

(19)日本国特許庁(J P)

(12) 公開特許公報 (A) (11)特許出願公開番号

特開2003 - 238516

(P2003 - 238516A)

(43)公開日 平成15年8月27日(2003.8.27)

| (51) Int.Cl ⁷ | 識別記号 | F I | テ-マコード [*] (参考) |
|--------------------------|------|---------------|--------------------------|
| C 0 7 C255/59 | | C 0 7 C255/59 | 3 K 0 0 7 |
| 211/59 | | 211/59 | 4 C 0 5 5 |
| 211/61 | | 211/61 | 4 H 0 0 6 |
| 255/52 | | 255/52 | |
| 255/58 | | 255/58 | |

審査請求 未請求 請求項の数 10 O L (全 27数) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2002 - 41472(P2002 - 41472)

(22)出願日 平成14年2月19日(2002.2.19)

(71)出願人 590000455
財団法人石油産業活性化センター
東京都港区虎ノ門四丁目3番9号

(71)出願人 000183646
出光興産株式会社
東京都千代田区丸の内3丁目1番1号

(72)発明者 岩隈 俊裕
千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

(72)発明者 弘中 義雄
千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

(74)代理人 100078732
弁理士 大谷 保

最終頁に続く

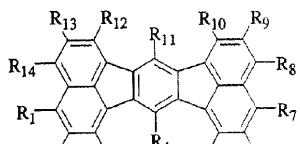
(54)【発明の名称】新規な縮合芳香族化合物及びそれを利用した有機エレクトロルミネッセンス素子

(57)【要約】

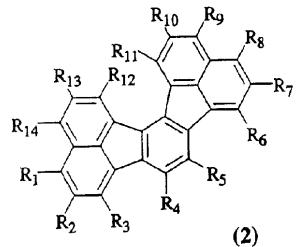
【課題】 発光輝度及び発光効率が高く、色純度が高く、赤色系に発光する有機EL素子を提供可能な新規な縮合芳香族化合物及びそれを利用した有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

【解決手段】 少なくともアミノ基と電子吸引性基とが結合したフルオランテン骨格を有する新規な縮合芳香族化合物、及び、陰極と陽極間に一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、前記縮合芳香族化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子である。

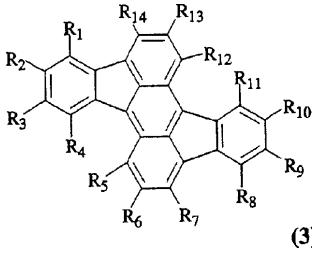
【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式(1)～(11)のいずれか^{*}

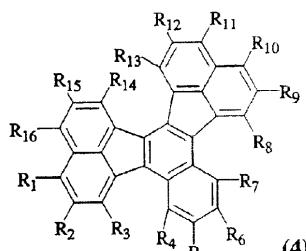
(1)



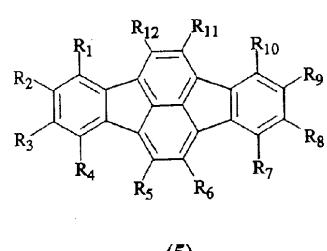
(2)



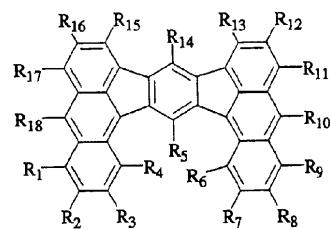
(3)



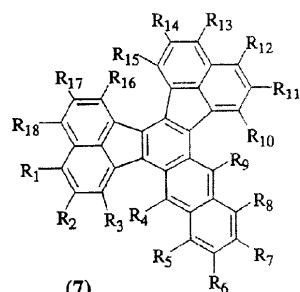
(4)



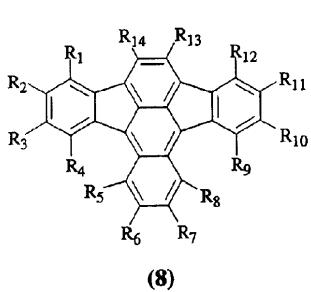
(5)



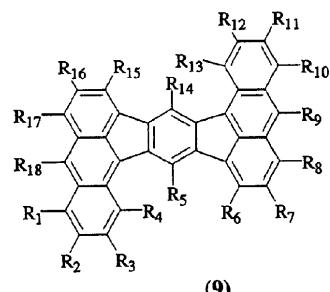
(6)



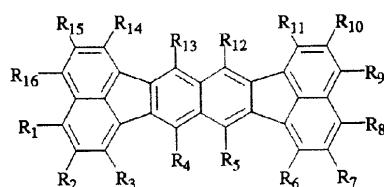
(7)



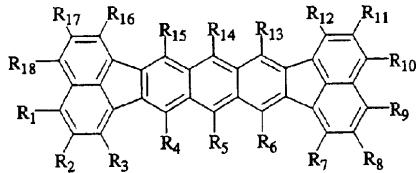
(8)



(9)



(10)



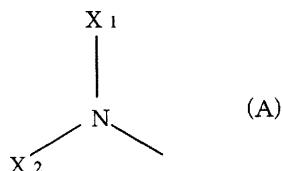
(11)

(式中、R₁～R₁₈は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリール基、炭素数3～20のトリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数4～30のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数7～40のアリールアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリールオキシ基、シアノ基、パーカルボロアルキル基、ニトロ基、ハロゲン基又は下記一般式(A)で表わされる基であって、一般式(1)～(3)及び(8)においては、R₁～R₁₄のうち少なくとも1つは下記一般式(A)で表わされる基である。また、R₁～R₁₄のうち少なくとも1つは電子吸引性の基であり、一般式(4)及び(10)においては、R₁～R₁₆のうち少なくとも1つは下記一般式(A)で表わされる基である。また、R₁～R₁₆のうち少なくとも1つは電子吸引性の基であり、一般式(5)においては、R₁～R₁₆のうち少なくとも1つは下記一般式(A)で表わされる基である。また、R₁～R₁₆のうち少なくとも1つは電子吸引性の基であり、一般式(6)、(7)、(9)及び(11)においては、R₁～R₁₈のうち少なくとも1つは下記一般式(A)で表わされる基である。また、R₁～R₁₈のうち少なくとも1つは電子吸引性の基である。また、R₁～R₁₈は互

少なくとも1つは下記一般式(A)で表わされる基であり、少なくとも1つは電子吸引性の基であり、一般式(4)及び(10)においては、R₁～R₁₆のうち少なくとも1つは下記一般式(A)で表わされる基であり、少なくとも1つは電子吸引性の基であり、一般式(5)においては、R₁～R₁₆のうち少なくとも1つは下記一般式(A)で表わされる基であり、少なくとも1つは電子吸引性の基であり、一般式(6)、(7)、(9)及び(11)においては、R₁～R₁₈のうち少なくとも1つは下記一般式(A)で表わされる基であり、少なくとも1つは電子吸引性の基である。また、R₁～R₁₈は互

いに隣接する基で環状構造を形成してもよい。)

【化2】



(式中、X₁及びX₂は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数7～40のアリールアルキル基、炭素数3～40の複素環基であり、X₁及びX₂は、互いに連結し環状構造を形成してもよい。また、X₁又はX₂とフルオランテン骨格基が互いに連結し、環状構造を形成してもよい。)

【請求項2】 有機エレクトロルミネッセンス素子用の有機化合物である請求項1に記載の縮合芳香族化合物。

【請求項3】 陰極と陽極間に一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、少なくともアミノ基と電子吸引性基とが結合したフルオランテン骨格を有する縮合芳香族化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項4】 陰極と陽極間に少なくとも発光層及び電子輸送層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該電子輸送層が、少なくともアミノ基と電子吸引性基とが結合したフルオランテン骨格を有する縮合芳香族化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項5】 陰極と陽極間に少なくとも発光層及び正孔輸送層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該正孔輸送層が、少なくともアミノ基と電子吸引性基とが結合したフルオランテン骨格を有する縮合芳香族化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項6】 陰極と陽極間に一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、請求項1に記載の縮合芳香族化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項7】 陰極と陽極間に少なくとも発光層及び電子輸送層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該電子輸送層が、請求項1に記載の縮合芳香族化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項8】 陰極と陽極間に少なくとも発光層及び正孔輸送層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該正孔輸送層が、請求項1に記載の縮合芳香族化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項9】 少なくとも一方の電極と前記有機薄膜層との間に無機化合物層を有する請求項3～8のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項10】 赤色系発光する請求項3～9のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、新規な縮合芳香族化合物及びそれを利用した有機エレクトロルミネッセンス素子(有機EL素子)に関し、特に、発光輝度及び発光効率が高く、色純度が高く、赤色系に発光する有機EL素子を提供可能な新規な縮合芳香族化合物及びそれを利用した有機EL素子に関するものである。

【0002】

【従来の技術】有機物質を使用した有機EL素子は、固体発光型の安価な大面積フルカラー表示素子としての用途が有望視され、多くの開発が行われている。一般に、有機EL素子は、発光層及び該層を挟んだ一对の対向電極から構成されている。有機EL素子の発光は、両電極間に電界が印加されると、陰極側から電子が注入され、陽極側から正孔が注入され、電子が発光層において正孔と再結合し、励起状態を生成し、励起状態が基底状態に戻る際にエネルギーを光として放出する現象である。最近では、有機EL素子ディスプレイの実用化が開始されているものの、フルカラー表示素子は開発途中である。特に、色純度及び発光効率が高く、赤色系に発光する有機EL素子及びそれを実現する発光材料が求められている。これらを解決しようとするものとして、例えば、特開平8-311442号公報には、ナフタセン又はペンタセン誘導体を発光層に添加した赤色発光素子が開示されているが、この発光素子は、赤色純度は優れているものの、印加電圧が11Vと高く輝度の半減時間は約150時間と不十分であった。特開平3-162481号公報には、ジシアノメチレン系化合物を発光層に添加した素子が開示されているが赤色の純度が不十分であった。

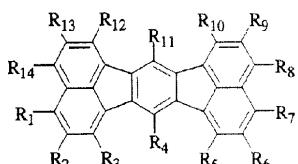
特開2001-81451号公報には、アミン系芳香族化合物を発光層に添加した赤色発光素子が開示され、この発光素子はCIE色度(0.64、0.33)の色純度を有しているものの駆動電圧が10V以上と高かった。特開平2001-160489号公報には、アザフルオランテン化合物を発光層に添加した素子が開示されているが、黄色から緑色の発光となり、十分な赤色を発光するに至っていない。

【0003】

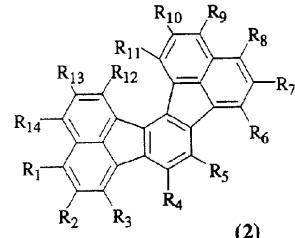
【発明が解決しようとする課題】本発明は、前記の課題を解決するためになされたもので、発光輝度及び発光効率が高く、色純度が高く、赤色系に発光する有機EL素子を提供可能な新規な縮合芳香族化合物及びそれを利用した有機EL素子を提供することである。

【0004】

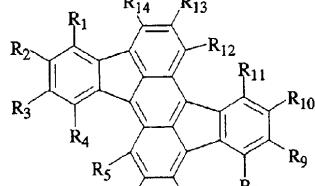
【課題を解決するための手段】本発明者らは、前記課題を解決するために鋭意検討した結果、アミノ基と電子吸引性基とが結合したフルオランテン骨格を有する化合物を有機EL素子の有機薄膜層の材料として用いることにより、前記の課題を解決することを見出し本発明を解決*



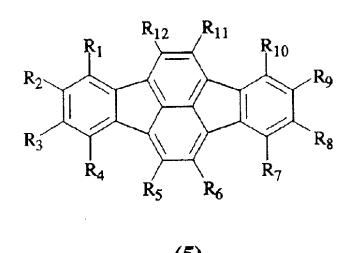
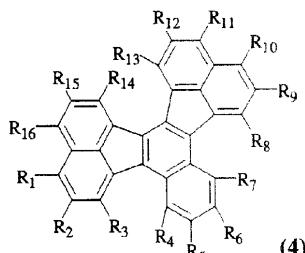
(1)



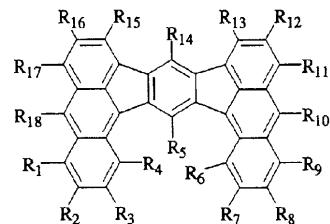
(2)



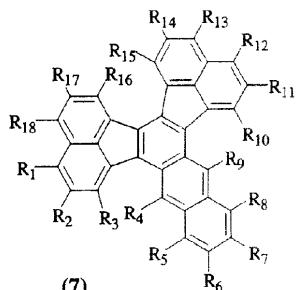
(3)



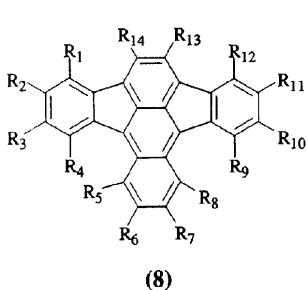
(5)



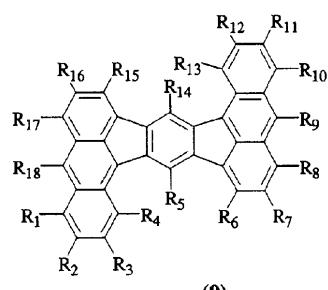
(6)



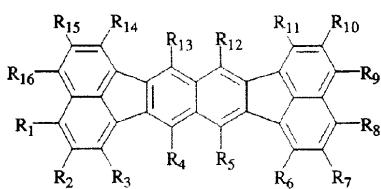
(7)



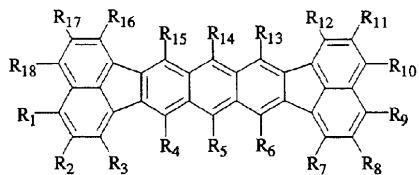
(8)



(9)



(10)



(11)

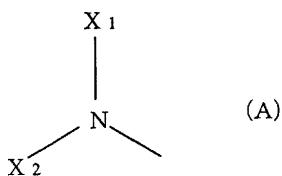
【0006】(式中、R₁ ~ R₁₈は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1~30のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1~30のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数6~40のアリール基、炭素数3~20のトリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数4~30のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数7~40のアリールアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6~40のアリールオキシ

基、シアノ基、パーフルオロアルキル基、ニトロ基、ハロゲン基又は下記一般式(A)で表わされる基であって、一般式(1)~(3)及び(8)においては、R₁ ~ R₁₄のうち少なくとも1つは下記一般式(A)で表わされる基であり、少なくとも1つは電子吸引性の基であり、一般式(4)及び(10)においては、R₁ ~ R₁₆のうち少なくとも1つは下記一般式(A)で表わされる基であり、少なくとも1つは電子吸引性の基であり、一

