

(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2005-120030

(P2005-120030A)

(43) 公開日 平成17年5月12日(2005.5.12)

(51) Int.Cl.⁷

C07C 211/54

C07C 211/61

C07C 217/80

C07C 217/84

C09K 11/06

F I

C07C 211/54

C07C 211/61

C07C 217/80

C07C 217/84

C09K 11/06 620

テーマコード (参考)

3K007

4H006

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 53 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2003-357362 (P2003-357362)

(22) 出願日 平成15年10月17日 (2003.10.17)

(71) 出願人 000005887

三井化学株式会社

東京都港区東新橋一丁目5番2号

(72) 発明者 塚田 英孝

千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 三井化

学株式会社内

(72) 発明者 戸谷 由之

千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 三井化

学株式会社内

(72) 発明者 島村 武彦

千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 三井化

学株式会社内

(72) 発明者 田辺 良満

千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 三井化

学株式会社内

最終頁に続く

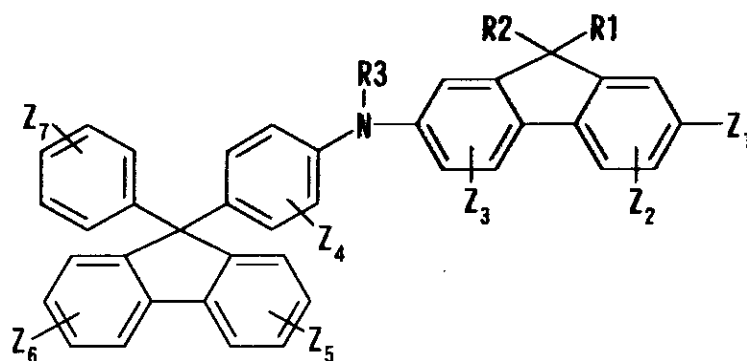
(54) 【発明の名称】 9, 9-ジフェニルフルオレン化合物、および該9, 9-ジフェニルフルオレン化合物を含有する有機電界発光素子

(57) 【要約】

【課題】 新規な9, 9-ジフェニルフルオレン化合物、および発光寿命が長く、耐久性に優れた有機電界発光素子を提供すること。

【解決手段】 一般式(1)で表される9, 9-ジフェニルフルオレン化合物。

【化1】



(1)

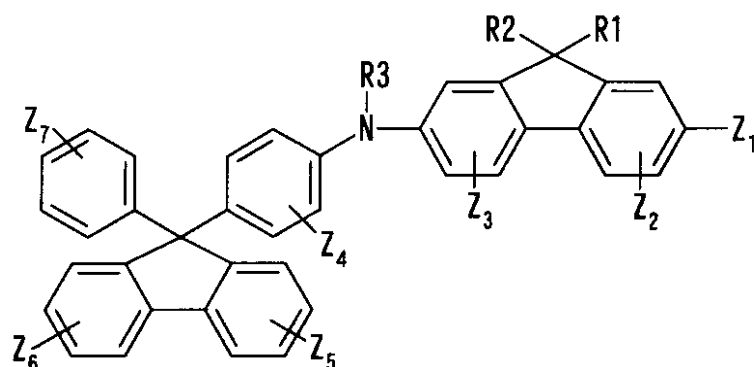
〔式中、R1～R3は、それぞれ独立に水素原子、アルキル基、アリール基、あるいはアラ

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

一般式 (1) で表される 9, 9 - ジフェニルフルオレン化合物。

【化 1】



(1)

10

〔式中、R1 ~ R3 は、それぞれ独立に水素原子、直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、Z1 ~ Z6 はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、直鎖、分岐鎖または環状のアルコキシ基、置換または未置換のアミノ基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、Z7 は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、直鎖、分岐鎖または環状のアルコキシ基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表す。また、Z1 ~ Z6 は互いに結合して環を形成していてもよい。〕

20

【請求項 2】

一対の電極間に、一般式 (1) で表される 9, 9 - ジフェニルフルオレン化合物を少なくとも 1 種含有する層を少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子。

30

【請求項 3】

一般式 (1) で表される 9, 9 - ジフェニルフルオレン化合物を含有する層が、発光層である請求項 2 記載の有機電界発光素子。

【請求項 4】

一般式 (1) で表される 9, 9 - ジフェニルフルオレン化合物を含有する層が、正孔注入輸送層である請求項 2 記載の有機電界発光素子。

【請求項 5】

一対の電極間に、さらに、正孔注入輸送層を有する請求項 2、3 または 4 に記載の有機電界発光素子。

【請求項 6】

一対の電極間に、さらに、電子注入輸送層を有する請求項 2 ~ 5 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

40

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、新規な 9, 9 - ジフェニルフルオレン化合物および該 9, 9 - ジフェニルフルオレン化合物を含有してなる有機電界発光素子に関する。

【背景技術】

【0002】

近年、ディスプレイの発達に伴い、高精細、高輝度、高速応答性、低消費電力、広い視

50

野角のディスプレイ材料が求められている。その一つとして、発光材料に有機材料を用いた有機電界発光素子（有機エレクトロルミネッセンス素子：有機EL素子）が有用であることが提案されている。

有機電界発光素子は蛍光性有機化合物を含む薄膜を、陽極と陰極間に挟持した構造を有し、該薄膜に電子および正孔（ホール）を注入して、再結合させることにより励起子（エキシトン）を生成させ、この励起子が失活する際に放出される光を利用して発光する素子である〔非特許文献1〕。有機電界発光素子は、数V～数十V程度の直流の低電圧で発光が可能であり、種々の発光素子、表示素子等への応用が期待されている。しかしながら、一般に、発光輝度が低く、発光寿命が短いため実用上充分ではない。

発光輝度及び発光寿命を向上させる方法として、例えばフルオレン化合物を用いた有機電界発光素子提案されている（例えば、特許文献1、特許文献2参照）。しかしながら、これらの発光素子も充分満足できる発光輝度、発光寿命を有しているとは言いがたく、現在では、一層改良された新規な化合物が望まれている。

10

【非特許文献1】Appl.Phys.Lett.,51,913(1987)

【特許文献1】特開平11-144873号公報

【特許文献2】特開平11-144875号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0003】

本発明の課題は、新規な9,9-ジフェニルフルオレン化合物を提供することである。さらに詳しくは、例えば、有機電界発光素子の正孔注入輸送材料などに、好適に使用することができる9,9-ジフェニルフルオレン化合物を提供することである。

20

【課題を解決するための手段】

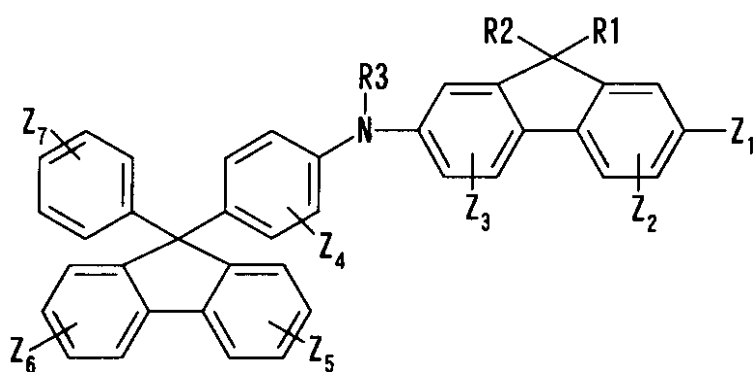
【0004】

本発明者らは、上記課題を解決するために、種々の9,9-ジフェニルフルオレン化合物、特に、有機電界発光素子の正孔注入輸送材料に好適に使用できる9,9-ジフェニルフルオレン化合物に関して鋭意検討を行った結果、本発明を完成させるに至った。すなわち、本発明は、<1>：一般式(1)で表される9,9-ジフェニルフルオレン化合物、

【0005】

【化1】

30



(1)

40

【0006】

〔式中、R1～R3は、それぞれ独立に水素原子、直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、Z1～Z6はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、直鎖、分岐鎖または環状のアルコキシ基、置換または未置換のアミノ基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、Z7は水素原子、

50

ハロゲン原子、直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、直鎖、分岐鎖または環状のアルコキシ基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表す。また、 $Z_1 \sim Z_6$ は互いに結合して環を形成していてもよい。]

<2>: 一对の電極間に、一般式(1)で表される9,9-ジフェニルフルオレン化合物を少なくとも1種含有する層を少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子、

<3>: 一般式(1)で表される9,9-ジフェニルフルオレン化合物を含有する層が、発光層である<2>記載の有機電界発光素子、

<4>: 一般式(1)で表される9,9-ジフェニルフルオレン化合物を含有する層が、正孔注入輸送層である<2>記載の有機電界発光素子、

<5>: 一对の電極間に、さらに、正孔注入輸送層を有する<2>、<3>および<4>に記載の有機電界発光素子、

<6>: 一对の電極間に、さらに、電子注入輸送層を有する<2>~<5>のいずれかに記載の有機電界発光素子、

に関するものである。

【発明の効果】

【0007】

本発明により、新規な9,9-ジフェニルフルオレン化合物、および発光寿命が長く、耐久性に優れた有機電界発光素子を提供することが可能になる。

【発明を実施するための最良の形態】

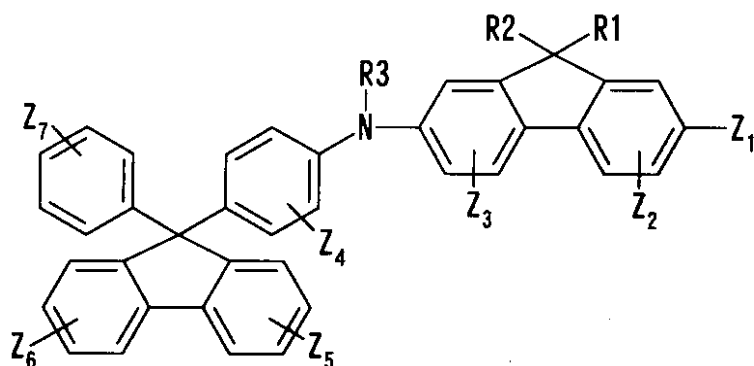
【0008】

以下、本発明に関し詳細に説明する。

本発明の9,9-ジフェニルフルオレン化合物は一般式(1)で表される化合物である。

【0009】

【化2】



(1)

【0010】

[式中、 $R_1 \sim R_3$ は、それぞれ独立に水素原子、直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、 $Z_1 \sim Z_6$ はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、直鎖、分岐鎖または環状のアルコキシ基、置換または未置換のアミノ基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、 Z_7 は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、直鎖、分岐鎖または環状のアルコキシ基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表す。また、 $Z_1 \sim Z_6$ は互いに結合して環を形成していてもよい。]

【0011】

一般式(1)で表される9,9-ジフェニルフルオレン化合物において、 $R_1 \sim R_3$ は、それぞれ独立に水素原子、直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のア

リール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表す。尚、アリール基とは、炭素環式芳香族基および複素環式芳香族基を表す。また、アラルキル基におけるアリール基も同様に炭素環式芳香族基および複素環式芳香族基を表す。

R₁～R₃ は好ましくは、水素原子、炭素数 1～16 の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、炭素数 3～25 の置換または未置換のアリール基、あるいは炭素数 5～16 の置換または未置換のアラルキル基であり、より好ましくは、水素原子、炭素数 1～10 の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、炭素数 6～12 の置換または未置換のアリール基、あるいは炭素数 7～12 の置換または未置換のアラルキル基であり、さらに好ましくは、水素原子、炭素数 1～8 の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、炭素数 6～10 の置換または未置換のアリール基、あるいは炭素数 7～10 の置換または未置換のアラルキル基である。

10

【0012】

また、Z₁～Z₆ はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、直鎖、分岐鎖または環状のアルコキシ基、置換または未置換のアミノ基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表す。Z₁～Z₆ がアミノ基である場合、アミノ基は他の置換基を有していてもよく、炭素数 1～20 のアルキル基、炭素数 3～20 のアリール基、あるいは、炭素数 4～20 のアラルキル基などの置換基で単置換あるいは二置換されていてもよい。

一般式(1)で表される化合物において、Z₁～Z₆ としては、好ましくは、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、炭素数 1～16 の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、炭素数 1～16 の直鎖、分岐鎖または環状のアルコキシ基、未置換のアミノ基、炭素数 1～24 の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基で置換されたアミノ基、炭素数 6～25 の置換または未置換のアリール基で置換されたアミノ基、あるいは炭素数 5～16 の置換または未置換のアラルキル基で置換されたアミノ基、炭素数 6～25 の置換または未置換のアリール基、あるいは炭素数 5～16 の置換または未置換のアラルキル基であり、より好ましくは、水素原子、ハロゲン原子、炭素数 1～10 の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、炭素数 1～10 の直鎖、分岐鎖または環状のアルコキシ基、炭素数 6～17 の置換または未置換のアリール基で置換されたアミノ基、あるいは炭素数 6～17 の置換または未置換のアラルキル基で置換されたアミノ基、炭素数 6～12 の置換または未置換のアリール基、あるいは炭素数 6～12 の置換または未置換のアラルキル基であり、さらに好ましくは、水素原子、ハロゲン原子、炭素数 1～8 の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、炭素数 1～8 の直鎖、分岐鎖または環状のアルコキシ基、炭素数 6～13 の置換または未置換のアリール基で置換されたアミノ基、炭素数 6～10 の置換または未置換のアリール基、あるいは炭素数 7～10 の置換または未置換のアラルキル基である。

20

30

【0013】

また、Z₇ は水素原子、ハロゲン原子、直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、直鎖、分岐鎖または環状のアルコキシ基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表す。一般式(1)で表される化合物において、Z₇ としては、好ましくは、水素原子、ハロゲン原子、炭素数 1～16 の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、炭素数 1～16 の直鎖、分岐鎖または環状のアルコキシ基、炭素数 6～25 の置換または未置換のアリール基、あるいは炭素数 5～16 の置換または未置換のアラルキル基であり、より好ましくは、水素原子、ハロゲン原子、炭素数 1～10 の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、炭素数 1～10 の直鎖、分岐鎖または環状のアルコキシ基、炭素数 6～12 の置換または未置換のアリール基、あるいは炭素数 6～12 の置換または未置換のアラルキル基であり、さらに好ましくは、水素原子、ハロゲン原子、炭素数 1～8 の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、炭素数 1～8 の直鎖、分岐鎖または環状のアルコキシ基、炭素数 6～10 の置換または未置換のアリール基、あるいは炭素数 7～10 の置換または未置換のアラルキル基である。

40

【0014】

また、Z₁～Z₆ は互いに結合して環を形成していてもよい。

50

一般式(1)で表される化合物において、R1~R3の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基の具体例としては、例えば、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、n-ペンチル基、イソペンチル基、ネオペンチル基、tert-ペンチル基、n-ヘキシル基、1-メチルペンチル基、4-メチル-2-ペンチル基、2-エチルブチル基、n-ヘプチル基、1-メチルヘキシル基、n-オクチル基、1-メチルヘプチル基、2-エチルヘキシル基、2-プロピルペンチル基、n-ノニル基、2,2-ジメチルヘプチル基、2,6-ジメチル-4-ヘプチル基、3,5,5-トリメチルヘキシル基、n-デシル基、1-エチルオクチル基、n-ウンデシル基、1-メチルデシル基、n-ドデシル基、n-トリデシル基、1-ヘキシルヘプチル基、n-テトラデシル基、n-ペンタデシル基、1-ヘプチルオクチル基、n-ヘキサデシル基、n-ヘプタデシル基、1-オクチルノニル基、n-オクタデシル基、1-ノニルデシル基、1-デシルウンデシル基、n-エイコシル基、n-ドコシル基、n-テトラコシル基、シクロヘキシルメチル基、(1-イソプロピルシクロヘキシル)メチル基、2-シクロヘキシルエチル基、ボルネル基、イソボルネル基、1-ノルボルニル基、2-ノルボルナンメチル基、1-ビスシクロ[2.2.2]オクチル基、1-アダマンチル基、3-ノルアダマンチル基、1-アダマンチルメチル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、1-メチルシクロペンチル基、シクロヘキシル基、4-メチルシクロヘキシル基、3-メチルシクロヘキシル基、2-メチルシクロヘキシル基、2,3-ジメチルシクロヘキシル基、2,5-ジメチルシクロヘキシル基、2,6-ジメチルシクロヘキシル基、3,4-ジメチルシクロヘキシル基、3,5-ジメチルシクロヘキシル基、

【0015】

2,4,6-トリメチルシクロヘキシル基、3,3,5-トリメチルシクロヘキシル基、2,6-ジイソプロピルシクロヘキシル基、4-tert-ブチルシクロヘキシル基、3-tert-ブチルシクロヘキシル基、4-フェニルシクロヘキシル基、2-フェニルシクロヘキシル基、シクロヘプチル基、シクロオクチル基、シクロデシル基、シクロドデシル基、シクロテトラデシル基、メトキシメチル基、エトキシメチル基、n-ブトキシメチル基、n-ヘキシルオキシメチル基、(2-エチルブチルオキシ)メチル基、n-オクチルオキシメチル基、n-デシルオキシメチル基、2-メトキシエチル基、2-エトキシエチル基、2-n-プロピルオキシエチル基、2-イソプロピルオキシエチル基、2-n-ブチルオキシエチル基、2-n-ペンチルオキシエチル基、2-n-ヘキシルオキシエチル基、2-(2'-エチルブチルオキシ)エチル基、2-n-ヘプチルオキシエチル基、2-n-オクチルオキシエチル基、2-(2'-エチルヘキシルオキシ)エチル基、2-n-デシルオキシエチル基、2-n-ドデシルオキシエチル基、2-n-テトラデシルオキシエチル基、2-シクロヘキシルオキシエチル基、2-メトキシプロピル基、3-メトキシプロピル基、3-エトキシプロピル基、3-n-プロピルオキシプロピル基、3-イソプロピルオキシプロピル基、3-(n-ブチルオキシ)プロピル基、3-(n-ペンチルオキシ)プロピル基、3-(n-ヘキシルオキシ)プロピル基、3-(2'-エチルブチルオキシ)プロピル基、3-(n-オクチルオキシ)プロピル基、3-(2'-エチルヘキシルオキシ)プロピル基、3-(n-デシルオキシ)プロピル基、3-(n-ドデシルオキシ)プロピル基、3-(n-テトラデシルオキシ)プロピル基、3-シクロヘキシルオキシプロピル基、4-メトキシブチル基、4-エトキシブチル基、4-n-プロピルオキシブチル基、4-イソプロピルオキシブチル基、4-n-ブチルオキシブチル基、4-n-ヘキシルオキシブチル基、4-n-オクチルオキシブチル基、4-n-デシルオキシブチル基、4-n-ドデシルオキシブチル基、5-メトキシペンチル基、5-エトキシペンチル基、5-n-プロピルオキシペンチル基、6-エトキシヘキシル基、6-イソプロピルオキシヘキシル基、6-n-ブチルオキシヘキシル基、6-n-ヘキシルオキシヘキシル基、6-n-デシルオキシヘキシル基、4-メトキシシクロヘキシル基、

【0016】

7-エトキシヘプチル基、7-イソプロピルオキシヘプチル基、8-メトキシオクチル基、10-メトキシデシル基、10-n-ブチルオキシデシル基、12-エトキシドデシル

基、1,2-イソプロピルオキシデシル基、テトラヒドロフルフリル基、2-(2'-メトキシエトキシ)エチル基、2-(2'-エトキシエトキシ)エチル基、2-(2'-n-ブチルオキシエトキシ)エチル基、3-(2'-エトキシエトキシ)プロピル基、2-アリルオキシエチル基、2-(4'-ペンテニルオキシ)エチル基、3-アリルオキシプロピル基、3-(2'-ヘキセニルオキシ)プロピル基、3-(2'-ヘプテニルオキシ)プロピル基、3-(1'-シクロヘキセニルオキシ)プロピル基、4-アリルオキシブチル基、ベンジルオキシメチル基、2-ベンジルオキシエチル基、2-フェネチルオキシエチル基、2-(4'-メチルベンジルオキシ)エチル基、2-(2'-メチルベンジルオキシ)エチル基、2-(4'-フルオロベンジルオキシ)エチル基、2-(4'-クロロベンジルオキシ)エチル基、3-ベンジルオキシプロピル基、3-(4'-メトキシベンジルオキシ)プロピル基、4-ベンジルオキシブチル基、2-(ベンジルオキシメトキシ)エチル基、2-(4'-メチルベンジルオキシメトキシ)エチル基、フェニルオキシメチル基、4-メチルフェニルオキシメチル基、3-メチルフェニルオキシメチル基、2-メチルフェニルオキシメチル基、4-メトキシフェニルオキシメチル基、4-フルオロフェニルオキシメチル基、4-クロロフェニルオキシメチル基、2-クロロフェニルオキシメチル基、2-フェニルオキシエチル基、2-(4'-メチルフェニルオキシ)エチル基、2-(4'-エチルフェニルオキシ)エチル基、2-(4'-メトキシフェニルオキシ)エチル基、2-(4'-クロロフェニルオキシ)エチル基、2-(4'-ブromoフェニルオキシ)エチル基、2-(1'-ナフチルオキシ)エチル基、2-(2'-ナフチルオキシ)エチル基、3-フェニルオキシプロピル基、3-(2'-ナフチルオキシ)プロピル基、4-フェニルオキシブチル基、4-(2'-エチルフェニルオキシ)ブチル基、5-(4'-tert-ブチルフェニルオキシ)ペンチル基、6-(2'-クロロフェニルオキシ)ヘキシル基、8-フェニルオキシオクチル基、10-フェニルオキシデシル基、10-(3'-クロロフェニルオキシ)デシル基、2-(2'-フェニルオキシエトキシ)エチル基、3-(2'-フェニルオキシエトキシ)プロピル基、4-(2'-フェニルオキシエトキシ)ブチル基、n-ブチルチオメチル基、n-ヘキシルチオメチル基、

