(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号

特許第3714980号

(P3714980)

(45)発行日　平成17年11月9日(2005.11.9)　(24)登録日　平成17年9月2日(2005.9.2)

| (51)Int.Cl.[7] | F I |
|---|---|
| C07C 217/92 | C07C 217/92 |
| C07C 225/22 | C07C 225/22 |
| C07C 275/40 | C07C 275/40 |
| C07C 317/36 | C07C 317/36 |
| C07C 323/37 | C07C 323/37 |

請求項の数 6　(全 30 頁)　最終頁に続く

(21)出願番号　特願平6-259688
(22)出願日　平成6年9月30日(1994.9.30)
(65)公開番号　特開平8-99941
(43)公開日　平成8年4月16日(1996.4.16)
審査請求日　平成13年8月8日(2001.8.8)

(73)特許権者　000005315
保土谷化学工業株式会社
神奈川県川崎市幸区堀川町６６番地２
(72)発明者　富山裕光
茨城県つくば市御幸が丘４５番地　保土谷化学工業株式会社筑波研究所内
(72)発明者　中西直子
茨城県つくば市御幸が丘４５番地　保土谷化学工業株式会社筑波研究所内
(72)発明者　伊原郁子
茨城県つくば市御幸が丘４５番地　保土谷化学工業株式会社筑波研究所内

審査官　前田　憲彦

最終頁に続く

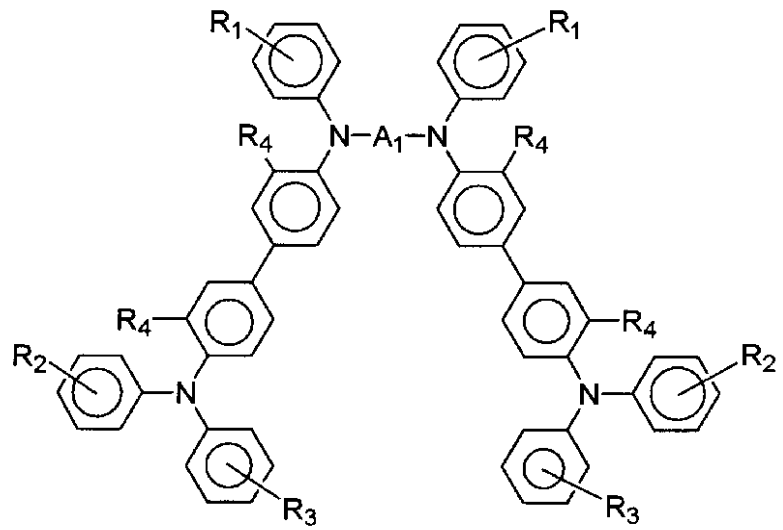
(54)【発明の名称】アミン化合物

(57)【特許請求の範囲】

【請求項１】

下記一般式（１）で表されるアミン化合物。

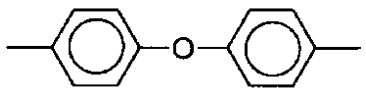
【化１】



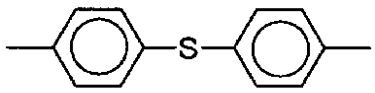

（１）

（式中、Ｒ１、Ｒ２、Ｒ３は同一でも異なっていても良く、水素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基またはフェニル基を表し、Ｒ４は水素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基または塩素原子を表し、Ａ１は下記式で表される２価基を表す。）

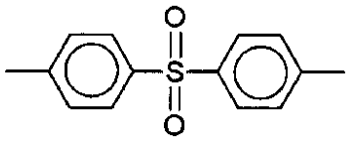
【化２】



【化３】



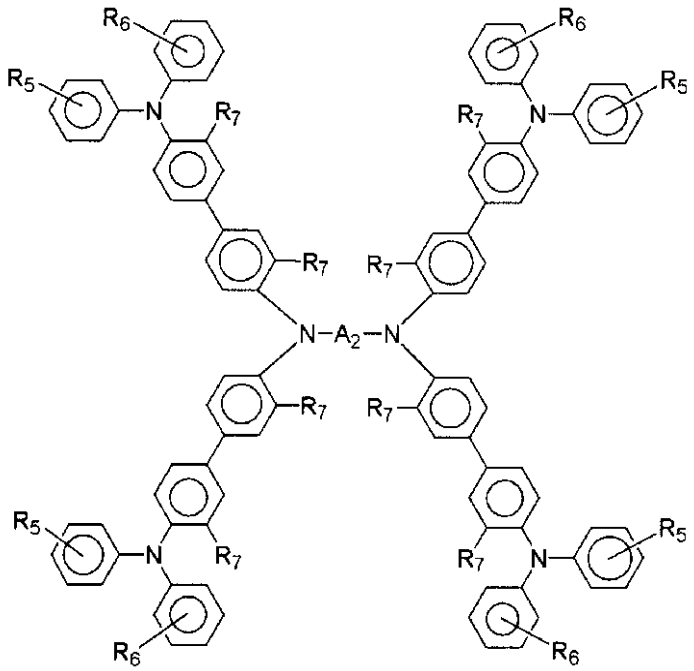
【化４】



【請求項２】

下記一般式（２）で表されるアミン化合物。

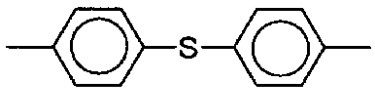
【化５】



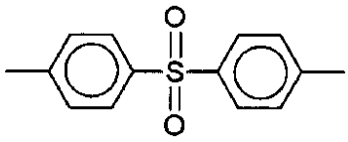
（２）

（式中、Ｒ５、Ｒ６は同一でも異なっていても良く、水素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基またはフェニル基を表し、Ｒ７は水素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基または塩素原子を表し、Ａ２は下記式で表される２価基を表す。）

【化６】



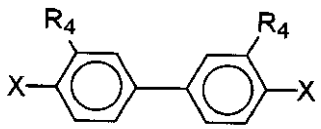
【化７】



【請求項３】

下記一般式（Ｂ）で表される４，４’－ジハロゲン化ビフェニル化合物と下記一般式（Ｃ）で表されるアニリド化合物を等量で縮合させ、下記一般式（Ｄ）で表される４’－ハロゲン化ビフェニリルアセトアニリド化合物を合成し、この４’－ハロゲン化ビフェニリルアセトアニリド化合物と下記一般式（Ｅ）で表されるジフェニルアミン化合物を縮合させた後、加水分解することによって、下記一般式（Ｆ）で表されるトリフェニルベンジジン化合物を合成し、更に、このトリフェニルベンジジン化合物の２当量と下記一般式（Ｇ）で表されるジハロゲン化物の１当量を縮合させることによって合成することを特徴とする、下記一般式（１）で表されるアミン化合物の製造方法。

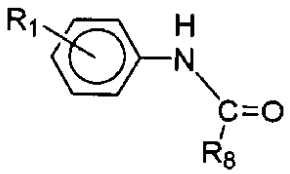
【化８】



（Ｂ）

（式中、Ｒ４は上で定義した通りであり、Ｘは塩素原子、臭素原子またはヨウ素原子を表す。但し、Ｒ４とＸが同時に塩素原子ではない。）

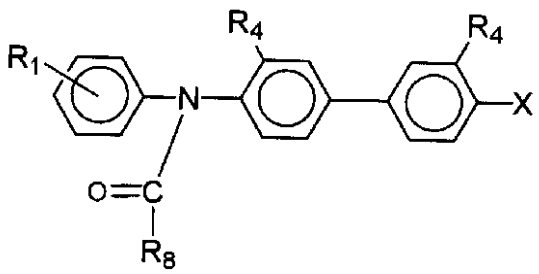
【化９】



（Ｃ）

（式中、Ｒ１は上で定義した通りであり、Ｒ８はメチル基またはフェニル基を表す。）

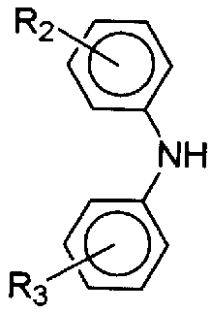
【化１０】



（Ｄ）

（式中、Ｒ１、Ｒ４、Ｒ８、Ｘは上で定義した通りである。但し、Ｒ４とＸが同時に塩素原子ではない。）

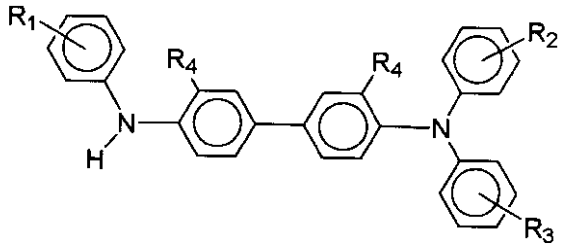
【化１１】



（Ｅ）

（式中、Ｒ２、Ｒ３は上で定義した通りである。）

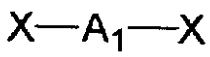
【化１２】



（Ｆ）

（式中、Ｒ１、Ｒ２、Ｒ３、Ｒ４は上で定義した通りである。）

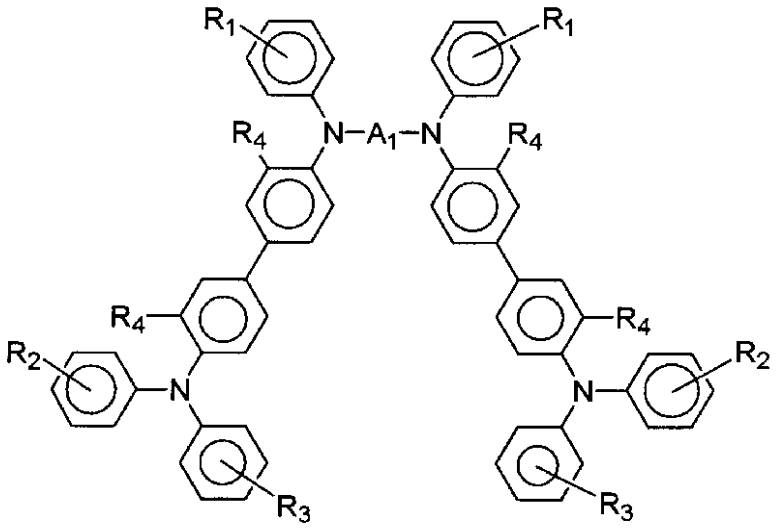
【化１３】



（Ｇ）

（式中、Ｘ及びＡ１は上で定義した通りである。）

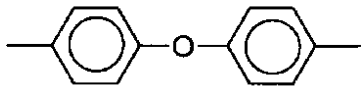
【化１４】



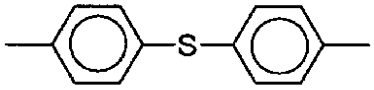
（１）

（式中、Ｒ１、Ｒ２、Ｒ３は同一でも異なっていても良く、水素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基またはフェニル基を表し、Ｒ４は水素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基または塩素原子を表し、Ａ１は下記式で表される２価基を表す。）

