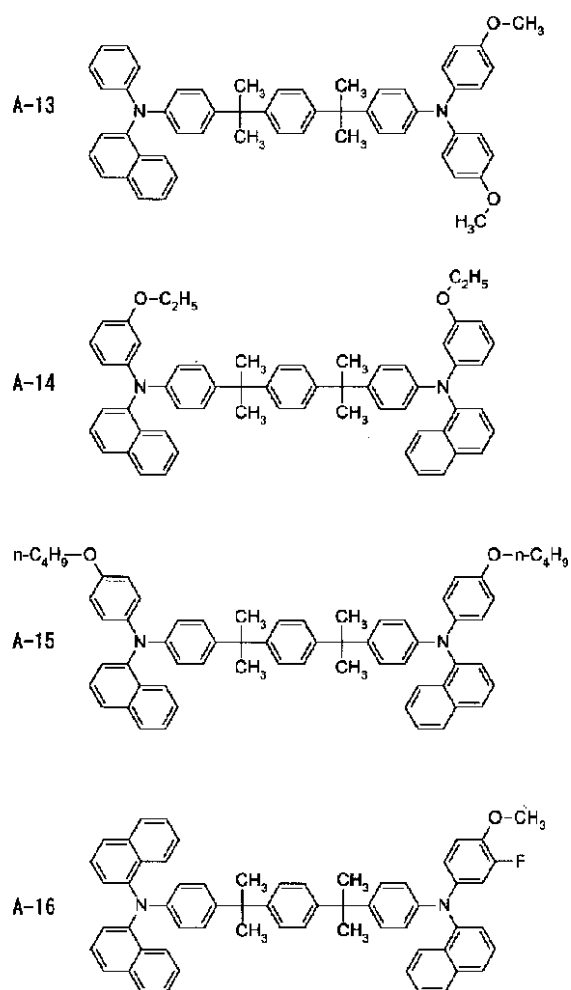
【 0 0 4 7 】

例示化合物番号



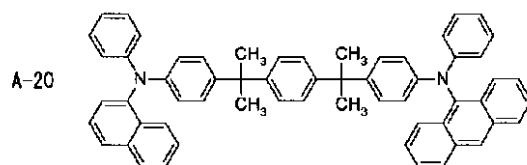
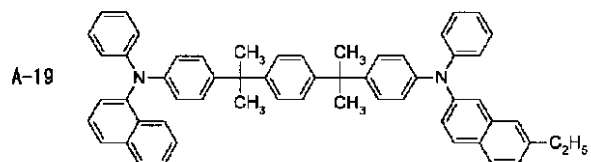
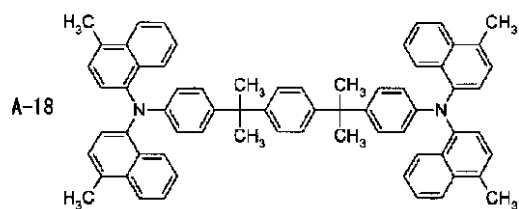
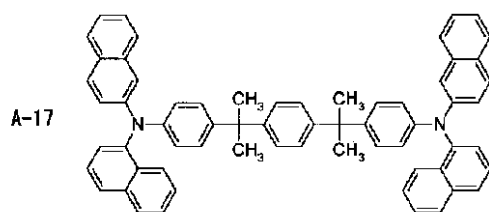
【 0 0 4 8 】

例示化合物番号



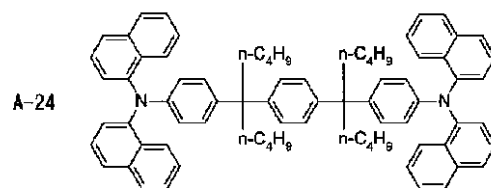
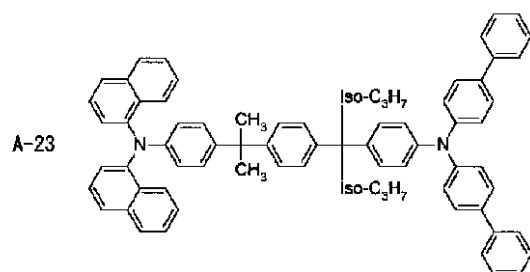
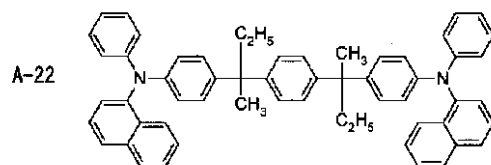
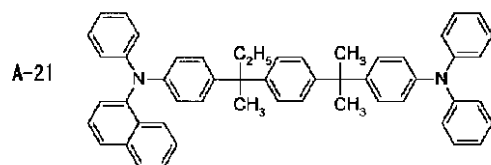
【 0 0 4 9 】

例示化合物番号

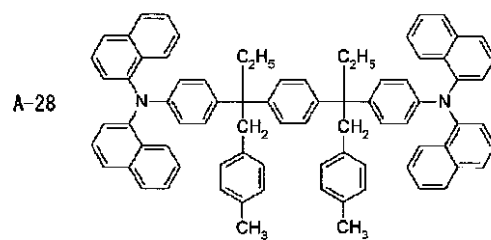
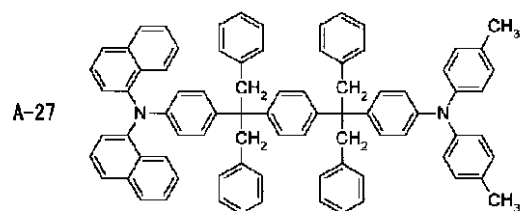
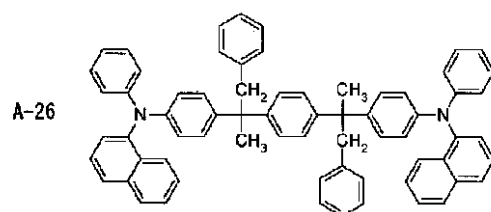
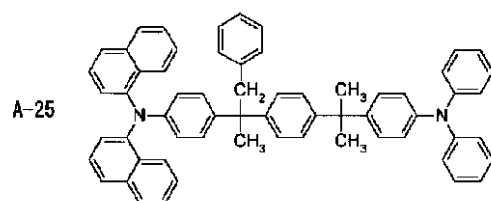


【 0 0 5 0 】

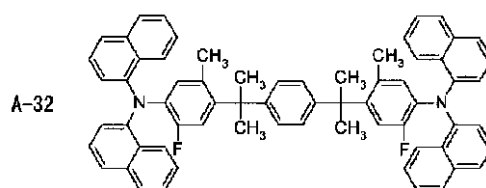
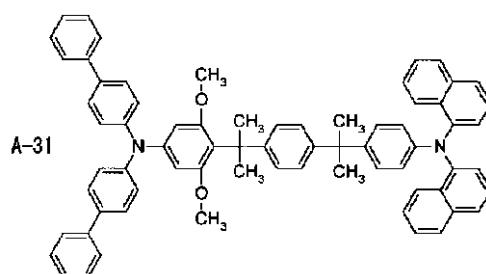
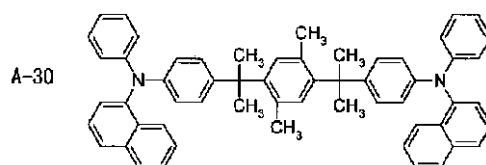
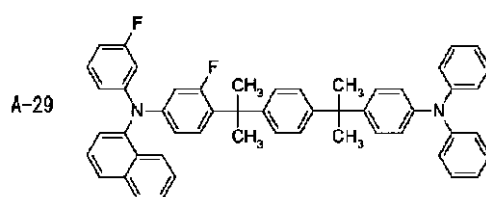
例示化合物番号



【 0 0 5 1 】

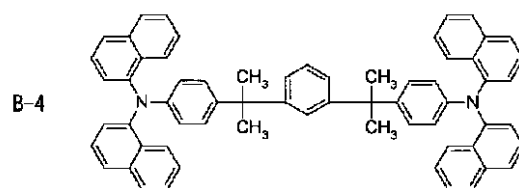
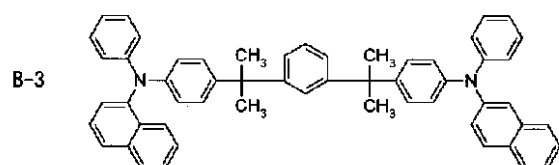
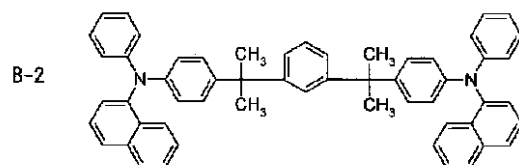
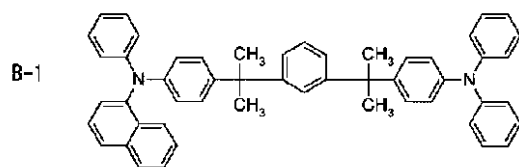


例示化合物番号



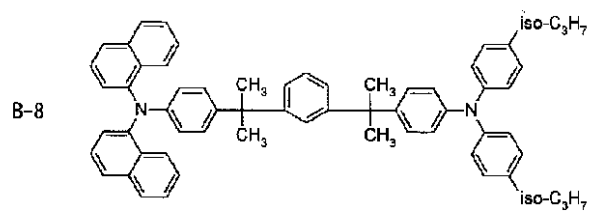
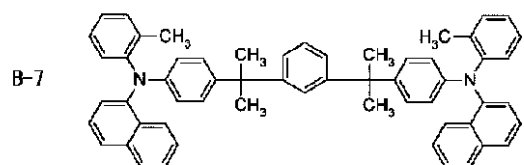
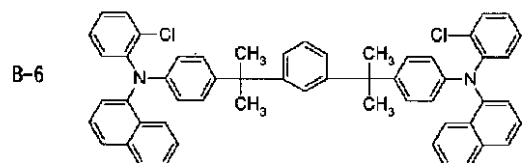
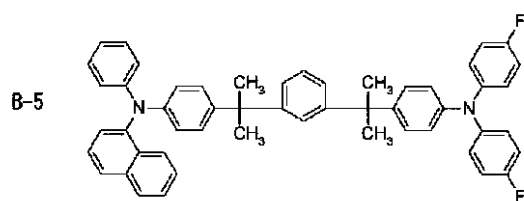
【 0 0 5 3 】

