

(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2005-225916

(P2005-225916A)

(43) 公開日 平成17年8月25日(2005.8.25)

(51) Int.Cl. ⁷	F I	テーマコード (参考)
C09K 11/06	C09K 11/06 620	3K007
C08G 63/90	C09K 11/06 690	4H006
H05B 33/14	C08G 63/90	4J029
// C07C 227/40	H05B 33/14 B	
C07C 229/42	C07C 227/40	
審査請求 未請求 請求項の数 9 O L (全 23 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号 特願2004-33657 (P2004-33657)
 (22) 出願日 平成16年2月10日 (2004.2.10)

(71) 出願人 000005496
 富士ゼロックス株式会社
 東京都港区赤坂二丁目17番22号
 (74) 代理人 100079049
 弁理士 中島 淳
 (74) 代理人 100084995
 弁理士 加藤 和詳
 (74) 代理人 100085279
 弁理士 西元 勝一
 (74) 代理人 100099025
 弁理士 福田 浩志
 (72) 発明者 尾崎 忠義
 神奈川県南足柄市竹松1600番地 富士
 ゼロックス株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機機能性材料の製造方法、有機機能性材料、および、これを用いた有機電界発光素子

(57) 【要約】

【課題】 収率が高く且つ酸化成分の残留量の少ない有機機能性材料の製造方法、該製造方法により得られた有機機能性材料、および、該有機機能性材料を用いた有機電界発光素子を提供すること。

【解決手段】 酸化成分を含む有機機能性材料を有機溶媒中に溶解させた溶液を、還元性触媒および水素ガスに接触させる還元処理を少なくとも経て、精製された有機機能性材料を得ることを特徴とする有機機能性材料の製造方法。

【選択図】 なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

酸化成分を含む有機機能性材料を有機溶媒中に溶解させた溶液を、還元性触媒および水素ガスに接触させる還元処理を少なくとも経て、精製された有機機能性材料を得ることを特徴とする有機機能性材料の製造方法。

【請求項 2】

前記還元性触媒が、Pd, Pt, Ni から選ばれた元素のうちの少なくとも一種であることを特徴とする請求項 1 に記載の有機機能性材料の製造方法。

【請求項 3】

前記酸化成分を含む有機機能性材料が、高分子であることを特徴とする請求項 1 に記載の有機機能性材料の製造方法。 10

【請求項 4】

前記酸化成分を含む有機機能性材料が、低分子であることを特徴とする請求項 1 に記載の有機機能性材料の製造方法。

【請求項 5】

前記低分子が重合可能であり、前記低分子に前記還元処理を実施した後に、重合反応を行ない重合体を得ることを特徴とする請求項 4 に記載の有機機能性材料の製造方法。

【請求項 6】

前記精製された有機機能性材料が、電荷輸送性化合物および発光性化合物からなる群より選択される少なくとも 1 種であることを特徴とする請求項 1 に記載の有機機能性材料の製造方法。 20

【請求項 7】

前記重合体が、電荷輸送性化合物および発光性化合物からなる群より選択される少なくとも 1 種であることを特徴とする請求項 5 に記載の有機機能性材料の製造方法。

【請求項 8】

酸化成分を含む有機機能性材料を有機溶媒中に溶解させた溶液を、還元性触媒および水素ガスに接触させる還元処理を少なくとも経て製造される有機機能性材料であって、

前記還元処理後の有機機能性材料に含まれる前記酸化成分の液体クロマトグラフィーにより求めた濃度が 0.1 % 以下であることを特徴とする有機機能性材料。

【請求項 9】

少なくとも一方が透明または半透明である陽極および陰極よりなる一対の電極と、該一対の電極間に挟まれた一つまたは複数層からなる有機化合物層と、を含む有機電界発光素子において、 30

前記有機化合物層の少なくとも 1 層が、酸化成分を含む有機機能性材料を有機溶媒中に溶解させた溶液を、還元性触媒および水素ガスに接触させる還元処理を少なくとも経て精製された有機機能性材料を含むことを特徴とする有機電界発光素子。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、有機電界発光素子（以下、「有機 EL 素子」と記述する場合がある）等のデバイスや素子に用いられる有機機能性材料の製造方法、この製造方法によって得られた有機機能性材料、および、これを用いて作製された電界発光素子に関するものである。 40

【背景技術】

【0002】

電界発光素子（EL 素子）は、自発光性の全固体素子であり、視認性が高く衝撃にも強いいため、広く応用が期待されている。現在は無機蛍光体を用いたものが主流であるが、200V 以上の交流電圧が駆動に必要なため製造コストが高く、また輝度が不十分等の問題を有している。

一方、有機化合物を用いた EL 素子研究は、最初アントラセン等の単結晶を用いて始まったが、単結晶の場合、膜厚が 1mm 程度と厚く 100V 以上の駆動電圧が必要であった 50

。そのため蒸着法による薄膜化が試みられている（例えば、非特許文献1参照）。しかしながら、この方法で得られた薄膜は、駆動電圧が30Vと未だ高く、また、膜中における電子・正孔キャリアの密度が低く、キャリアの再結合によるフォトンの生成確率が低いと十分な輝度を得られなかった。

【0003】

ところが近年、正孔輸送性有機低分子化合物と電子輸送能を持つ蛍光性有機低分子化合物の薄膜を真空蒸着法により順次積層した機能分離型のEL素子において、10V程度の低電圧で1000cd/m²以上の高輝度を得られるものが報告されており（例えば、非特許文献2参照）、以来、積層型のEL素子の研究・開発が活発に行われている。

【0004】

しかしながら、このタイプのEL素子では、複数の蒸着工程において0.1μm以下の薄膜を形成していくためピンホールを生じ易く、十分な性能を得るためには厳しく管理された条件下で膜厚の制御を行うことが必要である。従って、生産性が低くかつ大面積化が難しいという問題がある。また、このEL素子は数mA/cm²という高い電流密度で駆動されるため、大量のジュール熱を発生する。このため、蒸着によってアモルファスガラス状態で成膜された正孔輸送性低分子化合物や蛍光性有機低分子化合物が次第に結晶化して最後には融解し、輝度の低下や絶縁破壊が生じるという現象が多く見られ、その結果素子の寿命が低下するという問題も有している。

【0005】

例えば、電子輸送材料の場合、これまで、2-(4-ピフェニルイル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール(PBO)を初めとするオキサジアゾール誘導体を電子輸送材料として使用することが提案されているものの、得られた薄膜は結晶化しやすく、電荷輸送・注入特性の面からも充分とはいえない（例えば特許文献1参照）。また、電子輸送材料はオキサジアゾール化合物以外に種類が乏しく、低電圧駆動・高効率化の面からも電荷輸送・注入特性にも優れたさらなる材料の開発が望まれているのが現状である。

【0006】

一方、積層型有機EL素子における生産性と大面積化に関する問題の解決を目指し、単層構造のEL素子についても研究・開発が進められ、ポリ(p-フェニレンビニレン)等の導電性高分子を用いたり（例えば、非特許文献3参照）、正孔輸送性ポリビニルカルバゾール中に電子輸送材料と蛍光色素を混入した素子（例えば、非特許文献4参照）が提案されているが、未だ輝度、発光効率等が有機低分子化合物を用いた積層型有機EL素子には及ばない。

【0007】

EL素子に用いられる材料は電気特性や素子寿命の長期安定性を確保するため、高純度の材料が必要とされている。したがって、EL素子に用いられる材料は合成後に精製工程による高純度化を必要とする。低分子EL素子材料を精製する場合には、従来、蒸留精製（特許文献2参照）を用いたり、昇華精製法（特許文献3参照）を用いられていた。

これらの精製法は適用できる化合物に制限があったり、精製による不純物の除去が不十分である場合があった。故に、これらの精製方法では、目的生成物の収率が低かったり、精製して得られた材料を利用してEL素子等を作製した場合に、不純物が十分に除去できていないために十分な性能が得られない場合があった。さらに、これらの精製法では、場合によっては大掛かりな装置を必要とする欠点があった。

【0008】

さらに、EL素子に用いられる材料が高分子材料の場合には、重合後に得られた高分子材料を溶媒洗浄または酸洗浄、アルカリ洗浄等による各種洗浄処理、または、良溶媒に溶解後、貧溶媒に滴下する再沈処理を繰り返すことによって上述の高純度化という要求を達成しようとしている。しかし、一般に高分子材料の精製は低分子化合物と比較して困難であり、これらの処理によるEL素子の電気特性向上の効果が不十分であった。

【特許文献1】特開平7-109454号公報

10

20

30

40

50

【特許文献2】特開2002-200401号公報

【特許文献3】特開平11-171801号公報

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

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

【非特許文献3】Nature, Vol. 357, 477 (1992)

【非特許文献4】第38回応用物理学関係連合講演会予稿集31p-G-12 (1991)

【発明の開示】

10

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

本発明は、従来の技術の上記問題点に鑑みてなされたものであり、その目的は、収率が高く且つ酸化成分の残留量の少ない有機機能性材料の製造方法、該製造方法により得られた有機機能性材料、および、該有機機能性材料を用いた有機電界発光素子を提供することを課題とする。

