



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本

(11)證書號數：TW I469966 B

(45)公告日：中華民國 104 (2015) 年 01 月 21 日

(21)申請案號：099128846

(22)申請日：中華民國 99 (2010) 年 08 月 27 日

(51)Int. Cl. : C07D209/82 (2006.01)

C07C211/54 (2006.01)

H05B33/14 (2006.01)

(30)優先權：2009/08/28 日本

2009-197656

(71)申請人：保土谷化學工業股份有限公司 (日本) HODOGAYA CHEMICAL CO., LTD. (JP)
日本(72)發明人：橫山紀昌 YOKOYAMA, NORIMASA (JP) ; 長岡誠 NAGAOKA, MAKOTO (JP) ;
富樫和法 TOGASHI, KAZUNORI (JP) ; 草野重 KUSANO, SHIGERU (JP)

(74)代理人：周良謀；周良吉

(56)參考文獻：

US 2002/0045061A1

US 2005/0225235A1

WO 2009/081857A1

WO 2009/104488A1

審查人員：洪敏峰

申請專利範圍項數：17 項 圖式數：8 共 70 頁

(54)名稱

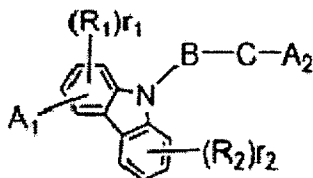
具有咔唑環構造的化合物及有機電致發光元件

COMPOUND HAVING CARBAZOLE RING STRUCTURE, AND ORGANIC
ELECTROLUMINESCENT DEVICE

(57)摘要

本發明之目的在於提供一種具有優異特性的有機化合物，作為高效率及高耐久性之有機電致發光元件的材料，電洞的注入・傳輸性能佳、具有電子阻礙能力、在薄膜狀態下的穩定性高、以及發光效率高，且更進一步使用該化合物提供一種高效率及高耐久性之有機電致發光元件。

本發明為一種下述通式所示之具有咔唑環構造的化合物，以及一種有機電致發光元件，包含：在具有一對電極與夾在其之間的至少一層有機層的有機電致發光元件中，該化合物係作為至少一層有機層之構成材料而使用。



An organic compound, which has excellent characteristics in hole injecting and transporting performance and having an electron-blocking ability, high stability in a thin film state and high luminous efficiency, is provided as a material for an organic electroluminescent device of high efficiency and high durability, and the organic electroluminescent device of high efficiency and high durability is provided using this compound.

The compound having a carbazole ring structure is represented by the following general formula, and the organic electroluminescent device having a pair of electrodes and at least one organic layer sandwiched therebetween is characterized in that the compound is used as a constitutive material of at least one organic later in the organic electroluminescent device.

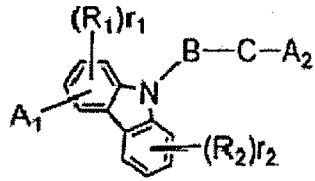
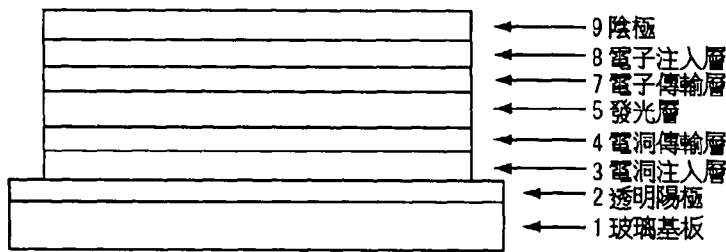
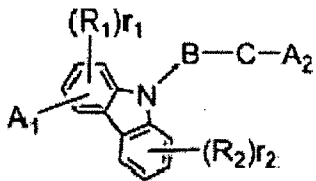


圖 7



- 1 . . . 玻璃基板
- 2 . . . 透明陽極
- 3 . . . 電洞注入層
- 4 . . . 電洞傳輸層
- 5 . . . 發光層
- 7 . . . 電子傳輸層
- 8 . . . 電子注入層
- 9 . . . 陰極



公告本

發明專利說明書

(本說明書格式、順序，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：99128846

C07D^{20P}/₈₂

(2006.01)

※申請日：99.8.27

※IPC分類：C07C²¹/₅₄

(2006.01)

一、發明名稱：(中文/英文)

H05B³³/₁₄

(2006.01)

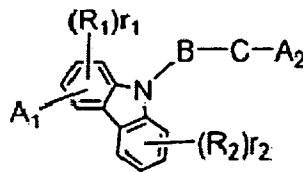
具有呋嗪環構造的化合物及有機電致發光元件

COMPOUND HAVING CARBAZOLE RING STRUCTURE, AND
ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE

二、中文發明摘要：

本發明之目的在於提供一種具有優異特性的有機化合物，作為高效率及高耐久性之有機電致發光元件的材料，電洞的注入、傳輸性能佳、具有電子阻礙能力、在薄膜狀態下的穩定性高、以及發光效率高，且更進一步使用該化合物提供一種高效率及高耐久性之有機電致發光元件。

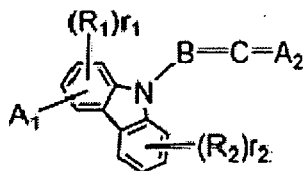
本發明為一種下述通式所示之具有呋嗪環構造的化合物，以及一種有機電致發光元件，包含：在具有一對電極與夾在其之間的至少一層有機層的有機電致發光元件中，該化合物係作為至少一層有機層之構成材料而使用。



三、英文發明摘要：

An organic compound, which has excellent characteristics in hole injecting and transporting performance and having an electron-blocking ability, high stability in a thin film state and high luminous efficiency, is provided as a material for an organic electroluminescent device of high efficiency and high durability, and the organic electroluminescent device of high efficiency and high durability is provided using this compound.

The compound having a carbazole ring structure is represented by the following general formula, and the organic electroluminescent device having a pair of electrodes and at least one organic layer sandwiched therebetween is characterized in that the compound is used as a constitutive material of at least one organic layer in the organic electroluminescent device.



四、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：第(7)圖。

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：

1~玻璃基板

2~透明陽極

3~電洞注入層

4~電洞傳輸層

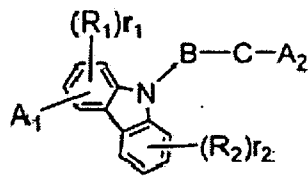
5~發光層

7~電子傳輸層

8~電子注入層

9~陰極

五、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：



六、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

本發明係關於一種作為各種顯示裝置之理想的自發光元件，即有機電致發光元件的化合物與該元件，詳細而言，係關於一種具有卟啉環構造的化合物與使用該化合物的有機電致發光元件。

【先前技術】

由於有機電致發光元件為自發光性的元件，故比液晶元件更明亮且能見度佳，而因為可清晰的顯示，所以有很多人從事這方面的開發研究。

1987年，伊士曼柯達公司的 C. W. Tang 等人藉由開發將各種任務分配給各材料的疊層構造元件，將使用有機材料的有機電致發光元件實用化。他們將可傳輸電子的螢光體、三(8-羥基喹啉)鋁(以下簡稱為 Alq₃)與可傳輸電洞的芳香族胺化合物三者加以疊層，藉由將兩者的電荷注入螢光體層中使其發光，而在 10V 以下之電壓得到 1000cd/m² 以上的高亮度(例如，參考專利文獻 1 及專利文獻 2)。

至今為止，人們為了有機電致發光元件的實用化而嘗試很多改良，將各種任務更細分化，藉由在基板上依序設置陽極、電洞注入層、電洞傳輸層、發光層、電子傳輸層、電子注入層、以及陰極的電場發光元件而達到高效率與耐久性(例如，參考非專利文獻 1)。

另外為了更進一步提升發光效率，嘗試三重態激子之利用，並檢討磷光發光體之利用(例如，參考非專利文獻 2)。

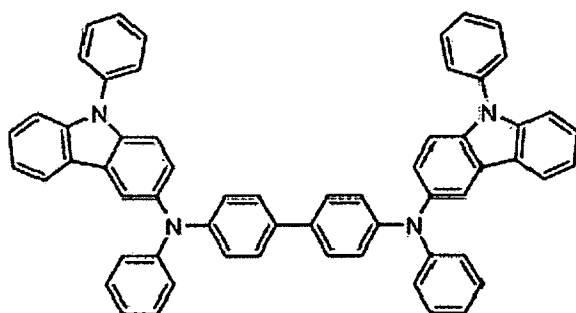
發光層亦可在一般稱為主體材料的電荷傳輸性化合物上摻雜螢光體及磷光發光體而製造。如上述研討會論文集之記載，有機電致發光元件中之有機材料的選擇嚴重的影響此元件的效率及耐久性等諸多特性。

有機電致發光元件中，自兩電極注入的電荷在發光層再結合

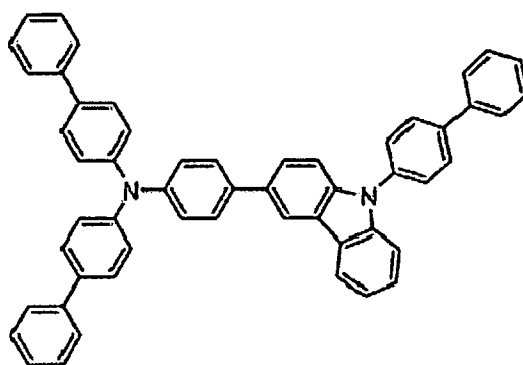
而可發光，而藉由提高電洞注入性，提高阻擋自陰極注入的電子之電子阻礙性，甚至將在發光層內生成的激子鎖住，而可提升電洞與電子再結合的機率，得到高發光效率。因此，電洞傳輸材料的作用很重要，所以需要電洞注入性高，電洞遷移率大，電子阻礙性高，甚至對於電子的耐久性高的電洞傳輸材料。

目前為止用於有機電致發光元件的電洞傳輸材料，已知有專利文獻 1 及專利文獻 2 所示的芳香族胺衍生物。該等化合物中，已知有電洞遷移率 $10^{-3} \text{cm}^2/\text{Vs}$ 以上之具有優異遷移率的化合物，但因為電子阻礙性不夠，一部份的電子會穿過發光層，所以不能期待發光效率之提升。

作為可改進該等問題的化合物，有人提議(例如，參考專利文獻 3 及 4)以下述化學式所示之具有取代的咪唑環構造之芳香胺化合物(例如，化合物 A 及化合物 B)。



(化合物 A)



(化合物 B)

然而，將該等化合物用於電洞注入層或是電洞傳輸層的元件中，雖然已改良發光效率等，但還不夠，另外，由於低電壓化及電流效率亦不夠，故需要更進一步的高發光效率化。

先前技術文獻

專利文獻

專利文獻 1：日本特開平 8-48656 號公報

專利文獻 2：日本專利第 3194657 號公報

專利文獻 3：日本特開 2006-151979 號公報

專利文獻 4：PCT 國際專利申請案 WO2008/62636 號公報

非專利文獻

非專利文獻 1：應用物理學會第 9 回研討會論文集 55~61 頁
(2001)

非專利文獻 2：應用物理學會第 9 回研討會論文集 23~31 頁
(2001)

非專利文獻 3：Helvetica Chimica Acta., vol. 89, 1123(2006)

非專利文獻 4：J. Org. Chem., 60, 7508(1995)

非專利文獻 5：Synth. Commun., 11, 513(1981)

【發明內容】

[發明所欲解決的問題]

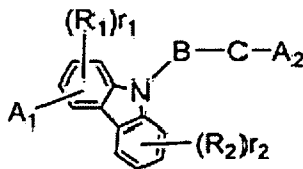
本發明之目的在於提供一種具有優異特性的有機化合物，作為高效率及高耐久性之有機電致發光元件的材料，電洞的注入・傳輸性能佳、具有電子阻礙能力、在薄膜狀態下的穩定性高、以及發光效率高，且更進一步使用該化合物提供一種高效率及高耐久性之有機電致發光元件。

本發明欲提供的有機化合物應具備的物理特性可列舉：(1)電洞的注入特性良好；(2)電洞的遷移率大；(3)電子阻礙能力佳；(4)薄膜狀態穩定；(5)耐熱性佳。又，本發明欲提供的有機電致發光元件應具備的物理特性可列舉：(1)發光效率及輸出功率高；(2)發光起始電壓低；(3)實用驅動電壓低。

[解決問題之技術手段]

因此本案發明人為了達成上述目的，著眼於芳香族三級胺構造具有高電洞傳輸能力、吡啶環構造之電子阻礙性佳，甚至著眼於雙方構造之耐熱性與薄膜穩定性佳，設計具有吡啶環構造的化合物並加以化學合成，試作使用該化合物的種種有機電致發光元件，仔細進行元件的特性評鑑後，結果達成本發明之目的。

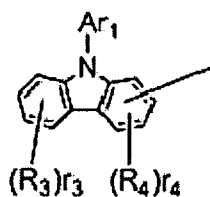
詳言之，本發明為一種下述通式(1)所示之一種具有吡啶環構造的化合物、以及一種有機電致發光元件，包含：在具有一對電極與夾在其之間的至少一層有機層的有機電致發光元件中，該化合物係作為至少一層有機層之構成材料而使用。



(1)

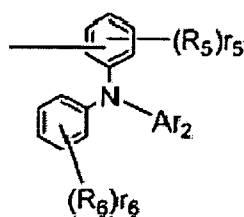
(式中的 R1 與 R2 可相同亦可相異，並代表氫原子、氟原子、氯原子、氫基、硝基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷基、可具有取代基之碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烯基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷氧基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷氧基、取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、取代或無取代的縮合多環芳香族基、取代或無取代的芳氧基，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環。r1 表示 0 或是 1~3 的整數，r2 表示 0 或是 1~4 的整數，A1 與 A2 可相同亦可相異，A1 表示下述通式(2)或(3)所示的 1 價基，A2 表示下述通式(2)~(7)所示的 1 價基，B 表示取代或無取代的芳香族烴 2 價基、取代或無取代的芳香族雜環 2 價基、或是取代或無取代的縮合多環芳香族 2 價基，C 表示單鍵結、取代或無取代的芳香族烴 2 價基、取代或無取代的芳香族雜環 2 價基、或是取代或無取

代的縮合多環芳香族 2 價基。但是，A1 與 A2 不可同時為下述通式(2)。



(2)

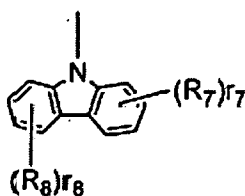
(式中的 R3 與 R4 可相同亦可相異，並代表氫原子、氟原子、氯原子、氫基、硝基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷基、可具有取代基之碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烯基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷氧基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷氧基、取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、取代或無取代的縮合多環芳香族基、取代或無取代的芳氧基，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環。r3 表示 0 或是 1~4 的整數，r4 表示 0 或是 1~3 的整數，Ar1 表示取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、或是取代或無取代的縮合多環芳香族基。)



(3)

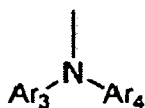
(式中的 R5 與 R6 可相同亦可相異，並代表氫原子、氟原子、氯原子、氫基、硝基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷基、可具有取代基之碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烯基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷氧基、可具有取

代基之碳原子數 5 至 10 的環烷氧基、取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、取代或無取代的縮合多環芳香族基、取代或無取代的芳氧基，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環。 r_5 表示 0 或是 1~4 的整數， r_6 表示 0 或是 1~5 的整數， Ar_2 表示取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、或是取代或無取代的縮合多環芳香族基。)



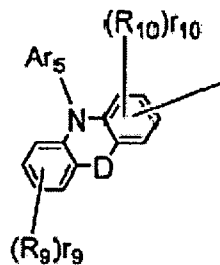
(4)

(式中的 R_7 與 R_8 可相同亦可相異，並代表氫原子、氟原子、氯原子、氰基、硝基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷基、可具有取代基之碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烯基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷氧基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷氧基、取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、取代或無取代的縮合多環芳香族基、取代或無取代的芳氧基，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環。 r_7 與 r_8 可相同亦可相異，並代表 0 或是 1~4 的整數。)



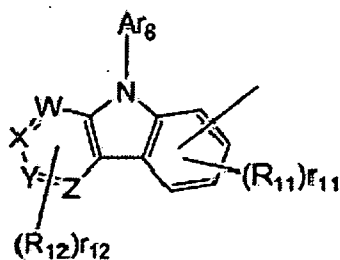
(5)

(式中的 Ar_3 與 Ar_4 可相同亦可相異，並代表取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、或是取代或無取代的縮合多環芳香族基，該等化學基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環。)



(6)

(式中的 R₉ 與 R₁₀ 可相同亦可相異，並代表氫原子、氟原子、氯原子、氫基、硝基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷基、可具有取代基之碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烯基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷氧基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷氧基、取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、取代或無取代的縮合多環芳香族基、取代或無取代的芳氧基，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環。r₉ 表示 0 或 1~4 的整數，r₁₀ 表示 0 或 1~3 的整數，Ar₅ 表示取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、或是取代或無取代的縮合多環芳香族基，D 表示取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子。)



(7)

(式中的 R₁₁ 與 R₁₂ 可相同亦可相異，並代表氫原子、氟原子、氯原子、氫基、硝基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷基、可

具有取代基之碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烯基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷氧基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷氧基、取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、取代或無取代的縮合多環芳香族基、取代或無取代的芳氧基，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環。 r_{11} 與 r_{12} 可相同亦可相異，並代表 0 或是 1~3 的整數， Ar_6 表示取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、或是取代或無取代的縮合多環芳香族基， W 、 X 、 Y 及 Z 表示碳原子或是氮原子。在此之 W 、 X 、 Y 及 Z 中僅有一個為氮原子，且此情況下的氮原子不具有 R_{12} 的取代基。)

作為通式(1)~(7)中之 R_1 ~ R_{12} 所示的「可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷基」、「可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷基」、「可具有取代基之碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烯基」中之「碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷基」、「碳原子數 5 至 10 的環烷基」、以及「碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷基」，具體而言，可列舉出者有：甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、異丁基、三級丁基、正戊基、異戊基、新戊基、正己基、環戊基、環己基、1-金剛烷基、2-金剛烷基、乙烯基、丙烯基、異丙烯基、以及 2-丁烯基等。

作為通式(1)~(7)中之 R_1 ~ R_{12} 所示的「具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷基」、「具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷基」、以及「具有取代基之碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烯基」中之「取代基」，具體而言，可列舉出者有：氫原子、氟原子、氯原子、氰基、硝基、苯基、聯苯基、聯三苯基、聯四苯基、萘基、蔥基、蒽基、菲基、茛基、芘基、以及吡啶并吡啶基，而該等取代基可進一步被取代。

