

(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2010-56168

(P2010-56168A)

(43) 公開日 平成22年3月11日(2010.3.11)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
H O 1 L 51/50 (2006.01)	H O 5 B 33/22 B	3 K 1 0 7
C O 8 G 63/685 (2006.01)	H O 5 B 33/22 D	4 J 0 2 9
	H O 5 B 33/14 B	
	C O 8 G 63/685	

審査請求 未請求 請求項の数 7 O L (全 83 頁)

(21) 出願番号	特願2008-217272 (P2008-217272)	(71) 出願人	000005496
(22) 出願日	平成20年8月26日 (2008. 8. 26)		富士ゼロックス株式会社
			東京都港区赤坂九丁目7番3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	堀場 幸治
			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】 有機電界発光素子、表示媒体、及び塗膜用組成物

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 N , N - ジ (m - トリル) N , N ' - ジフェニルベンジジン (T P D) を用いた有機電界発光素子と比べて、長寿命の有機電界発光素子を提供する。

【解決手段】 有機電界発光素子は、一対の電極間に挟まれた1つ以上の層で構成される有機化合物層を有し、前記有機化合物層を構成する少なくとも1層が、電荷輸送性ポリエステルを1種以上含有する。該ポリエステル繰り返し単位は、トリアザナフタレン系の二価連結部を有する。

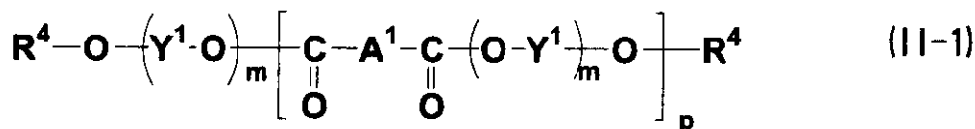
【選択図】 なし

【特許請求の範囲】

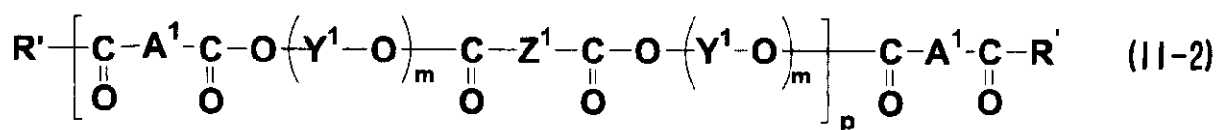
【請求項 1】

少なくとも一方が透明又は半透明である陽極及び陰極よりなる一対の電極と、
前記一対の電極間に挟まれた 1 つ以上の層で構成される有機化合物層と、を有し、
前記有機化合物層を構成する少なくとも 1 層が、下記一般式 (II-1) 又は (II-2) で表される電荷輸送性ポリエステルを 1 種以上含有することを特徴とする有機電界発光素子。

【化 1】



10

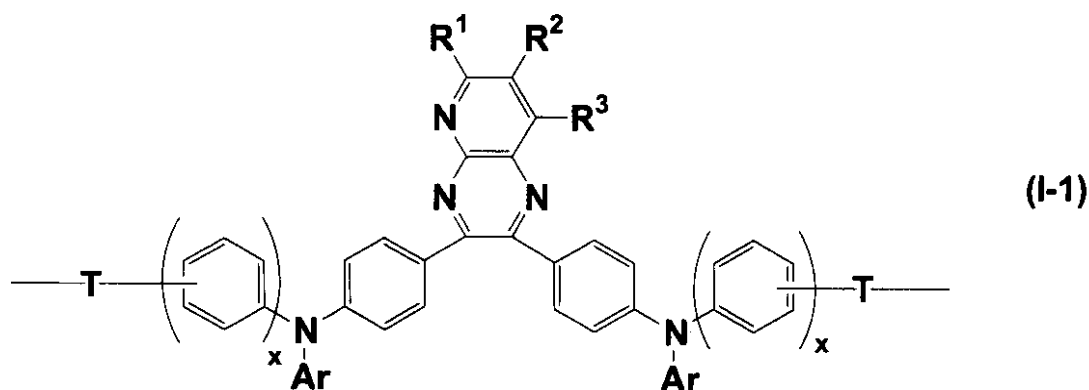


20

〔一般式 (II-1) 及び (II-2) 中、 A^1 は各々独立に、下記一般式 (I-1) で表される構造から選択された少なくとも 1 種を表す。 Y^1 は 2 価のアルコール残基を表す。 Z^1 は 2 価のカルボン酸残基を表す。 m は、各々独立に、1 以上 5 以下の整数を表す。 p は各々独立に 5 以上 5000 以下の整数を表す。 R^4 は、水素原子、アルキル基、置換若しくは未置換のアリール基、又は、置換若しくは未置換のアラルキル基を表す。 R' は、各々独立に、 $-OH$ 、 $-O-(Y^1-O)_m-H$ 、又は $-O-(Y^1-O)_m-CO-Z^1-CO-OR^4$ で表される基を表す (R' における Y^1 、 Z^1 、 m 、及び R^4 は、前記 Y^1 、 Z^1 、 m 、及び R^4 とそれぞれ同義である。)。〕

【化 2】

30



40

〔一般式 (I-1) 中、 R^1 、 R^2 、及び R^3 は、各々独立に、水素原子、置換若しくは未置換の炭素数 1 以上 20 以下の 1 価の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の 1 価のフェニル基、ハロゲン原子、置換若しくは未置換の芳香環数 2 以上 10 以下の 1 価の多核芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の芳香環数 2 以上 10 以下の 1 価の縮合芳香族炭化水素基、又は置換若しくは未置換の 1 価の芳香族複素環基を表す。 Ar は、各々独立に、置換若しくは未置換の 1 価のフェニル基、置換若しくは未置換の芳香環数 2 以上 10 以下の 1 価の多核芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の芳香環数 2 以上 10 以下の 1 価

50

の縮合多環芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の 1 価の芳香族複素環基、又は少なくとも一種の芳香族複素環を含む 1 価の芳香族基を表す。x は、各々独立に、1 以上 3 以下の整数を示す。T は、各々独立に、炭素数 1 以上 10 以下の 2 価の直鎖状炭化水素基、又は炭素数 3 以上 10 以下の 2 価の分枝鎖状炭化水素基を表す。

【請求項 2】

前記有機化合物層が、少なくとも、発光層と、電子輸送層及び電子注入層の少なくとも 1 層とを含み、

前記発光層、電子輸送層及び電子注入層から選択される少なくとも 1 層が、前記一般式 (II-1) 又は (II-2) で表される電荷輸送性ポリエステルを 1 種以上含有することを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子。

10

【請求項 3】

前記有機化合物層が、少なくとも、発光層と、正孔輸送層及び正孔注入層の少なくとも 1 層とを含み、

前記発光層、正孔輸送層及び正孔注入層から選択される少なくとも 1 層が、前記一般式 (II-1) 又は (II-2) で表される電荷輸送性ポリエステルを 1 種以上含有することを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子。

【請求項 4】

前記有機化合物層が、少なくとも、発光層と、正孔輸送層及び正孔注入層の少なくとも 1 層と、電子輸送層及び電子注入層の少なくとも 1 層とを含み、

前記発光層、正孔輸送層、正孔注入層、電子輸送層及び電子注入層から選択される少なくとも 1 層が、前記一般式 (II-1) 又は (II-2) で表される電荷輸送性ポリエステルを 1 種以上含有することを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子。

20

【請求項 5】

前記有機化合物層が、電荷輸送機能を持つ発光層のみで構成され、

前記電荷輸送機能を持つ発光層が、前記一般式 (II-1) 又は (II-2) で表される電荷輸送性ポリエステルを 1 種以上含有することを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子。

【請求項 6】

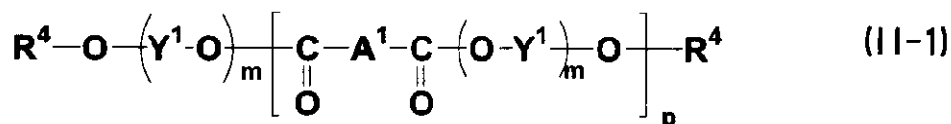
少なくとも一方が透明又は半透明である陽極及び陰極よりなる一対の電極と、前記一対の電極間に挟まれた 1 つ以上の層で構成される有機化合物層と、を有し、前記有機化合物層を構成する少なくとも 1 層が、下記一般式 (II-1) 又は (II-2) で表される電荷輸送性ポリエステルを 1 種以上含有する、マトリックス状及びセグメント状の少なくとも一方で配列された有機電界発光素子と、

30

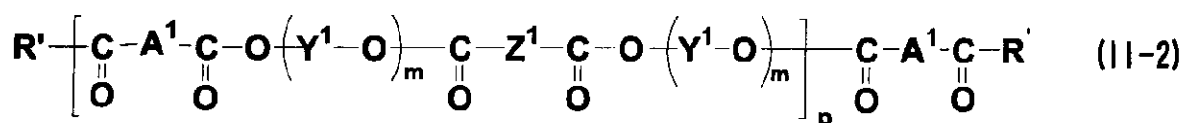
マトリックス状及びセグメント状の少なくとも一方で配列された前記有機電界発光素子を駆動する駆動手段と、

を備えることを特徴とする表示媒体。

【化 3】



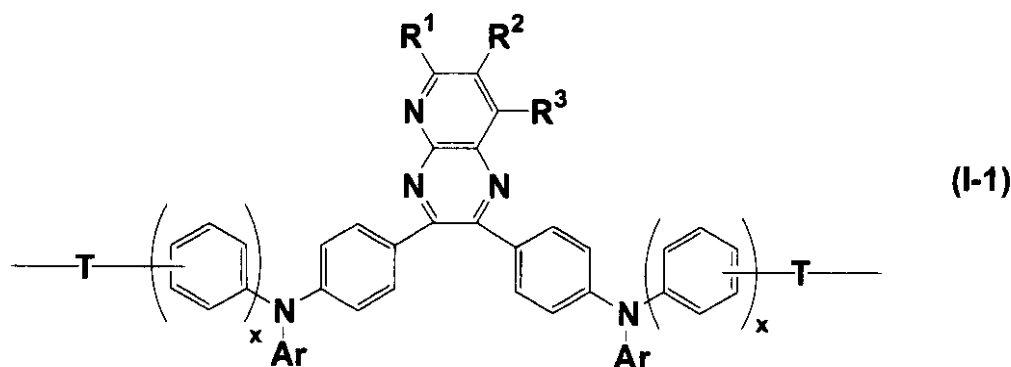
40



50

〔一般式(II-1)及び(II-2)中、 A^1 は各々独立に、下記一般式(I-1)で表される構造から選択された少なくとも1種を表す。 Y^1 は2価のアルコール残基を表す。 Z^1 は2価のカルボン酸残基を表す。 m は、各々独立に、1以上5以下の整数を表す。 p は各々独立に5以上5000以下の整数を表す。 R^4 は、水素原子、アルキル基、置換若しくは未置換のアリール基、又は、置換若しくは未置換のアラルキル基を表す。 R' は、各々独立に、 $-OH$ 、 $-O-(Y^1-O)_m-H$ 、又は $-O-(Y^1-O)_m-CO-Z^1-CO-OR^4$ で表される基を表す(R' における Y^1 、 Z^1 、 m 、及び R^4 は、前記 Y^1 、 Z^1 、 m 、及び R^4 とそれぞれ同義である。)。〕

【化4】

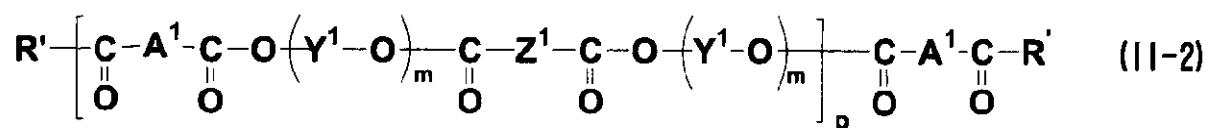
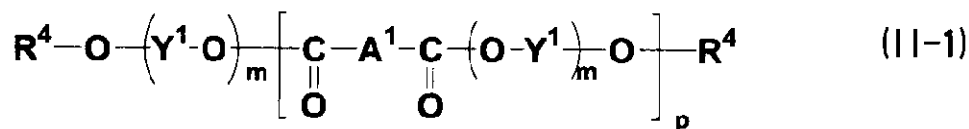


〔一般式(I-1)中、 R^1 、 R^2 、及び R^3 は、各々独立に、水素原子、置換若しくは未置換の炭素数1以上20以下の1価の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の1価のフェニル基、ハロゲン原子、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の多核芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の縮合芳香族炭化水素基、又は置換若しくは未置換の1価の芳香族複素環基を表す。 Ar は、各々独立に、置換若しくは未置換の1価のフェニル基、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の多核芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の縮合多環芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の1価の芳香族複素環基、又は少なくとも一種の芳香族複素環を含む1価の芳香族基を表す。 x は、各々独立に、1以上3以下の整数を示す。 T は、各々独立に、炭素数1以上10以下の2価の直鎖状炭化水素基、又は炭素数3以上10以下の2価の分枝鎖状炭化水素基を表す。〕

【請求項7】

下記一般式(II-1)又は(II-2)で表される電荷輸送性ポリエステル少なくとも1種と、少なくとも1種の有機溶媒と、を含む塗膜用組成物。

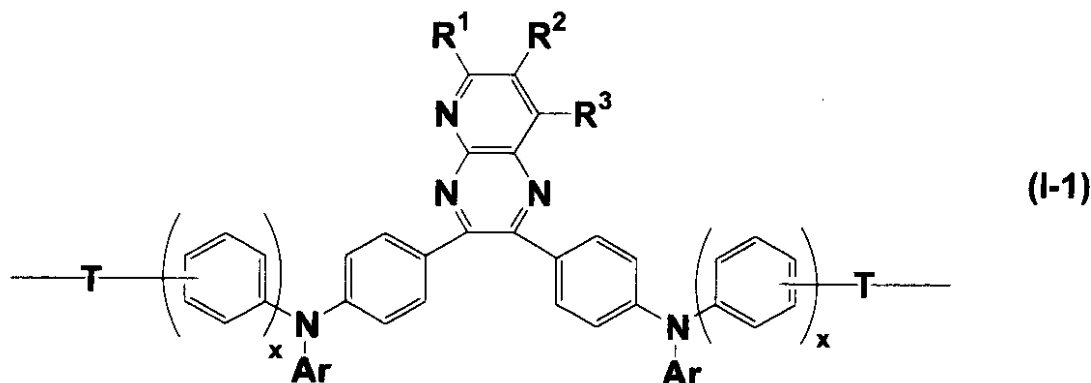
【化5】



〔一般式(II-1)及び(II-2)中、 A^1 は各々独立に、下記一般式(I-1)で表される

構造から選択された少なくとも１種を表す。 Y^1 は２価のアルコール残基を表す。 Z^1 は２価のカルボン酸残基を表す。 m は、各々独立に、１以上５以下の整数を表す。 p は各々独立に５以上５０００以下の整数を表す。 R^4 は、水素原子、アルキル基、置換若しくは未置換のアリール基、又は、置換若しくは未置換のアラルキル基を表す。 R^1 は、各々独立に、 $-OH$ 、 $-O-(Y^1-O)_m-H$ 、又は $-O-(Y^1-O)_m-CO-Z^1-CO-OR^4$ で表される基を表す（ R^1 における Y^1 、 Z^1 、 m 、及び R^4 は、前記 Y^1 、 Z^1 、 m 、及び R^4 とそれぞれ同義である。）。

【化６】



〔一般式（I-1）中、 R^1 、 R^2 、及び R^3 は、各々独立に、水素原子、置換若しくは未置換の炭素数１以上２０以下の１価の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の１価のフェニル基、ハロゲン原子、置換若しくは未置換の芳香環数２以上１０以下の１価の多核芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の芳香環数２以上１０以下の１価の縮合芳香族炭化水素基、又は置換若しくは未置換の１価の芳香族複素環基を表す。 Ar は、各々独立に、置換若しくは未置換の１価のフェニル基、置換若しくは未置換の芳香環数２以上１０以下の１価の多核芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の芳香環数２以上１０以下の１価の縮合多環芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の１価の芳香族複素環基、又は少なくとも一種の芳香族複素環を含む１価の芳香族基を表す。 x は、各々独立に、１以上３以下の整数を示す。 T は、各々独立に、炭素数１以上１０以下の２価の直鎖状炭化水素基、又は炭素数３以上１０以下の２価の分枝鎖状炭化水素基を表す。

【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、表示媒体、及び塗膜用組成物に関するものである。

【背景技術】

【０００２】

電界発光素子は、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ので、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り広く使用されている。

一方、有機化合物を用いた電界発光素子研究は、最初アントラセン等の単結晶を用いて始まり、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）。この素子の発光は、電極の一方から電子が注入され、もう一方の電極から正孔が注入されることにより、素子中の発光材料が高いエネルギー準位に励起され、励起された発光体が基底状態に戻る際の余分なエネルギーを光として放出する現象である。

【０００３】

また、１９８７年にＴａｎｇらにより、機能分離型の有機電界発光素子が報告された（例えば、非特許文献２及び特許文献１参照）。この素子は、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とを、真空蒸着法により極めて薄い薄膜とし

て透明基板上に順次積層するものである。この機能分離型の有機電界発光素子は、10V程度の低電圧で1000cd/m²以上の高輝度が得られると報告されている。以来、有機電界発光素子の研究・開発が活発に行われている。

【0004】

前記積層構造の電界発光素子は、有機発光体と電荷輸送性の有機物（電荷輸送材料）を電極に積層した構造であり、それぞれの正孔と電子が電荷輸送材料中を移動して、再結合することにより発光する。

有機発光体としては、8-キノリノールアルミニウム錯体やクマリン化合物など蛍光を発する有機色素などが用いられる。

電荷輸送材料としては、例えば、テトラフェニルN,N-ジ(m-トリル)N,N'-ジフェニルベンジジンなどのテトラフェニルベンジジン類(TPD)（例えば、特許文献2及び3参照）や1,1-ビス[N,N-ジ(p-トリル)アミノフェニル]シクロヘキサンといったジアミノ化合物や、4-(N,N-ジフェニル)アミノベンズアルデヒド-N,N-ジフェニルヒドラゾン化合物、三級アミン（例えば、特許文献4）等が挙げられる。

【0005】

作製法においては、製造の簡略化、加工性、大面積化、コスト等の観点から塗布方式が望ましく、キャストイング法によっても素子が得られることが報告されている（例えば、非特許文献3及び非特許文献4参照）。

【0006】

更に、耐熱性の向上を目的として、ガラス転移温度が高く安定なアモルファスガラス状態が得られるα-ナフチル基を導入したN,N-ジ(1-ナフチル)N,N'-ジフェニルベンジジン（例えば、非特許文献5参照）、スターバーストアミン（例えば、非特許文献6参照）を用いた有機電界発光素子が報告されている。

【0007】

他方、発光特性や電荷注入特性、発光効率及び製造性の向上を目的として、低分子化合物の代わりに高分子材料を用いる電界発光素子についても研究・開発が進められている。例えば、ポリ(p-フェニレンビニレン)等の導電性高分子素子（例えば、非特許文献7及び特許文献5参照）、ポリフォスファゼンの側鎖にトリフェニルアミンを導入した高分子素子（例えば、非特許文献8参照）、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9参照）等が提案されている。なお、前記「導電性高分子」とは体積抵抗率が $1 \times 10^8 \sim 1 \times 10^{10}$ の範囲である高分子のことを意味する。

【特許文献1】特開昭59-194393号公報

【特許文献2】特開平7-126615号公報

【特許文献3】特開平8-48656号公報

【特許文献4】特開昭63-295695号公報

【特許文献5】特開平10-92576号公報

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

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

【非特許文献3】第50回応用物理学会学術講演予稿集, 29p-ZP-5(1989)

【非特許文献4】第51回応用物理学会学術講演予稿集, 28a-PB-7(1990)

【非特許文献5】電子情報通信学会技術研究報告、OME95-54(1995)

【非特許文献6】第40回応用物理学関係連合講演会予稿集, 30a-SZK-14(1993)

【非特許文献7】Nature, 357, 477(1992)

【非特許文献8】第42回高分子討論会予稿集, 20J21(1993)

【非特許文献9】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】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

本発明の課題は、N，N - ジ（m - トリル）N，N' - ジフェニルベンジジン（TPD）を用いた有機電界発光素子と比べて、長寿命の有機電界発光素子を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0009】

上記課題は、以下の手段により解決される。即ち、

請求項1にかかる発明は、

少なくとも一方が透明又は半透明である陽極及び陰極よりなる一対の電極と、

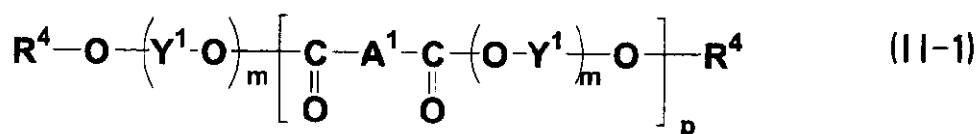
前記一対の電極間に挟まれた1つ以上の層で構成される有機化合物層と、を有し、

前記有機化合物層を構成する少なくとも1層が、下記一般式（II-1）又は（II-2）で表される電荷輸送性ポリエステルを1種以上含有することを特徴とする有機電界発光素子である。

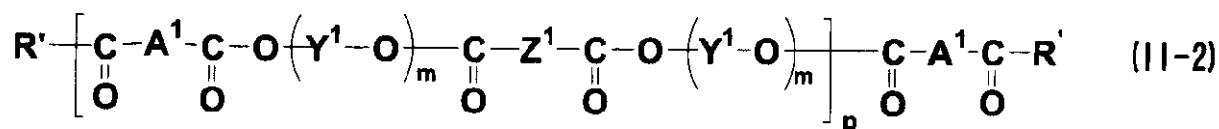
10

【0010】

【化1】



20



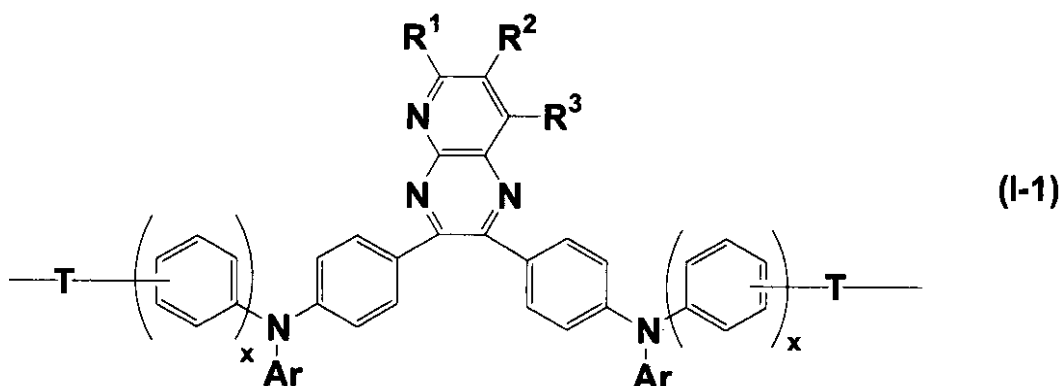
【0011】

一般式（II-1）及び（II-2）中、A¹は各々独立に、下記一般式（I-1）で表される構造から選択された少なくとも1種を表す。Y¹は2価のアルコール残基を表す。Z¹は2価のカルボン酸残基を表す。mは、各々独立に、1以上5以下の整数を表す。pは各々独立に5以上5000以下の整数を表す。R⁴は、水素原子、アルキル基、置換若しくは未置換のアリール基、又は、置換若しくは未置換のアラルキル基を表す。R'は、各々独立に、-OH、-O-(Y¹-O)_m-H、又は-O-(Y¹-O)_m-CO-Z¹-CO-OR⁴で表される基を表す（R'におけるY¹、Z¹、m、及びR⁴は、前記Y¹、Z¹、m、及びR⁴とそれぞれ同義である。）。

30

【0012】

【化 2】



10

【0013】

一般式 (I - 1) 中、 R^1 、 R^2 、及び R^3 は、各々独立に、水素原子、置換若しくは未置換の炭素数 1 以上 20 以下の 1 価の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の 1 価のフェニル基、ハロゲン原子、置換若しくは未置換の芳香環数 2 以上 10 以下の 1 価の多核芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の芳香環数 2 以上 10 以下の 1 価の縮合芳香族炭化水素基、又は置換若しくは未置換の 1 価の芳香族複素環基を表す。Ar は、各々独立に、置換若しくは未置換の 1 価のフェニル基、置換若しくは未置換の芳香環数 2 以上 10 以下の 1 価の多核芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の芳香環数 2 以上 10 以下の 1 価の縮合多環芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の 1 価の芳香族複素環基、又は少なくとも一種の芳香族複素環を含む 1 価の芳香族基を表す。x は、各々独立に、1 以上 3 以下の整数を示す。T は、各々独立に、炭素数 1 以上 10 以下の 2 価の直鎖状炭化水素基、又は炭素数 3 以上 10 以下の 2 価の分枝鎖状炭化水素基を表す。

20

【0014】

請求項 2 にかかる発明は、

前記有機化合物層が、少なくとも、発光層と、電子輸送層及び電子注入層の少なくとも 1 層とを含み、

前記発光層、電子輸送層及び電子注入層から選択される少なくとも 1 層が、前記一般式 (II - 1) 又は (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルを 1 種以上含有することを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子である。

30

【0015】

請求項 3 にかかる発明は、

前記有機化合物層が、少なくとも、発光層と、正孔輸送層及び正孔注入層の少なくとも 1 層とを含み、

前記発光層、正孔輸送層及び正孔注入層から選択される少なくとも 1 層が、前記一般式 (II - 1) 又は (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルを 1 種以上含有することを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子である。

40

【0016】

請求項 4 にかかる発明は、

前記有機化合物層が、少なくとも、発光層と、正孔輸送層及び正孔注入層の少なくとも 1 層と、電子輸送層及び電子注入層の少なくとも 1 層とを含み、

前記発光層、正孔輸送層、正孔注入層、電子輸送層及び電子注入層から選択される少なくとも 1 層が、前記一般式 (II - 1) 又は (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルを 1 種以上含有することを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子である。

【0017】

請求項 5 にかかる発明は、

50

前記有機化合物層が、電荷輸送機能を持つ発光層のみで構成され、

前記電荷輸送機能を持つ発光層が、前記一般式(II-1)又は(II-2)で表される電荷輸送性ポリエステルを1種以上含有することを特徴とする請求項1に記載の有機電界発光素子である。

【0018】

請求項6にかかる発明は、

少なくとも一方が透明又は半透明である陽極及び陰極よりなる一対の電極と、前記一対の電極間に挟まれた1つ以上の層で構成される有機化合物層と、を有し、前記有機化合物層を構成する少なくとも1層が、下記一般式(II-1)又は(II-2)で表される電荷輸送性ポリエステルを1種以上含有する、マトリックス状及びセグメント状の少なくとも一

10

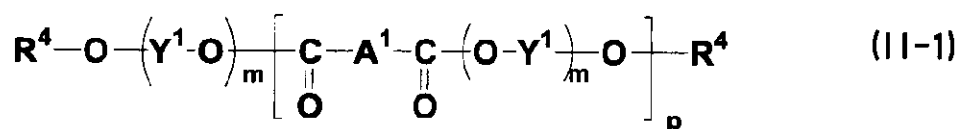
方で配列された有機電界発光素子と、

マトリックス状及びセグメント状の少なくとも一方で配列された前記有機電界発光素子を駆動する駆動手段と、

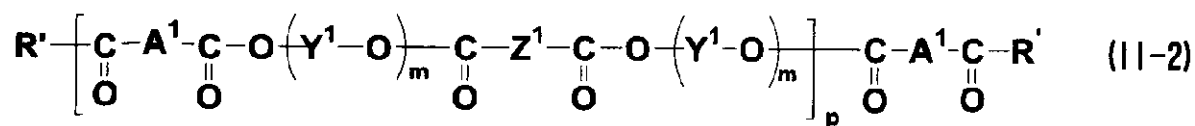
を備えることを特徴とする表示媒体である。

【0019】

【化3】



20



【0020】

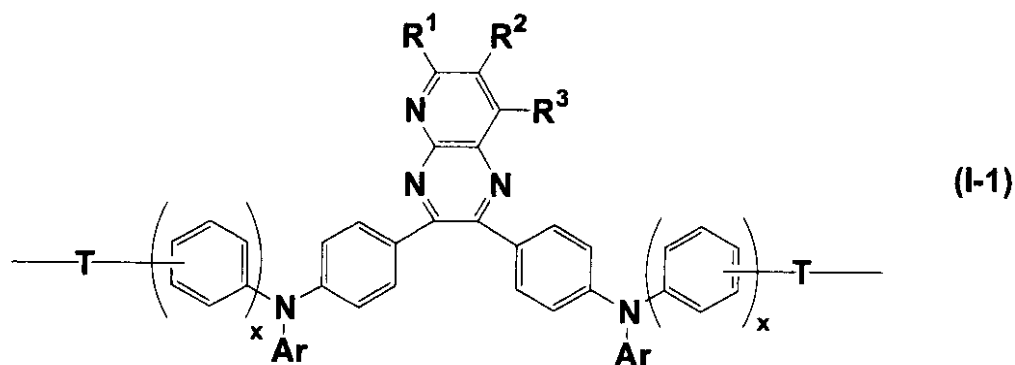
30

一般式(II-1)及び(II-2)中、 A^1 は各々独立に、下記一般式(I-1)で表される構造から選択された少なくとも1種を表す。 Y^1 は2価のアルコール残基を表す。 Z^1 は2価のカルボン酸残基を表す。 m は、各々独立に、1以上5以下の整数を表す。 p は各々独立に5以上5000以下の整数を表す。 R^4 は、水素原子、アルキル基、置換若しくは未置換のアリール基、又は、置換若しくは未置換のアラルキル基を表す。 R' は、各々独立に、 $-OH$ 、 $-O-(Y^1-O)_m-H$ 、又は $-O-(Y^1-O)_m-CO-Z^1-CO-OR^4$ で表される基を表す(R' における Y^1 、 Z^1 、 m 、及び R^4 は、前記 Y^1 、 Z^1 、 m 、及び R^4 とそれぞれ同義である。)。

【0021】

40

【化 4】



10

一般式 (I - 1) 中、 R^1 、 R^2 、及び R^3 は、各々独立に、水素原子、置換若しくは未置換の炭素数 1 以上 20 以下の 1 価の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の 1 価のフェニル基、ハロゲン原子、置換若しくは未置換の芳香環数 2 以上 10 以下の 1 価の多核芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の芳香環数 2 以上 10 以下の 1 価の縮合芳香族炭化水素基、又は置換若しくは未置換の 1 価の芳香族複素環基を表す。Ar は、各々独立に、置換若しくは未置換の 1 価のフェニル基、置換若しくは未置換の芳香環数 2 以上 10 以下の 1 価の多核芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の芳香環数 2 以上 10 以下の 1 価の縮合多環芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の 1 価の芳香族複素環基、又は少なくとも一種の芳香族複素環を含む 1 価の芳香族基を表す。x は、各々独立に、1 以上 3 以下の整数を示す。T は、各々独立に、炭素数 1 以上 10 以下の 2 価の直鎖状炭化水素基、又は炭素数 3 以上 10 以下の 2 価の分枝鎖状炭化水素基を表す。