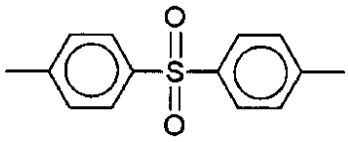
【化１５】



【化１６】



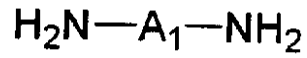
【化１７】



【請求項４】

下記一般式（Ｈ）で表されるジアミノ化合物をアセチル化によってジアセチル体とし、下記一般式（Ｉ）で表されるハロゲン化アリールと縮合させた後、加水分解して下記一般式（Ｊ）で表されるジアリールジアミノ化合物を合成し、このジアリールジアミノ化合物に、ジハロゲン化ビフェニル化合物とアニリド化合物より合成した下記一般式（Ｋ）で表される４’－ハロゲン化ビフェニリルアセトアニリド化合物を縮合させた後、加水分解することによって、下記一般式（３）で表されるテトラアミン化合物を合成し、更にこのテトラアミン化合物に、下記一般式（Ｌ）で表されるハロゲン化アリールを縮合させることによって合成することを特徴とする、下記一般式（１）で表されるアミン化合物の製造方法。

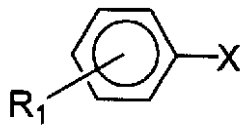
【化１８】



（Ｈ）

（式中、Ａ１は上で定義した通りである。）

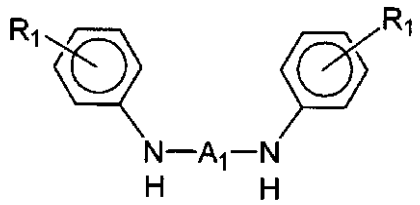
【化１９】



（Ｉ）

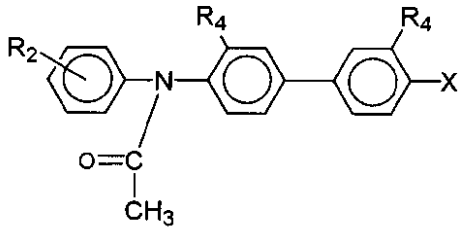
（式中、Ｒ１及びＸは上で定義した通りである。）

【化２０】



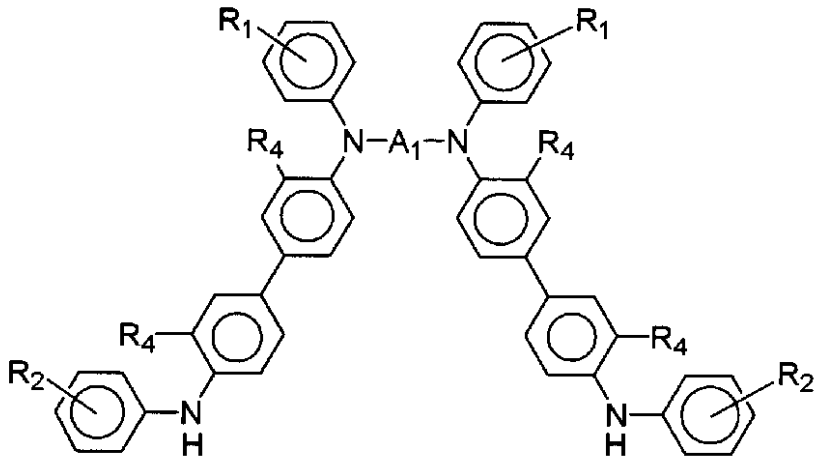
（Ｊ）
（式中、Ｒ１及びＡ１は上で定義した通りである。）

【化２１】



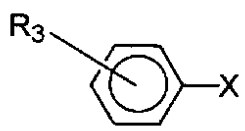
（Ｋ）
（式中、Ｒ２、Ｒ４、Ｘは上で定義した通りである。但し、Ｒ４とＸが同時に塩素原子ではない。）

【化２２】



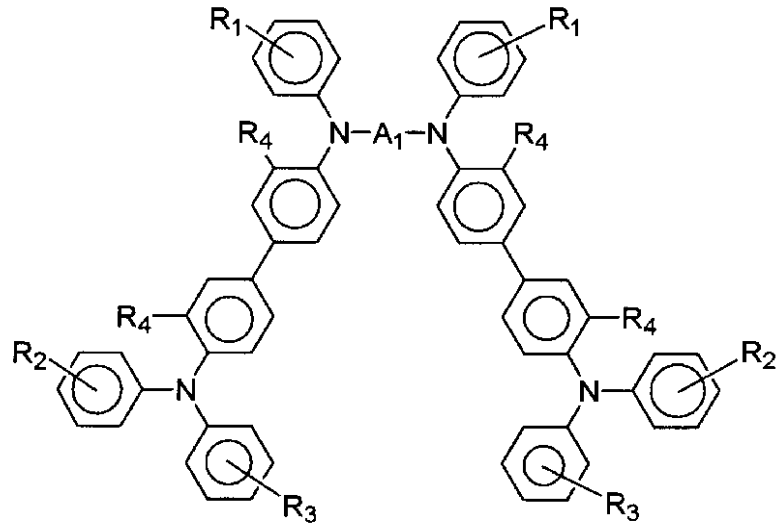
（３）
（式中、Ｒ１、Ｒ２、Ｒ４及びＡ１は上で定義した通りである。）

【化２３】



（Ｌ）
（式中、Ｒ３及びＸは上で定義した通りである。）

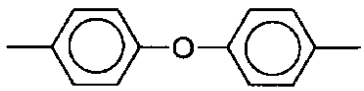
【化２４】



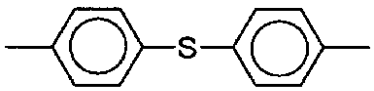
（１）

（式中、Ｒ１、Ｒ２、Ｒ３は同一でも異なっていても良く、水素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基またはフェニル基を表し、Ｒ４は水素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基または塩素原子を表し、Ａ１は下記式で表される２価基を表す。）

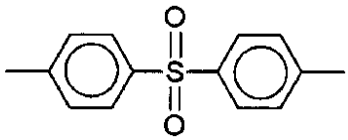
【化２５】



【化２６】



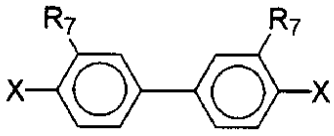
【化２７】



【請求項５】

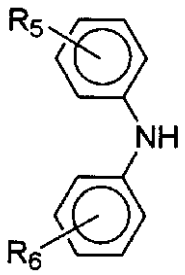
下記一般式（Ｍ）で表される４，４’－ジハロゲン化ビフェニル化合物と下記一般式（Ｎ）で表されるジフェニルアミン化合物を当量で縮合させて、下記一般式（Ｏ）で表される４’－ハロゲン化ビフェニリルジフェニルアミン化合物を合成し、この４’－ハロゲン化ビフェニリルジフェニルアミン化合物の４当量と下記一般式（Ｐ）で表されるジアミン化合物の１当量を縮合することによって合成することを特徴とする、下記一般式（２）で表されるアミン化合物の製造方法。

【化２８】



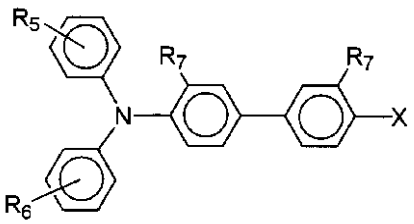
（Ｍ）
（式中、Ｒ７及びＸは上で定義した通りである。但し、Ｒ７とＸは同時に塩素原子ではない。）

【化２９】



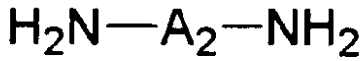
（Ｎ）
（式中、Ｒ５、Ｒ６は上で定義した通りである。）

【化３０】



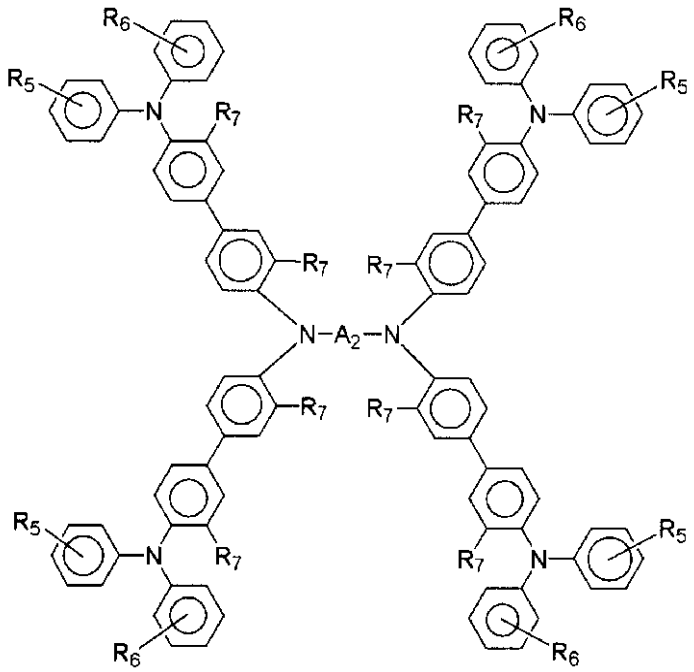
（Ｏ）
（式中、Ｒ５、Ｒ６、Ｒ７、Ｘは上で定義した通りである。但し、Ｒ７とＸは同時に塩素原子ではない。）

