

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第4640764号
(P4640764)

(45) 発行日 平成23年3月2日 (2011.3.2)

(24) 登録日 平成22年12月10日 (2010.12.10)

(51) Int.Cl.

F I

C O 9 K 11/06 (2006.01)

H O 1 L 51/50 (2006.01)

C O 7 D 239/62 (2006.01)

C O 9 K 11/06 6 1 0

C O 9 K 11/06 6 2 0

C O 9 K 11/06 6 5 0

C O 9 K 11/06 6 6 0

C O 9 K 11/06 6 9 0

請求項の数 8 (全 18 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2004-238148 (P2004-238148)

(22) 出願日 平成16年8月18日 (2004.8.18)

(65) 公開番号 特開2006-56798 (P2006-56798A)

(43) 公開日 平成18年3月2日 (2006.3.2)

審査請求日 平成19年6月28日 (2007.6.28)

(73) 特許権者 000000387

株式会社 A D E K A

東京都荒川区東尾久7丁目2番35号

(74) 代理人 100076532

弁理士 羽鳥 修

(72) 発明者 坂巻 功一

東京都荒川区東尾久7丁目2番35号 旭

電化工業株式会社内

(72) 発明者 土屋 浩

東京都荒川区東尾久7丁目2番35号 旭

電化工業株式会社内

(72) 発明者 武捨 清

東京都荒川区東尾久7丁目2番35号 旭

電化工業株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 メチン化合物を利用した有機電界発光素子用材料

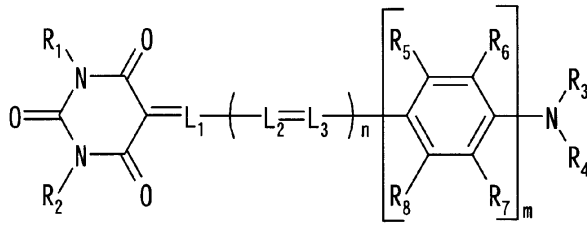
(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

下記一般式 (IV) で表されるメチン化合物からなることを特徴とする有機電界発光素子用材料。

【化 1】

一般式 (IV)



(式中、 L_1 、 L_2 及び L_3 は、それぞれメチン基又は置換メチン基を表し、該置換メチン基の置換基は炭素数 1～20 のアルキル基であり、 L_1 、 L_2 及び L_3 は、置換メチン基の置換基を介して、 L_1 と L_2 、 L_1 と L_3 若しくは L_2 と L_3 で連結して、又は n が 2 の場合は 2 つの L_2 同士若しくは 2 つの L_3 同士で連結して、4～6 員環を形成してもよい。 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 は、それぞれ、炭素数 1～20 のアルキル基又はフェニル基であり、 R_5 、 R_6 、 R_7 及び R_8 は、それぞれ、水素原子又は炭素数 1～20 のアルキル基であり、 n は 1 又は 2 を表し、 m は 1 を表す。)

10

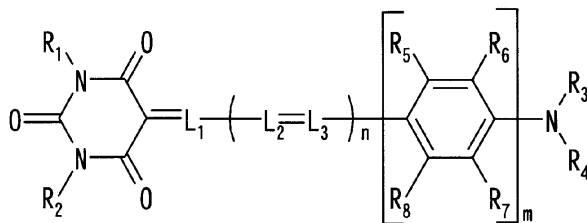
【請求項 2】

一対の電極間に発光層を含む一層以上の有機薄膜層を有し、該有機薄膜層の少なくとも一層が、下記一般式 (IV) で表されるメチン化合物を一種又は二種以上含有する層であることを特徴とする有機電界発光素子。

20

【化 2】

一般式 (IV)



(式中、 L_1 、 L_2 及び L_3 は、それぞれメチン基又は置換メチン基を表し、該置換メチン基の置換基は炭素数 1～20 のアルキル基であり、 L_1 、 L_2 及び L_3 は、置換メチン基の置換基を介して、 L_1 と L_2 、 L_1 と L_3 若しくは L_2 と L_3 で連結して、又は n が 2 の場合は 2 つの L_2 同士若しくは 2 つの L_3 同士で連結して、4～6 員環を形成してもよい。 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 は、それぞれ、炭素数 1～20 のアルキル基又はフェニル基であり、 R_5 、 R_6 、 R_7 及び R_8 は、それぞれ、水素原子又は炭素数 1～20 のアルキル基であり、 n は 1 又は 2 を表し、 m は 1 を表す。)

30

【請求項 3】

上記一般式 (IV) で表されるメチン化合物を一種又は二種以上含有する層が、発光層である請求項 2 記載の有機電界発光素子。

40

【請求項 4】

上記一般式 (IV) で表されるメチン化合物を一種又は二種以上含有する層が、正孔注入輸送層である請求項 2 記載の有機電界発光素子。

【請求項 5】

上記一般式 (IV) で表されるメチン化合物を一種又は二種以上含有する層が、電子注入輸送層である請求項 2 記載の有機電界発光素子。

【請求項 6】

上記一般式 (IV) で表されるメチン化合物を一種又は二種以上含有する層が、バインダー樹脂中に該メチン化合物が分散されている層である請求項 2～5 のいずれか一項に記載

50

の有機電界発光素子。

【請求項 7】

上記発光層が、多環芳香族化合物、発光性有機金属錯体及びトリアリールアミン誘導体からなる群から選択される少なくとも一種を含有する請求項 2 ～ 6 のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

【請求項 8】

有機薄膜層の少なくとも 1 層中に、上記一般式 (IV) で表されるメチン化合物の一種又は二種以上を、0.1 ～ 40 重量%含有する請求項 2 ～ 7 のいずれか一項に記載の有機電界発光素子。

【発明の詳細な説明】

10

【技術分野】

【0001】

本発明は、新規なメチン化合物、該メチン化合物からなる有機電界発光素子用材料、及び該メチン化合物を用いた有機電界発光素子に関し、該有機電界発光素子は、パネル型光源、発光素子、表示素子、標識、センサー等に有用なものである。