【 0 0 1 7 】

2 - メチルチオエチル基、2 - エチルチオエチル基、2 - n - ブチルチオエチル基、2 - n - ヘキシルチオエチル基、2 - n - オクチルチオエチル基、2 - n - デシルチオエチル基、3 - メチルチオプロピル基、3 - エチルチオプロピル基、3 - n - ブチルチオプロピル基、4 - エチルチオブチル基、4 - n - プロピルチオブチル基、4 - n - ブチルチオブチル基、5 - エチルチオペンチル基、6 - メチルチオヘキシル基、6 - エチルチオヘキシル基、6 - n - ブチルチオヘキシル基、8 - メチルチオオクチル基、2 - (2' - メトキシエチルチオ)エチル基、4 - (3' - エトキシプロピルチオ)ブチル基、2 - (2' - エチルチオエチルチオ)エチル基、2 - アリルチオエチル基、2 - ベンジルチオエチル基、3 - (4' - メチルベンジルチオ)プロピル基、4 - ベンジルチオブチル基、2 - (2' - ベンジルオキシエチルチオ)エチル基、3 - (3' - ベンジルチオプロピルチオ)プロピル基、2 - フェニルチオエチル基、2 - (4' - メトキシフェニルチオ)エチル基、2 - (2' - フェニルオキシエチルチオ)エチル基、3 - (2' - フェニルチオエチルチオ)プロピル基、フルオロメチル基、3 - フルオロプロピル基、

【 0 0 1 8 】

6 - フルオロヘキシル基、8 - フルオロオクチル基、トリフルオロメチル基、1, 1 - ジヒドロ - パーフルオロエチル基、1, 1 - ジヒドロ - パーフルオロ - n - プロピル基、1, 1, 3 - トリヒドロ - パーフルオロ - n - プロピル基、1, 1 - ジヒドロ - パーフルオロ - n - ブチル基、1, 1 - ジヒドロ - パーフルオロ - n - ペンチル基、1, 1 - ジヒドロ - パーフルオロ - n - ヘキシル基、6 - フルオロヘキシル基、4 - フルオロシクロヘキシル基、1, 1 - ジヒドロ - パーフルオロ - n - オクチル基、1, 1 - ジヒドロ - パーフルオロ - n - デシル基、1, 1 - ジヒドロ - パーフルオロ - n - ドデシル基、1, 1 - ジヒドロ - パーフルオロ - n - テトラデシル基、1, 1 - ジヒドロ - パーフルオロ - n - ヘキサデシル基、パーフルオロ - n - ヘキシル基、ジクロロメチル基、2 - クロロエチル基

、 3 - クロロプロピル基、 4 - クロロシクロヘキシル基、 7 - クロロヘプチル基、 8 - クロロオクチル基、 2, 2, 2 - トリクロロエチル基、 2 - ヒドロキシエチル基、 2 - ヒドロキシプロピル基、 3 - ヒドロキシプロピル基、 3 - ヒドロキシブチル基、 4 - ヒドロキシブチル基、 6 - ヒドロキシヘキシル基、 5 - ヒドロキシヘプチル基、 8 - ヒドロキシオクチル基、 10 - ヒドロキシデシル基、 12 - ヒドロキシドデシル基、 2 - ヒドロキシシクロヘキシル基などの直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基を挙げることができる。

【 0 0 1 9 】

一般式 (1) で表される化合物において、R1 ~ R3 の置換または未置換のアリール基の具体例としては、例えば、フェニル基、 1 - ナフチル基、 2 - ナフチル基、 2 - アントラセニル基、 9 - アントラセニル基、 9 - フェナントリル基、 9 - フルオレニル基、 4 - キノリル基、 5 - ピリジル基、 4 - ピリジル基、 3 - ピリジル基、 2 - ピリジル基、 2 - ピリミジル基、 4 - ピリミジン基、 5 - ピリミジル基、 2 - ピリダジニル基、 2 - ピラジニル基、 3 - フリル基、 2 - フリル基、 3 - チエニル基、 2 - チエニル基、 2 - オキサゾリル基、 2 - チアゾリル基、 2 - ベンゾチオフェニル基、 2 - ベンゾフリル基、 2 - ベンゾオキサゾリル基、 2 - ベンゾチアゾリル基、 2 - ベンゾイミダゾリル基、 4 - メチルフェニル基、 3 - メチルフェニル基、 2 - メチルフェニル基、 4 - エチルフェニル基、 3 - エチルフェニル基、 2 - エチルフェニル基、 4 - n - プロピルフェニル基、 4 - イソプロピルフェニル基、 2 - イソプロピルフェニル基、 4 - n - ブチルフェニル基、 4 - イソブチルフェニル基、 4 - sec - ブチルフェニル基、 2 - sec - ブチルフェニル基、 4 - tert - ブチルフェニル基、 3 - tert - ブチルフェニル基、 2 - tert - ブチルフェニル基、 4 - n - ペンチルフェニル基、 4 - イソペンチルフェニル基、 4 - tert - ペンチルフェニル基、 4 - n - ヘキシルフェニル基、 4 - n - ヘプチルフェニル基、 4 - n - オクチルフェニル基、 4 - (2' - エチルヘキシル) フェニル基、 4 - tert - オクチルフェニル基、 4 - n - ノニルフェニル基、 4 - n - デシルフェニル基、 4 - n - ドデシルフェニル基、 4 - n - テトラデシルフェニル基、 4 - n - ヘキサデシルフェニル基、

【 0 0 2 0 】

4 - n - オクタデシルフェニル基、 4 - シクロペンチルフェニル基、 4 - シクロヘキシルフェニル基、 4 - (4' - tert - ブチルシクロヘキシル) フェニル基、 4 - (4' - メチルシクロヘキシル) フェニル基、 3 - シクロヘキシルフェニル基、 2 - シクロヘキシルフェニル基、 4 - エチル - 1 - ナフチル基、 6 - n - ブチル - 2 - ナフチル基、 1 - フェニル - 2 - ナフチル基、 9 - メチル - 10 - アントラセニル基、 9 - tert - ブチル - 10 - アントラセニル基、 9 - メチル - 10 - フェナントリル基、 9 - tert - ブチル - 10 - フェナントリル基、 9 - フェニル - 10 - フェナントリル基、 1 - ピレニル基、 2, 3 - ジメチルフェニル基、 2, 4 - ジメチルフェニル基、 2, 5 - ジメチルフェニル基、 3, 4 - ジメチルフェニル基、 3, 5 - ジメチルフェニル基、 2, 6 - ジメチルフェニル基、 2, 3, 5 - トリメチルフェニル基、 3, 4, 5 - トリメチルフェニル基、 2, 4 - ジエチルフェニル基、 2, 3, 6 - トリメチルフェニル基、 2, 4, 6 - トリメチルフェニル基、 2, 6 - ジエチルフェニル基、 2, 6 - ジイソプロピルフェニル基、 2, 6 - ジイソブチルフェニル基、 2, 4 - ジ - tert - ブチルフェニル基、 2, 5 - ジ - tert - ブチルフェニル基、 3, 5 - ジ - tert - ブチルフェニル基、 2, 4 - ジネオペンチルフェニル基、 2, 5 - ジ - tert - ペンチルフェニル基、 4, 6 - ジ - tert - ブチル - 2 - メチルフェニル基、 5 - tert - ブチル - 2 - メチルフェニル基、 4 - tert - ブチル - 2, 6 - ジメチルフェニル基、 2, 3, 5, 6 - テトラメチルフェニル基、 5 - インダニル基、 1, 2, 3, 4 - テトラヒドロ - 5 - ナフチル基、 1, 2, 3, 4 - テトラヒドロ - 6 - ナフチル基、 4 - メトキシフェニル基、 3 - メトキシフェニル基、 2 - メトキシフェニル基、

【 0 0 2 1 】

4 - エトキシフェニル基、 2 - エトキシフェニル基、 3 - n - プロピルオキシフェニル基、 4 - イソプロピルオキシフェニル基、 2 - イソプロピルオキシフェニル基、 4 - n - ブチルオキシフェニル基、 4 - イソブチルオキシフェニル基、 2 - イソブチルオキシフェニル基、 2 - sec - ブチルオキシフェニル基、 4 - n - ペンチルオキシフェニル基、 4 - イ

10

20

30

40

50

ソペンチルオキシフェニル基、2 - イソペンチルオキシフェニル基、2 - ネオペンチルオキシフェニル基、4 - n - ヘキシルオキシフェニル基、2 - (2' - エチルブチルオキシ)フェニル基、4 - n - オクチルオキシフェニル基、4 - n - デシルオキシフェニル基、4 - n - ドデシルオキシフェニル基、4 - n - テトラデシルオキシフェニル基、4 - n - ヘキサデシルオキシフェニル基、4 - n - オクタデシルオキシフェニル基、4 - シクロヘキシルオキシフェニル基、2 - シクロヘキシルオキシフェニル基、2 - メトキシ - 1 - ナフチル基、4 - メトキシ - 1 - ナフチル基、4 - n - ブチルオキシ - 1 - ナフチル基、5 - エトキシ - 1 - ナフチル基、6 - エトキシ - 2 - ナフチル基、6 - n - ブチルオキシ - 2 - ナフチル基、6 - n - ヘキシルオキシ - 2 - ナフチル基、7 - メトキシ - 2 - ナフチル基、7 - n - ブチルオキシ - 2 - ナフチル基、2, 3 - ジメトキシフェニル基、2, 4 - ジメトキシフェニル基、2, 5 - ジメトキシフェニル基、2, 6 - ジメトキシフェニル基、3, 4 - ジメトキシフェニル基、3, 5 - ジメトキシフェニル基、3, 5 - ジエトキシフェニル基、3, 5 - ジ - n - ブチルオキシフェニル基、2 - メトキシ - 4 - メチルフェニル基、2 - メトキシ - 5 - メチルフェニル基、2 - メチル - 4 - メトキシフェニル基、3 - メチル - 4 - メトキシフェニル基、3 - メチル - 5 - メトキシフェニル基、3 - エチル - 5 - メトキシフェニル基、2 - メトキシ - 4 - エトキシフェニル基、2 - メトキシ - 6 - エトキシフェニル基、3, 4, 5 - トリメトキシフェニル基、4 - フルオロフェニル基、3 - フルオロフェニル基、2 - フルオロフェニル基、4 - クロロフェニル基、3 - クロロフェニル基、2 - クロロフェニル基、4 - ブロモフェニル基、2 - ブロモフェニル基、4 - クロロ - 1 - ナフチル基、4 - クロロ - 2 - ナフチル基、6 - ブロモ - 2 - ナフチル基、2, 3 - ジフルオロフェニル基、2, 4 - ジフルオロフェニル基、

10

20

30

40

50

【0022】

2, 5 - ジフルオロフェニル基、2, 6 - ジフルオロフェニル基、3, 4 - ジフルオロフェニル基、3, 5 - ジフルオロフェニル基、2, 3 - ジクロロフェニル基、2, 4 - ジクロロフェニル基、2, 5 - ジクロロフェニル基、2, 6 - ジクロロフェニル基、3, 4 - ジクロロフェニル基、3, 5 - ジクロロフェニル基、2, 5 - ジブロモフェニル基、2, 4, 6 - トリクロロフェニル基、2, 3, 6 - トリブロモフェニル基、3, 4, 5 - トリフルオロフェニル基、2, 4 - ジクロロ - 1 - ナフチル基、1, 6 - ジクロロ - 2 - ナフチル基、2 - フルオロ - 4 - メチルフェニル基、2 - フルオロ - 5 - メチルフェニル基、3 - フルオロ - 2 - メチルフェニル基、3 - フルオロ - 4 - メチルフェニル基、4 - フルオロ - 2 - メチルフェニル基、5 - フルオロ - 2 - メチルフェニル基、2 - クロロ - 4 - メチルフェニル基、2 - クロロ - 5 - メチルフェニル基、2 - クロロ - 6 - メチルフェニル基、3 - クロロ - 2 - メチルフェニル基、4 - クロロ - 2 - メチルフェニル基、4 - クロロ - 3 - メチルフェニル基、2 - クロロ - 4, 6 - ジメチルフェニル基、2 - フルオロ - 4 - メトキシフェニル基、2 - フルオロ - 6 - メトキシフェニル基、3 - フルオロ - 4 - エトキシフェニル基、5 - クロロ - 2 - メトキシフェニル基、6 - クロロ - 3 - メトキシフェニル基、5 - クロロ - 2, 4 - ジメトキシフェニル基、2 - クロロ - 4 - ニトロフェニル基、4 - クロロ - 2 - ニトロフェニル基、4 - トリフルオロメチルフェニル基、3 - トリフルオロメチルフェニル基、2 - トリフルオロメチルフェニル基、3, 5 - ビス(トリフルオロメチル)フェニル基、4 - トリフルオロメチルオキシフェニル基、4 - アリルフェニル基、2 - アリルフェニル基、2 - イソプロペニルフェニル基、4 - ベンジルフェニル基、2 - ベンジルフェニル基、4 - (4' - メチルベンジル)フェニル基、4 - クミルフェニル基、4 - (4' - メトキシクミル)フェニル基、

【0023】

4 - フェニルフェニル基、3 - フェニルフェニル基、2 - フェニルフェニル基、4 - (4' - メチルフェニル)フェニル基、4 - (4' - エチルフェニル)フェニル基、4 - (4' - イソプロピルフェニル)フェニル基、4 - (4' - tert - ブチルフェニル)フェニル基、4 - (4' - n - ヘキシルフェニル)フェニル基、4 - (4' - n - オクチルフェニル)フェニル基、4 - (4' - メトキシフェニル)フェニル基、4 - (4' - エトキシフェニル)フェニル基、4 - (4' - n - ブトキシフェニル)フェニル基、2 - (2' - メ

トキシフェニル)フェニル基、4-(4'-フルオロフェニル)フェニル基、4-(4'-クロロフェニル)フェニル基、3-メチル-4-フェニル基、2-メトキシ-5-フェニルフェニル基、3-メトキシ-4-フェニルフェニル基、4-メトキシメチルフェニル基、4-エトキシメチルフェニル基、4-n-ブチルオキシメチルフェニル基、3-メトキシメチルフェニル基、4-(2'-メトキシエチル)フェニル基、4-(2'-エトキシエチルオキシ)フェニル基、4-(2'-n-ブチルオキシエチルオキシ)フェニル基、4-(3'-エトキシプロピルオキシ)フェニル基、4-ビニルオキシフェニル基、4-アリルオキシフェニル基、3-アリルオキシフェニル基、4-(4'-ペンテニルオキシ)フェニル基、4-アリルオキシ-1-ナフチル基、4-アリルオキシメチルフェニル基、4-(2'-アリルオキシエチルオキシ)フェニル基、4-ベンジルオキシフェニル基、2-ベンジルオキシフェニル基、4-フェネチルオキシフェニル基、4-(4'-クロロベンジルオキシ)フェニル基、4-(4'-メチルベンジルオキシ)フェニル基、4-(4'-メトキシベンジルオキシ)フェニル基、4-(3'-エトキシベンジルオキシ)フェニル基、4-ベンジルオキシ-1-ナフチル基、5-(4'-メチルベンジルオキシ)-1-ナフチル基、6-ベンジルオキシ-2-ナフチル基、6-(4'-メチルベンジルオキシ)-2-ナフチル基、7-ベンジルオキシ-2-ナフチル基、4-(ベンジルオキシメチル)フェニル基、4-(2'-ベンジルオキシエチルオキシ)フェニル基、4-フェニルオキシフェニル基、3-フェニルオキシフェニル基、2-フェニルオキシフェニル基、4-(4'-メチルフェニルオキシ)フェニル基、

10

20

【0024】

4-(4'-メトキシフェニルオキシ)フェニル基、4-(4'-クロロフェニルオキシ)フェニル基、4-フェニルオキシ-1-ナフチル基、6-フェニルオキシ-2-ナフチル基、7-フェニルオキシ-2-ナフチル基、4-フェニルオキシメチルフェニル基、4-(2'-フェニルオキシエトキシ)フェニル基、4-[2'-(4'-メチルフェニルオキシ)エトキシ]フェニル基、4-[2'-(4'-メトキシフェニルオキシ)エトキシ]フェニル基、4-[2'-(4'-クロロフェニルオキシ)エトキシ]フェニル基、4-アセチルフェニル基、3-アセチルフェニル基、2-アセチルフェニル基、4-エチルカルボニルフェニル基、2-エチルカルボニルフェニル基、4-n-ブチルカルボニルフェニル基、4-n-ヘキシルカルボニルフェニル基、4-n-オクチルカルボニルフェニル基、4-シクロヘキシルカルボニルフェニル基、4-アセチル-1-ナフチル基、6-アセチル-2-ナフチル基、6-n-ブチルカルボニル-2-ナフチル基、4-アリルカルボニルフェニル基、4-ベンジルカルボニルフェニル基、4-(4'-メチルベンジル)カルボニルフェニル基、4-フェニルカルボニルフェニル基、4-(4'-メチルフェニル)カルボニルフェニル基、4-(4'-クロロフェニル)カルボニルフェニル基、4-フェニルカルボニル-1-ナフチル基、4-メトキシカルボニルフェニル基、2-メトキシカルボニルフェニル基、4-エトキシカルボニルフェニル基、3-エトキシカルボニルフェニル基、4-n-プロピルオキシカルボニルフェニル基、4-n-ブチルオキシカルボニルフェニル基、4-n-ヘキシルオキシカルボニルフェニル基、4-n-デシルオキシカルボニルフェニル基、4-シクロヘキシルオキシカルボニルフェニル基、4-エトキシカルボニル-1-ナフチル基、6-メトキシカルボニル-2-ナフチル基、6-n-ブチルオキシカルボニル-2-ナフチル基、4-アリルオキシカルボニルフェニル基、4-ベンジルオキシカルボニルフェニル基、4-(4'-クロロベンジル)オキシカルボニルフェニル基、4-フェネチルオキシカルボニルフェニル基、6-ベンジルオキシカルボニル-2-ナフチル基、4-フェニルオキシカルボニルフェニル基、

30

40

50

【0025】

4-(4'-エチルフェニル)オキシカルボニルフェニル基、4-(4'-クロロフェニル)オキシカルボニルフェニル基、4-(4'-エトキシフェニル)オキシカルボニルフェニル基、6-フェニルオキシカルボニル-2-ナフチル基、4-アセチルオキシフェニル基、3-アセチルオキシフェニル基、2-アセチルオキシフェニル基、4-エチルカルボニルオキシフェニル基、2-エチルカルボニルオキシフェニル基、4-n-プロピルカ

ルボニルオキシフェニル基、4 - n - ペンチルカルボニルオキシフェニル基、4 - n - オ
 クチルカルボニルオキシフェニル基、4 - シクロヘキシルカルボニルオキシフェニル基、
 3 - シクロヘキシルカルボニルオキシフェニル基、4 - アセチルオキシ - 1 - ナフチル基
 、4 - n - ブチルカルボニルオキシ - 1 - ナフチル基、5 - アセチルオキシ - 1 - ナフチ
 ル基、6 - エチルカルボニルオキシ - 2 - ナフチル基、7 - アセチルオキシ - 2 - ナフチ
 ル基、4 - アリルカルボニルオキシフェニル基、4 - ベンジルカルボニルオキシフェニル
 基、4 - フェネチルカルボニルオキシフェニル基、6 - ベンジルカルボニルオキシ - 2 -
 ナフチル基、4 - フェニルカルボニルオキシフェニル基、4 - (4' - メチルフェニル)
 カルボニルオキシフェニル基、4 - (2' - メチルフェニル) カルボニルオキシフェニル
 基、4 - (4' - クロロフェニル) カルボニルオキシフェニル基、4 - (2' - クロロフ
 エニル) カルボニルオキシフェニル基、4 - フェニルカルボニルオキシ - 1 - ナフチル基
 、6 - フェニルカルボニルオキシ - 2 - ナフチル基、7 - フェニルカルボニルオキシ - 2
 - ナフチル基、4 - メチルチオフェニル基、2 - メチルチオフェニル基、2 - エチルチオ
 フェニル基、3 - エチルチオフェニル基、4 - n - プロピルチオフェニル基、2 - イソプ
 ロピルチオフェニル基、4 - n - ブチルチオフェニル基、2 - イソブチルチオフェニル基
 、2 - ネオペンチルフェニル基、4 - n - ヘキシルチオフェニル基、4 - n - オクチルチ
 オフェニル基、4 - シクロヘキシルチオフェニル基、4 - ベンジルチオフェニル基、
 【 0 0 2 6 】
 3 - ベンジルチオフェニル基、2 - ベンジルチオフェニル基、4 - (4' - クロロベンジ
 ルチオ) フェニル基、4 - フェニルチオフェニル基、3 - フェニルチオフェニル基、2 -
 フェニルチオフェニル基、4 - (4' - メチルフェニルチオ) フェニル基、4 - (3' -
 メチルフェニルチオ) フェニル基、4 - (4' - メトキシフェニルチオ) フェニル基、4
 - (4' - クロロフェニルチオ) フェニル基、2 - エチルチオ - 1 - ナフチル基、4 - メ
 チルチオ - 1 - ナフチル基、6 - エチルチオ - 2 - ナフチル基、6 - フェニルチオ - 2 -
 ナフチル基、4 - ニトロフェニル基、3 - ニトロフェニル基、2 - ニトロフェニル基、3
 , 5 - ジニトロフェニル基、4 - ニトロ - 1 - ナフチル基、4 - ホルミルフェニル基、3
 - ホルミルフェニル基、2 - ホルミルフェニル基、4 - ホルミル - 1 - ナフチル基、1 -
 ホルミル - 2 - ナフチル基、4 - ピロリジノフェニル基、4 - ピペリジノフェニル基、4
 - モルフォリノフェニル基、4 - (N - エチルピペラジノ) フェニル基、4 - ピロリジノ
 - 1 - ナフチル基、4 - アミノフェニル基、3 - アミノフェニル基、2 - アミノフェニル
 基、4 - (N - メチルアミノ) フェニル基、3 - (N - メチルアミノ) フェニル基、4 -
 (N - エチルアミノ) フェニル基、2 - (N - イソプロピルアミノ) フェニル基、4 - (N -
 n - ブチルアミノ) フェニル基、2 - (N - n - ブチルアミノ) フェニル基、4 - (N -
 n - オクチルアミノ) フェニル基、4 - (N - n - ドデシルアミノ) フェニル基、4
 - (N - ベンジルアミノ) フェニル基、4 - (N - フェニルアミノ) フェニル基、2 - (N -
 フェニルアミノ) フェニル基、4 - (N , N - ジメチルアミノ) フェニル基、
 【 0 0 2 7 】
 3 - (N , N - ジメチルアミノ) フェニル基、4 - (N , N - ジエチルアミノ) フェニル
 基、2 - (N , N - ジメチルアミノ) フェニル基、2 - (N , N - ジエチルアミノ) フェ
 ニル基、4 - (N , N - ジ - n - ブチルアミノ) フェニル基、4 - (N , N - ジ - n - ヘ
 キシルアミノ) フェニル基、4 - (N - シクロヘキシル - N - メチルアミノ) フェニル基
 、4 - (N , N - ジエチルアミノ) - 1 - ナフチル基、4 - (N - ベンジル - N - フェニ
 ルアミノ) フェニル基、4 - (N , N - ジフェニルアミノ) フェニル基、4 - { N - フェ
 ニル - N - (4 - メチルフェニル) アミノ } フェニル基、4 - { N , N - ジ (3' - メチ
 ルフェニル) アミノ } フェニル基、4 - { N , N - ジ (4' - メチルフェニル) アミノ }
 フェニル基、4 - { N , N - ジ (4' - メトキシフェニル) アミノ } フェニル基、2 - (N ,
 N - ジフェニルアミノ) フェニル基、4 - ヒドロキシフェニル基、3 - ヒドロキシフ
 エニル基、2 - ヒドロキシフェニル基、4 - メチル - 3 - ヒドロキシフェニル基、6 - メ
 チル - 3 - ヒドロキシフェニル基、2 - ヒドロキシ - 1 - ナフチル基、8 - ヒドロキシ -
 1 - ナフチル基、4 - ヒドロキシ - 1 - ナフチル基、1 - ヒドロキシ - 2 - ナフチル基、

