

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第3865996号  
(P3865996)

(45) 発行日 平成19年1月10日(2007. 1. 10)

(24) 登録日 平成18年10月13日(2006. 10. 13)

(51) Int. Cl.

F I

C O 9 K 11/06 (2006. 01)

C O 9 K 11/06 6 6 O

C O 7 F 7/08 (2006. 01)

C O 7 F 7/08 C

C O 7 F 7/10 (2006. 01)

C O 7 F 7/10 S

H O 1 L 51/50 (2006. 01)

H O 5 B 33/14 B

請求項の数 8 (全 37 頁)

(21) 出願番号 特願2000-70609 (P2000-70609)  
 (22) 出願日 平成12年3月14日(2000. 3. 14)  
 (65) 公開番号 特開2000-351966 (P2000-351966A)  
 (43) 公開日 平成12年12月19日(2000. 12. 19)  
 審査請求日 平成17年10月11日(2005. 10. 11)  
 (31) 優先権主張番号 特願平11-100416  
 (32) 優先日 平成11年4月7日(1999. 4. 7)  
 (33) 優先権主張国 日本国(JP)

(73) 特許権者 000005201  
 富士フイルムホールディングス株式会社  
 東京都港区西麻布2丁目26番30号  
 (74) 代理人 100105647  
 弁理士 小栗 昌平  
 (74) 代理人 100105474  
 弁理士 本多 弘徳  
 (74) 代理人 100108589  
 弁理士 市川 利光  
 (74) 代理人 100115107  
 弁理士 高松 猛  
 (72) 発明者 五十嵐 達也  
 神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写  
 真フイルム株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 特定のシラン化合物及びそれらからなる発光素子材料、及び、それを含有する発光素子。

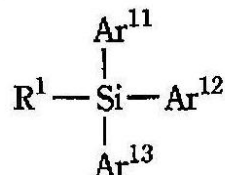
(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

一般式(1)で表される発光素子材料。

【化1】

一般式(1)



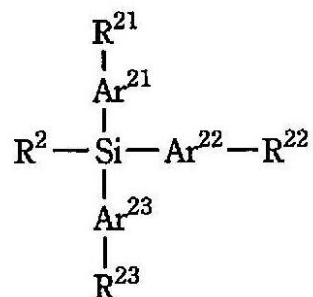
$\text{R}^1$ は $-\text{Ar}^{14}$ 基を表し、 $\text{Ar}^{11}$ 、 $\text{Ar}^{12}$ 、 $\text{Ar}^{13}$ 、 $\text{Ar}^{14}$ は各々置換基を有してもよいピリジル基を表す。

【請求項2】

一般式(2)で表される発光素子材料。

## 【化 2】

一般式(2)



10

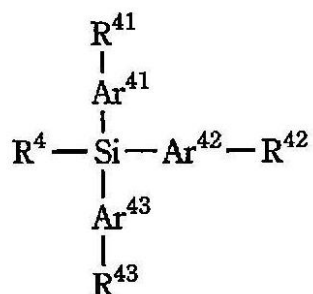
$R^2$  は  $-Ar^{24}-R^{24}$  基を表し、 $Ar^{21}$ 、 $Ar^{22}$ 、 $Ar^{23}$ 、 $Ar^{24}$  は各々アリーレン基を表す。 $R^{21}$ 、 $R^{22}$ 、 $R^{23}$ 、 $R^{24}$  は各々アリール基、またはヘテロアリール基を表す。

## 【請求項 3】

一般式(4) で表される発光素子材料。

## 【化 4】

一般式(4)



20

$R^4$  はアリール基を表し、 $Ar^{41}$ 、 $Ar^{42}$ 、 $Ar^{43}$  は各々アリーレン基を表す。 $R^{41}$ 、 $R^{42}$ 、 $R^{43}$  は  $-NR^{44}R^{45}$  基を表す。 $R^{44}$ 、 $R^{45}$  は各々水素原子又は置換基を表す。

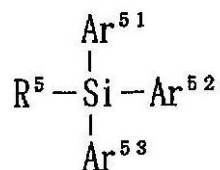
## 【請求項 4】

一般式(5) で表される発光素子材料。

30

## 【化 5】

一般式(5)



$R^5$  はアリール基を表し、 $Ar^{51}$ 、 $Ar^{52}$ 、 $Ar^{53}$  は各々 3 環以上の芳香族縮合炭化水素環基を表す。

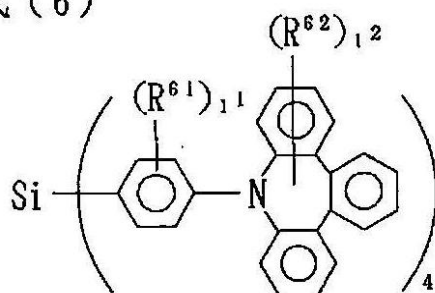
40

## 【請求項 5】

一般式(6) で表される化合物。

## 【化 6】

## 一般式 (6)



10

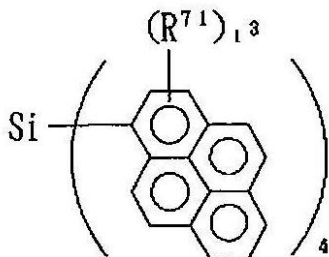
$R^{61}$ 、 $R^{62}$ は置換基を表す。 $1^1$ は0～4の整数を表し、 $1^2$ は0～12の整数を表す。

## 【請求項 6】

一般式 (7) で表される化合物。

## 【化 7】

## 一般式 (7)



20

$R^{71}$ は置換基を表し、 $1^3$ は0～9の整数を表す。

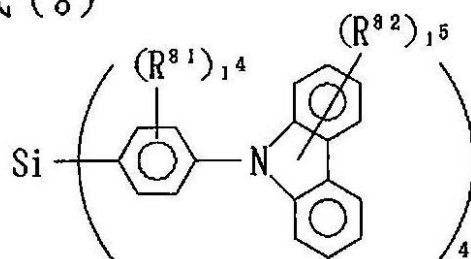
## 【請求項 7】

一般式 (8) で表される化合物。

30

## 【化 8】

## 一般式 (8)



40

$R^{81}$ 、 $R^{82}$ は置換基を表す。 $1^4$ は0～4の整数を表し、 $1^5$ は0～8の整数を表す。

## 【請求項 8】

請求項 1、2、3、4、5、6 又は 7 に記載の一般式 (1)、(2)、(4)、(5)、(6)、(7) 又は (8) で表される化合物の少なくとも一つを含むことを特徴とする発光素子。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

## 【発明の属する技術分野】

本発明は、特定のシラン化合物及びそれらからなる発光素子材料及びそれを含有する発光

50

素子に関する。

【 0 0 0 2 】

【 従来の技術 】

今日、有機蛍光材料を用いる種々の表示素子（有機発光素子）に関する研究開発が活発であり、中でも、有機 E L（エレクトロルミネッセンス）素子は、低電圧で高輝度の発光を得ることができ、有望な表示素子として注目されている。例えば、有機化合物の蒸着により有機薄膜を形成する E L 素子が知られている（アプライド フィジックス レターズ、51 巻、913 頁、1987 年）。記載の有機 E L 素子は電子輸送材料と正孔輸送材料の積層構造を有し、従来の単層型素子に比べてその発光特性が大幅に向上している。

この報告を契機に、有機 E L 開発研究が活発に行われるようになり、効率向上の為の電子輸送材料、ホール輸送材料の開発が種々検討されてきた。しかしながら、電子輸送材料開発においては、Alq（トリス（8-ヒドロキシキノリナト）アルミニウム）を上回る性能の化合物は未だ見出されておらず、改良が望まれていた。また、Alq は緑色の蛍光を有する為、青色発光素子用の電子輸送材料としては不適であり、開発が望まれていた。

【 0 0 0 3 】

また、近年、有機 E L 素子をフルカラーディスプレイへと適用することが活発に検討されている。高性能フルカラーディスプレイを開発する為には青・緑・赤、それぞれの発光色純度を高くする必要がある。しかしながら、高色純度の発光を得ることは難しく、例えば、「有機 E L 素子とその工業化最前線」（エヌ・ティー・エス社）p 38 に記載のジスチルアリーレン化合物（DPVB i）また「有機 E L 素子とその工業化最前線」（エヌ・ティー・エス社）p 40 及び、特開平 7 - 133483 に記載のベンゾ縮環含窒素ヘテロ環化合物 Zn（OXZ）<sub>2</sub> などは広範に検討される青色発光材料であるが、色純度の低い青色発光しかえられず、改良が望まれていた。

一方、有機 E L 素子材料の重要な特性として耐久性が挙げられ、なかでも、アモルファス膜安定性は耐久性向上の重要な要因であり、高いアモルファス膜安定性を有する化合物の開発が望まれていた。例えば、TPD（N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ（m-トリル）ベンジジン）は広範に利用されているホール輸送材料であり、高いホール輸送能を有するが、この蒸着膜は蒸着後しばらくは均一なアモルファス膜として存在するものの、数時間後には結晶化が起こる場合があり、E L 素子の耐久性を大きく低下させてしまうのである。

【 0 0 0 4 】

【 発明が解決しようとする課題 】

以上、本発明の目的は、高効率・高耐久有機発光素子用材料を開発すること、及び、発光素子を提供することにある。

【 0 0 0 5 】

【 課題を解決するための手段 】

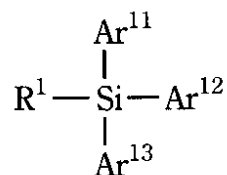
本発明の前記目的は、下記 [ 1 ] ~ [ 8 ] により解決された。

[ 1 ] 一般式（1）で表される発光素子材料。

【 0 0 0 6 】

【 化 9 】

一般式(1)



【 0 0 0 7 】

R<sup>1</sup> は - Ar<sup>14</sup> 基を表し、Ar<sup>11</sup>、Ar<sup>12</sup>、Ar<sup>13</sup>、Ar<sup>14</sup> は各々置換基を有してもよいピリジル基を表す。

10

20

30

40

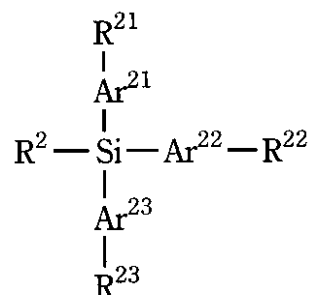
50

〔 2 〕 一般式 ( 2 ) で表される発光素子材料。

【 0 0 0 8 】

【 化 1 0 】

一般式 (2)



10

【 0 0 0 9 】

$R^2$  は  $-Ar^{24}-R^{24}$  基を表し、 $Ar^{21}$ 、 $Ar^{22}$ 、 $Ar^{23}$ 、 $Ar^{24}$  は各々アリーレン基を表す。 $R^{21}$ 、 $R^{22}$ 、 $R^{23}$ 、 $R^{24}$  は各々アリール基、またはヘテロアリール基を表す。

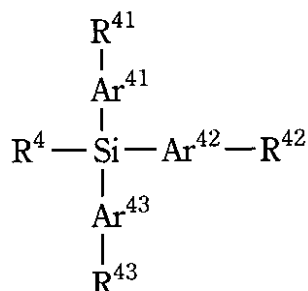
【 0 0 1 1 】

〔 3 〕 一般式 ( 4 ) で表される発光素子材料。

【 0 0 1 2 】

【 化 1 2 】

一般式 (4)



30

【 0 0 1 3 】

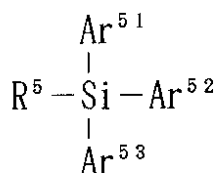
$R^4$  はアリール基を表し、 $Ar^{41}$ 、 $Ar^{42}$ 、 $Ar^{43}$  は各々アリーレン基を表す。 $R^{41}$ 、 $R^{42}$ 、 $R^{43}$  は  $-NR^{44}R^{45}$  基を表す。 $R^{44}$ 、 $R^{45}$  は各々水素原子又は置換基を表す。

〔 4 〕 一般式 ( 5 ) で表される発光素子材料。

【 0 0 1 4 】

【 化 1 3 】

一般式 (5)



40

【 0 0 1 5 】

$R^5$  はアリール基を表し、 $Ar^{51}$ 、 $Ar^{52}$ 、 $Ar^{53}$  は各々 3 環以上の芳香族縮合炭化水素環基を表す。

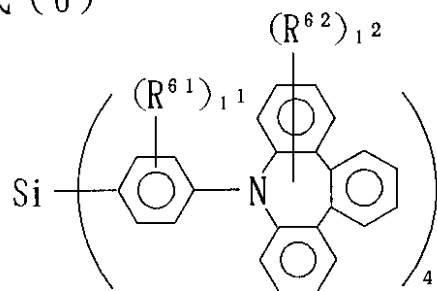
〔 5 〕 一般式 ( 6 ) で表される化合物。

【 0 0 1 6 】

【 化 1 4 】

50

一般式 (6)



10

【0017】

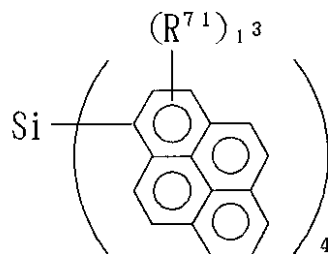
$R^{61}$ 、 $R^{62}$ は置換基を表す。 $1^1$ は0～4の整数を表し、 $1^2$ は0～12の整数を表す。