【背景技術】

【0002】

従来、無機電界発光素子は、例えば、バックライト等のパネル型光源として使用されてきたが、該発光素子を駆動させるには、交流の高電圧が必要である。最近になり、発光材料に有機材料を用いた有機電界発光素子（有機エレクトロルミネッセンス素子又は有機 EL 素子ともいう）が開発された（例えば、非特許文献 1 参照）。有機電界発光素子は、蛍光性有機化合物を含む薄膜が、陽極と陰極との間に挟持された構造を有し、該薄膜に電子及び正孔（ホール）を注入して、再結合させることにより励起子（エキシトン）を生成させ、この励起子が失活する際に放出される光を利用して発光する素子である。有機電界発光素子は、数 V ～ 数十 V 程度の直流の低電圧で発光が可能であり、また、蛍光性有機化合物の種類を選択することにより、種々の色（例えば、赤色、青色、緑色）の発光が可能である。このような特徴を有する有機電界発光素子は、種々の発光素子、表示素子等への応用が期待されている。しかしながら、一般に、有機電界発光素子は、安定性及び耐久性に乏しい等の難点がある。さらに、発光輝度が低く、実用上充分ではない。

20

【0003】

30

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〕ビフェニルを用いた有機電界発光素子が提案されている（例えば、非特許文献 2 参照）。しかしながら、この有機電界発光素子も、安定性及び耐久性に乏しい等の難点がある。また、発光輝度を向上させる方法として、発光層として、例えば、トリス（8-キノリノラート）アルミニウムをホスト化合物、クマリン誘導体、ピラン誘導体をゲスト化合物（ドーパント）として用いた有機電界発光素子が提案されている（例えば、非特許文献 3 参照）。また、発光層として、ビス（2-メチル-8-キノリノラート）（4-フェニルフェノラート）アルミニウムをホスト化合物、アクリドン誘導体（例えば、N-メチル-2-メトキシアクリドン）をゲスト化合物として用いた有機電界発光素子が提案されている（例えば、特許文献 1 参照）。しかしながら、これらの発光素子も、十分な発光輝度を有しているとは言い難い。現在では、更に改良された有機電界発光素子が望まれている。

40

【0004】

また、赤色の有機電界発光素子に、メチン基を有する化合物を用いることが提案されている（例えば、特許文献 2 参照）。しかしながら、これらの性能は十分なものではなく、より優れた性能を有するものが必要とされている。

【0005】

また、有機電界発光素子における電子注入輸送材料も満足いくものがなく、更に改良された有機電界発光素子が望まれている。

【0006】

50

【非特許文献 1】Appl. Phys. Lett., 51, 913 (1987)
 【非特許文献 2】Jpn. J. Appl. Phys., 27, L269 (1988)
 【非特許文献 3】J. Appl. Phys., 65, 3610 (1989)
 【特許文献 1】特開平 8-67873 号公報
 【特許文献 2】特開平 10-308281 号公報
 【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

従って、本発明の目的は、安定性、耐久性、発光輝度及び発光効率に優れた有機電界発光素子を提供することができる、有機電界発光素子用材料に有用な新規な化合物、該化合物からなる有機電界発光素子用材料、及び該有機電界発光素子用材料を用いた有機電界発光素子を提供することにある。

10

【課題を解決するための手段】

【0008】

本発明者らは、有機電界発光素子用材料に関して鋭意検討を重ねた結果、新規なメチン化合物が上記課題を解決し得ることを見出し、本発明を完成するに至った。

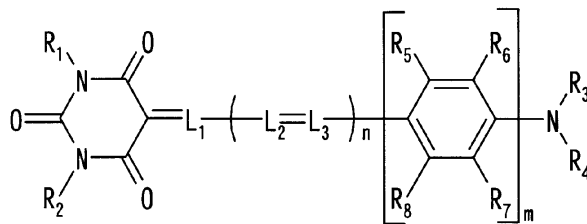
【0015】

本発明（請求項 1 記載の発明）は、下記一般式（IV）で表されるメチン化合物からなることを特徴とする有機電界発光素子用材料を提供するものである。

【化 1】

20

一般式（IV）



（式中、 L_1 、 L_2 及び L_3 は、それぞれメチン基又は置換メチン基を表し、該置換メチン基の置換基は炭素数 1～20 のアルキル基であり、 L_1 、 L_2 及び L_3 は、置換メチン基の置換基を介して、 L_1 と L_2 、 L_1 と L_3 若しくは L_2 と L_3 で連結して、又は n が 2 の場合は 2 つの L_2 同士若しくは 2 つの L_3 同士で連結して、4～6 員環を形成してもよい。 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 は、それぞれ、炭素数 1～20 のアルキル基又はフェニル基であり、 R_5 、 R_6 、 R_7 及び R_8 は、それぞれ、水素原子又は炭素数 1～20 のアルキル基であり、 n は 1 又は 2 を表し、 m は 1 を表す。）

30

【0016】

また、本発明（請求項 2 記載の発明）は、一対の電極間に発光層を含む一層以上の有機薄膜層を有し、該有機薄膜層の少なくとも一層が、上記一般式（IV）で表されるメチン化合物を一種又は二種以上含有する層であることを特徴とする有機電界発光素子を提供するものである。

40

また、本発明（請求項 3 記載の発明）は、上記一般式（IV）で表されるメチン化合物を一種又は二種以上含有する層が、発光層である請求項 2 記載の有機電界発光素子を提供するものである。

また、本発明（請求項 4 記載の発明）は、上記一般式（IV）で表されるメチン化合物を一種又は二種以上含有する層が、正孔注入輸送層である請求項 2 記載の有機電界発光素子を提供するものである。

また、本発明（請求項 5 記載の発明）は、上記一般式（IV）で表されるメチン化合物を一種又は二種以上含有する層が、電子注入輸送層である請求項 2 記載の有機電界発光素子を提供するものである。

50

【0017】

また、本発明（請求項6記載の発明）は、上記一般式（IV）で表されるメチン化合物を一種又は二種以上含有する層が、バインダー樹脂中に該メチン化合物が分散されている層である請求項2～5のいずれか一項に記載の有機電界発光素子を提供するものである。

また、本発明（請求項7記載の発明）は、上記発光層が、多環芳香族化合物、発光性有機金属錯体及びトリアリールアミン誘導体からなる群から選択される少なくとも一種を含有する請求項2～6のいずれか一項に記載の有機電界発光素子を提供するものである。

また、本発明（請求項8記載の発明）は、有機薄膜層の少なくとも1層中に、上記一般式（IV）で表されるメチン化合物の一種又は二種以上を、0.1～40重量％含有する請求項2～7のいずれか一項に記載の有機電界発光素子を提供するものである。

10

【発明の効果】

【0018】

本発明によれば、有機電界発光素子材料として好適な新規なメチン化合物を提供することができ、該メチン化合物からなる有機電界発光素子用材料は、安定性、耐久性、発光輝度及び発光効率に優れた有機電界発光素子、特に赤色の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】