【課題を解決するための手段】

【0010】

本発明者らは、上記課題を解決するために、従来の精製法において、精製対象となる原料中に含まれる不純物について着目し、鋭意検討した。

20

その結果、有機EL素子等の電子デバイスの特性を劣化させる不純物の中には、目的生成物と構造や、分子量、その他の物性が類似している成分がある程度含まれており、これらの成分は、〔1〕目的生成物の分子構造の一部が酸化されたものである上に、〔2〕従来の精製法では目的生成物との分離が困難であり、〔3〕さらに、その存在が、特に近年その発達が著しく、高純度の材料が要求される有機EL素子等の精緻な電子デバイス等の諸特性に大きく影響を及ぼすことを確認した。

【0011】

一方、従来の昇華精製法や蒸留精製法は、不純物と目的精製物との分子構造や分子量の違いに起因する融点や沸点等の差を利用した精製法である。このため上記したような不純物成分は、目的生成物と分子構造や分子量において殆ど差が無いため、融点や沸点もほぼ

30

同じ温度域であることが多く、昇華精製法や蒸留精製法による分離精製は困難である。さらに、このような成分は、有機EL用材料等のような複雑な分子構造を有する目的生成物を合成する過程において、通常、その発生は避けられないものであるため、有機EL素子等の電子デバイス等に有機機能性材料を適用する前の段階で、何らかの手段により除去する必要がある。

本発明者らは、上記の知見に基づき、以下の本発明を見出した。すなわち、本発明は、

【0012】

<1> 酸化成分を含む有機機能性材料を有機溶媒中に溶解させた溶液を、還元性触媒および水素ガスに接触させる還元処理を少なくとも経て、精製された有機機能性材料を得ることを特徴とする有機機能性材料の製造方法である。

40

【0013】

<2> 前記還元性触媒が、Pd, Pt, Niから選ばれた元素のうちの少なくとも一種であることを特徴とする<1>に記載の有機機能性材料の製造方法である。

【0014】

<3> 前記酸化成分を含む有機機能性材料が、高分子であることを特徴とする<1>に記載の有機機能性材料の製造方法である。

【0015】

<4> 前記酸化成分を含む有機機能性材料が、低分子であることを特徴とする<1>に記載の有機機能性材料の製造方法である。

【0016】

50

< 5 > 前記低分子が重合可能であり、前記低分子に前記還元処理を実施した後に、重合反応を行ない重合体を得ることを特徴とする< 4 >に記載の有機機能性材料の製造方法である。

【0017】

< 6 > 前記精製された有機機能性材料が、電荷輸送性化合物および発光性化合物からなる群より選択される少なくとも1種であることを特徴とする< 1 >に記載の有機機能性材料の製造方法である。

【0018】

< 7 > 前記重合体が、電荷輸送性化合物および発光性化合物からなる群より選択される少なくとも1種であることを特徴とする< 5 >に記載の有機機能性材料の製造方法である。

10

【0019】

< 8 > 酸化成分を含む有機機能性材料を有機溶媒中に溶解させた溶液を、還元性触媒および水素ガスに接触させる還元処理を少なくとも経て製造される有機機能性材料であって、

前記還元処理後の有機機能性材料に含まれる前記酸化成分の液体クロマトグラフィーにより求めた濃度が0.1%以下であることを特徴とする有機機能性材料である。

【0020】

< 9 > 少なくとも一方が透明または半透明である陽極および陰極よりなる一対の電極と、該一対の電極間に挟まれた一つまたは複数層からなる有機化合物層と、を含む有機電界発光素子において、

20

前記有機化合物層の少なくとも1層が、酸化成分を含む有機機能性材料を有機溶媒中に溶解させた溶液を、還元性触媒および水素ガスに接触させる還元処理を少なくとも経て精製された有機機能性材料を含むことを特徴とする有機電界発光素子である。

【発明の効果】

【0021】

以上に説明したように本発明によれば、収率が高く且つ酸化成分の残留量の少ない有機機能性材料の製造方法、該製造方法により得られた有機機能性材料、および、該有機機能性材料を用いた有機電界発光素子を提供することができる。

【発明を実施するための最良の形態】

30

【0022】

(有機機能性材料の製造方法および有機機能性材料)

本発明の有機機能性材料の製造方法は、酸化成分を含む有機機能性材料を有機溶媒中に溶解させた溶液を、還元性触媒および水素ガスに接触させる還元処理を少なくとも経て、精製された有機機能性材料を得ることを特徴とする。

【0023】

なお、「酸化成分」とは、本来目的とする分子構造を持つ有機機能性材料の一部が酸化した状態の成分を意味し、還元処理により、本来目的とする分子構造に修復可能な成分を意味する。

また、「酸化成分を含む有機機能性材料」とは、最終的に目的とする目的生成物と共に、この目的生成物の酸化成分が不純物として少なくとも含まれている状態の有機機能性材料を意味する。このような酸化成分を含む有機機能性材料の具体例としては、〔1〕少なくとも一連の合成プロセスを終えた後の不純物を多く含んだ状態のみならず、〔2〕一旦何らかの精製処理を経た状態や、〔3〕有機EL素子等を構成する有機機能性材料として一旦利用され、経時的な劣化(酸化)により最終的に目的とする目的生成物と共に、この目的生成物の酸化成分が不純物として少なくとも含まれている状態(いわゆる有機機能性材料のリサイクル)も含まれる。

40

【0024】

よって、本発明の有機機能性材料の製造方法は、還元処理により、本来不純物として除去されていた酸化成分が目的生成物に転化されるため、酸化成分を不純物として除去して

50

いた従来の精製法と比べると目的生成物の収率が高い。

さらに、還元処理後の精製された有機機能性材料中には、目的生成物と物性や構造が類似しているために従来の精製法では分離精製が困難であった酸化成分が目的生成物に転化されるため、その残留量が非常に少なくなり、純度が向上する。このため、精製された有機機能性材料を有機EL素子等の電子デバイスに利用した場合に、良好な特性を得ることができる。

【0025】

なお、還元処理後の精製された有機機能性材料に含まれる酸化成分の含有量（残留量）は、還元処理条件や処理対象となる酸化成分を含む有機機能性材料の種類や履歴にも依存するが、液体クロマトグラフィーにより求めた濃度で0.1%以下であることが好ましく、0.01%以下であることがより好ましい。酸化処理成分の濃度が0.1%を超える場合には、精製された有機機能性材料を有機EL素子等の電子デバイスに利用した場合に、十分な特性を得ることができない場合がある。

10

なお、従来の精製方法では、精製処理後の酸化成分の濃度を0.1%程度以下とすることは実質的に困難である上に、この濃度まで酸化成分を除去しようとするとは大幅な収率の低下を招いていた。

【0026】

また、還元処理前後の酸化成分の量や、その相対的变化は、液体クロマトグラフィーを用いて、酸化成分を含む有機機能性材料と、これを還元処理した後の有機機能性材料とを測定することにより把握することができる。これは、目的生成物の構造によらず、目的生成物の酸化されやすい部分というのは、通常、概ね決まっているため、酸化され易い部分（還元された状態の部分）に起因するピークの強度と、この酸化され易い部分が酸化されたことに起因するピークの強度と、の比に着目すれば容易に把握することができるためである。

20

【0027】

なお、還元処理に際しては、酸化成分を含む有機機能性材料は、有機溶媒中に溶解させた溶液とし、この溶液を、水素ガスの存在下にて還元性触媒に接触させることにより行なう。また、還元処理後は、還元性触媒をろ過等の手段を用いて分離した後、溶媒を除去することで、精製された有機機能性材料を得ることができる。

【0028】

ここで、還元性触媒としては、水素ガスの存在下で、有機材料と接触した際に、還元能力を有する触媒であれば特に限定されないが、具体例には、Pd, Pt, Ru, Re, Rh, Os, Ir, Ni等の貴金属触媒や、PtO₂, RuO, CuO, Cu₂O, Cr₂O₃, Fe₂O₃等の酸化物触媒が挙げられ、これらを単独または2種以上を混合して使用することもできる。なお、本発明においては、還元性触媒として、Pd、Pt、Niから選択される貴金属触媒を用いることが特に好ましい。これらの貴金属触媒は選択的な還元が可能で、有機機能性材料における他の官能基の変性を伴わずに目的部位のみを還元することができる。

30

また、還元性触媒の表面積を大きくするため、活性炭、酸化アルミニウム、チタニア、ジルコニア、ゼオライト、シリカ、シリカ・アルミナ、マグネシアなどの担体に還元性触媒を担持させて使用してもよい。

40

【0029】

使用する還元性触媒は、酸化成分を含む有機機能性材料1重量部に対して0.0001重量部から20重量部の範囲内で使用することが好ましく、0.01重量部から5重量部の範囲内で使用することがより好ましい。また、本発明に用いられる還元性触媒と、他の触媒とを同時に使用することも可能である。

【0030】

還元処理に際して、酸化成分を含む有機機能性材料を溶解させるために用いられる有機溶媒としては、これを溶解させることが可能なものであれば、特に制限はないが、特に脂肪族及び芳香族の炭化水素類又はエーテル類又はアルコール類が好ましい。