【6】一般式(7)で表される化合物。

【0018】

【化15】

一般式 (7)



20

【0019】

$R^{71}$ は置換基を表し、 $1^3$ は0～9の整数を表す。

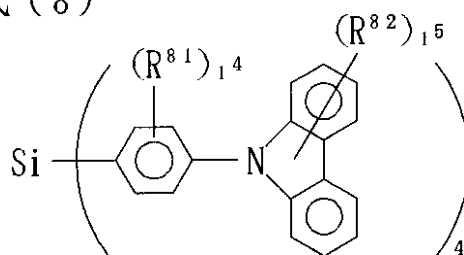
【7】一般式(8)で表される化合物。

【0020】

【化16】

30

一般式 (8)



40

【0021】

$R^{81}$ 、 $R^{82}$ は置換基を表す。 $1^4$ は0～4の整数を表し、 $1^5$ は0～8の整数を表す。

【8】【1】、【2】、【3】、【4】、【5】、【6】又は【7】に記載の一般式(1)、(2)、(4)、(5)、(6)、(7)又は(8)で表される化合物の少なくとも一つを含むことを特徴とする発光素子。

【0022】

【発明の実施の形態】

本発明の化合物(一般式(1)、(2)、(4)、(5)、(6)、(7)、(8)で表される化合物)について詳細に説明する。一般式(1)について説明する。 $R^1$ は、さ

50

らに置換されていても良い。

【0023】

$R^1$  は  $-Ar^{14}$  基 ( $Ar^{14}$  は下記  $Ar^{11}$  と同義の基) を表す。

【0024】

$Ar^{11}$ 、 $Ar^{12}$ 、 $Ar^{13}$  は、ピリジル基を表す。ピリジル基上の置換基としては、前記の  $R^1$ 、後記の  $R^{21}$ 、 $R^{31}$ 、 $R^{41}$  で記載したもの、及びシアノ基が挙げられ、後記の  $R^{21}$  基、 $R^{31}$  基、 $R^{41}$  基が好ましい。

【0025】

一般式 (2) について説明する。

【0026】

$R^2$  は  $-Ar^{24} - R^{24}$  基 ( $Ar^{24}$ 、 $R^{24}$  はそれぞれ下記  $Ar^{21}$ 、 $R^{21}$  と同義の基) を表す。 $Ar^{21}$ 、 $Ar^{22}$ 、 $Ar^{23}$  はアリーレン基 (好ましくは炭素数 6 ~ 40、より好ましくは炭素数 6 ~ 30 さらに好ましくは炭素数 6 ~ 12) を表す。 $Ar^{21}$ 、 $Ar^{22}$ 、 $Ar^{23}$  は好ましくはフェニレン基、ナフチレン基、アントラセニレン基、ピレニレン基、ルブレニレン基であり、より好ましくはフェニレン基、ナフチレン基、アントラセニレン基であり、さらに好ましくは、フェニレン基であり、特に好ましくは無置換の p - フェニレン基である。

【0027】

$R^{21}$ 、 $R^{22}$ 、 $R^{23}$  はアリール基 (好ましくはフェニル基、ナフチル基、アントラセニル基、ピレニル基、より好ましくはフェニル基、ナフチル基、さらに好ましくはフェニル基)、ヘテロアリール基 (好ましくはピリジル基、ピラジル基、オキサジアゾリル基、トリアゾリル基、チアジアゾリル基、チエニル基、カルバゾリル基、キノリノ基、ベンズアゾリル基 (例えばベンズオキサゾリル基、ベンズイミダゾリル基、ベンズチアゾリル基、カルバゾリル基、好ましくは、ベンズオキサゾリル基、ベンズイミダゾリル基、カルバゾリル基、より好ましくはベンズイミダゾリル基)、より好ましくは、ピリジル基、ピラジル基、オキサジアゾリル基、トリアゾリル基、ベンズアゾリル基、カルバゾリル基であり、さらに好ましくはピリジル基、ピラジル基、ベンズアゾリル基、カルバゾリル基であり、特に好ましくはピリジル基、ベンズアゾリル基、カルバゾリル基である。) を表す。 $R^{21}$ 、 $R^{22}$ 、 $R^{23}$  は好ましくはヘテロアリール基、3 環以上の芳香族縮合炭化水素環基 (例えば、後述  $Ar^{51}$  で説明する基、好ましい範囲も同様) であり、より好ましくは、3 環以上の芳香族縮合炭化水素環基である。

【0029】

$R^{31}$  はアルケニル基、アルキニル基を表し、アルケニル基が好ましい。アルケニル上の置換基として好ましくはアリール基、ヘテロアリール基であり、より好ましくはヘテロアリール基である。

【0030】

一般式 (4) について説明する。 $R^4$  はアリール基 (好ましくは炭素数 6 ~ 30、より好ましくは炭素数 6 ~ 20、特に好ましくは炭素数 6 ~ 12 であり、例えばフェニル、p - メチルフェニル、ナフチルなどが挙げられる。) を表す。これらの基は、さらに置換されていても良い。

【0031】

$R^4$  は、特に好ましくは  $-Ar^{44} - R^{48}$  基 ( $Ar^{44}$ 、 $R^{48}$  はそれぞれ下記  $Ar^{41}$ 、 $R^{41}$  と同義の基) である。 $Ar^{41}$ 、 $Ar^{42}$ 、 $Ar^{43}$  は前記  $Ar^{21}$  と同義の基である。

【0032】

$R^{41}$ 、 $R^{42}$ 、 $R^{43}$  は  $-NR^{44}R^{45}$  基を表す。 $R^{44}$ 、 $R^{45}$  は水素原子又は置換基を表す。 $R^{44}$ 、 $R^{45}$  が結合して環構造 (例えばカルバゾール環、ベンゾアゼピン環) を形成してもよい。 $R^{44}$ 、 $R^{45}$  は好ましくはアルキル基 (好ましくは炭素数 1 ~ 20、より好ましくは炭素数 1 ~ 12、特に好ましくは炭素数 1 ~ 8)、アリール基 (好ましくは炭素数 6 ~ 30、より好ましくは炭素数 6 ~ 20、特に好ましくは炭素数 6 ~ 12)、ヘテロアリール基 (好ましくは、酸素原子、硫黄原子、窒素原子のいずれかを含み、好ましくは炭素数 1

10

20

30

40

50

～50、より好ましくは炭素数1～30、特に好ましくは炭素数2～12)、であり、より好ましくはアリール基であり、さらに好ましくはフェニル基、ナフチル基、結合してカルバゾール環を形成する基、結合してベンゾアゼピン環を形成する基であり、特に好ましくは結合してベンゾアゼピン環を形成する基である。 $R^{41}$ 、 $R^{42}$ 、 $R^{43}$ は $-NR^{44}R^{45}$ 基、 $-OR^{46}$ 基が好ましく、より好ましくは $-NR^{44}R^{45}$ 基である。

#### 【0033】

一般式(5)について説明する。 $R^5$ はアリール基(好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、特に好ましくは炭素数6～12であり、例えばフェニル、p-メチルフェニル、ナフチルなどが挙げられる。)を表す。これらの基は、さらに置換されていても良い。

#### 【0034】

$R^5$ は、特に好ましくは $-Ar^{54}$ 基( $Ar^{54}$ は下記 $Ar^{51}$ と同義の基)である。

#### 【0035】

$Ar^{51}$ 、 $Ar^{52}$ 、 $Ar^{53}$ はそれぞれ3環以上の芳香族縮合炭化水素環基を表す。3環以上の芳香族縮合炭化水素環基を構成する3環以上の芳香族縮合炭化水素環構造としては、例えば、Aldrich Structure Index (Aldrich社 1996～1997年版、例えばp177～178)、Library of Rare Chemicals Structure Index (Sigma-Aldrich社 1993年版、例えばp165～168)、及び、有機化学・生化学命名法、上巻p21～28(平山和雄訳 南江堂 1988年発行)などに記載の構造などが挙げられ、例えば、アントラセン構造、フェナントレン構造、ピレン構造、トリフェニレン構造、ペリレン構造、フルオランテン構造、インダセン構造、アセナフチレン構造、フルオレン構造、テトラフェニレン構造、及び、これらの構造にさらに縮環した構造(例えばベンゾアントラセン構造、ベンゾピレン構造、ペンタセン構造、コロネン構造、クリセン構造等)等が挙げられる。

#### 【0036】

$Ar^{51}$ 、 $Ar^{52}$ 、 $Ar^{53}$ は好ましくはアントラセニル基、フェナントレニル基、ピレニル基、ペリレニル基であり、より好ましくはピレニル基である。

#### 【0037】

一般式(4)の好ましい範囲は一般式(6)、一般式(8)であり、より好ましい範囲は一般式(6)である。一般式(5)の好ましい範囲は一般式(7)である。

#### 【0038】

一般式(6)について説明する。 $R^{61}$ 、 $R^{62}$ は置換基を表し、 $1^1$ は0～4の整数を表し、 $1^2$ は0～12の整数を表す。置換基としては、例えば、アルキル基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～10であり、例えばメチル、エチル、iso-プロピル、tert-ブチル、n-オクチル、n-デシル、n-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げられる。)、アルケニル基(好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニルなどが挙げられる。)、アルキニル基(好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられる。)、アリール基(好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、特に好ましくは炭素数6～12であり、例えばフェニル、p-メチルフェニル、ナフチル、アントラニルなどが挙げられる。)、アミノ基(好ましくは炭素数0～30、より好ましくは炭素数0～20、特に好ましくは炭素数0～10であり、例えばアミノ、メチルアミノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、ジベンジルアミノ、ジフェニルアミノ、ジトリルアミノなどが挙げられる。)、アルコキシ基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～10であり、例えばメトキシ、エトキシ、ブトキシ、2-エチルヘキシロキシなどが挙げられる。)、アリールオキシ基(好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、特に好ましくは炭素数6～12であり、例えばフェニルオキシ、1-ナフチルオキシ、2-ナフチルオキシなどが挙げられる。)、ヘテロアリールオキシ基(好ましくは炭素数1～30、より好

10

20

30

40

50



ましくは炭素数 1 ~ 20、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えばピリジルオキシ、ピラジロキシ、ピリミジロキシ、キノリルオキシなどが挙げられる。)、アシル基 (好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 1 ~ 20、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えばアセチル、ベンゾイル、ホルミル、ピバロイルなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニル基 (好ましくは炭素数 2 ~ 30、より好ましくは炭素数 2 ~ 20、特に好ましくは炭素数 2 ~ 12 であり、例えばメトキシカルボニル、エトキシカルボニルなどが挙げられる。)、アリーロキシカルボニル基 (好ましくは炭素数 7 ~ 30、より好ましくは炭素数 7 ~ 20、特に好ましくは炭素数 7 ~ 12 であり、例えばフェニルオキシカルボニルなどが挙げられる。)、アシルオキシ基 (好ましくは炭素数 2 ~ 30、より好ましくは炭素数 2 ~ 20、特に好ましくは炭素数 2 ~ 10 であり、例えばアセトキシ、ベンゾイルオキシなどが挙げられる。)、アシルアミノ基 (好ましくは炭素数 2 ~ 30、より好ましくは炭素数 2 ~ 20、特に好ましくは炭素数 2 ~ 10 であり、例えばアセチルアミノ、ベンゾイルアミノなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニルアミノ基 (好ましくは炭素数 2 ~ 30、より好ましくは炭素数 2 ~ 20、特に好ましくは炭素数 2 ~ 12 であり、例えばメトキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、アリーロキシカルボニルアミノ基 (好ましくは炭素数 7 ~ 30、より好ましくは炭素数 7 ~ 20、特に好ましくは炭素数 7 ~ 12 であり、例えばフェニルオキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、スルホニルアミノ基 (好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 1 ~ 20、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えばメタンスルホニルアミノ、ベンゼンスルホニルアミノなどが挙げられる。)、スルファモイル基 (好ましくは炭素数 0 ~ 30、より好ましくは炭素数 0 ~ 20、特に好ましくは炭素数 0 ~ 12 であり、例えばスルファモイル、メチルスルファモイル、ジメチルスルファモイル、フェニルスルファモイルなどが挙げられる。)、カルバモイル基 (好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 1 ~ 20、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えばカルバモイル、メチルカルバモイル、ジエチルカルバモイル、フェニルカルバモイルなどが挙げられる。)、アルキルチオ基 (好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 1 ~ 20、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えばメチルチオ、エチルチオなどが挙げられる。)、アリールチオ基 (好ましくは炭素数 6 ~ 30、より好ましくは炭素数 6 ~ 20、特に好ましくは炭素数 6 ~ 12 であり、例えばフェニルチオなどが挙げられる。)、ヘテロアリールチオ基 (好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 1 ~ 20、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えばピリジルチオ、2 - ベンズイミゾリルチオ、2 - ベンズオキサゾリルチオ、2 - ベンズチアゾリルチオなどが挙げられる。)、スルホニル基 (好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 1 ~ 20、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えばメシル、トシルなどが挙げられる。)、スルフィニル基 (好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 1 ~ 20、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えばメタンスルフィニル、ベンゼンスルフィニルなどが挙げられる。)、ウレイド基 (好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 1 ~ 20、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えばウレイド、メチルウレイド、フェニルウレイドなどが挙げられる。)、リン酸アミド基 (好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 1 ~ 20、特に好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、例えばジエチルリン酸アミド、フェニルリン酸アミドなどが挙げられる。)、ヒドロキシ基、メルカプト基、ハロゲン原子 (例えばフッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子)、シアノ基、スルホ基、カルボキシ基、ニトロ基、ヒドロキサム酸基、スルフィノ基、ヒドラジノ基、イミノ基、ヘテロ環基 (好ましくは炭素数 1 ~ 30、より好ましくは炭素数 1 ~ 12 であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子、具体的には例えばイミダゾリル、ピリジル、キノリル、フリル、チエニル、ピペリジル、モルホリノ、ベンズオキサゾリル、ベンズイミダゾリル、ベンズチアゾリル、カルバゾリルなどが挙げられる。)、シリル基 (好ましくは炭素数 3 ~ 40、より好ましくは炭素数 3 ~ 30、特に好ましくは炭素数 3 ~ 24 であり、例えばトリメチルシリル、トリフェニルシリルなどが挙げられる。)) などが挙げられる。これらの置換基は更に置換されてもよく、また、置換基同士が結合して環構造を形成しても良い。