作為通式(1)~(7)中之 R_1 ~ R_{12} 所表示的「可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷氧基」、「可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷氧基」中之「碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分

枝狀的烷氧基」、以及「碳原子數 5 至 10 的環烷氧基」，具體而言，可列舉出者有：甲氧基、乙氧基、正丙氧基、異丙氧基、正丁氧基、三級丁氧基、正戊氧基、正己氧基、環戊氧基、環己氧基、環庚氧基、環辛氧基、1-金剛氧基、以及 2-金剛氧基等。

作為通式(1)~(7)中之 R1~R12 所表示的「具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷氧基」、以及「具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷氧基」中之「取代基」，具體而言，可列舉出者有：氫原子、氟原子、氯原子、氫基、硝基、苯基、聯苯基、聯三苯基、聯四苯基、萘基、蔥基、蒾基、菲基、蒽基、芘基、以及吡啶并吡啶基，而該等取代基可進一步被取代。

以通式(1)~(7)中之 R1~R12 及 Ar1~Ar6 表示之「取代或無取代的芳香族烴基」、「取代或無取代的芳香族雜環基」或是「取代或無取代的縮合多環芳香族基」中之「芳香族烴基」、「芳香族雜環基」或是「縮合多環芳香族基」，具體而言，可列舉出者有：苯基、聯苯基、聯三苯基、萘基、蔥基、菲基、蒾基、蒽基、芘基、芘基、熒蔥基、聯三伸苯基、吡啶基、咪喃基、哌喃基、噻吩基、喹啉基、異喹啉基、苯并咪喃基、苯并噻吩基、吡啶基、咪唑基、苯并咪唑基、苯并噻唑基、喹啉基、苯并咪唑基、吡啶基、二苯并咪喃基、二苯并噻吩基、以及咪唑基等。

以通式(1)~(7)中之 R1~R12 及 Ar1~Ar6 表示之「取代的芳香族烴基」、「取代的芳香族雜環基」或是「取代的縮合多環芳香族基」中之「取代基」，具體而言，可列舉出下述等基：氫原子、氟原子、氯原子、氫基、三氟甲基、硝基、碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷基、碳原子數 5 至 10 的環烷基、碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烯基、碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷氧基、碳原子數 5 至 10 的環烷氧基、苯基、萘基、蔥基、苯乙烯基、苯氧基、甲苯氧基、苯甲氧基、以及苯乙氧基，而該等取代基可進一步被取代。另外，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環。

以通式(1)~(7)中之 R1~R12 表示，作為「取代或無取代的芳氧

基」中之「芳氧基」，具體而言，可列舉出者有：苯氧基、聯苯氧基、聯三苯氧基、萘氧基、蔥氧基、菲氧基、第氧基、節氧基、芘氧基、芘氧基等。

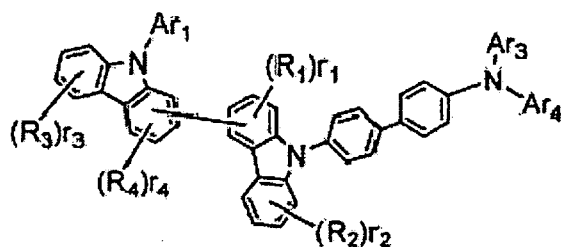
以通式(1)~(7)中之 R1~R12 表示，作為「取代的芳氧基」中之「取代基」，具體而言，可列舉出下述等基：氬原子、氟原子、氯原子、氫基、三氟甲基、硝基、碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷基、碳原子數 5 至 10 的環烷基、碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烯基、碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷氧基、碳原子數 5 至 10 的環烷氧基、苯基、萘基、蔥基、苯乙烯基、苯氧基、甲苯氧基、苯甲氧基、以及苯乙氧基，而該等取代基可進一步被取代。另外，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環。

以通式(1)中之 B 及 C 表示，作為「取代或無取代的芳香族烴 2 價基」、「取代或無取代的芳香族雜環 2 價基」、「取代或無取代的縮合多環芳香族 2 價基」中之「芳香族烴 2 價基」、「芳香族雜環 2 價基」、以及「縮合多環芳香族 2 價基」，具體而言，可列舉出者有：伸苯基、聯伸苯基、聯三伸苯基、聯四伸苯基、伸萘基、伸蔥基、伸菲基、伸第基、伸鄰二氮菲基、伸節基、伸芘基、伸芘基、伸熒蔥基、伸聯三伸苯基、伸啶基、伸嘓啶基、伸喹啉基、伸異喹啉基、伸吡啶基、伸吡啶基、伸喹啉、伸苯并咪啶基、伸吡啶基、伸萘啶基、伸啡啉基、伸吡啶基、伸噻吩基、伸苯并噻吩基、以及伸二苯并噻吩基等。

以通式(1)中之 B 及 C 表示，作為「取代的芳香族烴 2 價基」、「取代的芳香族雜環 2 價基」、「取代的縮合多環芳香族 2 價基」中之「取代基」，具體而言，可列舉出下述等基：氬原子、氟原子、氯原子、氫基、三氟甲基、硝基、碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷基、碳原子數 5 至 10 的環烷基、碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烯基、碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷氧基、碳原子數 5 至 10 的環烷氧基、苯基、萘基、蔥基、苯乙烯基、苯氧基、甲苯氧基、苯甲氧基、以及苯乙氧基，而該等取代

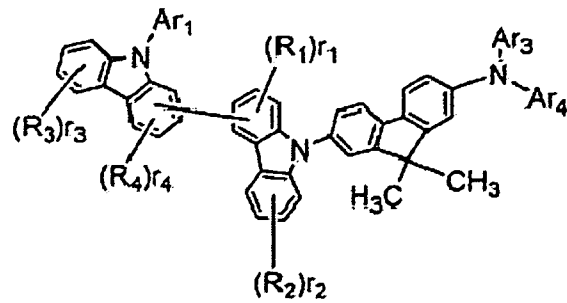
基可進一步被取代。另外，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環。

而且，前述通式(1)所示之具有咪唑環構造的化合物中，以下述通式(1a)、(1b)、(1c)及(1d)所示之具有咪唑環構造的化合物使用於有機電致發光元件較為理想。



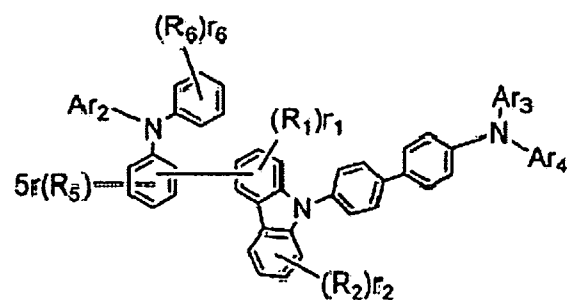
(1a)

(式中的 R1、R2、R3 與 R4 可相同亦可相異，並代表氫原子、氟原子、氯原子、氰基、硝基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷基、可具有取代基之碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烯基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷氧基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷氧基、取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、取代或無取代的縮合多環芳香族基、取代或無取代的芳氧基，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環。r1 與 r4 可相同亦可相異，並代表 0 或 1~3 的整數，r2 與 r3 可相同亦可相異，並代表 0 或 1~4 的整數，Ar1、Ar3 與 Ar4 可相同亦可相異，並代表取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、或是取代或無取代的縮合多環芳香族基。在此，Ar3 與 Ar4 亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環。)



(1b)

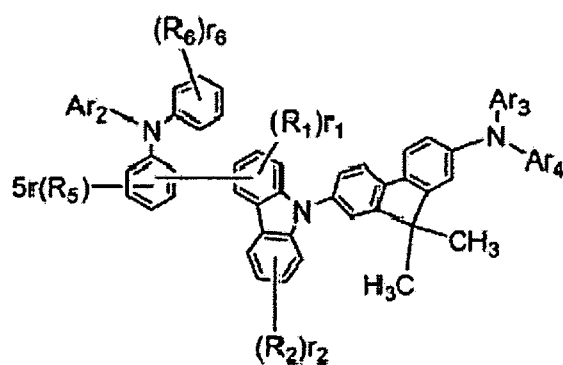
(式中的 R1、R2、R3 與 R4 可相同亦可相異，並代表氫原子、氟原子、氯原子、氰基、硝基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷基、可具有取代基之碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烯基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷氧基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷氧基、取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、取代或無取代的縮合多環芳香族基、取代或無取代的芳氧基，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環。r1 與 r4 可相同亦可相異，並代表 0 或 1~3 的整數，r2 與 r3 可相同亦可相異，並代表 0 或 1~4 的整數，Ar1、Ar3 與 Ar4 可相同亦可相異，並代表取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、或是取代或無取代的縮合多環芳香族基。在此，Ar3 與 Ar4 亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環。)



(1c)

(式中的 R1、R2、R5 與 R6 可相同亦可相異，並代表氫原子、氟原子、氯原子、氰基、硝基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6

的直鏈狀或分枝狀的烷基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷基、可具有取代基之碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烯基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷氧基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷氧基、取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、取代或無取代的縮合多環芳香族基、取代或無取代的芳氧基，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環。 r_1 代表 0 或 1~3 的整數， r_2 與 r_5 可相同亦可相異，並代表 0 或 1~4 的整數， r_6 代表 0 或 1~5 的整數， Ar_2 、 Ar_3 與 Ar_4 可相同亦可相異，並代表取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、或是取代或無取代的縮合多環芳香族基。在此， Ar_3 與 Ar_4 亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環。)



(1d)

(式中的 R_1 、 R_2 、 R_5 與 R_6 可相同亦可相異，並代表氫原子、氟原子、氯原子、氰基、硝基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷基、可具有取代基之碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烯基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷氧基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷氧基、取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、取代或無取代的縮合多環芳香族基、取代或無取代的芳氧基，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成

環。r1 代表 0 或 1~3 的整數，r2 與 r5 可相同亦可相異，並代表 0 或 1~4 的整數，r6 代表 0 或 1~5 的整數，Ar2、Ar3 與 Ar4 可相同亦可相異，並代表取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、或是取代或無取代的縮合多環芳香族基。在此，Ar3 與 Ar4 亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環。)

本發明的通式(1)所示之具有咪唑環構造的化合物為新穎的化合物，相較於習知的電洞傳輸材料，具有優越的電子阻礙能力且薄膜狀態穩定。

本發明的通式(1)所示之具有咪唑環構造的化合物可作為有機電致發光元件(以下簡稱為有機 EL 元件)的電洞注入層以及/或是電洞傳輸層的構成材料而使用。相較於習知材料，本發明的材料之電洞的注入性高，遷移率大，電子阻礙性高，而且藉由使用對於電子穩定性高的材料，可鎖住發光層內生成的激子，甚至可提升電洞與電子再結合的機率而得到高發光效率，並且具有驅動電壓下降，有機 EL 元件的耐久性改善之作用。

本發明的通式(1)所示之具有咪唑環構造的化合物可作為有機 EL 元件的電子阻礙層之構成材料而使用。藉由使用具有優越的電子阻礙能力，且比習知材料之電洞傳輸性佳且薄膜狀態穩定性高的材料，不但具有高發光效率，且具有驅動電壓下降、電流耐受性改善、及有機 EL 元件的最大發光亮度上升之作用。

本發明的通式(1)所示之具有咪唑環構造的化合物可作為有機 EL 元件的發光層之構成材料而使用。將比習知材料之電洞傳輸性佳，且能帶間隙(band gap)廣的本發明之材料作為發光層的主體材料使用，透過被稱為摻雜物的螢光發光體或磷光發光體支撐作為發光層使用，而具有可實現驅動電壓下降及發光效率改善的有機 EL 元件之作用。

本發明之有機 EL 元件，因為使用比習知的電洞傳輸材料之電洞遷移率大，具有優越的電子阻礙能力，且薄膜狀態穩定、具有咪唑環構造的化合物，所以可實現高效率及高耐久性。

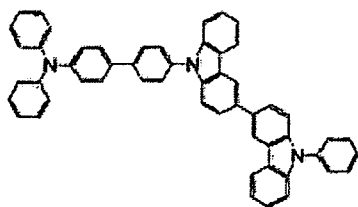
[對照先前技術之功效]

本發明之具有咪唑環構造的化合物為有用的有機 EL 元件之電洞注入層、電洞傳輸層、電子阻礙層或是發光層的構成材料，且電子阻礙能力佳，薄膜狀態穩定，耐熱性佳。本發明之有機 EL 元件的發光效率以及輸出功率高，根據前述優點而可降低元件之實用驅動電壓。使發光起始電壓降低，而可改良耐久性。

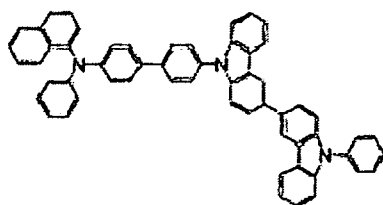
【實施方式】

本發明之具有咪唑環構造的化合物為新穎的化合物，而該等化合物舉例而言，可用以下方式合成。首先，藉由將在對應的第 9 位置上以芳基取代的咪唑透過 N-溴琥珀醯亞胺等進行溴化，而合成 3-溴-9-芳基咪唑(例如，參考非專利文獻 3)，而藉由該溴體與四甲基乙二醇硼烷或雙四甲基乙二醇二硼烷等之反應合成的硼酸或是硼酸酯(例如，參考非專利文獻 4)，與種種的鹵代-9H-咪唑進行 suzuki 偶合等交叉偶合反應(例如，參考非專利文獻 5)，可合成(N-芳基-9'H-咪唑-3'-基)-9H-咪唑。再者，藉由(N-芳基-9'H-咪唑-3'-基)-9H-咪唑與種種的二芳胺基取代的芳基鹵化物之烏耳曼反應等縮合反應，可合成具有咪唑環構造的化合物。

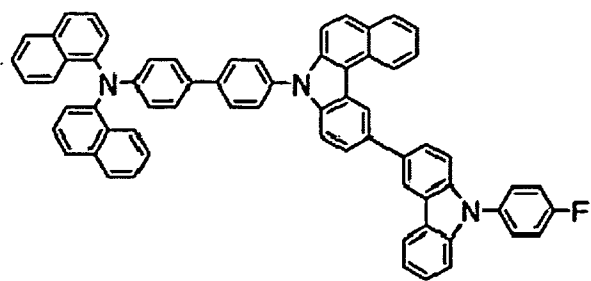
以下示列在通式(1)所示之具有咪唑環構造的化合物之中，較理想的化合物之具體例，但本發明不限定於該等化合物。



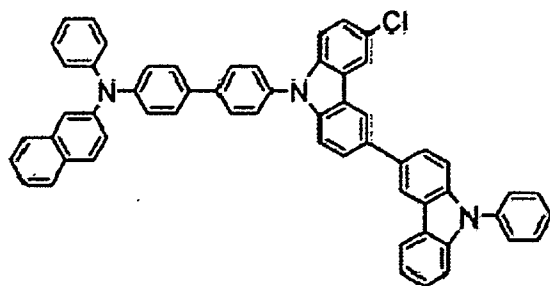
(化合物 8)



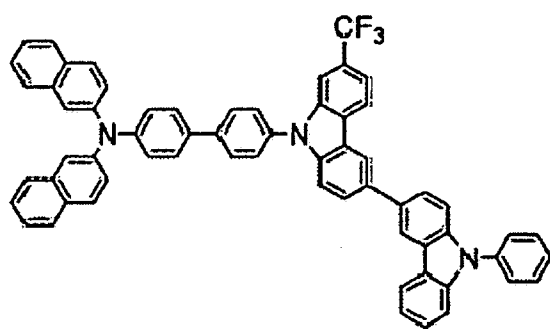
(化合物 9)



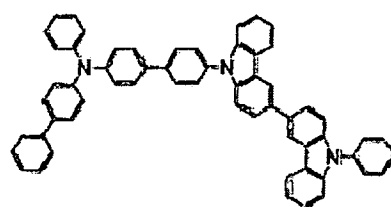
(化合物 10)



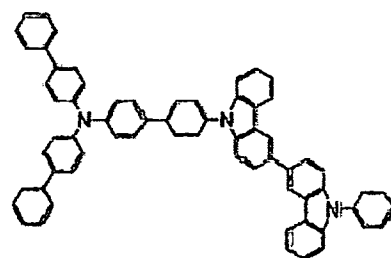
(化合物 11)



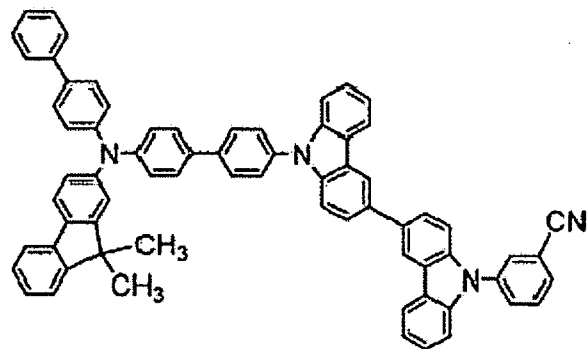
(化合物 12)



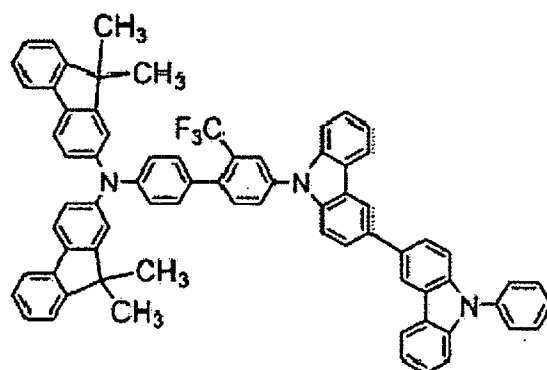
(化合物 13)



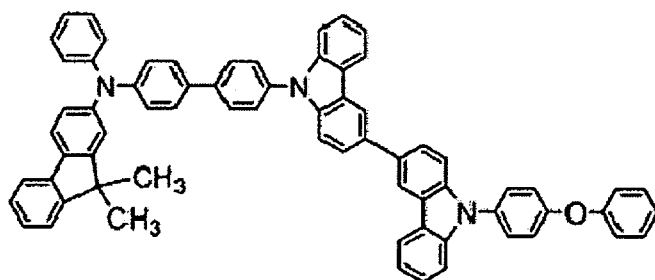
(化合物 14)