6 - ヒドロキシ - 2 - ナフチル基、4 - シアノフェニル基、2 - シアノフェニル基、4 - シアノ - 1 - ナフチル基、6 - シアノ - 2 - ナフチル基などの置換または未置換のアリール基を挙げることができる。

【0028】

一般式(1)で表される化合物において、R₁~R₃の置換または未置換のアラルキル基の具体例としては、例えば、ベンジル基、 - メチルベンジル基、 - エチルベンジル基、フェネチル基、 - メチルフェネチル基、 - メチルフェネチル基、 , - ジメチルベンジル基、 , - ジメチルフェネチル基、4 - メチルフェネチル基、4 - メチルベンジル基、3 - メチルベンジル基、2 - メチルベンジル基、4 - エチルベンジル基、2 - エチルベンジル基、4 - イソプロピルベンジル基、4 - tert - ブチルベンジル基、2 - tert - ブチルベンジル基、4 - tert - ペンチルベンジル基、4 - シクロヘキシルベンジル基、4 - n - オクチルベンジル基、4 - tert - オクチルベンジル基、4 - アリルベンジル基、4 - ベンジルベンジル基、4 - フェネチルベンジル基、4 - フェニルベンジル基、4 - (4' - メチルフェニル)ベンジル基、4 - メトキシベンジル基、2 - メトキシベンジル基、2 - エトキシベンジル基、4 - n - ブトキシベンジル基、4 - n - ヘプチルオキシベンジル基、4 - n - デシルオキシベンジル基、4 - n - テトラデシルオキシベンジル基、4 - n - ヘプタデシルオキシベンジル基、3 , 4 - ジメトキシベンジル基、4 - メトキシメチルベンジル基、4 - イソブチルオキシメチルベンジル基、4 - アリルオキシベンジル基、4 - ビニルオキシメチルベンジル基、4 - ベンジルオキシベンジル基、4 - フェネチルオキシベンジル基、4 - フェニルオキシベンジル基、3 - フェニルオキシベンジル基、4 - ヒドロキシベンジル基、3 - ヒドロキシベンジル基、2 - ヒドロキシベンジル基、4 - ヒドロキシ - 3 - メトキシベンジル基、4 - フルオロベンジル基、2 - フルオロベンジル基、4 - クロロベンジル基、3 - クロロベンジル基、2 - クロロベンジル基、3 , 4 - ジクロロベンジル基、2 - フルフリル基、ジフェニルメチル基、1 - ナフチルメチル基、2 - ナフチルメチル基などの置換または未置換のアラルキル基を挙げることができる。

【0029】

一般式(1)で表される化合物において、Z₁ ~ Z₇ のハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子等を挙げることができる。

一般式(1)で表される化合物において、Z₁ ~ Z₇ の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基の具体例としては、R₁~R₃の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基の具体例として挙げた直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基を挙げることができる。

一般式(1)で表される化合物において、Z₁ ~ Z₇ の直鎖、分岐鎖または環状のアルコキシ基の具体例としては、例えば、R₁~R₃の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基の具体例として挙げた直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基を含む直鎖、分岐鎖または環状のアルコキシ基を挙げることができる。

【0030】

一般式(1)で表される化合物において、Z₁ ~ Z₆ の置換または未置換のアミノ基としては、例えば、アミノ基、N - メチルアミノ基、N - エチルアミノ基、N - n - プロピルアミノ基、N - イソプロピルアミノ基、N - n - ブチルアミノ基、N - イソブチルアミノ基、N - sec-ブチルアミノ基、N - tert-ブチルアミノ基、N - n - ペンチルアミノ基、N - シクロペンチルアミノ基、N - n - ヘキシルアミノ基、N - シクロヘキシルアミノ基、N - ベンジルアミノ基、N - フェネチルアミノ基、N - フェニルアミノ基、N - (1 - ナフチル)アミノ基、N - (2 - ナフチル)アミノ基、N - (4 - フェニルフェニル)アミノ基、N - (3 - フェニルフェニル)アミノ基、N - (2 - フェニルフェニル)アミノ基、N - (4 - メチルフェニル)アミノ基、N - (2 - メチルフェニル)アミノ基、N - (2 - アントラニル)アミノ基、N - (9 - アントラニル)アミノ基、N , N - ジメチルアミノ基、N , N - ジエチルアミノ基、N , N - ジ - n - プロピルアミノ基、N , N - ジ - イソプロピルアミノ基、N , N - ジ - n - ブチルアミノ基、N , N - ジ - イソブチルアミノ基、N , N - ジ - sec-ブチルアミノ基、N , N - ジ - n - ペンチルアミノ基、N , N - ジシクロペンチルアミノ基、N , N - ジシクロヘキシルアミノ基、N , N - ジベンジル

アミノ基、N, N - ジフェネチルアミノ基、N - メチル - N - エチルアミノ基、N - メチル - N - n - プロピルアミノ基、N - メチル - N - イソプロピルアミノ基、N - メチル - N - n - ブチルアミノ基、N - メチル - N - tert-ブチルアミノ基、N - メチル - N - シクロペンチルアミノ基、N - メチル - N - シクロヘキシルアミノ基、

【0031】

N - メチル - N - ベンジルアミノ基、N - メチル - N - フェネチルアミノ基、N - エチル - N - tert-ブチルアミノ基、N - エチル - N - シクロヘキシルアミノ基、N - エチル - N - ベンジルアミノ基、N - イソプロピル - N - シクロペンチルアミノ基、N - イソプロピル - N - シクロヘキシルアミノ基、N - イソプロピル - N - ベンジルアミノ基、N - tert-ブチル - N - シクロヘキシルアミノ基、N - tert-ブチル - N - ベンジルアミノ基、N - シクロペンチル - N - ベンジルアミノ基、N - シクロヘキシル - N - ベンジルアミノ基、N, N - ジフェニルアミノ基、N, N - ジ(1 - ナフチル)アミノ基、N, N - ジ(2 - ナフチル)アミノ基、N, N - ジ(4 - フェニルフェニル)アミノ基、N, N - (4 - メチルフェニル)アミノ基、N, N - ジ(3 - メチルフェニル)アミノ基、N - フェニル - N - (1 - ナフチル)アミノ基、N - フェニル - N - (2 - ナフチル)アミノ基、N - フェニル - N - (4 - フェニルフェニル)アミノ基、N - フェニル - N - (4 - メチルフェニル)アミノ基、N - (1 - ナフチル) - N - (4' - フェニルフェニル)アミノ基、N - フェニル - N - [4 - (9' - フルオレニル)フェニル]アミノ基、

10

【0032】

N - (2 - tert-ブチル - フェニル) - N - [4' - (9'' - フルオレニル)フェニル]アミノ基、N - (3 - tert-ブチル - フェニル) - N - [4' - (9'' - フルオレニル)フェニル]アミノ基、N - (4 - tert-ブチル - フェニル) - N - [4' - (9'' - フルオレニル)フェニル]アミノ基、N - (1 - ナフチル) - N - [4' - (9'' - フルオレニル)フェニル]アミノ基、N - (2 - ナフチル) - N - [4' - (9'' - フルオレニル)フェニル]アミノ基、N - (9 - アントラセニル) - N - [4' - (9'' - フルオレニル)フェニル]アミノ基、N - (10 - メチル - 9 - アントラセニル) - N - [4' - (9'' - フルオレニル)フェニル]アミノ基、N - (10 - フェニル - 9 - アントラセニル) - N - [4' - (9'' - フルオレニル)フェニル]アミノ基、N - (10 - tert-ブチル - 9 - アントラセニル) - N - [4' - (9'' - フルオレニル)フェニル]アミノ基、N - (9 - フェナントリル) - N - [4' - (9'' - フルオレニル)フェニル]アミノ基、N - (10 - メチルフェナントレン - 9 - イル) - N - [4' - (9'' - フルオレニル)フェニル]アミノ基、N - (10 - tert-ブチルフェナントレン - 9 - イル) - N - [4' - (9'' - フルオレニル)フェニル]アミノ基、N - (10 - フェニルフェナントレン - 9 - イル) - N - [4' - (9'' - フルオレニル)フェニル]アミノ基、N - (2 - メチルフェニル) - N - [4' - (9'' - フルオレニル)フェニル]アミノ基、

20

30

【0033】

N - (3 - メチルフェニル) - N - [4' - (9'' - フルオレニル)フェニル]アミノ基、N - (4 - メチルフェニル) - N - [4' - (9'' - フルオレニル)フェニル]アミノ基、N - (2 - メチルフェニル) - N - [4' - (9'' - フルオレニル) - 2' - メチルフェニル]アミノ基、N - (2 - メトキシフェニル) - N - [4' - (9'' - フルオレニル)フェニル]アミノ基、N - (3 - メトキシフェニル) - N - [4' - (9'' - フルオレニル)フェニル]アミノ基、N - (4 - メトキシフェニル) - N - [4' - (9'' - フルオレニル)フェニル]アミノ基、N - (2 - フルオロフェニル) - N - [4' - (9'' - フルオレニル)フェニル]アミノ基、N - (3 - フルオロフェニル) - N - [4' - (9'' - フルオレニル)フェニル]アミノ基、N - (4 - フルオロフェニル) - N - [4' - (9'' - フルオレニル)フェニル]アミノ基、N - カルバゾリル基、3 - tert-ブチル - N - カルバゾリル基を挙げることができる。

40

【0034】

一般式(1)で表される化合物において、Z₁ ~ Z₇ の置換または未置換のアリール基の具体例としては、R₁ ~ R₃ の置換または未置換のアリール基の具体例として挙げた置換ま

50

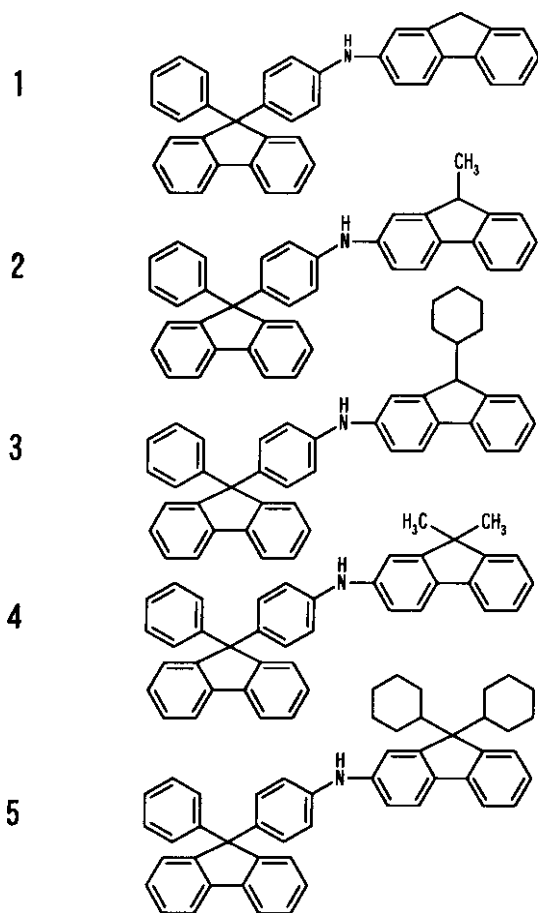
たは未置換のアリール基を挙げることができる。

一般式(1)で表される化合物において、 $Z_1 \sim Z_7$ の置換または未置換のアラルキル基の具体例としては、 $R_1 \sim R_3$ の置換または未置換のアラルキル基の具体例として挙げた置換または未置換のアラルキル基を挙げることができる。

本発明に係る一般式(1)で表される9,9-ジフェニルフルオレン化合物の具体例としては、例えば、以下に示す化合物を挙げることができるが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0035】

【化3】



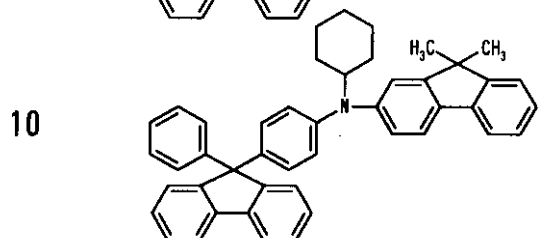
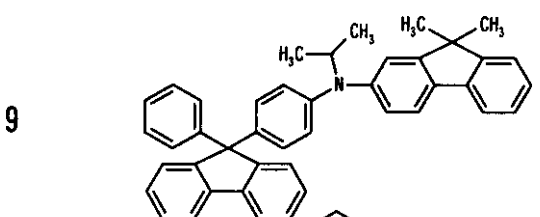
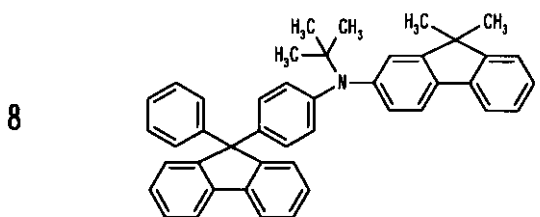
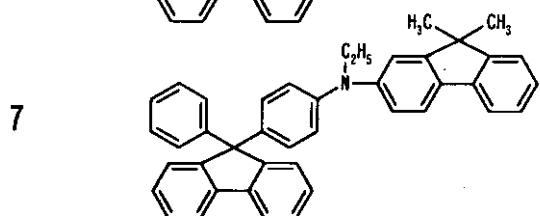
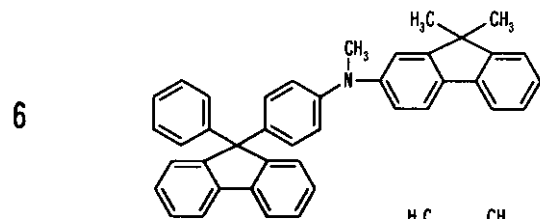
10

