

(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2007-324526

(P2007-324526A)

(43) 公開日 平成19年12月13日(2007.12.13)

(51) Int. Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>HO1L 51/50 (2006.01)</b>	HO5B 33/14 B	3K107
<b>HO5B 33/10 (2006.01)</b>	HO5B 33/22 B	4J029
<b>CO8G 63/187 (2006.01)</b>	HO5B 33/22 D	
<b>CO9K 11/06 (2006.01)</b>	HO5B 33/10	
	CO8G 63/187	
審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全 72 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号	特願2006-156108 (P2006-156108)	(71) 出願人	000005496 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
(22) 出願日	平成18年6月5日(2006.6.5)	(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	廣瀬 英一 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】 有機電界発光素子及びその製造方法、画像表示媒体

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】十分な輝度を有し、発光効率が高く、素子寿命が長く、かつ製造が容易な有機電界発光素子及びその製造方法、画像表示媒体を提供することである。

【解決手段】少なくとも一方が透明または半透明である陽極及び陰極よりなる一对の電極間に挟持された一つまたは複数の有機化合物層より構成される電界発光素子であって、前記有機化合物層の少なくとも一層が、特定のジアーニルジァミン構造から選択された少なくとも1種を部分構造として含む繰り返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルを少なくとも1種含有する有機電界発光素子である。

【選択図】なし

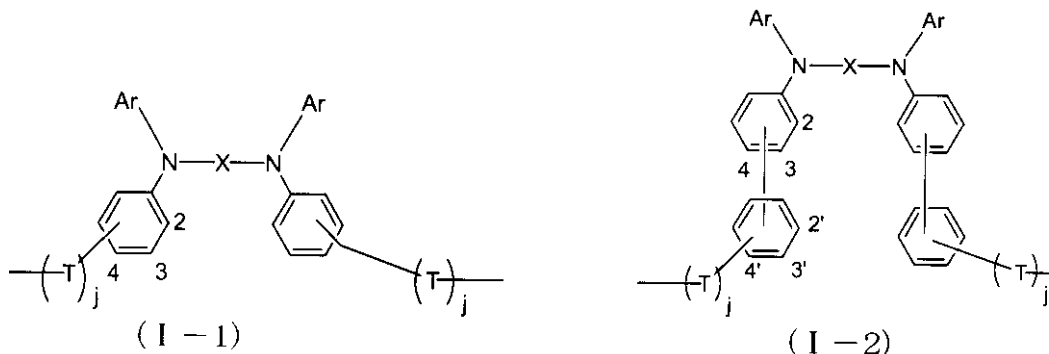
## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

少なくとも一方が透明または半透明である陽極及び陰極よりなる一对の電極間に挟持された一つまたは複数の有機化合物層より構成される電界発光素子であって、

前記有機化合物層の少なくとも一層が、下記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) で示される構造から選択された少なくとも 1 種を部分構造として含む繰り返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルを少なくとも 1 種含有することを特徴とする有機電界発光素子。

## 【化 1】

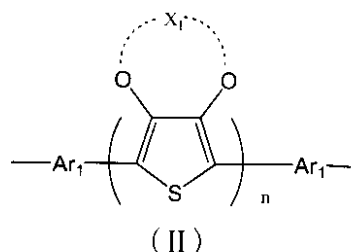


10

(前記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) 中、Ar は置換もしくは未置換のフェニル基、置換もしくは未置換の芳香環数 2 ~ 10 の 1 価の多核芳香族炭化水素、置換もしくは未置換の芳香環数 2 ~ 10 の 1 価の縮合芳香族炭化水素又は置換もしくは未置換の 1 価の芳香族複素環を表し、j は 0 または 1 を表し、T は炭素数 1 ~ 6 の 2 価の直鎖状炭化水素基または炭素数 2 ~ 10 の 2 価の分枝鎖状炭化水素基を表し、X は下記一般式 (II) で表される基を表す。)

20

## 【化 2】



30

(前記一般式 (II) 中、Ar<sub>1</sub> は、置換または未置換のフェニレン基、置換もしくは未置換の芳香環数 2 ~ 10 の 2 価の多核芳香族炭化水素、置換もしくは未置換の芳香環数 2 ~ 10 の 2 価の縮合芳香族炭化水素又は置換もしくは未置換の 2 価の芳香族複素環を表し、X<sub>1</sub> は置換もしくは未置換の炭素数 1 ~ 10 のアルキレン基、ポリメチレン基を表し、n は 1 ~ 10 の整数を表す。)

## 【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/または電子注入層とを含み、前記発光層、電子輸送層及び電子注入層から選択された少なくとも 1 層が、前記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) で示される構造から選択された少なくとも 1 種を部分構造として含む繰り返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルを少なくとも 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。

40

## 【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/又は正孔注入層とを含み、前記発光層、正孔輸送層及び正孔注入層から選択された少なくとも 1 層が、前記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) で示される構造から選択された少なくとも 1 種を部分構造として含む繰り返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルを少なくとも 1 種以上含有するこ

50

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/又は正孔注入層と、電子輸送層及び/又は電子注入層とを含み、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た少なくとも 1 層が、前記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) で示される構造から選択された少なくとも 1 種を部分構造として含む繰り返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルを少なくとも 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 5】

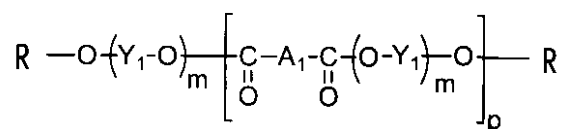
前記有機化合物層が、電荷輸送機能を持つ発光層のみから構成され、前記電荷輸送機能を持つ発光層が、前記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) で示される構造から選択された少なくとも 1 種を部分構造として含む繰り返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルを少なくとも 1 種以上含有することを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子。

10

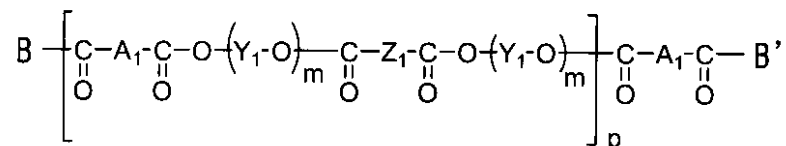
【請求項 6】

前記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) で示される構造から選択された少なくとも 1 種を部分構造として含む繰り返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルが、下記一般式 (III - 1) または (III - 2) で示される電荷輸送性ポリエステルであ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。

【化 3】



(III - 1)



(III - 2)

20

30

(前記一般式 (III - 1) 及び (III - 2) において、 $A_1$  は前記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) で示される構造から選択された少なくとも 1 種を表し、 $Y_1$  は 2 価のアルコール残基を表し、 $Z_1$  は 2 価のカルボン酸残基を表し、 $m$  は 1 ~ 5 の整数を表し、 $p$  は 5 ~ 5000 の整数を表す。また、 $R$ 、 $B$  及び  $B'$  はそれぞれ独立に、未置換および置換基の芳香環数 1 ~ 10 の 1 価の縮合多核芳香族炭化水素、炭素数 1 ~ 6 の 2 価の直鎖状炭化水素基、炭素数 2 ~ 10 の 2 価の分枝鎖状炭化水素基及びヒドロキシル基を表す。)

【請求項 7】

請求項 1 に記載の有機電界発光素子をマトリクス及び/またはセグメント状に配置したことを特徴とする画像表示媒体。

40

【請求項 8】

請求項 1 に記載の有機電界発光素子の製造方法であって、前記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少なくとも含有することを特徴とする有機電界発光素子の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、電気エネルギーを光に変換して発光する有機電界発光素子及びその製造方法、画像表示媒体に関し、詳しくは表示素子、電子ペーパー、バックライト、照明光源、電

50

子写真用露光装置、標識、看板等の分野に好適に使用できる有機電界発光素子及びその製造方法、画像表示媒体に関する。

【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いため、広く応用が期待されている。現在は無機蛍光体を用いたものが主流であり広く使用されているが、駆動に200V以上、50～1000Hzの交流電圧を必要とするためランニングコストが高く、また輝度が不十分であるなどの問題点を有している。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ったが、膜厚が1mm程度と厚く、100V以上の駆動電圧が必要であった。そのため蒸着法による薄膜化が試みられている（例えば、非特許文献1参照）。

10

【0003】

これら素子の発光は、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。しかしながら、駆動電圧が30Vと未だ高く、また、膜中における電子・正孔キャリアの密度が低く、キャリアの再結合によるフォトンの生成確率が低いため十分な輝度が得られず、実用化には至らなかった。

【0004】

ところが、1987年にTangらにより透明基板上に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を真空蒸着法により極めて薄い薄膜を順次積層した機能分離型の有機電界発光素子で、10V程度の低電圧で1000cd/m<sup>2</sup>以上の高輝度が得られるものが報告され（例えば、特許文献1又は非特許文献2参照）、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。

20

【0005】

これら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。また、電荷輸送材料としては、N,N-ジ(m-トリル)N,N'-ジフェニルベンジジンや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等が挙げられる。

30

【0006】

これら有機化合物を用いた有機電界発光素子は高い発光特性を有しているが、発光時の熱安定性や保存安定性に問題がある。電界発光素子の有機物で形成される層は、数十から数百ナノメートルと非常に薄く、単位厚さ当たりに加わる電圧は非常に高くなり、数mA/cm<sup>2</sup>という高い電流密度で駆動されるため大量のジュール熱を発生する。このため、蒸着によってアモルファスガラス状態で成膜された正孔輸送性低分子化合物や蛍光性有機低分子化合物が温度上昇で次第に結晶化して最後には融解し、輝度の低下や絶縁破壊が生じるとい現象が多く見られ、その結果素子の寿命が低下するという問題を有していた。この熱安定性の低さは材料のガラス転移温度の低さに由来すると考えられている。即ち、低分子量の化合物は融点が低く対称性が高いものが多いためである。

40

【0007】

そこで、熱安定性に関する問題の解決のために、ガラス転移温度を向上し、安定なアモルファスガラス状態が得られる-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3参照）、スターバーストアミン（例えば、非特許文献4参照）を用いた有機電界発光素子が報告されている。

しかし、これら単独では正孔輸送材料のイオン化ポテンシャルに起因するエネルギー障壁が存在するため、陽極からの正孔注入性或いは発光層への正孔注入性を満足するもので

50

はない。さらに、正孔輸送層と発光層の2層型素子構造においては、相互拡散現象を起こし、発光効率を低下させる。また、素子作製時においては、蒸着、ベーキング、アニーリング、配線、封止等の作製工程でかなりの熱がかかり、さらには、長時間の使用による経時変化等に耐えられるだけの熱安定を確保するためには、より一層の材料におけるガラス転移温度の向上が望まれている。

【0008】

一方、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、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、特許文献2又は非特許文献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6参照)、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7参照)が提案されている。

10

【0009】

これらは、低分子化合物より比較的ガラス転移点が高いものの、ポリ(p-フェニレンビニレン)においては、可溶前駆体をスピンコート後、熱処理するため、主鎖共役系高分子中に欠陥が入りやすく発光特性を著しく低下させる。フォスファゼンは、イオン化ポテンシャルが高く電荷注入特性が低下する不具合が生じている。ポリビニルカルバゾールは、高いガラス転移点を有するが不純物によるトラップ等の問題や低分子化合物を高分子に混入させる場合は低分子が可塑剤として作用してしまい、未だ輝度、発光効率等が有機低分子化合物を用いた積層型電界発光素子には及ばない。

【0010】

また、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8及び9参照)。しかし、電荷輸送材料の溶剤や樹脂に対する溶解性、相溶性が悪いため、結晶化しやすく製造上あるいは特性上に欠陥があった。

20

【特許文献1】特開昭59-194393号公報

【特許文献2】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】電子情報通信学会技術研究報告、OME95-54 (1995)

【非特許文献4】第40回応用物理学関係連合講演会予稿集30a-SZK-14 (1993)

30

【非特許文献5】Nature, 357, 477 (1992)

【非特許文献6】第42回高分子討論会予稿集20J21 (1993)

【非特許文献7】第38回応用物理学関係連合講演会予稿集31p-G-12 (1991)

【非特許文献8】第50回応用物理学学会学術講演予稿集, 29p-ZP-5 (1989)

【非特許文献9】第51回応用物理学学会学術講演予稿集, 28a-PB-7 (1990)

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0011】

本発明は、前記従来技術における諸問題を解決し、以下の目的を達成することを課題とする。すなわち、本発明の目的は、十分な輝度を有し、発光効率が高く、素子寿命が長く、かつ製造が容易な有機電界発光素子及びその製造方法、画像表示媒体を提供することにある。

40

【課題を解決するための手段】

【0012】

上記目的を達成するため電荷輸送ポリマーに関し鋭意検討した結果、特定の電荷輸送性ポリエステルが、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、発光特性を有することを見出し、本発明を完成するに至った。

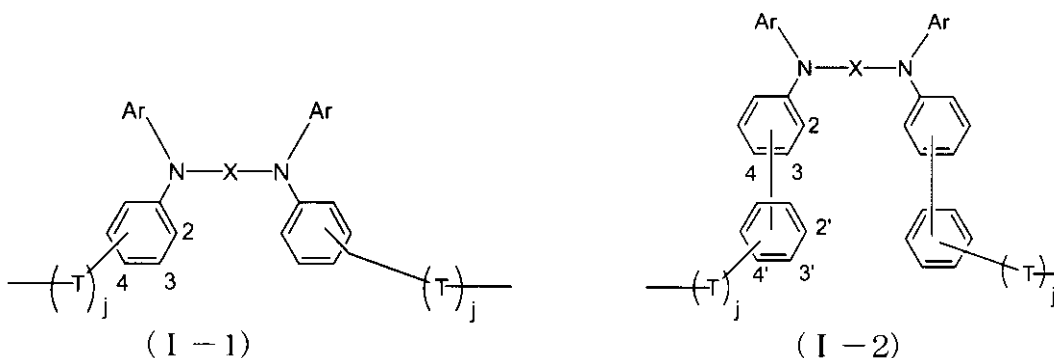
即ち、本発明は、

50

< 1 > 少なくとも一方が透明または半透明である陽極及び陰極よりなる一対の電極間に挟持された一つまたは複数の有機化合物層より構成される電界発光素子であって、前記有機化合物層の少なくとも一層が、下記一般式 ( I - 1 ) 及び ( I - 2 ) で示される構造から選択された少なくとも1種を部分構造として含む繰り返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルを少なくとも1種含有する有機電界発光素子である。

【 0 0 1 3 】

【 化 1 】



10

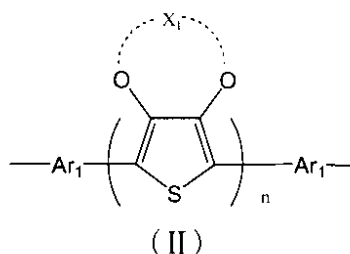
【 0 0 1 4 】

前記一般式 ( I - 1 ) 及び ( I - 2 ) 中、Ar は置換もしくは未置換のフェニル基、置換もしくは未置換の芳香環数 2 ~ 10 の 1 価の多核芳香族炭化水素、置換もしくは未置換の芳香環数 2 ~ 10 の 1 価の縮合芳香族炭化水素又は置換もしくは未置換の 1 価の芳香族複素環を表し、j は 0 または 1 を表し、T は炭素数 1 ~ 6 の 2 価の直鎖状炭化水素基又は炭素数 2 ~ 10 の 2 価の分枝鎖状炭化水素基を表し、X は下記一般式 ( II ) で表される置換基を表す。

20

【 0 0 1 5 】

【 化 2 】



30

【 0 0 1 6 】

前記一般式 ( II ) 中、Ar<sub>1</sub> は、置換または未置換のフェニレン基、置換もしくは未置換の芳香環数 2 ~ 10 の 2 価の多核芳香族炭化水素、置換もしくは未置換の芳香環数 2 ~ 10 の 2 価の縮合芳香族炭化水素又は置換もしくは未置換の 2 価の芳香族複素環を表し、X<sub>1</sub> は置換もしくは未置換の炭素数 1 ~ 10 のアルキレン基、ポリメチレン基を表し、n は 1 ~ 10 の整数を表す。

40

【 0 0 1 7 】

< 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/又は電子注入層とを含み、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 ( I - 1 ) 及び ( I - 2 ) で示される構造から選択された少なくとも1種を部分構造として含む繰り返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルを少なくとも1種以上含有する < 1 > に記載の有機電界発光素子である。

【 0 0 1 8 】

< 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/又は正孔注入層とを含み、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

50

記一般式 ( I - 1 ) 及び ( I - 2 ) で示される構造から選択された少なくとも 1 種を部分構造として含む繰り返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルを少なくとも 1 種以上含有する < 1 > に記載の有機電界発光素子である。

## 【 0 0 1 9 】

< 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 / 又は正孔注入層と、電子輸送層及び / 又は電子注入層とを含み、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 ( I - 1 ) 及び ( I - 2 ) で示される構造から選択された少なくとも 1 種を部分構造として含む繰り返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルを少なくとも 1 種以上含有する < 1 > に記載の有機電界発光素子である。