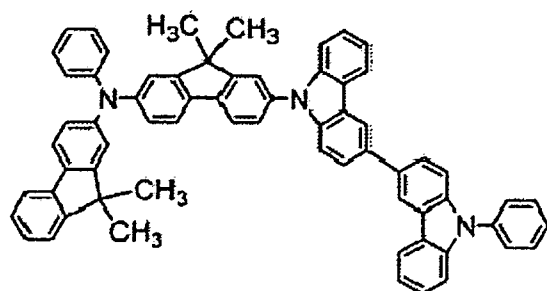
(化合物 15)



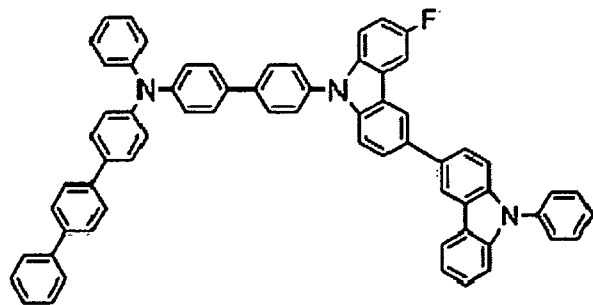
(化合物 16)



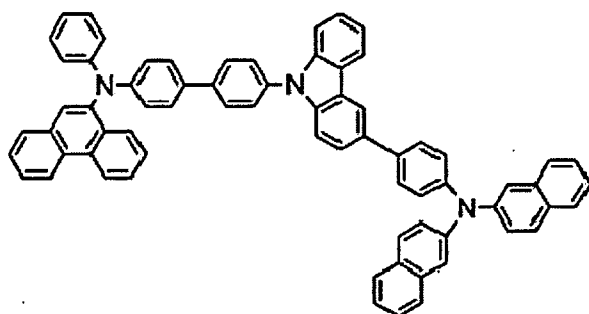
(化合物 17)



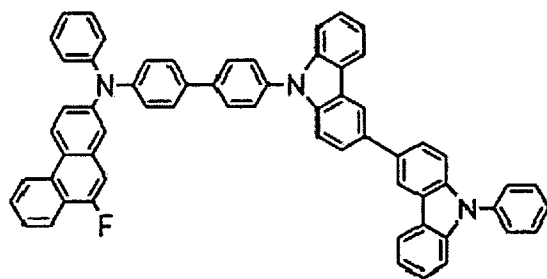
(化合物 18)



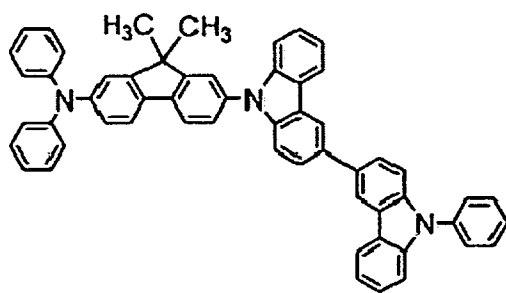
(化合物 19)



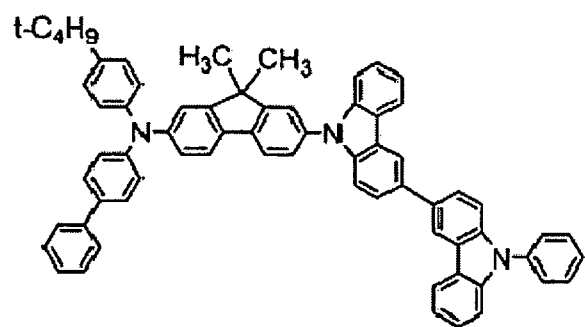
(化合物 20)



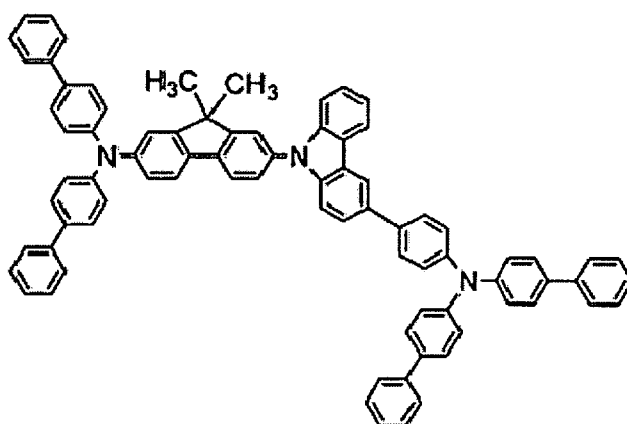
(化合物 21)



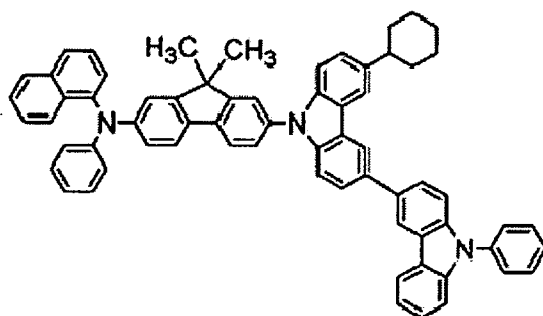
(化合物 22)



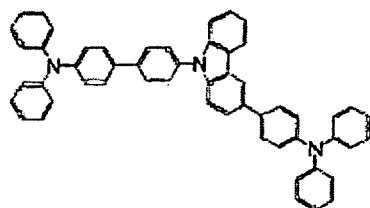
(化合物 23)



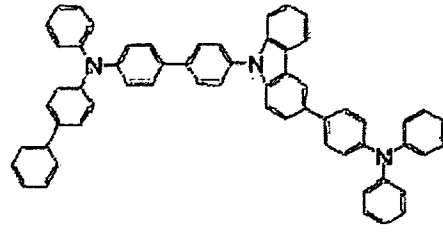
(化合物 24)



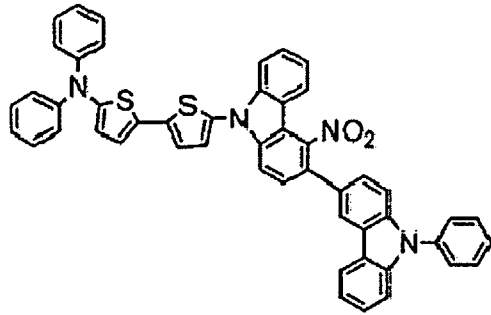
(化合物 25)



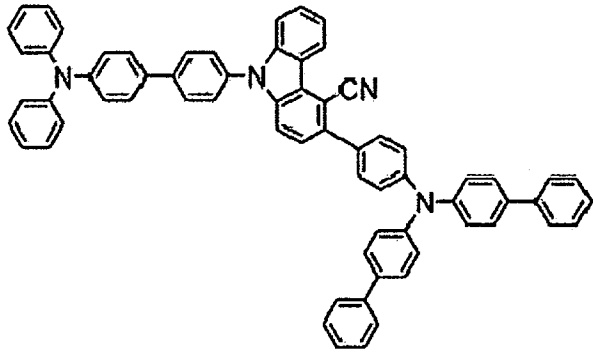
(化合物 26)



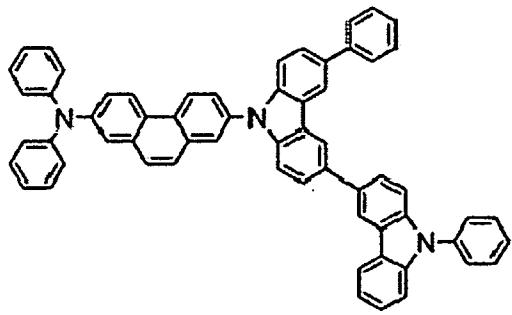
(化合物 27)



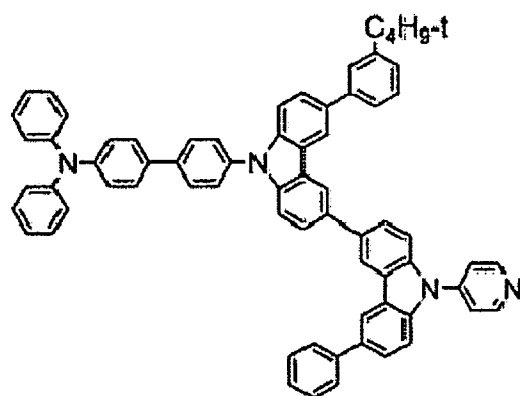
(化合物 28)



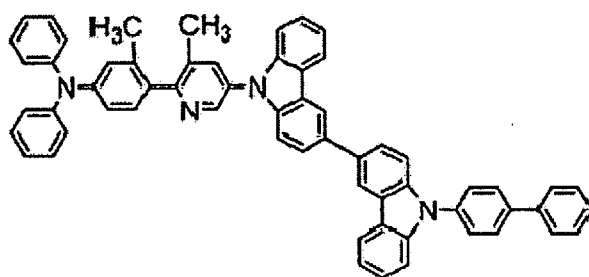
(化合物 29)



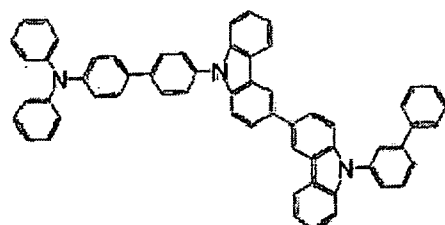
(化合物 30)



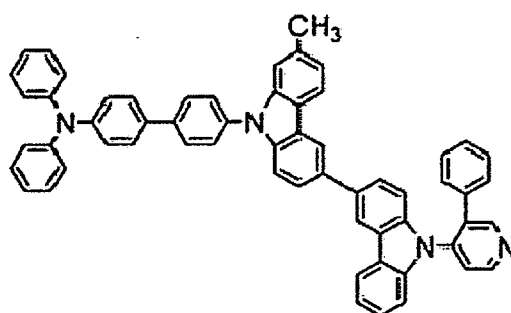
(化合物 31)



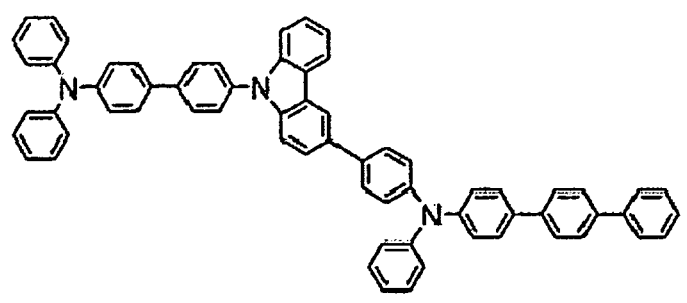
(化合物 32)



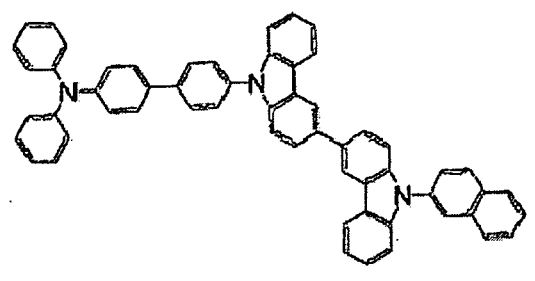
(化合物 33)



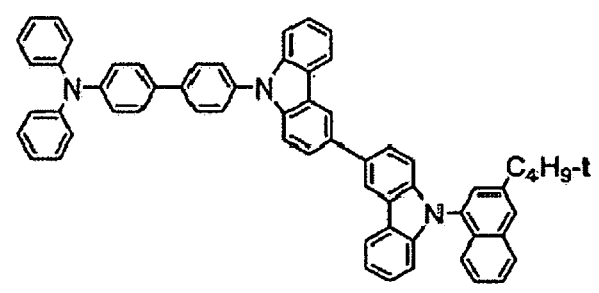
(化合物 34)



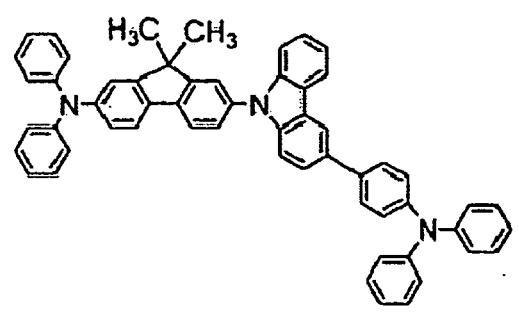
(化合物 35)



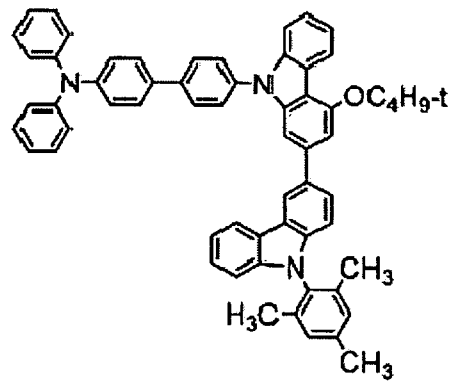
(化合物 36)



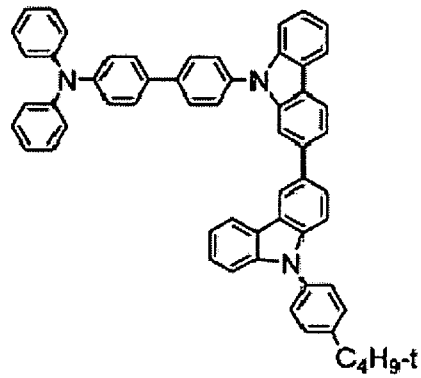
(化合物 37)



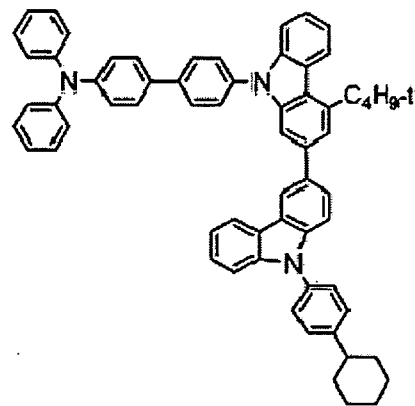
(化合物 38)



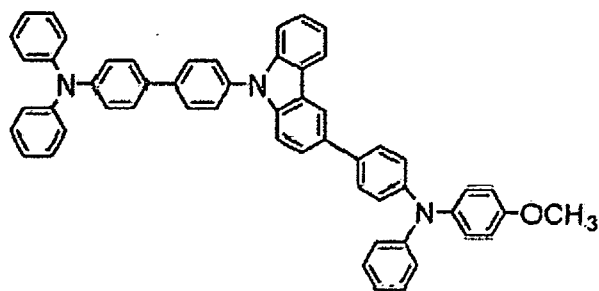
(化合物 39)



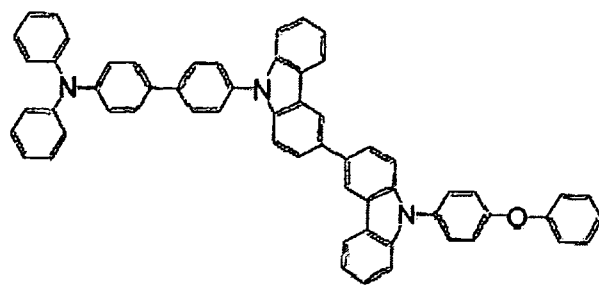
(化合物 40)



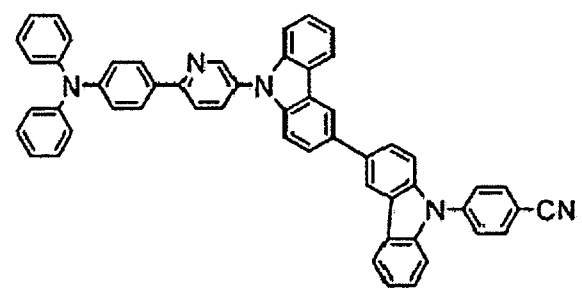
(化合物 41)



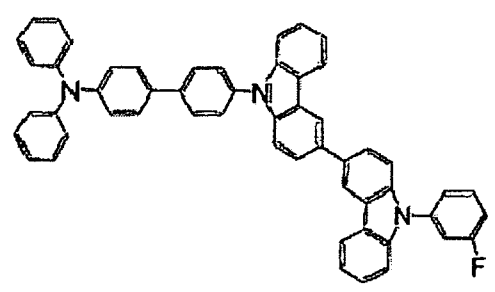
(化合物 42)



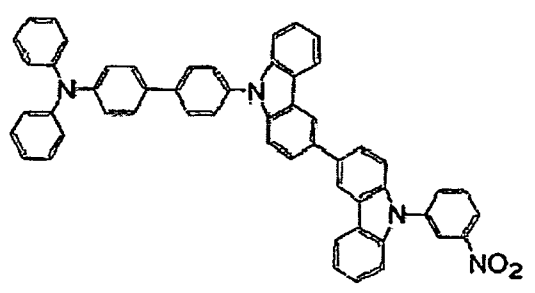
(化合物 43)



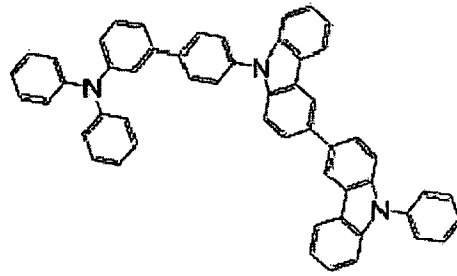
(化合物 44)



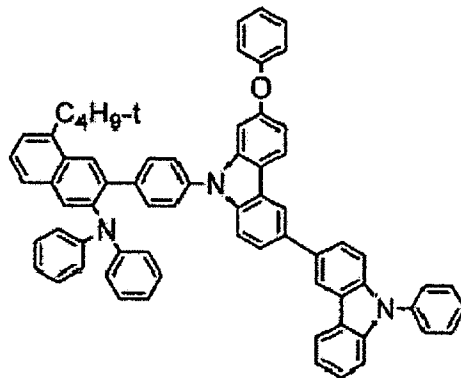
(化合物 45)



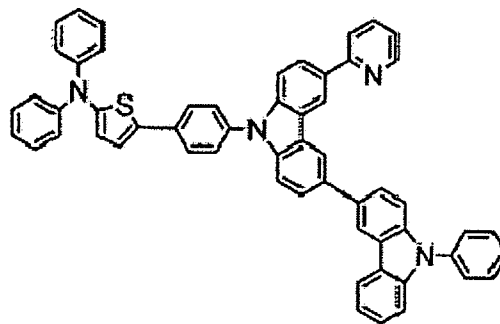
(化合物 46)