【化３１】



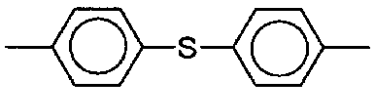
（Ｐ）
（式中、Ａ２は上で定義した通りである。）

【化３２】

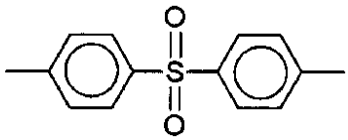


（２）
（式中、Ｒ５、Ｒ６は同一でも異なっていても良く、水素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基またはフェニル基を表し、Ｒ７は水素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基、または塩素原子を表し、Ａ２は下記式で表される２価基を表す。）

【化３３】

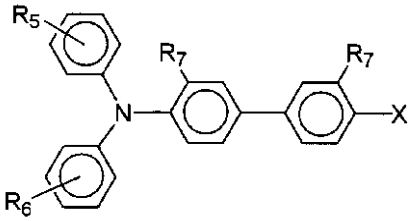


【化３４】



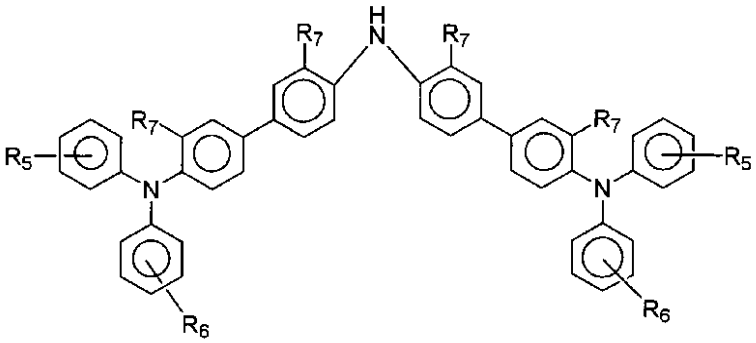
【請求項６】
ジハロゲン化ビフェニル化合物とジフェニルアミン化合物より合成した下記一般式（Ｏ）で表される４’－ハロゲン化ビフェニリルジフェニルアミン化合物の２当量とアセトアミドまたはベンズアミドの１当量を縮合させ、加水分解することによって、下記一般式（Ｑ）で表されるトリアミン化合物を合成し、更に、このトリアミン化合物の２当量と下記一般式（Ｒ）で表されるジハロゲン化物の１当量を縮合させることによって合成することを特徴とする、下記一般式（２）で表されるアミン化合物の製造方法。

【化３５】



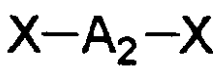
（Ｏ）
（式中、Ｒ５、Ｒ６、Ｒ７、及びＸは上で定義した通りである。但し、Ｒ７とＸは同時に塩素原子ではない。）

【化３６】



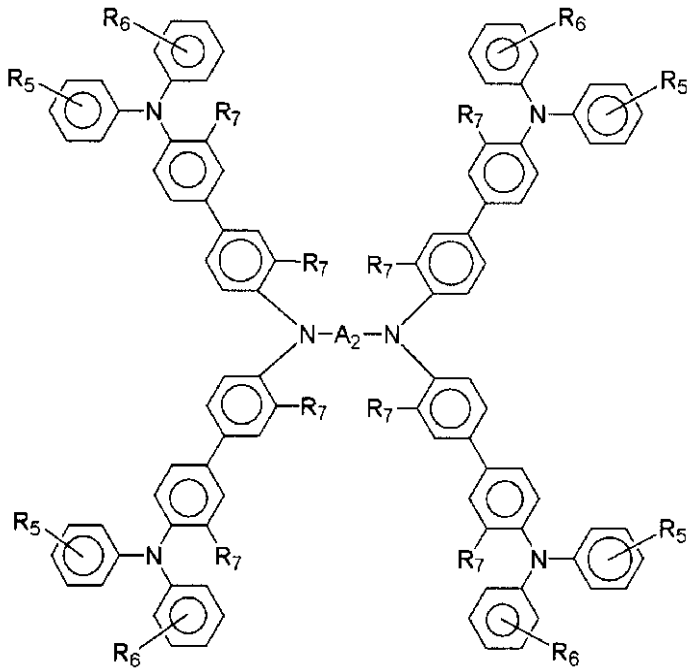
（Ｑ）
（式中、Ｒ５、Ｒ６、Ｒ７は上で定義した通りである。）

【化３７】



（Ｒ）
（式中、Ｘ及びＡ２は上で定義した通りである。）

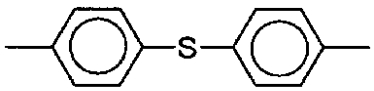
【化３８】



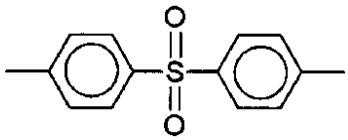
（２）

（式中、Ｒ５、Ｒ６は同一でも異なっていても良く、水素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基またはフェニル基を表し、Ｒ７は水素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基、または塩素原子を表し、Ａ２は下記式で表される２価基を表す。）

【化３９】



【化４０】



【発明の詳細な説明】

【０００１】

【産業上の利用分野】

本発明は、有機電界発光素子などに用いられる電荷輸送材料として有用な新規アミン化合物に関する。

【０００２】

【従来の技術】

有機化合物を構成要素とする電界発光素子は、従来より検討されていたが、充分な発光特性が得られていなかった。しかし、近年数種の有機材料を積層した構造とすることにより、その特性が著しく向上し、以来、有機物を用いた電界発光素子に関する検討が活発に行われている。この積層構造とした電界発光素子はコダック社のＣ．Ｗ．Ｔａｎｇらにより最初に報告されたが〔Ａｐｐｌ．Ｐｈｙｓ．Ｌｅｔｔ．５１（１９９７）９１３〕、この中では１０Ｖ以下の電圧で１０００ｃｄ／ｍ２以上の発光が得られており、従来より実

用化されている無機電界発光素子が２００Ｖ以上の高電圧を必要とするのに比べ、格段に高い特性を有することが示された。

【０００３】

これら積層構造の電界発光素子は、有機蛍光体と電荷輸送性の有機物（電荷輸送材）及び電極を積層した構造となっており、それぞれの電極より注入された電荷（正孔及び電子）が電荷輸送材中を移動して、それらが再結合することによって発光する。有機蛍光体としては、８－キノリノールアルミニウム錯体やクマリリンなど蛍光を発する有機色素などが用いられている。また、電荷輸送材としては電子写真感光体用有機材料として良く知られた種々の化合物を用いて検討されており、例えばＮ，Ｎ’－ジ（ｍ－トリル）－Ｎ，Ｎ’－ジフェニルベンジジンや１，１－ビス〔Ｎ，Ｎ－ジ（ｐ－トリル）アミノフェニル〕シクロヘキサンといったジアミン化合物や４－（Ｎ，Ｎ－ジフェニル）アミノベンズアルデヒド－Ｎ，Ｎ－ジフェニルヒドラゾンなどのヒドラゾン化合物が挙げられる。更に、銅フタロシアニンのようなポルフィリン化合物も用いられている。

【０００４】

ところで、有機電界発光素子は、高い発光特性を有しているが、発光時の安定性や保存安定性の点で充分ではなく、実用化には至っていない。素子の発光時の安定性、保存安定性における問題点の一つとして、電荷輸送材の安定性が指摘されている。電界発光素子の有機物で形成されている層は百～数百ｎｍと非常に薄く、単位厚さあたりに加えられる電圧は非常に高い。また、発光や通電による発熱もあり、従って電荷輸送材には電気的、熱的あるいは化学的な安定性が要求される。更に、一般的に素子中の電荷輸送層は、非晶質の状態にあるが、発光または保存による経時により、結晶化を起こし、これによって発光が阻害されたり、素子破壊を起こすといった現象が見られている。よって電荷輸送材には非晶質すなわちガラス状態を容易に形成し、かつ安定に保持する性能が要求される。

【０００５】

このような電荷輸送材に起因する発光素子の安定性に関し、例えば、ジアミン化合物やポルフィリン化合物においては、電気的、熱的に安定なものが多く、高い発光特性が得られているが、結晶化による素子の劣化は解決されていない。また、ヒドラゾン化合物は、電気的、熱的安定性において充分ではないため、好ましい材料ではない。

【０００６】

【発明が解決しようとする課題】

本発明の目的は、発光特性のみならず、発光時の安定性、保存安定性に優れた有機電界発光素子を実現し得る電荷輸送材として有用で、かつ新規なアミン化合物を提供することにある。

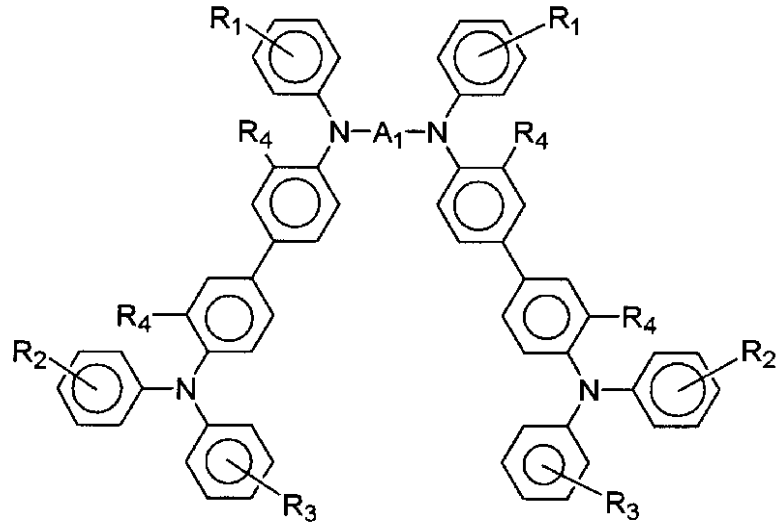
【０００７】

【課題を解決するための手段】

本発明によれば、下記一般式（１）で表されるアミン化合物が提供される。

【０００８】

【化４１】



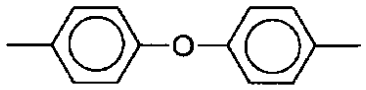
（１）

【０００９】

（式中、Ｒ１、Ｒ２、Ｒ３は同一でも異なっていても良く、水素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基またはフェニル基を表し、Ｒ４は水素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基または塩素原子を表し、Ａ１は下記式で表される２価基を表す。）

