

發明專利說明書

(本申請書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：97119549

※申請日期：97年05月27日

※IPC分類：C09K 11/06 (2006.01)

一、發明名稱：

H05B 33/14(2006.01)

(中) 有機電致發光元件用化合物及有機電致發光元件
(英)

二、申請人：(共 1 人)

1. 姓名：(中) 新日鐵化學股份有限公司

(英) NIPPON STEEL CHEMICAL CO., LTD.

代表人：(中) 1. 兵頭義雄

(英) 1. HYODO, YOSHIO

地址：(中) 日本國東京都千代田區外神田四丁目一四番一號

(英) 14-1, Sotokanda 4-chome, Chiyoda-ku, Tokyo 101-0021 Japan

國籍：(中英) 日本 JAPAN

三、發明人：(共 5 人)

1. 姓名：(中) 甲斐孝弘

(英) KAI, TAKAHIRO

國籍：(中) 日本

(英) JAPAN

2. 姓名：(中) 古森正樹

(英) KOMORI, MASAKI

國籍：(中) 日本

(英) JAPAN

3. 姓名：(中) 山本敏浩

(英) YAMAMOTO, TOSHIHIRO

國籍：(中) 日本

(英) JAPAN

4. 姓名：(中) 野口勝秀

(英) NOGUCHI, KATSUhide

國籍：(中) 日本

(英) JAPAN

5.姓 名：(中) 宮崎浩
(英) MIYAZAKI, HIROSHI
國 籍：(中) 日本
(英) JAPAN

四、聲明事項：

◎本案申請前已向下列國家(地區)申請專利 主張國際優先權：

【格式請依：受理國家(地區)；申請日；申請案號數 順序註記】

1.日本 ; 2007/05/29 ; 2007-142274 有主張優先權

(英) JAPAN

5.姓 名：(中) 宮崎浩
(英) MIYAZAKI, HIROSHI
國 籍：(中) 日本
(英) JAPAN

四、聲明事項：

◎本案申請前已向下列國家(地區)申請專利 主張國際優先權：

【格式請依：受理國家(地區)；申請日；申請案號數 順序註記】

1.日本 ; 2007/05/29 ; 2007-142274 有主張優先權

九、發明說明

【發明所屬之技術領域】

本發明係關於一種新穎的有機電致發光元件用化合物及有機電致發光元件（以下，稱為有機 EL 元件），詳而言之，係關於一種藉由併用具有磷光發光摻雜物與特定構造之主體化合物，俾顯示高亮度之有機 EL 元件者。

【先前技術】

一般，有機 EL 元件係其最簡單的構造為由發光層及挾住該層之一對的對向電極所構成。亦即，在有機 EL 元件中，若對兩電極間施加電場，從陰極注入電子，從陽極注入電洞，此等在發光層中再結合能量準位從傳導帶返回價電子帶時利用釋出光作為能量之現象。

近年，遂進行使用有機薄膜之 EL 元件的開發。尤其為提高發光效率，從電極以載體注入之效率提昇作為目的而進行電極種類的最適化，藉由使由芳香族二胺所構成之電洞輸送層與 8-羥基喹啉鋁錯合物（以下，稱為 Alq3）所構成之發光層設於電極間而形成薄膜之元件的開發，與使用習知之蔥等的單結晶之元件相較，可大幅地改善發光效率，以實用於具有自發光・高速應答性之特徵的高性能平面面板為目標。

又，試圖提高元件之發光效率，亦研究使用磷光而非螢光。以設有由上述芳香族二胺所構成之電洞輸送層與 Alq3 所構成之發光層的元件為首之許多元件為利用螢光發

光者，但若利用使用磷光發光亦即來自三重態激發狀態之發光，相較於使用習知之螢光（一重態）的元件，而期待3倍左右的效率提昇。爲了此目的，遂研究以香豆素衍生物或二苯甲酮衍生物作爲發光層，但只能得到極低之亮度。其後，就利用三重態重態之試驗而言，可研究使用銻錯合物，但此亦未達高效率之發光。磷光發光摻雜物已進行許多如專利文獻1所舉出之提案。

[專利文獻 1]特表 2003-515897 號公報

[專利文獻 2]特開 2001-313178 號公報

[專利文獻 3]特開 2002-305083 號公報

[專利文獻 4]特開 2002-352957 號公報

[專利文獻 5]特開平 11-162650 號公報

[專利文獻 6]特開平 11-176578 號公報

[專利文獻 7]特開 2003-142264 號公報

於有機 EL 元件開發中使用於發光層之主體材料已被提出者係於專利文獻 2 所介紹之咪唑化合物的 CBP。若使用 CBP 作爲綠色磷光發光材料的三（2-苯基吡啶）銻錯合物（以下稱爲 Ir(ppy)₃）之主體材，CBP 係易使電洞流動，使電子很難流動之特性上，電荷注入均衡會崩潰，過剩之電洞係於電子輸送側流出，結果，來自 Ir(ppy)₃ 之發光效率降低。

上述解決手段，例如專利文獻 3 般，有於發光層與電子輸送層之間設有電洞阻止層之手段。藉此電洞阻止層使電洞於發光層中有效率地蓄積，俾提昇與在發光層中之電

子的再結合機率，可達成發光之高效率化。現狀一般所使用之電洞阻止材料可舉例如 2,9-二甲基-4,7-二苯基-1,10-菲咯啉 (Phenanthroline) (以下，稱為 BCP) 及對苯基酚配位基-雙 (2-甲基-8-喹啉配位基-N1,08) 鋁 (以下稱為 BALq)。藉此，可防止在電子輸送層產生電子與電洞之再結合，但 BCP 係即使在室溫，易結晶化，欠缺作為材料之信賴性，故元件壽命極短。又，據報告 BALq 係 Tg 約為 100°C 之比較良好的元件壽命結果，但電洞阻止能力不充分，來自 Ir(ppy)₃ 之發光效率會降低。

另外，於專利文獻 4 所介紹之 3-苯基-4-(1'-萘基)-5-苯基-1,2,4-三唑 (以下稱為 TAZ) 亦被提出作為磷光有機 EL 元件的主體材料，但易使電子流動，並很難使電洞流動之特性上，發光效率成為電洞輸送層側。因此，亦認為藉由電洞輸送層之材料係受到 Ir(ppy)₃ 之相性問題，來自 Ir(ppy)₃ 之發光效率會降低。例如，就高性能、高信賴性、高壽命而言，最宜使用電洞輸送層之 4,4'-雙 (N-(1-苯基)-N-苯基胺基) 聯苯基 (以下稱為 NPB) 係與 Ir(ppy)₃ 之相性差，從 Ir(ppy)₃ 於 NPB 引起能量遷移，有發光效率降低之問題。

又，在專利文獻 7 中係已提出使用具有適度之電子輸送能力之上述 BALq 作為磷光有機 EL 元件之主體材料。若依本文獻，不使層構成複雜化，可實現長壽命之磷光有機 EL 元件，但實用上難謂充分。

又，在專利文獻 5 及 6 中已揭示吡啶喹啉化合物，但

關於本發明之化合物係未被揭示。又，在專利文獻 5 及 6 中所揭示之吡啶唑化合物，係已推薦作為電洞輸送材料之使用，亦言及化合物之安定性，但未暗示作為磷光主體材料之使用。

【發明內容】

（發明之揭示）

（發明欲解決之課題）

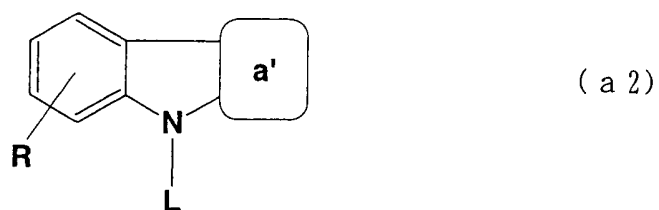
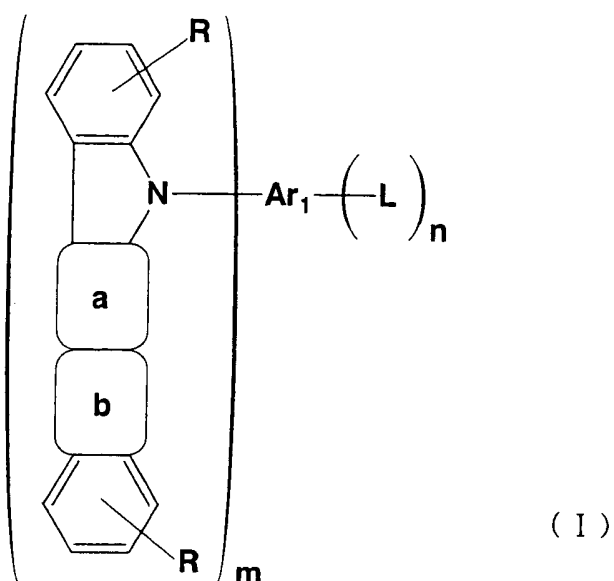
使使有機 EL 元件應用於平板顯示器等之顯示元件係必須改善元件之發光效率，同時並充分確保驅動時之安定性。本發明係有鑑於上述現狀，目的在於提供一種具有高效率且高的驅動安定性之實用上可用的有機 EL 元件及適於其之化合物。

（為解決課題之手段）

本發明人等係專心研究之結果，發現將具特定之吡啶唑骨架或類似於其之骨架的化合物使用於有機 EL 元件，俾可解決上述課題，終完成本發明。

本發明之有機電致發光元件用化合物係以下述通式（I）所示。

【化 1】



此處，環 a 係表示以與 2 個鄰接環進行縮合之式 (a 1) 或 (a 2) 所示之芳香環或雜環；環 a' 係表示以與 3 個鄰接環進行縮合之式 (a 1) 所示之芳香環或雜環，X 表示 CH 或 N；環 b 係表示以與 2 個鄰接環進行縮合之式 (b 1) 所示之雜環。