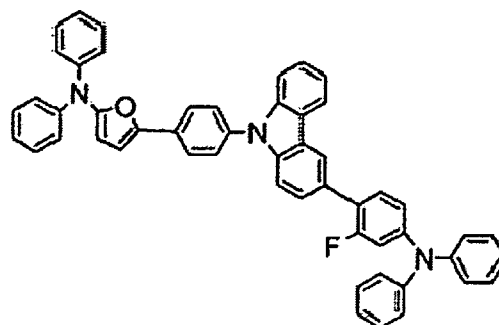
(化合物 47)



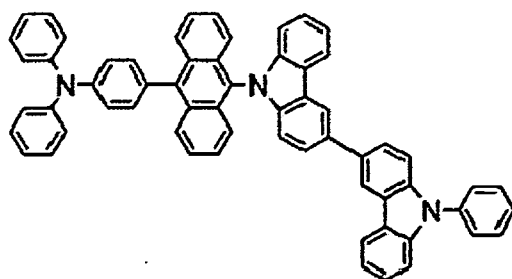
(化合物 48)



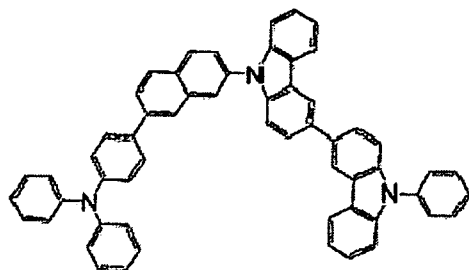
(化合物 49)



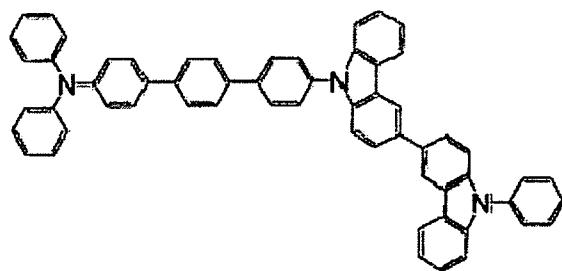
(化合物 50)



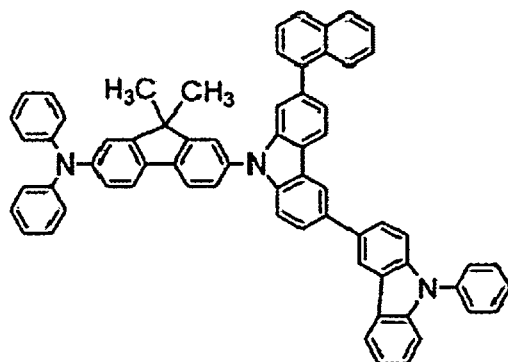
(化合物 51)



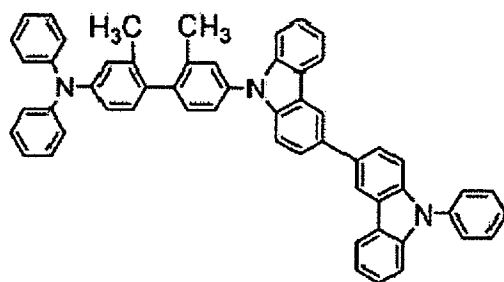
(化合物 52)



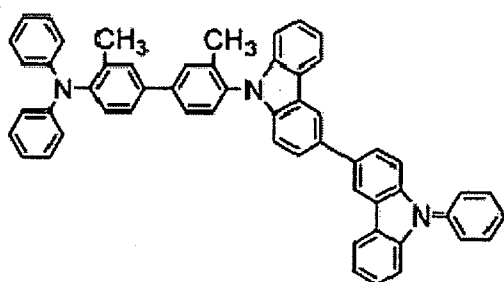
(化合物 53)



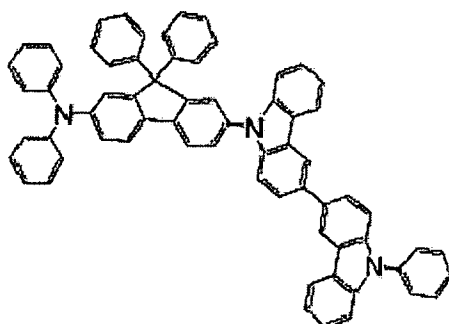
(化合物 54)



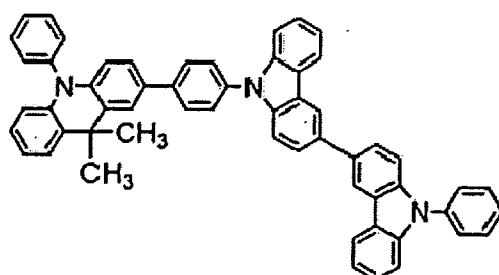
(化合物 55)



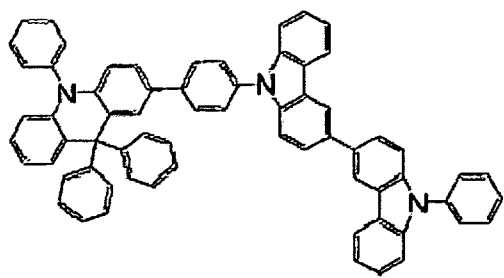
(化合物 56)



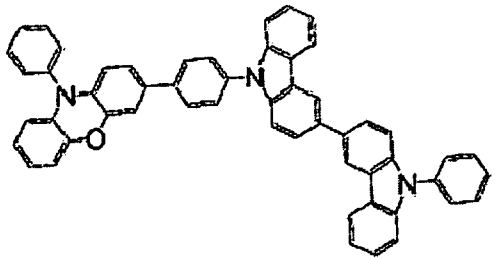
(化合物 57)



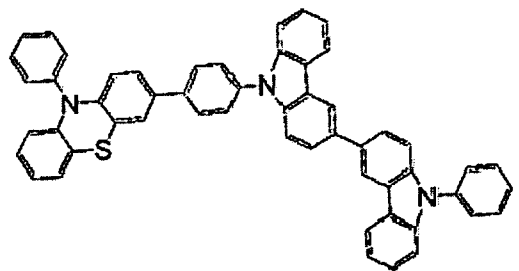
(化合物 58)



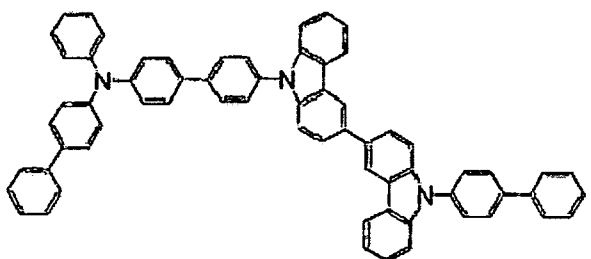
(化合物 59)



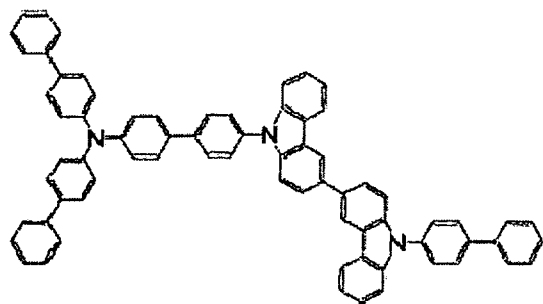
(化合物 60)



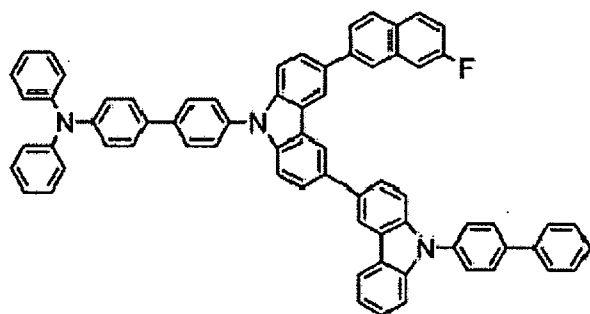
(化合物 61)



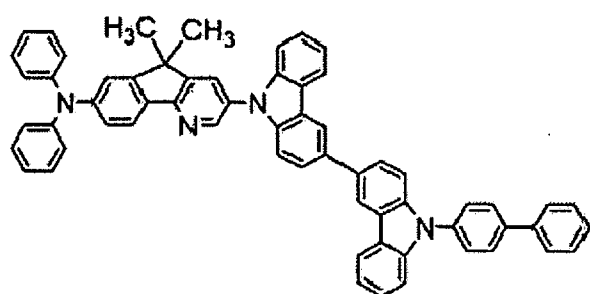
(化合物 62)



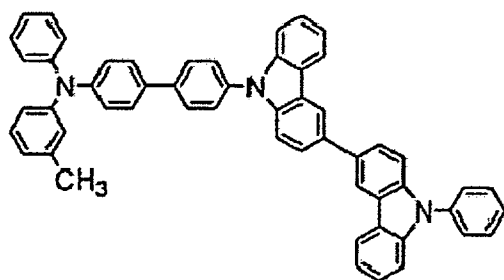
(化合物 63)



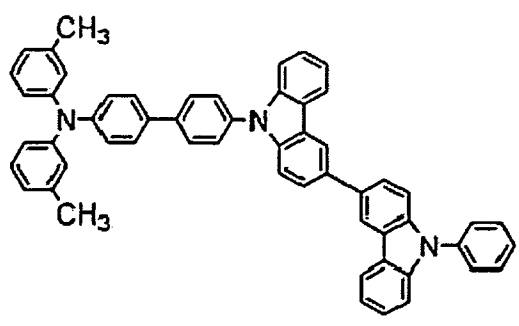
(化合物 64)



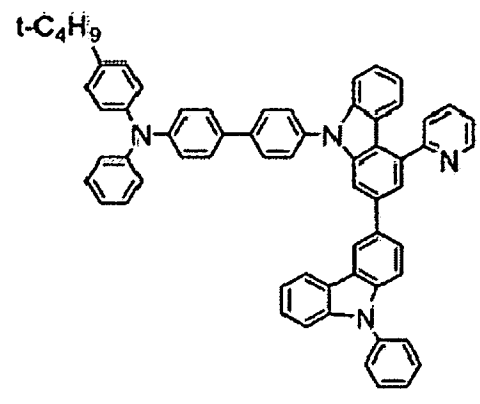
(化合物 65)



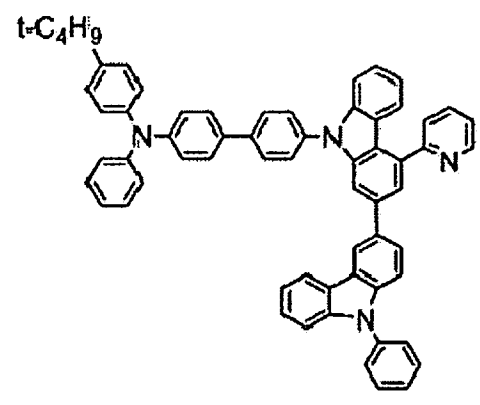
(化合物 66)



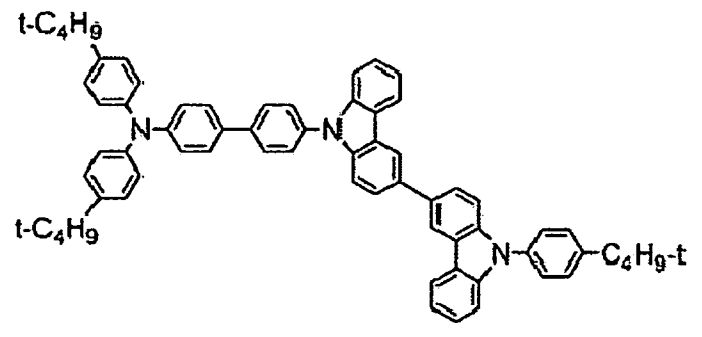
(化合物 67)



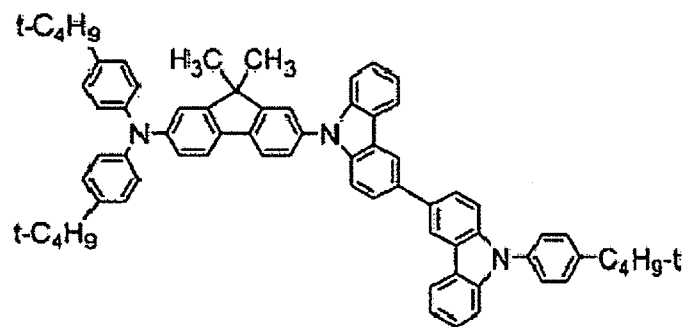
(化合物 68)



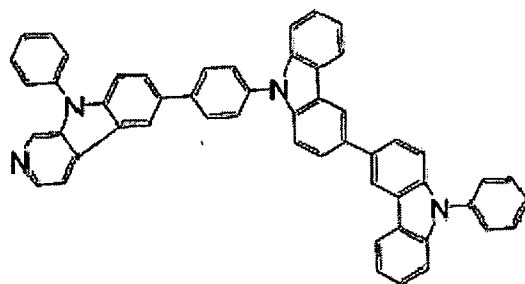
(化合物 69)



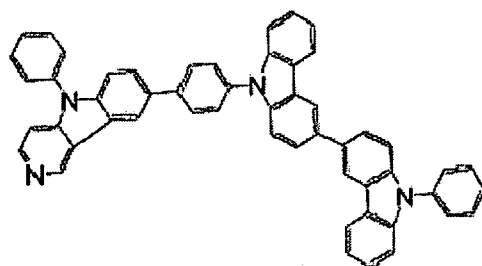
(化合物 70)



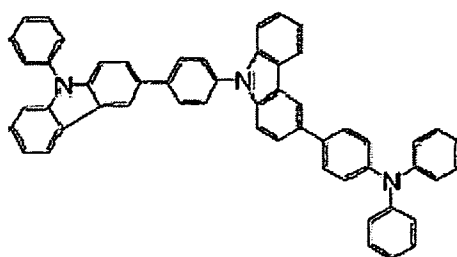
(化合物 71)



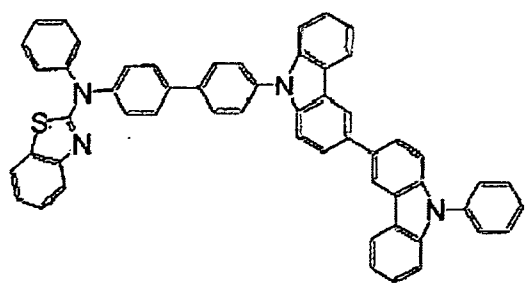
(化合物 72)



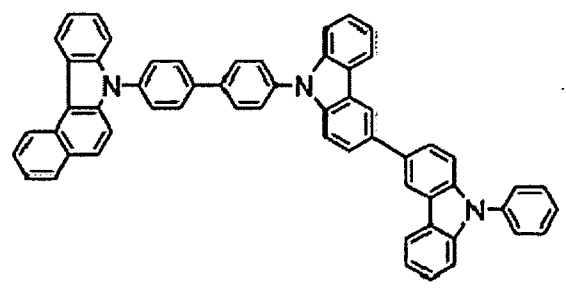
(化合物 73)



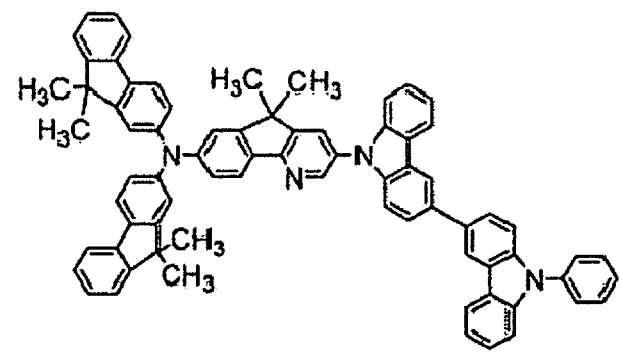
(化合物 74)



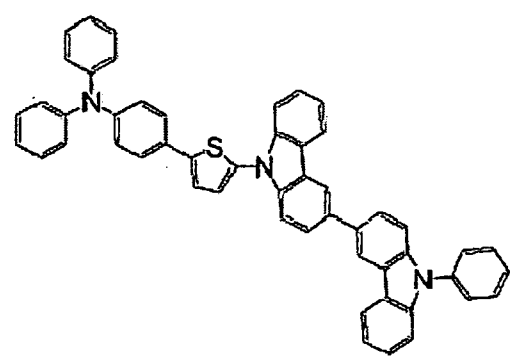
(化合物 75)



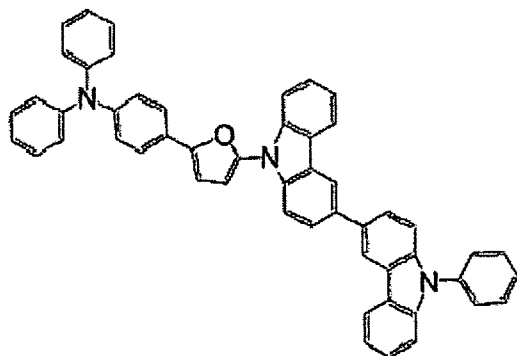
(化合物 76)



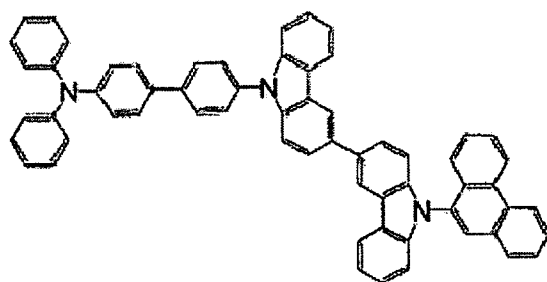
(化合物 77)



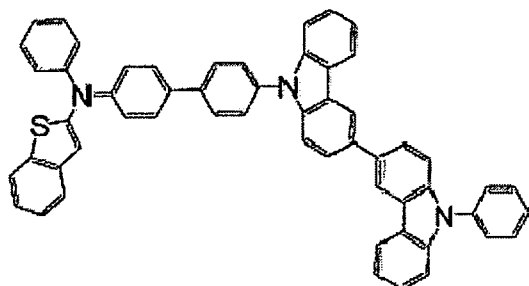
(化合物 78)



