(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号
特許第3594642号
(P3594642)
(45)発行日　平成16年12月2日(2004.12.2)　(24)登録日　平成16年9月10日(2004.9.10)

(51)Int.Cl.[7]	F I
C07C 211/54	C07C 211/54
C07C 211/56	C07C 211/56
C07C 217/92	C07C 217/92
C09K 11/06	C09K 11/06
H05B 33/14	H05B 33/14

請求項の数 2　(全 28 頁)

(21)出願番号　特願平5-345931
(22)出願日　平成5年12月24日(1993.12.24)
(65)公開番号　特開平7-188130
(43)公開日　平成7年7月25日(1995.7.25)
審査請求日　平成12年12月20日(2000.12.20)

(73)特許権者　000005315
保土谷化学工業株式会社
神奈川県川崎市幸区堀川町６６番地２
(72)発明者　安西　光利
茨城県つくば市御幸が丘４５番地　保土谷化学工業株式会社　筑波研究所内
(72)発明者　高相　聖一
茨城県つくば市御幸が丘４５番地　保土谷化学工業株式会社　筑波研究所内

審査官　前田　憲彦

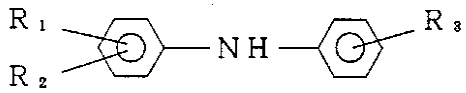
最終頁に続く

(54)【発明の名称】ジアミノジフェニル化合物及び該化合物を用いた有機電界発光素子

(57)【特許請求の範囲】
【請求項１】
下記一般式（１）
【化１】
（式中、Ｒ１、Ｒ２は塩素原子、臭素原子、アルキル基、低級アルコキシ基、フェニル置換低級アルキル基、フェニル基、または低級アルキル基もしくは低級アルコキシ基を置換基として有するフェニル基を表し、Ｒ３は水素原子、塩素原子、臭素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基、フェニル基、フェニル置換低級アルキル基を表し、Ｒ４は水素原子、塩素原子、メチル基またはメトキシ基を表し、Ｒ１とＲ２は同時に同じ置換基ではない。）で表されるジアミノジフェニル化合物。
【請求項２】
少なくとも電極、正孔輸送層、発光層及び電極からなる有機電界発光素子において、その正孔輸送層に用いる電荷輸送材料として下記一般式（１）
【化２】
（式中、Ｒ１、Ｒ２は塩素原子、臭素原子、アルキル基、低級アルコキシ基、フェニル置換低級アルキル基、フェニル基、または低級アルキル基もしくは低級アルコキシ基を置換基として有するフェニル基を表し、Ｒ３は水素原子、塩素原子、臭素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基、フェニル基、フェニル置換低級アルキル基を表し、Ｒ４は水素原子、塩素原子、メチル基またはメトキシ基を表し、Ｒ１とＲ２は同時に同じ置換基ではない。）で表されるジアミノジフェニル化合物を、少なくとも一種用いることを特徴とする

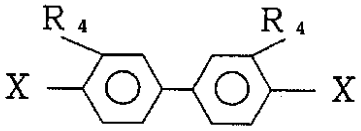
有機電界発光素子。
【発明の詳細な説明】
【０００１】
【産業上の利用分野】
本発明は、有機電界発光素子などに用いられる電荷輸送剤として有用な新規なジアミノジフェニル化合物及び該化合物を用いた有機電界発光素子に関する。
【０００２】
【従来の技術】
有機化合物を構成要素とする電界発光素子は、従来より検討されていたが、充分な発光特性が得られていなかった。しかし、近年数種の有機材料を積層した構造とすることにより、その特性が著しく向上し、以来、有機物を用いた電界発光素子に関する検討が活発に行われている。この積層構造とした電界発光素子はコダック社のＣ．Ｗ．Ｔａｎｇらにより最初に報告されたが（Ａｐｐｌ．Ｐｈｙｓ．Ｌｅｔｔ．５１（１９８７）９１３）、この中では１０Ｖ以下の電圧で１０００ｃｄ／ｍ^2　以上の発光が得られており、従来より実用化されている無機電界発光素子が２００Ｖ以上の高電圧を必要とするのに比べ、格段に高い特性を有することが示された。
【０００３】
これら積層構造の電界発光素子は、有機蛍光体と電荷輸送性の有機物（電荷輸送剤）及び電極を積層した構造となっており、それぞれの電極より注入された電荷（正孔及び電子）が電荷輸送剤中を移動して、それらが再結合することによって発光する。有機蛍光体としては、８－キノリノールアルミニウム錯体やクマリリンなど蛍光を発する有機色素などが用いられている。また、電荷輸送剤としては電子写真感光体用有機材料として良く知られた種々の化合物を用いて検討されており、例えばＮ，Ｎ′－ジ（３－トリル）－Ｎ，Ｎ′－ジフェニル－４，４′－ジアミノジフェニルや１，１－ビス［Ｎ，Ｎ－ジ（４－トリル）アミノフェニル］シクロヘキサンといったジアミン化合物や４－ジフェニルアミノベンズアルデヒド－Ｎ，Ｎ－ジフェニルヒドラゾンなどのヒドラゾン化合物が挙げられる。更に、銅フタロシアニンのようなポルフィリン化合物も用いられている。
【０００４】
ところで、有機電界発光素子は、高い発光特性を有しているが、発光時の安定性や保存安定性の点で充分ではなく、実用化には至っていない。素子の発光時の安定性、保存安定性における問題点の一つとして、電荷輸送剤の安定性が指摘されている。電界発光素子の有機物で形成されている層は５０～数百ナノメーターと非常に薄く、単位厚さあたりに加えられる電圧は非常に高い。また、発光や通電による発熱もあり、従って電荷輸送剤には電気的、熱的あるいは化学的な安定性が要求される。更に、一般的に素子中の電荷輸送層は、非晶質の状態にあるが、発光または保存による経時により、結晶化を起こし、これによって発光が阻害されたり、素子破壊を起こすといった現象が見られている。この為、電荷輸送剤には非晶質すなわちガラス状態を容易に形成し、かつ安定に保持する性能が要求される。
【０００５】
このような電荷輸送剤に起因する発光素子の安定性に関し、例えば、単純な構造のジアミン化合物やポルフィリン化合物においては、電気的、熱的に安定で比較的高い発光特性の得られている物が有るが、結晶化による素子の劣化は解決されていない。また、ヒドラゾン化合物は、電気的、熱的安定性において充分ではないため、好ましい材料ではない。
【０００６】
【発明が解決しようとする課題】
本発明の目的は、発光特性のみならず、発光時の安定性、保存安定性に優れた有機電界発光素子を実現し得る電荷輸送材料として有用な新規なジアミノジフェニル化合物、及び該化合物を用いた有機電界発光素子を提供することにある。
【０００７】
【課題を解決するための手段】

本発明によれば、下記一般式（１）で表されるジアミノジフェニル化合物が提供される。
【化３】
（式中、Ｒ１、Ｒ２は塩素原子、臭素原子、アルキル基、低級アルコキシ基、フェニル置換低級アルキル基、フェニル基、または低級アルキル基もしくは低級アルコキシ基を置換基として有するフェニル基を表し、Ｒ３は水素原子、塩素原子、臭素原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基、フェニル基、フェニル置換低級アルキル基を表し、Ｒ４は水素原子、塩素原子、メチル基またはメトキシ基を表し、Ｒ１とＲ２は同時に同じ置換基ではない。）
【０００８】
本発明の前記一般式（１）で表されるジアミノジフェニル化合物は新規化合物であり、これらは相当する４，４′－ジハロゲン化ビフェニル化合物と相当するジフェニルアミン化合物との縮合反応、または、相当するベンジジン化合物と相当するハロゲン化アリールとの逐次縮合反応により合成することができる。これらの縮合反応はウルマン反応として知られる方法である。
【０００９】
例えば、下記一般式（２）
【化４】



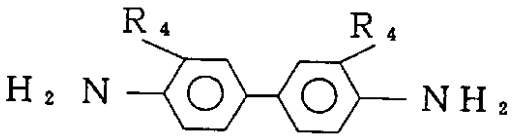
（２）

（式中、Ｒ１、Ｒ２、Ｒ３は前記一般式（１）と同じ意味を表す。）で表されるジフェニルアミン化合物と、下記一般式（３）
【化５】



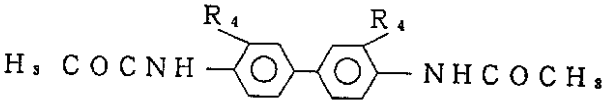
（３）

（式中、Ｒ４は前記一般式（１）と同じ意味を表し、Ｘは臭素原子またはヨウ素原子を表す。）で表される４，４’－ジハロゲン化ビフェニル化合物とを縮合反応させることにより得られる。
又は、下記一般式（４）
【化６】