Ar_1 表示由芳香族雜環基所構成之 $m+n$ 價的基，

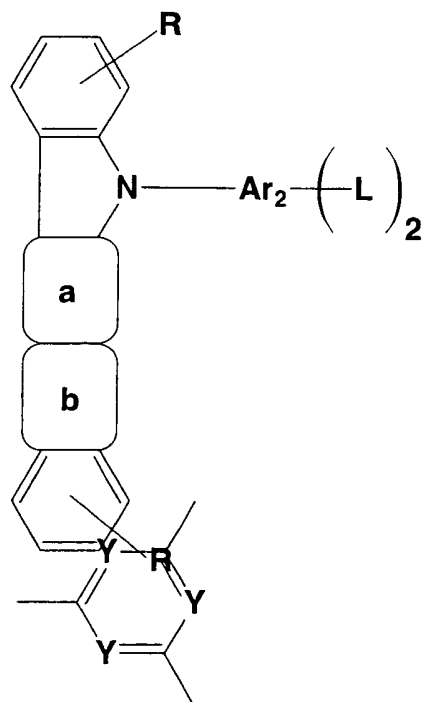
L 係獨立地表示取代或未取代之芳香族烴基或芳香族雜環基，至少一個係具有縮環構造，

R 係獨立地表示氫、烷基、芳烷基、烯基、炔基、氰基、二烷基胺基、二芳基胺基、二芳烷基胺基、胺基、硝基、醯基、烷氧基羰基、羧基、烷氧基、烷基磺醯基、鹵烷基、羥基、醯胺基、或取代或未取代之芳香族烴基或芳香族雜環基。

m 表示 1，n 表示 1 或 2。

以通式 (I) 所示之有機電致發光元件用化合物係以下述通式 (II) ~ (IV) 所示之化合物。

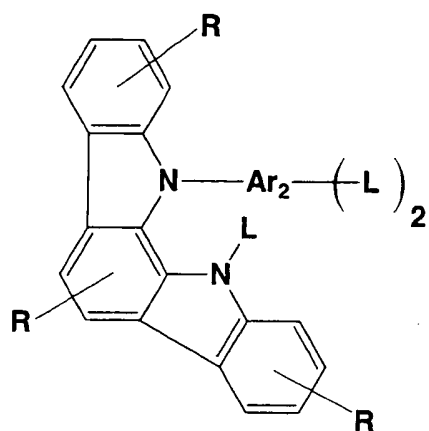
【化 2】



此處，環 a、環 b、L 及 R 係具有與通式 (I) 之環 a、環 b、L 及 R 相同之意義。

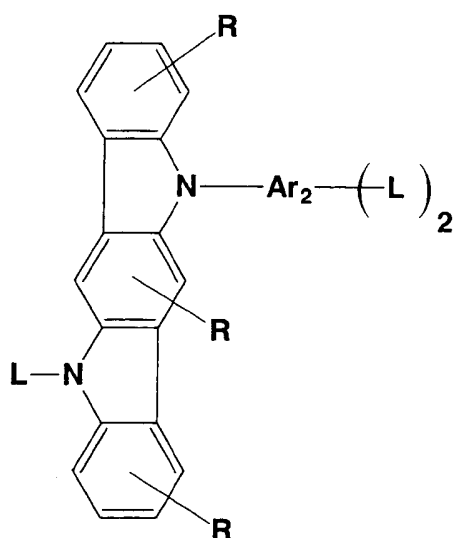
Ar₂ 係以式 (c1) 所示之 3 價的基，Y 係獨立地表示 CH 或 N，至少一個為 N。

【化 3】



(III)

【化 4】



(IV)

在通式 (III) 及 (IV) 中，

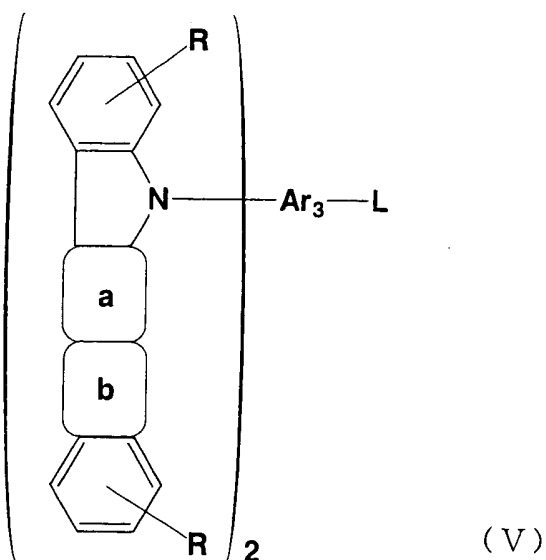
L、R 及 Ar_2 係具有與通式 (II) 之 L、R 及 Ar_2 相同的意義。

本發明係關於一種有機電致發光元件，其係於基板上所層合之陽極與陰極之間，具有發光層，其特徵在於：該發光層為含有磷光發光性摻雜物與上述之有機電致發光元件用化合物作為主體材料。

上述有機電致發光元件，宜於陽極與發光層之間具有電洞注入輸送層，及於陰極與發光層之間具有電子注入輸送層而成。又亦宜於發光層與電子注入輸送層之間具有電洞阻止層而成。

在通式 (I) 中， $m=2$ 之化合物係具有以下述通式 (V) 所示之化合物，此化合物亦可用來作為有機電致發光元件用化合物。又，於以通式 (V) 所示之化合物中係具有通式 (VI) ~ (VII) 所示之化合物。

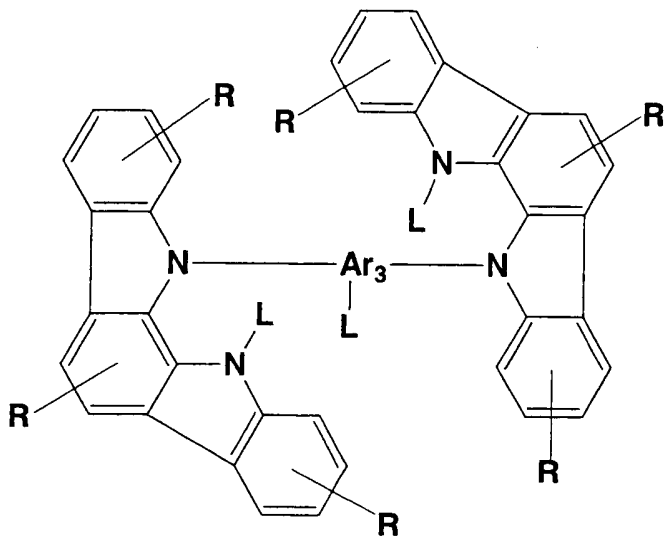
【化 5】



此處，環 a、環 b、L 及 R 係具有與通式 (I) 之環 a、環 b、L 及 R 相同之意義。

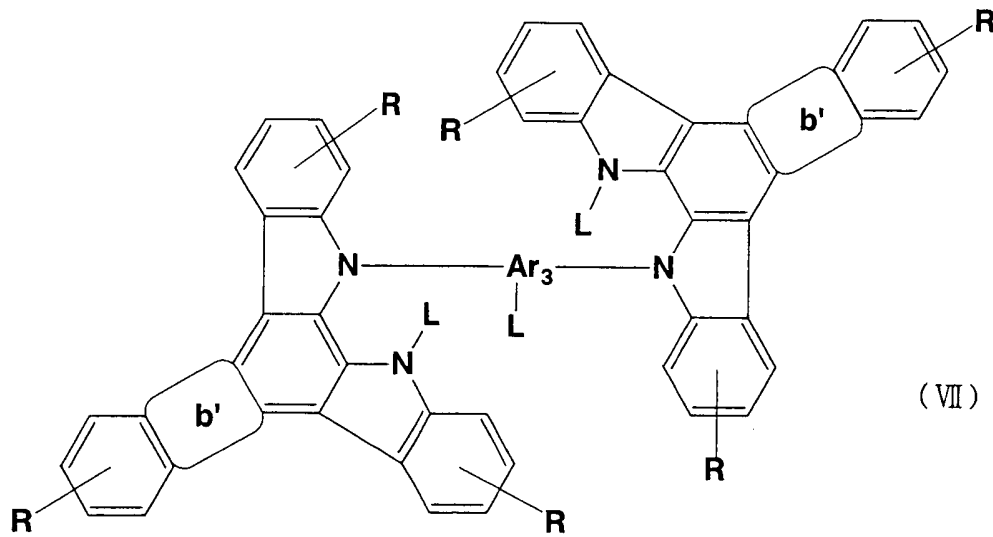
Ar_3 係表示由芳香族雜環基所構成之 3 價的基。

【化 6】

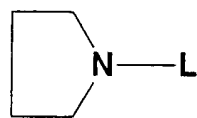


(VI)

【化 7】



(VII)



(b 1)

在通式 (VI) 及 (VII) 中，

L、R 及 Ar₃ 係具有與通式 (V) 之 L、R 及 Ar₃ 相同的意義。環 b' 係獨立地表示與 2 個鄰接環縮合之以式 (b1) 所示的雜環。

在通式 (V) ~ (VII) 中，Ar₃ 為以上述式 (c1) 所示之 3 價的基之化合物係賦予優異之有機電致發光元件用化合物。

以下，詳細說明本發明之實施形態。

本發明之有機電致發光元件用化合物係以前述通式 (I) ~ (IV) 所示。通式 (I) 之較佳例具有通式 (II)，通式 (II) 較佳之例具有通式 (III) 及 (IV)。

通式 (II) 係於通式 (I) 中，相當於 m 為 1，n 為 2 之情形。

在通式 (I)、(II) 中，環 a 係表示以與 2 個鄰接環進行縮合之式 (a1) 或 (a2) 所示之芳香環或雜環；環 a' 係表示以與 3 個鄰接環進行縮合之式 (a1) 所示之芳香環或雜環，X 表示 CH 或 N；環 b 係表示以與 2 個鄰接環進行縮合之式 (b1) 所示之雜環。此等環之較佳例係可從通式 (III) ~ (IV) 被理解。