20

【0022】

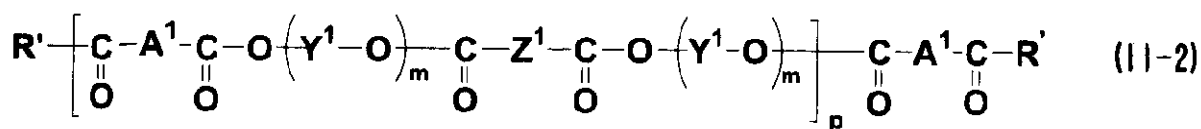
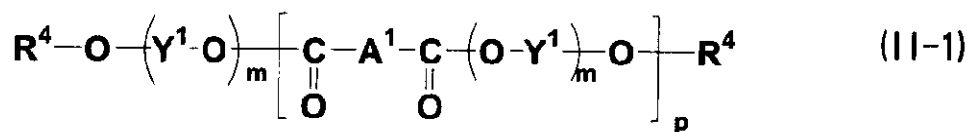
請求項 7 にかかる発明は、

下記一般式 (II - 1) 又は (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルの少なくとも 1 種と、少なくとも 1 種の有機溶媒と、を含む塗膜用組成物である。

30

【0023】

【化 5】



40

【0024】

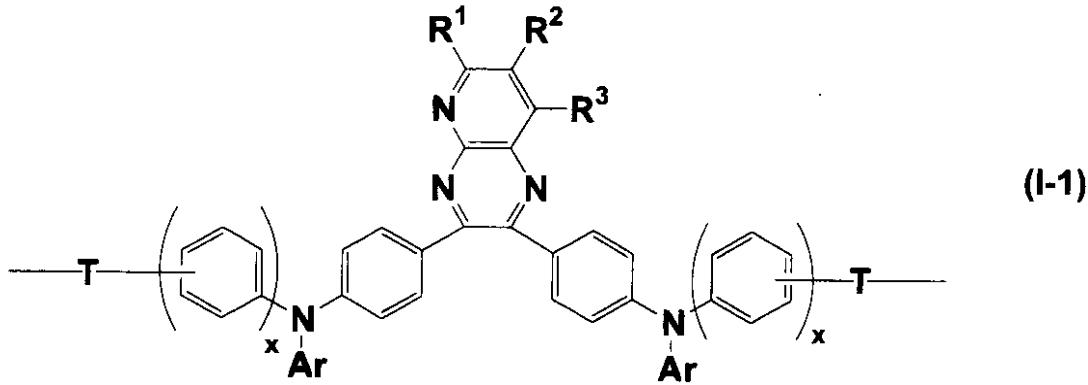
一般式 (II-1) 及び (II-2) 中、 A^1 は各々独立に、下記一般式 (I - 1) で表される構造から選択された少なくとも 1 種を表す。 Y^1 は 2 価のアルコール残基を表す。 Z^1 は 2 価のカルボン酸残基を表す。m は、各々独立に、1 以上 5 以下の整数を表す。p は各々独立に 5 以上 5000 以下の整数を表す。 R^4 は、水素原子、アルキル基、置換若しくは

50

未置換のアリール基、又は、置換若しくは未置換のアラルキル基を表す。R' は、各々独立に、-OH、-O-(Y¹-O)_m-H、又は-O-(Y¹-O)_m-CO-Z¹-CO-OR⁴で表される基を表す(R'におけるY¹、Z¹、m、及びR⁴は、前記Y¹、Z¹、m、及びR⁴とそれぞれ同義である。)。

【0025】

【化6】



10

20

【0026】

一般式(I-1)中、R¹、R²、及びR³は、各々独立に、水素原子、置換若しくは未置換の炭素数1以上20以下の1価の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の1価のフェニル基、ハロゲン原子、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の多核芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の縮合芳香族炭化水素基、又は置換若しくは未置換の1価の芳香族複素環基を表す。Arは、各々独立に、置換若しくは未置換の1価のフェニル基、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の多核芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の縮合多環芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の1価の芳香族複素環基、又は少なくとも一種の芳香族複素環を含む1価の芳香族基を表す。xは、各々独立に、1以上3以下の整数を示す。Tは、各々独立に、炭素数1以上10以下の2価の直鎖状炭化水素基、又は炭素数3以上10以下の2価の分枝鎖状炭化水素基を表す。

30

【発明の効果】

【0027】

請求項1に係る発明によれば、N,N-ジ(m-トリル)N,N'-ジフェニルベンジジン(TPD)を用いた有機電界発光素子と比べて、長寿命の有機電界発光素子が得られる。

請求項2に係る発明によれば、本層構成を有していない場合と比較して、発光効率が優れた有機電界発光素子が得られる。

請求項3に係る発明によれば、本層構成を有していない場合と比較して、耐久性に優れた有機電界発光素子が得られる。

請求項4に係る発明によれば、本層構成を有していない場合と比較して、より低電圧で駆動する有機電界発光素子が得られる。

請求項5に係る発明によれば、本層構成を有していない場合と比較して、製造が容易な有機電界発光素子が得られる。

請求項6に係る発明によれば、N,N-ジ(m-トリル)N,N'-ジフェニルベンジジン(TPD)を用いた有機電界発光素子を備える表示媒体と比べて、長寿命の表示媒体が得られる。

請求項7に係る発明によれば、本組成を有していない場合と比較して、有機電界発光素子の製造用に適し成膜性に優れた組成物が得られる。

50

【発明を実施するための最良の形態】

【0028】

まず、本実施形態の有機電界発光素子について詳細に説明する。

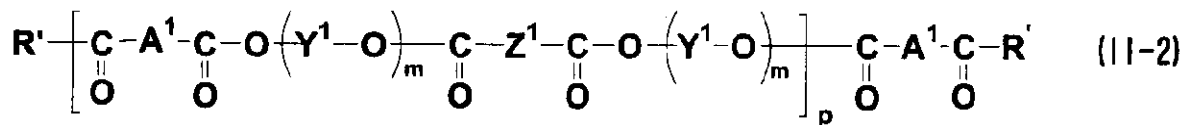
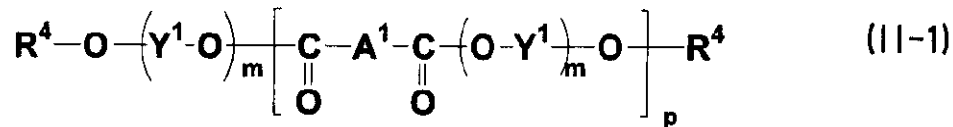
【0029】

本実施形態の有機電界発光素子は、少なくとも一方が透明又は半透明である陽極及び陰極よりなる一对の電極と、前記一对の電極間に挟まれた1つ以上の層で構成される有機化合物層と、を有する。前記有機化合物層を構成する少なくとも1層は、下記一般式(II-1)又は下記一般式(II-2)で表される電荷輸送性ポリエステルを1種以上含有する。

【0030】

【化7】

10



20

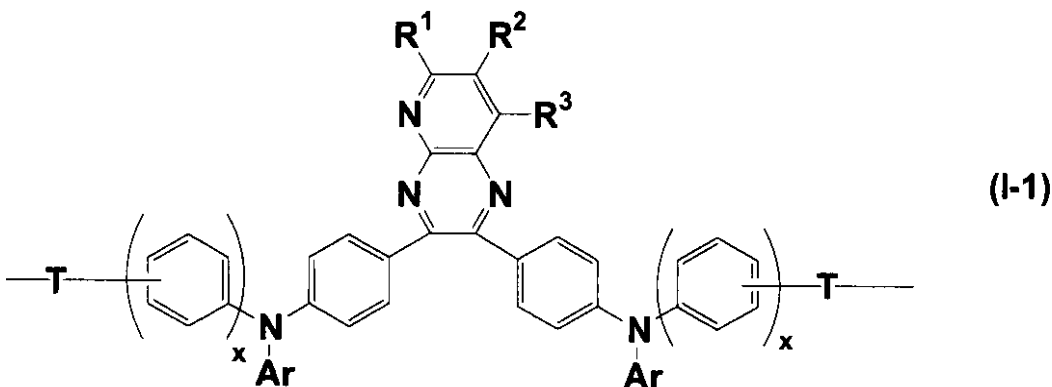
【0031】

一般式(II-1)及び(II-2)中、 A^1 は各々独立に、下記一般式(I-1)で表される構造から選択された少なくとも1種を表す。 Y^1 は2価のアルコール残基を表す。 Z^1 は2価のカルボン酸残基を表す。 m は、各々独立に、1以上5以下の整数を表す。 p は各々独立に5以上5000以下の整数を表す。 R^4 は、水素原子、アルキル基、置換若しくは未置換のアリール基、又は、置換若しくは未置換のアラルキル基を表す。 R' は、各々独立に、 $-OH$ 、 $-O-(Y^1-O)_m-H$ 、又は $-O-(Y^1-O)_m-CO-Z^1-CO-OR^4$ で表される基を表す(R' における Y^1 、 Z^1 、 m 、及び R^4 は、前記 Y^1 、 Z^1 、 m 、及び R^4 とそれぞれ同義である。)。

30

【0032】

【化8】



40

【0033】

一般式(I-1)中、 R^1 、 R^2 、及び R^3 は、各々独立に、水素原子、置換若しくは

50

未置換の炭素数 1 以上 20 以下の 1 価の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の 1 価のフェニル基、ハロゲン原子、置換若しくは未置換の芳香環数 2 以上 10 以下の 1 価の多核芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の芳香環数 2 以上 10 以下の 1 価の縮合芳香族炭化水素基、又は置換若しくは未置換の 1 価の芳香族複素環基を表す。Ar は、各々独立に、置換若しくは未置換の 1 価のフェニル基、置換若しくは未置換の芳香環数 2 以上 10 以下の 1 価の多核芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の芳香環数 2 以上 10 以下の 1 価の縮合多環芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の 1 価の芳香族複素環基、又は少なくとも一種の芳香族複素環を含む 1 価の芳香族基を表す。x は、各々独立に、1 以上 3 以下の整数を示す。T は、各々独立に、炭素数 1 以上 10 以下の 2 価の直鎖状炭化水素基、又は炭素数 3 以上 10 以下の 2 価の分枝鎖状炭化水素基を表す。

10

【0034】

上記一般式 (II - 1) 及び上記一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルは、いずれも前記一般式 (I - 1) で表される構造を有する。

一般式 (II - 1) 及び上記一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルを用いた有機電界発光素子では、長寿命化が図れる。この理由については明らかとなっていないが、一般式 (II - 1) 及び上記一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルは、好適な電荷注入特性、電荷移動度、薄膜形成能を有し、発光特性、発光時の熱安定性、保存安定性に優れているためと推測される。しかしながら、このような推測によって制限されるものではない。

20

【0035】

加えて、前記一般式 (II - 1) 及び上記一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルは、溶剤や樹脂に対する溶解性及び相溶性にも優れている。そのため、前記一般式 (II - 1) 及び上記一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルを用いることで、大面積化することが可能であり、容易に製造することが可能となる。よって、本実施形態に係る有機電界発光素子では、より高い製造容易性が実現される。

【0036】

ここで、前記一般式 (II - 1) 及び上記一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルは、その構造を選択することで、当該電荷輸送性ポリエステルに正孔輸送能、電子輸送能のいずれの機能をも付与される。このため、目的に応じて正孔輸送層、発光層、電子輸送層等のいずれの層にも用いられる。また、前記一般式 (II - 1) 及び上記一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルは、電極として用いられるITOからの電荷注入性がよく電気伝導度が高い。

30

【0037】

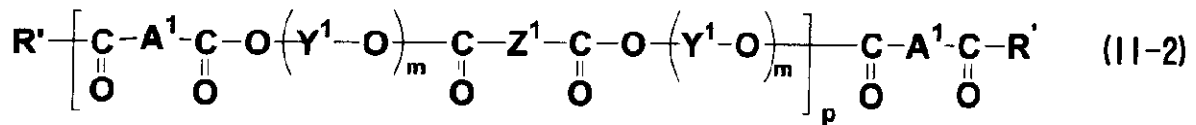
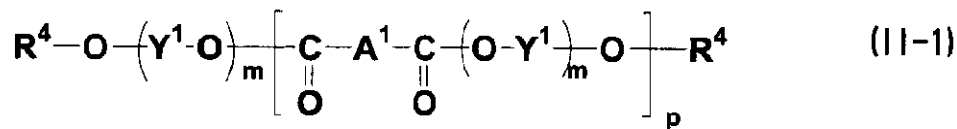
以下、本実施形態を詳細に説明するにあたり、まず電荷輸送性ポリエステルについて詳述する。

【0038】

本実施形態にかかる電荷輸送性ポリエステルは、前記一般式 (II - 1) 又は前記一般式 (II - 2) で表される。

【0039】

【化 9】



10

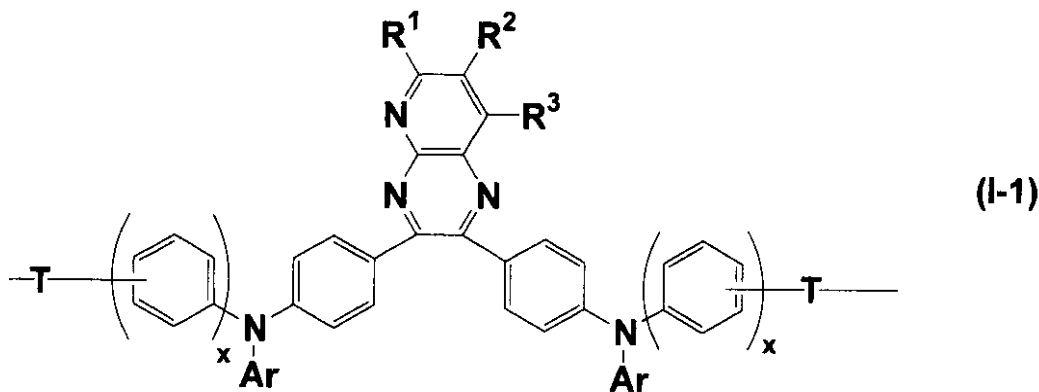
【0040】

一般式(II-1)及び(II-2)中、 A^1 は各々独立に、下記一般式(I-1)で表される構造から選択された少なくとも1種を表す。

【0041】

【化10】

20



30

【0042】

一般式(I-1)中、 R^1 、 R^2 、及び R^3 は、各々独立に、水素原子、置換若しくは未置換の炭素数1以上20以下の1価の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の1価のフェニル基、ハロゲン原子、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の多核芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の縮合芳香族炭化水素基、又は置換若しくは未置換の1価の芳香族複素環基を表す。 Ar は、各々独立に、置換若しくは未置換の1価のフェニル基、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の多核芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の縮合多環芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の1価の芳香族複素環基、又は少なくとも一種の芳香族複素環を含む1価の芳香族基を表す。 x は、各々独立に、1以上3以下の整数を示す。 T は、各々独立に、炭素数1以上10以下の2価の直鎖状炭化水素基、又は炭素数3以上10以下の2価の分枝鎖状炭化水素基を表す。

40

【0043】

一般式(I-1)中、 R^1 、 R^2 及び R^3 は、各々独立に、水素原子、置換若しくは未置換の炭素数1以上20以下の1価の脂肪族炭化水素基、置換若しくは未置換の1価のフェニル基、ハロゲン原子、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の多核芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の芳香環数2以上10以下の1価の縮合芳香族炭化

50

水素基、又は置換若しくは未置換の 1 価の芳香族複素環基を表す。

【0044】

一般式 (I - 1) 中、 R^1 、 R^2 及び R^3 で表される脂肪族炭化水素基は、直鎖状又は分鎖状であり、電荷輸送性の観点からは、直鎖状の炭化水素基であることが好ましい。

R^1 、 R^2 及び R^3 で表される脂肪族炭化水素基が直鎖状炭化水素基である場合、その炭素数は、望ましくは 1 以上 18 以下であり、さらに望ましくは 1 以上 14 以下である。

一方、 R^1 、 R^2 及び R^3 で表される脂肪族炭化水素基が分枝鎖状炭化水素基である場合、その炭素数は、望ましくは 3 以上 9 以下であり、さらに望ましくは 3 以上 7 以下である。

【0045】

一般式 (I - 1) 中、 R^1 、 R^2 及び R^3 でされるハロゲン原子は、塩素原子、フッ素原子、又は臭素原子であることが望ましく、塩素原子又はフッ素原子であることがより好ましい。

【0046】

一般式 (I - 1) 中、 R^1 、 R^2 及び R^3 でされるフェニル基は、置換基を有していても未置換でもよいが、製造コストおよび合成容易性の観点からは、未置換のフェニル基が好ましい。

【0047】

一般式 (I - 1) 中、 R^1 、 R^2 、及び R^3 で表される多核芳香族炭化水素基及び縮合芳香族炭化水素基を構成する芳香環の数は 2 以上 10 以下であり、縮合芳香族炭化水素においては 1 以上 5 以下のものが望ましい。

なお、「多核芳香族炭化水素基」とは、炭素と水素から構成される芳香環が 2 個以上存在し、環同士が炭素 - 炭素結合によって結合している炭化水素基を表す。具体的には、ビフェニル基、ターフェニル基等が挙げられ、ビフェニル基が好ましい。

また、「縮合芳香族炭化水素基」とは、炭素と水素から構成される芳香環が 2 個以上存在し、これらの芳香環同士が 1 対の隣接して結合する炭素原子を共有している炭化水素基を表す。具体的には、ナフタレン、アントラセン、ピレン、フェナントレン、ペリレン、フルオレン等から 1 個の水素原子を取り除いた 1 価の基が挙げられ、好適にはナフチル基、フルオレニル基であり、より好適にはナフチル基である。

【0048】

一般式 (I - 1) 中、 R^1 、 R^2 及び R^3 で表される「芳香族複素環基」とは、炭素と水素以外の元素も含む芳香環基を表す。芳香環に複素環が置換しているもの、複素環に芳香環が置換しているもの何れも含む。

複素環は、その環骨格を構成する原子数 (N_r) が、 $N_r = 5$ や $N_r = 6$ が望ましく用いられる。また、環骨格を構成する炭素原子以外の原子 (異種原子) の種類及び数は特に限定されないが、例えば、硫黄原子、窒素原子、酸素原子、セレン原子、珪素原子等が望ましく用いられ、前記環骨格中には 2 種類以上や 2 個以上の異種原子が含まれてもよい。

具体的には、5 員環構造をもつ複素環としては、チオフェン、ピロール、フラン、シロール、セレノフェン、チアゾール、イミダゾール、オキサゾール、イソオキサゾール、ピラゾールが挙げられ、チオフェン、ピロール、シロール、セレノフェン、チアゾールが好ましく、チオフェン、チアゾール、シロールがより好ましく、チオフェンが更に好ましい。

6 員環構造をもつ複素環としては、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジンが挙げられ、ピリジン、ピラジン、又はピリミジンが好ましく、ピリジンがより好ましい。

【0049】

一般式 (I - 1) 中、 R^1 、 R^2 及び R^3 で表される各基に置換可能な置換基としては、水素原子、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、アラルキル基、置換アミノ基、ハロゲン原子等が挙げられる。

前記アルキル基としては、炭素数 1 以上 10 以下のものが望ましく、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基等が挙げられる。

10

20

30

40

50

前記アルコキシ基としては、炭素数 1 以上 10 以下のものが望ましく、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基等が挙げられる。

前記アリール基としては、炭素数 6 以上 20 以下のものが望ましく、例えば、フェニル基、トルイル基等が挙げられる、

前記アラルキル基としては、炭素数 7 以上 20 以下のものが望ましく、例えば、ベンジル基、フェネチル基等が挙げられる。前記置換アミノ基の置換基としては、アルキル基、アリール基、アラルキル基等が挙げられ、具体例は前述の通りである。

【0050】

R^1 、 R^2 及び R^3 で表される各基に置換可能な置換基としては、溶剤や樹脂に対する溶解性及び相溶性をより向上させる観点からは、メチル基、ヘキシル基、オクチル基、ターシャリ-ブチル基などのアルキル基が望ましく、さらに望ましくはヘキシル基、ターシャリ-ブチル基である。

10

【0051】

上記各基のなかでも、 R^1 、 R^2 、及び R^3 は、各々独立に、水素、メチル基、フェニル基、ブチル基、エチル基、オクチル基、ヘキシル基、ドデシル基、ビフェニル基、ナフチル基、チエニル基、塩素原子、又はフッ素原子であることが好ましく、水素原子、メチル基、フェニル基、フッ素原子又は塩素原子であることがより好ましく、水素原子、メチル基、又はフェニル基であることが更に好ましい。

【0052】

一般式 (I - 1) 中、Ar は、各々独立に、置換若しくは未置換の 1 価のフェニル基、置換若しくは未置換の芳香環数 2 以上 10 以下の 1 価の多核芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の芳香環数 2 以上 10 以下の 1 価の縮合多環芳香族炭化水素基、置換若しくは未置換の 1 価の芳香族複素環基、又は少なくとも一種の芳香族複素環を含む 1 価の芳香族基を表す。

20

【0053】

尚、Ar で表される「多核芳香族炭化水素基」、「縮合芳香族炭化水素基」、及び「芳香族複素環基」とは、上記 R^1 、 R^2 又は R^3 で説明した「多核芳香族炭化水素」、「縮合芳香族炭化水素」、及び「芳香族複素環」とそれぞれ同義である。

Ar で表される「芳香族複素環を含む芳香族基」とは、骨格を形成する原子団中に、少なくとも 1 種の前記芳香族複素環を含む結合基を表す。

30

Ar で表される多核芳香族炭化水素及び縮合芳香族炭化水素を構成する芳香環の数は、2 以上 10 以下であり、縮合芳香族炭化水素においては 1 以上 5 以下のものが望ましい。

【0054】

なお、Ar で表される各基は、全てが共役系で構成されたもの、あるいは一部が共役系で構成されたもののいずれでもよいが、電荷輸送性や発光効率の点で、全てが共役系で構成されたものが望ましい。

【0055】

一般式 (I - 1) 中、Ar に置換可能な置換基としては、上記 R^1 、 R^2 又は R^3 で説明した R^1 、 R^2 又は R^3 に置換可能な置換基と同様である。

これら置換可能な置換基の中でも、イオン化ポテンシャルを高くする観点からは、Ar で表される各基に置換可能な置換基としては、フェニル基、ビフェニル基、フッ素、トリフルオロメチル基が望ましい。

40

また、イオン化ポテンシャルを低くする観点からは、Ar で表される各基に置換可能な置換基としては、トリフェニルアミノ基などの置換アミノ基又は、メトキシ基などのアルコキシ基が望ましい。

【0056】

一般式 (I - 1) における 2 つの Ar は、同一でも異なってもよいが、製造上の観点から同一であることが好ましい。

【0057】

上記各基のなかでも、Ar は、各々独立に、フェニル基、ビフェニル基、トルイル基、

50

メトキシ基、9,9-ジメチル-2-フルオレニル基、9,9-ジヘキシル-2-フルオレニル基、トリフェニルアミノ基、ピロール基、シロール基、ターフェニル基、又は2-フェニル-5-p-tert-ブチルフェニル(1,3,4)オキサジアゾール基であることが好ましく、フェニル基、ピフェニル基、9,9-ジメチル-2-フルオレニル基、又は2-フェニル-5-p-tert-ブチルフェニル(1,3,4)オキサジアゾール基であることがより好ましい。

【0058】

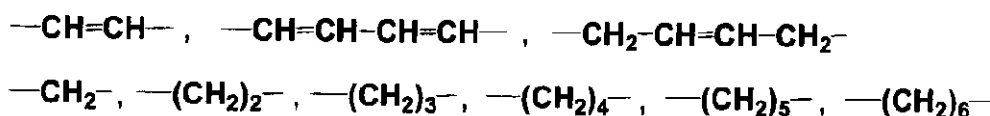
一般式(I-1)中、Tは、各々独立に、炭素数1以上10以下の2価の直鎖状炭化水素基又は炭素数3以上10以下の2価の分枝鎖状炭化水素基を表し、望ましくは炭素数が2以上6以下の2価の直鎖状炭化水素基及び炭素数3以上7以下の2価の分枝鎖状炭化水素基より選択される。

10

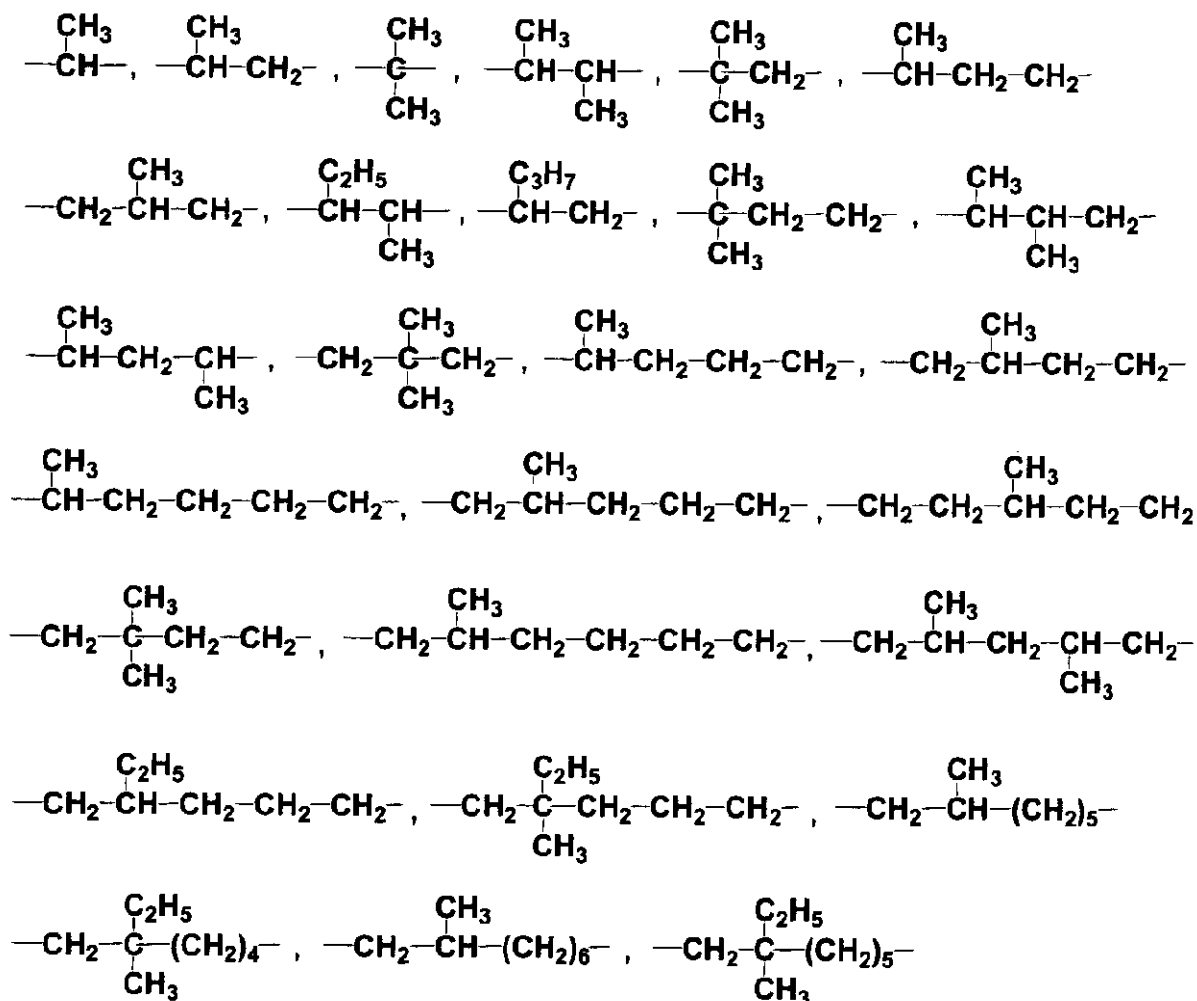
これらの中でもより具体的には、以下に示す2価の炭化水素基が特に望ましい。

【0059】

【化11】



20



30

40

【0060】

上記各基のなかでも、Tは、各々独立に、メチレン基、エチレン基、ブチレン基、ヘキ

50

シレン基、又はイソプロピレン基であることが好ましく、エチレン基であることが電荷輸送性および原料の入手容易性の観点からより好適である。

【0061】

一般式(I-1)において、Tのフェニル基における結合位置は特に限定されないが、メタ位又はパラ位であることが好適である。

一般式(I-1)における2つのTは、同一でも異なってもよいが、製造上の観点からは同一であることが好ましい。

【0062】

一般式(I-1)中、xは、各々独立に、1以上3以下の整数を示す。xがこの範囲にあると、溶解性及び耐熱性に優れる。溶解性を高めるという観点からは、xは1又は2であることが好ましく、1であることがより好ましい。電荷輸送能力を高めることおよび耐熱性を重視しガラス転移温度を高めるという観点からは、xは2又は3であることが好ましく、3であることがより好ましい。

一般式(I-1)における2つのxは、同一でも異なってもよいが、製造上の観点から同一であることが好ましい。

【0063】

以下に、一般式(I-1)で表される構造の具体例を示すが、これらに限定されるものではない。

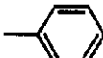
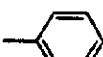
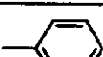
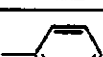
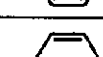
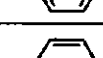
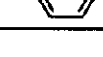
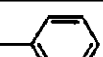
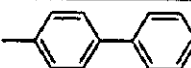
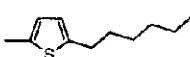
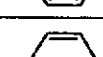
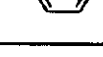
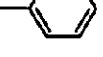
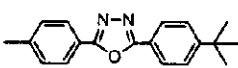
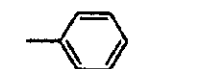
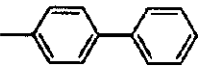
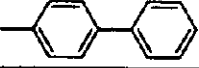
なお、下記具体例構造では、前記一般式(I-1)における2個のAr及びTは、それぞれ同じ基を表し、2個のxは、同じ整数を表す。