20

30

【0036】

【化 4】



10

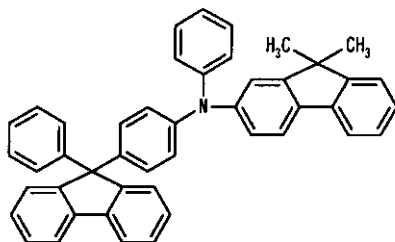
20

30

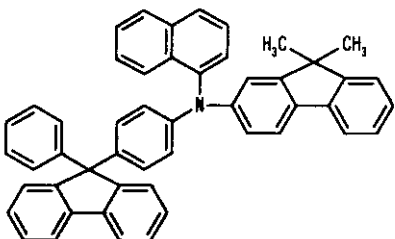
【 0 0 3 7 】

【化 5】

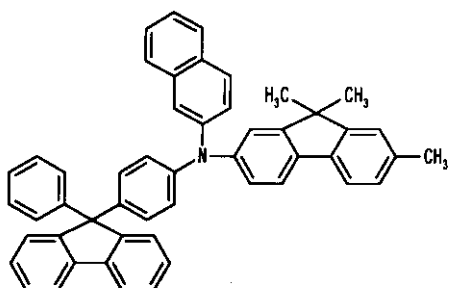
11



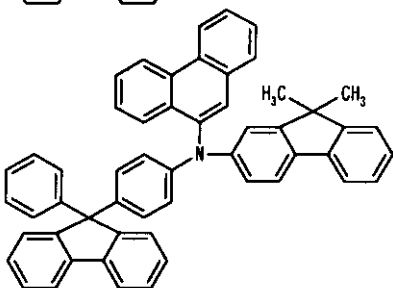
12



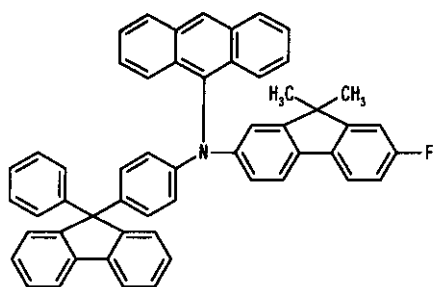
13



14



15



10

20

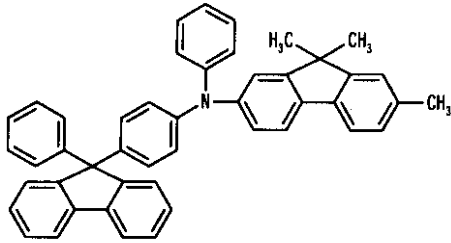
30

40

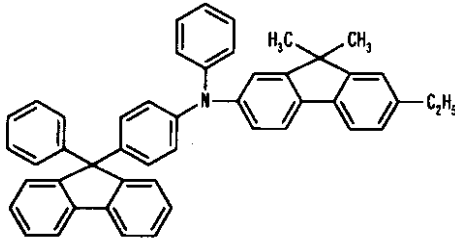
【 0 0 3 8 】

【化 6】

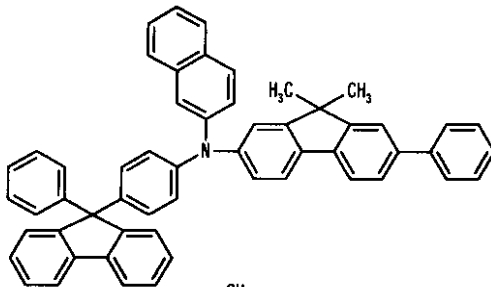
16



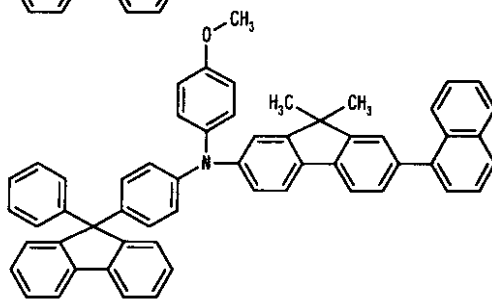
17



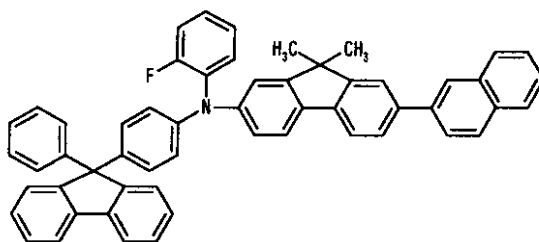
18



19



20



【 0 0 3 9 】

10

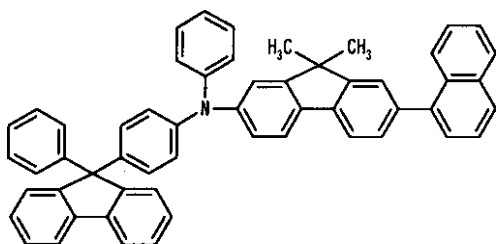
20

30

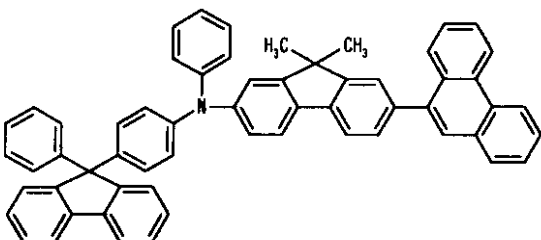
40

【化 7】

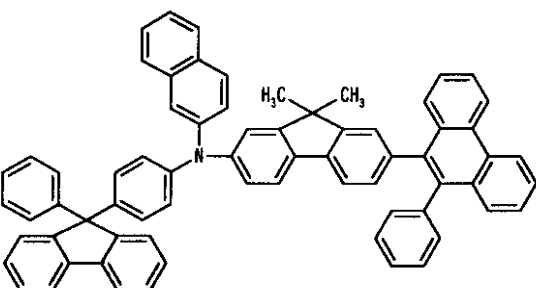
21



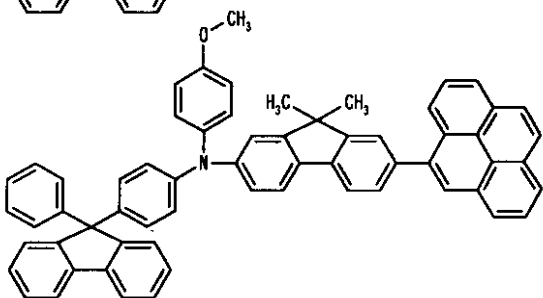
22



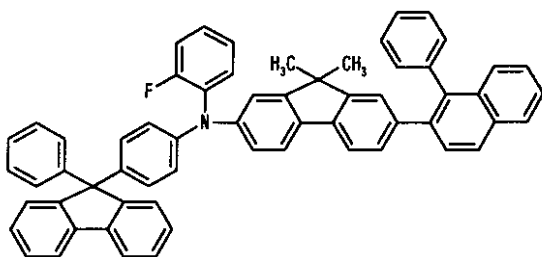
23



24



25



【 0 0 4 0 】

10

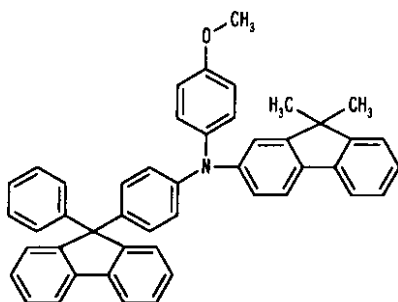
20

30

40

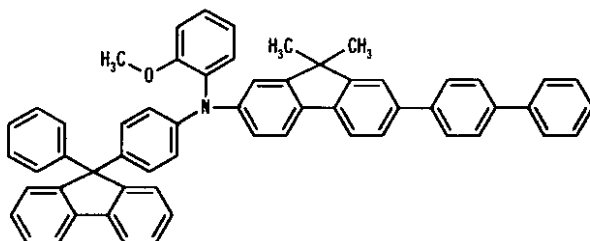
【化 8】

26

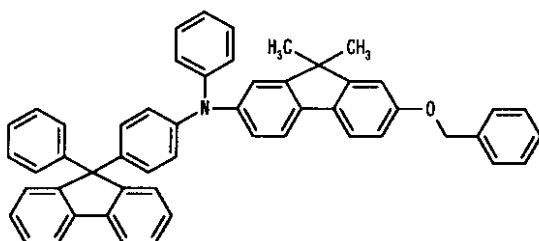


10

27

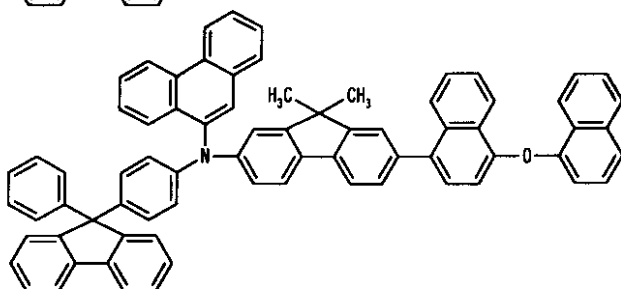


28



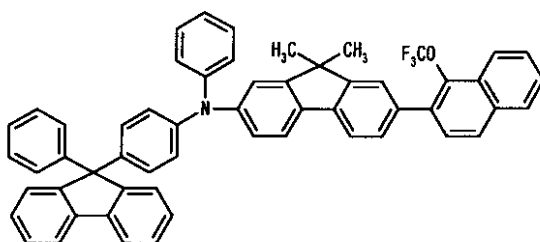
20

29



30

30

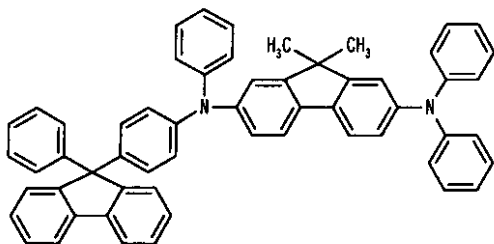


40

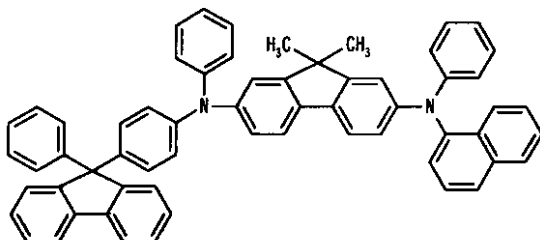
【 0 0 4 1 】

【化 9】

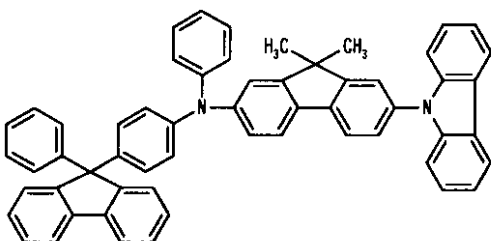
31



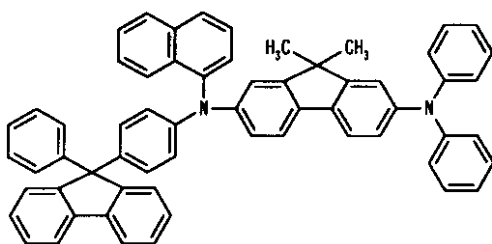
32



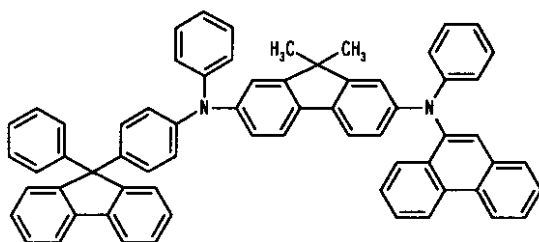
33



34



35



【 0 0 4 2 】

10

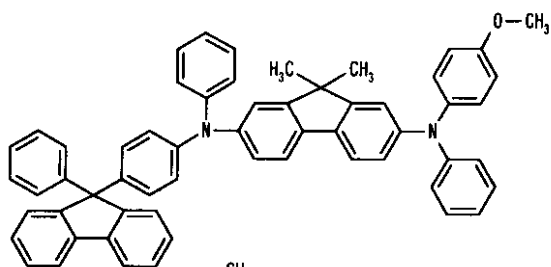
20

30

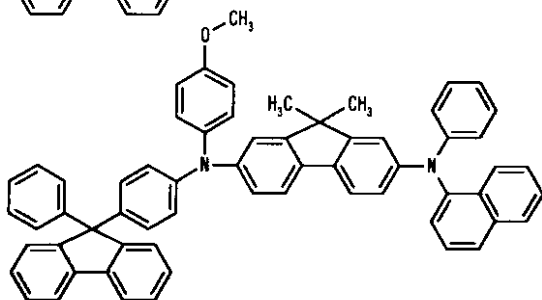
40

【化 1 0】

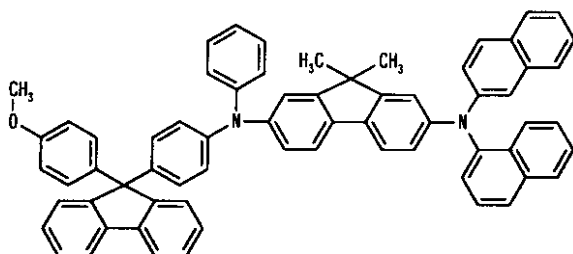
36



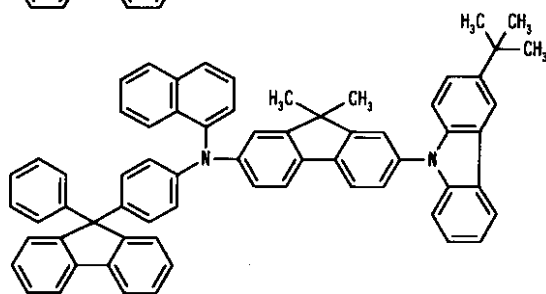
37



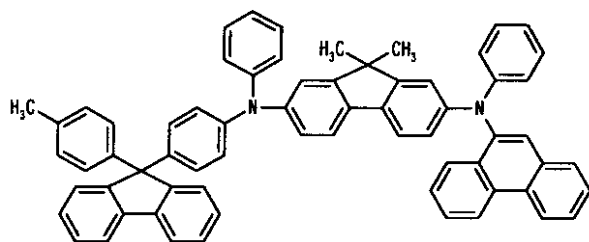
38



39



40



【 0 0 4 3】

10

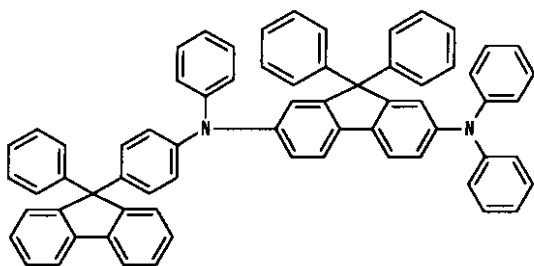
20

30

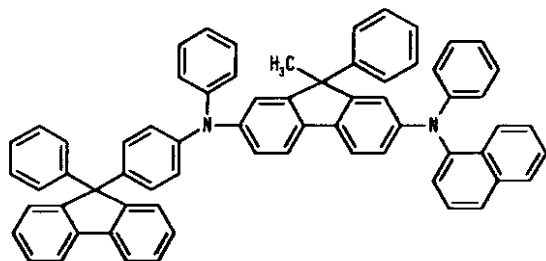
40

【化 1 1】

41

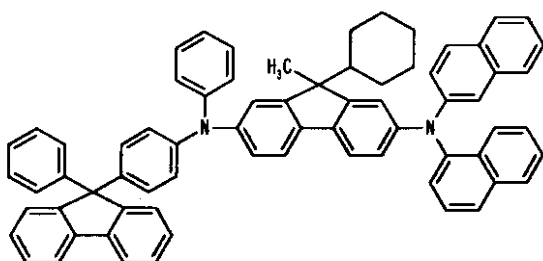


42



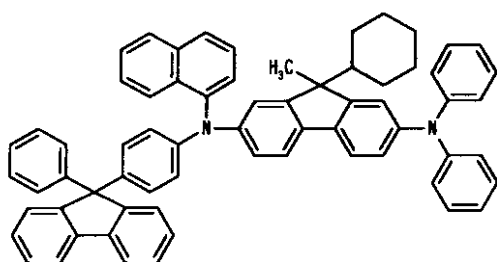
10

43



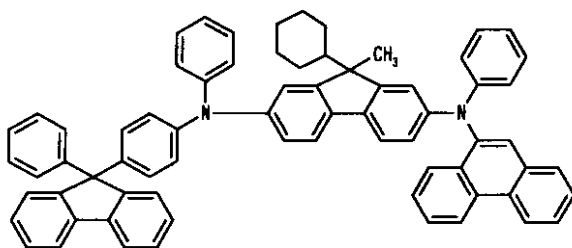
20

44



30

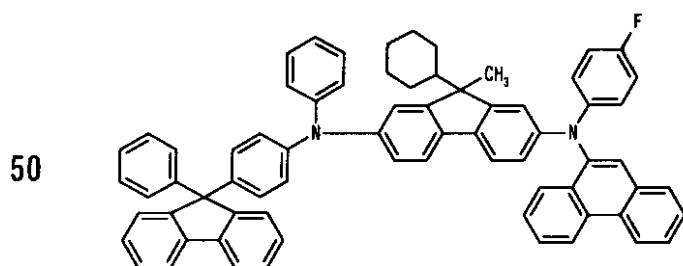
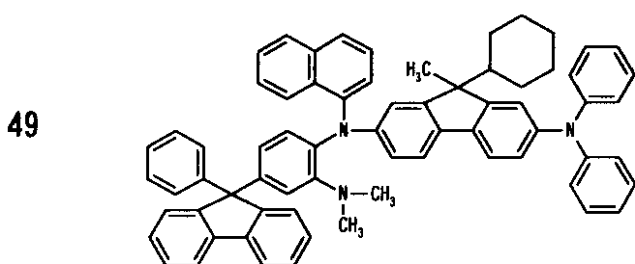
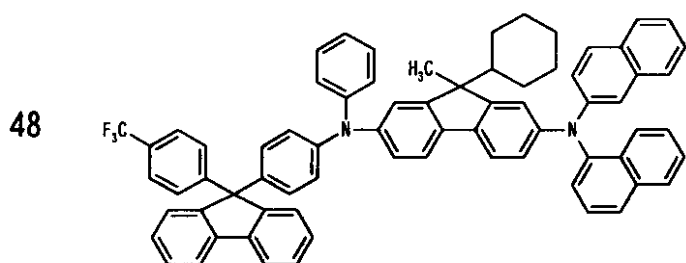
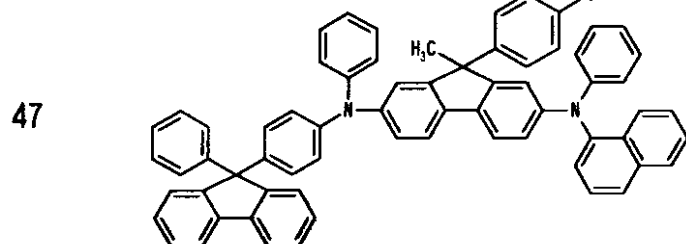
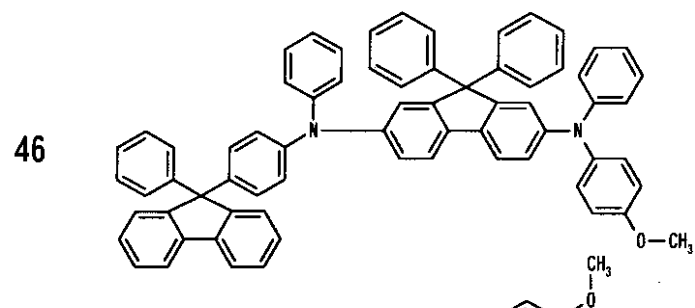
45