10

## 【 0 0 2 0 】

< 5 > 前記有機化合物層が、電荷輸送機能を持つ発光層のみから構成され、前記電荷輸送機能を持つ発光層が、前記一般式 ( I - 1 ) 及び ( I - 2 ) で示される構造から選択された少なくとも 1 種を部分構造として含む繰り返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルを少なくとも 1 種以上含有する < 1 > に記載の有機電界発光素子である。

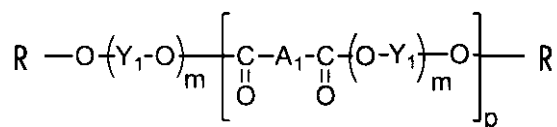
## 【 0 0 2 1 】

< 6 > 前記一般式 ( I - 1 ) 及び ( I - 2 ) で示される構造から選択された少なくとも 1 種を部分構造として含む繰り返し単位よりなる電荷輸送性ポリエステルが、下記一般式 ( I I I - 1 ) または ( I I I - 2 ) で示される電荷輸送性ポリエステルである < 1 > に記載の有機電界発光素子である。

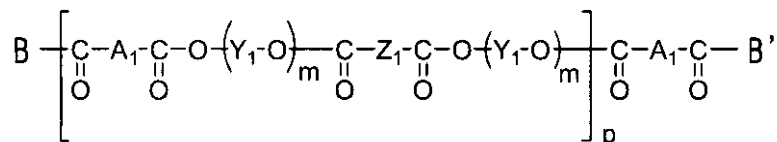
20

## 【 0 0 2 2 】

## 【 化 3 】



( III - 1 )



( III - 2 )

30

## 【 0 0 2 3 】

前記一般式 ( I I I - 1 ) 及び ( I I I - 2 ) において、 $A_1$  は前記一般式 ( I - 1 ) 及び ( I - 2 ) で示される構造から選択された少なくとも 1 種を表し、 $Y_1$  は 2 価のアルコール残基を表し、 $Z_1$  は 2 価のカルボン酸残基を表し、 $m$  は 1 ~ 5 の整数を表し、 $p$  は 5 ~ 5000 の整数を表す。また、 $R$ 、 $B$  及び  $B'$  はそれぞれ独立に、未置換及び置換基の芳香環数 1 ~ 10 の 1 価の縮合多核芳香族炭化水素、炭素数 1 ~ 6 の 2 価の直鎖状炭化水素基、炭素数 2 ~ 10 の 2 価の分枝鎖状炭化水素基及びヒドロキシル基を表す。

40

## 【 0 0 2 4 】

< 7 > < 1 > に記載の有機電界発光素子をマトリクス及び / またはセグメント状に配置した画像表示媒体である。

## 【 0 0 2 5 】

< 8 > < 1 > に記載の有機電界発光素子の製造方法であって、前記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少なくとも有する有機電界発光素子の製造方法である。

50

## 【発明の効果】

## 【0026】

本発明によれば、十分な輝度を有し、発光効率が高く、素子寿命が長く、かつ製造が容易な有機電界発光素子及びその製造方法、画像表示媒体を提供することができる。

## 【発明を実施するための最良の形態】

## 【0027】

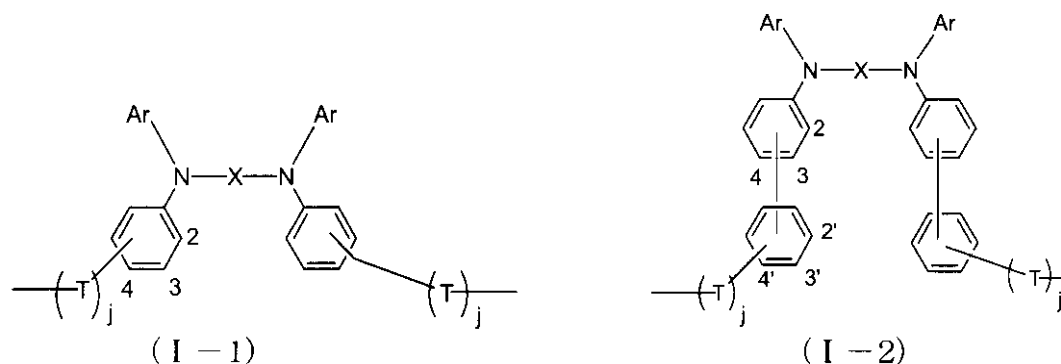
<有機電界発光素子及びその製造方法>

本発明の有機電界発光素子（以下、「有機EL素子」という場合がある）は、少なくとも一方が透明または半透明である陽極及び陰極よりなる一对の電極間に挟持された一つまたは複数の有機化合物層より構成される電界発光素子であって、前記有機化合物層の少なくとも一層が、下記一般式（I-1）及び（I-2）で示される構造から選択された少なくとも1種を部分構造として含む繰り返し単位を有する電荷輸送性ポリエステルを含有することを特徴とする。

10

## 【0028】

## 【化4】



20

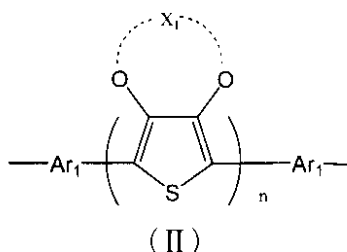
## 【0029】

前記一般式（I-1）及び（I-2）中、Arは置換もしくは未置換のフェニル基、置換もしくは未置換の芳香環数2～10の1価の多核芳香族炭化水素、置換もしくは未置換の芳香環数2～10の1価の縮合芳香族炭化水素又は置換もしくは未置換の1価の芳香族複素環を表し、jは0または1を表し、Tは炭素数1～6の2価の直鎖状炭化水素基又は炭素数2～10の2価の分枝鎖状炭化水素基を表し、Xは下記一般式（II）で表される基を表す。

30

## 【0030】

## 【化5】



40

## 【0031】

上記一般式（II）中、Ar<sub>1</sub>は、置換または未置換のフェニレン基、置換もしくは未置換の芳香環数2～10の2価の多核芳香族炭化水素、置換もしくは未置換の芳香環数2～10の2価の縮合芳香族炭化水素又は置換もしくは未置換の2価の芳香族複素環を表し、X<sub>1</sub>は置換もしくは未置換の炭素数1～10のアルキレン基、ポリメチレン基を表し、nは1～10の整数を表す。

50

## 【0032】

本発明における電荷輸送性ポリエステルは、アルキレンジオキシを有するチオフェン環を挿入することによりイオン化ポテンシャルを低くコントロールする事ができ、電極からの電荷注入性を改善する事ができる。さらにポリエステル構造により基板との密着性が向上し電荷注入性が良く、溶剤や樹脂に対する溶解性及び相溶性に優れている。従って、本発明の有機電界発光素子は、有機化合物層の少なくとも一層が前記電荷輸送性ポリエステルを含有してなることで、十分な輝度を有し、発光効率が高く、素子寿命が長い。さらに、前記電荷輸送性ポリエステルを用いることで、大面積化すること可能であり、容易に製造することが可能となる。また、前記電荷輸送性ポリエステルは後述する構造を適宜選択することで、正孔輸送能、電子輸送能のいずれの機能をも付与することができるため、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ることができる。

10

また、本発明におけ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ことから、本発明の有機電界発光素子は所望の特性を得ることができる。

以下、本発明を詳細に説明するにあたり、まず本発明における前記電荷輸送性ポリエステルについて詳述する。

## 【0033】

(電荷輸送性ポリエステル)

前記一般式(I-1)及び(I-2)中、Arは置換もしくは未置換のフェニル基、置換もしくは未置換の芳香環数2~10の1価の多核芳香族炭化水素、置換もしくは未置換の芳香環数2~10の1価の縮合芳香族炭化水素又は置換もしくは未置換の1価の芳香族複素環を表す。尚、一般式(I-1)及び(I-2)中に2つ存在するArは、同一であっても異なっても構わないが、製造容易性という観点からは同一であることが好ましい。

20

## 【0034】

ここで、一般式(I-1)及び(I-2)中、Arを表す構造として選択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、さらに1~10のものが好ましく、また縮合芳香族炭化水素においては1~5のものがより好ましい。尚、当該多核芳香族炭化水素及び縮合芳香族炭化水素とは、本発明においては、具体的には以下に定義される多環式芳香族のことを意味する。

30

即ち、「多核芳香族炭化水素」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を表す。具体的には、ビフェニル、ターフェニル等が挙げられる。また、「縮合芳香族炭化水素」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化合物を表す。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、フルオレン等が挙げられる。

## 【0035】

さらに一般式(I-1)及び(I-2)中において、Arを表す構造として選択される芳香族複素環を含む芳香族基は、骨格を形成する原子団中に、少なくとも1種の芳香族複素環を含む結合基を表す。ここで該芳香族複素環とは、炭素と水素以外の元素も含む芳香環を表す。その環骨格を構成する原子数(Nr)が、Nr=5及び/又は6が好ましく用いられる。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、酸素原子等が好ましく用いられ、前記環骨格中には2種類以上及び/又は2個以上の異種原子が含まれてもよい。特に5員環構造をもつ複素環として、チオフェン、ピロール及びフラン、または、前記化合物の3位及び4位の炭素を窒素で置き換えた複素環が好ましく用いられ、6員環構造を持つ複素環として、ピリジンが好ましく用いられる。更に、芳香族複素環とは、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み、該複素環及び芳香環として上述の複素環及び芳香環が挙げられる。

40

これら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

50

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好ましい。

【0036】

一般式(I-1)及び(I-2)中、Arで表されるフェニル基、多核芳香族炭化水素、縮合多環芳香族炭化水素又は芳香族複素環を更に置換する置換基としては、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1~10のものが好ましく、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。前記アルコキシ基としては、炭素数1~10のものが好ましく、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6~20のものが好ましく、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7~20のものが好ましく、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。

10

【0037】

一般式(I-1)及び(I-2)中、Xは、前記一般式(II)で表される基を表す。

【0038】

一般式(II)中において、X<sub>1</sub>を表す構造として選択される炭素数1~10のアルキレン基、ポリメチレン基としては、特に炭素数2~20のものが好ましく、例えばエチレン基、プロピレン基、ブチレン基、アミレン基、ヘキシレン基、トリメチレン基等が挙げられるが、これに限定するものではない。

20

【0039】

一般式(II)中、X<sub>1</sub>で表されるアルキレン基に置換する置換基としては、炭素数1~6の2価の直鎖状炭化水素基が挙げられる。

【0040】

また、一般式(II)中、Ar<sub>1</sub>は、置換もしくは未置換のフェニレン基、置換もしくは未置換の芳香環数2~10の2価の多核芳香族炭化水素、置換もしくは未置換の芳香環数2~10の2価の縮合芳香族炭化水素、又は置換もしくは未置換の2価の芳香族複素環を表す。ここで、上記「多核芳香族炭化水素、縮合芳香族炭化水素、芳香族複素環を含む芳香族基」については、前述に示すとおりである。

30

尚、一般式(II)中に2つ存在するAr<sub>1</sub>は、それぞれ同一であっても異なっても構わない。

【0041】

また、一般式(II)中、nは1~10の整数を表し、更には、1~3の整数がより好ましい。前記アルキレン基としては、炭素数が2~10であることが好ましく、エチレン構造であることがより好ましい。

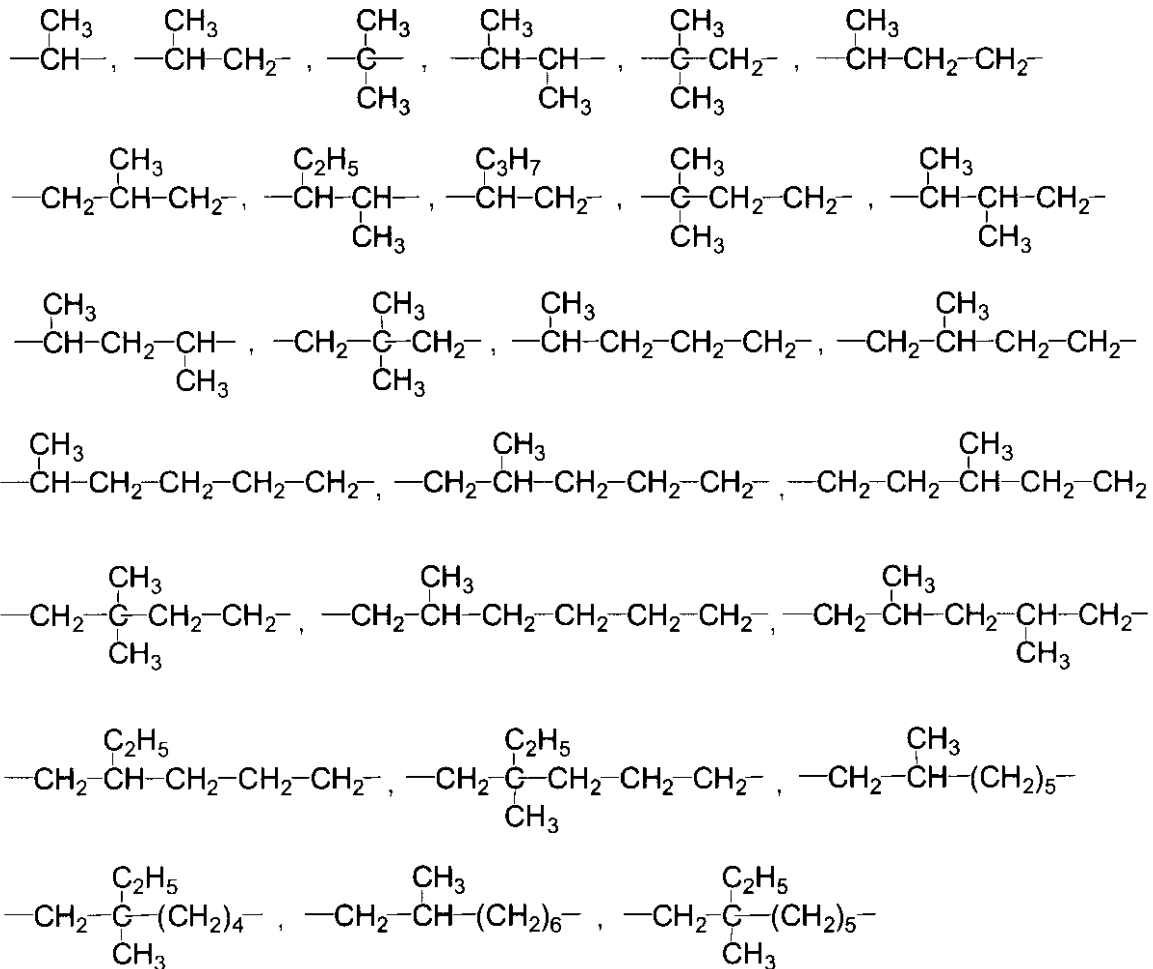
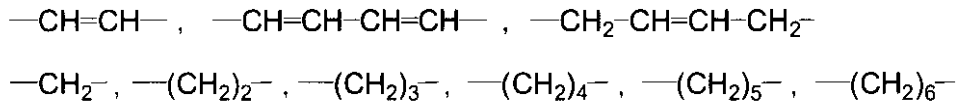
【0042】

一般式(I-1)及び(I-2)中、Tは、炭素数1~6の2価の直鎖状炭化水素基または炭素数2~10の2価の分枝鎖状炭化水素基を表し、好ましくは炭素数が2~6の2価の直鎖状炭化水素基及び炭素数3~7の2価の分枝鎖状炭化水素基より選択される。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好ましい。

40

【0043】

## 【化 6】



10

20

30

## 【 0 0 4 4 】

ここで、前記一般式 ( I - 1 ) で示される構造の具体例を、表 1 ~ 表 1 7 示す。

## 【 0 0 4 5 】

【表 1】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
1			3	0	-
2			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
3			3	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
4			4	1	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{C}-\text{C}-\text{C}- \\   \quad   \\ \text{H}_2 \quad \text{CH}_3 \end{array}$
5			4	1	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{C}-\text{C}-\text{C}- \\   \quad   \\ \text{H}_2 \quad \text{CH}_3 \end{array}$
6			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
7			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
8			4	1	-CH <sub>2</sub> -
9			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
10			4	1	-CH <sub>2</sub> -
11			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
12			4	1	-CH <sub>2</sub> -
13			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
14			4	1	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{C}-\text{C}-\text{C}- \\   \quad   \\ \text{H}_2 \quad \text{CH}_3 \end{array}$

10

20

30

40

【 0 0 4 6 】

【表 2】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
15			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
16			4	1	-CH <sub>2</sub> -
17			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
18			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
19			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
20			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
21			3	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
22			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
23			4	0	-
24			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
25			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
26			3	1	-CH <sub>2</sub> -
27			4	1	-CH <sub>2</sub> -

10

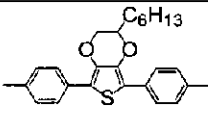
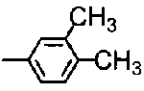
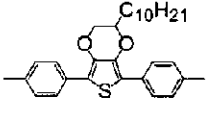