例示化合物番号



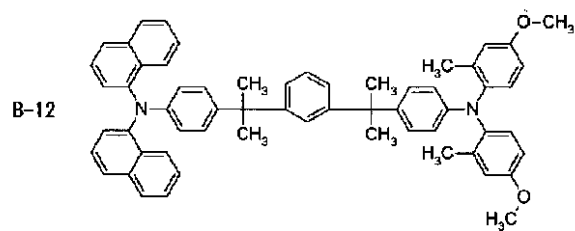
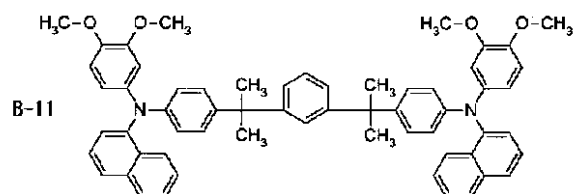
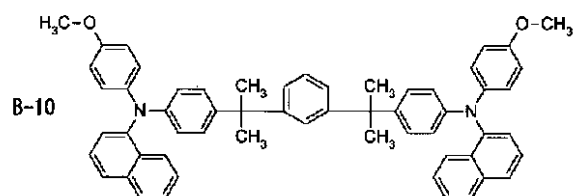
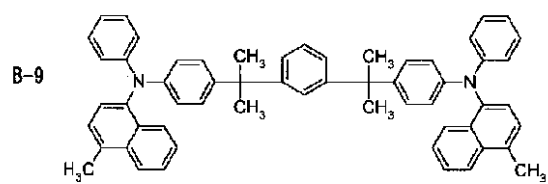
【 0 0 5 4 】

例示化合物番号



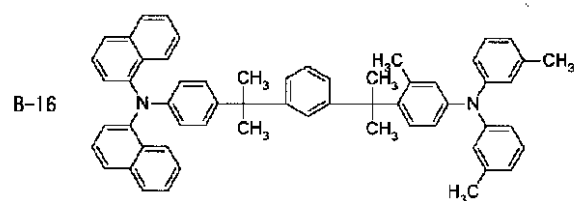
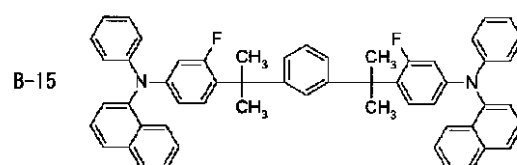
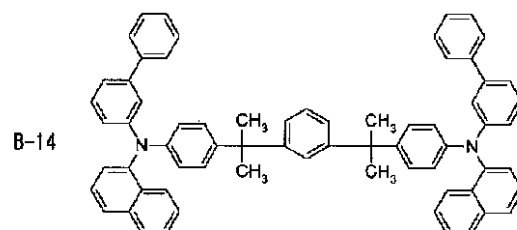
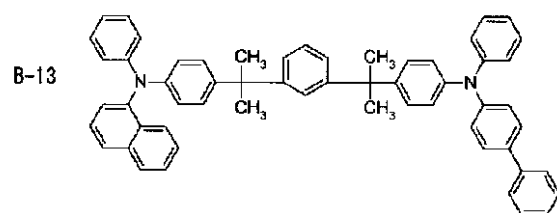
【 0 0 5 5 】

例示化合物番号



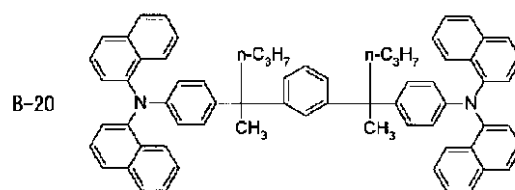
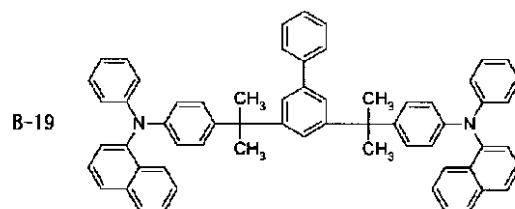
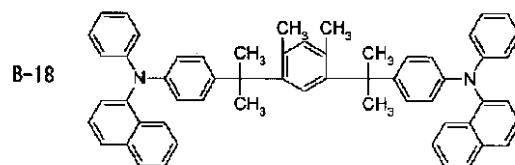
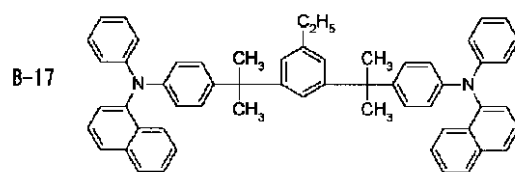
【 0 0 5 6 】

例示化合物番号



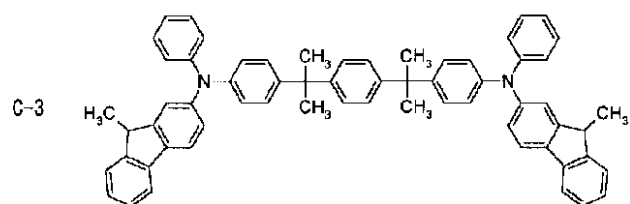
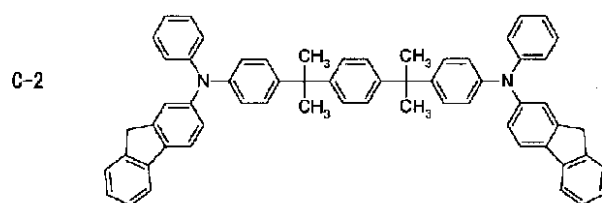
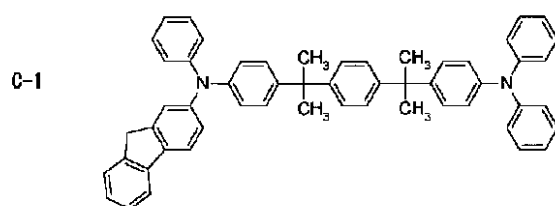
【 0 0 5 7 】

例示化合物番号



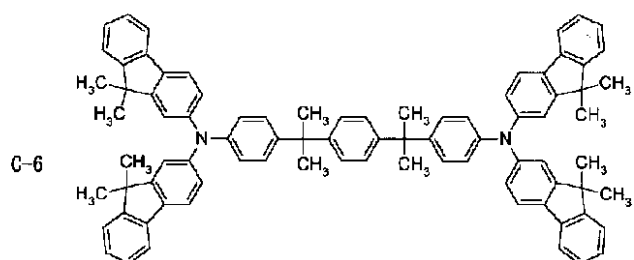
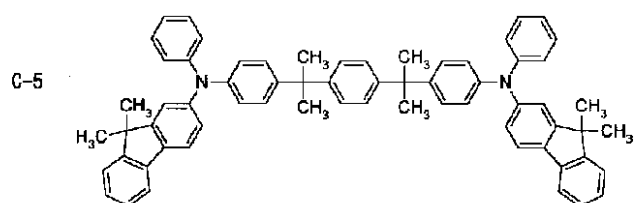
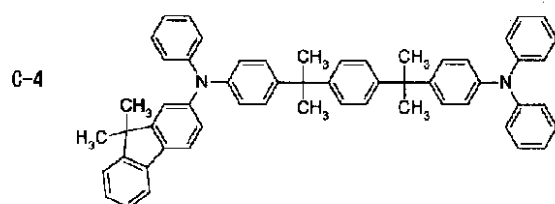
【 0 0 5 8 】

例示化合物番号



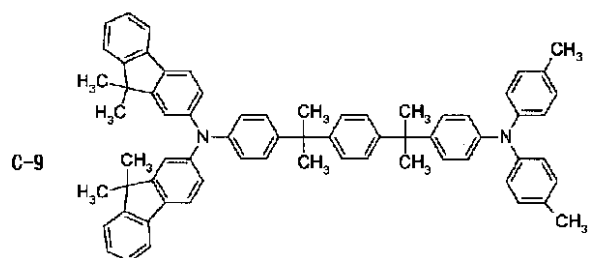
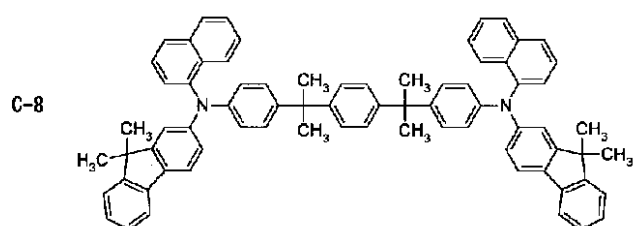
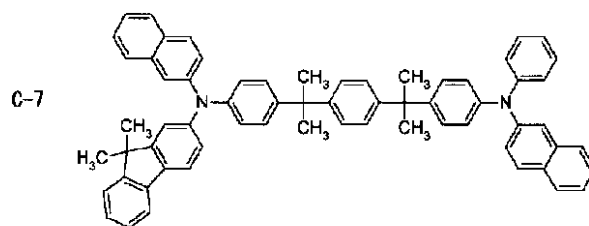
【 0 0 5 9 】

例示化合物番号



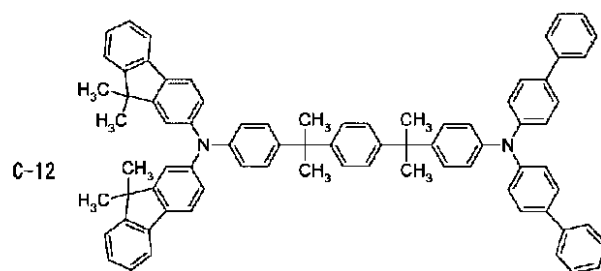
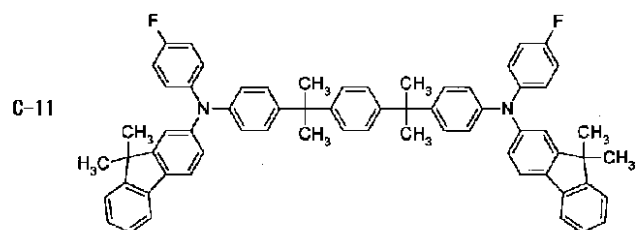
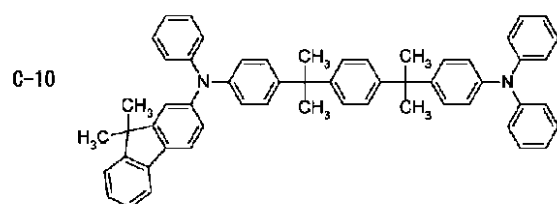
【 0 0 6 0 】

