

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2007-42974

(P2007-42974A)

(43) 公開日 平成19年2月15日(2007.2.15)

(51) Int. Cl.	F I	テーマコード (参考)
H01L 51/50 (2006.01)	H05B 33/22 D	3K007
C09K 11/06 (2006.01)	H05B 33/14 A	4H006
C07C 211/61 (2006.01)	C09K 11/06 690	
	C07C 211/61	

審査請求 未請求 請求項の数 4 O L (全 41 頁)

(21) 出願番号	特願2005-227563 (P2005-227563)	(71) 出願人	000222118 東洋インキ製造株式会社 東京都中央区京橋2丁目3番13号
(22) 出願日	平成17年8月5日(2005.8.5)	(72) 発明者	須田 康政 東京都中央区京橋二丁目3番13号 東洋 インキ製造株式会社内
		(72) 発明者	鳥羽 泰正 東京都中央区京橋二丁目3番13号 東洋 インキ製造株式会社内
		(72) 発明者	尾立 嘉岳 東京都中央区京橋二丁目3番13号 東洋 インキ製造株式会社内
		(72) 発明者	田中 洋明 東京都中央区京橋二丁目3番13号 東洋 インキ製造株式会社内
			最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子用材料および有機エレクトロルミネッセンス素子

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 正孔注入及び輸送能力に優れ、且つ耐久性の高い正孔注入材料を提供し、更に該正孔注入材料の繰り返し使用時での安定性の優れた有機EL素子を提供する。

【解決手段】 特定構造のピアントリルテトラミン化合物と該化合物を含まれる一層を含む有機EL素子。

【選択図】 なし

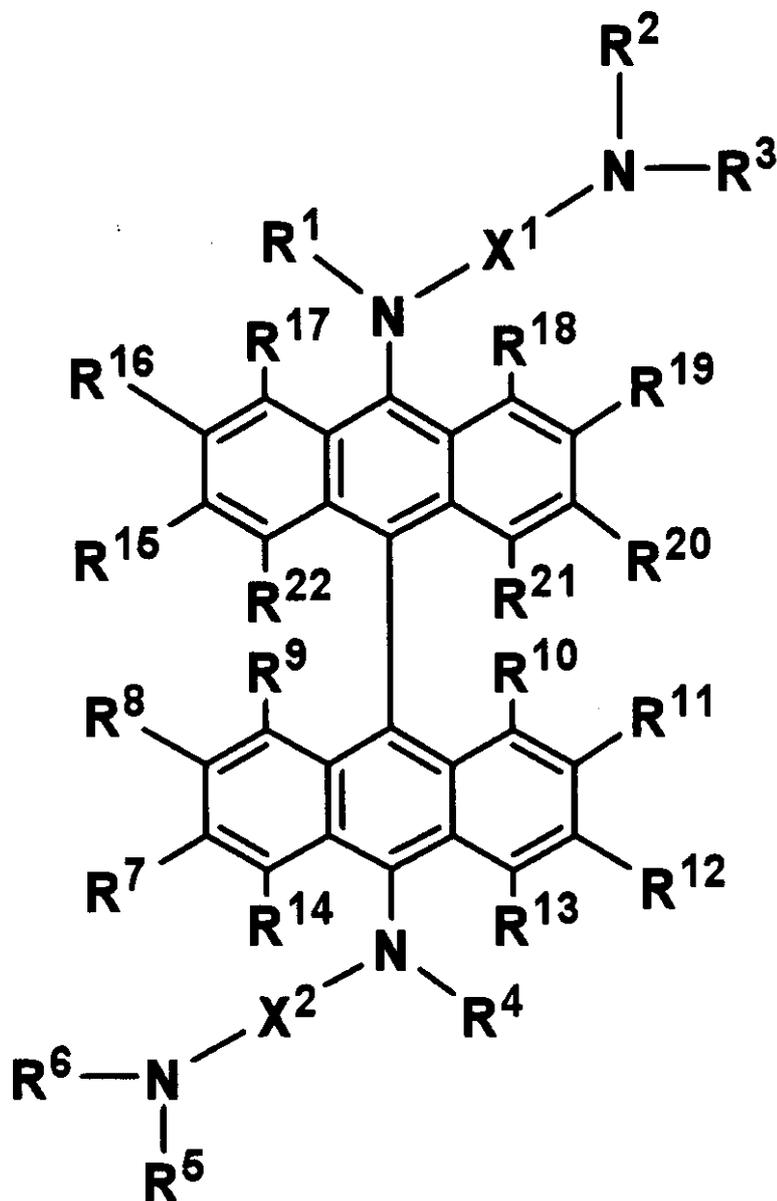
【特許請求の範囲】

【請求項 1】

下記一般式 [1] で表される有機エレクトロルミネッセンス素子用材料。

一般式 [1]

【化 1】



10

20

30

[式中、 R^1 乃至 R^6 は、それぞれ独立に、無置換もしくは置換基を有する、アルキル基、アリール基もしくは複素環基を表す。 R^7 乃至 R^{22} は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、無置換もしくは置換基を有する、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、アリールチオ基を表す。 X^1 及び X^2 は、それぞれ独立に、二価のアリール基もしくは複素環基を表す。また、 R^2 及び R^3 、 R^5 及び R^6 、 R^7 乃至 R^{22} は、近接した置換基同士で結合して新たな環を形成してもよい。]

40

【請求項 2】

陽極と陰極とからなる一対の電極間に一層または発光層を含む複数層の有機化合物薄膜を形成した有機エレクトロルミネッセンス素子において、少なくとも一層が請求項 1 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 3】

50

発光層と陽極との間に少なくとも一層の正孔注入層を形成してなる請求項 2 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、少なくとも一層が請求項 1 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 4】

発光層と陽極との間に正孔注入層及び正孔輸送層を形成してなる請求項 2 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、少なくとも一層が請求項 1 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

10

【技術分野】

【0001】

本発明はピアントリル構造を有する有機エレクトロルミネッセンス素子用材料に関するものである。本発明の材料は平面光源や表示に使用される有機エレクトロルミネッセンス (EL) 素子として利用可能である。

【背景技術】

【0002】

近年、フラット・パネル・ディスプレイの一つとしてエレクトロルミネッセンス・ディスプレイ (ELディスプレイ) の開発が行われている。特に、有機系の材料は発光波長の多様性を有しているという特徴がある。この理由から、有機物質を利用した EL 素子は固体発光型の安価な大面積フル・カラー表示素子としての用途が有望視され、多くの開発が行われている。

20

有機物質を使用した EL 素子は、固体発光型の安価な大面積フル・カラー表示素子としての用途が有望視され、近年、活発に研究開発が行われている。

一般に有機 EL 素子は、発光層及び該層を挟んだ一对の対向電極から構成されている。

この素子における発光は次の様な機構に基づくものである。すなわち、両電極間に電界が印加されると、陰極側から電子、陽極側から正孔が注入される。これらが発光層において再結合し、エネルギー準位が伝導帯から価電子帯に戻る際にエネルギーが光として放出され、発光現象として観測される。

【0003】

30

従来の有機 EL 素子は、無機 EL 素子に比べて駆動電圧が高く、発光輝度、発光効率等の特性の何れもが低いものであった。また、これらの特性の劣化も著しいことから実用化には至っていなかった。

近年、10V 以下の低電圧で発光し、且つ高い蛍光量子効率を有する有機化合物を含有する薄膜を積層した型の有機 EL 素子が報告され、関心を集めている。

この研究は、イーストマン・コダック社の C. W. Tang 氏らにより Appl. Phys. Lett., 第 51 巻, 913 頁 (1987 年発行) に報告された有機薄膜を積層した EL 素子に端を発している。この報告では、金属キレート錯体を蛍光体層、アミン系化合物を正孔注入層に使用して高輝度の緑色発光を得ている。6~7V の直流電圧で輝度は 1000 cd/m²、最大発光効率は 1.5 lm/W を達成し、実用領域に近い性能を示している。現在、様々な企業及び研究機関で開発が進められている有機 EL 素子は、基本的にこのイーストマン・コダック社の構成を踏襲しているといえる。

40

有機 EL 素子を構成する主要な材料としては、正孔注入材料、正孔輸送材料、発光材料、電子輸送材料、電子注入材料が挙げられる。これらの材料の中で、正孔注入及び正孔輸送材料については、アミン系化合物を中心とする多くの化合物が提案されている。

例えば、特許第 3008897 号ではピアントリル誘導体、特許第 3565870 号では芳香族トリアミン誘導体、特許第 3549555 号ではピレニル基を有するトリアミン誘導体、特開平 7-126226 号ではベンジジン系のテトラアミン誘導体、特開平 8-3122 号では芳香族ヘキサアミン誘導体、特許第 3329227 号ではピフェニル基を有するトリアミン誘導体、特開平 10-92581 号では芳香族テトラアミン誘導体、特開平 10-102052 号ではピフェニル骨格及びナフチル骨

50

格を有するトリアミン誘導体、特開平10-168446号では芳香族テトラアミン誘導体、特開平11-54280号ではビナフチル骨格を有するジアミン誘導体、特開平11-124358号ではフェニルナフチル骨格を有するジアミン誘導体、特開平11-236360号ではピフェニル骨格を有するジアミン誘導体、特開平11-338172号ではナフタレン環を3個以上有するジアミン誘導体、特開2000-150168号では2-ナフチル基を有するテトラアミン、特開2000-309566号ではジアミンが種々の連結基で結合したテトラアミン、特開2002-343577号ではトリアミンが種々の連結基で結合したヘキサアミン、特開2002-356462号ではベンジジン誘導体、特開2003-31372号ではトリアミン、特開2003-81924号ではトリアミン、テトラアミン、ペンタアミン及びヘキサアミン、特開2004-91334号ではアントラセン環を有するテトラアミン誘導体、特開2004-107292号ではビナフタレン環を有するジアミン誘導体、特開2004-155705号では芳香族テトラアミン誘導体、特開2004-315495号ではフルオレン骨格を有するジアミン誘導体が開示されている。

しかしながら、現在までの有機EL素子は構成の改善により発光強度は改良されているが、所定の発光強度を得る為に必要な駆動電圧が高く、繰り返し使用時の安定性にも欠けるという重大な問題点を有している。従って、これらの問題点を解決する為に、優れた正孔注入輸送能力をもち、耐久性の高い正孔注入材料の開発が望まれている。

【特許文献1】特許第3008897号公報

【特許文献2】特許第3565870号公報

【特許文献3】特許第3549555号公報

【特許文献4】特開平7-126226号公報

【特許文献5】特開平8-3122号公報

【特許文献6】特許第3329227号公報

【特許文献7】特開平10-92581号公報

【特許文献8】特開平10-102052号公報

【特許文献9】特開平10-168446号公報

【特許文献10】特開平11-54280号公報

【特許文献11】特開平11-124358号公報

【特許文献12】特開平11-236360号公報

【特許文献13】特開平11-338172号公報

【特許文献14】特開2000-150168号公報

【特許文献15】特開2000-309566号公報

【特許文献16】特開2002-343577号公報

【特許文献17】特開2002-356462号公報

【特許文献18】特開2003-31372号公報

【特許文献19】特開2003-81924号公報

【特許文献20】特開2004-91334号公報

【特許文献21】特開2004-107292号公報

【特許文献22】特開2004-155705号公報

【特許文献23】特開2004-315495号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

本発明の目的は、正孔注入及び輸送能力に優れ、且つ耐久性の高い正孔注入材料の提供にあり、更に該正孔注入材料の繰り返し使用時での安定性の優れた有機EL素子の提供にある。本発明者らが鋭意検討した結果、一般式[1]で表される化合物が上記の特性を有していることを見出し本発明に至った。

【課題を解決するための手段】

【0005】

すなわち、本発明は、下記一般式[1]で表される有機エレクトロルミネッセンス素子用材料に関する。

10

20

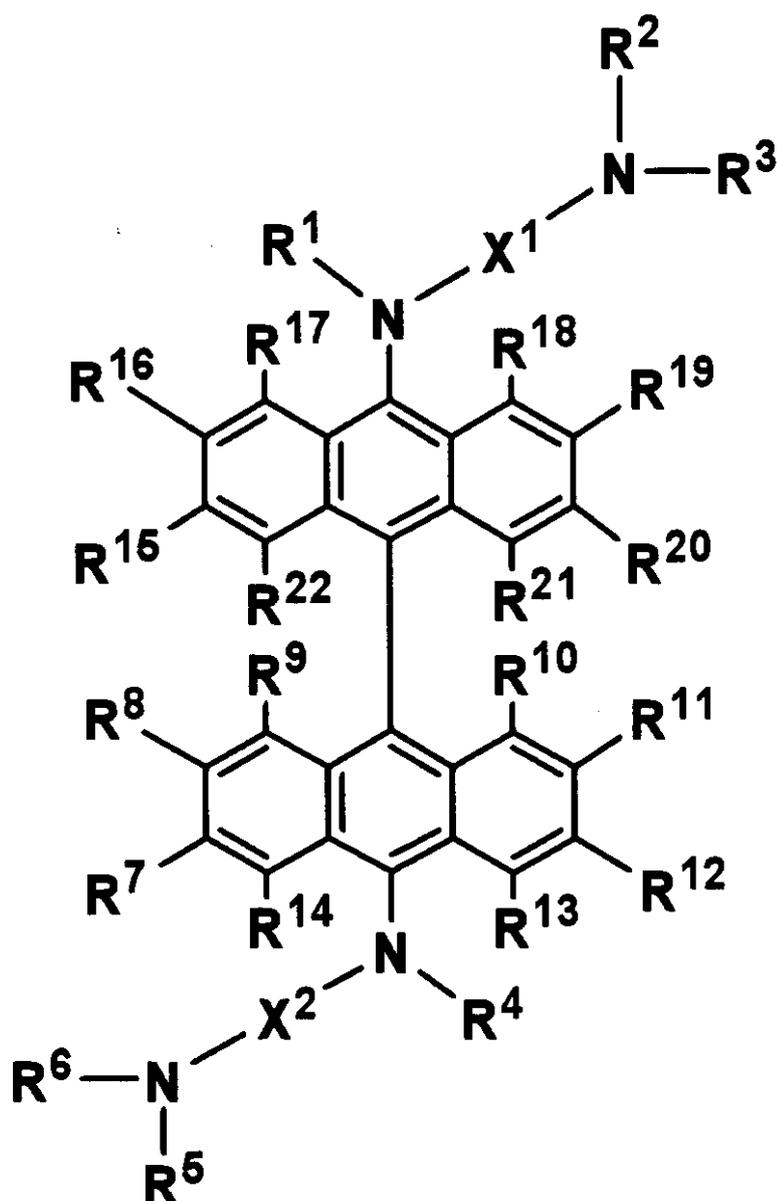
30

40

50

一般式 [1]

【化 1】



10

20

30

[式中、 R^1 乃至 R^6 は、それぞれ独立に、無置換もしくは置換基を有する、アルキル基、アリール基もしくは複素環基を表す。 R^7 乃至 R^{22} は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、無置換もしくは置換基を有する、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、アリールチオ基を表す。 X^1 及び X^2 は、それぞれ独立に、二価のアリール基もしくは複素環基を表す。また、 R^2 及び R^3 、 R^5 及び R^6 、 R^7 乃至 R^{22} は、近接した置換基同士で結合して新たな環を形成してもよい。]