【0019】

以下、本発明に関して詳細に説明する。

【0020】

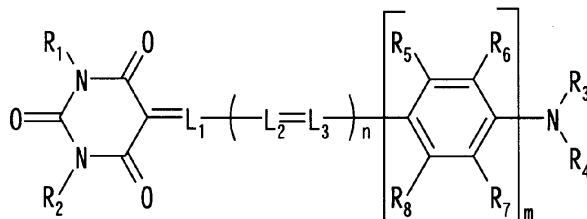
20

まず、下記一般式（IV）で表される本発明に係るメチン化合物（以下、本発明のメチン化合物という）について説明する。

【0026】

【化7】

一般式（IV）



30

（式中、 L_1 、 L_2 及び L_3 は、それぞれメチン基又は置換メチン基を表し、該置換メチン基の置換基は炭素数1～20のアルキル基であり、 L_1 、 L_2 及び L_3 は、置換メチン基の置換基を介して、 L_1 と L_2 、 L_1 と L_3 若しくは L_2 と L_3 で連結して、又は n が2の場合は2つの L_2 同士若しくは2つの L_3 同士で連結して、4～6員環を形成してもよい。 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 は、それぞれ、炭素数1～20のアルキル基又はフェニル基であり、 R_5 、 R_6 、 R_7 及び R_8 は、それぞれ、水素原子又は炭素数1～20のアルキル基であり、 n は1又は2を表し、 m は1を表す。）

40

【0027】

また、前記一般式（IV）で表される化合物において、 L_1 、 L_2 及び L_3 は、メチン基又は置換基を有するメチン基であるが、それぞれ互いに連結して環を形成していてもよい。

【0028】

前記一般式（IV）中の R_1 ～ R_4 は、それぞれ、炭素数1～20のアルキル基又はフェニル基であり、 R_5 ～ R_8 は、それぞれ、水素原子又は炭素数1～20のアルキル基である。該アルキル基は炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～12、特に好ましくは炭素数1～8であり、例えばメチル、エチル、i s o -プロピル、n -ブチル、t e r t -ブチル、n -オクチル、n -デシル、n -ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、

50

シクロヘキシル等が挙げられる。

【0029】

R₁及びR₂は、それぞれ、メチル基、エチル基、i s o -プロピル基、n -ブチル基、t e r t -ブチル基等のアルキル基、又はフェニル基である。

【0030】

R₃及びR₄は、それぞれ、メチル基、エチル基、i s o -プロピル基、n -ブチル基、t e r t -ブチル基等のアルキル基、又はフェニル基である。

【0031】

R₅、R₆、R₇、及びR₈は、それぞれ、水素原子、又はメチル基、エチル基、i s o -プロピル基、n -ブチル基、t e r t -ブチル基等のアルキル基である。

10

【0032】

前記一般式(IV)中のL₁、L₂及びL₃は、それぞれメチン基又は置換メチン基を表す。また、L₁、L₂及びL₃は、置換メチン基の置換基を介して、L₁とL₂、L₁とL₃若しくはL₂とL₃で連結して、又はnが2の場合は2つのL₂同士若しくは2つのL₃同士で連結して、4～6員環を形成してもよい。置換メチン基の置換基としては、R₁～R₈の置換基として挙げたものが適用でき、炭素数1～20のアルキル基であり、更に好ましくは低級アルキル基(好ましくは炭素数1～4である。)である。L₂及びL₃は、より好ましくは無置換メチン基である。

【0033】

前記一般式(IV)中のnは、1又は2を表し、好ましくは1である。

20

前記一般式(IV)中のmは1である。

【0034】

本発明のメチン化合物は、例えば、バルビツル酸もしくは1, 3 -ジメチルバルビツル酸等のバルビツル酸誘導体と、アルデヒド基を有する化合物、例えば、4 -ジメチルアミノベンズアルデヒド等とを、常法により反応させることにより得ることができる。

【0035】

前記一般式(IV)で表されるメチン化合物は、有機電界発光素子材料として好適に用いることができる。

【0036】

次に、本発明のメチン化合物を有機電界発光素子材料として用いた本発明の有機電界発光素子について説明する。

30

【0037】

本発明の有機電界発光素子は、一对の電極間に発光層を含む一層以上の有機薄膜層を有し、該有機薄膜層の少なくとも一層中に、本発明のメチン化合物の一種又は二種以上を含有するものである。該有機薄膜層中における本発明のメチン化合物の含有量は、好ましくは0. 1～40重量%である。

【0038】

本発明の有機電界発光素子は、通常、一对の電極間に、少なくとも1種の発光成分を含有する発光層を、少なくとも一層挟持してなる。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及び／又は電子注入輸送成分を含有する電子注入輸送層を設けることもできる。例えば、発光層に使用する化合物の正孔注入機能、正孔輸送機能及び／又は電子注入機能、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及び／又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、正孔注入輸送層及び電子注入輸送層の両方の層を設けない型の素子(一層型の素子)の構成とすることもできる。また、正孔注入輸送層、電子注入輸送層及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、正孔注入輸送層及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。

40

【0039】

50

本発明の有機電界発光素子において、本発明のメチン化合物からなる有機電界発光素子材料は、正孔注入輸送成分、発光成分又は電子注入輸送成分に用いることが好ましく、正孔注入輸送成分又は発光成分に用いることがより好ましい。

【0040】

本発明の有機電界発光素子においては、本発明のメチン化合物は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0041】

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いが、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)等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、発光成分を一層形態で一对の電極間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、発光成分及び電子注入輸送成分を混合させた一層形態で一对の電極間に挟持させた型の素子(図6)、(G) 正孔注入輸送成分及び発光成分を混合させた一層形態で一对の電極間に挟持させた型の素子(図7)、(H) 発光成分及び電子注入輸送成分を混合させた一層形態で一对の電極間に挟持させた型の素子(図8)がある。

【0042】

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層設けることもできる。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との間に、正孔注入輸送成分と発光成分の混合層を設けたり、発光層と電子注入輸送層との間に、発光成分と電子注入輸送成分の混合層を設けることもでき、これらの混合層を併設することもできる。

【0043】

上記有機電界発光素子の構成の中でも、(A)型素子、(B)型素子、(C)型素子、(E)型素子、(F)型素子、(G)型素子又は(H)型素子が好ましく、さらに好ましくは、(A)型素子、(B)型素子、(C)型素子、(F)型素子又は(G)型素子である。