Ar 表示由芳香族雜環基所構成之 m+n 價的基。Ar 係可為 2~4 價之基，但宜為 3 價之基。更佳係以式 (c1) 所示之 3 價的基。m 為 1，n 為 1 或 2，但宜為 2。Ar₂ 較佳係以式 (c1) 所示之 3 價的基。

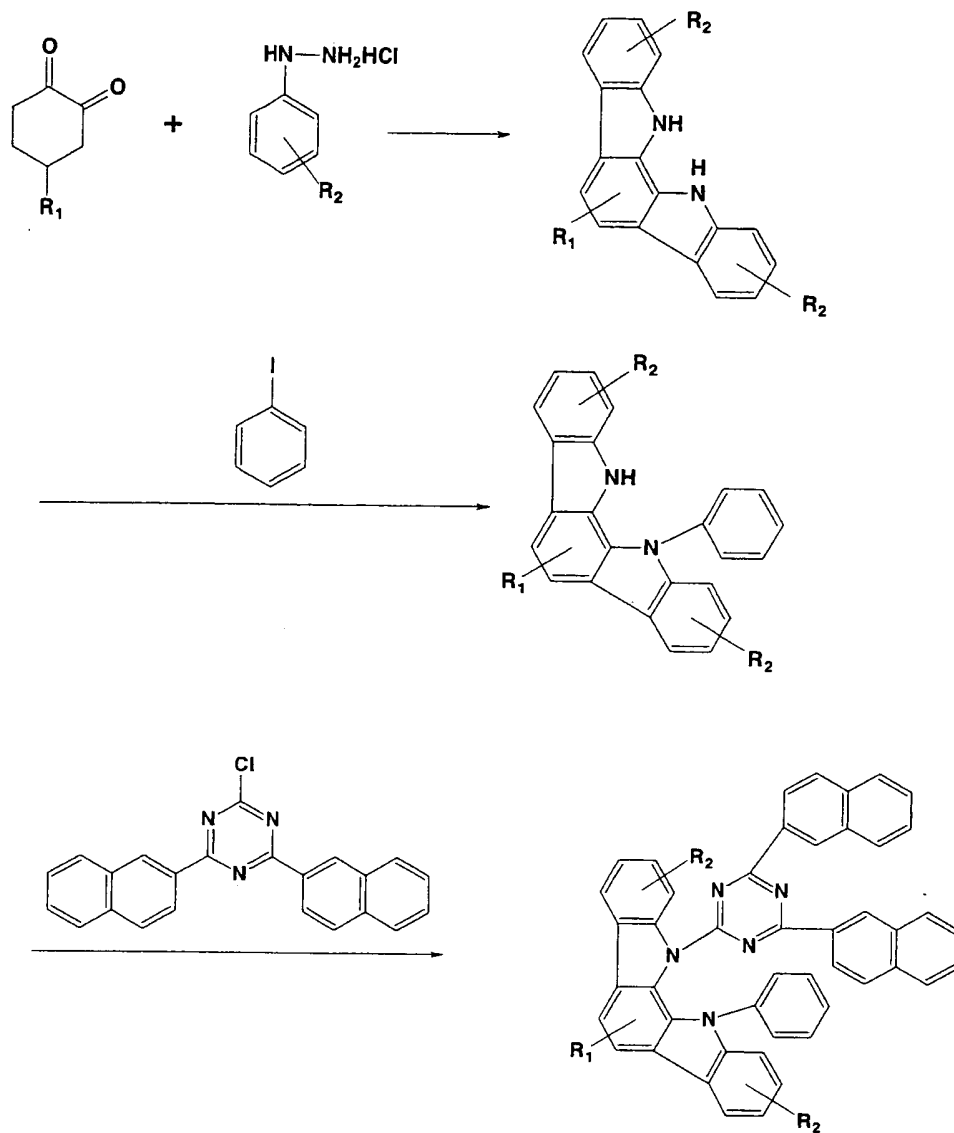
L 係獨立地表示取代或未取代之芳香族烴基或芳香族

雜環基，至少一個係具有縮環構造。縮環構造係具有芳香族環為 2~3 縮合之芳香族烴基或芳香族雜環基。芳香族烴基或芳香族雜環基具有取代基時，較佳之取代基係可舉例如以下述 R 所說明之基。

R 係獨立地表示氫、烷基、芳烷基、烯基、炔基、氰基、二烷基胺基、二芳基胺基、二芳烷基胺基、胺基、硝基、醯基、烷氧基羰基、羧基、烷氧基、烷基磺醯基、鹵烷基、羥基、醯胺基、或取代或未取代之芳香族烴基或芳香族雜環基。較佳的 R 為氫。又，R 為烷基、烷氧基、烷基磺醯基、鹵烷基、烷氧基羰基時，碳數宜為 1~6，為烯基、炔基之情形，碳數宜為 2~6。為醯基、二烷基胺基、二芳基胺基、二芳烷基胺基時，碳數宜為 2~16。

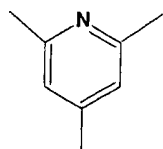
以通式 (I) ~ (IV) 所示之化合物係可容易地以公知的方法製造。例如，以通式 (I) ~ (IV) 所示之化合物係以 Synlett、2005，No.1，p42-48 所示之合成例作為參考而藉以下之反應式來製造。

【化 8】

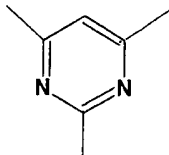


通式 (I) ~ (IV) 中之 Ar_1 、 Ar_2 係芳香族雜環基，但宜為 3 價之基。較佳之基表示於以下之 $\text{Ar-1} \sim \text{Ar-11}$ 。 $\text{Ar-1} \sim \text{Ar-11}$ 中，2 個鍵結係與 L 鍵結，其他之鍵結係與環構成氮原子鍵結。