【0064】

10

20

【化 1 2】

構造	Ar	R ¹	R ²	R ³	X	T	Tの結合位置
1		-H	-H	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	3
2		-H	-H	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
3		-H	-CH ₃	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
4		-(CH ₂) ₃ -CH ₃	-CH ₃	-CH ₃	2	-(CH ₂) ₂ -	4,4'
5		-H	-Cl	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
6		-H	-CH ₂ CH ₃	-(CH ₂) ₇ -CH ₃	1	-(CH ₂) ₂ -	4
7		-H	-CH ₃	-H	3		4',4''
8		-CH ₃	-H	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
9		-H		-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
10		-H		-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
11		-CH ₃	-CH ₃	-H	1		4
12		-H		-H	1		4
13		-H		-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
14		-H	-CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₃	-H	2	-(CH ₂) ₂ -	4,4'
15		-H	-H	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	3
16		-H	-H	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
17		-H	-CH ₃	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4

10

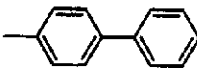
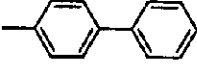
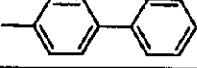
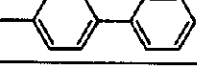
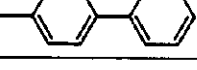
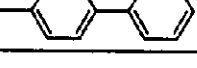
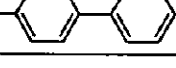
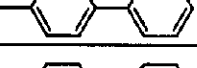
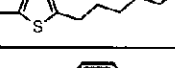
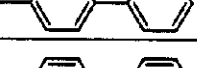
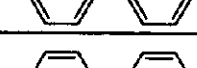
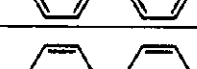
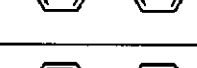
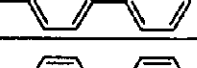
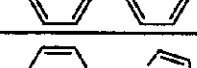
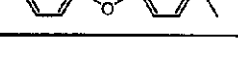
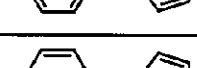
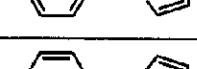
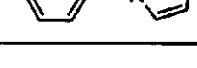
20

30

40

【 0 0 6 5 】

【化 1 3】

構造	Ar	R ¹	R ²	R ³	X	T	Tの結合位置
18		$-(CH_2)_3-CH_3$	$-CH_3$	$-CH_3$	2	$-(CH_2)_2-$	4,4'
19		$-H$	$-Cl$	$-H$	1	$-(CH_2)_2-$	4
20		$-H$	$-CH_2CH_3$	$-(CH_2)_7-CH_3$	1	$-(CH_2)_2-$	4
21		$-CH_2CH_3$	$-H$	$-H$	2	$\begin{array}{c} CH_3 \\ \\ -CH-CH_2-CH_2- \end{array}$	4,4'
22		$-H$		$-H$	1	$-(CH_2)_2-$	4
23		$-H$		$-H$	1	$-(CH_2)_3-$	4
24		$-H$		$-H$	1	$-(CH_2)_3-$	4
25		$-H$		$-H$	2	$-(CH_2)_2-$	4,4'
26		$-H$	$-F$	$-H$	1	$-(CH_2)_3-$	4
27		$-H$	$-F$	$-F$	1	$\begin{array}{c} CH_3 \\ \\ -CH-CH_2-CH_2- \end{array}$	4
28		$-H$		$-H$	1	$-(CH_2)_2-$	4
29		$-H$	$-CH_2CH_2CH_2CH_2CH_2CH_3$	$-H$	2	$-(CH_2)_2-$	4,4'
30		$-H$		$-H$	1	$-(CH_2)_2-$	4
31		$-H$	$-H$	$-H$	1	$-(CH_2)_2-$	3
32		$-H$	$-H$	$-H$	1	$-(CH_2)_2-$	4
33		$-H$	$-CH_3$	$-H$	1	$-(CH_2)_3-$	4
34		$-(CH_2)_3-CH_3$	$-CH_3$	$-CH_3$	2	$-(CH_2)_4-$	4,4'

10

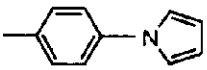
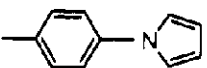
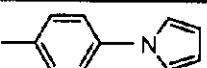
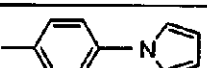
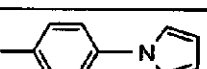
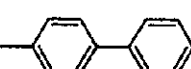
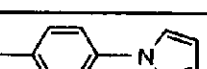
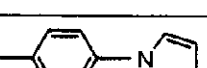
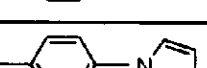
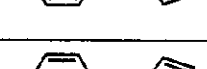
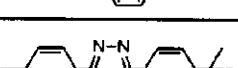
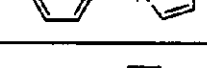
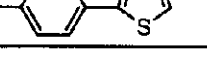
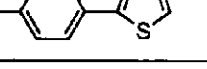
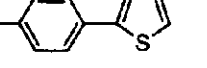
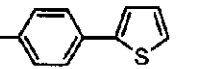
20

30

40

【 0 0 6 6 】

【化 1 4】

構造	Ar	R ¹	R ²	R ³	X	T	Tの結合位置
35		-H	-Cl	-H	1	-(CH ₂) ₄ -	4
36		-H	-CH ₂ CH ₃	-(CH ₂) ₇ -CH ₃	1	-(CH ₂) ₂ -	4
37		-CH ₂ CH ₃	-H	-H	2	-(CH ₂) ₂ -	4,4'
38		-H		-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
39		-H		-H	1	-CH ₂ -	4
40		-H		-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
41		-H		-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
42		-H	-F	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
43		-H	-F	-F	1	-CH ₂ -	4
44		-H		-H	1	-(CH ₂) ₆ -	4
45		-H		-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
46		-H	-H	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	3
47		-H	-H	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
48		-H	-CH ₃	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
49		-(CH ₂) ₃ -CH ₃	-CH ₃	-CH ₃	2	-(CH ₂) ₂ -	4,4'
50		-H	-F	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4

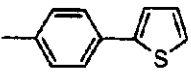
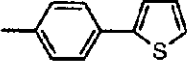
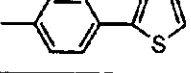
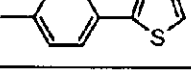
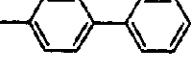
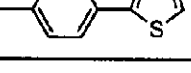
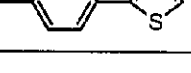
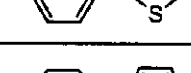
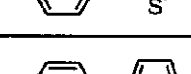
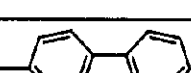
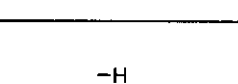
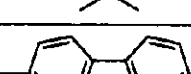
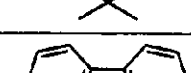
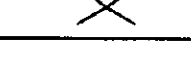
10

20

30

40

【化 1 5】

構造	Ar	R ¹	R ²	R ³	X	T	Tの結合位置
51		-H	-CH ₂ CH ₃	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
52		-CH ₂ CH ₃	-H	-H	2	-(CH ₂) ₂ -	4,4'
53		-H		-H	1	-(CH ₂) ₄ -	4
54		-H		-H	1	-(CH ₂) ₈ -	4
55		-H		-H	1		4
56		-H		-H	1	-(CH ₂) ₈ -	4
57		-H	-Cl	-H	1		4
58		-H	-F	-F	1		4
59		-H		-H	1		4
60		-H		-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
61		-H	-H	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	3
62		-H	-H	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
63		-H	-CH ₃	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
64		-(CH ₂) ₃ -CH ₃	-CH ₃	-CH ₃	2	-(CH ₂) ₂ -	4,4'

10

20

30

40

【 0 0 6 8 】

【化 16】

構造	Ar	R ¹	R ²	R ³	X	T	Tの結合位置
65		-H	-F	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
66		-H	-CH ₂ CH ₃	-(CH ₂) ₇ -CH ₃	1	-(CH ₂) ₄ -	4
67		-CH ₂ CH ₃	-H	-H	2	-(CH ₂) ₂ -	4,4'
68		-H		-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
69		-H		-H	1	-(CH ₂) ₄ -	4
70		-H		-H	1	-(CH ₂) ₆ -	4
71		-H		-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
72		-H	-F	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
73		-H	-H	-CH ₃	1	-(CH ₂) ₂ -	4
74		-H		-H	1	-(CH ₂) ₄ -	4
75		-H		-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
76		-H	-H	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	3
77		-H	-H	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
78		-H	-CH ₃	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4

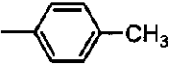
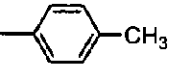
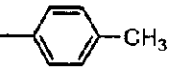
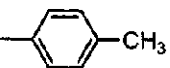
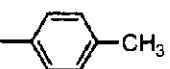
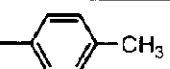
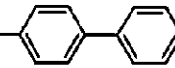
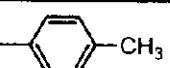
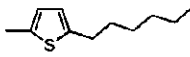
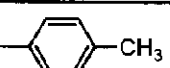
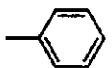
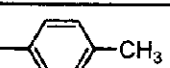
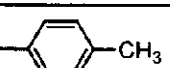
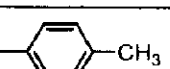
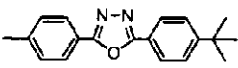
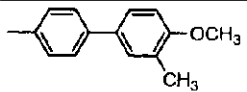
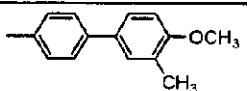
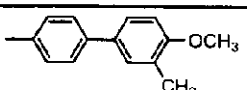
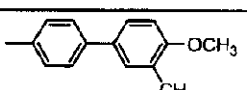
10

20

30

40

【化 17】

構造	Ar	R ¹	R ²	R ³	X	T	Tの結合位置
79		$-(CH_2)_3-CH_3$	$-CH_3$	$-CH_3$	2	$-(CH_2)_2-$	4,4'
80		$-H$	$-Cl$	$-H$	1	$-(CH_2)_2-$	4
81		$-H$	$-CH_2CH_3$	$-H$	1	$-(CH_2)_2-$	4
82		$-CH_2CH_3$	$-H$	$-H$	2	$-(CH_2)_2-$	4,4'
83		$-H$		$-H$	1	$-(CH_2)_2-$	4
84		$-H$		$-H$	1	$-(CH_2)_6-$	4
85		$-H$		$-H$	1	$-(CH_2)_2-$	4
86		$-H$		$-H$	1	$-(CH_2)_2-$	4
87		$-H$	$-F$	$-H$	1	$-(CH_2)_2-$	4
88		$-H$	$-F$	$-F$	1	$-(CH_2)_2-$	4
89		$-H$		$-H$	1	$-(CH_2)_2-$	4
90		$-H$		$-H$	1	$-(CH_2)_2-$	4
91		$-H$	$-H$	$-H$	1	$-(CH_2)_2-$	3
92		$-H$	$-H$	$-H$	1	$-(CH_2)_2-$	4
93		$-H$	$-CH_3$	$-H$	1	$-(CH_2)_2-$	4
94		$-(CH_2)_3-CH_3$	$-CH_3$	$-CH_3$	2	$-(CH_2)_2-$	4,4'

10

20

30

40

【化 1 8】

構造	Ar	R ¹	R ²	R ³	X	T	Tの結合位置
95		-H	-Cl	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
96		-H	-CH ₂ CH ₃	-(CH ₂) ₇ -CH ₃	1	-(CH ₂) ₂ -	4
97		-CH ₂ CH ₃	-H	-H	2	-(CH ₂) ₂ -	4,4'
98		-H		-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
99		-H		-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
100		-H		-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
101		-H		-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
102		-H	-F	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
103		-H	-F	-F	1	-(CH ₂) ₂ -	4
104		-H		-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
105		-H		-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
106		-H	-H	-H	1	-(CH ₂) ₄ -	3
107		-H	-H	-H	1	-(CH ₂) ₄ -	4
108		-H	-CH ₃	-H	1	-(CH ₂) ₄ -	4
109		-(CH ₂) ₃ -CH ₃	-CH ₃	-CH ₃	2	-(CH ₂) ₄ -	4,4'

10

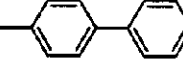
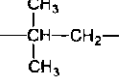
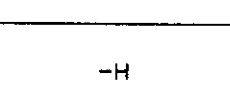
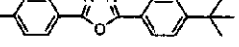
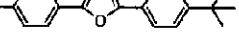
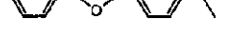
20

30

40

【 0 0 7 1 】

【化 19】

構造	Ar	R ¹	R ²	R ³	X	T	Tの結合位置
110		-H	-F	-H	1	-(CH ₂) ₄ -	4
111		-H	-CH ₂ CH ₃	-(CH ₂) ₇ -CH ₃	1	-(CH ₂) ₄ -	4
112		-CH ₂ CH ₃	-H	-H	2	-(CH ₂) ₈ -	4,4'
113		-H		-H	1	-(CH ₂) ₄ -	4
114		-H		-H	1		4
115		-H		-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
116		-H		-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
117		-H	-Cl	-H	1	-(CH ₂) ₄ -	4
118		-H	-F	-F	1	-(CH ₂) ₂ -	4
119		-H		-H	1	-(CH ₂) ₄ -	4
120		-H		-H	1	-(CH ₂) ₄ -	4
121		-H	-H	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	3
122		-H	-H	-H	1	-(CH ₂) ₄ -	4
123		-H	-CH ₃	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
124		-(CH ₂) ₃ -CH ₃	-CH ₃	-CH ₃	2	-(CH ₂) ₂ -	4,4'

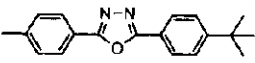
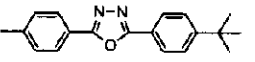
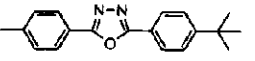
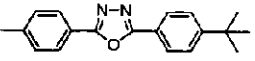
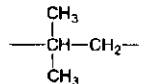
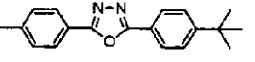
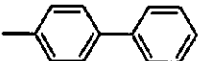
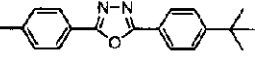
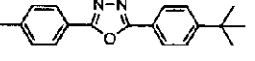
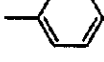
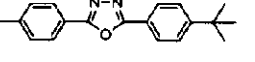
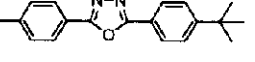
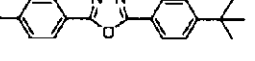
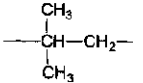
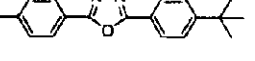
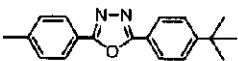
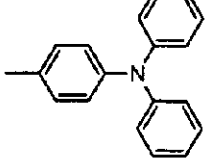
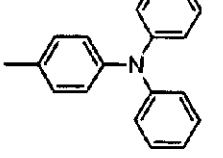
10

20

30

40

【化 2 0】

構造	Ar	R ¹	R ²	R ³	X	T	Tの結合位置
125		-H	-Cl	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
126		-H	-CH ₂ CH ₃	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
127		-CH ₂ CH ₃	-H	-H	2	-(CH ₂) ₂ -	4,4'
128		-H		-H	1		4
129		-H		-(CH ₂) ₇ -CH ₃	1	-(CH ₂) ₈ -	4
130		-H		-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
131		-H		-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
132		-H	-F	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
133		-H	-F	-F	1	-(CH ₂) ₂ -	4
134		-H		-H	1		4
135		-H		-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
136		-H	-H	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	3
137		-H	-H	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4

10

20

30

40

【 0 0 7 3】

【化 2 1】

構造	Ar	R ¹	R ²	R ³	X	T	Tの結合位置
138		-H	-CH ₃	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
139		-(CH ₂) ₃ -CH ₃	-CH ₃	-CH ₃	2	-(CH ₂) ₂ -	4,4'
140		-H	-Cl	-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
141		-H	-CH ₂ CH ₃	-(CH ₂) ₇ -CH ₃	1	-(CH ₂) ₂ -	4
142		-CH ₂ CH ₃	-H	-H	2	-(CH ₂) ₂ -	4,4'
143		-H		-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4
144		-H		-H	1	-(CH ₂) ₂ -	4

10

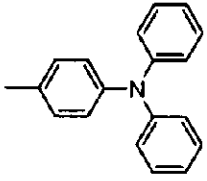
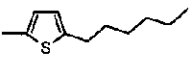
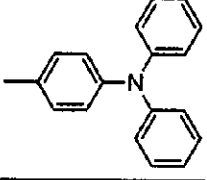
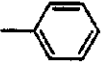
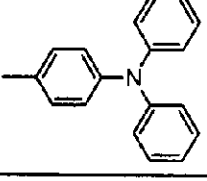
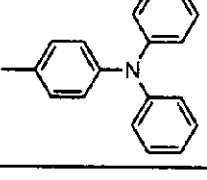
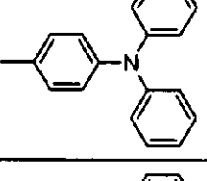
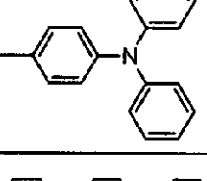
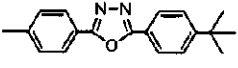
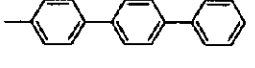
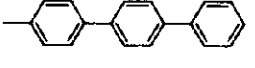
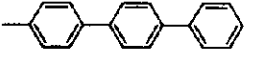
20

30

40

【 0 0 7 4 】

【化 2 2】

構造	Ar	R ¹	R ²	R ³	X	T	Tの結合位置
145		-H		-H	1	$-(CH_2)_2-$	4
146		-H		-H	1	$-(CH_2)_2-$	4
147		-H	-F	-H	1	$-(CH_2)_2-$	4
148		-H	-F	-F	1	$-(CH_2)_2-$	4
149		-H		-H	1	$-(CH_2)_2-$	4
150		-H		-H	1	$-CH_2-$	4
151		-H	-H	-H	1	$-(CH_2)_3-$	3
152		-H	-H	-H	1	$-(CH_2)_6-$	4
153		-H	-CH ₃	-H	1	$\begin{array}{c} CH_3 \\ \\ -CH-CH_2-CH_2- \end{array}$	4

10

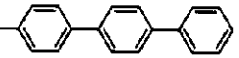
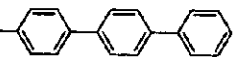
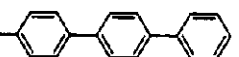
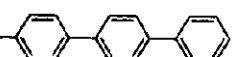
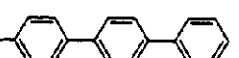
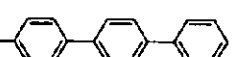
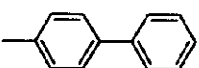
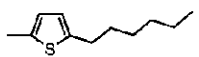
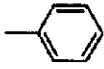
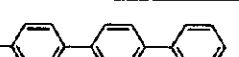
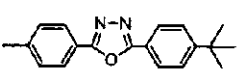
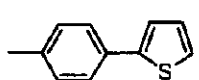
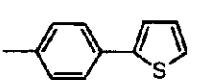
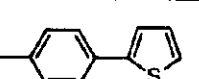
20

30

40

【 0 0 7 5 】

【化 2 3】

構造	Ar	R ¹	R ²	R ³	X	T	Tの 結合 位置
154		$-(CH_2)_3-CH_3$	$-CH_3$	$-CH_3$	2	$-(CH_2)_6-$	4,4'
155		$-H$	$-F$	$-H$	1	$-(CH_2)_6-$	4
156		$-H$	$-CH_2CH_3$	$-(CH_2)_7-CH_3$	1	$-(CH_2)_6-$	4
157		$-CH_2CH_3$	$-H$	$-H$	2	$-(CH_2)_6-$	4,4'
158		$-H$		$-H$	1	$-(CH_2)_6-$	4
159		$-H$		$-H$	1	$-(CH_2)_6-$	4
160		$-H$		$-H$	1	$-(CH_2)_6-$	4
161		$-H$		$-H$	1	$-(CH_2)_6-$	4
162		$-H$	$-Cl$	$-H$	1	$-(CH_2)_6-$	4
163		$-H$	$-F$	$-F$	1	$-(CH_2)_6-$	4
164		$-H$		$-H$	1	$-(CH_2)_6-$	4
165		$-H$		$-H$	1	$-(CH_2)_6-$	4
166		$-H$	$-H$	$-H$	1	$-(CH_2)_6-$	3
167		$-H$	$-H$	$-H$	1	$-(CH_2)_2-$	4
168		$-H$	$-CH_3$	$-H$	1	$-(CH_2)_2-$	4

10

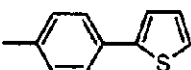
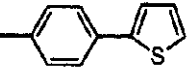
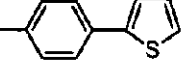
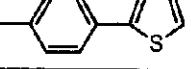
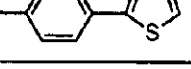
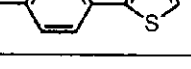
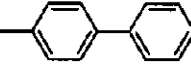
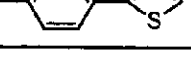
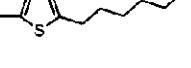
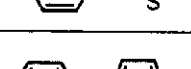
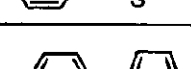
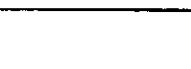
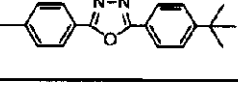
20

30

40

【 0 0 7 6 】

【化 2 4】

構造	Ar	R ¹	R ²	R ³	X	T	Tの結合位置
169		$-(CH_2)_3-CH_3$	$-CH_3$	$-CH_3$	2	$-(CH_2)_2-$	4,4'
170		$-H$	$-Cl$	$-H$	1	$-(CH_2)_2-$	4
171		$-H$	$-CH_2CH_3$	$-(CH_2)_7-CH_3$	1	$-(CH_2)_2-$	4
172		$-CH_2CH_3$	$-H$	$-H$	2	$-(CH_2)_2-$	4,4'
173		$-H$		$-H$	1	$-(CH_2)_8-$	4
174		$-H$		$-H$	1	$-(CH_2)_8-$	4
175		$-H$		$-H$	1	$-(CH_2)_8-$	4
176		$-H$		$-H$	1	$-(CH_2)_2-$	4
177		$-H$	$-F$	$-H$	1	$-(CH_2)_2-$	4
178		$-H$	$-F$	$-F$	1	$-(CH_2)_2-$	4
179		$-H$		$-H$	1	$-(CH_2)_2-$	4
180		$-H$		$-H$	1	$-(CH_2)_2-$	4

10

20

30

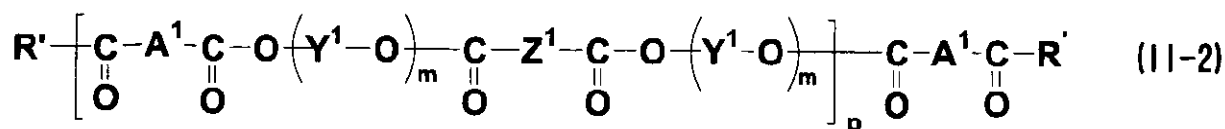
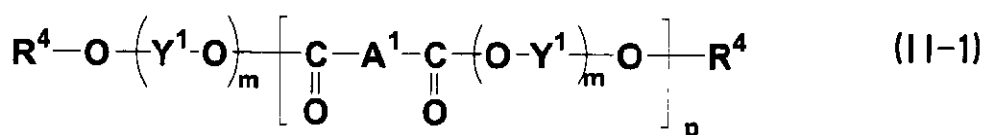
【0077】

本実施形態における電荷輸送性ポリエステルは、前記一般式（I - 1）で表される構造を有するものであり、下記一般式（II - 1）又は一般式（II - 2）で表される。

40

【0078】

【化 2 5】



10

【0079】

一般式(II-1)及び(II-2)中、 A^1 は各々独立に、前記一般式(I-1)で表される構造から選択された少なくとも1種を表す。 Y^1 は2価のアルコール残基を表す。 Z^1 は2価のカルボン酸残基を表す。 m は、各々独立に、1以上5以下の整数を表す。 p は各々独立に、5以上5000以下の整数を表す。 R^4 は、水素原子、アルキル基、置換若しくは未置換のアリール基、又は、置換若しくは未置換のアラルキル基を表す。 R' は、各々独立に、 $-OH$ 、 $-O-(Y^1-O)_m-H$ 、又は $-O-(Y^1-O)_m-CO-Z^1-CO-OR^4$ で表される基を表す。なお、 R' における Y^1 、 Z^1 、 m 、及び R^4 は、上記記 Y^1 、 Z^1 、 m 、及び R^4 とそれぞれ同義である。

20

【0080】

一般式(II-1)及び(II-2)中、 A^1 は、各々独立に、前記一般式(I-1)で表される構造から選択された少なくとも1種を表す。一般式(II-1)及び(II-2)で表される電荷輸送性ポリエステル中に存在する複数の A^1 は、同一の構造であっても、異なる構造であってもよい。

【0081】

一般式(II-1)及び(II-2)中、 Y^1 は2価のアルコール残基を表す。一般式(II-2)中、 Z^1 は2価のカルボン酸残基を表す。

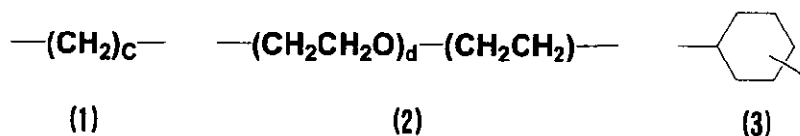
30

【0082】

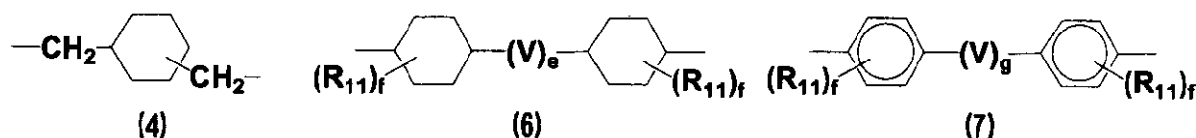
一般式(II-1)及び(II-2)における Y^1 及び Z^1 は、具体的には下記の式(1)~(7)から選択される基が挙げられる。

【0083】

【化 2 6】



40



50

【 0 0 8 4 】

式(1)及び式(2)中、c及びdは、各々独立に、1以上10以下の整数を表し、好ましくは1以上6以下の整数であり、より好ましくは1以上4以下の整数である。

式(6)及び式(7)中、e及びgは、各々独立に、0又は1を表す。

【 0 0 8 5 】

式(6)及び式(7)中、 R^{11} は、各々独立に、水素原子、炭素数1以上20以下のアルキル基、炭素数1以上4以下のアルコキシ基、置換若しくは未置換のフェニル基、置換若しくは未置換のアラルキル基、又はハロゲン原子を表す。なお、 R^{11} で表される各基に置換可能な置換基は上述した置換基と同様である。

式(6)及び式(7)中、fは0以上6以下の整数を表し、好ましくは0以上4以下の整数であり、より好ましくは0以上3以下の整数である。

式(6)及び式(7)中、Vは、各々独立に、以下の式(8)～(18)から選択された基が挙げられる。

【 0 0 8 6 】

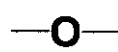
【 化 2 7 】



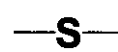
(8)



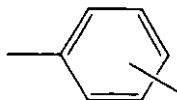
(9)



(10)



(11)



(12)



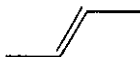
(13)



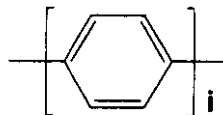
(14)



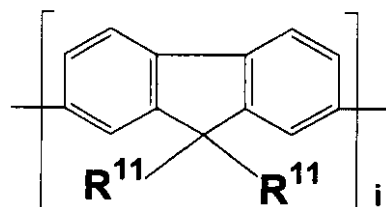
(15)



(16)



(17)



(18)

【 0 0 8 7 】

式(8)、(17)及び(18)中、h及びiは各々独立に1以上10以下の整数を表し、好ましくは1以上8以下の整数であり、より好ましくは1以上6以下の整数である。

式(18)における R^{11} は、式(6)及び式(7)における R^{11} と同義である。

【 0 0 8 8 】

上記各基のなかでも、 Y^{11} は、各々独立に、メチレン基、エチレン基、ブチレン基、フェニレン基、ヘキシレン基、又はオクチレン基であることが好ましく、エチレン基、ブチレン基、ヘキシレン基、又はオクチレン基であることがより好ましい。

また、上記各基のなかでも、 Z^{11} は、メチレン基、エチレン基、フェニレン基、ヘキシレン基であることが好ましく、エチレン基であることがより好ましい。

【 0 0 8 9 】

一般式(II-1)及び(II-2)中、 m は、1以上5以下の整数を表す。より好ましくは、 m は1以上2以下であり、原料の入手容易性という観点からは、 m は2であることが好ましい。

【0090】

一般式(II-1)及び(II-2)中、 p は各々独立に、5以上5000以下の整数を表す。 p は各々独立に10以上1000以下の整数であることが好ましく、10以上500以下の整数であることがより好ましい。

【0091】

一般式(II-1)中、 R^4 は、水素原子、アルキル基、置換若しくは未置換のアリール基、又は、置換若しくは未置換のアラルキル基を表す。

一般式(II-2)中、 R' は、各々独立に、 $-OH$ 、 $-O-(Y^1-O)_m-H$ 、又は $-O-(Y^1-O)_m-CO-Z^1-CO-OR^4$ で表される基を表す。なお、 R' における Y^1 、 Z^1 、 m 、及び R^4 は、それぞれ上記で説明した Y^1 、 Z^1 、 m 、及び R^4 とそれぞれ同義である。)

【0092】

一般式(II-1)及び(II-2)中の R^4 で表されるアリール基及びアラルキル基は、前述のアリール基及びアラルキル基と同義であり、アリール基、アラルキル基の具体例についても、前述の通りである。

【0093】

ここで、前記一般式(II-1)又は(II-2)で表される電荷輸送性ポリエステルとしては、以下の構成が望ましい。

【0094】

一般式(I-1)において、

R^1 、 R^2 、及び R^3 は、各々独立に、水素、メチル基、フェニル基、ブチル基、エチル基、オクチル基、ヘキシル基、ドデシル基、ビフェニル基、ナフチル基、チエニル基、塩素原子、又はフッ素原子を表し、

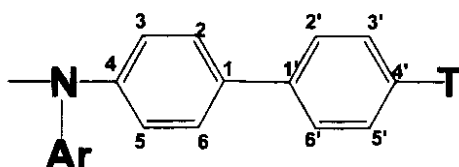
Ar は、各々独立に、フェニル基、ビフェニル基、トリイル基、メトキシ基、9,9-ジメチル-2-フルオレニル基、9,9-ジヘキシル-2-フルオレニル基、トリフェニルアミノ基、ピロール基、シロール基、又はターフェニル基、2-フェニル-5-p-tert-ブチルフェニル(1,3,4)オキサジアゾール基を表し、

x は、各々独立に、1以上2以下の整数を表し、

T は、各々独立に、メチレン基、エチレン基、ブチレン基、ヘキシレン基、イソプロピレン基を表し、 T の置換位置はフェニル基において、 x が1のときは3位又は4位であり、 x が2のときは4,4'位を表す。なお、 x が2のときに T の置換位置が4,4'位とは、ビフェニル基の4位にアミノ基が、4'位に T が結合している下記構造を意味する。