40

【 0 0 4 4 】

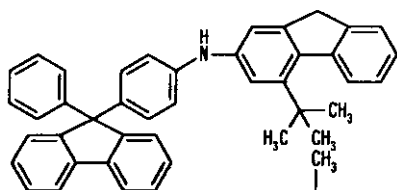
【化 1 2】



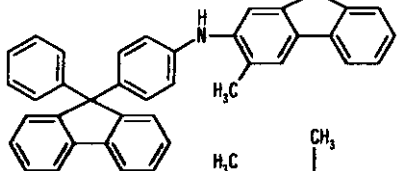
【 0 0 4 5】

【化 1 3】

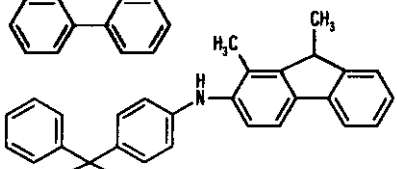
51



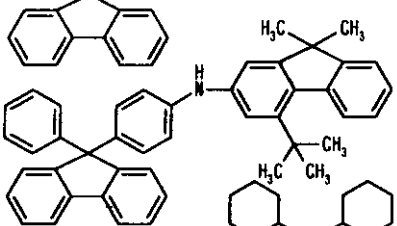
52



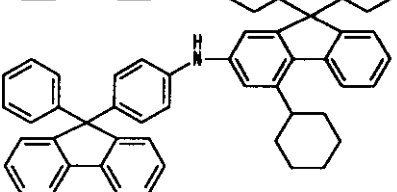
53



54



55



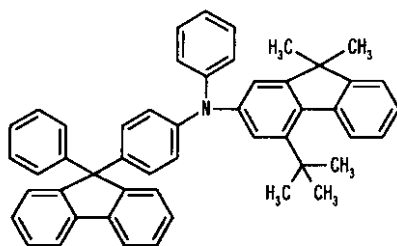
【 0 0 4 6 】

10

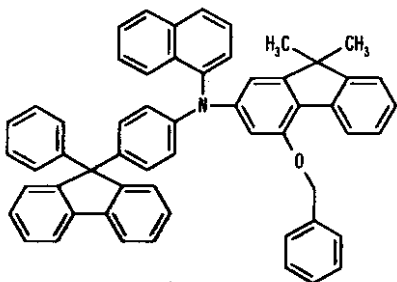
20

【化 1 4】

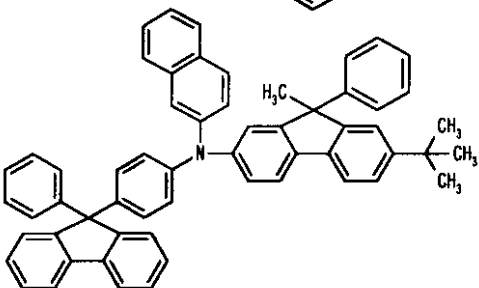
56



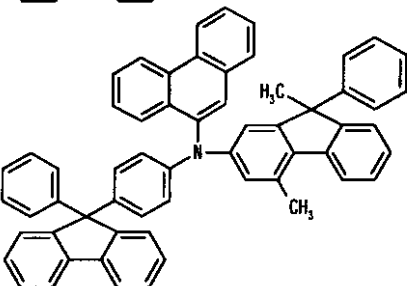
57



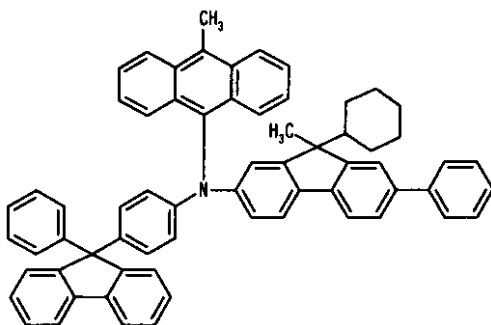
58



59



60



10

20

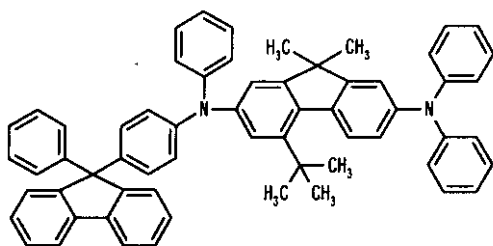
30

40

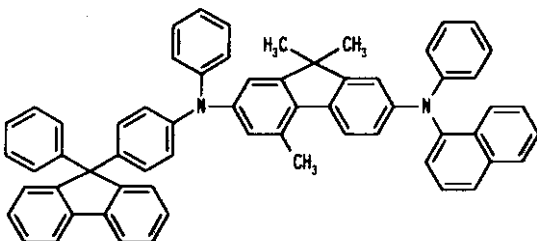
【 0 0 4 7 】

【化 1 5】

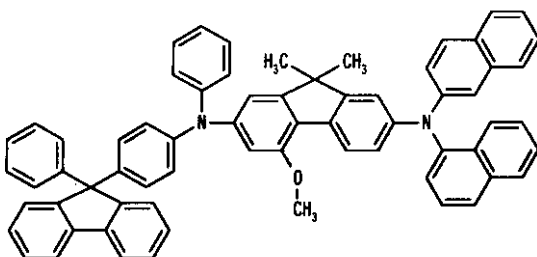
61



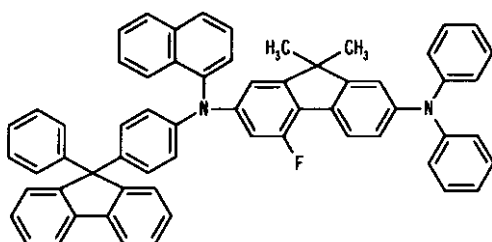
62



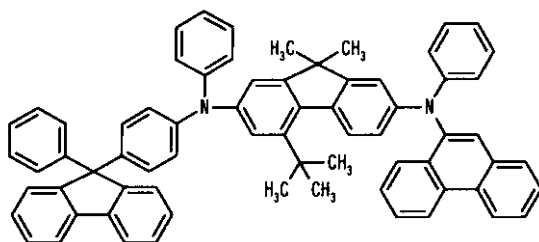
63



64



65



10

20

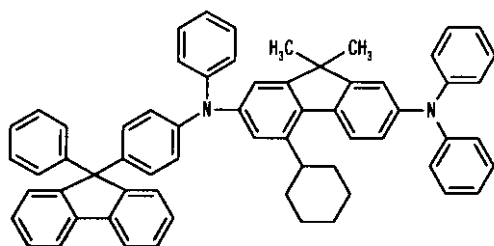
30

40

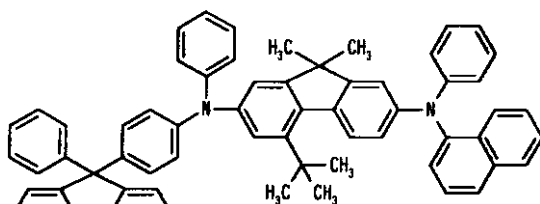
【 0 0 4 8 】

【化 1 6】

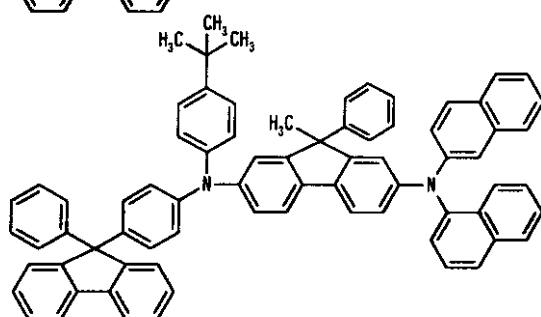
66



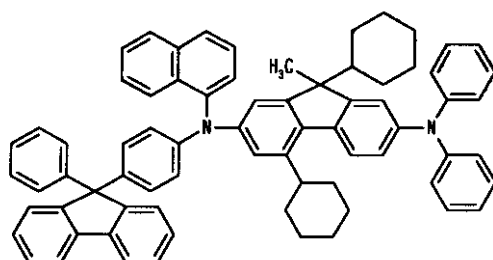
67



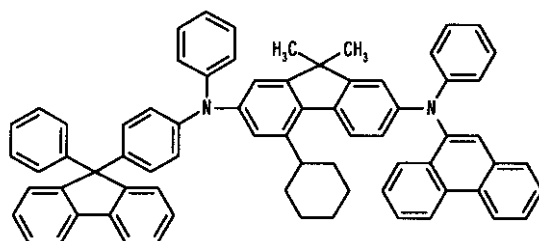
68



69



70



10

20

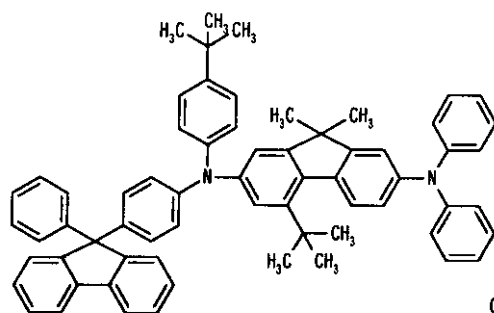
30

40

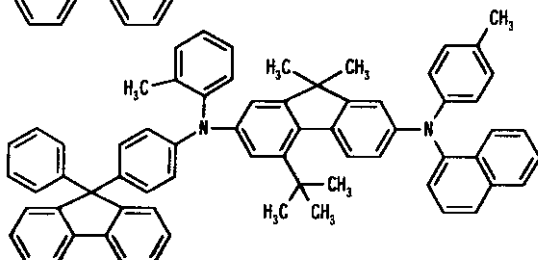
【 0 0 4 9 】

【化 1 7】

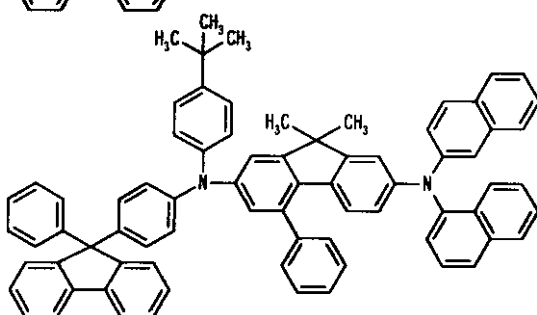
71



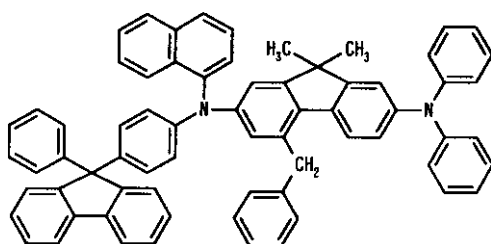
72



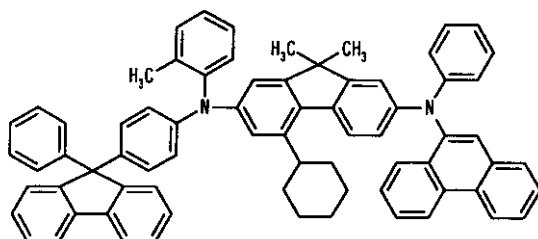
73



74



75



10

20

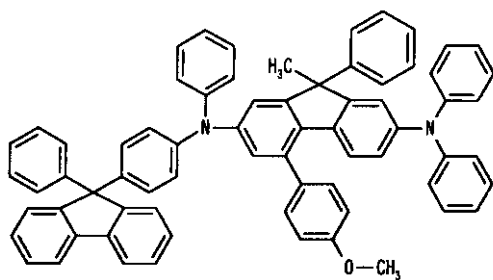
30

40

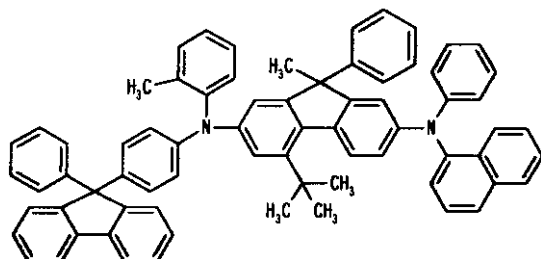
【 0 0 5 0 】

【化 1 8】

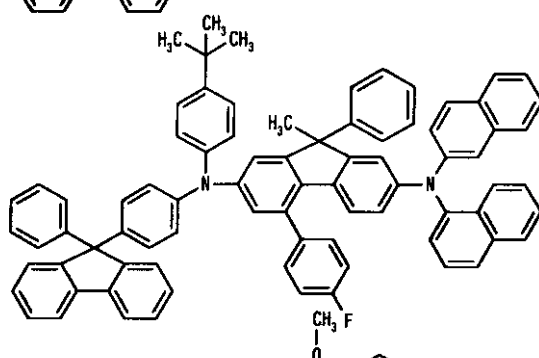
76



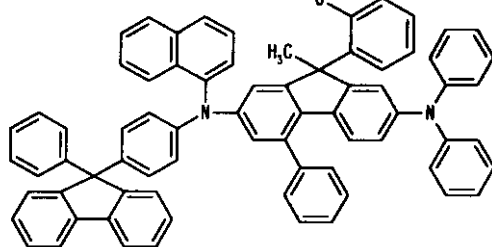
77



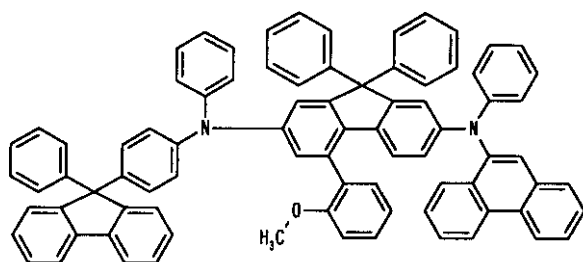
78



79



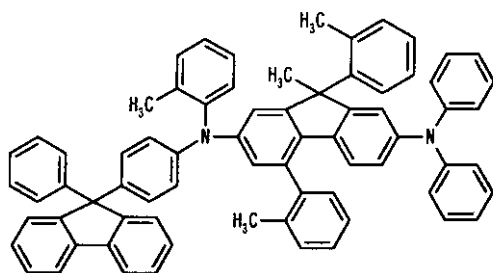
80



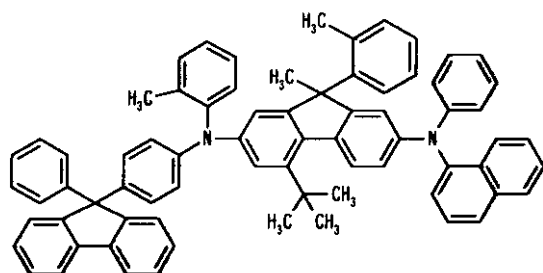
【 0 0 5 1 】

【化 1 9】

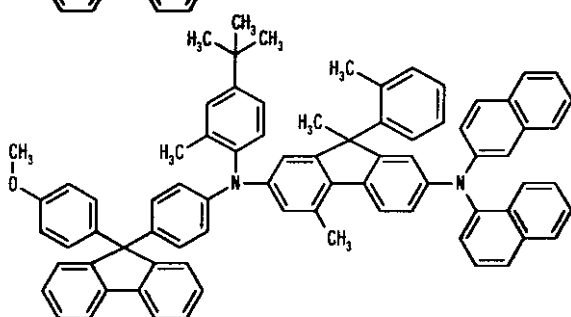
81



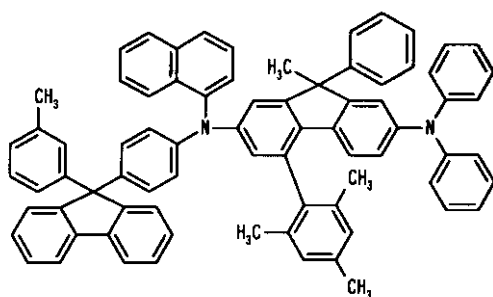
82



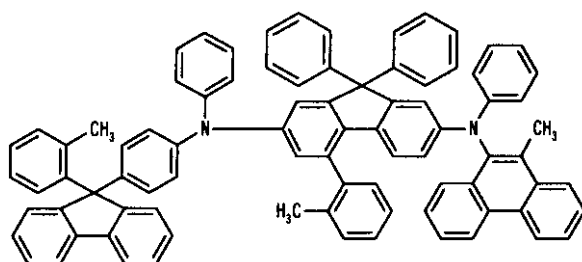
83



84



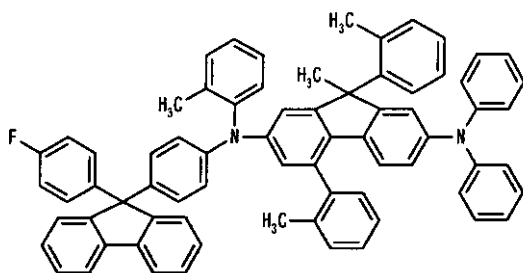
85



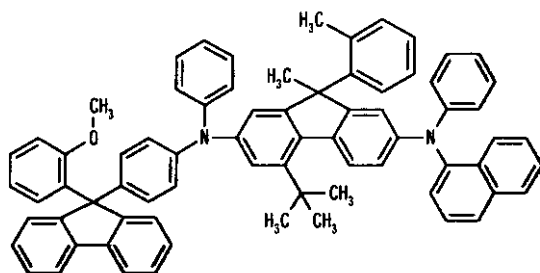
【 0 0 5 2】

【化 2 0】

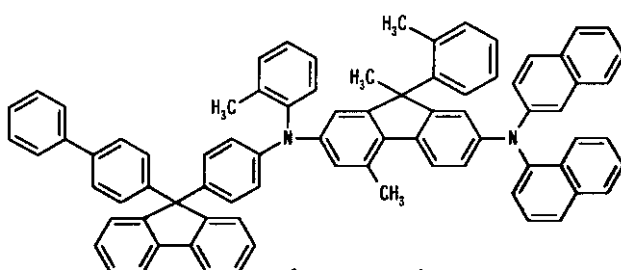
86



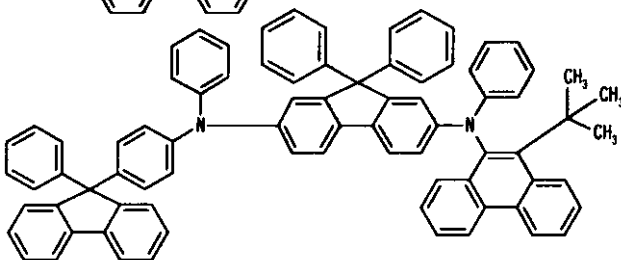
87



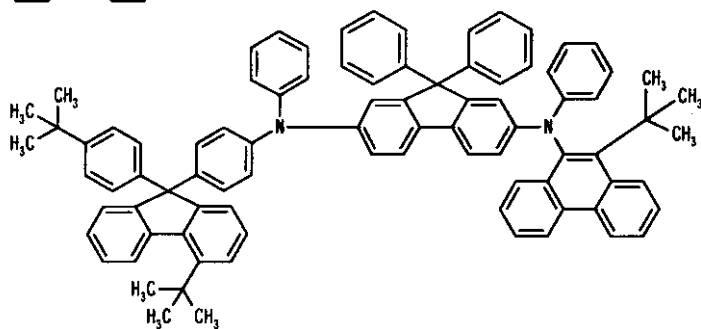
88



89



90



10

20

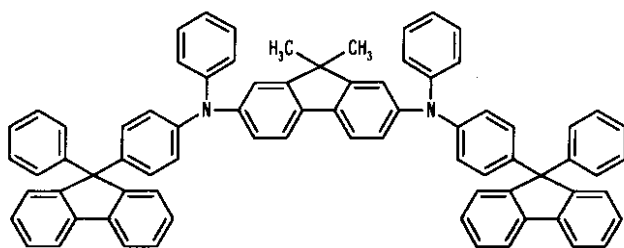
30

【 0 0 5 3】

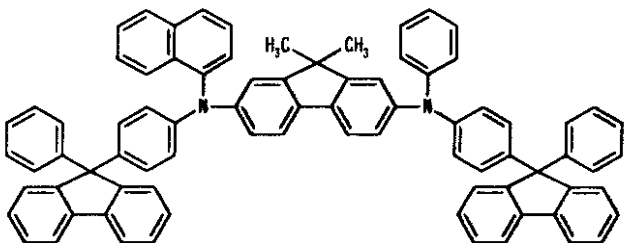
40

【化 2 1】

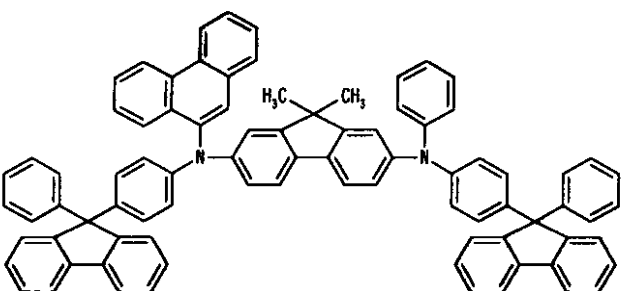
91



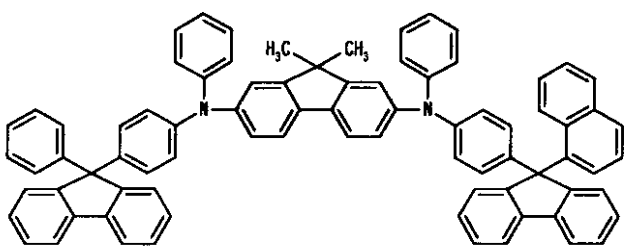
92



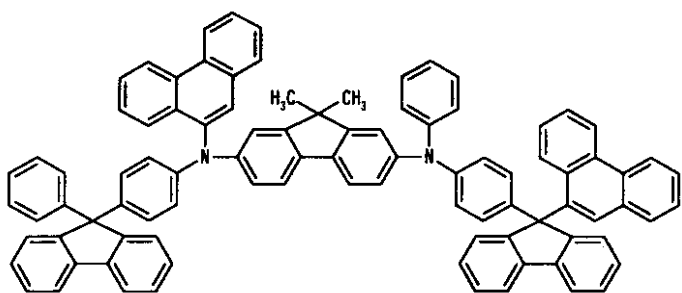
93



94



95



10

20

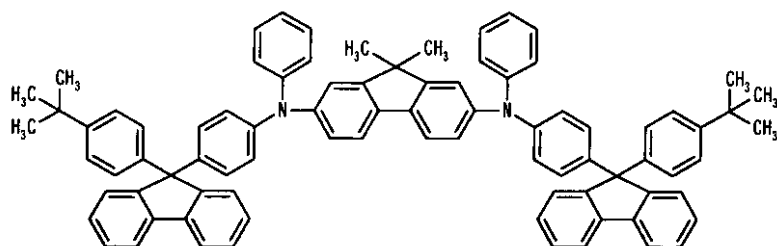
30

40

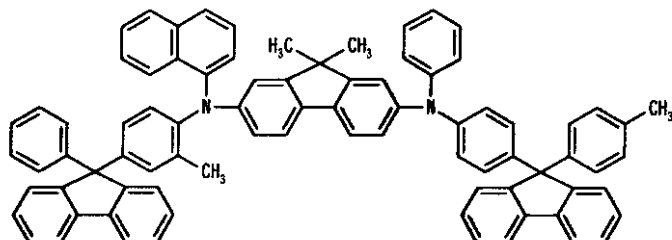
【 0 0 5 4 】

【化 2 2】

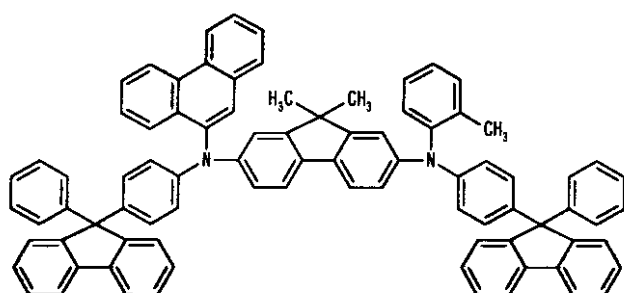
96



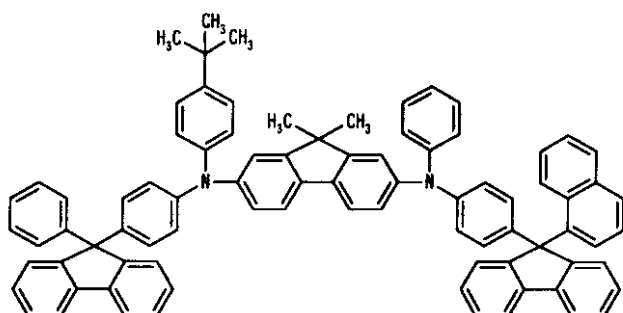
97



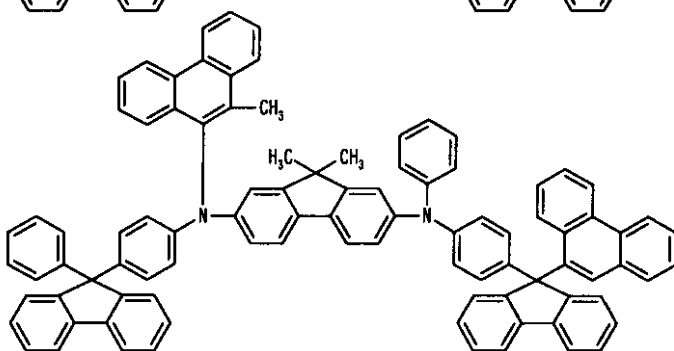
98



99



100



【 0 0 5 5】

10

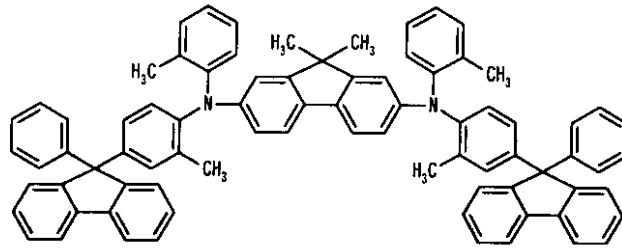
20

30

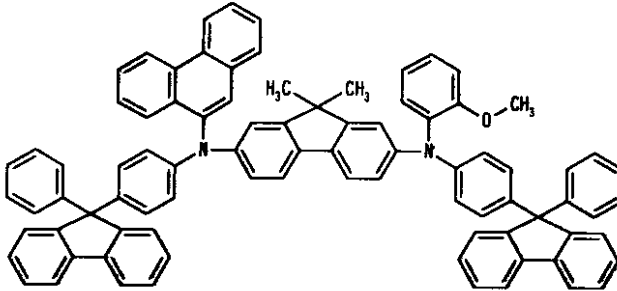
40

【化 2 3】

101

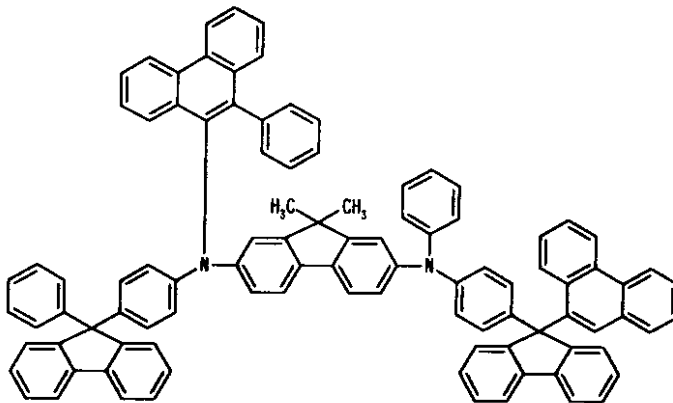


102



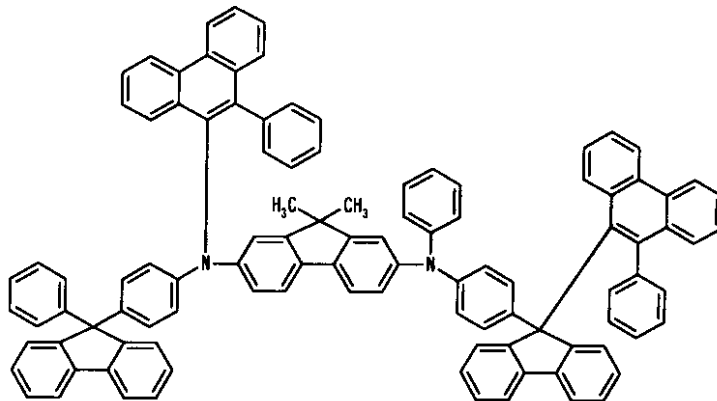
10

103



20

104



30

【0056】

40

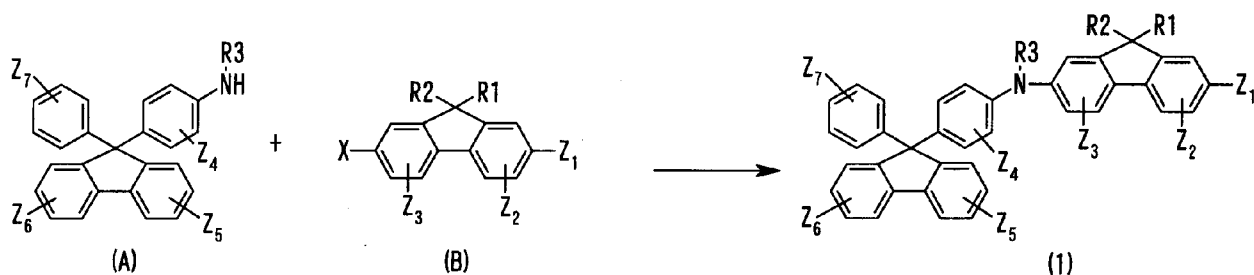
本発明の一般式(1)で表される9,9-ジフェニルフルオレン化合物は例えば、以下に示す工程により製造することができる。

【0057】

一般式(1)で表される9,9-ジフェニルフルオレン化合物の製造(化24)

【0058】

【化 2 4】



10

【 0 0 5 9】

〔式中、 $Z_1 \sim Z_7$ および $R1 \sim R3$ は一般式 (1) と同様の意味を表し、 X はハロゲン原子を表す〕

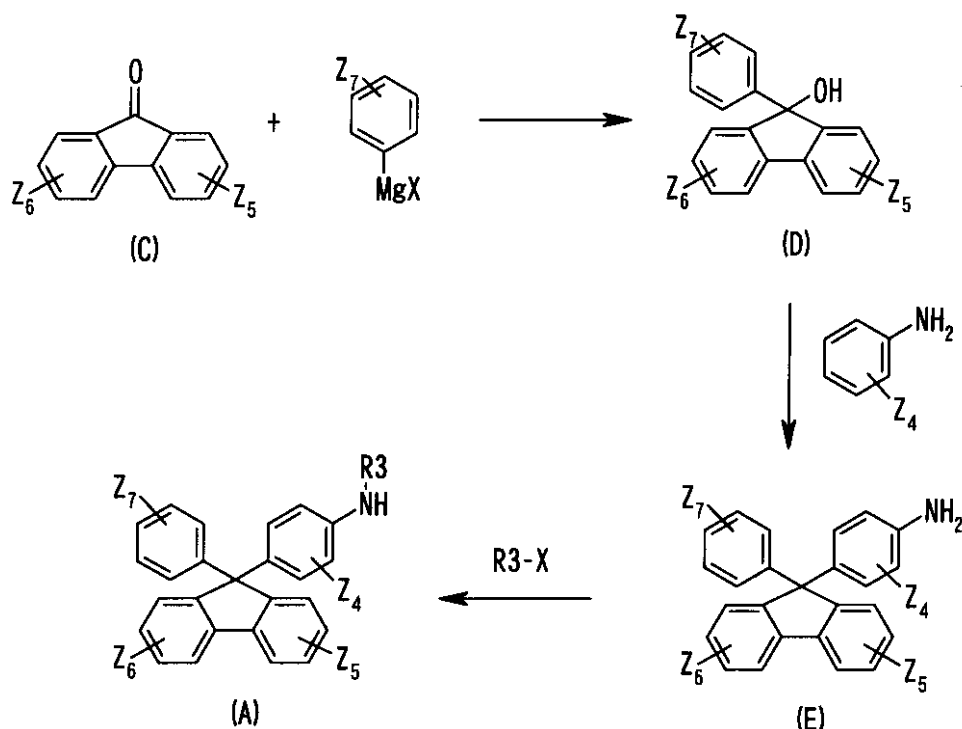
すなわち、一般式 (A) で表される 9,9-ジフェニルフルオレン誘導体と一般式 (B) で表されるハロゲノフルオレン誘導体をパラジウム触媒〔例えば、酢酸パラジウム/トリ-*tert*-ブチルホスフィン、酢酸パラジウム/トリフェニルホスフィン、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム/トリ-*tert*-ブチルホスフィン〕及び塩基(例えば、ナトリウム-*tert*-ブトキシド、炭酸カリウム、炭酸セシウム、カリウム-*tert*-ブトキシド)の存在下に反応させることにより製造することができる。