【0044】

本発明の有機電界発光素子について、その好ましい一例である図1に示す(A)陽極／正孔注入輸送層／発光層／電子注入輸送層／陰極型素子に基づいて、さらに詳細に説明する。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。

【0045】

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、ポリエチレン等のシート)、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。

【0046】

陽極2には、比較的仕事関数の大きい金属、合金又は電気電導性化合物を電極物質として使用することが好ましい。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・オキサイド)、ポリチオフェン、ポリピロール等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。陽極は、これらの電極物質を用いて、例えば、蒸着法、スパッタリング法等の方法により、基板の上に形成することができる。また、陽極は一層構造であってもよく、あるいは多層構造であってもよい。陽極のシート電気抵抗は、好ましくは数百 $\Omega/\square$ 以下、より好ましくは5～50 $\Omega/\square$ に設定する。陽極の厚みは、使用する電極物質の材料にもよるが、一般に5～1000nm、より好ましくは10～500nmに設定する。

【0047】

正孔注入輸送層3は、陽極からの正孔（ホール）の注入を容易にする機能、及び注入された正孔を輸送する機能を有する化合物を含有する層である。正孔注入輸送層は、本発明のメチン化合物、並びに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、ポリフェニレンビニレン及びその誘導体、ポリチオフエン及びその誘導体、ポリ-N-ビニルカルバゾール誘導体等）から選択される少なくとも1種用いて形成することができる。尚、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。

【0048】

本発明の有機電界発光素子において用いることができ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''-ターチオフエン、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、4, 4', 4'''-トリス〔N, N-ビス(4'''-tert-ブチルビフェニル-4''''-イル)アミノ〕トリフェニルアミン、1, 3, 5-トリス〔N-(4'-ジフェニルアミノフェニル)-N-フェニルアミノ〕ベンゼン等）、ポリチオフエン及びその誘導体、ポリ-N-ビニルカルバゾール誘導体が好ましい。

【0049】

本発明のメチン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本発明のメチン化合物の含有量は、好ましくは、0.1重量%以上、より好ましくは0.1～99.9重量%、さらに好ましくは1～99重量%、特に好ましくは5～95重量%に調製する。

【0050】

発光層4は、正孔及び電子の注入機能、それらの輸送機能、正孔と電子との再結合により励起子を生成させる機能を有する化合物を含有する層である。発光層は、本発明のメチン化合物、並びに他の発光機能を有する化合物（例えば、アクリドン誘導体、キナクリドン誘導体、ジケトピロロピロール誘導体、多環芳香族化合物〔例えば、ルブレン、アントラセン、テトラセン、ピレン、ペリレン、クリセン、デカシクレン、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〕、発光性有機金属錯体〔例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(10-ベンゾ[h]キノリノラート)ベリリウム、2-(2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾオキサゾールの亜鉛塩、2-(2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾチアゾールの亜鉛塩、4-ヒドロキシアクリジンの亜鉛塩、3-ヒドロキシフラボンの亜鉛塩、5-ヒドロキシフラボンのベリリウム塩、5-ヒドロキシフラボンのアルミニウム塩〕、スチルベン誘導体〔例えば、1, 1, 4, 4-テトラフェニル-1, 3-ブタジエン、4, 4'-ビス(2, 2-ジフェニルビニル)ビフェニル、4, 4'-ビス[(1, 1, 2-トリフェニル)エテニル]ビフェニル〕、クマリン誘導体〔例えば、クマリン1、クマリン6、クマリン7、クマリン30、クマリン106、クマリン138、クマリン151、クマリン152、クマリン153、クマリン307、クマリン311、クマリン314、クマリン334、クマリン338、クマリン343、クマリン500〕、ピラン誘導体〔例えば、DCM1、DCM2〕、オキサゾン誘導体〔例えば、ナイルレッド〕、ベンゾチアゾール誘導体、ベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、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及びその誘導体、ポリチオフェン及びその誘導体、ポリフェニレン及びその誘導体、ポリフルオレン及びその誘導体、ポリフェニレンビニレン及びその誘導体、ポリビフェニレンビニレン及びその誘導体、ポリターフェニレンビニレン及びその誘導体、ポリナフチレンビニレン及びその誘導体、ポリチエニレンビニレン及びその誘導体等)から選択される少なくとも1種を用いて形成することができる。

10

20

【0051】

本発明の有機電界発光素子は、発光層に本発明のメチン化合物を含有していることが好ましい。本発明のメチン化合物と他の発光機能を有する化合物とを併用する場合、発光層中に占める本発明のメチン化合物の割合は、好ましくは0.001~99.999重量%、より好ましくは0.01~99.99重量%、さらに好ましくは0.1~99.9重量%に調製する。

【0052】

本発明の有機電界発光素子の発光層において用いることができ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、発光性有機金属錯体、トリアリールアミン誘導体が好ましい。また、例えば、J. Appl. Phys., 65, 3610 (1989)、特開平5-214332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。この場合、本発明のメチン化合物をホスト化合物として用いて発光層を形成することができ、また、本発明のメチン化合物をゲスト化合物として用いて発光層を形成することもできる。

30

【0053】

本発明のメチン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、例えば、前記の他の発光機能を有する化合物を用いることができ、中でも多環芳香族化合物が好ましい。この場合、本発明のメチン化合物に対して、他の発光機能を有する化合物を、好ましくは0.001~40重量%、より好ましくは0.01~30重量%、特に好ましくは0.1~20重量%使用する。

40

【0054】

本発明のメチン化合物と併用することができる上記多環芳香族化合物としては、特に限定するものではないが、例えば、ルブレン、アントラセン、テトラセン、ピレン、ベリレン、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)ビフェニル等を挙げることができる。勿論、多環芳香族化合物は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

50

【0055】

本発明のメチン化合物をゲスト化合物として用いて発光層を形成する場合、ホスト化合物としては、例えば、前記の他の発光機能を有する化合物を用いることができ、中でも発光性有機金属錯体又はトリアリールアミン誘導体が好ましい。この場合、発光性有機金属錯体又はトリアリールアミン誘導体に対して、本発明のメチン化合物を、好ましくは0.001～40重量%、より好ましくは0.01～30重量%、特に好ましくは0.1～20重量%使用する。