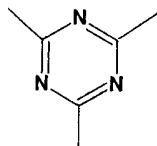
【化9】



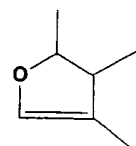
Ar-1



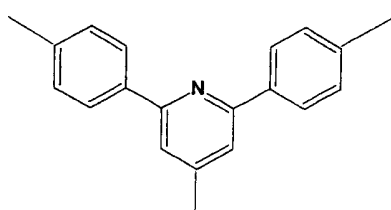
Ar-2



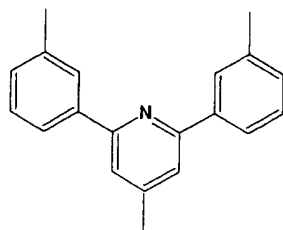
Ar-3



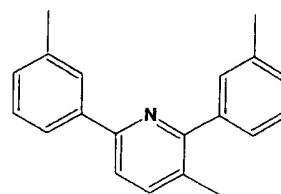
Ar-4



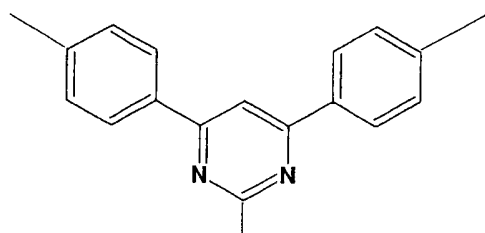
Ar-5



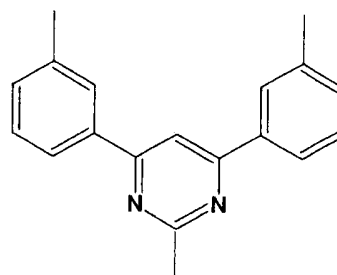
Ar-6



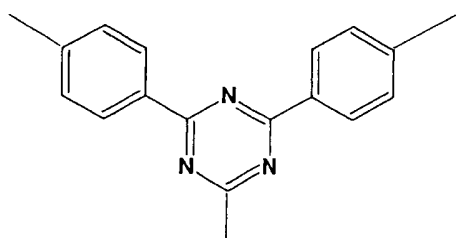
Ar-7



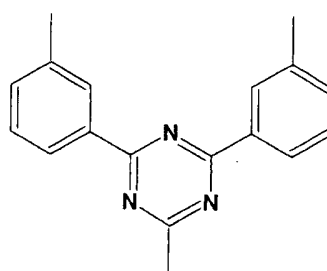
Ar-8



Ar-9



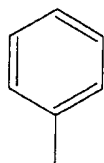
Ar-10



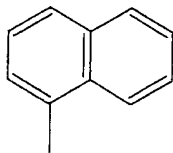
Ar-11

又，取代基 L 係表示取代或未取代之芳香族烴基或芳香族雜環基，宜為縮環構造。較佳之例可舉例如下述所示之 L-1~L-15。更佳係可舉例如 L-2~L-14。

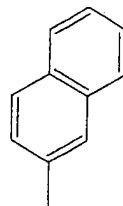
【化 10】



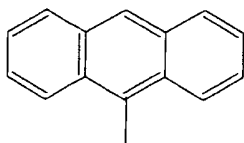
L-1



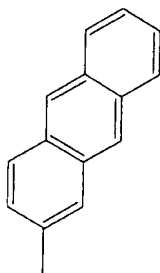
L-2



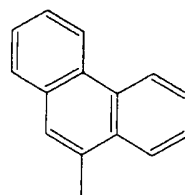
L-3



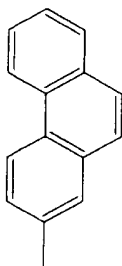
L-4



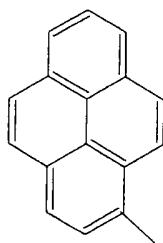
L-5



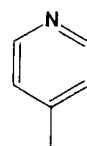
L-6



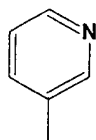
L-7



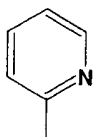
L-8



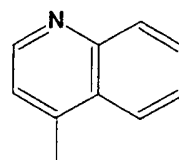
L-9



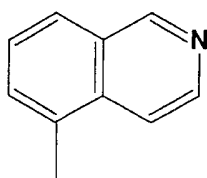
L-10



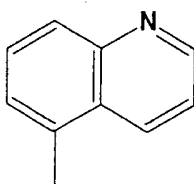
L-11



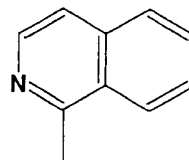
L-12



L-13



L-14

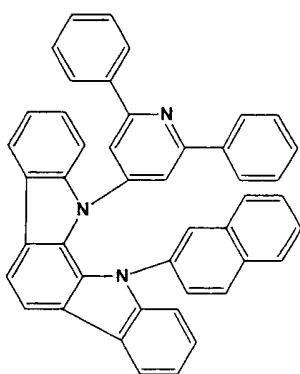


L-15

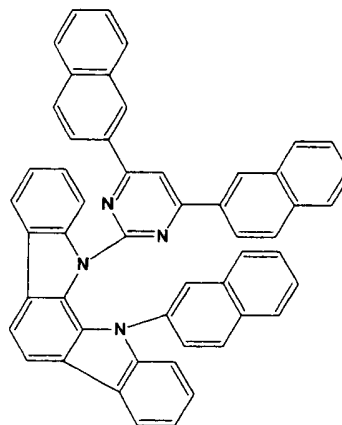
以前述通式 (I) ~ (IV) 所示之化合物的較佳具體例係表示於以下，但不限定於此等。又，化合物 1~10 係在通式 (I) 中， $m=1$ 之化合物。化合物 11~29 係在通式 (I

) 中， $m=2$ 之化合物，可理解為參考化合物。

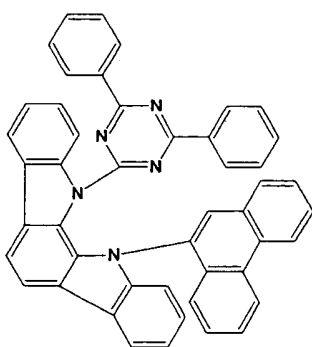
【化 1 1】



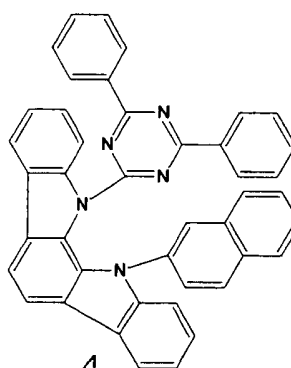
1



2

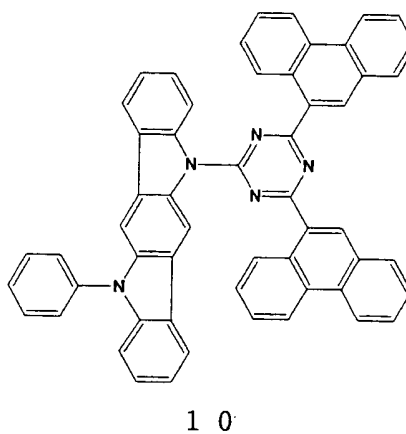
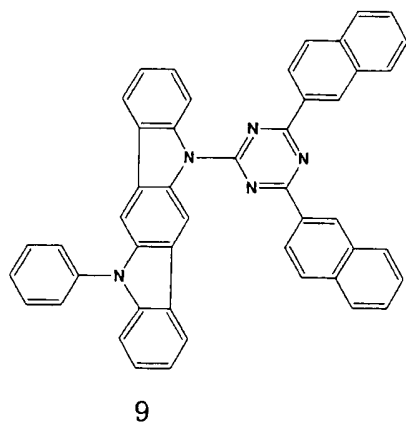
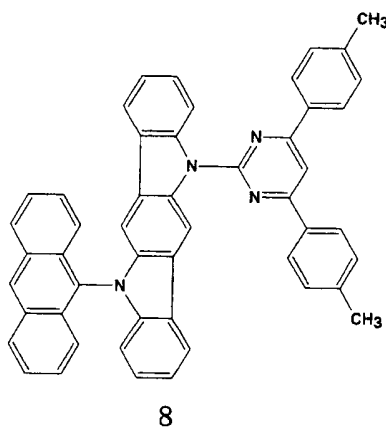
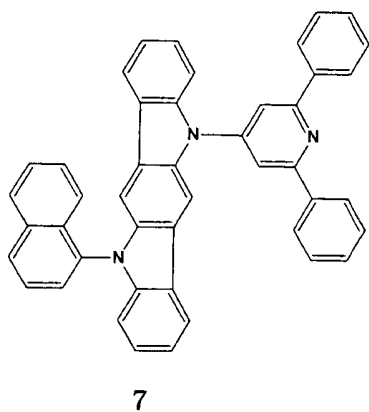
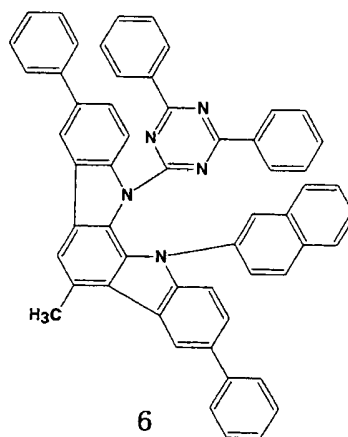
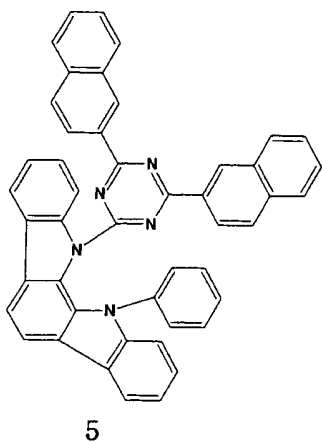