40

【0006】

また、本発明は、陽極と陰極とからなる一对の電極間に一層または発光層を含む複数層の有機化合物薄膜を形成した有機エレクトロルミネッセンス素子において、少なくとも一層が上記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

【0007】

また、本発明は、発光層と陽極との間に少なくとも一層の正孔注入層を形成してなる上記有機エレクトロルミネッセンス素子において、少なくとも一層が上記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

50

【0008】

また、本発明は、発光層と陽極との間に正孔注入層及び正孔輸送層を形成してなる上記有機エレクトロルミネッセンス素子において、少なくとも一層が上記有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

【発明の効果】

【0009】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子用材料は、化学構造的には共役系を構成している隣接炭素原子がそれぞれアミノ基で置換されているという特徴を有している。本発明の材料における、この化学構造的な特徴は正孔輸送を円滑にし、その結果、本発明の材料を含有する層内における正孔輸送効率を向上させることになる。本発明の材料を含有する層における正孔輸送効率の向上により、素子を駆動するのに必要とされる電圧が低減化されるとともに素子材料に対して高い耐久性がもたらされる。上記の特徴を有する本発明の材料を用いて作成した有機EL素子は、フラット・パネル・ディスプレイや平面発光体として好適に使用することができ、複写機やプリンター等の光源、液晶ディスプレイや計器類等の光源、表示板、標識灯等への応用も可能である。

10

【発明を実施するための最良の形態】

【0010】

本発明の一般式〔1〕で表される化合物において、 R^1 乃至 R^6 は無置換もしくは置換基を有するアルキル基、アリール基あるいは複素環基を表す。 R^7 乃至 R^{22} は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、無置換もしくは置換基を有する、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、アリールチオ基を表す。 X^1 及び X^2 は、それぞれ独立に、二価のアリール基もしくは複素環基を表す。また、 R^2 及び R^3 、 R^5 及び R^6 、 R^7 乃至 R^{22} は、近接した置換基同士で結合して新たな環を形成してもよい。

20

【0011】

本発明でいうアルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、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、ヘキシル基、イソヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ウンデシル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデシル基、ペンタデシル基、ヘキサデシル基、ヘプタデシル基、オクタデシル基、ノナデシル基等がある。

30

アリール基としては、フェニル基、ビフェニリル基、ターフェニリル基、クォーターフェニリル基、ペンタレニル基、インデニル基、ナフチル基、ピナフタレニル基、ターナフタレニル基、クォーターナフタレニル基、アズレニル基、ヘプタレニル基、ビフェニレニル基、インダセニル基、フルオランテニル基、アセナフチレニル基、アセアントリレニル基、フェナレニル基、フルオレニル基、アントリル基、ピアントラセニル基、ターアントラセニル基、クォーターアントラセニル基、アントラキノリル基、フェナントリル基、トリフェニレニル基、ピレニル基、クリセニル基、ナフタセニル基、プレイアデニル基、ピセニル基、ペリレニル基、ペンタフェニル基、ペンタセニル基、テトラフェニレニル基、ヘキサフェニル基、ヘキサセニル基、ルピセニル基、コロネニル基、トリナフチレニル基、ヘプタフェニル基、ヘプタセニル基、ピラントレニル基、オバレニル基等がある。

40

【0012】

複素環基としては、チエニル基、ベンゾ〔b〕チエニル基、ナフト〔2,3-b〕チエニル基、チアントレニル基、フリル基、ピラニル基、イソベンゾフラニル基、クロメニル基、キサンテニル基、フェノキサチイニル基、2H-ピロリル基、ピロリル基、イミダゾリル基、ピラゾリル基、ピリジル基、ピラジニル基、ピリミジニル基、ピリダジニル基、インドリジニル基、イソインドリル基、3H-インドリル基、インドリル基、1H-インダゾリル基、プリニル基、4H-キノリジニル基、イソキノリル基、キノリル基、フタラジニル基、ナフチリジニル基、キノキサニル基、キナゾリニル基、シンノリニル基、プテリジニル基、4aH-カルバゾリル基、カルバゾリル基、 β -カルボリニル基、フェナントリジニル基

50

、アクリジニル基、ペリミジニル基、フェナントロリニル基、フェナジニル基、フェナルサジニル基、イソチアゾリル基、フェノチアジニル基、イソキサゾリル基、フラザニル基、フェノキサジニル基、イソクロマニル基、クロマニル基、ピロリジニル基、ピロリニル基、イミダゾリジニル基、イミダゾリニル基、ピラゾリジニル基、ピラゾリニル基、ピペリジル基、ピペラジニル基、インドリニル基、イソインドリニル基、キヌクリジニル基、モルホリニル基、モルホリノ基等がある。

【0013】

アルコキシル基としては、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、イソプロポキシ基、イソブトキシ基、sec-ブトキシ基、tert-ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、イソペンチルオキシ基、ヘプチルオキシ基等がある。

10

【0014】

アリールオキシ基としては、フェニルオキシ基、ピフェニルオキシ基、ターフェニルオキシ基、クォーターフェニルオキシ基、ペントレニルオキシ基、インデニルオキシ基、ナフチルオキシ基、ピナフタレニルオキシ基、ターナフタレニルオキシ基、クォーターナフタレニルオキシ基、アズレニルオキシ基、ヘプタレニルオキシ基、ピフェニレニルオキシ基、インダセニルオキシ基、フルオランテニルオキシ基、アセナフチレニルオキシ基、アセアントリレニルオキシ基、フェナレニルオキシ基、フルオレニルオキシ基、アントリルオキシ基、ピアントラセニルオキシ基、ターアントラセニルオキシ基、クォーターアントラセニルオキシ基、アントラキノリルオキシ基、フェナントリルオキシ基、トリフェニレニルオキシ基、ピレニルオキシ基、クリセニルオキシ基、ナフタセニルオキシ基、

20

【0015】

アルキルチオ基としては、メチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、ブチルチオ基、イソプロピルチオ基、イソブチルチオ基、sec-ブチルチオ基、tert-ブチルチオ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基、イソペンチルチオ基、ヘプチルチオ基等がある。

アリールチオ基としては、フェニルチオ基、ピフェニルチオ基、ターフェニルチオ基、クォーターフェニルチオ基、o-、m-及びp-トリルチオ基、キシリルチオ基、o-、m-及びp-クメニルチオ基、メシチルチオ基、ペントレニルチオ基、インデニルチオ基、ナフチルチオ基、ピナフタレニルチオ基、ターナフタレニルチオ基、クォーターナフタレニルチオ基、アズレニルチオ基、ヘプタレニルチオ基、ピフェニレニルチオ基、インダセニルチオ基、フルオランテニルチオ基、アセナフチレニルチオ基、アセアントリレニルチオ基、フェナレニルチオ基、フルオレニルチオ基、アントリルチオ基、ピアントラセニルチオ基、ターアントラセニルチオ基、クォーターアントラセニルチオ基、アントラキノリルチオ基、フェナントリルチオ基、トリフェニレニルチオ基、ピレニルチオ基、クリセニルチオ基、ナフタセニルチオ基、プレイアデニルチオ基、ピセニルチオ基、ペリレニルチオ基、ペントフェニルチオ基、ペントセニルチオ基、テトラフェニレニルチオ基、ヘキサフェニルチオ基、ヘキサセニルチオ基、ルピセニルチオ基、コロネニルチオ基、トリナフチレニルチオ基、ヘプタフェニルチオ基、ヘプタセニルチオ基、ピラントレニルチオ基、オバレニルチオ基等がある。

30

40

ハロゲン原子としては、弗素原子、塩素原子、臭素原子及び沃素原子等がある。

【0016】

複素環基、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、アリールチオ基は、さらに置換基で置換されていてもよい。この場合の置換基としては、ハロゲン原子、シアノ基、複素環基、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、アリールチオ基が挙げられ、これらの置換基の例としては、既に示したものと同様である。置換基の具体例を次に示す。

50

【 0 0 1 7 】

置換基を有するアルキル基としては、フルオロメチル基、クロロメチル基、プロモメチル基、ベンジル基、4 - ビフェニルメチル基、4 - (p - ターフェニル) メチル基、1 - ナフチルメチル基、2 - ナフチルメチル基、9 - フェナントリルメチル基、9 - アントリルメチル基、2 - フェネチル基、2 - (4 - ビフェニル) エチル基、2 - { 4 - (p - ターフェニル) } エチル基、2 - (1 - ナフチル) エチル基、2 - (2 - ナフチル) エチル基、2 - (9 - フェナントリル) エチル基、2 - (9 - アントリル) エチル基、3 - フェニルプロピル基、3 - (4 - ビフェニル) プロピル基、3 - { 4 - (p - ターフェニル) } プロピル基、3 - (1 - ナフチル) プロピル基、3 - (2 - ナフチル) プロピル基、3 - (9 - フェナントリル) プロピル基、3 - (9 - アントリル) プロピル基、2 - チエニルメチル基、2 - ベンゾ [b] チエニルメチル基、2 - ナフト [2 , 3 - b] チエニルメチル基、2 - フリルメチル基、(2 H - ピラン - 3 - イル) メチル基、1 - イソベンゾフラニルメチル基、1 - メチル - 2 - ピロリルメチル基、1 - メチル - 2 - イミダゾリルメチル基、2 - ピラジニルメチル基、2 - ピリジニルメチル基、2 - ピリミジニルメチル基、3 - ピリダジニルメチル基、1 - インドリルメチル、3 - イソキノリルメチル、2 - キノリルメチル、1 - フタラジニルメチル、2 - ナフチリジニルメチル、2 - キノキサリニルメチル、2 - キナゾリニルメチル、3 - シンノリニルメチル、2 - プテリジニルメチル、1 - フェナジニルメチル、3 - イソチアゾリルメチル、3 - イソキサゾリルメチル、3 - フラザニルメチル、8 - イソクロマニルメチル、7 - クロマニルメチル、2 - ピロリジニルメチル、2 - イミダゾリジニルメチル、2 - ピラゾリジニルメチル、1 - 10
 20
 30
 40
 50

シルチオメチル基、2 - (メチルチオ)エチル基、2 - (エチルチオ)エチル基、2 - (プロピルチオ)エチル基、2 - (ブチルチオ)エチル基、2 - (ペンチルチオ)エチル基、2 - (ヘキシルチオ)エチル基、アセトニル基、エチルカルボニルメチル基、プロピルカルボニルメチル基、ブチルカルボニルメチル基、2 - (アセチル)エチル基、2 - (エチルカルボニル)エチル基、2 - (プロピルカルボニル)エチル基、2 - (ブチルカルボニル)エチル基、シアノメチル基、2 - シアノエチル基、ジエチルアミノメチル基、2 - ジエチルアミノエチル基等がある。

【0018】

置換基を有するアリール基としては、o -、m - 及び p - フルオロフェニル基、o -、m - 及び p - クロロフェニル基、o -、m - 及び p - ブロモフェニル基、o -、m - 及び p - トリル基、キシリル基、メシチル基、o -、m - 及び p - エチルフェニル基、o -、m - 及び p - クメニル基、4 - (4' - フルオロ)ピフェニリル基、4 - (4' - クロロ)ピフェニリル基、4 - (4' - ブロモ)ピフェニリル基、4 - (4' - メチル)ピフェニリル基、4 - (4' - エチル)ピフェニリル基、1 - (5 - メチル)ナフチル基、1 - (5 - エチル)ナフチル基、2 - (5 - メチル)ナフチル基、2 - (5 - エチル)ナフチル基、9 - (3 - メチル)フェナントリル基、9 - (3 - エチル)フェナントリル基、9 - (10 - メチル)アントリル基、9 - (10 - エチル)アントリル基、4 - (2 - チエニル)フェニル基、4 - (2 - フリル)フェニル基、4 - (2 - ピリジル)フェニル基、4 - (2 - ピラジニル)フェニル基、4 - (2 - ピリミジニル)フェニル基、4 - (3 - ピリダジニル)フェニル基、4 - (3 - イソキノリル)フェニル基、4 - (2 - キノリル)フェニル基、4 - (1 - フタラジニル)フェニル基、4 - (2 - キノキサリニル)フェニル基、4 - (2 - キナゾリニル)フェニル基、4 - (3 - シンノリニル)フェニル基、o -、m - 及び p - メトキシフェニル基、o -、m - 及び p - エトキシフェニル基、2 - フェノキシフェニル基、2 - (4 - ピフェニリル)オキシフェニル基、2 - (1 - ナフチル)オキシフェニル基、2 - (2 - ナフチル)オキシフェニル基、2 - (9 - フェナントリル)オキシフェニル基、2 - (9 - アントリル)オキシフェニル基、2 - メチルチオフェニル基、2 - エチルチオフェニル基、2 - プロピルチオフェニル基、2 - ブチルチオフェニル基、2 - アセチルフェニル基、2 - エチルカルボニルフェニル基、2 - プロピルカルボニルフェニル基、2 - ブチルカルボニルフェニル基、4 - フェノキシフェニル基、4 - (4 - ピフェニリル)オキシフェニル基、4 - (1 - ナフチル)オキシフェニル基、4 - (2 - ナフチル)オキシフェニル基、4 - (9 - フェナントリル)オキシフェニル基、4 - (9 - アントリル)オキシフェニル基、4 - メチルチオフェニル基、4 - エチルチオフェニル基、4 - プロピルチオフェニル基、4 - ブチルチオフェニル基、4 - アセチルフェニル基、4 - エチルカルボニルフェニル基、4 - プロピルカルボニルフェニル基、4 - ブチルカルボニルフェニル基等がある。

置換基を有する複素環基としては、2 - (5 - フルオロ)チエニル基、2 - (5 - クロロ)チエニル基、2 - (5 - ブロモ)チエニル基、2 - (5 - メチル)チエニル基、2 - (5 - フルオロ)フリル基、2 - (5 - クロロ)フリル基、2 - (5 - ブロモ)フリル基、2 - (5 - メチル)フリル基、2 - (5 - メチル)ピリジル基、2 - (5 - メチル)ピラジニル基、2 - (5 - メチル)ピリミジニル基、3 - (6 - メチル)ピリダジニル基、1 - (5 - メチル)イソキノリル基、4 - (8 - メチル)キノリル基、1 - (4 - メチル)フタラジニル基、2 - (6 - メチル)ナフチリジニル基、2 - (6 - メチル)キノキサリニル基、2 - (6 - メチル)キナゾリニル基、2 - (5 - エチル)チエニル基、2 - (5 - エチル)フリル基、2 - (5 - エチル)ピリジル基、2 - (5 - エチル)ピラジニル基、2 - (5 - エチル)ピリミジニル基、3 - (6 - エチル)ピリダジニル基、1 - (5 - エチル)イソキノリル基、4 - (8 - エチル)キノリル基、1 - (4 - エチル)フタラジニル基、2 - (6 - エチル)ナフチリジニル基、2 - (6 - エチル)キノキサリニル基、2 - (6 - エチル)キナゾリニル基、2 - (5 - フェニル)チエニル基、2 - (5 - フェニル)フリル基、2 - (5 - フェニル)ピリジル基、2 - (5 - フェニル)ピラジニル基、2 - (5 - フェニル)ピリミジニル基、3 - (6 - フェニル)ピリダジニル基、1 -