般式(5)においては、 $R_1 \sim R_{16}$ のうち少なくとも1つは下記一般式(A)で表わされる基であり、少なくとも1つは電子吸引性の基であり、一般式(6)、(7)、(9)及び(11)においては、 $R_1 \sim R_{18}$ のうち少なくとも1つは下記一般式(A)で表わされる基であり、少なくとも1つは電子吸引性の基である。また、 $R_1 \sim R_{18}$ は互いに隣接する基で環状構造を形成してもよい。)

【0007】

【化4】



(式中、 X_1 及び X_2 は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数7～40のアリールアルキル基、炭素数3～40の複素環基であり、 X_1 及び X_2 は、互いに連結し環状構造を形成してもよい。また、 X_1 又は X_2 とフルオランテン骨格基が互いに連結し、環状構造を形成してもよい。)

【0008】また、本発明は、陰極と陽極間に一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、少なくともアミノ基と電子吸引性基とが結合したフルオランテン骨格を有する縮合芳香族化合物を含有する有機EL素子を提供するものである。

【0009】

【発明の実施の形態】上記一般式(1)において、 $R_1 \sim R_{18}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリール基、炭素数3～20のトリアリアルキルシリル基、置換もしくは無置換の炭素数4～30のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数7～40のアリールアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリールオキシ基、シアノ基、パーフルオロアルキル基、ニトロ基、ハロゲン基又は下記一般式(A)で表わされる基であって、一般式(1)～(3)及び(8)においては、 $R_1 \sim R_{14}$ のうち少なくとも1つは下記一般式(A)で表わされる基であり、少なくとも1つは電子吸引性の基であり、一般式(4)及び(10)においては、 $R_1 \sim R_{16}$ のうち少なくとも1つは下記一般式(A)で表わされる基であり、少なくとも1つは電子吸引性の基であり、一般式(5)においては、 $R_1 \sim R_{16}$ のうち少なくとも1つは下記一般式(A)で表わされる基であり、少なくとも1つは電子吸引性の基である。

あり、一般式(6)、(7)、(9)及び(11)においては、 $R_1 \sim R_{18}$ のうち少なくとも1つは下記一般式(A)で表わされる基であり、少なくとも1つは電子吸引性の基である。また、 $R_1 \sim R_{18}$ は互いに隣接する基で環状構造を形成してもよい。

【0010】炭素数1～30のアルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1,2-ジヒドロキシエチル基、1,3-ジヒドロキシイソプロピル基、2,3-ジヒドロキシ-t-ブチル基、1,2,3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1,2-ジクロロエチル基、1,3-ジクロロイソプロピル基、2,3-ジクロロ-t-ブチル基、1,2,3-トリクロロブロピル基、プロモメチル基、1-プロモエチル基、2-プロモエチル基、2-プロモイソブチル基、1,2-ジプロモエチル基、1,3-ジプロモイソプロピル基、2,3-ジプロモ-t-ブチル基、1,2,3-トリプロモブロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1,2-ジヨードエチル基、1,3-ジヨードイソプロピル基、2,3-ジヨード-t-ブチル基、1,2,3-トリヨードブロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1,2-ジアミノエチル基、1,3-ジアミノイソブロピル基、2,3-ジアミノ-t-ブチル基、1,2,3-トリアミノブロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1,2-ジシアノエチル基、1,3-ジシアノイソブロピル基、2,3-ジシアノ-t-ブチル基、1,2,3-トリシアノブロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1,2-ジニトロエチル基、1,3-ジニトロイソブロピル基、2,3-ジニトロ-t-ブチル基、1,2,3-トリニトロブロピル基等が挙げられる。

【0011】炭素数1～30のアルコキシ基としては、-OYで表わされる基であり、Yの例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1,2-ジヒドロキシエチル基、1,3-ジヒドロキシイソプロピル基、2,3-ジヒドロキシ-t-ブチル基、1,2,3-トリヒドロキシプロピル基、ク

クロロメチル基、1 - クロロエチル基、2 - クロロエチル基、2 - クロロイソブチル基、1 , 2 - ジクロロエチル基、1 , 3 - ジクロロイソプロピル基、2 , 3 - ジクロロ - t - ブチル基、1 , 2 , 3 - トリクロロプロピル基、プロモメチル基、1 - プロモエチル基、2 - プロモエチル基、2 - プロモイソブチル基、1 , 2 - ジプロモエチル基、1 , 3 - ジプロモイソプロピル基、2 , 3 - ジプロモ - t - ブチル基、1 , 2 , 3 - トリプロモプロピル基、ヨードメチル基、1 - ヨードエチル基、2 - ヨードエチル基、2 - ヨードイソブチル基、1 , 2 - ジヨードエチル基、1 , 3 - ジヨードイソプロピル基、2 , 3 - ジヨード - t - ブチル基、1 , 2 , 3 - トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1 - アミノエチル基、2 - アミノエチル基、2 - アミノイソブチル基、1 , 2 - ジアミノエチル基、1 , 3 - ジアミノイソプロピル基、2 , 3 - ジアミノ - t - ブチル基、1 , 2 , 3 - トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1 - シアノエチル基、2 - シアノエチル基、2 - シアノイソブチル基、1 , 2 - ジシアノエチル基、1 , 3 - ジシアノイソプロピル基、2 , 3 - ジシアノ - t - ブチル基、1 , 2 , 3 - トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1 - ニトロエチル基、2 - ニトロエチル基、2 - ニトロイソブチル基、1 , 2 - ジニトロエチル基、1 , 3 - ジニトロイソプロピル基、2 , 3 - ジニトロ - t - ブチル基、1 , 2 , 3 - トリニトロプロピル基等が挙げられる。

【0012】炭素数6～40のアリール基としては、フェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントリル基、ナフタセニル基、ピレニル基、フルオレニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、スチルベン基等が挙げられる。炭素数3～20のトリアルキルシリル基としては、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、トリプロピルシリル基、トリブチルシリル基、トリペンチルシリル基、トリヘキシルシリル基、t-ブチルジメチルシリル基等が挙げられる。炭素数4～30のアルケニル基としては、ビニル基、アリル基、1-ブテニル基、2-ブテニル基、3-ブテニル基、1,3-ブタンジエニル基、1-メチルビニル基、スチリル基、2,2-ジフェニルビニル基、2,2-ジトリルビニル基、1,2-ジトリルビニル基、1-メチルアリル基、1-ジメチルアリル基、2-メチルアリル基、1-フェニルアリル基、2-フェニルアリル基、3-フェニルアリル基、3,3-ジフェニルアリル基、1,2-ジメチルアリル基、1-フェニル-1-ブテニル基、3-フェニル-1-ブテニル基等が挙げられる。

【0013】炭素数7～40のアリールアルキル基としては、ベンジル基、-メチルベンジル基、シンナミル基、-エチルベンジル基、-ジメチルベンジル基、4-メチルベンジル基、4-エチルベンジル基、2-tert-ブチルベンジル基、4-n-オクチルベンジル基、ナフチルメチル基、ジフェニルメチル基等が挙げられる。

げられる。炭素数6～40のアリールオキシ基としては、フェノキシ基、ナフチルオキシ基、アンスクルオキシ基、ピレニルオキシ基、ビフェニルオキシ基、フルオランテニルオキシ基、クリセニルオキシ基、ペリレニルオキシ基等が挙げられる。また、前記アルキル基、アルコキシ基、アリール基及びアルケニル基の置換基の例としては、ハロゲン原子、ヒドロキシリ基、置換もしくは無置換アミノ基、二トロ基、シアノ基、置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のアルケニル基、置換もしくは無置換のシクロアルキル基、置換もしくは無置換のアルコキシ基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、置換もしくは無置換のアラルキル基、置換もしくは無置換のアリールオキシ基、置換もしくは無置換のアルコキシカルボニル基、カルボキシリ基等が挙げられる。

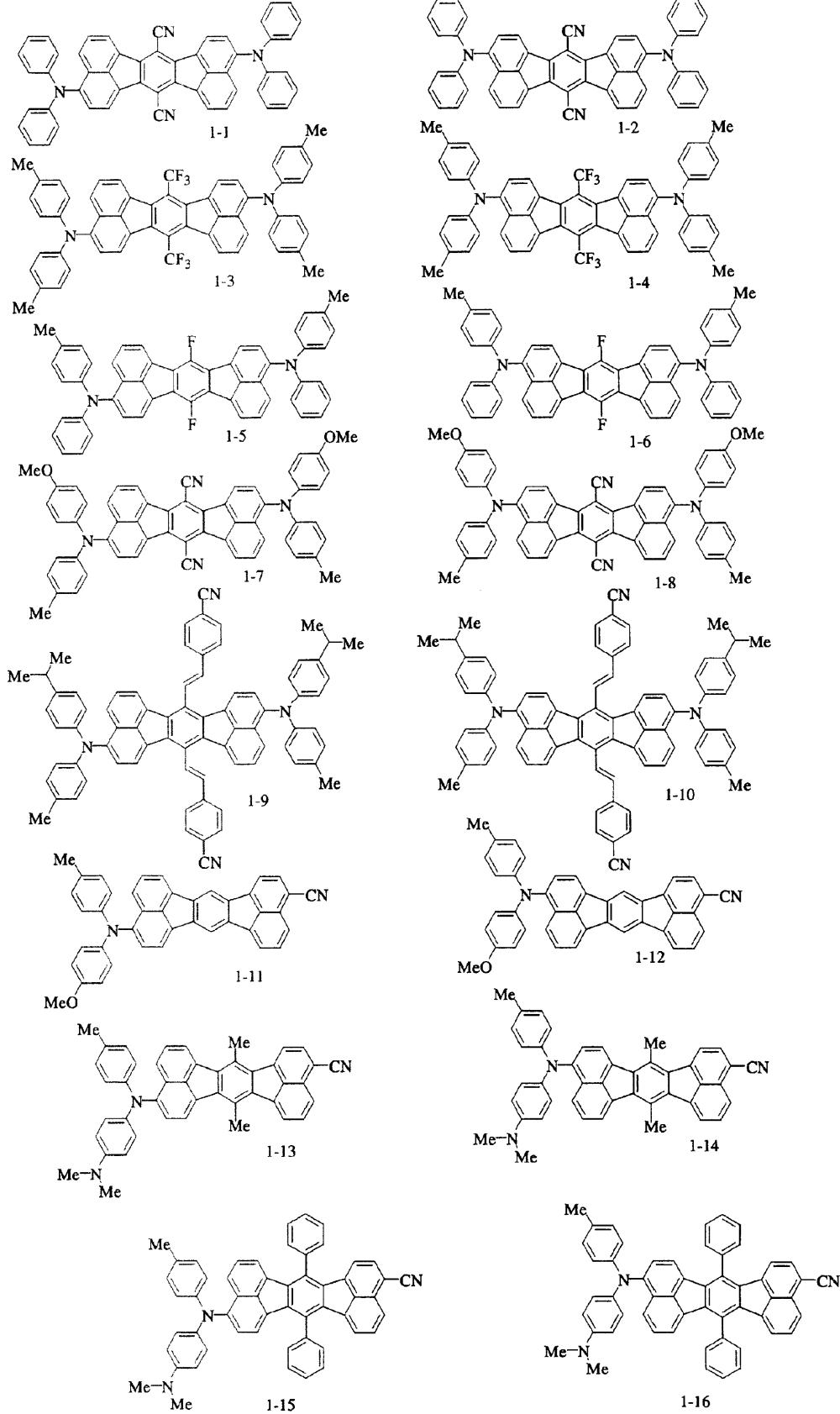
【0014】上記一般式(A)において、 X_1 及び X_2 は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数7～40のアリールアルキル基、炭素数3～40の複素環基であり、 X_1 及び X_2 は、互いに連結し環状構造を形成してもよい。また、 X_1 又は X_2 とフルオランテン骨格基が互いに連結し、環状構造を形成してもよい。置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基としては、前記と同様のものが挙げられる。置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリール基としては、前記と同様のものが挙げられる。

【0015】炭素数3～40の複素環基としては、1-アザ-インドリジン-2-イル基、1-アザ-インドリジン-3-イル基、1-アザ-インドリジン-5-イル基、1-アザ-インドリジン-7-イル基、1-アザ-インドリジン-8-イル基、2-アザ-インドリジン-1-イル基、2-アザ-インドリジン-3-イル基、2-アザ-インドリジン-5-イル基、2-アザ-インドリジン-6-イル基、2-アザ-インドリジン-7-イル基、2-アザ-インドリジン-8-イル基、6-アザ-インドリジン-1-イル基、6-アザ-インドリジン-2-イル基、6-アザ-インドリジン-3-イル基、6-アザ-インドリジン-5-イル基、6-アザ-インドリジン-7-イル基、6-アザ-インドリジン-8-イル基、7-アザ-インドリジン-1-イル基、7-アザ-インドリジン-2-イル基、7-アザ-インドリジン-3-イル基、7-アザ-インドリジン-5-イル基、7-アザ-インドリジン-6-イル基、7-アザ-インドリジン-7-イル基、7-アザ-インドリジン-8-イル基、8-アザ-インドリジン-1-イル基、8-アザ-インドリジン-2-イル基、8-アザ-インドリジン-3-イル基、8-アザ-インドリジン-5-イル基、8-アザ-インドリジン-6-イル基、8-アザ-インドリジン-8-イル基、