50

具体例として、ヘキサン、ヘプタン、オクタン、デカン、ドデカン、シクロヘキサン、メチルシクロヘキサン、メチルシクロペンタン、トルエン、*o*-キシレン、*m*-キシレン、*p*-キシレン、クメン、メシチレン、テルピノレン、*o*-シメン、*m*-シメン、*p*-シメン、アニソール、エチルトルエン、エチルキシレン、ジオキサン、テトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、メタノール、エタノール、1-プロパノール、2-プロパノール等が挙げられ、単独又は混合して使用することができる。

【0031】

還元処理における処理温度は、室温前後から使用する有機溶媒の沸点の範囲内であれば特に制限はない。また、処理時間は、酸化成分を含む有機機能性材料に含まれる不純物（酸化成分）濃度により任意に選択できるが、10分から48時間が好ましい。さらに好ましくは、15分から24時間である。

10

【0032】

また、供給する水素ガスの圧力は特に制限はないが、常圧～50気圧の範囲内であることが好ましい。減圧下での還元反応の進行が遅くなり、酸化成分を含む有機機能性材料の精製処理に時間がかかりすぎるばかりか、減圧設備を必要とするなどの問題が発生する場合がある。一方、50気圧を超える場合にも還元処理を行なう反応装置に特別の耐圧性能が要求され、経済的でない。なお、還元処理はバッチ式あるいは連続式のいずれで実施してもよい。

【0033】

また、本発明の有機機能性材料の製造方法は、酸化成分を含む有機機能性材料が、低分子の場合でも、高分子の場合でも、いずれにも適用可能であり、低分子、高分子の区別なく適用できる高い汎用性を有するという点においても、従来の精製法と比較して優れている。

20

なお、当該低分子および高分子とは、分子の大きさの相対的な関係を指すもので、一概に規定できるものではないが、低分子は分子量が2000程度未満のものを意味し、高分子は分子量が2000程度以上のものを意味する。なお、高分子の分子量の上限は特に限定されないが、実用上は50000以下程度であることが好ましい。

加えて、酸化成分を含む有機機能性材料（低分子）は、その分子内に他の分子と重合することができる反応性基を含むもの（重合可能なもの）であってもよい。このような場合、酸化成分を含む有機機能性材料（低分子）を還元処理した後、さらに重合反応を実施して、高分子化させた有機機能性材料を得ることも可能である。

30

【0034】

なお、酸化成分を含む有機機能性材料が還元処理後に何らの化学反応（低分子の重合反応も含む）を実施することなくそのまま電子デバイスに利用される場合には、酸化成分を含む有機機能性材料は、適用されるデバイスや素子に要求される機能を備えた材料である必要がある。例えば、有機EL素子に用いる場合には、キャリア輸送能や、発光能を有していることが必要であり、有機半導体トランジスタ素子に用いる場合には、キャリア輸送能を有している必要がある。

一方、酸化成分を含む有機機能性材料が還元処理後に、更に何らかの化学反応（低分子の重合反応も含む）が実施され、その後に電子デバイスに利用される場合には、酸化成分を含む有機機能性材料は、必ずしも電子デバイスに要求される機能を備えている必要はない。しかし、還元処理後の化学反応を経た後には、必ず適用されるデバイスや素子等に要求される機能を備えていることが必要である。

40

【0035】

なお、本発明において、「有機機能性材料」とは、有機材料の種々の機能、すなわち、電氣的、光学的、あるいは、エネルギー変換機能を利用する有機EL素子や、有機半導体トランジスタ素子、光電変換素子、光メモリ等のようなデバイスや素子に用いられる有機材料を意味する（但し、より正確には、上述したような中間体（半製品）の段階で何らの機能を有していなくても、最終的にデバイスや素子に適用される段階で何らかの機能を有する場合も含まれる）。

50

【0036】

また、このような電氣的、光學的、エネルギー変換機能の具体例としては、電氣的機能としてはキャリア移動を利用した導電性（例えば、電荷輸送性材料）、光學的機能としては屈折率等（例えば、光ファイバーや導波路用の光学材料）、エネルギー変換機能としては、光から光へ変換する非線形性や波長変換性（例えば、光スイッチ素子や、ホログラムメモリ、有機半導体レーザー等に用いられるような有機材料等）、光から電気あるいはその逆へ変換する光電変換性や発光性等（例えば、有機光電池に用いられる光電変換材料や、有機EL素子に用いられる発光材料等）、電気エネルギーを化学反応に転換するような光応答性（例えば、電界の変化により分子内に水素結合を形成／解離して収縮／膨潤するような高分子ゲル等）が挙げられる。

10

【0037】

なお、本発明の有機機能性材料の製造方法は、これらの機能を有する有機機能性材料の中でも、特に不純物（酸化成分）の影響を受け易い有機EL素子等に利用される電荷輸送性や発光性を有する有機機能性材料に適用することが好ましい。以下に、このような電荷輸送性や発光性を有する有機機能性材料について、還元処理を施す前の酸化成分を含んだ状態での具体例を以下により詳細に説明する。

【0038】

酸化成分を含む有機機能性材料が、低分子である場合の具体例としては、有機EL素子への適用を考慮した場合には、公知の電荷輸送性化合物（正孔輸送性化合物、電子輸送性化合物）や、発光性化合物などが挙げられる。

20

具体的には、正孔輸送性化合物としてはテトラフェニレンジアミン誘導体、トリフェニルアミン誘導体、カルバゾール誘導体等が挙げられる。発光性化合物としては多核または縮合芳香環化合物、ペリレン誘導体、オキサゾール誘導体、オキサチアゾール誘導体などが挙げられる。

電子輸送性化合物としては、オキサジアゾール誘導体、ニトロ置換フルオレノン誘導体、ジフェノキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体などが挙げられる。

発光性化合物としては、キレート型有機金属錯体、多核または縮合芳香族炭化水素化合物、ペリレン誘導体、クマリン誘導体、シチリルアリーレン誘導体、シロール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサチアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体などが挙げられる。

30

【0039】

上述したような低分子化合物は、重合可能なように、反応性基を分子内に有していてもよい。また、有機EL素子への適用を考慮して低分子化合物を列挙したが、勿論、これらの低分子化合物のうち、電荷輸送性を有する材料は、電荷輸送能を有する材料を利用する有機半導体トランジスタ素子等の他の電子デバイスでの利用も可能である。

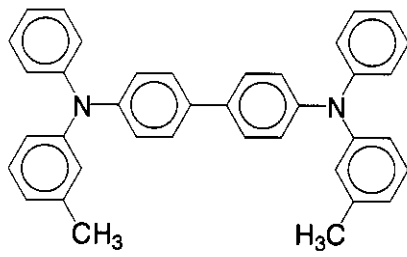
【0040】

なお、電荷輸送性化合物の具体例としては、下記の化合物（I-1）～（I-12）などが挙げられ、好適には化合物（I-12）が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

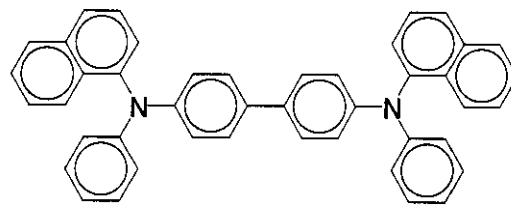
40

【0041】

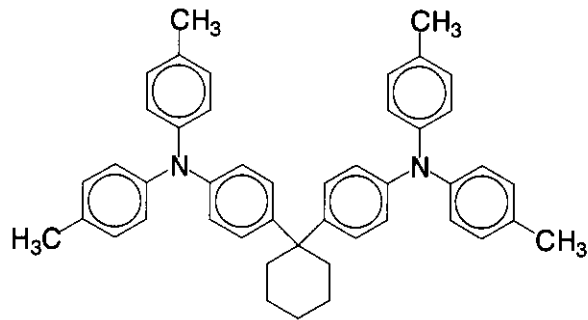
【化 1】



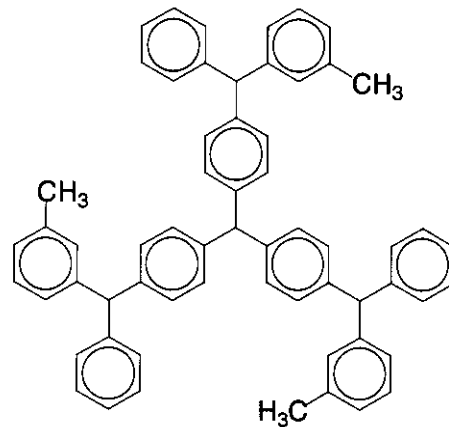
(I-1)



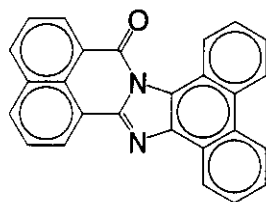
(I-2)



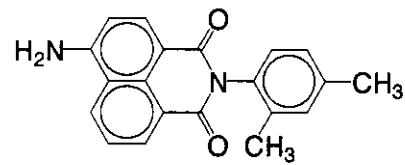
(I-3)



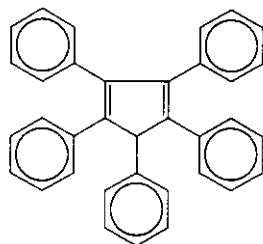
(I-4)