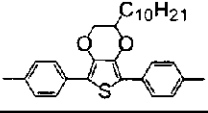

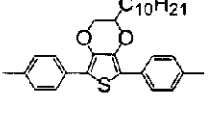
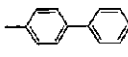
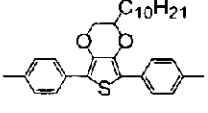
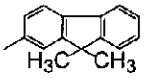
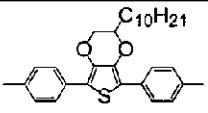
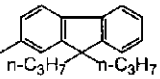
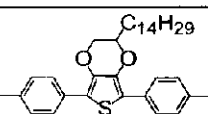

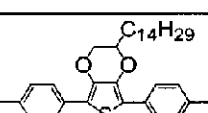
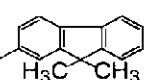
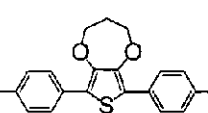

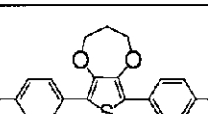
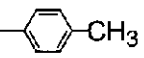
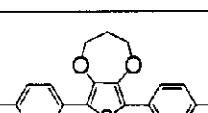
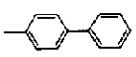
20

30

40

【 0 0 4 7 】

【表 3】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
28			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
29			4	0	-
30			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
31			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
32			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
33			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
34			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
35			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
36			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
37			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
38			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -

10

20

30

40

【 0 0 4 8 】

【表 4】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
39			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
40			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
41			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
42			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
43			4	1	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{C}-\text{C}-\text{C}- \\   \quad   \\ \text{H}_2 \quad \text{H}_2 \\   \\ \text{CH}_3 \end{array}$
44			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
45			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
46			4	1	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{C}-\text{C}-\text{C}- \\   \quad   \\ \text{H}_2 \quad \text{H}_2 \\   \\ \text{CH}_3 \end{array}$
47			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -

10

20

30

40

【 0 0 4 9 】

【表 5】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
48			4	1	-CH <sub>2</sub> -
49			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
50			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
51			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
52			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
53			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
54			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
55			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -

10

20

30

40

【 0 0 5 0 】

【表 6】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
56			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
57			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
58			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
59			4	0	-
60			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
61			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
62			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
63			4	0	-
64			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
65			4	0	-

10

20

30

40

【 0 0 5 1 】

【表 7】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
66			4	0	-
67			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
68			4	0	-
69			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
70			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
71			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
72			4	0	-
73			3	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
74			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
75			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
76			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
77			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -

10

20

30

40

【 0 0 5 2 】

【表 8】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
78			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
79			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
80			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
81			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
82			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
83			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
84			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
85			3	1	-CH <sub>2</sub> -
86			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -

10

20

30

40

【 0 0 5 3 】

【表 9】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
87			4	1	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{C}-\text{C}-\text{C}- \\   \quad   \quad   \\ \text{H}_2 \quad \text{CH}_3 \quad \text{H}_2 \end{array}$
88			4	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
89			4	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
90			4	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
91			4	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
92			4	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
93			4	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
94			4	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
95			4	0	-

10

20

30

40

【 0 0 5 4 】

【表 10】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
96			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
97			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
98			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
99			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
100			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
101			4	1	-CH <sub>2</sub> -
102			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
103			4	1	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{C}-\text{C}-\text{C}- \\   \quad   \\ \text{H}_2 \quad \text{H}_2 \\   \\ \text{CH}_3 \end{array}$
104			4	1	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{C}-\text{C}-\text{C}- \\   \quad   \\ \text{H}_2 \quad \text{H}_2 \\   \\ \text{CH}_3 \end{array}$
105			3	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
106			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
107			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -

10

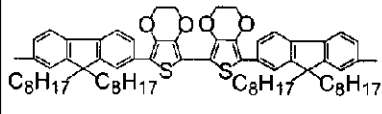
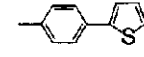
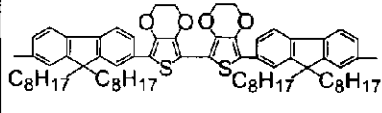
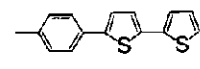
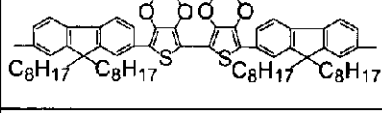
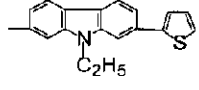
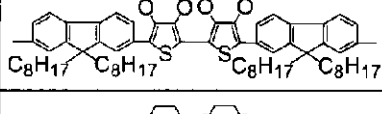
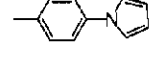
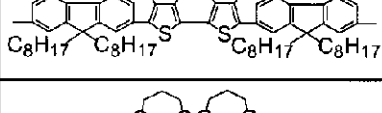
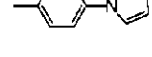
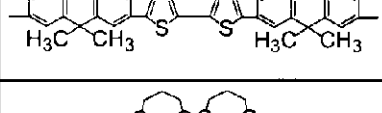

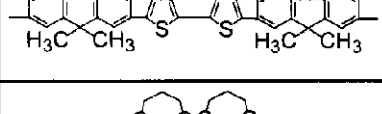

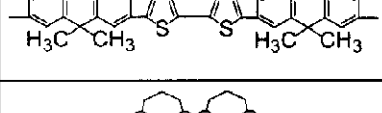

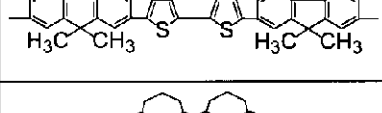

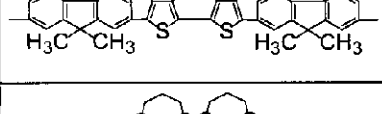
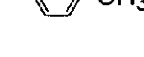
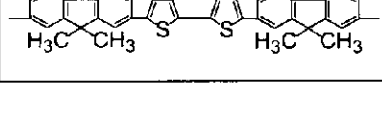

20

30

40

【 0 0 5 5 】

【表 1 1】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
108			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
109			2	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
110			3	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
111			4	1	-CH <sub>2</sub> -
112			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
113			4	1	(CH <sub>2</sub> ) <sub>4</sub>
114			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
115			3	1	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{C}-\text{C}-\text{C}- \\   \quad   \\ \text{H}_2 \quad \text{H}_2 \\ \text{CH}_3 \end{array}$
116			4	1	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{C}-\text{C}-\text{C}- \\   \quad   \\ \text{H}_2 \quad \text{H}_2 \\ \text{CH}_3 \end{array}$
117			3	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
118			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -

10

20

30

40

【 0 0 5 6 】

【表 1 2】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
119			4	1	$-(CH_2)_3-$
120			4	1	$-CH_2CH_2-$
121			4	1	$\begin{array}{c} CH_3 \\   \\ -C-C-C- \\   \quad   \\ H_2 \quad CH_3 \end{array}$
122			4	1	$-CH_2CH_2-$
123			4	1	$-CH_2CH_2-$
124			4	1	$-CH_2CH_2-$
125			4	0	—
126			4	0	—
127			4	0	—
128			4	0	—
129			4	1	$-CH_2CH_2-$

10

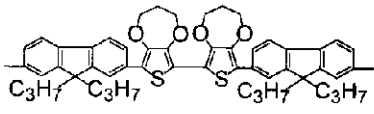
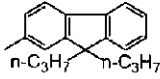
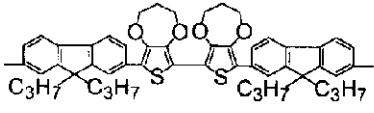
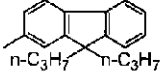
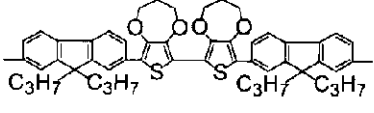
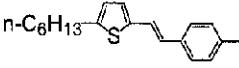
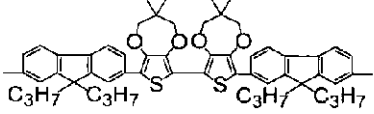

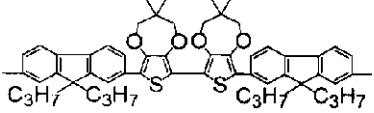
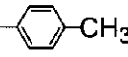
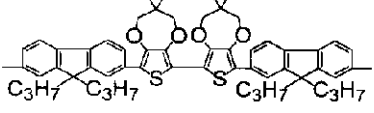
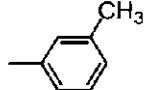
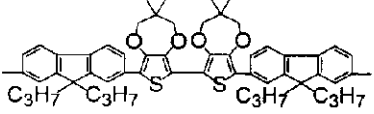
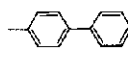
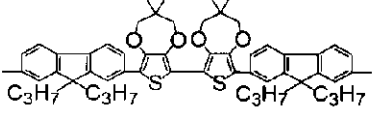
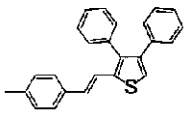
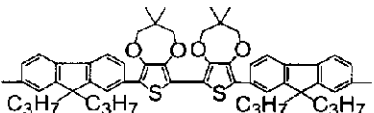
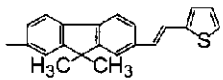
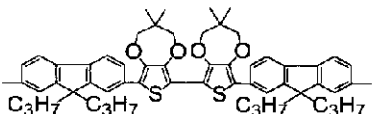
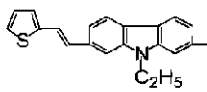
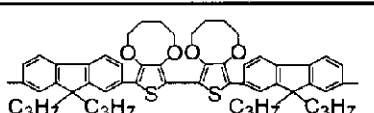

20

30

40

【 0 0 5 7 】

【表 1 3】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
130			3	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
131			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
132			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
133			4	1	(CH <sub>2</sub> ) <sub>4</sub>
134			4	1	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{C}-\text{C}-\text{C}- \\   \quad   \\ \text{H}_2 \quad \text{H}_2 \\   \\ \text{CH}_3 \end{array}$
135			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
136			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
137			4	1	-CH <sub>2</sub> -
138			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
139			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
140			4	0	-

10

20

30

40

【 0 0 5 8 】

【表 1 4】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
141			4	1	-CH <sub>2</sub> -
142			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
143			4	0	-
144			4	1	-CH <sub>2</sub> -
145			4	1	-CH <sub>2</sub> -
146			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
147			4	1	-CH <sub>2</sub> -
148			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
149			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
150			4	0	-
151			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -

10

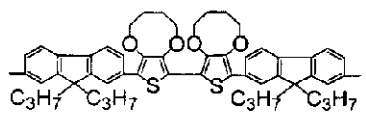
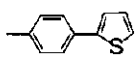
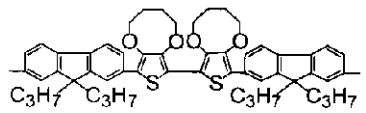
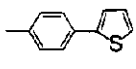
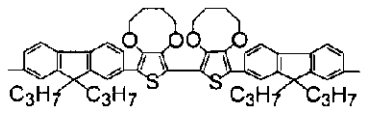
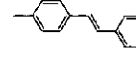
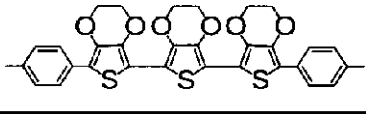

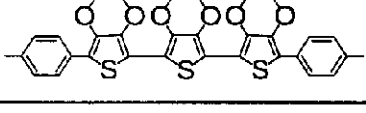

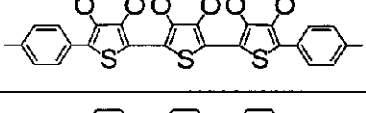
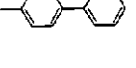
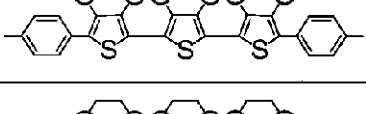

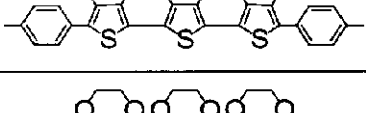

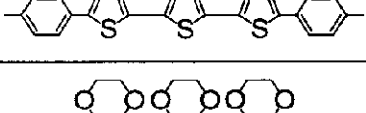

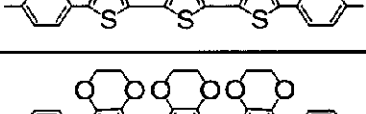
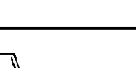
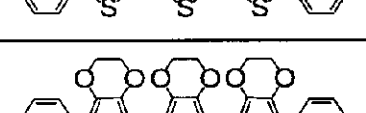

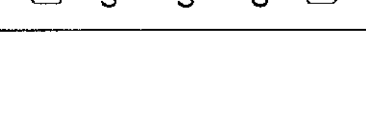
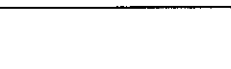
20

30

40

【 0 0 5 9 】

【表 15】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
152			4	0	-
153			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
154			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
155			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
156			4	1	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{C}-\text{C}-\text{C}- \\   \quad   \\ \text{H}_2 \quad \text{CH}_3 \end{array}$
157			4	0	-
158			4	1	-CH <sub>2</sub> -
159			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
160			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
161			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
162			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
163			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -

10

20

30

40

【 0 0 6 0 】

【表 1 6】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
164			4	1	-CH <sub>2</sub> -
165			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
166			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
167			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
168			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
169			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
170			4	1	(CH <sub>2</sub> ) <sub>4</sub>
171			4	1	
172			3	0	-
173			4	0	-
174			4	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -

10

20

30

40

【 0 0 6 1 】

【表 1 7】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
175			4	0	—
176			4	1	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —
177			4	1	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —
178			4	1	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —
179			4	1	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —
180			4	1	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —
181			4	1	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —
182			4	1	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —
183			4	1	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —
184			4	1	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —
185			4	1	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —

10

20

30

40

【 0 0 6 2 】

また、以下に前記一般式 ( I - 2 ) で示される構造の具体例を、表 1 8 ~ 表 3 3 に示す。

【 0 0 6 3 】

【表 18】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
186			4,4'	0	-
187			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
188			4,4'	1	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{C}-\text{C}-\text{C}- \\   \quad   \\ \text{H}_2 \quad \text{CH}_3 \end{array}$
189			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
190			4,4'	1	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{C}-\text{C}-\text{C}- \\   \quad   \\ \text{H}_2 \quad \text{CH}_3 \end{array}$
191			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
192			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> -
193			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
194			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> -
195			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
196			4,4'	1	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{C}-\text{C}-\text{C}- \\   \quad   \\ \text{H}_2 \quad \text{CH}_3 \end{array}$
197			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> -
198			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -

10

20

30

40

【 0 0 6 4 】

【表 19】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
199			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
200			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
201			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> -
202			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
203			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
204			4,4'	1	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{C}-\text{C}-\text{C}- \\   \quad   \\ \text{H}_2 \quad \text{H}_2 \\ \text{CH}_3 \end{array}$
205			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
206			4,4'	0	-
207			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
208			4,4'	1	-(CH <sub>2</sub> ) <sub>4</sub> -
209			4,4'	0	-
210			4,4'	0	-

10

20

30

40

【 0 0 6 5 】

【表 2 0】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
211			4,4'	0	—
212			4,4'	1	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —
213			4,4'	1	—CH <sub>2</sub> —
214			4,4'	1	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —
215			4,4'	1	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —
216			4,4'	1	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —
217			4,4'	1	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —
218			4,4'	1	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —
219			4,4'	1	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —
220			4,4'	1	—CH <sub>2</sub> —
221			4,4'	1	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —

10

20

30

40

【 0 0 6 6 】

【表 2 1】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
222			4,4'	1	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{C}-\text{C}-\text{C}- \\   \quad   \\ \text{H}_2 \quad \text{H}_2 \\   \\ \text{CH}_3 \end{array}$
223			4,4'	1	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{C}-\text{C}-\text{C}- \\   \quad   \\ \text{H}_2 \quad \text{H}_2 \\   \\ \text{CH}_3 \end{array}$
224			4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
225			4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
226			4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
227			4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
228			4,4'	1	$-(\text{CH}_2)_4-$
229			4,4'	1	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{C}-\text{C}-\text{C}- \\   \quad   \\ \text{H}_2 \quad \text{H}_2 \\   \\ \text{CH}_3 \end{array}$
230			4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
231			4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$

10

20

30

40

【 0 0 6 7 】

【表 2 2】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
232			4,4'	1	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{C}-\text{C}-\text{C}- \\   \quad   \quad   \\ \text{H}_2 \quad \text{CH}_3 \quad \text{H}_2 \end{array}$
233			4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
234			4,4'	1	$-(\text{CH}_2)_3-$
235			4,4'	1	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{C}-\text{C}-\text{C}- \\   \quad   \quad   \\ \text{H}_2 \quad \text{CH}_3 \quad \text{H}_2 \end{array}$
236			4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
237			4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
238			4,4'	0	-
239			4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$

10

20

30

40

【 0 0 6 8 】

【表 2 3】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
240			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
241			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> -
242			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> -
243			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
244			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> -
245			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
246			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
247			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
248			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
249			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
250			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -

10

20

30

40

【 0 0 6 9 】

【表 2 4】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
251			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
252			4,4'	1	-(CH <sub>2</sub> ) <sub>4</sub> -
253			4,4'	1	
254			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> -
255			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
256			4,4'	1	-(CH <sub>2</sub> ) <sub>4</sub> -
257			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
258			4,4'	1	
259			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> -
260			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
261			4,4'	1	