（４）

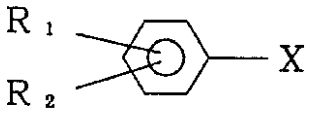
（式中、Ｒ４は前記一般式（１）と同じ意味を表す。）で表されるベンジジン化合物をアセチル化して、下記一般式（５）
【化７】



（５）

（式中、Ｒ４は前記一般式（１）と同じ意味を表す。）で表されるＮ，Ｎ’－ジアセチル体とし、それに下記一般式（６）

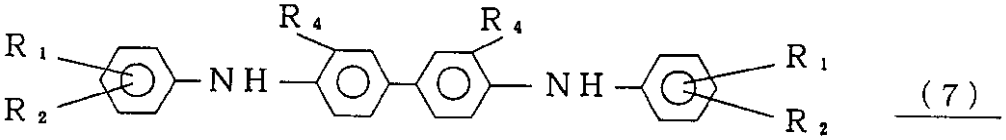
【化８】



（６）

（式中、Ｒ１、Ｒ２は前記一般式（１）と同じ意味を表し、Ｘは臭素原子またはヨウ素原子を表す。）で表されるハロゲン化アリール２モルを縮合反応させ、その後加水分解を行い、得られる下記一般式（７）

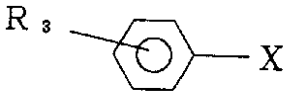
【化９】



（７）

（式中、Ｒ１、Ｒ２、Ｒ４は前記一般式（１）と同じ意味を表す。）で表されるＮ，Ｎ’－ジアリールベンジジン化合物に、更に下記一般式（８）

【化１０】



（８）

（式中、Ｒ３は前記一般式（１）と同じ意味を表し、Ｘは臭素原子またはヨウ素原子を表す。）で表されるハロゲン化アリール２モルを縮合反応させる事により、本発明のジアミノジフェニル化合物が得られる。

【００１０】

前述の、４，４’－ジハロゲン化ビフェニル化合物とジフェニルアミン化合物との縮合反応、及びベンジジン化合物とハロゲン化アリールとの逐次縮合反応は、無溶媒下または溶媒の存在下で行う。溶媒としてはニトロベンゼンやジクロロベンゼンまたはジメチルスルホキシドなどの高沸点溶媒が用いられる。また脱酸剤として炭酸カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化ナトリウムなどが用いられる。また、通常、銅粉やハロゲン化銅などの触媒を用いて反応させる。反応温度は通常１６０～２３