- 7 - イル基、1 - インドリジニル基、2 - インドリジニル基、3 - インドリジニル基、5 - インドリジニル基、6 - インドリジニル基、7 - インドリジニル基、8 - インドリジニル基、1 - ピロリル基、2 - ピロリル基、3 - ピロリル基、ピラジニル基、2 - ピリジニル基、3 - ピリジニル基、4 - ピリジニル基、1 - インドリル基、2 - インドリル基、3 - インドリル基、4 - インドリル基、5 - インドリル基、6 - インドリル基、7 - インドリル基、1 - イソインドリル基、2 - イソインドリル基、3 - イソインドリル基、4 - イソインドリル基、5 - イソインドリル基、6 - イソインドリル基、7 - イソインドリル基、2 - フリル基、3 - フリル基、2 - ベンゾフラニル基、3 - ベンゾフラニル基、4 - ベンゾフラニル基、5 - ベンゾフラニル基、6 - ベンゾフラニル基、7 - ベンゾフラニル基、1 - イソベンゾフラニル基、3 - イソベンゾフラニル基、4 - イソベンゾフラニル基、5 - イソベンゾフラニル基、6 - イソベンゾフラニル基、7 - イソベンゾフラニル基、2 - キノリル基、3 - キノリル基、4 - キノリル基、5 - キノリル基、6 - キノリル基、7 - キノリル基、8 - キノリル基、1 - イソキノリル基、3 - イソキノリル基、4 - イソキノリル基、5 - イソキノリル基、6 - イソキノリル基、7 - イソキノリル基、8 - イソキノリル基、2 - キノキサリニル基、5 - キノキサリニル基、6 - キノキサリニル基、1 - カルバゾリル基、2 - カルバゾリル基、3 - カルバゾリル基、4 - カルバゾリル基、9 - カルバゾリル基、1 - フェナンスリジニル基、2 - フェナンスリジニル基、3 - フェナンスリジニル基、4 - フェナンスリジニル基、6 - フェナンスリジニル基、7 - フェナンスリジニル基、8 - フェナンスリジニル基、9 - フェナンスリジニル基、10 - フェナンスリジニル基、1 - アクリジニル基、2 - アクリジニル基、3 - アクリジニル基、4 - アクリジニル基、9 - アクリジニル基、1, 7 - フェナンスロリン - 2 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 3 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 4 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 5 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 6 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 8 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 9 - イル基、1, 7 - フェナンスロリン - 10 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 2 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 3 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 4 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 5 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 6 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 7 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 9 - イル基、1, 8 - フェナンスロリン - 10 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 2 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 3 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 4 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 5 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 6 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 7 - イル基、1, 9 - フェナンスロリン - 8 - イル基、1, 10 - フェナンスロリン - 2 - イル基、1, 10 - フェナンスロリン - 3 - イル基、1, 10 - フェナンスロリン - 5 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 1 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 3 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 4 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 5 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 6 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 7 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 8 - イル基、2, 9 - フェナンスロリン - 10 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 1 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 3 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 4 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 5 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 6 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 7 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 9 - イル基、2, 8 - フェナンスロリン - 10 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 1 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 4 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 5 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 6 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 8 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 9 - イル基、2, 7 - フェナンスロリン - 10 - イル基、1 - フェナジニル基、2 - フェナジニル基、1 - フェノチアジニル基、2 - フェノチアジニル基、3 - フェノチアジニル基、4 - フェノチアジニル基、10 - フェノチアジニル基、1 - フェノキサジニル基、2 - フェノキサジニル基、3 - フェノキサジニル基、4 - フェノキサジニル基、10 - フェノキサジニル基、2 - オキサゾリル基、4 - オキサゾリル基、5 - オキサゾリル基、2 - オキサジアゾリル基、5 - オキサジアゾリル基、3 - フラザニル基、2 - チエニル基、3 - チエニル基、2 - メチルピロール - 1 - イル基、2 - メチルピロール - 3 - イル基、2 - メチルピロール - 4 - イル基、2 - メチルピロール - 5 - イル基、3 - メチルピロール - 1 - イル基、3 - メチルピロール - 2 - イル基、3 - メチルピロール - 4 - イル基、3 - メチルピロール - 5 - イル基、2 - t - プチルピロール - 4 - イル基、3 - (2 - フェニルプロピル)ピロール - 1 - イル基、2 - メチル - 1 - インドリル基、4 - メチル - 1 - インドリル基、2 - メチル - 3 - インドリル基、4 - メチル - 3 - インドリル基、2 - t - プチル1 - インドリル基、4 - t - プチル1 - インドリル基、2 - t - プチル3 - インドリル基、4 - t - プチル3 - インドリル基等が挙げられる。

【0016】また、前記アルキル基及びアリ - ル基の置換基の例としては、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、置換もしくは無置換アミノ基、ニトロ基、シアノ基、置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のアルケニル基、置換もしくは無置換のシクロアルキル基、置換もしくは無置換のアルコキシ基、置換もしくは無置

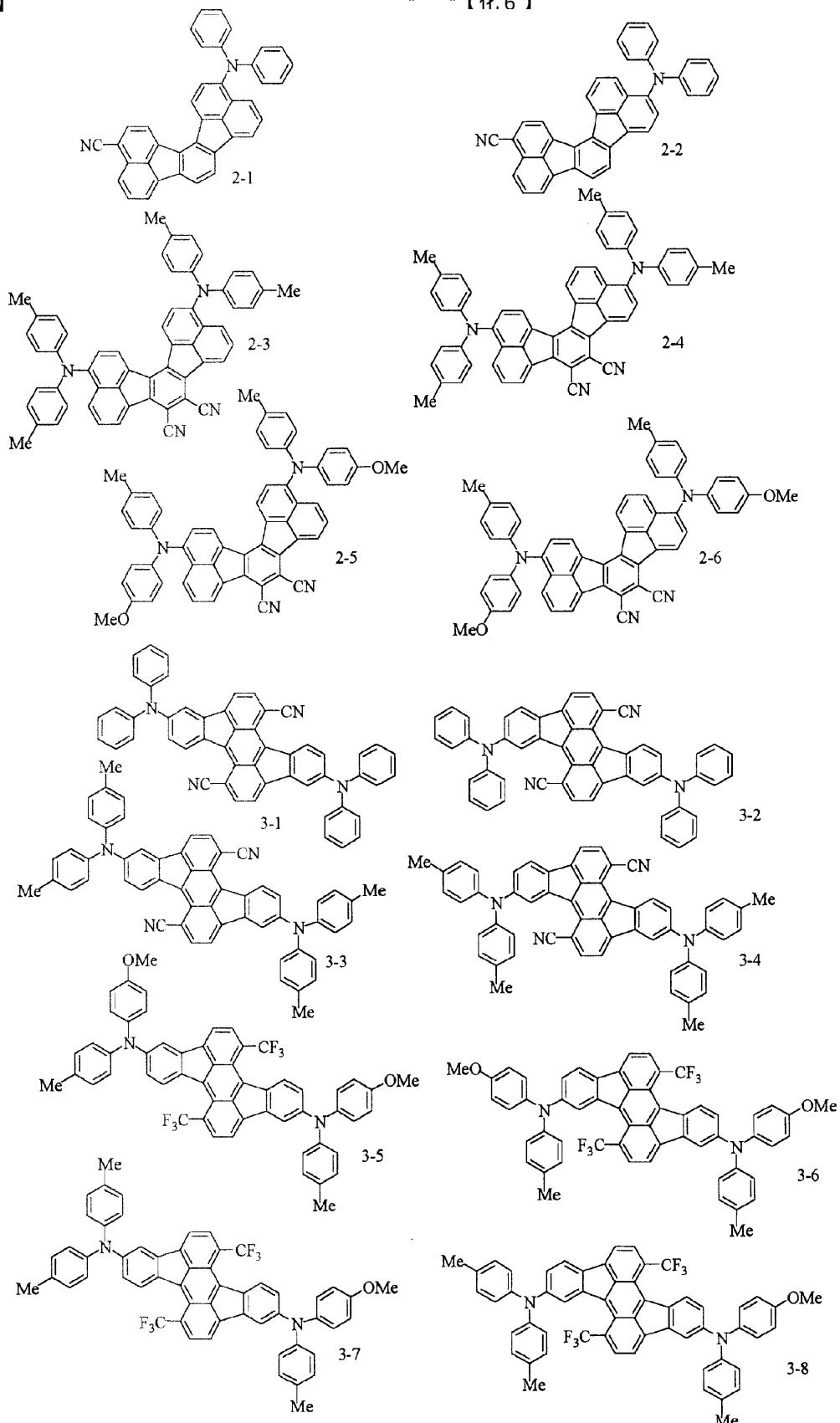
換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、置換もしくは無置換のアラルキル基、置換もしくは無置換のアリールオキシ基、置換もしくは無置換のアルコキシカルボニル基、カルボキシリ基等が挙げられる。



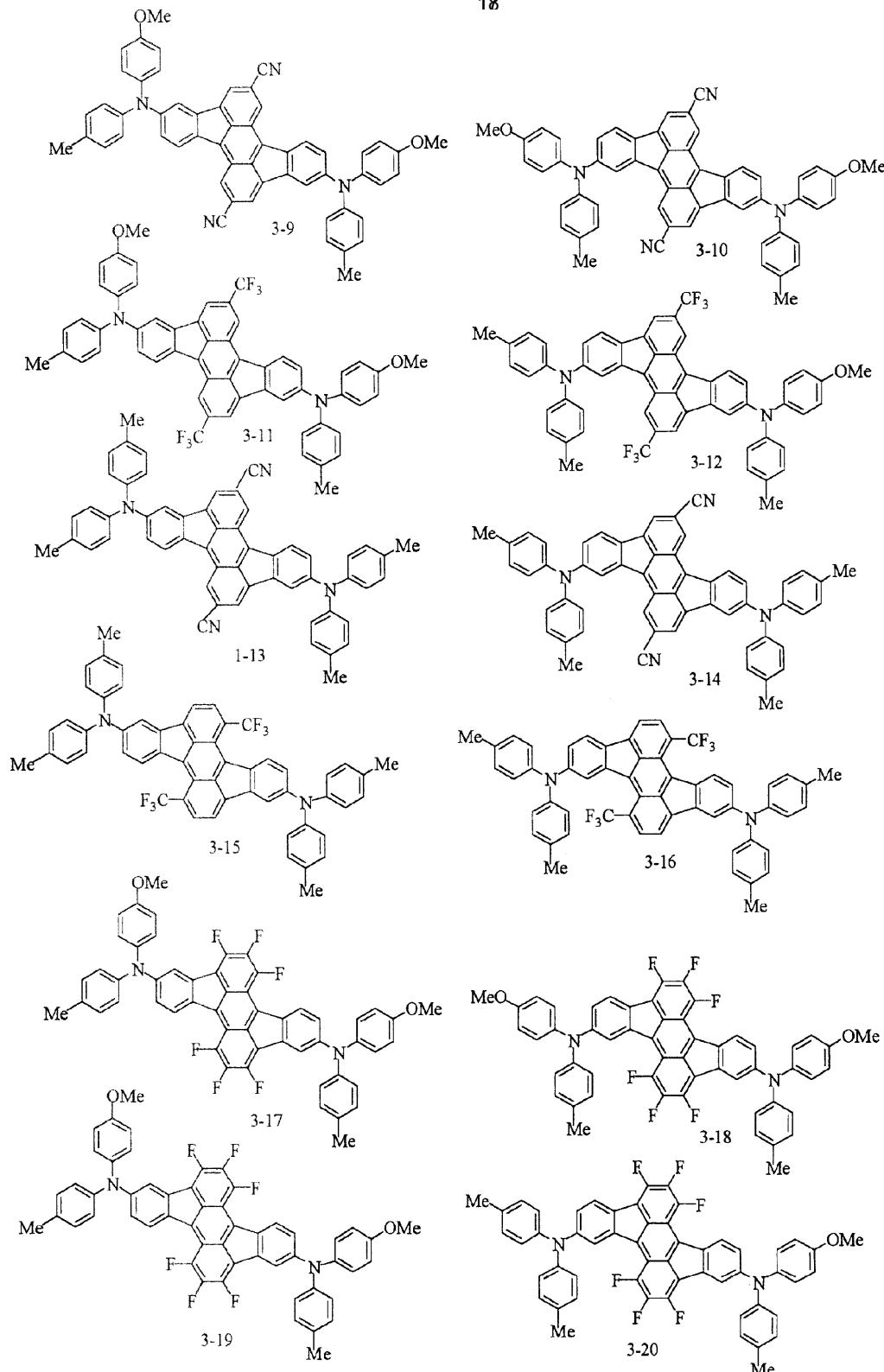
【0017】本発明の一般式(1)～(11)で表される新規な縮合芳香族化合物の具体例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。