10

20

30

40

【 0 0 7 0 】

【表 2 5】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
262			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> -
263			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> -
264			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> -
265			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
266			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> -
267			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
268			4,4'	1	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{C}-\text{C}-\text{C}- \\   \quad   \\ \text{H}_2 \quad \text{CH}_3 \end{array}$
269			4,4'	0	-
270			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> -
271			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -

10

20

30

【 0 0 7 1 】

40

【表 2 6】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
272			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
273			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
274			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> -
275			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
276			4,4'	1	
277			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
278			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
279			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
280			4,4'	0	-
281			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> -

10

20

30

40

【 0 0 7 2 】

【表 27】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
282		$n\text{-C}_8\text{H}_{17}$ -	4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
283			4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
284			4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
285			4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
286			4,4'	1	$-\text{CH}_2-$
287			4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
288			4,4'	1	$-(\text{CH}_2)_3-$
289			4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
290			4,4'	1	$-(\text{CH}_2)_3-$
291			4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
292			4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$

10

20

30

40

【 0 0 7 3 】

【表 2 8】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
293			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
294			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> -
295			4,4'	0	-CH <sub>2</sub> -
296			4,4'	0	-
297			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
298			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
299			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
300			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
301			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
302			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
303			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> -

10

20

30

40

【 0 0 7 4 】

【表 2 9】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
304			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
305			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
306			4,4'	0	-
307			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> -
308			4,4'	1	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ -\text{C}-\text{C}-\text{C}- \\   \quad   \\ \text{H}_2 \quad \text{CH}_3 \quad \text{H}_2 \end{array}$
309			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
310			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
311			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
312			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
313			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
314			4,4'	1	$-(\text{CH}_2)_3-$

10

20

30

40

【 0 0 7 5 】

【表 3 0】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
315			4,4'	1	$-(\text{CH}_2)_3-$
316			4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
317			4,4'	0	—
318			4,4'	1	$-\text{CH}_2-$
319			4,4'	1	$-\text{CH}_2-$
320			4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
321			4,4'	1	$-(\text{CH}_2)_3-$
322			4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
323			4,4'	1	$-(\text{CH}_2)_3-$
324			4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
325			4,4'	1	$-(\text{CH}_2)_3-$

10

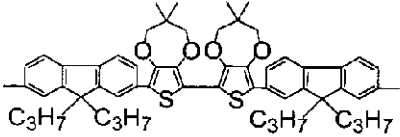

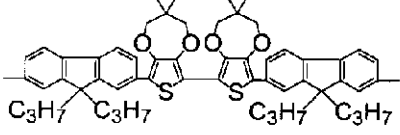
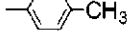
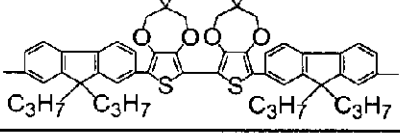
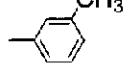
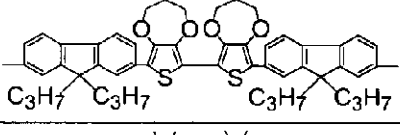
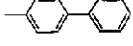
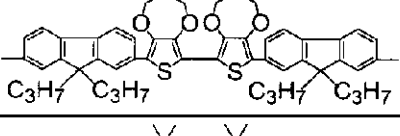

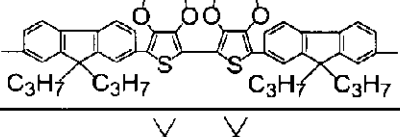
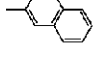
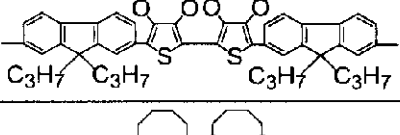
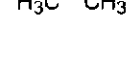
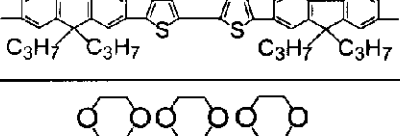

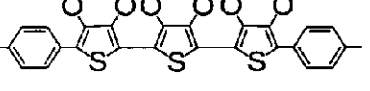

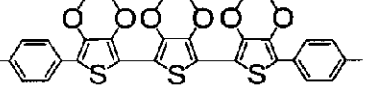
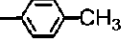
20

30

40

【 0 0 7 6 】

【表 3 1】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
326			4,4'	0	—
327			4,4'	1	$-(\text{CH}_2)_3-$
328			4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
329			4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
330			4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
331			4,4'	1	$-(\text{CH}_2)_3-$
332			4,4'	1	$-\text{CH}_2-$
333			4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
334			4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$
335			4,4'	1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$

10

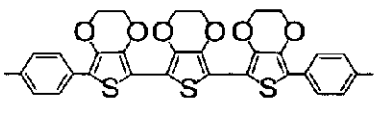
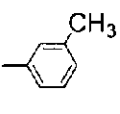
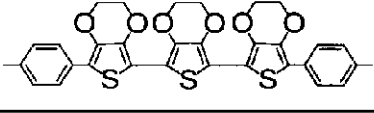
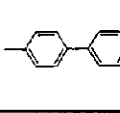
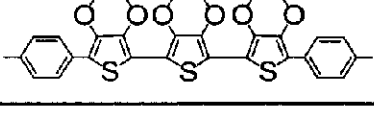
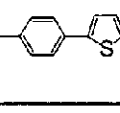
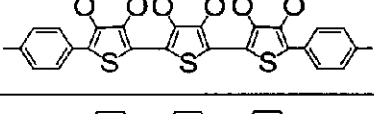
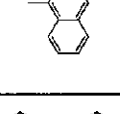
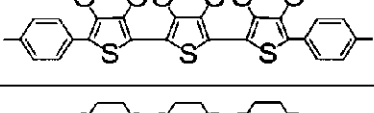
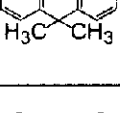
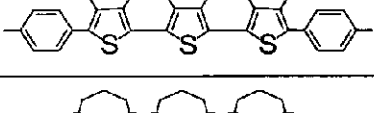
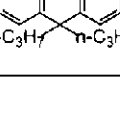
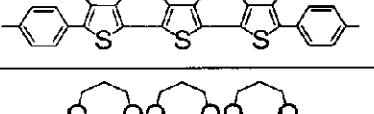
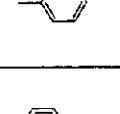
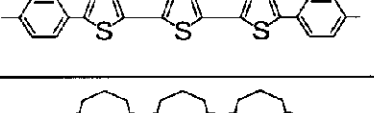
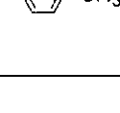
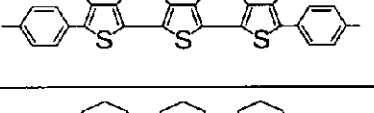
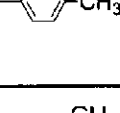
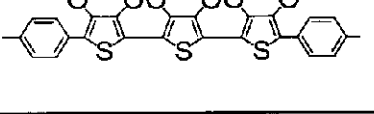
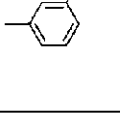
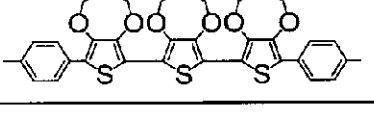
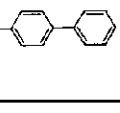
20

30

40

【 0 0 7 7 】

【表 3 2】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
336			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
337			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
338			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
339			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
340			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
341			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
342			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
343			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> -
344			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
345			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
346			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -

10

20

30

40

【 0 0 7 8 】

【表 3 3】

構造	X	Ar	結合位置	j	T
347			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
348			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
349			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
350			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
351			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
352			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
353			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
354			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
355			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
356			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -
357			4,4'	1	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -

10

20

30

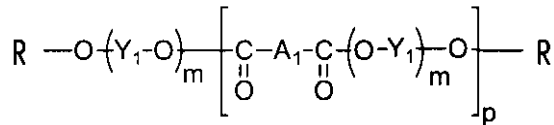
40

## 【0079】

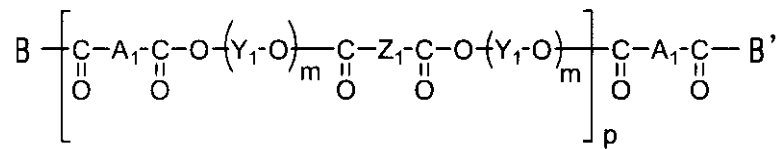
一般式 (I - 1) 及び (I - 2) で示される構造から選択された少なくとも1種を部分構造として含む繰り返し構造を有する電荷輸送性ポリエステルとしては、下記一般式 (II - 1) 及び (III - 2) で示されるものが好適に使用される。

## 【0080】

## 【化7】



(III-1)



(III-2)

10

## 【0081】

一般式 (III-1) 及び (III-2) において、 $A_1$  は前記一般式 (I-1) 及び (I-2) で示される構造から選択された少なくとも1種を表し、 $Y_1$  は2価のアルコール残基を表し、 $Z_1$  は2価のカルボン酸残基を表し、 $m$  は1~5の整数を表し、 $p$  は5~5000の整数を表す。また、 $R$ 、 $B$  及び  $B'$  はそれぞれ独立に、未置換及び置換基の芳香環数1~10の1価の縮合多核芳香族炭化水素、炭素数1~6の2価の直鎖状炭化水素

20

## 【0082】

一般式 (III-1) 及び (III-2) 中、 $A_1$  は、前記一般式 (I-1) 及び (I-2) で示される構造から選択された少なくとも1種を表し、一般式 (III-1) 及び (III-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、異なった構造であってもよい。

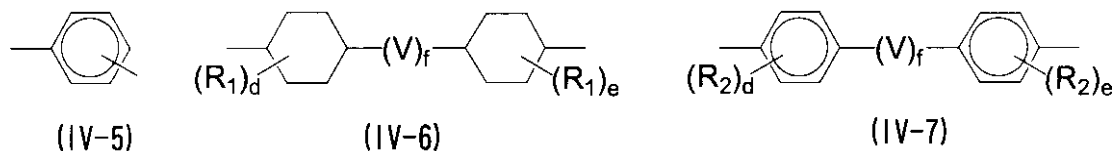
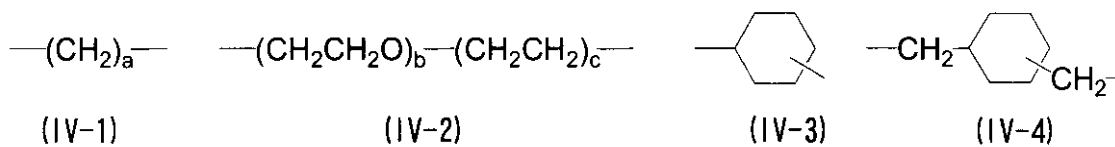
## 【0083】

一般式 (III-1) 及び (III-2) 中、 $Y_1$  及び  $Z_1$  は2価の炭化水素基を表し、より具体的には、 $Y_1$  は2価アルコール残基を、 $Z_1$  は2価カルボン酸残基を表す。 $Y_1$  及び  $Z_1$  は、具体的には下記式 (IV-1) ~ (IV-7) から選択される基が挙げら

30

## 【0084】

## 【化8】



40

## 【0085】

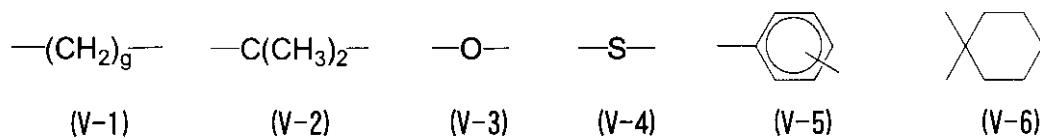
上記式 (IV-1) ~ (IV-7) 中、 $R_1$  及び  $R_2$  は、それぞれ水素原子、置換もしくは未置換の炭素数1~4のアルキル基、置換もしくは未置換の炭素数1~4のアルコキシ基、置換もしくは未置換のフェニル基または置換もしくは未置換のアラルキル基、また

50

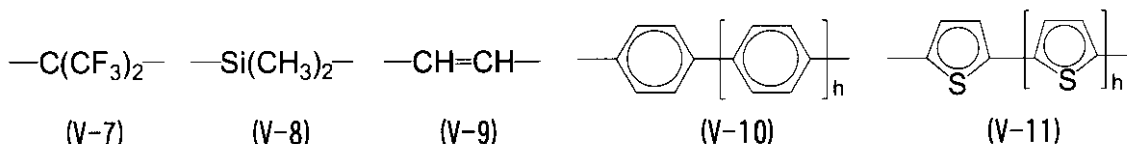
はハロゲン原子を表し、 $a \sim c$  はそれぞれ独立に 1 ~ 5 の整数を表し、 $d$  及び  $e$  は 0 ~ 2 の整数を表し、 $f$  は 0 または 1 を表し、 $V$  は下記 (V-1) ~ (V-11) で表される基を表す。

【0086】

【化9】



10



【0087】

上記式 (V-1)、(V-10) 及び (V-11) 中、 $g$  は 1 ~ 20 の整数を、 $h$  は 0 ~ 10 の整数を表す。

20

【0088】

一般式 (III-1) 及び (III-2) 中、 $m$  は 1 ~ 5 の整数を表し、 $p$  は 5 ~ 5, 000 の整数を表すが、好ましくは 10 ~ 1000 の範囲である。

【0089】






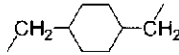




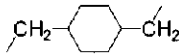
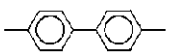

ここで、一般式 (III-1) 及び (III-2) で示される電荷輸送性ポリエステル  
の具体例を表34~表37に示すが、本発明はこれら具体例に限定されるわけではない。  
尚、下記表において、モノマーの列の  $A_1$  の欄の番号は、前記一般式 (I-1) 及び (I-2)  
で示される構造の具体例の構造番号に対応している。また、 $Z_1$  の欄が「-」であ  
るものは一般式 (III-1) で示される電荷輸送性ポリエステルの具体例を示し、その  
他は一般式 (III-2) で示される電荷輸送性ポリエステルの具体例を示す。

30

以下、下記表において化合物番号を付した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「例示化合物(15)」という。

【0090】

【表 3 4】

化合物	モノマー		Y <sub>1</sub>	Z <sub>1</sub>	m	p
	A <sub>1</sub>	比率				
(1)	1	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	45
(2)	2	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	56
(3)	3	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	34
(4)	7	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —		1	34
(5)	9	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —		1	34
(6)	13	—			2	57
(7)	17	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	45
(8)	24	—		—(CH <sub>2</sub> ) <sub>4</sub> —	1	48
(9)	30	—		—	1	34
(10)	32	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	45
(11)	35	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	67
(12)	38	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	54
(13)	45	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	34
(14)	47	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	65
(15)	49	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —		2	45
(16)	53	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—(CH <sub>2</sub> ) <sub>4</sub> —	1	34
(17)	56	—		—	1	45
(18)	60	—	—(CH <sub>2</sub> ) <sub>4</sub> —		2	45
(19)	62	—		—	1	65
(20)	64	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	43
(21)	67	—			1	45
(22)	71	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	23
(23)	74	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —		1	45
(24)	77	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	48

10


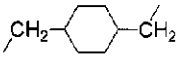
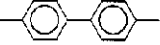



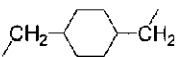
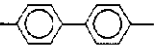


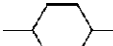

20

30

40

【 0 0 9 1 】

【表 3 5】

化合物	モノマー		Y <sub>1</sub>	Z <sub>1</sub>	m	p
	A <sub>1</sub>	比率				
(25)	86	—		—	1	34
(26)	91	—			1	49
(27)	94	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	40
(28)	96	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	45
(29)	98	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —		1	68
(30)	102	—		—	1	34
(31)	106	—		—	1	56
(32)	114	—			1	28
(33)	117	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	63
(34)	118	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —		1	27
(35)	120	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	47
(36)	124	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	45
(37)	136	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	49
(38)	141	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	41
(39)	142	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	25
(40)	148	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	47
(41)	151	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	34
(42)	153	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	25
(43)	159	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	27
(44)	161	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	29
(45)	165	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	42
(46)	169	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —		1	37
(47)	174	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	38
(48)	176	—		—	1	43
(49)	182	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	48
(50)	183	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —		1	58

10

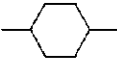
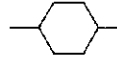


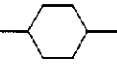

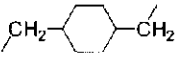
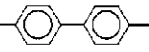


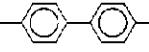
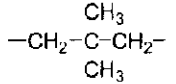
20

30

40

【 0 0 9 2 】

【表 3 6】

化合物	モノマー		Y <sub>1</sub>	Z <sub>1</sub>	m	p
	A <sub>1</sub>	比率				
(51)	184	—		—	1	22
(52)	187	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	25
(53)	191	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	44
(54)	193	—		—	1	36
(55)	196	—		—	1	45
(56)	198	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	38
(57)	201	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —		1	30
(58)	208	—		—	1	35
(59)	210	—		—	1	22
(60)	216	—			1	36
(61)	220	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	47
(62)	225	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —		1	43
(63)	228	—		—	1	44
(64)	231	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	47
(65)	233	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —		1	46
(66)	237	—		—	1	46
(67)	240	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	49
(68)	246	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	34
(69)	252	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	35