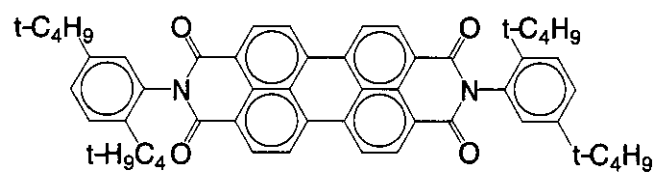
(I-5)



(I-6)



(I-7)



(I-8)

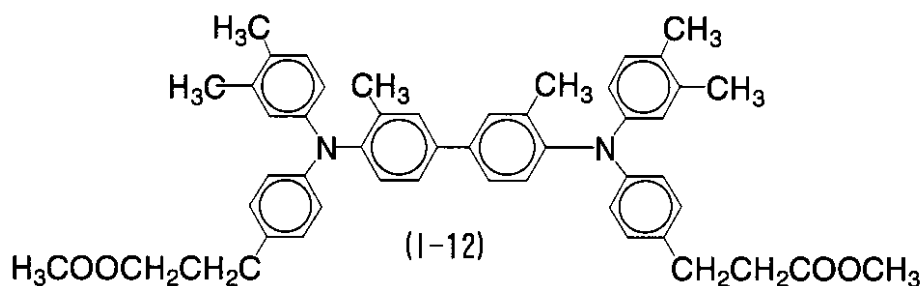
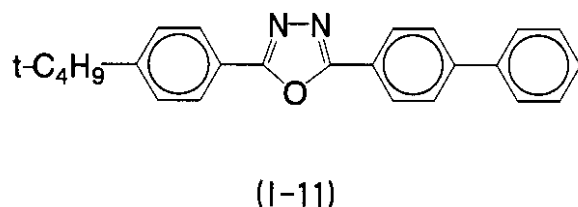
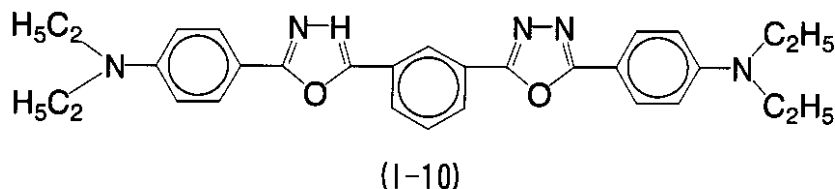
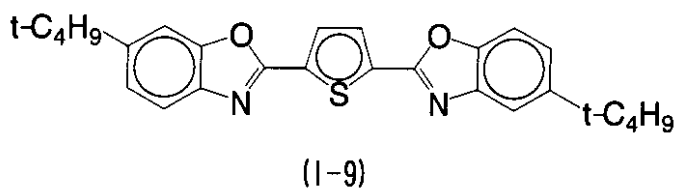
【 0 0 4 2 】

10

20

30

【化 2】



10

20

30

40

50

【0043】

酸化成分を含む有機機能性材料が、高分子である場合の具体例としては、有機EL素子への適用を考慮した場合には、有機溶媒に溶解できるものであれば公知の有機EL用材料（電荷輸送性化合物（正孔輸送性化合物、電子輸送性化合物）や、発光性化合物）が利用できる。

具体的には、ポリエステル誘導体、ポリエーテル誘導体、ポリウレタン誘導体、ポリスチレン誘導体、ポリメタクリル酸（エステル）誘導体、ポリアクリル酸（エステル）樹脂誘導体、ポリビニルカルバゾール誘導体、ポリカーボネート誘導体、ポリアリーレン誘導体、ポリウレタン誘導体、ポリエーテル誘導体、ポリスチレン誘導体、ポリエチレン誘導体、ポリフルオレン誘導体、ポリアリーレンビニレン誘導体、ポリチオフェン誘導体等が挙げられる。

【0044】

特にポリエステル誘導体、ポリエーテル誘導体、ポリウレタン誘導体、ポリスチレン誘導体、ポリメタクリル酸（エステル）誘導体、ポリアクリル酸（エステル）樹脂誘導体、ポリビニルカルバゾール誘導体、ポリカーボネート誘導体、ポリアリーレン誘導体、ポリウレタン誘導体、ポリエーテル誘導体、ポリスチレン誘導体、ポリエチレン誘導体、ポリフルオレン誘導体、ポリチオフェン誘導体等が好ましい。

なお、有機EL素子への適用を考慮して高分子化合物を列挙したが、勿論、これらの高分子化合物のうち、電荷輸送性を有する材料は、電荷輸送能を有する材料を利用する有機

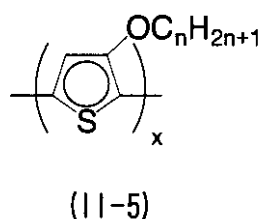
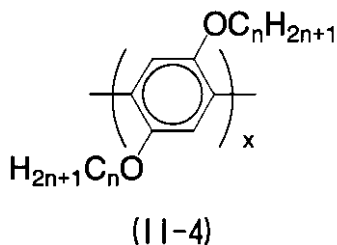
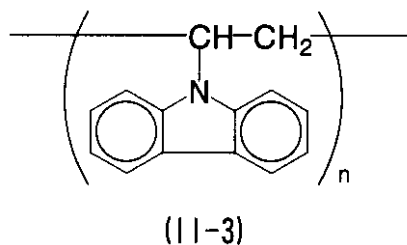
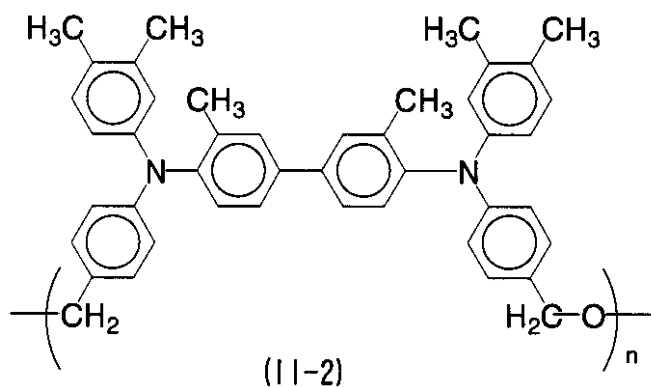
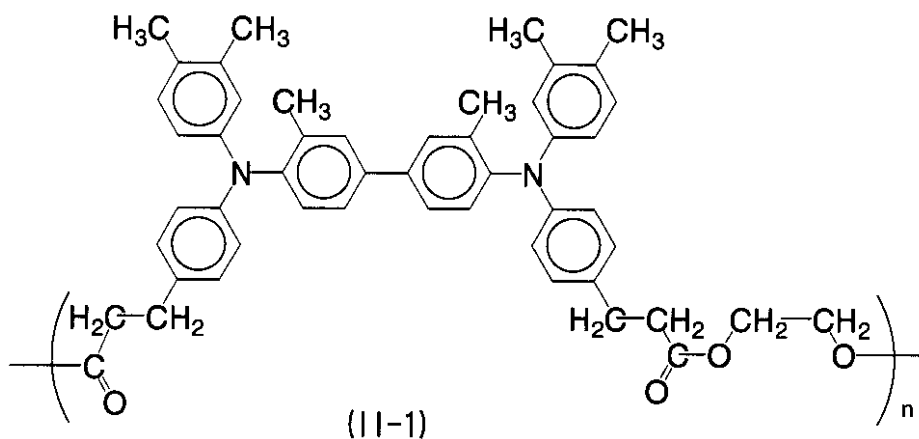
半導体トランジスタ素子等の他の電子デバイスでの利用も可能である。

【0045】

上記に列挙した高分子化合物の具体例としては、下記の化合物(II-1)～(II-5)などが挙げられ、好適には化合物(II-1)～(II-3)が挙げられるが、これらに限定されるものではない。なお、式(II-1)～(II-3)中、 n は1以上の整数を表し、式(II-4)～(II-5)中、 n は1～1000の範囲内の整数を表し、 x は1以上の整数を表す。

【0046】

【化3】



10

20

30

40

50

【0047】

なお、本発明に用いられる有機機能性材料が、電荷輸送性化合物である場合には、その電荷移動度は、適用される電子デバイスにもよるが、少なくとも 10^{-8} cm/Vs 以上であることが好ましく、 10^{-7} cm/Vs 以上であることがより好ましく、 10^{-6} cm/Vs 以上であることが更に好ましい。

また、本発明に用いられる有機機能性材料が、発光性化合物である場合には、発光スペクトルの最大ピーク波長が可視光域（ $380 \text{ nm} \sim 700 \text{ nm}$ ）の範囲内にあることが好ましい。

【0048】

（有機電界発光素子）

次に、本発明の有機機能性材料の製造方法により得られた有機機能性材料を用いた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の構成は、少なくとも一方が透明または半透明である陽極および陰極よりなる一対の電極と、該一対の電極間に挟まれた一つまたは複数層からなる有機化合物層と、を含むものである。ここで、有機化合物層の少なくとも1層に、本発明の有機機能性材料の製造方法により得られた有機機能性材料（具体的には、上記に列挙したような有機EL用材料）が含まれる。