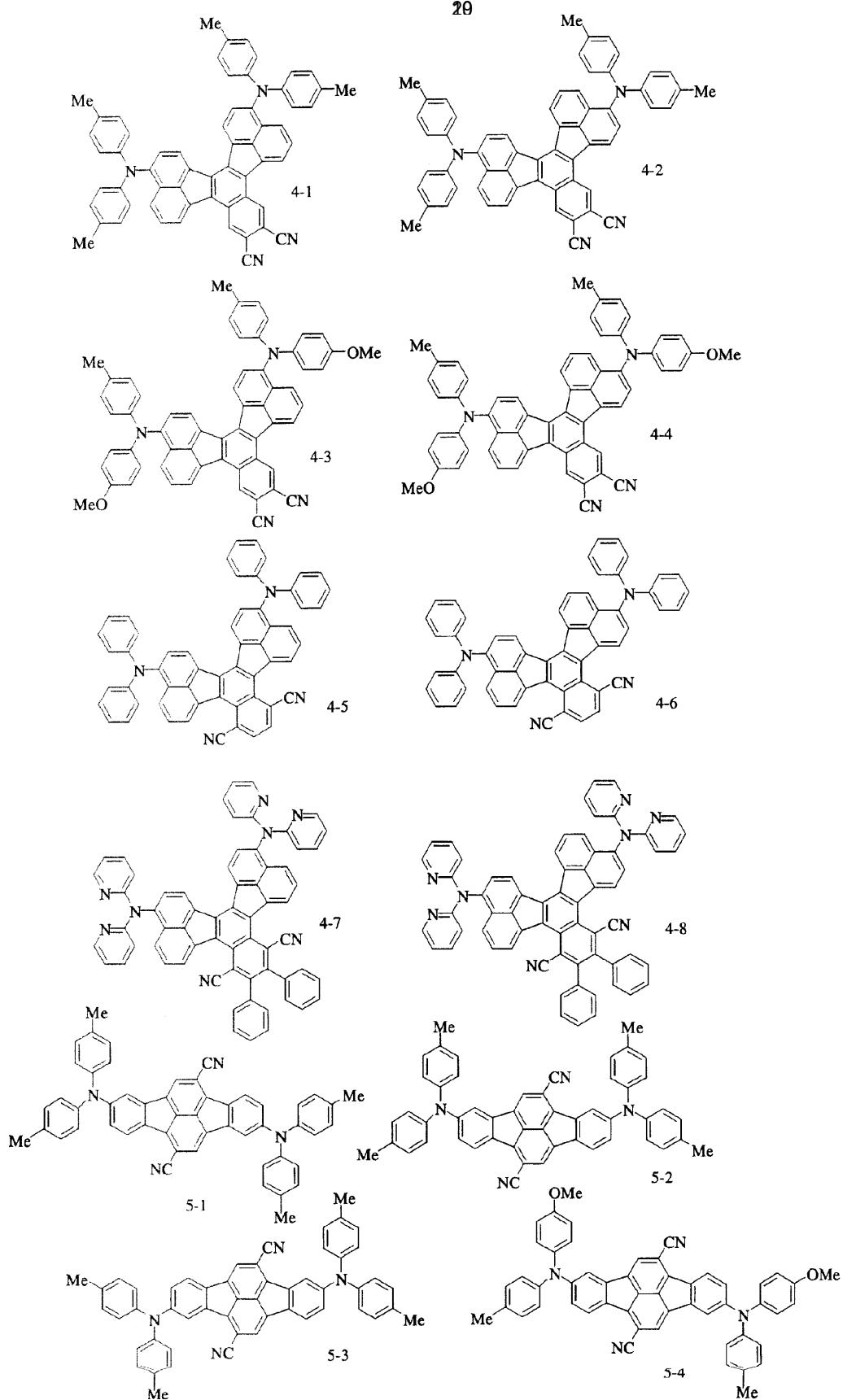
【化5】

【0018】



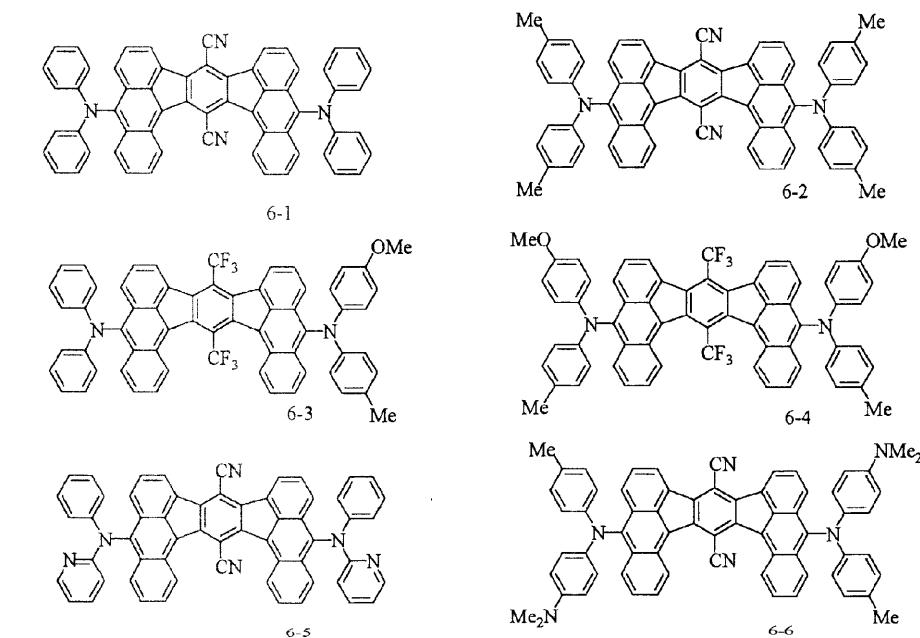
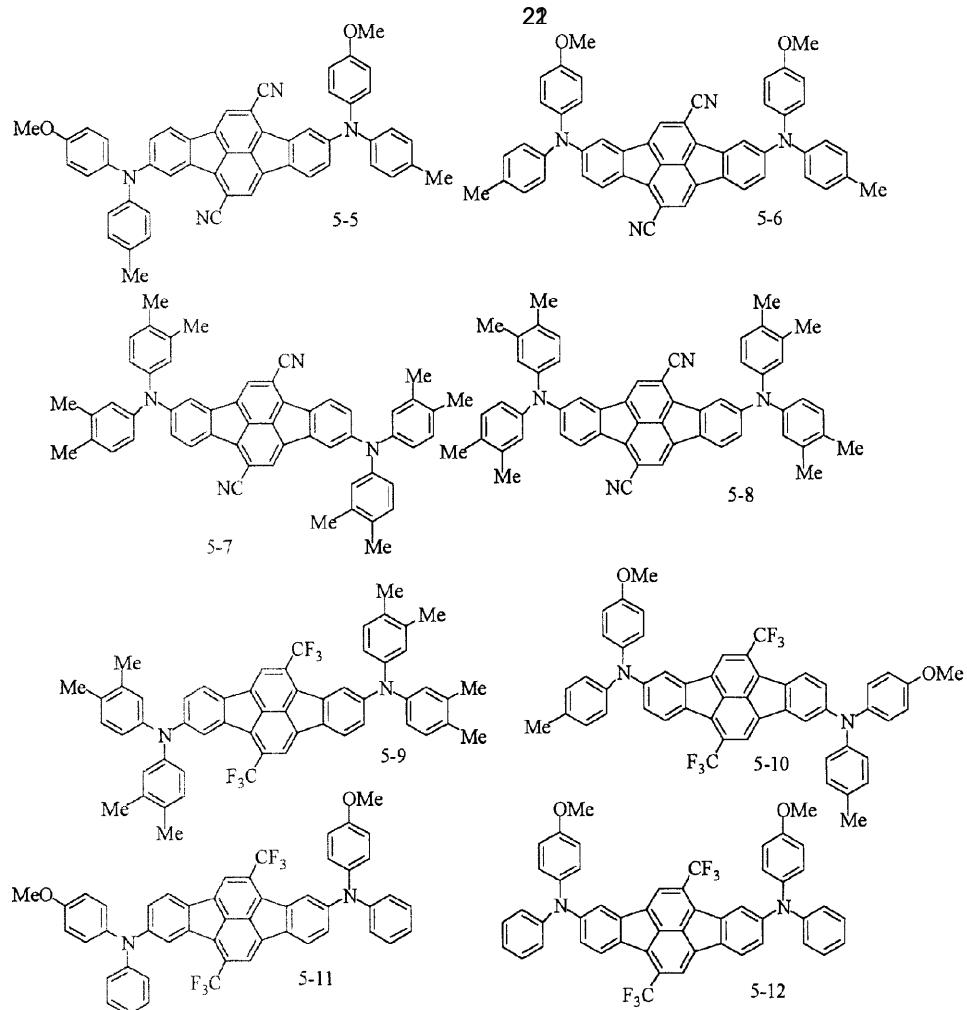
【0019】





【0021】

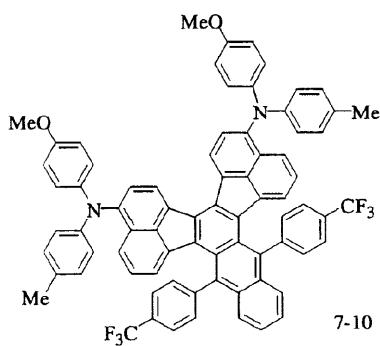
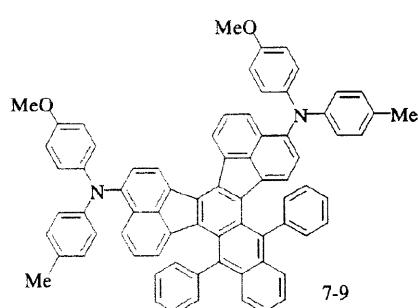
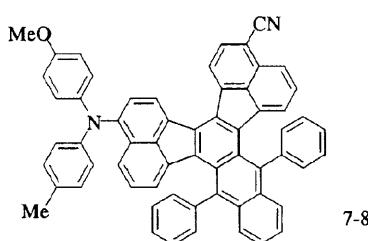
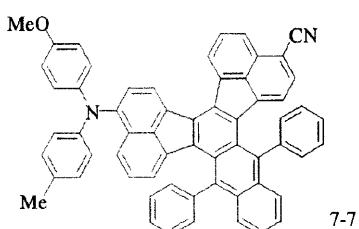
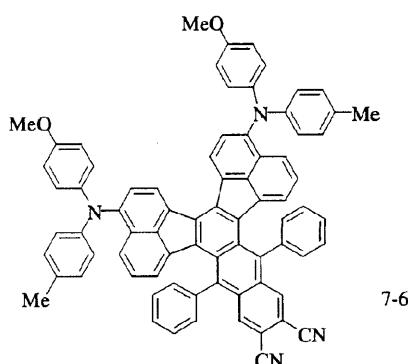
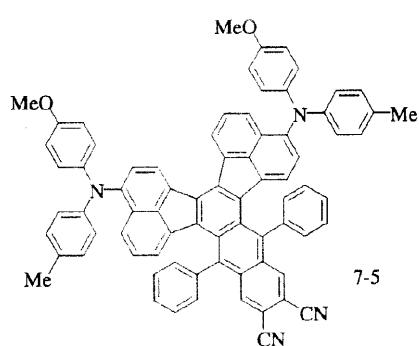
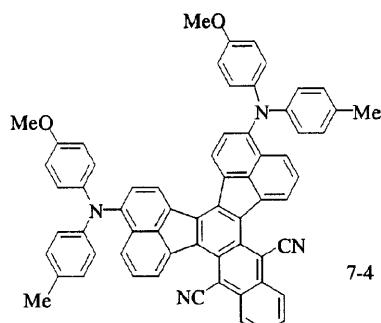
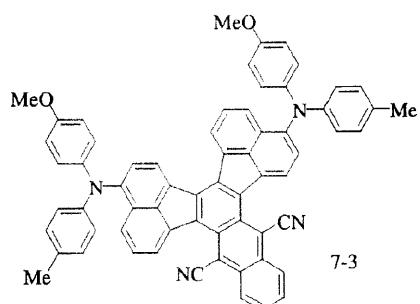
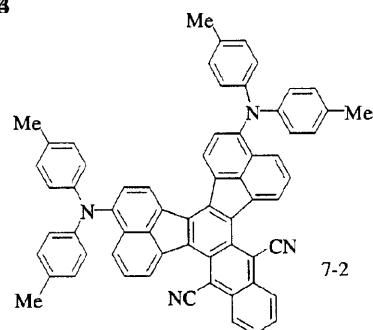
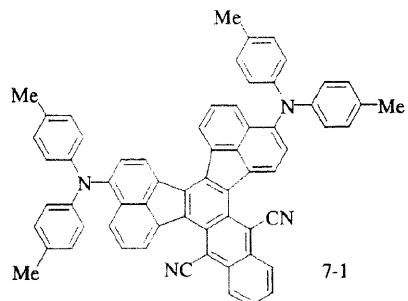
【化9】