例示化合物番号

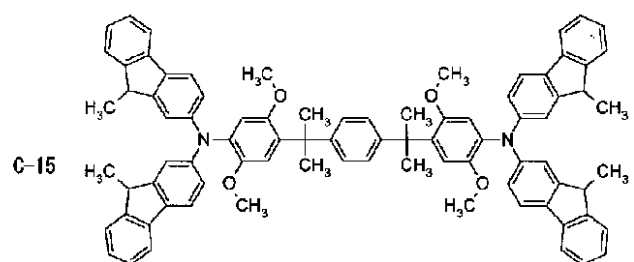
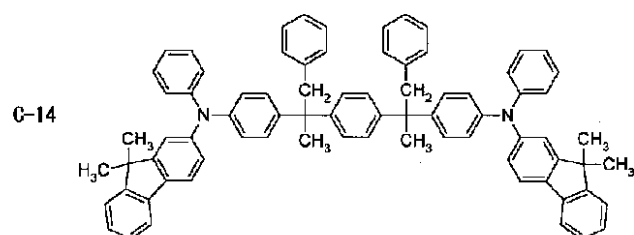
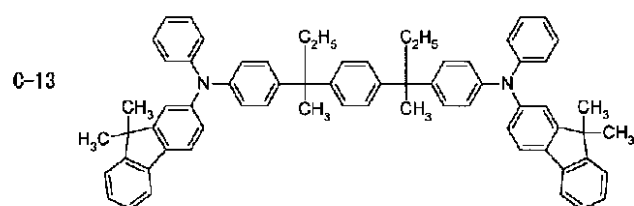


【 0 0 6 1 】

例示化合物番号

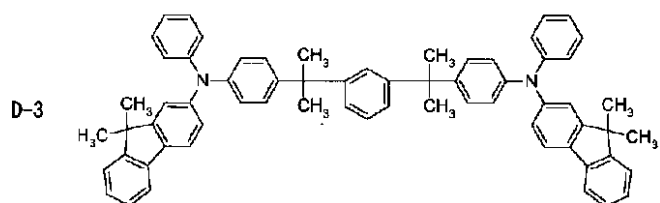
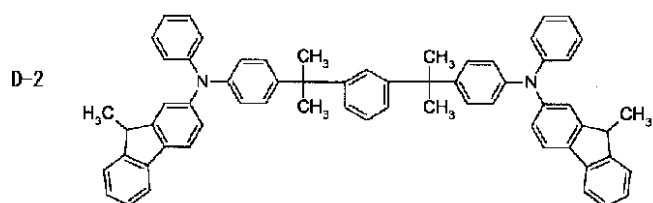
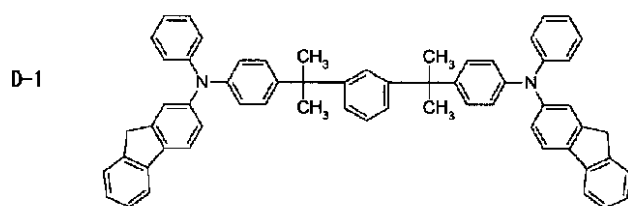


【 0 0 6 2 】



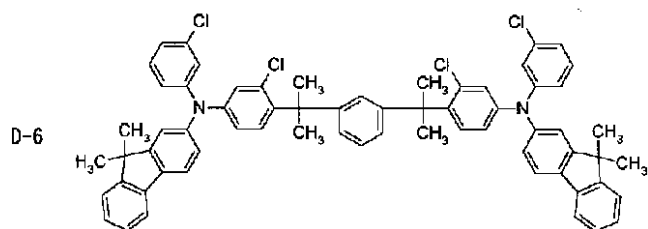
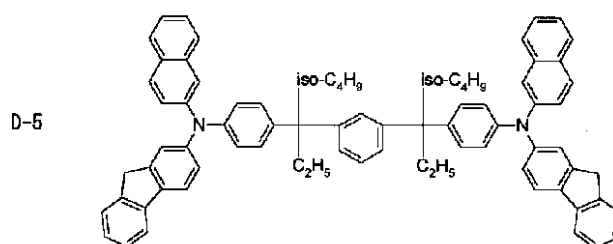
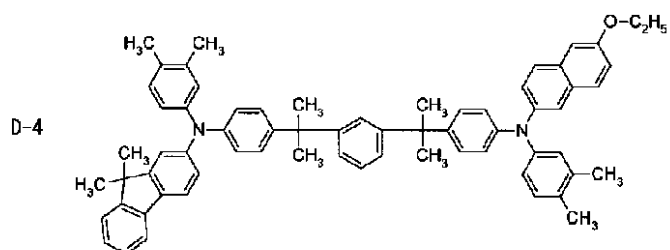
【 0 0 6 3 】

例示化合物番号



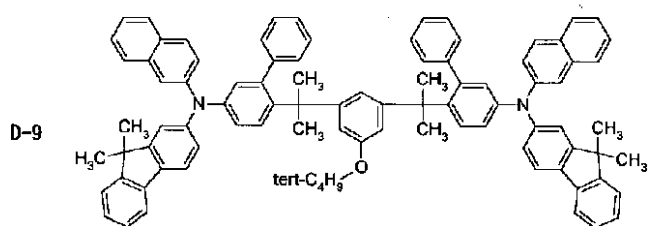
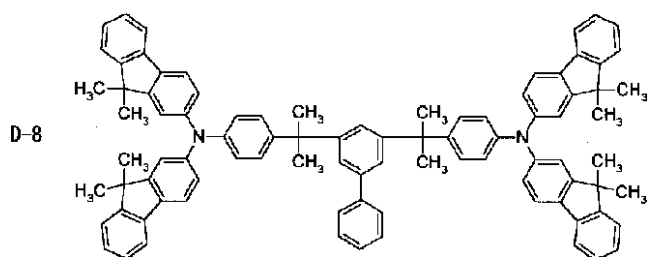
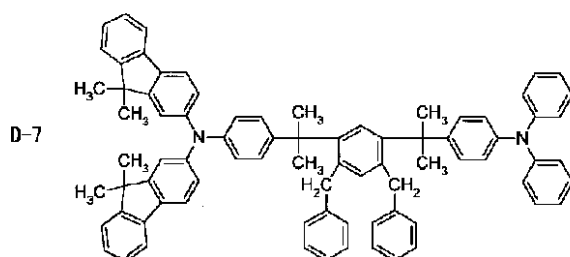
【 0 0 6 4 】

例示化合物番号



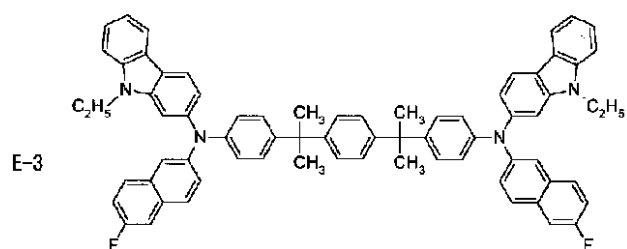
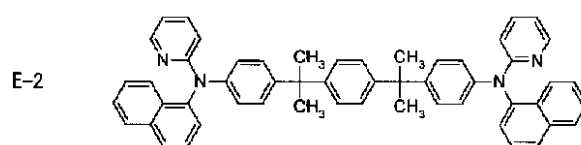
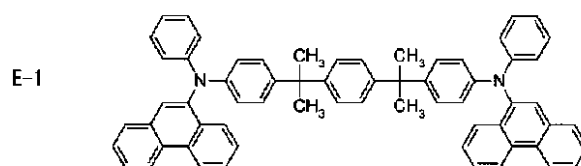
【 0 0 6 5 】

例示化合物番号



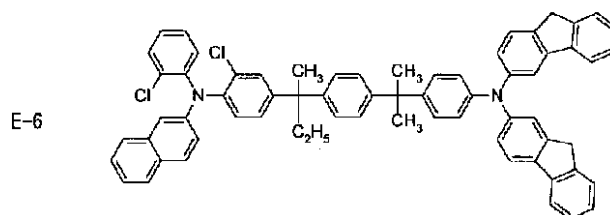
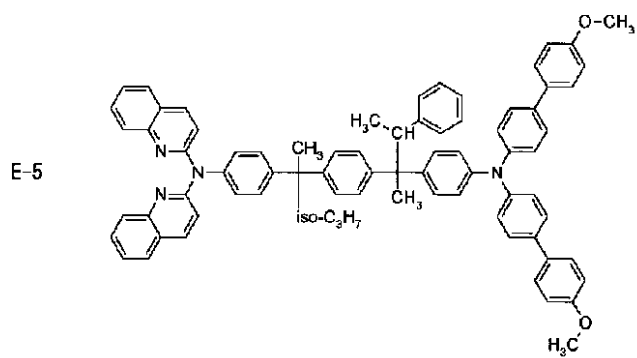
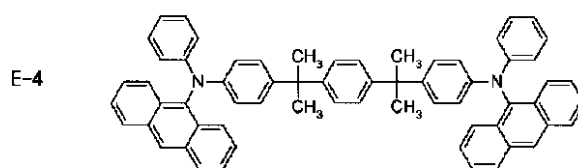
【 0 0 6 6 】

例示化合物番号



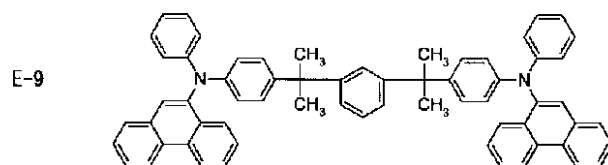
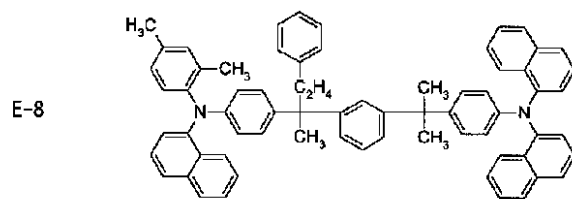
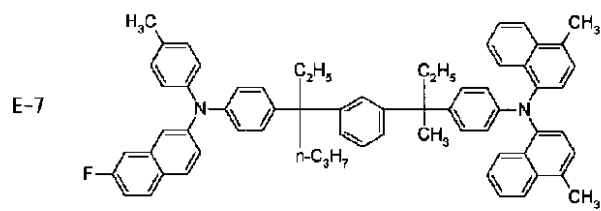
【 0 0 6 7 】