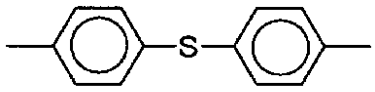
【００１０】

【化４２】



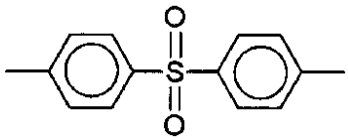
【００１１】

【化４３】



【００１２】

【化４４】

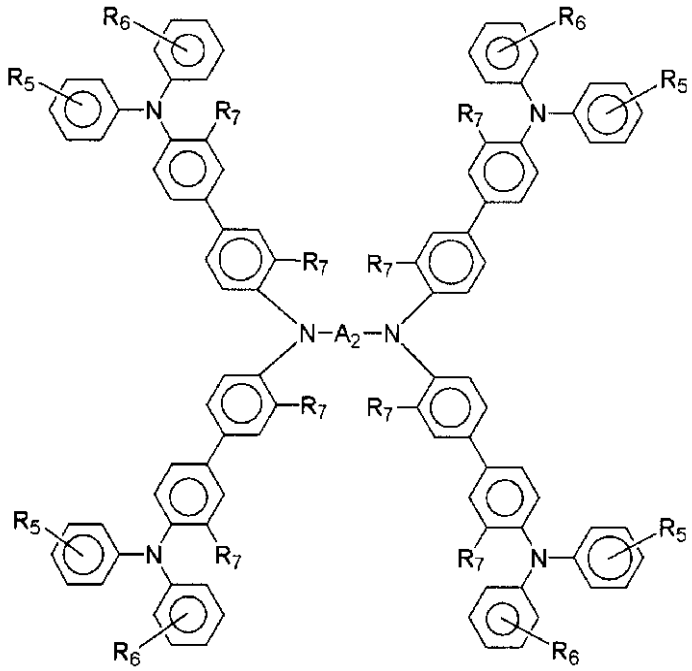


【００１３】

又、本発明によれば、下記一般式（２）で表されるアミン化合物が提供される。

【００１４】

【化４５】



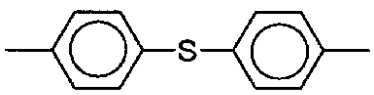
（２）

【００１５】

（式中、Ｒ５、Ｒ６は同一でも異なっていても良く、水素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基またはフェニル基を表し、Ｒ７は水素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基、または塩素原子を表し、Ａ２は下記式で表される２価基を表す。）

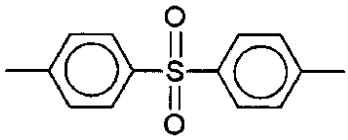
【００１６】

【化４６】



【００１７】

【化４７】

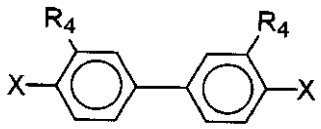


【００１８】

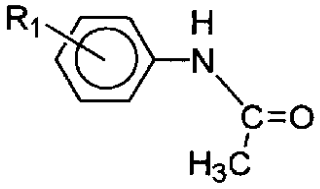
本発明の一般式（１）で表されるアミン化合物は新規化合物である。また、本発明はこれらアミン化合物の製造方法も提供するものである。これらの化合物は、相当するトリフェニルベンジジン化合物とジハロゲン化合物との縮合反応、あるいは、相当するジアミノ化合物のＮ，Ｎ’－ジアセチル体と相当する４’－ハロゲン化ビフェニリルアセトアニリド化合物との縮合反応による生成物を加水分解した後、相当するハロゲン化アリールと縮合反応することにより合成することができる。これら縮合反応はウルマン反応として知られる方法である。例えば、下記式

【００１９】

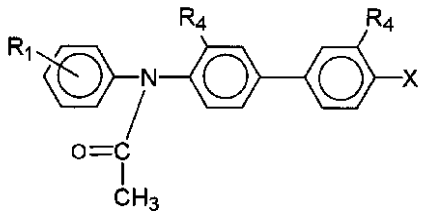
【化４８】



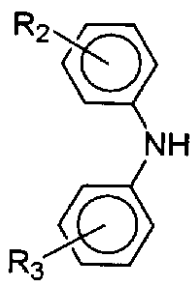
【００２０】
（式中、Ｒ４は上で定義した通りであり、Ｘは塩素原子、臭素原子またはヨウ素原子を表す。但し、Ｒ４とＸが同時に塩素原子ではない。）で表される４，４’－ジハロゲン化ビフェニル化合物を下記式
【００２１】
【化４９】



【００２２】
（式中、Ｒ１は上で定義した通りである。）で表されるアニリド化合物と等量で縮合させ、下記式
【００２３】
【化５０】

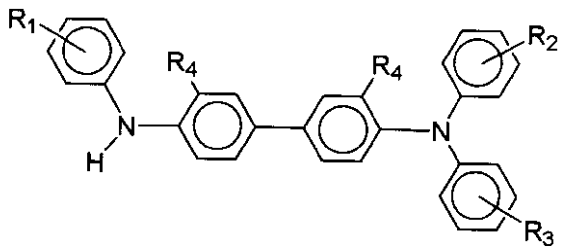


【００２４】
（式中、Ｒ１、Ｒ４、Ｘは上で定義した通りである。但し、Ｒ４とＸが同時に塩素原子ではない。）で表される４’－ハロゲン化ビフェニリルアセトアニリド化合物が得られる。この４’－ハロゲン化ビフェニリルアセトアニリド化合物は、更に、下記式
【００２５】
【化５１】

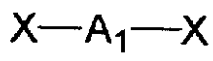


【００２６】
（式中、Ｒ２、Ｒ３は上で定義した通りである。）で表されるジフェニルアミン化合物と縮合反応した後、加水分解することにより、下記式

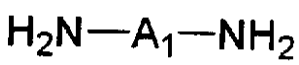
【００２７】
【化５２】



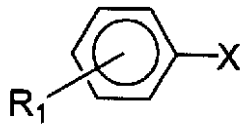
【００２８】
（式中、Ｒ１、Ｒ２、Ｒ３、Ｒ４は上で定義した通りである。）で表されるトリフェニルベンジジン化合物が得られる。このトリフェニルベンジジン化合物の２当量を１当量の下記式
【００２９】
【化５３】



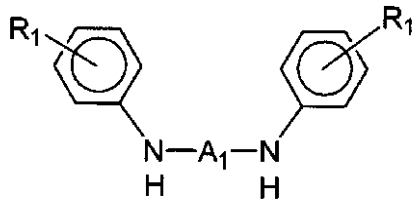
【００３０】
（式中、Ｘ及びＡ１は上で定義した通りである。）で表されるジハロゲン化物を作用させて縮合することにより、本発明のアミン化合物が得られる。一方、下記式
【００３１】
【化５４】



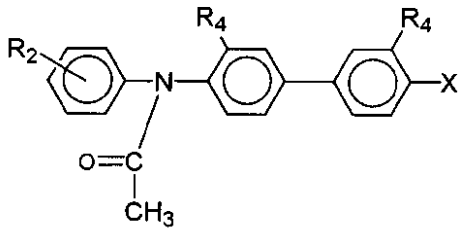
【００３２】
（式中、Ａ１は上で定義した通りである。）で表されるジアミノ化合物を原料とする場合は、アミノ基をアセチル化してジアセチル体とした後、下記式
【００３３】
【化５５】



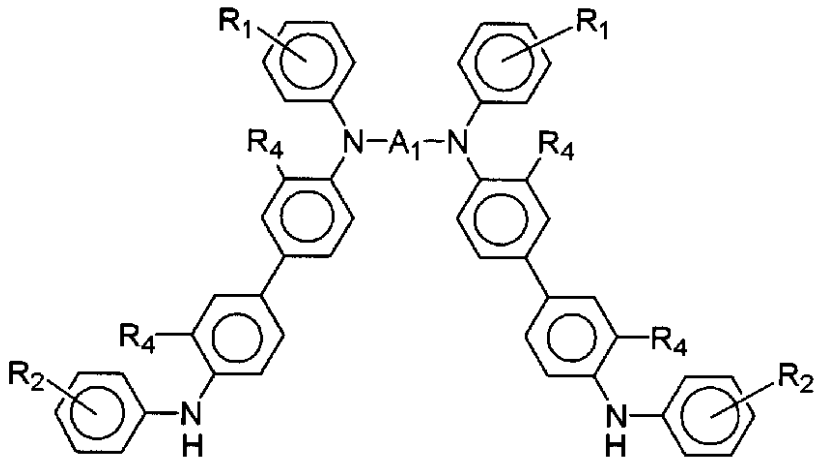
【００３４】
（式中、Ｒ１及びＸは上で定義した通りである。）で表されるハロゲン化アリールと縮合し、加水分解して、下記式
【００３５】
【化５６】



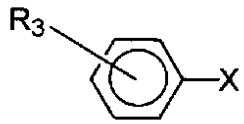
【００３６】
（式中、Ｒ１及びＡ１は上で定義した通りである。）で表されるジアリールジアミノ化合物とする。これに、ジハロゲン化ビフェニル化合物とアニリド化合物より上と同様にして合成した下記式
【００３７】
【化５７】



【００３８】
（式中、Ｒ２、Ｒ４、Ｘは上で定義した通りである。但し、Ｒ４とＸが同時に塩素原子ではない。）で表される４’－ハロゲン化ビフェニリルアセトアニリド化合物を縮合させ、加水分解することにより、下記一般式（３）
【００３９】
【化５８】



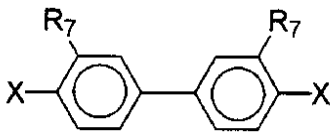
（３）
【００４０】
（式中、Ｒ１、Ｒ２、Ｒ４及びＡ１は上で定義した通りである。）で表されるテトラアミン化合物が得られる。更にこのテトラアミン化合物に、下記式
【００４１】
【化５９】