０℃である。

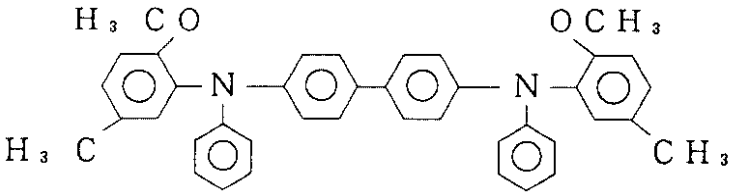
【００１１】

このようにして得られた、本発明の具体的な化合物例を以下に示す。

【００１２】

化合物Ｎｏ（１）

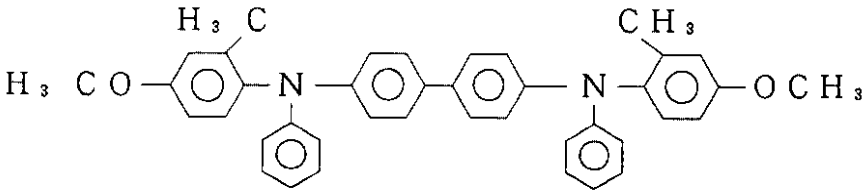
【化１１】



【００１３】

化合物Ｎｏ（２）

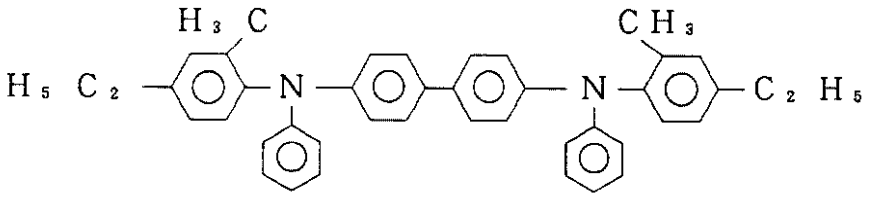
【化１２】



【００１４】

化合物Ｎｏ（３）

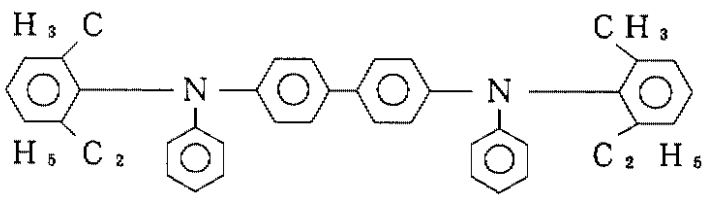
【化１３】



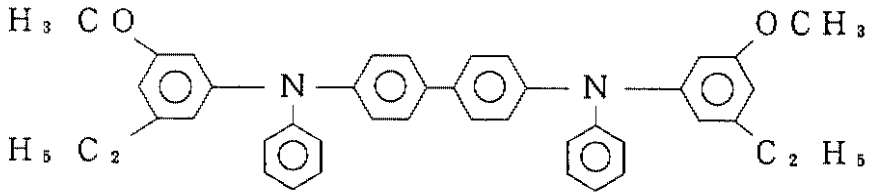
【００１５】

化合物Ｎｏ（４）

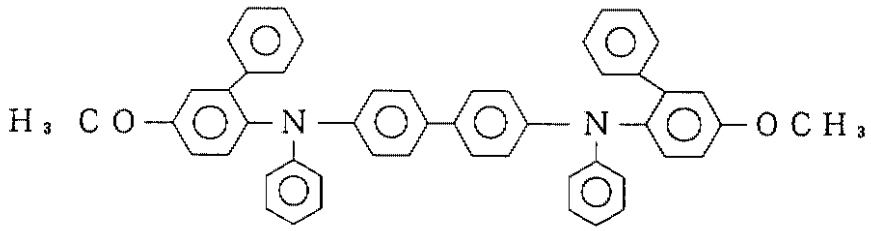
【化１４】



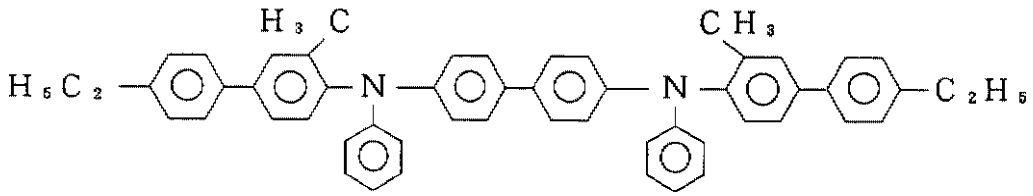
【００１６】
化合物Ｎｏ（５）
【化１５】



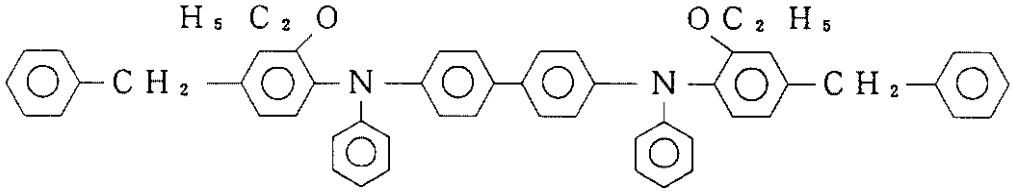
【００１７】
化合物Ｎｏ（６）
【化１６】



【００１８】
化合物Ｎｏ（７）
【化１７】

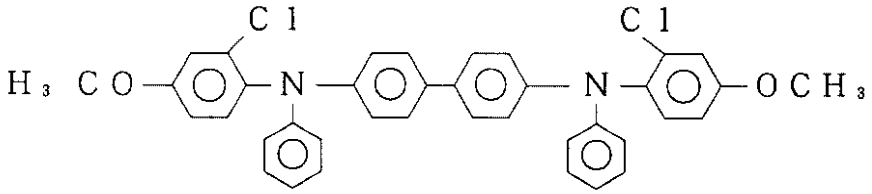


【００１９】
化合物Ｎｏ（８）
【化１８】

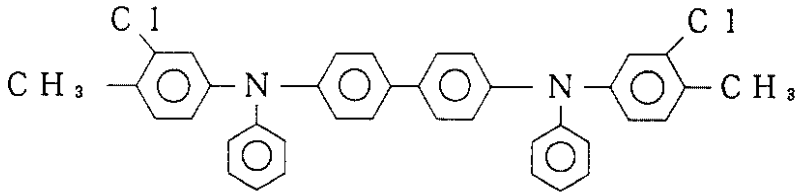


【００２０】
化合物Ｎｏ（９）

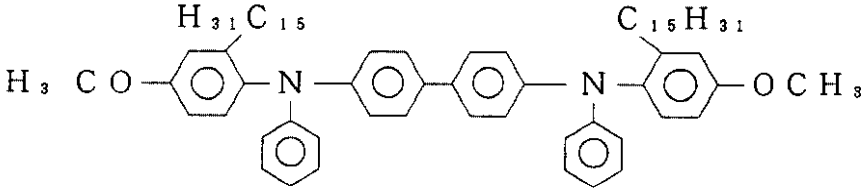
【化１９】



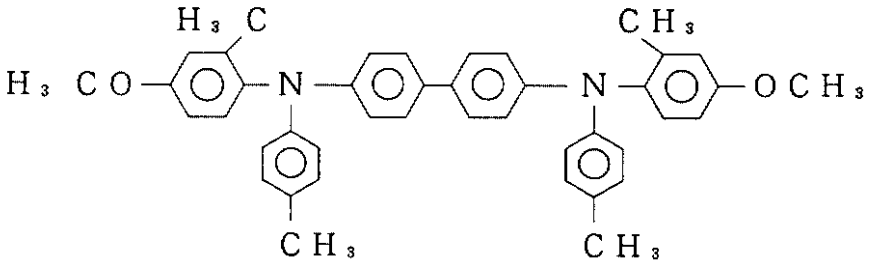
【００２１】
化合物Ｎｏ（１０）
【化２０】



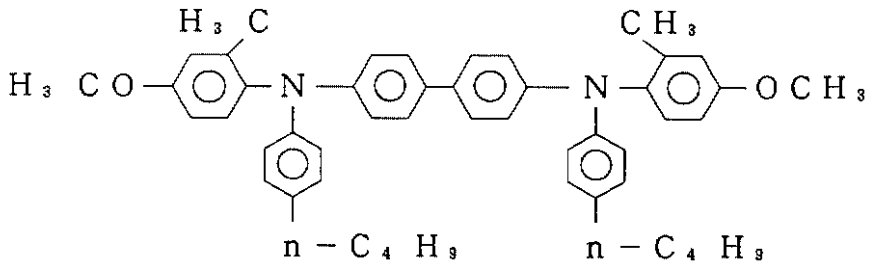
【００２２】
化合物Ｎｏ（１１）
【化２１】



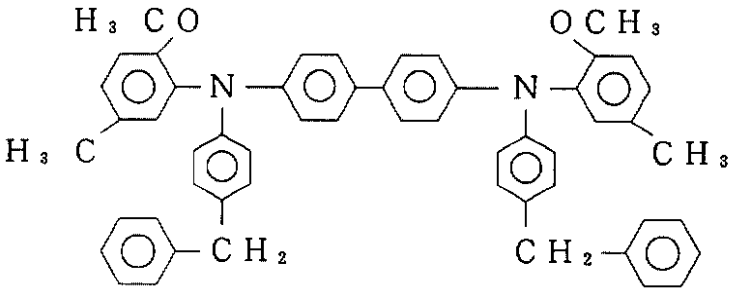
【００２３】
化合物Ｎｏ（１２）
【化２２】



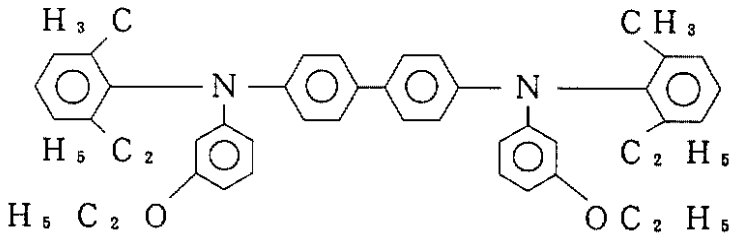
【００２４】
化合物Ｎｏ（１３）
【化２３】



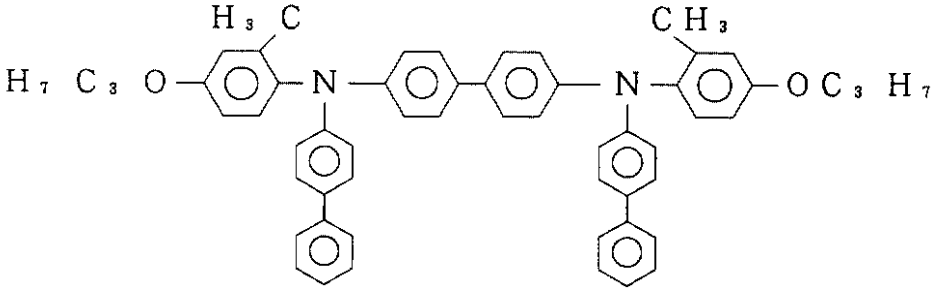
【００２５】
化合物Ｎｏ（１４）
【化２４】



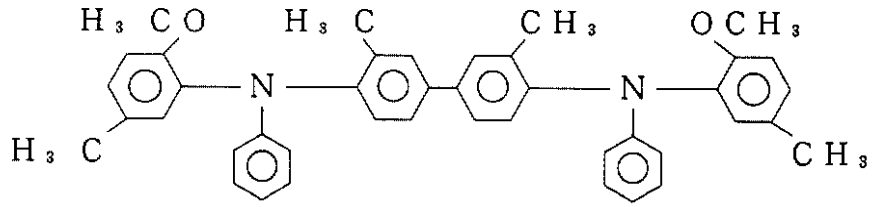
【００２６】
化合物Ｎｏ（１５）
【化２５】



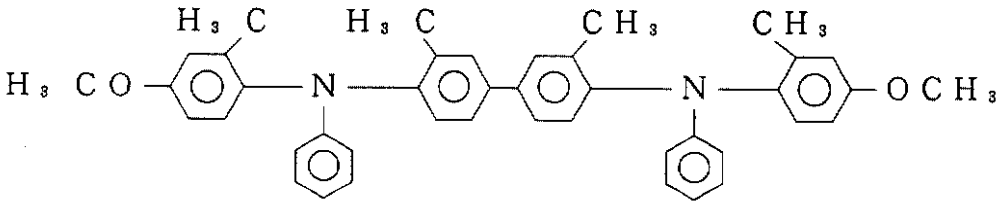
【００２７】
化合物Ｎｏ（１６）
【化２６】



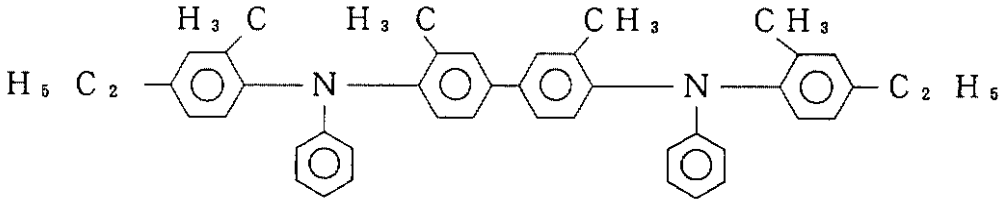
【００２８】
化合物Ｎｏ（１７）
【化２７】



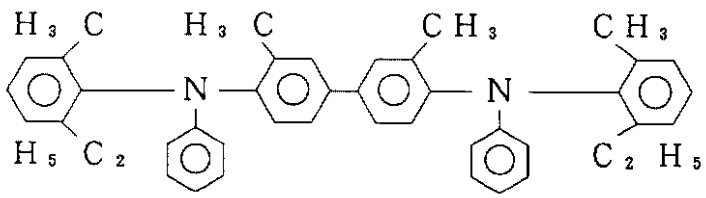
【００２９】
化合物Ｎｏ（１８）
【化２８】