例示化合物番号



【 0 0 6 8 】

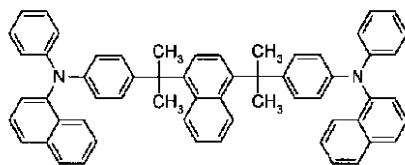
例示化合物番号



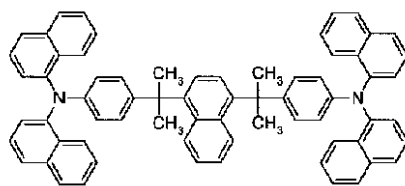
【 0 0 6 9 】

例示化合物番号

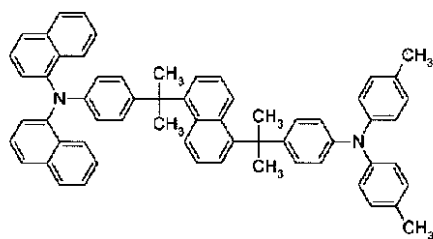
E-10



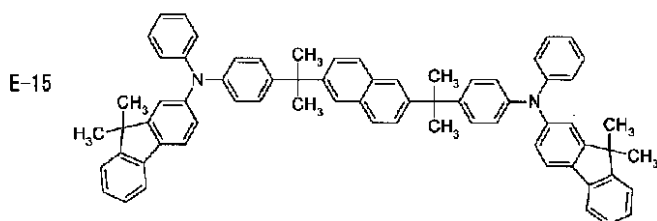
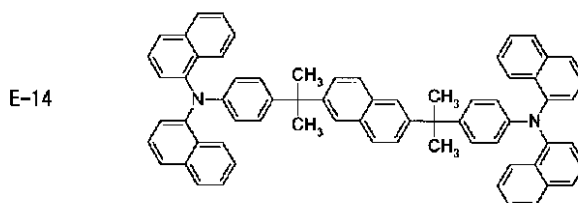
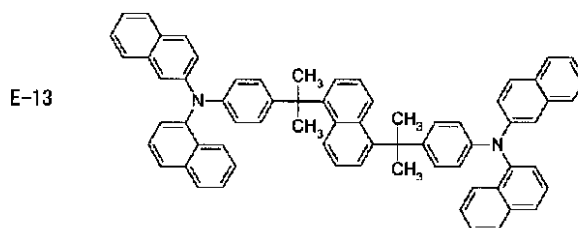
E-11



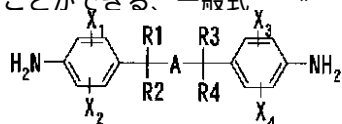
E-12



【 0 0 7 0 】



【0071】本発明に係る一般式(1)で表される化合物は、それ自体公知の方法により、製造することができる。すなわち、例えば、特開昭64-44号公報などに記載の方法に準じて製造することができる、一般式*



* (5) で表される化合物と、

【0072】

【化12】

(5)

【0073】[式中、 $X_1 \sim X_4$ 、 $R_1 \sim R_4$ およびAは、一般式(1)と同じ意味を表す。]一般式(6-a) ~ (6-d)で表される化合物とを、

【0074】

【化13】

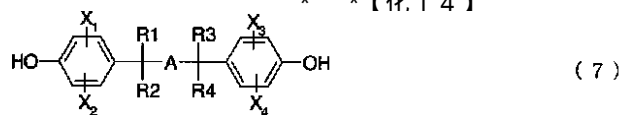


【0075】[式中、 $Ar_1 \sim Ar_4$ は一般式(1)と同じ意味を表し、Xは塩素原子、臭素原子、あるいはヨウ

素原子を表す。]銅触媒存在下、順次ウルマン反応することにより、製造することができる。また、例えば、一般式(5)で表される化合物のアミノ基を無水酢酸などでアセチル化した後、一般式(6-a)、(6-c)で表される化合物と、銅触媒存在下、順次ウルマン反応した後、アルカリまたは酸で脱アセチル化を行い、さらに、一般式(6-b)、(6-d)で表される化合物と、銅触媒存在下、順次ウルマン反応を行うことによっても製造することができる。

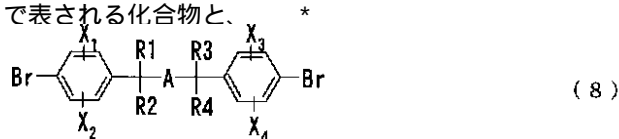
【0076】あるいは、例えば、特開2001-58968号公報などに記載の方法に準じて製造することができる、一般式(7)で表される化合物から、

【0077】



【0078】[式中、 $X_1 \sim X_4$ 、 $R_1 \sim R_4$ およびAは、一般式(1)と同じ意味を表す。]公知の方法に準じて得られる、一般式(8)で表される化合物と、

* 【0079】
【化15】



【0080】[式中、 $X_1 \sim X_4$ 、 $R_1 \sim R_4$ およびAは、一般式(1)と同じ意味を表す。]一般式(9-a) ~ (9-b)で表されるアミン化合物を、銅触媒存在下、順次ウルマン反応を行うことにより製造することができる。

【0081】

【化16】



【0082】[式中、 $Ar_1 \sim Ar_4$ は、一般式(1)と同じ意味を表す。]一般式(1)で表される化合物は、有機電界発光素子の正孔注入輸送成分および/または発光成分として使用する事ができ、また、電子写真感光体の電荷輸送材料として使用することもできる。

【0083】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層を、少なくとも1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及び正孔輸送、電子注入及び電子輸送の各機能レベルを考慮し、所望に応じて、正孔注入輸送成分を含有する正孔注入輸送層および/または電子注入輸送成分を含有する電子注入輸送層を設けることができる。

【0084】例えば、発光層に使用する化合物の正孔注入機能、正孔輸送機能および/または電子注入機能、電子輸送機能が良好な場合には、発光層が正孔注入輸送層および/または電子注入輸送層を兼ねた型の素子の構成とすることができる。勿論、場合によっては、正孔注入輸送層および電子注入輸送層の両方の層を設けない型の素子構成(一層型の素子)とすることもできる。

【0085】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。

【0086】本発明の有機電界発光素子において、本発明に係る一般式(1)で表される化合物は、正孔注入輸送成分、発光成分、電子注入輸送成分に用いることが好ましく、正孔注入輸送成分、発光成分に用いることがより好ましく、正孔注入輸送成分に用いることが特に好ましい。

【0087】本発明の有機電界発光素子においては、本発明に係る一般式(1)で表される化合物は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0088】本発明の有機電界発光素子の構成としては、特に限定するものではなく、例えば、(A)陽極/正孔注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子(図1)、(B)陽極/正孔注入輸送層/発光層/陰極型素子(図2)、(C)陽極/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子(図3)、(D)陽極/発光層/陰極型素子(図4)などを挙げることができる。さらには、発光層を電子注入輸送層で挟み込んだ型の素子である、

(E)陽極/正孔注入輸送層/電子注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子(図5)とすることもできる。(D)型の素子構成としては、発光成分を1層形態で1対の電極に挟持させた型の素子は勿論であるが、さらには、例えば、(F)正孔注入輸送成分、発光成分および電子注入輸送成分を混合させた1層形態で1対の電極間に挟持させた型の素子(図6)、(G)正孔注入輸送成分および発光成分を混合させた1層形態で1対の電極間に挟持させた型の素子(図7)、(H)発光成分および電子注入輸送成分を混合させた1層形態で1対の電極間に挟持させた型の素子(図8)がある。

【0089】本発明の有機電界発光素子においては、これらの素子構成に限るものではなく、それぞれの型の素子において、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層を複数設けたりすることができる。また、それぞれの型の素子において、正孔注入輸送層と発光層の間に、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。

【0090】より好ましい有機電界発光素子の構成は、

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

【0091】本発明の有機電界発光素子としては、例えば、(図1)に示す(A)陽極/正孔注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極について説明する。

【0092】(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。

【0093】本発明の有機電界発光素子は、基板1に支持されていることが好ましく、基板としては、特に限定するものではないが、透明ないし半透明であることが好ましく、例えば、ガラス板、透明プラスチックシート(例えば、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリスルホン、ポリメチルメタクリレート、ポリプロピレン、ポリエチレンなどのシート)、半透明プラスチックシート、石英、透明セラミックスあるいはこれらを組み合わせた複合シートからなるものを挙げることができる。さらに、基板に、例えば、カラーフィルター膜、色変換膜、誘電体反射膜を組み合わせ、発光色をコントロールすることもできる。

【0094】陽極2としては、比較的工作関数の大きい金属、合金、または電気伝導性化合物を電極物質とすることが好ましい。

【0095】陽極に使用する電極物質としては、例えば、金、白金、銀、銅、コバルト、ニッケル、パラジウム、バナジウム、タングステン、酸化錫、酸化亜鉛、ITO(インジウム・ティン・オキシド)、ポリチオフェン、ポリピロールなどを挙げることができる。これらの電極物質は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0096】陽極は、これらの電極物質を、例えば、蒸着法、スパッタリング法等の方法により、基板の上に形成することができる。また、陽極は、1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。

【0097】陽極のシート電気抵抗は、好ましくは数百 Ω/m^2 以下、より好ましくは5~500 Ω/m^2 程度に設定する。陽極の厚みは、使用する電極材料にもよるが、一般に、5~1000nm程度、より好ましくは、10~500nm程度に設定する。

【0098】正孔注入輸送層3は、陽極から正孔(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。

【0099】正孔注入輸送層は、本発明に係る一般式(1)で表される化合物および/または他の正孔注入輸送機能を有する化合物(例えば、フタロシアニン誘導体、トリアリールメタン誘導体、トリアリールアミン誘導体、オキサゾール誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチル

ベン誘導体、ピラゾリン誘導体、ポリシラン誘導体、pリフェニレンピニレンおよびその誘導体、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリN-ビニルカルバゾール誘導体などを少なくとも1種用いて形成することができる。