【００４２】
（式中、Ｒ３及びＸは上で定義した通りである。）で表されるハロゲン化アリールを縮合させることによっても本発明の化合物を得ることができる。また、前記縮合反応のうち、４，４’－ジハロゲン化ビフェニルとアセトアニリド化合物との反応においては、アセトアニリド化合物の代わりにベンズアニリドを用いても良い。

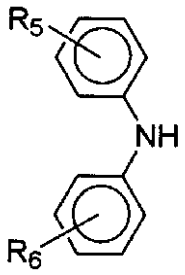
【００４３】
又、本発明の一般式（２）で表されるアミン化合物は新規化合物である。また、本発明はこれらアミン化合物の製造方法も提供するものである。これらの化合物は、相当するハロゲン化ビフェニリルジフェニルアミン化合物と相当するジアミン化合物とを縮合させることにより合成することができる。あるいはまた相当するハロゲン化ビフェニリルジフェニルアミン化合物とアミド化合物との縮合反応による生成物を加水分解して得られるトリアミン化合物を相当するジハロゲン化物と縮合させることによっても合成することができる。これら縮合反応はウルマン反応として知られる方法である。例えば、下記式

【００４４】
【化６０】



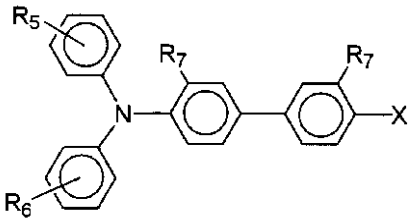
【００４５】
（式中、Ｒ７及びＸは上で定義した通りである。但し、Ｒ７とＸは同時に塩素原子ではない。）で表される４，４’－ジハロゲン化ビフェニル化合物を下記式

【００４６】
【化６１】

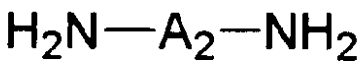


【００４７】
（式中、Ｒ５、Ｒ６は上で定義した通りである。）で表されるジフェニルアミン化合物と当量で縮合させ、下記式

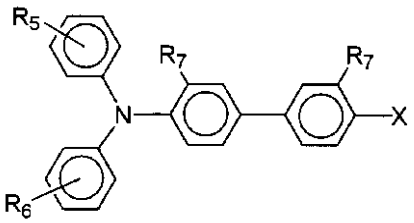
【００４８】
【化６２】



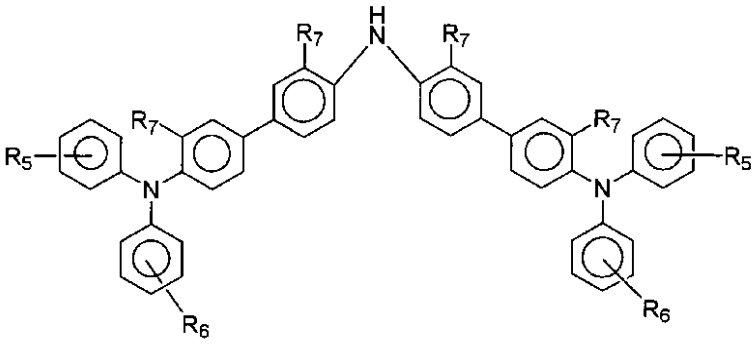
【００４９】
（式中、Ｒ５、Ｒ６、Ｒ７、Ｘは上で定義した通りである。但し、Ｒ７とＸは同時に塩素原子ではない。）で表される４’－ハロゲン化ビフェニリルジフェニルアミン化合物が得られる。この、４’－ハロゲン化ビフェニリルジフェニルアミン化合物４当量を下記式
【００５０】
【化６３】



【００５１】
（式中、Ａ２は上で定義した通りである。）で表されるジアミン化合物１当量に作用させて縮合することにより、本発明のアミン化合物が得られる。
【００５２】
一方、ジハロゲン化ビフェニル化合物とジフェニルアミン化合物より上と同様にして合成した下記式
【００５３】
【化６４】



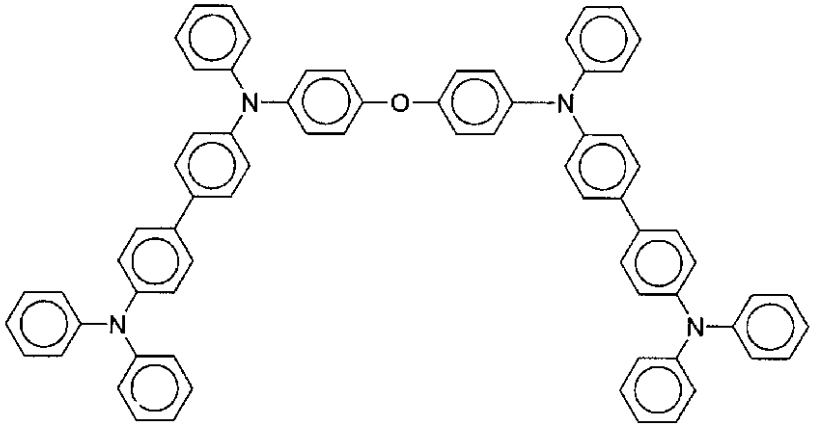
【００５４】
（式中、Ｒ５、Ｒ６、Ｒ７、及びＸは上で定義した通りである。但し、Ｒ７とＸは同時に塩素原子ではない。）で表される４’－ハロゲン化ビフェニリルジフェニルアミン化合物２当量をアセトアミド１当量に縮合させ、加水分解することにより、下記式
【００５５】
【化６５】



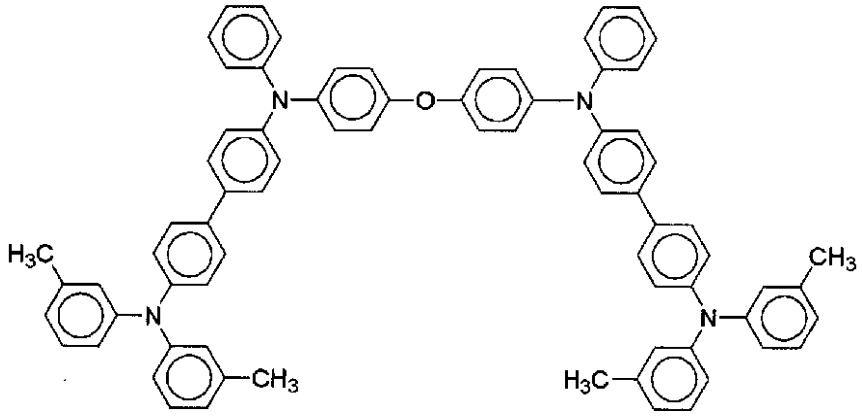
【００５６】
（式中、Ｒ５、Ｒ６、Ｒ７は上で定義した通りである。）で表されるトリアミン化合物が得られる。
更にこのトリアミン化合物２当量を下記式
【００５７】
【化６６】

$$X-A_2-X$$

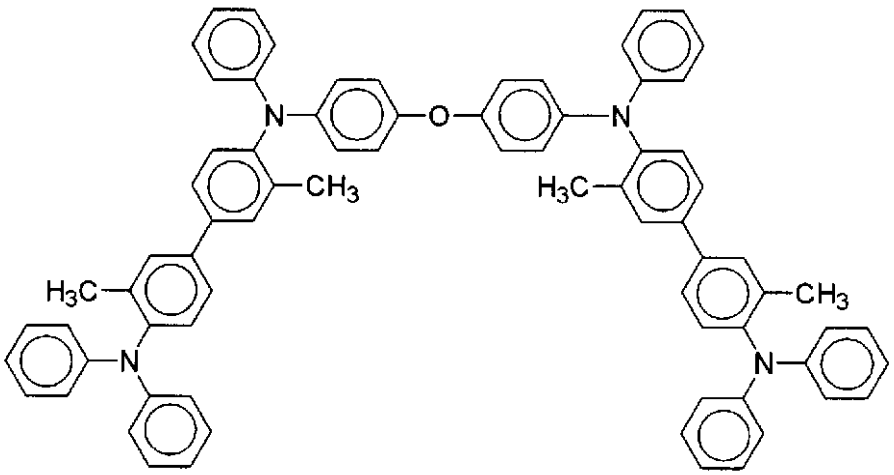
【００５８】
（式中、Ｘ及びＡ２は上で定義した通りである。）で表されるジハロゲン化物１当量に作用させ縮合することによっても本発明の化合物を得ることができる。また、前記縮合反応のうち、４’－ハロゲン化ビフェニリルジフェニルアミン化合物２当量とアセトアミド１当量との縮合反応においては、アセトアミドの代わりにベンズアミドを用いても良い。
【００５９】
前述した、種々のハロゲン化アリール類と種々のアミン化合物の縮合反応において、反応は無溶媒下または溶媒存在下で行うが、溶媒としてはニトロベンゼンやジクロロベンゼンなどが用いられる。脱酸剤としての塩基性化合物には炭酸カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化ナトリウムなどが用いられる。また、通常、銅粉やハロゲン化銅などの触媒を用いて反応させる。反応温度は通常１６０～２３０℃である。
【００６０】
本発明により得られた新規なアミン化合物は、容易にガラス状態を形成しかつ安定に保持すると共に、熱的、化学的にも安定であり、有機電界発光素子における電荷輸送材料として極めて有用である。また、基本的に高い電荷輸送能を有しており、電子写真感光体をはじめとする電荷輸送性を利用する素子、システムに有効な材料であることはいうまでもない。このようにして得られた本発明の具体的な化合物を以下に示す。
【００６１】
【化６７】