【0049】

なお、有機化合物層が一つの場合は、有機化合物層は電荷輸送能を持つ発光層を意味し、この発光層に本発明の有機機能性材料の製造方法により得られた有機機能性材料が含まれる。

また、有機化合物層が複数の場合は、その一つが発光層であり、他の有機化合物層は、電荷輸送層、すなわち、正孔輸送層、電子輸送層、或いは正孔輸送層と電子輸送層よりなるものを意味し、これらの少なくとも一層に本発明の有機機能性材料の製造方法により得られた有機機能性材料が含まれる。

ここで、有機化合物層が複数の層からなる場合の層構成としては、例えば、少なくとも発光層及び電子輸送層からなる構成や、少なくとも正孔輸送層、発光層及び電子輸送層からなる構成、あるいは、少なくとも正孔輸送層及び発光層からなる構成が挙げられる。

【0050】

有機化合物層が一つの場合、電荷輸送能を持つ発光層は目的に応じて機能（正孔輸送能、あるいは、電子輸送能）が付与された電荷輸送材料に対して発光材料を50重量%以下分散させた有機化合物層であり、有機EL素子に注入される正孔と電子とのバランスを調節するために、電子輸送性化合物を1重量%ないし30重量%の範囲で混合分散して形成されていてもよい。

【0051】

発光層には、固体状態で高い蛍光量子収率を示す化合物が発光材料として用いられる。発光材料が有機低分子の場合、真空蒸着法、もしくは、低分子と結着樹脂とを含む溶液や分散液を塗布・乾燥することにより良好な薄膜形成が可能であることが条件である。また、発光材料が高分子の場合、それ自身を含む溶液または分散液を塗布・乾燥することにより良好な薄膜形成が可能であることが条件である。

【0052】

発光材料が有機低分子の場合の好適な例としては、キレート型有機金属錯体、多核または縮合芳香環化合物、ペリレン誘導体、クマリン誘導体、スチリルアリーレン誘導体、シロール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサチアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体等が挙げられる。また、発光材料が高分子の場合の好適な例としては、ポリパラフェニレン誘導体、ポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリチオフエン誘導体、ポリアセチレン誘導体等が挙げられる。

【0053】

また、有機EL素子の耐久性向上或いは発光効率の向上を目的として、上記の発光材料中にゲスト材料として発光材料と異なる色素化合物をドーピングしてもよい。真空蒸着に

10

20

30

40

50

よって発光層を形成する場合、共蒸着によってドーピングを行い、溶液または分散液を塗布・乾燥することで発光層を形成する場合、溶液または分散液中に混合することでドーピングを行う。

発光層中における色素化合物のドーピングの割合としては好ましくは0.001重量%～40重量%程度、より好ましくは0.01重量%～10重量%程度の範囲内である。このようなドーピングに用いられる色素化合物としては、発光材料との相容性が良く、かつ発光層の良好な薄膜形成を妨げない有機化合物が用いられ、好適にはDCM誘導体、キナクリドン誘導体、ルブレン誘導体、ポルフィリン系化合物等が挙げられる。

【0054】

正孔輸送材料は目的に応じて機能（正孔輸送能）が付与された電荷輸送化合物単独で形成されていてもよいが、電気的特性をさらに改善する等の目的で、正孔移動度を調節するために特定の有機低分子化合物を0.1重量%ないし50重量%の範囲で混合分散して形成されていてもよい。この場合の有機低分子化合物としては、好適にはテトラフェニレンジアミン誘導体、トリフェニルアミン誘導体、カルバゾール誘導体、スチルベン誘導体、アリールヒドラゾン誘導体、ポルフィリン系化合物等が挙げられる。電子輸送材料としては、電荷輸送性材料と強い電子相互作用を示さない有機化合物が用いられる。また、発光材料と異なる色素化合物をドーピングしてもよい。

【0055】

さらに、成膜性の向上のため、他の汎用の樹脂等との混合でもよい。具体的な樹脂としては、ポリカーボネート樹脂、ポリエステル樹脂、メタクリル樹脂、アクリル樹脂、ポリ塩化ビニル樹脂、セルロース樹脂、ウレタン樹脂、エポキシ樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリビニルアセテート樹脂、スチレンブタジエン共重合体、塩化ビニルデン-アクリロニトリル共重合体、塩化ビニル-酢酸ビニル-無水マレイン酸共重合体、シリコン樹脂、ポリ-N-ビニルカルバゾール樹脂、ポリシラン樹脂、ポリチオフェン、ポリピロール等の導電性樹脂等を用いることができる。また、添加剤としては、公知の酸化防止剤、紫外線吸収剤、可塑剤等を用いることができる。

【0056】

有機化合物層が複数の場合、正孔輸送層は目的に応じて機能（正孔輸送能）が付与された電荷輸送化合物単独で形成されていてもよいが、電気的特性をさらに改善する等の目的で、正孔移動度を調節するために電荷輸送性高分子以外の前述の有機低分子化合物を0.1重量%ないし50重量%の範囲で混合分散して形成されていてもよい。さらに、成膜性の向上のため、他の汎用の樹脂等との混合でもよい。具体例としては前述のとおりである。

【0057】

これら本発明の有機EL素子は、まず透明電極の上に有機化合物層の層構成に応じて、正孔輸送層或いは発光層を形成する。正孔輸送層および発光層は、それぞれ、正孔輸送材料、発光材料を真空蒸着法、もしくは有機溶媒中に溶解或いは分散し、得られた塗布液を用いて前記透明電極上にスピンコーティング法、ディップ法等を用いて成膜することにより形成する。

【0058】

形成される正孔輸送層、発光層および電子輸送層の膜厚は、各々0.1μm以下、特に0.03～0.08μmの範囲であることが好ましい。また、キャリア輸送能を持つ発光層の膜厚は、0.03～0.2μm程度が好ましい。正孔輸送材料、発光材料、電子輸送材料の分散状態は分子分散状態でも微粒子分散状態でも構わない。

【0059】

塗布液を用いた成膜法の場合、分子分散状態とするためには、分散溶媒は正孔輸送材料、発光材料、電子輸送材料の共通溶媒を用いる必要があり、微粒子分散状態とするために分散溶媒は正孔輸送材料、発光材料、電子輸送材料の分散性および溶解性を考慮して選択する必要がある。微粒子状に分散するためには、ボールミル、サンドミル、ペイントシェイカー、アトライター、ボールミル、ホモジェナイザー、超音波法等が利用できる。

【0060】

本発明の有機EL素子は、一对の電極間に、例えば、4～20Vで、電流密度1～200mA/cm²の直流電圧を印加することによって発光させることができる。また、本発明の有機EL素子は、有機化合物層の少なくとも1層に、本発明の有機機能性材料の製造方法により得られた有機機能性材料を用いているため、従来の精製法を経て得られた同一の有機機能性材料を用いた場合と比較して、輝度や電気的特性、耐久性等の諸特性を更に改善することが出来る。

【実施例】

【0061】

以下、実施例によって本発明を説明する。ただし、これら各実施例は本発明を制限するものではない。

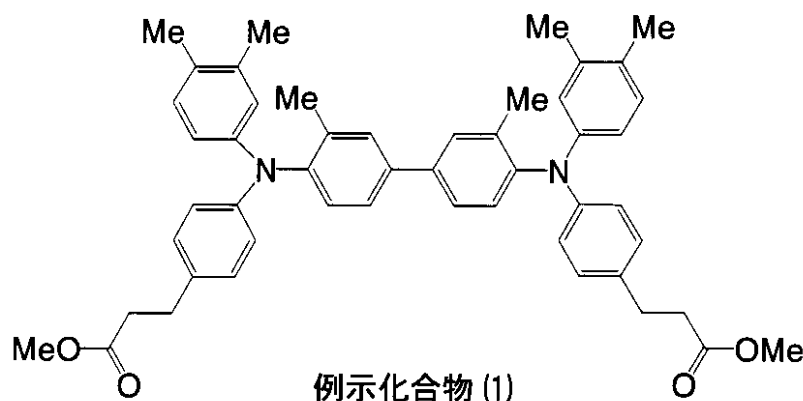
【0062】

(合成例1〔例示化合物(1)の合成〕)

N-(3,4-ジメチルフェニル)-N-[4-(2-メトキシカルボニルエチルフェニル)]-アミン2.5部、3,3'-ジメチル-4,4'-ジヨードビフェニル1.7部、炭酸カリウム1.4部、硫酸銅二水和物0.05部、トリデカン2.5部を50mlのフラスコに入れ、窒素気流下、200℃で4時間加熱攪拌した。3,3'-ジメチル-4,4'-ジヨードビフェニルが消費されたことを確認した後、トルエン50部で希釈し、ろ過により得られた溶液にヘキサン100部を加えて再結晶を行い、黄色結晶の例示化合物(1)(分子量=745)の粗精製品2.5部(酸化不純物濃度=0.5%)を得た。

【0063】

【化4】



【0064】

なお、粗精製品や後述する精製品の酸化不純物濃度は、島津製作所製のHPLC(高速液体クロマトグラフィー)分析装置を用いて測定した。主な測定条件は以下の通りである。

— 順相測定条件 —

- ・オートサンプラー：SIL-HTc
- ・液送ユニット：LC-10ADvp
- ・デガッサー：DGU-14A
- ・UV検出器：SPD-10AVvp
- ・カラムオーブン：CTO-10ACvp
- ・解析システム：C-R7Aplus