【0100】なお、正孔注入輸送機能を有する化合物は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0101】本発明において用いる他の正孔注入輸送機能を有する化合物としては、トリアリールアミン誘導体(例えば、4,4'-ビス[N-フェニル-N-(4"-メチルフェニル)アミノ]ビフェニル、4,4'-ビス[N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ]ビフェニル、4,4'-ビス[N-フェニル-N-(3"-メトキシフェニル)アミノ]ビフェニル、4,4'-ビス[N-フェニル-N-(1"-ナフチル)アミノ]ビフェニル、3,3'-ジメチル-4,4'-ビス[N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ]ビフェニル、1,1'-ビス[4'-[N,N-ジ(4"-メチルフェニル)アミノ]フェニル]シクロヘキサン、9,10-ビス[N-(4'-メチルフェニル)-N-(4"-n-ブチルフェニル)アミノ]フェナントレン、3,8-ビス(N,N-ジフェニルアミノ)-6-フェニルフェナントリジン、4-メチル-N,N'-ビス[4",4"'-ビス[N',N'-ジ(4-メチルフェニル)アミノ]ビフェニル-4-イル]アニリン、N,N'-ビス[4-(ジフェニルアミノ)フェニル]-N,N'-ジフェニル-1,3-ジアミノベンゼン、N,N'-ビス[4-(ジフェニルアミノ)フェニル]-N,N'-ジフェニル-1,4-ジアミノベンゼン、5,5"-ビス[4-[ビス(4-メチルフェニル)アミノ]フェニル]-2,2':5',2"-ターチオフェン、1,3,5-トリス(ジフェニルアミノ)ベンゼン、4,4',4"-トリス(N-カルバゾリル)トリフェニルアミン、4,4',4"-トリス[N-(3"-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン、1,3,5-トリス[N-(4'-ジフェニルアミノフェニル)フェニルアミノ]ベンゼンなど)、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリ-N-ビニルカルバゾール誘導体がより好ましい。

【0102】本発明の有機電界発光素子においては、正孔注入輸送層に一般式(1)で表される化合物を含有していることが好ましい。

【0103】一般式(1)で表される化合物と他の正孔注入輸送機能を有する化合物を併用する場合、正孔注入輸送層中に占める一般式(1)で表される化合物の割合は、好ましくは、0.001~99.999重量%程度、より好ましくは、0.01~99.99重量%程度、さらに好ましくは、0.1~99.9重量%程度に

調製する。

【0104】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。

【0105】発光層は、一般式(1)で表される化合物および/または他の発光機能を有する蛍光性化合物(例えば、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〔例えば、ルブレン、アントラセン、テトラセン、ピレン、ペリレン、クリセン、デカシクレン、コロネン、テトラフェニルシクロペンタジエン、ペンタフェニルシクロペンタジエン、9,10-ジフェニルアントラセン、9,10-ビス(フェニルエチニル)アントラセン、1,4-ビス(9'-エチニルアントラセニル)ベンゼン、4,4'-ビス(9"-エチニルアントラセニル)ビフェニル〕、トリアリールアミン誘導体〔例えば、正孔注入輸送機能を有する化合物として前述した化合物を挙げることができる〕、有機金属錯体〔例えば、トリス(8-キノリラート)アルミニウム、ビス(10-ベンゾ[h]キノリラート)ベリリウム、2-(2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾオキサゾールの亜鉛塩、4-ヒドロキシアクリジンの亜鉛塩〕、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〕、クマリン誘導体〔例えば、クマリン1、クマリン6、クマリン7、クマリン30、クマリン106、クマリン138、クマリン151、クマリン152、クマリン153、クマリン307、クマリン311、クマリン314、クマリン334、クマリン338、クマリン343、クマリン500〕、ピラン誘導体〔例えば、DCM1、DCM2〕、オキサゾン誘導体〔例えば、ナイルレッド〕、ベンゾチアゾール誘導体、ベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ピラジン誘導体、ケイ皮酸エステル誘導体、ポリ-N-ビニルカルバゾールおよびその誘導体、ポリフェ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など)を少なくとも1種用いて形成することができる。

【0106】本発明の有機電界発光素子においては、発光層に一般式(1)で表される化合物を含有していることが好ましい。

【0107】本発明において、一般式(1)で表される化合物と他の発光機能を有する化合物を併用する場合、発光層中に占める一般式(1)で表される化合物の割合は、好ましくは、0.1重量%以上、より好ましくは、0.1~40重量%程度に調整する。

【0108】本発明において用いる他の発光機能を有する化合物としては、多環芳香族化合物、あるいはトリアリールアミン誘導体がより好ましい。例えば、J. A. p

pl. Phys., 65, 3610(1989)、特開平6-9953号公報に記載のように、発光層をホスト化合物とゲスト化合物(ドーパント)とより構成することもできる。

【0109】一般式(1)で表される化合物を、ホスト化合物として用いて発光層を形成する場合、ゲスト化合物としては、多環芳香族化合物、あるいはトリアリールアミン誘導体が好ましい。

【0110】この場合、一般式(1)で表される化合物に対して、多環芳香族化合物、あるいはトリアリールアミン誘導体を、好ましくは、0.001~40重量%程度、より好ましくは、0.01~30重量%、特に好ましくは0.1~10重量%程度使用する。

【0111】電子注入輸送層5は、陰極からの電子の注入を容易にする機能、そして注入された電子を輸送する機能を有する化合物を含有する層である。電子注入輸送層は、一般式(1)で表される化合物および/または他の電子注入輸送機能を有する化合物(例えば、有機金属錯体〔例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(10-ベンゾ[h]キノリノラート)ベリリウム〕、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)を少なくとも1種用いて形成することができる。

【0112】陰極6としては、比較的工作関数の小さい金属、合金または電気伝導性化合物を電極物質として使用することが好ましい。陰極に使用する電極物質としては、例えば、リチウム、リチウム-インジウム合金、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、カルシウム、マグネシウム、マグネシウム-銀合金、マグネシウム-インジウム合金、インジウム、ルテニウム、チタニウム、マンガン、イットリウム、アルミニウム、アルミニウム-リチウム合金、アルミニウム-カルシウム合金、アルミニウム-マグネシウム合金、グラファイト薄膜などを挙げることができる。これらの電極物質は単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0113】陰極は、これらの電極物質を、例えば、蒸着法、スパッタリング法、イオン化蒸着法、イオンプレーティング法、クラスターイオンビーム法などの方法により、電子注入輸送層の上に形成することができる。また、陰極は1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。なお、陰極のシート電気抵抗は、数百 Ω/m^2 以下に設定することが好ましい。陰極の厚みは使用する電極物質の材料にもよるが、一般に、5~1000nm程度、より好ましくは、10~500nm程度に設定する。

【0114】なお、有機電界発光素子の発光を効率よく取り出すために陽極または陰極の少なくとも一方の電極

が、透明ないし半透明であることが好ましく、一般に、発光光の透過率が 70% 以上となるように陽極の材料、厚みを設定することがより好ましい。また、本発明の有機電界発光素子においては、その少なくとも 1 層中に、一重項酸素クエンチャーが含有されていてもよい。

【0115】一重項酸素クエンチャーとしては特に限定するものではなく、例えば、ルブレン、ニッケル錯体、ジフェニルイソベンゾフランなどが挙げられ、特に好ましくは、ルブレンである。

【0116】一重項酸素クエンチャーが含有されている層としては、特に限定するものではないが、好ましくは、発光層または正孔注入輸送層であり、より好ましくは、正孔注入輸送層である。なお、例えば、正孔注入輸送層に一重項酸素クエンチャーを含有させる場合、正孔注入輸送層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。

【0117】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。

【0118】正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の形成方法に関しては、特に限定するものではなく、例えば、真空蒸着法、溶媒塗布法（例えば、スピンコート法、キャスト法、ディップコート法、バーコート法、ロールコート法、ラングミュア・プロジェクト法など）により薄膜を形成することにより作製することができる。

【0119】真空蒸着法により、各層を形成する場合、真空蒸着の条件は、特に限定するものではないが、 10^{-5} torr 程度以下の真空下で、50 ~ 400 程度のボート温度（蒸着源温度）、-50 ~ 300 程度の基板温度で、0.005 ~ 50 nm/sec 程度の蒸着温度で実施することが好ましい。

【0120】この場合、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層などの各層は、真空下で、連続して形成することにより、諸特性に一層優れた有機電界発光素子を作製することができる。

【0121】真空蒸着法により、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の各層を、複数の化合物を用いて形成する場合、化合物を入れた各ボートを個別に温度制御して、共蒸着することが好ましい。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などを、溶媒に溶解、または分散させて塗布液とする。

【0122】正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の各層に使用できるバインダー樹脂としては、例えば、ポリ-N-ピニルカルバゾール、ポリアリレート、ポリスチレン、ポリエステル、ポリシロキサン、ポリメチルアクリレート、ポリメチルメタアクリレート、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、ポリアニレ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が挙げられる。バインダー樹脂は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0123】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などを、適当な有機溶媒（例えば、ヘキサン、オクタン、デカン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、1-メチルネフタレンなどの炭化水素系溶媒、例えば、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノンなどのケトン系溶媒、例えば、ジクロロメタン、クロロホルム、テトラクロロメタン、ジクロロエタン、トリクロロエタン、テトラクロロエタン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、クロロトルエンなどのハロゲン化炭化水素系溶媒、例えば、酢酸エチル、酢酸ブチル、酢酸アミルなどのエステル系溶媒、例えば、メタノール、プロパノール、ブタノール、ペンタノール、ヘキサノール、シクロヘキサノール、メチルセロソルブ、エチルセロソルブ、エチレングリコールなどのアルコール系溶媒、例えば、ジブチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、アニソールなどのエーテル系溶媒、例えば、N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド、1-メチル-2-ピロリドン、1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン、ジメチルスルフォキシドなどの極性溶媒）および/または水に溶解、または分散させて塗布液とし、各種の塗布法により、薄膜を形成することができる。なお、分散させる方法としては、特に限定するものではないが、例えば、ボールミル、サンドミル、ペイントシェーカー、アトライター、ホモジナイザーなどを用いて微粒子状に分散することができる。

【0124】塗布液の濃度に関しては、特に限定するものではなく、実施する塗布法により、所望の厚みを作製するに適した濃度範囲に設定することができ、一般には、0.1 ~ 50 重量%程度、好ましくは、1 ~ 30 重量%程度の溶液濃度である。なお、バインダー樹脂を使用する場合、その使用量に関しては、特に限定するものではないが、一般には、各層を形成する成分に対して（一層型の素子を形成する場合には、各成分の総量に対して）、5 ~ 99.9 重量%程度、好ましくは、10 ~ 99 重量%程度、より好ましくは、15 ~ 90 重量%程度に設定する。

【0125】正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の膜厚に関しては、特に限定するものではないが、一般に、5 nm ~ 5 μm 程度に設定することが好ましい。