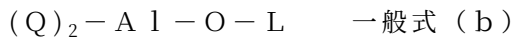
【0056】

本発明のメチン化合物と併用することができる発光性有機金属錯体としては、特に限定するものではないが、発光性有機アルミニウム錯体が好ましく、置換又は未置換の8-キノリノラート配位子を有する発光性有機アルミニウム錯体がより好ましい。好ましい発光性有機金属錯体の例としては、下記一般式(a)～(c)のいずれかで表される発光性有機アルミニウム錯体を挙げることができる。

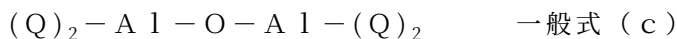
【0057】



[式中、Qは置換又は未置換の8-キノリノラート配位子を表す]



[式中、Qは置換8-キノリノラート配位子を表し、O-Lはフェノラート配位子であり、Lはフェニル部分を含む炭素数6～24の炭化水素基を表す]



[式中、Qは置換8-キノリノラート配位子を表す]

【0058】

発光性有機金属錯体の具体例としては、例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(5-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(3, 4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4, 5-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4, 6-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(フェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2-メチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3-メチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(4-メチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(4-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2, 3-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2, 6-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3, 4-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3, 5-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3, 5-ジ-tert-ブチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2, 6-ジフェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2, 4, 6-トリフェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2, 4, 6-トリメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2, 4, 5, 6-テトラメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(1-ナフトラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2-ナフトラート)アルミニウム、ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラート)(2-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラート)(3-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラート)(4-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラート)(3, 5-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラ

10

20

30

40

50

ート) (3, 5-ジ-tert-ブチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラート) アルミニウム-μ-オキソ-ビス (2-メチル-8-キノリノラート) アルミニウム、ビス (2, 4-ジメチル-8-キノリノラート) アルミニウム-μ-オキソ-ビス (2, 4-ジメチル-8-キノリノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-4-エチル-8-キノリノラート) アルミニウム-μ-オキソ-ビス (2-メチル-4-エチル-8-キノリノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-4-メトキシ-8-キノリノラート) アルミニウム-μ-オキソ-ビス (2-メチル-4-メトキシ-8-キノリノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-5-シアノ-8-キノリノラート) アルミニウム-μ-オキソ-ビス (2-メチル-5-シアノ-8-キノリノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラート) アルミニウム-μ-オキソ-ビス (2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラート) アルミニウム等を挙げることができる。勿論、発光性有機金属錯体は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0059】

電子注入輸送層5は、陰極6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、本発明のメチン化合物、並びに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、5-ヒドロキシフラボンのベリリウム塩、5-ヒドロキシフラボンのアルミニウム塩]、オキサジアゾール誘導体 [例えば、1, 3-ビス[5'-(p-tert-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール-2'-イル] ベンゼン]、トリアゾール誘導体 [例えば、3-(4'-tert-ブチルフェニル)-4-フェニル-5-(4'-ビフェニル)-1, 2, 4-トリアゾール]、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等) から選択される少なくとも1種用いて形成することができる。

【0060】

本発明のメチン化合物と他の電子注入輸送機能を有する化合物とを併用する場合、電子注入輸送層中に占める本発明のメチン化合物の割合は、好ましくは0.1~40重量%に調製する。本発明においては、本発明のメチン化合物及び有機金属錯体 [例えば、前記一般式(a)~(c)のいずれかで表される化合物] を併用して、電子注入輸送層を形成することが好ましい。

【0061】

陰極6には、比較的仕事関数の小さい金属、合金又は電気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、グラファイト薄膜等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。

【0062】

陰極は、これらの電極物質を用いて、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等の方法により、電子注入輸送層の上に形成することができる。また、陰極は一層構造であってもよく、あるいは多層構造であってもよい。尚、陰極のシート電気抵抗は、数百Ω/□以下に設定するのが好ましい。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、好ましくは10~500nmに設定する。尚、有機電界発光素子の発光を効率よく取り出すために、陽極及び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。

【0063】

また、本発明の有機電界発光素子においては、その少なくとも一層中に、一重項酸素クエンチャーが含有されていてもよい。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いが、例えば、ルブレン、ニッケル錯体、ジフェニルイソベンゾフラン等が挙げられ、特に好ましくはルブレンである。一重項酸素クエンチャーが含有されている層としては、特に限定するものではないが、好ましくは発光層又は正孔注入輸送層であり、より好ましくは正孔注入輸送層である。尚、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、正孔注入輸送層中に均一に含有させてもよく、正孔注入輸送層と隣接する層（例えば、発光層、発光機能を有する電子注入輸送層）の近傍に含有させてもよい。一重項酸素クエンチャーの含有量は、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通常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。

10

【0064】

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、イオン化蒸着法、溶液塗布法（例えば、スピンコート法、キャスト法、ディップコート法、バーコート法、ロールコート法、ラングミュア・ブロゼット法、インクジェット法等）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。

【0065】

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、50～600℃程度のボート温度（蒸着源温度）、-50～300℃程度の基板温度で、0.005～50nm/sec程度の蒸着速度で実施することが好ましい。この場合、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層を、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製造することができる。真空蒸着法により、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層を、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。

20

【0066】

溶液塗布法により各層を形成する場合は、各層を形成する成分あるいはその成分及びバインダー樹脂等を、溶媒に溶解又は分散させて塗布液とする。正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の各層に使用し得るバインダー樹脂としては、例えば、ポリ-N-ビニルカルバゾール、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、ポリエチレンエーテル、ポリプロピレンエーテル、ポリフェニレンオキサイド、ポリエーテルスルホン、ポリアニリン及びその誘導体、ポリチオフェン及びその誘導体、ポリフェニレンビニレン及びその誘導体、ポリフルオレン及びその誘導体、ポリチエニレンビニレン及びその誘導体等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。

30

【0067】

溶液塗布法により各層を形成する場合は、各層を形成する成分あるいはその成分及びバインダー樹脂等を、適当な溶媒に溶解又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。該溶媒としては、有機溶媒（ヘキサン、オクタン、デカン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、1-メチルナフタレン等の炭化水素系溶媒、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン系溶媒、ジクロロメタン、クロロホルム、テトラクロロメタン、ジクロロエタン、トリクロロエタン、テトラクロロエタン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、クロロトルエン等のハロゲン化炭化水素系溶媒、酢酸エチル、酢酸ブチル、酢酸アミル等のエステル系溶媒、メタノール、エタノール、プロパノール、ブタノール、ペンタノール、ヘキサノール、シクロヘキサノール、メチルセロソルブ、エチルセロソルブ、エチレングリコール等のア