【0095】

【化28】



【0096】

且つ、一般式(II-1)及び(II-2)において、

A^1 は、各々独立に、前記一般式(I-1)で表される構造から選択される少なくとも1種を表し、

10

20

30

40

50

Y^1 は、各々独立に、メチレン基、エチレン基、ブチレン基、フェニレン基、ヘキシレン基、又はオクチレン基を表し、

Z^1 は、各々独立に、メチレン基、エチレン基、フェニレン基、又はヘキシレン基を表し、

m は、各々独立に、1又は2を表し、

p は各々独立に、10以上1000以下の整数を表し、

R^4 は、水素原子、メチル基、又はフェニル基を表す。

【0097】

また、一般式(II-1)又は(II-2)で表される電荷輸送性ポリエステルは、以下の構成であることが更に望ましい。

【0098】

一般式(I-1)において、

R^1 、 R^2 、及び R^3 は、各々独立に、水素原子、メチル基、フェニル基、フッ素原子、又は塩素原子を表し、

Ar は、各々独立に、フェニル基、ビフェニル基、9,9-ジメチル-2-フルオレニル基、又は2-フェニル-5-p-tert-ブチルフェニル(1,3,4)オキサジアゾール基を表し、

x は、1を表し、

T は、エチレン基を表し、 T の置換位置はフェニル基において、 x が1のときは4位であり、 x が2のときは4,4'位を表す。

【0099】

且つ、一般式(II-1)及び(II-2)において、

A^1 は、各々独立に、前記一般式(I-1)で表される構造から選択される少なくとも1種を表し、

Y^1 は、各々独立に、エチレン基、ブチレン基、ヘキシレン基、又はオクチレン基を表し、

Z^1 は、エチレン基を表し、

m は、1を表し、

p は、各々独立に、10以上500以下の整数を表し、

R^4 は、水素原子を表す。

【0100】

以下、前記一般式(II-1)及び一般式(II-2)表される電荷輸送性ポリエステルの具体例を示すが、本実施形態はこれらの具体例に限定されるものではない。

なお、具体例ポリマーにおける A^1 の欄の番号は、前記一般式(I-1)で表される構造の具体例の構造番号に対応している。また、 Z_1 の欄が「-」と記載されたものは、一般式(II-1)で表される電荷輸送性ポリエステルの具体例を示し、その他は一般式(II-2)で表される電荷輸送性ポリエステルの具体例を示す。

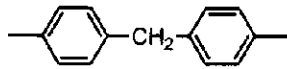
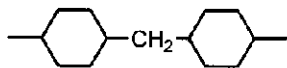
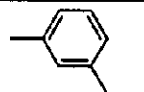
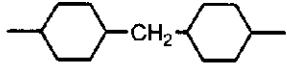
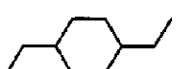
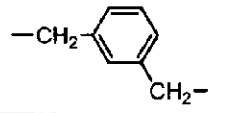
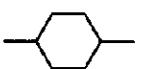
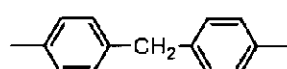
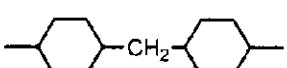
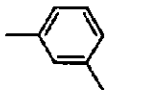
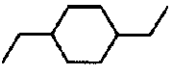
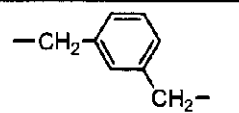
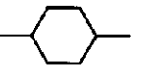
【0101】

10

20

30

【化 2 9】

ポリマー	A ¹	比率	Y ¹	Z ¹	m	P	R ⁴
1	2	-	$-(\text{CH}_2)_2-$	-	1	65	H
2	2	-		$-(\text{CH}_2)_2-$	1	76	H
3	2	-		-	1	86	H
4	2	-		-	1	81	H
5	2	-			1	99	H
6	2	-		-	1	106	H
7	2	-		-	1	84	H
8	2	-	$-(\text{CH}_2)_6-$	-	1	130	H
9	16	-	$-(\text{CH}_2)_2-$	-	1	71	H
10	16	-		-	1	84	H
11	16	-		-	1	87	H
12	16	-		-	1	79	H
13	16	-		-	1	86	H
14	16	-		-	1	69	H
15	16	-		-	1	67	H
16	16	-	$-(\text{CH}_2)_6-$	-	1	102	H
17	22	-	$-(\text{CH}_2)_2-$	-	1	82	H
18	22	-		-	1	89	H

10

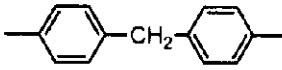
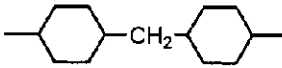
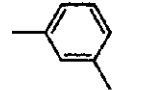
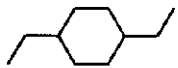
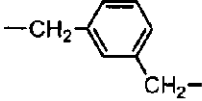
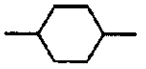
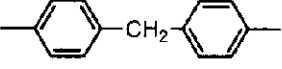
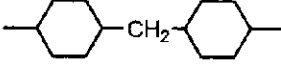
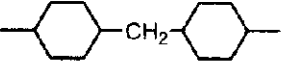
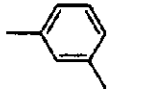
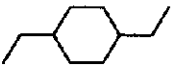
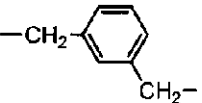
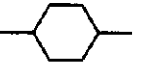
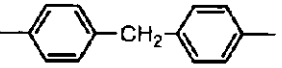
20

30

40

【 0 1 0 2 】

【化 3 0】

ポリマー	A ¹	比率	Y ¹	Z ¹	m	P	R ⁴
19	22	-		-	1	96	H
20	22	-		-	1	97	H
21	22	-		-	1	83	H
22	22	-		-	1	84	H
23	22	-		-	1	70	H
24	22	-	$-(CH_2)_6-$	-	1	84	H
25	25	-	$-(CH_2)_8-$	-	1	91	H
26	25	-		-	1	76	H
27	25	-			1	80	H
28	25	-		-	1	96	H
29	25	-		-	1	102	H
30	25	-		-	1	79	H
31	25	-		-	1	75	H
32	25	-	$-(CH_2)_6-$	-	1	70	H
33	32	-	$-(CH_2)_6-$	-	1	73	H
34	32	-		-	1	85	H
35	32	-		-	1	79	H

10

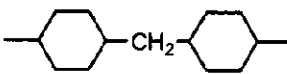
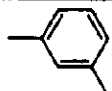
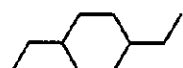
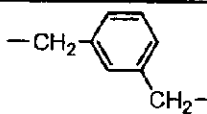
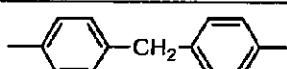
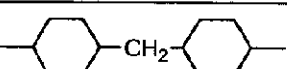
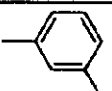
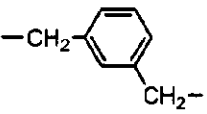
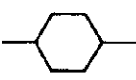
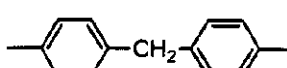
20

30

40

【 0 1 0 3】

【化 3 1】

ポリマー	A ¹	比率	Y ¹	Z ¹	m	P	R ⁴
36	32	-		-	1	96	H
37	32	-		-	1	68	H
38	32	-		-	1	58	H
39	32	-		-	1	67	H
40	32	-	$-(CH_2)_4-$	-	1	125	H
41	47	-	$-(CH_2)_2-$	-	1	106	H
42	47	-		-	1	108	H
43	47	-		-	1	97	H
44	47	-		-	1	86	H
45	47	-		-	1	87	H
46	47	-		-	1	105	H
47	47	-		-	1	116	H
48	47	-	$-(CH_2)_6-$	-	1	150	H
49	47	-	$-(CH_2)_2-$	-	1	120	H
50	47	-		-	1	116	H
51	47	-		-	1	87	H

10

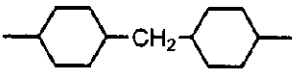
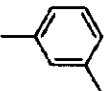
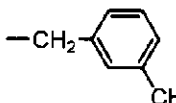
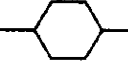
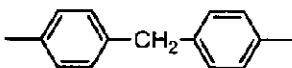
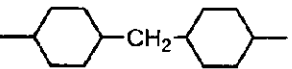
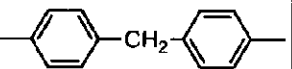
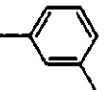
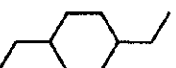
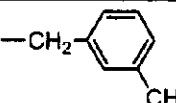
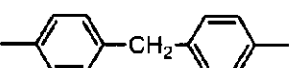
20

30

40

【 0 1 0 4】

【化 3 2】

ポリマー	A ¹	比率	Y ¹	Z ¹	m	P	R ⁴
52	47	-		-	1	83	H
53	47	-		-	1	80	H
54	47	-		-	1	105	H
55	47	-		-	1	94	H
56	47	-	$-(CH_2)_8-$	$-(CH_2)_2-$	1	84	H
57	62	-	$-(CH_2)_4-$	-	1	98	H
58	62	-		-	1	80	H
59	62	-		-	1	59	H
60	62	-			1	43	H
61	62	-		-	1	87	H
62	62	-		-	1	107	H
63	62	-		-	1	95	H
64	62	-	$-(CH_2)_6-$	-	1	85	H
65	73	-	$-(CH_2)_2-$	-	1	86	H
66	73	-		-	1	97	H
67	73	-		-	1	71	H

10

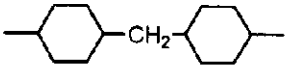
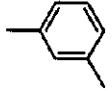
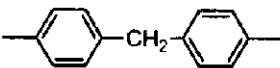
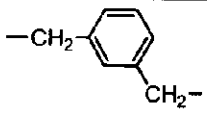
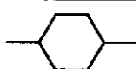
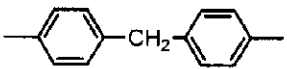
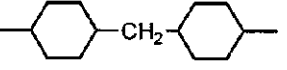
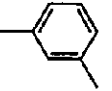
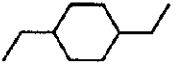
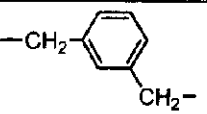
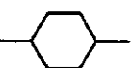
20

30

40

【 0 1 0 5 】

【化 3 3】

ポリマー	A ¹	比率	Y ¹	Z ¹	m	P	R ⁴
68	73	-		-	1	70	H
69	73	-			1	57	H
70	73	-		-	1	76	H
71	73	-		-	1	72	H
72	73	-	$-(CH_2)_4-$	-	1	98	H
73	77	-	$-(CH_2)_2-$	-	1	76	H
74	77	-		-	1	89	H
75	77	-		-	1	94	H
76	77	-		-	1	96	H
77	77	-		-	1	85	H
78	77	-		-	1	86	H
79	77	-		-	1	97	H
80	77	-	$-(CH_2)_6-$	-	1	104	H
81	106	-	$-(CH_2)_6-$	-	1	56	H
82	125	-	$-(CH_2)_2-$	-	1	50	H
83	125	-	$-(CH_2)_8-$	-	1	94	H
84	137	-	$-(CH_2)_2-$	-	1	91	H
85	152	-		-	1	107	H

10

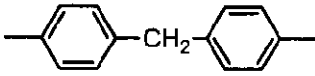
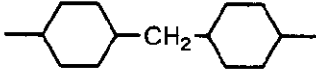
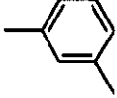
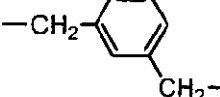
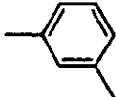
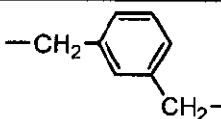
20

30

40

【 0 1 0 6 】

【化 3 4】

ポリマー	A ¹	比率	Y ¹	Z ¹	m	P	R ⁴
86	152	-		-	1	86	H
87	152	-		-	1	84	H
88	152	-		-	1	56	H
89	152	-		-	1	63	H
90	152	-		-	1	64	H
91	152	-	-(CH ₂) ₆ -	-(CH ₂) ₂ -	1	56	H
92	161	-		-	1	85	H
93	162	-		-	1	76	H
94	2/16	1/1		-	1	51	H
95	2/16	1/1	-(CH ₂) ₆ -	-	1	96	H
96	2/16	1/1	-(CH ₂) ₂ -	-	1	48	H
97	2/25	1/1	-(CH ₂) ₂ -	-	1	58	H
98	2/32	1/1	-(CH ₂) ₂ -	-	1	35	H
99	2/16	1/1	-(CH ₂) ₂ -	-	1	63	H
100	25/125	1/1	-(CH ₂) ₂ -	-	1	67	H
101	16/73	2/1	-(CH ₂) ₂ -	-	1	58	H
102	2/16/32	1/1/1	-(CH ₂) ₂ -	-	1	64	H

10

20

30

40

【0107】

以下、本明細書においては、電荷輸送性ポリエステルの各具体例に関し、例えば、15の番号を付した具体例については「具体例ポリマー(15)」と称する。

【0108】

前記一般式(II-1)及び一般式(II-2)表される電荷輸送性ポリエステルの質量平

50

均分子量 M_w は、5,000 以上 300,000 以下の範囲にあるものが望ましく、1 以上 3000 以下の範囲にあるものがより望ましく、10 以上 1000 以下の範囲にあるものが更に望ましい。

上記質量平均分子量 M_w は以下の方法により測定される。すなわち質量平均分子量は、電荷輸送性ポリエステル of 1.0 質量% THF 溶液を調製し、示差屈折率検出器 (RI) を用いて、ゲル浸透クロマトグラフィー (GPC) により、標準サンプルとしてスチレンポリマーを用いて測定する。

【0109】

また、前記一般式 (II-1) 及び一般式 (II-2) 表される電荷輸送性ポリエステルのガラス転移点 (T_g) は 60 以上であることが望ましく、80 以上であることがより望ましく、120 以上であることが更に望ましい。

上記ガラス転移点は、示差走査型熱量計により α -Al₂O₃ をリファレンスとし、サンプルをゴム状態になるまで昇温し、液体窒素に浸し急冷した後、再度昇温速度 10 / 分の条件で昇温して測定したときの値である。

【0110】

以下、前記電荷輸送性ポリエステルの合成方法について説明する。

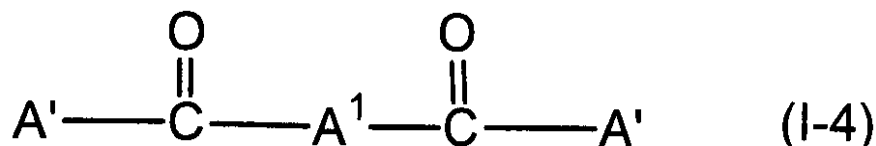
前記電荷輸送性ポリエステルの合成方法は、所望する構造に応じて公知の方法を組み合わせることで利用することができ、特に限定されるものではないが、以下に一例として詳細に説明する。

【0111】

前記一般式 (II-1) 又は (II-2) で表される電荷輸送性ポリエステルは、下記一般式 (I-4) で表されるモノマーを、例えば、第4版実験化学講座第28巻 (丸善, 1992) 等に記載された公知の方法で重合させることによって合成される。

【0112】

【化35】



30

【0113】

一般式 (I-4) において、 A^1 は前記一般式 (I-1) で表される構造から選択された少なくとも1種以上を表し、 A' は水酸基、ハロゲン原子、又は、基 - O - R⁵ を表し、R⁵ はアルキル基、置換若しくは未置換のアリール基、又は、アラルキル基を表す。

【0114】

具体的には、一般式 (I-4) で表されるモノマーは、例えば、以下のように合成される。

【0115】

公知の方法を用いて、置換又は未置換の2,3-ジアミノピリジンと4,4'-ジプロモベンジルとを、ピリジン又はトリエチルアミンなどの弱塩基、アルコール溶媒存在下 25 で反応させ、ピリドピラジン骨格を合成する。次に、ヨードアリールプロピオン酸アルキルエステル化合物とアミン化合物との Ullmann 反応によりジアリールアミンを合成する。前記ピリドピラジン骨格とジアリールアミンとのパラジウムカップリング反応を経て一般式 (I-4) で表されるモノマーが得られる。なお、一般式 (I-4) で表されるモノマーの合成手法はこれに限定されるものではない。

【0116】

これら一般式 (I-4) で表されるモノマーを用いて前記電荷輸送性ポリエステルは、次のようにして合成される。

50

【 0 1 1 7 】

A' が水酸基の場合には、モノマーに $\text{HO} - (\text{Y}^1 - \text{O})_m - \text{H}$ (Y^1 、m は一般式 (I I - 1) 及び (I I - 2) の Y^1 、m とそれぞれ同義、以下同様である。) で表される 2 価アルコール類を当量混合し、酸触媒を用いて重合する。

酸触媒としては、硫酸、トルエンスルホン酸、トリフルオロ酢酸等、通常のエステル化反応に用いるものが使用でき、モノマー 1 質量部に対して、1 / 10 , 0 0 0 質量部以上 1 / 10 質量部以下、望ましくは 1 / 1 , 0 0 0 質量部以上 1 / 5 0 質量部以下の範囲で用いられる。

重合中に生成する水を除去するために、水と共沸可能な溶剤を用いることが望ましく、トルエン、クロロベンゼン、1 - クロロナフタレン等が有効であり、モノマー 1 質量部に対して、1 質量部以上 1 0 0 質量部以下、望ましくは 2 質量部以上 5 0 質量部以下の範囲で用いられる。

反応温度は任意に設定されるが、重合中に生成する水を除去するために、溶剤の沸点で反応させることが望ましい。

【 0 1 1 8 】

反応終了後、溶剤を用いなかった場合には溶解可能な溶剤に溶解させる。溶剤を用いた場合には、反応溶液をそのまま、メタノール、エタノール等のアルコール類や、アセトン等のポリマーが溶解しにくい貧溶剤中に滴下し、ポリエステルを析出させ、ポリエステルを分離した後、水や有機溶剤で十分洗浄し、乾燥させる。更に、必要であれば適当な有機溶剤に溶解させ、貧溶剤中に滴下し、ポリエステルを析出させる再沈殿処理を繰り返してもよい。再沈殿処理の際には、メカニカルスターラー等で、効率よく攪拌しながら行うことが望ましい。再沈殿処理の際にポリエステルを溶解させる溶剤は、ポリエステル 1 質量部に対して、1 質量部以上 1 0 0 質量部以下、望ましくは 2 質量部以上 5 0 質量部以下の範囲で用いられる。また、貧溶剤はポリエステル 1 質量部に対して、1 質量部以上 1 , 0 0 0 質量部以下、望ましくは 1 0 質量部以上 5 0 0 質量部以下の範囲で用いられる。

【 0 1 1 9 】

A' が $-\text{O}-\text{R}^5$ の場合には、モノマーに、 $\text{HO} - (\text{Y}^1 - \text{O})_m - \text{H}$ で表される 2 価アルコール類を過剰に加え、硫酸、リン酸等の無機酸、チタンアルコキシド、カルシウム及びコバルト等の酢酸塩或いは炭酸塩、亜鉛や鉛の酸化物を触媒に用いて加熱し、エステル交換により合成される。2 価アルコール類はモノマー 1 当量に対して、2 等量以上 1 0 0 当量以下、望ましくは 3 等量以上 5 0 当量以下の範囲で用いられる。触媒はモノマー 1 質量部に対して、1 / 10 , 0 0 0 質量部以上 1 質量部以下、望ましくは 1 / 1 , 0 0 0 質量部以上 1 / 2 質量部以下の範囲で用いられる。

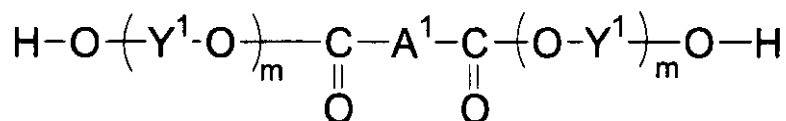
反応は、反応温度 2 0 0 以上 3 0 0 以下で行い、基 $-\text{O}-\text{R}^5$ から基 $-\text{O} - (\text{Y}^1 - \text{O})_m - \text{H}$ へのエステル交換終了後は、 $\text{HO} - (\text{Y}^1 - \text{O})_m - \text{H}$ の脱離による重合を促進するため、減圧下で反応させることが望ましい。また、 $\text{HO} - (\text{Y}^1 - \text{O})_m - \text{H}$ と共沸可能な 1 - クロロナフタレン等の高沸点溶剤を用いて、常圧下で $\text{HO} - (\text{Y}^1 - \text{O})_m - \text{H}$ を共沸で除きながら反応させてもよい。

【 0 1 2 0 】

また、次のようにして電荷輸送性ポリエステルを合成してもよい。上記それぞれの場合において、2 価アルコール類を過剰に加えて反応させることによって下記一般式 (I - 3) で表される化合物を生成した後、この化合物を前記一般式 (I - 4) で表されるモノマーの代わりとして用いて上記「A' が $-\text{O}-\text{R}^5$ の場合」と同様の方法で、2 価カルボン酸又は 2 価カルボン酸ハロゲン化物等と反応させればよく、それによってポリエステルが得られる。

【 0 1 2 1 】

【化 3 6】



(I-3)

【0122】

10

但し、一般式 (I - 3) 中、 A^1 は前記一般式 (I - 1) で表される構造から選択された少なくとも 1 種を表す。 Y^1 は 2 価のアルコール残基を表し、前記一般式 (II - 1) 又は一般式 (II - 2) における Y^1 と同義である。 m は 1 以上 5 以下の整数を表し、前記一般式 (II - 1) 又は一般式 (II - 2) における m と同義である。

【0123】

また、前記電荷輸送性ポリエステルの末端に任意の分子を導入することを行なってもよい。その場合、次の方法が挙げられる。すなわち、一般式 (I - 4) で表されるモノマーの A^1 が水酸基の場合、末端導入化合物のモノカルボン酸を共重合させるか、ポリマーの重合反応後の化合物にモノカルボン酸を仕込んで反応させ導入させる。

【0124】

20

また、 A^1 がハロゲンの場合、末端導入化合物のモノ酸塩化物を共重合させるか、ポリマーの重合反応後、末端導入化合物のモノ酸塩化物を仕込んで反応させ導入させる。 A^1 が $-\text{O}-\text{R}^5$ の場合には、末端導入化合物のモノエステルを共重合させるか、ポリマーの重合反応後、末端導入化合物のモノエステルを仕込んで反応させ導入させる。

【0125】

次に、本実施形態に係る有機電界発光素子の構成について詳述する。

本実施形態に係る有機電界発光素子は、少なくとも一方が透明又は半透明である陽極及び陰極よりなる一対の電極と、前記一対の電極間に挟まれた 1 つ以上の層で構成される有機化合物層と、を有する。そして、前記有機化合物層を構成する少なくとも 1 層が、前記一般式 (II - 1) 又は (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルを 1 種以上含有する。

30

上記構成を有すれば、本実施形態に係る有機電界発光素子における層構成は特に限定されない。

【0126】

本実施形態の有機電界発光素子においては、有機化合物層が発光層のみから構成される場合は、有機化合物層は電荷輸送能を持つ発光層を意味し、この電荷輸送能を有する発光層が、前記一般式 (II - 1) 又は一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルを含有してなる。

ここで、発光層のみから構成される場合では、他の層構成に比べ、素子の大面積化及び製造が容易である。これは、層数が少なく、例えば湿式塗布等により作製されるためである。

40

【0127】

また、本実施形態の有機電界発光素子は、有機化合物層が複数層で構成される、いわゆる各層が異なる機能を有する機能分離型の素子であってもよい。この場合、少なくとも 1 層は発光層であり、その他の層としては、電荷輸送層、すなわち、正孔輸送層、電子輸送層、又は正孔輸送層及び電子輸送層を挙げることができる。これらの少なくとも一層に前記一般式 (II - 1) 又は一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルが含まれる。なお、機能分離型の素子における発光層は電荷輸送能を持つ発光層であってもよい。

前記発光層あるいは前記電荷輸送能を持つ発光層と、その他の層からなる層構成の具体例な有機化合物層の構成としては、下記 (1) ~ (3) が挙げられる。

50

【0128】

(1) 少なくとも1層の発光層と、電子輸送層及び電子注入層の少なくとも1層と、を含む構成。

ここで、この層構成では、他の層構成に比べ、製造容易性と発光効率との両立が図られる。これは、全て機能分離した層構成に比べ層数が少ない一方で、一般に正孔に比較して移動度が低い電子の注入効率を補い、発光層での電荷の均衡が図られるためであると考えられる。

【0129】

(2) 正孔輸送層及び正孔注入層の少なくとも1層と、少なくとも1層の発光層と、電子輸送層及び電子注入層の少なくとも1層と、を含む構成。

ここで、この層構成では、他の層構成の素子に比べ、発光効率に優れ、低電圧駆動が可能となる。これは、全て機能分離することで、他の層構成に比べ、電荷の注入効率が最も高くなり、発光層で電荷が再結合可能であるためであると考えられる。

【0130】

(3) 正孔輸送層及び正孔注入層の少なくとも1層と、少なくとも1層の発光層と、を含む層構成。

ここで、この層構成では、他の構成に比べ、製造容易性と耐久性との両立が図れる。これは、全て機能分離した層構成に比べ層数が少ない一方で、発光層への正孔の注入効率が向上し、発光層で過剰な電子の注入が抑制されるためであると考えられる。

【0131】

これらの少なくとも一層（正孔輸送層、電子輸送層、発光層）のいずれかに前記一般式(II-1)又は一般式(II-2)で表される電荷輸送性ポリエステルが含まれていれば、前記一般式(II-1)又は一般式(II-2)で表される電荷輸送性ポリエステルを含有する層については特に制限されない。

好適には正孔輸送層用材料として前記一般式(II-1)又は一般式(II-2)で表される電荷輸送性ポリエステルが含まれていることが望ましい。

【0132】

また、本実施形態に係る有機電界発光素子において、発光層、正孔輸送層、正孔注入層、電子輸送層、電子注入層は、前記一般式(II-1)又は一般式(II-2)で表される電荷輸送性ポリエステル以外の電荷輸送性化合物（正孔輸送材料、電子輸送材料）を更にも含んでもよい。この電荷輸送性化合物の詳細については後述する。

【0133】

更に、本実施形態の有機電界発光素子において、発光層、正孔輸送層、正孔注入層、電子輸送層、及び電子注入層は、一般式(II-1)又は一般式(II-2)で表される電荷輸送性ポリエステル以外の電荷輸送性化合物（正孔輸送材料、電子輸送材料）を含んでもよい。このようなその他の電荷輸送性化合物の詳細については後述する。

【0134】

以下、図面を参照しつつ、本実施形態の有機電界発光素子について、より詳細に説明するが、これらに限定されるものではない。

図1～図4は、本実施形態の有機電界発光素子の層構成を説明するための模式的断面図であって、図1、図2、及び図3の場合は、有機化合物層が複数層で構成される場合の一例であり、図4の場合は、有機化合物層が1層で構成される場合の例を示す。なお、図1～図4において、同一の機能を有するものは同じ符号を付して説明する。

【0135】

図1に示す有機電界発光素子10は、透明絶縁体基板1上に、透明電極2、発光層4、電子輸送層5、及び背面電極7を順次積層してなり、層構成(1)に相当するものである。

なお、電子輸送層5は、電子注入層で構成されていてもよい。また、電子輸送層及び電子注入層で構成されていてもよく、その場合には、発光層4側から背面電極7側へ、電子輸送層、電子注入層、背面電極7、の順に積層される。

また、発光層 4 は電荷輸送能を持つ発光層 6 であってもよい。つまり、透明絶縁体基板 1 上に、透明電極 2、電荷輸送能を持つ発光層 6、電子輸送層 5、及び背面電極 7 を順次積層したものであってもよい。

【0136】

図 2 に示す有機電界発光素子 10 は、透明絶縁体基板 1 上に、透明電極 2、正孔輸送層 3、発光層 4、電子輸送層 5、及び背面電極 7 が順次積層されたもので、層構成 (2) に相当するものである。

なお、正孔輸送層 3 は、正孔注入層で構成されていてもよい。また、正孔輸送層及び正孔注入層で構成されていてもよく、その場合には、透明電極 2 側から背面電極 7 側へ、正孔注入層、正孔輸送層、発光層 4、の順に積層される。

なお、電子輸送層 5 は、電子注入層で構成されていてもよい。また、電子輸送層及び電子注入層で構成されていてもよく、その場合には、発光層 4 側から背面電極 7 側へ、電子輸送層、電子注入層、背面電極 7 の順に積層される。

また、発光層 4 は電荷輸送能を持つ発光層 6 であってもよい。つまり、透明絶縁体基板 1 上に、透明電極 2、正孔輸送層 3、電荷輸送能を持つ発光層 6、電子輸送層 5、及び背面電極 7 を順次積層したものであってもよい。

【0137】

図 3 に示す有機電界発光素子 10 は、透明絶縁体基板 1 上に、透明電極 2、正孔輸送層 3、発光層 4、及び背面電極 7 が順次積層されたもので、層構成 (3) に相当するものである。

なお、正孔輸送層 3 は、正孔注入層で構成されていてもよい。また、正孔輸送層及び正孔注入層で構成されていてもよく、その場合には、透明電極 2 側から背面電極 7 側へ、正孔注入層、正孔輸送層、発光層 4、の順に積層される。

また、発光層 4 は電荷輸送能を持つ発光層 6 であってもよい。つまり、透明絶縁体基板 1 上に、透明電極 2、正孔輸送層 3、電荷輸送能を持つ発光層 6、及び背面電極 7 を順次積層したものであってもよい。

【0138】

図 4 に示す有機電界発光素子 10 は、透明絶縁体基板 1 上に、透明電極 2、電荷輸送能を持つ発光層 6 及び背面電極 7 が順次積層されたものである。

【0139】

また、トップエミッション構造や陰極・陽極共に透明電極を用いて透過型にする場合、さらには図 1 ~ 図 4 の層構成を複数段積重ねた構造とすることも可能である。

【0140】

前記一般式 (II - 1) 又は一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルが含まれる層は、それを含んで形成される有機化合物層の機能によって、発光能、正孔輸送能、電子輸送能のいずれの機能をも付与される。

【0141】

例えば、図 1 に示される有機電界発光素子 10 の層構成の場合、前記一般式 (II - 1) 又は一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルは、発光層 4 又は電子輸送層 5 のいずれに含有されてもよく、発光層 4 又は電子輸送層 5 としていずれも作用することができる。