(5 - フェニル)イソキノリル基、4 - (8 - フェニル)キノリル基、1 - (4 - フェニル)フタラジニル基、2 - (6 - フェニル)ナフチリジニル基、2 - (6 - フェニル)キノキサリニル基、2 - (6 - フェニル)キナゾリニル基、2 - {5 - (4 - ビフェニリル)}チエニル基、2 - {5 - (4 - ビフェニリル)}フリル基、2 - {5 - (4 - ビフェニリル)}ピリジニル基、2 - {5 - (4 - ビフェニリル)}ピラジニル基、2 - {5 - (4 - ビフェニリル)}ピリミジニル基、2 - {5 - (4 - ビフェニリル)}ピリダジニル基、1 - {5 - (4 - ビフェニリル)}イソキノリル基、4 - {8 - (4 - ビフェニリル)}キノリル基、1 - {4 - (4 - ビフェニリル)}フタラジニル基、2 - {6 - (4 - ビフェニリル)ナフチリジニル基、2 - {6 - (4 - ビフェニリル)}キノキサリニル基、2 - {6 - (4 - ビフェニリル)}キナゾリニル基、2 - {5 - (1 - ナフチル)}チエニル基、2 - {5 - (1 - ナフチル)}フリル基、2 - {5 - (1 - ナフチル)}ピリジニル基、2 - {5 - (1 - ナフチル)}ピラジニル基、2 - {5 - (1 - ナフチル)}ピリミジニル基、2 - {5 - (1 - ナフチル)}ピリダジニル基、1 - {5 - (1 - ナフチル)}イソキノリル基、4 - {8 - (1 - ナフチル)}キノリル基、1 - {4 - (1 - ナフチル)}フタラジニル基、2 - {6 - (1 - ナフチル)ナフチリジニル基、2 - {6 - (1 - ナフチル)}キノキサリニル基、2 - {6 - (1 - ナフチル)}キナゾリニル基、2 - {5 - (2 - ナフチル)}チエニル基、2 - {5 - (2 - ナフチル)}フリル基、2 - {5 - (2 - ナフチル)}ピリジニル基、2 - {5 - (2 - ナフチル)}ピラジニル基、2 - {5 - (2 - ナフチル)}ピリミジニル基、2 - {5 - (2 - ナフチル)}ピリダジニル基、1 - {5 - (2 - ナフチル)}イソキノリル基、4 - {8 - (2 - ナフチル)}キノリル基、1 - {4 - (2 - ナフチル)}フタラジニル基、2 - {6 - (2 - ナフチル)ナフチリジニル基、2 - {6 - (2 - ナフチル)}キノキサリニル基、2 - {6 - (2 - ナフチル)}キナゾリニル基、2 - {5 - (9 - フェナントリル)}チエニル基、2 - {5 - (9 - フェナントリル)}フリル基、2 - {5 - (9 - フェナントリル)}ピリジニル基、2 - {5 - (9 - フェナントリル)}ピラジニル基、2 - {5 - (9 - フェナントリル)}ピリミジニル基、2 - {5 - (9 - フェナントリル)}ピリダジニル基、1 - {5 - (9 - フェナントリル)}イソキノリル基、4 - {8 - (9 - フェナントリル)}キノリル基、1 - {4 - (9 - フェナントリル)}フタラジニル基、2 - {6 - (9 - フェナントリル)ナフチリジニル基、2 - {6 - (9 - フェナントリル)}キノキサリニル基、2 - {6 - (9 - フェナントリル)}キナゾリニル基、2 - {5 - (9 - アントリル)}チエニル基、2 - {5 - (9 - アントリル)}フリル基、2 - {5 - (9 - アントリル)}ピリジニル基、2 - {5 - (9 - アントリル)}ピラジニル基、2 - {5 - (9 - アントリル)}ピリミジニル基、2 - {5 - (9 - アントリル)}ピリダジニル基、1 - {5 - (9 - アントリル)}イソキノリル基、4 - {8 - (9 - アントリル)}キノリル基、1 - {4 - (9 - アントリル)}フタラジニル基、2 - {6 - (9 - アントリル)ナフチリジニル基、2 - {6 - (9 - アントリル)}キノキサリニル基、2 - {6 - (9 - アントリル)}キナゾリニル基、2 - (5 - メトキシ)チエニル基、2 - (5 - メトキシ)フリル基、2 - (5 - メトキシ)ピリジニル基、2 - (5 - メトキシ)ピラジニル基、2 - (5 - メトキシ)ピリミジニル基、3 - (6 - メトキシ)ピリダジニル基、1 - (5 - メトキシ)イソキノリル基、4 - (8 - メトキシ)キノリル基、1 - (4 - メトキシ)フタラジニル基、2 - (6 - メトキシ)ナフチリジニル基、2 - (6 - メトキシ)キノキサリニル基、2 - (6 - メトキシ)キナゾリニル基、2 - (5 - エトキシ)チエニル基、2 - (5 - エトキシ)フリル基、2 - (5 - エトキシ)ピリジニル基、2 - (5 - エトキシ)ピラジニル基、2 - (5 - エトキシ)ピリミジニル基、3 - (6 - エトキシ)ピリダジニル基、1 - (5 - エトキシ)イソキノリル基、4 - (8 - エトキシ)キノリル基、1 - (4 - エトキシ)フタラジニル基、2 - (6 - エトキシ)ナフチリジニル基、2 - (6 - エトキシ)キノキサリニル基、2 - (6 - エトキシ)キナゾリニル基、2 - (5 - フェノキシ)チエニル基、2 - (5 - フェノキシ)フリル基、2 - (5 - フェノキシ)ピリジニル基、2 - (5 - フェノキシ)ピラジニル基、2 - (5 - フェノキシ)ピリミジニル基、3 - (6 - フェノキシ)ピリダジニル基、1 - (5 - フェノキシ)イソキノリル基、4 - (8 - フ

10

20

30

40

50

エノキシ)キノリル基、1-(4-フェノキシ)フタラジニル基、2-(6-フェノキシ)ナフチリジニル基、2-(6-フェノキシ)キノキサリニル基、2-(6-フェノキシ)キナゾリニル基、2-{5-(4-ピフェニル)オキシ}チエニル基、2-{5-(4-ピフェニル)オキシ}フリル基、2-{5-(4-ピフェニル)オキシ}ピリジニル基、2-{5-(4-ピフェニル)オキシ}ピラジニル基、2-{5-(4-ピフェニル)オキシ}ピリミジニル基、3-{6-(4-ピフェニル)オキシ}ピリダジニル基、1-{5-(4-ピフェニル)オキシ}イソキノリル基、4-{8-(4-ピフェニル)オキシ}キノリル基、1-{4-(4-ピフェニル)オキシ}フタラジニル基、2-{6-(4-ピフェニル)オキシ}ナフチリジニル基、2-{6-(4-ピフェニル)オキシ}キノキサリニル基、2-{6-(4-ピフェニル)オキシ}キナゾリニル基、2-{5-(1-ナフチル)オキシ}チエニル基、2-{5-(1-ナフチル)オキシ}フリル基、2-{5-(1-ナフチル)オキシ}ピリジニル基、2-{5-(1-ナフチル)オキシ}ピラジニル基、2-{5-(1-ナフチル)オキシ}ピリミジニル基、3-{6-(1-ナフチル)オキシ}ピリダジニル基、1-{5-(1-ナフチル)オキシ}イソキノリル基、4-{8-(1-ナフチル)オキシ}キノリル基、1-{4-(1-ナフチル)オキシ}フタラジニル基、2-{6-(1-ナフチル)オキシ}ナフチリジニル基、2-{6-(1-ナフチル)オキシ}キノキサリニル基、2-{6-(1-ナフチル)オキシ}キナゾリニル基、2-{5-(2-ナフチル)オキシ}チエニル基、2-{5-(2-ナフチル)オキシ}フリル基、2-{5-(2-ナフチル)オキシ}ピリジニル基、2-{5-(2-ナフチル)オキシ}ピラジニル基、2-{5-(2-ナフチル)オキシ}ピリミジニル基、3-{6-(2-ナフチル)オキシ}ピリダジニル基、1-{5-(2-ナフチル)オキシ}イソキノリル基、4-{8-(2-ナフチル)オキシ}キノリル基、1-{4-(2-ナフチル)オキシ}フタラジニル基、2-{6-(2-ナフチル)オキシ}ナフチリジニル基、2-{6-(2-ナフチル)オキシ}キノキサリニル基、2-{6-(2-ナフチル)オキシ}キナゾリニル基、2-{5-(9-フェナントリル)オキシ}チエニル基、2-{5-(9-フェナントリル)オキシ}フリル基、2-{5-(9-フェナントリル)オキシ}ピリジニル基、2-{5-(9-フェナントリル)オキシ}ピラジニル基、2-{5-(9-フェナントリル)オキシ}ピリミジニル基、3-{6-(9-フェナントリル)オキシ}ピリダジニル基、1-{5-(9-フェナントリル)オキシ}イソキノリル基、4-{8-(9-フェナントリル)オキシ}キノリル基、1-{4-(9-フェナントリル)オキシ}フタラジニル基、2-{6-(9-フェナントリル)オキシ}ナフチリジニル基、2-{6-(9-フェナントリル)オキシ}キノキサリニル基、2-{6-(9-フェナントリル)オキシ}キナゾリニル基、2-{5-(9-アントリル)オキシ}チエニル基、2-{5-(9-アントリル)オキシ}フリル基、2-{5-(9-アントリル)オキシ}ピリジニル基、2-{5-(9-アントリル)オキシ}ピラジニル基、2-{5-(9-アントリル)オキシ}ピリミジニル基、3-{6-(9-アントリル)オキシ}ピリダジニル基、1-{5-(9-アントリル)オキシ}イソキノリル基、4-{8-(9-アントリル)オキシ}キノリル基、1-{4-(9-アントリル)オキシ}フタラジニル基、2-{6-(9-アントリル)オキシ}ナフチリジニル基、2-{6-(9-アントリル)オキシ}キノキサリニル基、2-{6-(9-アントリル)オキシ}キナゾリニル基、2-(5-メチルチオ)チエニル基、2-(5-メチルチオ)フリル基、2-(5-メチルチオ)ピリジニル基、2-(5-メチルチオ)ピラジニル基、2-(5-メチルチオ)ピリミジニル基、3-(6-メチルチオ)ピリダジニル基、1-(5-メチルチオ)イソキノリル基、4-(8-メチルチオ)キノリル基、1-(4-メチルチオ)フタラジニル基、2-(6-メチルチオ)ナフチリジニル基、2-(6-メチルチオ)キノキサリニル基、2-(6-メチルチオ)キナゾリニル基、2-(5-エチルチオ)チエニル基、2-(5-エチルチオ)フリル基、2-(5-エチルチオ)ピリジニル基、2-(5-エチルチオ)ピラジニル基、2-(5-エチルチオ)ピリミジニル基、3-(6-エチルチオ)ピリダジニル基、1-(5-エチルチオ)イソキノリル基、4-(8-エチルチオ)キノリル基、1-(4-エチルチオ)フタラジニル基、2-(6-エチルチオ)

10

20

30

40

50

)ナフチリジニル基、2 - (6 - エチルチオ)キノキサリニル基、2 - (6 - エチルチオ)キナゾリニル基、2 - (5 - メチルカルボニル)チエニル基、2 - (5 - メチルカルボニル)フリル基、2 - (5 - メチルカルボニル)ピリジニル基、2 - (5 - メチルカルボニル)ピラジニル基、2 - (5 - メチルカルボニル)ピリミジニル基、3 - (6 - メチルカルボニル)ピリダジニル基、1 - (5 - メチルカルボニル)イソキノリル基、4 - (8 - メチルカルボニル)キノリル基、1 - (4 - メチルカルボニル)フタラジニル基、2 - (6 - メチルカルボニル)ナフチリジニル基、2 - (6 - メチルカルボニル)キノキサリニル基、2 - (6 - メチルカルボニル)キナゾリニル基、2 - (5 - エチルカルボニル)チエニル基、2 - (5 - エチルカルボニル)フリル基、2 - (5 - エチルカルボニル)ピリジニル基、2 - (5 - エチルカルボニル)ピラジニル基、2 - (5 - エチルカルボニル)ピリミジニル基、3 - (6 - エチルカルボニル)ピリダジニル基、1 - (5 - エチルカルボニル)イソキノリル基、4 - (8 - エチルカルボニル)キノリル基、1 - (4 - エチルカルボニル)フタラジニル基、2 - (6 - エチルカルボニル)ナフチリジニル基、2 - (6

10

エチルカルボニル)キノキサリニル基、2 - (6 - エチルカルボニル)キナゾリニル基、2 - (5 - プロピルカルボニル)チエニル基、2 - (5 - プロピルカルボニル)フリル基、2 - (5 - プロピルカルボニル)ピリジニル基、2 - (5 - プロピルカルボニル)ピラジニル基、2 - (5 - プロピルカルボニル)ピリミジニル基、3 - (6 - プロピルカルボニル)ピリダジニル基、1 - (5 - プロピルカルボニル)イソキノリル基、4 - (8 - プロピルカルボニル)キノリル基、1 - (4 - プロピルカルボニル)フタラジニル基、2 - (6 - プロピルカルボニル)ナフチリジニル基、2 - (6 - プロピルカルボニル)キノキサリニル基、2 - (6 - プロピルカルボニル)キナゾリニル基等がある。

20

置換基を有するアルコキシ基としては、フルオロメトキシ基、クロロメトキシ基、ブロモメトキシ基、2 - フルオロエトキシ基、2 - クロロエトキシ基、2 - ブロモエトキシ基、ベンジルオキシ基、4 - ビフェニリルメチルオキシ基、4 - (p - ターフェニリル)メチルオキシ基、1 - ナフチルメチルオキシ基、2 - ナフチルメチルオキシ基、9 - フェナントリルメチルオキシ基、9 - アントリルメチルオキシ基、2 - チエニルメチルオキシ基、フルフリルオキシ基、2 - ピロリルメチルオキシ基、2 - (N - メチルピロリル)メチルオキシ基、2 - (N - エチルピロリル)メチルオキシ基、2 - ピリジニルメチルオキシ基、4 - ピリジニルメチルオキシ基、2 - ピラジニルメチルオキシ基、2 - ピリミジニルメチルオキシ基、4 - ピリミジニルメチルオキシ基、5 - ピリミジニルメチルオキシ基、3 - ピリダジニルメチルオキシ基、4 - ピリダジニルメチルオキシ基、3 - イソキサゾリルメチルオキシ基、4 - イソキサゾリルメチルオキシ基、5 - イソキサゾリルメチルオキシ基、3 - フラザニルメチルオキシ基、メトキシメトキシ基、エトキシメトキシ基、メトキシエトキシ基、エトキシエトキシ基、フェノキシメトキシ基、(4 - ビフェニリルオキシ)メトキシ基、(1 - ナフチルオキシ)メトキシ基、(2 - ナフチルオキシ)メトキシ基、2 - フェノキシエトキシ基、2 - {(4 - ビフェニリル)オキシ}エトキシ基、2 - {(1 - ナフチル)オキシ}エトキシ基、2 - {(2 - ナフチル)オキシ}エトキシ基、メチルチオメトキシ基、エチルチオメトキシ基、2 - メチルチオエトキシ基、2 - エチルチオエトキシ基、フェニルチオメトキシ基、(4 - ビフェニリルチオ)メトキシ基、(1 - ナフチルチオ)メトキシ基、(2 - ナフチルチオ)メトキシ基、2 - フェニルチオエトキシ基、2 - {(4 - ビフェニリル)チオ}エトキシ基、2 - {(1 - ナフチル)チオ}エトキシ基、2 - {(2 - ナフチル)チオ}エトキシ基、アセチルメトキシ基、2 - アセチルエトキシ基、エチルカルボニルメトキシ基、2 - エチルカルボニルエトキシ基、フェネチルオキシ基、2 - (4 - ビフェニリル)エチルオキシ基、2 - {4 - (p - ターフェニリル)}エチルオキシ基、2 - (1 - ナフチル)エチルオキシ基、2 - (2 - ナフチル)エチルオキシ基、2 - (9 - フェナントリル)エチルオキシ基、2 - (9 - アントリル)エチルオキシ基、2 - (2 - チエニル)エチルオキシ基、2 - (2 - フリル)エチルオキシ基、2 - (2 - ピロリル)エチルオキシ基、2 - {2 - (N - メチルピロリル)}エチ