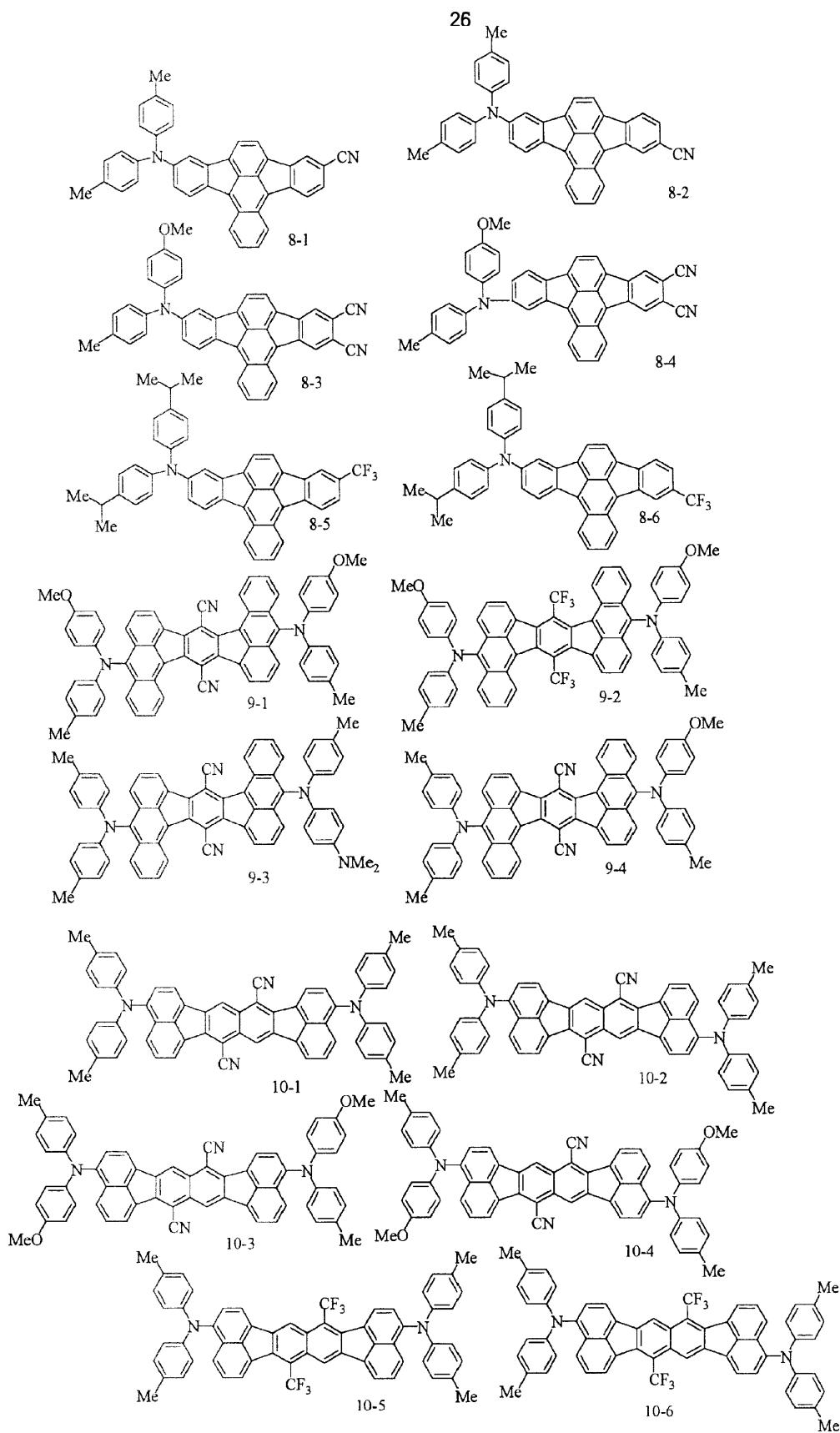


【0022】

【化10】

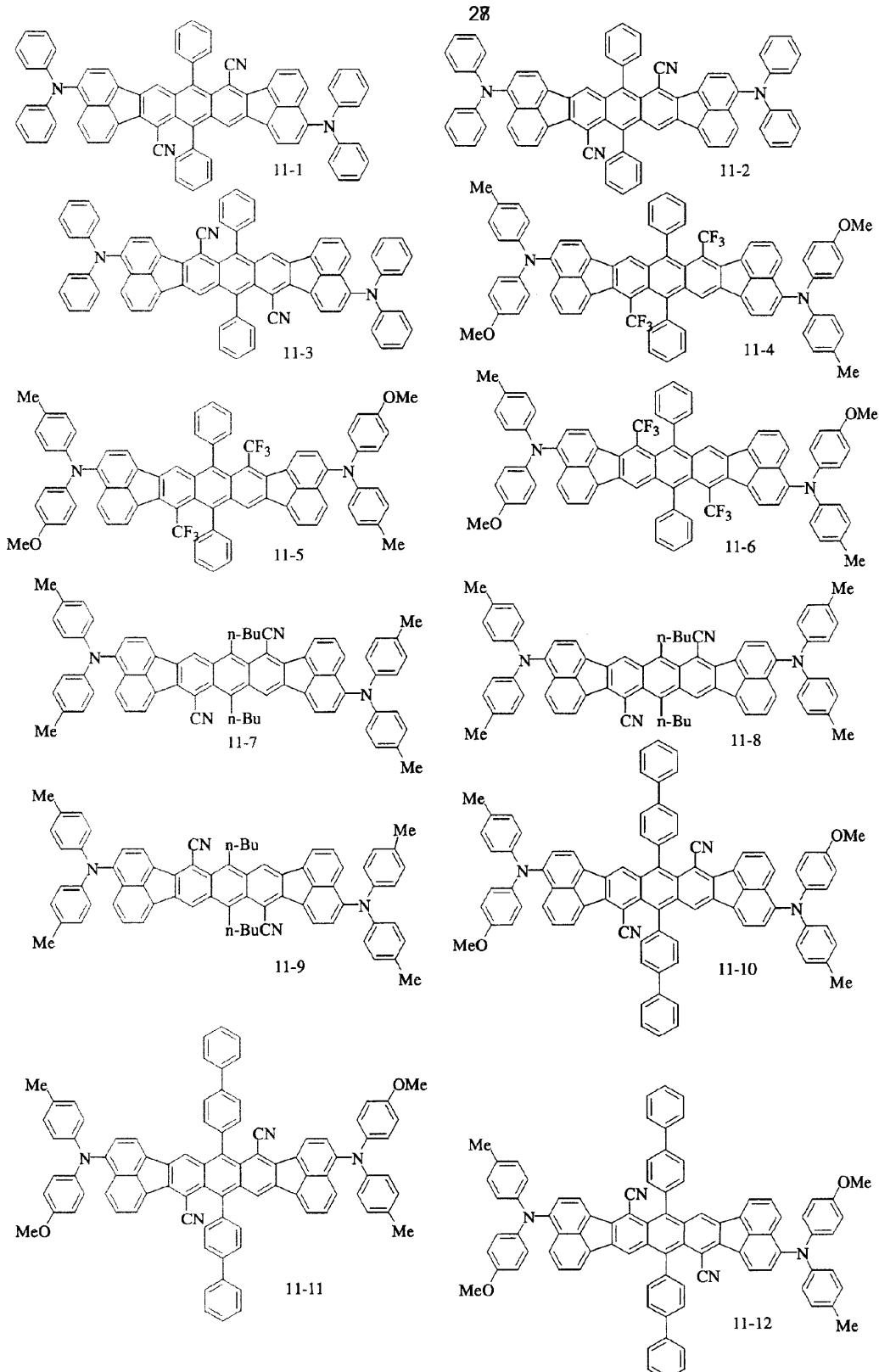
24





【0024】

【化12】



【0025】本発明の上記一般式(1)～(11)の縮合芳香族化合物は、有機EL素子用の有機化合物として使用することが好ましい。本発明の有機EL素子は、陰極と陽極間に一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機EL素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、少なくともアミノ基と電子吸引性基とが結合したフルオランテン骨格を有する縮合芳香族化合物

を含有する。少なくともアミノ基と電子吸引性基とが結合したフルオランテン骨格を有する縮合芳香族化合物が、上記一般式(1)～(11)のいずれかの新規縮合芳香族化合物であると好ましい。

【0026】本発明の有機EL素子は、前記したように陽極と陰極間に一層もしくは多層の有機薄膜層を形成した素子である。一層型の場合、陽極と陰極との間に発光

層を設けている。発光層は、発光材料を含有し、それに加えて陽極から注入した正孔、もしくは陰極から注入した電子を発光材料まで輸送させるために、正孔注入材料もしくは電子注入材料を含有してもよい。また、発光材料は、極めて高い蛍光量子効率、高い正孔輸送能力及び電子輸送能力を併せ持ち、均一な薄膜を形成することが好ましい。多層型の有機EL素子としては、(陽極/正孔注入層/発光層/陰極)、(陽極/発光層/電子注入層/陰極)、(陽極/正孔注入層/発光層/電子注入層/陰極)等の多層構成で積層したものがある。

【0027】発光層には、必要に応じて、本発明の一般式(1)~(11)のいずれかの化合物に加えてさらなる公知のホスト材料、発光材料、ドーピング材料、正孔注入材料や電子注入材料を使用し、組み合わせて使用することもできる。有機EL素子は、多層構造により、クエンチングによる輝度や寿命の低下を防ぐことができ、他のドーピング材料により、発光輝度や発光効率の向上、赤色や白色の発光を得ることもでき、りん光発光に寄与する他のドーピング材料と組み合わせて用いることにより、従来の発光輝度や発光効率を向上させることができる。また、本発明の有機EL素子における正孔注入層、発光層、電子注入層は、それぞれ二層以上の層構成により形成されてもよい。その際、正孔注入層の場合、電極から正孔を注入する層を正孔注入層、正孔注入層から正孔を受け取り発光層まで正孔を輸送する層を正孔輸送層と呼ぶ。同様に、電子注入層の場合、電極から電子を注入する層を電子注入層、電子注入層から電子を受け取り発光層まで電子を輸送する層を電子輸送層と呼ぶ。これらの各層は、材料のエネルギー準位、耐熱性、有機薄膜層もしくは金属電極との密着性等の各要因により選択されて使用される。

【0028】本発明の有機EL素子は、前記電子輸送層が、少なくともアミノ基と電子吸引性基とが結合したフルオランテン骨格を有する縮合芳香族化合物、好ましくは上記一般式(1)~(11)のいずれかの縮合芳香族化合物を含有してもよく、前記正孔輸送層が、少なくともアミノ基と電子吸引性基とが結合したフルオランテン骨格を有する縮合芳香族化合物、好ましくは上記一般式(1)~(11)のいずれかの新規縮合芳香族化合物を含有してもよい。

【0029】本発明の縮合芳香族化合物と共に有機薄膜層に使用できる発光材料又はホスト材料としては、アントラセン、ナフタレン、フェナントレン、ピレン、テトラセン、コロネン、クリセン、フルオレセイン、ペリレン、フタロペリレン、ナフタロペリレン、ペリノン、フタロペリノン、ナフタロペリノン、ジフェニルブタジエン、テトラフェニルブタジエン、クマリン、オキサジアゾール、アルダジン、ビスベンゾキサゾリン、ビススチリル、ピラジン、シクロペンタジエン、キノリン金属錯体、アミノキノリン金属錯体、ベンゾキノリン金属錯

体、イミン、ジフェニルエチレン、ビニルアントラセン、ジアミノアントラセン、ジアミノカルバゾール、ピラン、チオピラン、ポリメチン、メロシアニン、イミダゾールキレート化オキシノイド化合物、キナクリドン、ルブレン、スチルベン系誘導体及び蛍光色素等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

【0030】正孔注入材料としては、正孔を輸送する能力を持ち、陽極からの正孔注入効果、発光層又は発光材料に対して優れた正孔注入効果を有し、発光層で生成した励起子の電子注入層又は電子注入材料への移動を防止し、かつ薄膜形成能力の優れた化合物が好ましい。具体的には、フタロシアニン誘導体、ナフタロシアニン誘導体、ポルフィリン誘導体、オキサゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、イミダゾール、イミダゾロン、イミダゾールチオン、ピラゾリン、ピラゾロン、テトラヒドロイミダゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、ヒドラゾン、アシルヒドラゾン、ポリアリールアルカン、スチルベン、ブタジエン、ベンジジン型トリフェニルアミン、スチリルアミン型トリフェニルアミン、ジアミン型トリフェニルアミン等と、それらの誘導体、及びポリビニルカルバゾール、ポリシラン、導電性高分子等の高分子材料が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

【0031】これらの正孔注入材料の中で、さらに効果的な正孔注入材料は、芳香族三級アミン誘導体又はフタロシアニン誘導体である。芳香族三級アミン誘導体の具体例としては、トリフェニルアミン、トリトリルアミン、トリルジフェニルアミン、N,N'-ジフェニル-N,N'-(3-メチルフェニル)-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン、N,N,N',N'-((4-メチルフェニル)-1,1'-フェニル-4,4'-ジアミン、N,N,N',N'-((4-メチルフェニル)-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン、N,N'-ジフェニル-N,N'-ジナフチル-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン、N,N'-((メチルフェニル)-N,N'-((4-n-ブチルフェニル)-フェナントレン-9,10-ジアミン、N,N'-ビス(4-ジ-4-トリルアミノフェニル)-4-フェニル-シクロヘキサン等、又はこれらの芳香族三級アミン骨格を有したオリゴマーもしくはポリマーであるが、これらに限定されるものではない。フタロシアニン(Pc)誘導体の具体例は、H₂Pc、CuPc、CoPc、NiPc、ZnPc、PdPc、FePc、MnPc、ClAlPc、ClGaPc、ClInPc、ClSnPc、Cl₂SiPc、(HO)AlPc、(HO)GaPc、VOPc、TiOPc、MoOPc、GaPc-O-GaPc等のフタロシアニン誘導体及びナフタロシアニン誘導体であるが、これらに限定されるものではない。

【0032】電子注入材料としては、電子を輸送する能

力を持ち、陰極からの電子注入効果、発光層又は発光材料に対して優れた電子注入効果を有し、発光層で生成した励起子の正孔注入層への移動を防止し、かつ薄膜形成能力の優れた化合物が好ましい。具体的には、フルオレノン、アントラキノジメタン、ジフェノキノン、チオピランジオキシド、オキサゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、イミダゾール、ペリレンテトラカルボン酸、キノキサリン、フレオレニリデンメタン、アントラキノジメタン、アントロン等とそれらの誘導体が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

【0033】これらの電子注入材料の中で、さらに効果的な電子注入材料は、金属錯体化合物又は含窒素五員環誘導体である。金属錯体化合物の具体例は、8 - ヒドロキシキノリナートリチウム、ビス(8 - ヒドロキシキノリナート)亜鉛、ビス(8 - ヒドロキシキノリナート)銅、ビス(8 - ヒドロキシキノリナート)マンガン、トリス(8 - ヒドロキシキノリナート)アルミニウム、トリス(2 - メチル - 8 - ヒドロキシキノリナート)アルミニウム、トリス(8 - ヒドロキシキノリナート)ガリウム、ビス(10 - ヒドロキシベンゾ[*h*]キノリナート)ベリリウム、ビス(10 - ヒドロキシベンゾ[*h*]キノリナート)亜鉛、ビス(2 - メチル - 8 - キノリナート)クロロガリウム、ビス(2 - メチル - 8 - キノリナート)(o - クレゾラート)ガリウム、ビス(2 - メチル - 8 - キノリナート)(1 - ナフトラート)アルミニウム、ビス(2 - メチル - 8 - キノリナート)(2 - ナフトラート)ガリウム等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

【0034】また、含窒素五員誘導体は、オキサゾール、チアゾール、オキサジアゾール、チアジアゾールもしくはトリアゾール誘導体が好ましい。具体的には、2 , 5 - ビス(1 - フェニル) - 1 , 3 , 4 - オキサゾール、ジメチルPOPPOP、2 , 5 - ビス(1 - フェニル) - 1 , 3 , 4 - チアゾール、2 , 5 - ビス(1 - フェニル) - 1 , 3 , 4 - オキサジアゾール、2 - (4' - tert - プチルフェニル) - 5 - (4" - ピフェニル) 1 , 3 , 4 - オキサジアゾール、2 , 5 - ビス(1 - ナフチル) - 1 , 3 , 4 - オキサジアゾール、1 , 4 - ビス[2 - (5 - フェニルオキサジアゾリル)]ベンゼン、1 , 4 - ビス[2 - (5 - フェニルオキサジアゾリル) - 4 - tert - プチルベンゼン]、2 - (4' - tert - プチルフェニル) - 5 - (4" - ピフェニル) - 1 , 3 , 4 - チアジアゾール、2 , 5 - ビス(1 - ナフチル) - 1 , 3 , 4 - チアジアゾール、1 , 4 - ビス[2 - (5 - フェニルチアジアゾリル)]ベンゼン、2 - (4' - tert - プチルフェニル) - 5 - (4" - ピフェニル) - 1 , 3 , 4 - トリアゾール、2 , 5 - ビス(1 - ナフチル) - 1 , 3 , 4 - トリアゾール、1 , 4 - ビス[2 - (5 - フェニルトリアゾリル)]ベンゼン等が挙げられるが、これらに限定されるも

のではない。

【0035】また、正孔注入材料に電子受容物質を、電子注入材料に電子供与性物質を添加することにより電荷注入性を向上させることもできる。本発明の有機EL素子の陽極に使用される導電性材料としては、4 eVより大きな仕事関数を持つものが適しており、炭素、アルミニウム、バナジウム、鉄、コバルト、ニッケル、タンゲステン、銀、金、白金、パラジウム等及びそれらの合金、ITO基板、NESA基板に使用される酸化スズ、

酸化インジウム等の酸化金属、さらにはポリチオフェンやポリピロール等の有機導電性樹脂が用いられる。陰極に使用される導電性物質としては、4 eVより小さな仕事関数を持つものが適しており、マグネシウム、カルシウム、錫、鉛、チタニウム、イットリウム、リチウム、ルテニウム、マンガン、アルミニウム等及びそれらの合金が用いられるが、これらに限定されるものではない。合金としては、マグネシウム / 銀、マグネシウム / インジウム、リチウム / アルミニウム等が代表例として挙げられるが、これらに限定されるものではない。合金の比率は、蒸着源の温度、雰囲気、真密度等により制御され、適切な比率に選択される。陽極及び陰極は、必要があれば二層以上の層構成により形成されていてもよい。

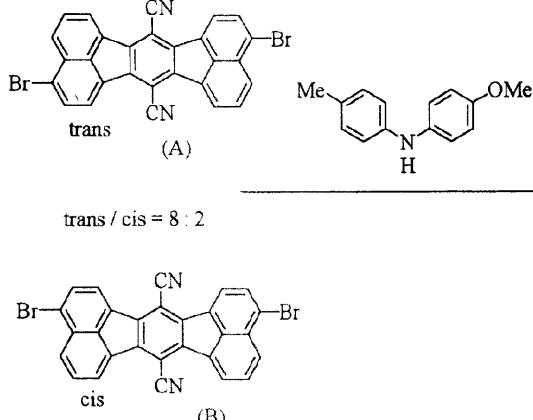
【0036】本発明の有機EL素子は、少なくとも一方の電極と前記有機薄膜層との間に無機化合物層を有していてもよい。無機化合物層に使用される好ましい無機化合物としては、アルカリ金属酸化物、アルカリ土類酸化物、希土類酸化物、アルカリ金属ハロゲン化物、アルカリ土類ハロゲン化物、希土類ハロゲン化物、SiO_x、AlO_x、SiN_x、SiON、AlON、GeO_x、LiO_x、LiON、TiO_x、TiON、TaO_x、TaON、TaN_x、Cなど各種酸化物、窒化物、酸化窒化物である。特に陽極に接する層の成分としては、SiO_x、AlO_x、SiN_x、SiON、AlON、GeO_x、Cが安定な注入界面層を形成して好ましい。また、特に陰極に接する層の成分としては、LiF、MgF₂、CaF₂、MgF₂、NaFが好ましい。