【0142】

図 2 に示される有機電界発光素子 10 の層構成の場合、前記一般式 (II - 1) 又は一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルは、正孔輸送層 3、発光層 4 又は電子輸送層 5 のいずれに含有されてもよく、正孔輸送層 3、発光層 4 又は電子輸送層 5 としていずれも作用することができる。

【0143】

図 3 に示される有機電界発光素子 10 の層構成の場合、前記一般式 (II - 1) 又は一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルは、正孔輸送層 3 又は発光層 4 のいずれに含有されてもよく、正孔輸送層 3 又は発光層 4 としていずれも作用することができる。

【 0 1 4 4 】

図 4 に示される有機電界発光素子 10 の層構成の場合、前記一般式 (II - 1) 又は一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルは発光層 6 に含有され、電荷輸送能を有する発光層 6 として作用することができる。

【 0 1 4 5 】

以下、各々を詳しく説明する。

図 1 ~ 図 4 に示される有機電界発光素子の層構成の場合、透明絶縁体基板 1 は、発光を取り出すため透明又は半透明なものが好ましく、ガラス、プラスチックフィルム等を用いることができる。しかしながら、これらの材料に限定されるものではない。

なお上記透明又は半透明とは、可視領域の光の透過率が 10 % 以上であることを意味し、更に透過率が 75 % 以上であることが好ましい。

10

【 0 1 4 6 】

透明電極 2 は、透明絶縁体基板と同様に発光を取り出すため透明又は半透明であって、かつ正孔の注入を行うため仕事関数の大きなものが良く、仕事関数が 4 e V 以上のものが好ましい。

【 0 1 4 7 】

透明電極 2 の具体例として、酸化スズインジウム (ITO)、酸化スズ (NESA)、酸化インジウム、酸化亜鉛、酸化インジウム亜鉛等の酸化膜、及び蒸着或いはスパッタされた金、白金、パラジウム等が用いられる。

透明電極 2 のシート抵抗は、低いほど望ましく、数百 $\Omega/\square$ 以下が好ましく、さらには 100 $\Omega/\square$ 以下がより好ましい。

20

また、透明電極 2 における可視領域の光の透過率は 10 % 以上で、更に透過率が 75 % 以上であることが好ましい。

【 0 1 4 8 】

また、有機電界発光素子の耐久性向上或いは発光効率の向上を目的として、正孔移動度を調節するために、前記一般式 (II - 1) 又は一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステル以外の正孔輸送材料を、前記一般式 (II - 1) 又は一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルに対して、0.1 質量 % 以上 50 質量 % 以下の範囲で混合分散して形成されてもよい。

この正孔輸送材料としては、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、スチルベン誘導体、アリアルヒドラゾン誘導体、ボルフィリン系化合物が挙げられるが、電荷輸送性ポリエステルとの相溶性が良いことから、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が望ましい。

30

【 0 1 4 9 】

また、同様に、電子移動度を調整する場合は、前記一般式 (II - 1) 又は一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステル以外の電子輸送材料を、前記一般式 (II - 1) 又は一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルに対して、0.1 質量 % 以上 50 質量 % 以下の範囲で混合分散して形成されてもよい。

この電子輸送材料として、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、シロール誘導体、キレート型有機金属錯体、多核又は縮合芳香環化合物、ペリレン誘導体、トリアゾール誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体等が挙げられる。

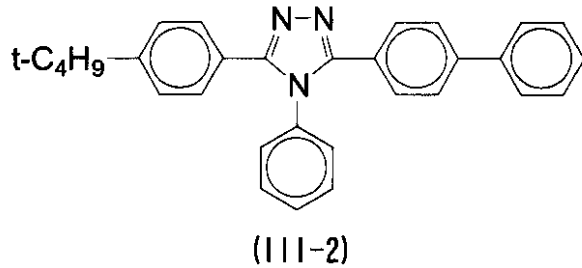
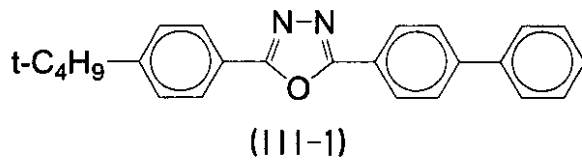
40

【 0 1 5 0 】

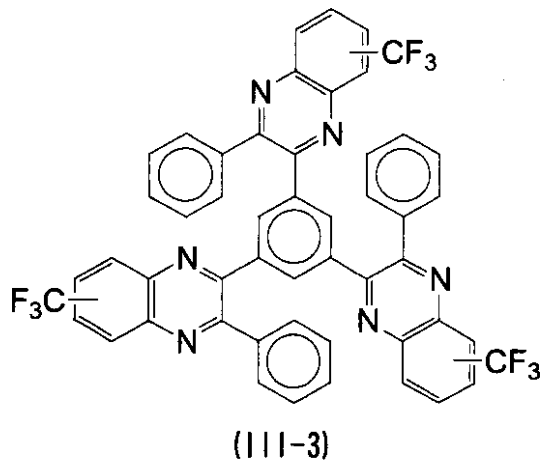
電子輸送材料として、具体的には下記 (III-1) ~ (III-3) の化合物を挙げることができる。

【 0 1 5 1 】

【化 3 7】



10



20

30

【0152】

また、正孔移動度及び電子移動度の両方の調整が必要な場合は、前記電荷輸送性ポリエステルに正孔輸送材料及び電子輸送材料の両方を一緒に混在させてもよい。

【0153】

さらに、成膜性の向上、ピンホール防止等のため、適切な樹脂（ポリマー）、添加剤を加えても良い。

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、塩化ビニリデン - 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られる。また、添加剤としては、公知の酸化防止剤、紫外線吸収剤、可塑剤等を用いられる。

40

【0154】

また、電荷注入性を向上させる場合には、正孔注入層及び／又は電子注入層を用いてもよい。

正孔注入材料としては、フェニレンジアミン誘導体、フタロシアニン誘導体、インダンスレン誘導体、ポリアルキレンジオキシチオフェン誘導体等が用いられる。また、これら

50

には、ルイス酸、スルホン酸等を混合してもよい。

電子注入材料としては、 Li 、 Ca 、 Sr 等の金属や LiF 、 MgF_2 等の金属フッ化物、 MgO 、 Al_2O_3 、 LiO 等の金属酸化物が用いられる。

【0155】

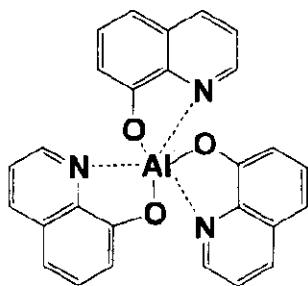
また、前記電荷輸送性ポリエステルを発光機能以外で用いる場合は、発光性化合物を発光材料として用いる。

発光材料としては、固体状態で高い発光量子効率を示す化合物を用いる。発光材料は、低分子化合物又は高分子化合物どちらでもよい。発光材料が有機低分子化合物である場合の好適な例としては、キレート型有機金属錯体、多核又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を挙げることができる。発光材料が高分子化合物の場合、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用いられる。

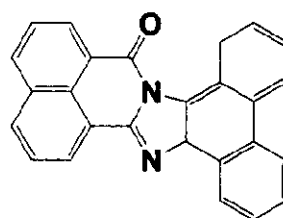
発光材料の好適な具体例として、下記発光材料(IV-1)～(IV-17)を挙げることができるが、これらに限られるものではない。なお、発光材料(IV-17)中、 V は前記示した V と同義であり、発光材料(IV-13)～(IV-17)中、 n 及び j は1又は2以上の整数を示す。

【0156】

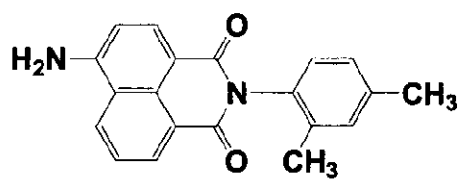
【化 3 8】



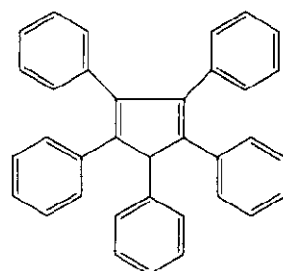
(IV-1)



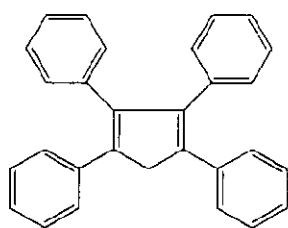
(IV-2)



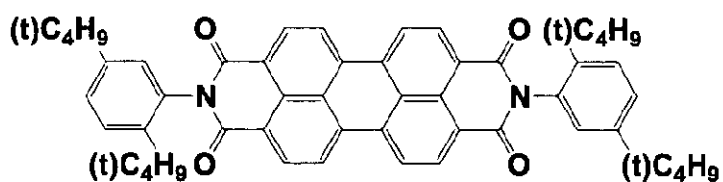
(IV-3)



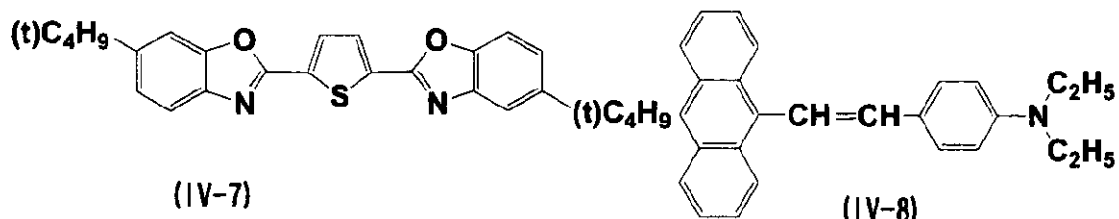
(IV-4)



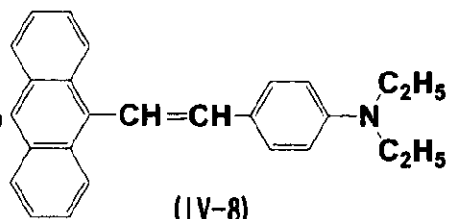
(IV-5)



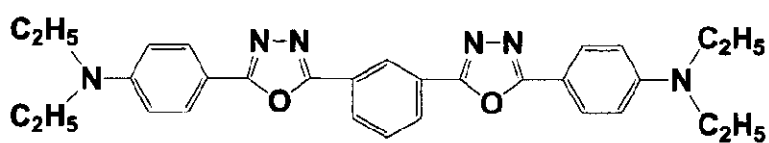
(IV-6)



(IV-7)



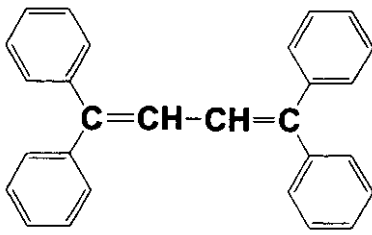
(IV-8)



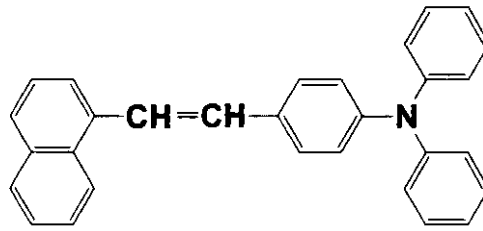
(IV-9)

【 0 1 5 7 】

【化 3 9】

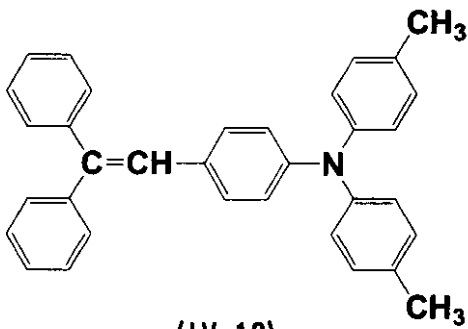


(IV-10)

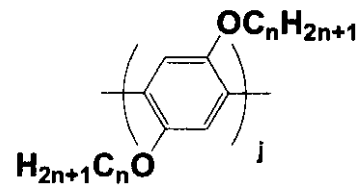


(IV-11)

10

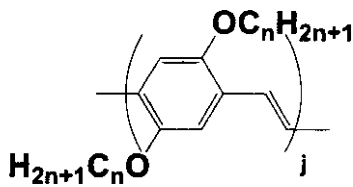


(IV-12)

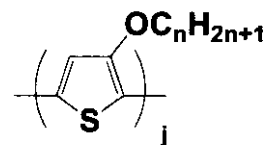


(IV-13)

20

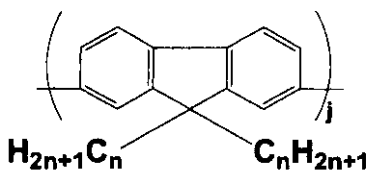


(IV-14)

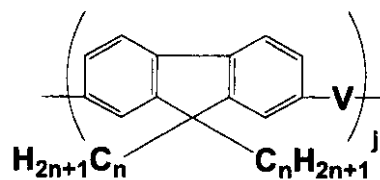


(IV-15)

30



(IV-16)



(IV-17)

40

【 0 1 5 8 】

また、素子の耐久性の向上あるいは発光効率の向上を目指して、上記発光材料又は前記電荷輸送性ポリエステルの中にゲスト材料として発光材料とは異なる色素化合物をドーピ

50

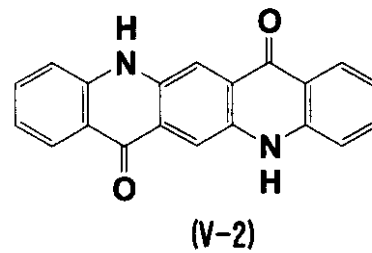
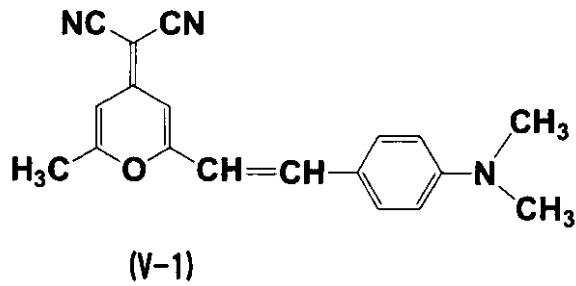
ングしてもよい。前記色素化合物のドーピングの割合としては0.001質量%以上40質量%以下程度、望ましくは0.001質量%以上10質量%以下程度である。

このドーピングに用いられる色素化合物としては、発光材料及び前記一般式(II-1)又は一般式(II-2)で表される電荷輸送性ポリエステルとの相容性が良く、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る。

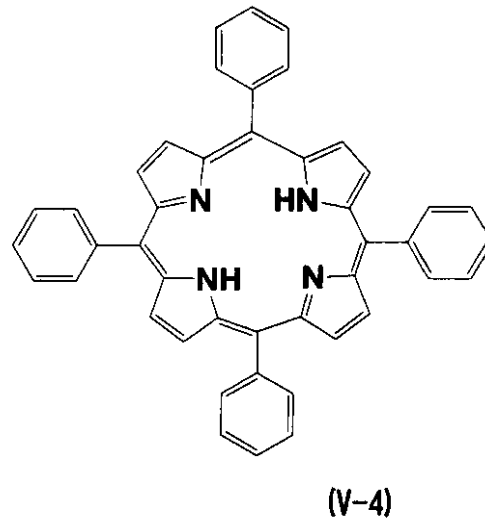
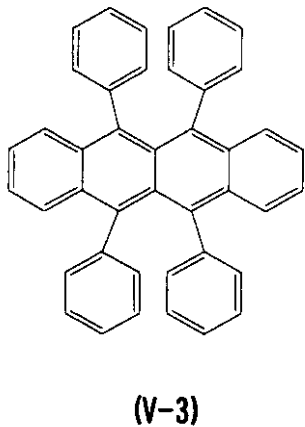
この色素化合物として好適には、クマリン誘導体、DCM誘導体、キナクリドン誘導体、ルブレン誘導体、ポルフィリン誘導体、Ir、Eu、Ptなどの金属錯体化合物等が用いられる。好適な具体例として、下記の色素化合物(V-1)～(V-6)があげられるが、これらに限られるものではない。

【0159】

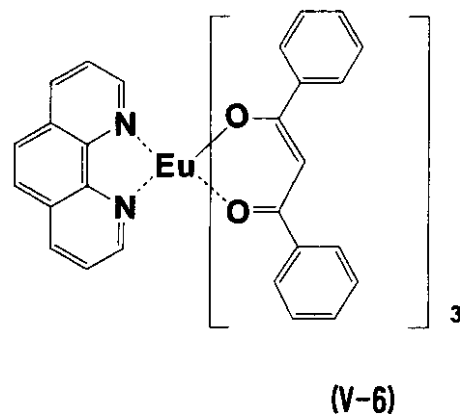
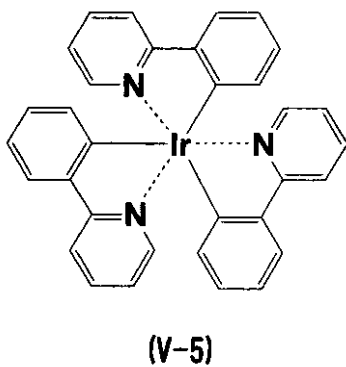
【化 4 0】



10



20



30

40

【 0 1 6 0】

図 1 ~ 図 4 に示される有機電界発光素子の層構成の場合、背面電極 7 には、真空蒸着可能で、電子注入を行うため仕事関数の小さな金属、金属酸化物、金属フッ化物等が使用される。

前記金属としてはマグネシウム、アルミニウム、金、銀、インジウム、リチウム、カルシウム及びこれらの合金が挙げられる。前記金属酸化物としては、酸化リチウム、酸化マグネシウム、酸化アルミニウム、酸化スズインジウム、酸化スズ、酸化インジウム、酸化亜鉛、酸化インジウム亜鉛等が挙げられる。また、前記金属フッ化物としては、フッ化リ

50

チウム、フッ化マグネシウム、フッ化ストロンチウム、フッ化カルシウム、フッ化アルミニウムが挙げられる。

また、背面電極 7 上には、さらに水分や酸素による有機電界発光素子の劣化を防ぐために保護層（図示せず）を設けてもよい。

具体的な保護層の材料としては、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al等の金属、MgO、SiO₂、TiO₂等の金属酸化物、ポリエチレン樹脂、ポリウレア樹脂、ポリイミド樹脂等の樹脂が挙げられる。保護層の形成には、真空蒸着法、スパッタリング法、プラズマ重合法、CVD法、コーティング法が適用される。

【0161】

これら図1～図4に示される有機電界発光素子は、まず透明電極2の上に各有機電界発光素子の層構成に応じた個々の層を順次形成することにより作製される。なお、正孔輸送層3、発光層4、電子輸送層5、及び電荷輸送能を持つ発光層6、並びに正孔注入層、電子注入層は、上記各材料を真空蒸着法、又は適切な有機溶媒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、キャスト法、ディップ法、インクジェット法等により形成される。

【0162】

尚、このうち、所望の画素の位置に必要な量だけの層形成材料を塗布することができ、無駄になる材料がわずかであること、それに伴い地球環境にもやさしいこと、高精細なパターンニングが可能であること、大型パネル化が容易であること、印刷対象の自由度が大きいこと等の観点では、前記インクジェット法を用いることが望ましく、具体的には、有機電界発光素子の製造方法として、有機化合物層の構成成分を溶媒中に溶解させた塗布溶液をインクジェット法により塗布する塗布工程を有することが特に望ましい。

【0163】

インクジェット法を用いる場合、インクの代わりに、有機化合物層用塗布液を用いて、液滴吐出ヘッドのノズルから液滴状の有機化合物層用塗布液を吐出させることによって、基板上の所望の位置に所望の膜厚・形状の有機化合物層が形成される。

また、液滴吐出ヘッドとしても、基本的な構成や原理は、インクジェットプリンターに用いられている記録ヘッドと同様のものが利用される。すなわち、有機化合物層用塗布液に圧力や熱等の外部刺激を付与することによって、有機化合物層用塗布液をノズルから液滴状に吐出する方法（いわゆる圧電素子を用いたピエゾインクジェット方式、熱沸騰現象を利用した熱インクジェット方式等）が利用される。

【0164】

しかしながら、本実施形態に係る有機電界発光素子の製造に際しては、外部刺激は熱よりも圧力であることがより望ましい。外部刺激が熱である場合には、有機化合物層用塗布液のノズルからの吐出から、基板上へ着弾した有機化合物層用塗布液の溶媒の揮発による塗膜の形成（固化）というインクジェット印刷プロセスにおいて、有機化合物層用塗布液の粘度が熱によって大きく変化してしまうため、レベリング性やパターンニング精度の制御が困難になる場合がある。これに加えて、耐熱性に劣る電荷輸送性ポリエーテルが利用できなくなり、材料選択肢が狭くなってしまう場合がある。

【0165】

また、インクジェット法を利用した本実施形態に係る有機電界発光素子の製造に用いられる装置としては、上述した液滴吐出ヘッドの他に、必要に応じて、例えば、有機電界発光素子を形成する対象である基板等の固定あるいは搬送手段や、液滴吐出ヘッドを基板平面方向に対して走査する液滴吐出ヘッド走査手段等を有していてもよい。

【0166】

正孔輸送層3、発光層4、電子輸送層5、及び電荷輸送能を持つ発光層6、並びに正孔注入層、電子注入層の膜厚は、各々10μm以下、特に0.001μm以上5μm以下の範囲であることが望ましい。

上記各材料（前記非共役系高分子、発光材料等）の分散状態は分子分散状態でも微結晶などの粒子状態でも構わない。

10

20

30

40

50

【 0 1 6 7 】

また、図 1 及び図 2 に示す有機電界発光素子の場合には、電子輸送層 5 又は電子注入層の上に背面電極 7 を真空蒸着法、スパッタリング法等により形成することにより本実施形態に係る有機電界発光素子が得られる。

また、図 3 及び図 4 に示す有機電界発光素子の場合には、発光層 4 (電荷輸送能を持つ発光層 6 を含む) の上に背面電極 7 を真空蒸着法、スパッタリング法等により形成することにより本実施形態に係る有機電界発光素子が得られる。

【 0 1 6 8 】

なお、本実施形態に係る有機電界発光素子は、例えば、表示装置、電子ペーパー、バックライト、照明光源、電子写真用露光装置、標識、看板等の分野に好適に使用される。

10

【 0 1 6 9 】

次に、本実施形態の塗膜用組成物について説明する。

本実施形態の塗膜用組成物は、前記一般式 (II - 1) 又は一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルと、少なくとも 1 種の有機溶媒と、を含む。

【 0 1 7 0 】

前記一般式 (II - 1) 又は一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルは有機溶媒への溶解性に優れる。よって前記一般式 (II - 1) 又は一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルを有機溶媒に溶解した本実施形態の塗膜用組成物は、成膜性に優れ、スピンコーティング法、ディップ法、インクジェット法等の成膜方法に好適に適用することができる。

20

【 0 1 7 1 】

また、前記一般式 (II - 1) 又は一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルは、有機電界発光素子を形成するための塗布液に一般に用いられている有機溶媒に対しても優れた溶解を示す。よって、前記一般式 (II - 1) 又は一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルを含有する本実施形態の塗膜用組成物は、成膜性に優れた有機電界発光素子の製造用に適した組成物である。特に、一般式 (II - 1) 及び上記一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルは、有機電界発光素子として好適な電荷注入特性、電荷移動度、薄膜形成能、発光特性に加え、発光時の熱安定性、保存安定性を有する。このため、本実施形態の塗膜用組成物によって形成した層を備える有機電界発光素子は、発光強度が大きく、発光効率が高く、そして長寿命化が図れる。

30

【 0 1 7 2 】

本実施形態の塗膜用組成物における有機溶媒としては、例えば、電子デバイスへの用途などを考慮するトルエン、キシレン、テトラヒドロフラン、モノクロロベンゼンなどを挙げることができる。溶解性や低環境負荷などを考慮すると、有機溶媒としては、テトラヒドロフラン、トルエン、キシレンを用いることが好適であり、テトラヒドロフランを用いることが更に好適である。

【 0 1 7 3 】

本実施形態の塗膜組成物には、前記一般式 (II - 1) 又は一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルのほかに、添加物を添加することができ、例えば、有機電界発光材料の前記各層を構成する上記材料 (発光材料、ドーピング用の色素化合物、他の電荷輸送材料など) を含有させることができる。

40

なお、本実施形態の塗膜組成物は、有機電界発光材料の製造用途に限られず、トランジスタなど他の電子デバイス製造用などにも用いることができる。

【 0 1 7 4 】

なお、塗膜組成物に含まれる各材料 (前記一般式 (II - 1) 又は一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステル、発光材料等) の分散状態は分子分散状態でも粒子分散状態でも構わない。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、ホモジナイザー、超音波法等が利用される。

【 0 1 7 5 】

本実施形態の塗膜組成物では、その用途に応じて前記前記一般式 (II - 1) 又は一般式

50

(II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルの含有率を調整することができる。

前記一般式 (II - 1) 又は一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルの含有率は特に限定されないが、溶解度の観点からは、10質量%以下であり、スピンコーティング法又はディップ法の用途では、0.1質量%以上5.0質量%以下であることが望ましく、インクジェット法の用途では、粘度、表面張力の観点からは、0.1質量%以上3.0質量%以下であることがより好ましい。

【0176】

なお、インクジェット法で用いる有機化合物層用塗布液は、その組成や物性は特に限定されるものではないが、有機化合物層用塗布液の粘度は、25において0.01cps以上1000cps以下の範囲内であることが望ましく、1cps以上100cps以下の範囲内であることが望ましい。

10

粘度が0.01cps未満である場合には、基板上に着弾した有機化合物層用塗布液が、基板平面方向に広がり易く、膜厚の制御が困難となったり、パターンニング精度が劣化してしまう場合がある。また、粘度が1000cpsを超える場合には、有機化合物層用塗布液の粘性が高すぎるために吐出不良を起こしやすくなる場合がある。

【0177】

なお、有機化合物層用塗布液の粘度は、前記一般式 (II - 1) 又は一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルや、必要に応じて添加されるその他の添加剤成分の含有量や、前記一般式 (II - 1) 又は一般式 (II - 2) で表される電荷輸送性ポリエステルの分子量等を制御することによって、所望の値に調整される。

20

【0178】

次に、本実施形態に係る表示媒体 (装置) の構成について詳述する。

本実施の形態の表示装置は、上記本実施の形態の有機電界発光素子と、有機電界発光素子を駆動するための駆動手段と、を有する。

表示装置として具体的には例えば、図1～図4に示すように、有機電界発光素子の一对の電極 (電極2、背面電極7) に連結され、当該一对の電極間に直流電圧を印加するための電圧印加装置9を、駆動手段として備えたものが挙げられる。

電圧印加装置9を用いた有機電界発光素子の駆動方法としては、例えば、一对の電極間に、4V以上20V以下で、電流密度1mA/cm²以上200mA/cm²以下の直流電圧を印加することによって有機電界発光素子を発光させる。

30

【0179】

また、本実施の形態の有機電界発光素子は、最小単位 (1画素単位) の構成について説明したが、例えば、当該1画素単位 (有機電界発光素子) をマトリクス状及びセグメント状の少なくとも一方で配置した表示装置に適用される。有機電界発光素子をマトリクス状に配置する場合、電極のみをマトリクス状に配置する態様であってもよいし、電極及び有機化合物層の両方をマトリクス状に配置する態様であってもよい。また、本実施形態において有機電界発光素子をセグメント状に配置する場合、電極のみをセグメント状に配置する態様であってもよいし、電極及び有機化合物層の両方をセグメント状に配置する態様であってもよい。なお、マトリクス状又はセグメント状の有機化合物層は、前述したインクジェット法を用いることにより容易に形成可能である。

40

【0180】

また、表示装置の駆動方式としては、従来公知の技術を適用することができる。例えば、複数の行電極及び列電極を配し、行電極を走査駆動しながら各行電極に対応する画像情報に応じて列電極を一括して駆動させる単純マトリクス駆動や、各画素毎に配された画素電極によるアクティブマトリクス駆動等が利用される。

【実施例】

【0181】

以下、本実施形態を、実施例を挙げてさらに具体的に説明する。ただし、これら各実施例は、本実施形態を制限するものではない。

【0182】

50

[実施例 1]

- 合成例 1 -

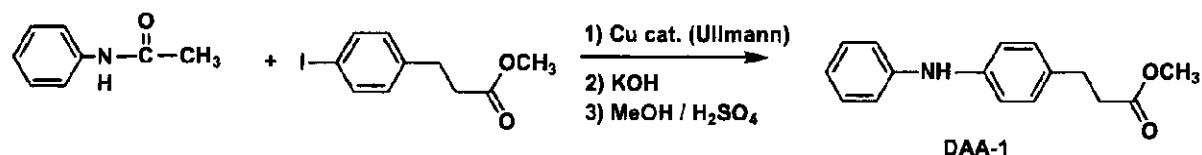
アセトアニリド (25.0 g)、4 - ヨードフェニルプロピオン酸メチル (64.4 g)、炭酸カリウム (38.3 g)、硫酸銅 5 水和物 (2.3 g)、n - トリデカン (50 ml) を 500 ml の三口フラスコに入れ、窒素気流下、230 で 20 時間加熱撹拌した。

反応終了後、水酸化カリウム (15.6 g) をエチレングリコール (300 ml) に溶解したものを加え、窒素気流下で 3.5 時間加熱還流した後、25 まで冷却し、反応液を 1 L の蒸留水に注ぎ、塩酸で中和し、結晶を析出させた。

析出した結晶を吸引濾過により濾取し、水洗した後、1 L のフラスコに移した。これに、トルエン (500 ml) を加え、加熱還流し、共沸により水を除去した後、濃硫酸 (1.5 ml) のメタノール (300 ml) 溶液を加え、窒素気流下で 5 時間加熱還流した。反応後、トルエンで抽出し、有機層を蒸留水で洗浄した。次いで、無水硫酸ナトリウムで乾燥後、溶剤を減圧下留去し、ヘキサンから再結晶することにより下記 DAA - 1 を 36.5 g 得た。

【 0183 】

【 化 41 】



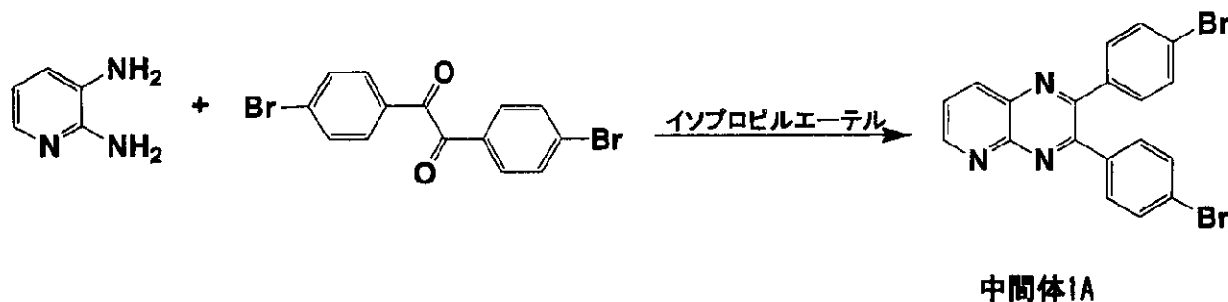
【 0184 】

次に、温度計、コンデンサー、マグネチックスターラーを備えた 500 ml 三口フラスコに 2, 3 - ジアミノピリジン (2.7 g)、4, 4' - ジブロモベンジル (8.3 g) を入れ、これをイソプロピルエーテル 200 ml に溶解させた。5 時間加熱還流磁気撹拌した。