10

20

30

40

50

## 【0039】

$R^{61}$ 、 $R^{62}$ は好ましくはアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基であり、より好ましくはアルキル基、アリール基である。 $1^1$ は好ましくは0～2であり、より好ましくは0、1である。 $1^2$ は好ましくは0～4であり、より好ましくは0、1である。

## 【0040】

一般式(7)について説明する。 $R^{71}$ は置換基を表し、 $1^3$ は0～9の整数を表す。置換基としては、前記 $R^{61}$ で説明した基が挙げられる。 $R^{71}$ は好ましくはアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基であり、より好ましくはアルキル基、アリール基である。 $1^3$ は好ましくは0～2であり、より好ましくは0、1である。

## 【0041】

一般式(8)について説明する。 $R^{81}$ 、 $R^{82}$ は置換基を表し、 $1^4$ は0～4の整数を表し、 $1^5$ は0～8の整数を表す。置換基としては、前記 $R^{61}$ で説明した基が挙げられる。 $R^{81}$ 、 $R^{82}$ は好ましくはアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基であり、より好ましくはアルキル基、アリール基である。 $1^4$ は好ましくは0～2であり、より好ましくは0、1である。 $1^5$ は好ましくは0～2であり、より好ましくは0、1である。

## 【0042】

本発明の化合物は一般式(1)、(2)、(4)、(5)、(6)、(7)、(8)の骨格の繰り返し単位を一つしか含まない、いわゆる低分子化合物であっても良いし、一般式(1)、(2)、(4)、(5)、(6)、(7)、(8)の骨格を側鎖に有する高分子量化合物(ポリマー、オリゴマー)(好ましくは重量平均分子量1000～5000000、より好ましくは2000～10000000、さらに好ましくは3000～5000000)もしくは、一般式(1)、(2)、(4)、(5)、(6)、(7)、(8)の骨格を主鎖にもつ高分子量化合物(好ましくは重量平均分子量1000～50000000、特に好ましくは2000～100000000、さらに好ましくは3000～50000000)であっても良い。高分子量化合物の場合は、ホモポリマーであっても良いし、他のモノマーとの共重合体であっても良い。本発明の化合物は、好ましくは低分子量化合物、一般式(1)、(2)、(4)、(5)、(6)、(7)、(8)の骨格を主鎖にもつ高分子量化合物であり、より好ましくは低分子量化合物である。

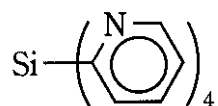
## 【0043】

以下にシラン化合物の化合物例を挙げるが、本発明はこれに限定されない。本発明では発光素子材料として、一般式(1)、(2)、(4)、(5)、(6)、(7)、(8)で表される化合物を用いる。

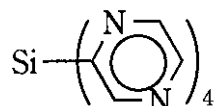
## 【0044】

## 【化17】

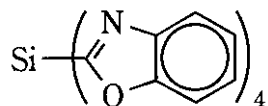
(1-1)



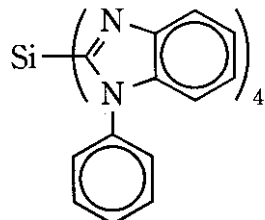
(1-2)



(1-3)

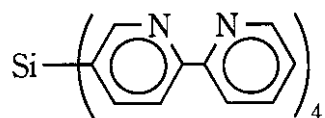


(1-4)

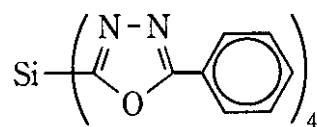


10

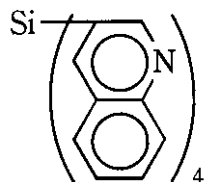
(1-5)



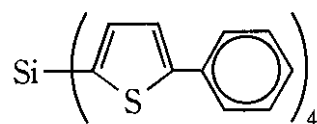
(1-6)



(1-7)

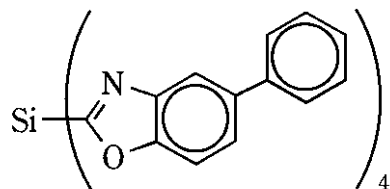


(1-8)

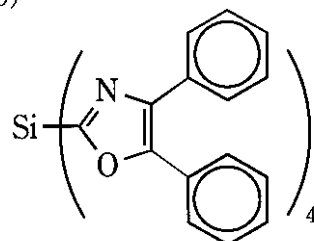


20

(1-9)

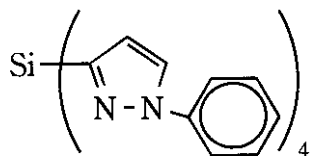


(1-10)

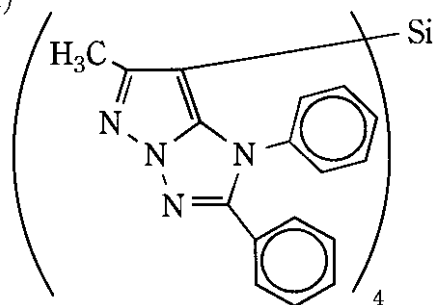


30

(1-11)



(1-12)

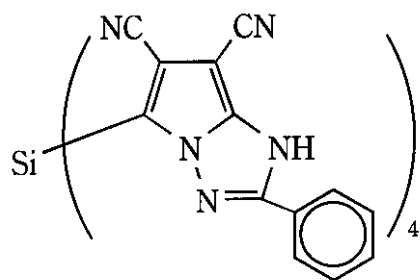


40

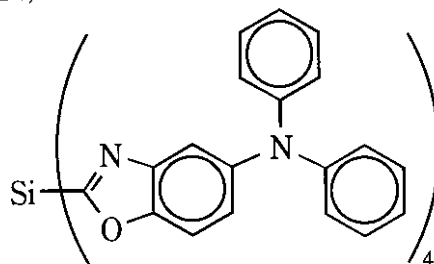
【 0 0 4 5 】

【 化 1 8 】

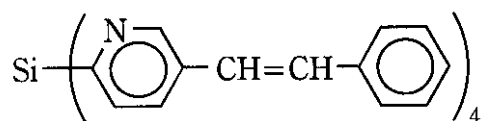
(1-13)



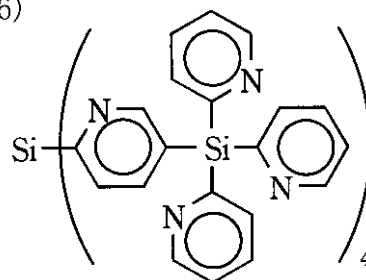
(1-14)



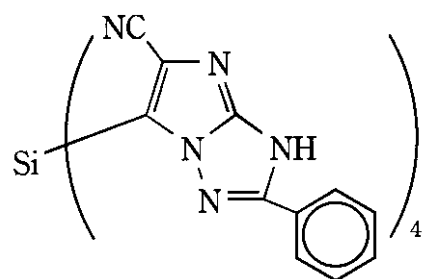
(1-15)



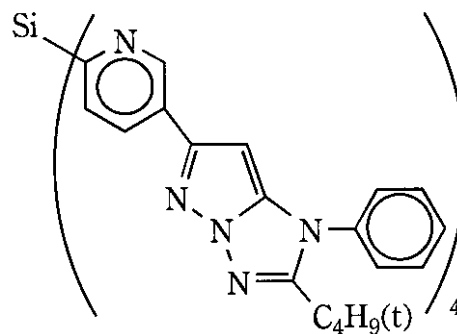
(1-16)



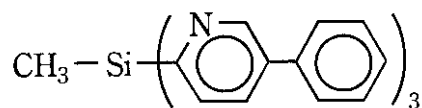
(1-17)



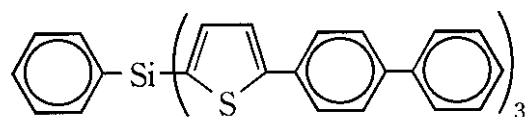
(1-18)



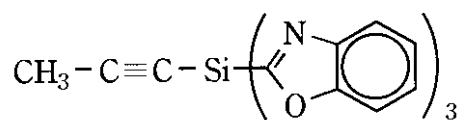
(1-19)



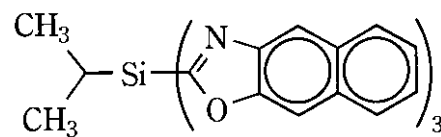
(1-20)



(1-21)



(1-22)



【 0 0 4 6 】

【 化 1 9 】

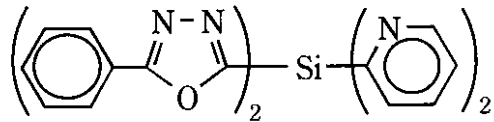
10

20

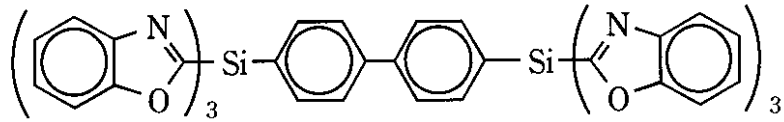
30

40

(1-23)

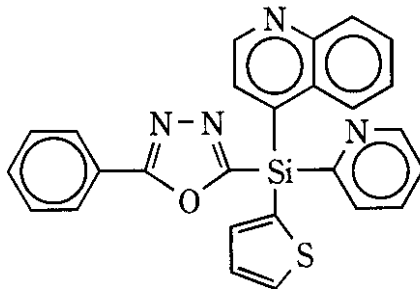


(1-24)



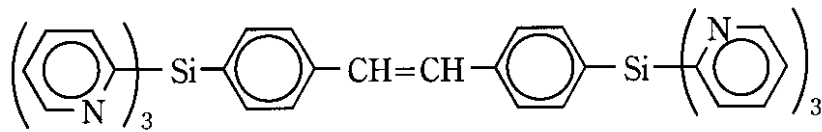
10

(1-25)

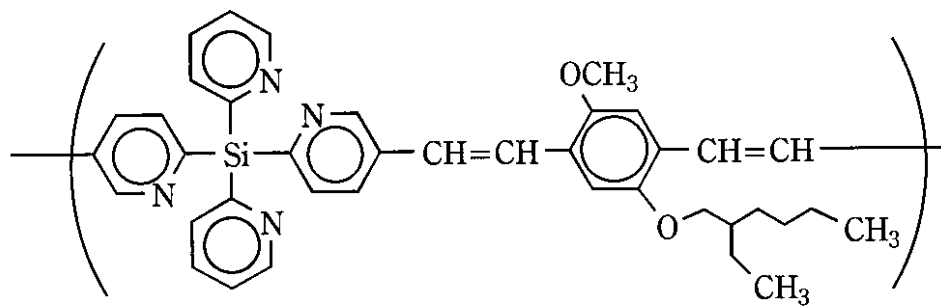


20

(1-26)



(1-27)



30

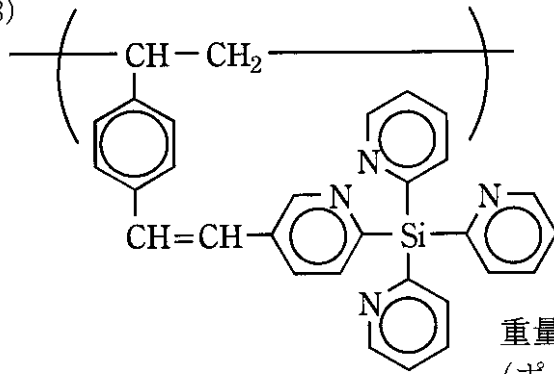
M<sub>w</sub> = 12100  
(ポリスチレン換算)