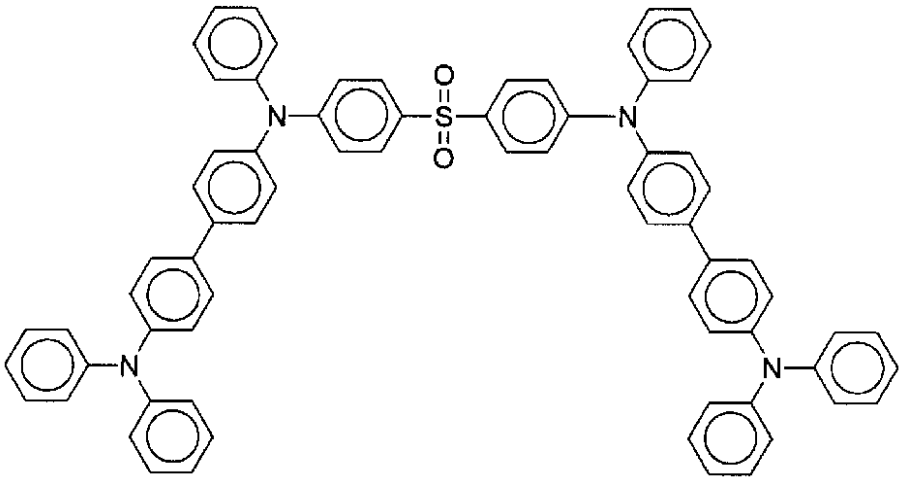
【００６２】
【化６８】



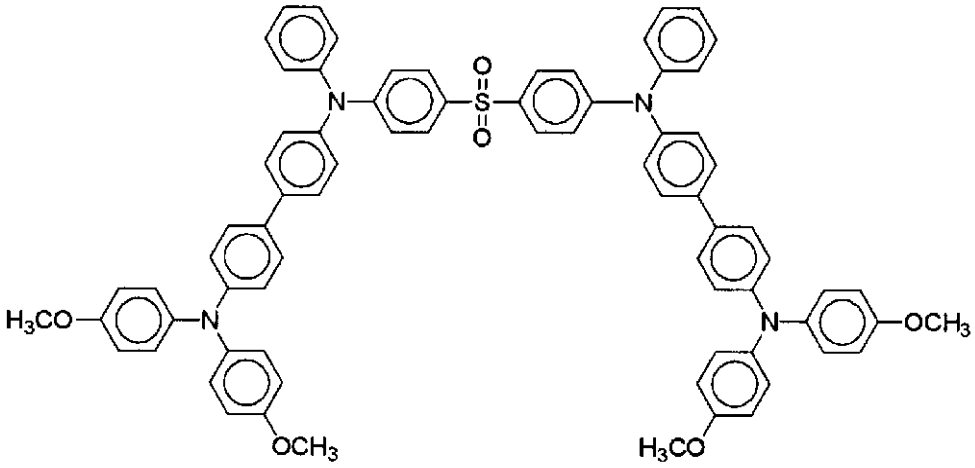
【００６３】
【化６９】



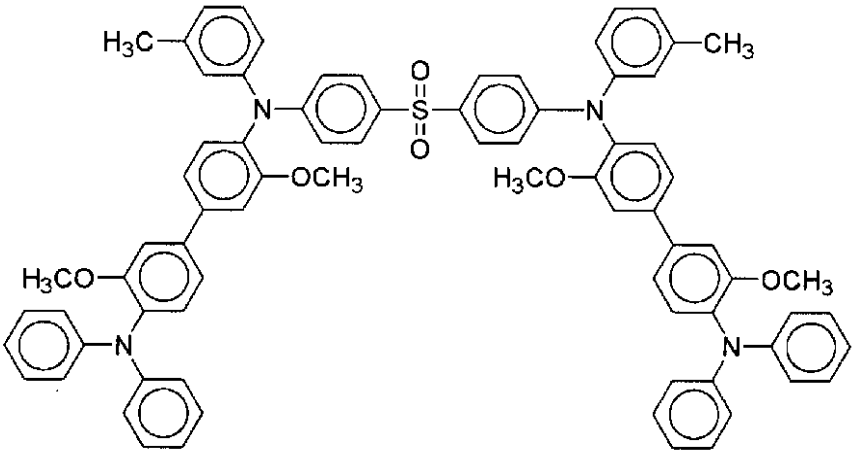
【００６４】
【化７０】



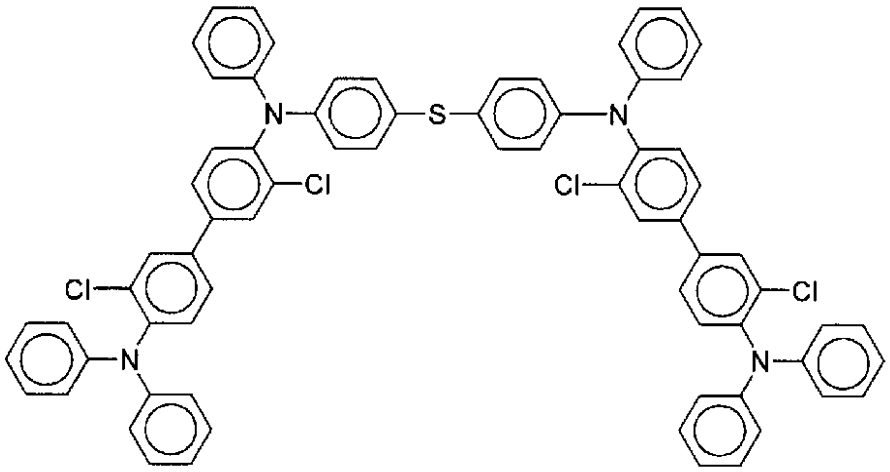
【００６５】
【化７１】



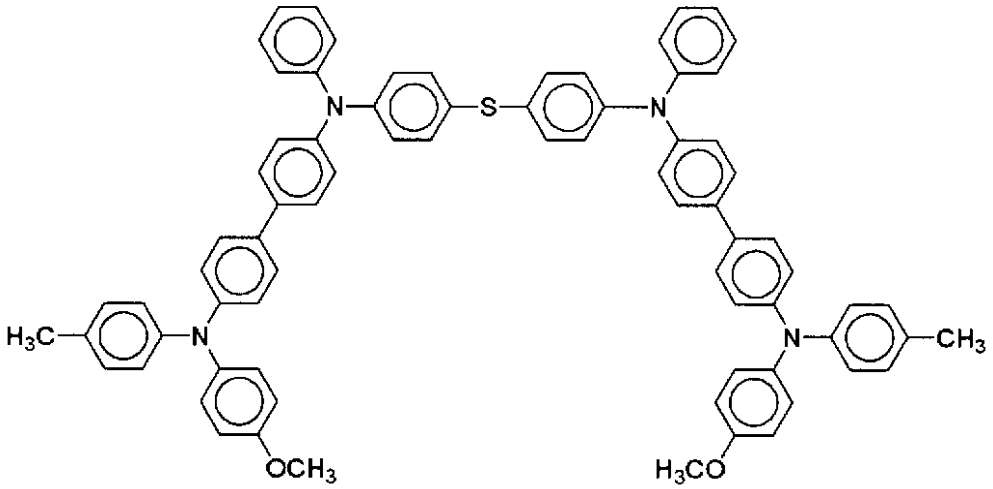
【００６６】
【化７２】



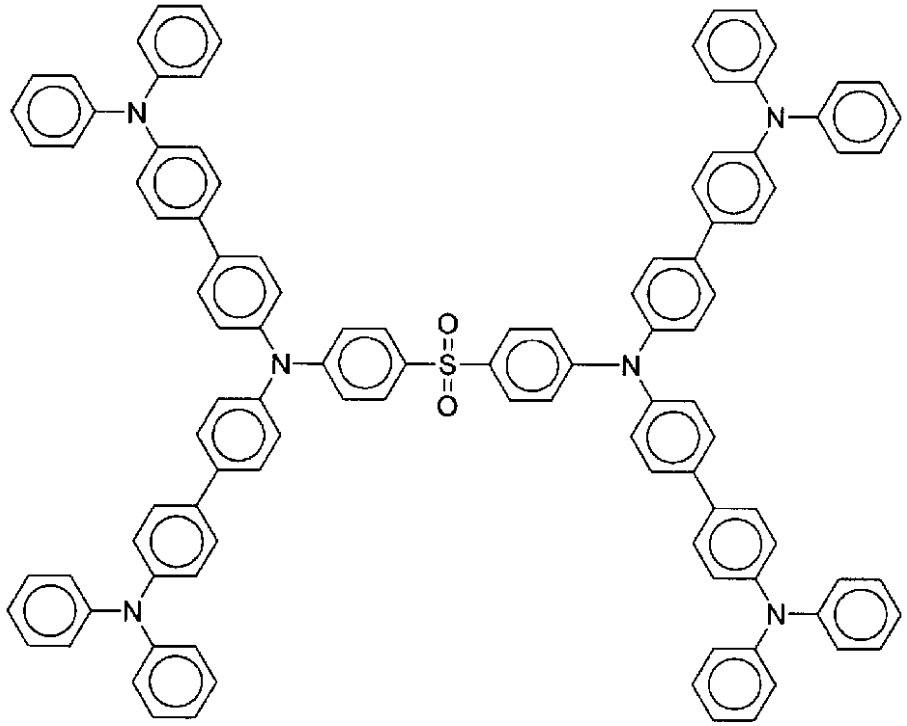
【００６７】
【化７３】



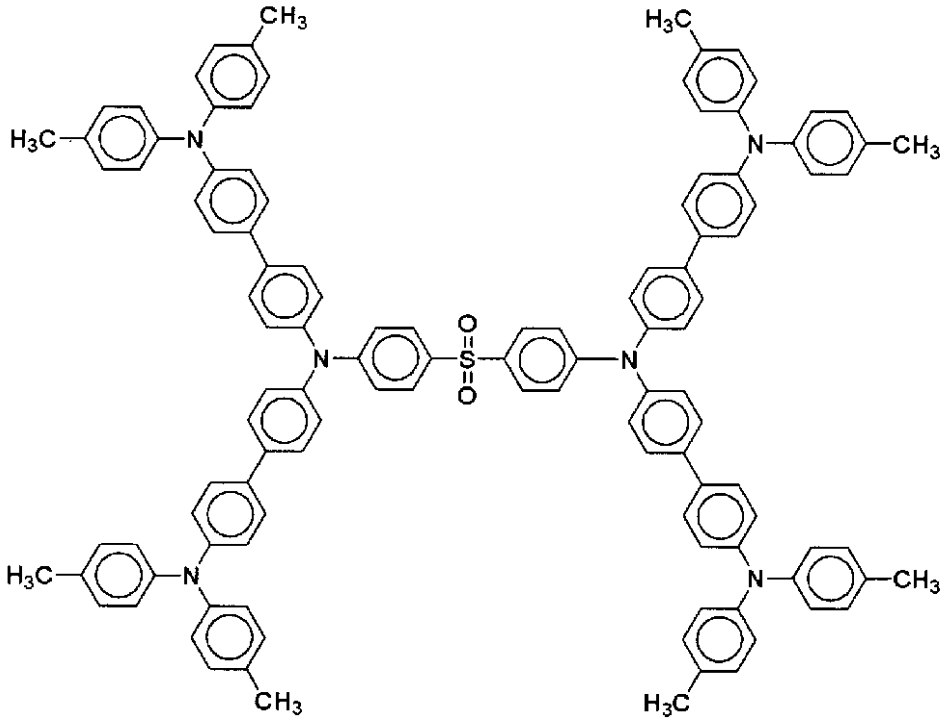
【００６８】
【化７４】



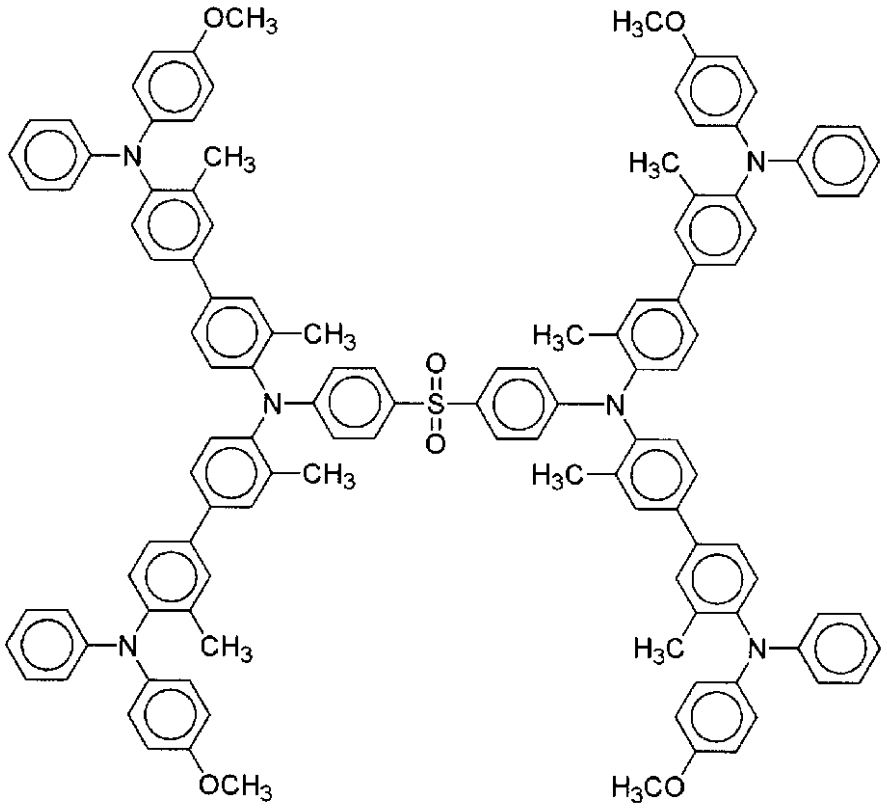
【００６９】
【化７５】



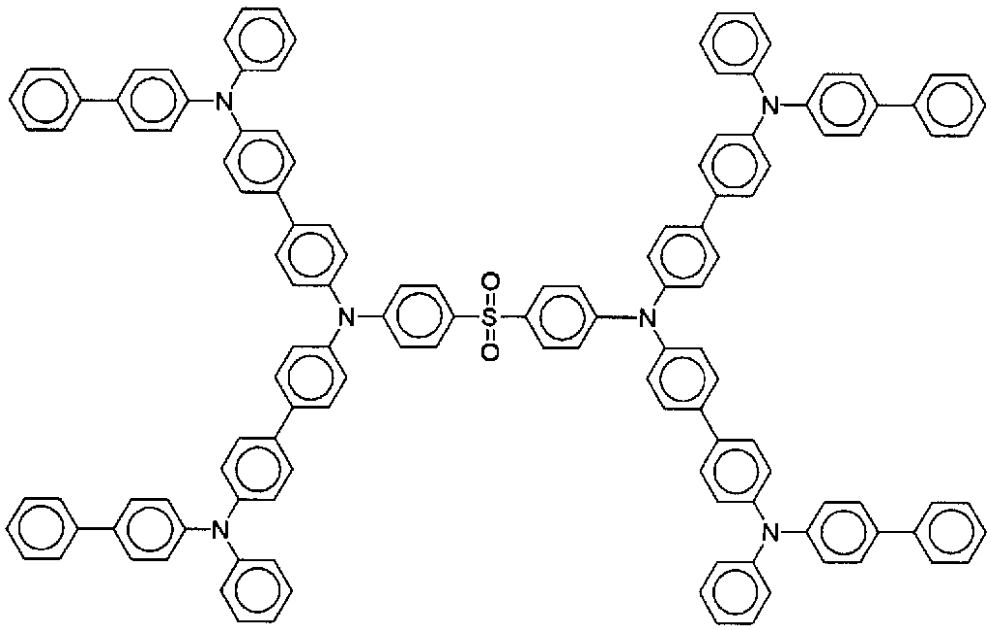
【００７０】
【化７６】



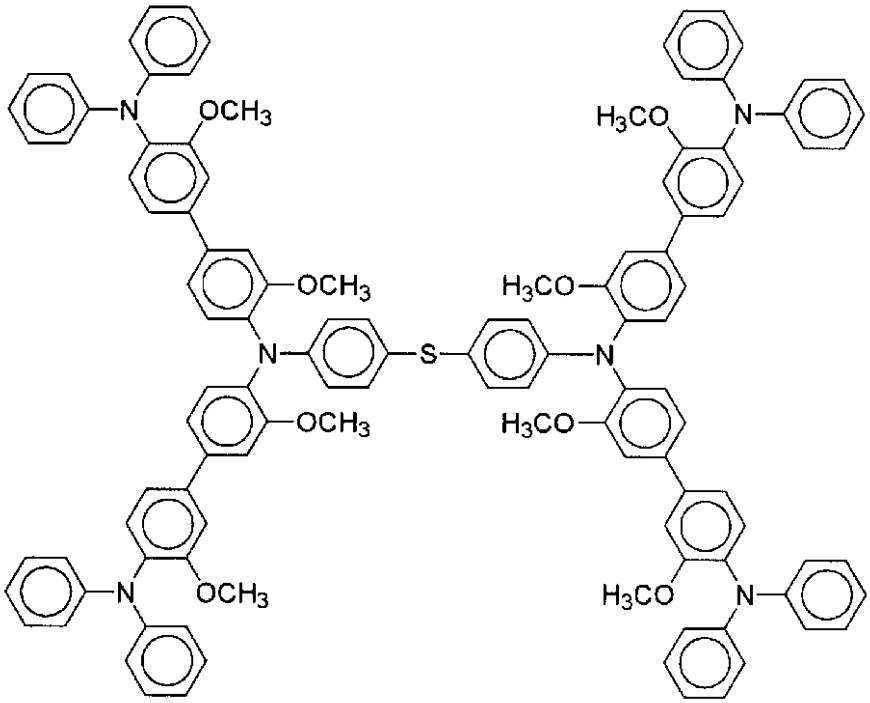
【００７１】
【化７７】



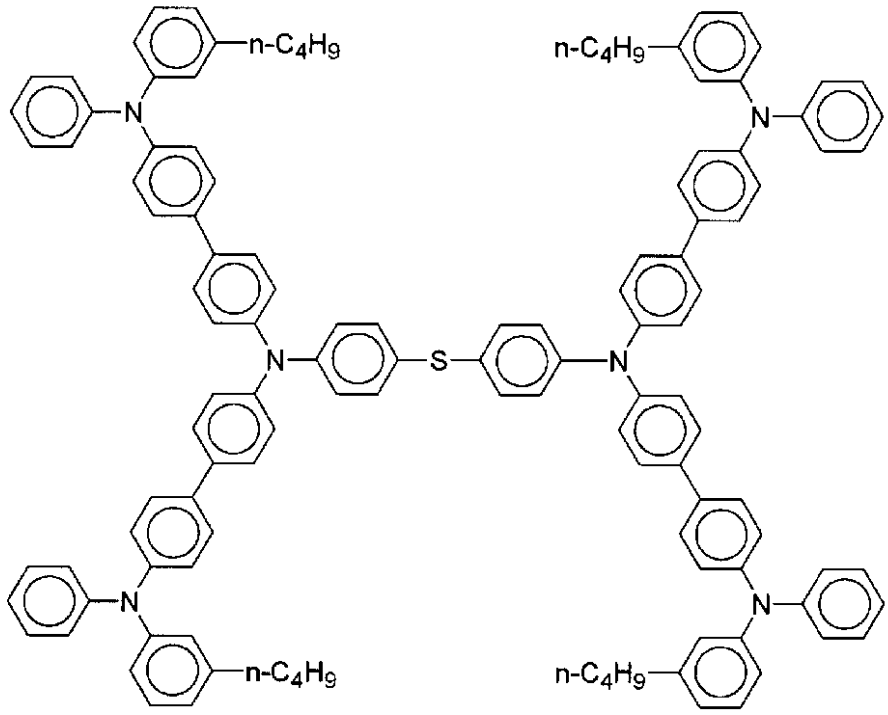
【００７２】
【化７８】



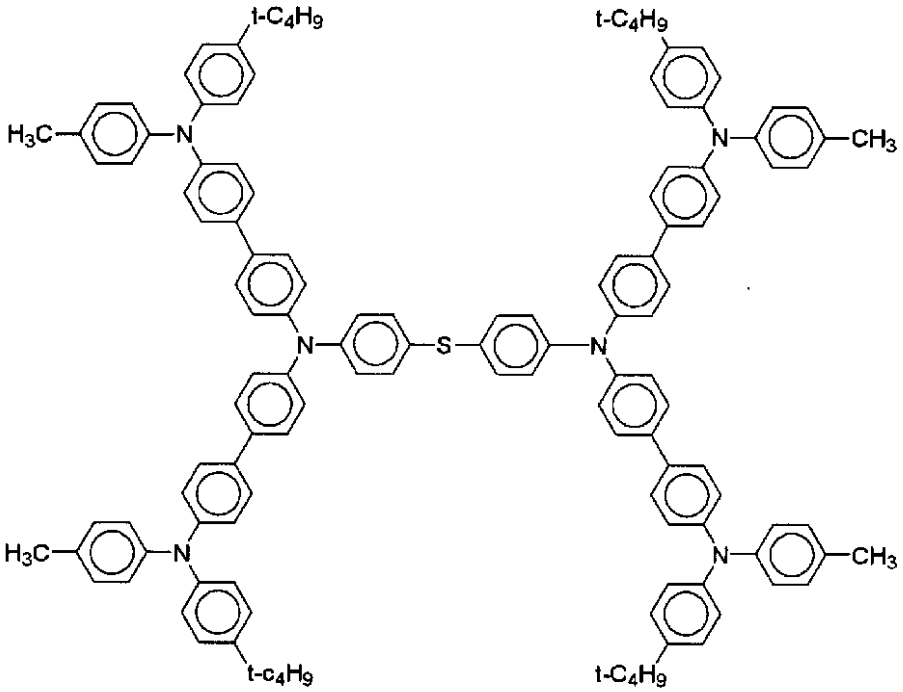
【００７３】
【化７９】




【００７４】
【化８０】




【００７５】
【化８１】



【００７６】
以下、本発明を実施例により詳細に説明する。
【実施例】
以下に本発明を実施例によって具体的に示すが、本発明は以下の実施例によって限定されるものではない。
【００７７】
実施例１
アセトアニリド２０．０ｇ（０．１５モル）と４，４’－ジヨードビフェニル６５．０ｇ（０．１６モル）、無水炭酸カリウム２２．１ｇ（０．１６モル）、銅粉２．１６ｇ（０．０３４モル）、ニトロベンゼン３５ｍｌを混合し、１９０～２０５℃で１０時間反応させた。反応生成物をトルエン２００ｍｌで抽出し、不溶分をろ別除去後、濃縮乾固した。これをカラムクロマトにより精製して（担体；シリカゲル、溶離液；トルエン／酢酸エチル＝６／１）、Ｎ－（４’－ヨード－４－ビフェニリル）アセトアニリド４０．２ｇ（収率６４．８％）を得た。融点は、１３５．０～１３６．０℃であった。
【００７８】