薄層クロマトグラフィー (TLC) (ヘキサン / 酢酸エチル = 1 / 1 (体積比)) にて 4, 4' - ジブロモベンジルのスポットが消失しているのを確認後、0 まで冷却した。冷却後、析出した結晶を吸引濾過により濾取した。さらにメタノール 50 ml で洗浄した後、40 で真空乾燥を 15 時間行い、ピリドピラジンジハロゲン体である下記中間体 1A を (8.5 g) 得た。

【 0185 】

【 化 42 】



【 0186 】

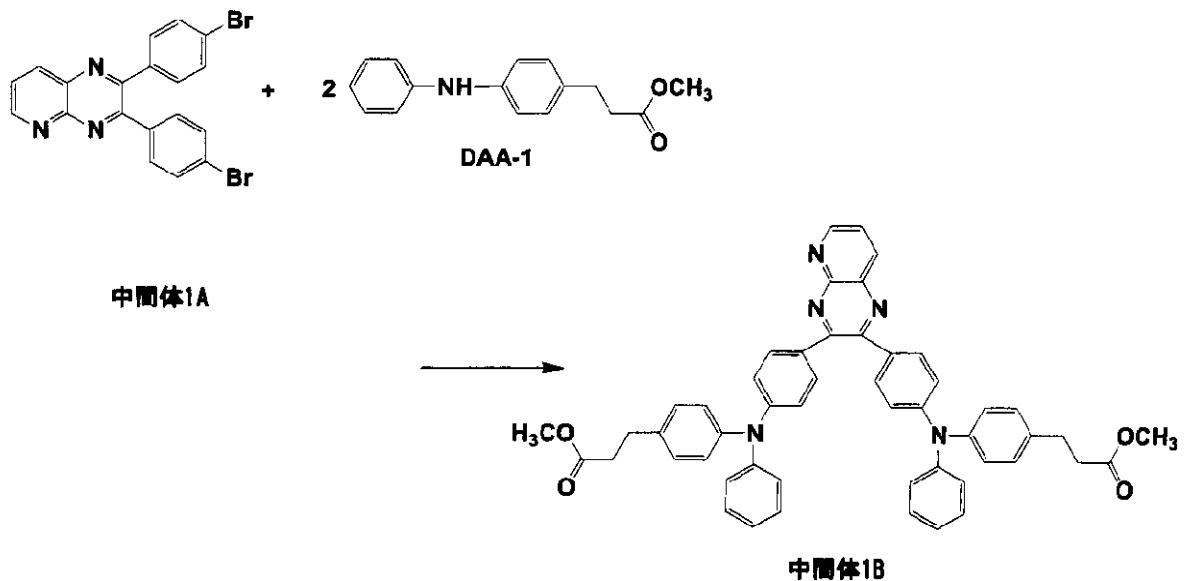
次に、温度計、コンデンサー、マグネチックスターラーを備えた 200 ml 三口フラスコに、前記 DAA - 1 (4.2 g)、前記中間体 1A (3.3 g)、酢酸パラジウム (11

) (84 mg)、炭酸ルビジウム(10.4 g)を入れ、キシレン50 mlに溶解させた。トリ-ターシャリ-ブチルホスフィン(600 mg)をすばやく加え、窒素雰囲気下6時間加熱還流し、マグネチックスターラーで撹拌した。

薄層クロマトグラフィー(TLC)(ヘキサン/酢エチル=1/1(体積比))にて、前記中間体1Aのスポットが消失しているのを確認後、25℃まで冷却した。セライト吸引濾過により無機物を除去した後、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(ヘキサン/酢エチル=1/1(体積比))を行い、得られた粗結晶をアセトン50 mlで洗浄した。更にトルエンとヘキサンの混合液(トルエン/ヘキサン1/1(体積比))から再結晶を行うことで精製した。次いで50℃で真空乾燥を15時間行い、下記中間体1Bを3.6 g、収率62%で得た。中間体1Bの融点は177℃以上179℃以下であった。

【0187】

【化43】



【0188】

次に、前記中間体1B(1.5 g)、エチレングリコール10 ml及びテトラブトキシタン0.02 gを50 mlの三口フラスコに入れ、窒素雰囲気下、200℃で5時間加熱撹拌した。

中間体1Bが消失したのを薄層クロマトグラフィー(TLC)により確認した後、50 Paに減圧してエチレングリコールを留去しながら210℃に加熱し、6時間反応を続けた。

その後、25℃まで冷却し、テトラヒドロフラン50 mlに溶解し、不溶物を0.5 μlのポリテトラフルオロエチレン(PTFE)フィルターにて濾過し、濾液を減圧下留去した後、モノクロロベンゼン300 mlに溶解させ、1 N-HCl 300 mlで1回、水500 mlで3回、の順に洗浄した。

モノクロロベンゼン溶液を30 mlまで減圧下留去して、酢酸エチルとメタノールの混合液800 ml(酢酸エチル/メタノール=1/3(体積比))中に滴下し、ポリマーを再沈殿させた。得られたポリマーを濾過し、メタノールで洗浄した後、60℃で16時間真空乾燥させ、0.9 gの具体例ポリマー(1)を得た。

【0189】

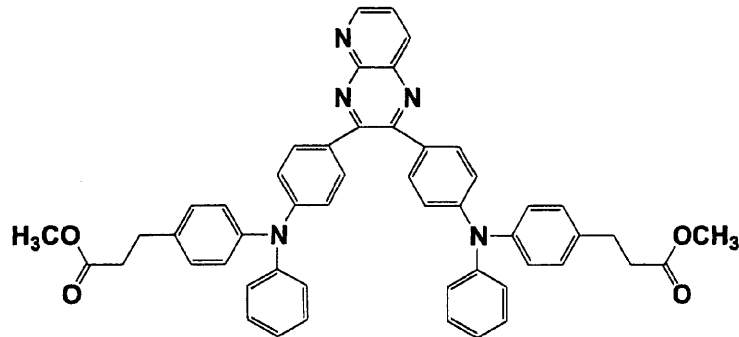
このポリマーの分子量を測定したところ、重量平均分子量 $MW = 5.4 \times 10^4$ (スチレン換算)、 $MW/Mn = 1.15$ であり、モノマーの分子量から求めた重合度 p は65であった。

上記重量平均分子量 MW はゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)(東ソ

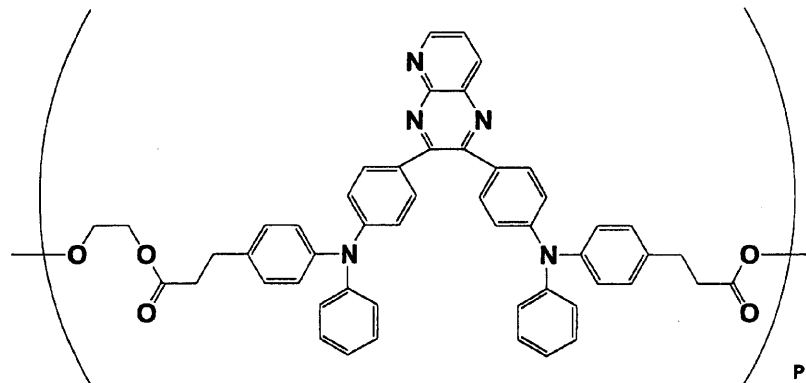
ー社製、HLC-8120GPC)にて測定した値であり、電荷輸送性ポリエステル 0.1 質量% THF 溶液を調製し、示差屈折率検出器(RI)を用い、標準サンプルとしてスチレンポリマーを用いた。以下、実施例において、分子量の測定方法は同様である。

【0190】

【化44】



中間体1B



具体例ポリマー (1)

【0191】

- 素子の作製 -

透明絶縁基板(25mm×25mm、厚み0.7mmの無アルカリガラス基板)上に形成されたITO(三容真空社製)を短冊状のフォトマスクを用いてフォトリソグラフィによりパターンニングし、さらにエッチング処理することにより短冊状のITO電極(幅2mm)を形成した。

次に、このITOガラス基板を中性洗剤、純水、アセトン(電子工業用、関東化学製)及びイソプロパノール(電子工業用、関東化学製)で超音波洗浄を各5分間行った後、スピコートで乾燥させた。

【0192】

一方で、前記具体例ポリマー(1)を5質量%モノクロロベンゼン溶液に調製し、 $0.1\mu\text{m}$ のPTFEフィルターで濾過し、正孔輸送層塗布液を調製した。

前記基板をこの正孔輸送層塗布液に浸漬し、ディップ法により厚さ $0.050\mu\text{m}$ の薄膜を形成し、正孔輸送層を形成した。

【0193】

この正孔輸送層の上に、発光材料として、前記具体例化合物(IV-1)を蒸着して、厚さ $0.055\mu\text{m}$ の発光層を形成した。

更に、この発光層の上に、続いて短冊状の穴が設けられている金属性マスクを用いて、最後にこのマスクを設置してMg-Ag合金を共蒸着により蒸着して、 2mm 幅、 $0.15\mu\text{m}$ 厚の背面電極をITO電極と交差するように形成した。

形成された有機電界発光素子の有効面積は 0.04cm^2 であった。

【 0 1 9 4 】

[実施例 2]

- 合成例 2 -

温度計、コンデンサー、マグネチックスターラーを備えた 100 ml 三口フラスコに 4 - フェニルアセトアニリド (4 . 0 g)、4 - ヨードフェニルプロピオン酸メチル (6 . 4 g)、炭酸カリウム (3 . 9 g)、硫酸銅 5 水和物 (0 . 4 0 g) を入れ、o - ジクロロベンゼン (2 0 ml) に溶解させた。窒素雰囲気下、185 で 13 時間加熱撹拌した。

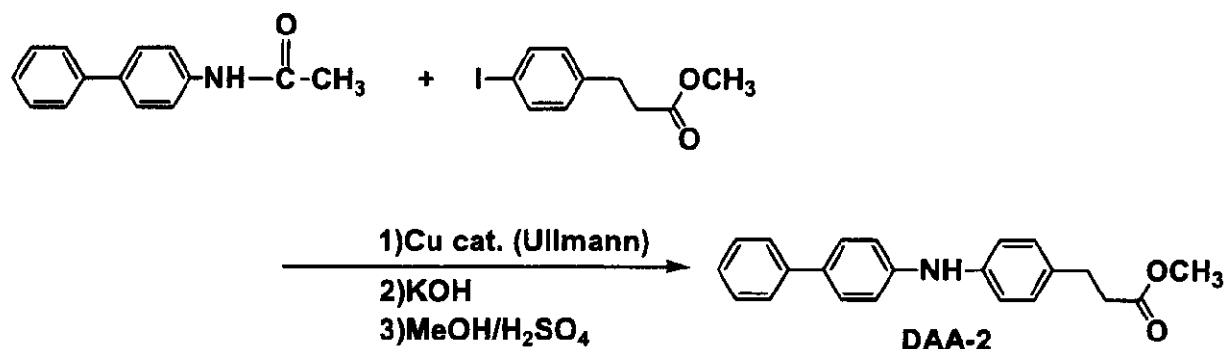
反応終了後、水酸化カリウム (1 . 3 g) をエチレングリコール (2 5 ml) に溶解したものを加え、窒素雰囲気下、5 時間加熱還流した。反応終了後、25 まで冷却し、これを水 (2 0 0 ml) に注ぎ、塩酸で中和して、結晶を析出させた。

析出した結晶を濾過により濾別し、水洗した後、1 L のフラスコに移した。これにトルエン (3 0 0 ml) を加えて、加熱還流し、水を共沸により除去した後、メタノール (1 0 0 ml)、濃硫酸 (0 . 5 ml) を加えて、窒素気流下で、3 時間加熱還流した。

反応終了後、蒸留水に注ぎ、トルエンで抽出した。トルエン層を蒸留水で洗浄し、次いで、無水硫酸ナトリウムで乾燥後、溶剤を減圧下留去し、酢酸エチルとヘキサンの混合液 (酢酸エチル / ヘキサン = 1 / 3 (体積比)) から再結晶することにより下記 DAA - 2 を 3 . 6 g 得た。

【 0 1 9 5 】

【 化 4 5 】



10

20

30

【 0 1 9 6 】

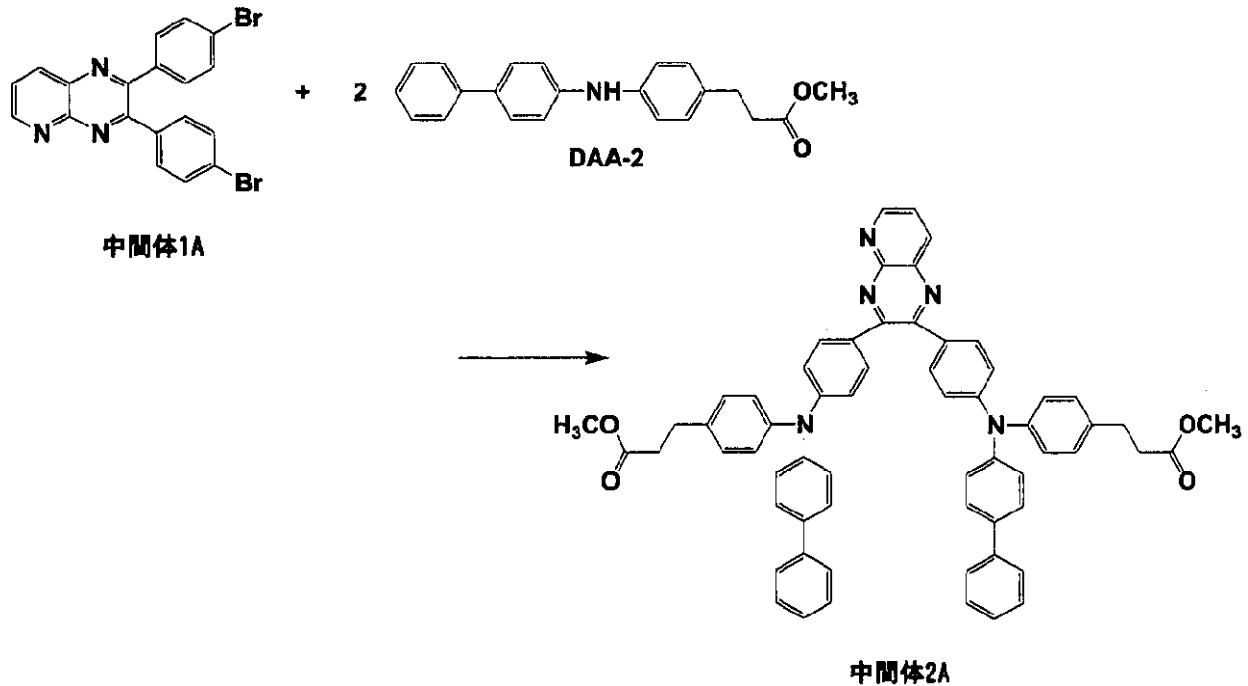
次に、温度計、コンデンサー、マグネチックスターラーを備えた 200 ml 三口フラスコに、前記 DAA - 2 (3 . 6 g)、前記中間体 1 A (2 . 2 g)、酢酸パラジウム (I I) (5 6 mg)、炭酸ルビジウム (6 . 9 g) を入れ、キシレン 5 0 ml に溶解させた。トリ - ターシャリ - ブチルホスフィン (4 0 0 mg) をすばやく加え、窒素雰囲気下 7 時間、加熱還流し、マグネチックスターラーで撹拌した。

薄層クロマトグラフィー (TLC) (ヘキサン / 酢エチル = 2 / 1 (体積比)) にて、前記中間体 1 A のスポットが消失しているのを確認後、25 まで冷却した。セライト吸引濾過により無機物を除去した後、シリカゲルカラムクロマトグラフィー (ヘキサン / 酢エチル = 2 / 1 (体積比)) を行い、さらに得られた粗結晶をアセトンとメタノールの混合溶液 (アセトン / メタノール = 1 / 5 (体積比)) 5 0 ml で洗い、再度シリカゲルカラムクロマトグラフィー (ヘキサン / トルエン = 1 / 1 (体積比)) を行うことで精製した。60 で真空乾燥を 15 時間行い、下記中間体 2 A を 2 . 8 g、収率 6 0 % で得た。

40

【 0 1 9 7 】

【化 4 6】



10

20

【 0 1 9 8】

1.2 g の中間体 2 A、エチレングリコール 10 ml 及びテトラブトキシチタン 0.02 g を 50 ml の三口フラスコに入れ、窒素雰囲気下、200℃ で 7 時間加熱撹拌した。原料が消失したのを薄層クロマトグラフィー (TLC) (酢酸エチル/ヘキサン = 1/2 (体積比)) により確認した後、50 Pa に減圧してエチレングリコールを留去しながら 200℃ に加熱し、6 時間反応を続けた。

その後、25℃ まで冷却し、テトラヒドロフラン 50 ml に溶解し、不溶物を 0.5 μl のポリテトラフルオロエチレン (PTFE) フィルターにて濾過し、濾液を減圧下留去した後、モノクロロベンゼン 400 ml に溶解させ、1 N - 塩酸 300 ml で 1 回、水 500 ml で 3 回、の順に洗浄した。

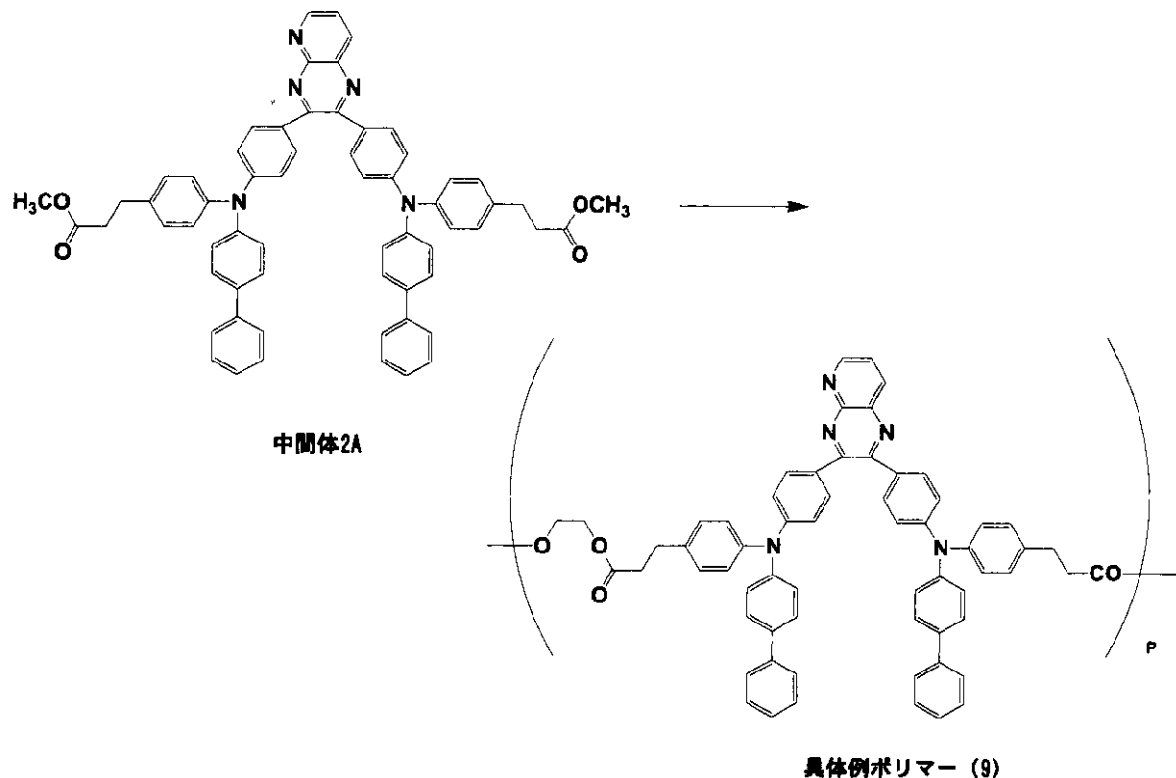
このモノクロロベンゼン溶液を 30 ml まで減圧下留去して、酢酸エチルとメタノールの混合液 (酢酸エチル/メタノール = 1/3 (体積比)) 800 ml 中に滴下し、ポリマーを再沈殿させた。

得られたポリマーを濾過し、メタノールで洗浄した後、60℃ で 16 時間真空乾燥させ、0.9 g の具体例ポリマー (9) を得た。この具体例ポリマー (9) の分子量を GPC ゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) にて測定したところ、重量平均分子量 M_w は 6.9×10^4 (スチレン換算)、 M_w / M_n は 1.22 であり、モノマーの分子量から求めた重合度 p は 71 であった。

【 0 1 9 9】

40

【化 4 7】



10

20

【0200】

- 素子の作製 -

前記具体例ポリマー(9) 1質量部、ポリ(N-ビニルカルバゾール) 4質量部、前記具体例化合物(IV-1)を含む、10質量%ジクロロエタン溶液を調製し、0.1 μmのPTFEフィルターで濾過した。

実施例1と同様の方法でガラス基板にエッチング及び洗浄を施して、2mm幅の短冊型ITO電極を準備し、このITO電極上に、上記塗布液をスピンコーター法により塗布し、膜厚0.15 μmの電荷輸送能を有する発光層を形成した。

この電荷輸送能を有する発光層を充分乾燥させた後、Mg-Ag合金を共蒸着により蒸着して、2mm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。

形成された有機電界発光素子の有効面積は0.04 cm²であった。

【0201】

(実施例3)

- 合成例3 -

温度計、コンデンサー、マグネチックスターラーを備えた300ml三口フラスコに、N-(4-ヨードフェニル)ピロ-ル(16g)、3-(4-アセトアミドフェニル)プロピオン酸メチル(14g)、炭酸カリウム(8.3g)、硫酸銅5水和物(1.3g)を入れ、o-ジクロロベンゼン(50ml)に溶解させた。窒素雰囲気下、180℃で24時間加熱撹拌した。

反応終了後、水酸化カリウム(4.5g)をエチレングリコール(100ml)に溶解したものを加え、窒素雰囲気下、4時間加熱還流した。反応終了後、25℃まで冷却し、これを水(300ml)に注ぎ、塩酸で中和して、結晶を析出させた。

これを濾過し、水洗した後、1Lのフラスコに移した。これにトルエン(300ml)を加えて、加熱還流し、水を共沸により除去した後、メタノール(400ml)、p-トルエンスルホン酸(1.0g)を加えて、窒素気流下で、4時間加熱還流した。

反応終了後、蒸留水1.0Lに注ぎ、トルエンで抽出した。トルエン層を蒸留水で洗浄

30

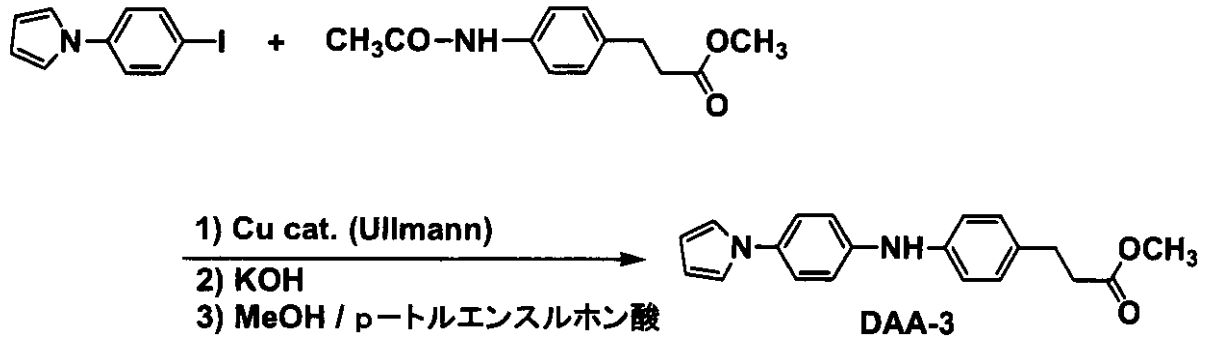
40

50

し、次いで、無水硫酸ナトリウムで乾燥後、溶剤を減圧下留去し、活性白土 10 g で処理した後、トルエンとヘキサンの混合液（トルエン / ヘキサン = 1 / 3（体積比））から再結晶することにより下記 DAA - 3 を 13 g 得た。

【0202】

【化48】



10

【0203】

次に、温度計、コンデンサー、マグネチックスターラーを備えた 300 ml 三口フラスコに、前記 DAA - 3（10 g）、前記中間体 1A（6.6 g）、酢酸パラジウム（II）（168 mg）、炭酸ルビジウム（20 g）を入れ、キシレン 100 ml に溶解させた。トリ - ターシャリ - ブチルホスフィン（1.2 g）をすばやく加え、窒素雰囲気下 7 時間、加熱還流し、マグネチックスターラーで撹拌した。

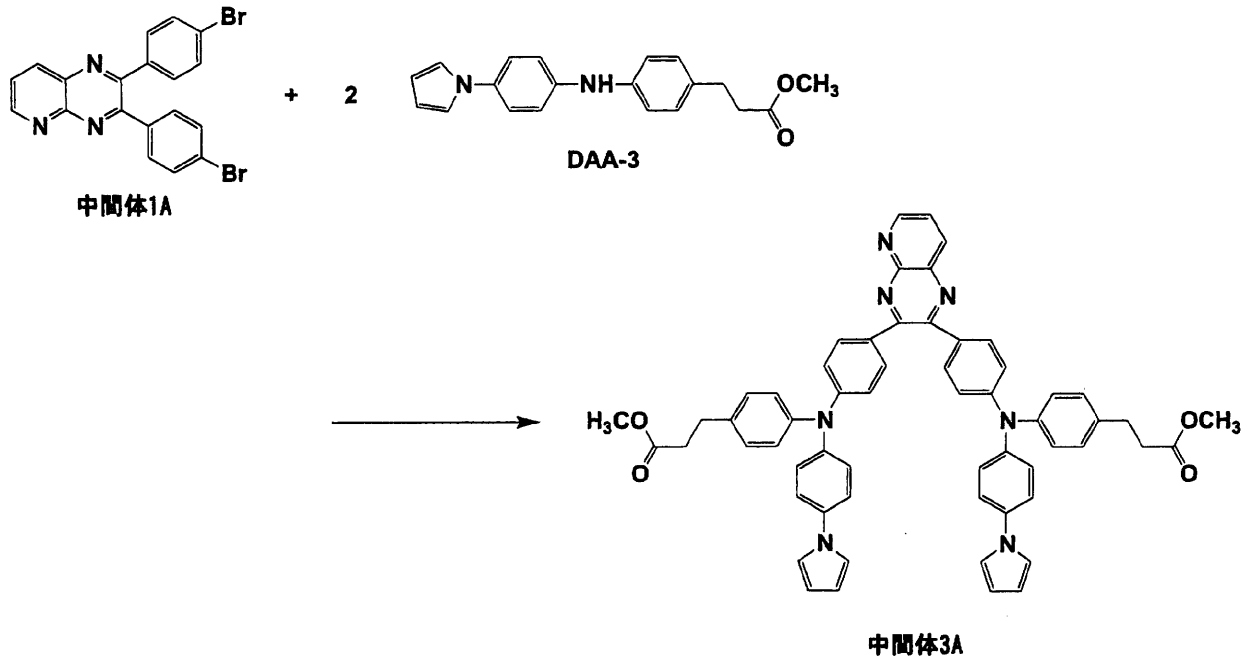
20

薄層クロマトグラフィー（TLC）（ヘキサン / 酢エチル = 2 / 1（体積比））にて、中間体 1A のスポットが消失しているのを確認後、25℃まで冷却した。セライト吸引濾過により無機物を除去した後、希塩酸 40 ml で 1 回、水 100 ml で 3 回、飽和食塩水 100 ml で 1 回の順に中性になるまで洗浄した。無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下、溶媒を留去して活性白土 10 g で処理を行うことで色成分たる不純物を除去し、ついでメタノール 200 ml で洗浄し、60℃で真空乾燥を 15 時間行い、下記中間体 3A を 9.6 g、収率 70% で得た。

30

【0204】

【化 4 9】



10

20

【 0 2 0 5】

前記中間体 3 A (1 . 1 g) を 5 0 m l の三口フラスコに入れ、窒素雰囲気下、ヘキシレングリコール (1 0 m l)、オルトチタン酸テトラブチルモノマー (1 0 m g) を加え、脱気後 2 0 0 で 5 時間反応を行なった。その後 4 0 P a の減圧下、2 3 0 で 5 時間加熱反応した。その後、2 5 まで冷却し、モノクロロベンゼン 5 0 m l に加熱溶解し、不溶物を 0 . 5 μ m の P T F E フィルターにて加圧濾過した。

