

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第5262081号
(P5262081)

(45) 発行日 平成25年8月14日 (2013. 8. 14)

(24) 登録日 平成25年5月10日 (2013. 5. 10)

(51) Int. Cl.

F I

C O 7 D 213/22 (2006. 01)

C O 7 D 213/22 C S P

C O 7 D 401/14 (2006. 01)

C O 7 D 401/14

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

H O 5 B 33/14

A

H O 5 B 33/22

B

請求項の数 13 (全 60 頁)

(21) 出願番号 特願2007-300695 (P2007-300695)
 (22) 出願日 平成19年11月20日 (2007. 11. 20)
 (65) 公開番号 特開2008-150365 (P2008-150365A)
 (43) 公開日 平成20年7月3日 (2008. 7. 3)
 審査請求日 平成22年11月11日 (2010. 11. 11)
 (31) 優先権主張番号 特願2006-313004 (P2006-313004)
 (32) 優先日 平成18年11月20日 (2006. 11. 20)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)

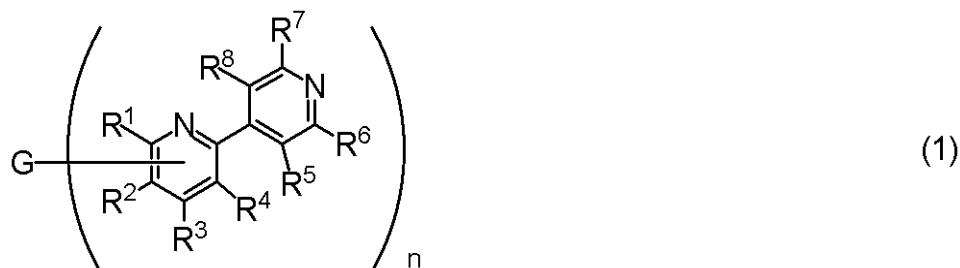
(73) 特許権者 311002067
 J N C株式会社
 東京都千代田区大手町二丁目2番1号
 (72) 発明者 小野 洋平
 千葉県市原市五井海岸5番地の1 チッソ
 石油化学株式会社 五井研究所内
 (72) 発明者 山田 博
 千葉県市原市五井海岸5番地の1 チッソ
 石油化学株式会社 五井研究所内
 (72) 発明者 影山 明子
 千葉県市原市五井海岸5番地の1 チッソ
 石油化学株式会社 五井研究所内
 (72) 発明者 内田 学
 千葉県市原市五井海岸5番地の1 チッソ
 石油化学株式会社 五井研究所内
 最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 電子輸送材料およびこれを用いた有機電界発光素子

(57) 【特許請求の範囲】

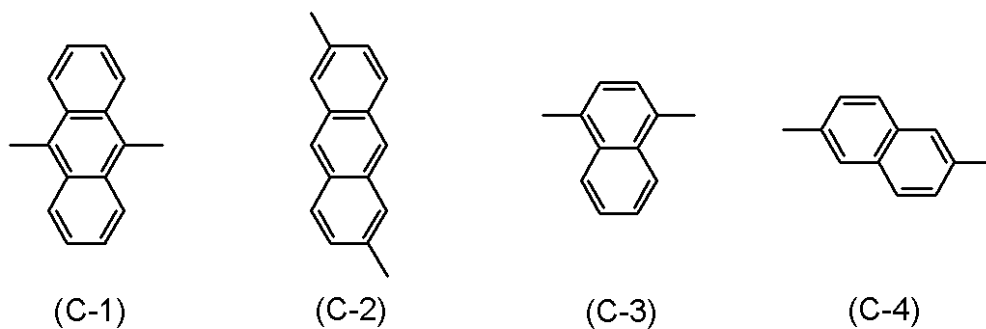
【請求項 1】

下記の式 (1) で表される化合物。

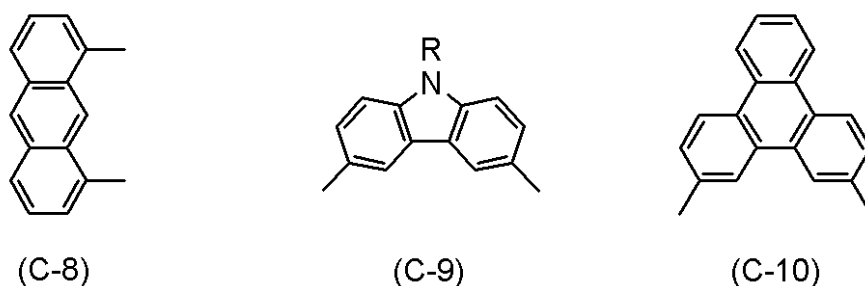
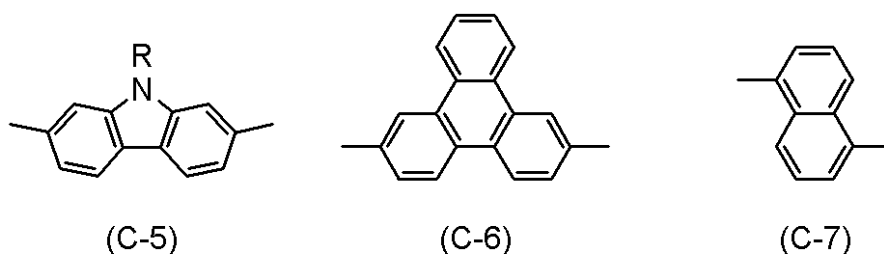


式中、Gは下記の式 (C-1) ~ (C-10) で表される2価の基の群から選択される1つであり、nは2であり；

R¹ および R² のどちらか一方はGに結合する遊離原子価であり、他方は水素、フェニル、2-ビフェニル、3-ビフェニル、4-ビフェニル、1-ナフチル、2-ナフチル、メチル、t-ブチル、またはシクロヘキシルであり、R³ ~ R⁸ は独立して水素、フェニル、2-ビフェニル、3-ビフェニル、4-ビフェニル、1-ナフチル、2-ナフチル、メチル、t-ブチル、またはシクロヘキシルであり；そして、2個の2, 4'-ビピリジル基は同一でもよく、異なってもよい。



10



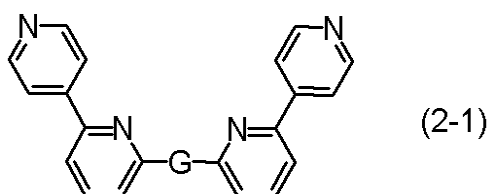
20

式中、Rは独立して水素、メチル、エチル、*t*-ブチル、ヘキシル、シクロヘキシル、フェニル、ナフチル、ビフェニリル、またはテルフェニリルであり；式（C-1）～（C-10）で表される2価の基は、遊離原子価をもつ原子以外の位置に、フェニル、2-ビフェニリル、3-ビフェニリル、4-ビフェニリル、1-ナフチル、2-ナフチル、メチル、*t*-ブチル、シクロヘキシル、*m*-テルフェニル-2'-イル、および*m*-テルフェニル-5'-イルからなる群から選択される置換基を有していてもよい。

30

【請求項2】

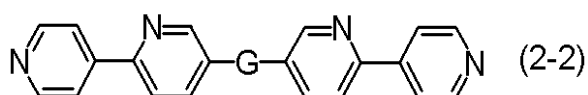
下記の式（2-1）で表される、請求項1に記載の化合物。



40

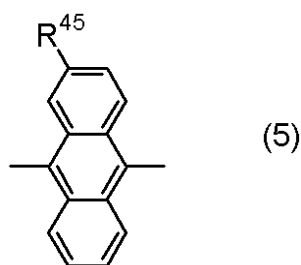
【請求項3】

下記の式（2-2）で表される、請求項1に記載の化合物。



【請求項4】

Gが式（5）で表される基である、請求項2に記載の化合物。

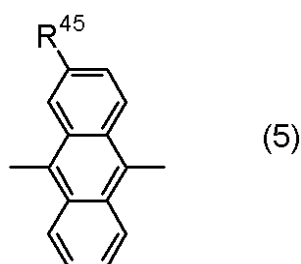


上記の式中、 R^{45} は独立して水素、メチル、*t*-ブチル、シクロヘキシル、フェニル、1-ナフチル、2-ナフチル、2-ビフェニリル、3-ビフェニリル、4-ビフェニリル、*m*-テルフェニル-2'-イル、または*m*-テルフェニル-3'-イルである。

10

【請求項5】

Gが式(5)で表される基である、請求項3に記載の化合物。

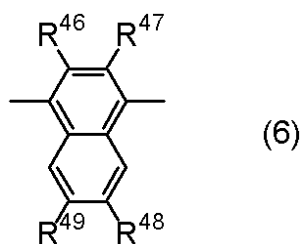


上記の式中、 R^{45} は独立して水素、メチル、*t*-ブチル、シクロヘキシル、フェニル、1-ナフチル、2-ナフチル、2-ビフェニリル、3-ビフェニリル、4-ビフェニリル、*m*-テルフェニル-2'-イル、または*m*-テルフェニル-3'-イルである。

20

【請求項6】

Gが式(6)で表される基である、請求項2に記載の化合物。



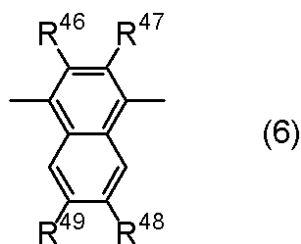
上記の式中、 $R^{46} \sim R^{49}$ は独立して水素、メチル、*t*-ブチル、シクロヘキシル、フェニル、1-ナフチル、2-ナフチル、2-ビフェニリル、3-ビフェニリル、4-ビフェニリル、*m*-テルフェニル-2'-イル、または*m*-テルフェニル-3'-イルである。

30

【請求項7】

Gが式(6)で表される基である、請求項3に記載の化合物。

40



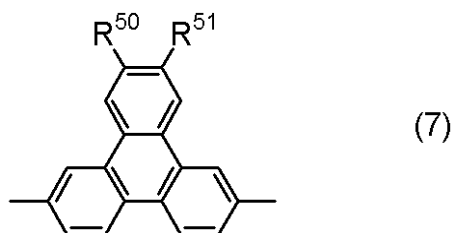
上記の式中、 $R^{46} \sim R^{49}$ は独立して水素、メチル、*t*-ブチル、シクロヘキシル、フェニル、1-ナフチル、2-ナフチル、2-ビフェニリル、3-ビフェニリル、4-ビフェニリル、*m*-テルフェニル-2'-イル、または*m*-テルフェニル-3'-イルである。

50

。

【請求項 8】

Gが下記の式（7）で表される基である、請求項 2 に記載の化合物。

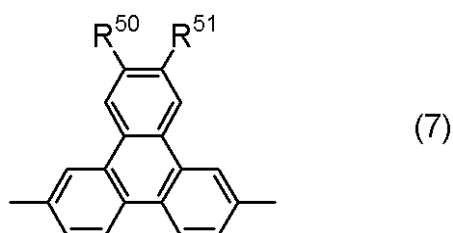


10

上記の式中、 R^{50} および R^{51} は独立して水素、メチル、t-ブチル、シクロヘキシル、フェニル、1-ナフチル、2-ナフチル、2-ビフェニリル、3-ビフェニリル、4-ビフェニリル、m-テルフェニル-2'-イル、またはm-テルフェニル-3'-イルである。

【請求項 9】

Gが下記の式（7）で表される基である、請求項 3 に記載の化合物。

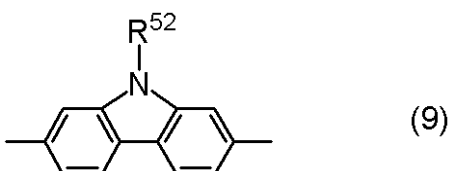


20

上記の式中、 R^{50} および R^{51} は独立して水素、メチル、t-ブチル、シクロヘキシル、フェニル、1-ナフチル、2-ナフチル、2-ビフェニリル、3-ビフェニリル、4-ビフェニリル、m-テルフェニル-2'-イル、またはm-テルフェニル-3'-イルである。

【請求項 10】

Gが下記の式（9）で表される基である、請求項 2 に記載の化合物。

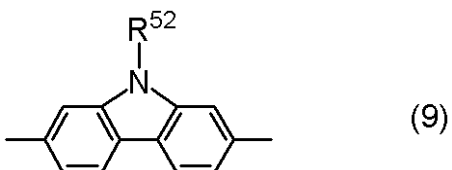


30

上記の式中、 R^{52} は独立してフェニル、ナフチル、ビフェニリルまたはテルフェニリルである。

【請求項 11】

Gが下記の式（9）で表される基である、請求項 3 に記載の化合物。



40

上記の式中、 R^{52} は独立してフェニル、ナフチル、ビフェニリルまたはテルフェニリルである。

【請求項 12】

50

請求項 1～11 のいずれか 1 項に記載の化合物を含有する有機電界発光素子。

【請求項 13】

陽極および陰極により挟持された、少なくとも正孔輸送層、発光層、および電子輸送層を基板上に有する有機電界発光素子であって、該電子輸送層が、請求項 1～11 のいずれか 1 項に記載の化合物を含有する有機電界発光素子。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、2, 4'-ビピリジル基を有する新規な電子輸送材料、この電子輸送材料を用いた有機電界発光素子（以下、有機 EL 素子または単に素子と略記することがある。）等

10

【背景技術】

【0002】

近年、次世代のフルカラーフラットパネルディスプレイとして有機 EL 素子が注目され、活発な研究がなされている。有機 EL 素子の実用化を促進するには、素子の駆動電圧の低減、長寿命化が不可欠な要素であり、これらを達成するために新しい電子輸送材料の開発がなされてきた。特に、青色素子の駆動電圧低下、長寿命化は必須である。特許文献 1（特開 2005-317297 号公報）には、2, 4'-ビピリジン化合物を有機 EL 素子に使用した例が開示されているが、この文献に具体的に記載されている誘導体は、ガラス転移温度（以下、T_gと略記する。）が低いと予想され、素子を連続的に駆動した時の安定性に欠けると予想される。また、実施例として電子輸送層に用いた例は化合物 b-7 のみである。また、特許文献 2（US 2006-0186797）にも、2, 4'-ビピリジル基で置換されたフルオレン誘導体を有機 EL 素子に試用した例が開示されている。しかしながら、実用的な値と判断できる実測値は同公報には記載されていない。特許文献 3（特開 2003-123983 号公報）には、フェナントロリン誘導体を電子輸送材料に使用することで有機 EL 素子を低電圧で駆動させることができると記載されており、更に、フェナントロリンの類似体である 2, 2'-ビピリジル化合物も同様に、電子輸送材料に使用することで有機 EL 素子を低電圧で駆動させることができると記載されている。しかしながらこの文献の実施例に報告されている素子の特性（駆動電圧、発光効率など）は比較例を基準にした相対値のみであり、実用的な値と判断できる実測値は記載されていない。他に、2, 2'-ビピリジル化合物を電子輸送材料に使用した例は、非特許文献 1（Proceedings of the 10th International Workshop on Inorganic and Organic Electroluminescence）、特許文献 4（特開 2002-158093 号公報）、および特許文献 5（特表平 11-514143 号公報）に開示されている。非特許文献 1 に記載されている 2, 2'-ビピリジル化合物は T_g が低く、実用的ではなかった。特許文献 3 に記載の 2, 2'-ビピリジル化合物は比較的低電圧で有機 EL 素子を駆動させることができるが、実用化には更なる低電圧化が望まれる。特許文献 3 には、具体的な化合物が示されていない。

20

30

【特許文献 1】特開 2005-317297 号公報

【特許文献 2】米国特許出願公開第 2006/0186797 号明細書

40

【特許文献 3】特開 2003-123983 号公報

【特許文献 4】特開 2002-158093 号公報

【特許文献 5】特表平 11-514143 号公報

【非特許文献 1】Proceedings of the 10th International Workshop on Inorganic and Organic Electroluminescence

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0003】

本発明は、このような従来技術が有する課題に鑑みてなされたものである。本発明は、有機 EL 素子の駆動電圧の低減、長寿命化等に寄与する電子輸送材料を提供することを課題

50

とする。さらに本発明は、この電子輸送材料を用いた有機EL素子を提供することを課題とする。

【課題を解決するための手段】

【0004】

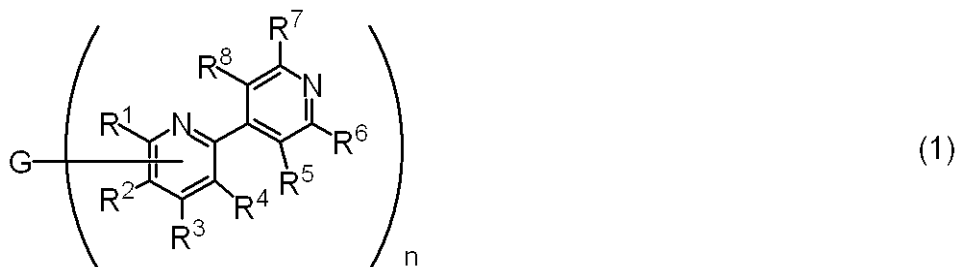
本発明者らは鋭意検討した結果、2, 4'-ビピリジルを有する化合物を有機EL素子の電子輸送層に用いることにより、高輝度で長寿命、かつ低電圧で駆動できる有機EL素子が得られることを見出し、この知見に基づいて本発明を完成した。

上記の課題は以下に示す各項によって解決される。

【0005】

〔1〕下記の式(1)で表される化合物。

10



式中、Gはn個の連結基であり、nは2～4の整数であり；

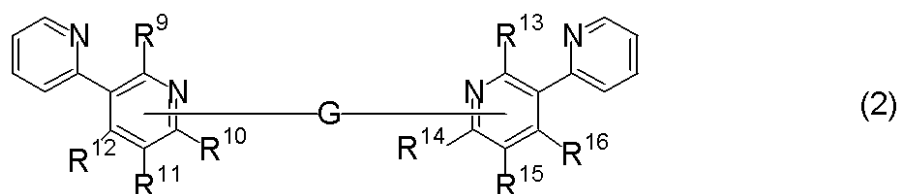
20

R¹～R⁴は独立して水素、1個の基またはGに結合する遊離原子価であり、R⁵～R⁸は独立して水素または1個の基であるが、R¹～R⁴の1つはGに結合する遊離原子価であり；そして、n個の2, 4'-ビピリジル基は同一でもよく、異なってもよい。

〔2〕R¹～R⁴の1つがGに結合する遊離原子価であり、それ以外が水素であり、R⁵～R⁸が水素である、前記〔1〕項に記載の化合物。

【0006】

〔3〕下記の式(2)で表される、前記〔2〕項に記載の化合物。

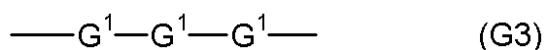


30

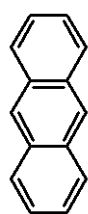
式中、Gは下記の式(G1)～(G3)で表される基の群から選択される1つであり；R⁹～R¹²の1つはGに結合する遊離原子価であり、それ以外は水素であり；そして、R¹³～R¹⁶の1つはGに結合する遊離原子価であり、それ以外は水素である。



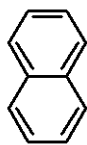
40



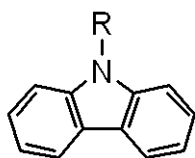
式中、G¹は独立して、下記の式(A-1)～(A-24)および式(B-1)～(B-41)で表される化合物の群から選択される1つから誘導される2個の基である。



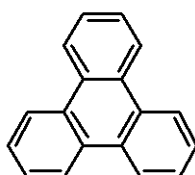
(A-1)



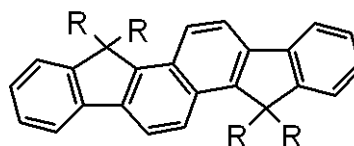
(A-2)



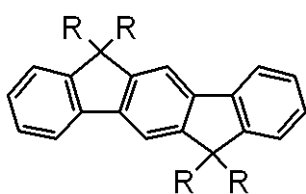
(A-3)



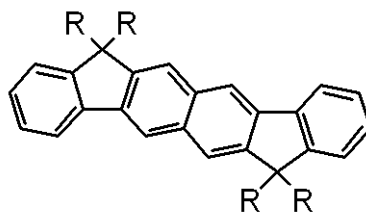
(A-4)



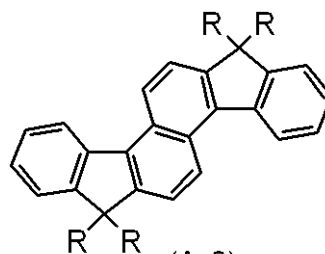
(A-5)



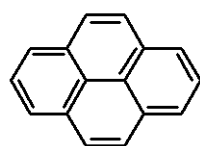
(A-6)



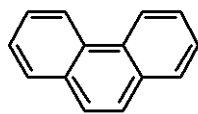
(A-7)



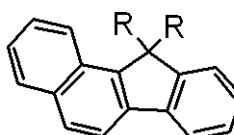
(A-8)



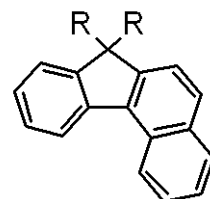
(A-9)



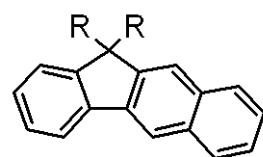
(A-10)



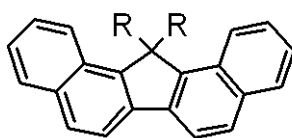
(A-11)



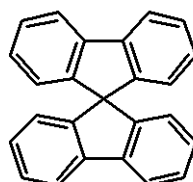
(A-12)



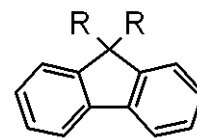
(A-13)



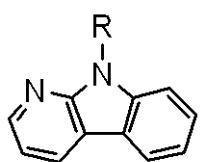
(A-14)



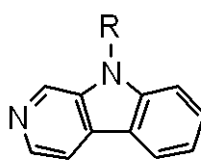
(A-15)



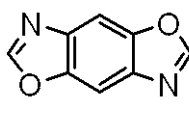
(A-16)



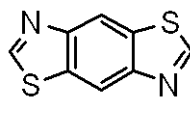
(A-17)



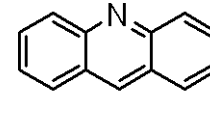
(A-18)



(A-19)



(A-20)

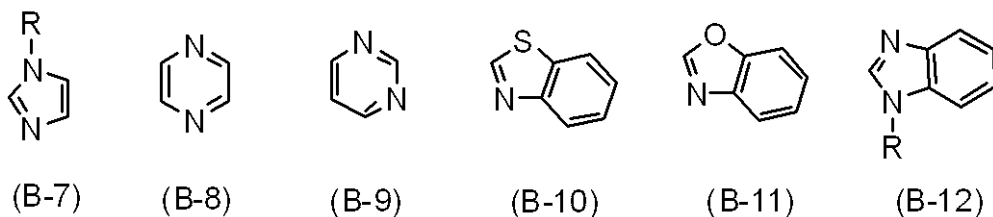
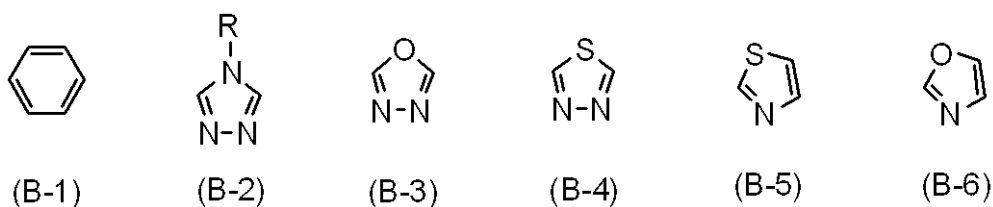


(A-21)

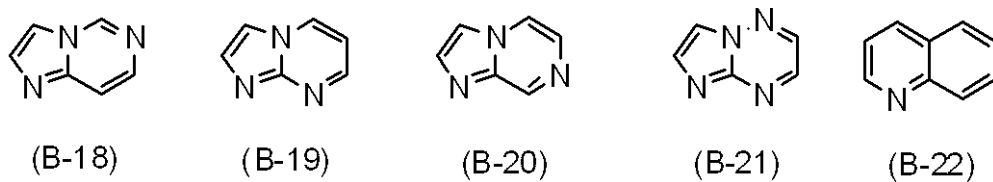
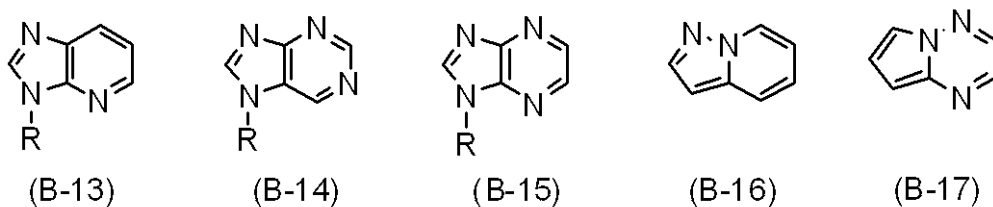
10

20

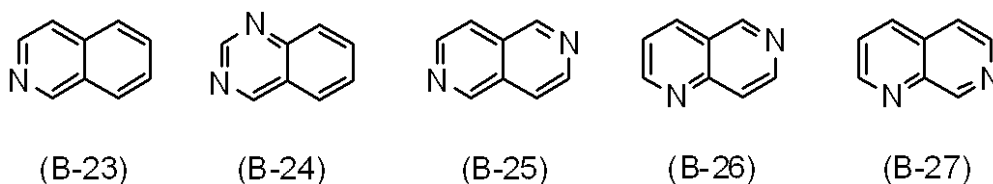
30



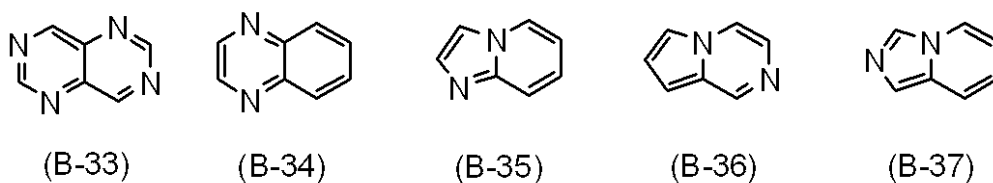
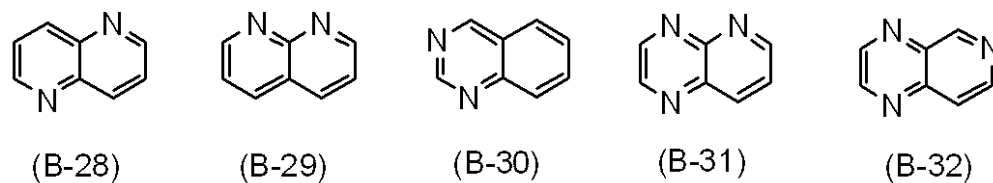
10