尚、一般式 (A) で表される化合物は、例えば、以下の工程 (化 2 5) により製造することができる。

20

【 0 0 6 0】

【化 2 5】



30

40

【 0 0 6 1】

〔式中、式中、 $Z_4 \sim Z_7$ および $R3$ は一般式 (1) と同様の意味を表し、 X はハロゲン原子を表す。〕

すなわち、一般式 (C) で表されるフルオレノン誘導体とグリニャール試薬を反応させ、一般式 (D) で表される化合物を製造後、アニリン誘導体および酸〔例えば、*p*-トルエンスルホン酸、酢酸、35%塩酸水溶液、50%硫酸水溶液〕と混合し、加熱することで一般式 (E) で表される化合物を得る。この一般式 (E) で表される 9,9-ジフェニル

50

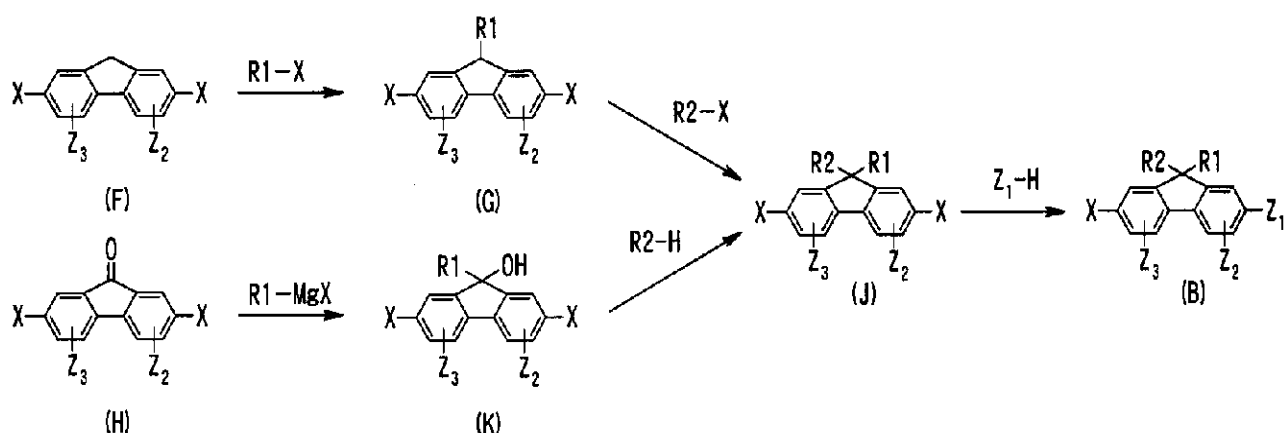
フルオレン誘導体とR3 - Xで表わされるハロゲン化合物を、パラジウム触媒〔例えば、酢酸パラジウム／トリ-tert-ブチルホスフィン、酢酸パラジウム／トリフェニルホスフィン、トリス（ジベンジリデンアセトン）ジパラジウム／トリ-tert-ブチルホスフィン、1, 1 - ビス（ジフェニルフォスフィノフェロセン）パラジウム ジクロロメタン錯体／1, 1 - ビス（ジフェニルフォスフィノフェロセン）〕、及び塩基（例えば、ナトリウム-tert-ブトキシド、炭酸カリウム、炭酸セシウム、カリウム-tert-ブトキシド）の存在下に反応させることにより、一般式（A）で表される9, 9 - ジフェニルフルオレン誘導体を製造することができる。

また、一般式（B）で表されるハロゲンノフルオレン誘導体は、例えば、下記の工程（化26）に従い製造することができる。

10

【0062】

【化26】



20

【0063】

〔式中、式中、Z₁ ~ Z₃ およびR₁ ~ R₂ は一般式（1）と同様の意味を表し、Xはハロゲン原子を表し、Hは水素を表す。〕

すなわち、〔1 1〕R₁およびR₂が同一の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基もしくは置換または未置換のアラルキル基の場合：一般式（F）で表されるフルオレン誘導体とR₁ - XまたはR₂ - Xで表されるハロゲン化合物を塩基（例えば、n - ブチルリチウム、水酸化ナトリウム、水素化ナトリウム）存在下、作用させることで一般式（J）で表される化合物を製造できる。

30

〔1 2〕R₁およびR₂が異なる直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基もしくは置換または未置換のアラルキル基の場合：一般式（F）で表されるフルオレン誘導体とR₁ - Xで表されるハロゲン化合物を塩基（例えば、n - ブチルリチウム、水酸化ナトリウム、水素化ナトリウム）存在下、作用させることで一般式（G）で表される化合物を製造できる。同様にして塩基存在下、一般式（G）で表される化合物とR₂ - Xで表されるハロゲン化合物を作用させることで一般式（J）で表されるフルオレン誘導体を得る。

〔2〕R₁もしくはR₂が置換または未置換のアリール基の場合：一般式（H）で表されるフルオレノン誘導体とグリニャール試薬を反応させ、一般式（K）で表される化合物を製造後、置換基R₂ - Hで表される芳香族化合物と酸〔例えば、p - トルエンスルホン酸、酢酸、35%塩酸水溶液、50%硫酸水溶液〕との混合物とし、加熱することで一般式（J）で表されるフルオレン誘導体を得る。一般式（J）で表されるフルオレン誘導体を銅化合物〔例えば、銅粉、塩化銅、ヨウ化銅〕及び塩基（例えば、ナトリウム-tert-ブトキシド、炭酸カリウム、炭酸セシウム、カリウム-tert-ブトキシド）の存在下、Z₁ - Hに反応させることにより、一般式（B）で表されるハロゲンノフルオレン誘導体を製造することができる。

40

【0064】

次に、本発明の有機電界発光素子について説明する。本発明の有機電界発光素子は、一対の電極間に、一般式（1）で表される9, 9 - ジフェニルフルオレン化合物を少なくと

50

も 1 種含有する層を少なくとも一層挟持してなるものである。有機電界発光素子は、通常一対の電極間に少なくとも 1 種の発光成分を含有する発光層を少なくとも一層挟持してなるものである。発光層に使用する化合物の正孔注入および正孔輸送、電子注入および電子輸送の各機能レベルを考慮し、所望に応じて、正孔注入成分を含有する正孔注入輸送層および / または電子注入輸送成分を含有する電子注入輸送層を設けることもできる。

例えば、発光層に使用する化合物の正孔注入機能、正孔輸送機能および / または電子注入機能、電子輸送機能が良好な場合には、発光層が正孔注入輸送層および / または電子注入輸送層を兼ねた型の素子構成として一層型の素子構成とすることができる。また、発光層が正孔注入機能および / または正孔輸送機能に乏しい場合には発光層の陽極側に正孔注入輸送層を設けた二層型の素子構成、発光層が電子注入機能および / または電子輸送機能に乏しい場合には発光層の陰極側に電子注入輸送層を設けた二層型の素子構成とすることができる。さらには発光層を正孔注入輸送層と電子注入輸送層で挟み込んだ構成の三層型の素子構成とすることも可能である。

10

【0065】

また、正孔注入輸送層、電子注入輸送層および発光層のそれぞれの層は、一層構造であっても多層構造であってもよく、正孔注入輸送層および電子注入輸送層は、それぞれの層において、注入機能を有する層と輸送機能を有する層を別々に設けて構成することもできる。

本発明の有機電界発光素子において一般式 (1) で表される 9, 9 - ジフェニルフルオレン化合物は、正孔注入輸送層および / または発光層の構成成分として使用することが好ましく、正孔注入輸送層の構成成分として使用することがより好ましい。

20

本発明の有機電界発光素子において、一般式 (1) で表される 9, 9 - ジフェニルフルオレン化合物は、単独で使用してもよく、また複数併用してもよい。

【0066】

本発明の有機電界発光素子の構成としては、特に限定されるものではないが、例えば、(EL-1) 陽極 / 正孔注入輸送層 / 発光層 / 電子注入輸送層 / 陰極型素子 (図 1)、(EL-2) 陽極 / 正孔注入輸送層 / 発光層 / 陰極型素子 (図 2)、(EL-3) 陽極 / 発光層 / 電子注入輸送層 / 陰極型素子 (図 3)、(EL-4) 陽極 / 発光層 / 陰極型素子 (図 4)、などを挙げることができる。さらには、発光層を電子注入輸送層で挟み込んだ形の (EL-5) 陽極 / 正孔注入輸送層 / 電子注入輸送層 / 発光層 / 電子注入輸送層 / 陰極型素子 (図 5) とすることもできる。また、(EL-4) の型の素子構成としては、発光層として発光成分を一層形態で一対の電極間に挟持させた型の素子、(EL-6) 発光層として正孔注入輸送成分、発光成分および電子注入成分を混合させた一層形態で一対の電極間に挟持させた型の素子 (図 6)、(EL-7) 発光層として正孔注入輸送成分および発光成分を混合させた一層形態で一対の電極間に挟持させた型の素子 (図 7)、(EL-8) 発光層として発光成分および電子注入成分を混合させた一層形態で一対の電極間に挟持させた型の素子 (図 8) のいずれであってもよい。

30

【0067】

本発明の有機電界発光素子は、これらの素子構成に限定されるものではなく、それぞれの型の素子において、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層を複数設けることも可能である。また、それぞれの型の素子において、正孔注入輸送層を発光層との間に、正孔注入輸送成分と発光成分の混合層および / または発光層と電子注入輸送層との間に、発光成分と電子注入輸送成分の混合層を設けることもできる。

40

【0068】

好ましい有機電界発光素子の構成は、(EL-1) 型素子、(EL-2) 型素子、(EL-5) 型素子、(EL-6) 型素子または (EL-7) 型素子であり、より好ましくは、(EL-1) 型素子、(EL-2) 型素子または (EL-7) 型素子である。

【0069】

以下、本発明の有機電界発光素子の構成要素に関し、詳細に説明する。なお、例として (図 1) に示す (EL-1) 陽極 / 正孔注入輸送層 / 発光層 / 電子注入輸送層 / 陰極型素子

50

子を取り上げて説明する。

【0070】

(図1)において、1は基板、2は陽極、3は正孔注入輸送層、4は発光層、5は電子注入輸送層、6は陰極、7は電源を示す。

本発明の有機電界発光素子は基板1に支持されていることが好ましく、基板としては、特に限定されるものではないが、透明ないし半透明である基板が好ましく、材質としては、ソーダライムガラス、ボロシリケートガラス等のガラスおよびポリエステル、ポリカーボネート、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、ポリアクリレート、ポリメチルメタクリレート、ポリプロピレン、ポリエチレン等の透明性高分子が挙げられる。また、半透明プラスチックシート、石英、透明セラミックスあるいはこれらを組み合わせた複合シートからなる基板を使用することもできる。さらに、基板に、例えば、カラーフィルター膜、色変換膜、誘電体反射膜を組み合わせ、発光色をコントロールすることもできる。

陽極2としては、仕事関数の比較的大きい金属、合金または導電性化合物を電極材料として使用することが好ましい。陽極に使用する電極材料としては、例えば、金、白金、銀、銅、コバルト、ニッケル、パラジウム、バナジウム、タングステン、酸化インジウム(In₂O₃)、酸化錫(SnO₂)、酸化亜鉛、ITO(インジウム・チン・オキサイド: Indium Tin Oxide)、ポリチオフェン、ポリピロールなどを挙げることができる。これらの電極材料は単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

陽極は、これらの電極材料を、例えば、蒸着法、スパッタリング法等の方法により、基板の上に形成することができる。

【0071】

また、陽極は一層構造であってもよく、あるいは多層構造であってもよい。陽極のシート電気抵抗は、好ましくは、数百以下、より好ましくは、5～50程度に設定する。

陽極の厚みは使用する電極材料の材質にもよるが、一般に、5～1000nm程度、より好ましくは、10～500nm程度に設定する。

正孔注入輸送層3は、陽極からの正孔(ホール)の注入を容易にする機能、および注入された正孔を輸送する機能を有する化合物を含有する層である。

正孔注入輸送層は、一般式(1)で表される9,9-ジフェニルフルオレン化合物、または他の正孔注入輸送機能を有する化合物(例えば、フタロシアニン誘導体、トリアリールアミン誘導体、トリアリールメタン誘導体、オキサゾール誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、ピラゾリン誘導体、ポリシラン誘導体、ポリフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリ-N-ビニルカルバゾールなど)を少なくとも1種使用して形成することができる。

正孔注入輸送機能を有する化合物は、単独で使用してもよく、または複数併用してもよい。

【0072】

本発明の有機電界発光素子は、好ましくは、正孔注入輸送層に一般式(1)で表される9,9-ジフェニルフルオレン化合物を含有する。本発明の有機電界発光素子において使用することができる本発明の一般式(1)で表される9,9-ジフェニルフルオレン化合物以外の正孔注入輸送機能を有する化合物としては、トリアリールアミン誘導体(例えば、4,4'-ビス[N-フェニル-N-(4"-メチルフェニル)アミノ]-1,1'-ビフェニル、4,4'-ビス[N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ]-1,1'-ビフェニル、4,4'-ビス[N-フェニル-N-(3"-メトキシフェニル)アミノ]-1,1'-ビフェニル、4,4'-ビス[N-フェニル-N-(1"-ナフチル)アミノ]-1,1'-ビフェニル、3,3'-ジメチル-4,4'-ビス[N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ]-1,1'-ビフェニル、1,1'-ビス[4'-[N,N-ジ(4"-メチルフェニル)アミノ]フェニル]シクロヘキサン、9,10-ビス[N-(4'-メチルフェニル)-N-(4"-n-ブチルフェニル)アミノ]フェナントレン、3,8-ビス(N,N-ジフェニルアミノ)-6-フェニルフェナントリジン、4-メチル-N,N-ビス[4"-4"-'-ビス[N',N'-ジ(4-メ

10

20

30

40

50

チルフェニル)アミノ]ビフェニル-4'-イル]アニリン、N,N'-ビス[4-(ジフェニルアミノ)フェニル]-N,N'-ジフェニル-1,3-ジアミノベンゼン、N,N'-ビス[4-(ジフェニルアミノ)フェニル]-N,N'-ジフェニル-1,4-ジアミノベンゼン、5,5"-ビス[4-(ビス[4-メチルフェニル]アミノ)フェニル-2,2':5',2"-ターチオフエン、1,3,5-トリス(ジフェニルアミノ)ベンゼン、4,4',4"-トリス(N-カルバゾリル)トリフェニルアミン、4,4',4"-トリス[N,N'-ビス(4"-tert-ブチルビフェニル-4"-イル)アミノ]トリフェニルアミン、1,3,5-トリス[N-(4'-ジフェニルアミノ)ベンゼンなど、ポリチオフエンおよびその誘導体、ポリ-N-ビニルカルバゾールおよびその誘導体がより好ましい。

10

【0073】

一般式(1)で表される9,9-ジフェニルフルオレン化合物と他の正孔注入機能を有する化合物を併用する場合、正孔注入輸送層中に占める一般式(1)で表される9,9-ジフェニルフルオレン化合物の含有量は、好ましくは、0.1質量%以上、より好ましくは、0.5~99.9質量%、さらに好ましくは3~97質量%である。

発光層4は、正孔および電子の注入機能、それらの輸送機能、正孔と電子の再結合により励起子を生成させる機能を有する化合物を含有する層である。

発光層は、一般式(1)で表される9,9-ジフェニルフルオレン化合物をホスト材料として、一般式(1)で表される9,9-ジフェニルフルオレン化合物以外の発光機能を有する化合物を少なくとも1種ゲスト材料として使用して形成することができ、また一般式(1)で表される9,9-ジフェニルフルオレン化合物以外の発光機能を有する化合物を少なくとも1種ホスト材料として、一般式(1)で表される9,9-ジフェニルフルオレン化合物をゲスト材料として使用して形成することもできる。

20

一般式(1)で表される9,9-ジフェニルフルオレン化合物以外の発光機能を有する化合物(ゲスト材料・ホスト材料)としては、例えば、アクリドン誘導体、キナクリドン誘導体、ジケトピロロピロール誘導体、多環芳香族化合物〔例えば、ルブレン、アントラセン、テトラセン、ピレン、ペリレン、クリセン、デカサイクレン、コロネン、テトラフェニルシクロペンタジエン、ペンタフェニルシクロペンタジエン、9,10-ジフェニルアントラセン、9,10-ビス(フェニルエチニル)アントラセン、1,4-ビス(9'-エチニルアントセニル)ベンゼン、4,4'-ビス(9"-エチニルアントラセニル)ビフェニル、ジベンゾ[f,f']ジインデノ[1,2,3-cd:1',2',3'-lm]ペリレン誘導体〕、トリアリールアミン誘導体(例えば、正孔注入輸送機能を有する化合物として前述した化合物を挙げることができる)、有機金属錯体〔例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(10-ベンゾ[h]キノリノラート)ベリリウム、2-(2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾチアゾールの亜鉛塩、4-ヒドロキシアクリジンの亜鉛塩、3-ヒドロキシフラボンの亜鉛塩、5-ヒドロキシフラボンのベリリウム塩、5-ヒドロキシフラボンのアルミニウム塩〕、スチルベン誘導体〔例えば、1,1,4,4-テトラフェニル-1,3-ブタジエン、4,4'-ビス(2,2-ジフェニルビニル)ビフェニル、

30

【0074】

4,4'-ビス[(1,1,2-トリフェニル)エテニル]ビフェニル〕、クマリン誘導体(例えば、クマリン1、クマリン6、クマリン7、クマリン30、クマリン106、クマリン138、クマリン151、クマリン152、クマリン153、クマリン307、クマリン311、クマリン314、クマリン334、クマリン338、クマリン343、クマリン500)、ピラン誘導体(例えば、DCM1、DCM2)、オキサゾン誘導体(例えば、ナイルレッド)、ベンゾチアゾール誘導体、ベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ピラジン誘導体、ケイ皮酸エステル誘導体、ポリ-N-ビニルカルバゾールおよびその誘導体、ポリチオフエンおよびその誘導体、ポリフェニレンおよびその誘導体、ポリフルオレンおよびその誘導体、ポリフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリビフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリターフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリナフチレンビニレンおよびその誘導体、ポリチエニレンビニレンおよびその誘導体、

40

50

導体等を挙げることができる。一般式(1)で表される9,9-ジフェニルフルオレン化合物以外の発光機能を有する化合物(ゲスト材料・ホスト材料)としては、アクリドン誘導体、キナクリドン誘導体、多環芳香族化合物、トリアリールアミン誘導体、有機金属錯体およびスチルベン誘導体が好ましく、多環芳香族化合物、有機金属錯体がより好ましい。

【0075】

本発明の有機電界発光素子は、好ましくは、発光層に一般式(1)で表される9,9-ジフェニルフルオレン化合物をホスト材料として含有する。

一般式(1)で表される9,9-ジフェニルフルオレン化合物をホスト材料として、他の発光機能を有する化合物(ゲスト材料)と併用する場合、発光層中に占める一般式(1)で表される9,9-ジフェニルフルオレン化合物の含有率は、好ましくは、99.9~80質量%であり、より好ましくは、99~90質量%である。

ホスト材料は、単独で使用してもよく、複数併用してもよい。

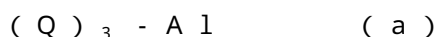
また、ゲスト材料は単独で使用してもよく、複数併用してもよい。

ホスト材料を複数併用する場合、本発明の一般式(1)で表される9,9-ジフェニルフルオレン化合物のホスト材料全体に占める割合は、好ましくは、99~10質量%であり、より好ましくは90~20質量%である。

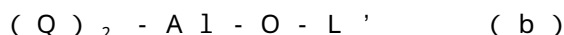
電子注入輸送層5は、陰極からの電子の注入を容易にする機能および/または注入された電子を輸送する機能を有する化合物を含有する層である。

電子注入輸送層に使用される電子注入機能を有する化合物としては、例えば、有機金属錯体、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、トリアジン誘導体、ペリレン誘導体、キノリン誘導体、キノキサリン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、ニトロ置換フルオレノン誘導体、チオピランジオキサイド誘導体などを挙げることができる。また、有機金属錯体としては、例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム等の有機アルミニウム錯体、ビス(10-ベンゾ[h]キノリノラート)ベリリウム等の有機ベリリウム錯体、5-ヒドロキシフラボンのベリリウム塩、5-ヒドロキシフラボンのアルミニウム塩等を挙げることができる。好ましくは、有機アルミニウム錯体であり、より好ましくは、置換または未置換の8-キノリノラート配位子を有する有機アルミニウム錯体である。置換または未置換の8-キノリノラート配位子を有する有機アルミニウム錯体としては、例えば、一般式(a)~一般式(c)で表される化合物を挙げることができる。

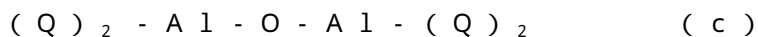
【0076】



(式中、Qは置換または未置換の8-キノリノラート配位子を表す)



(式中、Qは置換または未置換の8-キノリノラート配位子を表し、O-L'はアリールオキシ配位子を表し、L'は炭素数6~24のアリール基を表す)



(式中、Qは置換または未置換の8-キノリノラート配位子を表す)

置換または未置換の8-キノリノラート配位子を有する有機アルミニウム錯体の具体例としては、例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(5-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(3,4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4,5-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4,6-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、

ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(フェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2-メチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3-メチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(4-メチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-

8 - キノリノラート) (4 - フェニルフェノラート) アルミニウム、ビス (2 - メチル - 8 - キノリノラート) (2, 3 - ジメチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2 - メチル - 8 - キノリノラート) (2, 6 - ジメチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2 - メチル - 8 - キノリノラート) (3, 4 - ジメチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2 - メチル - 8 - キノリノラート) (3, 5 - ジメチルフェノラート) アルミニウム、