10





20

30

40

【 0 0 9 3 】

【表 3 7】

化合物	モノマー		Y <sub>1</sub>	Z <sub>1</sub>	m	p
	A <sub>1</sub>	比率				
(70)	255	—		—	1	34
(71)	260	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	24
(72)	267	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	44
(73)	279	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	48
(74)	282	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	53
(75)	287	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	61
(76)	289	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	39
(77)	291	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	30
(78)	305	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	48
(79)	308	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	39
(80)	309	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	48
(81)	313	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	52
(82)	320	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	61
(83)	325	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	48
(84)	328	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	38
(85)	340	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	54
(86)	341	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	48
(87)	351	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	62
(88)	354	—	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	33
(89)	64/71		—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	47
(90)	64/74	1/1	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	2	63
(91)	94/96	1/1			1	50
(92)	74/106	1/1	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	24
(93)	74/161	1/1	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	27
(94)	64/153	1/1	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	2	38
(95)	64/191	1/1	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	33
(96)	64/74/96	1/1/1	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	36
(97)	4/7/138	1/1	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	38
(98)	37/138	1/1	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —		1	38
(99)	37/270	1/2	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	35
(100)	37/303	2/1	—CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> —	—	1	38

10

20

30

40

## 【0094】

前記電荷輸送性ポリエステル重量平均分子量M<sub>w</sub>は5,000~1,000,000の範囲であることが好ましく、10,000~1,000,000の範囲であるのが特に好ましい。また、電荷輸送性ポリエステルのガラス転移点(T<sub>g</sub>)は60以上であることが好ましい。

上記重量平均分子量M<sub>w</sub>は以下の方法により測定することができる。すなわち重量平均分子量は、電荷輸送性ポリエステルの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した。

またガラス転移点は、示差走査型熱量計により-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>をリファレンスとし、サ

50

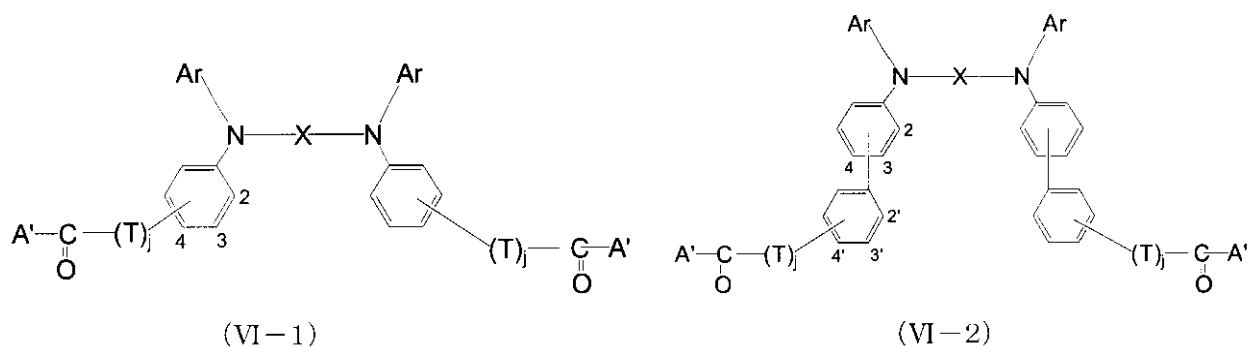
ンプルをゴム状態になるまで昇温し、液体窒素に浸し急冷した後、再度昇温速度 10 / 分の条件で昇温して測定することができる。

【0095】

一般式 (III-1) 及び (III-2) で表される電荷輸送性ポリエステルは、例えば、下記構造式 (VI-1) 及び (VI-2) で示される電荷輸送性モノマーを、例えば第4版実験化学講座28巻(日本化学会編、丸善、1992)などに記載された公知の方法で重合することにより合成することができる。

【0096】

【化10】



10

20

【0097】

一般式 (VI-1) 及び (VI-2) 中、Ar、X、T、j は前記一般式 (I-1) 及び (I-2) における Ar、X、T、j と同様である。A' は水酸基、ハロゲン原子、または -O-R (R は、置換または未置換のアルキル基、置換または未置換のアリール基または置換または未置換のアラルキル基を表す) を表す。

【0098】

ここでまず、上記一般式 (VI-1) 及び (VI-2) で示される電荷輸送性モノマーの合成法について説明する。以下に電荷輸送性モノマーを合成法を例示するが、これに限定するものではない。

まず、アルキレンジオキシチオフエンを DMF、DMSO 等に溶解し、0 以下に冷却し、N-ブロモこはく酸イミド (NBS、以下同様である) を滴下した後、純水を加えトルエンで抽出し、2-ハロゲンアルキレンジオキシチオフエンを得る。これをマグネシウムを含むドライアイス等で冷却した THF 中からグリニャール試薬を得た後、ジヨードベンゼン等のジハロゲン芳香族化合物を加え、室温に戻した後パラジウム触媒を溶解させ、数時間還流する。10% 程度の塩化アンモニウム水溶液を加え、酢酸エチル、トルエン等で抽出する。これを NBS、N-クロロこはく酸イミド (NCS、以下同様である) 等でハロゲン化し、Ullmann カップリング反応等でジフェニルアミンと反応させた後、塩化ニッケル、亜鉛、トリフェニルホスフィンを触媒に用いて、電荷輸送性モノマーを得ることができる。反応雰囲気は、窒素、アルゴン等の不活性雰囲気下が望ましく、各工程においてシリカゲルカラムクロマトグラフィー及び再結晶により精製してもよい。

30

40

【0099】

上記のようにして得られた一般式 (VI-1) 及び (VI-2) で示される電荷輸送性モノマーを用い、公知の方法で重合することにより、前記一般式 (III-1) 及び (III-2) で示される電荷輸送性ポリエステルを合成することができる。具体的には、以下のような合成法が挙げられる。

【0100】

[1] A' が水酸基の場合

A' が水酸基の場合には、HO-(Y<sub>1</sub>-O)<sub>m</sub>-H で示される 2 価アルコール類をほぼ当量 (質量比) 混合し、酸触媒を用いて重合する。なお、上記 Y<sub>1</sub> 及び m は、前記一般式 (III-1) 及び (III-2) における Y<sub>1</sub> 及び m と同様である。

50

上記酸触媒としては、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, 000 ~ 1 / 10 質量部、好ましくは 1 / 1, 000 ~ 1 / 50 質量部の範囲で用いられる。合成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好ましく、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 ~ 100 質量部、好ましくは 2 ~ 50 質量部の範囲で用いられる。反応温度は任意に設定できるが、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好ましい。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、ポリマーを析出させ、ポリマーを分離した後、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、ポリマー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好ましい。再沈殿処理の際にポリマーを溶解させる溶剤は、モノマー 1 質量部に対して、1 ~ 100 質量部、好ましくは 2 ~ 50 質量部の範囲で用いられる、また、貧溶剤はモノマー 1 質量部に対して、1 ~ 1, 000 質量部、好ましくは 10 ~ 500 質量部の範囲で用いられる。

10

## 【0101】

## [2] A' がハロゲンの場合

A' がハロゲンの場合には、 $\text{HO} - (\text{Y}_1 - \text{O})_m - \text{H}$ で示される 2 価アルコール類をほぼ当量 (質量比) 混合し、ピリジンやトリエチルアミン等の有機塩基性触媒を用いて重合する。なお、上記  $\text{Y}_1$  及び  $m$  は、前記一般式 (III-1) 及び (III-2) における  $\text{Y}$  及び  $m$  と同様である。

20

上記有機塩基性触媒は、モノマー 1 質量部に対して、1 ~ 10 質量部、好ましくは 2 ~ 5 質量部の範囲で用いられる。溶剤としては、塩化メチレン、テトラヒドロフラン (THF)、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 ~ 100 質量部、好ましくは 2 ~ 50 質量部の範囲で用いられる。反応温度は任意に設定できる。重合後、前記 [1] の場合と同様に再沈殿処理し、精製することができる。また、ビスフェノール等の酸性度の高い 2 価のアルコール類を用いる場合には、界面重合法も用いることができる。すなわち、2 価のアルコール類に水を加え、当量 (質量比) の塩基を加えて、溶解させた後、激しく攪拌しながら 2 価のアルコール類と当量のモノマー溶液を加えることによって重合できる。この際、水は 2 価アルコール類 1 質量部に対して、1 ~ 1, 000 質量部、好ましくは 2 ~ 500 質量部の範囲で用いられる。モノマーを溶解させる溶剤としては、塩化メチレン、ジクロロエタン、トリクロロエタン、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る。反応温度は任意に設定でき、反応を促進するために、アンモニウム塩、スルホニウム塩等の相間移動触媒を用いることが効果的である。相間移動触媒は、モノマー 1 質量部に対して、0.1 ~ 10 質量部、好ましくは 0.2 ~ 5 質量部の範囲で用いられる。

30

## 【0102】

## [3] A' が -O-R の場合

A' が -O-R の場合には、 $\text{HO} - (\text{Y}_1 - \text{O})_m - \text{H}$ で示される 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、亜鉛等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できる。尚、上記  $\text{Y}_1$  及び  $m$  は、前記一般式 (III-1) 及び (III-2) における  $\text{Y}_1$  及び  $m$  と同様である。

40

2 価アルコール類はモノマー 1 質量部に対して、2 ~ 100 質量部、好ましくは 3 ~ 50 質量部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 / 1, 000 ~ 1 質量部、好ましくは 1 / 100 ~ 1 / 2 質量部の範囲で用いられる。反応は、反応温度 200 ~ 300 で行い、基 -O-R から基  $\text{HO} - (\text{Y}_1 - \text{O})_m - \text{H}$  へのエステル交換終了後は基  $\text{HO} - (\text{Y}_1 - \text{O})_m - \text{H}$  の脱離による重合反応を促進するため、減圧下で反応

50

させることが好ましい。また、基  $\text{HO} - (\text{Y}_1 - \text{O})_m - \text{H}$  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、減圧下で基  $\text{HO} - (\text{Y}_1 - \text{O})_m - \text{H}$  を共沸で除きながら反応させることもできる。

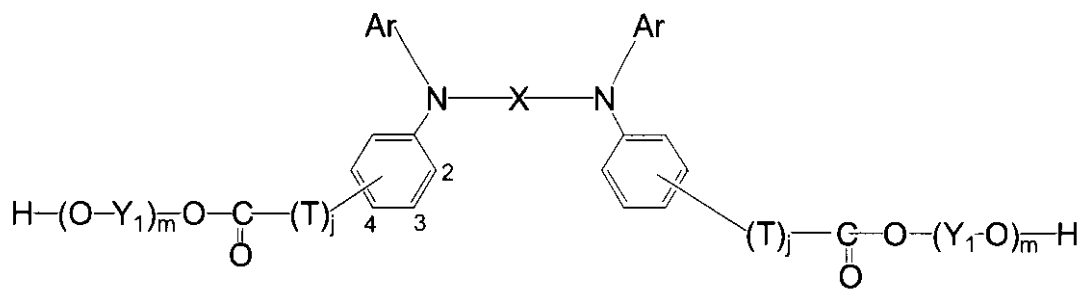
【0103】

また、一般式 (III - 1) 及び (III - 2) で示される電荷輸送性ポリエステルは、次のようにして合成することができる。上記 [1] ~ [3] の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構造式 (VII - 1) または (VII - 2) で示される化合物を生成した後、これをモノマーとして用いて、上記 [2] と同様の方法で、2 価カルボン酸または 2 価カルボン酸ハロゲン化物等と反応させればよく、それによってポリマーを得ることができる。

10

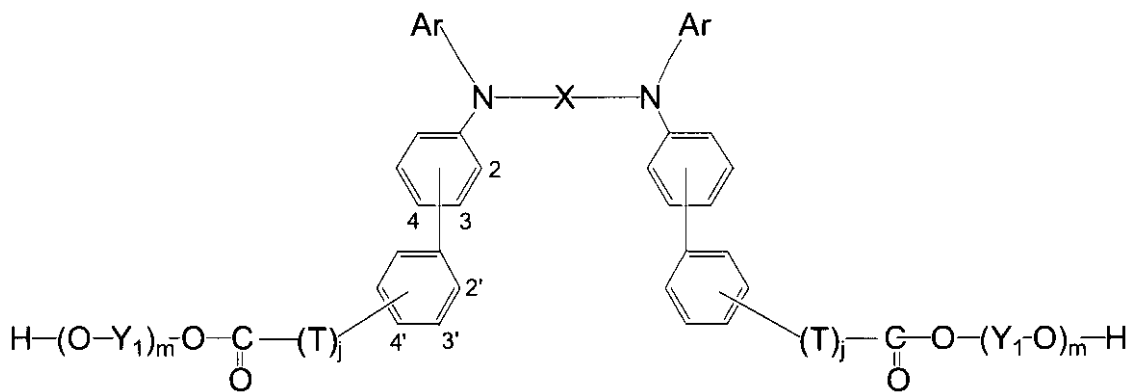
【0104】

【化11】



(VII-1)

20



(VII-2)

30

【0105】

なお、一般式 (VII - 1) 及び (VII - 2) 中、Ar、X、T、j は前記一般式 (I - 1) 及び (I - 2) における Ar、X、T、j と同様であり、 $\text{Y}_1$ 、m は前記 (III - 1) 及び (III - 2) における  $\text{Y}_1$ 、m と同様である。

40

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っても良い。その場合、次のような方法が挙げられる。すなわち、A' が水酸基の場合、末端導入化合物のモノカルボン酸を仕込んで反応させ導入することができる。さらに、A' 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することができる。

上記 [1] ~ [3] の合成法のうち、本発明における電荷輸送性ポリエステルとしては、[1] の合成法によることが特に好ましい。

【0106】

次に、本発明の有機電界発光素子の構成について詳述する。

本発明の有機電界発光素子は、少なくとも一方が透明または半透明である一対の電極と

50

、それら電極間に挟持された一つまたは複数の有機化合物層より構成され、該有機化合物層の少なくとも一層に上記に説明したような電荷輸送性ポリエステルを少なくとも1種含有してなるものであればその層構成は特に限定されない。

【0107】

本発明の有機電界発光素子においては、有機化合物層が1つの場合は、有機化合物層は電荷輸送能を持つ発光層を意味し、該発光層が前記電荷輸送性ポリエステルを含有してなる。一方、有機化合物層が複数の場合（即ち、各層が異なる機能を有する機能分離型の場合）は、少なくともいずれか一層が発光層からなり、この発光層は電荷輸送能を持つ発光層であってもよい。この場合、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としては、下記（1）～（3）が挙げられる。

10

【0108】

（1）発光層と、電子輸送層及び/または電子注入層と、から構成される層構成。  
（2）正孔輸送層及び/または正孔注入層と、発光層と、電子輸送層及び/または電子注入層と、から構成される層構成。  
（3）正孔輸送層及び/または正孔注入層と、発光層と、から形成される層構成。

【0109】

これら層構成（1）～（3）の発光層及び電荷輸送能を持つ発光層以外の層は、電荷輸送層や電荷注入層としての機能を有する。

【0110】

なお、層構成（1）～（3）のいずれの層構成においても、いずれか一層に前記電荷輸送性ポリエステルが含まれていればよい。

20

【0111】

また、本発明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、電子注入層は、前記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）を更に含んでもよい。このような電荷輸送性化合物の詳細については後述する。

【0112】

以下、図面を参照しつつ、より詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるわけではない。

図1～図4は、本発明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、図3の場合は、有機化合物層が複数の場合の一例であり、図4の場合は、有機化合物層が1つの場合の例を示す。なお、図1～図4において、同様の機能を有するものは同じ符号を付して説明する。

30

【0113】

図1に示す有機電界発光素子は、透明絶縁体基板1上に、透明電極2、発光層4、電子輸送層及び/または電子注入層5並びに背面電極7が順次積層されたもので、層構成（1）に相当するものである。但し、符号5で示される層が、電子輸送層及び電子注入層からなる場合には、発光層4の背面電極7側に、電子輸送層、電子注入層、背面電極7がこの順に積層される。

【0114】

図2に示す有機電界発光素子は、透明絶縁体基板1上に、透明電極2、正孔輸送層及び/または正孔注入層3、発光層4、電子輸送層及び/または電子注入層5並びに背面電極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。但し、符号3で示される層が、正孔輸送層及び正孔注入層からなる場合には、透明電極2の背面電極7側に、正孔注入層、正孔輸送層、発光層4がこの順に積層される。また、符号5で示される層が、電子輸送層及び電子注入層からなる場合には、発光層4の背面電極7側に、電子輸送層、電子注入層、背面電極7がこの順に積層される。

40

【0115】

図3に示す有機電界発光素子は、透明絶縁体基板1上に、透明電極2、正孔輸送層及び/または正孔注入層3、発光層4並びに背面電極7が順次積層されたもので、層構成（3

50

)に相当するものである。但し、符号3で示される層が、正孔輸送層及び正孔注入層からなる場合には、透明電極2の背面電極7側に、正孔注入層、正孔輸送層、発光層4がこの順に積層される。