30

40

50

ルオキシ基、2 - { 2 - (N - エチルピロリル) } エチルオキシ基、2 - (2 - ピリジル) エチルオキシ基、2 - (4 - ピリジル) エチルオキシ基、2 - (2 - ピラジニル) エチルオキシ基、2 - (2 - ピリミジニル) エチルオキシ基、2 - (4 - ピリミジニル) エチルオキシ基、2 - (5 - ピリミジニル) エチルオキシ基、2 - (3 - ピリダジニル) エチルオキシ基、2 - (4 - ピリダジニル) エチルオキシ基、2 - (3 - イソキサゾリル) エチルオキシ基、2 - (4 - イソキサゾリル) エチルオキシ基、2 - (5 - イソキサゾリル) エチルオキシ基、2 - (3 - フラザニル) エチルオキシ基、フェニルカルボニルメトキシ基、2 - フェニルカルボニルエトキシ基、(4 - ビフェニリル) カルボニルメトキシ基、2 - (4 - ビフェニリル) カルボニルエトキシ基、(1 - ナフチル) カルボニルメトキシ基、(2 - ナフチル) カルボニルメトキシ基、2 - (1 - ナフチル) カルボニルエトキシ基、2 - (2 - ナフチル) カルボニルエトキシ基等がある。

10

【 0 0 1 9 】

置換基を有するアリールオキシ基としては、4 - フルオロフェノキシ基、4 - クロロフェノキシ基、4 - ブロモフェノキシ基、o - 、 m - 及び p - トリルオキシ基、o - 、 m - 及び p - エチルフェノキシ基、キシリルオキシ基、o - 、 m - 及び p - クメニルオキシ基、メシチルオキシ基、4 - (2 - チエニル) フェノキシ基、4 - (2 - フリル) フェノキシ基、4 - (2 - ピロリル) フェノキシ基、4 - { 2 - (N - メチルピロリル) } フェノキシ基、4 - { 2 - (N - エチルピロリル) } フェノキシ基、4 - (2 - ピリジル) フェノキシ基、4 - (4 - ピリジル) フェノキシ基、4 - (2 - ピラジニル) フェノキシ基、4 - (2 - ピリミジニル) フェノキシ基、4 - (4 - ピリミジニル) フェノキシ基、4 - (5 - ピリミジニル) フェノキシ基、4 - (3 - ピリダジニル) フェノキシ基、4 - (4 - ピリダジニル) フェノキシ基、4 - (3 - イソキサゾリル) フェノキシ基、4 - (4 - イソキサゾリル) フェノキシ基、4 - (5 - イソキサゾリル) フェノキシ基、4 - (3 - フラザニル) フェノキシ基、4 - (4 ' - メチル) ビフェニリルオキシ基、4 - (4 ' - エチル) ビフェニリルオキシ基、4 - { 4 ' - (2 - チエニル) } ビフェニリルオキシ基、4 - { 4 ' - (2 - フリル) } ビフェニリルオキシ基、4 - { 4 ' - (2 - ピロリル) } ビフェニリルオキシ基、4 - [4 ' - { 2 - (N - メチルピロリル) }] ビフェニリルオキシ基、4 - [4 ' - { 2 - (N - エチルピロリル) }] ビフェニリルオキシ基、4 - { 4 ' - (2 - ピリジル) } ビフェニリルオキシ基、4 - { 4 ' - (4 - ピリジル) } ビフェニリルオキシ基、4 - { 4 ' - (2 - ピラジニル) } ビフェニリルオキシ基、4 - { 4 ' - (2 - ピリミジニル) } ビフェニリルオキシ基、4 - { 4 ' - (4 - ピリミジニル) } ビフェニリルオキシ基、4 - { 4 ' - (5 - ピリミジニル) } ビフェニリルオキシ基、4 - { 4 ' - (3 - ピリダジニル) } ビフェニリルオキシ基、4 - { 4 ' - (4 - ピリダジニル) } ビフェニリルオキシ基、4 - { 4 ' - (3 - イソキサゾリル) } ビフェニリルオキシ基、4 - { 4 ' - (4 - イソキサゾリル) } ビフェニリルオキシ基、4 - { 4 ' - (5 - イソキサゾリル) } ビフェニリルオキシ基、4 - { 4 ' - (3 - フラザニル) } ビフェニリルオキシ基、1 - { (4 - メチル) ナフチル } オキシ基、1 - { (4 - エチル) ナフチル } オキシ基、1 - { 4 - (2 - チエニル) } ナフチルオキシ基、1 - { 4 - (2 - フリル) } ナフチルオキシ基、1 - { 4 - (2 - ピロリル) } ナフチルオキシ基、1 - [4 - { 2 - (N - メチルピロリル) }] ナフチルオキシ基、1 - [4 - { 2 - (N - エチルピロリル) }] ナフチルオキシ基、1 - { 4 - (2 - ピリジル) } ナフチルオキシ基、1 - { 4 - (4 - ピリジル) } ナフチルオキシ基、1 - { 4 - (2 - ピラジニル) } ナフチルオキシ基、1 - { 4 - (2 - ピリミジニル) } ナフチルオキシ基、1 - { 4 - (4 - ピリミジニル) } ナフチルオキシ基、1 - { 4 - (5 - ピリミジニル) } ナフチルオキシ基、1 - { 4 - (3 - ピリダジニル) } ナフチルオキシ基、1 - { 4 - (4 - ピリダジニル) } ナフチルオキシ基、1 - { 4 - (3 - イソキサゾリル) } ナフチルオキシ基、1 - { 4 - (4 - イソキサゾリル) } ナフチルオキシ基、1 - { 4 - (5 - イソキサゾリル) } ナフチルオキシ基、1 - { 4 - (3 - フラザニル) } ナフチルオキシ基、2 - { (4 - メチル) ナフチル } オキシ基、2 - { (4 - エチル) ナフチル } オキシ基、2 - { 4 - (2 - チエニル) } ナフチルオキシ基、2 - { 4 - (2 - フリル) } ナフチルオキシ基、2

20

30

40

50

- { 4 - (2 - ピロリル) } ナフチルオキシ基、 2 - [4 - { 2 - (N - メチルピロリル) }] ナフチルオキシ基、 2 - [4 - { 2 - (N - エチルピロリル) }] ナフチルオキシ基、 2 - { 4 - (2 - ピリジル) } ナフチルオキシ基、 2 - { 4 - (4 - ピリジル) } ナフチルオキシ基、 2 - { 4 - (2 - ピラジニル) } ナフチルオキシ基、 2 - { 4 - (2 - ピリミジニル) } ナフチルオキシ基、 2 - { 4 - (4 - ピリミジニル) } ナフチルオキシ基、 2 - { 4 - (5 - ピリミジニル) } ナフチルオキシ基、 2 - { 4 - (3 - ピリダジニル) } ナフチルオキシ基、 2 - { 4 - (4 - ピリダジニル) } ナフチルオキシ基、 2 - { 4 - (3 - イソキサゾリル) } ナフチルオキシ基、 2 - { 4 - (4 - イソキサゾリル) } ナフチルオキシ基、 2 - { 4 - (5 - イソキサゾリル) } ナフチルオキシ基、 2 - { 4 - (3 - フラザニル) } ナフチルオキシ基、 9 - { (4 - メチル) フェナントリル } オキシ基、 9 - { (4 - エチル) フェナントリル } オキシ基、 9 - { 4 - (2 - チエニル) } フェナントリルオキシ基、 9 - { 4 - (2 - フリル) } フェナントリルオキシ基、 9 - { 4 - (2 - ピロリル) } フェナントリルオキシ基、 9 - [4 - { 2 - (N - メチルピロリル) }] フェナントリルオキシ基、 9 - [4 - { 2 - (N - エチルピロリル) }] フェナントリルオキシ基、 9 - { 4 - (2 - ピリジル) } フェナントリルオキシ基、 9 - { 4 - (4 - ピリジル) } フェナントリルオキシ基、 9 - { 4 - (2 - ピラジニル) } フェナントリルオキシ基、 9 - { 4 - (2 - ピリミジニル) } フェナントリルオキシ基、 9 - { 4 - (4 - ピリミジニル) } フェナントリルオキシ基、 9 - { 4 - (5 - ピリミジニル) } フェナントリルオキシ基、 9 - { 4 - (3 - ピリダジニル) } フェナントリルオキシ基、 9 - { 4 - (4 - ピリダジニル) } フェナントリルオキシ基、 9 - { 4 - (3 - イソキサゾリル) } フェナントリルオキシ基、 9 - { 4 - (4 - イソキサゾリル) } フェナントリルオキシ基、 9 - { 4 - (5 - イソキサゾリル) } フェナントリルオキシ基、 9 - { 4 - (3 - フラザニル) } フェナントリルオキシ基、 9 - { (10 - メチル) アントリル } オキシ基、 9 - { (10 - エチル) アントリル } オキシ基、 9 - { 10 - (2 - チエニル) } アントリルオキシ基、 9 - { 10 - (2 - フリル) } アントリルオキシ基、 9 - { 10 - (2 - ピロリル) } アントリルオキシ基、 9 - [10 - { 2 - (N - メチルピロリル) }] アントリルオキシ基、 9 - [10 - { 2 - (N - エチルピロリル) }] アントリルオキシ基、 9 - { 10 - (2 - ピリジル) } アントリルオキシ基、 9 - { 10 - (4 - ピリジル) } アントリルオキシ基、 9 - { 10 - (2 - ピラジニル) } アントリルオキシ基、 9 - { 10 - (2 - ピリミジニル) } アントリルオキシ基、 9 - { 10 - (4 - ピリミジニル) } アントリルオキシ基、 9 - { 10 - (5 - ピリミジニル) } アントリルオキシ基、 9 - { 10 - (3 - ピリダジニル) } アントリルオキシ基、 9 - { 10 - (4 - ピリダジニル) } アントリルオキシ基、 9 - { 10 - (3 - イソキサゾリル) } アントリルオキシ基、 9 - { 10 - (4 - イソキサゾリル) } アントリルオキシ基、 9 - { 10 - (5 - イソキサゾリル) } アントリルオキシ基、 9 - { 10 - (3 - フラザニル) } アントリルオキシ基、 o - 、 m - 及び p - シアノフェノキシ基、 4 - (4 - シアノ) ビフェニルオキシ基、 1 - (4 - シアノ) ナフチルオキシ基、 2 - (4 - シアノ) ナフチルオキシ基、 9 - (3 , 6 - ジシアノ) フェナントリルオキシ基、 9 - (10 - シアノ) アントリルオキシ基、 o - 、 m - 及び p - ジエチルアミノフェノキシ基、 4 - (4 - ジエチルアミノ) ビフェニルオキシ基、 1 - (4 - ジエチルアミノ) ナフチルオキシ基、 2 - (4 - ジエチルアミノ) ナフチルオキシ基、 9 - (3 , 6 - ジジエチルアミノ) フェナントリルオキシ基、 9 - (10 - ジエチルアミノ) アントリルオキシ基等がある。

【 0 0 2 0 】

置換基を有するアルキルチオ基としては、フルオロメチルチオ基、クロロメチルチオ基、プロモメチルチオ基、2 - フルオロエチルチオ基、2 - クロロエチルチオ基、2 - ブロモエチルチオ基、ベンジルチオ基、4 - ビフェニルメチルチオ基、1 - ナフチルメチルチオ基、2 - ナフチルメチルチオ基、9 - フェナントリルメチルチオ基、9 - アントリルメチルチオ基、フェネチルチオ基、2 - (4 - ビフェニル) エチルチオ基、2 - (1 - ナフチル) エチルチオ基、2 - (2 - ナフチル) エチルチオ基、2 - (9 - フェナントリル) エチルチオ基、2 - (9 - アントリル) エチルチオ基、2 - チエニルメチルチオ基、フ

ルフリルチオ基、2 - ピロリルチオ基、2 - (N - メチルピロリル)チオ基、2 - (N - エチルピロリル)チオ基、2 - ピリジルメチルチオ基、2 - (2 - ピリジル)エチルチオ基、2 - (2 - ピラジニル)エチルチオ基、2 - (2 - ピリミジニル)エチルチオ基、2 - (3 - ピリダジニル)エチルチオ基、シアノメチルチオ基、2 - シアノエチルチオ基、3 - シアノプロピルチオ基、ジメチルアミノメチルチオ基、ジエチルアミノメチルチオ基、2 - ジメチルアミノエチルチオ基、2 - ジエチルアミノエチルチオ基、3 - ジメチルアミノプロピルチオ基、3 - ジエチルアミノプロピルチオ基、メトキシメチルチオ基、エトキシメチルチオ基、2 - メトキシエチルチオ基、2 - エトキシエチルチオ基、フェノキシメチルチオ基、2 - フェノキシエチルチオ基、4 - ビフェニリルオキシメチルチオ基、2 - (4 - ビフェニリル)オキシエチルチオ基、1 - ナフチルメチルチオ基、2 - (1 - ナフチル)オキシエチルチオ基、2 - (2 - ナフチル)オキシエチルチオ基、メチルチオメチルチオ基、エチルチオメチルチオ基、2 - メチルチオエチルチオ基、2 - エチルチオエチルチオ基、フェニルチオメチルチオ基、4 - ビフェニリルチオメチルチオ基、2 - フェニルチオエチルチオ基、2 - (4 - ビフェニリル)チオエチルチオ基、1 - ナフチルチオメチルチオ基、2 - ナフチルチオメチルチオ基、2 - (1 - ナフチル)チオエチルチオ基、2 - (2 - ナフチル)チオエチルチオ基等がある。