【0037】本発明の有機EL素子は、効率良く発光させるために、少なくとも一方の面は素子の発光波長領域において充分透明にすることが望ましい。また、基板も透明であることが望ましい。透明電極は、上記の導電性材料を使用して、蒸着やスパッタリング等の方法で所定の透光性が確保するように設定する。発光面の電極は、光透過率を10%以上にすることが望ましい。基板は、機械的、熱的強度を有し、透明性を有するものであれば限定されるものではないが、ガラス基板及び透明性樹脂フィルムが挙げられる。透明性樹脂フィルムとしては、ポリエチレン、エチレン - 酢酸ビニル共重合体、エチレン - ビニルアルコール共重合体、ポリプロピレン、ポリスチレン、ポリメチルメタアクリレート、ポリ塩化ビニル、ポリビニルアルコール、ポリビニルブチラール、ナ

イロン、ポリエーテルエーテルケトン、ポリサルホン、ポリエーテルサルフォン、テトラフルオロエチレン - パーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体、ポリビニルフルオライド、テトラフルオロエチレン - エチレン共重合体、テトラフルオロエチレン - ヘキサフルオロプロピレン共重合体、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリビニリデンフルオライド、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリウレタン、ポリイミド、ポリエーテルイミド、ポリイミド、ポリプロピレン等が挙げられる。

【0038】本発明の有機EL素子は、温度、湿度、雰囲気等に対する安定性の向上のために、素子の表面に保護層を設けたり、シリコンオイル、樹脂等により素子全体を保護することも可能である。本発明の有機EL素子の各層の形成は、真空蒸着、スパッタリング、プラズマ、イオンプレーティング等の乾式成膜法やスピンドローティング、ディッピング、フローコーティング等の湿式成膜法のいずれの方法を適用することができる。各層の膜厚は特に限定されるものではないが、適切な膜厚に設定する必要がある。膜厚が厚すぎると、一定の光出力を得るために大きな印加電圧が必要になり発光効率が悪くなる。膜厚が薄すぎるとピンホール等が発生して、電界を印加しても充分な発光輝度が得られない。通常の膜厚は5 nm～10 μmの範囲が適しているが、10 nm～0.2 μmの範囲がさらに好ましい。

【0039】湿式成膜法の場合、各層を形成する材料を、エタノール、クロロホルム、テトラヒドロフラン、ジオキサン等の適切な溶媒に溶解又は分散させて薄膜を*



【0041】100ミリリットルの3つ口フラスコに化合物(A)と化合物(B)の混合物(混合比8:2)

3.0 g (5.64 mmol)、4-メトキシ-4'-メチル-N,N-ジフェニルアミン2.75 g (12.9 mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0)103 mg (0.113 mmol)、(S)-(−)-BINAP(2,2'ビス(ジフェニルホスフィノ)1,1'ビナフチル)140 mg (0.226 mmol)、炭酸セシウム4.43 g (150

*形成するが、その溶媒はいずれであってもよい。また、いずれの層においても、成膜性向上、膜のピンホール防止等のため適切な樹脂や添加剤を使用してもよい。使用の可能な樹脂としては、ポリスチレン、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリエステル、ポリアミド、ポリウレタン、ポリスルファン、ポリメチルメタクリレート、ポリメチルアクリレート、セルロース等の絶縁性樹脂及びそれらの共重合体、ポリ-N-ビニルカルバゾール、ポリシラン等の光導電性樹脂、ポリチオフェン、ポリピロール等の導電性樹脂が挙げられる。また、添加剤としては、酸化防止剤、紫外線吸収剤、可塑剤等が挙げられる。以上のように、有機EL素子の有機薄膜層に本発明の新規縮合芳香族化合物を用いることにより、色純度及び発光効率が高く、赤色系に発光する有機EL素子を得ることができ、この有機EL素子は、例えば電子写真感光体、壁掛けテレビ用フラットパネルディスプレイ等の平面発光体、複写機、プリンター、液晶ディスプレイのバックライト又は計器類等の光源、表示板、標識灯、アクセサリー等に好適に用いられる。

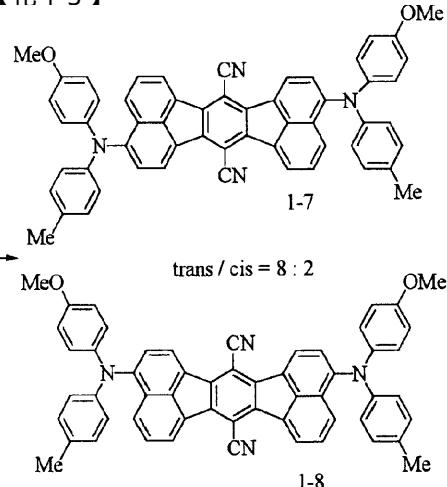
【0040】

【実施例】次に、実施例を用いて本発明をさらに詳しく説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

合成例1(化合物1-7及び1-8の合成)

縮合芳香族化合物(化合物1-7及び1-8)の合成経路を以下に示す。

【化13】



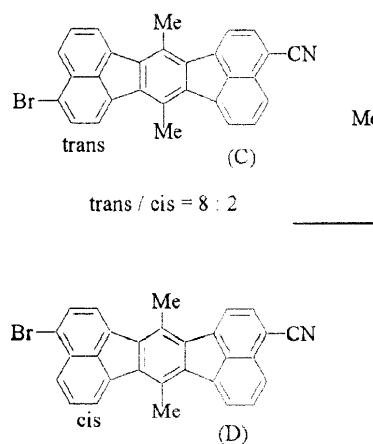
3.6 mmol)を入れてアルゴン置換した後、トルエン70ミリリットルを加えて攪拌しながら115℃に昇温し、さらに9時間攪拌した。反応終了後、室温まで冷やし、ジクロロメタンを加え、室温でしばらく攪拌した後濾過した。濾液を濃縮し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーで目的物を分離した。溶媒を除去し、得られた残さをさらにトルエン、エタノール混合溶媒で再結晶化させ、析出した結晶を濾別乾燥し、2.7 g (3.38 mmol)の目的の化合物1-7、1-8を得た(收率)

率60%）。同定はNMRを用いて行い、分析の結果、

1-7と1-8の混合比は約8:2であった。

FDマス分析: 798 (M^+ , b p)

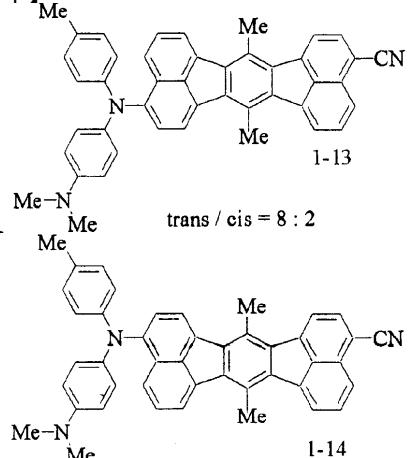
【0042】合成例2（化合物1-13及び1-14の^{*}



*合成）

縮合芳香族化合物（化合物1-13及び1-14）の合成経路を以下に示す。

【化14】



【0043】100ミリリットルの3つ口フラスコに化合物(C)と化合物(D)の混合物(混合比8:2)

2.4g (5.25mmol)、4-ジメチルアミノ-4'-メチル-N,N-ジフェニルアミン1.35g (6.0mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0)96mg (0.105mmol)、(S)-(-)-BINAP (2,2'ビス(ジフェニルホスフィノ)1,1'ビナフチル)130mg (0.210mmol)、炭酸セシウム2.05g (6.3mmol)を入れてアルゴン置換した後、トルエン60ミリリットルを加えて攪拌しながら115に昇温し、さらに7時間攪拌した。反応終了後、室温まで冷やし、ジクロロメタンを加え、室温でしばらく攪拌³⁰

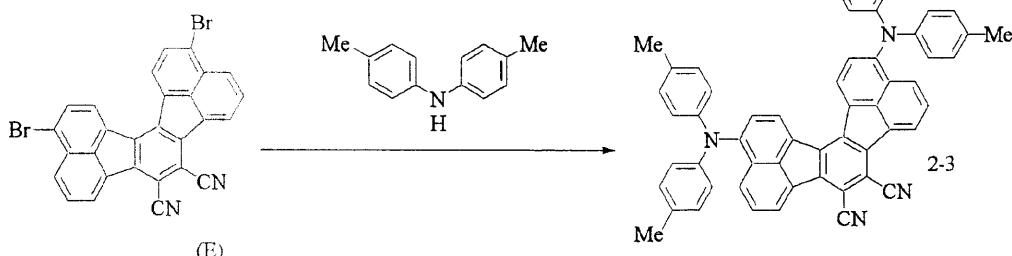
*した後濾過した。濾液を濃縮し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーで目的物を分離した。溶媒を除去し、得られた残さをさらにトルエン、エタノール混合溶媒で再結晶化させ、析出した結晶を濾別乾燥し、2.9g (4.80mmol)の目的の化合物1-13、1-14を得た(収率92%)。同定はNMRを用いて行い、分析の結果、1-13と1-14の混合比は約8:2であった。

FDマス分析: 603 (M^+ , b p)

【0044】合成例3（化合物2-3の合成）

縮合芳香族化合物（化合物2-3）の合成経路を以下に示す。

【化15】



【0045】100ミリリットルの3つ口フラスコに化合物(E)2.0g (3.76mmol)、N,N-ジトリルアミン1.63g (8.27mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0)69mg (0.075mmol)、(S)-(-)-BINAP (2,2'ビス(ジフェニルホスフィノ)1,1'

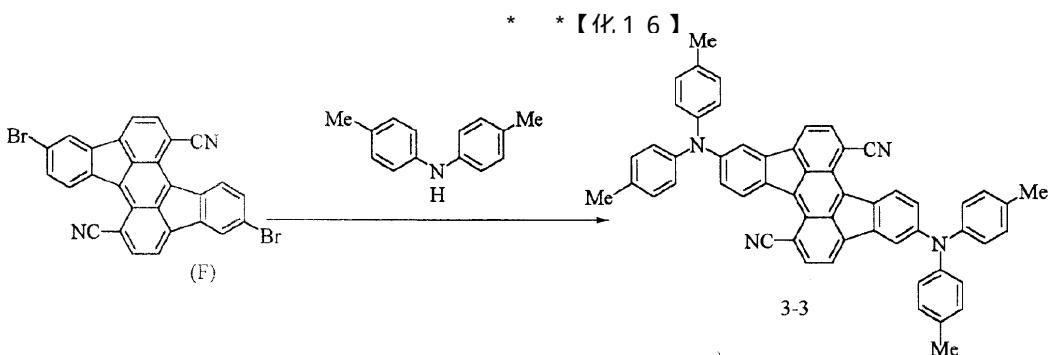
ビナフチル)93mg (0.150mmol)、炭酸セシウム2.82g (8.65mmol)を入れてアルゴン置換した後、トルエン50ミリリットルを加えて攪拌しながら115に昇温し、さらに9時間攪拌した。

反応終了後、室温まで冷やし、ジクロロメタンを加え、室温でしばらく攪拌した後濾過した。濾液を濃縮し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーで目的物を分離した。溶媒を除去し、得られた残さをさらにトルエン、エタノール混合溶媒で再結晶化させ、析出した結晶を濾別乾燥し、1.6g (2.09mmol)の目的の化合物2-3を得た(収率56%)。同定はNMRを用いて行った。FDマス分析: 766 (M^+ , b p)

【0046】合成例4（化合物3-3の合成）

縮合芳香族化合物（化合物3-3）の合成経路を以下に

示す。



【0047】100ミリリットルの3つ口フラスコに化合物(F)1.6g(3.00mmol)、N,N-ジトリルアミン1.30g(6.60mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0)55mg(0.06mmol)、(S)-(−)-BINAP(2,2'-ビス(ジフェニルホスフィノ)1,1'-ビナフチル)75mg(0.12mmol)、炭酸セシウム2.28g(7.00mmol)を入れてアルゴン置換した後、トルエン40ミリリットルを加えて攪拌しながら115℃に昇温し、さらに9時間攪拌した。反応終了後、室温まで冷やし、ジクロロメタンを加え、室温でしばらく攪拌した後濾過した。濾液を濃縮し、シリカ*

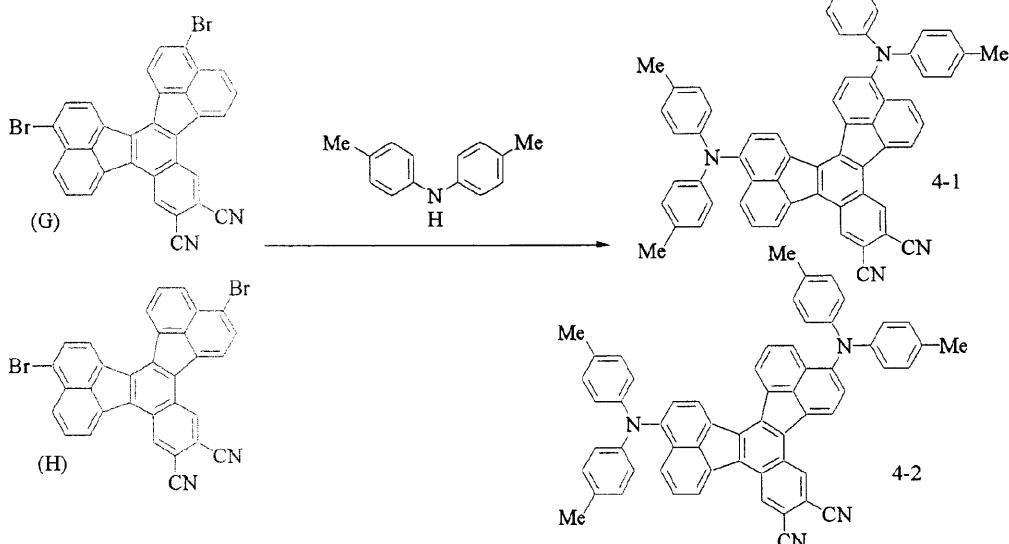
*ゲルカラムクロマトグラフィーで目的物を分離した。溶媒を除去し、得られた残さをさらにトルエン、エタノール混合溶媒で再結晶化させ、析出した結晶を濾別乾燥し、1.8g(2.34mmol)の目的の化合物3-3を得た(収率78%)。同定はNMRを用いて行った。