3

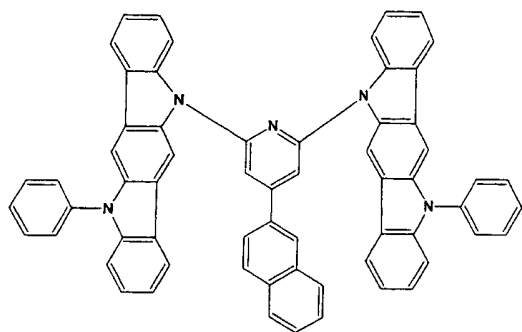


4

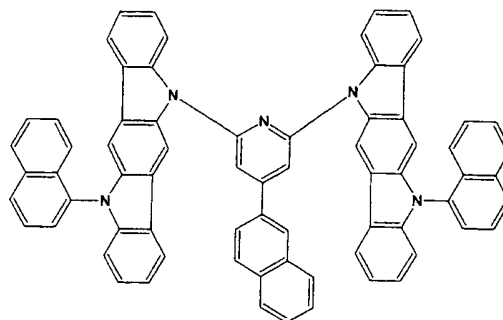
【化 1 2】



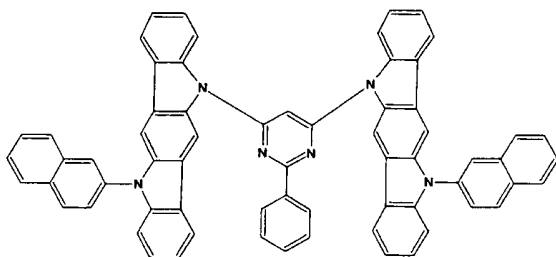
【化 1 3】



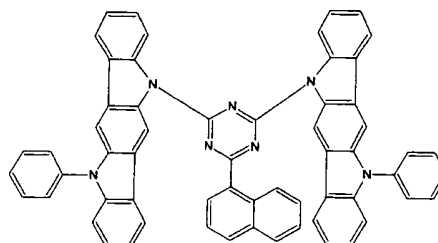
1 1



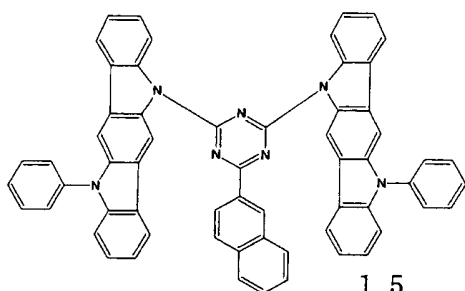
1 2



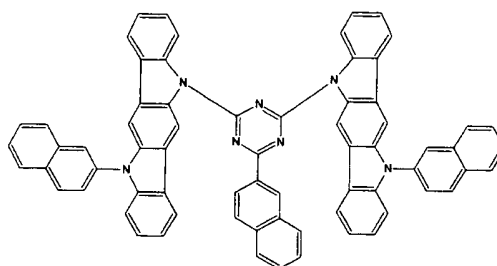
1 3



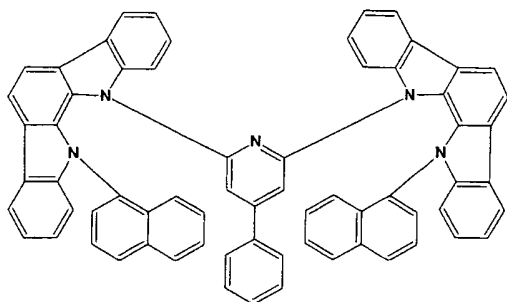
1 4



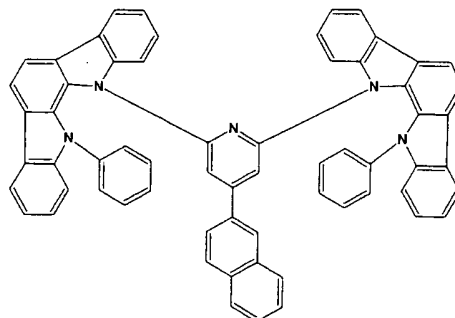
1 5



1 6

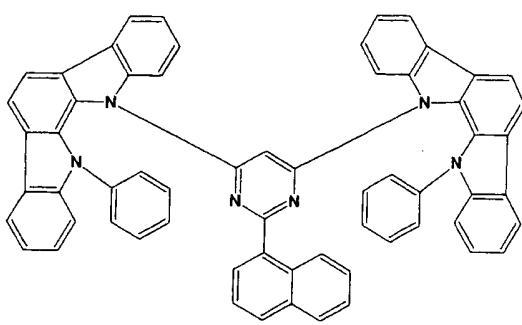


1 7

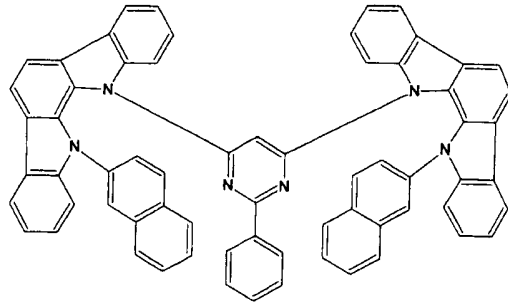


1 8

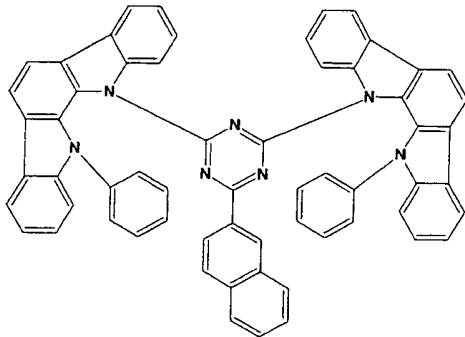
【化14】



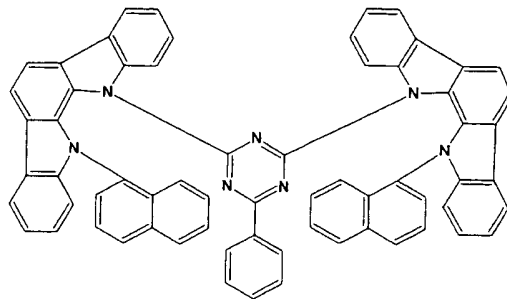
19



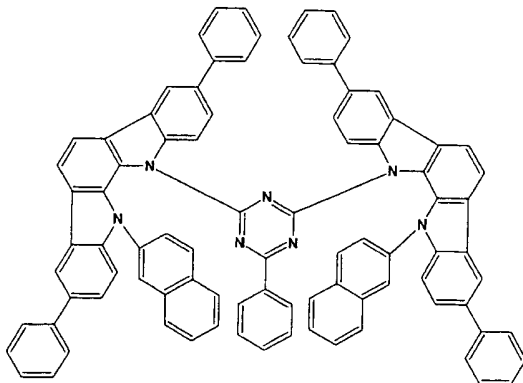
20



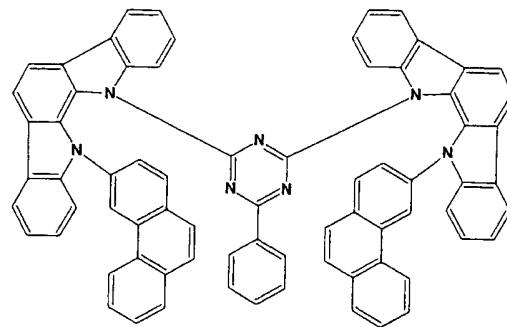
21



22

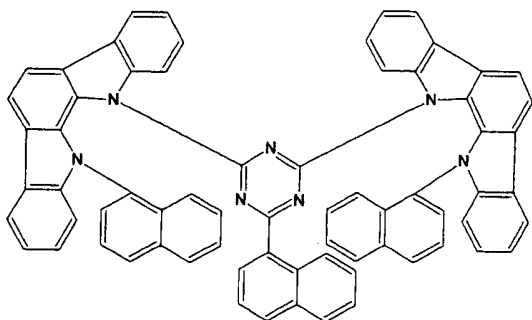


23

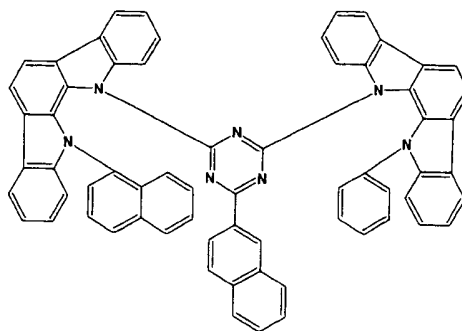


24

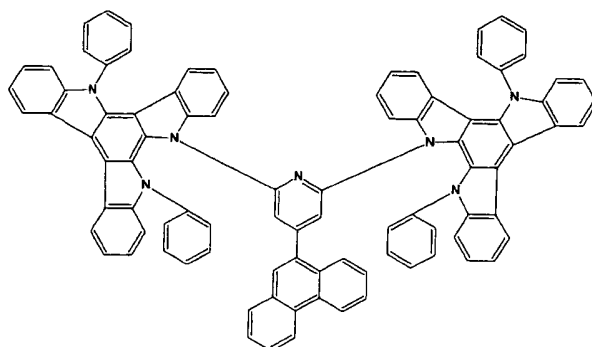
【化 1 5】



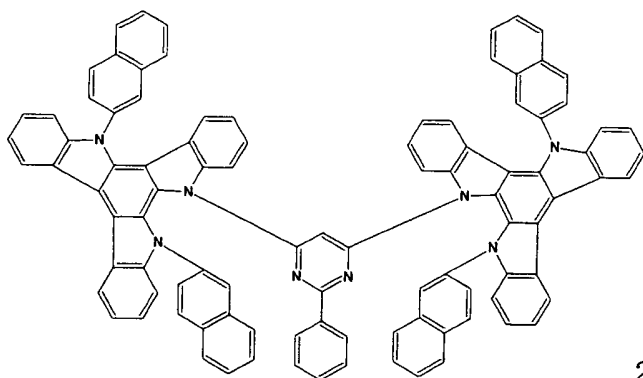
2 5



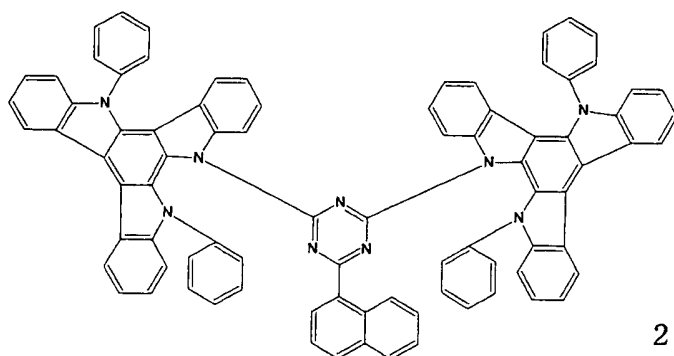
2 6



2 7



2 8



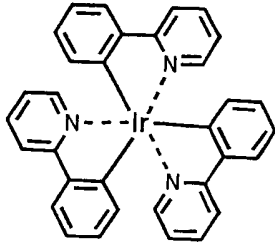
2 9

本發明之有機 EL 元件係所層合於基板上之陽極與陰極之間至少具有 1 個的發光層，於發光層中含有磷光發光性摻雜物與上述通式 (1) ~ (4) 所示之有機 EL 元件用化合物作為主體材料。繼而，可於陽極與發光層之間具有電洞注入輸送層及於陰極與發光層之間具有電子注入輸送層。又，可於發光層與電子注入輸送層之間具有電洞阻止層。

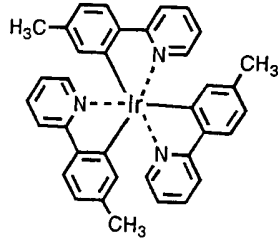
在發光層中之磷光發光摻雜物材料係可含有有機金屬錯合物，而有機金屬錯合物係含有至少一個選自鈦、銻、鈹、銀、銠 (Rhenium)、鐵、銩、白金及金之金屬。如此之有機金屬錯合物係於前述專利文獻等中為公知，可選擇此等而使用。

較佳之磷光發光摻雜物係可舉例如以 Ir 等之貴金屬元素作為中心金屬之 Ir(ppy)_3 等之錯合物類、 $\text{Ir(bt)}_2 \cdot \text{acac}_3$ 等的錯合物類、 PtOEt_3 等之錯合物類。將此等之錯合物類之具體例表示於以下，但不限定於下述之化合物。