10

【0021】

置換基を有するアリールチオ基としては、o -、m - 及び p - フルオロフェニルチオ基、o -、m - 及び p - クロロフェニルチオ基、o -、m - 及び p - ブロモフェニルチオ基、o -、m - 及び p - メチルフェニルチオ基、o -、m - 及び p - エチルフェニルチオ基、4 - ビフェニリルチオ基、4 - (p - ターフェニル)チオ基、4 - (1 - ナフチル)フェニルチオ基、4 - (2 - ナフチル)フェニルチオ基、4 - (9 - フェナントリル)フェニルチオ基、4 - (9 - アントリル)フェニルチオ基、1 - (4 - フェニル)ナフチルチオ基、2 - (6 - フェニル)ナフチルチオ基、4 - (2 - チエニル)フェニルチオ基、4 - (2 - フリル)フェニルチオ基、4 - (2 - ピロリル)フェニルチオ基、4 - {2 - (N - メチルピロリル)}フェニルチオ基、4 - {2 - (N - エチルピロリル)}フェニルチオ基、4 - シアノフェニルチオ基、4 - ジメチルアミノフェニルチオ基、4 - ジエチルアミノフェニルチオ基、4 - メトキシフェニルチオ基、4 - エトキシフェニルチオ基、4 - プロポキシフェニルチオ基、4 - ブトキシフェニルチオ基、4 - フェノキシフェニルチオ基、4 - (4 - ビフェニリル)オキシフェニルチオ基、4 - (1 - ナフチル)オキシフェニルチオ基、4 - (2 - ナフチル)オキシフェニルチオ基、4 - (9 - フェナントリル)オキシフェニルチオ基、4 - (9 - アントリル)オキシフェニルチオ基、4 - メチルチオフェニルチオ基、4 - エチルチオフェニルチオ基、4 - プロピルチオフェニルチオ基、4 - フェニルチオフェニルチオ基、4 - (4 - ビフェニリルチオ)フェニルチオ基、4 - (1 - ナフチルチオ)フェニルチオ基、4 - (2 - ナフチルチオ)フェニルチオ基、4 - (9 - フェナントリルチオ)フェニルチオ基、4 - (9 - アントリルチオ)フェニルチオ基、4 - アセチルフェニルチオ基、4 - エチルカルボニルフェニルチオ基、4 - プロピルカルボニルフェニルチオ基、4 - フェニルカルボニルフェニルチオ基、4 - (4 - ビフェニリルカルボニル)フェニルチオ基、4 - (1 - ナフチルカルボニル)フェニルチオ基、4 - (2 - ナフチルカルボニル)フェニルチオ基、4 - (9 - フェナントリルカルボニル)フェニルチオ基、4 - (9 - アントリルカルボニル)フェニルチオ基等がある。

20

30

40

【0022】

二価のアリール基としては、o -、m - 及び p - フェニレン基、ナフチレン基、ペンタレニレン基、アズレニレン基、ヘプタレニレン基、アセナフチレニレン基、フェナントリレン基、アントリレン基、トリフェニレニレン基、ピレニレン基、クリセニレン基ナフタセニレン基、ピセニレン基、ペリレニレン基、ペンタセニレン基、ヘプタフェニレン基、ヘキサセニレン基、コロネニレン基、トリナフチレニレニレン基、ヘプタフェニレン基、ヘプタセニレン基、ピラントレニレン基等がある。

二価の複素環基としては、既に例示した複素環基に対応する二価基が挙げられる。

【0023】

50

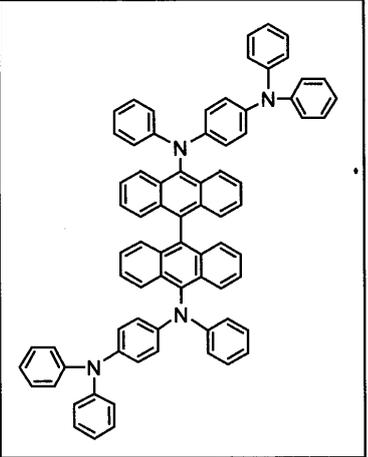
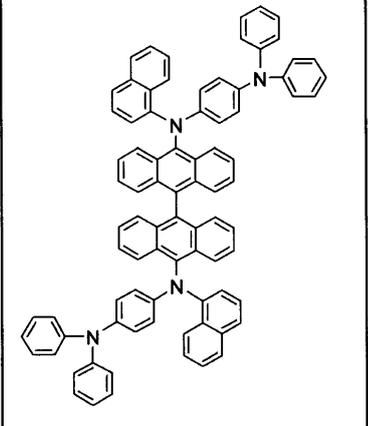
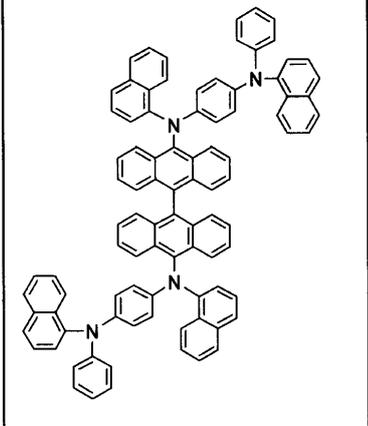
本発明において、一般式 [1] で表される化合物は、例えば次のような四段階の合成反応を行うことにより製造することができる。

まず、アントラキノンに対して還元還元剤を作用させることによりピアントリルを合成する。次に、得られたピアントリルに対して臭素化反応を施し、ピアントリルの二臭化物を合成する。この二臭化物に対して相当する一級アミン誘導体を反応させ、一旦、ピアントリルの二級アミン誘導体を合成する。得られた二級アミン誘導体に対して、さらに相当する三級アミンの臭化物を反応させることにより、一般式 [1] で表される化合物を製造することができる

本発明の化合物の代表例を以下の表 1 に具体的に例示するが、本発明は以下の代表例に限定されるものではない。

【 0 0 2 4 】

【表 1】

化合物	化学構造
(1)	
(2)	
(3)	

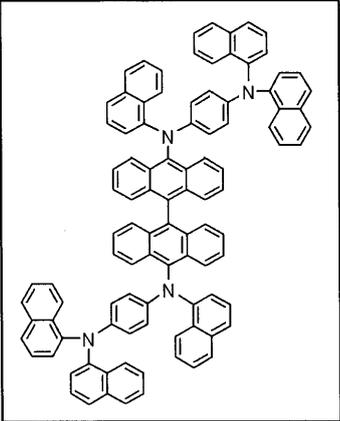
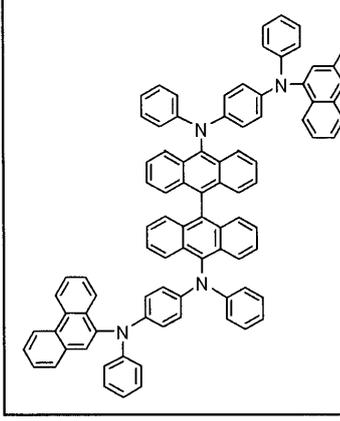
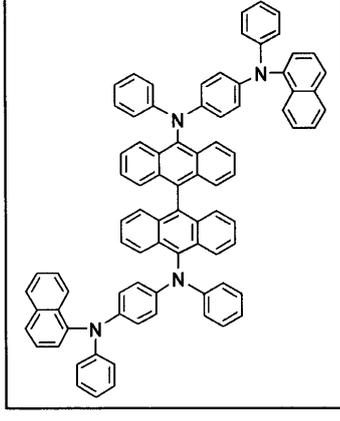
10

20

30

40

【 0 0 2 5 】

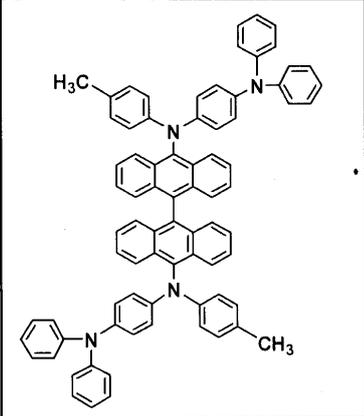
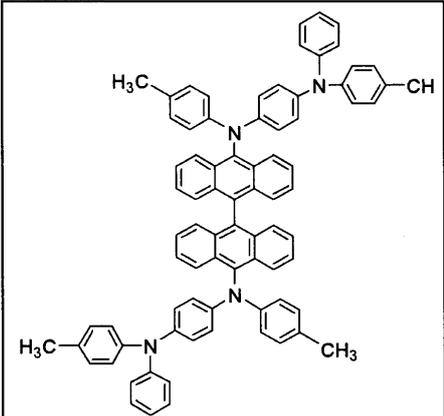
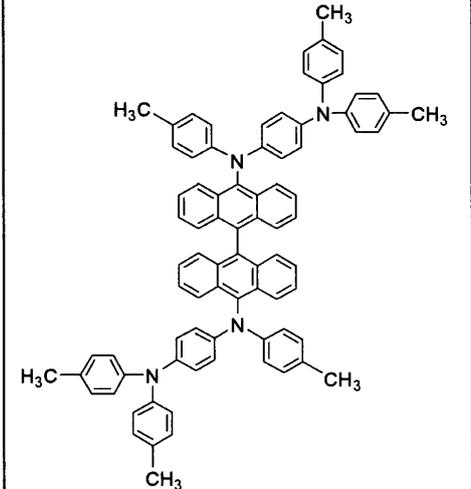
化合物	化学構造
(4)	
(5)	
(6)	

10

20

30

40

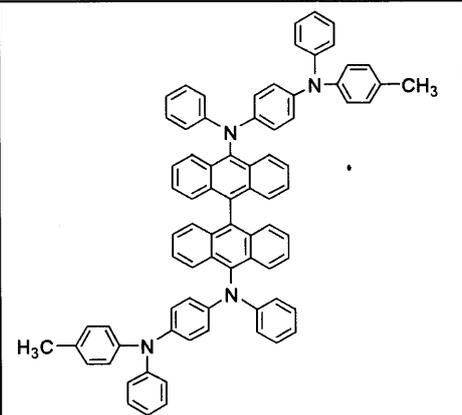
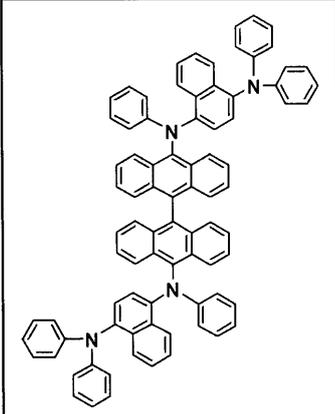
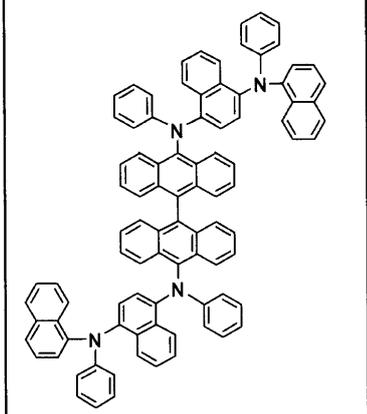
化合物	化学構造
(7)	
(8)	
(9)	

10

20

30

40

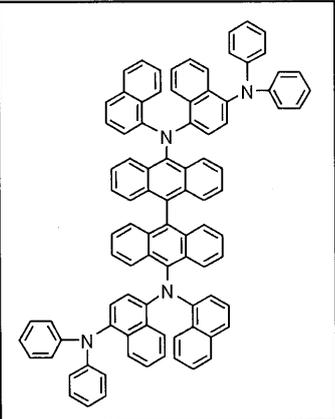
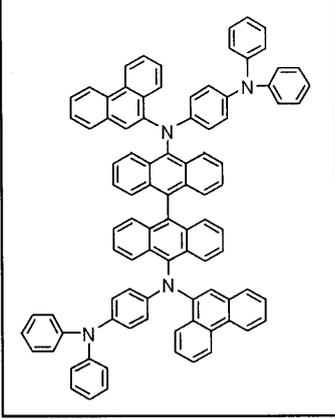
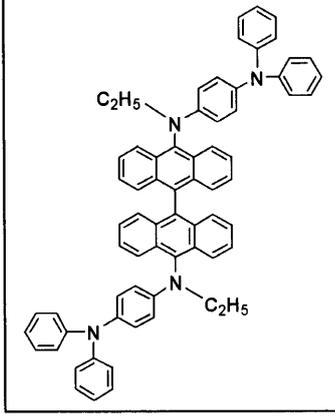
化合物	化学構造
(10)	
(11)	
(12)	

10

20

30

40

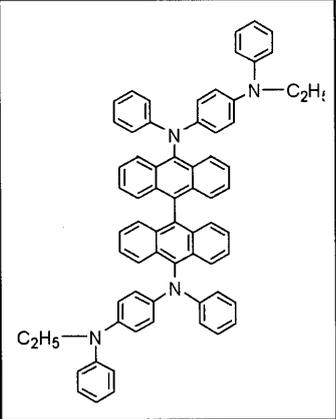
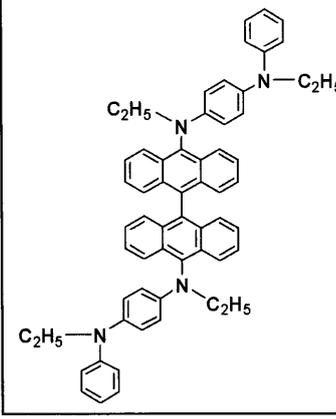
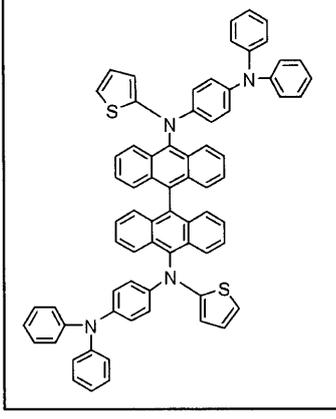
化合物	化学構造
(13)	
(14)	
(15)	

10

20

30

40

化合物	化学構造
(16)	
(17)	
(18)	

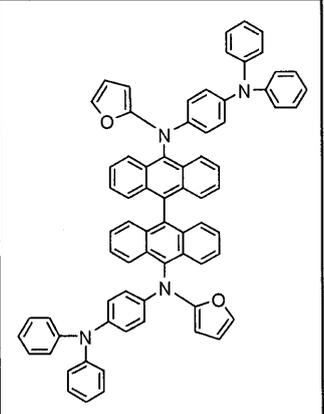
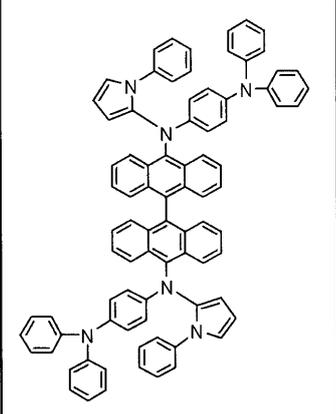
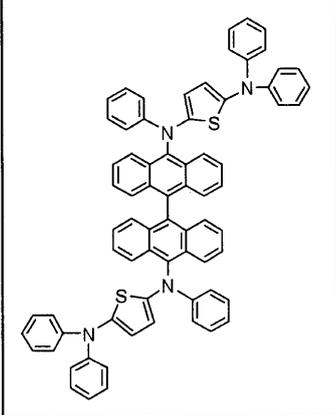
10

20

30

40

【 0 0 3 0 】

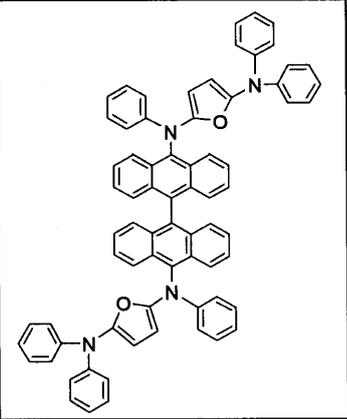
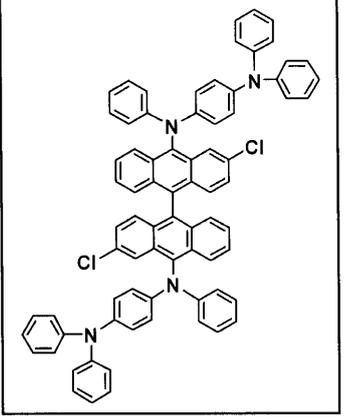
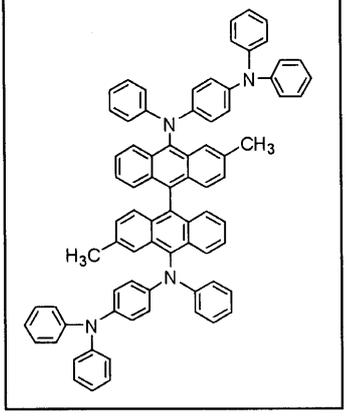
化合物	化学構造
(19)	
(20)	
(21)	