40

【 0 0 4 7 】

【 化 2 0 】

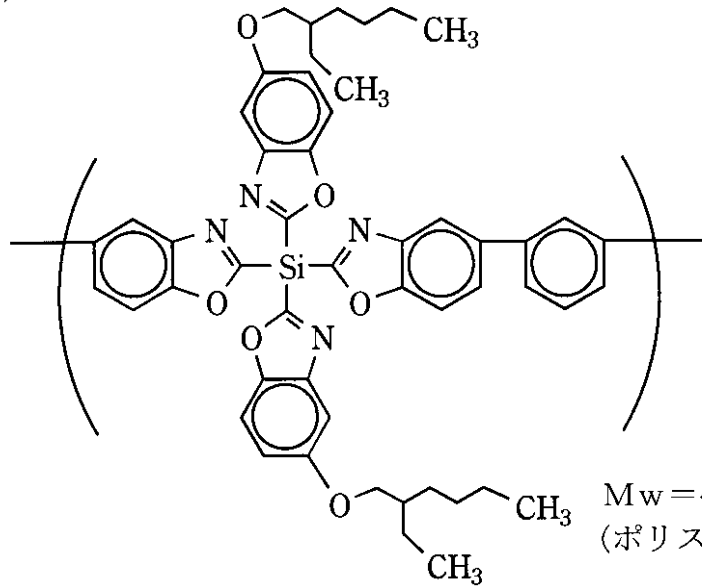
(1-28)



重量平均分子量  $M_w = 3200$   
(ポリスチレン換算)

10

(1-29)

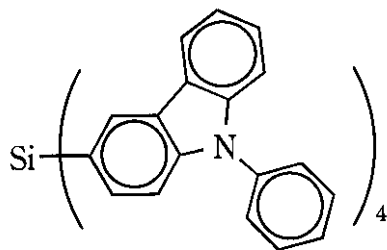


$M_w = 4200$   
(ポリスチレン換算)

20

30

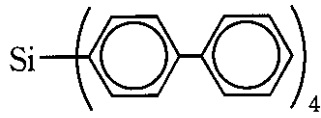
(1-30)



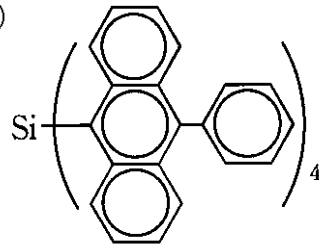
【 0 0 4 8 】  
【 化 2 1 】

40

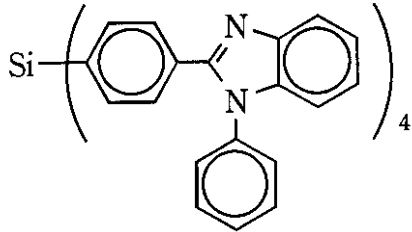
(2-1)



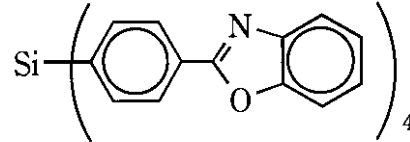
(2-2)



(2-3)

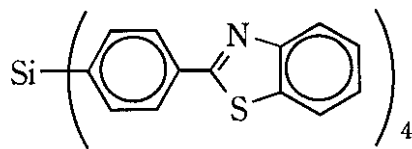


(2-4)

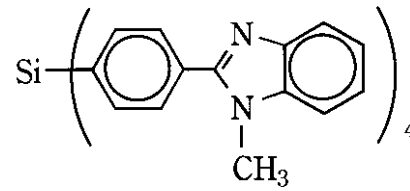


10

(2-5)

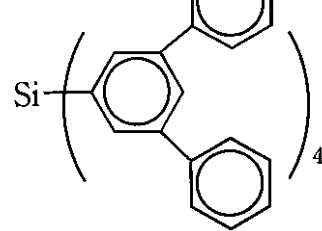


(2-6)

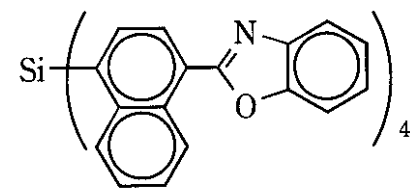


20

(2-7)

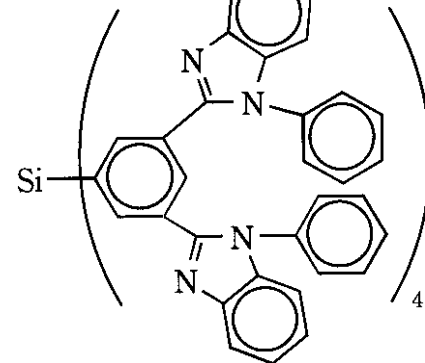


(2-8)

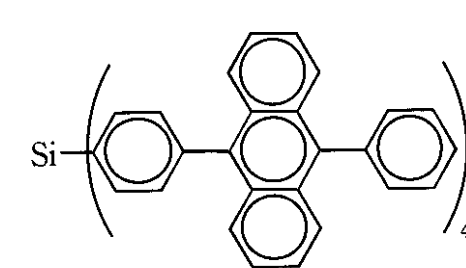


30

(2-9)



(2-10)

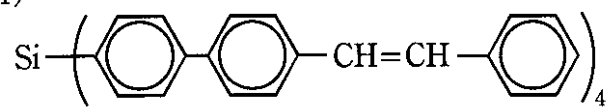


40

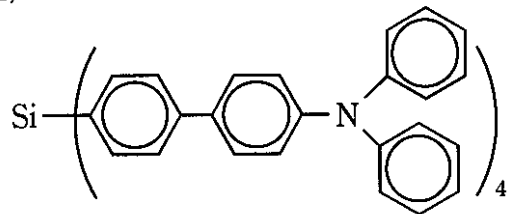
【 0 0 4 9 】

【 化 2 2 】

(2-11)



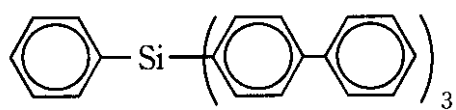
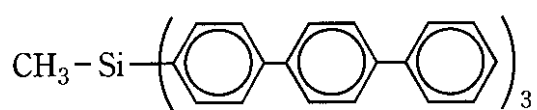
(2-12)



10

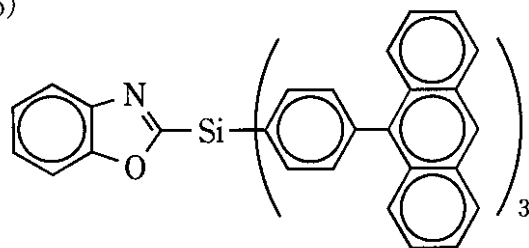
(2-13)

(2-14)

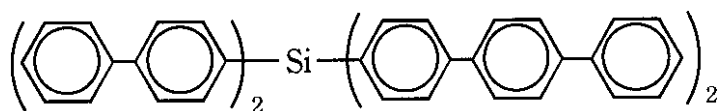


20

(2-15)



(2-16)



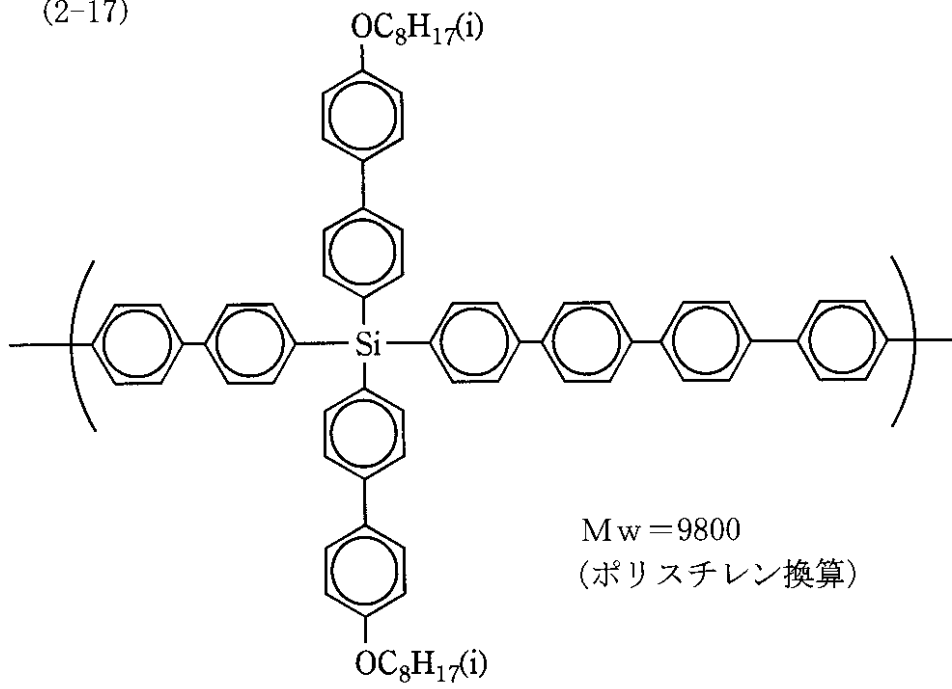
30

【 0 0 5 0 】

【 化 2 3 】



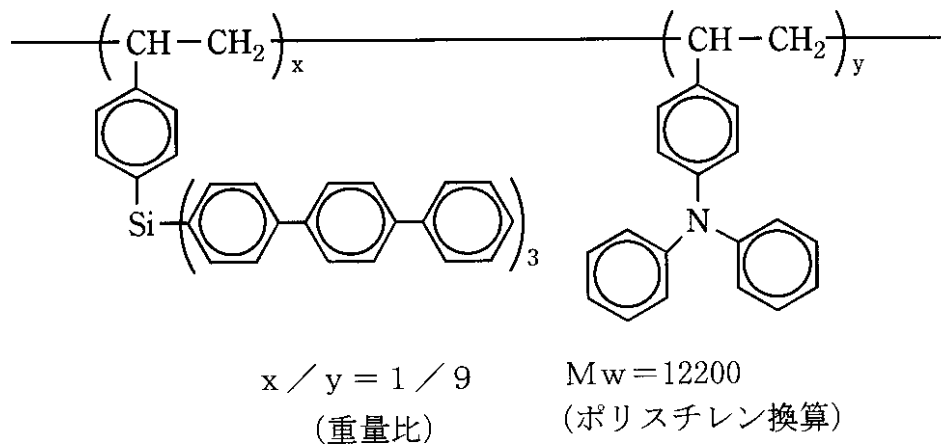
(2-17)



10

20

(2-18)

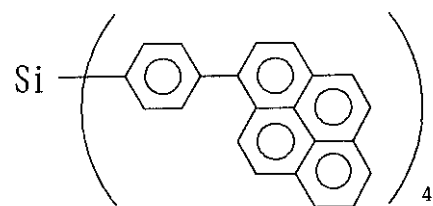


30

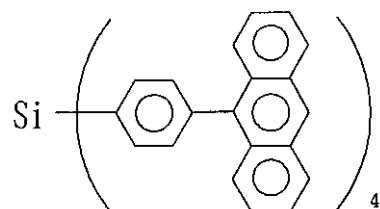
【 0 0 5 1 】

【 化 2 4 】

(2-19)

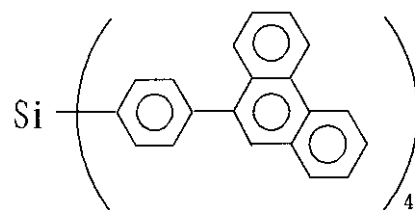


(2-20)



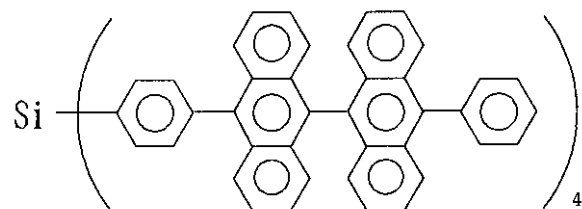
10

(2-21)



20

(2-22)

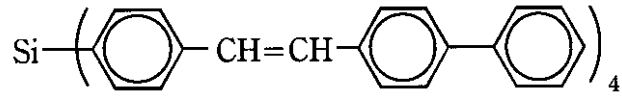


30

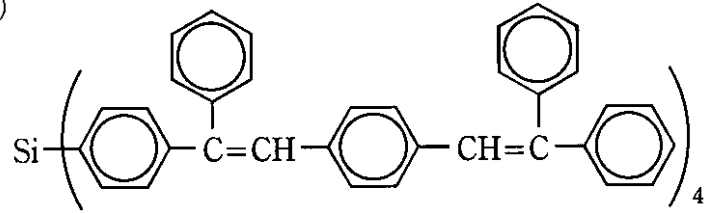
【 0 0 5 2 】

【 化 2 5 】

(3-1)

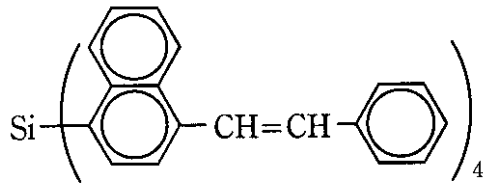


(3-2)

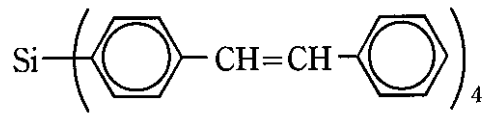


10

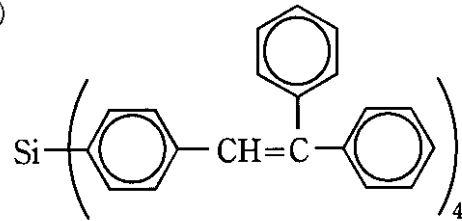
(3-3)