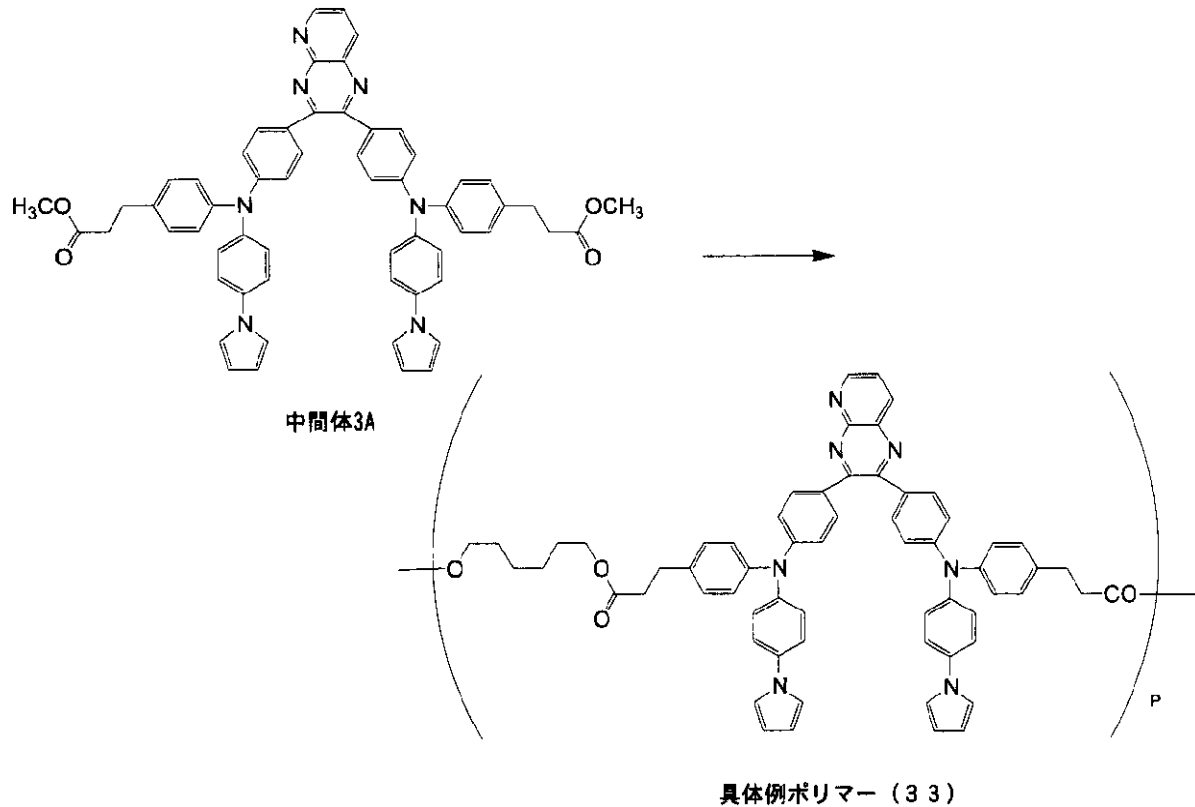
得られた濾液は、攪拌している酢酸エチルとメタノールの混合液 (酢酸エチル / メタノール = 1 / 5 (体積比)) 6 0 0 m l 中に滴下し、ポリマーを再沈殿させた。得られたポリマーを吸引濾過により濾取し、次いでメタノール 5 0 0 m l で洗浄した後、乾燥させ、0 . 9 g の具体例ポリマー (3 3) を得た。

30

この具体例ポリマー (3 3) の分子量を G P C ゲルパーミエーションクロマトグラフィー (G P C) にて測定したところ、重量平均分子量 M w は $7 . 6 \times 10^4$ (スチレン換算)、M w / M n は 1 . 3 5 であり、モノマーの分子量から求めた重合度 p は 7 3 であった。

【 0 2 0 6】

【化 5 0】



10

20

【0207】

- 素子の作製 -

実施例1同様にして、但し、具体例ポリマー(1)を具体例ポリマー(33)に代えて、厚さ0.050μmの正孔輸送層を形成した。

この正孔輸送層の上に、発光材料として、前記具体例化合物(IV-1)と前記例示化合物(V-1)((IV-1)/(V-1)=1/1(質量比))を蒸着して、厚さ0.065μmの発光層を形成した。

更に、この発光層の上に、前記具体例化合物(III-1)を蒸着して、厚さ0.030μmの電子輸送層を形成した。

更に、この電子輸送層の上に、Mg-Ag合金を共蒸着により蒸着して、2mm幅、0.15μm厚の背面電極をITO電極と交差するように形成した。形成された有機電界発光素子の有効面積は0.04cm²であった。

【0208】

[実施例4]

- 合成例4 -

温度計、コンデンサー、マグネチックスターラーを備えた500ml三口フラスコに、2,3-ジアミノ-4-メチルピリジン(6.0g)、4,4'-ジプロモベンジル(19g)を入れ、これをイソプロピルアルコール200mlに溶解させた。1時間加熱還流し、マグネチックスターラーで攪拌した。

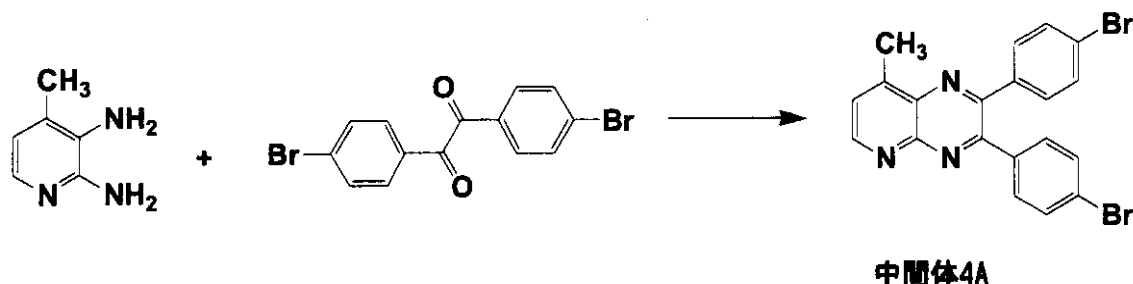
薄層クロマトグラフィー(TLC)(ヘキサン/酢エチル=2/1(体積比))にて2,3-ジアミノ-4-メチルピリジンのスポットが消失しているのを確認後、25℃まで冷却した。反応中に析出した結晶を吸引濾過により濾取した。さらにメタノール100mlで洗浄した後、60℃で真空乾燥を15時間行い、下記中間体4Aを18g得た。

【0209】

30

40

【化 5 1】



10

【0210】

温度計、コンデンサー、マグネチックスターラーを備えた100ml三口フラスコに、9,9-ジメチル-2-アセトアミドフルオレン(5.0g)、4-ヨードフェニルプロピオン酸メチル(6.0g)、炭酸カリウム(4.1g)、硫酸銅5水和物(0.41g)を入れ、o-ジクロロベンゼン(20ml)に溶解させた。窒素雰囲気下、185℃で13時間加熱撹拌した。

反応終了後、水酸化カリウム(1.5g)をエチレングリコール(30ml)に溶解したものを加え、窒素雰囲気下、5時間加熱還流した。反応終了後、25℃まで冷却し、これを水(200ml)に注ぎ、塩酸で中和して、結晶を析出させた。これを濾過し、水洗した後、1Lのフラスコに移した。

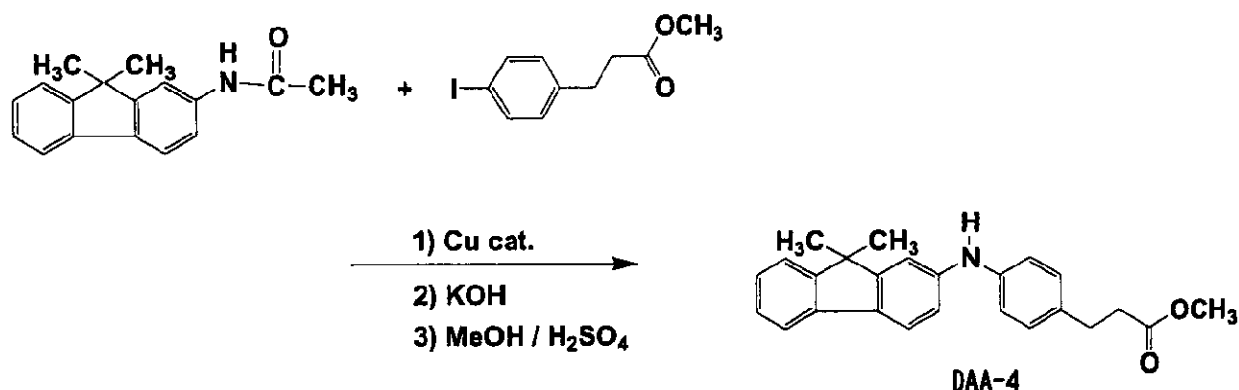
20

これにトルエン(300ml)を加えて、加熱還流し、水を共沸により除去した後、メタノール(100ml)、濃硫酸(0.5ml)を加えて、窒素気流下で、3時間加熱還流した。反応終了後、蒸留水に注ぎ、トルエンで抽出した。トルエン層を蒸留水で洗浄し、次いで、無水硫酸ナトリウムで乾燥後、溶剤を減圧下留去し、酢酸エチルとヘキサンの混合液(酢酸エチル/ヘキサン=1/2(体積比))から再結晶することによりDAA-4を5.0g得た。

【0211】

【化 5 2】

30



40

【0212】

次に、温度計、コンデンサー、マグネチックスターラーを備えた500ml三口フラスコに、前記DAA-4(8.0g)、前記中間体4A(4.5g)、酢酸パラジウム(II)(110mg)、炭酸ルビジウム(14g)を入れ、キシレン200mlに溶解させた。トリ-ターシャリ-ブチルホスフィン(800mg)をすばやく加え、窒素雰囲気下9時間加熱還流し、マグネチックスターラーで撹拌した。

薄層クロマトグラフィー(TLC)(ヘキサン/酢エチル=2/1(体積比))にて前

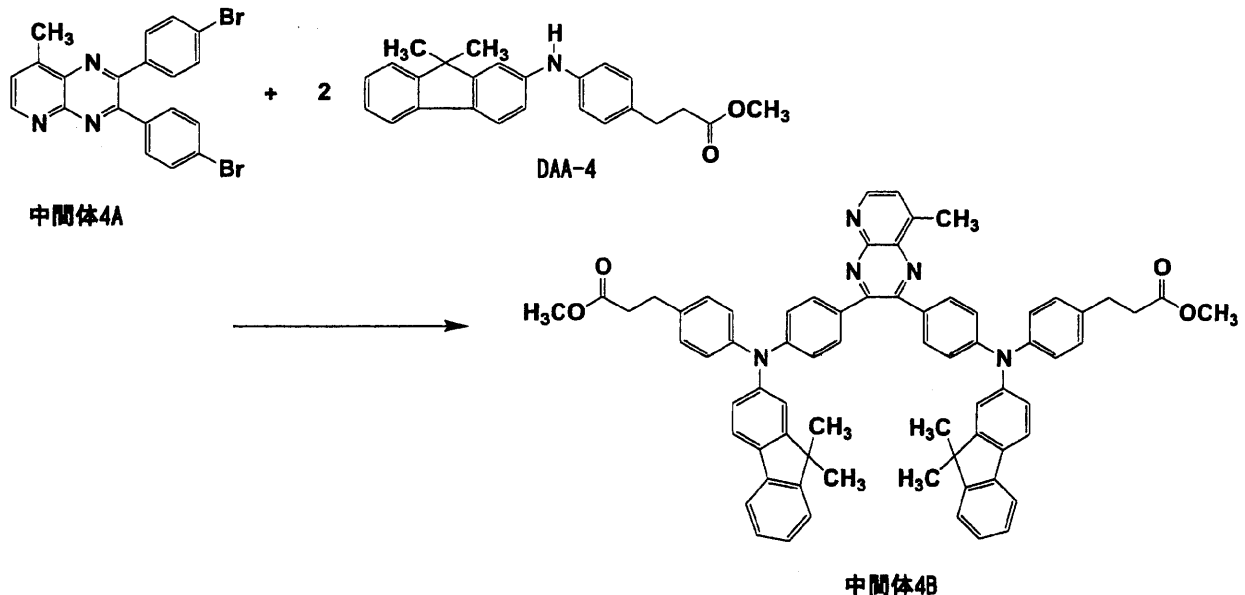
50

記中間体 4 A のスポットが消失しているのを確認後、25℃まで冷却した。セライト吸引濾過により無機物を除去した後、希塩酸 100 ml で 1 回、水 200 ml で 3 回、飽和食塩水 200 ml で 1 回、の順に中性になるまで洗浄した。

無水硫酸ナトリウムで乾燥後、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（ヘキサン / 酢エチル = 2 / 1（体積比））により精製を行い、次いで 60℃で真空乾燥を 15 時間行い、下記中間体 4 B を 6.0 g、収率 58% で得た。

【0213】

【化53】



【0214】

前記中間体 4 B（1.2 g）を 50 ml の三口フラスコに入れ、窒素雰囲気下ブチレングリコール（10 ml）、オルトチタン酸テトラブチルモノマー（10 mg）を加え、脱気後 200℃で 6 時間反応を行なった。その後 56 Pa の減圧下、230℃で 7 時間、加熱反応した。その後、25℃まで冷却し、モノクロロベンゼン 50 ml に加熱溶解し、不溶物を 0.5 μm の PTFE フィルターにて加圧濾過した。

得られた濾液を、攪拌している酢酸エチルとメタノールの混合液（酢酸エチル / メタノール = 1 / 3）800 ml 中に滴下し、ポリマーを再沈殿させた。得られたポリマーを吸引濾過により濾取し、次いでメタノール 500 ml で洗浄した後、乾燥させて、1.0 g の具体例ポリマー（72）を得た。

得られた具体例ポリマー（72）の分子量を GPC ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）にて測定したところ、重量平均分子量 Mw は 1.1×10^5 （スチレン換算）、Mw / Mn は 1.44 であり、モノマーの分子量から求めた重合度 p は 98 であった。

【0215】

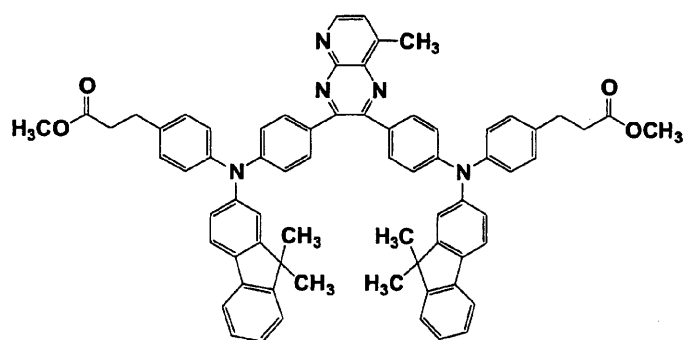
10

20

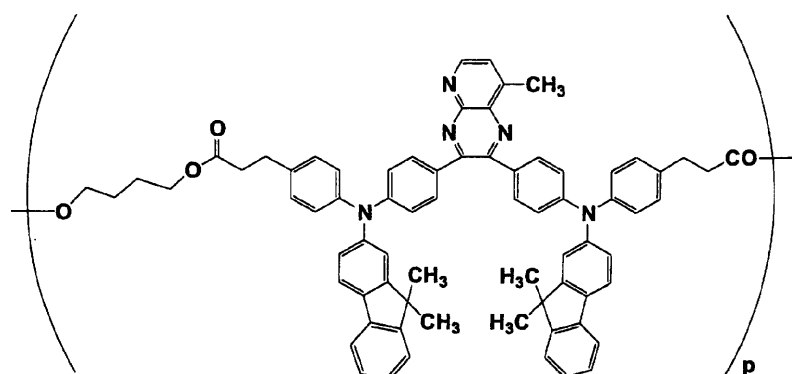
30

40

【化 5 4】



中間体4B



具体例ポリマー (72)

10

20

【0216】

- 素子の作製 -

前記具体例ポリマー(72)を含む1.5質量%ジクロロエタン溶液を調製し、0.1 μm のPTFEフィルターで濾過した。

実施例1と同様の方法でガラス基板にエッチング及び洗浄を施して、2mm幅の短冊型ITO電極を準備し、このITO電極上に、上記塗布液をインクジェット法により膜厚0.05 μm の電荷輸送能を有する発光層(正孔輸送能及び電子輸送能を有する発光層)を形成した。

30

この電荷輸送能を有する発光層の上に、2mm幅でLiF0.005 μm 厚、Al0.15 μm 厚の背面電極をITO電極と交差するように形成した。

形成された有機電界発光素子の有効面積は0.04 cm^2 であった。

【0217】

[実施例 5]

- 合成例 5 -

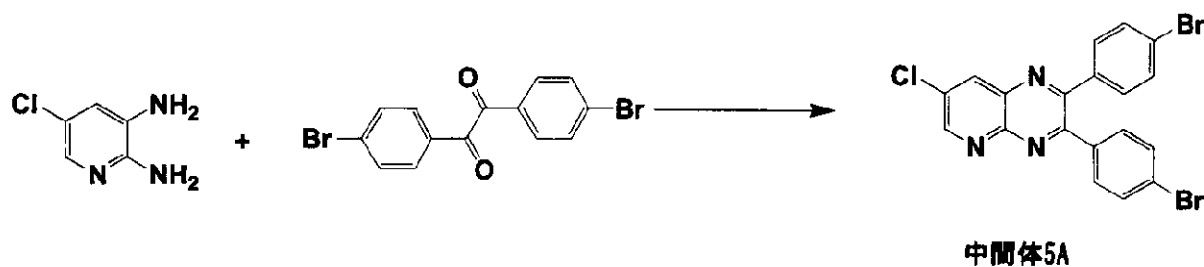
温度計、コンデンサー、マグネチックスターラーを備えた500ml三口フラスコに、2,3-ジアミノ-5-クロロピリジン(7.1g)、4,4'-ジプロモベンジル(19g)を入れ、これをイソプロピルアルコール200mlに溶解させた。1時間加熱還流磁気攪拌した。

40

薄層クロマトグラフィー(TLC)(ヘキサン/酢エチル=2/1(体積比))にて2,3-ジアミノ-5-クロロピリジンのスポットが消失しているのを確認後、25℃まで冷却した。反応中に析出した結晶を吸引濾過により濾取した。さらにメタノール100mlで洗浄した後、60℃で真空乾燥を15時間行い、前記中間体5Aを20g得た。

【0218】

【化 5 5】



10

【0219】

温度計、コンデンサー、マグネチックスターラーを備えた100ml三口フラスコに、下記原料1(5.0g)、4-アセトアミドフェニルプロピオン酸メチル(6.0g)、炭酸カリウム(4.1g)、硫酸銅5水和物(0.41g)を入れ、o-ジクロロベンゼン(20ml)に溶解させた。窒素雰囲気下、185℃で13時間加熱撹拌した。

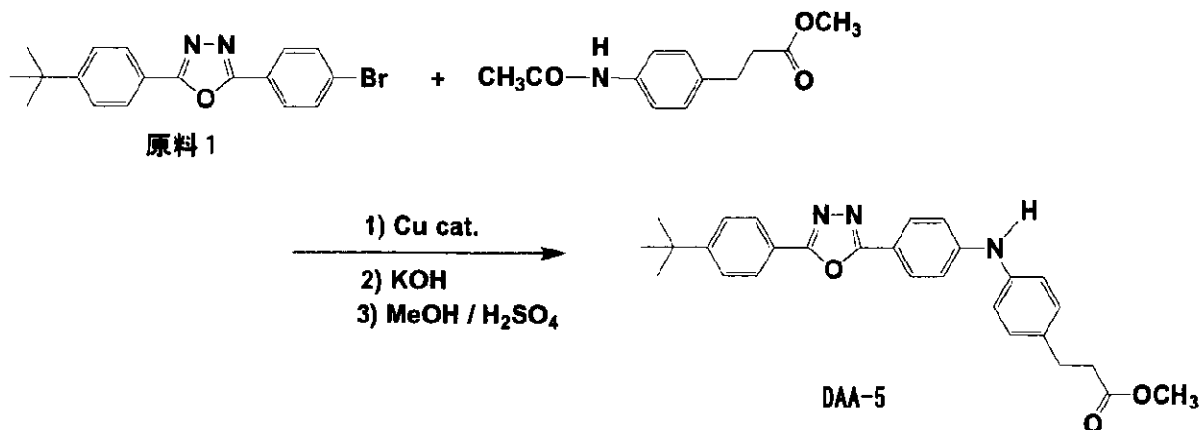
反応終了後、水酸化カリウム(1.5g)をエチレングリコール(30ml)に溶解したものを加え、窒素雰囲気下、5時間加熱還流した。反応終了後、25℃まで冷却し、これを水(200ml)に注ぎ、塩酸で中和して、結晶を析出させた。これを濾過し、水洗した後、1Lのフラスコに移した。これにトルエン(300ml)を加えて、加熱還流し、水を共沸により除去した後、メタノール(100ml)、濃硫酸(0.5ml)を加えて、窒素気流下で、3時間加熱還流した。

20

反応終了後、蒸留水に注ぎ、トルエンで抽出した。トルエン層を蒸留水で洗浄し、次いで、無水硫酸ナトリウムで乾燥後、溶剤を減圧下留去し、酢酸エチルとヘキサン(酢酸エチル/ヘキサン=1/4(体積比))から再結晶することによりDAA-5を5.0g得た。

【0220】

【化 5 6】



30

40

【0221】

次に、温度計、コンデンサー、マグネチックスターラーを備えた500ml三口フラスコに、前記DAA-5(10g)、前記中間体5A(4.7g)、酢酸パラジウム(II)(110mg)、炭酸ルビジウム(14g)を入れ、キシレン200mlに溶解させた。トリ-ターシャリ-ブチルホスフィン(800mg)をすばやく加え、窒素雰囲気下9時間加熱還流し、マグネチックスターラーで撹拌した。

薄層クロマトグラフィー(TLC)(ヘキサン/酢エチル=2/1(体積比))にて、中間体5Aのスポットが消失しているのを確認後、25℃まで冷却した。セライト吸引濾過により無機物を除去した後、希塩酸100mlで1回、水200mlで3回、飽和食塩

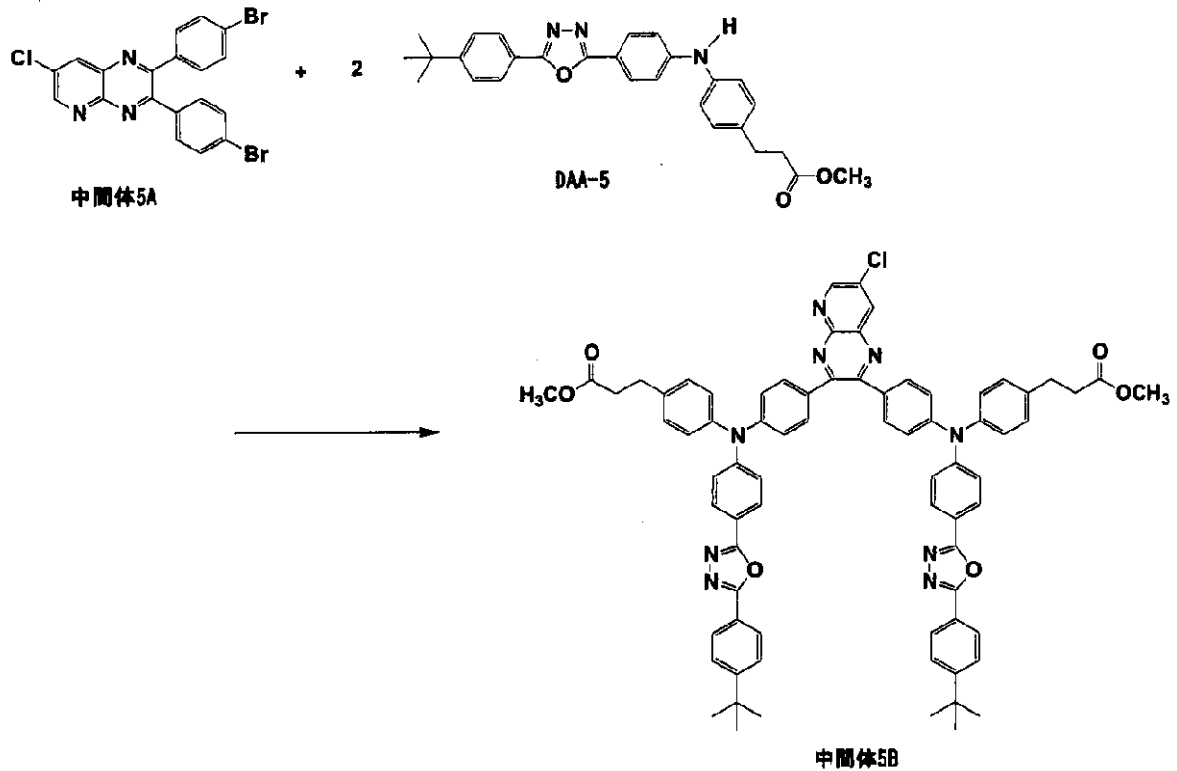
50

水 200 ml で 1 回、の順に中性になるまで洗浄した。

無水硫酸ナトリウムで乾燥後、アルミナカラムクロマトグラフィ - により精製を行い、次いで 60 で真空乾燥を 15 時間行い、下記中間体 5 B を 6.0 g、収率 50 % で得た。

【 0 2 2 2 】

【 化 5 7 】



10

20

【 0 2 2 3 】

前記中間体 5 B (1.2 g) を 50 ml の三口フラスコに入れ、窒素雰囲気下オクチレングリコール (10 ml)、オルトチタン酸テトラブチルモノマー (10 mg) を加え、脱気後 200 で 6 時間反応を行なった。その後 56 Pa の減圧下、230 で 7 時間加熱反応した。その後、25 まで冷却し、モノクロロベンゼン 50 ml に加熱溶解し、不溶物を 0.5 μm の PTFE フィルターにて加圧濾過した。

30

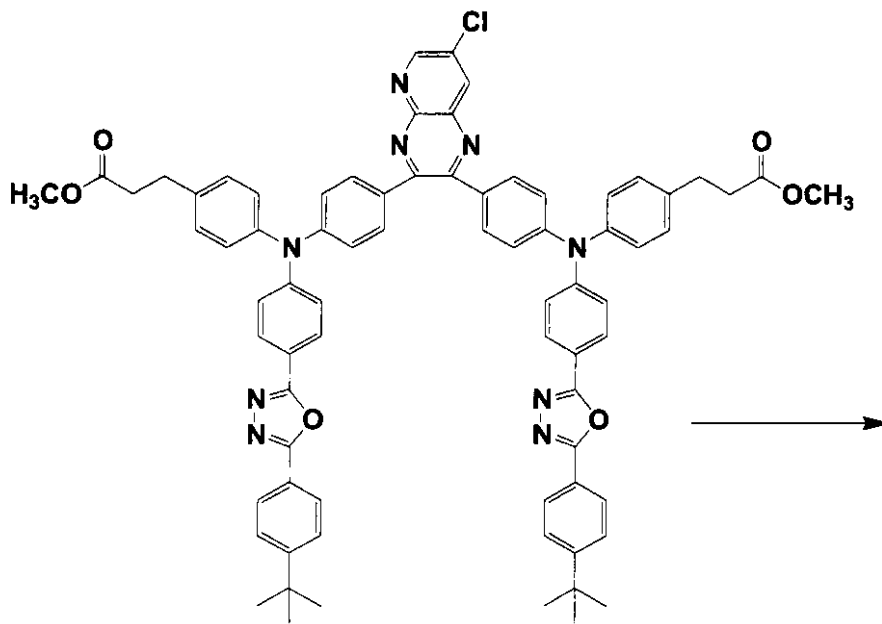
得られた濾液を、攪拌している酢酸エチルとメタノールの混合液 (酢酸エチル / メタノール = 1 / 4 (体積比)) 500 ml 中に滴下し、ポリマーを再沈殿させた。得られたポリマーを吸引濾過により濾取、次いでメタノール 500 ml で洗浄した後、乾燥させ、1.0 g の具体例ポリマー (83) を得た。

得られた具体例ポリマー (83) の分子量を GPC ゲルパーミエーションクロマトグラフィ (GPC) にて測定したところ、重量平均分子量 Mw は 1.3×10^5 (スチレン換算)、Mw / Mn は 1.68 であり、モノマーの分子量から求めた重合度 p は 94 であった。

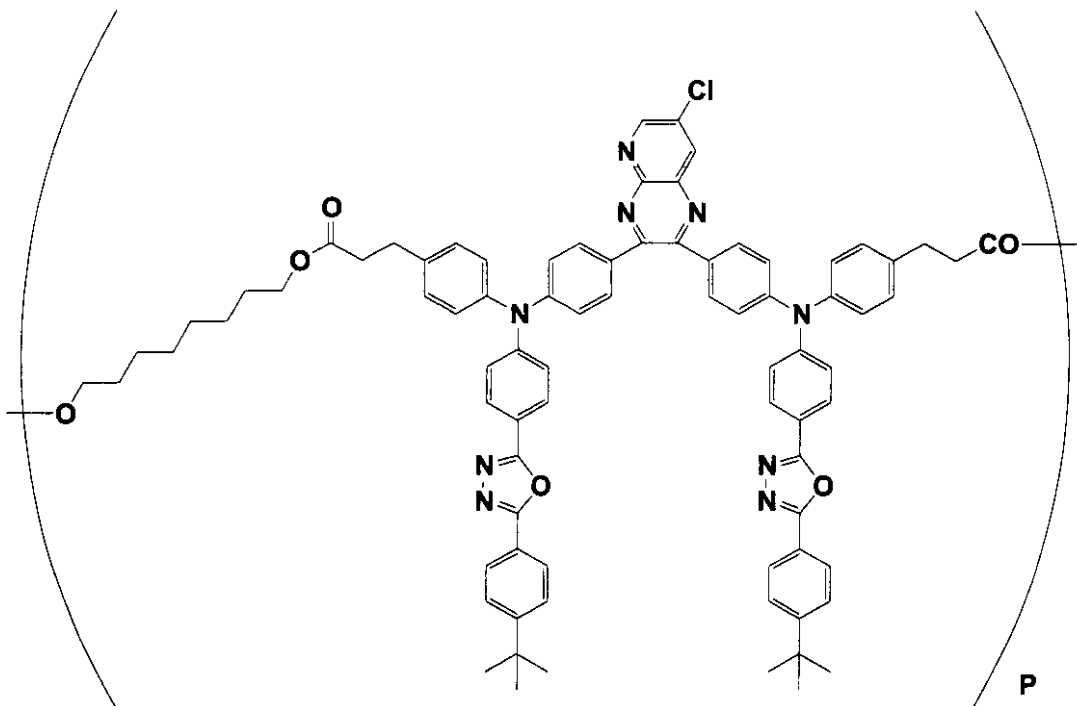
40

【 0 2 2 4 】

【化 5 8】



中間体5B



具体例ポリマー（83）

【0225】

- 素子の作製 -

実施例1と同様の方法でガラス基板にエッチング及び洗浄を施したITOガラス基板上に、前記具体例化合物（IV-1）を膜厚0.05μmで蒸着し、発光層を形成した。

一方で、具体例ポリマー（83）を含む1.5質量%ジクロロエタン溶液を調製し、0.1μmのPTFEフィルターで濾過した。この溶液を前記発光層の上にインクジェット

10

20

30

40

50

法により膜厚 0.05 μm で付与し、電子輸送能を有する発光層を形成した。

続いて、電子輸送能を有する発光層の上に、2 mm 幅で LiF を 0.005 μm 厚、Al を 0.15 μm 厚で蒸着し、背面電極を ITO 電極と交差するように形成した。

形成された有機電界発光素子の有効面積は 0.04 cm^2 であった。

【0226】

[実施例6]