10

20

30

40

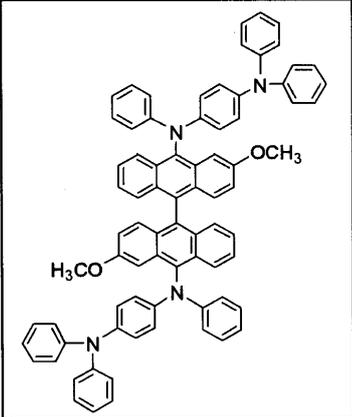
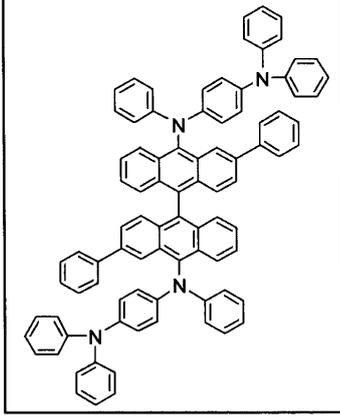
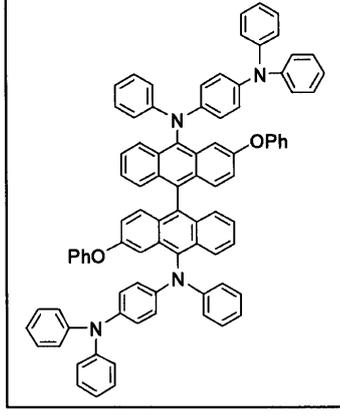
化合物	化学構造
(22)	
(23)	
(24)	

10

20

30

40

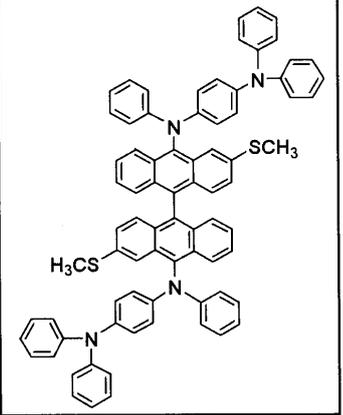
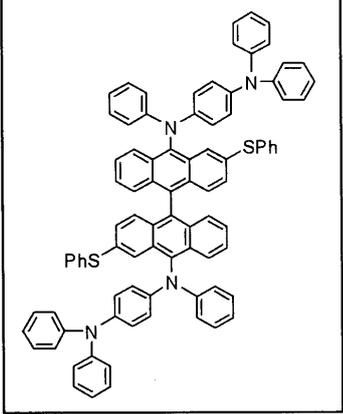
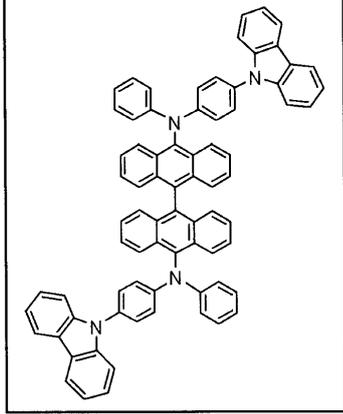
化合物	化学構造
(25)	
(26)	
(27)	

10

20

30

40

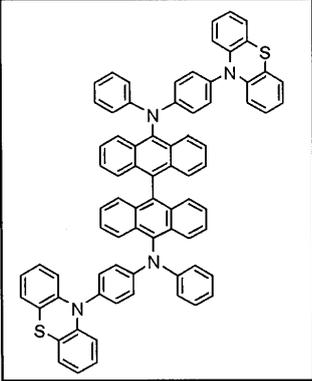
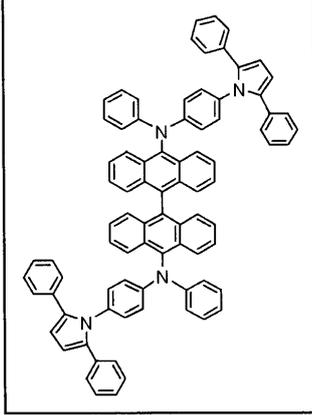
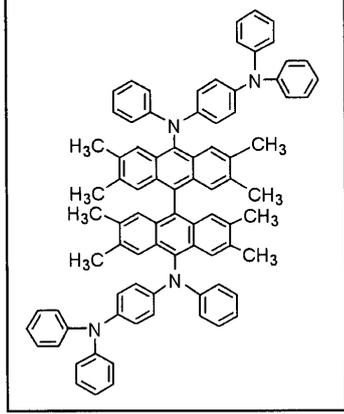
化合物	化学構造
(28)	 <p>Chemical structure (28) shows a central naphthalene core. It is substituted with two diphenylamino groups (N(Ph)₂) at the 1 and 8 positions. Additionally, it has two methylsulfanyl groups (SCH₃) at the 2 and 7 positions.</p>
(29)	 <p>Chemical structure (29) shows a central naphthalene core. It is substituted with two diphenylamino groups (N(Ph)₂) at the 1 and 8 positions. Additionally, it has two phenylsulfanyl groups (SPh) at the 2 and 7 positions.</p>
(30)	 <p>Chemical structure (30) shows a central naphthalene core. It is substituted with two diphenylamino groups (N(Ph)₂) at the 1 and 8 positions. Additionally, it has two indolyl groups at the 2 and 7 positions.</p>

10

20

30

40

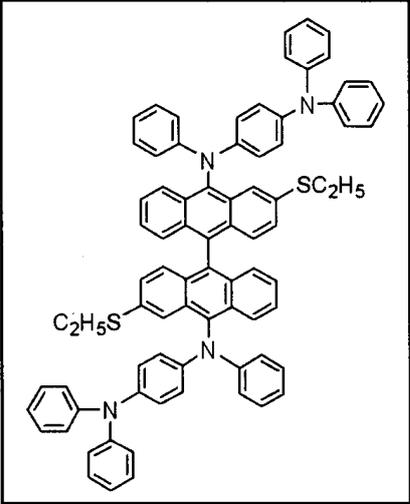
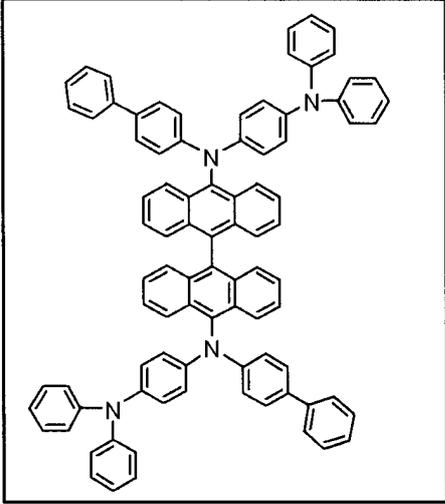
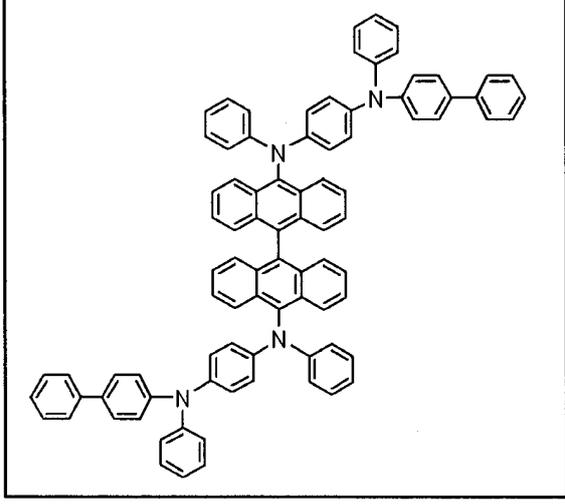
化合物	化学構造
(31)	
(32)	
(33)	

10

20

30

40

化合物	化学構造
(34)	
(35)	
(36)	

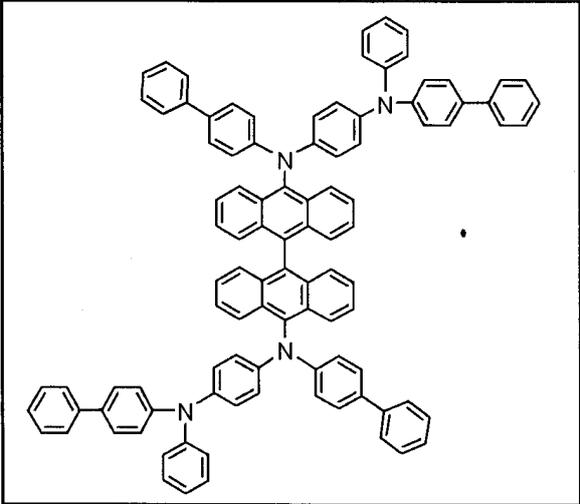
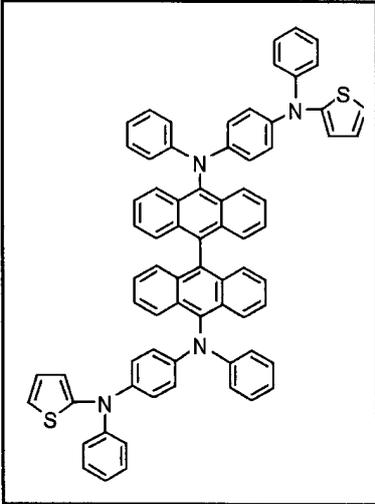
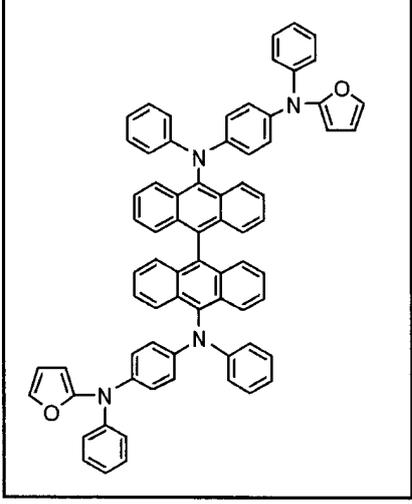
10

20

30

40

50

化合物	化学構造
(37)	
(38)	
(39)	

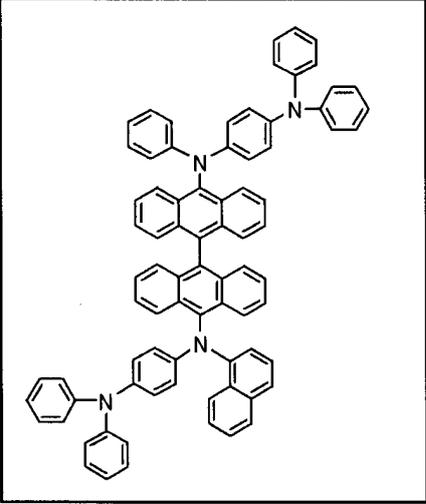
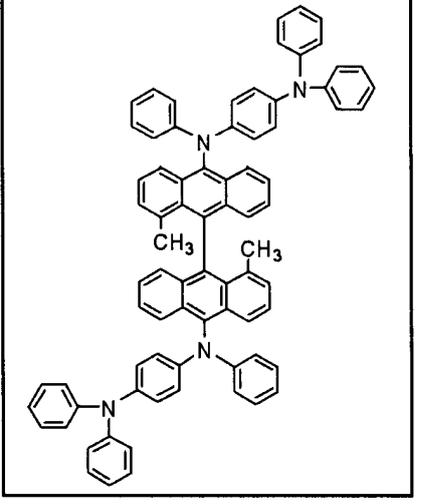
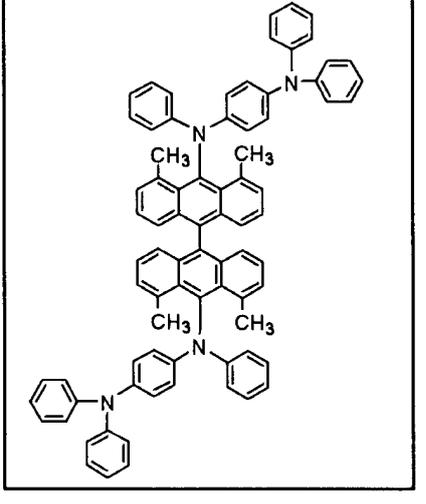
10

20

30

40

50

化合物	化学構造
(40)	
(41)	
(42)	

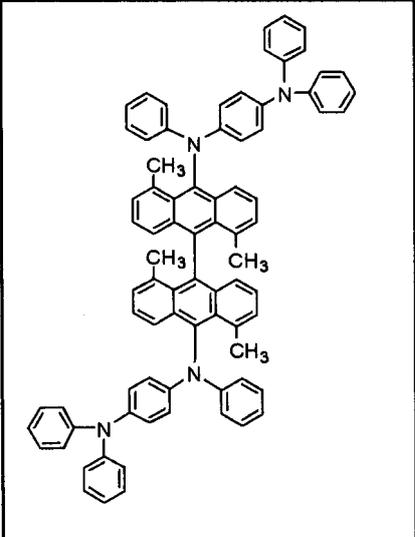
10

20

30

40

50

化合物	化学構造
(43)	

10

20

【0039】

ところで、有機EL素子は、陽極と陰極間に一層または多層の有機層を形成した素子から構成されるが、ここで、一層型有機EL素子とは、陽極と陰極との間に発光層のみからなる素子を指す。一方、多層型有機EL素子とは、発光層の他に、発光層への正孔や電子の注入を容易にしたり、発光層内での正孔と電子との再結合を円滑に行わせたりすることを目的として、正孔注入層、正孔輸送層、正孔阻止層、電子注入層などを積層させたものを指す。したがって、多層型有機EL素子の代表的な素子構成としては、(1)陽極/正孔注入層/発光層/陰極、(2)陽極/正孔注入層/正孔輸送層/発光層/陰極、(3)陽極/正孔注入層/発光層/電子注入層/陰極、(4)陽極/正孔注入層/正孔輸送層/発光層/電子注入層/陰極、(5)陽極/正孔注入層/発光層/正孔阻止層/電子注入層/陰極、(6)陽極/正孔注入層/正孔輸送層/発光層/正孔阻止層/電子注入層/陰極、(7)陽極/発光層/正孔阻止層/電子注入層/陰極、(8)陽極/発光層/電子注入層/陰極等の多層構成で積層した素子構成が考えられる。