【0126】なお、作製した素子に対し、酸素や水分などとの接触を防止する目的で保護層（封止層）を設けたり、また素子を、例えば、パラフィン、流動パラフィン、シリコンオイル、フルオロカーボン油、ゼオライト含有フルオロカーボン油などの不活性物質中に封入して保護することができる。

【0127】保護層に使用する材料としては、例えば、有機高分子材料（例えば、フッ素化樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂、エポキシシリコン樹脂、ポリスチレン、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリパラキシレン、ポリエチレン、ポリフェニレンオキサイド）、無機材料（例えば、ダイヤモンド薄膜、アモルファスシリカ、電気絶縁性ガラス、金属酸化物、金属窒化物、金属炭素化物、金属硫化物）、さらには光硬化性樹脂などを挙げることができ、保護層に使用する材料は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。保護層は、1層構造であってもよく、また多層構造であってもよい。

【0128】また、電極に保護膜として、例えば、金属酸化膜（例えば、酸化アルミニウム膜）、金属フッ化膜を設けることもできる。また、例えば、陽極の表面に、例えば、有機リン化合物、ポリシラン、芳香族アミン誘導体、フタロシアニン誘導体から成る界面層（中間層）を設けることもできる。さらに、電極、例えば、陽極はその表面を、例えば、酸、アンモニア/過酸化水素、あるいはプラズマで処理しても使用することができる。

【0129】本発明の有機電界発光素子は、一般に、直流駆動型の素子として使用されるが、パルス駆動型または交流駆動型の素子としても使用することができる。なお、印加電圧は、一般に、2～30V程度である。

【0130】本発明の有機電界発光素子は、例えば、パネル型光源、各種の発光素子、各種の表示素子、各種の標識、各種のセンサーなどに使用することができる。

【0131】

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

【0132】（製造例1）例示化合物A-4の合成
4, 4'-[1, 4-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビスアニリン70g、1-プロモナフタレン210g、炭酸カリウム135gおよび銅粉30gをo-ジクロロベンゼン(300mL)中、窒素雰囲気下、180～185℃で15時間加熱撹拌した。反応液を120℃でろ過した後、室温まで冷却し、メタノール2Lに排出し、析出した固体をろ過、メタノールで洗浄、乾燥した。この固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィ（展開液；トルエン：n-ヘキサン＝1：5）で2回処理し、さらにトルエンを溶媒に再結晶を7回繰り返

し、白色固体23gを得た。質量分析測定により、例示化合物番号A-4の化合物であることを確認した。

【0133】（製造例2）例示化合物C-6の合成
製造例1において、1-プロモナフタレン210gの代わりに、2-ヨード-9, 9-ジメチルフルオレン320gを用いたほかは、製造例1と同様の操作を行って、白色固体34gを得た。質量分析測定により、例示化合物番号C-6の化合物であることを確認した。

【0134】（製造例3）例示化合物B-4の合成
製造例1において、4, 4'-[1, 4-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビスアニリン70gの代わりに、4, 4'-[1, 3-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビスアニリン70gを用いたほかは、製造例1と同様の操作を行って、白色固体25gを得た。質量分析測定により、例示化合物番号B-4の化合物であることを確認した。

【0135】（製造例4）例示化合物D-8の合成
製造例1において、4, 4'-[1, 4-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビスアニリン70gの代わりに、4, 4'-[5-フェニル-1, 3-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビスアニリン70gを、1-プロモナフタレン210gの代わりに、2-ヨード-9, 9-ジメチルフルオレン320gを用いたほかは、製造例1と同様の操作を行って、白色固体41gを得た。質量分析測定により、例示化合物番号D-8の化合物であることを確認した。

【0136】（製造例5）例示化合物E-11の合成
製造例1において、4, 4'-[1, 4-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビスアニリン70gの代わりに、4, 4'-[1, 4-ナフチレンビス(1-メチルエチリデン)]ビスアニリン80gを用いたほかは、製造例1と同様の操作を行って、白色固体28gを得た。質量分析測定により、例示化合物番号E-11の化合物であることを確認した。

【0137】（製造例6）例示化合物A-16の合成
4, 4'-[1, 4-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビスアニリン70g、2-フルオロ-4-ヨードアニソール50g、炭酸カリウム27gおよび銅粉30gをo-ジクロロベンゼン(300mL)中、窒素雰囲気下、180～185℃で7時間加熱撹拌した。反応液を100℃まで冷却後、1-プロモナフタレン200gおよび炭酸カリウム100gを加え、さらに180～185℃で15時間加熱撹拌した。反応液を室温まで冷却し、トルエン500gを加えて室温で2時間撹拌し、不溶解物をろ別した。ろ液を減圧蒸留し、o-ジクロロベンゼンおよびトルエンを除去した。室温に冷却して得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィ（展開液；トルエン：n-ヘキサン＝1：4）で2回処理し、さらにn-ヘキサン-トルエン混合溶媒で再結晶を8回繰り返

により、例示化合物番号 A-16 の化合物であることを確認した。

【0138】(製造例7) 例示化合物 B-14 の合成
4, 4'-[1, 3-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビスアニリン 200 g を、無水酢酸(600 mL)中、90℃で4時間加熱撹拌した後、水3 Lに排出し、固体をろ過、水洗、乾燥し、4, 4'-[1, 3-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス(N-アセチルアニリン) 186 g を得た。

【0139】4, 4'-[1, 3-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス(N-アセチルアニリン) 172 g、1-ヨードナフタレン 300 g、炭酸カリウム 166 g および塩化銅(Ⅰ) 20 g を o-ジクロロベンゼン(500 mL)中、窒素雰囲気下、180℃~185℃で20時間加熱撹拌した。反応混合物を100℃まで冷却後、不溶解物を熱ろ別した。ろ液から、減圧蒸留により o-ジクロロベンゼンを除去し、蒸留残分をシリカゲルカラムクロマトグラフィ(展開液; トルエン: n-ヘキサン=1:2)で1回処理し、4, 4'-[1, 3-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス[N-アセチル-N-(1-ナフチル)アニリン] 212 g を得た。

【0140】4, 4'-[1, 3-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス[N-アセチル-N-(1-ナフチル)アニリン] 212 g を、濃塩酸(100 mL)およびエタノール(1 L)中、還流下4時間加熱撹拌した。反応混合物を水4 Lに排出し、中和後、固体をろ過、水洗、乾燥して、4, 4'-[1, 3-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス[N-(1-ナフチル)アニリン] 145 g を得た。

【0141】4, 4'-[1, 3-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス[N-(1-ナフチル)アニリン] 120 g、3-ブロモ-1, 1'-ビフェニル 140 g、炭酸カリウム 83 g および銅粉 30 g をスルホラン(300 mL)中、窒素雰囲気下、200℃~210℃で16時間加熱撹拌した。反応混合物を室温まで冷却後、メタノール(2 L)に排出して、析出した固体をろ過、メタノールで洗浄、水洗、乾燥した。この固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィ(展開液; トルエン: n-ヘキサン=1:3)で2回処理し、さらに n-ヘキサン-トルエン混合溶媒で再結晶を8回繰り返し、白色固体 14 g を得た。質量分析測定により、例示化合物番号 B-14 の化合物であることを確認した。

【0142】(製造例8) 例示化合物 E-1 の合成
4, 4'-[1, 4-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビスアニリン 200 g を、無水酢酸(600 mL)中、90℃で4時間加熱撹拌した後、水3 Lに排出し、固体をろ過、水洗、乾燥し、4, 4'-[1, 4-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス(N-アセチルアニリン) 192 g を得た。

【0143】4, 4'-[1, 4-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス(N-アセチルアニリン) 172 g、ヨードベンゼン 240 g、炭酸ナトリウム 130 g および臭化銅(Ⅰ) 25 g を o-ジクロロベンゼン(500 mL)中、窒素雰囲気下、180℃~185℃で20時間加熱撹拌した。反応混合物を100℃まで冷却後、不溶解物を熱ろ別した。ろ液から、減圧蒸留により o-ジクロロベンゼンを除去し、蒸留残分をシリカゲルカラムクロマトグラフィ(展開液; トルエン: n-ヘキサン=1:2)で1回処理し、4, 4'-[1, 4-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス(N-アセチル-N-フェニルアニリン) 183 g を得た。

【0144】4, 4'-[1, 4-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス(N-アセチル-N-フェニルアニリン) 183 g を、濃塩酸(100 mL)およびエタノール(1 L)中、還流下4時間加熱撹拌した。反応混合物を水4 Lに排出し、中和後、固体をろ過、水洗、乾燥して、4, 4'-[1, 4-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス(N-フェニルアニリン) 124 g を得た。

【0145】4, 4'-[1, 4-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス(N-フェニルアニリン) 100 g、9-ブロモフェナントレン 154 g、炭酸カリウム 55 g および銅粉 30 g をスルホラン(300 mL)中、窒素雰囲気下、200℃~210℃で16時間加熱撹拌した。反応混合物を室温まで冷却後、メタノール(2 L)に排出して、析出した固体をろ過、メタノールで洗浄、水洗、乾燥した。この固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィ(展開液; トルエン: n-ヘキサン=1:3)で2回処理し、さらに n-ヘキサン-トルエン混合溶媒で再結晶を8回繰り返し、白色固体 15 g を得た。質量分析測定により、例示化合物番号 E-1 の化合物であることを確認した。

【0146】(製造例9) 例示化合物 E-15 の合成
4, 4'-[2, 6-ナフチレンビス(1-メチルエチリデン)]ビスアニリン 230 g を、無水酢酸(600 mL)中、90℃で4時間加熱撹拌した後、水3 Lに排出し、固体をろ過、水洗、乾燥し、4, 4'-[2, 6-ナフチレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス(N-アセチルアニリン) 222 g を得た。

【0147】4, 4'-[2, 6-ナフチレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス(N-アセチルアニリン) 192 g、ヨードベンゼン 240 g、炭酸ナトリウム 130 g および塩化銅(Ⅰ) 25 g を o-ジクロロベンゼン(500 mL)中、窒素雰囲気下、180℃~185℃で20時間加熱撹拌した。反応混合物を100℃まで冷却後、不溶解物を熱ろ別した。ろ液から、減圧蒸留により o-ジクロロベンゼンを除去し、蒸留残分をシリカゲルカラムクロマトグラフィ(展開液; トルエン: n-ヘキサン=1:2)で1回処理し、4, 4'-[2, 6-

- ナフチレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス(N-アセチル-N-フェニルアニリン)189gを得た。
【0148】4,4'-[1,4-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス(N-アセチル-N-フェニルアニリン)189gを、濃塩酸(100mL)およびエタノール(1L)中、還流下4時間加熱撈拌した。反応混合物を水4Lに排出し、中和後、固体をろ過、水洗、乾燥して、4,4'-[1,4-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス(N-フェニルアニリン)124gを得た。

【0149】4,4'-[1,4-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス(N-フェニルアニリン)109g、2-ヨード-9,9-ジメチルフルオレン200g、炭酸カリウム55gおよび塩化銅(I)25gをスルホラン(300mL)中、窒素雰囲気下、200~210で16時間加熱撈拌した。反応混合物を室温まで冷却後、メタノール(2L)に排出して、析出した固体をろ過、メタノールで洗浄、水洗、乾燥した。この固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィ(展開液;トルエン:n-ヘキサン=1:3)で2回処理し、さらに

【0150】(製造例10)例示化合物A-20の合成製造例8と同操作により得た、4,4'-[1,4-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス(N-フェニルアニリン)100gと、9-ブロモアントラセン25g、炭酸カリウム28gおよび銅粉30gをo-ジクロロベンゼン(200mL)中、窒素雰囲気下、180~190で16時間加熱撈拌した。反応混合物を100まで冷却後、1-プロモナフタレン21gおよび炭酸カリウム28gを加え、さらに窒素雰囲気下、180~190で16時間加熱撈拌した。反応混合物を120まで冷却後、不溶解物を熱ろ別した。ろ液から、減圧蒸留によりo-ジクロロベンゼンを除去し、蒸留残分をシリカゲルカラムクロマトグラフィ(展開液;トルエン:n-ヘキサン=1:3)で2回処理し、さらにn-ヘキサン-トルエン混合溶媒で再結晶を6回繰り返し、白色固体14gを得た。質量分析測定により、例示化合物番号A-20の化合物であることを確認した。

【0151】(製造例11)例示化合物D-4の合成4,4'-[1,3-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビスアニリン200gを、無水酢酸(600mL)中、90で4時間加熱撈拌した後、水3Lに排出し、固体をろ過、水洗、乾燥し、4,4'-[1,3-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス(N-アセチルアニリン)193gを得た。

【0152】4,4'-[1,3-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス(N-アセチルアニリン)172g、4-プロモ-1,2-キシレン223g、炭

酸カリウム138gおよびヨウ化銅(I)25gをo-ジクロロベンゼン(500mL)中、窒素雰囲気下、180~185で20時間加熱撈拌した。反応混合物を100まで冷却後、不溶解物を熱ろ別した。ろ液から、減圧蒸留によりo-ジクロロベンゼンを除去し、蒸留残分をシリカゲルカラムクロマトグラフィ(展開液;トルエン:n-ヘキサン=1:3)で1回処理し、4,4'-[1,3-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス[N-アセチル-N-(3,4-ジメチルフェニル)アニリン]199gを得た。

【0153】4,4'-[1,3-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス[N-アセチル-N-(3,4-ジメチルフェニル)アニリン]199gを、濃塩酸(100mL)およびエタノール(1L)中、還流下4時間加熱撈拌した。反応混合物を水4Lに排出し、中和後、固体をろ過、水洗、乾燥して、4,4'-[1,3-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス[N-(3,4-ジメチルフェニル)アニリン]160gを得た。

【0154】4,4'-[1,3-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス[N-(3,4-ジメチルフェニル)アニリン]111g、2-プロモ-6-エトキシナフタレン24g、炭酸カリウム28gおよび銅粉30gをスルホラン(300mL)中、200~210で16時間加熱撈拌した。反応混合物を100まで冷却後、2-ヨード-9,9-ジメチルフルオレン64gおよび炭酸カリウム28gを加え、さらに窒素雰囲気下、200~210で16時間加熱撈拌した。反応混合物を室温まで冷却後、メタノール(2L)に排出して、析出した固体をろ過、メタノールで洗浄、水洗、乾燥した。この固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィ(展開液;トルエン:n-ヘキサン=1:4)で2回処理し、さらにn-ヘキサン-トルエン混合溶媒で再結晶を9回繰り返し、白色固体11gを得た。質量分析測定により、例示化合物番号D-4の化合物であることを確認した。

【0155】(製造例12)例示化合物A-26の合成4,4'-[1,4-フェニレンビス(1-ベンジルエチリデン)]ビス(プロモベンゼン)153g、1-フェニルアミノナフタレン92g、炭酸カリウム55gおよび銅粉30gをo-ジクロロベンゼン(200mL)中、窒素雰囲気下、180~190で16時間加熱撈拌した。反応混合物を120まで冷却後、不溶解物を熱ろ別した。ろ液から、減圧蒸留によりo-ジクロロベンゼンを除去し、蒸留残分をシリカゲルカラムクロマトグラフィ(展開液;トルエン:n-ヘキサン=1:3)で2回処理し、さらにn-ヘキサン-トルエン混合溶媒で再結晶を6回繰り返し、白色固体25gを得た。質量分析測定により、例示化合物番号A-26の化合物であることを確認した。

【0156】(製造例13) 例示化合物B-17の合成
製造例12において、4,4'-[1,4-フェニレン
ビス(1-ベンジルエチリデン)]ビス(プロモベンゼン)153gの代わりに、4,4'-[5-エチル-
1,3-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス(プロモベンゼン)126gを用いたほかは、製造例
12と同様の操作を行って、白色固体31gを得た。質量分析測定により、例示化合物番号B-17の化合物で
あることを確認した。

【0157】(製造例14) 例示化合物D-2の合成 10
製造例12において、4,4'-[1,4-フェニレン
ビス(1-ベンジルエチリデン)]ビス(プロモベンゼン)153gの代わりに、4,4'-[1,3-フェニ
レンビス(1-メチルエチリデン)]ビス(プロモベンゼン)120gを、1-フェニルアミノナフタレン92
gの代わりに、9-メチル-2-フェニルアミノフルオ
レン136gを用いたほかは、製造例12と同様の操作
を行って、白色固体33gを得た。質量分析測定によ
り、例示化合物番号D-2の化合物であることを確認し
た。

【0158】(製造例15) 例示化合物A-9の合成
4,4'-[1,4-フェニレンビス(1-メチルエチ
リデン)]ビス(プロモベンゼン)123g、ジ(4-
メチルフェニル)アミン40g、炭酸カリウム28gお
よび塩化銅(I)13gをo-ジクロロベンゼン(30
0mL)中、窒素雰囲気下、180~190℃で16時
間加熱撹拌した。反応混合物を100℃まで冷却後、ジ
(1-ナフチル)アミン67g、炭酸カリウム28gお
よび塩化銅(I)13gを加え、さらに窒素雰囲気下、
180~190℃で20時間加熱撹拌した。反応混合物 30
を120℃まで冷却後、不溶解物を熱ろ別した。ろ液か
ら、減圧蒸留によりo-ジクロロベンゼンを除去し、蒸
留残分をシリカゲルカラムクロマトグラフィ(展開液;
トルエン:n-ヘキサン=1:3)で2回処理し、さら
にn-ヘキサン-トルエン混合溶媒で再結晶を6回繰
返し、白色固体21gを得た。質量分析測定により、例
示化合物番号A-9の化合物であることを確認した。

【0159】(製造例16) 例示化合物C-12の合成
製造例15において、ジ(4-メチルフェニル)アミン 40
40gの代わりに、ジ(4-フェニルフェニル)アミン
65gを、ジ(1-ナフチル)アミン67gの代わり
に、ビス(9,9-ジメチルフルオレン-2-イル)ア
ミン120gを用いたほかは、製造例15と同様の操作
を行って、白色固体21gを得た。質量分析測定によ
り、例示化合物番号C-12の化合物であることを確認
した。

【0160】(応用例1) 有機電界発光素子の作製
厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラ
ス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超
音波洗浄をした。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、 50

さらに、UV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホル
ダーに固定した後、蒸着槽を 3×10^{-6} Torrに減圧し
た。まず、ITO透明電極上に、例示化合物番号A-4
の化合物を、蒸着速度0.2nm/secで75nmの厚
さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。ついで、その上
に、トリス(8-キノリレート)アルミニウムを、蒸着
速度0.2nm/secで50nmの厚さに蒸着し、電子
注入輸送層を兼ねた発光層とした。さらにその上に、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。なお、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、50V、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、
6.5V、輝度490cd/m²の緑色の発光が確認さ
れた。輝度の半減期は790時間だった。

【0161】(応用例2~16) 有機電界発光素子の作
製

応用例1において、正孔注入輸送層の形成に際して、例
示化合物番号A-4の化合物の代わりに、例示化合物番
号のA-9の化合物(応用例2)、例示化合物番号のA
-16の化合物(応用例3)、例示化合物番号のA-2
0の化合物(応用例4)、例示化合物番号のA-26の
化合物(応用例5)、例示化合物番号のB-4の化合物
(応用例6)、例示化合物番号のB-14の化合物(応
用例7)、例示化合物番号のB-17の化合物(応用例
8)、例示化合物番号のC-6の化合物(応用例9)、
例示化合物番号のC-12の化合物(応用例10)、例
示化合物番号のD-2の化合物(応用例11)、例示化
合物番号のD-4の化合物(応用例12)、例示化合物
番号のD-8の化合物(応用例13)、例示化合物番号
のE-1の化合物(応用例14)、例示化合物番号のE
-11の化合物(応用例15)、例示化合物番号のE-
15の化合物(応用例16)、を使用した以外は、応用
例1に記載の方法により有機電界発光素子を作製した。
各素子からは緑色の発光が確認された。さらにその特性
を調べ、結果を(第1表)(表1)に示した。

【0162】(比較例1~2) 応用例1において、正孔
注入輸送層の形成に際して、例示化合物番号A-4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
(比較例1)、4,4'-[1,4-フェニレンビス
(1-メチルエチリデン)]ビス[N,N-ジ(4-メ
チルフェニル)アニリン](比較例2)、を使用した以
外は、応用例1に記載の方法により有機電界発光素子
を作製した。各素子からは緑色の発光が確認された。さら
にその特性を調べ、結果を(第1表)に示した。