— 分析条件 —

- ・移動相：ヘキサン/THF(テトラヒドロフラン)=9/1
- ・流量：2ml/min
- ・カラム：Unisil Q 60(GLサイエンス社製、φ4.6×250mm)

- ・ カラム温度：40℃
- ・ 検出波長：313nm

【0065】

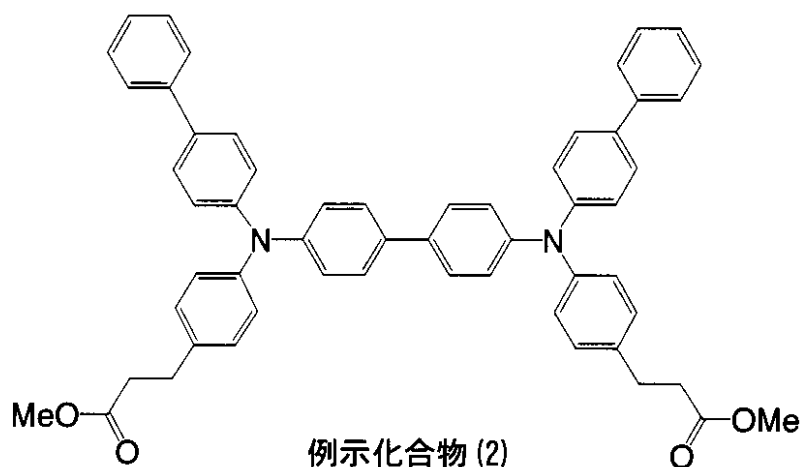
（合成例2〔例示化合物（2）の合成〕）

N-〔（4-フェニル）-フェニル〕-N-〔4-（2-メトキシカルボニルエチルフェニル）〕-アミン2.5部、4,4'-ジヨードビフェニル1.4部、炭酸カリウム1.2部、硫酸銅二水和物0.1部、トリデカン5部を50mlのフラスコに入れ、窒素気流下、200℃で4時間加熱攪拌した。4,4'-ジヨードビフェニルが消費されたことを確認した後、トルエン50部で希釈し、ろ過により得られた溶液にヘキサン100部を加えて再結晶を行い、黄色結晶の例示化合物（2）（分子量=812）の粗精製品2.2部（酸化不純物濃度=0.7%）を得た。

10

【0066】

【化5】



20

【0067】

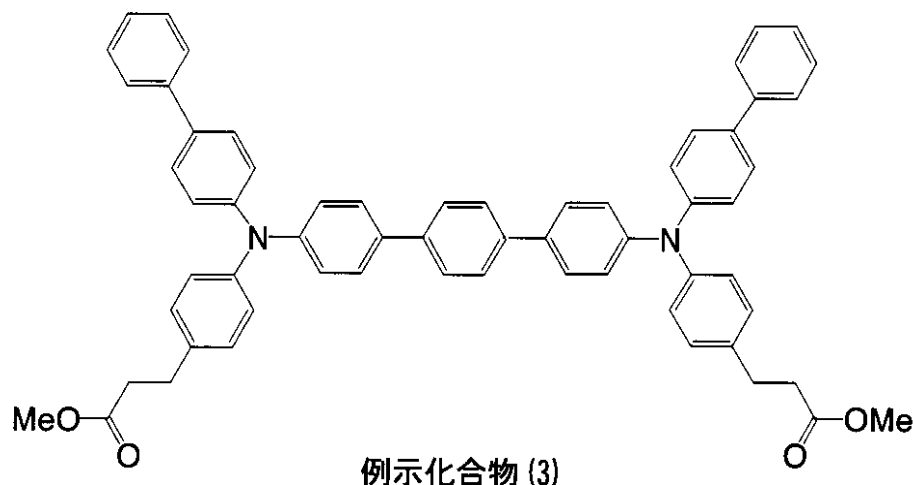
（合成例3〔例示化合物（3）の合成〕）

N-〔（4-フェニル）-フェニル〕-N-〔4-（2-メトキシカルボニルエチルフェニル）〕-アミン2.5部、4,4''-ジヨードターフェニル1.6部、炭酸カリウム1.2部、硫酸銅二水和物0.1部、トリデカン5部を50mlのフラスコに入れ、窒素気流下、200℃で9時間加熱攪拌した。4,4''-ジヨードターフェニルが消費されたことを確認した後、トルエン50部で希釈し、ろ過により得られた溶液にヘキサン100部を加えて再結晶を行い、黄色結晶の例示化合物（3）（分子量=889）の粗精製品2.3部（酸化不純物濃度=0.9%）を得た。

30

【0068】

【化 6】



10

【0069】

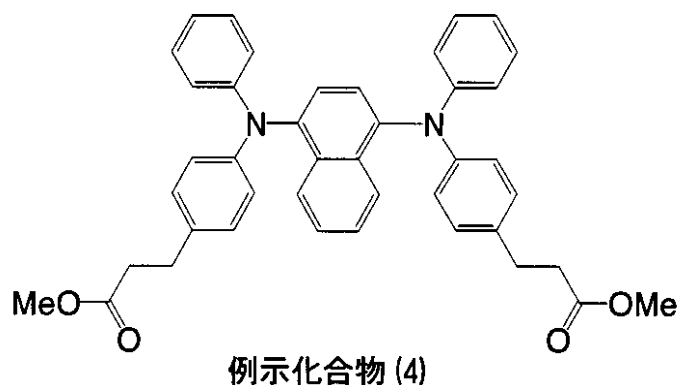
(合成例 4〔例示化合物 (4) の合成〕)

N-フェニル-N-[4-(2-メトキシカルボニルエチルフェニル)]アミン 2.5 部、1,6-ジオードナフタレン 2 部、炭酸カリウム 1.4 部、硫酸銅二水和物 0.05 部、トリデカン 2.5 部を 50 ml のフラスコに入れ、窒素気流下、200℃で 7 時間加熱撹拌した。1,6-ジオードナフタレンが消費されたことを確認した後、トルエン 50 部で希釈し、ろ過により得られた溶液にヘキサン 100 部を加えて再結晶を行い、黄色結晶の例示化合物 (4) (分子量 = 634) の粗精製品 1.9 部 (酸化不純物濃度 = 1.1%) を得た。

20

【0070】

【化 7】



30

【0071】

(合成例 5〔例示化合物 (1) の重合〕)

例示化合物 (1) の粗精製品 2 部、エチレングリコール 8 部およびテトラブトキシチタン 0.1 部を 50 ml のフラスコに入れ、窒素気流下、200℃で 4 時間加熱撹拌した。例示化合物 (1) が消費されたことを確認した後、0.5 mmHg に減圧してエチレングリコールを留去しながら 230℃に加熱し、4 時間反応を続けた。その後、室温まで冷却し、トルエン 50 部に溶解し、不溶物を 0.5 μm のポリテトラフルオロエチレン (PTFE) フィルターにてろ過した。得られたろ液をメタノール 1000 ml の撹拌した中に滴下してポリマーを析出させた。得られたポリマーをろ過し、十分にメタノールで洗浄した後乾燥させ、1.8 部の正孔輸送性ポリエステル (下記に示す例示化合物 (5)) を得た。分子量は GPC (ゲルパーミエーションクロマトグラフ法) にて測定したところ、重

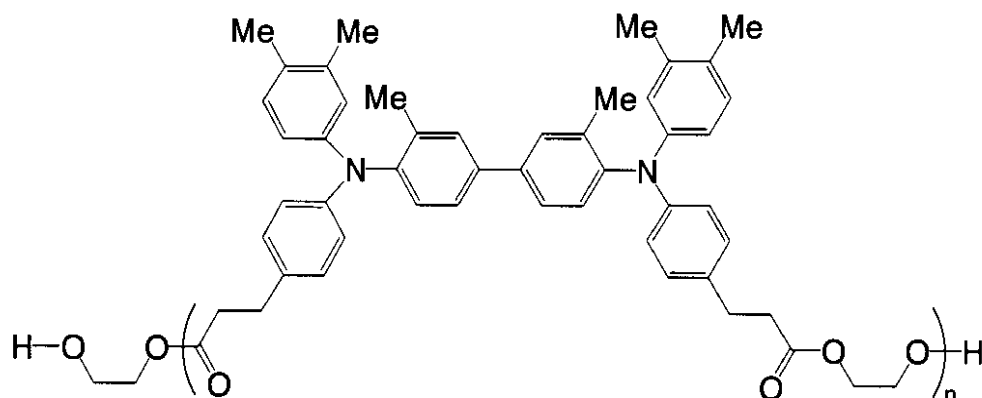
40

50

量平均分子量 $M_w = 1.15 \times 10^5$ (スチレン換算) だった。なお、下記に示す例示化合物 (5) の構造式において、 n は 1 以上の整数を意味する。

【0072】

【化8】



例示化合物 (5)

10

【0073】

(実施例 1)