(3-4)

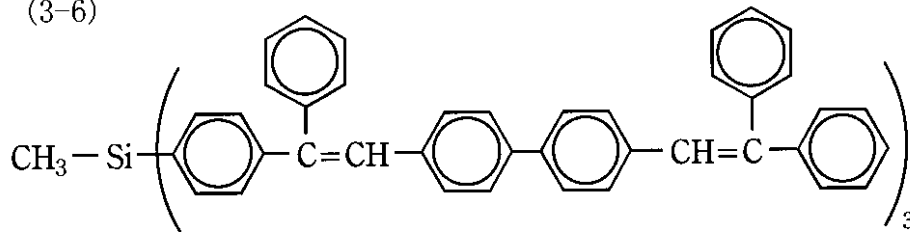


(3-5)



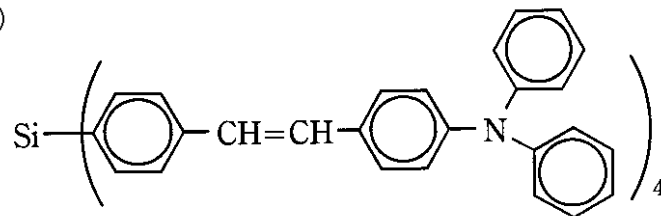
20

(3-6)



30

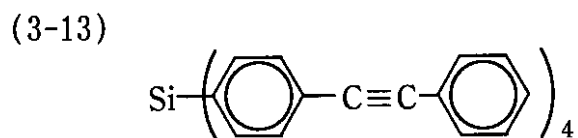
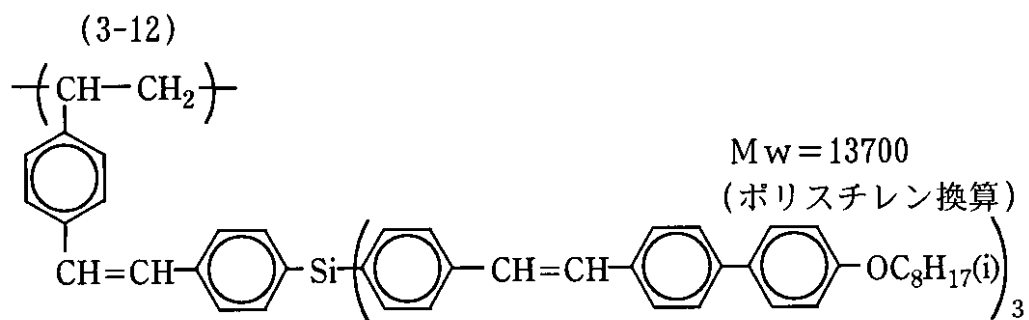
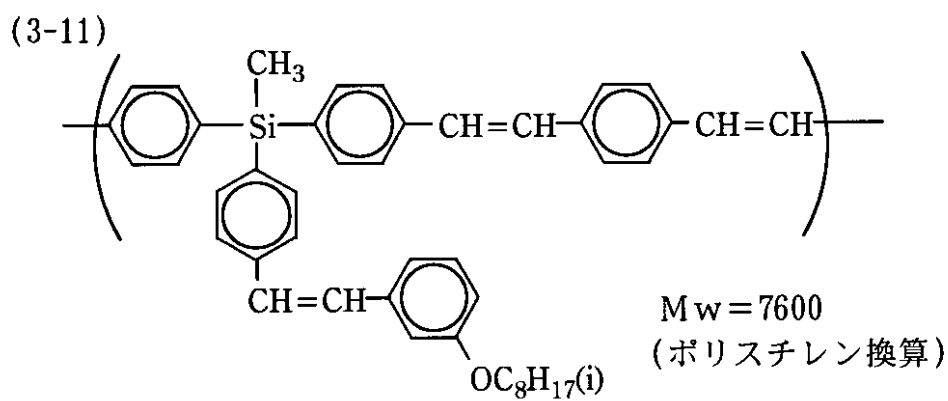
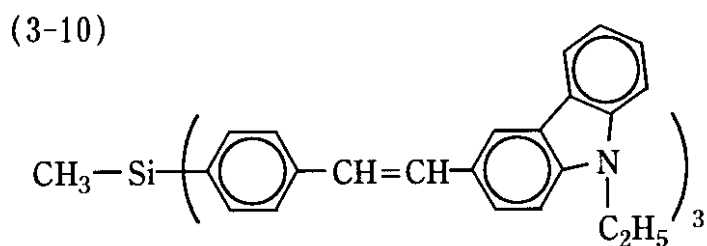
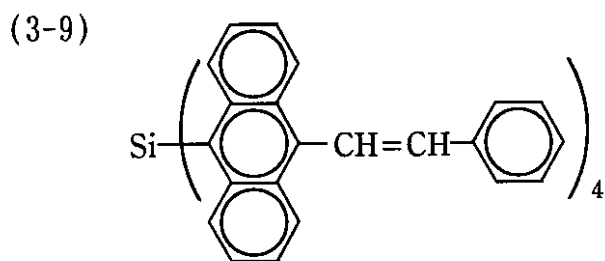
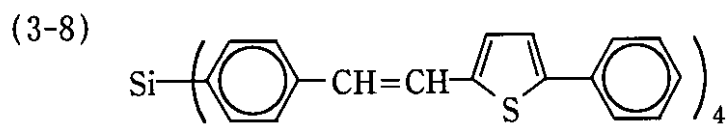
(3-7)



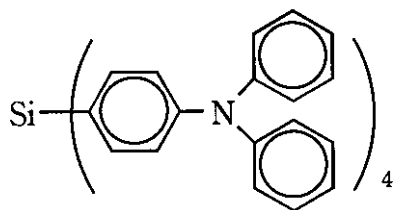
40

【 0 0 5 3 】

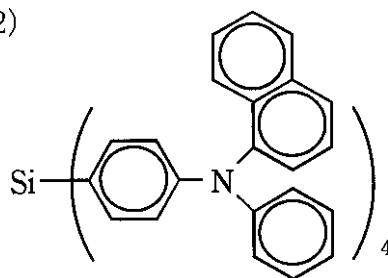
【 化 2 6 】



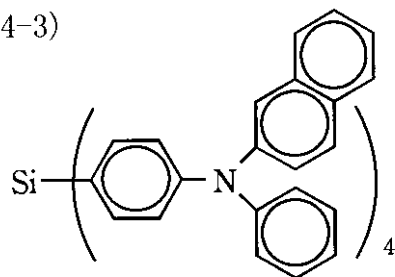
(4-1)



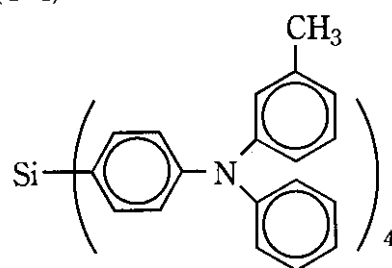
(4-2)



(4-3)

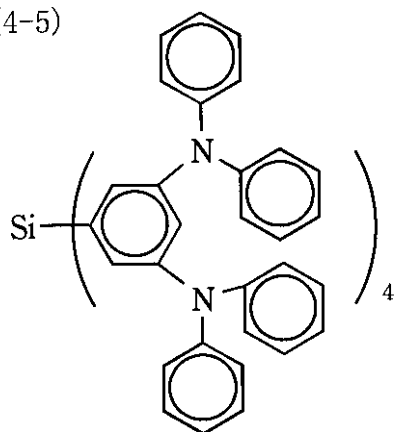


(4-4)

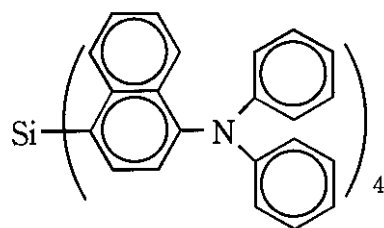


10

(4-5)

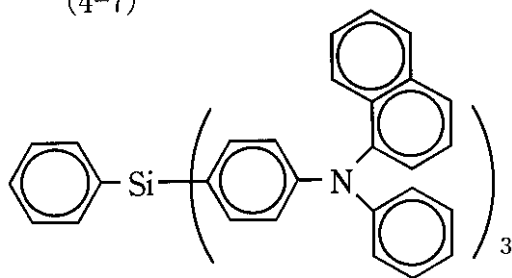


(4-6)

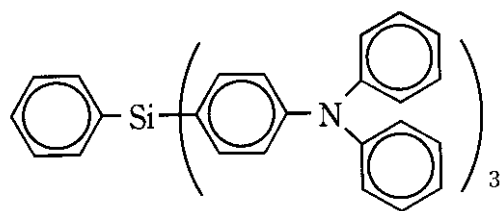


20

(4-7)



(4-8)



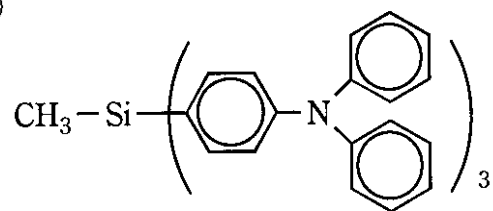
30

【 0 0 5 5 】

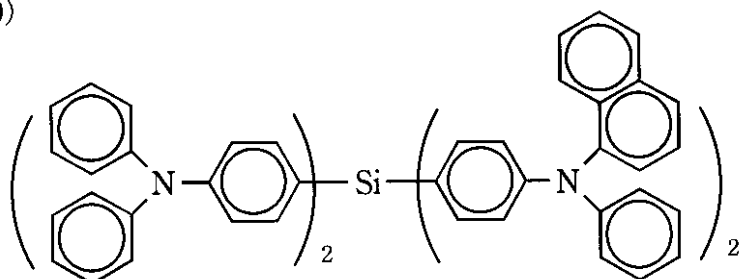
【 化 2 8 】

40

(4-9)

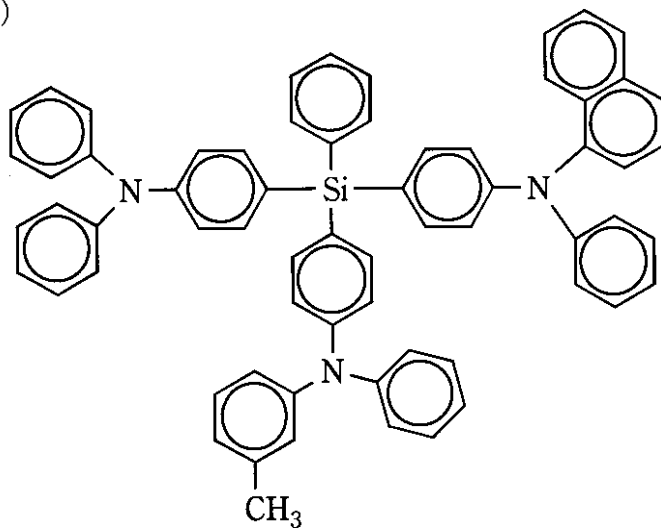


(4-10)



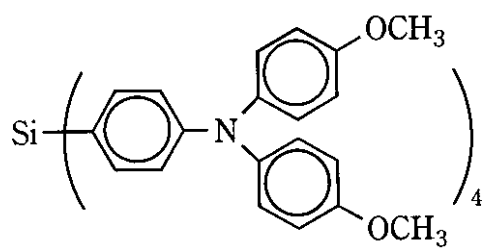
10

(4-11)

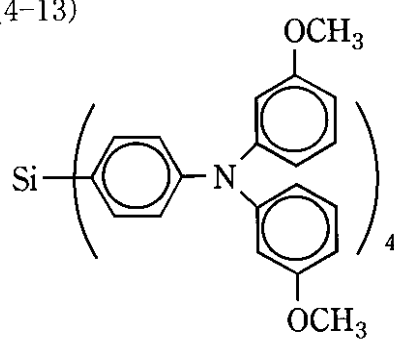


20

(4-12)



(4-13)



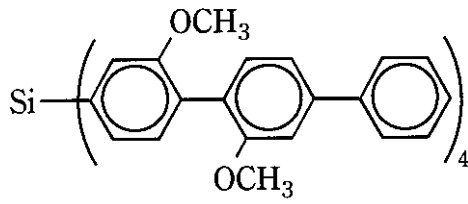
30

40

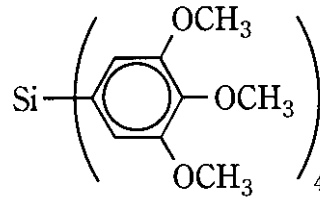
【 0 0 5 6 】

【 化 2 9 】

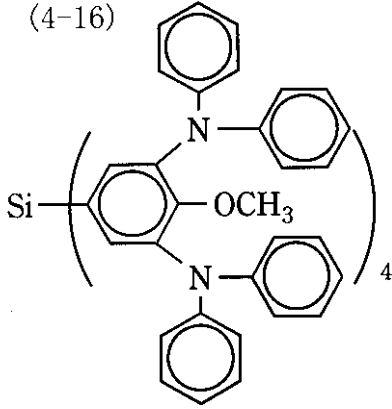
(4-14)