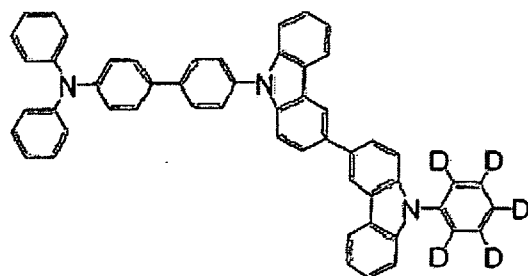
(化合物 79)



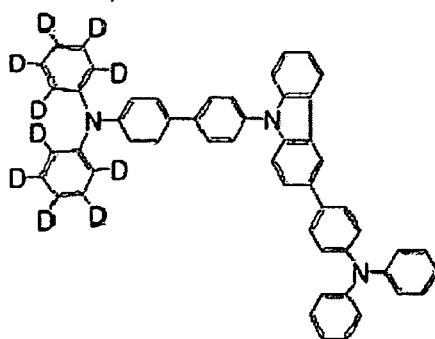
(化合物 80)



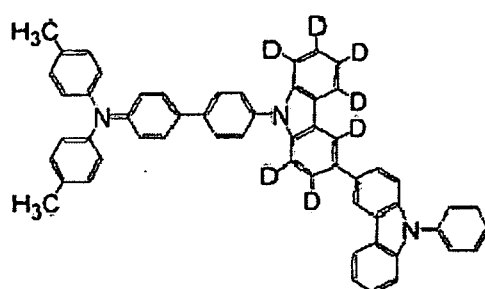
(化合物 81)



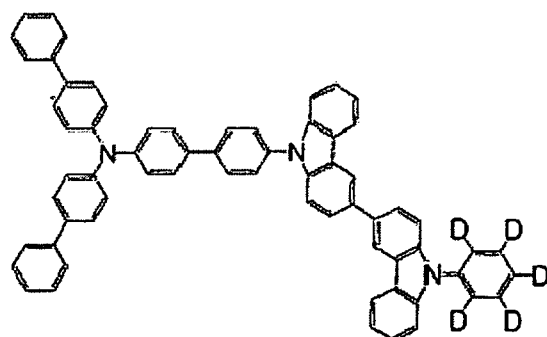
(化合物 82)



(化合物 83)



(化合物 84)



(化合物 85)

該等化合物的精製係透過管柱層析精製、矽膠、活性碳及活性白土等吸附精製、以及溶劑再結晶及結晶化方法等實施。化合物的鑑定係透過 NMR 分析實施。實施玻璃轉化溫度(Tg)與功函數的測定作為物性值。玻璃轉化溫度(Tg)為薄膜狀態穩定性之指標，功函數為電洞傳輸性的指標。

玻璃轉化溫度(Tg)係透過使用粉末的高感度差示掃描量熱計 (Bruker AXS 製，DSC3100S)求得。

功函數，製造 100nm 的薄膜於 ITO 基板上，使用理研計器製

的大氣中光電分光裝置 AC-3 型進行測定。

作為本發明之有機 EL 元件的構造，可列舉出者有：在基板上依序由陽極、電洞傳輸層、電子阻礙層、發光層、電子傳輸層、以及陰極組成者，或是，在陽極與電洞傳輸層之間具有電洞注入層者、以及在電子傳輸層與陰極之間具有電子注入層者。該等多層構造中可省略幾層的有機層，例如亦可於基板上依序具有陽極、電洞傳輸層、發光層、電子傳輸層、以及陰極而構成。

本發明之有機 EL 元件的陽極使用像 ITO 或金一樣功函數大的電極材料。本發明的電洞注入層，除了本發明的通式(1)所示之具有咔唑環構造的化合物之外，可使用銅苯二甲藍代表的卟啉化合物、星爆型的三苯胺衍生物、以及種種的三苯胺四聚體等材料及塗布型的高分子材料。該等材料除了蒸鍍法之外，可藉由旋轉塗布法及噴墨法等公知的方法進行薄膜形成。

本發明的電洞傳輸層，除了本發明的通式(1)所示之具有咔唑環構造的化合物之外，可使用 N,N'-二苯基-N,N'-二(間甲苯基)聯苯胺(N,N'-Diphenyl-N,N'-di(m-tolyl)benzidine；以下簡稱 TPD)、N,N'-二苯基-N,N'-二(α-萘基)聯苯胺(N,N'-Diphenyl-N,N'-di(α-naphthyl)benzidine；以下簡稱 NPD)及 N,N,N',N'-四聯苯基聯苯胺等聯苯胺衍生物、以及種種的三苯胺三聚體及四聚體等。該等化合物可單獨成膜，亦可與其他材料一起混合作為成膜的單層而使用，抑或是作為單獨成膜的層之間、混合成膜的層之間、或是單獨成膜的層與混合成膜的層之疊層構造。另外，電洞的注入・傳輸層可使用聚 3,4-二氧乙炔噻吩(Poly(3,4-ethylenedioxythiophene)；以下簡稱 PEDOT)/聚苯乙烯磺酸酯(polystyrene sulfonate；以下簡稱 PSS)等塗布型的高分子材料。該等材料除了蒸鍍法之外，可藉由旋轉塗布法及噴墨法等公知的方法進行薄膜形成。

本發明的電子阻礙層，除了本發明的通式(1)所示之具有咔唑環構造的化合物之外，可使用 4,4',4''-三(N-咔唑基)三苯胺(4,4',4''-tri(N-carbazolyl)triphenylamine；以下簡稱 TCTA)、9,9-

雙[4-(咔唑-9-基)苯基]萸、以及 1,3-雙(咔唑-9-基)苯(1,3-bis(carbazol-9-yl) benzene；以下簡稱 mCP)等咔唑衍生物、以及具有 9-[4-(咔唑-9-基)苯基]-9-[4-(三苯矽基)苯基]-9H-萸代表的三苯矽基與三芳胺構造的化合物等具有電子阻礙作用的化合物。

本發明的發光層，除了以 Alq₃ 為例之羥基喹啉衍生物的金屬錯合物之外，可使用各種金屬錯合物、蔥衍生物、雙苯乙烯衍生物、芘衍生物、噁唑衍生物、以及聚對苯撐乙烯衍生物等。另外，可用主體材料與摻雜物材料構成發光層，作為主體材料，除了本發明的通式(1)所示之具有咔唑環構造的化合物以及前述發光材料之外，亦可使用噻唑衍生物、苯并咪唑衍生物、以及聚二烷基萸衍生物等。再者，作為摻雜物材料，可使用喹吡啶酮、香豆素、紅螢烯、芘、以及該等化合物之衍生物、苯并吡喃衍生物、玫瑰紅衍生物、以及胺基苯乙烯衍生物等。該等化合物可單獨成膜，亦可與其他材料一起混合作為成膜的單層而使用，抑或是作為單獨成膜的層之間、混合成膜的層之間、或是單獨成膜的層與混合成膜的層之疊層構造。該等材料除了蒸鍍法之外，可藉由旋轉塗布法及噴墨法等公知的方法進行薄膜形成。

再者，亦可使用磷光發光材料作為發光材料。磷光發光體係使用 Ir(ppy)₃ 等綠色的磷光發光體、FIrpic 及 FIr6 等藍色的磷光發光體、以及 Btp₂Ir(acac)等紅色的磷光發光體等，此時的主體材料可使用 4,4-二(N-咔唑基)聯苯(以下簡稱為 CBP)、TCTA 及 mCP 等咔唑衍生物等、以及本發明的通式(1)所示之具有咔唑環構造的化合物作為電洞注入、傳輸性的主體材料。作為電子傳輸性的主體材料，可使用 2,2',2''-(1,3,5-伸苯基)-參(1-苯基-1H-苯并咪唑)(以下簡稱為 TPBI)等，並可製造高性能的有機 EL 元件。

本發明的電洞阻礙層，除了浴銅靈(以下簡稱為 BCP)等啡啉衍生物、以及羥基喹啉衍生物的金屬錯合物之外，可使用各種的稀土類錯合物、三唑衍生物、三氮雜苯衍生物、以及噁二唑衍生物等。該等材料可兼作為電子傳輸層的材料。

本發明的電子傳輸層，除了以 Alq₃ 為例之羥基喹啉衍生物的

金屬錯合物之外，可使用各種金屬錯合物、三唑衍生物、三氮雜苯衍生物、噁二唑衍生物、噻二唑衍生物、碳二醯亞胺衍生物、喹噁啉衍生物、啡啉衍生物、以及噻咯衍生物等。該等化合物可單獨成膜，亦可與其他材料一起混合作為成膜的單層而使用，抑或是作為單獨成膜的層之間、混合成膜的層之間、或是單獨成膜的層與混合成膜的層之疊層構造。該等材料除了蒸鍍法之外，可藉由旋轉塗布法及噴墨法等公知的方法進行薄膜形成。

本發明的電子注入層，可使用氟化鋰、氟化銫等鹼金屬鹽、氟化鎂等鹼土類金屬鹽、以及氧化鋁等金屬氧化物等。

本發明的陰極使用像鋁一樣功函數低的電極材料，以及像鎂銀合金、鎂銦合金及鋁鎂合金一樣功函數更低的合金作為電極材料。

關於本發明的實施形態，以下根據實施例更詳細說明，但本發明並非限定於以下實施例。

[實施例 1]

<二苯基-[4'-(9'-苯基-9H,9'H-[3,3']聯咪唑-9-基)聯苯-4-基]胺(化合物 8)的合成>

在氮氣取代的反應容器中加入 3-溴-9H-咪唑 3.6g、9-苯基-3-(4,4,5,5-四甲基-[1,3,2] 二噁硼烷-2-基)-9H-咪唑 6.0g、甲苯 40ml、乙醇 10ml、以及 2M 碳酸鉀水溶液 11ml，一邊照射超音波，一邊使氮氣流通 30 分鐘。加入四(三苯膦)鈦 0.85g 並加熱，在 74℃ 下攪拌 3.5 小時。加入甲苯 100ml 並加熱，在 80℃ 下攪拌 1 小時後，冷卻至 50℃，將不溶物質過濾而去除，在減壓下濃縮濾液而得到黃白色的粗製物。在粗製物中加入甲苯 300ml 使其溶解，使用 NH 矽膠 16.11g 進行吸附精製後，在減壓下濃縮而得到白色粉末。將白色粉末藉由乙酸乙酯 35ml 一邊進行加熱，一邊進行分散清洗而精製，得到 9-苯基-9H,9'H-[3,3']聯咪唑 1.96g(產率 32.7%) 的白色粉末。

在氮氣取代的反應容器中加入 9-苯基-9H,9'H-[3,3']聯咪唑 1.80g、N-(4'-碘-聯苯-4-基)二苯胺 1.88g、亞硫酸氫鈉 0.07g、銅粉

0.013g、3,5-二(三級丁基)水楊酸 0.05g、碳酸鉀 0.87g、以及十二烷基苯 20ml 並加熱，在 210°C 下攪拌 4 小時。冷卻至 90°C，加入甲苯 30ml 並提取後，在減壓下濃縮，透過正己烷 20ml 而結晶化得到淡黃白色粉末。藉由在淡黃白色粉末中使用甲苯/甲醇重複 2 次再結晶精製，而得到二苯基-[4'-(9'-苯基-9H,9'H-[3,3']聯吡啶-9-基)聯苯-4-基]胺(化合物 8)2.34g(產率 76.5%)的白色粉末。

使用 NMR 鑑定得到的白色粉末之構造。1H-NMR 測定結果示於圖 1。

在 1H-NMR(THF-d₈)檢測出以下 37 個氫的訊號。δ(ppm)= 8.56(2H)、8.27(2H)、7.91(2H)、7.82(2H)、7.65-7.71(8H)、7.47-7.65(4H)、7.37-7.42(3H)、7.25-7.29(6H)、7.13-7.17(6H)、7.03(2H)。

[實施例 2]

<聯苯-4-基-[4'-(9'-苯基-9H,9'H-[3,3']聯吡啶-9-基)聯苯-4-基]-苯胺(化合物 13)的合成>

在氮氣取代的反應容器中加入 9-(4-溴苯基)-9'-苯基-9H,9'H-[3,3']聯吡啶 11g、聯苯-4-基-[4-(4,4,5,5-四甲基-[1,3,2]二噁硼烷-2-基)苯基]-苯胺 9g、甲苯 130ml、乙醇 30ml、以及 2M 碳酸鉀水溶液 30ml，一邊照射超音波，一邊使氮氣流通 30 分鐘。加入三苯膦 0.67g 並加熱，在 70°C 下攪拌 6 小時。冷卻至室溫，採取有機層後，進行飽和食鹽水 100ml 清洗及硫酸鎂脫水，然後在減壓下濃縮而得到粗製物。將粗製物透過矽膠管柱層析而精製，而得到聯苯-4-基-[4'-(9'-苯基-9H,9'H-[3,3']聯吡啶-9-基)聯苯-4-基]-苯胺(化合物 13)14.6g(產率 74%)的白色粉末。

使用 NMR 鑑定得到的白色粉末之構造。1H-NMR 測定結果示於圖 2。

在 1H-NMR(THF-d₈)檢測出以下 41 個氫的訊號。δ(ppm)= 8.57(2H)、8.27(2H)、7.92(2H)、7.83(2H)、7.18-7.72(32H)、7.06(1H)。

[實施例 3]

<雙(聯苯-4-基)-[4'-(9'-苯基-9H,9'H-[3,3']聯吡啶-9-基)聯苯

-4-基]胺(化合物 14)的合成>

在氮氣取代的反應容器中加入 9-(4-溴苯基)-9'-苯基-9H,9'H-[3,3']聯咪唑 11g、雙(聯苯-4-基)-[4-(4,4,5,5-四甲基-[1,3,2]二噁硼烷-2-基)苯基]胺 12g、甲苯 140ml、乙醇 35ml、以及 2M 碳酸鉀水溶液 29ml，一邊照射超音波，一邊使氮氣流通 30 分鐘。加入三苯膦 0.68g 並加熱，在 70°C 下攪拌 8 小時。冷卻至室溫，採取有機層後，進行飽和食鹽水 150ml 清洗及硫酸鎂脫水，然後在減壓下濃縮而得到粗製物。將粗製物透過矽膠管柱層析而精製，而得到雙(聯苯-4-基)-[4'-(9'-苯基-9H,9'H-[3,3']聯咪唑-9-基)聯苯-4-基]胺(化合物 14)12.2g(產率 71%)的白色粉末。

使用 NMR 鑑定得到的白色粉末之構造。¹H-NMR 測定結果示於圖 3。

在 ¹H-NMR(THF-d₈)檢測出以下 45 個氫的訊號。δ(ppm)=8.57(2H)、8.27(2H)、7.92(2H)、7.82(2H)、7.24-7.63(37H)。

[實施例 4]

<二苯基-[2-(9'-苯基-9H,9'H-[3,3']聯咪唑-9-基)9,9-二甲基芴-7-基]胺(化合物 22)的合成>

在氮氣取代的反應容器中加入 9-苯基-9H,9'H-[3,3']聯咪唑 1.0g、N-(2-溴 9,9-二甲基芴-7-基)二苯胺 1.08g、亞硫酸氫鈉 0.04g、銅粉 0.008g、3,5-二(三級丁基)水楊酸 0.031g、碳酸鉀 0.51g、以及十二烷基苯 5ml 並加熱，在 215°C 下攪拌 11 小時。冷卻至 100°C，加入甲苯 50ml 並提取後，在減壓下濃縮，透過正己烷 10ml 而結晶化得到褐色的粗晶。在該粗晶中加入甲苯 30ml 使其溶解，使用矽膠 8.7g 重複 2 次吸附精製而得到棕紅色的粗製物。將粗製物透過乙酸乙酯/正己烷的混合溶劑分散清洗，接著重複透過乙酸乙酯分散清洗，進一步藉由甲苯/甲醇的混合溶劑使其結晶而得到白色粉末。將得到的粉末進行乙酸乙酯分散清洗及甲醇分散清洗後，在減壓下乾燥而得到二苯基-[2-(9'-苯基-9H,9'H-[3,3']聯咪唑-9-基)9,9-二甲基芴-7-基]胺(化合物 22)0.87g(產率 46.3%)的白色粉末。

使用 NMR 鑑定得到的白色粉末之構造。¹H-NMR 測定結果示於圖 4。

在 ¹H-NMR(THF-d₈)檢測出以下 41 個氫的訊號。δ(ppm)= 8.53(2H)、8.23(2H)、7.90(1H)、7.78(2H)、7.67-7.71(2H)、7.60-7.62(4H)、7.33-7.55(8H)、7.26(1H)、7.20-7.24(6H)、7.10(4H)、6.96-7.03(3H)、1.47(6H)。

[實施例 5]

<二苯基-[4'-{3-[(二苯胺)苯-4-基]-9H-吡啶-9-基}聯苯-4-基]胺(化合物 26)的合成>

在氮氣取代的反應容器中加入與實施例 1 同樣方法合成的 3-[(二苯胺)苯-4-基]-9H-吡啶 1.5g、N-(4'-碘-聯苯-4-基)-二苯胺 1.63g、亞硫酸氫鈉 0.06g、銅粉 0.012g、3,5-二(三級丁基)水楊酸 0.05g、碳酸鉀 0.76g、以及十二烷基苯 10ml 並加熱，在 205°C 下攪拌 6.5 小時。冷卻至 90°C，加入甲苯 50ml 並提取後，在減壓下濃縮，透過正己烷 30ml 而結晶化得到淡黃色的粗製物。將粗製物透過乙酸乙酯/正己烷的混合溶劑再結晶，乙酸乙酯分散清洗，接著進行甲醇分散清洗而得到二苯基-[4'-{3-[(二苯胺)苯-4-基]-9H-吡啶-9-基}聯苯-4-基]胺(化合物 26)2.16g(產率 81.2%)的白色粉末。

使用 NMR 鑑定得到的白色粉末之構造。¹H-NMR 測定結果示於圖 5。

在 ¹H-NMR(THF-d₈)檢測出以下 39 個氫的訊號。δ(ppm)= 8.43(1H)、8.22(1H)、7.89(2H)、7.64-7.68(7H)、7.46-7.53(2H)、7.39(1H)、7.24-7.29(9H)、7.11-7.17(12H)、6.98-7.05(4H)。

[實施例 6]