FDマス分析: 766(M⁺, bp)

【0048】合成例5(化合物4-1及び4-2の合成)

縮合芳香族化合物(化合物4-1及び4-2)の合成経路を以下に示す。

【化17】



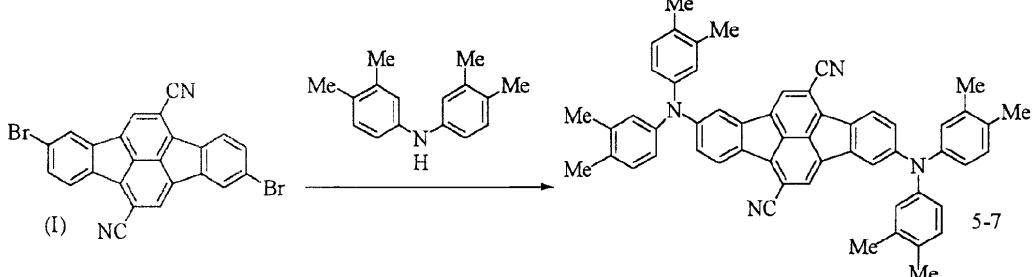
【0049】100ミリリットルの3つ口フラスコに化合物(G)と化合物(H)の混合物(混合比7:3)1.6g(2.75mmol)、N,N-ジトリルアミン1.25g(6.32mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0)50mg(0.055mmol)、(S)-(−)-BINAP(2,2'-ビス(ジフェニルホスフィノ)1,1'-ビナフチル)68mg(0.11mmol)、炭酸セシウム2.15g(6.60mmol)を入れてアルゴン置換した後、キシレン40ミリリットルを加えて攪拌しながら150℃に昇温し、さらに10時間攪拌した。反応終了後、室温まで冷やし、ジクロロメタンを加え、室温でしばらく攪拌した後濾過した。濾液を濃縮し、シリカガル

カラムクロマトグラフィーで目的物を分離した。溶媒を除去し、得られた残さをさらにトルエン、エタノール混合溶媒で再結晶化させ、析出した結晶を濾別乾燥し、1.6g(1.96mmol)の目的の化合物4-1、4-2を得た(収率71%)。同定はNMRを用いてを行い、分析の結果、4-1と4-2の混合比は約7:3であった。

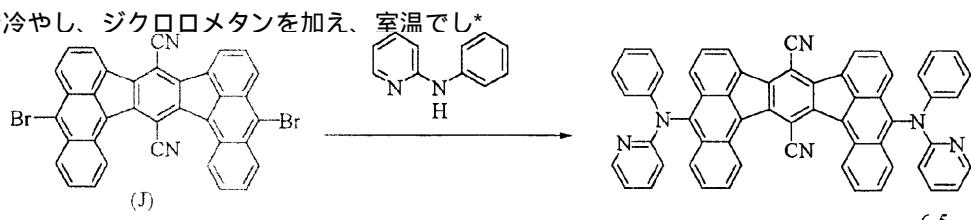
印又ス分析・8.1.6 (M^+ - h.p.)

【0050】合成例6（化合物5-7の合成）

縮合芳香族化合物（化合物 5 - 7）の合成経路を以下に*



【0051】200ミリリットルの3つ口フラスコに化合物(I)2.0g(4.15mmol)、3,3',4,4'-テトラメチル-N,N-ジフェニルアミン2.15g(9.55mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0)73mg(0.08mmol)、(S)-(−)-BINAP(2,2'ビス(ジフェニルホスフィノ)1,1'ビナフチル)100mg(0.16mmol)、炭酸セシウム3.24g(9.96mmol)を入れてアルゴン置換した後、トルエン80ミリリットルを加えて攪拌しながら115℃に昇温し、さらに10時間攪拌した。反応終了



【0053】100ミリリットルの3つ口フラスコに化合物(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0)37mg(0.04mmol)、(S)-(-)-BINALAP(2,2'ビス(ジフェニルホスフィノ)1,1'ビナフチル)50mg(0.08mmol)、炭酸セシウム1.86g(5.70mmol)を入れてアルゴン置換した後、トルエン40ミリリットルを加えて攪拌しながら115℃に昇温し、さらに10時間攪拌した。反応終了後、室温まで冷やし、ジクロロメタンを加え、室温でしばらく攪拌した後濾過した。濾液を濃縮

*示す

【化 1 8】

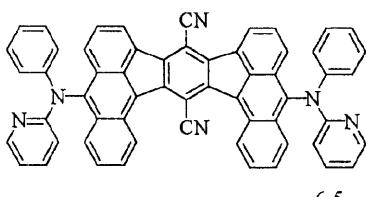
* しばらく攪拌した後濾過した。濾液を濃縮し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーで目的物を分離した。溶媒を除去し、得られた残さをさらにトルエン、エタノール混合溶媒で再結晶化させ、析出した結晶を濾別乾燥し、
2.3 g (2.98 mmol) の目的の化合物 5-7を得た(収率 72%)。同定は NMR を用いて行った。

FDマス分析：7 7 2 (M⁺, bp)

【0052】合成例7（化合物6-5の合成）

20 縮合芳香族化合物（化合物 6 - 5）の合成経路を以下に示す。

【化 19】



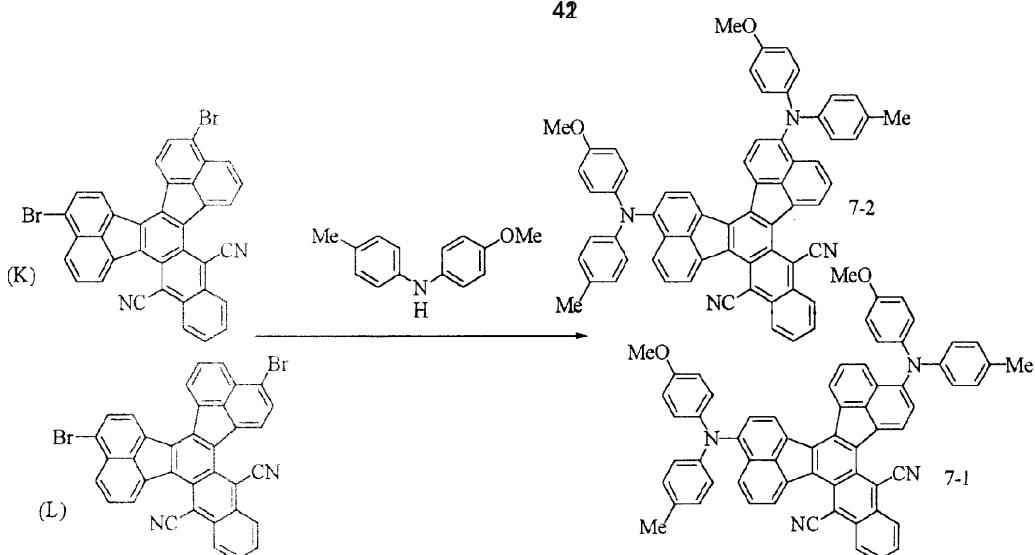
30 し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーで目的物を分離した。溶媒を除去し、得られた残さをさらにトルエン、エタノール混合溶媒で再結晶化させ、析出した結晶を濾別乾燥し、1.4 g (1.72 mmol) の目的の化合物 6-5 を得た (収率 73 %)。同定は NMR を用いて行った。

FDマス分析: 8 1 2 (M⁺, b p)

【0054】合成例8（化合物7-1及び7-2の合成）

縮合芳香族化合物（化合物7-1及び7-2）の合成経路を以下に示す。

【化 2 0】



【0055】100ミリリットルの3つ口フラスコに化合物(K)と化合物(L)の混合物(混合比6:4)1.8g(2.85mmol)、4-メトキシ-4'-メチル-N,N-ジフェニルアミン1.40g(6.56mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0)52mg(0.057mmol)、(S)-(−)-BINAP(2,2'ビス(ジフェニルホスフィノ)1,1'ビナフチル)68mg(0.11mmol)、炭酸セシウム2.23g(6.84mmol)を入れてアルゴン置換した後、キシレン40ミリリットルを加えて攪拌しながら130℃に昇温し、さらに10時間攪拌した。反応終了後、室温まで冷*

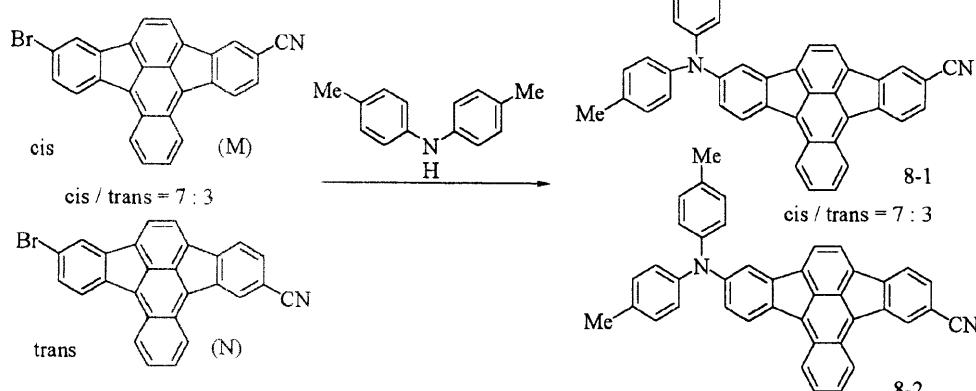
*やし、水を加えて沈殿物を濾過した。得られた固体をさらにトルエン溶媒で再結晶化させ、析出した結晶を濾別乾燥し、1.3g(1.45mmol)の目的の化合物7-1、7-2を得た(収率51%)。同定はNMRを用いて行い、分析の結果、7-1、7-2の混合比は5:5であった。

FDマス分析: 898(M⁺, bp)

【0056】合成例9(化合物8-1及び8-2の合成)

縮合芳香族化合物(化合物8-1及び8-2)の合成経路を以下に示す。

【化21】



【0057】100ミリリットルの3つ口フラスコに化合物(M)と化合物(N)の混合物(混合比7:3)1.8g(4.20mmol)、N,N-ジトリルアミン992mg(5.03mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0)46mg(0.005mmol)、(S)-(−)-BINAP(2,2'ビス(ジフェニルホスフィノ)1,1'ビナフチル)63mg(0.10mmol)、炭酸セシウム1.89g(5.80mmol)を入れてアルゴン置換した後、キシレン60ミリリットルを加えて攪拌しながら1

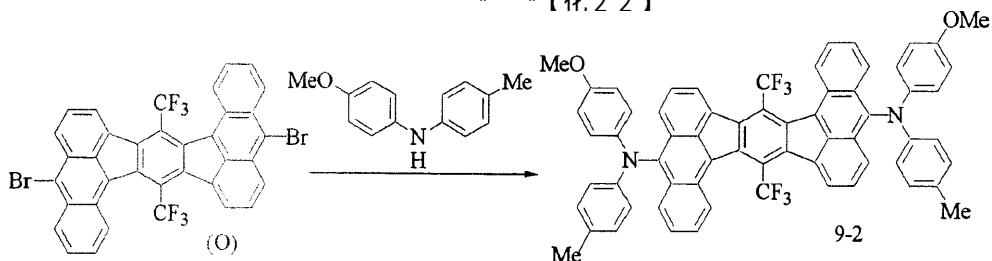
30℃に昇温し、さらに10時間攪拌した。反応終了後、室温まで冷やし、水を加えて沈殿物を濾過した。得られた固体をトルエン溶媒で再結晶化させ、析出した結晶を濾別乾燥し、1.2g(2.20mmol)の目的の化合物8-1、8-2を得た(収率52%)。同定はNMRを用いて行い、分析の結果、8-1、8-2の混合比は7:3であった。

FDマス分析: 546(M⁺, bp)

【0058】合成例10(化合物9-2の合成)

縮合芳香族化合物(化合物9-2)の合成経路を以下に

示す。



【0059】100ミリリットルの3つ口フラスコに化合物(O)1.5g(2.09mmol)、4-メトキシ-4'-メチル-N,N-ジフェニルアミン1.02g(4.81mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0)46mg(0.05mmol)、(S)-(-)-BINAP(2,2'-ビス(ジフェニルホスフィノ)1,1'-ビナフチル)62mg(0.10mmol)、炭酸セシウム1.64g(5.02mmol)を入れてアルゴン置換した後、キシレン60ミリリットルを加えて攪拌しながら130℃に昇温し、さらに9時間攪拌した。反応終了後、室温まで冷やし、水を加えてから残さをろ過した。

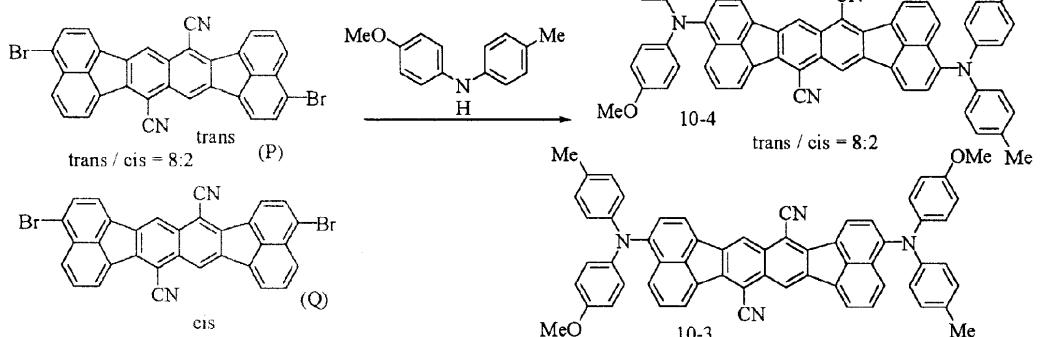
得られた固体をさらにトルエン溶媒で再結晶化させ、析出した結晶を濾別乾燥し、1.0g(1.02mmol)の目的の化合物9-2を得た(収率49%)。同定はNMRを用いて行った。

FDマス分析: 984(M⁺, bp)、492(M²⁺)

【0060】合成例11(化合物10-3及び10-4の合成)