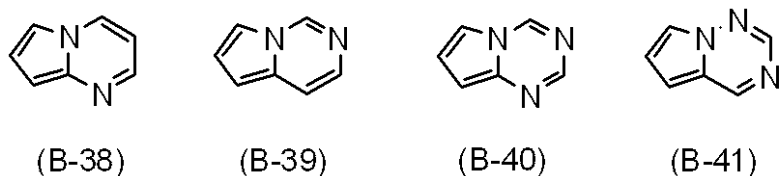
20



30



40



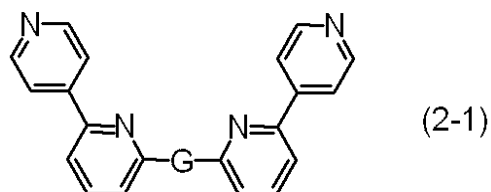
上記の式中、Rは独立して水素、炭素数1～8のアルキル、炭素数3～10のシクロアルキル、または炭素数6～20のアリールであり；式(A-1)～(A-23)および式(B-1)～(B-41)で表される化合物から誘導される2価の基は、遊離原子価を持つ

50

原子以外の位置に置換基を有していてもよい。

【0007】

〔4〕下記の式（2-1）で表される、前記〔3〕項に記載の化合物。



10

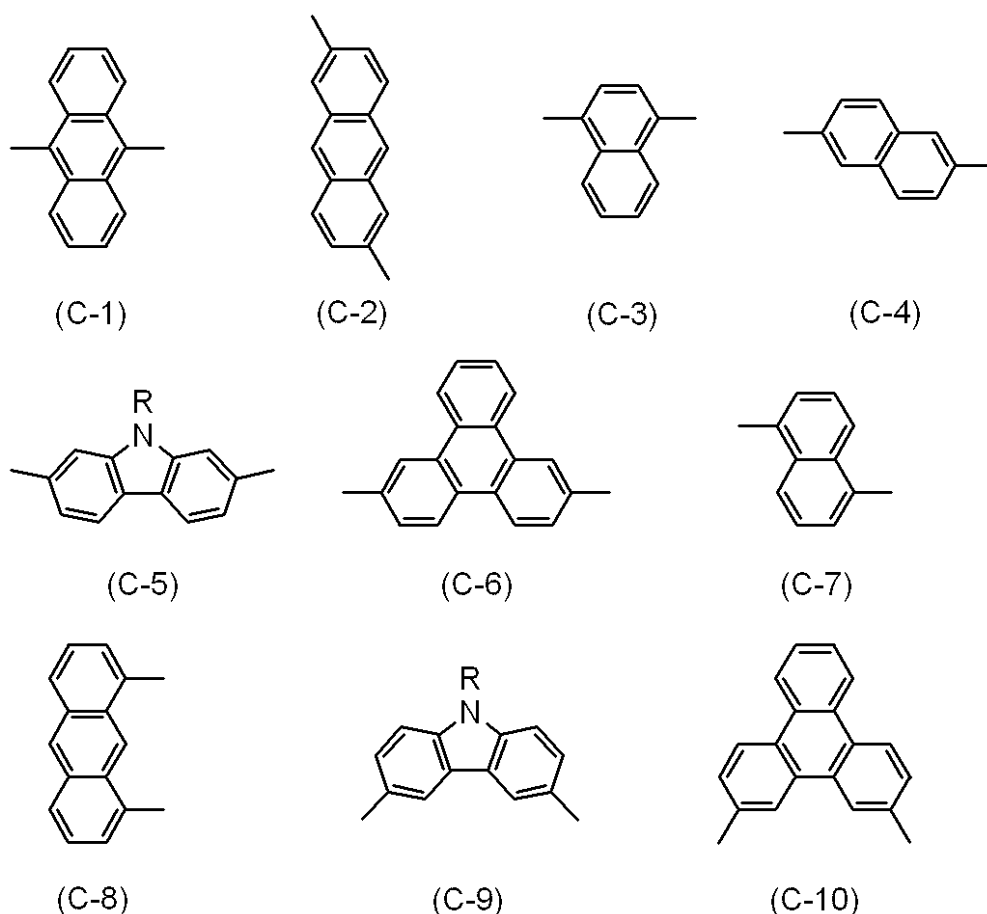
式中、Gの定義は前記〔3〕項に記載の式（2）におけるGと同じである。

〔5〕Gが前記の式（G1）で表される連結基であり、式（G1）中G¹が前記の式（A-1）～（A-21）で表される化合物の群から選択される1つから誘導される2価の基であり、この2価の基は置換基を有していてもよい、前記〔4〕項に記載の化合物。

〔6〕Gが前記の式（G1）で表される連結基であり、式（G1）中G¹が前記の式（A-1）～（A-4）で表される化合物の群から選択される1つから誘導される2価の基であり、この2価の基は置換基を有していてもよい、前記〔4〕項に記載の化合物。

20

〔7〕Gが前記の式（G1）で表される連結基であり、式（G1）中G¹が下記の式（C-1）～（C-10）で表される2価の基の群から選択される1つである、前記〔4〕項に記載の化合物。



30

40

式中、Rは独立して水素、メチル、エチル、n-ブチル、ヘキシル、シクロヘキシル、フェニル、ナフチル、ビフェニル、またはテルフェニルであり；式（C-1）～（C-

50

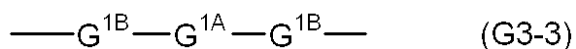
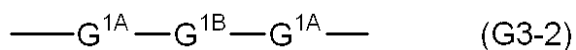
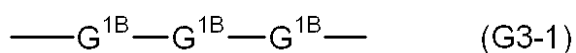
10) で表される 2 価の基は、遊離原子価をもつ原子以外の位置に置換基を有していてもよい。

[8] G が前記の式 (G 2) で表される連結基であり、式 (G 2) 中 G^1 が前記の式 (A-1) ~ (A-21) および式 (B-1) ~ (B-41) で表される化合物の群から選択される 1 つから誘導される同一の 2 価の基である、前記 [4] 項に記載の化合物。

[9] G が前記の式 (G 2) で表される連結基であり、式 (G 2) 中 G^1 が前記の式 (C-1) ~ (C-6) で表される 2 価の基の群から選択される同一の基である、前記 [4] 項に記載の化合物。

10

[10] G が下記の式 (G 3-1) ~ (G 3-3) で表される基の群から選択される 1 つである、前記 [4] 項に記載の化合物。

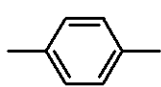


20

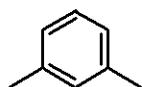
式中、 G^{1A} は独立して、前記の式 (A-1) ~ (A-21) で表される化合物の群から選択される 1 つから誘導される 2 価の基であり； G^{1B} は独立して、前記の式 (B-1) ~ (B-41) で表される化合物の群から選択される 1 つから誘導される 2 価の基である。

[11] G が式 (G 3-2) で表される連結基であり； G^{1A} が前記の式 (C-1) ~ (C-6) で表される 2 価の基の群から選択される同一の基であり、 G^{1B} が下記の式 (D-1) ~ (D-12) で表される 2 価の基の群から選択される 1 つである、前記 [10] 項に記載の化合物。

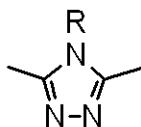
30



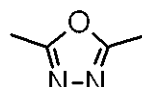
(D-1)



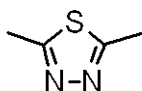
(D-2)



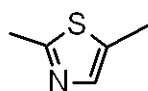
(D-3)



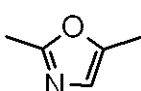
(D-4)



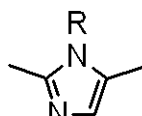
(D-5)



(D-6)

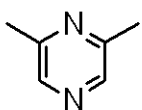


(D-7)

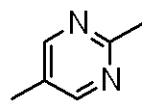


(D-8)

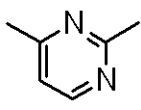
40



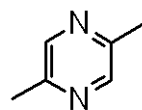
(D-9)



(D-10)



(D-11)



(D-12)

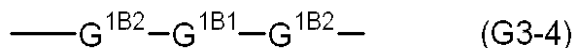
式中、R は独立して水素、メチル、エチル、n-ブチル、ヘキシル、シクロヘキシル、フェニル、ナフチル、ビフェニリル、またはテルフェニリルであり；式 (D-1) ~ (D-12) で表される 2 価の基は、遊離原子価をもつ原子以外の位置に置換基を有していても

50

よい。

[12] Gが式(G3-3)で表される連結基であり; G^{1A} が前記の式(C-1)～(C-6)で表される2価の基の群から選択される1つであり、 G^{1B} が前記の式(D-1)～(D-15)で表される2価の基の群から選択される同一の基である、前記[10]項に記載の化合物。

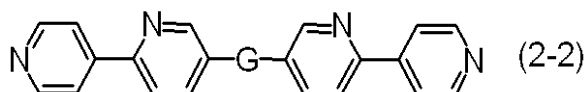
[13] Gが下記の式(G3-4)で表される連結基である、前記[10]項に記載の化合物。



式中、 G^{1B1} は前記の式(D-1)～(D-5)で表される2価の基の群から選択される1つであり、 G^{1B2} は前記の式(D-1)～(D-12)で表される2価の基の群から選択される同一の基である。

【0008】

[14] 下記の式(2-2)で表される、前記[3]項に記載の化合物。



式中、Gの定義は前記[3]項に記載の式(2)におけるGと同じである。

[15] Gが前記の式(G1)で表される連結基であり、式(G1)中、 G^1 が前記の式(A-1)～(A-21)で表される化合物の群から選択される1つから誘導される2価の基である、前記[14]項に記載の化合物。

[16] Gが前記の式(G1)で表される連結基であり、式(G1)中、 G^1 が前記の式(A-1)～(A-4)で表される化合物の群から選択される1つから誘導される2価の基である、前記[14]項に記載の化合物。

[17] Gが前記の式(G1)で表される連結基であり、式(G1)中、 G^1 が前記の式(C-1)～(C-10)で表される2価の基の群から選択される1つである、前記[14]項に記載の化合物。

[18] Gが前記の式(G2)で表される連結基であり、式(G2)中、 G^1 が前記の式(A-1)～(A-21)および式(B-1)～(B-41)で表される化合物の群から選択される1つから誘導される同一の2価の基である、前記[14]項に記載の化合物。

[19] Gが前記の式(G2)で表される連結基であり、式(G2)中、 G^1 が前記の式(C-1)～(C-6)で表される2価の基の群から選択される同一の基である、前記[14]項に記載の化合物。

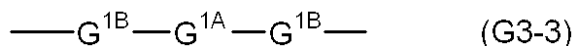
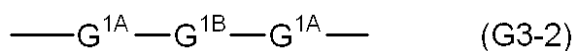
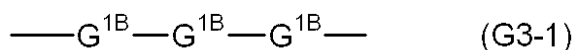
[20] Gが下記の式(G3-1)～(G3-3)で表される基の群から選択される1つである、前記[14]項に記載の化合物。

10

20

30

40



式中、 G^{1A} は独立して、前記の式(A-1)～(A-21)で表される化合物の群から選択される1つから誘導される2価の基であり； G^{1B} は独立して、前記の式(B-1)～(B-41)で表される化合物の群から選択される1つから誘導される2価の基である。

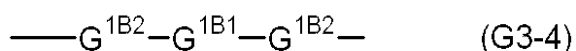
10

[21] Gが式(G3-2)で表される連結基であり； G^{1A} が前記の式(C-1)～(C-6)で表される2価の基の群から選択される同一の基であり、 G^{1B} が前記の式(D-1)～(D-12)で表される2価の基の群から選択される1つである、前記[20]項に記載の化合物。

[22] Gが式(G3-3)で表される連結基であり； G^{1A} が前記の式(C-1)～(C-6)で表される2価の基の群から選択される1つであり、 G^{1B} が前記の式(D-1)～(D-12)で表される2価の基の群から選択される同一の基である、前記[20]項に記載の化合物。

20

[23] Gが下記の式(G3-4)で表される連結基である、前記[20]項に記載の化合物。

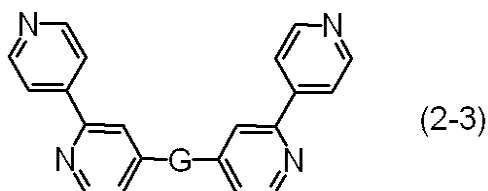


式中、 G^{1B1} は前記の式(D-1)～(D-5)で表される2価の基の群から選択される1つであり、 G^{1B2} は前記の式(D-1)～(D-12)で表される2価の基の群から選択される同一の基である。

【0009】

30

[24] 下記の式(2-3)で表される、前記[3]項に記載の化合物。



式中、Gの定義は前記[3]項に記載の式(2)におけるGと同じである。

40

[25] Gが前記の式(G1)で表される連結基であり、式(G1)中 G^1 が前記の式(A-1)～(A-21)で表される化合物の群から選択される1つから誘導される2価の基である、前記[24]項に記載の化合物。

[26] Gが前記の式(G1)で表される連結基であり、式(G1)中 G^1 が前記の式(A-1)～(A-4)で表される化合物の群から選択される1つから誘導される2価の基であり、この2価の基は置換基を有していてもよい、前記[24]項に記載の化合物。

[27] Gが前記の式(G1)で表される連結基であり、式(G1)中 G^1 が前記の式(C-1)～(C-10)で表される2価の基の群から選択される1つである、前記[24]

50

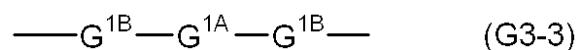
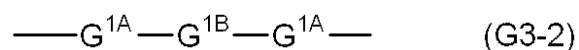
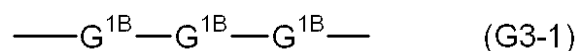
〕項に記載の化合物。

〔28〕Gが前記の式（G2）で表される連結基であり、式（G2）中G¹が前記の式（A-1）～（A-21）および式（B-1）～（B-41）で表される化合物の群から選択される1つから誘導される同一の2価の基である、前記〔24〕項に記載の化合物。

〔29〕Gが前記の式（G2）で表される連結基であり、式（G2）中G¹が前記の式（C-1）～（C-6）で表される2価の基の群から選択される同一の基である、前記〔24〕項に記載の化合物。

10

〔30〕Gが下記の式（G3-1）～（G3-3）で表される基の群から選択される1つである、前記〔24〕項に記載の化合物。



式中、G^{1A}は独立して、前記の式（A-1）～（A-21）で表される化合物の群から選択される1つから誘導される2価の基であり；G^{1B}は独立して、前記の式（B-1）～（B-41）で表される化合物の群から選択される1つから誘導される2価の基である。

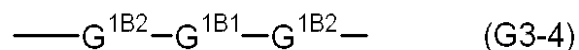
20

〔31〕Gが式（G3-2）で表される連結基であり；G^{1A}が前記の式（C-1）～（C-6）で表される2価の基の群から選択される同一の基であり、G^{1B}が前記の式（D-1）～（D-12）で表される2価の基の群から選択される1つである、前記〔30〕項に記載の化合物。

〔32〕Gが式（G3-3）で表される連結基であり；G^{1A}が前記の式（C-1）～（C-6）で表される2価の基の群から選択される1つであり、G^{1B}が前記の式（D-1）～（D-12）で表される2価の基の群から選択される同一の基である、前記〔30〕項に記載の化合物。

30

〔33〕Gが下記の式（G3-4）で表される連結基である、前記〔30〕項に記載の化合物。

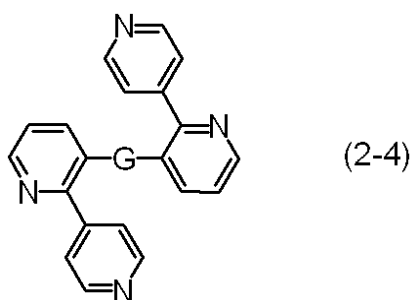


式中、G^{1B1}は前記の式（D-1）～（D-5）で表される2価の基の群から選択される1つであり、G^{1B2}は前記の式（D-1）～（D-12）で表される2価の基の群から選択される同一の基である。

40

【0010】

〔34〕下記の式（2-4）で表される、前記〔3〕項に記載の化合物。



式中、G の定義は前記〔3〕項に記載の式(2)におけるGと同じである。

10

〔35〕Gが前記の式(G1)で表される連結基であり、式(G1)中、G¹が前記の式(A-1)～(A-21)で表される化合物の群から選択される1つから誘導される2価の基である、前記〔34〕項に記載の化合物。

〔36〕Gが前記の式(G1)で表される連結基であり、式(G1)中、G¹が前記の式(A-1)～(A-4)で表される化合物の群から選択される1つから誘導される2価の基である、前記〔34〕項に記載の化合物。

〔37〕Gが前記の式(G1)で表される連結基であり、式(G1)中、G¹が前記の式(C-1)～(C-10)で表される2価の基の群から選択される1つである、前記〔34〕項に記載の化合物。

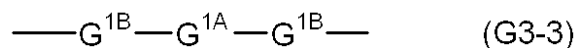
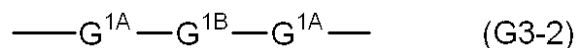
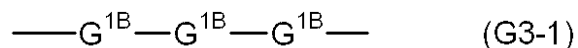
20

〔38〕Gが前記の式(G2)で表される連結基であり、式(G2)中、G¹が前記の式(A-1)～(A-21)および式(B-1)～(B-41)で表される化合物の群から選択される1つから誘導される同一の2価の基である、前記〔34〕項に記載の化合物。

〔39〕Gが前記の式(G2)で表される連結基であり、式(G2)中、G¹が前記の式(C-1)～(C-6)で表される2価の基の群から選択される同一の基である、前記〔34〕項に記載の化合物。

30

〔40〕Gが下記の式(G3-1)～(G3-3)で表される基の群から選択される1つである、前記〔34〕項に記載の化合物。



式中、G^{1A}は独立して、前記の式(A-1)～(A-21)で表される化合物の群から選択される1つから誘導される2価の基であり；G^{1B}は独立して、前記の式(B-1)～(B-41)で表される化合物の群から選択される1つから誘導される2価の基である。

40

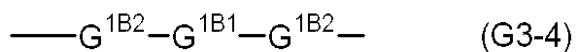
〔41〕Gが式(G3-2)で表される連結基であり；G^{1A}が前記の式(C-1)～(C-6)で表される2価の基の群から選択される同一の基であり、G^{1B}が前記の式(D-1)～(D-12)で表される2価の基の群から選択される1つである、前記〔40〕項に記載の化合物。

〔42〕Gが式(G3-3)で表される連結基であり；G^{1A}が前記の式(C-1)～(

50

C-6) で表される 2 価の基の群から選択される 1 つであり、 G^{1B} が前記の式 (D-1) ~ (D-12) で表される 2 価の基の群から選択される同一の基である、前記 [40] 項に記載の化合物。

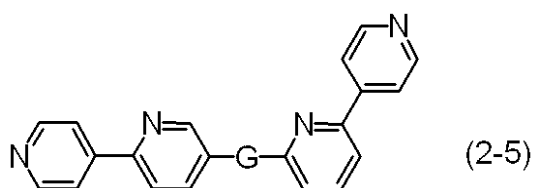
[43] G が下記の式 (G3-4) で表される連結基である、前記 [40] 項に記載の化合物。



式中、 G^{1B1} は前記の式 (D-1) ~ (D-5) で表される 2 価の基の群から選択される 1 つであり、 G^{1B2} は前記の式 (D-1) ~ (D-12) で表される 2 価の基の群から選択される同一の基である。

【0011】

[44] 下記の式 (2-5) で表される、前記 [3] 項に記載の化合物。



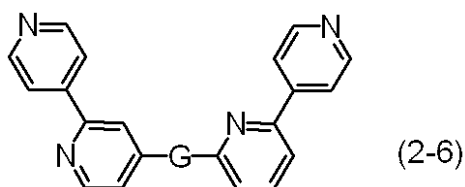
式中、G の定義は前記 [3] 項に記載の式 (2) における G と同じである。

[45] G が前記の式 (G1) で表される連結基であり、式 (G1) 中 G^1 が前記の式 (A-1) ~ (A-21) で表される化合物の群から選択される 1 つから誘導される 2 価の基である、前記 [44] 項に記載の化合物。

[46] G が前記の式 (G1) で表される連結基であり、式 (G1) 中 G^1 が前記の式 (C-1) ~ (C-10) で表される 2 価の基の群から選択される 1 つである、前記 [44] 項に記載の化合物。

【0012】

[47] 下記の式 (2-6) で表される、前記 [3] 項に記載の化合物。



式中、G の定義は前記 [3] 項に記載の式 (2) における G と同じである。

[48] G が前記の式 (G1) で表される連結基であり、式 (G1) 中 G^1 が前記の式 (A-1) ~ (A-21) で表される化合物の群から選択される 1 つから誘導される 2 価の基である、前記 [47] 項に記載の化合物。

[49] G が前記の式 (G1) で表される連結基であり、式 (G1) 中 G^1 が前記の式 (C-1) ~ (C-10) で表される 2 価の基の群から選択される 1 つである、前記 [47] 項に記載の化合物。

【0013】

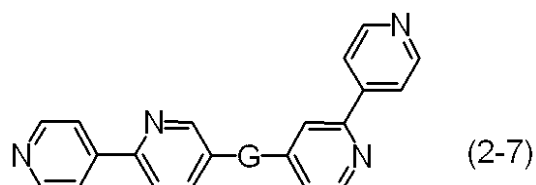
[50] 下記の式 (2-7) で表される、前記 [3] 項に記載の化合物。

10

20

30

40



式中、Gの定義は前記〔3〕項に記載の式(2)におけるGと同じである。

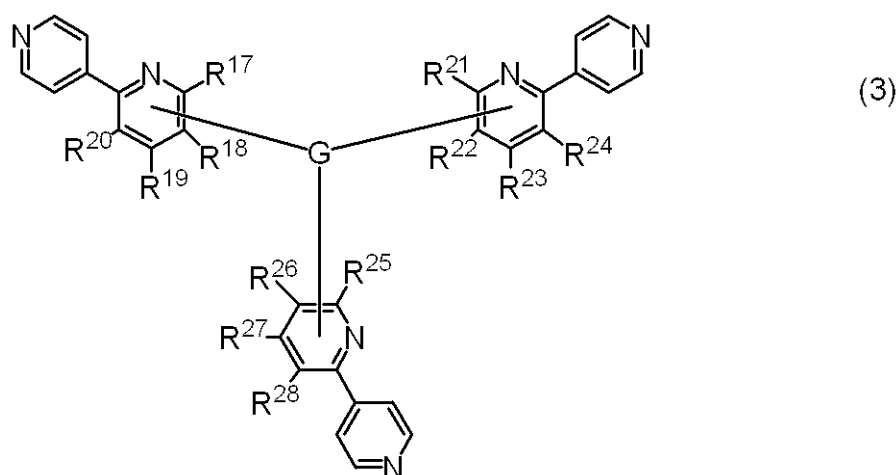
〔51〕 Gが前記の式(G1)で表される連結基であり、式(G1)中G¹が前記の式(A-1)～(A-21)で表される化合物の群から選択される1つから誘導される2価の基である、前記〔50〕項に記載の化合物。

10

〔52〕 Gが前記の式(G1)で表される連結基であり、式(G1)中G¹が前記の式(C-1)～(C-10)で表される2価の基の群から選択される1つである、前記〔50〕項に記載の化合物。

【0014】

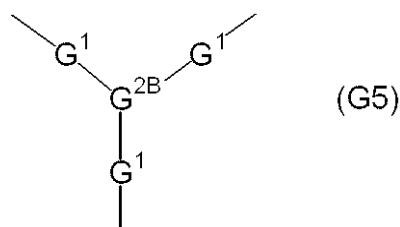
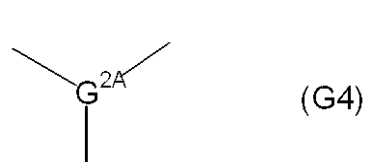
〔53〕 下記の式(3)で表される、前記〔2〕項に記載の化合物。



20

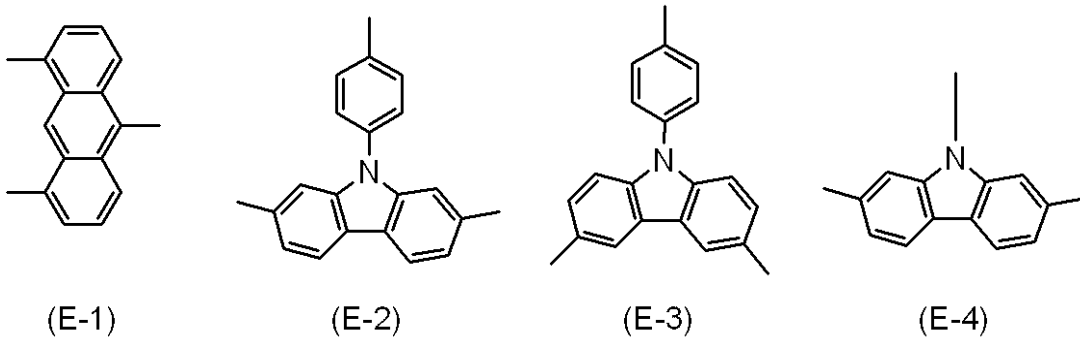
30

式中、Gは下記の式(G4)または(G5)で表される基であり；R¹⁷～R²⁰の1つはGに結合する遊離原子価であり、それ以外は水素であり；R²¹～R²⁴の1つはGに結合する遊離原子価であり、それ以外は水素であり；R²⁵～R²⁸の1つはGに結合する遊離原子価であり、それ以外は水素である。

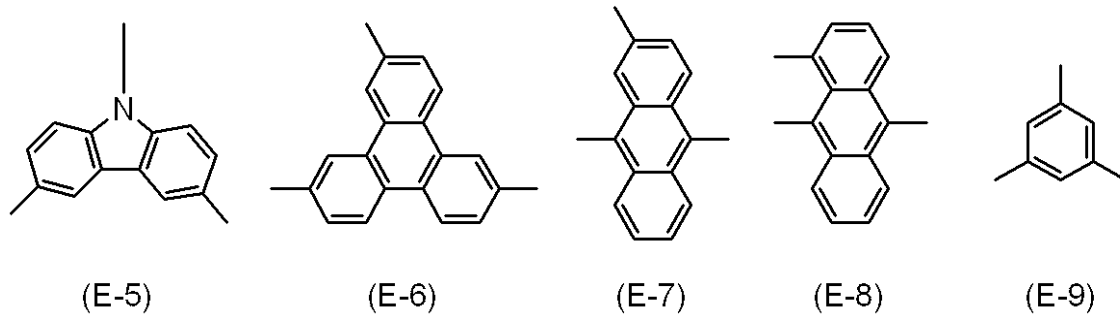


40

式中、G¹は独立して、前記の式(A-1)～(A-21)および式(B-1)～(B-41)で表される化合物の群から選択される1つから誘導される2価の基であり；G^{2A}は、下記の式(E-1)～(E-9)で表される3価の基の群から選択される1つであり、G^{2B}はホウ素、ホスホリル基、または式(E-1)～(E-9)で表される3価の基の群から選択される1つである。