<二苯基-[2-{3-[(二苯胺)苯-4-基]-9H-吡啶-9-基}-9,9-二甲基芴-7-基]胺(化合物 38)的合成>

在氮氣取代的反應容器中加入與實施例 1 同樣方法合成的 3-[(二苯胺)苯-4-基]-9H-吡啶 1.03 g、N-(2-溴-9,9-二甲基芴-7-基)-二苯胺 1.1g、亞硫酸氫鈉 0.04g、銅粉 0.008g、3,5-二(三級丁基)水楊酸 0.031g、碳酸鉀 0.52g、以及十二烷基苯 8ml 並加熱，在

210~215°C下攪拌 26 小時。冷卻至 90°C，加入甲苯 30ml 並提取後，在減壓下濃縮而得到紅褐色粗製物。將粗製物透過矽膠管柱層析而精製，進一步透過乙酸乙酯/正己烷的混合溶劑結晶，接著進行甲醇分散清洗而得到二苯基-[2-{3-[(二苯胺)苯-4-基]-9H-吡啶-9-基}-9,9-二甲基萸-7-基]胺(化合物 38)1.49g(產率 77.6%)的淡黃色粉末。

使用 NMR 鑑定得到的白色粉末之構造。¹H-NMR 測定結果示於圖 6。

在 ¹H-NMR(THF-d₈)檢測出以下 43 個氫的訊號。δ(ppm)=8.43(1H)、8.22(1H)、7.93(1H)、7.65-7.73(5H)、7.55(1H)、7.48(1H)、7.45(1H)、7.38(1H)、7.23-7.30(10H)、7.11-7.17(10H)、7.06(1H)、6.98-7.02(4H)、1.50(6H)。

[實施例 7]

本發明的化合物透過高感度差示掃描量熱計(Bruker AXS 製，DSC3100S)求得玻璃轉化溫度。

	玻璃轉化溫度
本發明實施例 1 的化合物	137°C
本發明實施例 2 的化合物	144°C
本發明實施例 3 的化合物	158°C
本發明實施例 4 的化合物	152°C
本發明實施例 5 的化合物	126°C
本發明實施例 6 的化合物	137°C

本發明的化合物具有 100°C 以上的玻璃轉化溫度，表示本發明的化合物之薄膜狀態穩定。

[實施例 8]

使用本發明的化合物在 ITO 基板上製造膜厚 100nm 的蒸鍍膜，以大氣中光電分光裝置(理研計器製，AC-3 型)測定功函數。

	功函數
本發明實施例 1 的化合物	5.54eV
本發明實施例 2 的化合物	5.53eV

本發明實施例 3 的化合物	5.54eV
本發明實施例 4 的化合物	5.51eV
本發明實施例 5 的化合物	5.55eV
本發明實施例 6 的化合物	5.53eV

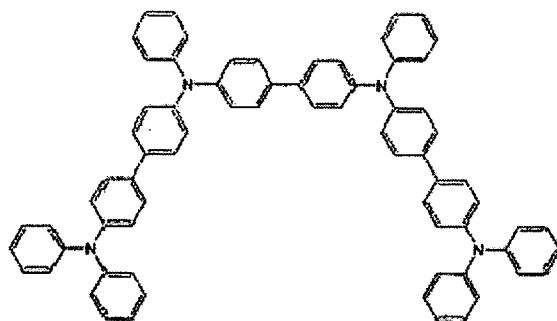
上述之本發明的化合物與具有功函數 5.4eV 的 NPD、TPD 等一般的電洞傳輸材料相比較下，呈現適當的能階，因此吾人可知其具有良好的電洞傳輸能力。

[實施例 9]

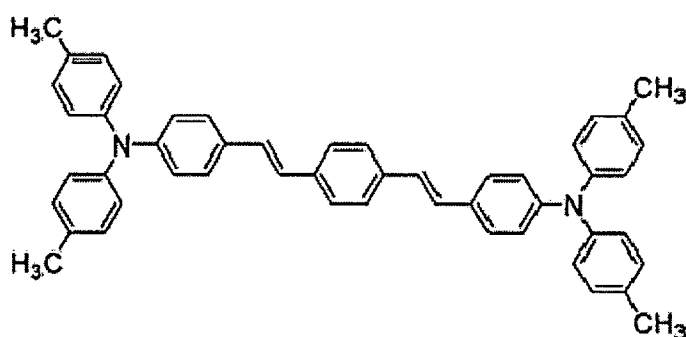
有機 EL 元件，如圖 7 所示，在作為透明陽極 2 的 ITO 電極預先形成於玻璃基板 1 上之前提下，以電洞注入層 3、電洞傳輸層 4、發光層 5、電子傳輸層 7、電子注入層 8、陰極(鋁電極)9 的順序蒸鍍而製成。

具體而言，在將成膜有膜厚 150nm 的 ITO 之玻璃基板 1 以有機溶劑清洗後，採氧氣電漿處理清洗表面。此後，將該 ITO 電極式玻璃基板安裝於真空蒸鍍機內，減壓至 0.001Pa 以下。接著，使以下構造式的化合物 86 形成膜厚 20nm 之覆蓋透明陽極 2 的電洞注入層 3。在該電洞注入層 3 上使本發明實施例 1 之化合物(化合物 8)形成膜厚 40nm 的電洞傳輸層 4。在該電洞傳輸層 4 上將以下構造式的化合物 87 與以下構造式的化合物 88，以蒸鍍速率比係化合物 87：化合物 88=5：95 的蒸鍍速率進行二元蒸鍍，形成膜厚 30nm 發光層 5。在該發光層 5 上，使 Alq₃ 形成膜厚 30nm 的電子傳輸層 7。在電子傳輸層 7 上，使氟化鋰形成膜厚 0.5nm 的電子注入層 8。最後將鋁蒸鍍形成膜厚 150nm 的陰極 9。對於製成的有機 EL 元件，在大氣中、常溫下進行特性測定。

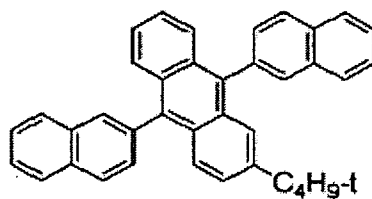
施加直流電壓於使用本發明的實施例 1 之化合物(化合物 8)製成的有機 EL 元件時，其發光特性的測定結果整理示於表 1。



(化合物 86)



(化合物 87)



(化合物 88)

[實施例 10]

將實施例 9 中之電洞傳輸層 4 的材料換成本發明實施例 4 的化合物(化合物 22)，在與實施例 9 同樣的條件下製造有機 EL 元件。對於製成的有機 EL 元件，在大氣中、常溫下進行特性測定。施加直流電壓於製成的有機 EL 元件時，其發光特性的測定結果整理示於表 1。

[實施例 11]

將實施例 9 中之電洞傳輸層 4 的材料換成本發明實施例 5 的化合物(化合物 26)，在與實施例 9 同樣的條件下製造有機 EL 元

件。對於製成的有機 EL 元件，在大氣中、常溫下進行特性測定。施加直流電壓於製成的有機 EL 元件時，其發光特性的測定結果整理示於表 1。

[實施例 12]

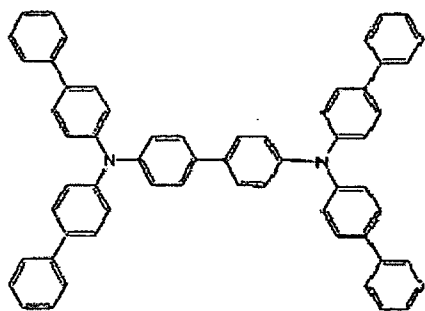
將實施例 9 中之電洞傳輸層 4 的材料換成本發明實施例 6 的化合物(化合物 38)，在與實施例 9 同樣的條件下製造有機 EL 元件。對於製成的有機 EL 元件，在大氣中、常溫下進行特性測定。施加直流電壓於製成的有機 EL 元件時，其發光特性的測定結果整理示於表 1。

[比較例 1]

為了比較，故將實施例 9 中之電洞傳輸層 4 的材料換成該化合物 B，在與實施例 9 同樣的條件下製造有機 EL 元件。對於製成的有機 EL 元件，在大氣中、常溫下進行特性測定。施加直流電壓於製成的有機 EL 元件時，其發光特性的測定結果整理示於表 1。

[比較例 2]

為了比較，故將實施例 9 中之電洞傳輸層 4 的材料換成以下構造式的化合物 89，在與實施例 9 同樣的條件下製造有機 EL 元件。對於製成的有機 EL 元件，在大氣中、常溫下進行特性測定。施加直流電壓於製成的有機 EL 元件時，其發光特性的測定結果整理示於表 1。



(化合物 89)

[表 1]

	化合物	電壓[V] (@10mA/cm ²)	亮度[cd/m ²] (@10mA/cm ²)	發光效率[cd/A] (@10mA/cm ²)	輸出功率[lm/W] (@10mA/cm ²)
實施例 9	化合物 8	4.70	805	8.06	5.39
實施例 10	化合物 22	4.87	993	9.94	6.41
實施例 11	化合物 26	5.27	954	9.55	5.69
實施例 12	化合物 38	5.08	1032	10.34	6.40
比較例 1	化合物 B	5.62	908	9.07	5.06
比較例 2	化合物 89	4.87	783	7.84	5.06

如表 1 所示，電流密度 10mA/cm² 的電流流過時的驅動電壓，相對於化合物 B 的 5.62V、化合物 89 的 4.87V，本發明之實施例 1 的化合物(化合物 8)可低電壓化為 4.70V。另外，實施例 4~6 的化合物(化合物 22、化合物 26、化合物 38)也比化合物 B 更低電壓化。然後，在輸出功率中亦有同樣情況，相對於化合物 B 的 5.06 lm/W、化合物 89 的 5.06 lm/W，本發明之實施例 1 的化合物(化合物 8)上升為 5.39 lm/W，實施例 4~6 的化合物(化合物 22、化合物 26、化合物 38)大幅上升為 5.69~6.41 lm/W。

由以上的結果可明顯得知：本發明之使用具有呋唑環構造的化合物之有機 EL 元件即令與使用已知的該化合物 B 之有機 EL 元件相比較，亦可達成輸出功率之上升，實用驅動電壓之下降。

以下表示使用與前述同樣的有機 EL 元件測定發光起始電壓之結果。

有機 EL 元件	化合物	發光起始電壓[V]
實施例 9	化合物 8	2.7
比較例 1	化合物 B	2.9
比較例 2	化合物 89	2.8

由此結果可知：相對於使用化合物 B 的比較例 1、使用化合物 89 的比較例 2，實施例 9 已使發光起始電壓低電壓化。

[實施例 13]

有機 EL 元件，如圖 8 所示，在作為透明陽極 2 的 ITO 電極預先形成於玻璃基板 1 上之前提下，以電洞傳輸層 4、發光層 5、電洞阻礙層 6、電子傳輸層 7、電子注入層 8、陰極(鋁電極)9 的順

序蒸鍍而製成。

具體而言，在將成膜有膜厚 150nm 的 ITO 之玻璃基板 1 以有機溶劑清洗後，採氧氣電漿處理清洗表面。此後，將該 ITO 電極式玻璃基板安裝於真空蒸鍍機內，減壓至 0.001Pa 以下。接著，使本發明實施例 1 之化合物(化合物 8)形成膜厚 50nm 之覆蓋透明陽極 2 的電洞傳輸層 4。在該電洞傳輸層 4 上，將 TPBI 與 Ir(ppy)₃ 以成分比係 TPBI : Ir(ppy)₃ = 92 : 8 的蒸鍍速率進行二元蒸鍍，形成膜厚 20nm 發光層 5。在該發光層 5 上使 BCP 形成膜厚 10nm 的電洞阻礙層 6。在該電洞阻礙層 6 上，使 Alq₃ 形成膜厚 30nm 的電子傳輸層 7。在電子傳輸層 7 上，使氟化鋰形成膜厚 0.5nm 的電子注入層 8。最後將鋁蒸鍍形成膜厚 150nm 的陰極 9。對於上述製成的有機 EL 元件，在大氣中、常溫下進行特性測定。

電流密度 10mA/cm² 的電流流過使用本發明的實施例 1 之化合物 8 製成的有機 EL 元件時，其發光特性的測定結果整理示於表 2。

[實施例 14]

將實施例 13 中之電洞傳輸層 4 的材料換成本發明實施例 6 的化合物(化合物 38)，在與實施例 13 同樣的條件下製造有機 EL 元件。對於製成的有機 EL 元件，在大氣中、常溫下進行特性測定。施加直流電壓於製成的有機 EL 元件時，其發光特性的測定結果整理示於表 2。

[比較例 3]

為了比較，故將實施例 13 中之電洞傳輸層 4 的材料換成該化合物 89，在與實施例 13 同樣的條件下製造有機 EL 元件。電流密度 10mA/cm² 的電流流過製成的有機 EL 元件時，其發光特性的測定結果整理示於表 2。

[表 2]

	化合物	電壓[V] (@10mA/cm ²)	亮度[cd/m ²] (@10mA/cm ²)	發光效率[cd/A] (@10mA/cm ²)	輸出功率[lm/W] (@10mA/cm ²)
實施例 13	化合物 8	5.35	3112	31.17	18.30
實施例 14	化合物 38	5.30	2830	28.34	16.82
比較例 3	化合物 89	5.89	1896	18.98	10.13

如表 2 所示，電流密度 $10\text{mA}/\text{cm}^2$ 的電流流過時的驅動電壓，相對於化合物 89 的 5.89V，本發明之實施例 1 的化合物(化合物 8) 低電壓化為 5.35V，實施例 6 的化合物(化合物 38)低電壓化為 5.30V。然後，在輸出功率中亦有同樣情況，相對於化合物 89 的 10.13 lm/W，本發明之實施例 1 的化合物(化合物 8) 大幅上升為 18.30 lm/W，實施例 6 的化合物(化合物 38)大幅上升為 16.82lm/W。

由以上的結果可明顯得知：本發明之使用具有咪唑環構造的化合物之有機 EL 元件即令與使用已知的該化合物 89 之有機 EL 元件相比較，亦可達成輸出功率之上升，實用驅動電壓之下降。

產業上利用性

本發明之具有咪唑環構造的化合物，因為電洞傳輸能力高，電子阻礙能力優異，薄膜狀態穩定，所以為優異的有機 EL 元件用之化合物。透過使用該化合物製造有機 EL 元件，在可得到高發光效率以及輸出功率的同時，可使實用驅動電壓下降，並可使耐久性改善。例如，可朝家庭電器設備及照明的用途發展。

【圖式簡單說明】

- 圖 1 本發明實施例 1 之化合物(化合物 8)的 $^1\text{H-NMR}$ 光譜圖。
- 圖 2 本發明實施例 2 之化合物(化合物 13)的 $^1\text{H-NMR}$ 光譜圖。
- 圖 3 本發明實施例 3 之化合物(化合物 14)的 $^1\text{H-NMR}$ 光譜圖。
- 圖 4 本發明實施例 4 之化合物(化合物 22)的 $^1\text{H-NMR}$ 光譜圖。
- 圖 5 本發明實施例 5 之化合物(化合物 26)的 $^1\text{H-NMR}$ 光譜圖。
- 圖 6 本發明實施例 6 之化合物(化合物 38)的 $^1\text{H-NMR}$ 光譜圖。
- 圖 7 實施例 9~12、比較例 1 及 2 的 EL 元件構成示意圖。
- 圖 8 實施例 13、14、以及比較例 3 的 EL 元件構成示意圖。

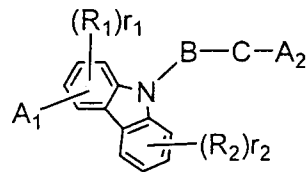
【主要元件符號說明】

- 1~玻璃基板
- 2~透明陽極
- 3~電洞注入層

- 4~電洞傳輸層
- 5~發光層
- 6~電洞阻礙層
- 7~電子傳輸層
- 8~電子注入層
- 9~陰極

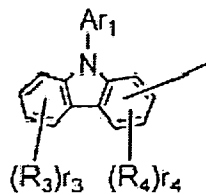
七、申請專利範圍：

1. 一種具有咪唑環構造的化合物，以下述通式(1)表示：



(1)

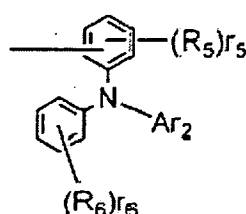
(式中的 R1 與 R2 可相同亦可相異，並代表氫原子、氟原子、氯原子、氫基、硝基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷基、可具有取代基之碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烯基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷氧基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷氧基、無取代的芳香族烴基、無取代的芳香族雜環基、無取代的縮合多環芳香族基、取代或無取代的芳氧基，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環；r1 表示 0 或是 1~3 的整數，r2 表示 0 或是 1~4 的整數，A1 與 A2 可相同亦可相異，A1 表示下述通式(2)或(3)所示的 1 價基，A2 表示下述通式(2)~(7)所示的 1 價基，B 表示聯伸苯基或伸萸基，C 表示單鍵結；但是，A1 與 A2 不可同時為下述通式(2)；)



(2)

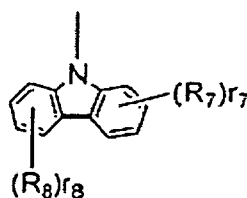
(式中的 R3 與 R4 可相同亦可相異，並代表氫原子、氟原子、氯原子、氫基、硝基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷基、可具有取代基之碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烯基、可具有

取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷氧基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷氧基、取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、取代或無取代的縮合多環芳香族基、取代或無取代的芳氧基，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環；r3 表示 0 或是 1~4 的整數，r4 表示 0 或是 1~3 的整數，Ar1 表示無取代的芳香族烴基、無取代的芳香族雜環基、或是無取代的縮合多環芳香族基；)



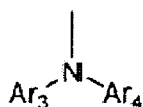
(3)

(式中的 R5 與 R6 可相同亦可相異，並代表氫原子、氟原子、氯原子、氰基、硝基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷基、可具有取代基之碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烯基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷氧基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷氧基、取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、取代或無取代的縮合多環芳香族基、取代或無取代的芳氧基，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環；r5、r6 表示 0，Ar2 表示無取代的芳香族烴基、無取代的芳香族雜環基、或是無取代的縮合多環芳香族基；)



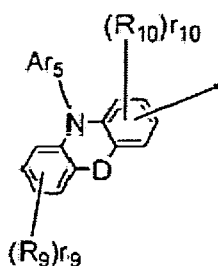
(4)

(式中的 R7 與 R8 可相同亦可相異，並代表氫原子、氟原子、氯原子、氰基、硝基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷基、可具有取代基之碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烯基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷氧基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷氧基、取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、取代或無取代的縮合多環芳香族基、取代或無取代的芳氧基，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環；r7 與 r8 可相同亦可相異，並代表 0 或是 1~4 的整數；)