次に４，４’－ジアミノ－１，１’－ジフェニルエーテル１２．０ｇ（０．０６モル）を氷酢酸１００ｍｌに溶解し、４０℃で無水酢酸１３．５ｇ（０．１３モル）を滴下した。滴下後４５℃で２時間反応し、反応液を氷水７００ｍｌ中へ注加して、析出した結晶をろ過、水洗、乾燥した。この結晶をメタノール１６０ｍｌで再結晶し、４，４’－ジアセトアミド－１，１’－ジフェニルエーテル１３．４ｇ（収率：７８．３％）を得た。融点は２３１．０℃～２３１．５℃であった。
【００７９】
続いて４，４’－ジアセトアミド－１，１’－ジフェニルエーテル７．１１ｇ（０．０２５モル）、Ｎ－（４’－ヨード－４－ビフェニリル）アセトアニリド２２．７ｇ（０．０５５モル）、無水炭酸カリウム７．６０ｇ（０．０５５モル）及び銅粉０．７０ｇ（０．０１１モル）、ニトロベンゼン１０ｍｌを混合し、１８５～１９５℃で８時間反応させた。反応生成物をトルエン５００ｍｌで抽出し、不溶分をろ別除去後、濃縮してオイル状物とした。オイル状物はイソアミルアルコール６０ｍｌに溶解し、水１ｍｌ、８５％水酸化カリウム１．８ｇ（０．０２７モル）を加え、１３０℃で加水分解した。水蒸気蒸留で

イソアミルアルコールを留去後、トルエン２５０ｍｌで抽出し、水洗、乾燥して濃縮した。濃縮物はカラムクロマトにより精製して（担体；シリカゲル、溶離液；トルエン／酢酸エチル＝１／１）、４、４’－ビス（４’－ジアニリノ－４－ビフェニリルアミノ）－１，１’－ジフェニルエーテル８．９３ｇ（収率５２．０％）を得た。融点は２８５．５～２８６．５℃であった。

【００８０】

更に、４、４’－ビス（４’－ジアニリノ－４－ビフェニリルアミノ）－１，１’－ジフェニルエーテル６．８７ｇ（０．０１モル）、ヨードベンゼン２４．５ｇ（０．１２モル）、無水炭酸カリウム６．０８ｇ（０．０４４モル）、銅粉０．５１ｇ（０．００８モル）を混合し、１９５～２１０℃で１６．５時間反応させた。反応生成物をトルエン１００ｍｌで抽出し、不溶分をろ別除去後、濃縮後、ｎ－ヘキサン３５０ｍｌを加えて、粗結晶を取り出した。粗結晶は、カラムクロマトにより精製して（担体；シリカゲル、溶離液；トルエン／ｎ－ヘキサン＝３／４）、４、４’－ビス（４’－ジフェニルアミノ－４－ビフェニリルアニリノ）－１，１’－ジフェニルエーテル４．０６ｇ（収率４１．０％）を得た。融点は１７５．０～１７６．５℃であった。図１には赤外線吸収スペクトル（測定機器；日本分光工業（株）製ＩＲ－７００、測定方法；ＫＢｒ錠剤法）を示す。更に、本発明より見いだされた化合物が有用であることを、具体的な応用例によって説明する。

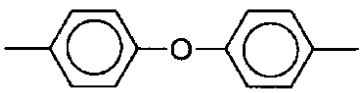
【００８１】

応用例