10

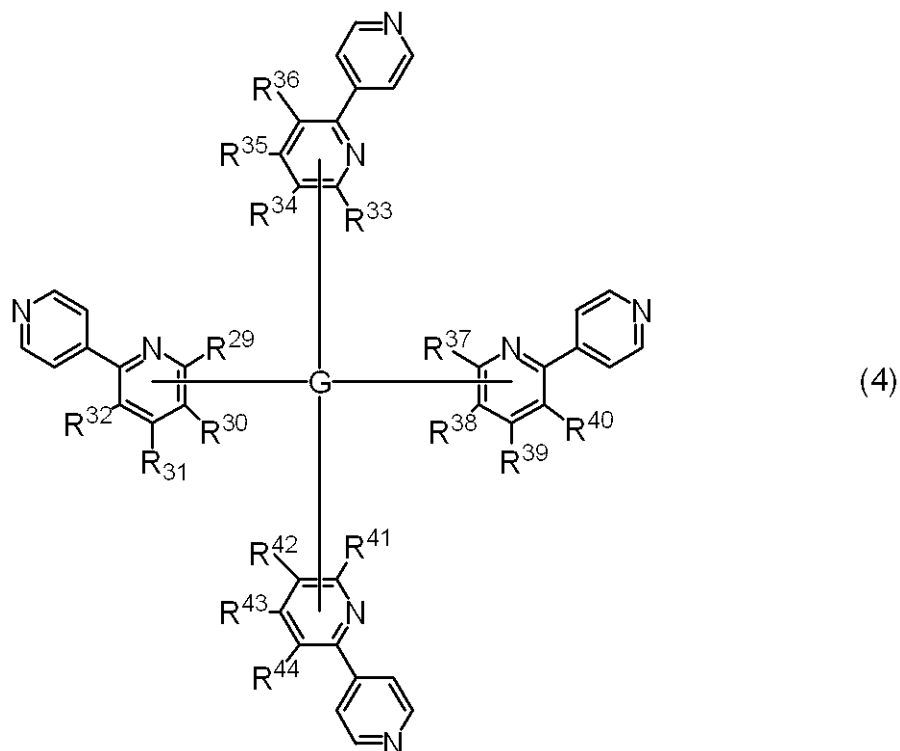


20

[5 4] Gが式 (G 5) で表される連結基であり、式 (G 5) において G^1 が同一である、前記[5 3]に記載の化合物。

【 0 0 1 5 】

[5 5] 下記の式 (4) で表される、前記[2]項に記載の化合物。

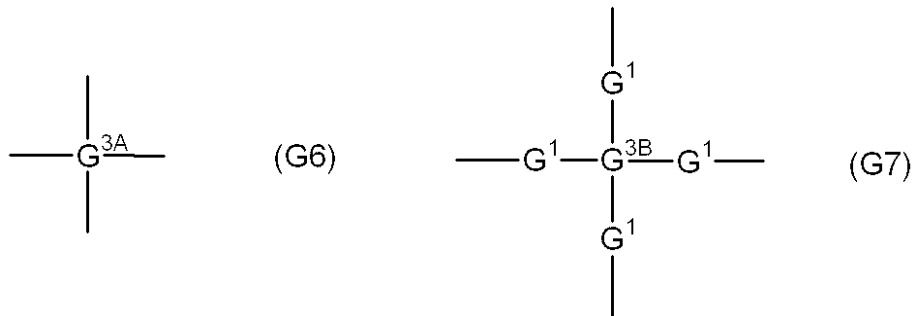


30

40

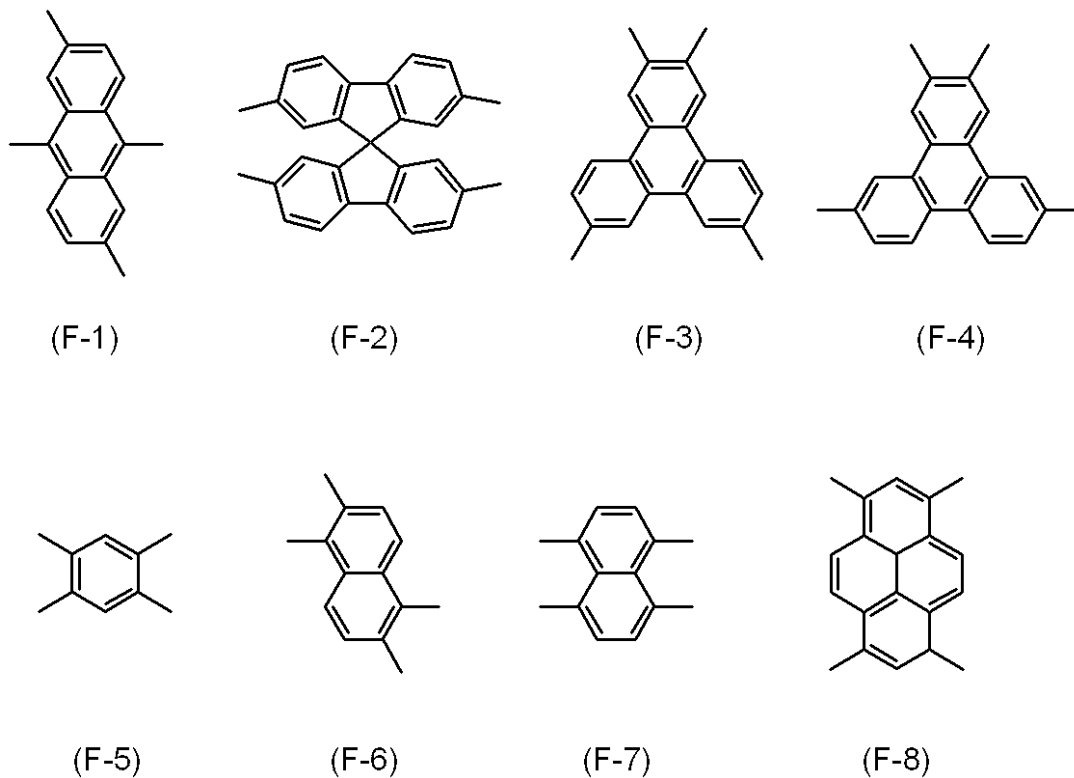
式中、Gは下記の式 (G 6) または (G 7) で表される基であり； $R^{29} \sim R^{32}$ の1つはGに結合する遊離原子価であり、それ以外は水素であり； $R^{33} \sim R^{36}$ の1つはGに結合する遊離原子価であり、それ以外は水素であり； $R^{37} \sim R^{40}$ の1つはGに結合する遊離原子価であり、それ以外は水素であり； $R^{41} \sim R^{44}$ の1つはGに結合する遊離原子価であり、それ以外は水素である。

50



10

式中、 G^1 は独立して、前記の式 (A-1) ~ (A-21) および式 (B-1) ~ (B-41) で表される化合物の群から選択される 1 つから誘導される 2 価の基であり； G^{3A} は、下記の式 (F-1) ~ (F-8) で表される 4 価の基の群から選択される 1 つであり； G^{3B} は炭素、ケイ素、式 (F-1) ~ (F-8) で表される 4 価の基の群から選択される 1 つである。



20

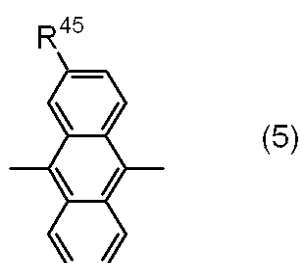
30

[56] G が式 (G7) で表される連結基であり、式 (G7) において G^1 が同一である、前記 [55] 項に記載の化合物。

40

【0016】

[57] G が下記の式 (5) で表される基である、前記 [3] 項に記載の化合物。



50

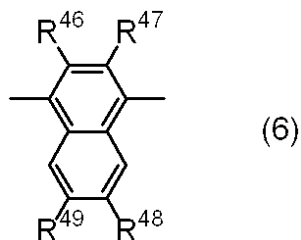
上記の式中、 R^{45} は独立して水素、メチル、*t*-ブチル、シクロヘキシル、フェニル、ナフチル、ビフェニルまたはテルフェニルである。

[58] Gが前記の式(5)で表される基である、前記[4]項に記載の化合物。

[59] Gが前記の式(5)で表される基である、前記[14]項に記載の化合物。

【0017】

[60] Gが下記の式(6)で表される前記[3]項に記載の化合物。



10

上記の式中、 $R^{46} \sim R^{49}$ は独立して水素、メチル、*t*-ブチル、シクロヘキシル、フェニル、ナフチル、ビフェニルまたはテルフェニルである。

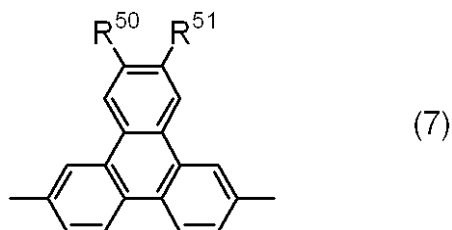
[61] Gが前記の式(6)で表される基である、前記[4]項に記載の化合物。

20

[62] Gが前記の式(6)で表される基である、前記[14]項に記載の化合物。

【0018】

[63] Gが下記の式(7)で表される基である、前記[3]項に記載の化合物。



30

上記の式中、 R^{50} および R^{51} は独立して水素、メチル、*t*-ブチル、シクロヘキシル、フェニル、ナフチル、ビフェニルまたはテルフェニルである。

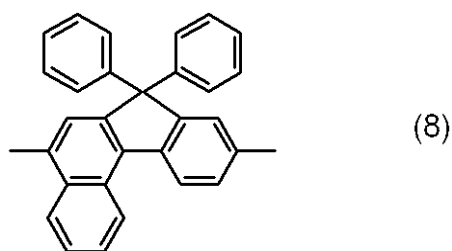
[64] Gが前記の式(7)で表される基である、前記[4]項に記載の化合物。

[65] Gが前記の式(7)で表される基である、前記[14]項に記載の化合物。

【0019】

[66] Gが下記の式(8)で表される基である、前記[3]項に記載の化合物。

40



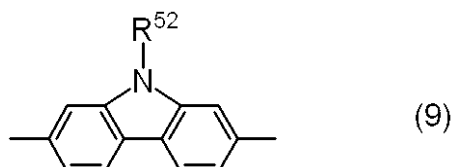
[67] Gが前記の式(8)で表される基である、前記[4]項に記載の化合物。

50

〔68〕 Gが前記の式（8）で表される基である、前記〔14〕項に記載の化合物。

【0020】

〔69〕 Gが下記の式（9）で表される基である、前記〔3〕項に記載の化合物。



10

上記の式中、 R^{52} は独立してフェニル、ナフチル、ビフェニルまたはテルフェニルである。

〔70〕 Gが前記の式（9）で表される基である、前記〔4〕項に記載の化合物。

〔71〕 Gが前記の式（9）で表される基である、前記〔14〕項に記載の化合物。

【0021】

〔72〕 前記〔1〕～〔71〕項のいずれか1項に記載の化合物を含有する有機電界発光素子。

〔73〕 陽極および陰極により挟持された、少なくとも正孔輸送層、発光層、および電子輸送層を基板上に有する有機電界発光素子であって、該電子輸送層が、前記〔1〕～〔71〕項のいずれか1項に記載の化合物を含有する有機電界発光素子。

20

【発明の効果】

【0022】

本発明の化合物は薄膜状態で電圧を印加しても安定であり、また、電荷の輸送能力が高いという特徴を持つ。本発明の化合物は有機EL素子における電荷輸送材料として適している。本発明の化合物を有機EL素子の電子輸送層に用いることで、低い駆動電圧、長い寿命を有する有機EL素子を得ることができる。本発明の有機EL素子を用いることにより、フルカラー表示等の高性能のディスプレイ装置を作成できる。

【発明を実施するための最良の形態】

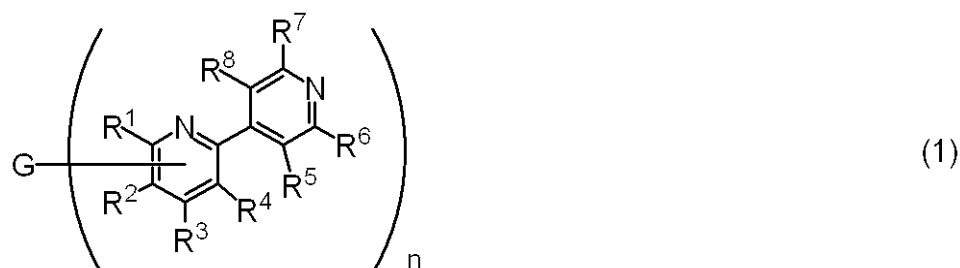
30

【0023】

以下、本発明をさらに詳細に説明する。

<化合物の説明>

本願の第1の発明は下記の式（1）で表される、2, 4'-ビピリジル基を有する化合物である。



40

式中、Gは単結合ではないn個の連結基である。n個の連結基とはn個の原子、n個の基およびn個の遊離原子価をもつ環系を指す総称であり、かつ、n個の連結基はこれらを組み合わせて構成されてもよい。n個の連結基が非対称な構造である場合も、n個の2, 4'-ビピリジル基は該連結基の任意の位置に結合してよい。n個の連結基Gについての詳しい説明は後述する。

【0024】

50

本明細書中、 $R^1 \sim R^8$ と2, 4'-ビピリジル核で形成される基のことを2, 4'-ビピリジル基と称する。2, 4'-ビピリジル基における $R^1 \sim R^4$ の1つはGに結合する遊離原子価であり、それ以外は独立して水素または1価の基である。 $R^5 \sim R^8$ は独立して水素または1価の基である。n個の2, 4'-ビピリジル基は同一でもよく、異なってもよいが、同一であることが好ましい。なお、前記の連結基Gにおける「n個の遊離原子価」および、2, 4'-ビピリジル基における「Gに結合する遊離原子価」という表記は、Gおよび2, 4'-ビピリジル基が遊離基（ラジカル）で存在する事を表すものではない。「遊離原子価」とは、共有結合によって他の基や原子と結合している、いわゆる「結合手」のことを表す。すなわち、「2, 4'-ビピリジル基における $R^1 \sim R^4$ の1つはGに結合する遊離原子価であり」という表記は、2, 4'-ビピリジル基における $R^1 \sim R^4$ のどれか1つが連結基Gの遊離原子価を持つ原子の任意の位置に結合している状態を表すものである。

10

【0025】

$R^1 \sim R^8$ における1価の基は、ニトロ基、シアノ基、ジメシチルボリル基、炭素数6～12のアリール、または炭素数1～12のアルキルである。このアルキルは直鎖でも分岐鎖でも環状でもよい。1価の基の具体例はフェニル、2-ビフェニル、3-ビフェニル、4-ビフェニル、1-ナフチル、2-ナフチル、メチル、t-ブチル、シクロヘキシルである。 $R^5 \sim R^8$ は水素が好ましい。

【0026】

2, 4'-ビピリジル基は、 R^1 、 R^2 または R^3 がGに結合することが好ましい。Gとの結合に関与しない $R^1 \sim R^4$ は水素であることが好ましい。

20

【0027】

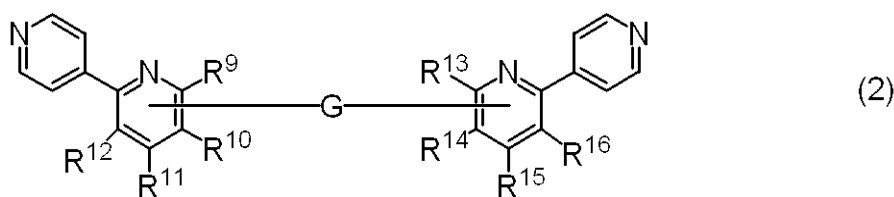
式(1)において、nは2が最も好ましく、次に3が好ましく、その次に4が好ましい。その理由の1つは化合物が製造し易いことである。2つめは、分子量が極端に大きくならず比較的昇華性が高くなると考えられ、有機EL素子の製造時製膜し易いという利点が見込めることである。

【0028】

<n = 2である化合物>

nが2である化合物は、詳しくは下記の式(2)で表される。

30

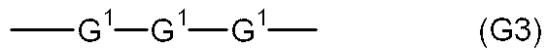


$R^9 \sim R^{12}$ の1つはGに結合する遊離原子価であり、それ以外は水素である。ここで、 R^9 、 R^{10} または R^{11} がGに結合することが好ましい。 $R^{13} \sim R^{16}$ の1つはGに結合する遊離原子価であり、それ以外は水素である。ここで、 R^{13} 、 R^{14} または R^{15} がGに結合することが好ましい。2つの2, 4'-ビピリジル基は同一でもよく、異なってもよいが、同一である方が好ましい。また、n = 2の場合、Gはパラターフェニレンの持つエネルギーギャップより小さくなる事が好ましい。その理由は、 π 共役系が広がる事で隣接分子間の電荷移動が容易になると考えられ、駆動電圧の低下に繋がることが期待されるからである。

40

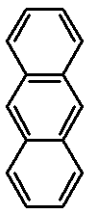
【0029】

Gは下記の式(G1)～(G3)で表される連結基の群から選択される1つである。式(G2)および(G3)において、 G^1 は同一でもよく、異なってもよい。

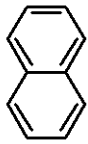


G¹は独立して、下記の式(A-1)～(A-21)および式(B-1)～(B-41)で表される化合物の群から選択される1つから誘導される2価の基である。以降、式(A-1)～(A-21)で表される化合物の群をA群、式(B-1)～(B-41)で表される化合物の群をB群と称することがある。

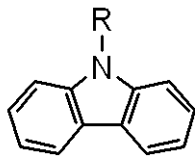
【0030】



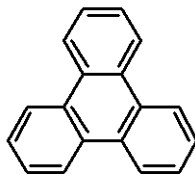
(A-1)



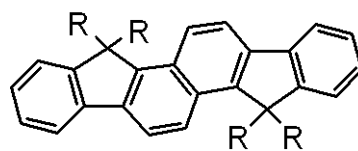
(A-2)



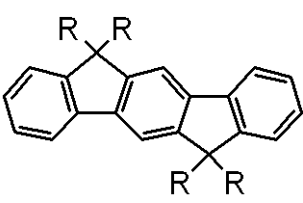
(A-3)



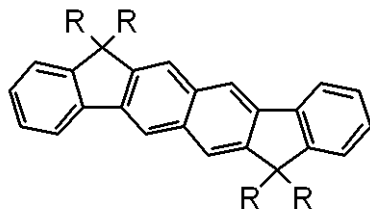
(A-4)



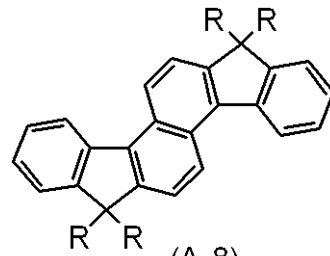
(A-5)



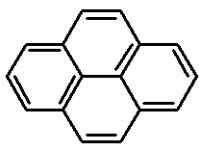
(A-6)



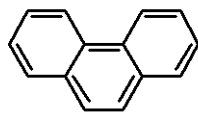
(A-7)



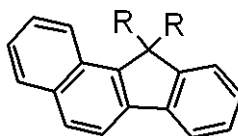
(A-8)



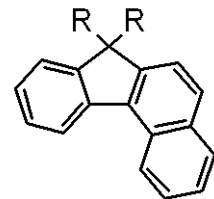
(A-9)



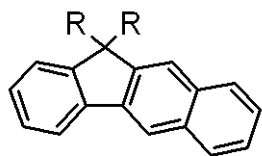
(A-10)



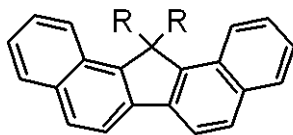
(A-11)



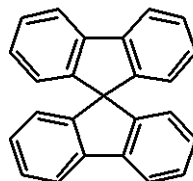
(A-12)



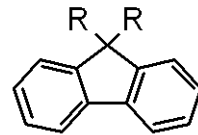
(A-13)



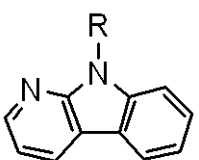
(A-14)



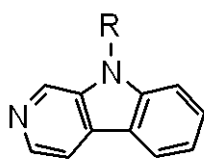
(A-15)



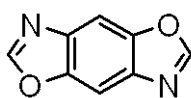
(A-16)



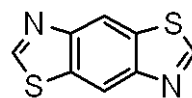
(A-17)



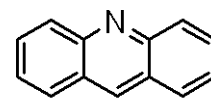
(A-18)



(A-19)



(A-20)



(A-21)

10

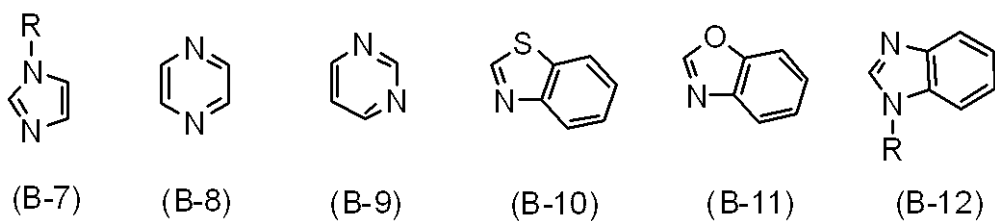
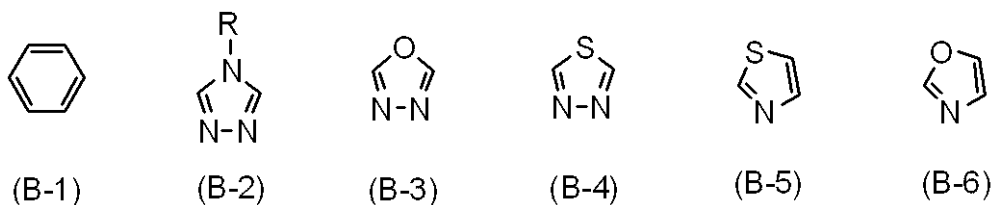
20

30

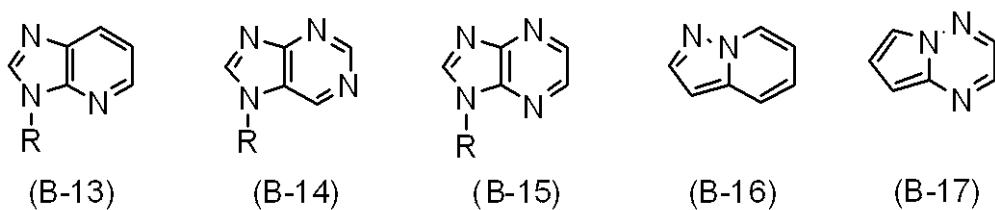
40

50

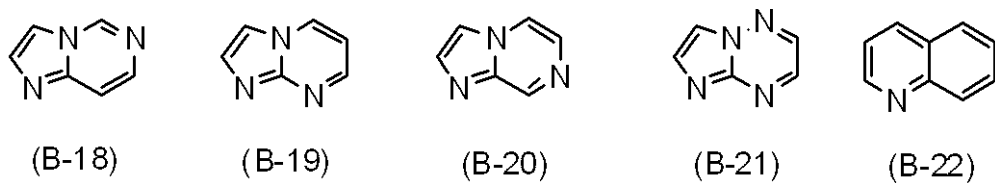
【 0 0 3 2 】



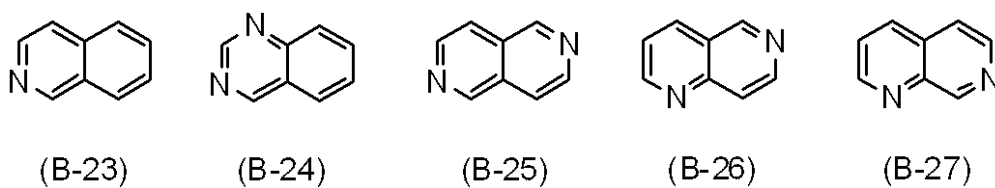
10



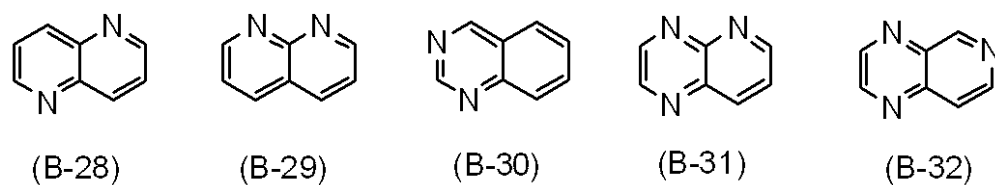
20



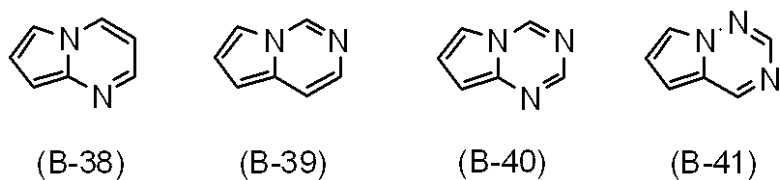
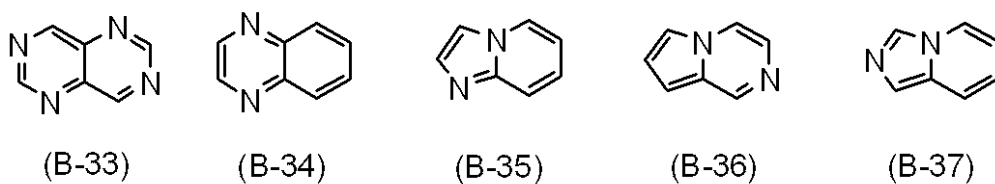
【 0 0 3 3 】



30



40



50

【0034】

上記の式 (A-1) ~ (A-21) および (B-1) ~ (B-40) において、Rは独立して水素、炭素数1~8のアルキル、炭素数3~10のシクロアルキル、または炭素数6~20のアリールである。炭素数1~8のアルキルは直鎖および分岐鎖どちらでもよく、炭素数1~8の直鎖アルキルまたは炭素数3~8の分岐鎖アルキルがあげられる。炭素数1~8の直鎖アルキルの例はメチル、エチル、n-プロピル、n-ブチル、n-ペンチル、n-ヘキシル、n-ヘプチル、n-オクチルである。炭素数3~8の分岐鎖アルキルの例はイソプロピル、イソブチル、s-ブチル、t-ブチル、イソペンチル、ネオペンチル、t-ペンチル、1-メチルペンチル、4-メチル-2-ペンチル、3, 3-ジメチルブチル、2-エチルブチル、1-メチルヘキシル、t-オクチル、1-メチルヘプチル、2-エチルヘキシル、2-プロピルペンチルなどである。炭素数3~10のシクロアルキルの例はシクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、メチルシクロペンチル、シクロヘキシル、メチルシクロヘキシル、ジメチルシクロヘキシル、シクロヘプチル、シクロオクチル、シクロノニル、シクロデシルなどである。炭素数6~20のアリールの例はフェニル、トリル、キシリル、ビフェニル、ナフチル、アントラセニル、フェナントリル、テルフェニル、フルオレニル、ピレニルなどである。好ましいRは水素、メチル、エチル、t-ブチル、ヘキシル、シクロヘキシル、フェニル、ナフチル、ビフェニル、またはテルフェニルである。