- 合成例6 -

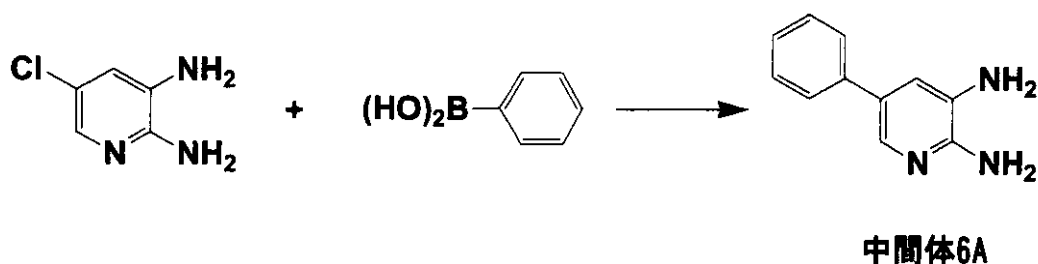
窒素雰囲気下、温度計、コンデンサー、攪拌モーターを備えた 500 ml 三口フラスコに、[1,1-ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン]ニッケル(II)ジクロリド(342 mg)、ブチルリチウム(12.8 g)、ジオキサン 100 ml を加え攪拌した。続いて、2,3-ジアミノ-5-クロロピリジン(7.1 g)を加えた。続いて 2 M リン酸カリウム水溶液(50 ml)、あらかじめ用意したフェニルボロン酸(6.6 g)をジオキサン 20 ml に溶解した溶液、の順に加えた。

4 時間窒素雰囲気下で還流後、25 まで冷却して、この水溶液を酢酸エチル 200 ml で抽出し、酢酸エチル層を純水 300 ml で 3 回、飽和食塩水 300 ml で 1 回洗浄した。硫酸ナトリウムで乾燥後、濾過して減圧下溶剤を留去し、析出した結晶をヘキサン 100 ml で煮洗した。

得られた粗結晶をエタノールから再結晶して 2,3-ジアミノ-4-フェニルピリジンである下記中間体 6A を 8.0 g (収率 87%) 得た。

【0227】

【化59】



【0228】

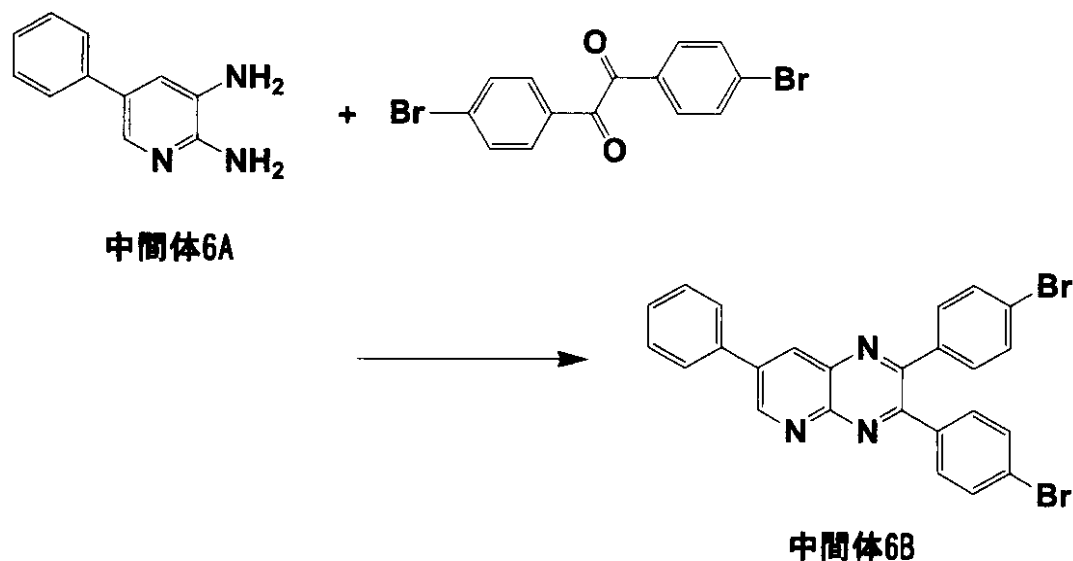
温度計、コンデンサー、マグネチックスターラーを備えた 300 ml 三口フラスコに、2,3-ジアミノ-5-フェニルピリジン(前記中間体 6A)(9.2 g)、4,4'-ジプロモベンジル(19 g)を入れ、これをイソプロピルアルコール 200 ml に溶解させた。3 時間加熱還流し、マグネチックスターラーで攪拌した。

薄層クロマトグラフィー(TLC)(ヘキサン/酢エチル=2/1(体積比))にて 2,3-ジアミノ-5-フェニルピリジンのスポットが消失しているのを確認後、25 まで冷却した。

反応により析出した結晶を吸引濾過により濾取した。さらにメタノール 100 ml で洗浄した後、40 で真空乾燥を 15 時間行い、下記中間体 6B を 20 g 得た。

【0229】

【化 6 0】



10

【 0 2 3 0】

20

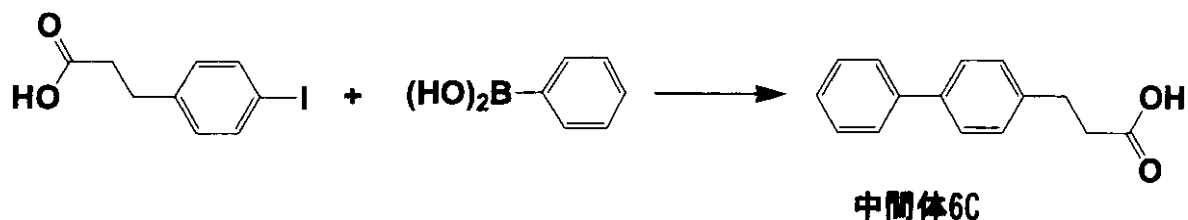
窒素雰囲気下、温度計、コンデンサー、攪拌モーターを備えた500ml三口フラスコに、テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム(0)(1.73g)、テトラヒドロフラン(THF)200mlを加え攪拌した。そこへ、予め用意した3-(4-ヨードフェニル)プロピオン酸(13.8g)/1N水酸化ナトリウム水溶液(50ml)のカルボン酸ナトリウム水溶液を加えた。更に、2M炭酸ナトリウム水溶液(50ml)、予め用意したフェニルボロン酸(6.7g)をテトラヒドロフラン(THF)30mlに溶解した溶液、の順に加えた。

4時間窒素雰囲気下で還流した後、25℃まで冷却して塩酸50mlを加えpH=1とした。この水溶液を酢酸エチル300mlで抽出し、酢酸エチル層を純水400mlで3回、飽和食塩水400mlで1回洗浄した。硫酸ナトリウムで乾燥後、濾過して減圧下溶剤を留去し、析出した結晶をヘキサン300mlで煮洗いした。得られた粗結晶をジイソプロピルエーテルから再結晶して3-(4-ビフェニル)プロピオン酸である下記中間体6Cを7.9g(収率70%)得た。

30

【 0 2 3 1】

【化 6 1】



40

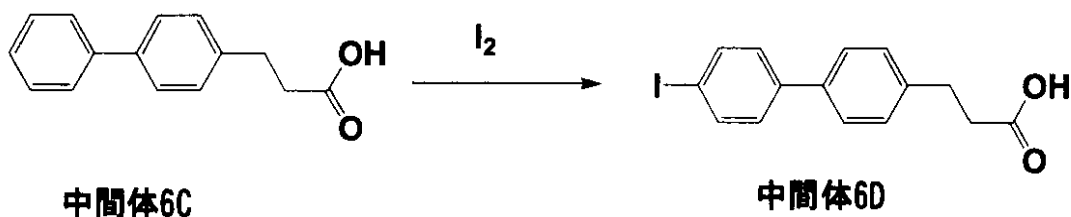
【 0 2 3 2】

続いて、前記中間体6C(11.3g)、ヨウ素(11.0g)、過ヨウ素酸・2水和物(4.8g)を300ml三口フラスコに入れ、硫酸2mlと酢酸80mlと水15mlの混合液を加えた。80℃で2時間攪拌後、1Lビーカー中の純水500mlへ注いだ。沈殿した結晶を吸引濾過により濾取した。10質量%チオ硫酸ナトリウム水溶液500mlで2回洗浄して、さらに純水で中性まで洗浄した。40℃で15時間真空乾燥して中間体6Dを15g得た。

50

【 0 2 3 3 】

【 化 6 2 】



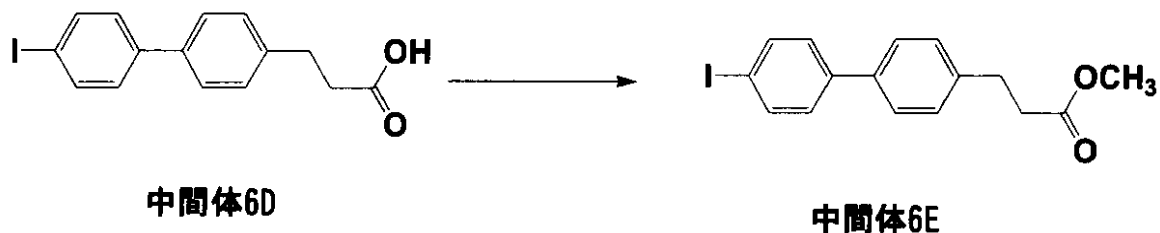
10

【 0 2 3 4 】

得られた結晶を 300 ml 三口フラスコに入れ、トルエン 100 ml を加えた。メタノール 20 ml と硫酸 2 ml との混合液を加え、1 時間還流撹拌した。メタノールを除水管から留去した後、純水 500 ml を加え分液した。トルエン層を純水で中性になるまで洗浄した後、硫酸ナトリウムで乾燥した。乾燥後、トルエンを減圧下留去し、無色結晶を得た。得られた結晶をトルエンとヘキサン混合液（トルエン / ヘキサン = 1 / 3（体積比））から再結晶して、下記中間体 6 E を 14 g で得た。

【 0 2 3 5 】

【 化 6 3 】



20

【 0 2 3 6 】

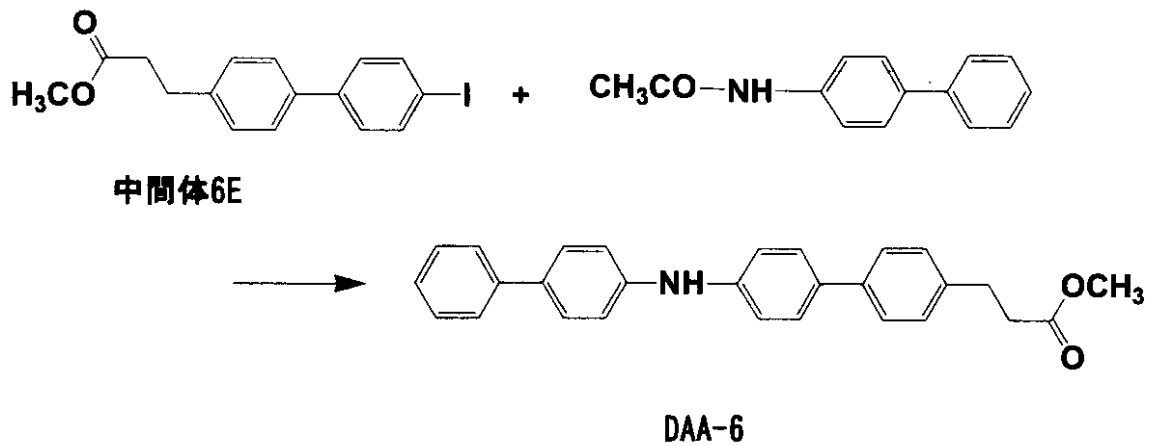
温度計、コンデンサー、マグネチックスターラーを備えた 300 ml 三口フラスコに、4 - フェニルアセトアニリド（10 g）、前記中間体 6 E（18 g）、炭酸カリウム（11 g）、硫酸銅 5 水和物（2.0 g）を入れ、o - ジクロロベンゼン（40 ml）に溶解させた。窒素雰囲気下、185 で 12 時間加熱撹拌した。反応終了後、水酸化カリウム（4.2 g）をエチレングリコール（30 ml）に溶解したものを加え、窒素雰囲気下、180 で 5 時間加熱撹拌した。反応終了後、25 まで冷却し、これを水（200 ml）に注ぎ、塩酸で中和して、結晶を析出させた。これを濾過し、水洗した後、1 L のフラスコに移した。これにトルエン（300 ml）を加えて、加熱還流し、水を共沸により除去した後、メタノール（100 ml）、濃硫酸（0.5 ml）を加えて、窒素気流下で、3 時間加熱還流した。反応終了後、蒸留水にあげ、トルエン抽出後した。トルエン層を蒸留水で洗浄し、次いで、無水硫酸ナトリウムで乾燥後、溶剤を減圧下留去して、次いで酢酸エチル / ヘキサン混合液から再結晶することにより下記 D A A - 6 を 11 g 得た。

30

40

【 0 2 3 7 】

【化 6 4】



10

【 0 2 3 8】

次に、温度計、コンデンサー、マグネチックスターラーを備えた 500 ml 三口フラスコに、前記 DAA-6 (10 g)、前記中間体 6 B (4.7 g)、酢酸パラジウム(II) (110 mg)、炭酸ルビジウム (14 g) を入れ、キシレン 200 ml に溶解させた。トリ-ターシャリ-ブチルホスフィン (800 mg) をすばやく加え、窒素雰囲気下 9 時間、加熱還流し、マグネチックスターラーで撹拌した。

20

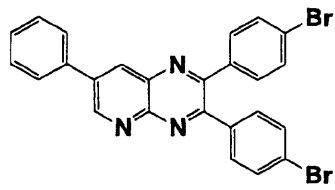
薄層クロマトグラフィー (TLC) (ヘキサン/酢エチル = 2/1 (体積比)) にて、中間体 6 A のスポットが消失しているのを確認後、25℃ まで冷却した。セライト吸引濾過により無機物を除去した後、希塩酸 100 ml で 1 回、水 200 ml で 3 回、飽和食塩水 200 ml で 1 回、の順に中性になるまで洗浄した。

無水硫酸ナトリウムで乾燥後、アルミナカラムクロマトグラフィーにより精製を行い、次いで 60℃ で真空乾燥を 15 時間行い、下記中間体 6 F を 6.0 g、収率 50% で得た。

【 0 2 3 9】

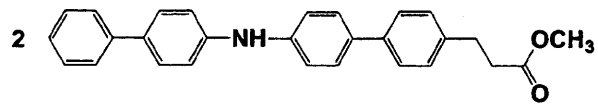
30

【化 6 5】

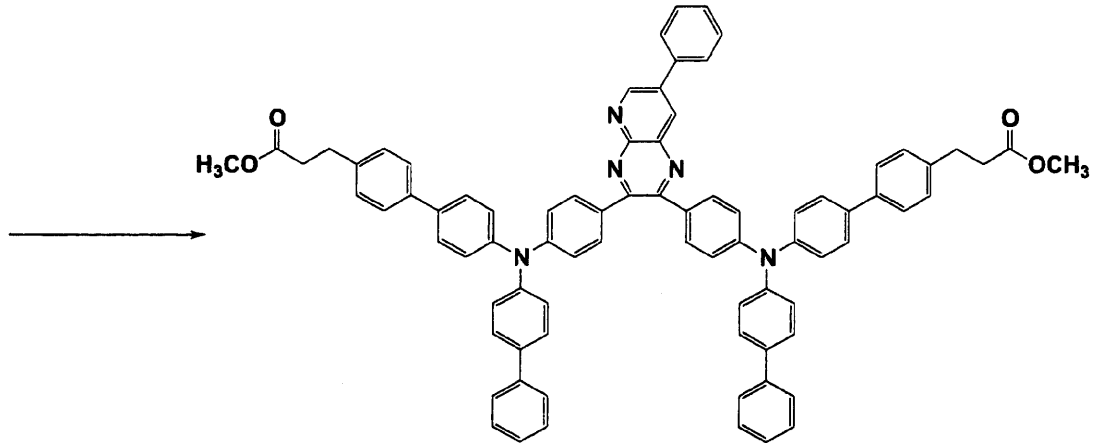


中間体6B

+



DAA-6



中間体6F

10

20

【 0 2 4 0】

この中間体 6 F (1 . 2 g) を 5 0 m l の三口フラスコに入れ、窒素雰囲気下オクチレングリコール (1 0 m l)、オルトチタン酸テトラブチルモノマー (1 0 m g) を加え、脱気後 2 0 0 で 6 時間反応を行なった。その後 5 2 P a の減圧下、2 3 0 で 7 時間加熱反応した。その後、2 5 まで冷却し、モノクロロベンゼン 5 0 m l に加熱溶解し、不溶物を 0 . 5 μ m の P T F E フィルターにて加圧濾過した。

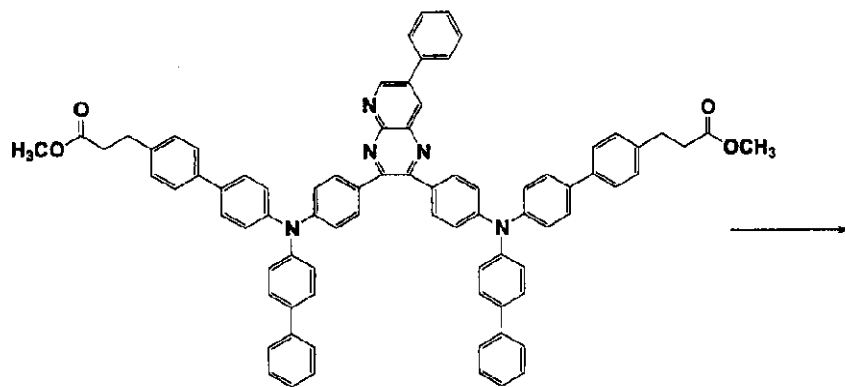
30

得られた濾液を、攪拌している酢酸エチルとメタノールの混合液 (酢酸エチル / メタノール = 1 / 3 (体積比)) 7 0 0 m l 中に滴下し、ポリマーを再沈殿させた。得られたポリマーを吸引濾過により濾取、次いでメタノール 5 0 0 m l で洗浄した後、乾燥させ、0 . 9 g の具体例ポリマー (2 5) を得た。

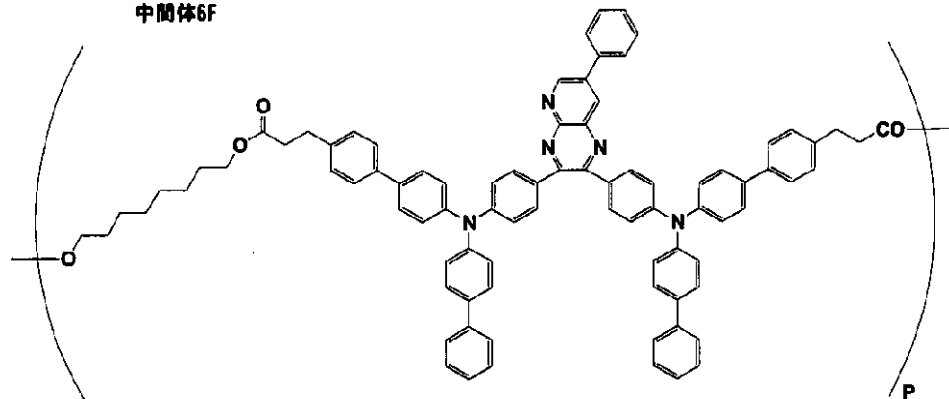
この具体例ポリマー (2 5) の分子量を G P C ゲルパーミエーションクロマトグラフィー (G P C) にて測定したところ、重量平均分子量 M w は $1 . 2 \times 10^5$ (スチレン換算)、M w / M n は 1 . 3 7 であり、モノマーの分子量から求めた重合度 p は 9 1 であった。

【 0 2 4 1】

【化 6 6】



中間体6F



具体例ポリマー (25)

【0242】

- 素子の作製 -

実施例 1 と同様の方法でガラス基板にエッチング及び洗浄を施した ITO ガラス基板上に、具体例ポリマー (25) をスピンコート法によって付与し、厚さ $0.050\ \mu\text{m}$ の電子輸送能を有する発光層を形成した

電子輸送能を有する発光層の上に、前記具体例化合物 (III-1) を蒸着し、厚さ $0.030\ \mu\text{m}$ の電子輸送層を形成した。

続いて電子輸送層の上に、 $2\ \text{mm}$ 幅で Ca を $0.010\ \mu\text{m}$ 厚、Al を $0.15\ \mu\text{m}$ 厚で蒸着して背面電極を ITO 電極と交差するように形成した。

形成された有機電界発光素子の有効面積は $0.04\ \text{cm}^2$ であった。

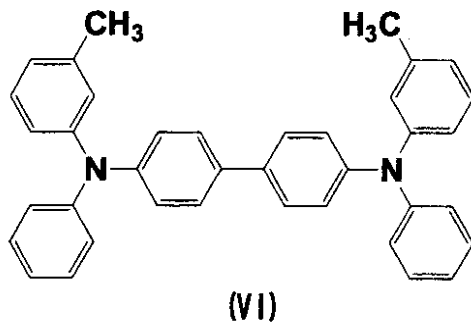
【0243】

[比較例 1]

上記実施例 1 で用いた具体例ポリマー (1) の代わりに、下記構造式 (VI) で表される化合物 (TPD) を用いた他は実施例 1 と同様にして、有機電界発光素子を作製した。

【0244】

【化 6 7】



10

【 0 2 4 5】

[比較例 2]

電荷輸送性ポリマーとしてポリビニルカルバゾール (P V K) 2 質量部、発光材料として前記例示化合物 (IV - 1) を 0 . 1 質量部、電子輸送材料として前記化合物 (III - 1) を 1 質量部含む、10 質量 % ジクロロエタン溶液を調製し、0 . 1 μ m の P T F E フィルターで濾過した。

実施例 1 と同様の方法でガラス基板にエッチング及び洗浄を施した I T O ガラス基板を、上記溶液中に浸漬しディップ法によって膜厚 0 . 1 5 μ m の電荷輸送能を有する発光層を形成した。

20

前記正孔輸送層を充分乾燥させた後、M g - A g 合金を共蒸着により蒸着して、2 m m 幅、0 . 1 5 μ m 厚の背面電極を I T O 電極と交差するように形成した。

形成された有機電界発光素子の有効面積は 0 . 0 4 c m ² であった。

【 0 2 4 6】

< 発光特性及び寿命の評価 >

以上のように作製した有機電界発光素子を、乾燥窒素中で接着剤によりガラスで封止し、I T O 電極側をプラス、他方の背面電極をマイナスとして測定を行なった。

【 0 2 4 7】

発光特性は、直流駆動方式 (D C 駆動) で初期輝度を 4 0 0 c d / m ² としたときの駆動電流密度により比較を行った。結果を表 1 に示す。

30

また、発光寿命の評価は、2 5 において、比較例 1 の素子の輝度 (初期輝度 L_0 : 4 0 0 c d / m ²) が輝度 L / 初期輝度 $L_0 = 0 . 5$ となった時点の駆動時間を 1 . 0 とした場合の相対時間、及び、素子の輝度が輝度 L / 初期輝度 $L_0 = 0 . 5$ となった時点での電圧上昇分 (= 電圧 / 初期駆動電圧) により評価した。結果を表 1 に示す。

【 0 2 4 8】

また、以上のように作製した有機電界発光素子を、真空中 ($1 . 3 3 \times 1 0^{-1}$ P a) で I T O 電極側をプラス、背面電極側をマイナスとして 5 V の直流電圧を印加し、発光について測定を行い、このときの発光色を評価した。結果を表 1 に示す。

40

【 0 2 4 9】

【表 1】

	発光色	駆動電流密度 (mA/cm ²)	電圧上昇 (L/L ₀ =0.5)	相対時間 (L/L ₀ =0.5)
実施例1	黄	14.7	1.16	1.55
実施例2	黄	15.8	1.08	1.67
実施例3	黄	17.1	1.06	1.80
実施例4	黄	15.1	1.20	1.36
実施例5	黄	16.6	1.14	1.45
実施例6	黄	17.3	1.07	1.89
比較例1	緑	14.6	1.32	1.00
比較例2	緑	15.7	1.25	1.08

10

20

【0250】

表1から、本実施例の有機電界発光素子は、比較例1、2に比べ発光効率が高く、電圧上昇が抑えられ、素子寿命が長いことがわかる。

【0251】

<イオン化ポテンシャル、電荷移動度、ガラス転移温度の評価>

本実施例において合成した電荷輸送性ポリエステル、及び比較例で用いたTPD及びポリビニルカルバゾールのイオン化ポテンシャル(IP)を測定した。イオン化ポテンシャルは、大気雰囲気型紫外線光電子分光装置(理研計器社製、AC-2)により光電子放出特性を測定し、その立ち上がりの照射光エネルギーから求めた。結果を表2に示す。

30

【0252】

また、本実施例において合成した電荷輸送性ポリエステル、及び比較例で用いたTPD及びポリビニルカルバゾールの電荷移動度を、Time of Flight法(オプテル社製、TOF-401:励起光源:窒素パルスレーザー(波長;337nm)、印加電圧;30V/μm)により測定した。この電荷移動度測定は、特に断りのない限りポリカーボネートに対する40質量%目的物分散膜を用いて実施した。結果を表2に示す。

【0253】

更に、本実施例において合成した電荷輸送性ポリエステル、及び比較例で用いたTPD及びポリビニルカルバゾールのガラス転移温度を、示差走査型熱量計(セイコーインスツルメンツ社製、Tg/DTA6200)を用い、α-Al₂O₃をリファレンスとし、サンプルをゴム状態になるまで昇温し、液体窒素に浸し急冷した後、再度昇温速度10/分の条件で昇温して測定した。結果を表2に示す。

40

【0254】

【表 2】

	電荷輸送性ポリエステル	IP (eV)	Tg (°C)	電荷移動度 (cm ² /Vs)
実施例1	(1)	5.6	128	4.5E-05
実施例2	(9)	5.7	110	6.7E-05
実施例3	(33)	5.7	130	2.5E-05
実施例4	(72)	5.6	145	8.8E-05
実施例5	(83)	5.5	128	6.5E-05
実施例6	(25)	5.7	156	1.2E-04
比較例1	(TPD)	5.4	65	5.0E-06
比較例2	(ポリビニルカルバゾール)	5.8	160	8.0E-07

10

【0255】

表2中、電荷輸送性ポリエステルの欄に記載する番号は、具体例ポリマーの番号を示す。以下表3についても同様である。

20

表2に示すように、実施例1～6の電荷輸送性ポリエステルは、比較例2に比べイオン化ポテンシャルが低く、電荷移動度が高く、比較例1に比べガラス転移温度が高いことがわかる。

【0256】

<塗布性の評価>

10mgを1mlの有機溶媒に溶解させ、スピンコート法によってスライドガラス上に塗布し、その塗布均一性を評価した。塗布均一性の評価基準は以下の通りである。結果を表3に示す。

【0257】

- 評価基準 -

- ：均一な成膜ができる。
- ×：膜ムラができるもしくは成膜できない。

30

【0258】

【表 3】

電荷輸送性 ポリエステル	塗布性			
	ジクロロメタン	モノクロロベンゼン	シクロペンタノン	キシレン
(1)	○	○	○	○
(9)	○	○	○	○
(33)	○	○	○	○
(72)	○	○	○	○
(83)	○	○	○	○
(25)	○	○	○	○
(TPD)	×	○	×	○
(ポリビニルカルバゾール)	○	○	×	×

10

【0259】

表3に示すように、実施例1～6の電荷輸送性ポリエステルは、TPD、PVKと比べ溶解性に優れることから、ピンホール等の塗布不良も少なく、大面積化も容易である。

20

【図面の簡単な説明】

【0260】

【図1】本実施形態に係る表示装置を示した概略構成図である。

【図2】他の本実施形態に係る表示装置を示した概略構成図である。

【図3】他の本実施形態に係る表示装置を示した概略構成図である。

【図4】他の本実施形態に係る表示装置を示した概略構成図である。

【符号の説明】

【0261】

- 1 透明絶縁体基板
- 2 透明電極
- 3 正孔輸送層
- 4 発光層
- 5 電子輸送層
- 6 電荷輸送能を有する発光層
- 7 背面電極
- 9 電圧印加装置
- 10 有機電界発光素子

30

A cross-sectional view of a semiconductor device 10. The device consists of a substrate 1 with a layer 2 on top of it. A patterned layer 3 is formed on layer 2. Above layer 3 is a layer 4, which is further covered by a layer 5. A top layer 7 is formed on layer 5. A conductive pad 9 is connected to the top layer 7.

A cross-sectional view of a thin film device 10. It consists of a substrate 1 with a first layer 2 on top. A second layer 3 is partially deposited on top of layer 2. A third layer 4 is deposited on top of layer 3, covering the entire area shown. A fourth layer 7 is deposited on top of layer 4, but it is patterned to leave a gap. An electrical circuit 9 is connected to the exposed portion of layer 2 and the exposed portion of layer 7.

Fig. 1 is a cross-sectional view of a semiconductor device 10. The device consists of a substrate 1, a thin layer 2, a patterned layer 6, and a thin layer 7. A wire 9 is connected to the patterned layer 6.

フロントページの続き

(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 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 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) 3K107 AA01 BB01 BB02 BB03 BB06 CC04 CC12 CC22 CC45 DD62
DD68 DD72 DD75 DD79 EE08 GG06
4J029 AA03 AC01 AC02 AE18 BA02 BA03 CH01 DA09 DA16 HA01
HB03

专利名称(译)	有机电致发光元件，显示介质和涂膜用组合物		
公开(公告)号	JP2010056168A	公开(公告)日	2010-03-11
申请号	JP2008217272	申请日	2008-08-26
[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	堀場幸治 廣瀬英一 阿形岳 佐藤克洋		
发明人	堀場 幸治 廣瀬 英一 阿形 岳 佐藤 克洋		
IPC分类号	H01L51/50 C08G63/685		
FI分类号	H05B33/22.B H05B33/22.D H05B33/14.B C08G63/685 G09F9/30.365 G09F9/30.365.Z H01L27/32		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/BB02 3K107/BB03 3K107/BB06 3K107/CC04 3K107/CC12 3K107/CC22 3K107/CC45 3K107/DD62 3K107/DD68 3K107/DD72 3K107/DD75 3K107/DD79 3K107/EE08 3K107/GG06 4J029/AA03 4J029/AC01 4J029/AC02 4J029/AE18 4J029/BA02 4J029/BA03 4J029/CH01 4J029/DA09 4J029/DA16 4J029/HA01 4J029/HB03 5C094/AA37 5C094/BA27 5C094/DA13 5C094/EA05 5C094/FB01 5C094/FB02 5C094/FB12 5C094/FB14 5C094/JA05		
代理人(译)	中岛敦 福田浩		
其他公开文献	JP5338198B2		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

解决的问题：与使用N，N-二（间甲苯基）N，N'-二苯基联苯胺（TPD）的有机电致发光器件相比，提供一种具有长寿命的有机电致发光器件。有机电致发光器件具有由夹在一对电极之间的一层或多层构成的有机化合物层，并且构成有机化合物层的至少一层是电荷传输聚酯。包含一个或多个 聚酯重复单元具有基于三氮杂萘的二价连接单元。[选择图]无