40

50

ルコール系溶媒、ジブチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、アニソール等のエーテル系溶媒、N，N－ジメチルホルムアミド、N，N－ジメチルアセトアミド、1－メチル－2－ピロリドン、1，3－ジメチル－2－イミダゾリジノン、ジメチルスルフォキサイド等の極性溶媒）及び水が挙げられる。

【0068】

尚、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、ホモジナイザー等を用いて微粒子状に分散させる方法が挙げられる。塗布液の濃度に関しては、特に限定されるものではなく、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%、好ましくは1～30重量%の溶液濃度である。尚、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%、好ましくは10～99重量%、より好ましくは15～90重量%に設定する。

10

【0069】

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5nm～5μmに設定することが好ましい。尚、作製した素子に対し、酸素や水分等との接触を防止する目的で、保護層（封止層）を設けたり、また、素子を、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等の不活性物質中に封入して保護することができる。

20

【0070】

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、シリコーン樹脂、エポキシシリコーン樹脂、ポリスチレン、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリパラキシレン、ポリエチレン、ポリフェニレンオキサイド）、無機材料（例えば、ダイヤモンド薄膜、アモルファスシリカ、電気絶縁性ガラス、金属酸化物、金属窒化物、金属炭素化物、金属硫化物）、さらには光硬化性樹脂等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、一層構造であってもよく、また多層構造であってもよい。

【0071】

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、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（例えば、銅フタロシアニン）、カーボンから成る界面層（中間層）を設けることもできる。さらに、電極、例えば、陽極又はその表面を、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使用することもできる。

30

【0072】

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、パルス駆動型又は交流駆動型の素子としても使用することができる。尚、印加電圧は、一般に2～30V程度である。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、各種のセンサー等に使用することができる。

40

【実施例】

【0074】

以下、実施例等により本発明をさらに詳細に説明するが、勿論、本発明はこれらに限定されるものではない。

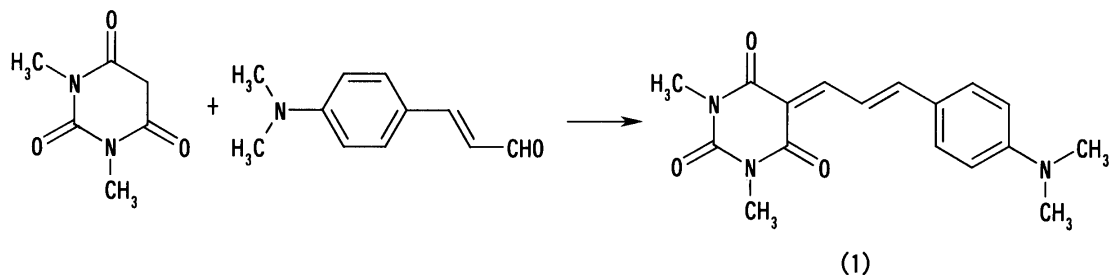
【0075】

〔合成例1〕化合物（1）の合成

下記合成ルートにより、以下の手順で化合物（1）を合成した。

【0076】

【化 8】



【0077】

1,3-ジメチルバルビツル酸 0.78 g (5mM) をジメチルスルホキサイド(DMSO) 20mL に溶解し、ポタシウムt-ブトキシド0.56 g (5mM)を加え、そのまま20分間攪拌した。その後4-ジメチルアミノシンナムアルデヒド0.88 g (5mM)を加えて90℃で5時間反応させた。反応液を室温まで冷却し、3.6規定塩化水素水溶液5mL で中和した後、生成した固体をろ別し、エタノールで洗浄後、減圧乾燥して赤紫色の固体1.22g (収率78%)を得た。得られた固体は、マスペクトル測定を行ったところ分子量が313であり、NMR 測定を行ったところ結果が下記の通りであり、目的物である化合物(1)であることが確認できた。この化合物(1)について、常法に従って可視吸収スペクトル(塩化メチレン溶液)及び蛍光スペクトル(塩化メチレン溶液)を測定したところ、それぞれ波長532nm及び605nmに極大波長を示した。

【0078】

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 ($\delta = \text{ppm}$)): 3.10 (s, 6H), 3.37 (s, 6H), 6.67 (d, 2H, $J=9.03$), 7.40 (1H, d, $J=14.88\text{Hz}$), 7.59 (1H, d, $J=9.03\text{Hz}$), 8.19 (d, 1H, $J=12.44\text{Hz}$), 8.41 (dd, 1H, $J=12.44$, 14.48Hz)

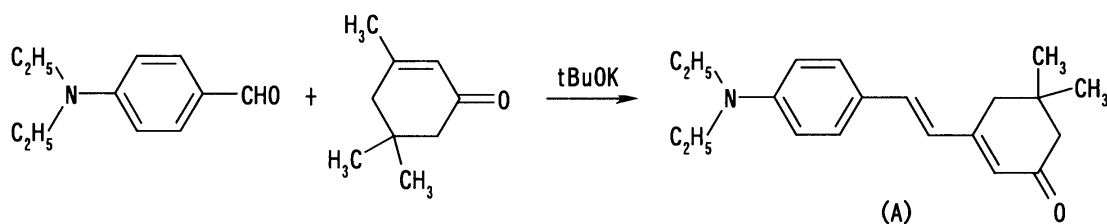
【0079】

〔合成例2〕化合物(2)の合成

先ず、下記合成ルートにより、以下の手順で化合物(A)を合成した。

【0080】

【化 9】



【0081】

4-ジエチルアミノベンズアルデヒド 35.45 g (0.20M)及びイソホロン 33.17 g (0.24M)をエタノール300mL に溶解し、ポタシウムt-ブトキシド24.69 g (0.22M)を加え、室温で1時間攪拌した。その後環流温度で3時間攪拌した。酢酸 220 mMで中和した後、生成した固体をろ別し、エタノールで洗浄し、減圧乾燥して固体を38.19g (収率64.2%)得た。得られた固体のNMR 測定結果は下記の通りであり、この固体は化合物(A)であることが確認できた。