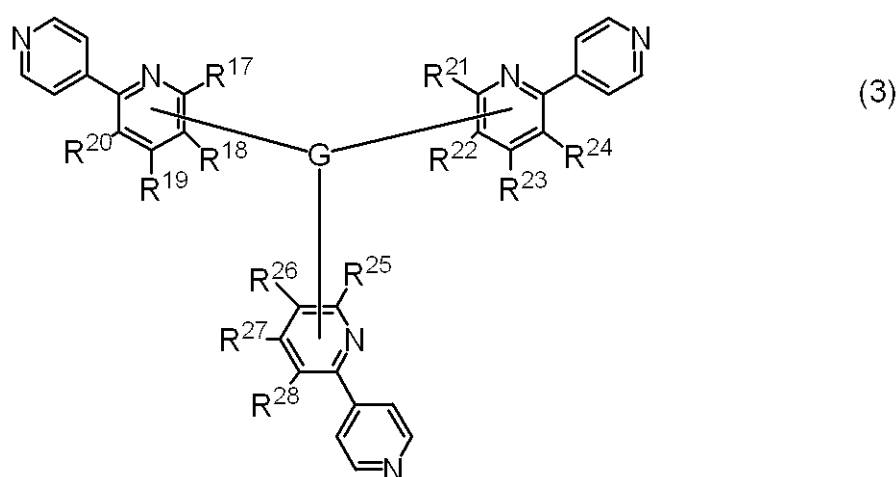
【0035】

式 (A-1) ~ (A-21) および式 (B-1) ~ (B-41) で表される化合物から誘導される2価の基は、遊離原子価を持つ原子以外の位置に置換基を有していてもよい。置換基の具体例はフェニル、2-ビフェニル、3-ビフェニル、4-ビフェニル、1-ナフチル、2-ナフチル、メチル、t-ブチル、シクロヘキシル、m-テルフェニル-2'-イル及びm-テルフェニル-5'-イルである。

【0036】

<n=3である化合物>

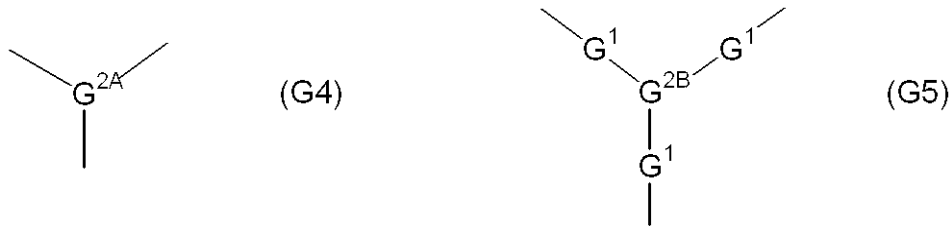
nが3である化合物は、詳しくは下記の式(3)で表される。



R¹⁷ ~ R²⁰ の1つはGに連結する遊離原子価であり、それ以外は水素である。ここで、R¹⁷、R¹⁸またはR¹⁹がGに結合することが好ましい。R²¹ ~ R²⁴ の1つはGに連結する遊離原子価であり、それ以外は水素である。ここで、R²¹、R²²またはR²³がGに結合することが好ましい。R²⁵ ~ R²⁸ の1つはGに連結する遊離原子価であり、それ以外は水素である。ここで、R²⁵、R²⁶またはR²⁷がGに結合することが好ましい。3つの2, 4'-ビピリジル基は同一でもよく、異なってもよいが、同一である方が好ましい。

【0037】

Gは下記の式（G4）または（G5）で表される連結基である。式（G5）において、G¹は同一でもよく、異なってもよいが、同一である方が好ましい。

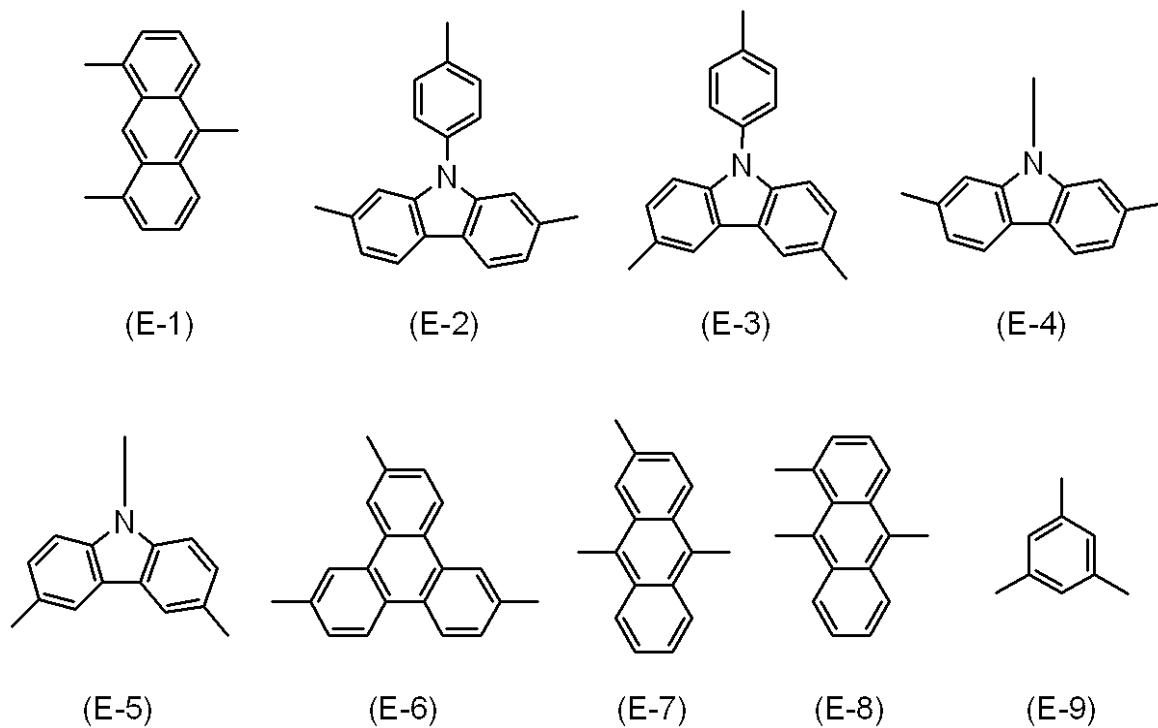


10

G¹は独立して、前記のA群およびB群の化合物から選択される1つから誘導される2価の基である。

【0038】

G^{2A}は、下記の式（E-1）～（E-9）で表される3価の基の群から選択される1つであり、G^{2B}はホウ素、ホスホリル基、または式（E-1）～（E-9）で表される3価の基の群から選択される1つである。



20

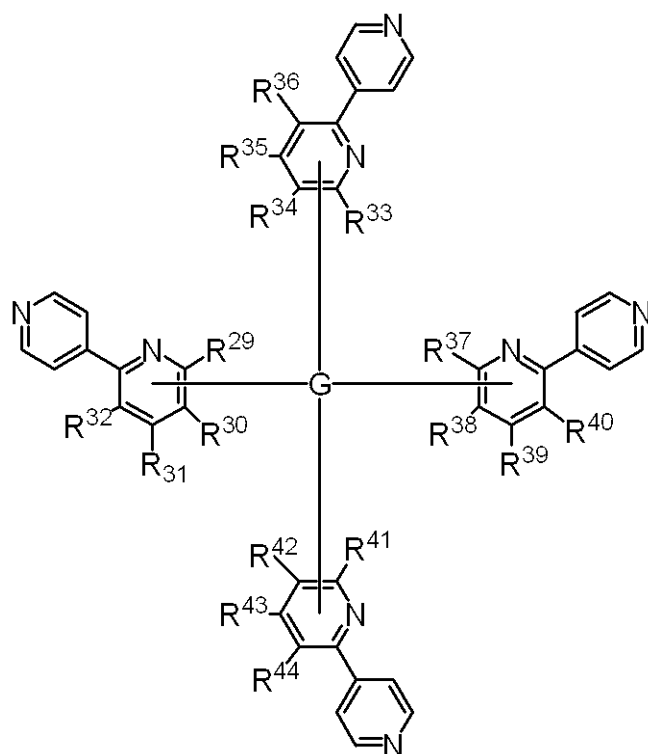
30

【0039】

<n = 4である化合物>

nが4である化合物は、詳しくは下記の式（4）で表される。

40



(4)

10

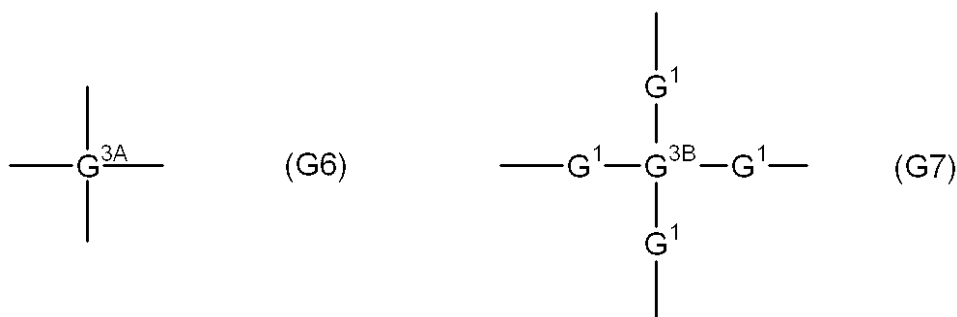
20

$R^{29} \sim R^{32}$ の 1 つは G に連結する遊離原子価であり、それ以外は水素である。ここで、 R^{29} 、 R^{30} または R^{31} が G に結合することが好ましい。 $R^{33} \sim R^{36}$ の 1 つは G に連結する遊離原子価であり、それ以外は水素である。ここで、 R^{33} 、 R^{34} または R^{35} が G に結合することが好ましい。 $R^{37} \sim R^{40}$ の 1 つは G に連結する遊離原子価であり、それ以外は水素である。ここで、 R^{37} 、 R^{38} または R^{39} が G に結合することが好ましい。 $R^{41} \sim R^{44}$ の 1 つは G に連結する遊離原子価であり、それ以外は水素である。ここで、 R^{41} 、 R^{42} または R^{43} が G に結合することが好ましい。4 つの 2, 4'-ピリジル基は同一でもよく、異なっているもよいが、同一である方が好ましい。

30

【0040】

G は下記の式 (G6) または (G7) で表される連結基である。式 (G7) において、 G^1 は同一でもよく、異なっているもよいが、同一である方が好ましい。



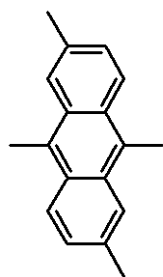
40

G^1 は独立して、前記の A 群および B 群の化合物から選択される 1 つから誘導される 2 価の基である。

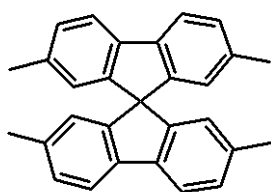
【0041】

G^{3A} は、下記の式 (F-1) ~ (F-8) で表される 4 価の基の群から選択される 1 つであり、 G^{3B} は炭素、ケイ素、または式 (F-1) ~ (F-8) で表される 4 価の基の群から選択される 1 つである。 G^{3B} は式 (F-1) ~ (F-8) で表される 4 価の基の群から選択される 1 つであることが好ましい。

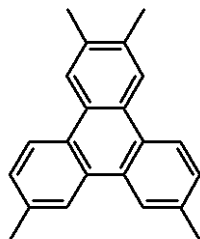
50



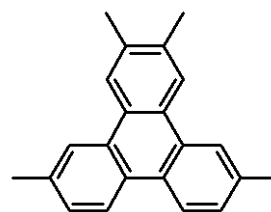
(F-1)



(F-2)

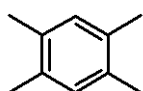


(F-3)

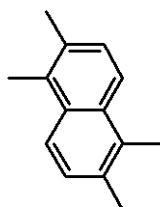


(F-4)

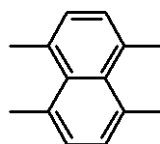
10



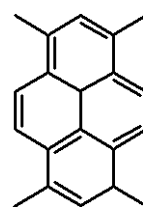
(F-5)



(F-6)



(F-7)



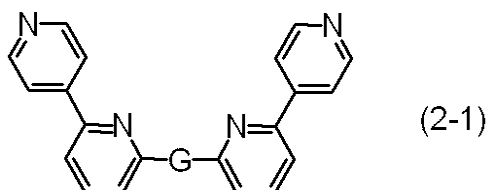
(F-8)

20

【0042】

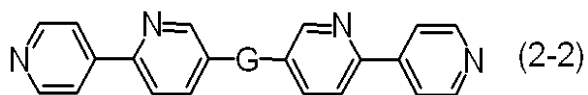
< n = 2である化合物のさらに詳細な説明 >

nが2である好ましい化合物は下記の式(2-1)～(2-7)で表される。

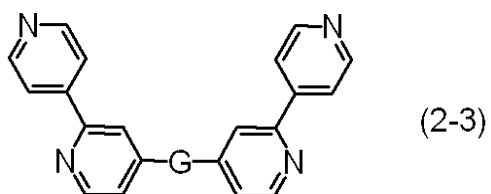


(2-1)

30

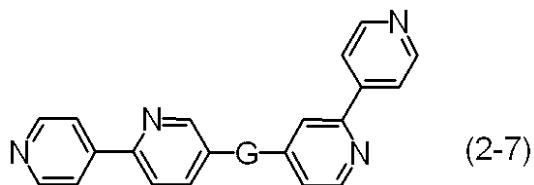
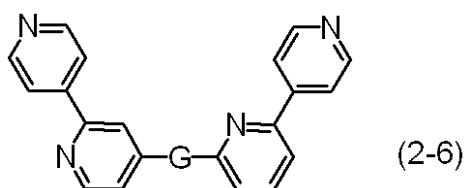
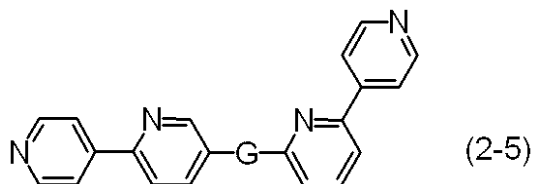
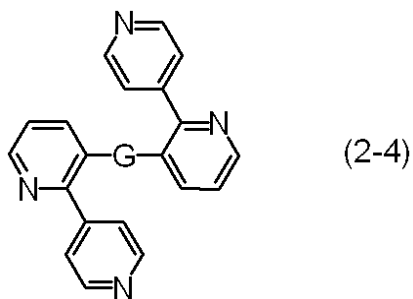


(2-2)



(2-3)

40



式(2-1)～(2-7)においては、式(2-1)、(2-2)および(2-3)が好ましく、式(2-1)および(2-2)がより好ましい。式(2-1)～(2-7)においては、Gは式(G1)であることが好ましく、次いで式(G3)であることが好ましく、次いで式(G2)であることが好ましい。

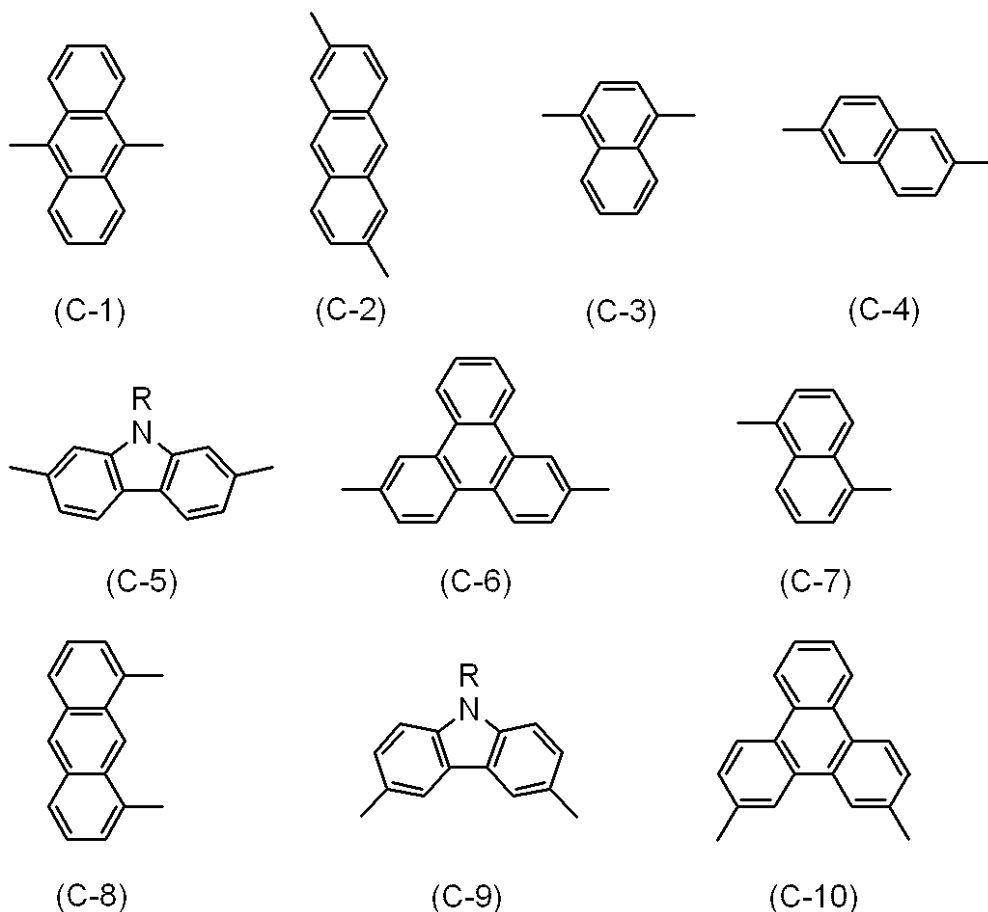
【0043】

式(2-1)～(2-7)において、Gが式(G1)であるとき、G¹は前記のA群の化合物から選択される1つから誘導される2価の基であることが好ましく、A群の中でも式(A-1)～(A-4)で表される化合物の群から選択される1つから誘導される2価の基であることがより好ましく、下記の式(C-1)～(C-10)で表される2価の基の群から選択される1つであることがさらに好ましい。C群の中では下記の式(C-1)～(C-6)で表される2価の基の群から選択される1つであることが好ましい。

10

20

30



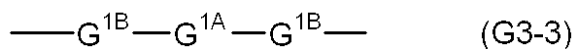
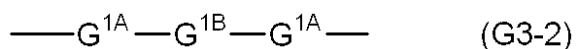
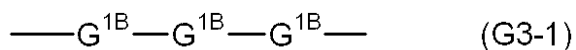
Rは独立して水素、メチル、エチル、*t*-ブチル、ヘキシル、シクロヘキシル、フェニル、ナフチル、ビフェニリル、またはテルフェニリルである。式(C-1)～(C-10)で表される2価の基は、遊離原子価をもつ原子以外の位置に置換基を有していてもよい。置換基の具体例はフェニル、2-ビフェニリル、3-ビフェニリル、4-ビフェニリル、1-ナフチル、2-ナフチル、メチル、*t*-ブチル、シクロヘキシル、*m*-テルフェニル-2'-イル及び*m*-テルフェニル-5'-イルである。

【0044】

式(2-1)～(2-4)において、Gが式(G2)であるとき、 G^1 は前記のA群およびB群の化合物から選択される1つから誘導される同一の2価の基であることが好ましく、式(A-1)～(A-4)で表される化合物の群から選択される1つから誘導される同一の2価の基であることがより好ましく、前記の式(C-1)～(C-6)で表される2価の基の群から選択される同一の基であることがさらに好ましい。

【0045】

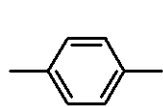
式(2-1)～(2-4)において、Gが式(G3)であるとき、さらに詳しくは下記の式(G3-1)～(G3-3)で表される連結基であることが好ましい。



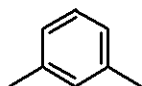
G^{1A} は独立して、前記のA群の化合物から選択される1つから誘導される2価の基であり、 G^{1B} は独立して、前記のB群の化合物から選択される1つから誘導される2価の基である。

【0046】

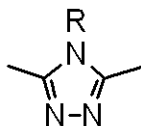
式(2-1)～(2-4)において、Gが式(G3-1)で表される連結基であるとき、 G^{1B} は下記の式(D-1)～(D-12)で表される2価の基の群から選択される同一の基であることが好ましい。



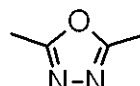
(D-1)



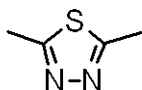
(D-2)



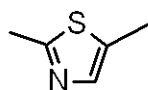
(D-3)



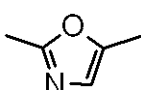
(D-4)



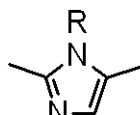
(D-5)



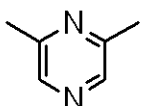
(D-6)



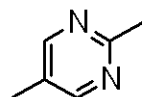
(D-7)



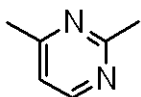
(D-8)



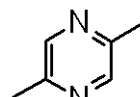
(D-9)



(D-10)



(D-11)



(D-12)

Rは水素、メチル、エチル、n-ブチル、ヘキシル、シクロヘキシル、フェニル、ナフチル、ビフェニリル、またはテルフェニリルである。式(D-1)～(D-12)で表される2価の基は、遊離原子価をもつ原子以外の位置に置換基を有していてもよい。置換基の具体例はフェニル、2-ビフェニリル、3-ビフェニリル、4-ビフェニリル、1-ナフチル、2-ナフチル、メチル、n-ブチル、シクロヘキシル、m-テルフェニル-2'-イル及びm-テルフェニル-5'-イルである。

【0047】

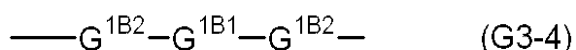
式(2-1)～(2-4)において、Gが式(G3-2)で表される連結基であるとき、 G^{1A} は前記の式(C-1)～(C-6)で表される2価の基の群から選択される同一の基であり、 G^{1B} は前記の式(D-1)～(D-12)で表される2価の基の群から選択される1つであることが好ましい。

【0048】

式(2-1)～(2-4)において、Gが式(G3-3)で表される連結基であるとき、 G^{1A} は前記の式(C-1)～(C-6)で表される2価の基の群から選択される1つであり、 G^{1B} は前記の式(D-1)～(D-12)で表される2価の基の群から選択される同一の基であることが好ましい。

【0049】

式(2-1)～(2-4)において、Gが式(G3-1)で表される連結基であるとき、Gはさらに詳しくは式(G3-4)で表される連結基であることがより好ましい。



G^{1B1} は前記の式(D-1)～(D-5)で表される2価の基の群から選択される1つであり、 G^{1B2} は前記の式(D-1)～(D-12)で表される2価の基の群から選択される同一の基である。

【0050】

<化合物の具体例>

本発明の化合物の具体例は以下に列記する式によって示されるが、本発明はこれらの具体的な構造の開示によって限定されることはない。なお、下記の具体例において、Meはメ

10

20

30

40

50

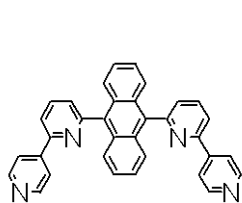
チルを示し、t-Buはt-ブチルを示す。

【0051】

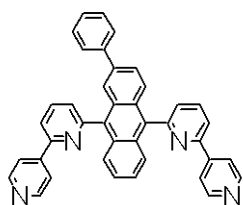
＜式(2-1)で表される化合物の具体例＞

式(2-1)で表される化合物の具体例は下記の式(2-1-1)～(2-1-66)で示される。これらの中で好ましい化合物は式(2-1-1)～(2-1-14)、式(2-1-22)～(2-1-31)および式(2-1-66)である。より好ましい化合物は式(2-1-1)～(2-1-2)、(2-1-9)～(2-1-10)、(2-1-22)、(2-1-28)、(2-1-29)および(2-1-66)である。

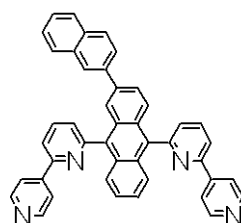
【0052】



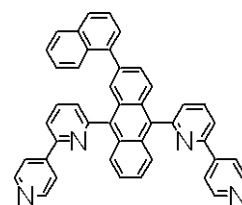
(2-1-1)



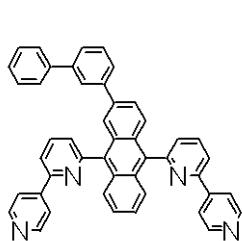
(2-1-2)



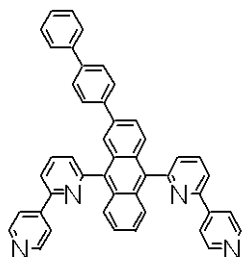
(2-1-3)



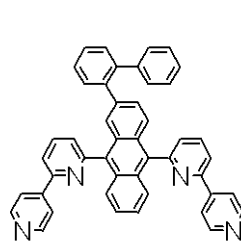
(2-1-4)



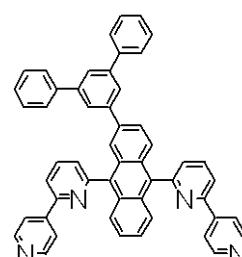
(2-1-5)



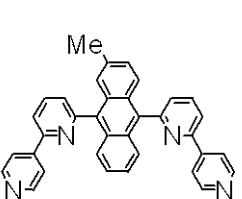
(2-1-6)



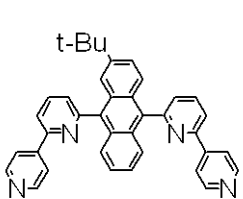
(2-1-7)



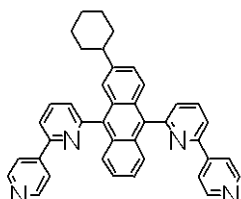
(2-1-8)



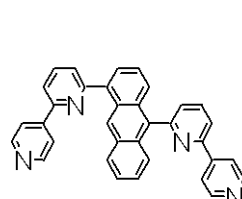
(2-1-9)



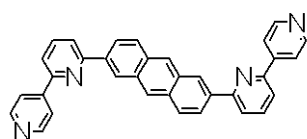
(2-1-10)



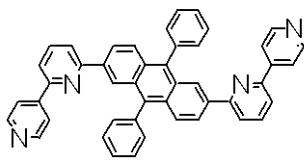
(2-1-11)



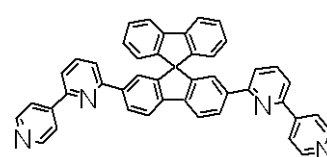
(2-1-12)



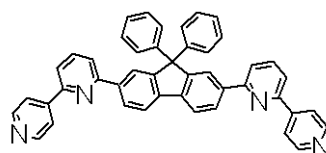
(2-1-13)