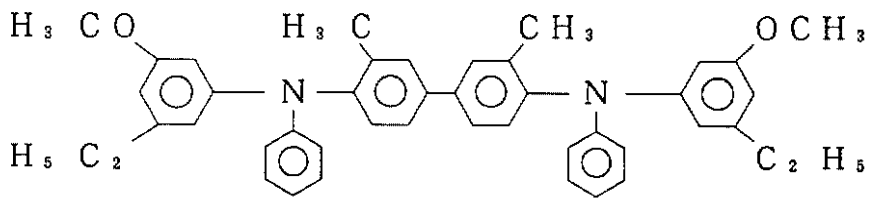
【００３０】
化合物Ｎｏ（１９）
【化２９】



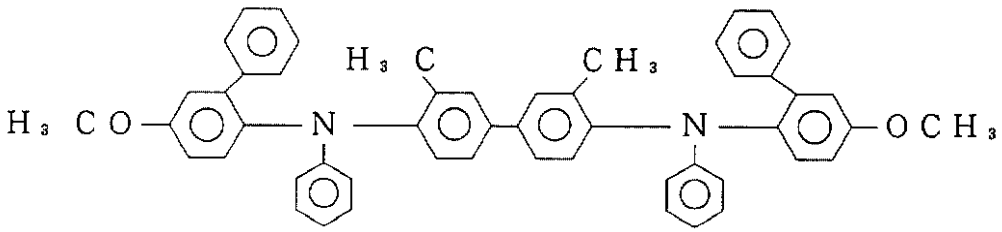
【００３１】
化合物Ｎｏ（２０）
【化３０】



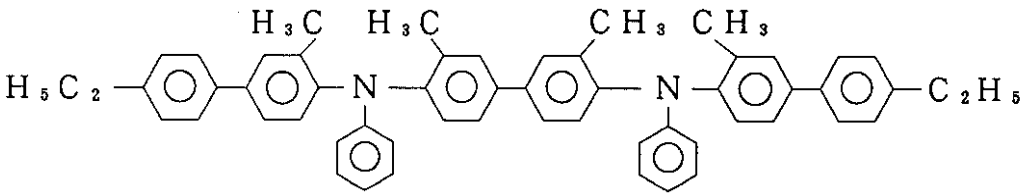
【００３２】
化合物Ｎｏ（２１）
【化３１】



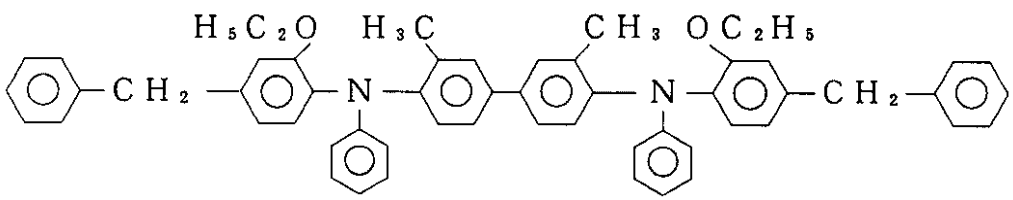
【００３３】
化合物Ｎｏ（２２）
【化３２】



【００３４】
化合物Ｎｏ（２３）
【化３３】

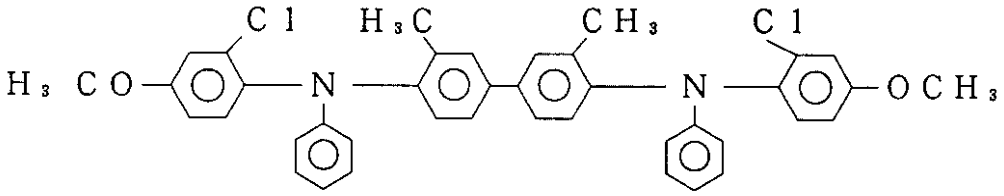


【００３５】
化合物Ｎｏ（２４）
【化３４】

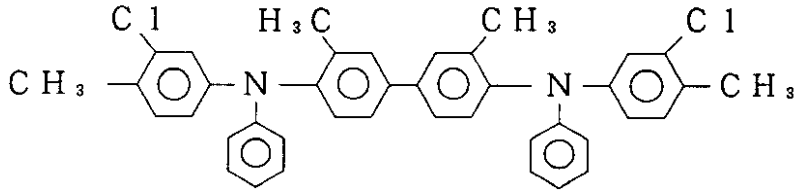


【００３６】
化合物Ｎｏ（２５）

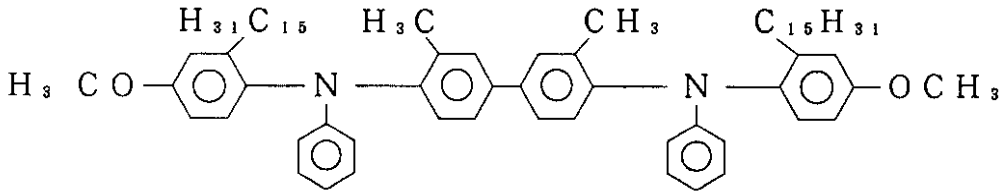
【化３５】



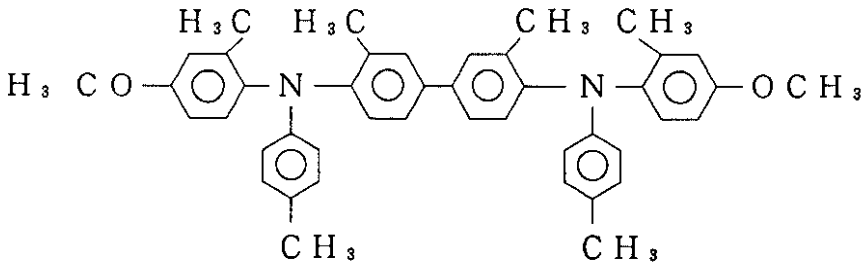
【００３７】
化合物Ｎｏ（２６）
【化３６】



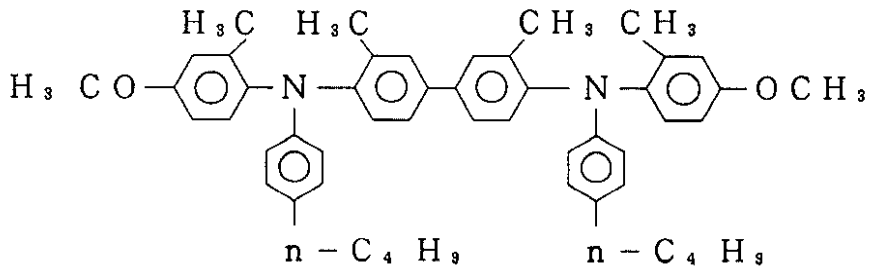
【００３８】
化合物Ｎｏ（２７）
【化３７】



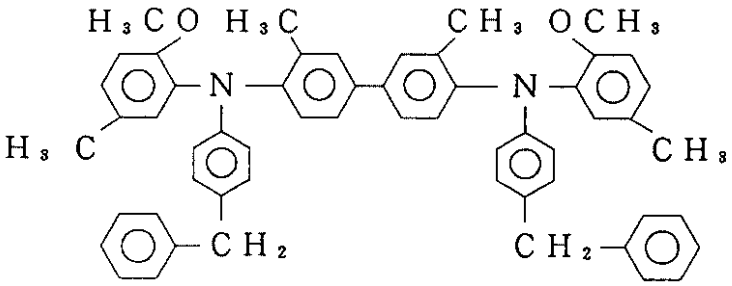
【００３９】
化合物Ｎｏ（２８）
【化３８】



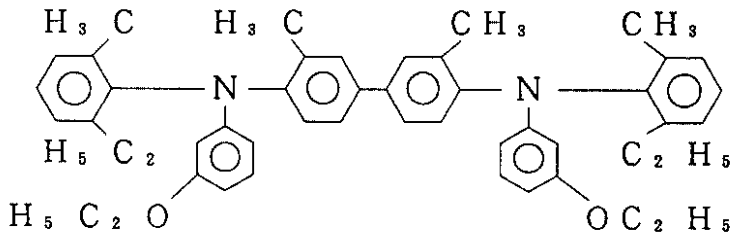
【００４０】
化合物Ｎｏ（２９）
【化３９】



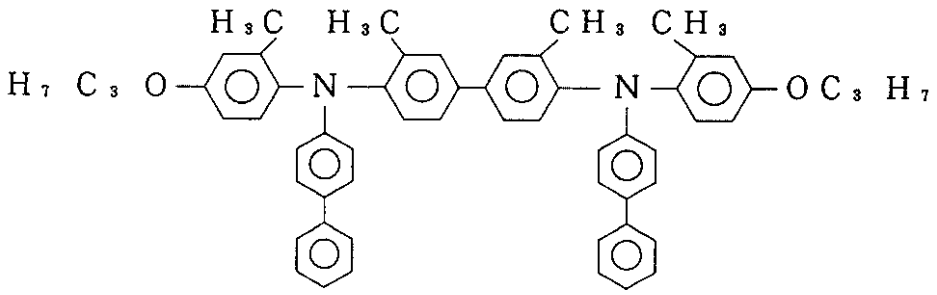
【００４１】
化合物Ｎｏ（３０）
【化４０】



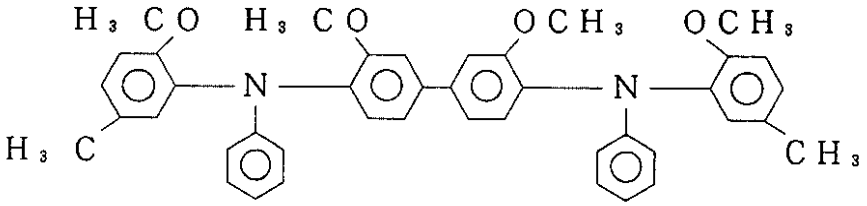
【００４２】
化合物Ｎｏ（３１）
【化４１】



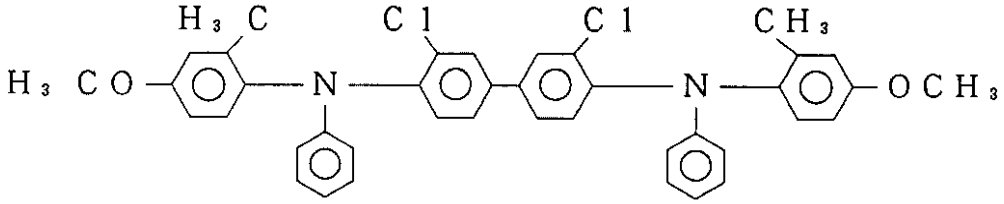
【００４３】
化合物Ｎｏ（３２）
【化４２】



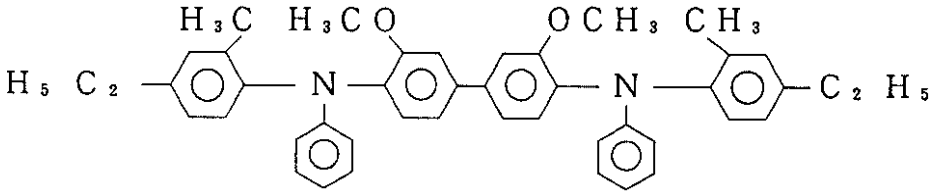
【００４４】
化合物Ｎｏ（３３）
【化４３】



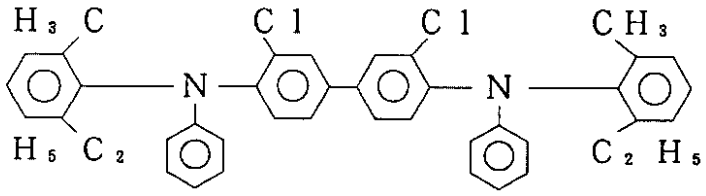
【００４５】
化合物Ｎｏ（３４）
【化４４】



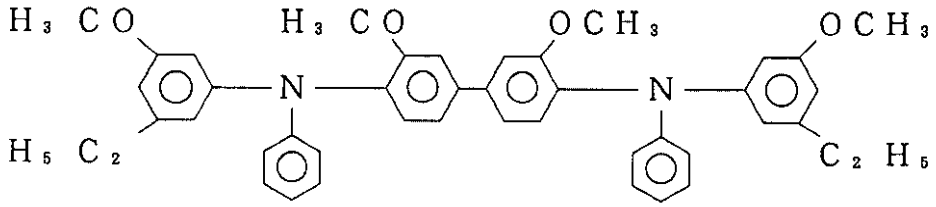
【００４６】
化合物Ｎｏ（３５）
【化４５】



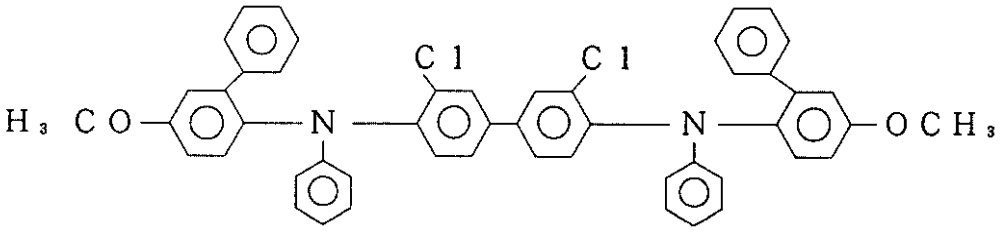
【００４７】
化合物Ｎｏ（３６）
【化４６】



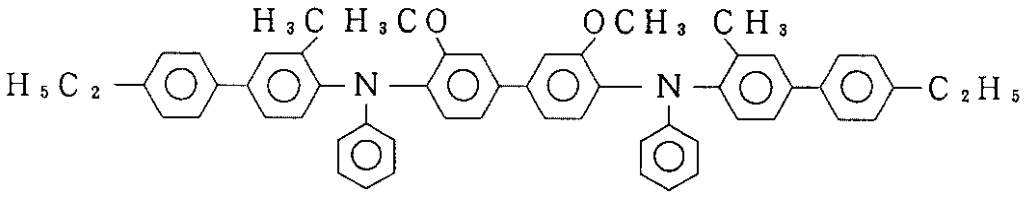
【００４８】
化合物Ｎｏ（３７）
【化４７】



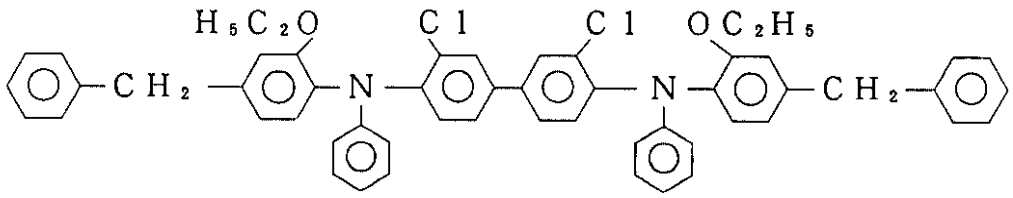
【００４９】
化合物Ｎｏ（３８）
【化４８】