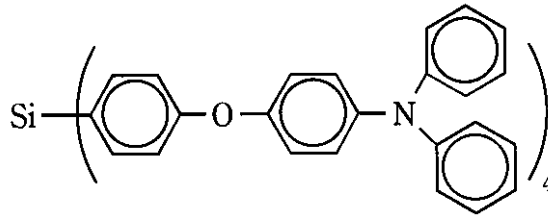
(4-15)



(4-16)

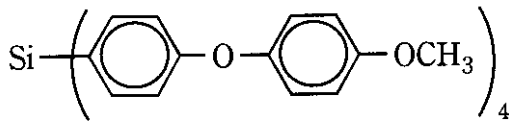


(4-17)

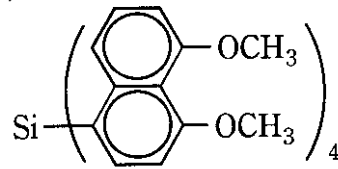


10

(4-18)

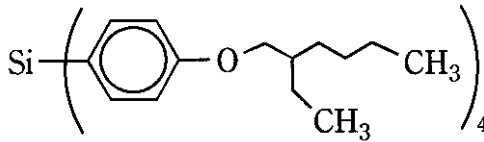


(4-19)

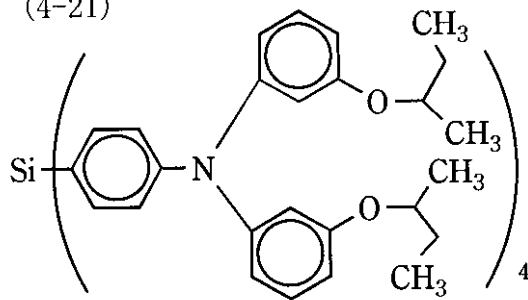


20

(4-20)

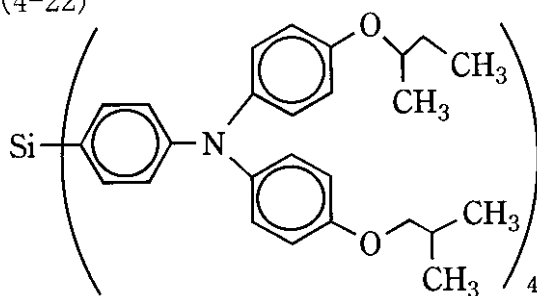


(4-21)



30

(4-22)

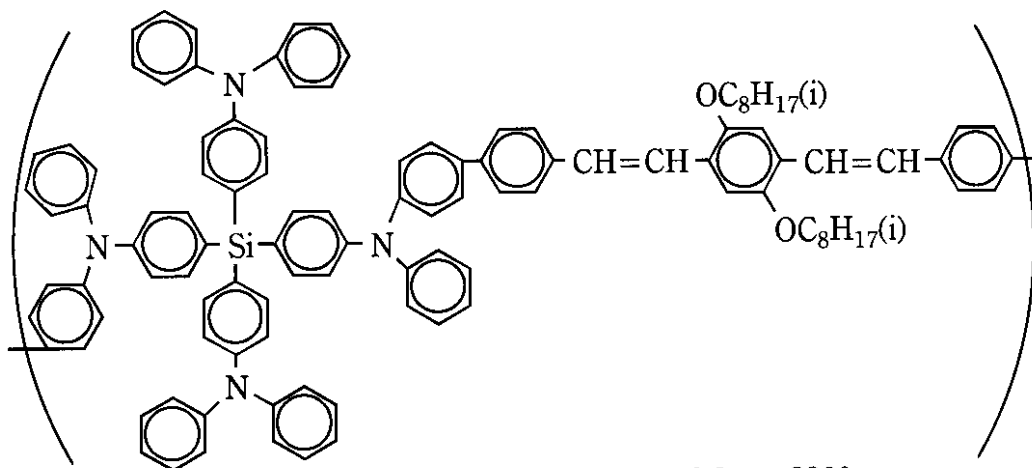


40

【 0 0 5 7 】

【 化 3 0 】

(4-23)

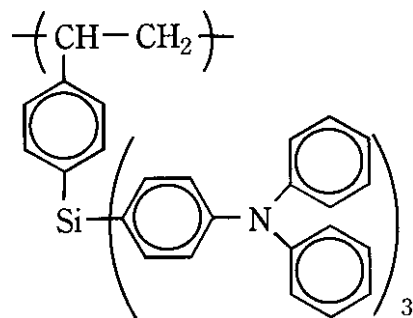


10

Mw = 8800

(ポリスチレン換算)

(4-24)



20

Mw = 10200

(ポリスチレン換算)

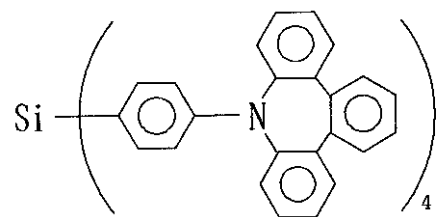
【 0 0 5 8 】

【 化 3 1 】

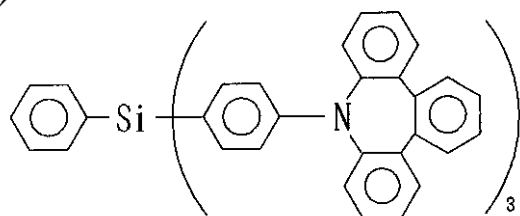
30



(4-25)

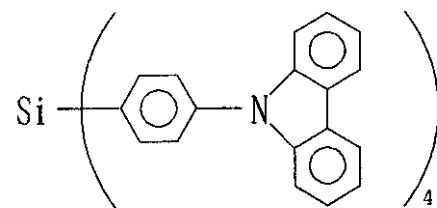


(4-26)



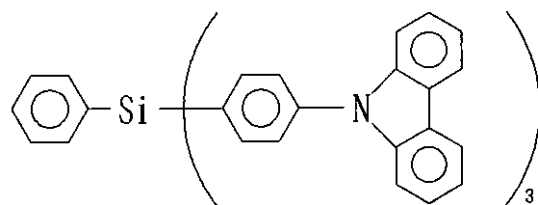
10

(4-27)



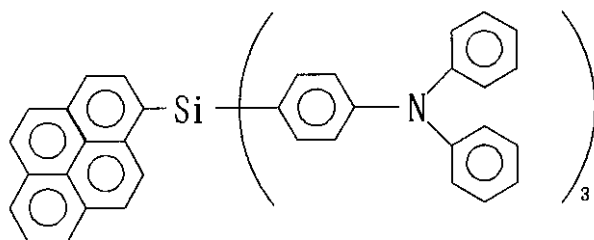
20

(4-28)



30

(4-29)

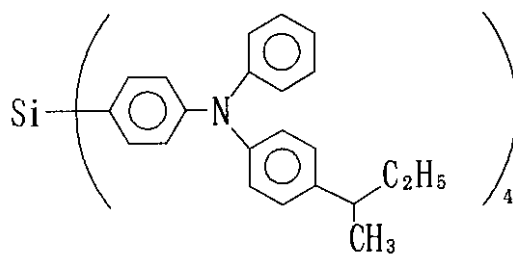


40

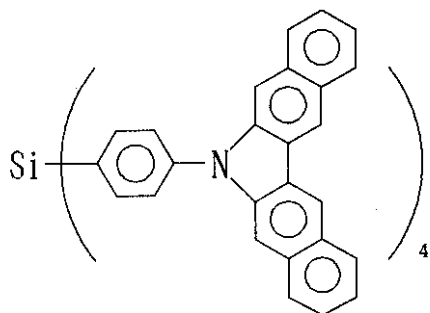
【 0 0 5 9 】

【 化 3 2 】

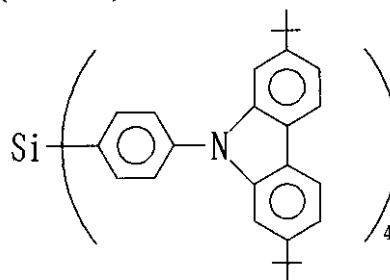
(4-30)



(4-31)

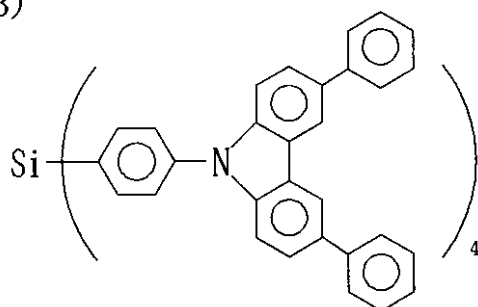


(4-32)



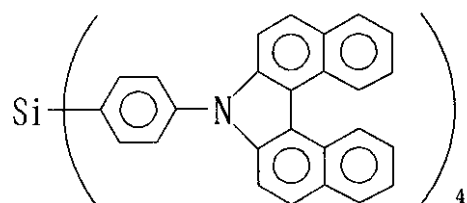
10

(4-33)

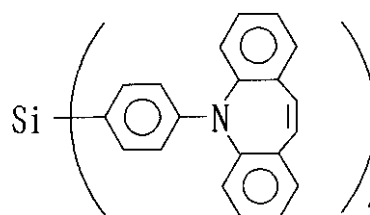


20

(4-34)



(4-35)



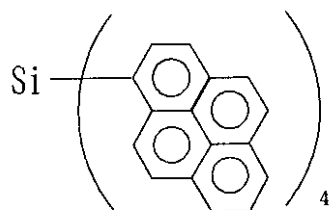
30

【 0 0 6 0 】

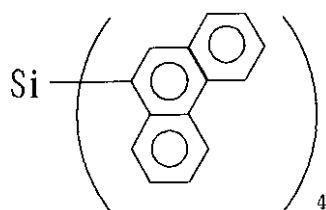
【 化 3 3 】

40

(5-1)

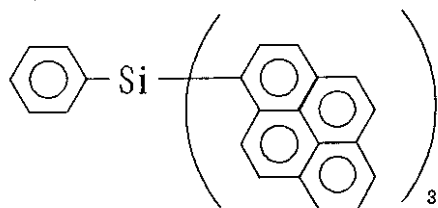


(5-2)

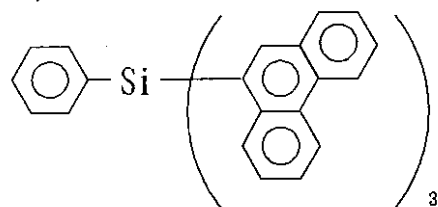


10

(5-3)

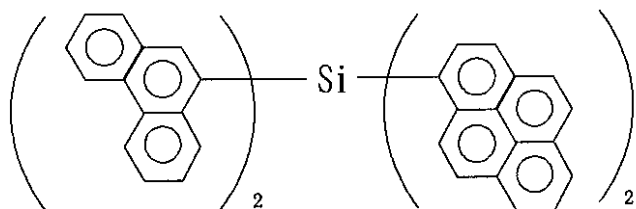


(5-4)



20

(5-5)

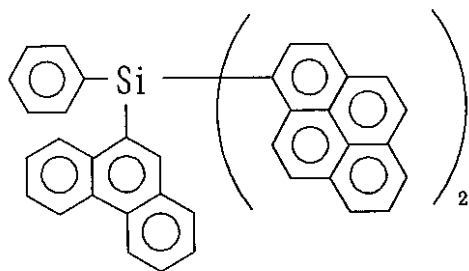


30

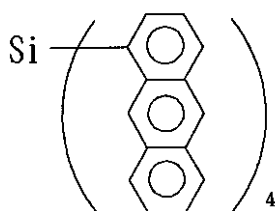
【 0 0 6 1 】

【 化 3 4 】

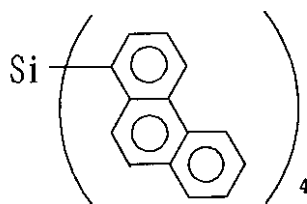
(5-6)



(5-7)



(5-8)



## 【0062】

次に、本発明の化合物の製造方法について述べる。本発明の化合物は、合成容易さの観点を見ると、ケイ素原子を中心とするスピロ構造を取る形態は好ましくない。

本発明の化合物は種々の公知の手法で合成することが可能であり、例えばリチオアリール誘導体（例えばフェニルリチウム）とハロゲン化ケイ素化合物を反応させ、得ることができる。また、本発明の化合物の  $Ar^2 - R^{22}$ 、 $Ar^3 - R^{32}$ 、 $Ar^4 - R^{42}$  結合生成反応は、 $-Ar^2 - X$ 、 $-Ar^3 - X$ 、 $-Ar^4 - X$  ( $X = Cl, Br, I, -OSO_2CH_3, -OSO_2CF_3$ 、好ましくは  $Br, I$ ) を前駆体とし、金属触媒を用い結合を生成する工程が好ましい（例えば、アルキルホウ酸誘導体を用いるスズキカップリング、アルケン誘導体を用いる Heck 反応、アミン誘導体を用いるウルマンタイプ反応、有機すず化合物を用いるスティル反応など）。

上記金属触媒としては、特に限定しないが、銅、パラジウム誘導体が好ましく、パラジウム誘導体がより好ましい。パラジウム触媒としては、価数、配位子など特に限定しないが、例えば、パラジウムテトラキストリフェニルホスフィン、パラジウムカーボン、パラジウムジクロライド ( $dppf$ ) ( $dppf$ : 1, 1'-ビスジフェニルホスフィノフェセン)、酢酸パラジウムなどが挙げられる。