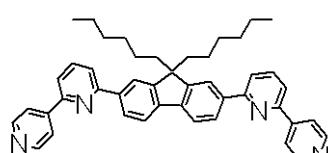
(2-1-14)



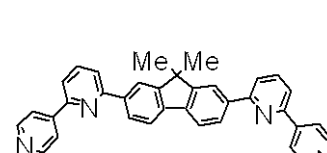
(2-1-15)



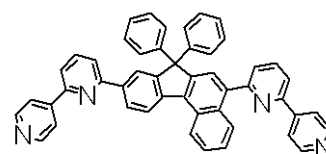
(2-1-16)



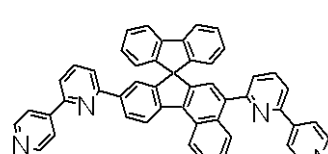
(2-1-17)



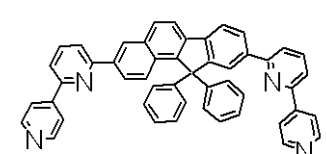
(2-1-18)



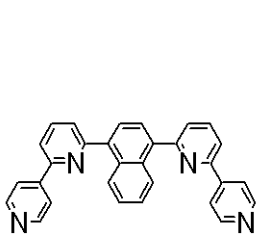
(2-1-19)



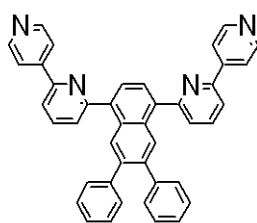
(2-1-20)



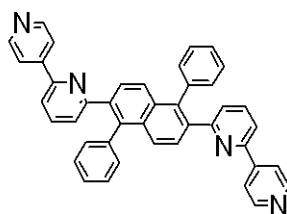
(2-1-21)



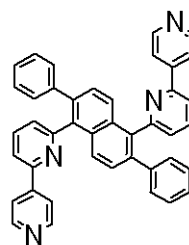
(2-1-22)



(2-1-23)

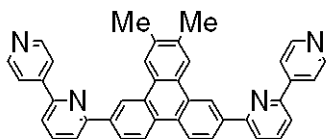


(2-1-24)

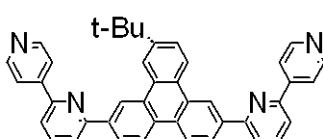


(2-1-25)

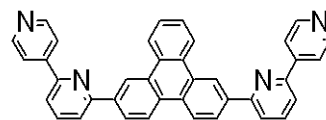
10



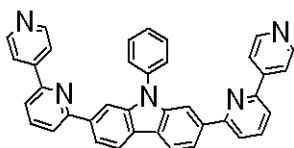
(2-1-26)



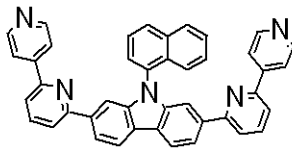
(2-1-27)



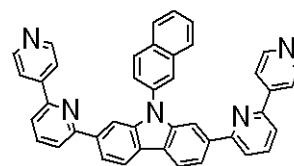
(2-1-28)



(2-1-29)

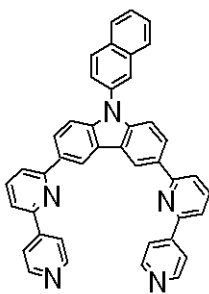


(2-1-30)

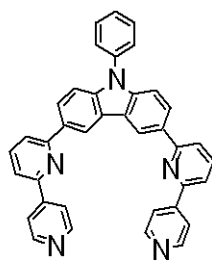


(2-1-31)

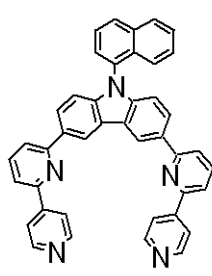
20



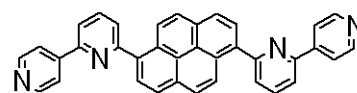
(2-1-32)



(2-1-33)

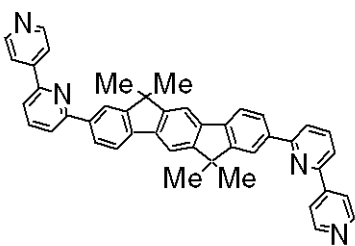


(2-1-34)

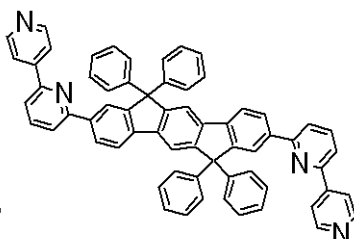


(2-1-35)

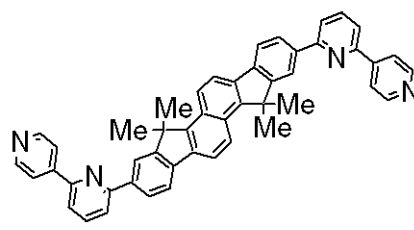
30



(2-1-36)



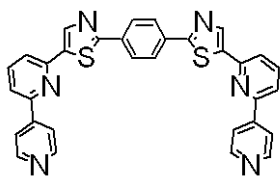
(2-1-37)



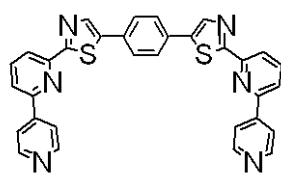
(2-1-38)

40

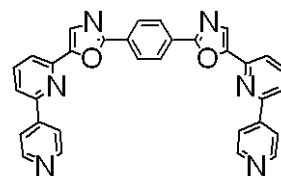
【 0 0 5 4 】



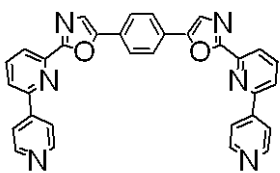
(2-1-39)



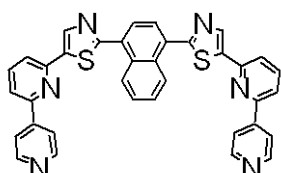
(2-1-40)



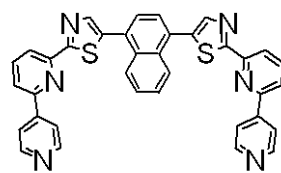
(2-1-41)



(2-1-42)

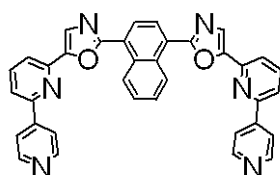


(2-1-42)

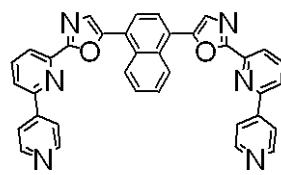


(2-1-43)

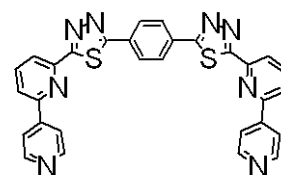
10



(2-1-44)

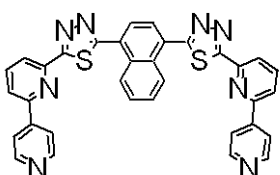


(2-1-45)

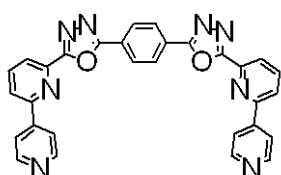


(2-1-46)

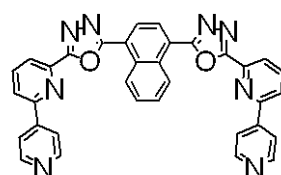
20



(2-1-47)

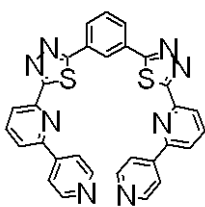


(2-1-48)

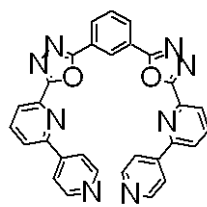


(2-1-49)

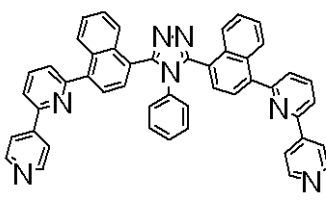
30



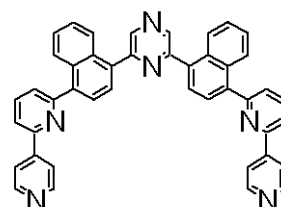
(2-1-50)



(2-1-51)

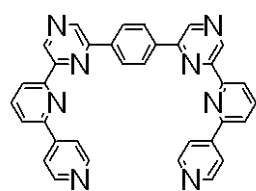


(2-1-52)

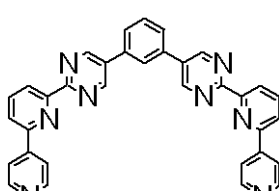


(2-1-53)

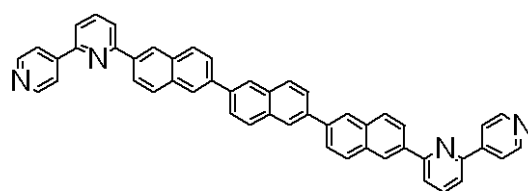
40



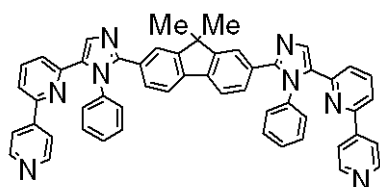
(2-1-54)



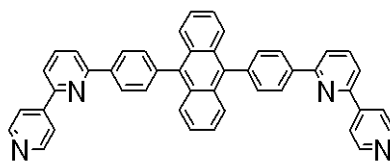
(2-1-55)



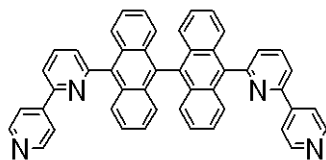
(2-1-56)



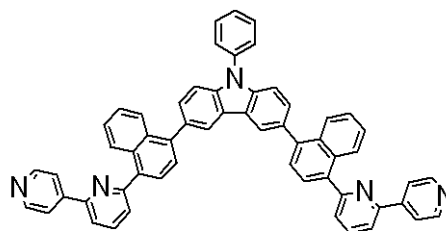
(2-1-57)



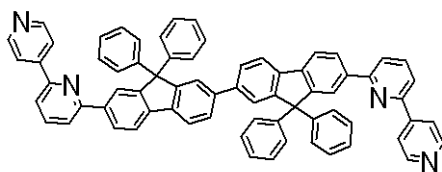
(2-1-58)



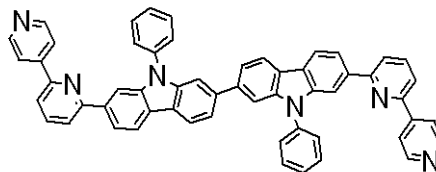
(2-1-59)



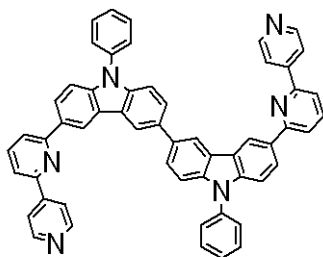
(2-1-60)



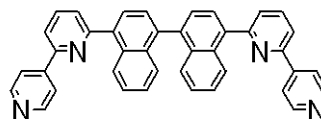
(2-1-61)



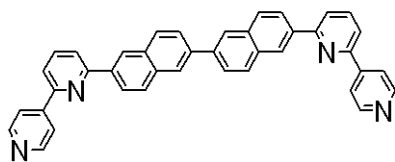
(2-1-62)



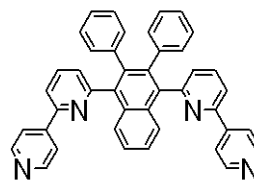
(2-1-63)



(2-1-64)



(2-1-65)



(2-1-66)

【0056】

<式(2-2)で表される化合物の具体例>

式(2-2)で表される化合物の具体例は下記の式(2-2-1)～(2-2-51)で示される。これらの中で好ましい化合物は式(2-2-1)～(2-2-11)、(2-2-22)～(2-2-30)である。より好ましい化合物は式(2-2-1)～(2-2-2)、(2-2-9)～(2-2-10)、(2-2-22)、(2-2-27)および(2-2-28)である。

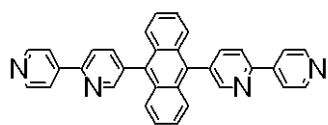
【0057】

10

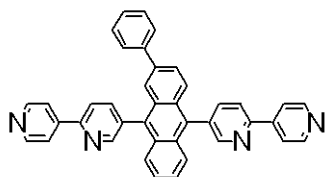
20

30

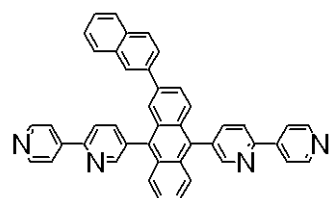
40



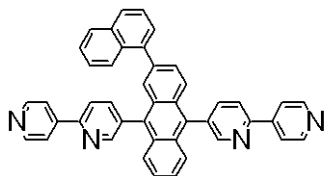
(2-2-1)



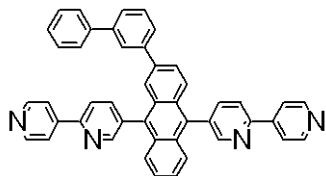
(2-2-2)



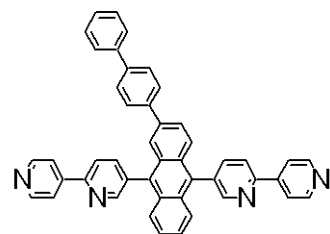
(2-2-3)



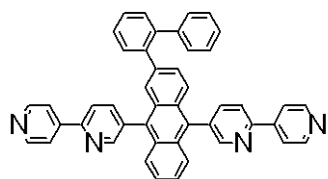
(2-2-4)



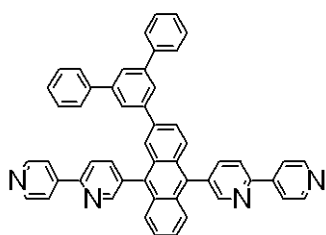
(2-2-5)



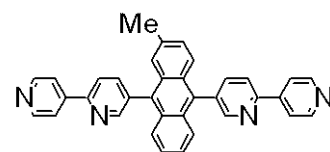
(2-2-6)



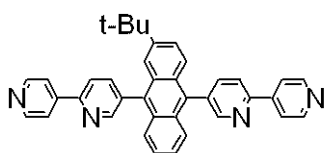
(2-2-7)



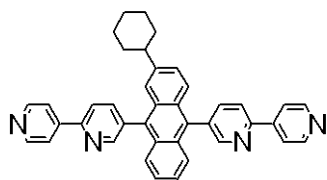
(2-2-8)



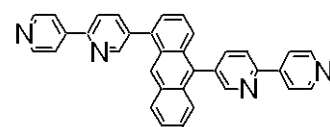
(2-2-9)



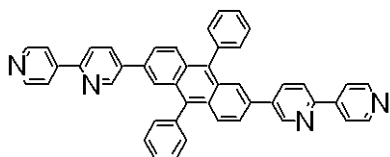
(2-2-10)



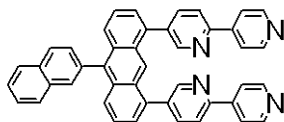
(2-2-11)



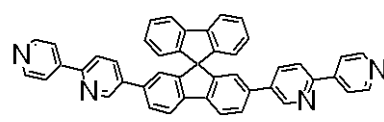
(2-2-12)



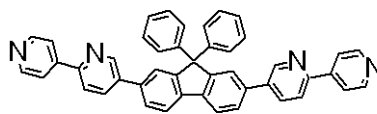
(2-2-13)



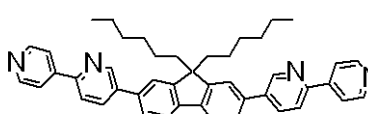
(2-2-14)



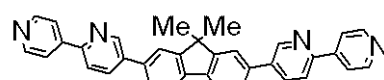
(2-2-15)



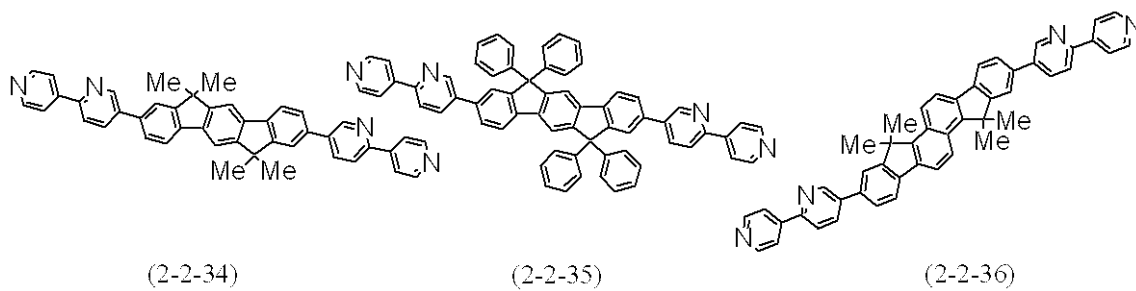
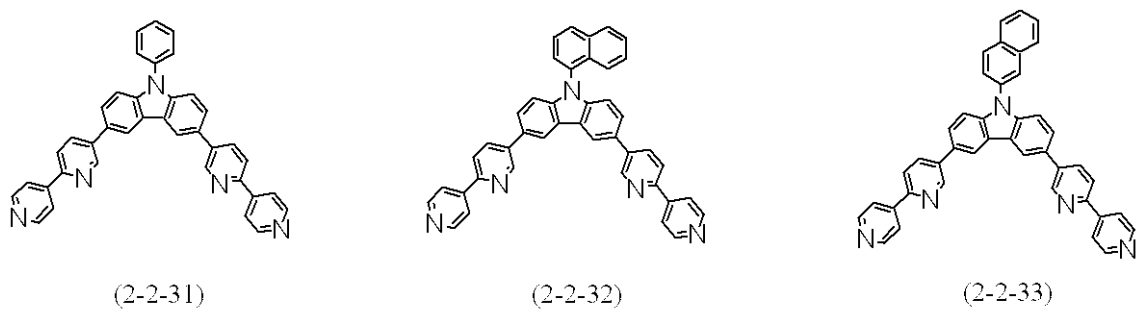
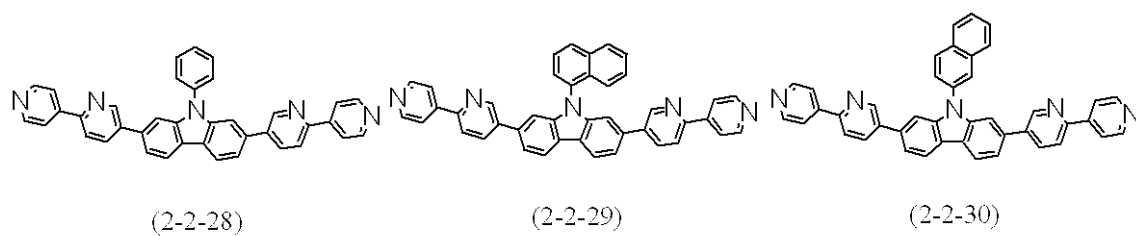
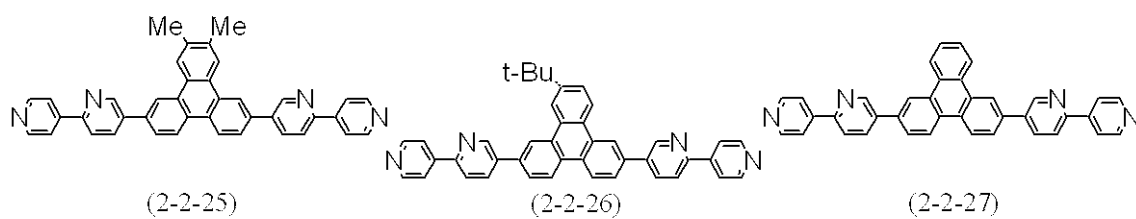
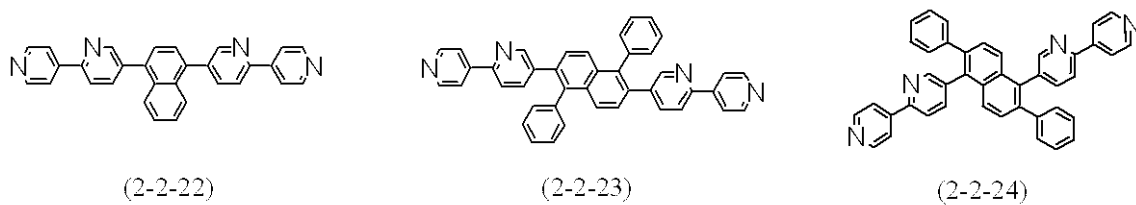
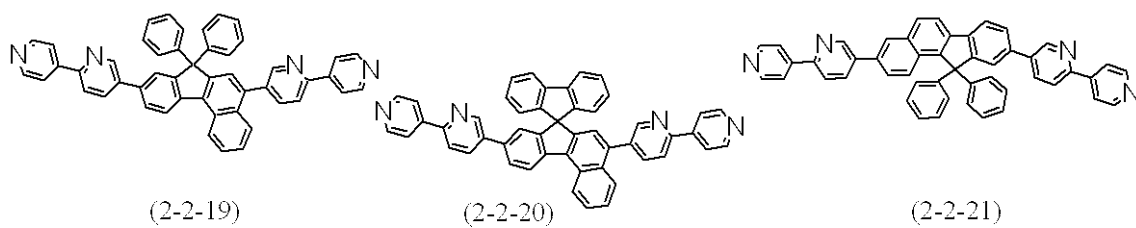
(2-2-16)

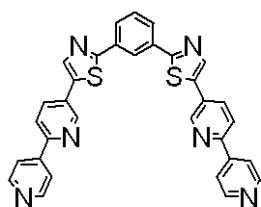


(2-2-17)

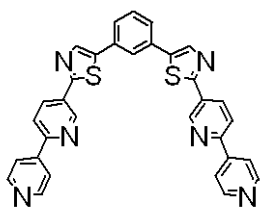


(2-2-18)

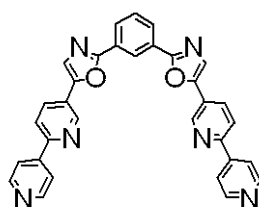




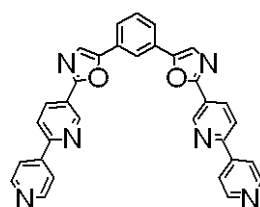
(2-2-37)



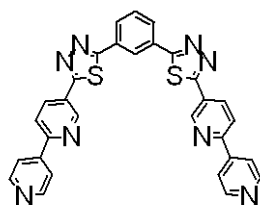
(2-2-38)



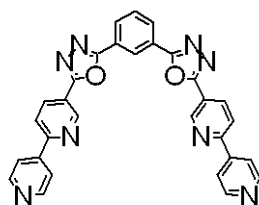
(2-2-39)



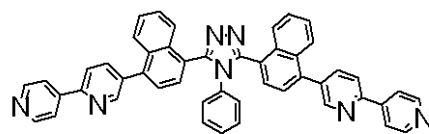
(2-2-40)



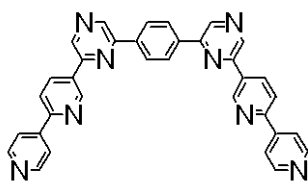
(2-2-41)



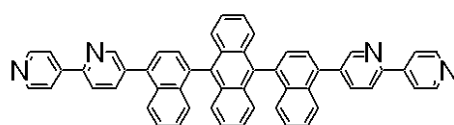
(2-2-42)



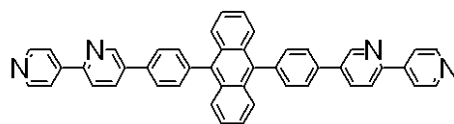
(2-2-43)



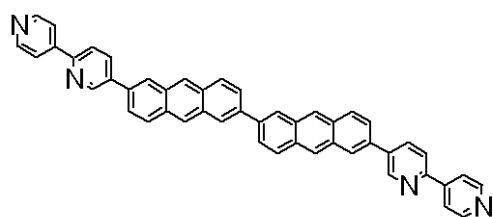
(2-2-44)



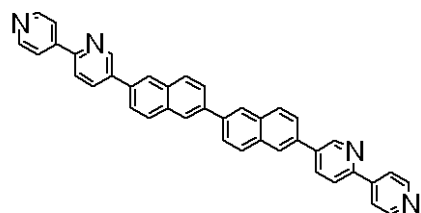
(2-2-45)



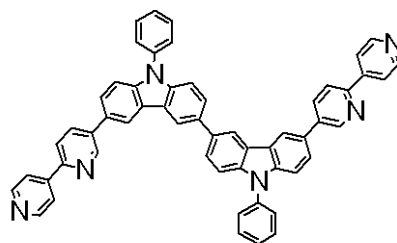
(2-2-46)



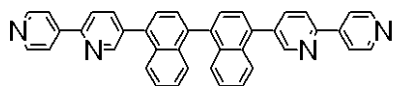
(2-2-47)



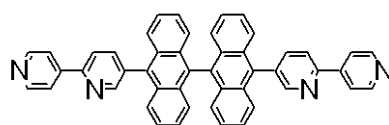
(2-2-48)



(2-2-49)



(2-2-50)



(2-2-51)