十分に洗浄したガラス基板（ＩＴＯ電極は成膜済み）に、前記実施例１で得られた化合物〔一般式（１）；Ｒ１＝Ｈ、Ｒ２＝Ｈ、Ｒ３＝Ｈ、Ｒ４＝Ｈ及びＡ１は下記式で表される〕

【００８２】

【化８２】



【００８３】

を電荷輸送材として、０．１ｎｍ／秒の速度で真空蒸着により５０ｎｍの厚さまで蒸着した。蒸着した膜の上に、発光材として、精製したトリス（８－キノリノール）アルミニウム錯体を真空蒸着により、同じく０．１ｎｍ／秒の速度で、５０ｎｍの厚さまで蒸着した。更に、この膜の上に、真空蒸着によりＭｇ／Ａｇ電極を１００ｎｍの厚さで形成して、ＥＬ素子を作製した。これらの蒸着は、途中で真空を破らずに連続して行った。また、膜厚は水晶振動子によってモニターした。素子作製後、直ちに乾燥窒素中で電極の取り出しを行い、引続き特性の測定を行った。素子の発光特性は１００ｍＡ／ｃｍ２の電流を印加した場合の発光輝度で定義し、発光の寿命は２００ｃｄ／ｍ２の発光が得られる電流を連続で印加し、輝度が１００ｃｄ／ｃｍ２になるまでの時間とした。また、保存安定性は室温、乾燥空気中に一定時間放置後、２０ｍＡ／ｃｍ２の電流を印加し、輝度が初期発光特性の半分になるまでの時間で定義した。測定の結果、発光特性は３１００ｃｄ／ｍ２、発光の寿命は５８０時間、保存安定性は２１００時間であった。比較のために、電荷輸送材として、Ｎ，Ｎ’－ジ（ｍ－トリル）－Ｎ，Ｎ’－ジフェニルベンジジンを用い、同様の条件でＥＬ素子を作製しその特性を調べた。発光特性、発光の寿命、保存安定性はそれぞれ、２２００ｃｄ／ｍ２、２２０時間、４６０時間であった。

【００８４】

【発明の効果】

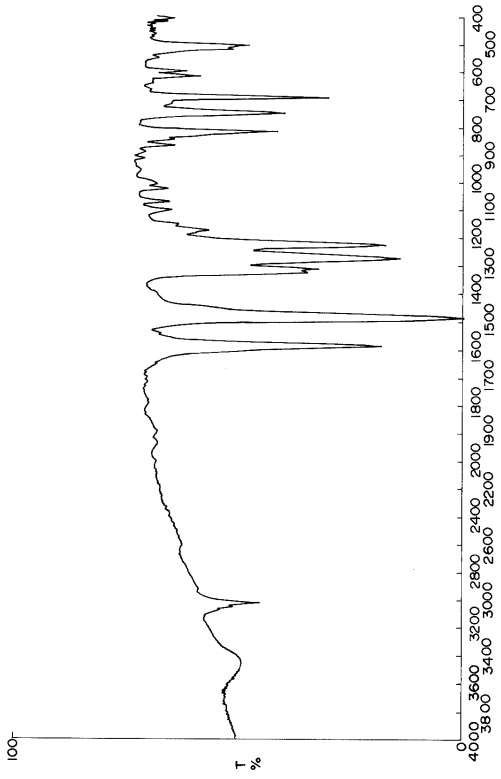
本発明により見いだされた新規アミン化合物は、電荷輸送性材料として有効に機能し、また、容易にガラス状態を形成しかつ安定にガラス状態を保持し、熱的、化学的にも安定なため、特に有機電界発光素子における電荷輸送材料として有用な物質である。

【００８５】

【図面の簡単な説明】

【図１】実施例１により得られた化合物の赤外線吸収スペクトルを示す図面

【図１】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.[7] FI
G03G 5/06 G03G 5/06 319

(56)参考文献 特開平８－１００１７２（ＪＰ，Ａ）
特開平７－３３１２３８（ＪＰ，Ａ）
特開平８－３１２２（ＪＰ，Ａ）

(58)調査した分野(Int.Cl.[7]，ＤＢ名)
C07C217/00
C07C225/00
C07C275/00
C07C317/00
C07C323/00
G03G 5/00
CA(STN)
REGISTRY(STN)