【0082】

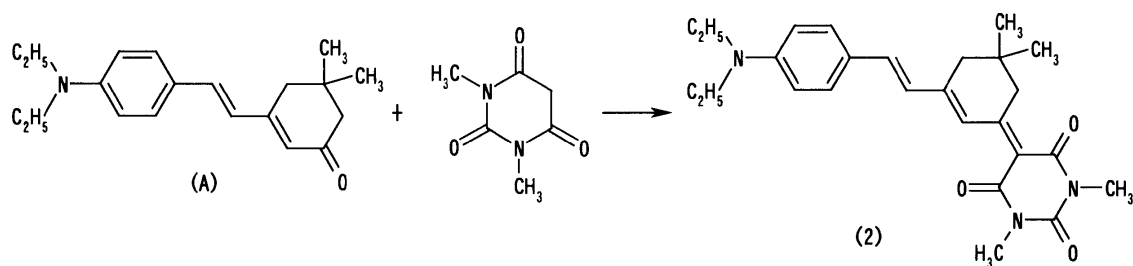
$^1\text{H NMR}$ (CDCl_3 ($\delta = \text{ppm}$)): 1.02 (s, 6H), 1.20 (t, 6H, $J=7.07\text{Hz}$), 2.29 (s, 2H), 2.46 (s, 2H), 3.39 (q, 4H, $J=7.07\text{Hz}$), 6.00 (s, 1H), 6.64 (d, 2H, $J=9.03\text{Hz}$), 6.70 (d, 1H, $J=16.10\text{Hz}$), 6.93 (d, 1H, $J=16.10\text{Hz}$), 7.37 (d, 2H, 8.78Hz)

【0083】

次いで、得られた化合物(A)を用いて、下記合成ルートにより、以下の手順で化合物(2)を合成した。

【0084】

【化10】



10

【0085】

化合物 (A) 5.95g (20mM) 及び1,3-ジメチルバルビツル酸3.75g (25mM)を無水酢酸 120g に溶解し、135℃で8時間反応させた。反応溶液から減圧下で溶媒を留去した後、エタノールで2回再結晶し、赤紫結晶6.04g (収率69%)を得た。得られた赤紫結晶は、マスペクトルを測定したところ分子量が387であり、NMR測定を行ったところ結果が下記の通りであり、目的物である化合物 (2) であることが確認できた。この化合物 (2) について、常法に従って可視吸収スペクトル(塩化メチレン溶液)及び蛍光スペクトル(塩化メチレン溶液)を測定したところ、それぞれ波長 542 nm及び 615nmに極大波長を示した。

【0086】

^1H NMR (CDCl_3 ($\delta = \text{ppm}$)): 1.03 (s, 6H), 1.20 (t, 6H, $J=7.07\text{Hz}$), 2.29 (s, 2H), 3.16 (s, 2H), 3.4 (m, 10H), 6.62 (d, 2H, 8.78Hz), 6.91(d, 1H, $J=16.02\text{Hz}$), 7.03(d, 1H, $J=16.02\text{Hz}$), 7.42 (d, 2H, $J=8.78\text{Hz}$), 8.41 (s, 1H)

20

【0087】

〔実施例1〕

王水蒸気によりパターン化した厚さ130nmの透明ITO電極を有するガラス基板を、アセトン、基板洗浄剤、蒸留水、イソプロピルアルコールの順で超音波洗浄した。該ガラス基板を、更に素子作成の直前にUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置のホルダーに固定した。蒸着槽を 10^{-6} Torr. 程度に減圧し、ITO透明電極上に、TPD [N, N'-ビス(3-メチルフェニル)-N, N'-ジフェニルベンジジン]を膜厚約50nm蒸着して、正孔注入輸送層を作成した。その後、膜厚センサーでモニターしながら、ホスト化合物としてのAlq [トリス(8-ヒドロキシキノリナト)アルミニウム]中に、ゲスト化合物としての上記合成例1で得られた化合物(1)が1重量%となるように、蒸着速度を調整して、厚み30nmの有機薄膜として発光層を積層した。次いで、該有機薄膜上にパターンニングしたマスク(発光面積は5mm×5mm)を設置し、フッ化リチウム、続いてアルミニウムをそれぞれ0.5nm、150nmの厚みで蒸着して、有機EL素子を作製した。この有機EL素子を、KEITHLEY社製ソースメータ2400型を用い、直流電圧を印加して発光させ、その輝度をTOPCON社の輝度計BM-9型、発光波長を浜松ホトニクス社製マルチチャンネル検出器PMA-11型を用いて測定した。得られた素子は10V印可時に8mA/cm²の電流が流れ、100cd/m²の赤色発光が得られた。また、15V印可時には1000cd/m²の最高輝度が得られた。

30

40

【図面の簡単な説明】

【0088】

- 【図1】有機電界発光素子の一例である(A)型素子の概略構造図である。
- 【図2】有機電界発光素子の一例である(B)型素子の概略構造図である。
- 【図3】有機電界発光素子の一例である(C)型素子の概略構造図である。
- 【図4】有機電界発光素子の一例である(D)型素子の概略構造図である。
- 【図5】有機電界発光素子の一例である(E)型素子の概略構造図である。
- 【図6】有機電界発光素子の一例である(F)型素子の概略構造図である。
- 【図7】有機電界発光素子の一例である(G)型素子の概略構造図である。
- 【図8】有機電界発光素子の一例である(H)型素子の概略構造図である。

50

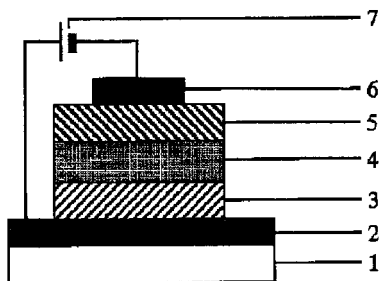
【符号の説明】

【0089】

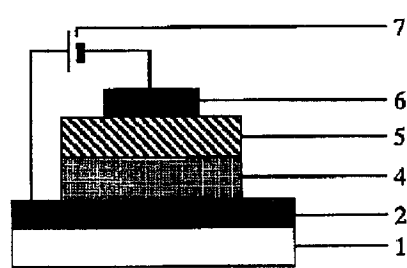
- 1 : 基板
- 2 : 陽極
- 3 : 正孔注入輸送層
- 3 a : 正孔注入輸送成分
- 4 : 発光層
- 4 a : 発光成分
- 5 : 電子注入輸送層
- 5 ' : 電子注入輸送層
- 5 a : 電子注入輸送成分
- 6 : 陰極
- 7 : 電源