【 0 0 6 0 】

< 式 (2 - 3) で表される化合物の具体例 >

式 (2 - 3) で表される化合物の具体例は下記の式 (2 - 3 - 1) ~ (2 - 3 - 6 0) で

10

20

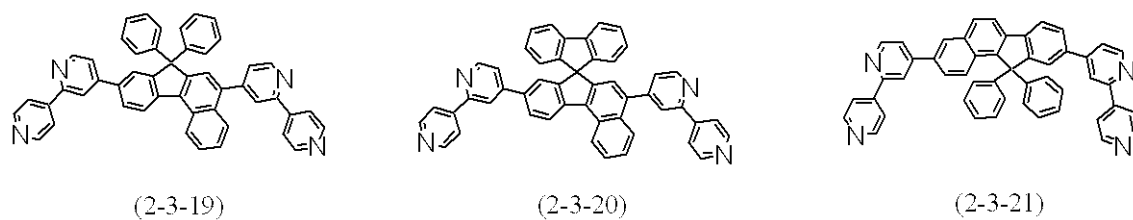
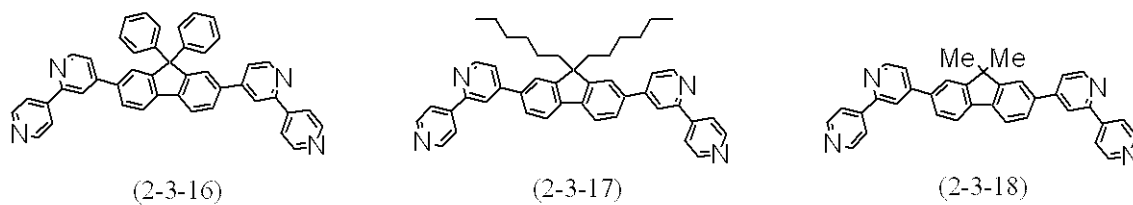
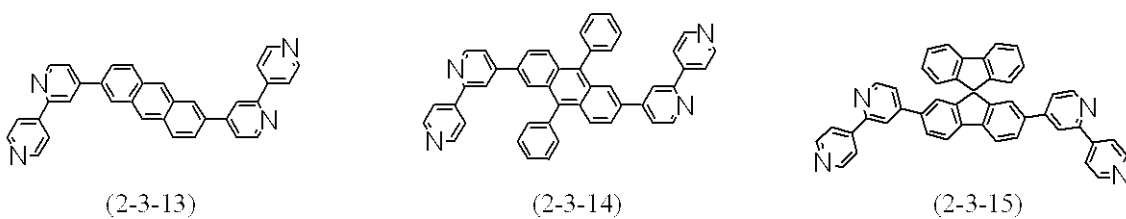
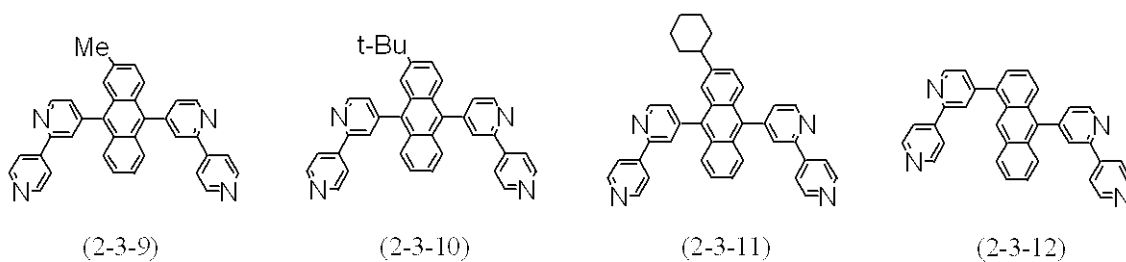
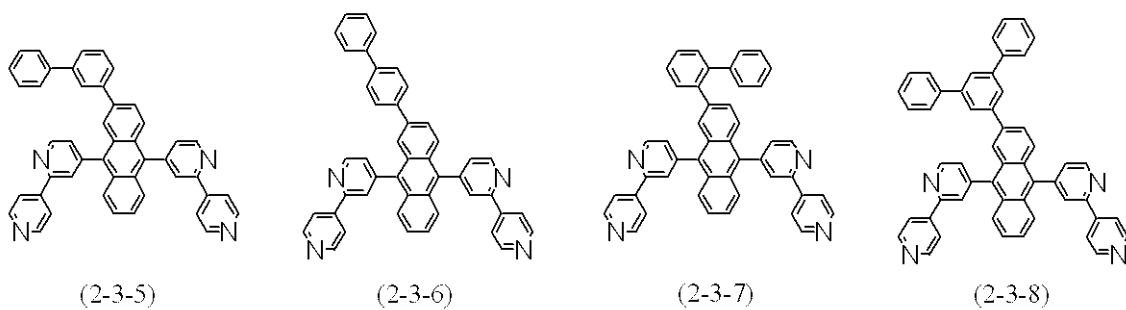
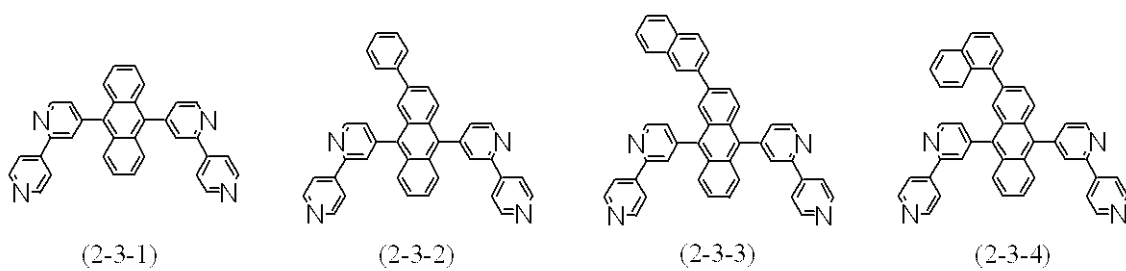
30

40

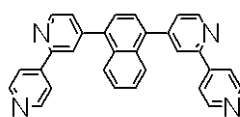
50

示される。

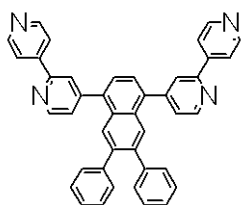
【0061】



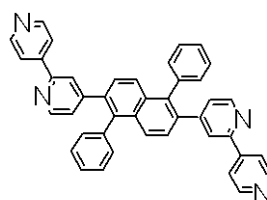
【0062】



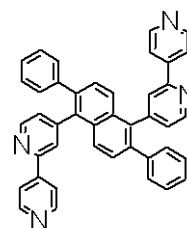
(2-3-22)



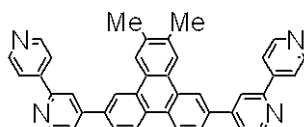
(2-3-23)



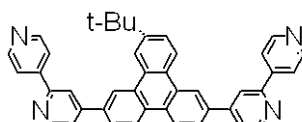
(2-3-24)



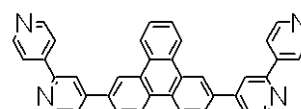
(2-3-25)



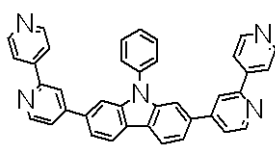
(2-3-26)



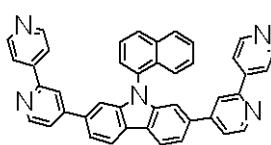
(2-3-27)



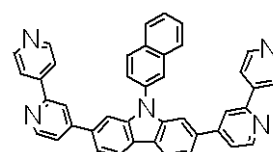
(2-3-28)



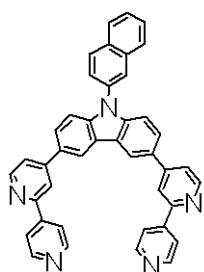
(2-3-29)



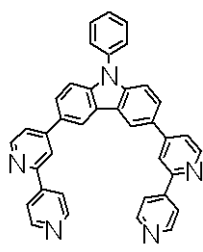
(2-3-30)



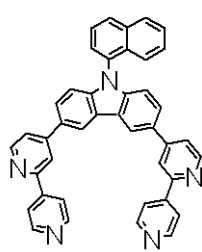
(2-3-31)



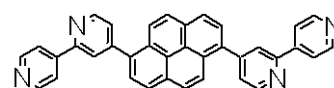
(2-3-32)



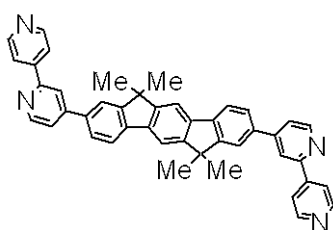
(2-3-33)



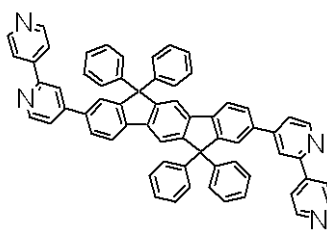
(2-3-34)



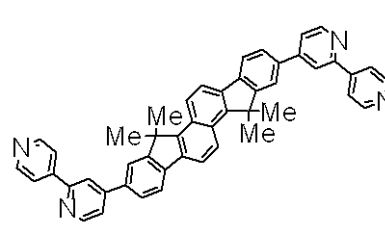
(2-3-35)



(2-3-36)



(2-3-37)



(2-3-38)

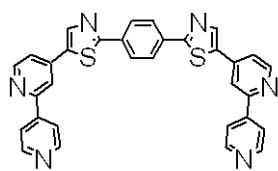
【 0 0 6 3 】

10

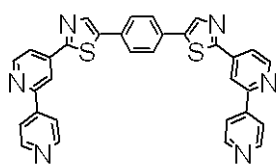
20

30

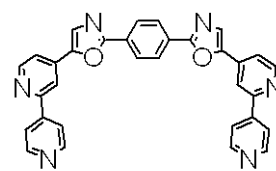
40



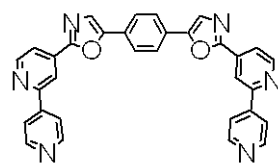
(2-3-39)



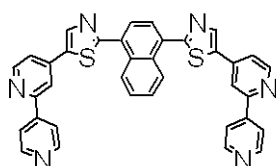
(2-3-40)



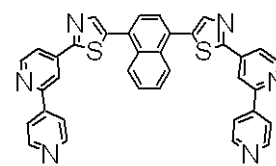
(2-3-41)



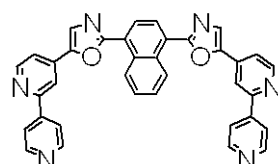
(2-3-42)



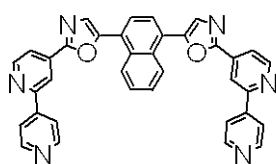
(2-3-42)



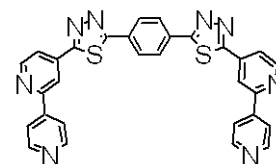
(2-3-43)



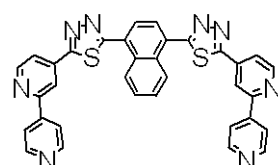
(2-3-44)



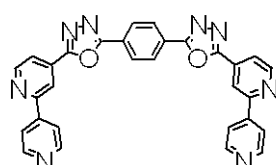
(2-3-45)



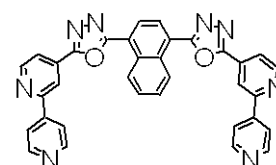
(2-3-46)



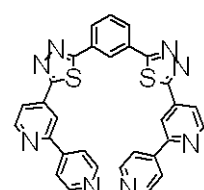
(2-3-47)



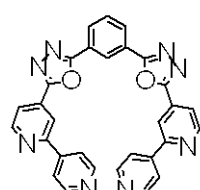
(2-3-48)



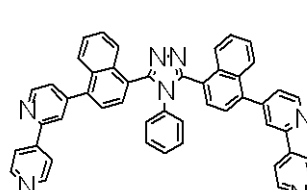
(2-3-49)



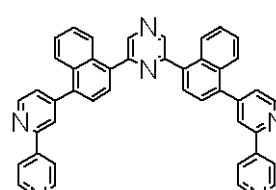
(2-3-50)



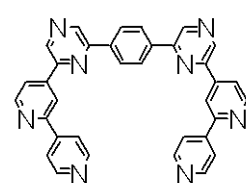
(2-3-51)



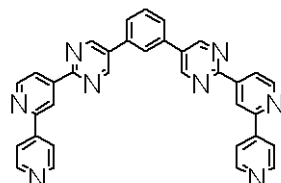
(2-3-52)



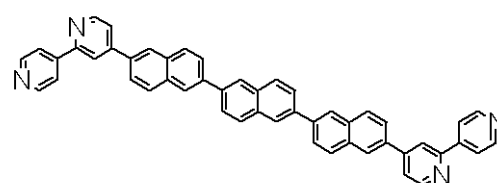
(2-3-53)



(2-3-54)



(2-3-55)



(2-3-56)

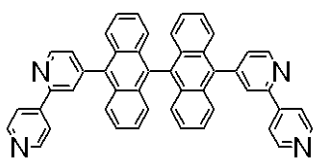
【 0 0 6 4 】

10

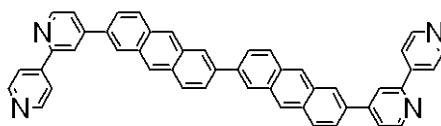
20

30

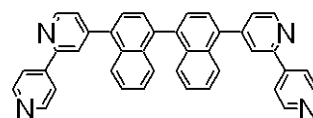
40



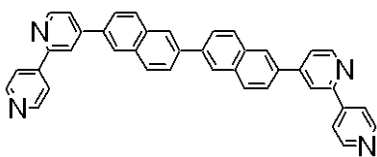
(2-3-57)



(2-3-58)



(2-3-59)



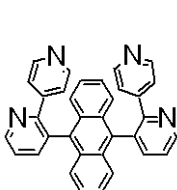
(2-3-60)

10

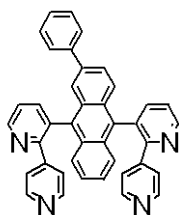
【0065】

<式(2-4)で表される化合物の具体例>

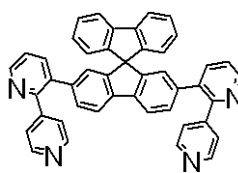
式(2-4)で表される化合物の具体例は下記の式(2-4-1)～(2-4-10)で示される。



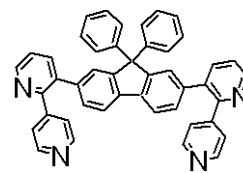
(2-4-1)



(2-4-2)

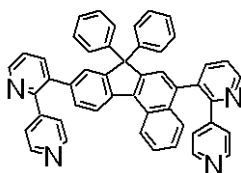


(2-4-3)

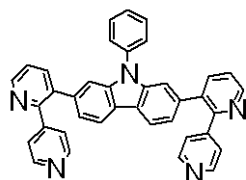


(2-4-4)

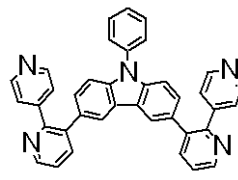
20



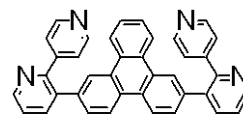
(2-4-5)



(2-4-6)

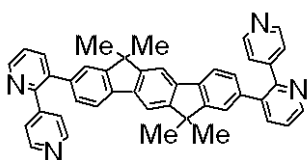


(2-4-7)

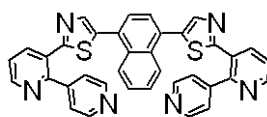


(2-4-8)

30



(2-4-9)



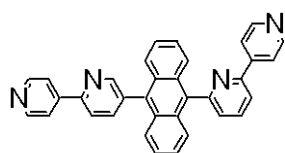
(2-4-10)

40

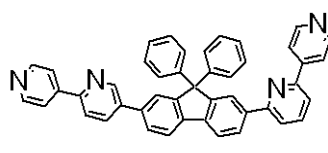
【0066】

<式(2-5)で表される化合物の具体例>

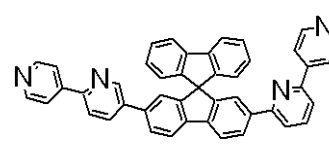
式(2-5)で表される化合物の具体例は下記の式(2-5-1)～(2-5-6)で示される。



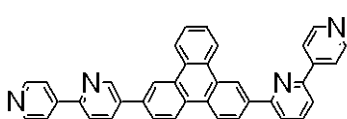
(2-5-1)



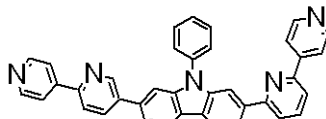
(2-5-2)



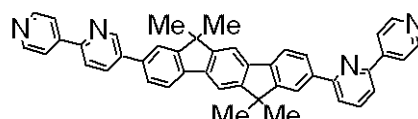
(2-5-3)



(2-5-4)



(2-5-5)



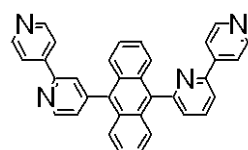
(2-5-6)

10

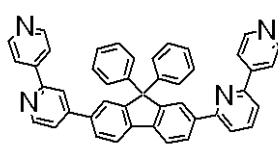
【 0 0 6 7 】

<式(2-6)で表される化合物の具体例>

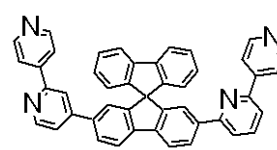
式(2-6)で表される化合物の具体例は下記の式(2-6-1)～(2-6-6)で示される。



(2-6-1)

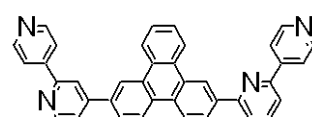


(2-6-2)

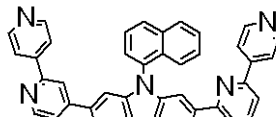


(2-6-3)

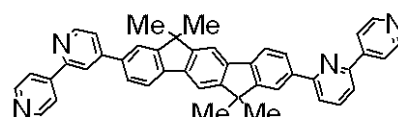
20



(2-6-4)



(2-6-5)



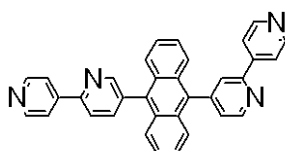
(2-6-6)

30

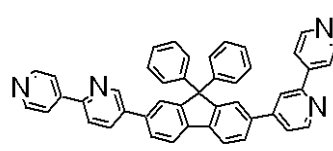
【 0 0 6 8 】

<式(2-7)で表される化合物の具体例>

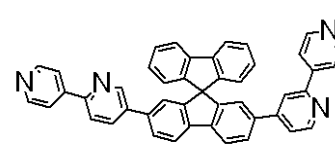
式(2-7)で表される化合物の具体例は下記の式(2-7-1)～(2-7-6)で示される。



(2-7-1)

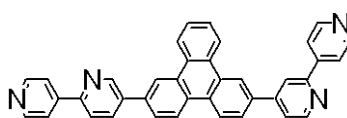


(2-7-2)

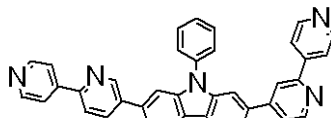


(2-7-3)

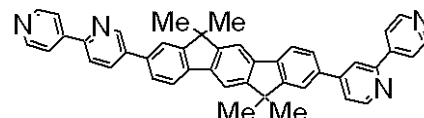
40



(2-7-4)



(2-7-5)



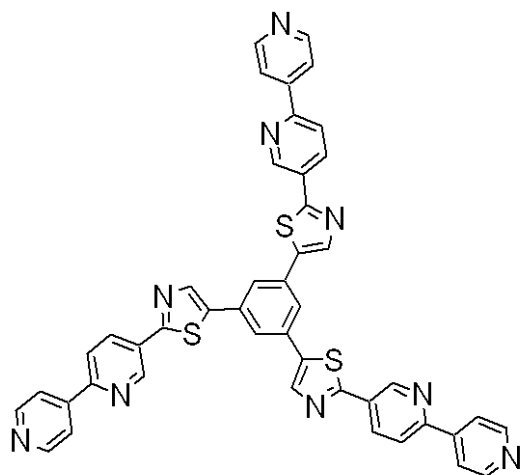
(2-7-6)

50

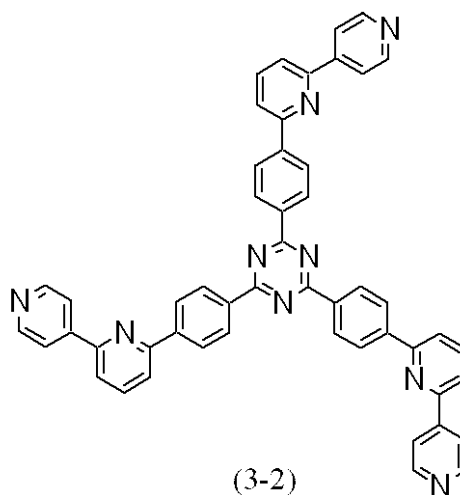
【0069】

<式(3)で表される化合物の具体例>

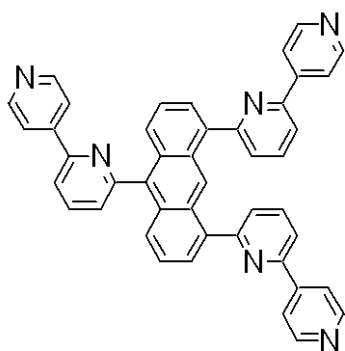
式(3)で表される化合物の具体例は下記の式(3-1)～(3-5)で示される。



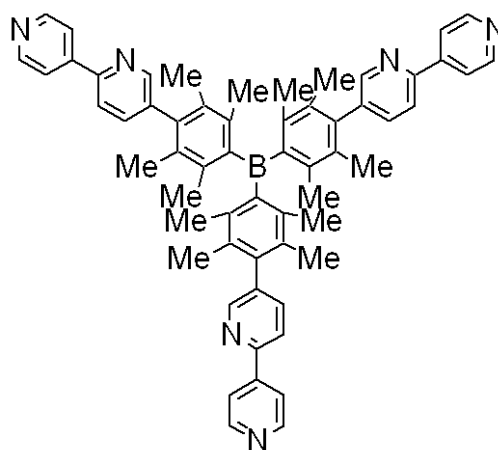
(3-1)



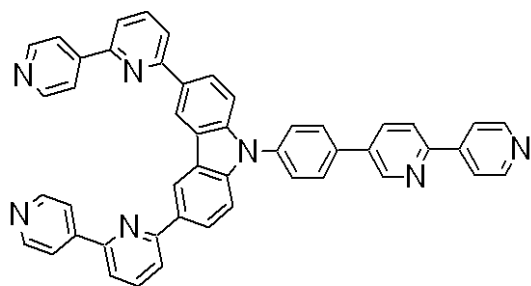
(3-2)



(3-3)



(3-4)



(3-5)

【0070】

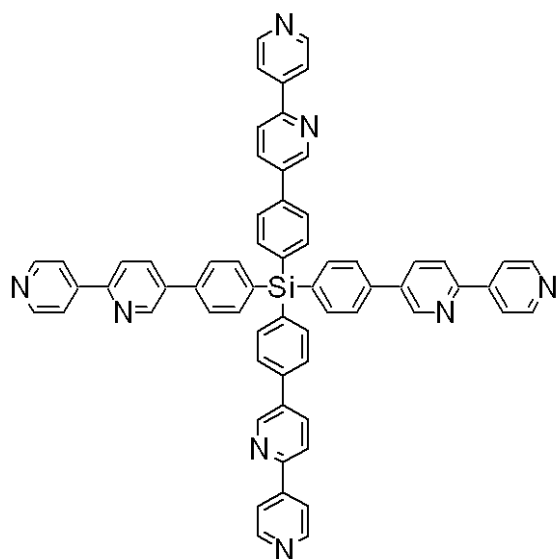
式(4)で表される化合物の具体例は下記の式(4-1)～(4-4)で示される。

10

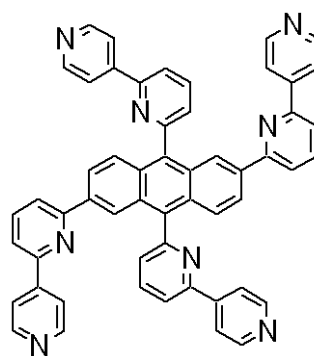
20

30

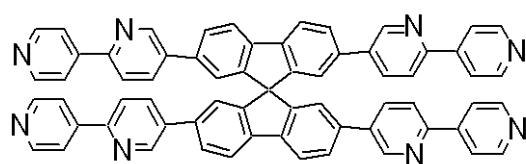
40



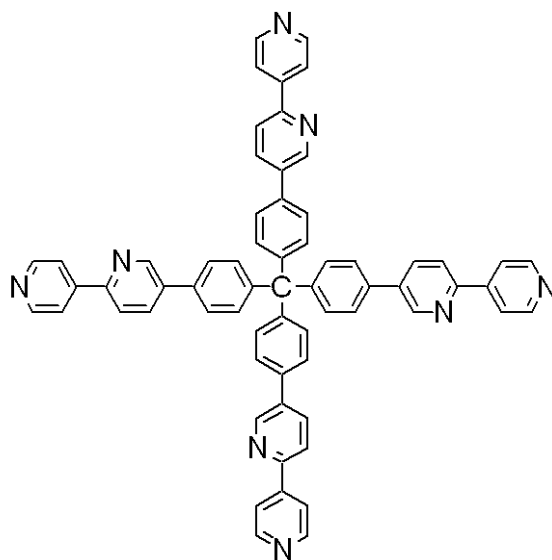
(4-1)



(4-2)



(4-3)



(4-4)

【0071】

＜化合物の合成法＞

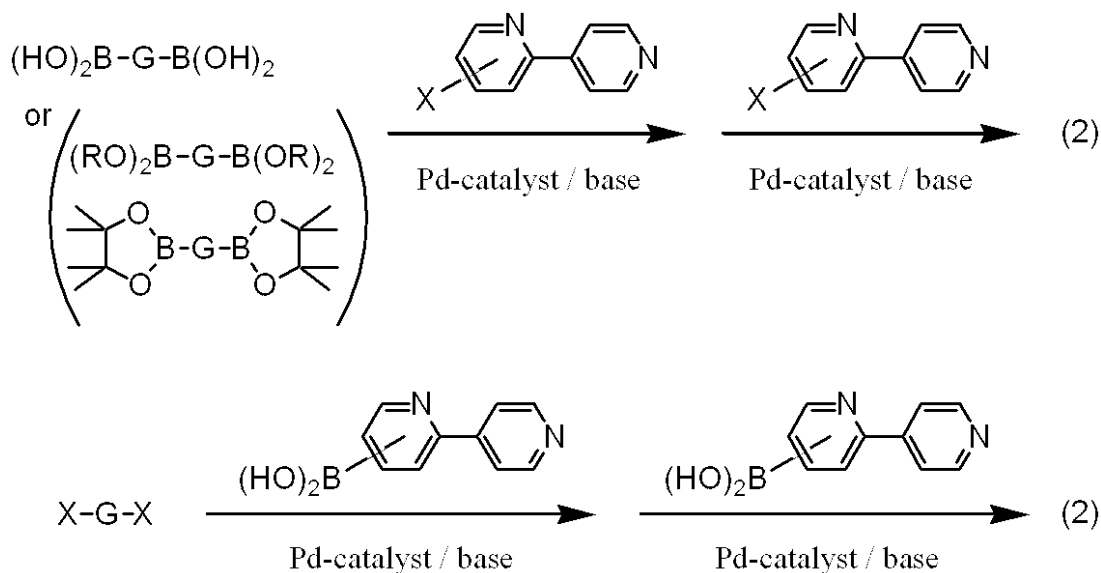
本発明の化合物は既知の方法、例えば鈴木カップリング反応や根岸カップリング反応を利用して合成することができる。式（2）で表される化合物を、鈴木カップリング反応または根岸カップリング反応で合成するスキームを以下に例示する。