(5)

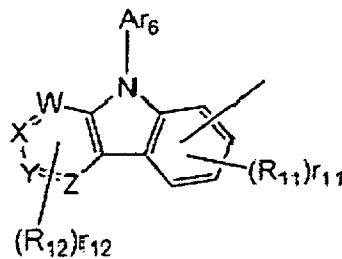
(式中的 Ar3 與 Ar4 可相同亦可相異，並代表取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、或是取代或無取代的縮合多環芳香族基，該等化學基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環；)



(6)

(式中的 R9 與 R10 可相同亦可相異，並代表氫原子、氟原子、氯原子、氰基、硝基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷基、可具有取代基之碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烯基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷氧基、可具有取

代基之碳原子數 5 至 10 的環烷氧基、取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、取代或無取代的縮合多環芳香族基、取代或無取代的芳氧基，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環； r_9 表示 0 或 1~4 的整數， r_{10} 表示 0 或 1~3 的整數， Ar_5 表示取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、或是取代或無取代的縮合多環芳香族基， D 表示取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子；)

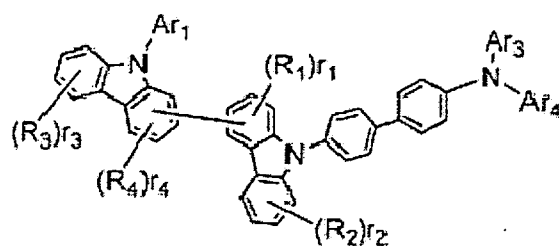


(7)

(式中的 R_{11} 與 R_{12} 可相同亦可相異，並代表氫原子、氟原子、氯原子、氫基、硝基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷基、可具有取代基之碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烯基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷氧基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷氧基、取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、取代或無取代的縮合多環芳香族基、取代或無取代的芳氧基，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環； r_{11} 與 r_{12} 可相同亦可相異，並代表 0 或是 1~3 的整數， Ar_6 表示取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、或是取代或無取代的縮合多環芳香族基， W 、 X 、 Y 及 Z 表示碳原子或是氮原子；在此之 W 、 X 、 Y 及 Z 中僅有一個為氮原子，且此情況下的氮原子不具有 R_{12} 的取代基。)

2. 如申請專利範圍第 1 項之具有咪唑環構造的化合物，其中該通式(1)中之 A_1 為該通式(2)所示的 1 價基。

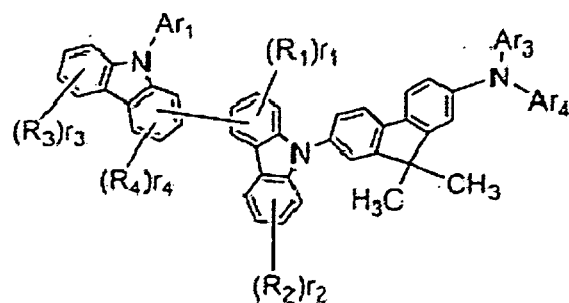
3. 如申請專利範圍第 1 或 2 項之具有咪唑環構造的化合物，其中該通式(1)中之 A2 為該通式(2)所示的 1 價基。
4. 如申請專利範圍第 1 或 2 項之具有咪唑環構造的化合物，其中該通式(1)中之 A2 為該通式(3)所示的 1 價基。
5. 如申請專利範圍第 1 或 2 項之具有咪唑環構造的化合物，其中該通式(1)中之 A2 為該通式(4)所示的 1 價基。
6. 如申請專利範圍第 1 或 2 項之具有咪唑環構造的化合物，其中該通式(1)中之 A2 為該通式(5)所示的 1 價基。
7. 如申請專利範圍第 6 項之具有咪唑環構造的化合物，以下述通式(1a)表示：



(1a)

(式中的 R1、R2、R3 與 R4 可相同亦可相異，表示和申請專利範圍第 1 項中相同的取代基，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環；r1 與 r4 可相同亦可相異，並代表 0 或 1~3 的整數，r2 與 r3 可相同亦可相異，並代表 0 或 1~4 的整數，Ar1、Ar3 與 Ar4 可相同亦可相異，表示和申請專利範圍第 1 項中相同的取代基；在此，Ar3 與 Ar4 亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環。)

8. 如申請專利範圍第 6 項之具有咪唑環構造的化合物，以下述通式(1b)表示：



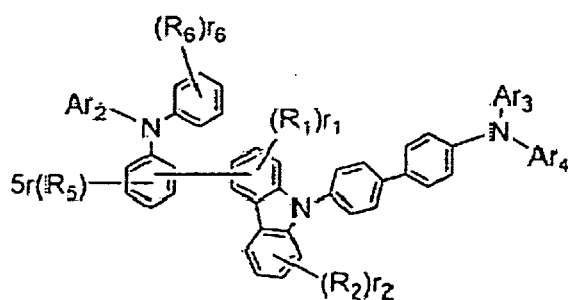
(1b)

(式中的 R1、R2、R3 與 R4 可相同亦可相異，表示和申請專利範圍第 1 項中相同的取代基，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環；r1 與 r4 可相同亦可相異，並代表 0 或 1~3 的整數，r2 與 r3 可相同亦可相異，並代表 0 或 1~4 的整數，Ar1、Ar3 與 Ar4 可相同亦可相異，表示和申請專利範圍第 1 項中相同的取代基；在此，Ar3 與 Ar4 亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環。)

9. 如申請專利範圍第 1 項之具有咪唑環構造的化合物，其中該通式(1)中之 A1 為該通式(3)所示的 1 價基。

10. 如申請專利範圍第 9 項之具有咪唑環構造的化合物，其中該通式(1)中之 A2 為該通式(5)所示的 1 價基。

11. 如申請專利範圍第 10 項之具有咪唑環構造的化合物，以下述通式(1c)表示：

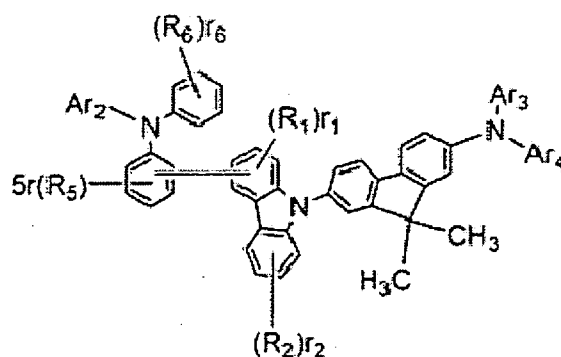


(1c)

(式中的 R1、R2、R5 與 R6 可相同亦可相異，表示和申請專利範圍第 1 項中相同的取代基，該等取代基亦可透過單鍵結、取

代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環； r_1 代表 0 或 1~3 的整數， r_2 代表 0 或 1~4 的整數， r_5 、 r_6 代表 0， Ar_2 、 Ar_3 與 Ar_4 可相同亦可相異，代表和申請專利範圍第 1 項中相同的取代基；在此， Ar_3 與 Ar_4 亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環。)

12. 如申請專利範圍第 10 項之具有咪唑環構造的化合物，以下述通式(1d)表示：

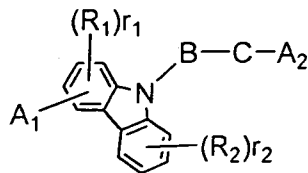


(1d)

(式中的 R_1 、 R_2 、 R_5 與 R_6 可相同亦可相異，表示和申請專利範圍第 1 項中相同的取代基，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環； r_1 代表 0 或 1~3 的整數， r_2 代表 0 或 1~4 的整數， r_5 、 r_6 代表 0， Ar_2 、 Ar_3 與 Ar_4 可相同亦可相異，表示和申請專利範圍第 1 項中相同的取代基；在此， Ar_3 與 Ar_4 亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環。)

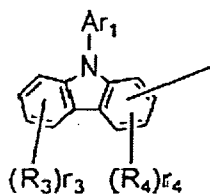
13. 一種有機電致發光元件，包含：

在具有一對電極與夾在其之間的至少一層之有機層的有機電致發光元件中，下述通式(1)所示之具有咪唑環構造的化合物係作為至少一層有機層之構成材料而使用；



(1)

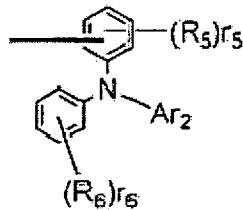
(式中的 R1 與 R2 可相同亦可相異，並代表氫原子、氟原子、氯原子、氰基、硝基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷基、可具有取代基之碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烯基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷氧基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷氧基、無取代的芳香族烴基、無取代的芳香族雜環基、無取代的縮合多環芳香族基、取代或無取代的芳氧基，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環；r1 表示 0 或是 1~3 的整數，r2 表示 0 或是 1~4 的整數，A1 與 A2 可相同亦可相異，A1 表示下述通式(2)或(3)所示的 1 價基，A2 表示下述通式(2)~(7)所示的 1 價基，B 表示聯伸苯基或伸萸基，C 表示單鍵結；但是，A1 與 A2 不可同時為下述通式(2)；)



(2)

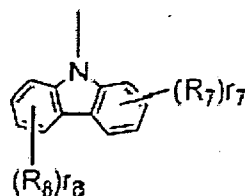
(式中的 R3 與 R4 可相同亦可相異，並代表氫原子、氟原子、氯原子、氰基、硝基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷基、可具有取代基之碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烯基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷氧基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷氧基、取代或無取代的芳香族烴

基、取代或無取代的芳香族雜環基、取代或無取代的縮合多環芳香族基、取代或無取代的芳氧基，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環； r_3 表示 0 或是 1~4 的整數， r_4 表示 0 或是 1~3 的整數， Ar_1 表示無取代的芳香族烴基無取代的芳香族雜環基、或是無取代的縮合多環芳香族基；)



(3)

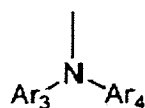
(式中的 R_5 與 R_6 可相同亦可相異，並代表氫原子、氟原子、氯原子、氫基、硝基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷基、可具有取代基之碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烯基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷氧基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷氧基、取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、取代或無取代的縮合多環芳香族基、取代或無取代的芳氧基，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環； r_5 、 r_6 表示 0， Ar_2 表示無取代的芳香族烴基、無取代的芳香族雜環基、或是無取代的縮合多環芳香族基；)



(4)

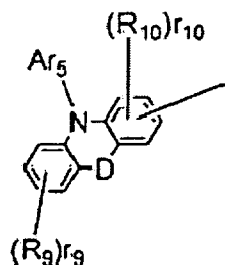
(式中的 R_7 與 R_8 可相同亦可相異，並代表氫原子、氟原子、氯原子、氫基、硝基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀

或分枝狀的烷基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷基、可具有取代基之碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烯基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷氧基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷氧基、取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、取代或無取代的縮合多環芳香族基、取代或無取代的芳氧基，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環；r7 與 r8 可相同亦可相異，並代表 0 或是 1~4 的整數；)



(5)

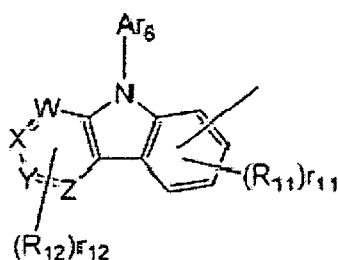
(式中的 Ar3 與 Ar4 可相同亦可相異，並代表取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、或是取代或無取代的縮合多環芳香族基，該等化學基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環；)



(6)

(式中的 R9 與 R10 可相同亦可相異，並代表氫原子、氟原子、氯原子、氰基、硝基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷基、可具有取代基之碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烯基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷氧基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷氧基、取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、取代或無取代的縮合多環芳

香族基、取代或無取代的芳氧基，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環； r_9 表示 0 或 1~4 的整數， r_{10} 表示 0 或 1~3 的整數， Ar_5 表示取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、或是取代或無取代的縮合多環芳香族基， D 表示取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子；)



(7)

(式中的 R_{11} 與 R_{12} 可相同亦可相異，並代表氫原子、氟原子、氯原子、氫基、硝基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷基、可具有取代基之碳原子數 2 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烯基、可具有取代基之碳原子數 1 至 6 的直鏈狀或分枝狀的烷氧基、可具有取代基之碳原子數 5 至 10 的環烷氧基、取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、取代或無取代的縮合多環芳香族基、取代或無取代的芳氧基，該等取代基亦可透過單鍵結、取代或無取代的甲烯基、氧原子或是硫原子相互鍵結而形成環； r_{11} 與 r_{12} 可相同亦可相異，並代表 0 或是 1~3 的整數， Ar_6 表示取代或無取代的芳香族烴基、取代或無取代的芳香族雜環基、或是取代或無取代的縮合多環芳香族基， W 、 X 、 Y 及 Z 表示碳原子或是氮原子；在此之 W 、 X 、 Y 及 Z 中僅有一個為氮原子，且此情況下的氮原子不具有 R_{12} 的取代基。)