【0116】

図4に示す有機電界発光素子は、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。

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事も可能である。

以下、各々を詳しく説明する。

【0117】

本発明における前記電荷輸送性ポリエステルには、含有される有機化合物層の機能によって、正孔輸送能、電子輸送能のいずれの機能をも付与することができる。

例えば、前記電荷輸送性ポリエステルは、図1に示される有機電界発光素子の層構成の場合、発光層4及び電子輸送層5のいずれに含有されてもよく、発光層4及び電子輸送層5としていずれも作用することができる。また、図2に示される有機電界発光素子の層構成の場合、正孔輸送層3、発光層4及び電子輸送層5のいずれに含有されてもよく、正孔輸送層3、発光層4及び電子輸送層5としていずれも作用することができる。また、図3に示される有機電界発光素子の層構成の場合、正孔輸送層3及び発光層4のいずれに含有されてもよく、正孔輸送層3及び発光層4としていずれも作用することができる。さらに、図4に示される有機電界発光素子の層構成の場合、電荷輸送能を持つ発光層6に含有し、電荷輸送能を持つ発光層6として作用することができる。

【0118】

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なものが好ましく、ガラス、プラスチックフィルム等が用いられるがこれに限られるものではない。当該透明とは、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。また、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の透明であって、且つ正孔の注入を行うため仕事関数の大きなものが好ましく、仕事関数が4 eV以上のものが好ましい。

【0119】

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が、これに限られるものではない。電極のシート抵抗は、低いほどが望ましく、数百 / 以下が好ましく、さらには100 / 以下がより好ましい。また、透明絶縁体基板同様に、可視領域の光の透過率が10%以上で、更に透過率が75%以上であることが好ましい。

【0120】

図1及び図2に示される有機電界発光素子の層構成の場合、電子輸送層5は、目的に応じて機能(電子輸送能)が付与された前記電荷輸送性ポリエステル単独で形成されていてもよいが、電気的特性をさらに改善する等の目的として、正孔移動度を調節するため、前記電荷輸送性ポリエステル以外の正孔輸送材料を、電子輸送層5を構成する材料全体に対して0.1質量%ないし50質量%の範囲で混合分散して形成されてもよい。このような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、アリールヒドラゾン誘導体、ポルフィリン系化合物が挙げられ、具体例として下記例示化合物(VIII-1)～(VIII-7)が挙げられる。これらの中では、電荷輸送性ポリエステルとの相溶性がよいことから、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好ましい。また、他の汎用の樹脂等との混合でもよい。なお、前記電荷輸送性ポリエステルを用いない場合は、これら電荷輸送性材料単独あるいは組み合わせて形成されることとなる。

【0121】

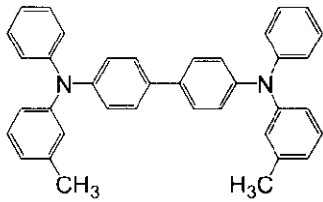
10

20

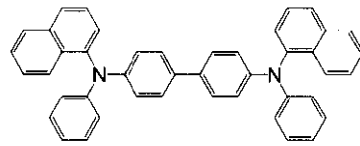
30

40

## 【化 1 2】

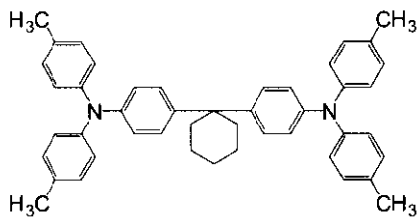


(VIII-1)

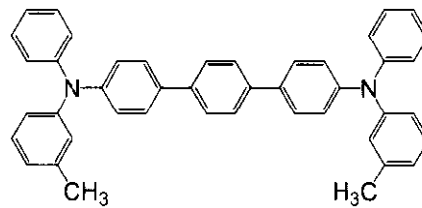


(VIII-2)

10

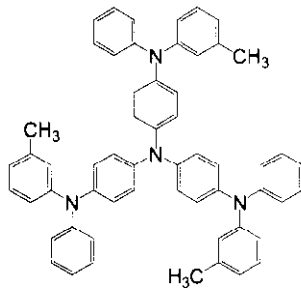


(VIII-3)

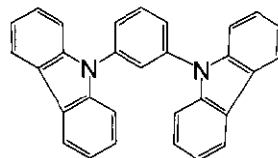


(VIII-4)

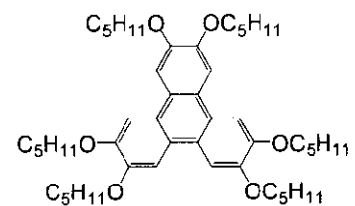
20



(VIII-5)



(VIII-6)



(VIII-7)

30

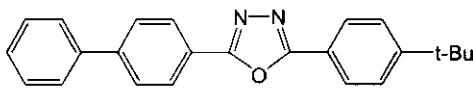
## 【 0 1 2 2】

また、同様に、電子移動度を調整する場合は、電子輸送層 5 を構成する材料全体に対して電子輸送材料を 0.1 質量% から 50 質量% の範囲で混合分散して形成されてもよい。このような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ン誘導体、ジフェノキノン誘導体、チオピランジオキsid誘導体、シロール誘導体、キレート型有機金属錯体、多核または縮合芳香環化合物、ペリレン誘導体、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。具体例として、下記例示化合物 (IX-1) ~ (IX-4) が挙げられるが、これらに限定されるものではない。また、単独ではなく複数の電子輸送材料と組み合わせてもよい。なお、前記電荷輸送性ポリエステルを用いない場合、これら電子輸送材料を単独あるいは組み合わせで形成されこととなる。

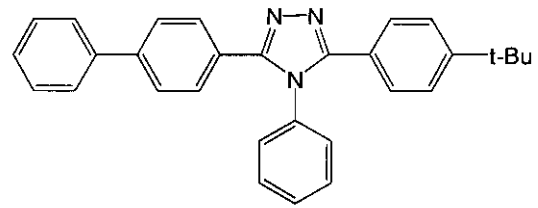
40

## 【 0 1 2 3】

## 【化 1 3】

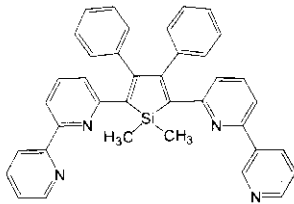


(IX-1)

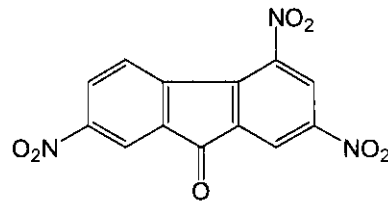


(IX-2)

10



(IX-3)



(IX-4)

20

## 【0 1 2 4】

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前記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。

## 【0 1 2 5】

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

30

## 【0 1 2 6】

また、電荷注入性を向上させる場合は、正孔注入層及び/又は電子注入層を用いる場合があるが、正孔注入材料としては、トリフェニルアミン誘導体、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、Ba、Sr、Ag、Au等の金属、LiF、MgF等の金属フッ化物、MgO、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、LiO等の金属酸化物、CsCO<sub>3</sub>やキレート型有機金属錯や1,10-フェナントロリン誘導体に金属を混合させた有機物が用いられる。

40

## 【0 1 2 7】

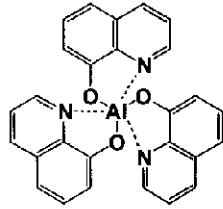
また、前記電荷輸送性ポリエステルを発光機能以外で用いる場合は、発光性化合物を発光材料として用いる。発光材料としては、固体状態で高い発光量子効率を示す化合物を用いる。発光材料は、低分子化合物または高分子化合物どちらでもよく、有機低分子である場合の好適な例としては、キレート型有機金属錯体、多核または縮合芳香環化合物、ペリレン誘導体、クマリン誘導体、スチリルアリーレン誘導体、シロール誘導体、オキサゾー

50

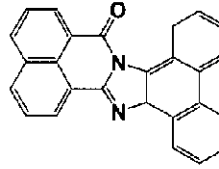
ル誘導体、オキサチアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体等が、高分子の場合、ポリパラフェニレン誘導体、ポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリチオフェン誘導体、ポリアセチレン誘導体等が用いられる。好適な具体例として、下記の化合物(X-1)~(X-17)が用いられるが、これらに限定されたものではない。

【0128】

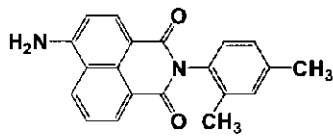
【化14】



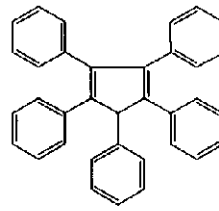
(X-1)



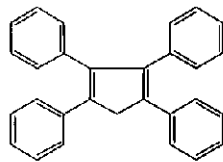
(X-2)



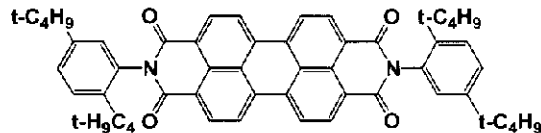
(X-3)



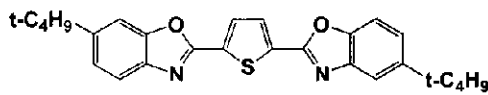
(X-4)



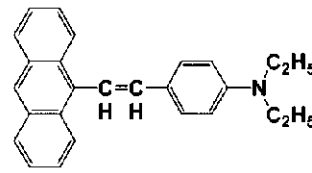
(X-5)



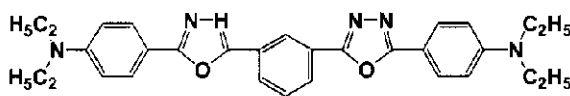
(X-6)



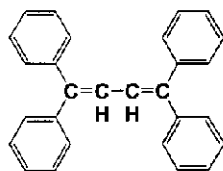
(X-7)



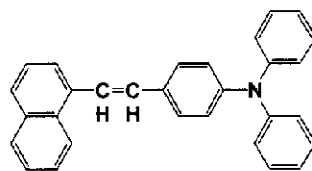
(X-8)



(X-9)



(X-10)



(X-11)

10

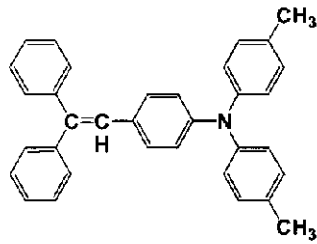
20

30

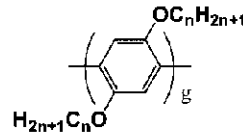
40

【0129】

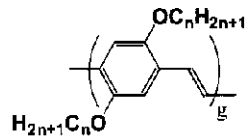
## 【化 1 5】



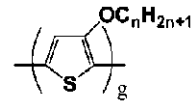
(X-12)



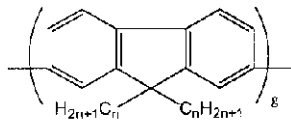
(X-13)



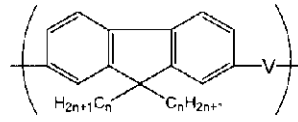
(X-14)



(X-15)



(X-16)



(X-17)

10

20

## 【0130】

なお、上記構造式 (X-13) ~ (X-17) 中、V は前記 Ar<sub>1</sub> と同様の 2 価の有機基、n 及び g はそれぞれ独立に 1 以上の整数を表す。

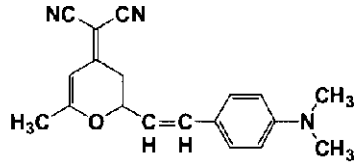
## 【0131】

また、有機電界発光素子の耐久性向上あるいは発光効率向上を目的として、上記発光材料中にゲスト材料として発光材料と異なる色素化合物をドーピングしてもよい。真空蒸着によって発光層を形成する場合、共蒸着によってドーピングを行い、溶液または分散液を塗布・乾燥することで発光層を形成する場合、溶液または分散液中に混合することでドーピングを行う。発光層中における色素化合物のドーピングの割合としては 0.001 質量% ~ 40 質量%、好ましくは 0.01 質量% ~ 10 質量% である。このようなドーピングに用いられる色素化合物としては、発光材料との相容性が良く、かつ発光層の良好な薄膜形成を妨げない有機化合物が用いられ、好適には DCM 誘導体、キナクリドン誘導体、ルブレン誘導体、ポルフィリン系化合物等が挙げられる。好適な具体例として、下記の化合物 (XI-1) ~ (XI-6) が用いられるが、これらに限定されたものではない。

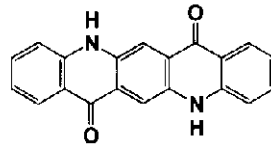
30

## 【0132】

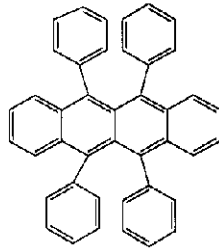
## 【化 1 6】



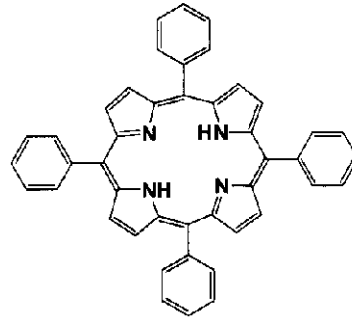
(X I - 1)



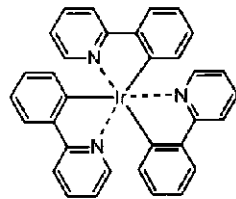
(X I - 2)



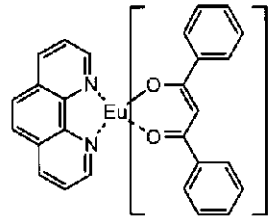
(X I - 3)



(X I - 4)



(X I - 5)



(X I - 6)

10

20

## 【 0 1 3 3 】

また、発光層 4 は、前記発光材料単独で形成されていても良いが、電気特性及び発光特性をさらに改善する等の目的で、前記発光材料に前記電荷輸送性ポリエステルを 1 質量% ないし 50 質量% の範囲で混合・分散して形成させてもよい。もしくは前記発光性高分子中に、前記電荷輸送性ポリエステル以外の電荷輸送性材料を 1 質量% ないし 50 質量% の範囲で混合・分散して形成させてもよい。また、前記電荷輸送性ポリエステルが発光特性も兼ね備えたものである場合、発光材料として用いてもよく、その場合、電気特性及び発光特性をさらに改善する等の目的で、前記発光材料に前記電荷輸送性ポリエステル以外の電荷輸送性材料を 1 質量% ないし 50 質量% の範囲で混合分散して形成させてもよい。

30

## 【 0 1 3 4 】

図 4 に示される有機電界発光素子の層構成の場合、電荷輸送能を持つ発光層 6 は、目的に応じて機能（正孔輸送能、あるいは電子輸送能）が付与された前記電荷輸送性ポリエステル中に、発光材料（好ましくは、前記発光材料（X - 1）～（X - 17）から選ばれる少なくとも 1 種）を 50 質量% 以下で分散させた有機化合物層であるが、有機電界発光素子に注入される正孔と電子のバランスを調節するために前記電荷輸送性ポリエステル以外の電荷輸送材料を 10 質量% ないし 50 質量% 分散させてもよい。このような電荷輸送材料としては、電子移動度を調節する場合、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ン誘導体、ジフェノキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、フルオレニデンメタン誘導体等が挙げられる。好適な具体例として、上記例示化合物（IX - 1）～（IX - 4）が挙げられる。

40

## 【 0 1 3 5 】

また、前記電荷輸送性ポリエステルと強い相互作用を示さない有機化合物が用いられることが好ましく、より好ましくは例示化合物（IV - 1）が用いられるが、これに限定さ

50

れるものではない。

【0136】

同時に正孔移動度を調節する場合、正孔輸送材料として、好適にはテトラフェニレンジアミン誘導体、トリフェニルアミン誘導体、カルバゾール誘導体、スチルベン誘導体、アリアルヒドラゾン誘導体、ポルフィリン系化合物等、特に好適な具体例としては前記例示化合物(VIII-1)~(VIII-7)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が好ましい。

【0137】

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が一般に使用されるが、特に好ましくはマグネシウム、アルミニウム、銀、インジウム及びこれらの合金、もしくはフッ化リチウムや酸化リチウム等の金属ハロゲン化合物や金属酸化物である。また、背面電極7上には、さらに素子の水分や酸素による劣化を防ぐために保護層を設けてもよい。具体的な保護層の材料としては、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Alなどの金属、MgO、SiO<sub>2</sub>、TiO<sub>2</sub>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できる。

【0138】

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、正孔輸送層及び/または正孔注入層3、発光層4、電子輸送層及び/または電子注入層5、或いは、電荷輸送能を持つ発光層6は、上記各材料を真空蒸着法、もしくは、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。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理由から、前記インクジェット法を用いることが好ましく、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好ましい。

【0139】

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を形成することができる。

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できる。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)が利用できる。

【0140】

しかしながら、本発明の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好ましい。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。

【0141】

また、インクジェット法を利用した本発明の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

10

20

30

40

50

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。

【0142】

なお、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0.01~1000cpsの範囲内であることが好ましく、1~100cpsの範囲内であることが好ましい。