【0163】

【表1】

第1表

有機電界発光素子	初期特性 (50℃)		半減期 (50℃) (hr)
	輝度 (cd/m ²)	電圧 (V)	
応用例 2	450	6.7	740
応用例 3	440	6.7	720
応用例 4	470	6.5	790
応用例 5	480	6.7	780
応用例 6	490	6.4	780
応用例 7	480	6.8	750
応用例 8	460	6.5	740
応用例 9	460	6.7	740
応用例 10	470	6.7	730
応用例 11	470	6.6	760
応用例 12	440	6.7	710
応用例 13	460	6.7	770
応用例 14	490	6.6	780
応用例 15	480	6.7	790
応用例 16	460	6.7	750
比較例 1	300	6.6	5
比較例 2	350	6.7	240

【0164】(応用例17)厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄をした。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらに、UV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を 3×10^{-6} Torrに減圧した。

【0165】まず、ITO透明電極上に、ポリ(チオフェン-2,5-ジイル)を蒸着速度0.1nm/secで、20nmの厚さに蒸着し、第一正孔注入輸送層とした。ついで、例示化合物番号A-4の化合物を、蒸着速度0.2nm/secで55nmの厚さに蒸着し、第二正孔注入輸送層とした。

【0166】ついで、その上に、トリス(8-キノリレート)アルミニウムを、蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層を兼ねた発光層とした。さらにその上に、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。なお、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/cm²の定電流密度で連続駆動させた。初期には、6.4V、輝度780cd/m²の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は1100時間だった。

【0167】(応用例18)厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄をした。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらに、UV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を 3×10^{-6} Torrに減圧した。

【0168】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、第一正孔注入輸送層とした。ついで、例示化合物番号B-14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、第二正孔注入輸送層を兼ねた発光層とした。

【0169】ついで、その上に、トリス(8-キノリレート)アルミニウムを、蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。なお、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/cm²の定電流密度で連続駆動させた。初期には、6.2V、輝度600cd/m²の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は1300時間だった。

【0170】(応用例19)厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄をした。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらに、UV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を 3×10^{-6} Torrに減圧した。

【0171】まず、ITO透明電極上に、例示化合物番号C-6の化合物を蒸着速度0.1nm/secで、20nmの厚さに蒸着し、第一正孔注入輸送層とした。ついで、例示化合物番号D-2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55nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)し、第二正孔注入輸送

層を兼ねた発光層とした。

【0172】について、その上に、トリス(8-キノリレート)アルミニウムを、蒸着速度 0.2 nm/sec で 50 nm の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を蒸着速度 0.2 nm/sec で 200 nm の厚さに共蒸着(重量比 $10:1$)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。なお、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/cm^2 の定電流密度で連続駆動させた。初期には、 6.2 V 、輝度 620 cd/m^2 の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は 1150 時間だった。

【0173】(応用例20)厚さ 200 nm のITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄をした。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらに、UV/オゾン洗浄した。

【0174】まず、ITO透明電極上に、ポリカーボネート(重量平均分子量 50000)と、例示化合物番号 C-12 の化合物を、重量比 $100:50$ の割合で含有する 3 重量%ジクロロエタン溶液を用いて、ディップコート法により、 40 nm の正孔注入輸送層とした。つぎに、この正孔注入輸送層を有するガラス基板を、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6} \text{ Torr}$ に減圧したついで、その上に、トリス(8-キノリレート)アルミニウムを、蒸着速度 0.2 nm/sec で 50 nm の厚さに蒸着し、電子注入輸送層を兼ねた発光層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を蒸着速度 0.2 nm/sec で 200 nm の厚さに共蒸着(重量比 $10:1$)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。なお、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 V の直流電圧を印加したところ、 100 mA/cm^2 の電流が流れた。輝度 670 cd/m^2 の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は *

* 350 時間であった。

【0175】

【発明の効果】本発明により、新規な複素環化合物を提供することが可能になった。さらに該化合物を用いた、耐久性、発光輝度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1例(A)の概略構造図である。

10 【図2】有機電界発光素子の1例(B)の概略構造図である。

【図3】有機電界発光素子の1例(C)の概略構造図である。

【図4】有機電界発光素子の1例(D)の概略構造図である。

【図5】有機電界発光素子の1例(E)の概略構造図である。

【図6】有機電界発光素子の1例(F)の概略構造図である。

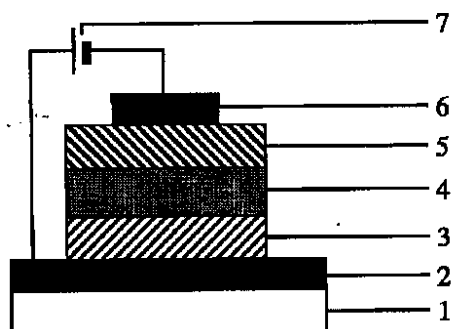
20 【図7】有機電界発光素子の1例(G)の概略構造図である。

【図8】有機電界発光素子の1例(H)の概略構造図である。

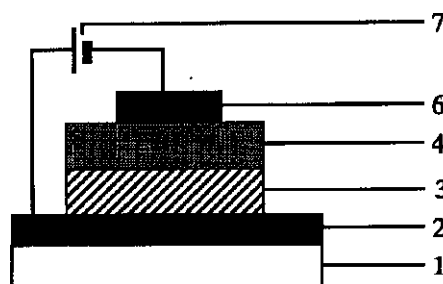
【符号の説明】

- 1：基板
- 2：陽極
- 3：正孔注入輸送層
- 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

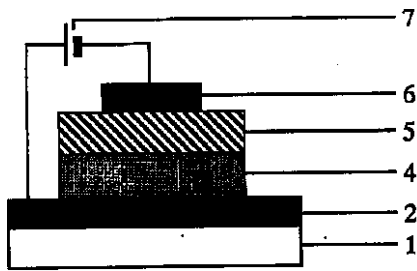
【図1】



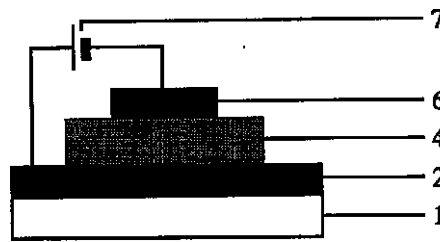
【図2】



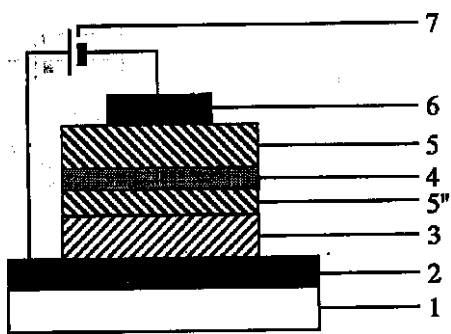
【図 3】



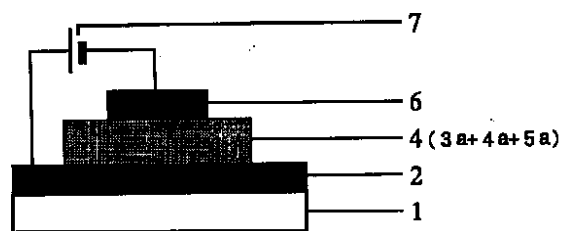
【図 4】



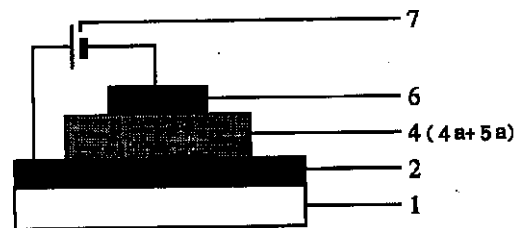
【図 5】



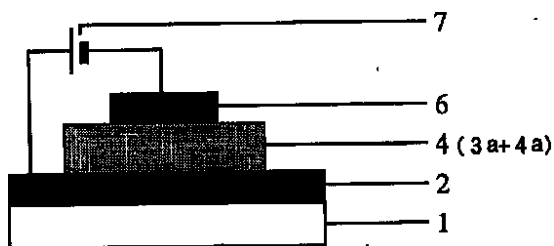
【図 6】



【図 8】



【図 7】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.⁷

H 0 5 B 33/14
33/22

識別記号

F I

H 0 5 B 33/14
33/22

テーム (参考)

B
B
D

(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 中塚 正勝

千葉県袖ヶ浦市長浦580 - 32 三井化学株
式会社内

F ターム (参考) 3K007 AB02 AB04 AB11 CA01 CB01

DA01 DB03 EB00

4H006 AA01 AA03 AB91

专利名称(译)	胺化合物和具有该化合物的有机电致发光元件		
公开(公告)号	JP2003073343A	公开(公告)日	2003-03-12
申请号	JP2001265321	申请日	2001-09-03
[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	島村武彦 石田努 田辺良満 戸谷由之 中塚正勝		
发明人	島村 武彦 石田 努 田辺 良満 戸谷 由之 中塚 正勝		
IPC分类号	H01L51/50 C07C211/54 C07C211/58 C07C211/61 C09K11/06 H05B33/14 H05B33/22		
FI分类号	C07C211/54 C07C211/58 C07C211/61 C09K11/06.620 C09K11/06.645 H05B33/14.B H05B33/22.B H05B33/22.D C07C217/92 C07C217/94		
F-TERM分类号	3K007/AB02 3K007/AB04 3K007/AB11 3K007/CA01 3K007/CB01 3K007/DA01 3K007/DB03 3K007/EB00 4H006/AA01 4H006/AA03 4H006/AB91 3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC22 3K107/DD59 3K107/DD71 3K107/DD74 3K107/DD78		
其他公开文献	JP4477799B2		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

要解决的问题：提供新的胺化合物，并提供具有优异稳定性和优异耐久性的有机电致发光元件。溶液：由通式（1）表示的该化合物（X1至X4各自独立地为H，卤原子，直链，支链或环状烷基，直链，支链或环状烷氧基，取代或未取代的芳烷基或取代的或未取代的芳基；R1至R4各自独立地为直链，支链或环状烷基，或取代或未取代的芳烷基；A为取代或未取代的亚芳基；Ar1至Ar4各自独立地为取代或未取代的芳基，条件是至少一个Ar1至Ar4是取代或未取代的稠合多环芳基，和有机电致发光元件，其中至少一层含有至少一种由通式（1）表示的化合物的层夹在一对电极之间。