縮合芳香族化合物(化合物10-3及び10-4)の合成経路を以下に示す。

【化23】



【0061】100ミリリットルの3つ口フラスコに化合物(P)と化合物(Q)の混合物(混合比8:2)1.5g(2.58mmol)、4-メトキシ-4'-メチル-N,N-ジフェニルアミン1.27g(5.93mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0)55mg(0.06mmol)、(S)-(-)-BINAP(2,2'-ビス(ジフェニルホスフィノ)1,1'-ビナフチル)75mg(0.12mmol)、炭酸セシウム2.02g(6.20mmol)を入れてアルゴン置換した後、キシレン60ミリリットルを加えて攪拌しながら130℃に昇温し、さらに9時間攪拌した。反応終了後、室温まで冷やし、水を加

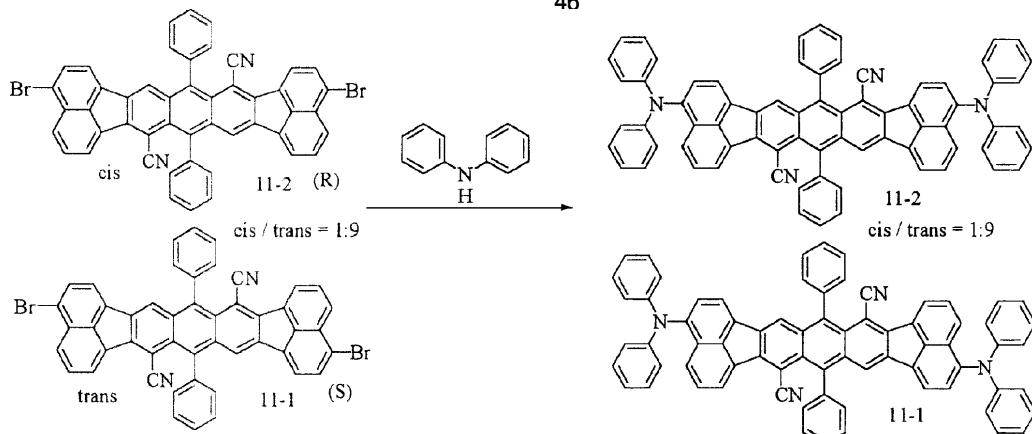
えて沈殿物を濾過した。得られた固体をトルエン溶媒で再結晶化させ、析出した結晶を濾別乾燥し、1.6g(1.89mmol)の目的の化合物10-3、10-4を得た(収率73%)。同定はNMRを用いて行い、分析の結果、10-3、10-4の混合比は2:8であった。

FDマス分析: 848(M⁺, bp)

【0062】合成例12(化合物11-1及び11-2の合成)

縮合芳香族化合物(化合物11-1及び11-2)の合成経路を以下に示す。

【化24】



【0063】100ミリリットルの3つ口フラスコに化合物(R)と化合物(S)の混合物(混合比1:9)2.3g(2.93mmol)、N,N-ジフェニルアミン1.10g(6.50mmol)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0)46mg(0.05mmol)、(S)-(-)-BINAP(2,2'-ビス(ジフェニルホスフィノ)1,1'-ビナフチル)63mg(0.1mmol)、炭酸セシウム2.30g(7.00mmol)を入れてアルゴン置換した後、キシリソ70ミリリットルを加えて攪拌しながら10に昇温し、さらに9時間攪拌した。反応終了後、室温まで冷やし、水を加えて沈殿物を濾過した。得られた固体をトルエン溶媒で再結晶化させ、析出した結晶を濾別乾燥し、2.0g(2.08mmol)の目的の化合物11-1、11-2を得た(收率71%)。同定はNMRを用いて行い、分析の結果、11-1、11-2の混合比は9:1であった。

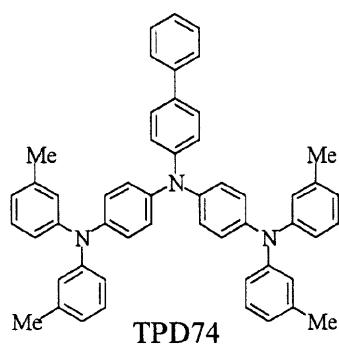
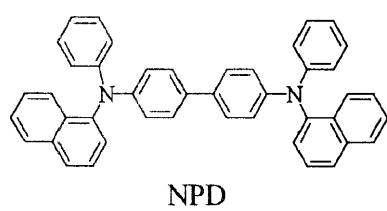
FDマス分析: 962(M⁺, bp)、481(M²⁺)

【0064】実施例1

* 25×75×1.1mmサイズのガラス基板上に、膜厚120nmのインジウムスズ酸化物からなる透明電極を設けた。このガラス基板に紫外線及びオゾンを照射して洗浄を行なったのち、真空蒸着装置にこのガラス基板を設置した。まず下記TPD74を60nmの厚さに蒸着した後、その上に下記NPDを20nmの厚さに蒸着した。次いで発光材料及び発光媒体として化合物1-7、1-8(1:1混合物)とAlq(8-ヒドロキシキノリンのアルミニウム錯体)を重量比2:40で同時蒸着し、厚さ50nmの発光媒体層を形成した。次にAlqを10nmの厚さに蒸着した。次に、ハロゲン化アルカリ金属であるLiFを0.2nmの厚さに蒸着し、次いでアルミニウムを150nmの厚さに蒸着し、有機EL素子を作製した。次に、この素子について、通電試験を行なったところ、電圧7.0V、電流密度5.5mA/cm²にて、162cd/m²の赤色発光が得られた。

【0065】

【化25】



【0066】実施例2~11

実施例1において、化合物1-7、1-8の代わりに表1に記載した化合物を用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。この素子の直流電圧7.0Vでの電流

30 密度、発光輝度、発光色を測定し表1に示した。

【0067】

【表1】

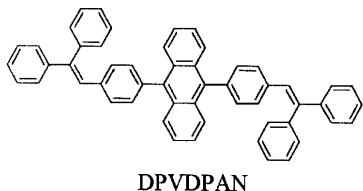
表 1 48

| | 発光材料の化合物 | 電流密度 (mA/cm ²) | 発光輝度 (cd/m ²) | 発光色 |
|--------|---------------------|-------------------------------|------------------------------|-----|
| 実施例 1 | 1-7, 1-8 (1:1混合物) | 5. 5 | 162 | 赤 |
| 実施例 2 | 2-3 | 4. 8 | 114 | 赤 |
| 実施例 3 | 3-3 | 6. 7 | 158 | 赤 |
| 実施例 4 | 4-1, 4-2 (7:3混合物) | 4. 6 | 104 | 赤 |
| 実施例 5 | 5-7 | 5. 0 | 102 | 赤橙 |
| 実施例 6 | 6-5 | 6. 1 | 142 | 赤橙 |
| 実施例 7 | 7-1, 7-1 (5:5混合物) | 5. 4 | 132 | 赤 |
| 実施例 8 | 8-1, 8-2 (7:3混合物) | 5. 8 | 94 | 赤橙 |
| 実施例 9 | 9-2 | 4. 2 | 122 | 赤 |
| 実施例 10 | 10-4, 10-3 (8:2混合物) | 3. 8 | 98 | 赤橙 |
| 実施例 11 | 11-2, 11-1 (1:9混合物) | 5. 8 | 196 | 赤 |

【0068】実施例12～22

実施例1～11において、発光媒体として用いたA1qの代わりにアントラセン誘導体である下記DPVDPANを用いた以外は同様にして有機EL素子を作製した。この素子の直流電圧7.0Vでの電流密度、発光輝度、発光色を測定し表2に示した。

【化26】



【0069】

【表2】

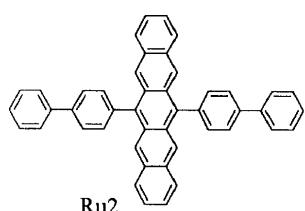
表 2 ⁴⁹

| | 発光材料の化合物 | 電流密度 (mA/cm ²) | 発光輝度 (cd/m ²) | 発光色 |
|-------|---------------------|-------------------------------|------------------------------|-----|
| 実施例12 | 1-7, 1-8 (8:2混合物) | 5.7 | 192 | 赤橙 |
| 実施例13 | 2-3 | 5.2 | 144 | 赤橙 |
| 実施例14 | 3-3 | 6.9 | 172 | 赤 |
| 実施例15 | 4-1, 4-2 (7:3混合物) | 4.8 | 124 | 赤 |
| 実施例16 | 5-7 | 5.1 | 106 | 橙 |
| 実施例17 | 6-5 | 6.3 | 160 | 橙 |
| 実施例18 | 7-1, 7-2 (5:5混合物) | 5.6 | 155 | 赤 |
| 実施例19 | 8-1, 8-2 (7:3混合物) | 5.7 | 101 | 赤橙 |
| 実施例20 | 9-2 | 4.5 | 148 | 赤 |
| 実施例21 | 10-4, 10-3 (8:2混合物) | 4.0 | 110 | 橙 |
| 実施例22 | 11-2, 11-1 (1:9混合物) | 6.0 | 220 | 赤 |

【0070】比較例1

実施例1記載の発光材料及び発光媒体として化合物1-1、1-2(1:1混合物)とAlqの代わりに下記Ru2とAlqを重量比2:40で同時蒸着したこと以外は、実施例1と同様にして有機EL素子を作製した。この素子の性能を評価したところ、電圧10Vで28.0mA/cm²の電流が流れ、輝度は116cd/m²の赤色発光が得られた。しかしながら、この素子は電圧が高く、発光効率が低い。

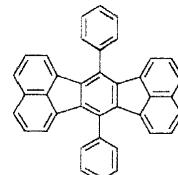
【化27】



【0071】比較例2

実施例1記載の発光材料及び発光媒体として化合物1-1、1-2(1:1混合物)とAlqの代わりに下記化合物12とAlqを重量比2:40で同時蒸着したこと以外は、実施例1と同様にして有機EL素子を作製した。この素子の性能を評価したところ、電圧7Vで3.8mA/cm²の電流が流れ、輝度は98cd/m²の黄緑色発光が得られた。しかしながら、この素子は色が赤色ではない。

【化28】



化合物12

【0072】比較例3

実施例1記載の発光材料及び発光媒体として化合物1-1、1-2(1:1混合物)とAlqの代わりに下記化合物13とAlqを重量比2:40で同時蒸着したこと以外は、実施例1と同様にして有機EL素子を作製した。この素子の性能を評価したところ、電圧9.5Vで52mA/cm²の電流が流れ、輝度は102cd/m²の赤橙発光が得られた。しかしながら、この素子は電圧が高く、発光効率が低い。

【化29】



化合物13

【0073】比較例4

実施例10記載の発光材料及び発光媒体として化合物1-1、1-2(1:1混合物)とDPVPANの代わりに上記化合物12とDPVPANを重量比2:40で同時蒸着したこと以外は、実施例1と同様にして有機

E L素子を作製した。この素子の性能を評価したところ、電圧7Vで4.4mA/cm²の電流が流れ、輝度は120cd/m²の緑色発光が得られた。しかしながら発光色が赤色でない。

【0074】比較例5

実施例10記載の発光材料及び発光媒体として化合物1-1、1-2(1:1混合物)とDPVPANの代わりに上記化合物13とDPVPANを重量比2:40で同時蒸着したこと以外は、実施例1と同様にして有機EL素子を作製した。この素子の性能を評価したところ

*ろ、電圧9.5Vで44mA/cm²の電流が流れ、輝度は171cd/m²の橙色発光が得られた。しかしながら、この素子は、電圧が高く、発光色が赤色でない。

【0075】

【発明の効果】以上詳細に説明したように、本発明の新規な縮合芳香族化合物を利用すると、発光輝度及び発光効率が高く、色純度が高く、赤色系に発光する有機エレクトロルミネッセンス素子が得られる。このため、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、各種電子機器の光源等として極めて有用である。

*10

フロントページの続き

(51) Int.CI.⁷ 識別記号

C 0 7 D 213/74

C 0 9 K 11/06

F I

テ-マコト[®] (参考)

C 0 7 D 213/74

C 0 9 K 11/06

6 2 0

6 3 0

6 3 0

H 0 5 B 33/14

H 0 5 B 33/14

B

33/22

33/22

B

D

(72)発明者 荒金 崇士

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

(72)発明者 楠本 正

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

(72)発明者 細川 地潮

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

F ターム(参考) 3K007 AB02 AB03 AB04 DB03

4C055 AA01 BA02 BA52 BB04 BB19

CA01 DA01 EA01

4H006 AA01 AA03 AB92

| | | | |
|----------------|--|---------|------------|
| 专利名称(译) | 新型稠合芳族化合物和使用其的有机电致发光器件 | | |
| 公开(公告)号 | JP2003238516A | 公开(公告)日 | 2003-08-27 |
| 申请号 | JP2002041472 | 申请日 | 2002-02-19 |
| [标]申请(专利权)人(译) | 基金会石油能源中心 出光兴产株式会社 | | |
| 申请(专利权)人(译) | 基金会石油能源中心 出光兴产株式会社 | | |
| [标]发明人 | 岩隈俊裕 弘中義雄 荒金崇士 細川地潮 楠本正 | | |
| 发明人 | 岩隈 俊裕 弘中 義雄 荒金 崇士 細川 地潮 楠本 正 | | |
| IPC分类号 | H01L51/50 C07C211/59 C07C211/61 C07C255/52 C07C255/58 C07C255/59 C07D213/74 C09K11/06 H05B33/14 H05B33/22 | | |
| FI分类号 | C07C255/59 C07C211/59 C07C211/61 C07C255/52 C07C255/58 C07D213/74 C09K11/06.620 C09K11 /06.630 H05B33/14.B H05B33/22.B H05B33/22.D | | |
| F-TERM分类号 | 3K007/AB02 3K007/AB03 3K007/AB04 3K007/DB03 4C055/AA01 4C055/BA02 4C055/BA52 4C055 /BB04 4C055/BB19 4C055/CA01 4C055/DA01 4C055/EA01 4H006/AA01 4H006/AA03 4H006/AB92 3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC02 3K107/CC04 3K107/CC06 3K107/CC07 3K107/DD71 3K107 /DD72 3K107/DD74 3K107/DD75 3K107/DD78 3K107/DD84 3K107/FF13 | | |
| 其他公开文献 | JP3829982B2 | | |
| 外部链接 | Espacenet | | |

摘要(译)

解决的问题：提供一种新型的稠合芳香族化合物，其能够提供发出具有高发光亮度和发光效率，高色纯度的发红光的有机EL元件以及使用该有机EL元件的有机电致发光元件。解决方案：一种新型的稠合芳族化合物，其具有荧蒽骨架，其中至少有一个氨基和一个吸电子基团被键合，以及一种有机电子器件，其中一个或多个有机薄膜层夹在阴极和阳极之间。在发光装置中，有机薄膜层中的至少一层是包含缩合的芳香族化合物的有机电致发光装置。