## 【0063】

上記パラジウム触媒を用いた反応は、塩基を用いた方が好ましい。用いる塩基の種類は特に限定しないが、例えば、炭酸ナトリウム、酢酸ナトリウム、炭酸ルビジウム、トリエチルアミンなどが挙げられる。用いる塩基の量は特に限定しないが、好ましくはハロゲン化合物に対して 0.1 ~ 2.0 当量、特に好ましくは 1 ~ 1.0 当量である。

## 【0064】

上記パラジウム触媒を用いた反応は溶媒を用いた方が好ましい。用いる溶媒は特に限定しないが、例えば、エタノール、水、エチレングリコールジメチルエーテル、ジエチレングリコールジメチルエーテル、ジメチルホルムアミド、トルエン、テトラヒドロフラン、アセトン及びそれらの混合溶媒を用いる事ができる。

## 【0065】

次に、本発明の化合物を含有する発光素子に関して説明する。本発明の発光素子は、本発明の化合物を利用する素子であればシステム、駆動方法、利用形態など特に問わないが、本発明の化合物からの発光を利用するもの、または本化合物を電荷輸送材料として利用する物が好ましい。代表的な発光素子として有機 EL (エレクトロルミネッセンス) 素子を

10

20

30

40

50

挙げることができる。

【0066】

次に、本発明の化合物を含有する有機発光素子に関して説明する。本発明のシラン化合物を含有する有機発光素子の有機層の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法、インクジェット法、印刷法などの方法が用いられ、製造面で抵抗加熱蒸着、コーティング法が好ましい。

【0067】

本発明の発光素子は陽極、陰極の一对の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄膜を形成した素子であり、発光層のほか正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層、保護層などを有してもよく、またこれらの各層はそれぞれ他の機能を備えたものであってもよい。各層の形成にはそれぞれ種々の材料を用いることができる。

陽極は正孔注入層、正孔輸送層、発光層などに正孔を供給するものであり、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物などを用いることができ、好ましくは仕事関数が4 eV以上の材料である。具体例としては酸化スズ、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化インジウムスズ(ITO)等の導電性金属酸化物、あるいは金、銀、クロム、ニッケル等の金属、さらにこれらの金属と導電性金属酸化物との混合物または積層物、ヨウ化銅、硫化銅などの無機導電性物質、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロールなどの有機導電性材料、およびこれらとITOとの積層物などが挙げられ、好ましくは、導電性金属酸化物であり、特に、生産性、高導電性、透明性等の点からITOが好ましい。陽極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10 nm ~ 5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50 nm ~ 1 μmであり、更に好ましくは100 nm ~ 500 nmである。

【0068】

陽極は通常、ソーダライムガラス、無アルカリガラス、透明樹脂基板などの上に層形成したものが用いられる。ガラスを用いる場合、その材質については、ガラスからの溶出イオンを少なくするため、無アルカリガラスを用いることが好ましい。また、ソーダライムガラスを用いる場合、シリカなどのバリアコートを施したものを使用することが好ましい。基板の厚みは、機械的強度を保つのに十分であれば特に制限はないが、ガラスを用いる場合には、通常0.2 mm以上、好ましくは0.7 mm以上のものを用いる。

陽極の作製には材料によって種々の方法が用いられるが、例えばITOの場合、電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、化学反応法(ゾルーゲル法など)、酸化インジウムスズの分散物の塗布などの方法で膜形成される。

陽極は洗浄その他の処理により、素子の駆動電圧を下げたり、発光効率を高めることも可能である。例えばITOの場合、UV-オゾン処理、プラズマ処理などが効果的である。

【0069】

陰極は電子注入層、電子輸送層、発光層などに電子を供給するものであり、電子注入層、電子輸送層、発光層などの負極と隣接する層との密着性やイオン化ポテンシャル、安定性等を考慮して選ばれる。陰極の材料としては金属、合金、金属ハロゲン化物、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物を用いることができ、具体例としてはアルカリ金属(例えばLi、Na、K等)及びそのフッ化物、酸化物、アルカリ土類金属(例えばMg、Ca等)及びそのフッ化物、酸化物、金、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウム-カリウム合金またはそれらの混合金属、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属、インジウム、イッテリビウム等の希土類金属等が挙げられ、好ましくは仕事関数が4 eV以下の材料であり、より好ましくはアルミニウム、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属等である。陰極は、上記化合物及び混合物の単層構造だけでなく、上記化合物及び混合物を含む積層構造を取ることにもできる。陰極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10 nm ~ 5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50 nm ~ 1 μmであり、更に好ましくは100 nm ~ 1 μmである。

陰極の作製には電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、コーティング法など

の方法が用いられ、金属を単体で蒸着すること、二成分以上を同時に蒸着すること、さらに、複数の金属を同時に蒸着して合金電極を形成することも可能であり、またあらかじめ調整した合金を蒸着させてもよい。

陽極及び陰極のシート抵抗は低い方が好ましく、数百 / 以下が好ましい。

#### 【0070】

発光層の材料は、電界印加時に陽極または正孔注入層、正孔輸送層から正孔を注入することができると共に陰極または電子注入層、電子輸送層から電子を注入することができる機能や、注入された電荷を移動させる機能、正孔と電子の再結合の場を提供して発光させる機能を有する層を形成することができるものであれば何でもよい。好ましくは発光層に本発明のシラン化合物を含有するものであるが、他の発光材料を用いることもできる。例えばベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、スチリルベンゼン誘導体、ポリフェニル誘導体、ジフェニルブタジエン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ナフタルイミド誘導体、クマリン誘導体、ペリレン誘導体、ペリノン誘導体、オキサジアゾール誘導体、アルダジン誘導体、ピラリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、ビススチリルアントラセン誘導体、キナクリドン誘導体、ピロロピリジン誘導体、チアジアゾロピリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、スチリルアミン誘導体、芳香族ジメチリジン化合物、8-キノリノール誘導体の金属錯体や希土類錯体、遷移金属錯体（例えば、トリス（2-フェニルピリジン）イリジウム（III）錯体などのオルトメタル化錯体）に代表される各種金属錯体等、ポリチオフェン、ポリフェニレン、ポリフェニレンビニレン等のポリマー化合物等が挙げられる。発光層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm ~ 5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm ~ 1 μmであり、更に好ましくは10 nm ~ 500 nmである。

発光層の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）、LB法、インクジェット法、印刷法などの方法が用いられ、好ましくは抵抗加熱蒸着、コーティング法である。

#### 【0071】

正孔注入層、正孔輸送層の材料は、陽極から正孔を注入する機能、正孔を輸送する機能、陰極から注入された電子を障壁する機能のいずれかが有しているものであればよい。その具体例としては、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリーラルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリーラルアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリジン系化合物、ポルフィリン系化合物、ポリシラン系化合物、ポリ（N-ビニルカルバゾール）誘導体、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリゴマー、本発明のシラン化合物等が挙げられる。正孔注入層、正孔輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm ~ 5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm ~ 1 μmであり、更に好ましくは10 nm ~ 500 nmである。正孔注入層、正孔輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。

正孔注入層、正孔輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、前記正孔注入輸送剤を溶媒に溶解または分散させてコーティングする方法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）、インクジェット法、印刷法が用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、ポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリブタジエン、ポリ（N-ビニルカルバゾール）、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エチルセルロース、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン、メラミン樹脂、不飽和

ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂などが挙げられる。

#### 【0072】

電子注入層、電子輸送層の材料は、陰極から電子を注入する機能、電子を輸送する機能、陽極から注入された正孔を障壁する機能のいずれか有しているものであればよい。その具体例としては、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、フルオレノン誘導体、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン誘導体、8-キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体、本発明のシラン化合物等が挙げられる。電子注入層、電子輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm ~ 5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm ~ 1 μmであり、更に好ましくは10 nm ~ 500 nmである。電子注入層、電子輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。

電子注入層、電子輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、前記電子注入輸送剤を溶媒に溶解または分散させてコーティングする方法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）、インクジェット法、印刷法などが用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、正孔注入輸送層の場合に例示したものが適用できる。

#### 【0073】

保護層の材料としては水分や酸素等の素子劣化を促進するものが素子内に入ることを抑止する機能を有しているものであればよい。その具体例としては、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Ti、Ni等の金属、MgO、SiO、SiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、GeO、NiO、CaO、BaO、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、TiO<sub>2</sub>等の金属酸化物、MgF<sub>2</sub>、LiF、AlF<sub>3</sub>、CaF<sub>2</sub>等の金属フッ化物、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリウレア、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレンとジクロロジフルオロエチレンとの共重合体、テトラフルオロエチレンと少なくとも1種のコモノマーを含むモノマー混合物を共重合させて得られる共重合体、共重合主鎖に環状構造を有する含フッ素共重合体、吸水率1%以上の吸水性物質、吸水率0.1%以下の防湿性物質等が挙げられる。

保護層の形成方法についても特に限定はなく、例えば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、MBE（分子線エピタキシ）法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法（高周波励起イオンプレーティング法）、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、ガスソースCVD法、コーティング法を適用できる。

#### 【0074】

##### 【実施例】

以下に本発明の具体的実施例を述べるが、本発明の実施の態様はこれらに限定されない。

#### 【0075】

##### 合成例

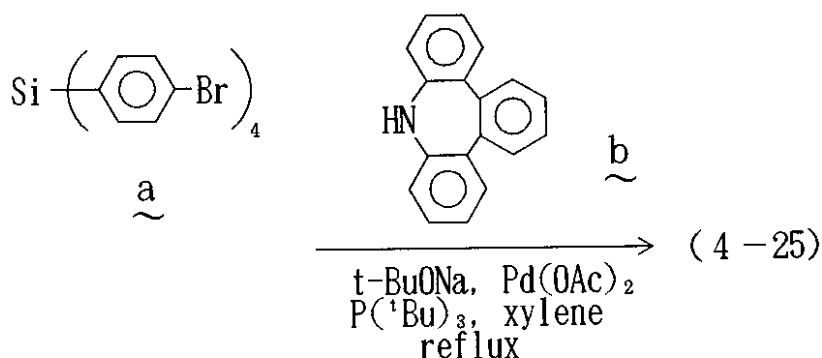
##### 化合物（4-25）の合成

化合物a 1 g、ベンゾアセピンb 1.64 g、t-BuONa 0.74 g、Pd(OAc)<sub>2</sub> 0.01 g、P(t-Bu)<sub>3</sub> 0.01 gにキシレン50 mlを加え、窒素下3時間還流攪拌した。反応液を室温に冷却し、クロロホルム200 ml、水200 mlを加え、分離した有機層を分取、濃縮した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー（クロロホルム系）で精製した後、クロロホルム/メタノール系で再結晶し白色固体（4-25）1.5 gを得た。

#### 【0076】

##### 【化35】

## (4-25) の合成



10

## 【0077】

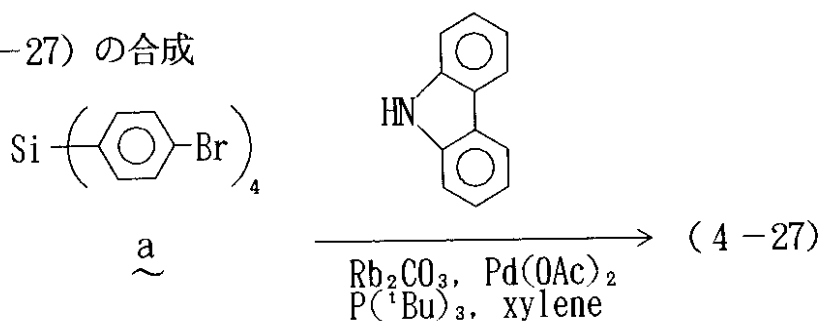
化合物 (4-27) の合成

化合物 b の代わりにカルバゾール、t-BuONa の代わりに  $\text{Rb}_2\text{CO}_3$  を用い、(4-25) 合成と同様の操作で白色固体 (4-27) 1.3 g を合成した。

## 【0078】

## 【化36】

## (4-27) の合成



20

## 【0079】

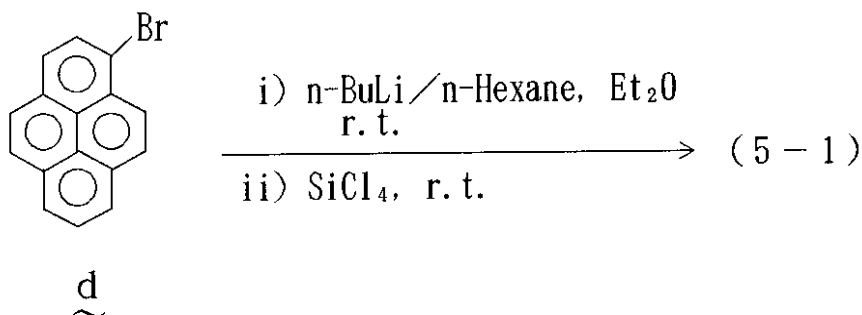
化合物 (5-1) の合成

化合物 d 5 g に脱水エーテル 100 ml を加え、窒素雰囲気下室温で攪拌した。この溶液に n-BuLi (1.6M / ヘキサン溶液) 10 ml を滴下した後、室温で 10 分間攪拌した。この溶液に  $\text{SiCl}_4$  0.41 ml を滴下し、室温で 1 hr 攪拌した。反応液にクロロホルム 300 ml、水 200 ml を加え、分離した有機層を乾燥、濃縮した。クロロホルム / メタノールで再結晶し、単黄色固体 (5-1) 1.9 g を得た。