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。

10

【0143】

なお、有機化合物層用塗布液の粘度は、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、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、所望の値に調整することができる。

【0144】

正孔輸送層及び/または正孔注入層3、発光層4、電子輸送層及び/または電子注入層5、並びに、電荷輸送能を持つ発光層6の膜厚は、各々10μm以下、特に0.001~5μmの範囲であることが好ましい。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微粒子状態でも構わない。塗布液を用いた成膜法の場合、分子分散状態とするために分散溶媒は上記各材料の分散性及び溶解性を考慮して選択する必要がある。微粒子状に分散するためには、ボールミル、サンドミル、ペイントシェイカー、アトライター、ホモジナイザー、超音波法等が利用できる。

20

また、図1及び図2に示す有機電界発光素子の場合には、電子輸送層及び/または電子注入層5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発明の有機電界発光素子が得られる。また、図3に示す有機電界発光素子の場合には、発光層4の上に、図3に示す有機電界発光素子の場合には、電荷輸送能を持つ発光層6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発明の有機電界発光素子が得られる。

【0145】

本発明の有機電界発光素子は、一对の電極間に、例えば、4~20Vで、電流密度1~200mA/cm<sup>2</sup>の直流電圧を印加することによって発光させることができる。

30

【0146】

<画像表示媒体>

本発明の画像表示媒体は、本発明の有機電界発光素子を、マトリクス状及び/又はセグメント状に配置したことを特徴とする。本発明において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、本発明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。

40

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。

マトリクス状の有機電界発光素子及びセグメント状の有機電界発光素子の駆動装置及び駆動方法としては、従来公知のものを用いることができる。

【実施例】

【0147】

以下、本発明を、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、本発明を制限するものではない。

【0148】

<電荷輸送性ポリエステルの合成>

50

## (合成例 1)

3, 4 - エチレンジオキシチオフエン (70.3 mmol) を DMF 150 ml に溶解し、-50 に冷却し、NBS の DMF 溶液 (63.3 mmol / 50 ml) を滴下した。1000 ml の純水に入れ攪拌した後、トルエンを加え抽出し、2 - ブロモ - 3, 4, - エチレンジオキシチオフエン (70.0 mmol) を得た。一方、マグネシウム (77 mmol) を 20 ml の THF に溶解させた後還流させ、これに 2 - ブロモ - 3, 4, - エチレンジオキシチオフエン (70 mmol) の THF 溶液を滴下した。これに、ジヨードベンゼン (70 mmol) と 1, 1' - ビス (ジフェニルホスフィノ) フェロセン - パラジウム (II) ジクロリド - ジクロロメタン錯体 (0.7 mmol) を溶かした THF 溶液 (70 ml) を滴下し、60 で加熱した。冷却後、20% 塩化アンモニウム水溶液に加えて攪拌した後、THF 溶液を抽出した。これを、シリカゲルカラムクロマトグラフィー (ヘキサン : 酢酸エチル = 9 : 1) にて精製し 2 - (5 - ヨードフェニル) - 3, 4 - エチレンジオキシチオフエンを得た。

10

## 【0149】

これを DMF に溶解し、NCS を加えて攪拌し、純水を加え沈殿物をろ過した。これを、シリカゲルカラムクロマトグラフィー (ヘキサン : 酢酸エチル = 9 : 1) にて精製した後、ジフェニルアミン、硫酸銅 (II) 五水和物及び炭酸カリウムと共に 1, 2 - ジクロロベンゼンに溶かし還流させ反応を終了した。その後、トルエンを加え、シリカゲルカラムクロマトグラフィー (ヘキサン : 酢酸エチル = 8 : 1) にて精製して、得られた化合物を無水塩化銅と酢酸パラジウムと共に無水 THF に溶かし還流した。反応終了後、酢酸エチルを加え、5% EDTA 水溶液、純水で洗浄した後、シリカゲルカラムクロマトグラフィー (ヘキサン : 酢酸エチル = 4 : 1) にて精製し、表 7 の〔構造番号 71〕を有する両末端カルボキシル基モノマーを得た。

20

## 【0150】

上記モノマー 1.0 g、エチレングリコール 3.0 g 及びテトラブトキシチタン 0.04 g を 100 ml の三口ナスフラスコに入れ、窒素気流下、200 で 3 時間加熱攪拌した。化合物 (71) が消費されたことを確認した後、0.5 mmHg に減圧してエチレングリコールを留去しながら 230 に加熱し、5 時間反応を続けた。その後、室温まで冷却し、テトラヒドロフラン 200 ml に溶解し、不溶物を 0.5 μm のポリテトラフルオロエチレン (PTFE) フィルターにてろ過し、ろ液をメタノールと酢酸エチルの混合溶媒 (4 : 1) 500 ml を攪拌している中に滴下し、ポリマーを析出させた。得られたポリマーをろ過し、十分にメタノールで洗浄した後、乾燥させ、1.0 g の例示化合物 (22) を得た。

30

## 【0151】

## (合成例 2)

3, 4 - エチレンジオキシチオフエン (70.3 mmol) を DMF 150 ml に溶解し、-50 に冷却し、NBS の DMF 溶液 (63.3 mmol / 50 ml) を滴下した。これを 1000 ml の純水に入れ攪拌した後、トルエンを加え抽出し、2 - ブロモ - 3, 4, - エチレンジオキシチオフエン (70.0 mmol) を得た。一方、マグネシウム (77 mmol) を 20 ml の THF に溶解させた後還流させ、2 - ブロモ - 3, 4, - エチレンジオキシチオフエン (70 mmol) の THF 溶液を滴下した。これに、ジヨードベンゼン (70 mmol) と 1, 1' - ビス (ジフェニルホスフィノ) フェロセン - パラジウム (II) ジクロリド - ジクロロメタン錯体 (0.7 mmol) を溶かした THF 溶液 (70 ml) を滴下し、60 で加熱した。冷却後、20% 塩化アンモニウム水溶液に加えて攪拌した後、THF 溶液を抽出した。これを、シリカゲルカラムクロマトグラフィー (ヘキサン : 酢酸エチル = 9 : 1) にて精製し 2 - (5 - ヨードフェニル) - 3, 4 - エチレンジオキシチオフエンを得た。

40

## 【0152】

これを DMF に溶解し、NCS を加えて攪拌し、純水を加え沈殿物をろ過した。これを、シリカゲルカラムクロマトグラフィー (ヘキサン : 酢酸エチル = 9 : 1) にて精製した

50

後、ジフェニルアミン、硫酸銅 ( I I ) 五水和物、炭酸カリウムと共に 1 , 2 - ジクロロベンゼンに溶かし還流させ反応を終了した。その後、トルエンを加え、シリカゲルカラムクロマトグラフィー ( ヘキサン : 酢酸エチル = 8 : 1 ) にて精製した化合物を無水塩化銅と酢酸パラジウムと共に無水 T H F に溶かし還流した。反応終了後、酢酸エチルを加え、5 % E D T A 水溶液、純水で洗浄した後、シリカゲルカラムクロマトグラフィー ( ヘキサン : 酢酸エチル = 4 : 1 ) にて精製し、表 6 の [ 構造番号 6 4 ] を有する両末端カルボキシル基モノマーを得た。

【 0 1 5 3 】

上記モノマー 1 . 0 g 、エチレングリコ - ル 3 . 0 g 及びテトラブトキシチタン 0 . 0 4 g を 1 0 0 m l の三口ナスフラスコに入れ、窒素気流下、2 0 0 で 3 時間加熱攪拌した。化合物 ( 6 4 ) が消費されたことを確認した後、0 . 5 m m H g に減圧してエチレングリコ - ルを留去しながら 2 3 0 に加熱し、5 時間反応を続けた。その後、室温まで冷却し、テトラヒドロフラン 2 0 0 m l に溶解し、不溶物を 0 . 5 μ m のポリテトラフルオロエチレン ( P T F E ) フィルターにてろ過し、ろ液をメタノールと酢酸エチルの混合溶媒 ( 4 : 1 ) 5 0 0 m l を攪拌している中に滴下し、ポリマーを析出させた。得られたポリマーをろ過し、十分にメタノールで洗浄した後、乾燥させ、0 . 9 g の例示化合物 ( 2 0 ) を得た。

10

【 0 1 5 4 】

( 合成例 3 )

3 , 4 - エチレンジオキシチオフエン ( 7 0 . 3 m m o l ) を D M F 1 5 0 m l に溶解し、- 5 0 に冷却し、N B S の D M F 溶液 ( 6 3 . 3 m m o l / 5 0 m l ) を滴下した。これに 1 0 0 0 m l の純水に入れ攪拌した後、トルエンを加え抽出し、2 - ブロモ - 3 , 4 , - エチレンジオキシチオフエン ( 7 0 . 0 m m o l ) を得た。一方、マグネシウム ( 7 7 m m o l ) を 2 0 m l の T H F に溶解させた後還流させ、2 - ブロモ - 3 , 4 , - エチレンジオキシチオフエン ( 7 0 m m o l ) の T H F 溶液を滴下した。これに、2 , 7 - ジヨ - ド - 9 , 9 - ジメチルフルオレン ( 7 0 m m o l ) と 1 , 1 ' - ビス ( ジフェニルホスフィノ ) フェロセン - パラジウム ( I I ) ジクロリド - ジクロロメタン錯体 ( 0 . 7 m m o l ) を溶かした T H F 溶液 ( 7 0 m l ) を滴下し、6 0 で加熱する。冷却後、2 0 % 塩化アンモニウム水溶液に加えて攪拌した後、T H F 溶液を抽出した。これを、シリカゲルカラムクロマトグラフィー ( ヘキサン : 酢酸エチル = 9 : 1 ) にて精製し、2 - ( 5 - ( ヨード - 9 , 9 - ジメチルフルオレン ) ) - 3 , 4 - エチレンジオキシチオフエンを得た。

20

30

【 0 1 5 5 】

これを D M F に溶解し、N C S を加えて攪拌し、純水を加え沈殿物をろ過した。これを、シリカゲルカラムクロマトグラフィー ( ヘキサン : 酢酸エチル = 9 : 1 ) にて精製した後、ジフェニルアミン、硫酸銅 ( I I ) 五水和物、炭酸カリウムと共に 1 , 2 - ジクロロベンゼンに溶かし還流させ反応を終了した。その後、トルエンを加え、シリカゲルカラムクロマトグラフィー ( ヘキサン : 酢酸エチル = 8 : 1 ) にて精製した化合物を無水塩化銅と酢酸パラジウムと共に無水 T H F に溶かし還流した。反応終了後、酢酸エチルを加え、5 % E D T A 水溶液、純水で洗浄した後、シリカゲルカラムクロマトグラフィー ( ヘキサン : 酢酸エチル = 4 : 1 ) にて精製し、表 1 0 の [ 構造番号 9 6 ] を有する両末端カルボキシル基モノマーを得た。

40

【 0 1 5 6 】

上記モノマー 1 . 0 g 、エチレングリコ - ル 3 . 0 g 及びテトラブトキシチタン 0 . 0 4 g を 1 0 0 m l の三口ナスフラスコに入れ、窒素気流下、2 0 0 で 3 時間加熱攪拌した。化合物 ( 9 6 ) が消費されたことを確認した後、0 . 5 m m H g に減圧してエチレングリコ - ルを留去しながら 2 3 0 に加熱し、5 時間反応を続けた。その後、室温まで冷却し、テトラヒドロフラン 2 0 0 m l に溶解し、不溶物を 0 . 5 μ m のポリテトラフルオロエチレン ( P T F E ) フィルターにてろ過し、ろ液をメタノールと酢酸エチルの混合溶媒 ( 4 : 1 ) 5 0 0 m l を攪拌している中に滴下し、ポリマーを析出させた。得られたポ

50

リマーをろ過し、十分にメタノールで洗浄した後、乾燥させ、0.8 gの例示化合物(28)を得た。

【0157】

(合成例4)

3,4-エチレンジオキシチオフエン(70.3 mmol)をDMF 150 mlに溶解し、-50 に冷却し、NBSのDMF溶液(63.3 mmol / 50 ml)を滴下した。これを1000 mlの純水に入れ攪拌した後、トルエンを加え抽出し、2-ブromo-3,4-エチレンジオキシチオフエン(70.0 mmol)を得た。一方、マグネシウム(77 mmol)を20 mlのTHFに溶解させた後還流させ、2-ブromo-3,4-エチレンジオキシチオフエン(70 mmol) THF溶液を滴下した。これに、2,7-ジヨード-9,9-ジメチルフルオレン(70 mmol)と1,1'-ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン-パラジウム(II)ジクロリド-ジクロロメタン錯体(0.7 mmol)を溶かしたTHF溶液(70 ml)を滴下し、60 で加熱した。冷却後、20%塩化アンモニウム水溶液に加えて攪拌した後、THF溶液を抽出した。これを、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(ヘキサン:酢酸エチル=9:1)にて精製し2-(5-(ヨード-9,9-ジメチルフルオレン))-3,4-エチレンジオキシチオフエンを得た。

10

【0158】

これをDMFに溶解し、NCSを加えて攪拌し、純水を加え沈殿物をろ過した。これを、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(ヘキサン:酢酸エチル=9:1)にて精製した後、ジフェニルアミン、硫酸銅(II)五水和物、炭酸カリウムと共に1,2-ジクロロベンゼンに溶かし還流させ反応を終了した。その後、トルエンを加え、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(ヘキサン:酢酸エチル=8:1)にて精製した化合物を無水塩化銅と酢酸パラジウムを無水THFに溶かし還流した。反応終了後、酢酸エチルを加え、5% EDTA水溶液、純水で洗浄した後、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(ヘキサン:酢酸エチル=4:1)にて精製し、表27の〔構造番号287〕を有する両末端カルボキシル基モノマーを得た。

20

【0159】

上記モノマー1.0 g、エチレングリコール3.0 g及びテトラブトキシチタン0.04 gを100 mlの三口ナスフラスコに入れ、窒素気流下、200 で3時間加熱攪拌した。化合物(287)が消費されたことを確認した後、0.5 mmHgに減圧してエチレングリコールを留去しながら230 に加熱し、5時間反応を続けた。その後、室温まで冷却し、テトラヒドロフラン200 mlに溶解し、不溶物を0.5 μmのポリテトラフルオロエチレン(PTFE)フィルターにてろ過し、ろ液をメタノールと酢酸エチルの混合溶媒(4:1)500 mlを攪拌している中に滴下し、ポリマーを析出させた。得られたポリマーをろ過し、十分にメタノールで洗浄した後、乾燥させ、0.8 gの例示化合物(75)を得た。

30

【0160】

(合成例5)

3,4-プロピレンジオキシチオフエン(70.3 mmol)をDMF 150 mlに溶解し、-50 に冷却し、NBSのDMF溶液(63.3 mmol / 50 ml)を滴下した。これを1000 mlの純水に入れ攪拌した後、トルエンを加え抽出し、2-ブromo-3,4-プロピレンジオキシチオフエン(70.0 mmol)を得た。一方、マグネシウム(77 mmol)を20 mlのTHFに溶解させた後還流させ、2-ブromo-3,4-プロピレンジオキシチオフエン(70 mmol) THF溶液を滴下した。これに、2,7-ジヨード-9,9-ジメチルフルオレン(70 mmol)と1,1'-ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン-パラジウム(II)ジクロリド-ジクロロメタン錯体(0.7 mmol)を溶かしたTHF溶液(70 ml)を滴下し、60 で加熱した。冷却後、20%塩化アンモニウム水溶液に加えて攪拌した後、THF溶液を抽出した。これを、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(ヘキサン:酢酸エチル=9:1)にて精製し、

40

50

2 - ( 5 - ( ヨ - ド - 9 , 9 - ジメチルフルオレン ) ) - 3 , 4 - プロピレンジオキシチオフェンを得た。

【 0 1 6 1 】

これを DMF に溶解し、NCS を加えて攪拌し、純水を加え沈殿物をろ過した。これを、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（ヘキサン：酢酸エチル = 9 : 1）にて精製した後、ジフェニルアミン、硫酸銅（II）五水和物、炭酸カリウムと共に 1, 2 - ジクロロベンゼンに溶かし還流させ反応を終了した。その後、トルエンを加え、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（ヘキサン：酢酸エチル = 8 : 1）にて精製した化合物を無水塩化銅と酢酸パラジウムを無水 THF に溶かし還流した。反応終了後、酢酸エチルを加え、5 % EDTA 水溶液、純水で洗浄した後、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（ヘキサン：酢酸エチル = 4 : 1）にて精製し、表 29 の〔構造番号 305〕を有する両末端カルボキシル基モノマーを得た。

10

【 0 1 6 2 】

上記モノマー 1.0 g、エチレングリコ - ル 3.0 g 及びテトラブトキシチタン 0.04 g を 100 ml の三口ナスフラスコに入れ、窒素気流下、200 で 3 時間加熱攪拌した。化合物（305）が消費されたことを確認した後、0.5 mmHg に減圧してエチレングリコ - ルを留去しながら 230 に加熱し、5 時間反応を続けた。その後、室温まで冷却し、テトラヒドロフラン 200 ml に溶解し、不溶物を 0.5 μm のポリテトラフルオロエチレン（PTFE）フィルターにてろ過し、ろ液をメタノールと酢酸エチルの混合溶媒（4 : 1）500 ml を攪拌している中に滴下し、ポリマーを析出させた。得られたポリマーをろ過し、十分にメタノールで洗浄した後、乾燥させ、1.0 g の例示化合物（78）を得た。