【0077】

ビス (2 - メチル - 8 - キノリノラート) (3, 5 - ジ-tert - ブチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2 - メチル - 8 - キノリノラート) (2, 6 - ジフェニルフェノラート) アルミニウム、ビス (2 - メチル - 8 - キノリノラート) (2, 4, 6 - トリフェニルフェノラート) アルミニウム、ビス (2 - メチル - 8 - キノリノラート) (2, 4, 6 - トリメチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2 - メチル - 8 - キノリノラート) (2, 4, 5, 6 - テトラメチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2 - メチル - 8 - キノリノラート) (1 - ナフトラート) アルミニウム、ビス (2 - メチル - 8 - キノリノラート) (2 - ナフトラート) アルミニウム、ビス (2, 4 - ジメチル - 8 - キノリノラート) (2 - フェニルフェノラート) アルミニウム、ビス (2, 4 - ジメチル - 8 - キノリノラート) (3 - フェニルフェノラート) アルミニウム、ビス (2, 4 - ジメチル - 8 - キノリノラート) (4 - フェニルフェノラート) アルミニウム、ビス (2, 4 - ジメチル - 8 - キノリノラート) (3, 5 - ジメチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2, 4 - ジメチル - 8 - キノリノラート) (3, 5 - ジ-tert - ブチルフェノラート) アルミニウム、

10

20

【0078】

ビス (2 - メチル - 8 - キノリノラート) アルミニウム - μ - オキソ - ビス (2 - メチル - 8 - キノリノラート) アルミニウム、ビス (2, 4 - ジメチル - 8 - キノリノラート) アルミニウム - μ - オキソ - ビス (2, 4 - ジメチル - 8 - キノリノラート) アルミニウム、ビス (2 - メチル - 4 - エチル - 8 - キノリノラート) アルミニウム - μ - オキソ - ビス (2 - メチル - 4 - エチル - 8 - キノリノラート) アルミニウム、ビス (2 - メチル - 4 - メトキシ - 8 - キノリノラート) アルミニウム - μ - オキソ - ビス (2 - メチル - 4 - メトキシ - 8 - キノリノラート) アルミニウム、ビス (2 - メチル - 5 - シアノ - 8 - キノリノラート) アルミニウム - μ - オキソ - ビス (2 - メチル - 5 - シアノ - 8 - キノリノラート) アルミニウム、ビス (2 - メチル - 5 - トリフルオロメチル - 8 - キノリノラート) アルミニウム - μ - オキソ - ビス (2 - メチル - 5 - トリフルオロメチル - 8 - キノリノラート) アルミニウムを挙げることができる。

30

【0079】

電子注入機能を有する化合物は単独で使用してもよく、また複数併用してもよい。陰極6としては、比較的仕事関数の小さい金属、合金または導電性化合物を電極材料として使用することが好ましい。陰極に使用する電極材料としては、例えば、リチウム、リチウム - インジウム合金、ナトリウム、ナトリウム - カリウム合金、カルシウム、マグネシウム、マグネシウム - 銀合金、マグネシウム - インジウム合金、インジウム、ルテニウム、チタニウム、マンガン、イットリウム、アルミニウム、アルミニウム - リチウム合金、アルミニウム - カルシウム合金、アルミニウム - マグネシウム合金、グラファイト薄を挙げることができる。これらの電極材料は単独で使用してもよく、また複数併用してもよい。陰極はこれらの電極材料を、例えば、蒸着法、スパッタリング法、イオン蒸着法、イオンプレーティング法、クラスターイオンビーム法により電子注入輸送層の上に形成することができる。

40

また、陰極は一層構造であってもよく、多層構造であってもよい。陰極のシート電気抵抗は数百以下とするのが好ましい。陰極の厚みは、使用する電極材料にもよるが、通常 5 ~ 1000 nm、好ましくは、10 ~ 500 nmとする。本発明の有機電界発光素子の発光を効率よく取り出すために、陽極または陰極の少なくとも一方の電極は、透明ないし半透明であることが好ましく、一般に、発光光の透過率が70%以上となるように陽極または陰極の材料、厚みを設定することが好ましい。

50

【0080】

また、本発明の有機電界発光素子は、正孔注入輸送層、発光層および電子注入輸送層の少なくとも一層中に、一重項酸素クエンチャーを含有していてもよい。一重項酸素クエンチャーとしては、特に限定されるものではないが、例えば、ルブレン、ニッケル錯体、ジフェニルイソベンゾフランが挙げられ、好ましくは、ルブレンである。

一重項酸素クエンチャーが含有されている層としては、特に限定されるものではないが、好ましくは、発光層または正孔注入輸送層であり、より好ましくは、正孔注入輸送層である。尚、正孔注入輸送層に一重項酸素クエンチャーを含有させる場合、正孔注入輸送層中に均一に含有させてもよく、正孔注入輸送層と隣接する層（例えば、発光層、発光機能を有する電子注入輸送層）の近傍に含有させてもよい。

一重項酸素クエンチャーの含有量としては、含有される層（例えば、正孔注入輸送層）を構成する全体量の0.01～50質量%、好ましくは、0.05～30質量%、より好ましくは、0.1～20質量%である。

正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の形成方法に関しては、特に限定されるものではなく、例えば、真空蒸着法、イオン化蒸着法、溶液塗布法（例えば、スピンコート法、キャスト法、ディップコート法、バーコート法、ロールコート法、ラングミュア・プロジェット法、インクジェット法）を使用することができる。真空蒸着法により正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層を形成する場合、真空蒸着の条件は、特に限定されるものではないが、通常、 10^{-5} Torr程度以下の真空下で、50～500程度のボート温度（蒸着源温度）、-50～300程度の基板温度で、0.005～50nm/sec程度の蒸着速度で実施することが好ましい。この場合、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層は、真空下で、連続して形成することが好ましい。連続で形成することにより諸特性に優れた有機電界発光素子を製造することが可能となる。真空蒸着法により、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層を、複数の化合物を使用して形成する場合、化合物を入れた各ボートを個別に温度制御して、共蒸着することが好ましい。

【0081】

溶液塗布法により各層を形成する場合、各層を形成する成分あるいはその成分とバインダー樹脂等とを、溶媒に溶解または分散させて塗布液とする。溶媒としては、例えば、有機溶媒（ヘキサン、オクタン、デカン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、1-メチルナフタレン等の炭化水素系溶媒、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン系溶媒、ジクロロメタン、クロロホルム、テトラクロロメタン、ジクロロエタン、トリクロロエタン、テトラクロロエタン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、クロロトルエン等のハロゲン化炭化水素系溶媒、酢酸エチル、酢酸ブチル、酢酸アミル、乳酸エチル等のエステル系溶媒、メタノール、プロパノール、ブタノール、ペンタノール、ヘキサノール、シクロヘキサノール、メチルセロソルブ、エチルセロソルブ、エチレングリコール等のアルコール系溶媒、ジブチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジメトキシエタン、アニソール等のエーテル系溶媒、N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド、1-メチル-2-ピロリドン、1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン、ジメチルスルホキシド等の極性溶媒）、水を挙げることができる。溶媒は単独で使用してもよく、また複数併用してもよい。正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の各層の成分を溶媒に分散させる場合には、分散方法として、例えば、ボールミル、サンドミル、ペイントシェーカー、アトライター、ホモジナイザー等を使用して微粒子状に分散する方法を使用することができる。

【0082】

また、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層に使用しうるバインダー樹脂としては、ポリ-N-ビニルカルバゾール、ポリアリーレート、ポリスチレン、ポリエステル、ポリシロキサン、ポリメチルメタクリレート、ポリメチルアクリレート、ポリエーテル、ポリカーボネート、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリパラキシレン、ポリエチレン、ポリフェニレンオキサイド、ポリエーテルスルホン、ポリアニリンお

10

20

30

40

50

よびその誘導体、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリフルオレンおよびその誘導体、ポリチエニレンビニレンおよびその誘導体などの高分子化合物を挙げることができる。バインダー樹脂は単独で使用してもよく、また、複数併用してもよい。塗布液の濃度は、特に限定されるものではないが、実施する塗布法により所望の厚みを作製するに適した濃度範囲に設定することができ、通常、0.1～50質量%、好ましくは、1～30質量%に設定する。バインダー樹脂を使用する場合、その使用量は特に限定されるものではないが、通常、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層を形成する成分とバインダー樹脂の総量に対してバインダー樹脂の含有率が（一層型の素子を形成する場合には各成分の総量に対して）、5～99.9質量%、好ましくは、10～99質量%となるように使用する。

10

正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層の膜厚は、特に限定されるものではないが、通常、5 nm～5 μmとする。

【0083】

また、上記の条件で作製した本発明の有機電界発光素子は、酸素や水分等との接触を防止する目的で、保護層（封止層）を設けたり、また、素子を不活性物質中（例えば、パラフィン、流動パラフィン、シリコンオイル、フルオロカーボン油、ゼオライト含有フルオロカーボン油）に封入して保護することができる。保護層に使用する材料としては、例えば、有機高分子材料（例えば、フッ素樹脂、エポキシ樹脂、シリコーン樹脂、エポキシシリコーン樹脂、ポリスチレン、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリパラキシレン、ポリエチレン、ポリフェニレンオキサイド）、無機材料（例えば、ダイヤモンド薄膜、アモルファスシリカ、電気絶縁性ガラス、金属酸化物、金属窒化物、金属炭化物、金属硫化物）、さらには、光硬化性樹脂を挙げることができる。保護層に使用する材料は単独で使用してもよく、また複数併用してもよい。保護層は一層構造であってもよく、また多層構造であってもよい。

20

また、本発明の有機電界発光素子は、電極に保護膜として金属酸化物膜（例えば、酸化アルミニウム膜）、金属フッ化膜を設けることもできる。

本発明の有機電界発光素子は、陽極の表面に界面層（中間層）を設けることもできる。界面層の材質としては、有機リン化合物、ポリシラン、芳香族アミン誘導体、フタロシアン誘導体等を挙げることができる。

さらに、電極、例えば、陽極はその表面を、酸、アンモニア/過酸化水素、あるいはプラズマで処理して使用することもできる。

30

【0084】

本発明の有機電界発光素子は、通常、直流駆動型の素子として使用することができるが、交流駆動型の素子としても使用することができる。また、本発明の有機電界発光素子は、セグメント型、単純マトリック駆動型等のパッシブ駆動型であってもよく、TFT（薄膜トランジスタ）型、MIM（メタル-インスレーター-メタル）型等のアクティブ駆動型であってもよい。駆動電圧は通常、2～30Vである。本発明の有機電界発光素子は、パネル型光源（例えば、時計、液晶パネル等のバックライト）、各種の発光素子（例えば、LED等の発光素子の代替）、各種の表示素子（例えば、情報表示素子（パソコンモニター、携帯電話・携帯端末用表示素子））、各種の標識、各種のセンサーなどに使用することができる。

40

以下、実施例を挙げて本発明をさらに詳細に説明するが、本発明は、以下の実施例に限定されるものではない。

【実施例1】

【0085】

例示化合物4の製造

[1]: 2-プロモ-9、9-ジメチルフルオレンの製造

2-プロモフルオレン49g（0.20mol）のN,N-ジメチルホルムアミド（100ml）溶液に、水素化ナトリウム16g（40%流動パラフィン添加物、0.40mol）を添加した。25℃で1時間攪拌後、ヨードメチル57g（0.40mol）を25℃で

50

滴下した。25℃で6時間攪拌後、水200gを添加し3時間攪拌した。析出した結晶をろ別後、水洗し、粗結晶47.2gを得た。さらに、粗結晶をイソプロパノール500mlで再結晶し、43.1gの2-プロモ-9、9-ジメチルフルオレンを得た。

[2]: 9-ヒドロキシ-9-フェニルフルオレンの製造

9-フルオレノン160g(0.89mol)のテトラヒドロフラン(800ml)溶液にフェニルマグネシウムブロマイド750g(32%テトラヒドロフラン溶液、1.33mol)を0℃で滴下した。8時間25℃で攪拌後、10%塩酸水溶液(300ml)を添加した。有機層を分離、濃縮し残渣を酢酸エチル1Lに溶解した。水洗後、硫酸マグネシウムにより乾燥し、濃縮することで粗結晶196gを得た。これをヘキサン500mlで洗浄することで9-ヒドロキシ-9-フェニルフルオレン185gを得た。

10

[3]: 9-フェニル-9-(4'-アミノフェニル)フルオレンの製造

9-ヒドロキシ-9-フェニルフルオレン60g(0.22mol)、アニリン123g(1.58mol)、35%塩酸水溶液250mlの酢酸(500ml)溶液を100℃で8時間攪拌した。冷却後、水200mlを添加し、析出した結晶をろ別し、結晶を酢酸エチル1Lに溶解した。20%水酸化ナトリウム水溶液300mlを添加し、25℃で1時間攪拌後、有機層を分離し、水洗した。硫酸マグネシウムにより乾燥し、濃縮することで9-フェニル-9-(4'-アミノフェニル)フルオレン53gを得た。

[4]: 例示化合物4の製造

9-フェニル-9-(4'-アミノフェニル)フルオレン20g(0.06mol)、1,1-ビス(ジフェニルフォスフィノフェロセン)パラジウムジクロロメタン錯体0.24g、1,1-ビス(ジフェニルフォスフィノフェロセン)0.53g、ナトリウムtert-ブトキシド6.9g(0.07mol)、2-プロモ-9、9-ジメチルフルオレン19.1g(0.07mol)のテトラヒドロフラン(48ml)溶液を80℃で3時間攪拌した。25℃まで冷却後、酢酸エチル700ml、水100mlを添加し、有機層を分離した。硫酸マグネシウムにより乾燥し、濃縮することで粗結晶27.8gを得た。さらに、粗結晶をイソプロパノール300mlで再結晶することで目的とする例示化合物4を無色の結晶として24.6gを得た。

20

【実施例2】

【0086】

例示化合物11の製造

例示化合物4 4.73g(0.009mol)、ヨードベンゼン1.84g(0.009mol)、酢酸パラジウム0.004g(0.002mol)、トリ-tert-ブチルホスフィン0.1ml、ナトリウムtert-ブトキシド1.27g(0.014mol)のキシレン(50ml)溶液を110℃で3時間攪拌した。冷却後、トルエン(500ml)、水(100ml)を添加し、有機層を分離した。硫酸マグネシウムにより乾燥し、濃縮することで粗結晶4.65gを得た。粗結晶をメタノール100mlで洗浄後、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(溶出液:トルエン)で精製し、トルエンで再結晶することで目的とする例示化合物11の化合物を無色の結晶として3.98gを得た。さらにこの化合物を360、 2×10^{-4} Paで昇華精製した。

30

【実施例3】

【0087】

例示化合物12の製造

実施例2においてヨードベンゼン1.84g(0.009mol)を使用する代わりに、1-ヨードナフタレン2.29g(0.009mol)を使用した以外は実施例2に記載の操作に従い、例示化合物12の化合物を無色の結晶として2.76g得た。さらにこの化合物を385、 2×10^{-4} Paで昇華精製した。

40

【実施例4】

【0088】

例示化合物31の製造

[1]: 7-クロロ-2-ヨード-9,9-ジメチルフルオレンの製造

50

7 - クロロ - 2 - ヨードフルオレン 6.52 g (0.02 mol) を N,N-ジメチルホルムアミド 100 ml に溶解し、この溶液に、水素化ナトリウム 1.6 g (40% 流動パラフィン添加物、0.04 mol) を添加した。25 で 1 時間攪拌後、ヨードメチル 5.68 g (0.04 mol) を 25 で滴下した。25 で 6 時間攪拌後、水 200 g を添加し 3 時間攪拌した。析出した結晶をろ別後、水洗し、粗結晶 5.60 g を得た。さらに、粗結晶をイソプロパノール 50 ml で再結晶し、4.74 g の 7 - クロロ - 2 - ヨード - 9,9 - ジメチルフルオレンを得た。

[2] : 7 - クロロ - 2 - N、N - ジフェニルアミノ - 9,9 - ジメチルフルオレンの製造

7 - クロロ - 2 - ヨード - 9,9 - ジメチルフルオレン 25 g (0.07 mol)、ヨウ化銅 (I) 0.5 g (0.05 mol)、N、N - ジフェニルアミン 12 g (0.07 mol)、炭酸カリウム 12.4 g (0.08 mol)、o - ジクロロベンゼン 78 ml を 170 で 6 時間加熱した。反応液をトルエン 100 ml で希釈後、ろ別し、ろ液を濃縮し粗結晶 15.3 g を得た。さらに、粗結晶をメチルセロソルブ 30 ml で再結晶し、5.60 g の 7 - クロロ - 2 - N、N - ジフェニルアミノ - 9,9 - ジメチルフルオレンを得た。

[3] : 9 - フェニル - 9 - (N - フェニル - 4' - アミノフェニル)フルオレンの製造
9 - フェニル - 9 - (4' - アミノフェニル)フルオレン 20 g (0.06 mol)、1,1 - ビス(ジフェニルフォスフィノフェロセン)パラジウム ジクロロメタン錯体 0.24 g、1,1 - ビス(ジフェニルフォスフィノフェロセン) 0.53 g、ナトリウム tert-ブトキシド 6.9 g (0.07 mol)、ブロモベンゼン 10.4 g (0.07 mol) のテトラヒドロフラン (48 ml) 溶液を 80 で 3 時間攪拌した。25 まで冷却後、酢酸エチル 700 ml、水 100 ml を添加し、有機層を分離した。硫酸マグネシウムにより乾燥し、濃縮することで粗結晶 30.2 g を得た。さらに、粗結晶をイソプロパノール 300 ml で再結晶し、9 - フェニル - 9 - (N - フェニル - 4' - アミノフェニル)フルオレン 16.4 g を得た。

[4] : 例示化合物 31 の製造

9 - フェニル - 9 - (N - フェニル - 4' - アミノフェニル)フルオレン 3.85 g (0.009 mol)、7 - クロロ - 2 - (N、N - ジフェニル)アミノ - 9,9 - ジメチルフルオレン 3.56 g (0.009 mol)、酢酸パラジウム 0.004 g (0.002 mol)、トリ-tert-ブチルホスフィン 0.1 g (0.005 mol)、ナトリウム tert-ブトキシド 2.7 g (0.014 mol) のキシレン (50 ml) 溶液を 110 で 3 時間攪拌した。冷却後、トルエン (500 ml)、水 (100 ml) を添加し、有機層を分離した。硫酸マグネシウムにより乾燥し、濃縮することで粗結晶 5.3 g を得た。粗結晶をメタノール 100 ml で洗浄後、シリカゲルカラムクロマトグラフィー (溶出液: トルエン) で精製し、トルエンで再結晶することで目的とする例示化合物 31 の化合物を無色の結晶として 1.8 g を得た。さらにこの化合物を 390、 2×10^{-4} Pa で昇華精製した。

【実施例 5】

【0089】

例示化合物 32 の製造

実施例 4 の [4] において、7 - クロロ - 2 - (N、N - ジフェニル)アミノ - 9,9 - ジメチルフルオレン 3.56 g (0.009 mol) を使用する代わりに、7 - クロロ - 2 - [N - フェニル - N - (1' - ナフチル)]アミノ - 9,9 - ジメチルフルオレン 4 g (0.009 mol) を使用した以外は、実施例 4 の [4] に記載の操作に従い、例示化合物 32 の化合物を無色の結晶として 1.77 g 得た。さらにこの化合物を 380、 2×10^{-4} Pa で昇華精製した。

【実施例 6】

【0090】

例示化合物 33 の製造

実施例 4 の [4] において、7 - クロロ - 2 - (N、N - ジフェニル) アミノ - 9 , 9 - ジメチルフルオレン 3 . 5 6 g (0 . 0 0 9 m o l) を使用する代わりに、7 - クロロ - 2 - (N - カルバゾリル) - 9 , 9 - ジメチルフルオレン 3 . 5 4 g (0 . 0 0 9 m o l) を使用した以外は、実施例 4 の [4] に記載の操作に従い、例示化合物 3 3 の化合物を無色の結晶として 2 . 6 0 g 得た。さらにこの化合物を 3 5 0 、 2×10^{-4} Pa で昇華精製した。

【実施例 7】

【0091】

例示化合物 4 1 の製造

[1] : 7 - クロロ - 2 - ヨード - 9 - ヒドロキシ - 9 - フェニルフルオレンの製造

7 - クロロ - 2 - ヨード - 9 - フルオレノン 1 6 0 g (0 . 4 7 m o l) のテトラヒドロフラン (8 0 0 m l) 溶液にプロモフェニルマグネシウム 4 0 0 g (3 2 % テトラヒドロフラン溶液、0 . 7 1 m o l) を 0 で滴下した。8 時間 2 5 で攪拌後、1 0 % 塩酸水溶液 (3 0 0 m l) を添加した。有機層を分離、濃縮し残渣を酢酸エチル 1 L に溶解した。水洗後、硫酸マグネシウムにより乾燥し、濃縮することで粗結晶 1 9 0 g を得た。これをヘキサン 5 0 0 m l で洗浄することで 7 - クロロ - 2 - ヨード - 9 - ヒドロキシ - 9 - フェニルフルオレン 1 8 2 g を得た。

[2] : 7 - クロロ - 2 - ヨード - 9 , 9 - ジフェニルフルオレンの製造

7 - クロロ - 2 - ヨード - 9 - ヒドロキシ - 9 - フェニルフルオレン 6 0 g (0 . 1 3 m o l)、p - トルエンスルホン酸 1 0 g (0 . 0 6 m o l) のベンゼン (5 0 0 m l) 溶液を 7 0 で 8 時間攪拌した。冷却後、反応液を濃縮し、水 2 0 0 m l を添加した。析出した結晶をろ別し、粗結晶 5 3 g を得た。さらに、粗結晶をイソプロパノール 4 0 0 m l で再結晶し、4 3 . 1 g の 7 - クロロ - 2 - ヨード - 9 , 9 - ジフェニルフルオレンを得た。

【0092】

[3] : 7 - クロロ - 2 - N、N - ジフェニルアミノ - 9 , 9 - ジフェニルフルオレンの製造

実施例 4 の [2] において 7 - クロロ - 2 - ヨード - 9 , 9 - ジメチルフルオレン 2 5 g (0 . 0 7 m o l) を使用する代わりに、7 - クロロ - 2 - ヨード - 9 , 9 - ジフェニルフルオレン 3 3 g (0 . 0 7 m o l) を使用した以外は、実施例 4 の [2] に記載の操作に従い、7 - クロロ - 2 - N、N - ジフェニルアミノ - 9 , 9 - ジフェニルフルオレン 2 8 g を得た。