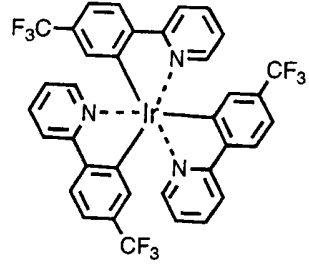
【化 1 6】



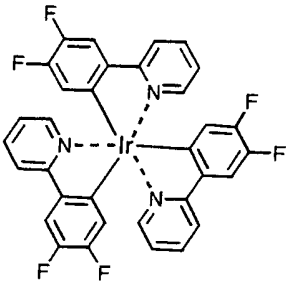
3 0



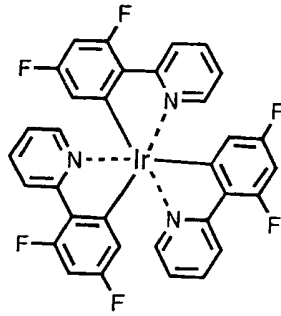
3 1



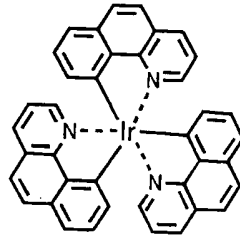
3 2



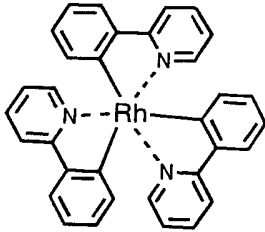
3 3



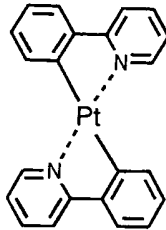
3 4



3 5

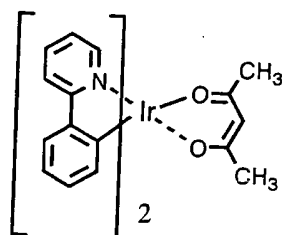


3 6

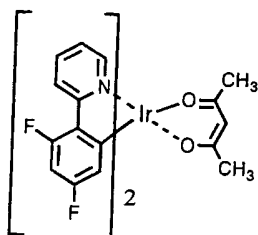


3 7

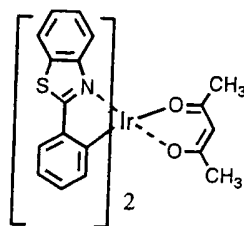
【化 17】



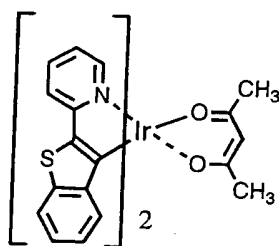
38



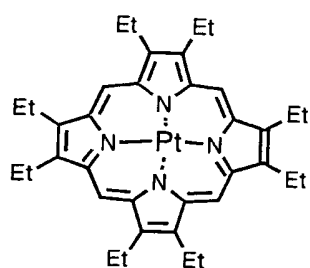
39



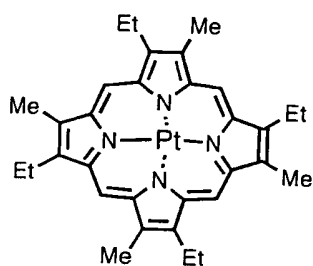
40



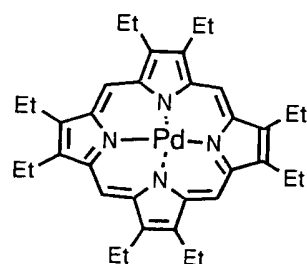
41



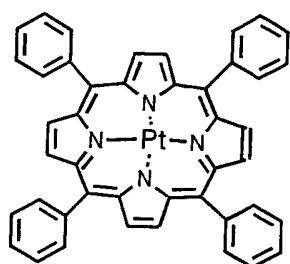
42



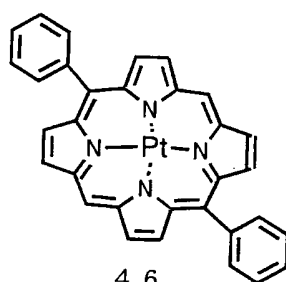
43



44

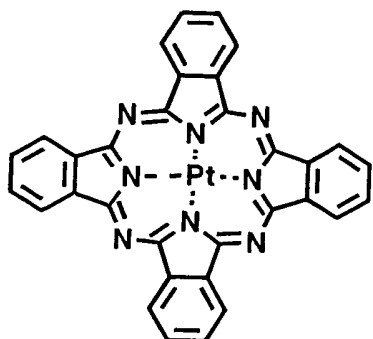


45

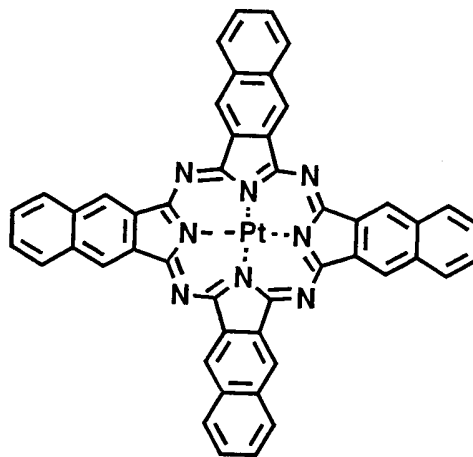


46

【化 1 8】



4 7



4 8

於發光層中含有前述磷光發光摻雜物之量宜在於 5~10 重量 % 之範圍。

(用以實施發明之最佳形態)

其次，一邊參照圖面一邊說明有關本發明之有機 EL 元件的構造，但本發明之有機 EL 元件的構造不限定於任何圖示者。

圖 1 係模式性表示本發明所使用之一般有機 EL 元件的構造例之截面圖，1 為基板，2 為陽極，3 為電洞注入層，4 為電洞輸送層，5 為發光層，6 為電子輸送層，7 為陰極。本發明之有機 EL 元件係具有基板、陽極、發光層及陰極作為必須之層，但必須之層以外的層以外亦可具有電洞注入輸送層、電子注入輸送層，進一步可於發光層與電子注入輸送層之間具有電洞阻止層。又，電洞注入輸送層

係意指電洞注入層與電洞輸送層之任一者或兩者。電子注入輸送層係意指電子注入層與電子輸送層之任一者或兩者。

又，與圖 1 相反之構造，亦即，亦可於基板 1 上依序層合陰極 7、電子輸送層 6、發光層 5、電洞輸送層 4、陽極 2，如已述般，亦可至少一者於透明性高之 2 片基板之間設有本發明之有機 EL 元件。此時亦可依需要追加層，亦可省略。

本發明係有機 EL 元件為單一之元件、由配置成陣列狀之構造所構成之元件、陽極與陰極呈 X-Y 矩陣狀配置之構造的任一者均可適用。若依本發明之有機 EL 元件，可得到一種藉由含有於發光層具有特定之骨架的化合物、與磷光發光摻雜物，俾較使用來自習知之一重態狀態的發光之元件，發光效率更高且即使驅動安定性亦大幅地被改善之元件，於全彩或多彩之面板的應用中可發揮優異之性能。

【實施方式】

[實施例]

以下，藉實施例更詳細地說明本發明，但本發明當然不限定於此等之實施例，只要不超出其要旨，可以各種形態實施。

實施例 1

(化合物 21 之合成)

於脫氮氣取代之 200ml 三口燒瓶中加入 1,2-環己烷二酮 33.3g (0.297mol) 、 苯基聯胺鹽酸鹽 86.0g (0.595mol) ， 再加入乙醇 1000ml 中而攪拌。其後，於同燒瓶中花 5 分鐘滴下濃硫酸 3.0g (0.03mol) 。其後，加熱至 65℃ ，攪拌 4 小時。冷卻至室溫後，過濾所產生之紫茶色結晶後，使所濾取之結晶以乙醇 500ml 進行二次再泥漿洗淨。再進行減壓乾燥而得到紫茶色粉末 80.0g (0.286mol ，收率 96.3%) 。

其次，於上述紫茶色粉末 72.0g (0.258mol) 中加入醋酸 720g 、 三氟醋酸 72.0g 而攪拌。其後，加熱至 100℃ ，攪拌 15 小時。冷卻至室溫後，濾取所產生之黃色結晶後，使所濾取之結晶以醋酸 200ml 進行清洗洗淨後，以己烷 200ml 進行清洗洗淨。再進行減壓乾燥而得到白色粉末 A 30.0g (0.117mol ，收率 45.3%) 。

然後，於脫氮氣取代之 1000ml 三口燒瓶中加入上述所得到之白色粉末 A 26.0g (0.101mol) 、 碘化苯 122.7g (0.601mol) 、 碘化銅 54.7g (0.287mol) 、 碳酸鉀 66.7g (0.482mol) 、 再加入喹啉 800ml 而攪拌。其後加熱到 190℃ ，攪拌 72 小時。暫時冷卻至室溫後，加入水 500ml 、 二氯甲烷 500ml ，進行攪拌後，濾取所產生之黃色結晶。將濾液移至 2000ml 分液漏斗，分隔成有機層與水層。使有機層以 500ml 之水洗淨 3 次，其後，使所得到之有機層以硫酸鎂進行脫水，一旦，過濾分別硫酸鎂後，減壓餾

去溶劑。其後，以管柱色層分析精製而得到白色粉末 B 13.7g (0.04mol、收率 40.8%)。

再者，於脫氮氣取代之 500ml 三口燒瓶中加入 55% 氫化鈉 2.16g (0.0495mol)、脫水 N,N'-二甲基甲醯胺 70ml，氮氣流中進行攪拌。使上述得到之白色粉末 B 13.7g (0.04mol) 加入脫水 N,N'-二甲基甲醯胺 70ml，溶解，其後，花 15 分鐘滴下於同燒瓶內，滴下終了後，繼續攪拌 1 小時。其後，於三聚氰氨 3.76g (0.02mol) 中加入脫水 N,N'-二甲基甲醯胺 70ml，溶解，其後，花 15 分鐘滴下於同燒瓶內，滴下終了後，繼續攪拌 2 小時後，加入水 350g，濾取所析出之結晶。使所濾取之結晶以水 300g 進行二次再泥漿洗淨，其後，以甲醇 300g 進行再泥漿洗淨。減壓乾燥此之後，以管柱色層分析精製而得到白色粉末 C 10.9g (0.014mol、收率 70.0%)。

然後，於 300ml 三口燒瓶中加入上述所得到之白色粉末 C 10.0g (0.013mol)、2-萘基硼酸 2.8g (0.016mol)、四(三苯基磷)鈮(0) 1.5g (0.0013mol) 乙醇 50ml、甲苯 100ml 而攪拌。其後，使碳酸鈉 6.5g 溶解於水 50ml 中，加入於同燒瓶內，加熱至 85℃，攪拌 5 小時。暫時冷卻至室溫後，加入水 100ml、甲苯 100ml，進行攪拌後，過濾分開不溶物。將濾液移至 1000ml 分液漏斗，分隔成有機層與水層。使有機層以 100ml 之水洗淨 3 次，其後，使所得到之有機層以硫酸鎂進行脫水，一旦過濾分開硫酸鎂後，減壓餾去溶劑。其後，以管柱色層分析精製而得到黃

色固體之例示化合物 21 34.7g (0.04mol、收率 40.8%)