10

20

30

Scheme 1 :Suzuki coupling



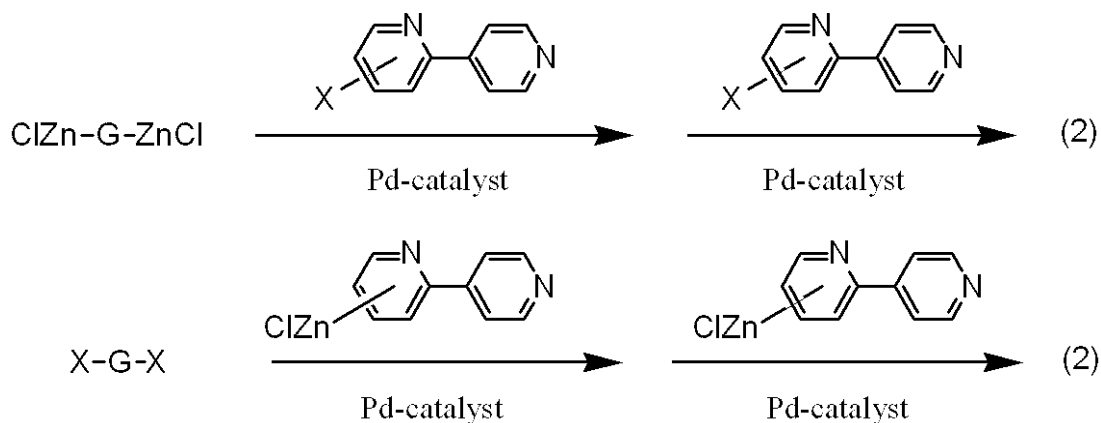
10

上記式中、Gは2価の基または2個の遊離原子価をもつ環系である。Rは短鎖のアルキルであり、通常メチル、エチル、イソプロピルなどが好適に用いられる。Xは塩素、臭素、ヨウ素、またはトリフラートである。

20

【0072】

Scheme 2 :Negishi coupling



30

上記式中、Gは2価の基または2個の遊離原子価をもつ環系であり、Xは塩素、臭素、ヨウ素、またはトリフラートである。

【0073】

スキーム1には、2箇所をボロン酸またはボロン酸エステルにしたGに、パラジウム触媒と塩基の存在下、反応性基を有する2,4'-ビピリジンを経2段階に反応させる方法、および2箇所に反応性基を有するGにパラジウム触媒と塩基の存在下、2,4'-ビピリジンのボロン酸を経2段階に反応させる方法を示した。Gに同一の2,4'-ビピリジル基を導入する場合、上のプロセスではGの2倍モルの反応性基を有する2,4'-ビピリジンを一度に反応させてもよいし、下のプロセスではGの2倍モルの2,4'-ビピリジンのボロン酸を経一度に反応させてもよい。

40

【0074】

スキーム2には、2箇所を亜鉛錯体にしたGに、パラジウム触媒の存在下、反応性基を有する2,4'-ビピリジンを経2段階に反応させる方法、および2箇所に反応性基を有するGにパラジウム触媒の存在下、2,4'-ビピリジンの亜鉛錯体を経2段階に反応させる方法を示した。Gに同一の2,4'-ビピリジル基を導入する場合、上のプロセスではGの

50

2倍モルの反応性基を有する2, 4'-ビピリジンを一度に反応させてもよいし、下のプロセスではGの2倍モルの2, 4'-ビピリジンの亜鉛錯体を一度に反応させてもよい。

【0075】

Gが複数の2価の基が連結している場合、または複数の2個の遊離原子価をもつ環系が連結している場合、あるいは2価の基と2個の遊離原子価をもつ環系の組み合わせである場合、たとえば G^1-G^1 である場合には、それぞれ単体の G^1 に上記のカップリング反応を用いて2, 4'-ビピリジル基を連結した後、既知のカップリング反応で G^1 同士を連結して目的の化合物を合成してもよい。このカップリング反応の際にも、鈴木カップリング反応または根岸カップリング反応は好ましく用いられる。

【0076】

また、 G^1 がたとえばオキサジアゾールのようなヘテロ環である場合、共に2, 4'-ビピリジル基を有する環系の酸クロリドとヒドラジンを反応させて得たヒドラジドから、分子内環化脱水反応を経て合成するような方法を用いることもできる。

【0077】

式(3)で表される化合物または式(4)で表される化合物も、上記の合成法を適宜組み合わせることで合成することができる。以上、本発明の化合物の合成法を例示したが、本発明はこれら例示した合成法によって制限されることはない。

【0078】

鈴木カップリング反応で用いられるパラジウム触媒の具体例は、 $Pd(PPh_3)_4$ 、 $PdCl_2(PPh_3)_2$ 、 $Pd(OAc)_2$ 、トリス(ジベンジリデンアセトン)ニパラジウム(0)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ニパラジウム(0)クロロホルム錯体、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)等である。反応促進するため、場合によりこれらのパラジウム化合物にホスフィン化合物を加えてもよい。そのホスフィン化合物の具体例は、トリ(tert-ブチル)ホスフィン、トリシクロヘキシルホスフィン、1-(N, N-ジメチルアミノメチル)-2-(ジtert-ブチルホスフィノ)フェロセン、1-(N, N-ジイソプロピルアミノメチル)-2-(ジtert-ブチルホスフィノ)フェロセン、1-(メトキシメチル)-2-(ジtert-ブチルホスフィノ)フェロセン、1, 1'-ビス(ジtert-ブチルホスフィノ)フェロセン、2, 2'-ビス(ジtert-ブチルホスフィノ)-1, 1'-ビナフチル、2-メトキシ-2'-(ジtert-ブチルホスフィノ)-1, 1'-ビナフチル、2-ジシクロヘキシルホスフィノ-2', 6'-ジメトキシビフェニル等である。この反応で用いられる塩基の具体例は、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸セシウム、炭酸水素ナトリウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化バリウム、ナトリウムエトキシド、ナトリウムtert-ブトキシド、酢酸ナトリウム、リン酸三カリウム、フッ化カリウム等である。さらに、この反応で用いられる溶媒の具体例は、ベンゼン、トルエン、キシレン、N, N-ジメチルホルムアミド、テトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、tert-ブチルメチルエーテル、1, 4-ジオキサン、メタノール、エタノール、イソプロピルアルコール等である。これらの溶媒は適宜選択でき、単独で用いてもよく、混合溶媒として用いてもよい。

【0079】

根岸カップリング反応で用いられるパラジウム触媒の具体例は、 $Pd(PPh_3)_4$ 、 $PdCl_2(PPh_3)_2$ 、 $Pd(OAc)_2$ 、トリス(ジベンジリデンアセトン)ニパラジウム(0)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ニパラジウム(0)、ビス(トリtert-ブチルホスフィノ)パラジウム(0)クロロホルム錯体、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)、(1, 1'-ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン)ジクロロパラジウム(II)等である。さらに、この反応で用いられる溶媒の具体例は、ベンゼン、トルエン、キシレン、N, N-ジメチルホルムアミド、テトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、tert-ブチルメチルエーテル、1, 4-ジオキサン等である。これらの溶媒は適宜選択でき、単独で用いてもよく、混合溶媒として用いてもよい。

【0080】

本発明の化合物を、有機EL素子における、電子注入層または電子輸送層に用いた場合、

10

20

30

40

50

電界印加時において安定であり、また、低電圧で発光を得ることが可能となる。これらは、本発明の化合物が、電界発光型素子の電子注入材料、または電子輸送材料として優れていることを表す。ここで言う電子注入層とは陰極から有機層へ電子を受け取る層であり、電子輸送層とは注入された電子を発光層へ輸送するための層である。また、電子輸送層が電子注入層を兼ねることも可能である。それぞれの層に用いる材料を、電子注入材料および電子輸送材料という。

【0081】

＜有機EL素子の説明＞

本願の第2の発明は、電子注入層、または電子輸送層に、本発明の式(1)で表される化合物を含有する有機EL素子である。本発明の有機EL素子は、駆動電圧が低く、駆動時の耐久性が高い。

10

【0082】

本発明の有機EL素子の構造は各種の態様があるが、基本的には陽極と陰極との間に少なくとも正孔輸送層、発光層、電子輸送層を挟持した多層構造である。素子の具体的な構成の例は、(1)陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／陰極、(2)陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／陰極、(3)陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層／陰極、等である。

【0083】

本発明の化合物は、高い電子注入性および電子輸送性を持っているので、単体又は他の材料と併用して電子注入層、または電子輸送層に使用できる。本発明の有機EL素子は、本発明の電子輸送材料に他の材料を用いた正孔注入層、正孔輸送層、発光層、などを組み合わせることで、青色、緑色、赤色や白色の発光を得ることもできる。

20

【0084】

本発明の有機EL素子に使用できる発光材料または発光性ドーパントは、高分子学会編、高分子機能材料シリーズ“光機能材料”、共同出版(1991)、P236に記載されているような昼光蛍光材料、蛍光増白剤、レーザー色素、有機シンチレータ、各種の蛍光分析試薬等の発光材料、城戸淳二監修、“有機EL材料とディスプレイ”シーエムシー社出版(2001)P155～156に記載されているようなドーパント材料、P170～172に記載されているような3重項材料の発光材料等である。

【0085】

発光材料または発光性ドーパントとして使用できる化合物は、多環芳香族化合物、ヘテロ芳香族化合物、有機金属錯体、色素、高分子系発光材料、スチリル誘導体、芳香族アミン誘導体、クマリン誘導体、ボラン誘導体、オキサジン誘導体、スピロ環を有する化合物、オキサジアゾール誘導体、フルオレン誘導体等である。多環芳香族化合物の例は、アントラセン誘導体、フェナントレン誘導体、ナフタセン誘導体、ピレン誘導体、クリセン誘導体、ペリレン誘導体、コロネン誘導体、ルブレン誘導体等である。ヘテロ芳香族化合物の例は、ジアルキルアミノ基またはジアリールアミノ基を有するオキサジアゾール誘導体、ピラゾロキノリン誘導体、ピリジン誘導体、ピラン誘導体、フェナントロリン誘導体、シロール誘導体、トリフェニルアミノ基を有するチオフエン誘導体、キナクリドン誘導体等である。有機金属錯体の例は、亜鉛、アルミニウム、ベリリウム、ユーロピウム、テルビウム、ジスプロシウム、イリジウム、白金、オスミウム、金、等と、キノリノール誘導体、ベンゾキサゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、チアジアゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ピロール誘導体、ピリジン誘導体、フェナントロリン誘導体等との錯体である。色素の例は、キサンテン誘導体、ポリメチン誘導体、ポルフィリン誘導体、クマリン誘導体、ジシアノメチレンピラン誘導体、ジシアノメチレンチオピラン誘導体、オキシベンズアントラセン誘導体、カルボスチリル誘導体、ペリレン誘導体、ベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体等の色素が挙げられる。高分子系発光材料の例は、ポリパラフェニルビニレン誘導体、ポリチオフエン誘導体、ポリビニルカルバゾール誘導体、ポリシラン誘導体、ポリフルオレン誘導体、ポリパラフェニレン誘導体等である。スチリル誘導体の例は、アミン含

30

40

50

有スチリル誘導体、スチリルアリーレン誘導体等である。

【0086】

本発明の有機EL素子に使用される他の電子輸送材料は、光導電材料において電子伝達化合物として使用できる化合物、有機EL素子の電子輸送層および電子注入層に使用できる化合物の中から任意に選択して用いることができる。

【0087】

このような電子輸送材料の具体例は、キノリノール系金属錯体、2, 2'-ビピリジル誘導体、フェナントロリン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、ペリレン誘導体、オキサジアゾール誘導体、チオフエン誘導体、トリアゾール誘導体、チアジアゾール誘導体、オキシ

10

【0088】

本発明の有機EL素子に使用される正孔注入材料および正孔輸送材料については、光導電材料において、正孔の電荷輸送材料として従来から慣用されている化合物や、有機EL素子の正孔注入層および正孔輸送層に使用されている公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。それらの具体例は、カルバゾール誘導体、トリアリールアミン誘導体、フタロシアニン誘導体等である。

【0089】

本発明の有機EL素子を構成する各層は、各層を構成すべき材料を蒸着法、スピンコート法またはキャスト法等の方法で薄膜とすることにより、形成することができる。このようにして形成された各層の膜厚については特に限定はなく、材料の性質に応じて適宜設定することができるが、通常2 nm～5000 nmの範囲である。なお、発光材料を薄膜化する方法は、均質な膜が得やすく、かつピンホールが生成しにくい等の点から蒸着法を採用するのが好ましい。蒸着法を用いて薄膜化する場合、その蒸着条件は、本発明の発光材料の種類により異なる。蒸着条件は一般的に、ボート加熱温度50～400℃、真空度 $10^{-6} \sim 10^{-3}$ Pa、蒸着速度0.01～50 nm/秒、基板温度-150～+300℃、膜厚5 nm～5 μmの範囲で適宜設定することが好ましい。

20

【0090】

本発明の有機EL素子は、前記のいずれの構造であっても、基板に支持されていることが好ましい。基板は機械的強度、熱安定性および透明性を有するものであればよく、ガラス、透明プラスチックフィルム等を用いることができる。陽極物質は4 eVより大きな仕事関数を有する金属、合金、電気伝導性化合物およびこれらの混合物を用いることができる。その具体例は、Au等の金属、CuI、インジウムチンオキシド（以下、ITOと略記する）、SnO₂、ZnO等である。

30

【0091】

陰極物質は4 eVより小さな仕事関数の金属、合金、電気伝導性化合物、およびこれらの混合物を使用できる。その具体例は、アルミニウム、カルシウム、マグネシウム、リチウム、マグネシウム合金、アルミニウム合金等である。合金の具体例は、アルミニウム/弗化リチウム、アルミニウム/リチウム、マグネシウム/銀、マグネシウム/インジウム等である。有機EL素子の発光を効率よく取り出すために、電極の少なくとも一方は光透過率を10%以上にすることが望ましい。電極としてのシート抵抗は数百Ω/□以下にすることが好ましい。なお、膜厚は電極材料の性質にもよるが、通常10 nm～1 μm、好ましくは10～400 nmの範囲に設定される。このような電極は、上述の電極物質を使用して、蒸着やスパッタリング等の方法で薄膜を形成させることにより作製することができる。

40

【0092】

次に、本発明の発光材料を用いて有機EL素子を作成する方法の一例として、前述の陽極/正孔注入層/正孔輸送層/発光層/本発明の電子輸送材料/陰極からなる有機EL素子

50

の作成法について説明する。適当な基板上に、陽極材料の薄膜を蒸着法により形成させて陽極を作製した後、この陽極上に正孔注入層および正孔輸送層の薄膜を形成させる。この上に発光層の薄膜を形成させる。この発光層の上に本発明の電子輸送材料を真空蒸着し、薄膜を形成させ、電子輸送層とする。さらに陰極用物質からなる薄膜を蒸着法により形成させて陰極とすることにより、目的の有機EL素子が得られる。なお、上述の有機EL素子の作製においては、作製順序を逆にして、陰極、電子輸送層、発光層、正孔輸送層、正孔注入層、陽極の順に作製することも可能である。

【0093】

このようにして得られた有機EL素子に直流電圧を印加する場合には、陽極を＋、陰極を－の極性として印加すればよく、電圧2～40V程度を印加すると、透明又は半透明の電極側（陽極又は陰極、および両方）より発光が観測できる。また、この有機EL素子は、交流電圧を印加した場合にも発光する。なお、印加する交流の波形は任意でよい。

以下に、本発明を実施例に基づいて更に詳しく説明する。

【実施例1】

【0094】

合成例1：式（2-2-1）の化合物の合成

<5-ブロモ-2,4'-ビピリジンの合成>

4-ピリジンボロン酸5g、2,5-ジブロモピリジン10g、Pd(PPh₃)₄ 2.8g、炭酸ナトリウム8.7g、トルエン125ml、エタノール40ml、および純水40mlを200mlのフラスコに入れ、還流温度で18時間半攪拌した。加熱終了後、反応液を室温まで冷却して有機層を抽出した。有機層を濃縮し、濃縮物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（移動相：ヘプタン／酢酸エチル）にて精製し、次いでトルエンから再結晶して、5-ブロモ-2,4'-ビピリジン3gを得た。

【0095】

<9,10-ビス（2,4'-ビピリジン-5-イル）アントラセンの合成>

9,10-ビス（4,4,5,5-テトラメチル-1,3,2-ジオキサボロラニル）アントラセン1.68g、5-ブロモ-2,4'-ビピリジン2g、Pd(PPh₃)₄ 1.35g、リン酸三カリウム3.31g、ジオキサン75ml、および純水15mlをフラスコに入れて、アルゴン雰囲気下、還流温度で2日間攪拌した。加熱終了後、反応液を室温まで冷却して、固形物を濾別した。得られた固体をトルエンで洗浄後、クロロホルム／酢酸エチル混合溶媒から再結晶して、9,10-ビス（2,4'-ビピリジン-5-イル）アントラセン230mgを得た。

¹H-NMR (CDCl₃) : δ = 7.4-7.5(m,4H)、7.7-7.8(m,4H)、7.9-8.0(m,4H)、8.1-8.2(m,6H)、8.8(d,4H)、8.9(d,2H)。

【実施例2】

【0096】

合成例2：式（2-2-2）の化合物の合成

<2-フェニルアントラセンの合成>

2-クロロアントラセン5.00g、フェニルボロン酸4.3g、トリス（ジベンジリデンアセトン）ニパラジウム（0）538mg、トリシクロヘキシルホスフィン494mg、リン酸三カリウム9.98g、およびトルエン75mlをフラスコに入れ、アルゴン雰囲気下、還流温度で2時間攪拌した。加熱終了後反応液に1.5リットルのトルエンを加え、室温まで冷却した。有機層を濾別し、濾液をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（移動相：ヘプタン）により精製した。この溶液を濃縮し、濃縮物をトルエンから再結晶して、2-フェニルアントラセン5.0gを得た。

【0097】

<9,10-ジブロモ-2-フェニルアントラセンの合成>

2-フェニルアントラセン3.32gを、窒素雰囲気下のフラスコ中で400mlのジクロロメタンに溶かした。そこに、5.00gの臭素を30mlの四塩化炭素に溶かした溶液を、15分掛けて滴下した。滴下終了後2時間室温で攪拌し、チオ硫酸ナトリウム水溶

液で反応を停止した。有機層を分離し、水層からクロロホルムで抽出し、これら有機層を濃縮した。濃縮物をトルエン50mlから再結晶し、9, 10-ジブロモ-2-フェニルアントラセン4.4gを得た。

【0098】

<9, 10-ビス(4, 4, 5, 5-テトラメチル-1, 3, 2-ジオキサボロラニル)-2-フェニルアントラセンの合成>

9, 10-ジブロモ-2-フェニルアントラセン10.0g、ビス(ピナコラート)ジボロン14.8g、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)838mg、トリシクロヘキシルホスフィン1.02g、酢酸カリウム7.15gおよび1, 4-ジオキサニ50mlをフラスコに入れ、アルゴン雰囲気下、還流温度で8時間攪拌した。加熱終了後反応液にトルエンを加え、室温まで冷却後濾別し、濾液をエバポレータにより濃縮した。濃縮物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(移動相:トルエン)により精製した後、テトラヒドロフラン/ヘプタン混合溶媒から再結晶し、9, 10-ビス(4, 4, 5, 5-テトラメチル-1, 3, 2-ジオキサボロラニル)-2-フェニルアントラセン8.3gを得た。

10

【0099】

<9, 10-ビス(2, 4'-ビピリジン-5-イル)-2-フェニルアントラセンの合成>

9, 10-ビス(4, 4, 5, 5-テトラメチル-1, 3, 2-ジオキサボロラニル)-2-フェニルアントラセン5.06g、5-ブロモ-2, 4'-ビピリジン5.10g、トリス(ジベンジリデンアセトン)ニパラジウム(0)228mg、トリシクロヘキシルホスフィン210mg、リン酸三カリウム12.7g、キシレン15mlをフラスコに入れて、アルゴン雰囲気下、還流温度で27時間攪拌した。加熱終了後反応液を室温まで冷却し、純水で洗浄した。減圧濃縮して得られた粗生成物をクロロベンゼンから再結晶することで、9, 10-ビス(2, 4'-ビピリジン-5-イル)-2-フェニルアントラセン1.27gを得た。

20

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3): δ = 7.35 (t, 1H), 7.4-7.5 (m, 4H), 7.55 (d, 2H), 7.7-7.75 (m, 3H), 7.8 (d, 1H), 7.9 (s, 1H), 8.0 (t, 2H), 8.1 (d, 4H), 8.15 (m, 2H), 8.85 (m, 4H), 8.95 (t, 2H).

【実施例3】

30

【0100】

合成例3: 式(2-1-2)の化合物の合成

<6-ブロモ-2, 4'-ビピリジンの合成>

4-ピリジンボロン酸15.0g、2, 6-ジブロモピリジン29.0g、Pd(PPh₃)₄ 43.5g、炭酸ナトリウム26g、エチレングリコールメチルエーテル400mlおよび水80mlをフラスコに入れ、アルゴン雰囲気下、還流温度で27時間攪拌した。加熱終了後、反応液を室温まで冷却して有機層を抽出した。有機層を濃縮し、濃縮物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(移動相:トルエン/酢酸エチル)にて精製し、次いでトルエン/ヘプタン混合溶媒から再結晶して、6-ブロモ-2, 4'-ビピリジン10gを得た。

40

【0101】

<9, 10-ビス(2, 4'-ビピリジン-6-イル)-2-フェニルアントラセンの合成>

9, 10-ビス(4, 4, 5, 5-テトラメチル-1, 3, 2-ジオキサボロラニル)-2-フェニルアントラセン3.0g、6-ブロモ-2, 4'-ビピリジン3.3g、トリス(ジベンジリデンアセトン)ニパラジウム(0)108mg、トリシクロヘキシルホスフィン50mgおよびリン酸三カリウム3.8gの入ったフラスコへ、トルエン6ml、エタノール3mlおよび水3mlを加え、アルゴン雰囲気下、還流温度で5時間半攪拌した。加熱終了後、反応液を室温まで冷却し、クロロベンゼンと水を加え、分液ロートで分液した。有機層を濃縮し、濃縮物を活性アルミナカラムクロマトグラフィー(移動相:ト

50

ルエン／酢酸エチル)にて精製した。更にテトラヒドロフラン／酢酸エチル混合溶媒から再結晶し、9, 10-ビス(2, 4'-ビピリジン-6-イル)-2-フェニルアントラセン830mgを得た。

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) : $\delta = 7.3$ (t, 1H), 7.4 (m, 4H), 7.5 (d, 2H), 7.6-7.7 (m, 5H), 7.8 (t, 1H), 7.9 (m, 1H), 8.0 (m, 6H), 8.1 (m, 2H), 8.7 (d, 4H).

【実施例4】

【0102】

合成例4：式(2-1-28)の化合物の合成

<2, 7-ジヒドロキシトリフェニレンの合成>

1, 2-ビス(3-メトキシフェニル)ベンゼン2gをフラスコに入れ、窒素雰囲気下、100mlのジクロロメタンに溶解させた。この溶液に塩化鉄(III)3.25gを加え、室温で56時間半攪拌した。メタノールを加え反応を終了させた後、水で洗浄した。有機層をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(移動相：トルエン／ヘプタン)により精製した後、トルエン／ヘプタン混合溶媒から再結晶し、2, 7-ジメトキシトリフェニレン1.4gを得た。得られた2, 7-ジメトキシトリフェニレンを含むジクロロメタン溶液に三臭化ホウ素を加える事で、2, 7-ジヒドロキシトリフェニレンを得た。

【0103】

<2, 7-ビス(トリフルオロメタンスルホニルオキシ)トリフェニレンの合成>

窒素雰囲気下、2, 7-ジヒドロキシトリフェニレン8.7gの入ったフラスコに脱水ピリジン100mlを加えた。この溶液を氷水で冷却し、トリフルオロメタンスルホン酸無水物25gを滴下した。滴下終了後、室温で18時間攪拌した後、水を加え反応を終了した。反応液を分液ロートに移し、酢酸エチル500mlで抽出した。有機層を減圧下濃縮し、濃縮物を水100ml、メタノール100mlで洗浄した後、酢酸エチルから再結晶し、2, 7-ビス(トリフルオロメタンスルホニルオキシ)トリフェニレン6.9gを得た。

【0104】

<2, 7-ビス(4, 4, 5, 5-テトラメチル-1, 3, 2-ジオキサボロラニル)トリフェニレンの合成>

2, 7-ビス(トリフルオロメタンスルホニルオキシ)トリフェニレン6.3g、ビス(ピナコラート)ジボロン6.7g、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)414mg、トリシクロヘキシルホスフィン485mg、酢酸カリウム3.5g、およびエチレングリコールジメチルエーテル50mlをフラスコに入れ、アルゴン雰囲気下、還流温度で2時間攪拌した。加熱終了後、反応液にトルエンを加え、室温まで冷却後濾別し、濾液を減圧下濃縮した。濃縮物をエタノールで洗浄し、2, 7-ビス(4, 4, 5, 5-テトラメチル-1, 3, 2-ジオキサボロラニル)トリフェニレン3.1gを得た。

【0105】

<2, 7-ビス(2, 4'-ビピリジン-6-イル)トリフェニレンの合成>

2, 7-ビス(4, 4, 5, 5-テトラメチル-1, 3, 2-ジオキサボロラニル)トリフェニレン2.0g、6-ブロモ-2, 4'-ビピリジン2.2g、Pd(PPh₃)₄291mg、炭酸ナトリウム1.8gおよびトルエン20ml、エタノール7ml、水7mlをフラスコに入れて、アルゴン雰囲気下、還流温度で4時間半攪拌した。加熱終了後、反応液を室温まで冷却した後、固形物を吸引濾過にて濾別した。この固形物を水、メタノールで洗浄した後、N, N-ジメチルホルムアミドから再結晶し、2, 7-ビス(2, 4'-ビピリジン-6-イル)トリフェニレン1.3gを得た。

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) : $\delta = 7.8$ (m, 2H), 7.85 (d, 2H), 8.0 (t, 2H), 8.05 (d, 2H), 8.15 (d, 4H), 8.45 (d, 2H), 8.8-8.9 (m, 8H), 9.5 (s, 2H).