[4] 例示化合物 4 1 の製造

実施例 4 の [4] において、7 - クロロ - 2 - (N、N - ジフェニル) アミノ - 9 , 9 - ジメチルフルオレン 3 . 5 6 g (0 . 0 0 9 m o l) を使用する代わりに、7 - クロロ - 2 - (N、N - ジフェニル) アミノ - 9 , 9 - ジフェニルフルオレン 4 . 6 7 g (0 . 0 0 9 m o l) を使用した以外は、実施例 4 の [4] に記載の操作に従い、例示化合物 4 1 の化合物を無色の結晶として 4 . 0 1 g 得た。さらにこの化合物を 4 2 0 、 2×10^{-4} Pa で昇華精製した。

【実施例 8】

【0093】

例示化合物 6 1 の製造

実施例 4 の [4] において、7 - クロロ - 2 - (N、N - ジフェニル) アミノ - 9 , 9 - ジメチルフルオレン 3 . 5 6 g (0 . 0 0 9 m o l) を使用する代わりに、5 - tert ブチル - 7 - クロロ - 2 - (N、N - ジフェニル) アミノ - 9 , 9 - ジメチルフルオレン 4 . 0 6 g (0 . 0 0 9 m o l) を使用した以外は、実施例 4 の [4] に記載の操作に従い、例示化合物 6 1 の化合物を無色の結晶として 3 . 3 4 g 得た。さらにこの化合物を 4 0 0 、 2×10^{-4} Pa で昇華精製した。

【実施例 9】

【0094】

10

20

30

40

50

例示化合物 65 の製造

実施例 4 の [4] において、7 - クロロ - 2 - (N、N - ジフェニル) アミノ - 9 , 9 - ジメチルフルオレン 3 . 56 g (0 . 009 mol) を使用する代わりに、5 - tert - ブチル - 7 - クロロ - 2 - [N フェニル - N - (9' - フェナントリル)] アミノ - 9 , 9 - ジメチルフルオレン 5 . 00 g (0 . 009 mol) を使用した以外は、実施例 4 の [4] に記載の操作に従い、例示化合物 65 の化合物を無色の結晶として 2 . 86 g 得た。さらにこの化合物を 430 、 2×10^{-4} Pa で昇華精製した。

【実施例 10】

【0095】

例示化合物 91 の製造

実施例 4 の [4] において、9 - フェニル - 9 - (N フェニル - 4' - アミノフェニル) フルオレン 3 . 85 g (0 . 009 mol)、7 - クロロ - 2 - (N、N - ジフェニル) アミノ - 9 , 9 - ジメチルフルオレン 3 . 56 g (0 . 009 mol)、酢酸パラジウム 0 . 004 g (0 . 002 mol)、ナトリウム - tert - ブトキシド 1 . 27 g (0 . 014 mol) を使用する代わりに、9 - フェニル - 9 - (N フェニル - 4' - アミノフェニル) フルオレン 10 g (0 . 024 mol)、2 , 7 - ジョードフルオレン 5 . 17 g (0 . 012 mol)、酢酸パラジウム 0 . 26 g (0 . 002 mol)、ナトリウム - tert - ブトキシド 2 . 67 g (0 . 028 mol) を使用した以外は、実施例 4 の [4] に記載の操作に従い、例示化合物 91 の化合物を無色の結晶として 3 . 83 g 得た。さらにこの化合物を 320 、 2×10^{-4} Pa で昇華精製した。

【実施例 11】

【0096】

有機電界発光素子の作製

厚さ 200 nm の ITO 透明電極 (陽極) を有するガラス基板を、中性洗剤、セミコクリーン (フルウチ化学製)、超純水、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。この基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらに UV / オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定し、蒸着槽を 3×10^{-6} Torr に減圧した。先ず、ITO 透明電極上に、例示化合物 11 の化合物を蒸着速度 0 . 2 nm / sec で 75 nm の厚さに蒸着し、正孔注入輸送層を形成した。その上に、トリス (8 - キノリノラート) アルミニウムを、蒸着速度 0 . 2 nm / sec で 50 nm の厚さに蒸着し、電子注入輸送層を兼ねた発光層とした。さらに、その上に、陰極としてマグネシウムと銀を蒸着速度 0 . 2 nm / sec で 200 nm の厚さに共蒸着 (重量比 10 : 1) して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、50、乾燥雰囲気下、 $10 \text{ mA} / \text{cm}^2$ の定電流密度で連続駆動させた。初期には、6 . 5 V、輝度 $460 \text{ cd} / \text{m}^2$ の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は 650 時間であった。

【実施例 12】

【0097】

実施例 11 において、正孔注入輸送層の形成に際して、例示化合物 11 の化合物を使用する代わりに、例示化合物 12 の化合物を使用した以外は、実施例 11 に記載の操作に従い、有機電界発光素子を作成した。さらに実施例 11 と同様に該素子に直流電圧を印加し、該素子の特性を測定し、結果を第 1 表 (表 1) に示した。

【実施例 13】

【0098】

実施例 11 において、正孔注入輸送層の形成に際して、例示化合物 11 の化合物を使用する代わりに、例示化合物 31 の化合物を使用した以外は、実施例 11 に記載の操作に従い、有機電界発光素子を作成した。さらに、実施例 11 と同様に該素子に直流電圧を印加し、該素子の特性を測定し、結果を第 1 表 (表 1) に示した。

【実施例 14】

【0099】

10

20

30

40

50

実施例 11 において、正孔注入輸送層の形成に際して、例示化合物 11 の化合物を使用する代わりに、例示化合物 32 の化合物を使用した以外は、実施例 11 に記載の操作に従い、有機電界発光素子を作成した。さらに、実施例 11 と同様に該素子に直流電圧を印加し、該素子の特性を測定し、結果を第 1 表 (表 1) に示した。

【実施例 15】

【0100】

実施例 11 において、正孔注入輸送層の形成に際して、例示化合物 11 の化合物を使用する代わりに、例示化合物 33 の化合物を使用した以外は、実施例 11 に記載の操作に従い、有機電界発光素子を作成した。さらに、実施例 11 と同様に該素子に直流電圧を印加し、該素子の特性を測定し、結果を第 1 表 (表 1) に示した。

10

【実施例 16】

【0101】

実施例 11 において、正孔注入輸送層の形成に際して、例示化合物 11 の化合物を使用する代わりに、例示化合物 41 の化合物を使用した以外は、実施例 11 に記載の操作に従い、有機電界発光素子を作成した。さらに、実施例 11 と同様に該素子に直流電圧を印加し、該素子の特性を測定し、結果を第 1 表 (表 1) に示した。

【実施例 17】

【0102】

実施例 11 において、正孔注入輸送層の形成に際して、例示化合物 11 の化合物を使用する代わりに、例示化合物 61 の化合物を使用した以外は、実施例 11 に記載の操作に従い、有機電界発光素子を作成した。さらに、実施例 11 と同様に該素子に直流電圧を印加し、該素子の特性を測定し、結果を第 1 表 (表 1) に示した。

20

【実施例 18】

【0103】

実施例 11 において正孔注入輸送層の形成に際して、例示化合物 11 の化合物を使用する代わりに、例示化合物 65 の化合物を使用した以外は、実施例 11 に記載の操作に従い、有機電界発光素子を作成した。さらに、実施例 11 と同様に該素子に直流電圧を印加し、該素子の特性を測定し、結果を第 1 表 (表 1) に示した。

【実施例 19】

【0104】

実施例 11 において、正孔注入輸送層の形成に際して、例示化合物 11 の化合物を使用する代わりに、例示化合物 91 の化合物を使用した以外は、実施例 11 に記載の操作に従い、有機電界発光素子を作成した。さらに、実施例 11 と同様に該素子に直流電圧を印加し、該素子の特性を測定し、結果を第 1 表 (表 1) に示した。

30

【0105】

比較例 1 :

実施例 11 において、正孔注入輸送層の形成に際して、例示化合物 11 の化合物を使用する代わりに、4,4'-ビス〔N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ〕ビフェニルを使用した以外は実施例 11 に記載の操作に従い、有機電界発光素子を作製した。各素子からは緑色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を (第 1 表) に示した。

40

比較例 2 :

実施例 11 において、正孔注入輸送層の形成に際して、例示化合物 11 の化合物を使用する代わりに、9,9-ジメチル-2,7-ビス(N,N-ジフェニルアミノ)フルオレンを使用した以外は実施例 11 に記載の操作に従い、有機電界発光素子を作製した。各素子からは緑色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を (第 1 表) に示した。

【0106】

【表 1】

有機電界 発光素子	第1表	
	初期特性(50°C) 輝度 (cd/cm ²)	半減期(50°C) 電圧 (V) (hr)
実施例12	510	6.1
実施例13	490	5.8
実施例14	530	6.2
実施例15	520	6.0
実施例16	540	6.1
実施例17	480	5.8
実施例18	500	5.9
実施例19	530	6.0
比較例1	300	6.6
比較例2	450	6.5

10

【実施例 20】

【0107】

有機電界発光素子の作製

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、セミコクリン(フルウチ化学製)、超純水、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。この基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定し、蒸着槽を 3×10^{-6} Torrに減圧した。

20

先ず、ITO透明電極上に、ポリ(チオフェン-2,5-ジイル)を蒸着速度0.1nm/secで、20nmの厚さに蒸着し、第1正孔注入輸送層を形成した。次いで例示化合物33の化合物を蒸着速度0.2nm/secで55nmの厚さに蒸着し、第2正孔注入輸送層を形成した。次に、正孔注入輸送層の上にトリス(8-キノリノラート)アルミニウムを蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層を兼ね備えた発光層を形成した。さらに、その上に、陰極としてマグネシウムと銀を蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、10mA/cm²の定電流密度で連続駆動させた。初期には、6.0V、輝度510cd/m²の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は1950時間であった。

30

【実施例 21】

【0108】

有機電界発光素子の作製

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、セミコクリン(フルウチ化学製)、超純水、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。この基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定し、蒸着槽を 3×10^{-6} Torrに減圧した。先ず、ITO透明電極上に、4,4',4"-トリス[N-(3"-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミンを蒸着速度0.1nm/secで、50nmの厚さに蒸着し、第1正孔注入輸送層を形成した。次いで、次いで例示化合物33の化合物とルブレンを異なる蒸着源から20nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)し、第2正孔注入輸送層を兼ねた発光層を形成した。次いで、その上にトリス(8-キノリノラート)アルミニウムを蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層を形成した。さらに、その上に、陰極としてマグネシウムと銀を蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、10mA/cm²の定電流密度で連続駆動させた。初期には、5.9V、輝度500cd/m²の黄色の発光が確認された。輝度の半減期

40

50

は 1 9 0 0 時間であった。

【実施例 2 2】

【0 1 0 9】

有機電界発光素子の作製

厚さ 2 0 0 n m の I T O 透明電極（陽極）を有するガラス基板を、中性洗剤、セミコクリン（フルウチ化学製）、超純水、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。この基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらに UV / オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定し、蒸着槽を 3×10^{-6} Torr に減圧した。先ず、I T O 透明電極上に、ポリ（チオフェン - 2 , 5 - ジイル）を蒸着速度 0 . 1 n m / s e c で、2 0 n m の厚さに蒸着し、第 1 正孔注入輸送層を形成した。蒸着槽を大気圧下に戻した後、再び蒸着槽を 3×10^{-6} Torr に減圧した。次いで、例示化合物 9 1 の化合物とルブレンを、異なる蒸着源から、蒸着速度 0 . 2 n m / s e c で 5 5 n m の厚さに共蒸着（重量比 1 0 : 1 ）し、第 2 正孔注入輸送層を兼ね備えた発光層を形成した。減圧状態を保ったまま、次に、その上にトリス（8 - キノリノラート）アルミニウムを蒸着速度 0 . 2 n m / s e c で 5 0 n m の厚さに蒸着し、電子注入輸送層を形成した。減圧状態を保ったまま、さらに、その上に、陰極としてマグネシウムと銀を蒸着速度 0 . 2 n m / s e c で 2 0 0 n m の厚さに共蒸着（重量比 1 0 : 1 ）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、 $10 \text{ mA} / \text{cm}^2$ の定電流密度で連続駆動させた。初期には、6 . 3 V 、輝度 $510 \text{ cd} / \text{m}^2$ の黄色の発光が確認された。輝度の半減期は 1 7 0 0 時間であった。

10

20

【実施例 2 3】

【0 1 1 0】

有機電界発光素子の作製

厚さ 2 0 0 n m の I T O 透明電極（陽極）を有するガラス基板を、中性洗剤、セミコクリン（フルウチ化学製）、超純水、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。この基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらに UV / オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定し、蒸着槽を 3×10^{-6} Torr に減圧した。先ず、I T O 透明電極上に、例示化合物 3 1 を蒸着速度 0 . 1 n m / s e c で、2 0 n m の厚さに蒸着し、第 1 正孔注入輸送層を形成した。蒸着槽を大気圧下に戻した後、再び蒸着槽を 3×10^{-6} Torr に減圧した。次いで、例示化合物 9 1 の化合物とルブレンを、異なる蒸着源から、蒸着速度 0 . 2 n m / s e c で 5 5 n m の厚さに共蒸着（重量比 1 0 : 1 ）し、第 2 正孔注入輸送層を兼ね備えた発光層を形成した。減圧状態を保ったまま、次に、その上にトリス（8 - キノリノラート）アルミニウムを蒸着速度 0 . 2 n m / s e c で 5 0 n m の厚さに蒸着し、電子注入輸送層を形成した。減圧状態を保ったまま、さらに、その上に、陰極としてマグネシウムと銀を蒸着速度 0 . 2 n m / s e c で 2 0 0 n m の厚さに共蒸着（重量比 1 0 : 1 ）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、 $10 \text{ mA} / \text{cm}^2$ の定電流密度で連続駆動させた。初期には、5 . 9 V 、輝度 $540 \text{ cd} / \text{m}^2$ の黄色の発光が確認された。輝度の半減期は 1 7 0 0 時間であった。

30

【実施例 2 4】

【0 1 1 1】

有機電界発光素子の作製

厚さ 2 0 0 n m の I T O 透明電極（陽極）を有するガラス基板を、中性洗剤、セミコクリン（フルウチ化学製）、超純水、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。この基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらに UV / オゾン洗浄した。次に、I T O 透明電極上に、ポリカーボネート（重量平均分子量 3 9 0 0 0 ）と例示化合物 9 1 の化合物を重量比 1 0 0 : 5 0 の割合で含有する 3 質量 % ジクロロエタン溶液を用いてスピンコート法により、4 0 n m の正孔注入輸送層を形成した。次にこの正孔注入輸送層を有するガラス基板を、蒸着装置の基板ホルダーに固定し、蒸着層を 3×10^{-6} Torr に減圧した。次に、その上にトリス（8 - キノリノラート）アルミニウムを蒸着速度 0 . 2 n m / s e c で 5 0

40

50

n mの厚さに蒸着し、電子注入輸送層を兼ね備えた発光層を形成した。さらに、その上に、陰極としてマグネシウムと銀を蒸着速度 0.2 nm/sec で 200 nm の厚さに共蒸着（重量比 $10:1$ ）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に乾燥雰囲気下、 10 V の直流電圧を印加したところ、 98 mA/cm^2 の電流が流れた。輝度 860 cd/m^2 の緑色の発光が確認された。輝度の半減時間 380 時間であった。

【実施例 25】

【0112】

有機電界発光素子の作製

厚さ 200 nm のITO透明電極（陽極）を有するガラス基板を、中性洗剤、セミコクリン（フルウチ化学製）、超純水、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。この基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した。次に、ITO透明電極上に、ポリメチルメタクリレート（重量平均分子量 25000 ）、例示化合物 91 の化合物の混合物、トリス（8-キノリノラート）アルミニウムをそれぞれ重量比 $100:50:0.5$ の割合で含有する3質量%ジクロロエタン溶液を用いてスピンコート法により、 100 nm の発光層を形成した。次にこの発光層を有するガラス基板を、蒸着装置の基板ホルダーに固定し、蒸着層を $3 \times 10^{-6} \text{ Torr}$ に減圧した。発光層の上に、陰極としてマグネシウムと銀を蒸着速度 0.2 nm/sec で 200 nm の厚さに共蒸着（重量比 $10:1$ ）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に乾燥雰囲気下、 15 V の直流電圧を印加したところ、 89 mA/cm^2 の電流が流れた。輝度 610 cd/m^2 の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は 490 時間であった。

【産業上の利用可能性】

【0113】

本発明により、新規な9,9-ジフェニルフルオレン化合物および発光寿命が長く、耐久性に優れた有機電界発光素子を提供することが可能になる。

【図面の簡単な説明】

【0114】

【図1】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。

【図2】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。

【図3】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。

【図4】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。

【図5】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。

【図6】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。

【図7】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。

【図8】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。

【符号の説明】

【0115】

1：基板

2：陽極

3：正孔注入輸送層

3a：正孔注入輸送成分

4：発光層

4a：発光成分

5：電子注入輸送層

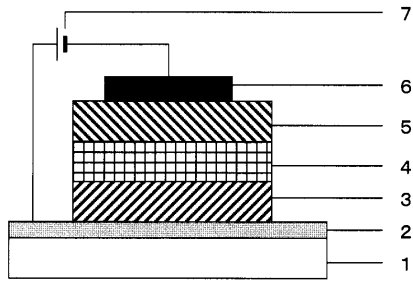
5'：電子注入輸送層

5a：電子注入輸送成分

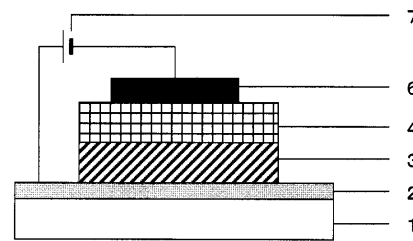
6：陰極

7：電源

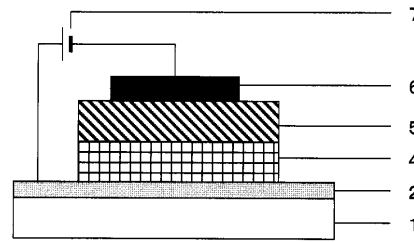
【図 1】



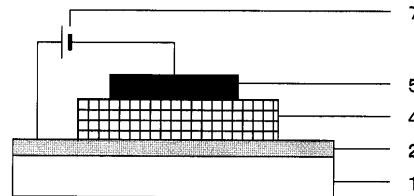
【図 2】



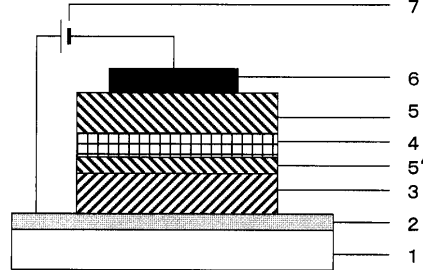
【図 3】



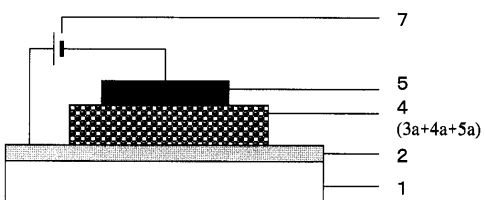
【図 4】



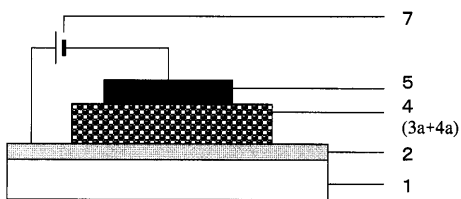
【図 5】



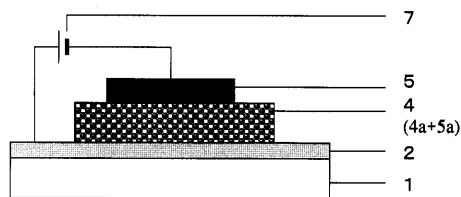
【図 6】



【図 7】



【図 8】



フロントページの続き

(51) Int.Cl. ⁷	F I	テーマコード (参考)
H 0 5 B 33/14	H 0 5 B 33/14	B
H 0 5 B 33/22	H 0 5 B 33/22	D

F ターム(参考) 3K007 AB02 AB11 DB03 FA01
4H006 AA01 AA03 AB92 BJ30 BJ50 BU46 BU48

【要約の続き】

ルキル基等を表し、Z₁ ~ Z₆ はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、アミノ基、アリール基、あるいはアラルキル基等を表し、Z₇ は水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、あるいはアラルキル基を表す。また、Z₁ ~ Z₆ は互いに結合して環を形成していてもよい。]

【選択図】なし

专利名称(译)	9,9-二苯基芴化合物和含有9,9-二苯基芴化合物的有机电致发光器件		
公开(公告)号	JP2005120030A	公开(公告)日	2005-05-12
申请号	JP2003357362	申请日	2003-10-17
[标]申请(专利权)人(译)	三井化学株式会社		
申请(专利权)人(译)	三井化学株式会社		
[标]发明人	塚田英孝 戸谷由之 島村武彦 田辺良満		
发明人	塚田 英孝 戸谷 由之 島村 武彦 田辺 良満		
IPC分类号	H01L51/50 C07C211/54 C07C211/61 C07C217/80 C07C217/84 C09K11/06 H05B33/14 H05B33/22		
FI分类号	C07C211/54 C07C211/61 C07C217/80 C07C217/84 C09K11/06.620 H05B33/14.B H05B33/22.D C07D209/86		
F-TERM分类号	3K007/AB02 3K007/AB11 3K007/DB03 3K007/FA01 4H006/AA01 4H006/AA03 4H006/AB92 4H006/BJ30 4H006/BJ50 4H006/BU46 4H006/BU48 3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC02 3K107/CC21 3K107/DD58 3K107/DD59 3K107/DD71 3K107/DD72 3K107/DD78 4C204/BB05 4C204/BB09 4C204/CB25 4C204/EB01 4C204/FB16 4C204/GB01 4C204/GB03		
其他公开文献	JP3983215B2		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

要解决的问题：提供新的9,9-二苯基芴化合物和有机电致发光器件，具有长的发射寿命和优异的耐久性。溶解度：9,9-二苯基芴化合物由式（1）表示（其中R₁至R₃各自为氢，烷基，芳基，芳烷基等；Z_{SB1}至Z_{SB6}各自为氢，卤素，烷基，烷氧基，氨基，芳基，芳烷基等；Z_{SB}为氢卤素，烷基，烷氧基，芳基或芳烷基；并且Z_{SB1}至Z_{SB6}可以彼此键合形成环）。Z