10

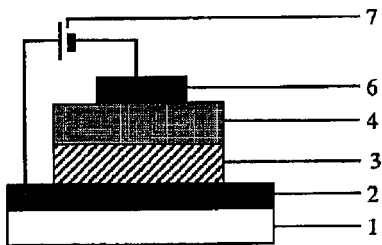
【図 1】



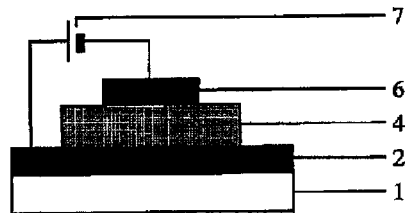
【図 3】



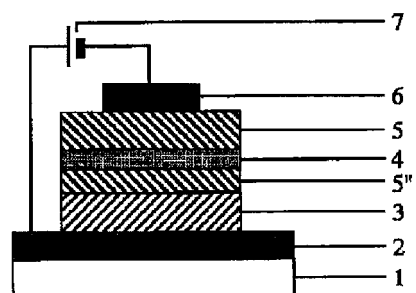
【図 2】



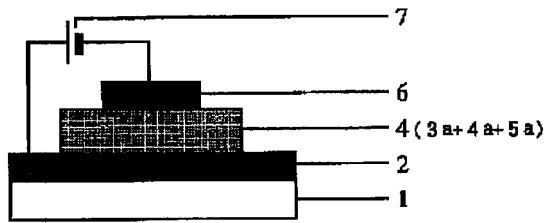
【図 4】



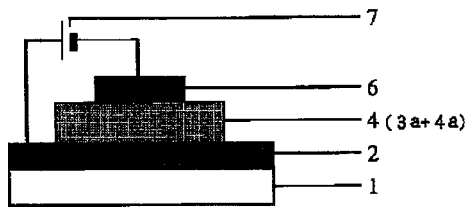
【図 5】



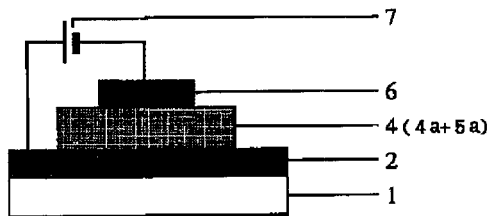
【図 6】



【図 7】



【図 8】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.

F I

H 0 5 B 33/14

B

C 0 7 D 239/62

(72)発明者 東海林 義和

東京都荒川区東尾久7丁目2番35号 旭電化工業株式会社内

審査官 大野 晃

(56)参考文献 国際公開第02/071530 (WO, A1)

特表平11-504439 (JP, A)

米国特許第03687670 (US, A)

特開平10-308281 (JP, A)

Dorothy Nightingale et al., Some Nitrogen Substituted Barbituric Acids and their Derivatives, Journal of the American Chemical Society, 1936年, Vol.58, p.794-796

Kianoush Motesharei et al., Molecular Recognition on Functionalized Self-Assembled Monolayers of Alkanethiols on Gold, Journal of the American Chemical Society, 1998年, Vol.120, No.29, p.7328-7336

Kiran S. Nimavat et al., Synthesis Anticancer, Antitubercular and Antimicrobial Activity of Some New Pyrimidine Derivatives, Indian Journal of Heterocyclic Chemistry, 2003年, Vol.12, p.217-220

Sharwan K. Dewan et al., One Pot Synthesis of Barbiturates on Reaction of Barbituric Acid with Aldehydes Under Microwave Irradiation Using a Variety of Catalysts, Synthetic Communications, 2003年, Vol.33, No.17, p.3081-3084

Branko S. Jursic et al., Mono C-alkylation and mono C-benzoylation of barbituric acids through zinc/acid reduction of acyl, benzylidene, and alkylidene barbiturate intermediates, Tetrahedron Letters, 2003年, Vol.44, No.10, p.2203-2210

Branko S. Jursic, A Simple Method for Knoevenagel Condensation of α, β -Conjugated and Aromatic Aldehydes with Barbituric Acid, Journal of Heterocyclic Chemistry, 2001年, Vol.38, No.3, p.655-657

L. Jansen de O. Figueiredo et al., Chemometric analysis of nonlinear optical chromophores structure and thermal stability, Journal of Molecular Structure (Theochem), 2001年, Vol.539, p.75-81

Christopher R. Moylan et al., Nonlinear Optical Chromophores with Large Hyperpolarizabilities and Enhanced Thermal Stabilities, Journal of the American Chemical Society, 1993年, Vol.115, No.26, p.12599-12600

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C 0 7 D 239/62

C 0 9 K 11/06

H 0 1 L 51/50

C A p l u s (STN)

R E G I S T R Y (STN)

专利名称(译)	使用次甲基化合物的有机电致发光器件的材料		
公开(公告)号	JP4640764B2	公开(公告)日	2011-03-02
申请号	JP2004238148	申请日	2004-08-18
[标]申请(专利权)人(译)	旭电化工业株式会社		
申请(专利权)人(译)	旭电化工业株式会社		
当前申请(专利权)人(译)	株式会社ADEKA		
[标]发明人	坂巻功一 土屋浩 武捨清 東海林義和		
发明人	坂巻 功一 土屋 浩 武捨 清 東海林 義和		
IPC分类号	C09K11/06 H01L51/50 C07D239/62		
FI分类号	C09K11/06.610 C09K11/06.620 C09K11/06.650 C09K11/06.660 C09K11/06.690 H05B33/14.B C07D239/62 C07D239/62.CSP		
F-TERM分类号	3K007/AB02 3K007/AB03 3K007/AB11 3K007/DB03 3K007/FA01 3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/BB02 3K107/BB06 3K107/CC02 3K107/CC04 3K107/CC21 3K107/DD53 3K107/DD59 3K107/DD60 3K107/DD64 3K107/DD68 3K107/DD69 3K107/DD71 3K107/DD73 3K107/DD74 3K107/DD76 3K107/DD78 3K107/DD79 3K107/DD80 3K107/FF14 3K107/GG04		
审查员(译)	大野 晃		
其他公开文献	JP2006056798A		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

要解决的问题：提供具有优异稳定性，耐久性，发光亮度和发光效率的有机电致发光元件，以提供可用于有机电致发光元件材料的新化合物，提供包含该化合物的材料并用于有机电致发光元件使用该材料制备有机电致发光元件的有机电致发光元件。ŽSOLUTION：由通式 (I) 表示的新的次甲基化合物[L SB 1 </ SB> , L SB 2 </ SB>和L SB 3 </ SB>各自独立地为次甲基或取代的次甲基;L SB 4 </ SB>表示构成π电子共轭体系的原子团。R SB 1和</ SB> 2 </ SB>各自独立地为H或取代基; (n) 是1或2]。Ž