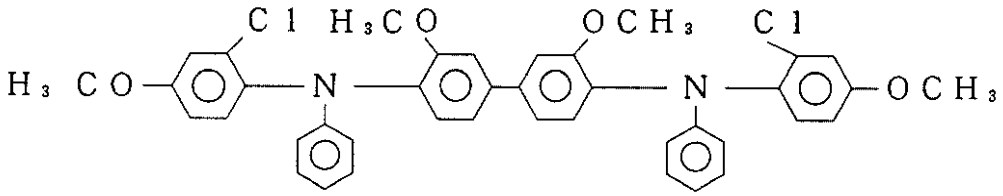
【００５０】
化合物Ｎｏ（３９）
【化４９】



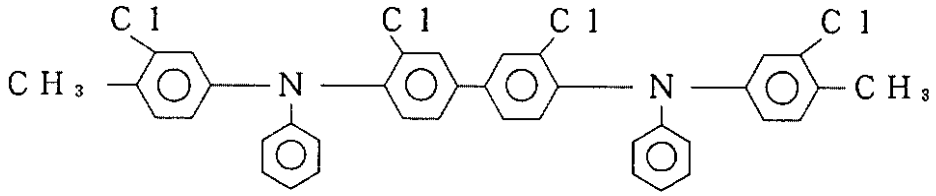
【００５１】
化合物Ｎｏ（４０）
【化５０】



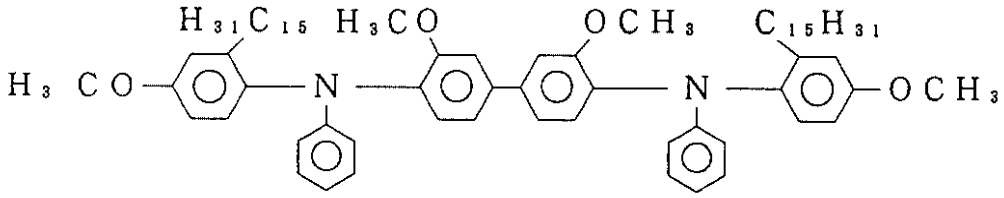
【００５２】
化合物Ｎｏ（４１）
【化５１】



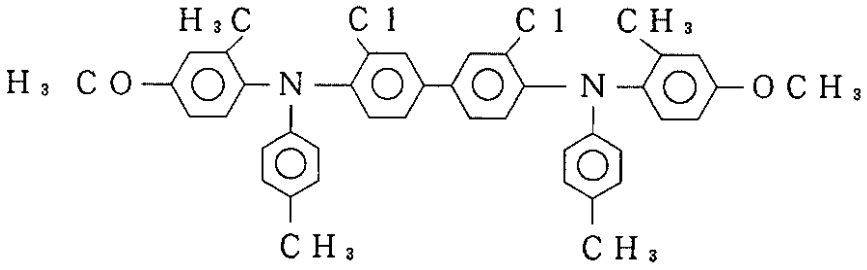
【００５３】
化合物Ｎｏ（４２）
【化５２】



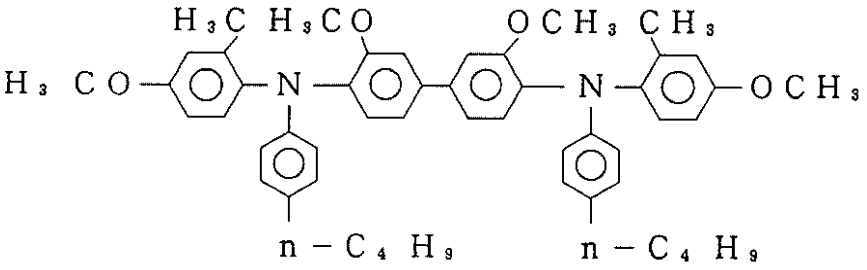
【００５４】
化合物Ｎｏ（４３）
【化５３】



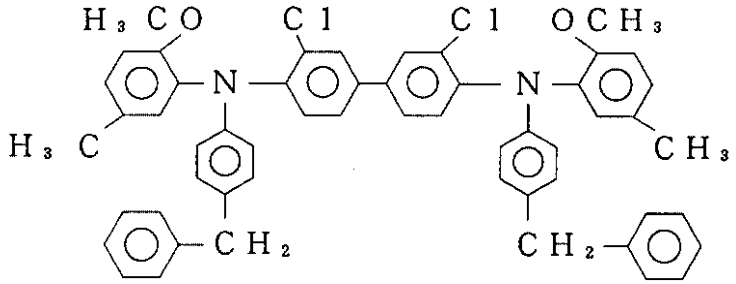
【００５５】
化合物Ｎｏ（４４）
【化５４】



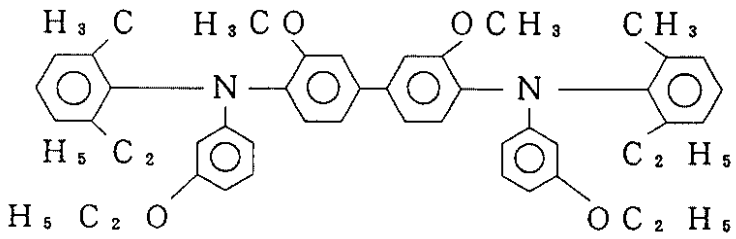
【００５６】
化合物Ｎｏ（４５）
【化５５】



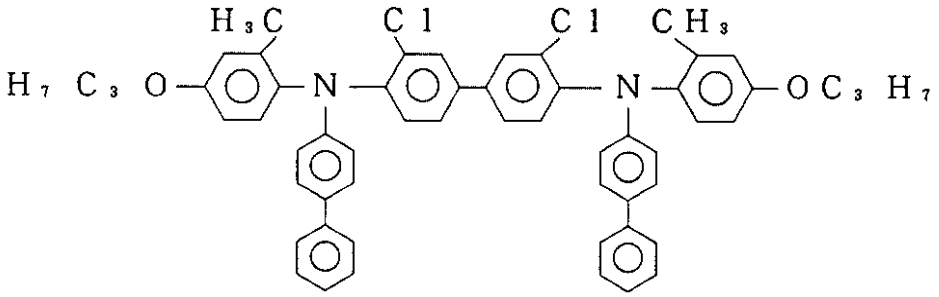
【００５７】
化合物Ｎｏ（４６）
【化５６】



【００５８】
化合物Ｎｏ（４７）
【化５７】



【００５９】
化合物Ｎｏ（４８）
【化５８】



【００６０】
又、本発明によれば、前述した一般式（１）で表されるジアミノビフェニル化合物を正孔輸送層として用いた有機電界発光素子が得られる。
有機電界発光素子には、二層構造と三層構造のものが有り、これらの層構成を基板となる透明電極上に設け、その上に対電極を設けて有機電界発光素子を形成する。二層構造の場合は、正孔輸送層と電子輸送性発光層の組み合わせあるいは電子輸送層と正孔輸送性発光層の組み合わせから成り、三層構造の場合は正孔輸送層と電子輸送層で発光層をサンドイッチした構造となる。
本発明にかかる構成は正孔輸送層と電子輸送性発光剤の二層構造あるいはこれに更に電子輸送層を積層した三層構造である。図１に二層構造による有機電界発光素子を示す。
【００６１】
電子輸送性発光剤としては、例えば、トリス（８－キノリノール）アルミニウム、ビス（８－キノリノール）マグネシュウム、トリス（５－クロロ－８－キノリノール）ガリウム等のキレート化オキシノイド化合物、クマリン誘導体、ペリレン系顔料やキレート化２，２′－ビピリジン化合物及びサリチリデン－Ｏ－アミノフェノール誘導体のキレート化合物などである。
又、電子輸送剤としては、例えば、２－（４－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）－５－（４－ビフェニリル）－１，３，５－オキサジアゾール、２，４，７－トリニトロ－９－フルオレノン、４－ブトキシカルボニル－９－ジシアノメチリデンフルオレン、３，３′－ビス（ｔｅｒｔ－ブチル）－５，５′－ジメチル－４，４′－ジフェノキノン、３，５′－ビス（ｔｅｒｔ－ブチル）－５，３′－ジメチル－４，４′－ジフェノキノン、３，５，－ビス（ｔｅｒｔ－ブチル）－３′，５′－ジメチル－４，４′－ジフェノキノンなどである。