合成例 1 で得られた例示化合物 (1) の粗精製品 1 部をトルエン 20 部およびメタノール 5 部に溶解させ、パラジウム-活性炭素 (和光純薬社製) 0.01 部を加えて水素雰囲気下で 24 時間室温で攪拌した。その後、ろ過によりパラジウム-活性炭素を分離し、トルエン/ヘキサン混合溶液から再結晶し、乾燥後白色の例示化合物 (1) の精製品を 0.7 部 (酸化不純物濃度 = 0%) 得た。

20

【0074】

次に、この還元処理された例示化合物 (1) を用いて以下のように有機 EL 素子を作製した。

まず、洗浄後乾燥させた 2 mm 幅の短冊型 ITO (Indium Tin Oxide) 電極をエッチングにより形成したガラス基板上にホール輸送材料として、例示化合物 (1) の精製品より構成される厚さ 0.050 μm のホール輸送層と、発光材料として昇華精製した Alq3 (トリス(8-キノリノレート)アルミニウム) より構成される厚さ 0.065 μm の発光層とを順次真空蒸着法により形成した。続いて Mg-Ag 合金を共蒸着により蒸着して 2 mm 幅、0.15 μm 厚の背面電極を ITO 電極と交差するように形成した。形成された有機 EL 素子の有効面積は 0.04 cm^2 であった。

30

【0075】

(比較例 1)

合成例 1 で得られた例示化合物 (1) の粗精製品をそのまま用いて正孔輸送層を形成した以外は実施例 1 と同様の操作を行い有機 EL 素子を作製した。

【0076】

(実施例 2)

合成例 2 で得られた例示化合物 (2) の粗精製品 1 部をトルエン 20 部およびメタノール 5 部に溶解させ、パラジウム-活性炭素 (和光純薬社製) 0.01 部を加えて水素雰囲気下で 24 時間室温で攪拌した。その後、ろ過によりパラジウム-活性炭素を分離し、トルエン/ヘキサンから再結晶し、乾燥後白色の例示化合物 (2) の精製品を 0.7 部 (酸化不純物濃度 = 0%) を得た。

40

【0077】

次に、この還元処理された例示化合物 (2) を用いて以下のように有機 EL 素子を作製した。

洗浄後乾燥させた 2 mm 幅の短冊型 ITO 電極をエッチングにより形成したガラス基板上にホール輸送材料として、例示化合物 (2) の精製品より構成される厚さ 0.050 μm

50

mのホール輸送層と、発光材料として昇華精製したAlq₃より構成される厚さ0.065 μmの発光層と、を順次真空蒸着法により形成した。続いてMg-Ag合金を共蒸着により蒸着して2 mm幅、0.15 μm厚の背面電極をITO電極と交差するように形成した。形成された有機EL素子の有効面積は0.04 cm²であった。

【0078】

(比較例2)

合成例2で得られた例示化合物(2)の粗精製品をそのまま用いて正孔輸送層を形成した以外は実施例2と同様の操作を行い有機EL素子を作製した。

【0079】

(実施例3)

合成例3で得られた例示化合物(3)の粗精製品1部をトルエン20部およびメタノール5部に溶解させ、パラジウム-活性炭素(和光純薬社製)0.01部を加えて水素雰囲気下で24時間室温で攪拌した。その後、ろ過によりパラジウム-活性炭素を分離し、トルエン/ヘキサンから再結晶し、乾燥後白色の例示化合物(3)の精製品を0.7部(酸化不純物濃度=0%)を得た。

【0080】

次に、この還元処理された例示化合物(3)を用いて以下のように有機EL素子を作製した。

洗浄後乾燥させた2 mm幅の短冊型ITO電極をエッチングにより形成したガラス基板上にホール輸送材料として例示化合物(3)の精製品より構成される厚さ0.050 μmのホール輸送層と、発光材料として昇華精製したAlq₃より構成される厚さ0.065 μmの発光層と、を順次真空蒸着法により形成した。続いてMg-Ag合金を共蒸着により蒸着して2 mm幅、0.15 μm厚の背面電極をITO電極と交差するように形成した。形成された有機EL素子の有効面積は0.04 cm²であった。

【0081】

(比較例3)

合成例3で得られた例示化合物(3)の粗精製品をそのまま用いて正孔輸送層を形成した以外は実施例3と同様の操作を行い有機EL素子を作製した。

【0082】

(実施例4)

合成例4で得られた例示化合物(4)の粗精製品1部をトルエン20部およびメタノール5部に溶解させ、パラジウム-活性炭素(和光純薬社製)0.01部を加えて水素雰囲気下で24時間室温で攪拌した。ろ過によりパラジウム-活性炭素を分離し、トルエン/ヘキサンから再結晶し、乾燥後白色の例示化合物(4)の精製品を0.7部(酸化不純物濃度=0%)を得た。

【0083】

次に、この還元処理された例示化合物(4)を用いて以下のように有機EL素子を作製した。

2 mm幅の短冊型にエッチングしたITOガラス基板を2-プロパノール(電子工業用、関東化学製)で超音波洗浄した後、乾燥させた。この基板上に、化合物(I-1)より構成される厚さ0.050 μmのホール輸送層と、発光材料として例示化合物(4)の精製品より構成される厚さ0.065 μmの発光層とを順次真空蒸着法により形成した。続いてMg-Ag合金を共蒸着により蒸着して2 mm幅、0.15 μm厚の背面電極をITO電極と交差するように形成した。形成された有機EL素子の有効面積は0.04 cm²であった。

【0084】

(比較例4)

合成例4で得られた例示化合物(4)の粗精製品をそのまま用いて発光層を形成した以外は実施例4と同様の操作を行い有機EL素子を作成した。

【0085】

10

20

30

40

50

(実施例 5)

合成例 5 で得られた例示化合物 (5) の粗精製品 2 部をトルエン 20 部およびメタノール 5 部に溶解させ、パラジウム-活性炭素 (和光純薬社製) 0.01 部を加えて水素雰囲気下で 24 時間室温で攪拌した。その後、ろ過によりパラジウム-活性炭素を分離し、大量のメタノール中に滴下してろ過により分離し、得られたポリマーをろ過し、十分にメタノールで洗浄した後乾燥させ、1.7 部の例示化合物 (5) の精製品を得た。

【0086】

次に、この還元処理された例示化合物 (5) を用いて以下のように有機 EL 素子を作製した。

2 mm 幅の短冊型にエッチングした ITO ガラス基板を 2-プロパノール (電子工業用、関東化学製) で超音波洗浄した後、乾燥させた。この基板の上にホール輸送材料として例示化合物 (5) の精製品を 5 重量 % の割合でジクロロエタンに溶解し、目開き 0.1 μm のポリテトラフルオロエチレン (PTFE) フィルターでろ過して得られた溶液をスピコート法により膜厚 0.050 μm の正孔輸送層を形成した。

【0087】

この正孔輸送層を十分に乾燥させた後、発光材料として昇華精製した Alq3 をタングステンボートに入れ、真空蒸着法により蒸着して正孔輸送層上に膜厚 0.05 μm の発光層を形成した。このときの真空度は 10^{-5} Torr、ボート温度は 300 $^{\circ}\text{C}$ だった。続いて Mg-Ag 合金を共蒸着により蒸着して 2 mm 幅、0.15 μm 厚の背面電極を ITO 電極と交差するように形成した。形成された有機 EL 素子の有効面積は 0.04 cm^2 であった。

【0088】

(実施例 6 [還元処理済み低分子の重合])

実施例 1 で得られた例示化合物 (1) の精製品 0.7 部を合成例 5 と同様の操作を行い重合し、0.6 部の例示化合物 (5) を得た。続いて、この例示化合物 (5) を用いて、以下のように有機 EL 素子を作製した。

2 mm 幅の短冊型にエッチングした ITO ガラス基板を 2-プロパノール (電子工業用、関東化学製) で超音波洗浄した後、乾燥させた。この基板の上にホール輸送材料として例示化合物 (1) の精製品を重合して得られた例示化合物 (5) を 5 重量 % の割合でジクロロエタンに溶解し、0.1 μm のポリテトラフルオロエチレン (PTFE) フィルターでろ過して得られた溶液をスピコート法により膜厚 0.050 μm の正孔輸送層を形成した。

【0089】

この正孔輸送層を十分に乾燥させた後、発光材料として昇華精製した Alq3 をタングステンボートに入れ、真空蒸着法により蒸着して正孔輸送層上に膜厚 0.05 μm の発光層を形成した。このときの真空度は 10^{-5} Torr、ボート温度は 300 $^{\circ}\text{C}$ だった。続いて Mg-Ag 合金を共蒸着により蒸着して 2 mm 幅、0.15 μm 厚の背面電極を ITO 電極と交差するように形成した。形成された有機 EL 素子の有効面積は 0.04 cm^2 であった。

【0090】

(比較例 5)

合成例 5 で得られた例示化合物 (5) の粗精製品をそのまま用いて正孔輸送層を形成した以外は実施例 5 と同様の操作を行い有機 EL 素子を作成した。

【0091】

(実施例 7)

定法により作製された下記に示す例示化合物 (6) (重量平均分子量 $M_w = 8.01 \times 10^4$) の粗精製品 2 g をトルエン 100 部およびメタノール 20 部に溶解させた後、パラジウム-活性炭素 (和光純薬社製) 0.01 部を加えて水素雰囲気下で 24 時間室温で攪拌した。