。

例示化合物 21 之 EI-MS (M+1) 為 868，融點為 398 °C。

實施例 2

於電洞注入層使用酮酞菁 (CuPC)，於電洞輸送層使用 α -NPD 及電子輸送層使用 Alq3。在形成有由膜厚 150nm 之 ITO 所構成之陽極的玻璃基板上，以真空蒸鍍法、真空度 5.0×10^{-4} Pa 層合各薄膜。首先，於 ITO 上使 CuPC 以 3.0 埃/秒形成 25nm 之膜厚作為電洞注入層。然後，於電洞注入層上，使 α -NPD 以蒸鍍速度 3.0 埃/秒形成 55nm 之膜厚作為電洞輸送層。

然後，於電洞輸送層上從不同的蒸鍍源共蒸鍍 (例示化合物 21) 與 (Btp) 2Iracac (例示化合物 41) 作為發光層，形成為 47.5nm 之厚度。此時，(Btp) 2Iracac 之濃度為 8.0%。

繼而，使 Alq3 以蒸鍍速度 3.0 埃/秒形成為 30nm 之膜厚作為電子輸送層。進一步於電子輸送層上使氟化鋰 (LiF) 以蒸鍍速度 0.1 埃/秒形成 1nm 之膜厚作為電子注入層。最後，於電子注入層上，使鋁 (Al) 以蒸鍍速度 10 埃/秒形成為 200nm 之膜厚作為電極，作成有機 EL 元件。

實施例 3

(化合物 4 之合成)

於氮氣取代之 200ml 三口燒瓶中加入於實施例 1 所得到之白色粉末 A 10.0g (0.036mol) 、碳酸鉀 12.9g (0.093mol) 、銅粉 5.7g (0.090mol) 、四乙二醇二甲醚 (tetraglyme) 50.0g ; 在氮氣流下進行攪拌。於同燒瓶內使 2-溴萘 9.87g (0.047mol) 溶解於四乙二醇二甲醚 10.0g 之溶液花 10 分鐘滴下。滴下終了後，以 195℃ 繼續攪拌 1 小時。然後，冷卻至室溫，濾取不溶物。於濾液中加入甲醇 30g 及水 150g，攪拌 2 小時，然後，濾取析出物，以水 100g 進行二次再泥漿洗淨，再以甲醇 100g 進行再泥漿洗淨。減壓乾燥後，以管柱色層分析精製而得到白色粉末 D 13.0g (0.034mol、收率 94.7%) 。

然後於氮氣取代之 200ml 三口燒瓶中加入三聚氰氨 12.5g (0.068mol) 、脫水 THF 50g，氮氣流下，藉冰浴冷卻，攪拌。其後，花 2 小時滴下 32% 溴化苯基鎂 THF 溶液 105.6g (0.186mol) 。滴下中之溫度保持於 15℃ 以下。滴下終了後，繼續攪拌 1.5 小時後，於同燒瓶內加入甲苯 80g。其後，以冰浴冷卻，於同燒瓶內花 15 分鐘滴下 12% HCl aq 76.5g (0.254mol) 。滴下中之溫度保持於 30℃ 以下。使燒瓶內容物移至 500ml 分液漏斗，分隔成有機層與水層。以 100ml 水洗淨有機層 3 次，繼而，以硫酸鎂使所得到之有機層脫水，一旦，過濾分開硫酸鎂後，減壓餾去溶劑，得到 21.1g 之粗製品。其後，加入甲醇 110g，攪拌 1 小時後，濾取析出物，藉減壓乾燥，得到白色粉末 E

14.5 g (6.5 mmol) 、收率 50.2%) 。

然後於氮氣取代之 200ml 三口燒瓶中加入 60.8% 氫氧化鈉 1.31g (0.033 mol) 、脫水 N,N'-二甲基甲醯胺 10ml ，在氮氣流下攪拌。再花 20 分鐘滴下上述所得到之白色粉末 D 10.0g (0.026 mol) 的脫水 N,N'-二甲基甲醯胺 (30ml) 溶液。滴下終了後，繼續攪拌 1 小時。繼而，花 20 分鐘滴下上述所得到之白色粉末 E 6.75g (0.025 mol) 的脫水 N,N'-二甲基甲醯胺 (10ml) 。滴下終了後，繼續攪拌 17 小時。其後，依序加入水 3.2g 、甲醇 40.0g ，濾取所析出之結晶。再以甲醇 50g 再泥漿洗淨後，減壓乾燥，得到淡黃色結晶之例示化合物 4 12.8g (0.021 mol 、收率 80.0%) 。

例示化合物 4 之 APCI-MS 為 m/Z 614 $[M+H]^+$ ，融點 317°C 。

實施例 4

除使用例示化合物 4 取代例示化合物 21 作為發光層之主體材料以外，其餘係與實施例 2 同樣做法而製成有機 EL 元件。

實施例 5

(化合物 5 之合成例)

於氮氣取代之 500ml 三口燒瓶中加入鎂 3.65g (0.150 mol) 、脫水 THF 10.0g 、碘 0.01g ，在氮氣流下攪拌

。昇溫至 60℃ 之後，花 1 小滴下 2-溴萘 32.1g (0.155mol) 的脫水 THF (100.0ml) 溶液。其後，加熱回流下，繼續攪拌 2 小時。冷卻至室溫後，進一步以冰浴冷卻至 3℃。一邊使三聚氰氨 9.21g (0.050mol) 的脫水 THF (50.0ml) 溶解以冰浴保持於 10℃ 以下，一邊花 30 小時滴下，滴下終了後，進一步於室溫攪拌 5 小時。其後，使同燒瓶浸漬於冰浴中，一邊保持於 15℃ 以下一邊花 30 分鐘滴下 10% 鹽酸 50.0g。卸下冰浴，加入甲苯 150.0ml，以 500ml 分液漏斗，分隔成有機層與水層。以 50ml 之水洗淨有機層三次，以硫酸鎂使有機層脫水，一旦，過濾分開硫酸鎂後，減壓餾去溶劑，俾得濃縮物 33.6g。使所得到之濃縮物溶解於 75.0g 之 THF 中，一邊攪拌一邊徐緩地加入甲醇 200.0g。過濾分開所析出之結晶，再以己烷進行再結晶，得到 7.6g (0.021mol、收率 41.3%) 之白色粉末 F。

然後於氮氣取代之 200ml 三口燒瓶中加入 60.8% 氫氧化鈉 0.98g (0.025mol)、脫水 N,N'-二甲基甲醯胺 10ml，在氮氣流下攪拌。再花 20 分鐘滴下於實施例 1 所得到之白色粉末 B 6.45g (0.019mol) 的脫水 N,N'-二甲基甲醯胺 (20ml)。滴下終了後，繼續攪拌 1 小時。以冰浴冷卻此，一邊使白色粉末 F 7.0g (0.019mol) 之脫水 N,N'-二甲基甲醯胺 (10ml) 溶液保持於內溫 5℃ 以下，一邊花 10 分鐘滴下。滴下終了後，在室溫下進一步攪拌 7 小時。其後，加入水 4.0g、甲醇 100.0g，濾取所析出之結晶。再以

甲醇 50g 再泥漿洗淨後，減壓乾燥，得到黃色結晶之例示化合物 5 8.0g (0.012mol、收率 62.1%) 。

例示化合物 5 之 APCI-MS 為 m/Z 664 $[M+H]^+$ 、融點為 355℃ 。

實施例 6

除使用例示化合物 5 取代例示化合物 21 作為發光層之主體材料以外，其餘係與實施例 2 同樣做法而製成有機 EL 元件。

實施例 7 (比較)

除使用 BA1q 取代例示化合物 21 作為發光層之主體材料以外，其餘係與實施例 2 同樣做法而製成有機 EL 元件。

將實施例所得到之有機 EL 元件各別的發光譜峰波長、最高發光效率、亮度半衰期壽命 (初期亮度 2000cd/m²) 表示於表 1 中。

表 1

	發光譜峰波長 (nm)	最高發光效率 (cd/A)	亮度半衰時間 (hr)
實施例 2	620	9.2	3000
實施例 4	620	9.0	4500
實施例 6	620	8.9	18000
實施例 7	620	8.8	1500

[產業上之利用可能性]

本發明之有機 EL 元件係可於低電壓中以高亮度、高效率發光。因此，本發明之有機 EL 元件係認為可應用於平面顯示器（例如 OA 電腦用或掛壁電視）、車輛顯示裝置、行動電話顯示或運用作為面發光體之特徵的光源（例如影印機的光源、液晶顯示器或計器類之背光光源）、顯示板、於標識燈，其技術性價值非常大。

【圖式簡單說明】

圖 1 係表示有機 EL 元件之一例的模式截面圖。

【主要元件符號說明】

- 1：基板
- 2：陽極
- 3：電洞注入層
- 4：電洞輸送層
- 5：發光層
- 6：電子輸送層
- 7：陰極

五、中文發明摘要

發明之名稱：有機電致發光元件用化合物及有機電致發光元件

本發明係提供一種可改善元件之發光效率，並充分確保驅動安定性，具有簡單構成之有機電致發光元件（有機 EL 元件）及使用於其之有機 EL 元件用化合物。

此有機 EL 元件用化合物係於分子中具有吡啶嗪構造或其類似構造，具有於吡啶嗪之氮原子結合芳香族基之構造。又，此有機 EL 元件係於基板上所層合之陽極與陰極之間，具有發光層，其特徵在於：該發光層為含有磷光發光性摻雜物與上述有機電致發光元件用化合物作為主體材料。