【００６２】
尚、有機電界発光素子の支持体にはガラス、プラスチック、石英などが用いられ、この基板上に、金、アルミニウム、インジウム、銀、マグネシュウム等の金属やインジウム－チン－オキサイド（ＩＴＯ）、酸化スズ、酸化亜鉛などから成る薄膜の電極を蒸着法等で形成し、半透明あるいは透明電極とする。この上に電荷輸送層や発光層を積層し、更にその上に前述したのと同様な電極を形成して有機電界発光素子を形成して、これに直流電圧を印加して発光を行う。
【００６３】
【実施例】
以下、実施例により本発明を具体的に説明する。
【００６４】
実施例１（化合物Ｎｏ１の合成）
２－メトキシ－５－メチルアニリン５０．０ｇ（０．３６モル）を氷酢酸５０ｍｌに溶解し、無水酢酸４４．７ｇ（０．４４モル）を内温が５０℃以上にならないように冷却しながら少しずつ滴下した。滴下後、５０～６０℃で３時間反応させた。反応終了後、反応物

を攪拌しながら５００ｍｌの氷水に注加し、析出した結晶を濾過した。水洗したのち減圧乾燥して、Ｎ－アセチル－２－メトキシ－５－メチルアニリン６１．１ｇ（収率；９３．５％）を得た。

【００６５】

次に、Ｎ－アセチル－２－メトキシ－５－メチルアニリン３５．２ｇ（０．２０モル）とブロムベンゼン７８．４ｇ（０．５モル）、無水炭酸カリウム４１．４ｇ（０．３モル）、銅粉３．２ｇ（０．０５モル）、よう素０．３ｇ（０．００１モル）を仕込み１７５～１８５℃で１５時間反応させた。反応終了後、冷却してイソアミルアルコール２００ｍｌと、水１００ｍｌに溶解した８５％水酸化カリウム２６．４ｇ（０．４０モル）を加え、再び加熱した。共沸分液により水のみを分離してから１２０～１２５℃で３時間加水分解した。加水分解反応終了後、水蒸気蒸留によりイソアミルアルコールを留去し、冷却後トルエン２００ｍｌを加え生成物を溶解した。濾過してろ液を濃縮して褐色の油状物を得た。この褐色油状物を減圧蒸留（ｂｐ；１４８．５－１４９．０℃／２．０ｍｍＨｇ）して淡黄色の２－メトキシ－５－メチルジフェニルアミン３４．２ｇ（収率；８１．６％）を得た。

【００６６】

更に、２－メトキシ－５－メチルジフェニルアミン２０．０ｇ（０．０９４モル）、４，４′－ジヨードビフェニル１５．３ｇ（０．０３８モル）、無水炭酸カリウム１８．２ｇ（０．１３モル）と銅粉１．２ｇ（０．０１９モル）を仕込み、２００～２１０℃で８時間反応させた。冷却後、トルエン２００ｍｌを注加して生成物を溶解し、濾過した。ろ液は濃縮して、酢酸エチル１００ｍｌを加え加温溶解後、エタノール６０ｍｌを加えて晶析し、濾過、乾燥した。得られた結晶をカラム精製（担体；シリカゲル、溶離液；トルエン）して、白色のＮ，Ｎ′－ビス（２－メトキシ－５－メチルフェニル）－Ｎ，Ｎ′－ジフェニル－４，４′－ジアミノジフェニル１６．３ｇ（収率；７５．０％）を得た。融点は２１３．５－２１５．０℃であった。赤外線吸収スペクトル（ＫＢｒ錠剤法）の特性基振動数（cm^{-1}）は３０２８，１５９２，１４９０，１２７０等であった。