30

ここで、正孔注入層には、発光層に対して優れた正孔注入効果を示し、かつ陽極界面との密着性と薄膜形成性に優れた正孔注入層を形成できる正孔注入材料が用いられる。また、このような材料を多層積層させ、正孔注入効果の高い材料と正孔輸送効果の高い材料とを多層積層させた場合、それぞれに用いる材料を正孔注入材料、正孔輸送材料と呼ぶことがある。これまでに用いられている正孔注入材料あるいは正孔輸送材料の例としては、フタロシアニン誘導体、ナフトロシアニン誘導体、ポルフィリン誘導体、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、イミダゾロン誘導体、イミダゾールチオン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラゾロン誘導体、テトラヒドロイミダゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、ヒドラゾン誘導体、アシルヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、芳香族三級アミン誘導体、ポリビニルカルバゾール誘導体、ポリシラン誘導体等が挙げられる。

40

【0040】

上記材料の中でも特に好適に使用することのできる正孔注入材料あるいは正孔輸送材料としては、芳香族三級アミン誘導体およびフタロシアニン誘導体があげられる。芳香族三級アミン誘導体としては、例えば、N, N'-ジフェニル-N, N'-(3-メチルフェニル)-1, 1'-ビフェニル-4, 4'-ジアミン、N, N, N', N'-(4-メチ

50

ルフェニル) - 1, 1' - フェニル - 4, 4' - ジアミン、N, N', N', N' - (4 - メチルフェニル) - 1, 1' - ビフェニル - 4, 4' - ジアミン、N, N' - ジフェニル - N, N' - ジナフチル - 1, 1' - ビフェニル - 4, 4' - ジアミン、N, N' - (メチルフェニル) - N, N' - (4 - n - プチルフェニル) - フェナントレン - 9, 10 - ジアミン、N, N - ビス(4 - ジ - 4 - トリルアミノフェニル) - 4 - フェニル - シクロヘキサン、およびこれら芳香族三級アミン骨格を有するオリゴマーまたはポリマーがあげられ、これらは正孔注入材料、正孔輸送材料の何れにも使用される。

【0041】

本発明の一般式 [1] で表される化合物は、正孔に対して高い輸送性能をもつ化合物であり、正孔注入材料、正孔輸送材料の何れにも好適に使用することができる。

電子注入層には、発光層に対して優れた電子注入効果を示し、かつ陰極界面との密着性と薄膜形成性に優れた電子注入層を形成できる電子注入材料が用いられる。そのような電子注入材料の例としては、金属錯体化合物、含窒素五員環誘導体、フルオレノン誘導体、アントラキノジメタン誘導体、ジフェノキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、ペリレンテトラカルボン酸誘導体、フレオレニリデンメタン誘導体、アントロン誘導体、シロール誘導体、カルシウムアセチルアセトナート、酢酸ナトリウムなどが挙げられる。また、セシウム等の金属をバソフェナントロリンにドーブした無機/有機複合材料(高分子学会予稿集, 第50巻, 4号, 660頁, 2001年発行に記載)や第50回応用物理学関連連合講演会講演予稿集, No. 3, 1402頁, 2003年発行記載のBCP、TPP、T5MPyTZ等も電子注入材料の例としてあげられるが、素子作成に必要な薄膜を形成し、陰極からの電子を注入できて、電子を輸送できる材料であれば、特にこれらに限定されるものではない。

【0042】

上記電子注入材料の中でも特に効果的な電子注入材料としては、金属錯体化合物または含窒素五員環誘導体があげられる。本発明に使用可能な電子注入材料の内、好ましい金属錯体化合物としては、トリス(8 - ヒドロキシキノリナート)アルミニウム、トリス(2 - メチル - 8 - ヒドロキシキノリナート)アルミニウム、トリス(5 - フェニル - 8 - ヒドロキシキノリナート)アルミニウム、ビス(8 - ヒドロキシキノリナート)(1 - ナフトラート)アルミニウム、ビス(8 - ヒドロキシキノリナート)(2 - ナフトラート)アルミニウム、ビス(8 - ヒドロキシキノリナート)(フェノラート)アルミニウム、ビス(8 - ヒドロキシキノリナート)(4 - シアノ - 1 - ナフトラート)アルミニウム、ビス(4 - メチル - 8 - ヒドロキシキノリナート)(1 - ナフトラート)アルミニウム、ビス(5 - メチル - 8 - ヒドロキシキノリナート)(2 - ナフトラート)アルミニウム、ビス(5 - フェニル - 8 - ヒドロキシキノリナート)(フェノラート)アルミニウム、ビス(5 - シアノ - 8 - ヒドロキシキノリナート)(4 - シアノ - 1 - ナフトラート)アルミニウム、ビス(8 - ヒドロキシキノリナート)クロロアルミニウム、ビス(8 - ヒドロキシキノリナート)(o - クレゾラート)アルミニウム等のアルミニウム錯体化合物、トリス(8 - ヒドロキシキノリナート)ガリウム、トリス(2 - メチル - 8 - ヒドロキシキノリナート)ガリウム、トリス(2 - メチル - 5 - フェニル - 8 - ヒドロキシキノリナート)ガリウム、ビス(2 - メチル - 8 - ヒドロキシキノリナート)(1 - ナフトラート)ガリウム、ビス(2 - メチル - 8 - ヒドロキシキノリナート)(2 - ナフトラート)ガリウム、ビス(2 - メチル - 8 - ヒドロキシキノリナート)(フェノラート)ガリウム、ビス(2 - メチル - 8 - ヒドロキシキノリナート)(4 - シアノ - 1 - ナフトラート)ガリウム、ビス(2, 4 - ジメチル - 8 - ヒドロキシキノリナート)(1 - ナフトラート)ガリウム、ビス(2, 5 - ジメチル - 8 - ヒドロキシキノリナート)(2 - ナフトラート)ガリウム、ビス(2 - メチル - 5 - フェニル - 8 - ヒドロキシキノリナート)(フェノラート)ガリウム、ビス(2 - メチル - 5 - シアノ - 8 - ヒドロキシキノリナート)(4 - シアノ - 1 - ナフトラート)ガリウム、ビス(2 - メチル - 8 - ヒドロキシキノリナート)クロロガリウム、ビス(2 - メチル - 8 - ヒドロキシキノリナート)(o - クレゾラート)ガリウム等のガリウム錯体化合物の他、8 - ヒドロキシキノリナートリチウム、ビス(8

- ヒドロキシキノリナート)銅、ビス(8-ヒドロキシキノリナート)マンガン、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリナート)ベリリウム、ビス(8-ヒドロキシキノリナート)亜鉛、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリナート)亜鉛等の金属錯体化合物があげられる。

【0043】

また、本発明に使用可能な電子注入材料の内、好ましい含窒素五員環誘導体としては、オキサゾール誘導体、チアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、チアジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体があげられ、具体的には、2,5-ビス(1-フェニル)-1,3,4-オキサゾール、2,5-ビス(1-フェニル)-1,3,4-チアゾール、2,5-ビス(1-フェニル)-1,3,4-オキサジアゾール、2-(4'-tert-ブチルフェニル)-5-(4"-ピフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール、2,5-ビス(1-ナフチル)-1,3,4-オキサジアゾール、1,4-ビス[2-(5-フェニルオキサジアゾリル)]ベンゼン、1,4-ビス[2-(5-フェニルオキサジアゾリル)-4-tert-ブチルベンゼン]、2-(4'-tert-ブチルフェニル)-5-(4"-ピフェニル)-1,3,4-チアジアゾール、2,5-ビス(1-ナフチル)-1,3,4-チアジアゾール、1,4-ビス[2-(5-フェニルチアジアゾリル)]ベンゼン、2-(4'-tert-ブチルフェニル)-5-(4"-ピフェニル)-1,3,4-トリアゾール、2,5-ビス(1-ナフチル)-1,3,4-トリアゾール、1,4-ビス[2-(5-フェニルトリアゾリル)]ベンゼン等があげられる。

【0044】

さらに、正孔阻止層には、発光層を經由した正孔が電子注入層に達するのを防ぎ、薄膜形成性に優れた層を形成できる正孔阻止材料が用いられる。そのような正孔阻止材料の例としては、ビス(8-ヒドロキシキノリナート)(4-フェニルフェノラート)アルミニウム等のアルミニウム錯体化合物や、ビス(2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート)(4-フェニルフェノラート)ガリウム等のガリウム錯体化合物、2,9-ジメチル-4,7-ジフェニル-1,10-フェナントロリン(BCP)等の含窒素縮合芳香族化合物があげられる。

【0045】

さらに、本発明の有機EL素子の陽極に使用される材料は、炭素、アルミニウム、バナジウム、鉄、コバルト、ニッケル、タングステン、銀、金、白金、パラジウム等の金属およびそれらの合金、酸化亜鉛、酸化錫、酸化インジウム、酸化錫インジウム(ITO)等の導電性金属酸化物、ポリチオフェン、ポリピロール、ポリアニリン等の導電性ポリマー等があげられる。特に本発明の有機EL素子の陽極に使用される導電性材料としては、できるだけ抵抗値の低いものが好ましく、ITOガラス、NESAGラスが好適に使用される。

【0046】

また、本発明の有機EL素子の陰極に使用される材料は、電子を効率よく有機EL素子に注入できる材料であれば特に限定されないが、一般に、白金、金、銀、銅、鉄、錫、亜鉛、アルミニウム、インジウム、クロム、リチウム、ナトリウム、カリウム、カルシウム、マグネシウムおよびこれらの合金があげられる。ここで、合金としては、マグネシウム/銀、マグネシウム/インジウム、リチウム/アルミニウム等が代表例としてあげられるが、リチウム、ナトリウム、カリウム、カルシウム、マグネシウムなどの低仕事関数金属を含む合金が好ましい。また、フッ化リチウムのような無機塩を上記低仕事関数金属の代わりに使用することも可能である。また、これら陰極の作成方法としては、抵抗加熱、電子線ビーム照射、スパッタリング、イオンプレーティング、コーティングなどの業界公知の方法で作成することができる。以上述べた陽極および陰極は、必要に応じて二層以上の層構成により形成されていても良い。

【0047】

本発明の有機EL素子からの発光を効率よく取り出すためには、発光を取り出す面の基板の材質が充分透明であることが望ましく、具体的には素子からの発光の発光波長領域に

10

20

30

40

50

おける透過率が50%以上、好ましくは90%以上であることが望ましい。これら基板は、機械的、熱的強度を有し、透明であれば特に限定されるものではないが、例えば、ガラスの他、ポリエチレン、ポリエーテルスルホン、ポリプロピレン等の透明性ポリマーが推奨される。

【0048】

また、本発明の有機EL素子の各層の形成方法としては、真空蒸着、電子線ビーム照射、スパッタリング、プラズマ、イオンプレーティング等の乾式成膜法、もしくはスピニング、ディッピング、フローコーティング等の湿式成膜法のいずれかの方法を適用することができる。各層の膜厚は特に限定されるものではないが、膜厚が厚すぎると一定の光出力を得るために大きな印加電圧が必要となり効率が悪くなり、逆に膜厚が薄すぎるとピンホール等が発生し、電界を印加しても十分な発光輝度が得にくくなる。したがって、各層の膜厚は、1nmから1 μ mの範囲が適しているが、10nmから0.2 μ mの範囲がより好ましい。

また、有機EL素子の温度、湿度、雰囲気等に対する安定性向上のために、素子の表面に保護層を設けたり、樹脂等により素子全体を被覆や封止を施したりしても良い。特に素子全体を被覆や封止する際には、光によって硬化する光硬化性樹脂が好適に使用される。

【0049】

以上述べたように、本発明の化合物を正孔注入層あるいは正孔輸送層に用いた有機EL素子は、低い駆動電圧で長時間の発光を得ることが可能である。故に、本有機EL素子は、壁掛けテレビ等のフラット・パネル・ディスプレイや各種の平面発光体として、さらには、複写機やプリンター等の光源、液晶ディスプレイや計器類等の光源、表示板、標識灯等への応用が考えられる。

【実施例】

【0050】

以下、本発明を実施例に基づき更に詳細に説明する。

先ず、本発明の化合物の合成例を示す。

【0051】

化合物1の合成

アントラキノン41.6g、錫粉100gを酢酸428g中に添加し、還流状態となるまで加熱を行った。次に、還流加熱下に濃塩酸244gを滴下し、滴下終了後に室温まで冷却した。反応物を水800g中に注入し、室温下に30分間攪拌した後に析出物のろ過、水洗、乾燥を行う。乾燥して得られた粉末をトルエンから再結晶させることにより、淡黄色粉末状態のピアントリル18.8gを得た。このピアントリル17.7g及びN-ブromosuccinimide 19.6gを四塩化炭素565g中に添加し、50まで加熱を行った。この温度において沃素2.8gを添加した後に加熱還流下に4時間反応させた。室温まで冷却した後にろ過を行い、口液から溶媒を減圧溜去することにより褐色粉末が得られた。この粉末に対して、シリカゲルを吸着剤、トルエンを溶離液とするカラムクロマトグラフィーによる精製を施し、ピアントリルに臭化物の黄色針状晶10.4gを得た。この結晶10.2g、アニリン4.5g、酢酸パラジウム0.2g、トリ(t-ブチル)フォスフィン0.9g、炭酸カリウム9.9gをトルエン75g中に添加し、加熱還流下に3.5時間反応させた。次に、反応物をメタノール400ml中に注入し、室温下に攪拌した後に析出物をろ過し、メタノール洗浄を行った。得られた結晶を水300ml中に懸濁させ、室温下に攪拌した後に、ろ過、水洗、乾燥を施し、ジアニリノピアントリルの淡黄色粉末8.7gを得た。この結晶5.4g、4-ブromo-N,N-ジフェニルアニリン6.3g、酢酸パラジウム0.2g、トリ(t-ブチル)フォスフィン0.7g、t-ブトキシナトリウム1.9gをトルエン55g中に添加し、加熱還流下に5時間反応させた。次に、反応物をメタノール200ml中に注入し、室温下に1時間攪拌した。析出物に対してろ過、メタノール洗浄を行うことにより淡褐色粉末3.7gを得た。この結晶に対して、シリカゲルを吸着剤、トルエンを溶離液とするカラムクロマトグラフィーによる精製を施すことにより淡黄色粉末を得た。この結晶が化合物1であることを、質量分析、赤外

分光分析及び炭素、水素、窒素に関する元素分析の結果から確認した。
元素分析の結果を次に示す。

【0052】

$C_{76}H_{54}N_4$ として、

	炭素	水素	窒素
計算値 (%)	89.21	5.32	5.48
実測値 (%)	89.03	5.41	5.72

【0053】

次に、本発明の化合物を含んで成る有機EL素子作製の実施例を示す。本例では、混合比は全て重量比である。また、電極面積 $2\text{ mm} \times 2\text{ mm}$ の有機EL素子の特性を測定した。

実施例 1

洗浄したITO電極付きガラス板上に、表1の化合物(1)とポリビニルカルバゾール(PVK)を1:1の重量比で1,2-ジクロロエタンに溶解させ、スピコート法により膜厚50nmの正孔注入層を得た。次に、トリス(8-ヒドロキシキノリナート)アルミニウム錯体(Alq3)を蒸着し膜厚60nmの電子注入型発光層を作成し、その上に、マグネシウムと銀を10:1で混合した合金で膜厚100nmの電極を形成して有機EL素子を得た。各層は 10^{-6} Torrの真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。この素子の発光特性は、直流電圧10Vでの発光輝度4800(cd/m^2)、最大発光輝度7800(cd/m^2)、発光効率1.4(lm/W)を示した。また、発光輝度500(cd/m^2)で定電流駆動したときの半減寿命は2900時間であった。