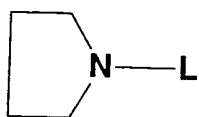
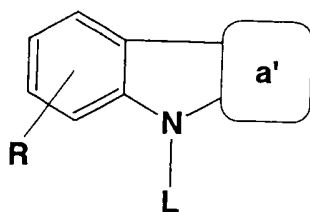
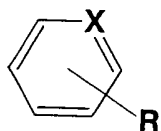
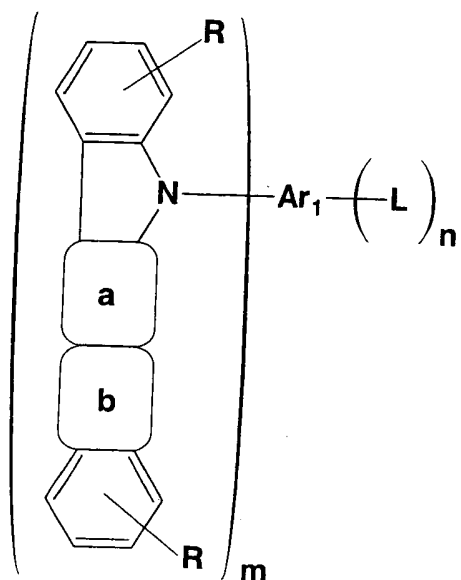
六、英文發明摘要

發明之名稱：

十、申請專利範圍

1. 一種有機電致發光元件用化合物，其係以下述通式 (I) 所示

【化 1】



(此處，環 a 係表示以與 2 個鄰接環進行縮合之式 (a1) 或 (a2) 所示之芳香環或雜環；環 a' 係表示以與 3 個鄰接環進行縮合之式 (a1) 所示之芳香環或雜環，X 表示 CH 或 N；環 b 係表示以與 2 個鄰接環進行縮合之式 (b1) 所

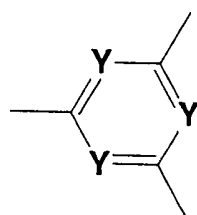
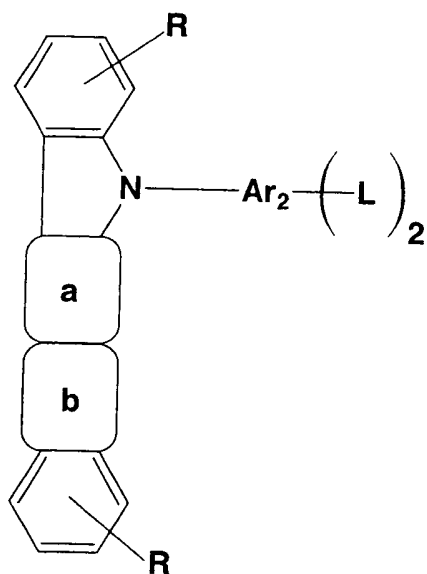
示之雜環， Ar_1 表示由芳香族雜環基所構成之 $m+n$ 價的基

L 係獨立地表示取代或未取代之芳香族烴基或芳香族雜環基，至少一個係具有縮環構造，

R 係獨立地表示氫、烷基、芳烷基、烯基、炔基、氰基、二烷基胺基、二芳基胺基、二芳烷基胺基、胺基、硝基、醯基、烷氧基羰基、羧基、烷氧基、烷基磺醯基、鹵烷基、經基、醯胺基、或取代或未取代之芳香族烴基或芳香族雜環基， m 表示 1， n 表示 1 或 2）。

2. 如申請專利範圍第 1 項之有機電致發光元件用化合物，其中以下述通式 (II) 所示

【化 2】

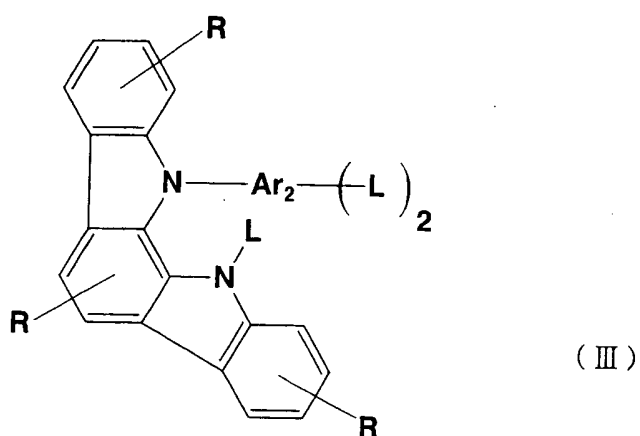


(此處，環 a、環 b、L 及 R 係具有與通式 (I) 之環 a、環 b、L 及 R 相同之意義，

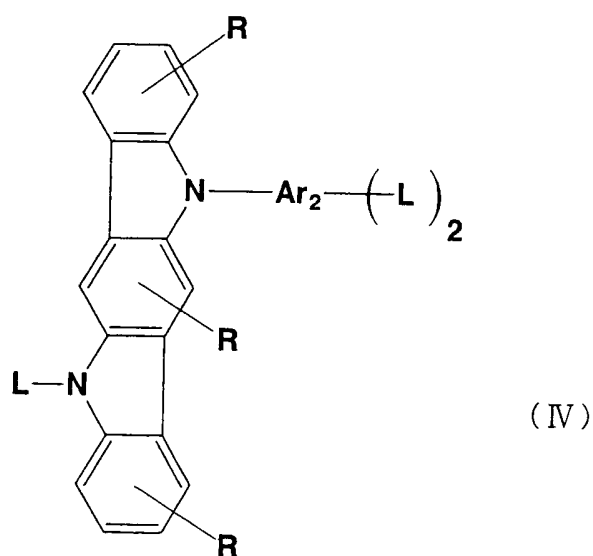
Ar₂ 係以式 (c1) 所示之 3 價的基，Y 係獨立地表示 CH 或 N，至少一個為 N)。

3. 如申請專利範圍第 2 項之有機電致發光元件用化合物，其中以下述通式 (III) 或 (IV) 所示

【化 3】



【化 4】



(在通式 (III) 及 (IV) 中，

L、R 及 Ar₂ 係具有與通式 (II) 之 L、R 及 Ar₂ 相同

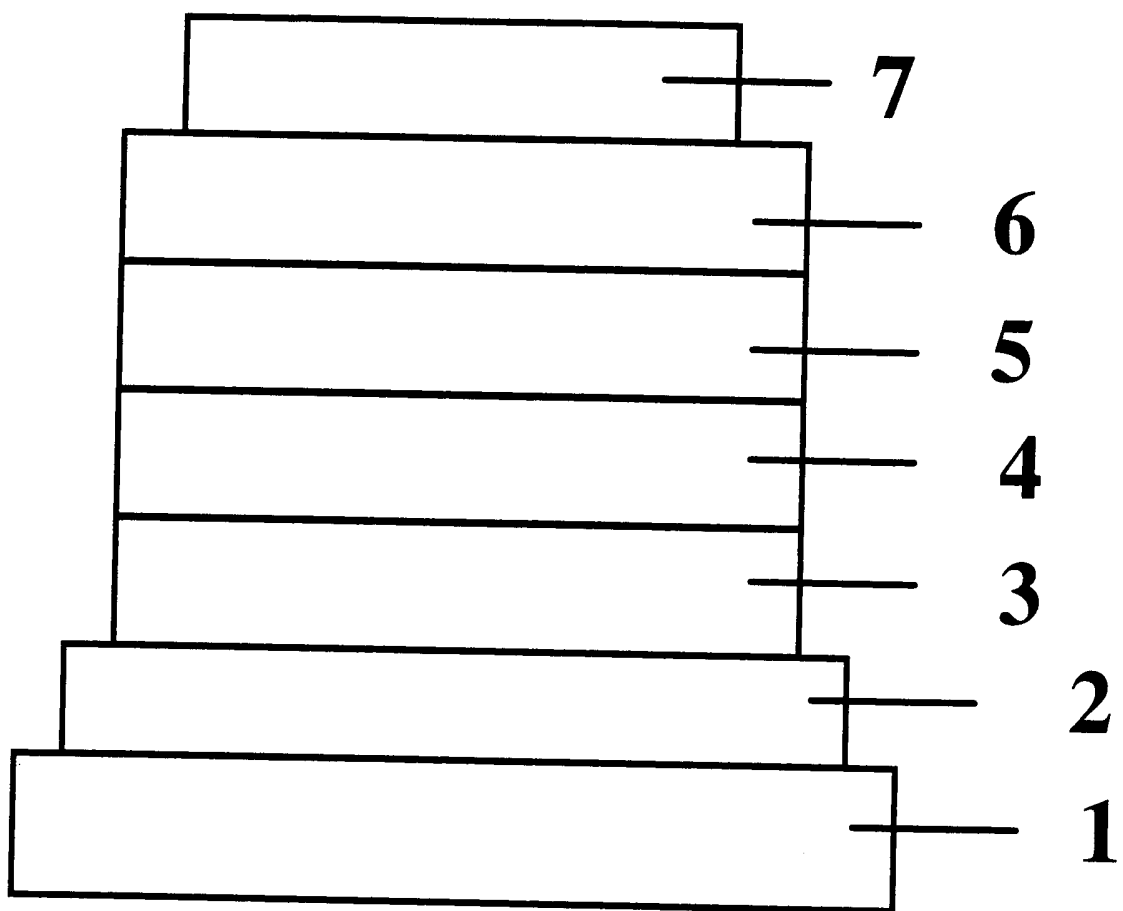
的意義)。

4.一種有機電致發光元件，其係於基板上所層合之陽極與陰極之間，具有發光層，其特徵在於：該發光層為含有磷光發光性摻雜物與如申請專利範圍第 1~3 項中任一項的有機電致發光元件用化合物作為主體材料。

5.如申請專利範圍第 4 項之有機電致發光元件，其中於陽極與發光層之間具有電洞注入輸送層，於陰極與發光層之間具有電子注入輸送層而成。

6.如申請專利範圍第 5 項之有機電致發光元件，其中於發光層與電子注入輸送層之間具有電洞阻止層而成。

圖 1



七、指定代表圖：

(一)、本案指定代表圖為：第(1)圖

(二)、本代表圖之元件代表符號簡單說明：

- 1：基板
- 2：陽極
- 3：電洞注入層
- 4：電洞輸送層
- 5：發光層
- 6：電子輸送層
- 7：陰極

八、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：