【００６７】

元素分析値は$C_{40}H_{36}N_2O_2$として下記表１の通りであった。

【００６８】

【表１】

	Ｃ（％）	Ｈ（％）	Ｎ（％）
計　算　値	８３．３	６．３	４．９
実　測　値	８３．５	６．５	４．８

【００６９】

実施例２（化合物Ｎｏ２の合成）

実施例１のジフェニルアミン化合物を合成する工程で、２－メトキシ－５－メチルアニリンの代わりに２－メチル－４－メトキシアニリンを用いた以外は実施例１と同様にして合成された２－メチル－４－メトキシジフェニルアミン２３．５ｇ（０．１１モル）と４，４′－ジヨードビフェニル１７．９ｇ（０．０４４モル）、無水炭酸カリウム２１．３ｇ（０．１５モル）、銅粉１．４ｇ（０．０２２モル）を仕込み２００～２２０℃で１５時間反応させた。冷却後、トルエン２００ｍｌを注加して生成物を溶解し、濾過した。ろ液は濃縮して酢酸エチル６０ｍｌを加え加温溶解後、エタノール６５ｍｌを加えて晶析し、濾過、乾燥した。得られた結晶をカラム精製（担体；シリカゲル、溶離液；トルエン／ヘキサン＝１／１）して、白色のＮ，Ｎ′－ビス（２－メチル－４－メトキシフェニル）－

Ｎ，Ｎ′－ジフェニル－４，４′－ジアミノジフェニル１７．１ｇ（収率；６７．３％）を得た。融点は１６２．０－１６３．５℃であった。赤外線吸収スペクトル（ＫＢｒ錠剤法）の特性基振動数（ｃｍ$^{-1}$）は３０２５，１５８８，１４８０，１２８５等であった。

【００７０】

元素分析値は$C_{40}H_{36}N_2O_2$として下記表２の通りであった。

【００７１】

【表２】

	Ｃ（％）	Ｈ（％）	Ｎ（％）
計　算　値	８３．３	６．３	４．９
実　測　値	８３．１	６．５	４．７

【００７２】

実施例３（化合物Ｎｏ６の合成）

実施例１のジフェニルアミン化合物を合成する工程で、２－メトキシ－５－メチルアニリンの代わりに４－メトキシ－２－フェニルアニリンを用いた以外は実施例１と同様にして合成された４－メトキシ－２－フェニルジフェニルアミン２０．４ｇ（０．０７４モル）と４，４′－ジヨードビフェニル１３．２ｇ（０．０３３モル）、無水炭酸カリウム１５．６ｇ（０．１１３モル）、銅粉１．２ｇ（０．０１９モル）を仕込み、２００～２１０℃で１８時間反応させた。冷却後、トルエン３００ｍｌを注加して生成物を溶解し、濾過した。ろ液は濃縮して褐色の油状物を得た。この褐色油状物をカラム精製（担体；シリカゲル、溶離液；トルエン／ヘキサン＝２／５）して淡黄色のＮ，Ｎ′－ビス（４－メトキシ－２－ビフェニリル）－Ｎ，Ｎ′－ジフェニル－４，４′－ジアミノジフェニル１３．６ｇ（収率；５９．７％）を得た。融点は２０８．５－２１０．０℃であった。赤外線吸収スペクトル（ＫＢｒ錠剤法）の特性基振動数（ｃｍ$^{-1}$）は３０３０，１５９４，１４８８，１２９５等であった。

【００７３】

元素分析値は$C_{50}H_{40}N_2O_2$として下記表３の通りであった。

【００７４】

【表３】

	Ｃ（％）	Ｈ（％）	Ｎ（％）
計　算　値	８５．７	５．８	４．０
実　測　値	８５．８	５．９	４．１

【００７５】

実施例４（化合物Ｎｏ１１の合成）

実施例１のジフェニルアミン化合物を合成する工程で、２－メトキシ－５－メチルアニリンの代わりに４－メトキシ－２－ペンタデシルアニリンを用いた以外は実施例１と同様にして合成された４－メトキシ－２－ペンタデシルジフェニルアミン１９．４ｇ（０．０４７モル）と４，４′－ジヨードビフェニル７．７ｇ（０．０１９モル）、無水炭酸カリウ

ム９．３ｇ（０．０６７モル）、銅粉０．６ｇ（０．００９モル）を仕込み、２１０～２２０℃で１７時間反応させた。冷却後、トルエン２００ｍｌを注加して生成物を溶解し、濾過した。ろ液は濃縮して褐色の油状物を得た。この褐色油状物をカラム精製（担体；シリカゲル、溶離液；トルエン／ヘキサン＝１／４）して淡黄色のＮ，Ｎ′－ビス（４－メトキシ－２－ペンタデシルフェニル）－Ｎ，Ｎ′－ジフェニル－４，４′－ジアミノジフェニル１０．２ｇ（収率；５５．５％）を得た。融点は６８．０－７０．０℃であった。赤外線吸収スペクトル（ＫＢｒ錠剤法）の特性基振動数（cm^{-1}）は２９２０，１５９０，１４８９，１２８８等であった。

【００７６】

元素分析値は$C_{68}H_{92}N_2O_2$として下記表４の通りであった。

【００７７】

【表４】

	Ｃ（％）	Ｈ（％）	Ｎ（％）
計　算　値	８４．２	９．６	２．９
実　測　値	８４．０	９．７	２．６

【００７８】

実施例５～７

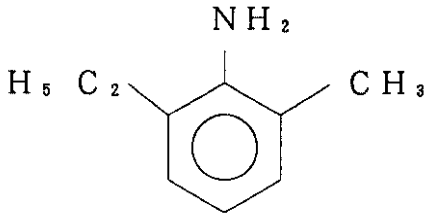
実施例１で、２－メトキシ－５－メチルアニリンの代わりに表５に示したアニリン化合物を用いた以外は実施例１と同様にして、表６に示したジアミノジフェニル化合物を得た。融点と元素分析値は表７に示した。赤外線吸収スペクトル（ＫＢｒ錠剤法）の特性基振動数は表８に示した。

尚、表５に示したアニリン化合物Ａ～Ｃの構造を下記に示す。

【００７９】

アニリン化合物Ａ

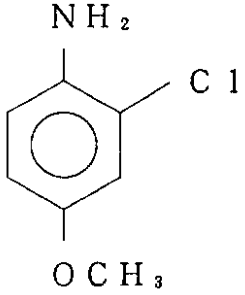
【化５９】



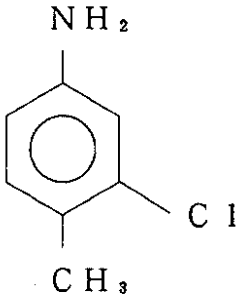
【００８０】

アニリン化合物Ｂ

【化６０】



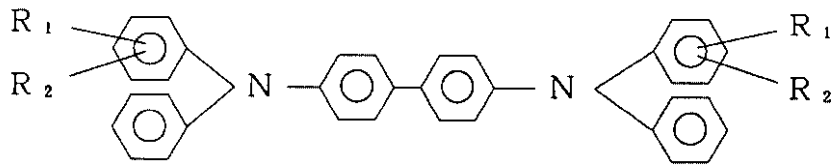
【００８１】
アニリン化合物Ｃ
【化６１】



【００８２】
【表５】

実施例Ｎｏ	アニリン化合物
5	A
6	B
7	C

【００８３】
【表６】



実施例Ｎｏ	R_1	R_2	収率（％）
5	2－CH_3	6－C_2H_5	82．0
6	2－Cl	4－OCH_3	56．5
7	3－Cl	4－CH_3	43．6

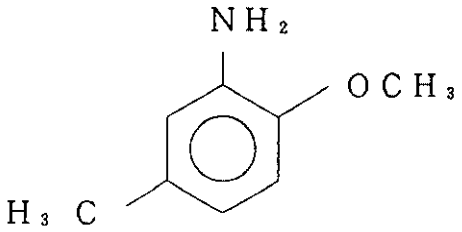
【００８４】
【表７】

実施例Ｎｏ	融　点（℃）	元素分析 ( )内は計算値 C	H	N
5	191.0－192.5	88.3 (88.1)	7.2 (7.0)	4.8 (4.9)
6	196.5－197.5	74.6 (73.9)	5.1 (4.9)	4.6 (4.5)
7	206.0－207.0	77.7 (77.9)	5.2 (5.2)	4.9 (4.8)