14. 如申請專利範圍第 13 項之有機電致發光元件，其中前述有機層為電洞傳輸層；該通式(1)所示之化合物在該電洞傳輸層中作為至少一種構成材料而使用。

15. 如申請專利範圍第 13 項之有機電致發光元件，其中前述有機層為電子阻礙層；該通式(1)所示之化合物在該電子阻礙層中作為至少一種構成材料而使用。

16. 如申請專利範圍第 13 項之有機電致發光元件，其中前述有機層為電洞注入層；該通式(1)所示之化合物在該電洞注入層中作為至少一種構成材料而使用。

17. 如申請專利範圍第 13 項之有機電致發光元件，其中前述有機層為發光層；該通式(1)所示之化合物在該發光層中作為至少一種構成材料而使用。

~~103年11月3日修正替換頁
099128846(無劃線版)~~

八、圖式：

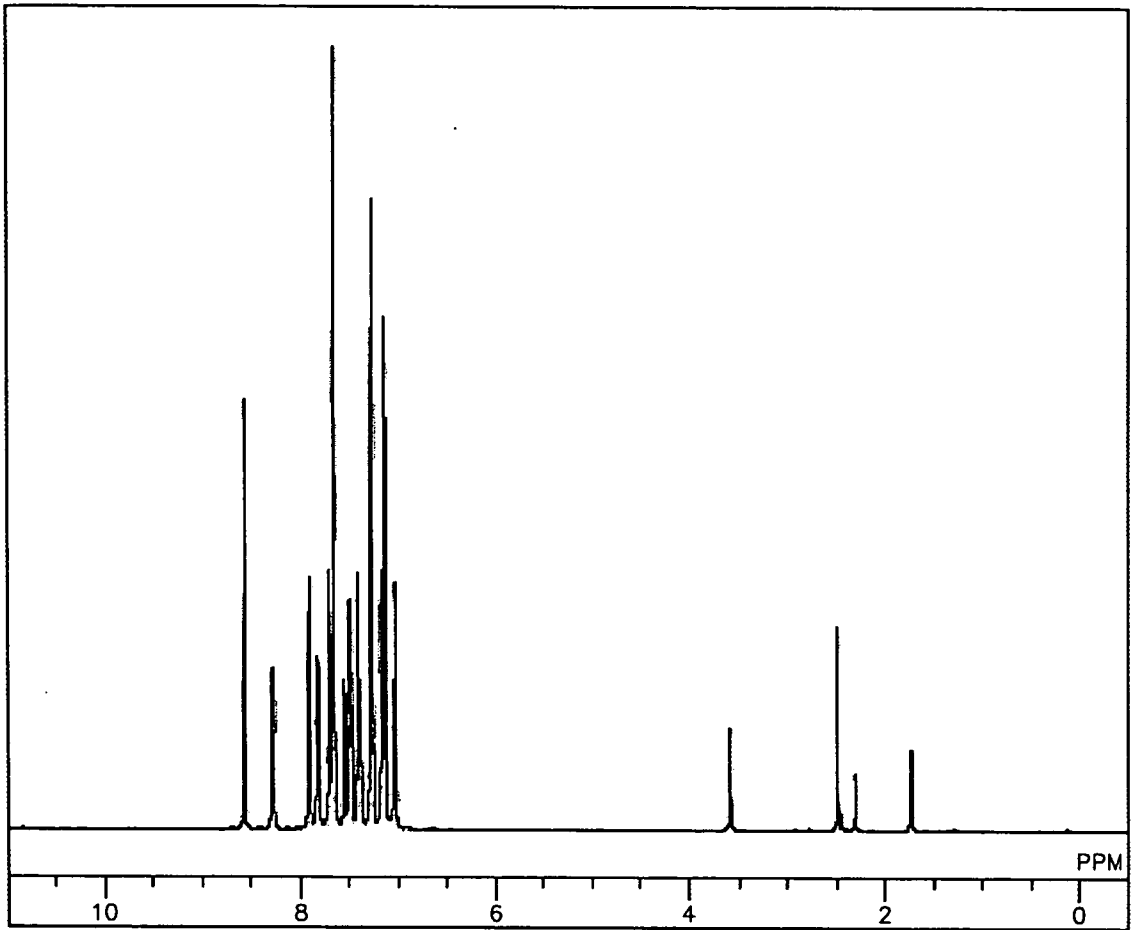


圖 1

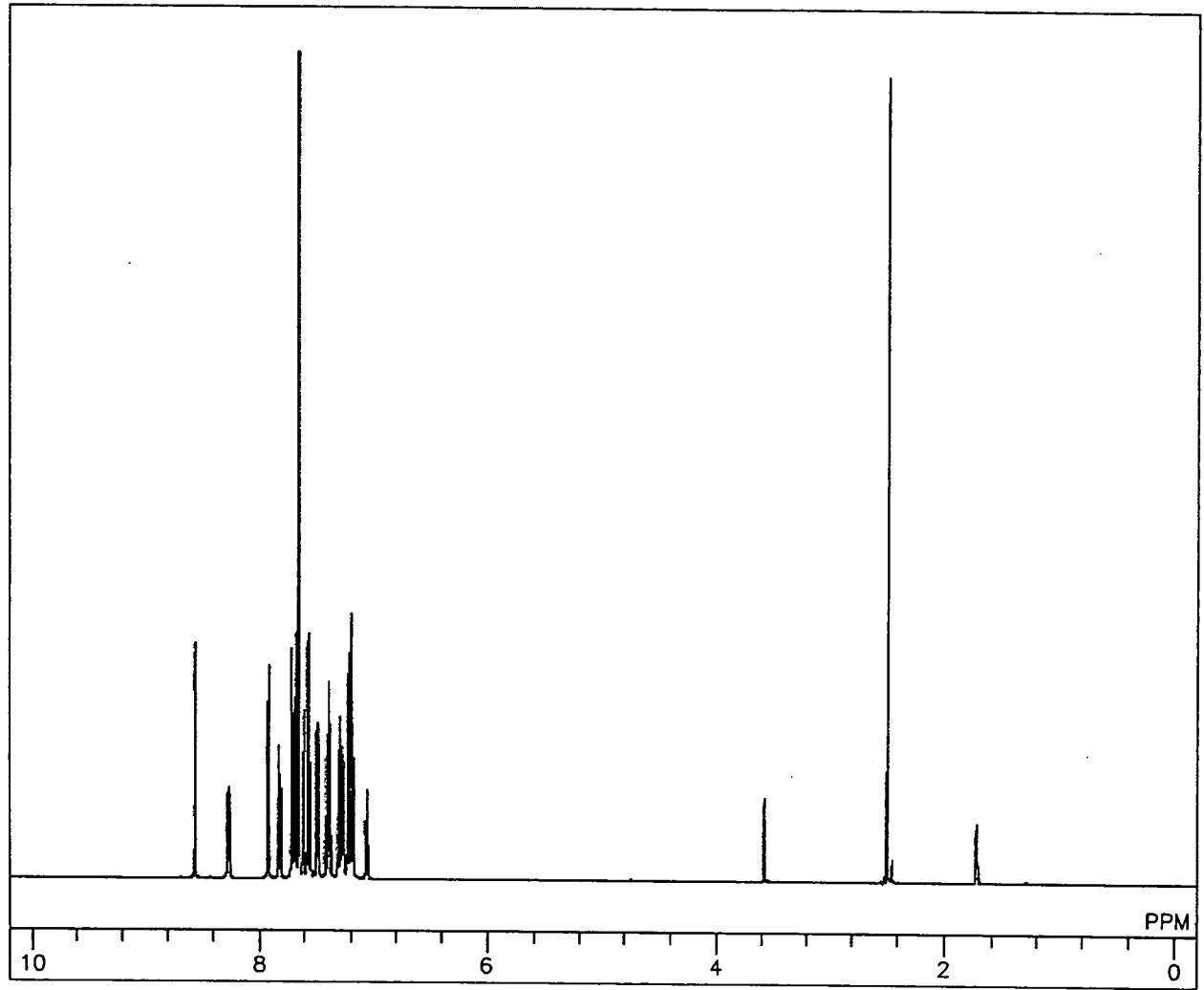


圖 2

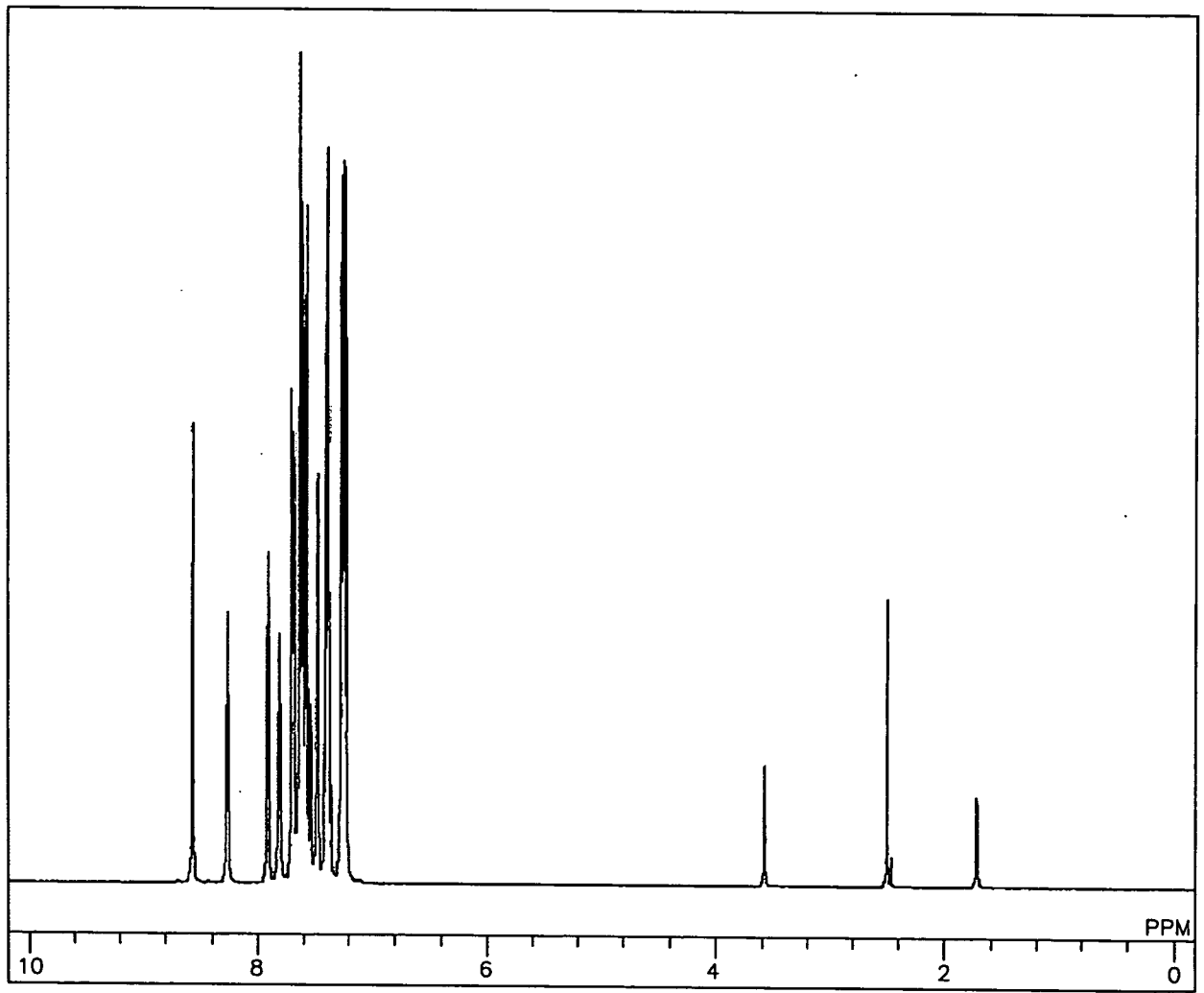


圖 3

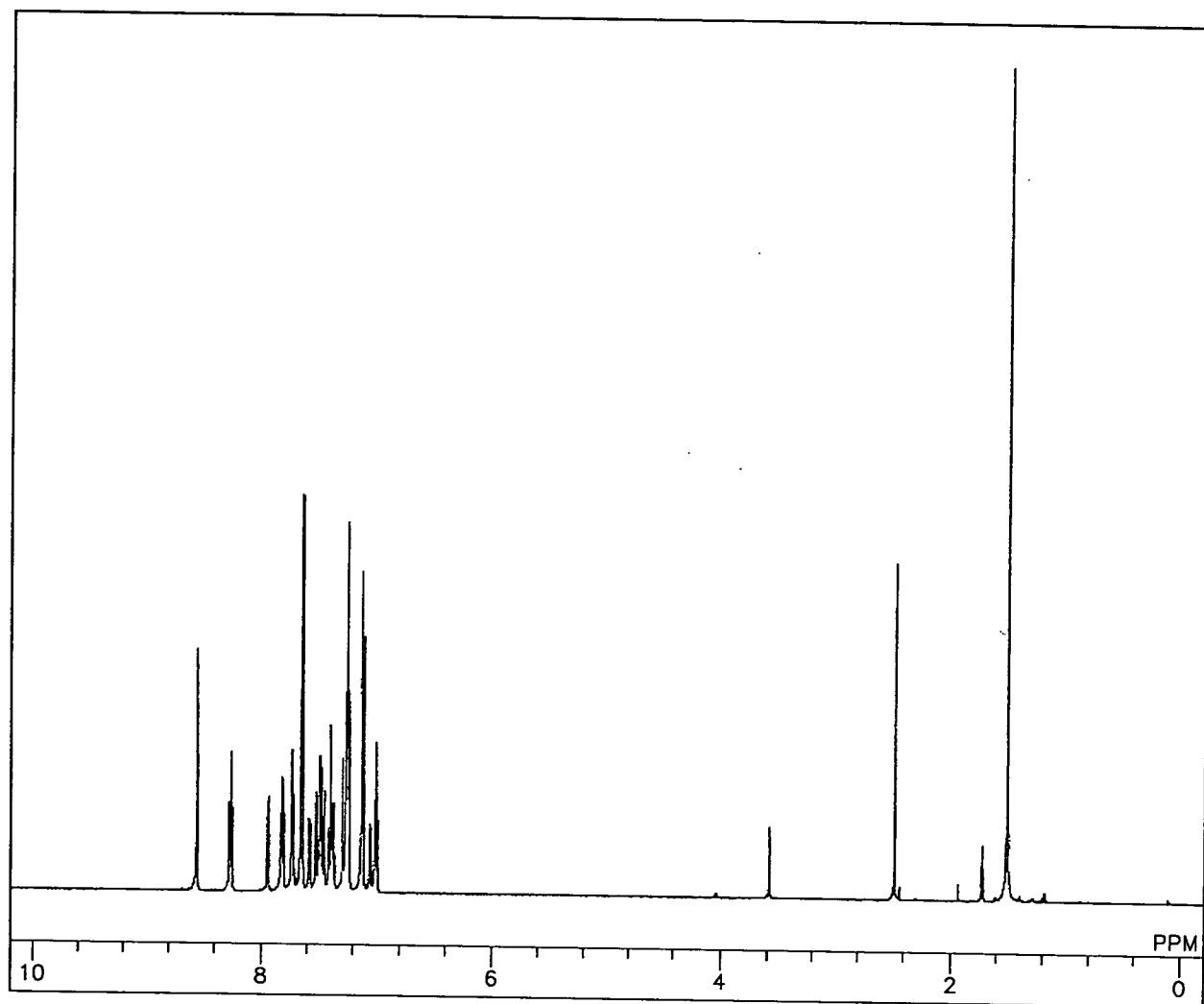


圖 4

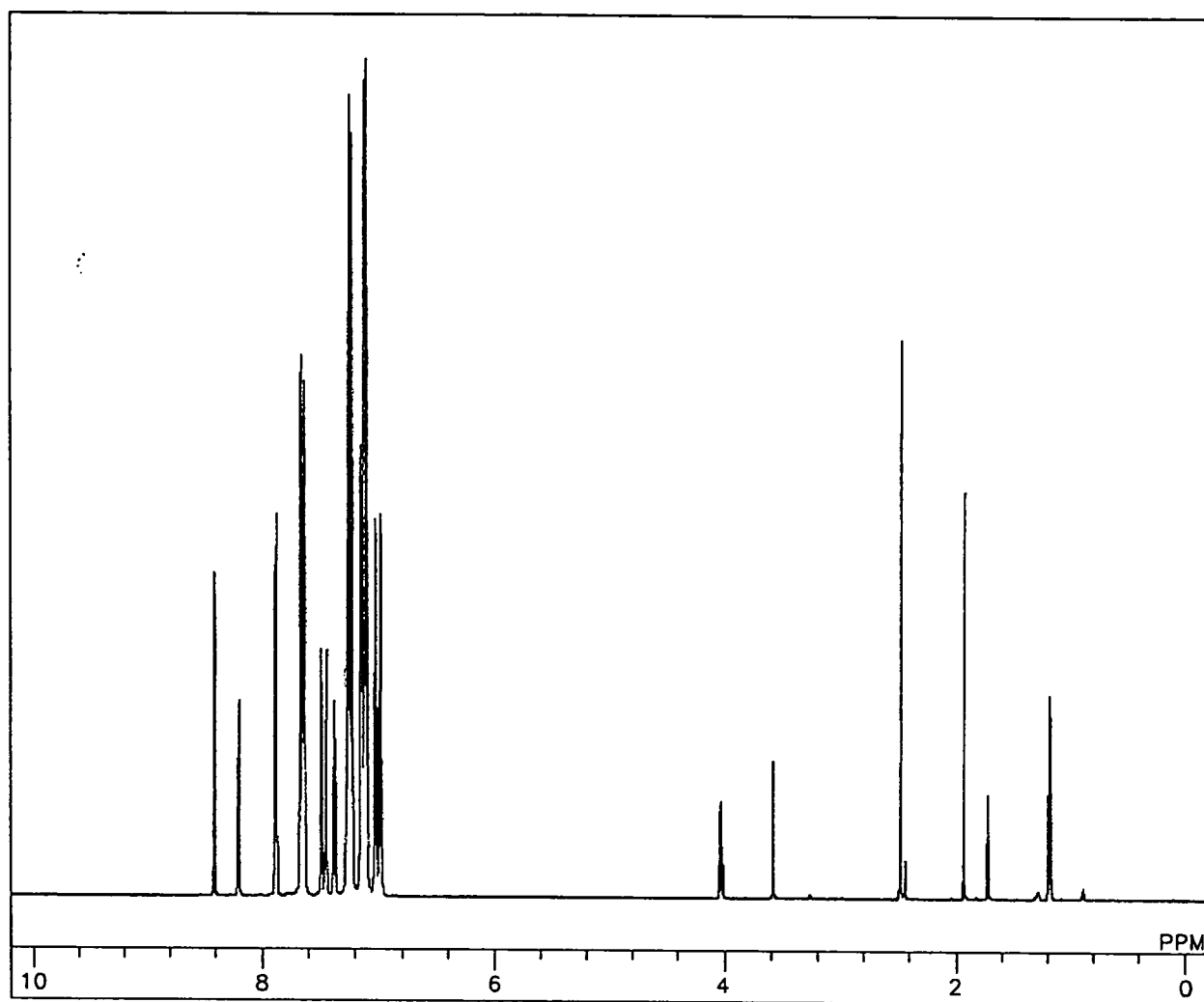


圖 5

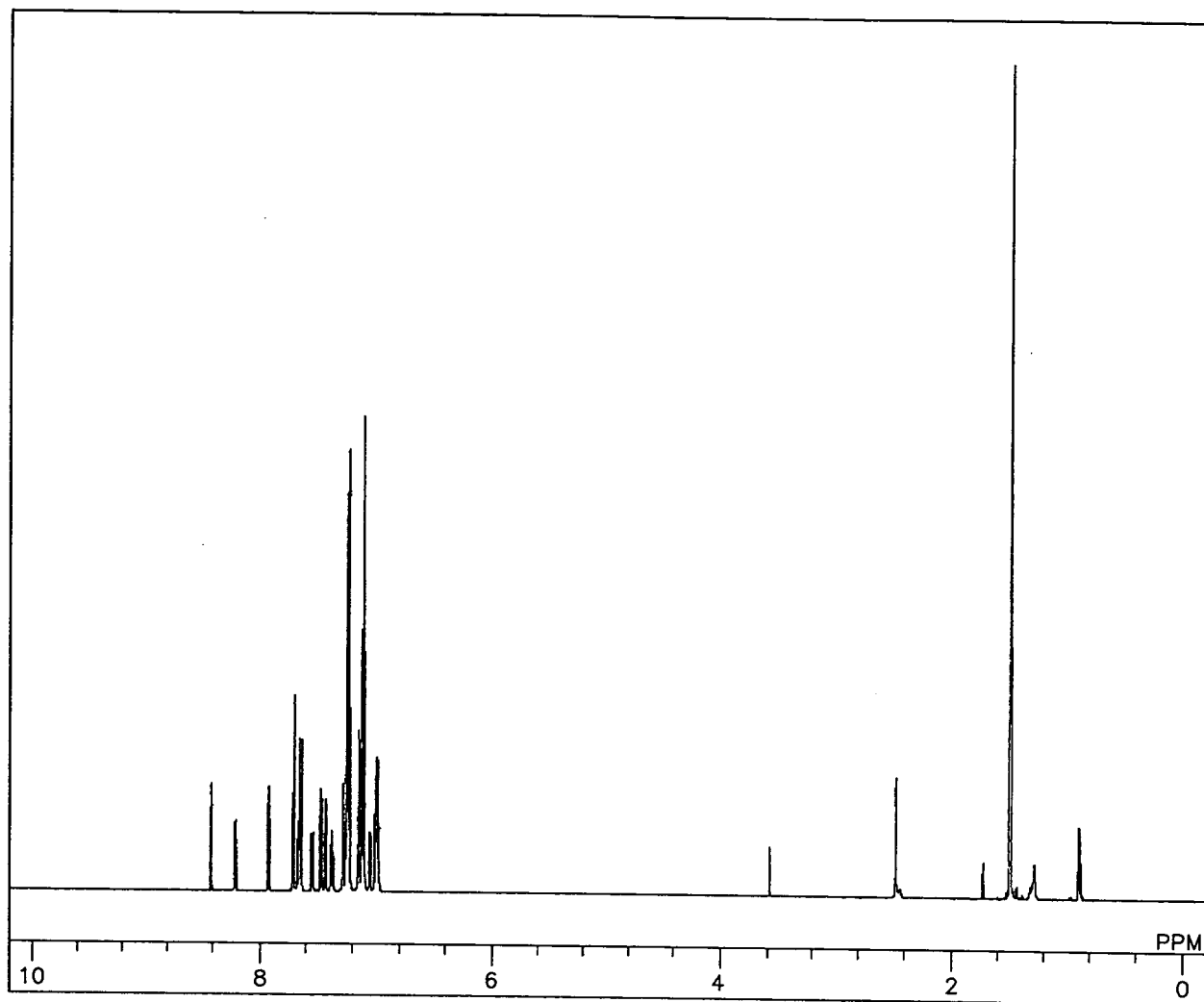


圖 6

圖 7

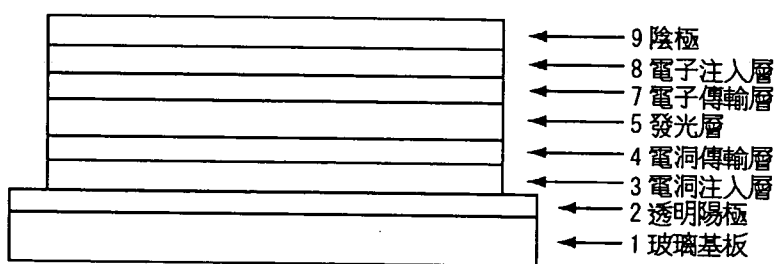


圖 8