その後、ろ過によりパラジウム-活性炭素を分離し、得られたろ液をメタノール 100

10

20

30

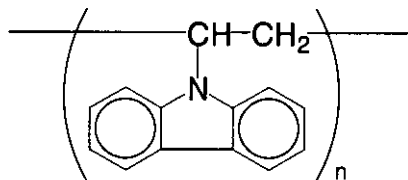
40

50

0 m l の攪拌した中に滴下してポリマーを析出させた。得られたポリマーをろ過し、十分にメタノールで洗浄した後乾燥させ、1.6 g の例示化合物 (6) の精製品を得た。なお、下記に示す例示化合物 (6) の構造式において、n は 1 以上の整数を意味する。

【0092】

【化9】



例示化合物 (6)

10

【0093】

次に、この還元処理された例示化合物 (6) を用いて以下のように有機 EL 素子を作製した。

2 mm 幅の短冊型にエッチングした ITO ガラス基板を 2-プロパノール (電子工業用、関東化学製) で超音波洗浄した後、乾燥させた。この基板の上にホール輸送材料として例示化合物 (6) の精製品を 5 重量% の割合でジクロロエタンに溶解し、目開き 0.1 μm のポリテトラフルオロエチレン (PTFE) フィルターで濾過して得られた溶液をスピンコート法により膜厚 0.050 μm の正孔輸送層を形成した。

20

【0094】

この正孔輸送層を十分に乾燥させた後、発光材料として昇華精製した Alq₃ をタングステンボートに入れ、真空蒸着法により蒸着して正孔輸送層上に膜厚 0.05 μm の発光層を形成した。このときの真空度は 1.0×10^{-5} Torr、ボート温度は 300 °C だった。続いて Mg-Ag 合金を共蒸着により蒸着して 2 mm 幅、0.15 μm 厚の背面電極を ITO 電極と交差するように形成した。形成された有機 EL 素子の有効面積は 0.04 cm² であった。

【0095】

30

(比較例 6)

実施例 7 で用いた例示化合物 (6) の粗精製品をそのまま用いて正孔輸送層を形成した以外は実施例 6 と同様の操作を行い有機 EL 素子を作製した。

【0096】

(比較例 7)

合成例 1 で得られた例示化合物 (1) を真空度 = 1×10^{-3} Pa、処理温度 = 320 °C で昇華精製装置を用いて精製し、微黄色の例示化合物 (1) の昇華精製品を得た (酸化不純物濃度 = 0.2 %、収率 = 41 %)。

次に、この例示化合物 (1) の昇華精製品をそのまま用いて正孔輸送層を形成した以外は実施例 1 と同様の操作を行い有機 EL 素子を作製した。

40

【0097】

(比較例 8)

合成例 1 で得られた例示化合物 (1) を 1×10^{-3} Pa、300 °C で減圧蒸留法によって精製し、微黄色の例示化合物 (1) の蒸留精製品を得た (酸化不純物濃度 = 0.3 %、収率 = 47 %)。

次に、この例示化合物 (1) の蒸留精製品をそのまま用いて正孔輸送層を形成した以外は実施例 1 と同様の操作を行い、有機 EL 素子を作製した。

【0098】

(実施例 8)

実施例 1 においてパラジウム-活性炭素の代わりに酸化白金 (和光純薬社製) を用いて

50

白色の例示化合物（１）の精製品（酸化不純物濃度＝０％、収率＝７０％）を得た。例示化合物（１）の精製品をそのまま用いて正孔輸送層を形成した以外は実施例１と同様の操作を行い、有機ＥＬ素子を作製した。

【００９９】

（実施例９）

実施例１においてパラジウム－活性炭素の代わりにラネーニッケル（和光純薬社製）を用いて白色の例示化合物（１）の精製品（酸化不純物濃度＝０％、収率＝６９％）を得た。例示化合物（１）の精製品をそのまま用いて正孔輸送層を形成した以外は実施例１と同様の操作を行い、有機ＥＬ素子を作製した。

【０１００】

以上のように作製した有機ＥＬ素子を、真空中（ 10^{-3} Torr）でITO電極側をプラス、Mg-Ag背面電極をマイナスとして直流電圧を印加し、発光について測定を行い、このときの発光開始電圧、および、駆動電流＝ 20 mA/cm^2 におけるＥＬ素子の輝度を評価した。この評価結果を、用いた例示化合物の種類や精製処理の有無・種類、精製処理時の収率等と共に表１に示す。

【０１０１】

【表 1】

	発光開始電圧(V)	輝度(cd/m ²)	原料(精製処理対象物)		原料処理	触媒/担持体		収率(%)	処理済原料の重合処理
			例示化合物	分子量		Pd-活性炭素	Pd-活性炭素		
実施例1	5.0	850	例示化合物(1)	745	精製処理	Pd-活性炭素	—	70	—
比較例1	6.5	420	例示化合物(1)	745	還元処理	—	—	—	—
実施例2	3.0	1200	例示化合物(2)	812	還元処理	Pd-活性炭素	—	70	—
比較例2	4.5	630	例示化合物(2)	812	—	—	—	—	—
実施例3	2.5	1310	例示化合物(3)	889	還元処理	Pd-活性炭素	—	70	—
比較例3	3.5	720	例示化合物(3)	889	—	—	—	—	—
実施例4	4.0	880	例示化合物(4)	639	還元処理	Pd-活性炭素	—	70	—
比較例4	5.0	480	例示化合物(4)	639	—	—	—	—	—
実施例5	3.0	1100	例示化合物(5)	1.15 × 10 ⁵	還元処理	Pd-活性炭素	—	85	—
実施例6	2.5	1250	例示化合物(1)	745	還元処理	Pd-活性炭素	—	70	有り(合成例5に同じ)
比較例5	4.5	590	例示化合物(5)	1.15 × 10 ⁵	—	—	—	—	—
実施例7	4.0	1040	例示化合物(6)	8.01 × 10 ⁴	還元処理	Pd-活性炭素	—	80	—
比較例6	6.0	600	例示化合物(6)	8.01 × 10 ⁴	—	—	—	—	—
比較例7	6.0	550	例示化合物(1)	745	昇華精製	—	—	41	—
比較例8	6.2	520	例示化合物(1)	745	蒸留精製	—	—	41	—
実施例8	5.0	840	例示化合物(1)	745	還元処理	酸化白金	—	70	—
実施例9	5.1	820	例示化合物(1)	745	還元処理	ラネーニッケル	—	69	—

10

20

30

40

フロントページの続き

(51)Int.Cl.⁷

F I

テーマコード (参考)

C O 7 C 229/42

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

F ターム(参考) 3K007 AB03 AB06 AB08 AB11 DB03 FA01

4H006 AA02 AA03 AB46 AB91 AD31 BA21 BA25 BA26 BA61 BE20

BJ50 BT12 BU46

4J029 AA03 AB07 AE04 BA03 CH01 DA09 HA01 HB03A KH05

专利名称(译)	制备有机功能材料的方法，有机功能材料和使用其的有机电致发光器件		
公开(公告)号	JP2005225916A	公开(公告)日	2005-08-25
申请号	JP2004033657	申请日	2004-02-10
[标]申请(专利权)人(译)	富士施乐株式会社		
申请(专利权)人(译)	富士施乐株式会社		
[标]发明人	尾崎忠義 関三枝子 米山博人 奥田大輔 廣瀬英一 西野洋平 石井徹 森山弘朗 阿形岳 真下清和 佐藤克洋		
发明人	尾崎 忠義 関 三枝子 米山 博人 奥田 大輔 廣瀬 英一 西野 洋平 石井 徹 森山 弘朗 阿形 岳 真下 清和 佐藤 克洋		
IPC分类号	H01L51/50 C07C227/40 C07C229/42 C08G63/90 C09K11/06 H05B33/14		
FI分类号	C09K11/06.620 C09K11/06.690 C08G63/90 H05B33/14.B C07C227/40 C07C229/42		
F-TERM分类号	3K007/AB03 3K007/AB06 3K007/AB08 3K007/AB11 3K007/DB03 3K007/FA01 4H006/AA02 4H006/AA03 4H006/AB46 4H006/AB91 4H006/AD31 4H006/BA21 4H006/BA25 4H006/BA26 4H006/BA61 4H006/BE20 4H006/BJ50 4H006/BT12 4H006/BU46 4J029/AA03 4J029/AB07 4J029/AE04 4J029/BA03 4J029/CH01 4J029/DA09 4J029/HA01 4J029/HB03A 4J029/KH05 3K107/AA01 3K107/DD59 3K107/DD60 3K107/DD66 3K107/DD78 3K107/DD79 3K107/FF14 3K107/GG28		
代理人(译)	中岛敦 福田浩		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

要解决的问题：提供一种以高产率生产具有少量残余氧化组分的有机功能材料的方法，以提供通过该生产方法获得的有机功能材料，并提供使用该有机功能的有机电致发光元件材料。ŽSOLUTION：制备有机功能材料的方法的特征如下。通过将含有其氧化组分的有机功能材料溶解在有机溶剂中制备的溶液至少进行还原处理，以使溶液与还原催化剂和氢气接触。由此，获得纯化的有机功能材料。Ž