## 【0080】

## 【化37】

## (5-1) の合成



40

50



## 【 0 0 8 1 】

## 比較例 1

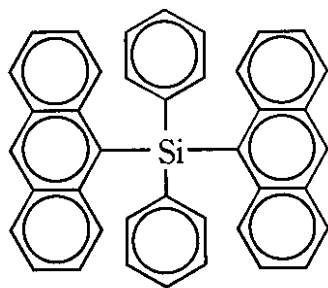
ポリ（N - ビニルカルバゾール）40 mg、PBD（2 - t - ブチルフェニル - 4 - ビフェニリル - 1, 3, 4 - オキサジアゾール）12 mg、下記化合物 A 1 mg をジクロロエタン 2 ml に溶解し、洗浄したITO基板上にスピンコートし、約130 nmの薄膜を得た。有機薄膜上にパターニングしたマスク（発光面積が5 mm × 5 mmとなるマスク）を設置し、蒸着装置内でマグネシウム：銀 = 10：1を50 nm共蒸着した後、銀50 nmを蒸着してEL素子を作成した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用いて、直流定電圧をEL素子に印加し発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計BM - 8、発光波長を浜松フォトンクス社製スペクトルアナライザーPMA - 11を用いて測定した。その結果、EL max = 470 nmの青色発光が得られ、19 Vで152 cd / m<sup>2</sup>の輝度が得られた。色度値は（x, y）=（0.18, 0.20）であった。

10

## 【 0 0 8 2 】

## 【化38】

化合物A



特開平11-3781に記載の化合物

20

## 【 0 0 8 3 】

## 比較例 2

洗浄したITO基板を蒸着装置内に入れ、基板上にTPD（N, N' - ジフェニル - N, N' - ジ（m - トリル）ベンジジン）を40 nm蒸着し、この上にAlq（トリス（8 - ヒドロキシキノリナト）アルミニウム錯体）60 nmを蒸着した。有機薄膜上にパターニングしたマスク（発光面積が5 mm × 5 mmとなるマスク）を設置し、蒸着装置内でマグネシウム：銀 = 10：1を50 nm共蒸着した後、銀50 nmを蒸着してEL素子を作成した。

30

比較例 1と同様に評価し、緑色の発光が得られたことを確認した後、5時間放置し、再度評価したところ、目視で多数のダークスポットが確認された。

## 【 0 0 8 4 】

## 比較例 3

洗浄したITO基板を蒸着装置内に入れ、基板上にTPD（N, N' - ジフェニル - N, N' - ジ（m - トリル）ベンジジン）を40 nm蒸着し、この上に化合物Bを20 nm蒸着し、その上にAlq（トリス（8 - ヒドロキシキノリナト）アルミニウム錯体）40 nmを蒸着した後、比較例 2と同様の操作で陰極を蒸着した。

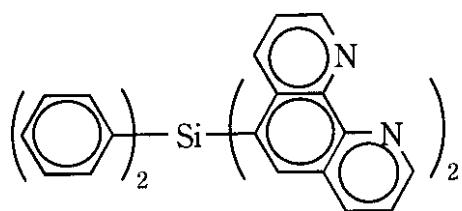
40

比較例 1と同様に評価し、青色の発光が得られたことを確認した後、一日間放置したところ、素子の絶縁破壊が発生し、素子からの発光は得られなかった。

## 【 0 0 8 5 】

## 【化39】

化合物B



特開平11-3781に記載の化合物

【 0 0 8 6 】

10

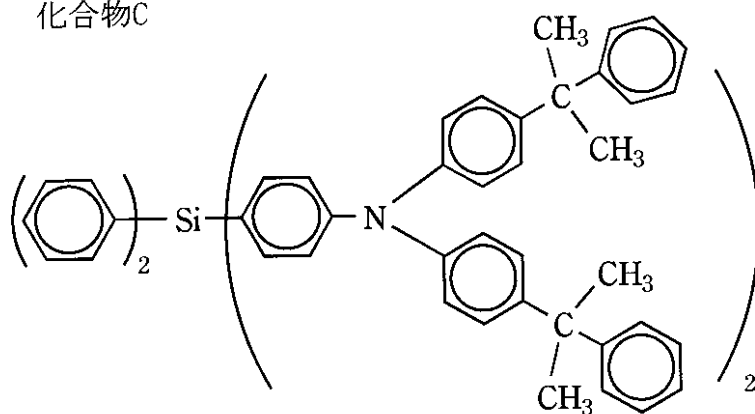
比較例 4

T P D の代わりに、化合物 C をホール輸送材料として用い、比較例 2 と同様に素子作製・評価した。緑色の発光を確認した後、2 日間放置し、再度評価したところ、素子の絶縁破壊が発生していた。

【 0 0 8 7 】

【 化 4 0 】

化合物C



20

特開平10-265773に記載の化合物

【 0 0 8 8 】

30

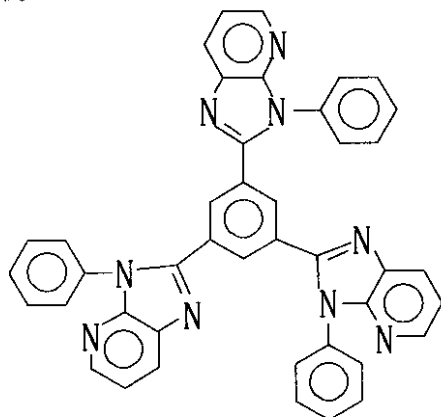
比較例 5

洗浄した基板を蒸着装置に入れ、基板上に - N P D ( N , N ' - ジ ( 1 - ナフチル ) - N , N ' - ジフェニルベンジジン) を 4 0 nm 蒸着し、その上に化合物 A を 2 0 nm 蒸着し、その上に化合物 D 4 0 nm を蒸着し、比較例 1 と同様に陰極蒸着、評価した。素子からは微弱的な青色発光が得られるだけであった。

【 0 0 8 9 】

【 化 4 1 】

## 化合物D



10

## 【0090】

## 比較例 6

洗浄した基板を蒸着装置に入れ、基板上に  $-NPD$   $40\text{ nm}$ 、 $Alq$   $60\text{ nm}$  蒸着し、比較例 1 と同様に陰極蒸着、評価した。最高輝度  $5520\text{ cd/m}^2$  の発光が得られた。窒素気流下、本素子を  $100$ 、2 時間の条件下放置した後、再評価したが、素子の短絡が発生した。

20

## 実施例 1

ポリ(N-ビニルカルバゾール)  $40\text{ mg}$ 、 $PBD$  (2-t-ブチルフェニル-4-ピフェニル-1,3,4-オキサジアゾール)  $12\text{ mg}$ 、(2-1)  $1\text{ mg}$  をジクロロエタン  $2\text{ ml}$  に溶解し、洗浄したITO基板上にスピンコートし、約  $130\text{ nm}$  の薄膜を得た。有機薄膜上にパターニングしたマスク(発光面積が  $5\text{ mm} \times 5\text{ mm}$  となるマスク)を設置し、蒸着装置内でマグネシウム：銀 =  $10:1$  を  $50\text{ nm}$  共蒸着した後、銀  $50\text{ nm}$  を蒸着してEL素子を作成した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット  $2400$  型を用いて、直流定電圧をEL素子に印加し発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計  $BM-8$ 、発光波長を浜松フォトンクス社製スペクトルアナライザー  $PMA-11$  を用いて測定した。その結果、 $EL_{max} = 418$ 、 $437\text{ nm}$  の青色発光が得られ、 $21\text{ V}$  で  $175\text{ cd/m}^2$  の輝度が得られた。色度値は  $(x, y) = (0.17, 0.16)$  と良好であった。

30

色度値は色純度の指標であり、この値が小さいほど色純度が良いことを意味する。従って比較例 1 のEL素子よりも本発明の素子の方が、色純度が優れていることがわかる。

## 【0091】

## 実施例 2

$TPD$  の代わりに、本発明の化合物(4-1)を用い、比較例 2 と同様に素子作製評価した。5 時間後も目視ではダークスポットの発生は見られなかった。

## 【0092】

## 実施例 3

化合物 B の代わりに、本発明の化合物(1-5)を用い、比較例 3 と同様に素子作製評価した。1 日放置した後も、素子からの青色発光が認められた。

40

## 実施例 4

化合物 A の代わりに本発明の化合物(2-19)を用い、比較例 5 と同様に素子作製、評価した。その結果、 $(0.19, 0.29)$  の青色発光が得られ、最高輝度  $4280\text{ cd/m}^2$ 、 $100\text{ cd/m}^2$  付近の外部量子効率  $1.09\%$  であった。

## 実施例 5

化合物 A の代わりに本発明の化合物(5-1)を用い、比較例 5 と同様に素子作製、評価した。その結果、 $(0.18, 0.29)$  の青色発光が得られ、最高輝度  $4500\text{ cd/m}^2$ 、 $100\text{ cd/m}^2$  付近の外部量子効率  $1.32\%$  であった。

50

## 実施例 6

- NPD の代わりに本発明の化合物 ( 4 - 25 ) を用い、比較例 6 と同様に素子作製、評価した。最高輝度  $6540 \text{ cd/m}^2$  の発光が得られた。窒素気流下、本素子を 100 、 2 時間の条件下放置した素子の最高輝度は  $5220 \text{ cd/m}^2$  であった。

## 実施例 7

- NPD の代わりに本発明の化合物 ( 4 - 27 ) を用い、比較例 6 と同様に素子作製、評価した。最高輝度  $4680 \text{ cd/m}^2$  の発光が得られた。窒素気流下、本素子を 100 、 2 時間の条件下放置した素子の最高輝度は  $3190 \text{ cd/m}^2$  であった。

## 【 0093 】

同様に、本発明のシラン化合物含有 EL 素子を作製・評価したところ、本発明の化合物が EL 素子材料として機能することが確認できた。また、ダークスポットが少ない、ショートが少ないなどの耐久性に優れることが分かった。

10

## 【 0094 】

## 【 発明の効果 】

本発明のシラン化合物は有機 EL 用材料として使用可能であり、本発明の化合物を含有する素子は色相・輝度・耐久性などの EL 特性に優れる。また、本発明の化合物は医療用途、蛍光増白剤、写真用材料、UV 吸収材料、レーザー色素、カラーフィルター用染料、色変換フィルター等にも適用可能である。

---

フロントページの続き

(72)発明者 田口 敏樹

神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真フイルム株式会社内

審査官 井上 千弥子

(56)参考文献 特開平09-241265(JP,A)

特開平11-003781(JP,A)

特開平10-265773(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C09K 11/06

CA(STN)

REGISTRY(STN)

专利名称(译)	具体的硅烷化合物，包含它们的发光器件材料，以及包含它们的发光器件。		
公开(公告)号	<a href="#">JP3865996B2</a>	公开(公告)日	2007-01-10
申请号	JP2000070609	申请日	2000-03-14
[标]申请(专利权)人(译)	富士胶片株式会社		
申请(专利权)人(译)	富士胶片有限公司		
当前申请(专利权)人(译)	富士胶片控股株式会社		
[标]发明人	五十嵐達也 田口敏樹		
发明人	五十嵐 達也 田口 敏樹		
IPC分类号	C09K11/06 C07F7/08 C07F7/10 H01L51/50 C08G77/60 H01L51/30 H05B33/12 H05B33/14		
CPC分类号	C09K11/06 C07F7/081 C07F7/0814 H01L51/0094 H01L51/5012		
FI分类号	C09K11/06.660 C07F7/08.C C07F7/10.S H05B33/14.B C07F7/08.Q C07F7/10.C C07F7/10.T C07F7/10.V C08G77/60 C09K11/06.680 H05B33/12.Z H05B33/14.A H05B33/14.Z		
F-TERM分类号	3K007/AB03 3K007/EB01 3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC04 3K107/CC07 3K107/CC21 3K107/DD59 3K107/DD71 3K107/DD74 3K107/DD78 4H049/VN01 4H049/VP01 4H049/VQ07 4H049/VQ08 4H049/VQ59 4H049/VQ60 4H049/VQ61 4H049/VQ64 4H049/VR24 4H049/VU29 4J035/JA02 4J035/JA03 4J246/HA11		
优先权	1999100416 1999-04-07 JP		
其他公开文献	JP2000351966A		
外部链接	<a href="#">Espacenet</a>		

#### 摘要(译)

要解决的问题：通过使材料包括特定的硅烷化合物，获得可用作具有高效率和高耐久性的有机电致发光（EL）元件的材料的主题材料。溶液：该发光元件包含式I化合物（R<sup>1</sup>为烷基，芳基，杂芳基等；Ar<sup>11</sup>至Ar<sup>13</sup>各自为杂芳基）（例如式II化合物等）。例如，通过使诸如苯基锂的锂芳基衍生物与卤代硅化合物反应，得到式I化合物。含有该材料的元素具有优异的EL特性，例如色调，亮度等。