【実施例5】

【0106】

合成例5：式(2-1-29)の化合物の合成

<2, 7-ビス(トリフルオロメタンスルホニルオキシ)-9-フェニルカルバゾールの

合成＞

窒素雰囲気下、2, 7-ジヒドロキシ-9-フェニルカルバゾール 6 g の入ったフラスコに脱水ピリジン 100 ml を加えた。この溶液を氷水で冷却し、トリフルオロメタンスルホン酸無水物 25 g を滴下した。滴下終了後、室温で 18 時間攪拌した後、水を加え反応を終了した。反応液を分液ロートに移し、酢酸エチルで抽出した。有機層を減圧下濃縮し、濃縮物を水、メタノールで洗浄した後、酢酸エチル／メタノール混合溶媒から再結晶し、2, 7-ビス（トリフルオロメタンスルホンニルオキシ）-9-フェニルカルバゾール 14.6 g を得た。

【0107】

<2, 7-ビス（4, 4, 5, 5-テトラメチル-1, 3, 2-ジオキサボロラニル）-9-フェニルカルバゾールの合成＞

10

2, 7-ビス（トリフルオロメタンスルホンニルオキシ）-9-フェニルカルバゾール 12.0 g、ビス（ピナコラート）ジボロン 11.2 g、ビス（ジベンジリデンアセトン）パラジウム（0）748 mg、トリシクロヘキシルホスフィン 897 mg、酢酸カリウム 6.5 g およびエチレングリコールジメチルエーテル 100 ml をフラスコに入れ、アルゴン雰囲気下、還流温度で 1 時間攪拌した。加熱終了後、反応液をエバポレータにより濃縮し、濃縮物にトルエン 100 ml を加えた。この溶液を吸引濾過にて濾別し、濾液をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（移動層：トルエン）により精製した。更にジクロロメタン／ヘプタン混合溶媒から再結晶し、2, 7-ビス（4, 4, 5, 5-テトラメチル-1, 3, 2-ジオキサボロラニル）-9-フェニルカルバゾール 6.1 g を得た。

20

【0108】

<2, 7-ビス（2, 4'-ビピリジン-6-イル）-9-フェニルカルバゾールの合成＞

2, 7-ビス（4, 4, 5, 5-テトラメチル-1, 3, 2-ジオキサボロラニル）-9-フェニルカルバゾール 2.5 g、6-ブロモ-2, 4'-ビピリジン 2.6 g、Pd（PPh₃）₄ 347 mg、炭酸ナトリウム 2.1 g、トルエン 30 ml、エタノール 10 ml および水 10 ml をフラスコに入れて、アルゴン雰囲気下、還流温度で 6 時間攪拌した。加熱終了後、反応液を室温まで冷却し、析出物を吸引濾過にて濾別した。析出物を水、メタノールで洗浄後、アニソールから再結晶し、2, 7-ビス（2, 4'-ビピリジン-6-イル）-9-フェニルカルバゾール 1.3 g を得た。

30

¹H-NMR（CDCl₃）：δ = 7.55 (t, 1H), 7.7-7.8 (m, 6H), 7.8-7.9 (m, 4H), 8.0 (d, 4H), 8.1 (d, 2H), 8.2 (s, 2H), 8.3 (d, 2H), 8.75 (d, 4H).

【実施例 6】

【0109】

合成例 6：式（2-1-66）の化合物の合成

<1, 4-ジメトキシ-2, 3-ジフェニルナフタレンの合成＞

2, 3-ジブロモ-1, 4-ジメトキシナフタレン 11.0 g、フェニルボロン酸 11.6 g、トリス（ジベンジリデンアセトン）ニパラジウム（0）582 mg、トリシクロヘキシルホスフィン 268 mg およびリン酸三カリウム 20.3 g の入ったフラスコへ、トルエン 100 ml を加え、アルゴン雰囲気下、還流温度で 2 時間半攪拌した。加熱終了後、反応液を室温まで冷却し、セライトで濾過し、濾液を濃縮した。濃縮物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（移動相：トルエン／ヘプタン）にて精製、1, 4-ジメトキシ-2, 3-ジフェニルナフタレン 11.0 g を得た。

40

【0110】

<1, 4-ジヒドロキシ-2, 3-ジフェニルナフタレンの合成＞

窒素雰囲気下、1, 4-ジメトキシ-2, 3-ジフェニルナフタレン 11.0 g を含む、ジクロロメタン溶液 100 ml を入れたフラスコを塩水浴バスで冷却した。次いでこの温度で、1 M の三臭化ホウ素のジクロロメタン溶液を 1 時間半掛けて滴下した。滴下終了後、室温で 4 時間半攪拌した後、氷水で冷却し、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液を加え反応を終了した。ここで得られた懸濁液に酢酸エチル 800 ml を加え、沈殿物を溶解した後

50

、分液ロートで分液した。有機層を濃縮し、得られた沈殿物を濾別する事で1, 4-ジヒドロキシ-2, 3-ジフェニルナフタレン7. 4 gを得た。

【0111】

<1, 4-ビス(トリフルオロメタンスルホニルオキシ)-2, 3-ジフェニルナフタレンの合成>

窒素雰囲気下、1, 4-ジメトキシ-2, 3-ジフェニルナフタレン7. 0 gの入ったフラスコに脱水ピリジン90 mlを加えた。この溶液を氷水で冷却し、トリフルオロメタンスルホン酸無水物15 gを滴下した。滴下終了後、室温で6時間攪拌した後、水を加え反応を終了した。反応液を分液ロートに移し、酢酸エチルで抽出した。有機層を減圧下濃縮し、濃縮物をカラムクロマトグラフィー(移動層: トルエン/ヘプタン)により精製し、1, 4-ビス(トリフルオロメタンスルホニルオキシ)-2, 3-ジフェニルナフタレン3. 8 gを得た。

【0112】

<1, 4-ビス(4, 4, 5, 5-テトラメチル-1, 3, 2-ジオキサボロラニル)-2, 3-ジフェニルナフタレンの合成>

1, 4-ビス(トリフルオロメタンスルホニルオキシ)-2, 3-ジフェニルナフタレン3. 5 g、ビス(ピナコラート)ジボロン4. 6 g、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)840 mg、トリシクロヘキシルホスフィン984 mg、酢酸カリウム1. 8 gおよびエチレングリコールジメチルエーテル20 mlをフラスコに入れ、アルゴン雰囲気下、還流温度で24時間攪拌した。加熱終了後室温まで冷却し、水を加え分液ロートに移し、トルエンで抽出した。有機層を減圧下濃縮し、濃縮物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(移動層: トルエン/酢酸エチル)により精製し、1, 4-ビス(4, 4, 5, 5-テトラメチル-1, 3, 2-ジオキサボロラニル)-2, 3-ジフェニルナフタレン1. 0 gを得た。

【0113】

<1, 4-ビス(2, 4'-ビピリジン-6-イル)-2, 3-ジフェニルナフタレンの合成>

1, 4-ビス(4, 4, 5, 5-テトラメチル-1, 3, 2-ジオキサボロラニル)-2, 3-ジフェニルナフタレン1. 0 g、6-ブロモ-2, 4'-ビピリジン1. 1 g、トリス(ジベンジリデンアセトン)ニパラジウム(0)140 mg、トリシクロヘキシルホスフィン64 mgおよびリン酸三カリウム1. 2 gの入ったフラスコへ、トルエン6 ml、エタノール3 mlおよび水3 mlを加え、アルゴン雰囲気下、還流温度で26時間攪拌した。加熱終了後、反応液を室温まで冷却し、水とトルエンを加え分液ロートで分液した。有機層を濃縮し、濃縮物を活性アルミナカラムクロマトグラフィー(移動相: トルエン/酢酸エチル)にて精製した。更にトルエンから再結晶し、1, 4-ビス(2, 4'-ビピリジン-6-イル)-2, 3-ジフェニルナフタレン430 mgを得た。

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3): $\delta = 6.75\text{--}7.4$ (m, 12H), 7.45 (m, 2H), 7.6-7.95 (m, 10H), 8.7(s, 4H).

【実施例7】

【0114】

合成例7: 式(2-2-32)の化合物の合成

<3, 6-ジブロモ-9-ナフタレン-1-イル-カルバゾールの合成>

3, 6-ジブロモ-9H-カルバゾール10. 00 g、1-フルオロナフタレン4. 1 ml、炭酸セシウム12. 06 gおよびジメチルスルホキシド300 mlをフラスコに入れ、窒素雰囲気下、145℃で36時間攪拌した。加熱終了後、室温まで冷却後反応液を濾別し、濾液を濃縮した。濃縮物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(移動相: ヘプタン/トルエン)により精製した後、メタノールで洗浄することで、3, 6-ジブロモ-9-ナフタレン-1-イル-カルバゾール5. 5 gを得た。

【0115】

<3, 6-ビス(4, 4, 5, 5-テトラメチル-1, 3, 2-ジオキサボロラニル)-

10

20

30

40

50

9-ナフタレン-1-イル-カルバゾールの合成>

3, 6-ジブromo-9-ナフタレン-1-イル-カルバゾール 2.00 g、ビス(ピナコラート)ジボロン 2.46 g、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0) 304 mg、トリシクロヘキシルホスフィン 358 mg、酢酸カリウム 1.30 g および 1, 4-ジオキサン 30 ml をフラスコに入れ、アルゴン雰囲気下還流温度で7時間攪拌した。加熱終了後反応液にトルエンを加え、室温まで冷却後濾別し、濾液を濃縮した。濃縮物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(移動相:トルエン)により精製し、3, 6-ビス(4, 4, 5, 5-テトラメチル-1, 3, 2-ジオキサボロラニル)-9-ナフタレン-1-イル-カルバゾール 820 mg を得た。

【0116】

<3, 6-ビス(2, 4'-ビピリジン-5-イル)-9-ナフタレン-1-イル-カルバゾールの合成>

3, 6-ビス(4, 4, 5, 5-テトラメチル-1, 3, 2-ジオキサボロラニル)-9-ナフタレン-1-イル-カルバゾール、5-ブromo-2, 4'-ビピリジン、Pd(PPh₃)₄、リン酸三カリウム、1, 4-ジオキサンおよび水をフラスコに入れて、アルゴン雰囲気下還流温度で攪拌する。加熱終了後反応液を室温まで冷却し、飽和塩化ナトリウム水溶液で洗浄する。有機層をエバポレータにより濃縮し、濃縮物を活性アルミナカラムクロマトグラフィーやシリカゲルクロマトグラフィーにて精製することで、3, 6-ビス(2, 4'-ビピリジン-5-イル)-9-ナフタレン-1-イル-カルバゾールを得ることが出来る。

【実施例8】

【0117】

合成例8:式(2-2-19)の化合物の合成

<5, 9-ビス(4, 4, 5, 5-テトラメチル-1, 3, 2-ジオキサボロラニル)-7, 7-ジフェニルーベンゾ[c]フルオレンの合成>

5, 9-ビス(トリフルオロメタンスホニルオキシ)-7, 7-ジフェニルーベンゾ[c]フルオレン 13.1 g、ビス(ピナコラート)ジボロン 11.2 g、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0) 1.2 g、トリシクロヘキシルホスフィン 1.4 g、酢酸カリウム 6.5 g および 1, 4-ジオキサン 300 ml をフラスコに入れ、アルゴン雰囲気下 80℃で4時間半攪拌した。加熱終了後反応液を濃縮した。濃縮物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(移動相:トルエン)により精製した後、エタノールで洗浄し、5, 9-ビス(4, 4, 5, 5-テトラメチル-1, 3, 2-ジオキサボロラニル)-7, 7-ジフェニルーベンゾ[c]フルオレン 9.8 を得た。

【0118】

<5, 9-ビス(2, 4'-ビピリジン-5-イル)-7, 7-ジフェニルーベンゾ[c]フルオレンの合成>

5, 9-ビス(4, 4, 5, 5-テトラメチル-1, 3, 2-ジオキサボロラニル)-7, 7-ジフェニルーベンゾ[c]フルオレン、5-ブromo-2, 4'-ビピリジン、Pd(PPh₃)₄、リン酸三カリウム、1, 4-ジオキサンおよび水をフラスコに入れて、アルゴン雰囲気下還流温度で攪拌する。加熱終了後反応液を室温まで冷却し、飽和塩化ナトリウム水溶液で洗浄する。有機層をエバポレータにより濃縮し、濃縮物を活性アルミナカラムクロマトグラフィーやシリカゲルクロマトグラフィーにて精製することで、5, 9-ビス(2, 4'-ビピリジン-5-イル)-7, 7-ジフェニルーベンゾ[c]フルオレンを得ることが出来る。

【実施例9】

【0119】

合成例9:式(2-2-22)の化合物の合成

<1, 4-ビス(2, 4'-ビピリジン-5-イル)-ナフタレンの合成>

1, 4-ビス(4, 4, 5, 5-テトラメチル-1, 3, 2-ジオキサボロラニル)-ナフタレン、5-ブromo-2, 4'-ビピリジン、トリス(ジベンジリデンアセトン)ニパ

10

20

30

40

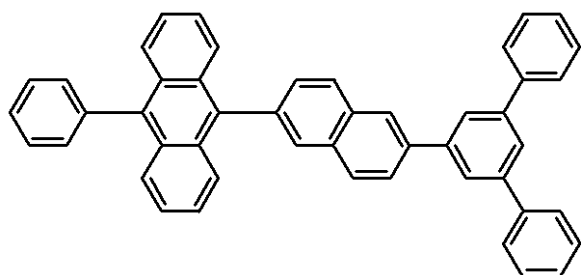
50

ラジウム（０）、トリシクロヘキシルホスフィン、リン酸三カリウムおよびトルエンをフラスコに入れて、アルゴン雰囲気下還流温度で攪拌する。加熱終了後反応液を室温まで冷却し、飽和塩化ナトリウム水溶液で洗浄する。有機層を濃縮し、濃縮物を活性アルミナカラムクロマトグラフィーやシリカゲルクロマトグラフィーにて精製することで、１，４－ビス（２，４’－ビピリジン－５－イル）－ナフタレンを得ることが出来る。

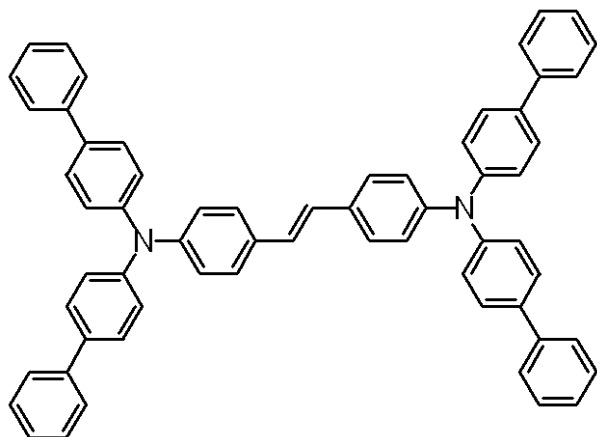
【実施例１０】

【０１２０】

ITOを150nmの厚さに蒸着した25mm×75mm×1.1mmのガラス基板（東京三容真空（株）製）を透明支持基板とした。この透明支持基板を市販の蒸着装置（真空機工（株）製）の基板ホルダーに固定し、銅フタロシアニン（以下、CuPcと略記する。）を入れたモリブデン製蒸着用ポート、N，N’－ジフェニル－N，N’－ジナフチル－4，4’－ジアミノビフェニル（以下、NPDと略記する。）を入れたモリブデン製蒸着用ポート、下記化合物（A）：9－フェニル－10－〔6－（1，1’；3，1’）テルフェニル5’－イル〕ナフタレン－2－イル〕アントラセンを入れたモリブデン製蒸着用ポート、下記スチリルアミン誘導体（B）：N，N，N’，N’－テトラ（４－ビフェニル）－4，4’－ジアミノスチルベンを入れたモリブデン製蒸着用ポート、化合物（2－2－1）を入れたモリブデン製蒸着用ポート、弗化リチウムを入れたモリブデン製蒸着用ポート、およびアルミニウムを入れたタングステン製蒸着用ポートを装着した。



(A)



(B)

【０１２１】

真空槽を 1×10^{-3} Paまで減圧し、CuPcが入った蒸着用ポートを加熱して、膜厚20nmになるように蒸着して正孔注入層を形成し、次いで、NPD入りの蒸着用ポートを加熱して、膜厚30nmになるようにNPDを蒸着して正孔輸送層を形成した。次に、化合物（A）を入れた蒸着用ポートと化合物（B）を入れた蒸着用ポートを同時に加熱して、膜厚30nmになるように蒸着して発光層を形成した。化合物（A）と化合物（B）の重量比がおよそ95対5になるように蒸着速度を調節した。次に化合物（2－2－1）入りの蒸着用ポートを加熱して、膜厚20nmになるように蒸着して電子輸送層を形成した。以上の蒸着速度は0.001～3.0nm/秒であった。その後、弗化リチウム入りの蒸着用ポートを加熱して、膜厚0.5nmになるように0.003～0.01nm/秒

の蒸着速度で蒸着し、次いで、アルミニウム入りの蒸着用ボートを加熱して、膜厚100 nmになるように0.1～1.0 nm/秒の蒸着速度で蒸着することにより、有機EL素子を得た。ITO電極を陽極、弗化リチウム／アルミニウム電極を陰極として、直流電圧を印加すると、約波長455 nmの青色発光を得た。また、初期輝度1000 cd/m²を得るための電流密度により、定電流駆動試験を実施した。駆動試験開始電圧は5.48 Vで、80時間経過時の輝度は869 cd/m²だった。

【実施例11】

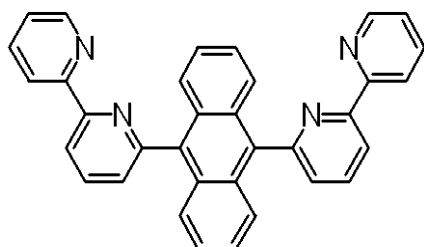
【0122】

化合物(2-2-1)を化合物(2-2-29)に替えた以外は実施例10と同様にして有機EL素子を得た。ITO電極を陽極、弗化リチウム／アルミニウム電極を陰極として、初期輝度1000 cd/m²を得るための電流密度により、定電流駆動試験を実施した。駆動試験開始電圧は3.83 Vで80時間経過時の輝度は724 cd/m²であった。

【0123】

(比較例1)

化合物(2-2-1)を化合物(C)(特許文献2に記載の化合物II-4)に替えた以外は実施例10と同様にして有機EL素子を得た。ITO電極を陽極、弗化リチウム／アルミニウム電極を陰極として、初期輝度1000 cd/m²を得るための電流密度により、定電流駆動試験を実施した。駆動試験開始電圧は3.71 Vで80時間経過時の輝度は496 cd/m²であった。

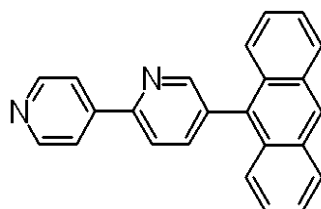


(C)

【0124】

(比較例2)

化合物(2-2-1)を化合物(D)(特許文献1の請求範囲に含まれる化合物)に替えた以外は実施例10と同様にして有機EL素子を得た。ITO電極を陽極、弗化リチウム／アルミニウム電極を陰極として、初期輝度1000 cd/m²を得るための電流密度により、定電流駆動試験を実施しようとしたが、輝度調整中の輝度低下が著しく、正確な測定が出来なかった。



(D)

【0125】

(比較例3)

化合物(2-2-1)をトリス(8-キノリノール)アルミニウム(Alq₃)に替えた以外は実施例10と同様にして有機EL素子を得た。ITO電極を陽極、弗化リチウム／アルミニウム電極を陰極として、初期輝度1000 cd/m²を得るための電流密度により、定電流駆動試験を実施した。駆動試験開始電圧は6.36 Vで80時間経過時の輝度は830 cd/m²であった。

以上の結果を表1にまとめた。

【0126】

【表 1】

表 1

	正孔輸送層	発光層	電子輸送層	80時間後の輝度 (cd/m^2)	開始電圧 (V)
実施例－10	NPD	(A):(B)=95:5	(2-2-1)	869	5.48
実施例－11	NPD	(A):(B)=95:5	(2-1-29)	724	3.83
比較例－1	NPD	(A):(B)=95:5	(C)	496	3.71
比較例－2	NPD	(A):(B)=95:5	(D)	—	—
比較例－3	NPD	(A):(B)=95:5	Alq3	830	6.36

10

【実施例 1 2】

【0 1 2 7】

スパッタリングにより 180 nm の厚さに製膜した ITO を 150 nm まで研磨した、26 mm × 28 mm × 0.7 mm のガラス基板（（株）オプトサイエンス製）を透明支持基板とした。この透明支持基板を実施例 10 で使用した蒸着装置の基板ホルダーに固定し、CuPc を入れたモリブデン製蒸着用ポート、NPD を入れたモリブデン製蒸着用ポート、化合物（A）を入れたモリブデン製蒸着用ポート、化合物（B）を入れたモリブデン製蒸着用ポート、化合物（2-2-2）を入れたモリブデン製蒸着用ポート、弗化リチウムを入れたモリブデン製蒸着用ポート、およびアルミニウムを入れたタングステン製蒸着用ポートを装着した。

20

【0 1 2 8】

透明支持基板の ITO 膜の上に順次、下記各層を形成した。真空槽を 5×10^{-4} Pa まで減圧し、まず、CuPc が入った蒸着用ポートを加熱して膜厚 50 nm になるように蒸着して正孔注入層を形成し、ついで、NPD が入った蒸着用ポートを加熱して膜厚 30 nm になるように蒸着して正孔輸送層を形成した。次に、化合物（A）が入った蒸着用ポートと化合物（B）の入った蒸着用ポートを同時に加熱して膜厚 35 nm になるように蒸着して発光層を形成した。化合物（A）と化合物（B）の重量比がおおよそ 95 対 5 になるように蒸着速度を調節した。次に、化合物（2-2-2）の入った蒸着用ポートを加熱して膜厚 15 nm になるように蒸着して電子輸送層を形成した。各層の蒸着速度は 0.01 ～ 1 nm/秒であった。

30

【0 1 2 9】

その後、弗化リチウム入りの蒸着用ポートを加熱して膜厚 0.5 nm になるように 0.003 ～ 0.1 nm/秒の蒸着速度で蒸着し、次いで、アルミニウム入りの蒸着用ポートを加熱して膜厚 100 nm になるように 0.01 ～ 10 nm/秒の蒸着速度で蒸着することにより、陰極を形成し、有機電界発光素子を得た。

【0 1 3 0】

ITO 電極を陽極、弗化リチウム／アルミニウム電極を陰極として、直流電圧を印加すると、約波長 455 nm の青色発光を得た。また、初期輝度 $2000 \text{ cd}/\text{m}^2$ を得るための電流密度により、定電流駆動試験を実施した。駆動試験開始電圧は 6.28 V で、80 時間経過時の輝度は $1612 \text{ cd}/\text{m}^2$ だった。

40

【実施例 1 3】

【0 1 3 1】

化合物（2-2-2）を化合物（2-1-2）に替えた以外は実施例 12 と同様にして有機 EL 素子を得た。ITO 電極を陽極、弗化リチウム／アルミニウム電極を陰極として、初期輝度 $2000 \text{ cd}/\text{m}^2$ を得るための電流密度により、定電流駆動試験を実施した。駆動試験開始電圧は 5.47 V で 80 時間経過時の輝度は $1708 \text{ cd}/\text{m}^2$ であった。

【実施例 1 4】

【0 1 3 2】

50

化合物(2-2-2)を化合物(2-1-28)に替えた以外は実施例12と同様にして有機EL素子を得た。ITO電極を陽極、弗化リチウム／アルミニウム電極を陰極として、初期輝度 2000 cd/m^2 を得るための電流密度により、定電流駆動試験を実施した。駆動試験開始電圧は4.73Vで80時間経過時の輝度は 1554 cd/m^2 であった。

【実施例15】

【0133】

化合物(2-2-2)を化合物(2-1-66)に替えた以外は実施例12と同様にして有機EL素子を得た。ITO電極を陽極、弗化リチウム／アルミニウム電極を陰極として、初期輝度 2000 cd/m^2 を得るための電流密度により、定電流駆動試験を実施した。駆動試験開始電圧は4.86Vで80時間経過時の輝度は 1633 cd/m^2 であった。

【0134】

(比較例4)

化合物(2-2-2)を上記化合物(C)(特許文献2に記載の化合物II-4)に替えた以外は実施例12と同様にして有機EL素子を得た。ITO電極を陽極、弗化リチウム／アルミニウム電極を陰極として、初期輝度 2000 cd/m^2 を得るための電流密度により、定電流駆動試験を実施した。駆動試験開始電圧は4.14Vで80時間経過時の輝度は 1375 cd/m^2 であった。

【0135】

(比較例5)

化合物(2-2-2)をトリス(8-キノリノール)アルミニウム(Alq_3)に替えた以外は実施例12と同様にして有機EL素子を得た。ITO電極を陽極、弗化リチウム／アルミニウム電極を陰極として、初期輝度 2000 cd/m^2 を得るための電流密度により、定電流駆動試験を実施した。駆動試験開始電圧は6.58Vで80時間経過時の輝度は 1562 cd/m^2 であった。

以上の結果を表2にまとめた。

【0136】

【表2】

表2

	正孔輸送層	発光層	電子輸送層	80時間後の輝度 (cd/m^2)	開始電圧 (V)
実施例-12	NPD	(A):(B)=95:5	(2-2-2)	1612	6.28
実施例-13	NPD	(A):(B)=95:5	(2-1-2)	1708	5.47
実施例-14	NPD	(A):(B)=95:5	(2-1-28)	1554	4.73
実施例-15	NPD	(A):(B)=95:5	(2-1-66)	1633	4.86
比較例-4	NPD	(A):(B)=95:5	(C)	1375	4.14
比較例-5	NPD	(A):(B)=95:5	Alq_3	1562	6.58

【産業上の利用可能性】

【0137】

本発明の好ましい態様によれば、駆動電圧、素子寿命において更に性能のよい有機EL素子を提供することができる。殊に青色発光の素子の駆動電圧、素子寿命が改善され、より実用的になるので、それを備えた高性能なディスプレイ装置などを提供することができる。

フロントページの続き

審査官 三木 寛

(56)参考文献 米国特許出願公開第2006/0186797 (US, A1)

特開2003-336043 (JP, A)

特開2005-317297 (JP, A)

特開2003-123983 (JP, A)

特開2008-120696 (JP, A)

特開2006-347980 (JP, A)

特開2002-158093 (JP, A)

国際公開第2005/092888 (WO, A1)

国際公開第2006/057325 (WO, A1)

国際公開第2006/057326 (WO, A1)

特開2006-013226 (JP, A)

Meier, Christoph; Ziener, Ulrich; Landfester, Katharina; Wehrich, Petra, Weak Hydrogen Bonds as a Structural Motif for Two-Dimensional Assemblies of Oligopyridines on Highly Oriented Pyrolytic Graphite: An STM Investigation, Journal of Physical Chemistry B, 2005年, 109(44), 21015-21027

Amr, Abd El-Galil E.; Hayam, H. Sayed; Abdulla, Mohamed M., Synthesis and reactions of some new substituted pyridine and pyrimidine derivatives as analgesic, anticonvulsant and antiparkinsonian agents, Archiv der Pharmazie (Weinheim, Germany), 2005年, 338(9), 433-440

Barboiu, Mihail; Petit, Eddy; Vaughan, Gavin, Metallosupramolecular zippers generated by self-organization of self-complementary molecular clefts, Chemistry--A European Journal, 2004年, 10(9), 2263-2270

Ghozlan, Said A. S.; Hassanien, Abu Zeid A., β -Amino- β -(pyrid-4-yl)acrylonitrile in heterocyclic synthesis: synthesis of some new pyridine, pyridone, pyrazole, thiophene, fused pyrimidine and triazine derivatives, Tetrahedron, 2002年, 58(46), 9423-9429

Cave, Gareth W. V.; Raston, Colin L., Efficient synthesis of pyridines via a sequential solventless aldol condensation and Michael addition, Journal of the Chemical Society, Perkin Transactions 1, 2001年, (24), 3258-3264

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C07D 213/22

C07D 401/14

CA/REGISTRY (STN)