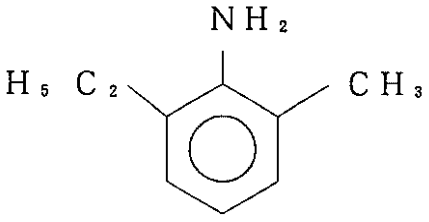
【００８５】
【表８】

実施例Ｎｏ	赤外線吸収スペクトル（ＫＢｒ／ν_{max}；ｃｍ$^{-1}$）
5	２９６６，１５９３，１４９２，１２９１
6	３０３４，１５９２，１４９３，１２９０
7	３０３０，１５９３，１４８８，１２９１

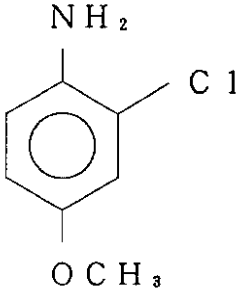
【００８６】
実施例８～１１
実施例１で、２－メトキシ－５－メチルアニリンの代わりに表９に示したアニリン化合物と、４，４′－ジヨードビフェニルの代わりに４，４′－ジヨード－３，３′－ジメチルビフェニルを用いた以外は実施例１と同様にして、表１０に示したジアミノジフェニル化合物を得た。融点と元素分析値は表１１に示した。赤外線吸収スペクトル（ＫＢｒ錠剤法）の特性基振動数は表１２に示した。
尚、表９に示したアニリン化合物Ｄ～Ｇの構造を下記に示す。
【００８７】
アニリン化合物Ｄ
【化６２】



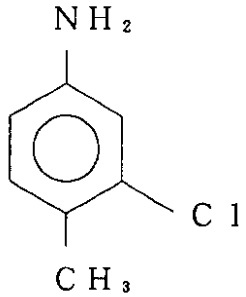
【００８８】
アニリン化合物Ｅ
【化６３】



【００８９】
アニリン化合物Ｆ
【化６４】



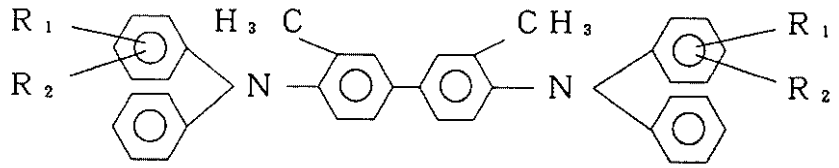
【００９０】
アニリン化合物Ｇ
【化６５】



【００９１】
【表９】

実施例Ｎｏ	アニリン化合物
8	D
9	E
１０	F
１１	G

【００９２】
【表１０】



実施例No	R_1	R_2	収率（%）
8	2－OCH_3	5－CH_3	69．6
9	2－CH_3	6－C_2H_5	67．7
10	2－Cl	4－OCH_3	50．4
11	3－Cl	4－CH_3	41．9

【００９３】
【表１１】

実施例No	融　点（℃）	元　素　分　析		
		C	H	N
8	222.0－224.0	83.3 （83.4）	6.7 （6.7）	4.9 （4.6）
9	163.0－165.5	87.7 （88.0）	7.4 （7.4）	5.0 （4.8）
10	179.5－181.5	74.3 （74.4）	5.3 （5.3）	4.3 （4.3）
11	170.5－173.5	78.1 （78.3）	5.8 （5.6）	4.6 （4.6）

（　）内は計算値

【００９４】
【表１２】

実施例Ｎｏ	赤外線吸収スペクトル（ＫＢｒ／ν_{max}；cm^{-1}）
8	２９２０，１５９２，１５０３，１２３６
9	２９６６，１５９５，１４８３，１２８８
１０	３００６，１５９３，１４９１，１２２４
１１	３０２２，１５９２，１４８７，１２９８

【００９５】
実施例１２
ＩＴＯガラス電極（松崎真空（株）製、透明導電膜標準タイプ）を蒸着装置（真空器械工業（株）製、ＬＣ－６Ｆ型）の基板ホルダー固定し、加熱ボートに化合物Ｎｏ１｛Ｎ，Ｎ′－ビス（２－メトキシ－５－メチルフェニル）－Ｎ，Ｎ′－ジフェニル－４，４′－ジアミノジフェニル｝を入れて1×10^{-6}Ｔｏｒｒまで減圧した。加熱ボートを加熱して、１２ｎｍ／分の蒸着速度で蒸着を行い、膜厚５０ｎｍの化合物Ｎｏ１の正孔輸送層をＩＴＯガラス電極上に形成した。次にトリス（８－キノリノール）アルミニウムを加熱ボートに入れ、加熱して２０ｎｍ／分の蒸着速度で蒸着を行い、膜厚５０ｎｍの発光層を正孔輸送層の上に形成した。更に、その上に４０ｎｍ／分の蒸着速度で膜厚１５０ｎｍのマグネシュム蒸着膜を形成して対電極とし、有機電界発光素子を作成した。
ＩＴＯ電極を正極に、マグネシュム電極を負極として直流１２Ｖｏｌｔを印加したところ明るい緑色に発光し、輝度計（ミノルタカメラ（株）製、ＬＳ－１１０型）を用いて輝度を測定したところ３１００ｃｄ／m^2　を示した。また、５００ｃｄ／m^2　の輝度で連続点灯試験を行ったところ輝度の半減期は２５０Ｈｒであった。
【００９６】
実施例１３
実施例１２で化合物Ｎｏ１を用いる代わりに、化合物Ｎｏ６｛Ｎ，Ｎ′－ビス（４－メトキシ－２－ビフェニリル）－Ｎ，Ｎ′－ジフェニル－４，４′－ジアミノジフェニル｝を用いた以外は実施例１２と同様にして有機電界発光素子を作成した。直流１３Ｖｏｌｔを印加したところ３３００ｃｄ／m^2　の輝度で明るい緑色に発光した。また、５００ｃｄ／m^2　の輝度で連続点灯試験を行ったところ輝度の半減期は２４０Ｈｒであった。
【００９７】
実施例１４
実施例１２で化合物Ｎｏ１を用いる代わりに、化合物Ｎｏ５｛Ｎ，Ｎ′－ビス（２－エチル－６－メチルフェニル）－Ｎ，Ｎ′－ジフェニル－４，４′－ジアミノジフェニル｝を用いた以外は実施例１２と同様にして有機電界発光素子を作成した。直流１２Ｖｏｌｔを印加したところ２８００ｃｄ／m^2　の輝度で明るい緑色に発光した。また、５００ｃｄ／m^2　の輝度で連続点灯試験を行ったところ輝度の半減期は２２０Ｈｒであった。
【００９８】
実施例１５
実施例１２で化合物Ｎｏ１を用いる代わりに、化合物Ｎｏ８｛Ｎ，Ｎ′－ビス（２－メトキシ－５－メチルフェニル）－Ｎ，Ｎ′－ジフェニル－４，４′－ジアミノジフェニル｝を用いた以外は実施例１２と同様にして有機電界発光素子を作成した。直流１３Ｖｏｌｔ

を印加したところ２６００ｃｄ／ｍ^2　の輝度で明るい緑色に発光した。また、５００ｃｄ／ｍ^2　の輝度で連続点灯試験を行ったところ輝度の半減期は２２０Ｈｒであった。

【００９９】

比較例１

実施例１２で化合物Ｎｏ１を用いる代わりに、Ｎ，Ｎ′－ビス（３－トリル）－Ｎ，Ｎ′－ジフェニル－４，４′－ジアミノジフェニル（通称；ＴＰＤ）を用いた以外は実施例１２と同様にして有機電界発光素子を作成した。直流１２Ｖｏｌｔを印加したところ１２５０ｃｄ／ｍ^2　の輝度で明るい緑色に発光した。また、５００ｃｄ／ｍ^2　の輝度で連続点灯試験を行ったところ輝度の半減期は１００Ｈｒであった。

【０１００】

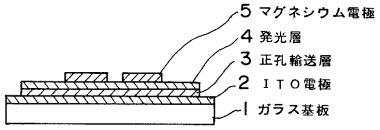
【発明の効果】

本発明の新規なジアミノジフェニル化合物は優れた正孔輸送能を有しており、正孔輸送材料として広範囲に利用することができる。また、熱的に安定で良好な薄膜を形成し、これらの化合物を正孔輸送剤として用いて作成した本発明の有機電界発光素子は優れた発光特性を示し、表示素子として広範囲に利用することができる利点を有する。

【図面の簡単な説明】

【図１】有機電界発光素子の断面図である。

【図１】



フロントページの続き

(56)参考文献 特開平７－３２４０５９（ＪＰ，Ａ）
特開平１－１４２６４４（ＪＰ，Ａ）
特開昭６１－２９５５５８（ＪＰ，Ａ）
特開平７－１８１６９３（ＪＰ，Ａ）

(58)調査した分野(Int.Cl.[7]，ＤＢ名)
C07C211/00
C09K 11/00
H05B 33/00
CA(STN)
REGISTRY(STN)