20

【 0 1 6 3 】

（合成例 6）

3, 4 - プロピレンジオキシチオフェン（70.3 mmol）を DMF 150 ml に溶解し、-50 に冷却し、NBS の DMF 溶液（63.3 mmol / 50 ml）を滴下した。これを 1000 ml の純水に入れ攪拌した後、トルエンを加え抽出し、2 - プロモ - 3, 4, - プロピレンジオキシチオフェン（70.0 mmol）を得た。マグネシウム（77 mmol）を 20 ml の THF に溶解させた後還流させ、2 - プロモ - 3, 4, - プロピレンジオキシチオフェン（70 mmol）の THF 溶液を滴下した。これに、ジヨードフェニル（70 mmol）と 1, 1' - ビス（ジフェニルホスフィノ）フェロセン - パラジウム（II）ジクロリド - ジクロロメタン錯体（0.7 mmol）を溶かした THF 溶液（70 ml）を滴下し、60 で加熱した。冷却後、20 % 塩化アンモニウム水溶液に加えて攪拌した後、THF 溶液を抽出した。これを、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（ヘキサン：酢酸エチル = 9 : 1）にて精製し 2 - ( 5 - ヨードフェニル ) - 3 , 4 - プロピレンジオキシチオフェンを得た。

30

【 0 1 6 4 】

これを DMF に溶解し、NCS を加えて攪拌し、純水を加え沈殿物をろ過した。これを、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（ヘキサン：酢酸エチル = 9 : 1）にて精製した後、ジフェニルアミン、硫酸銅（II）五水和物、炭酸カリウムと共に 1, 2 - ジクロロベンゼンに溶解し還流させ反応を終了した。その後、トルエンを加え、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（ヘキサン：酢酸エチル = 8 : 1）にて精製した化合物を無水塩化銅と酢酸パラジウムを無水 THF に溶かし還流した。反応終了後、酢酸エチルを加え、5 % EDTA 水溶液、純水で洗浄した後、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（ヘキサン：酢酸エチル = 4 : 1）にて精製し、表 8 の〔構造番号 86〕を有する両末端カルボキシル基モノマーを得た。

40

【 0 1 6 5 】

上記モノマー 1.0 g、エチレングリコ - ル 3.0 g 及びテトラブトキシチタン 0.04 g を 100 ml の三口ナスフラスコに入れ、窒素気流下、200 で 3 時間加熱攪拌した。化合物（86）が消費されたことを確認した後、0.5 mmHg に減圧してエチレン

50

グリコ-ルを留去しながら230 に加熱し、5時間反応を続けた。その後、室温まで冷却し、テトラヒドロフラン200mlに溶解し、不溶物を0.5μmのポリテトラフルオロエチレン(PTFE)フィルターにてろ過し、ろ液をメタノールと酢酸エチルの混合溶媒(4:1)500mlを攪拌している中に滴下し、ポリマーを析出させた。得られたポリマーをろ過し、十分にメタノールで洗浄した後、乾燥させ、1.0gの例示化合物(25)を得た。

#### 【0166】

##### <実施例1>

透明絶縁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、超純水、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)で超音波を各5分間加えて洗浄した後、スピコートで乾燥させた。

前記基板に、正孔輸送層として、前記電荷輸送性ポリエステル〔例示化合物(22)〕の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後、ディップ法により厚さ0.050μmの薄膜を形成した。発光材料として前記例示化合物(X-1)を蒸着して、厚さ0.055μmの発光層を形成した。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、0.15μm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0.04cm<sup>2</sup>であった。

#### 【0167】

##### <実施例2>

前記電荷輸送性ポリエステル〔例示化合物(20)〕1質量部、ポリ(N-ビニルカルバゾール)4質量部、及び前記例示化合物(X-1)0.02質量部の10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。この溶液を用いて、実施例1と同様にしてエッチング、洗浄し、乾燥したITOガラス基板上に、スピコート法により膜厚約0.15μmの発光層を形成した。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、0.15μm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0.04cm<sup>2</sup>であった。

#### 【0168】

##### <実施例3>

実施例1と同様にしてエッチング、洗浄し、乾燥したITOガラス基板上に、実施例1と同様に前記電荷輸送性ポリエステル〔例示化合物(28)〕を厚さ0.050μmの正孔輸送層を形成した。発光層として前記例示化合物(X-1)と前記例示化合物(XI-1)との混合物(質量比:99/1)を厚さ0.065μm、電子輸送層として前記例示化合物(X-2)を厚さ0.030μmで形成した。続いて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0.04cm<sup>2</sup>であった。

#### 【0169】

##### <実施例4>

実施例1と同様にしてエッチング、洗浄したITOガラス基板上に、実施例1同様に正孔輸送層として、電荷輸送性ポリエステル〔例示化合物(75)〕を厚さ0.050μmでインクジェット法(ピエゾインクジェット方式)により形成した。次いで、発光層として前記例示化合物(X-1)と前記例示化合物(XI-1)との混合物(質量比:99/1)を厚さ0.065μmでスピコート法により形成した。充分乾燥させた後、Caを厚さ0.08μm、Alを厚さ0.15μmに蒸着して、2mm幅、合計0.23μm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<sup>2</sup>であった。

#### 【0170】

10

20

30

40

50

## &lt; 実施例 5 &gt;

実施例 1 で用いた電荷輸送性ポリエステル〔例示化合物(22)〕の代わりに、前記電荷輸送性ポリエステル〔例示化合物(78)〕を用いた以外は、実施例 1 と同様にして有機電界発光素子を作製した。

【0171】

## &lt; 実施例 6 &gt;

実施例 1 で用いた電荷輸送性ポリエステル〔例示化合物(22)〕の代わりに、前記電荷輸送性ポリエステル〔例示化合物(25)〕を用いた以外は、実施例 1 と同様にして有機電界発光素子を作製した。

【0172】

## &lt; 実施例 7 &gt;

実施例 1 で用いた電荷輸送性ポリエステル〔例示化合物(22)〕の 1.5 質量% ジクロロエタン溶液を調製し、 $0.1 \mu\text{m}$  の PTFE フィルターで濾過した。この溶液を用いて、実施例 1 と同様にしてエッチング、洗浄し、乾燥した ITO ガラス基板に、インクジェット法により膜厚約  $0.05 \mu\text{m}$  の正孔輸送層を形成した。次いで、発光材料として前記例示化合物(X-14)を用いインクジェット法により厚さ  $0.050 \mu\text{m}$  の発光層を形成した。充分乾燥させた後、Ca を厚さ  $0.08 \mu\text{m}$ 、Al を厚さ  $0.15 \mu\text{m}$  に蒸着して、 $2 \text{mm}$  幅、合計  $0.23 \mu\text{m}$  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  $0.04 \text{cm}^2$  であった。

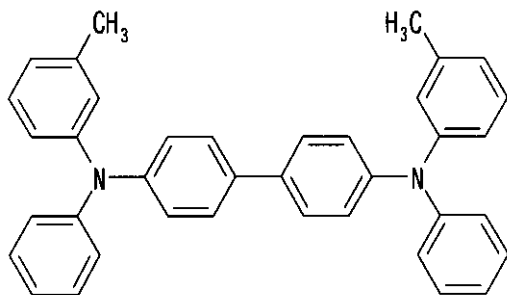
【0173】

## &lt; 比較例 1 &gt;

実施例 1 で用いた電荷輸送性ポリエステル〔例示化合物(22)〕の代わりに、下記構造式(XIII)で示される化合物を用いた他は実施例 1 と同様にして有機 EL 素子を作製した。

【0174】

【化17】



(XIII)

【0175】

## &lt; 比較例 2 &gt;

電荷輸送性ポリマーとしてポリビニルカルバゾール(PVK)を 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(X-1)を 1 質量部混合し、10 質量% ジクロロエタン溶液を調製し、 $0.1 \mu\text{m}$  の PTFE フィルターで濾過した。この溶液を用いて、 $2 \text{mm}$  幅の短冊型 ITO 電極をエッチングにより形成したガラス基板上に、ディップ法により塗布して膜厚  $0.15 \mu\text{m}$  の正孔輸送層を形成した。十分乾燥させた後、Mg-Ag 合金を共蒸着により蒸着して、 $2 \text{mm}$  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 EL 素子の有効面積は  $0.04 \text{cm}^2$  であった。

【0176】

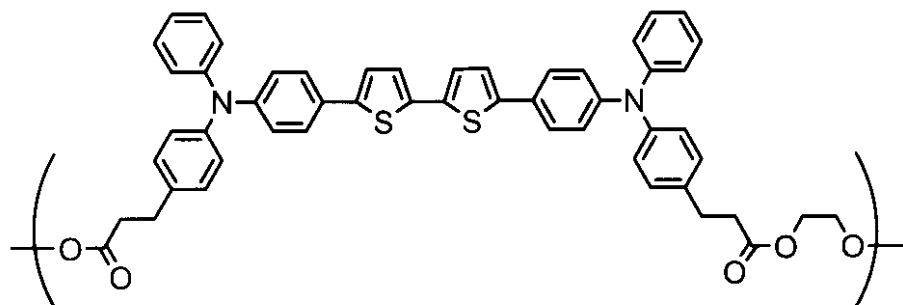
## &lt; 比較例 3 &gt;

実施例 1 で用いた電荷輸送性ポリエ - テル〔例示化合物(22)〕の代わりに、下記構

造式 (XIV) で示される化合物を用いた他は実施例 1 と同様にして有機 EL 素子を作製した。

【0177】

【化18】



10

(XIV)

【0178】

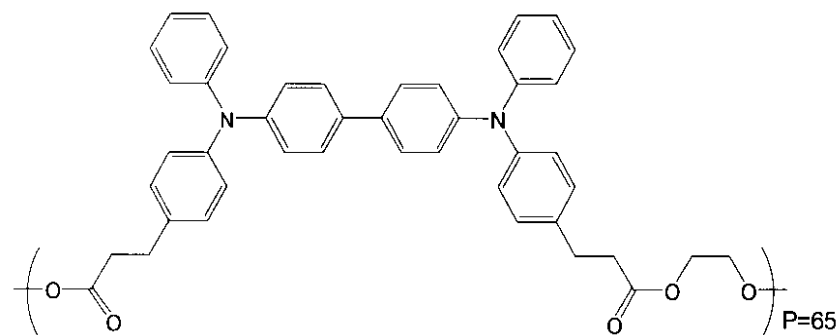
< 比較例 4 >

実施例 1 において、電荷輸送性ポリエステルとして例示化合物 (22) の代わりに、下記構造式 (XX) で示される化合物を用いた以外は実施例 1 と同様にして、有機 EL 素子を作製した。

20

【0179】

【化19】



30

(XX)

【0180】

以上のように作製した有機 EL 素子を、乾燥窒素中で接着剤によりガラスで封止し、ITO 電極側をプラス、Mg - Ag 背面電極をマイナスとして測定を行なった。

40

発光特性は、直流駆動方式 (DC 駆動) で初期輝度を  $400 \text{ cd/m}^2$  としたときの駆動電流密度により比較を行った。また、発光寿命の評価は、室温において、比較例 1 の素子の輝度 (初期輝度  $L_0$  :  $400 \text{ cd/m}^2$ ) 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 38 に示す。

【0181】

【表 3 8】

	発光色	駆動電流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	電圧上昇 (L/L0=0.5)	相対時間 (L/L0=0.5)
実施例 1	緑	14.5	1.15	1.95
実施例 2	緑	15.6	1.21	1.84
実施例 3	赤	14.5	1.20	1.36
実施例 4	緑	13.7	1.12	1.56
実施例 5	緑	12.9	1.08	1.67
実施例 6	緑	15.3	1.18	1.86
実施例 7	緑	14.1	1.21	1.35
比較例 1	緑	14.6	1.32	1.00
比較例 2	緑	15.7	1.25	1.08
比較例 3	緑	14.7	1.22	1.10
比較例 4	緑	18.2	1.24	1.08

10

20

## 【0182】

表 3 8 の結果より、本発明の有機電界発光素子である実施例 1 ~ 7 は、発光輝度、素子寿命においても良好であることがわかる。

## 【図面の簡単な説明】

## 【0183】

【図 1】本発明の有機電界発光素子の層構成の一例を示した概略構成図である。

30

【図 2】本発明の有機電界発光素子の層構成の他の一例を示した概略構成図である。

【図 3】本発明の有機電界発光素子の層構成の他の一例を示した概略構成図である。

【図 4】本発明の有機電界発光素子の層構成の他の一例を示した概略構成図である。

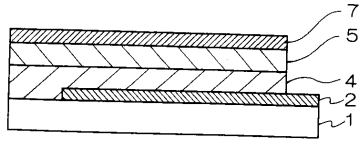
## 【符号の説明】

## 【0184】

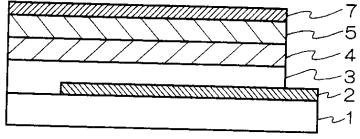
- 1 透明絶縁体基板
- 2 透明電極
- 3 正孔輸送層及び / または正孔注入層
- 4 発光層
- 5 電子輸送層及び / または電子注入層
- 6 電荷輸送能を有する発光層
- 7 背面電極

40

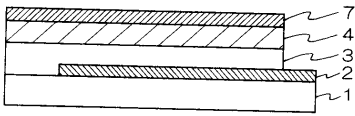
【 図 1 】



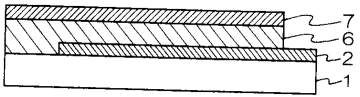
【 図 2 】



【 図 3 】



【 図 4 】



## フロントページの続き

(51) Int.Cl. F I テーマコード(参考)  
C 0 9 K 11/06 6 9 0

- (72)発明者 関 三枝子  
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内
- (72)発明者 米山 博人  
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内
- (72)発明者 奥田 大輔  
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内
- (72)発明者 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 尾崎 忠義  
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内
- (72)発明者 石井 徹  
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内
- (72)発明者 真下 清和  
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内
- (72)発明者 西野 洋平  
神奈川県南足柄市竹松 1 6 0 0 番地 富士ゼロックス株式会社内
- (72)発明者 今井 彰  
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 堀場 幸治  
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 CC02 CC04 CC21 CC45 DD60 DD71 DD74 DD79  
EE02 EE03 EE08 GG08  
4J029 AA03 AB07 AC01 AC02 AE04 BA03 BA05 BD03A BD04A BD07A  
CA06 CB05A CB06A CB10A CH02 DB05 HA01 HB01 HB03 HB05

专利名称(译)	有机电致发光器件及其制造方法，图像显示介质		
公开(公告)号	<a href="#">JP2007324526A</a>	公开(公告)日	2007-12-13
申请号	JP2006156108	申请日	2006-06-05
[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	廣瀬英一 関三枝子 米山博人 奥田大輔 阿形岳 尾崎忠義 石井徹 真下清和 西野洋平 今井彰 堀場幸治 佐藤克洋		
发明人	廣瀬 英一 関 三枝子 米山 博人 奥田 大輔 阿形 岳 尾崎 忠義 石井 徹 真下 清和 西野 洋平 今井 彰 堀場 幸治 佐藤 克洋		
IPC分类号	H01L51/50 H05B33/10 C08G63/187 C09K11/06		
FI分类号	H05B33/14.B H05B33/22.B H05B33/22.D H05B33/10 C08G63/187 C09K11/06.690 G09F9/30.365 G09F9/30.365.Z H01L27/32		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC02 3K107/CC04 3K107/CC21 3K107/CC45 3K107/DD60 3K107/DD71 3K107/DD74 3K107/DD79 3K107/EE02 3K107/EE03 3K107/EE08 3K107/GG08 4J029/AA03 4J029/AB07 4J029/AC01 4J029/AC02 4J029/AE04 4J029/BA03 4J029/BA05 4J029/BD03A 4J029/BD04A 4J029/BD07A 4J029/CA06 4J029/CB05A 4J029/CB06A 4J029/CB10A 4J029/CH02 4J029/DB05 4J029/HA01 4J029/HB01 4J029/HB03 4J029/HB05 5C094/AA10 5C094/AA37 5C094/AA43 5C094/BA27 5C094/CA14 5C094/CA19 5C094/DA13 5C094/EA05 5C094/FB01 5C094/FB12 5C094/FB20 5C094/GB10		
代理人(译)	中岛敦 福田浩		
其他公开文献	JP4882524B2 JP2007324526A5		
外部链接	<a href="#">Espacenet</a>		

摘要(译)

提供一种具有足够的亮度，高的发光效率，长的装置寿命并且易于制造的有机电致发光器件，其制造方法和图像显示介质。一种电致发光器件，包括一个或多个有机化合物层，所述有机化合物层夹在由阳极和阴极组成的一对电极之间，其中至少一个是透明或半透明的，包括：至少一层是包含至少一种电荷传输性聚酯的有机电致发光器件，所述电荷传输性聚酯包含包含选自特定二芳基二胺结构中的至少一种作为部分结构的重复单元。 [选择图]无