【0054】

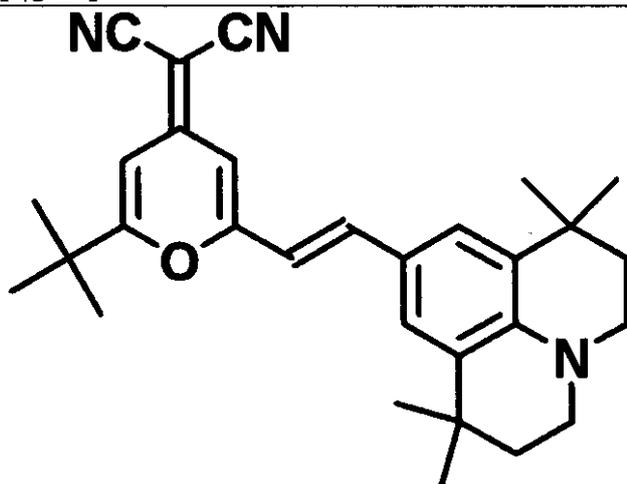
実施例 2

洗浄したITO電極付きガラス板上に、表1の化合物(2)とポリビニルカルバゾール(PVK)を1:1の重量比で1,2-ジクロロエタンに溶解させ、スピコート法により膜厚50nmの正孔注入層を得た。次いで、トリス(8-ヒドロキシキノリナート)アルミニウム錯体(Alq3)とDCJTBが50:1から成る混合物を蒸着し、膜厚60nmの電子注入型発光層を作成し、その上にまず、リチウム(Li)とアルミニウム(Al)を1:99(重量比)で混合した合金で膜厚50nm、さらにアルミニウムのみを150nm真空蒸着して電極を形成して有機EL素子を得た。この素子は、直流電圧10Vでの発光輝度4300(cd/m^2)、最大発光輝度6600(cd/m^2)、発光効率1.2(lm/W)の発光特性を示した。また、発光輝度500(cd/m^2)で定電流駆動したときの半減寿命は2700時間であった。

【0055】

DCJTB

【化2】



40

50

【0056】

実施例3～6

洗浄したITO電極付きガラス板上に、表1の化合物を真空蒸着して膜厚20nmの正孔注入層を作製した後、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ピフェニル(-NPD)を真空蒸着して膜厚40nmの正孔輸送層を作製した。次に、トリス(8-ヒドロキシキノリナート)アルミニウム錯体(Alq3)とルブレンが100:5から成る混合物を蒸着し、膜厚60nmの電子注入型発光層を作製し、次いでAlq3を蒸着して膜厚30nmの電子注入層を得た。その上に、マグネシウムと銀とを10:1で混合した合金で膜厚200nmの電極を形成して有機EL素子を得た。各層は 10^{-6} Torrの真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。これらの素子の発光特性を表2に示す。また、発光輝度500(cd/m^2)で定電流駆動したときの半減寿命は何れの場合にも3000時間以上であった。

【0057】

【表2】

実施例	化合物	10Vでの発光輝度(cd/m^2)	最大発光輝度(cd/m^2)	最大発光効率(lm/W)
3	3	3100	23100	2.4
4	4	3800	24200	2.8
5	5	3300	31400	3.1
6	6	2800	29700	2.6

【0058】

実施例7～10

洗浄したITO電極付きガラス板上に、表1の化合物を真空蒸着して膜厚40nmの正孔注入層を作製した後、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ピフェニル(-NPD)を真空蒸着して膜厚40nmの正孔輸送層を作製した。次に、キナクリドンとAlq3を1:50の組成比で共蒸着して膜厚30nmの発光層を得た。さらにAlq3を蒸着して膜厚30nmの電子注入層を得た。その上に、マグネシウムと銀とを10:1で混合した合金で膜厚200nmの電極を形成して有機EL素子を得た。各層は 10^{-6} Torrの真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。これらの素子の発光特性を表3に示す。また、発光輝度500(cd/m^2)で定電流駆動したときの半減寿命は何れの場合にも3000時間以上であった。

【0059】

【表3】

実施例	化合物	10Vでの発光輝度(cd/m^2)	最大発光輝度(cd/m^2)	最大発光効率(lm/W)
7	7	2600	23900	2.2
8	11	3300	31700	2.8
9	12	3100	22900	3.1
10	13	2800	28700	2.6

【0060】

10

20

30

40

50

実施例 11 ~ 14

洗浄したITO電極付きガラス板上に、表1の化合物を真空蒸着して膜厚30nmの正孔注入層を形成した後、トリス(8-ヒドロキシキノリナート)アルミニウム錯体(Alq3)とDCJTBが50:1から成る混合物を蒸着し、膜厚30nmの発光層を得た。次いでAlq3を蒸着して膜厚30nmの電子注入層を得た。その上に、マグネシウムと銀を10:1(重量比)で混合した合金で膜厚250nmの電極を形成して有機EL素子を得た。各層は 10^{-6} Torrの真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。これらの素子の発光特性を表4に示す。また、発光輝度500(cd/m^2)で定電流駆動したときの半減寿命は何れの場合にも3000時間以上であった。

【0061】

【表4】

実施例	化合物	10Vでの発光輝度(cd/m^2)	最大発光輝度(cd/m^2)	最大発光効率(lm/W)
11	14	2900	23300	2.3
12	18	4100	33200	3.3
13	30	2600	24800	2.7
14	32	3700	28400	3.1

【0062】

実施例 15

洗浄したITO電極付きガラス板上に、表1の化合物(35)を真空蒸着して膜厚20nmの正孔注入層を得た。次いで、DCJTBとAlq3を1:50の重量比で共蒸着して膜厚40nmの発光層を作成し、さらに、ビス(2-メチル-5-フェニル-8-ヒドロキシキノリナート)(フェノラート)ガリウム錯体を真空蒸着して膜厚30nmの電子注入層を作成し。その上に、先ずフッ化リチウム(LiF)を0.5nm、さらにアルミニウム(Al)を200nm真空蒸着によって電極を形成して有機EL素子を得た。各層は 10^{-6} Torrの真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。この素子は直流電圧10Vでの発光輝度3800(cd/m^2)、最大発光輝度29700(cd/m^2)、発光効率2.3(lm/W)の発光が得られた。また、発光輝度500(cd/m^2)で定電流駆動したときの半減寿命は4100時間であった。

【0063】

実施例 16

洗浄したITO電極付きガラス板上に、表1の化合物(36)を真空蒸着して膜厚60nmの正孔注入層を得た。次いで、次いで、 m^{m} -NPDを真空蒸着して膜厚30nmの正孔輸送層を得た。次に、Alq3を蒸着して膜厚40nmの電子注入型発光層を得た。次いで2,9-ジメチル4,7-ジフェニル-1,10-フェナントロリンを蒸着して膜厚5nmの電子注入層を得た。さらにその上に、リチウムを0.3nmの膜厚で蒸着した後、銀を蒸着して膜厚160nmの電極を形成して有機EL素子を得た。この素子は、直流電圧10Vで発光輝度3100(cd/m^2)、最大発光輝度33400(cd/m^2)及び発光効率2.8(lm/W)の発光特性を示した。また、発光輝度500(cd/m^2)で定電流駆動したときの半減寿命は3600時間であった。

【0064】

実施例 17

洗浄したITO電極付きガラス板上に、表1の化合物(37)を真空蒸着して、膜厚60nmの正孔注入層を得た。次いで、 m^{m} -NPDを真空蒸着して、膜厚20nmの正孔輸送層を得た。さらに、トリス(8-ヒドロキシキノリナート)アルミニウム錯体(Alq3

10

20

30

40

50

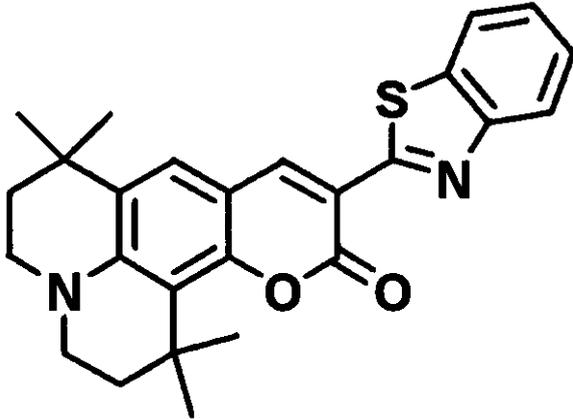
3) とクマリン545Tが50:1の比率からなる混合物を蒸着して膜厚30nmの発光層を作製した後、さらに、Alq3を真空蒸着して膜厚30nmの電子注入層を作製した。その上に、LiFを0.2nm、次いでAlを150nm真空蒸着することで電極を形成して、有機EL素子を得た。各層は 10^{-6} Torrの真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。この素子は、直流電圧10Vでの発光輝度4300(cd/m^2)、最大発光輝度38800(cd/m^2)、発光効率2.4(lm/W)の発光が得られた。また、発光輝度500(cd/m^2)で定電流駆動したときの半減寿命は3300時間であった。

【0065】

クマリン545T

10

【化3】



20

【0066】

比較例1

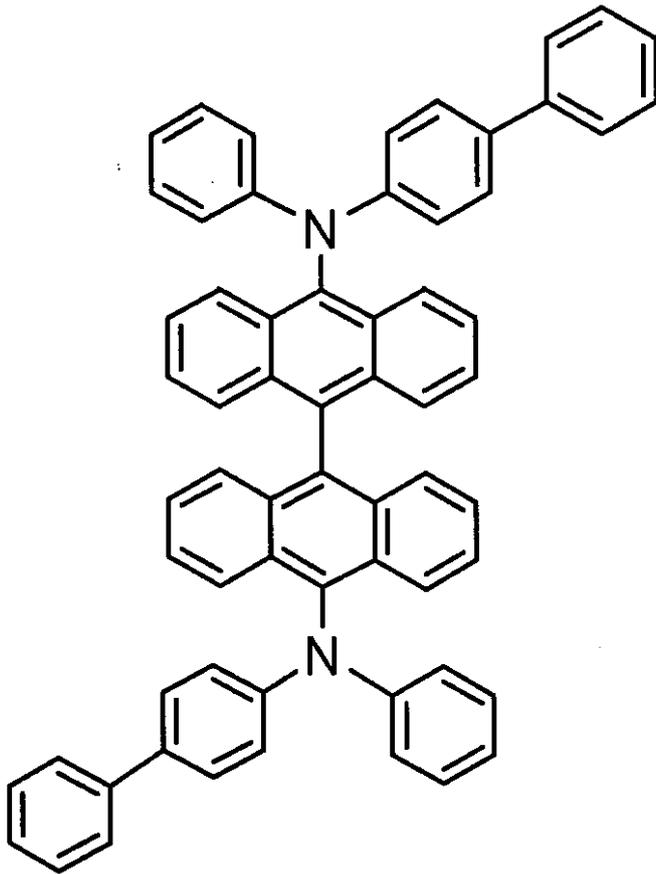
発光層として、表2の化合物の代わりに下記に示す比較化合物1を蒸着した膜厚30nmの薄膜を設ける以外は、実施例11と同様の方法で有機EL素子を作製した。この素子は、直流電圧10Vでの発光輝度1600(cd/m^2)、最大発光輝度8800(cd/m^2)、発光効率1.2(lm/W)の発光が得られた。また、発光輝度500(cd/m^2)で定電流駆動したときの半減寿命は700時間であった。

30

【0067】

比較化合物1

【化 4】



10

20

【0068】

比較例 2

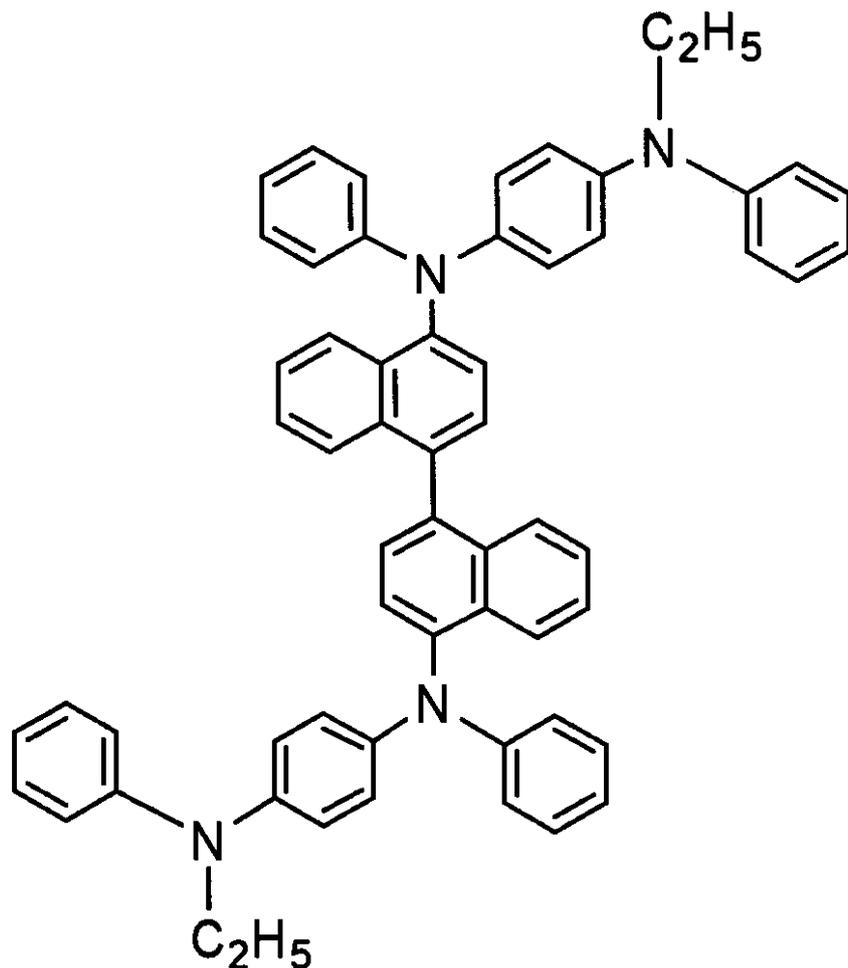
発光層として、表 2 の化合物の代わりに下記に示す比較化合物 2 を蒸着した膜厚 30 nm の薄膜を設ける以外は、実施例 11 と同様の方法で有機 EL 素子を作製した。この素子は、直流電圧 10 V での発光輝度 1200 (cd/m²)、最大発光輝度 7200 (cd/m²)、発光効率 0.8 (lm/W) の発光が得られた。また、発光輝度 500 (cd/m²) で定電流駆動したときの半減寿命は 600 時間であった。

30

【0069】

比較化合物 2

【化 5】



10

20

【0070】

比較例 3

30

発光層として、表 2 の化合物の代わりに 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した膜厚 30 nm の薄膜を設ける以外は、実施例 11 と同様の方法で有機 EL 素子を作製した。この素子は、直流電圧 10 V での発光輝度 1300 (cd/m²)、最大発光輝度 9300 (cd/m²)、発光効率 0.9 (lm/W) の発光が得られた。また、発光輝度 500 (cd/m²) で定電流駆動したときの半減寿命は 800 時間であった。

フロントページの続き

(72)発明者 八木 弾生

東京都中央区京橋二丁目3番13号 東洋インキ製造株式会社内

Fターム(参考) 3K007 AB03 AB12 DB03 EA02

4H006 AA03 AB91