



(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 I471405 B

(45)公告日：中華民國 104 (2015) 年 02 月 01 日

(21)申請案號：099108504

(22)申請日：中華民國 99 (2010) 年 03 月 23 日

(51)Int. Cl. : C09K11/06 (2006.01)

C07D487/04 (2006.01)

H01L51/50 (2006.01)

(30)優先權：2009/03/31 日本

2009-085709

(71)申請人：新日鐵住金化學股份有限公司(日本)NIPPON STEEL &amp; SUMIKIN CHEMICAL CO., LTD. (JP)

日本

(72)發明人：甲斐孝弘 KAI, TAKAHIRO (JP)；古森正樹 KOMORI, MASAKI (JP)；山本敏浩 YAMAMOTO, TOSHIHIRO (JP)；松本惠 MATSUMOTO, MEGUMI (JP)

(74)代理人：林志剛

(56)參考文獻：

CN 101321755A

WO 2008/056746A1

審查人員：王嘉薇

申請專利範圍項數：7 項 圖式數：5 共 65 頁

(54)名稱

磷光發光元件用材料及使用其之有機電致發光元件

(57)摘要

本發明提供一種改善元件之發光效率、充分確保驅動安定性且具有簡略構成之有機電致發光元件(有機 EL 元件)。

該有機 EL 元件係在層合於基板上之陽極與陰極之間具有發光層之有機電致發光元件，為其中該發光層係含有磷光發光性摻雜物及吡啶嗪化合物作為主體材料之有機電致發光元件。作為吡啶嗪化合物有以下述式(1)表示之化合物。又，式中環 A、環 B 分別以式(1a)、(1b)表示，Ar 表示芳香族烴基或芳香族雜環基，R 表示氫、烷基或環烷基，X 表示次甲基或氮，A 表示芳香族烴基、烷基、環烷基或以式(1c)表示之基，n 表示 0 或 1，

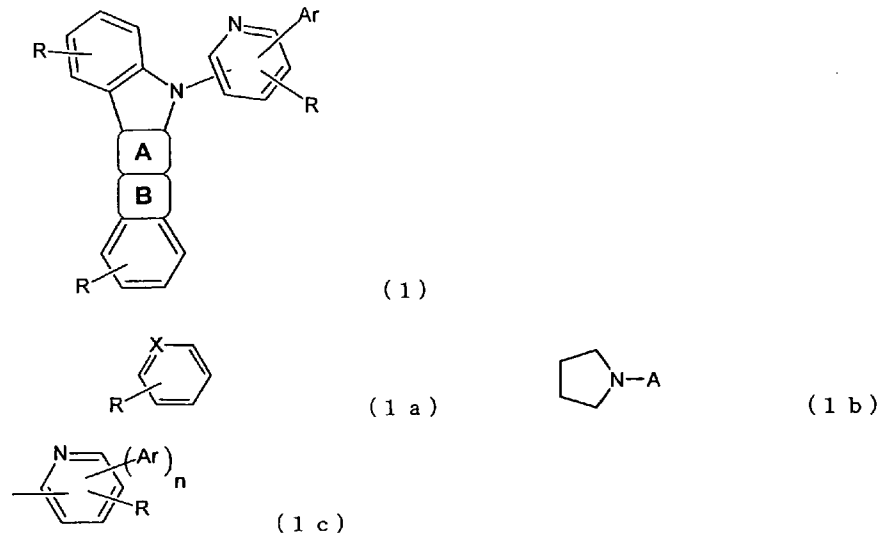
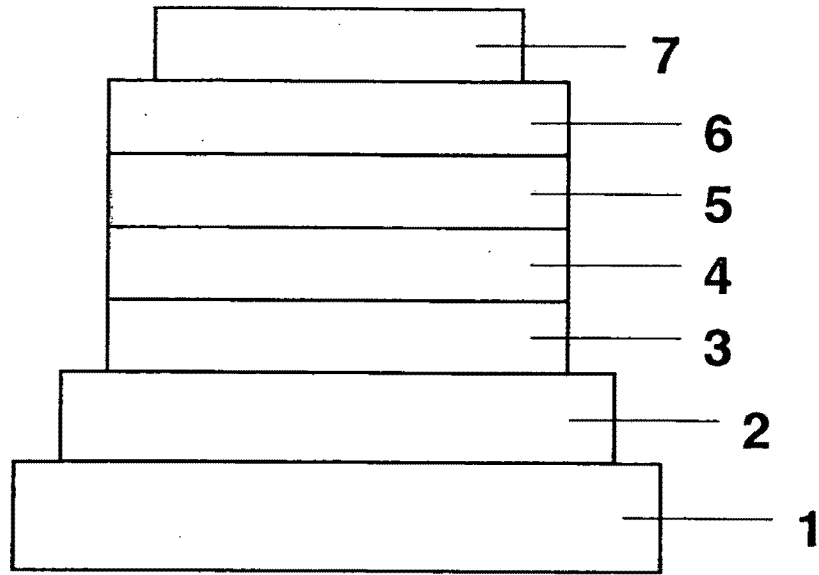


圖 1



- 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

公告本
-----

## 發明專利說明書

(本申請書格式、順序，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：099108504

G9K 1/06

(2006.01)

※申請日：99年03月23日

※IPC分類：

G09D 487/04

(2006.01)

一、發明名稱：(中文/英文)

H01L 51/00

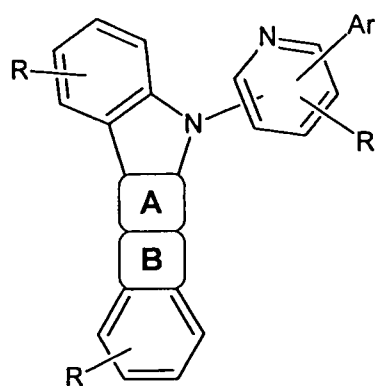
(2006.01)

磷光發光元件用材料及使用其之有機電致發光元件

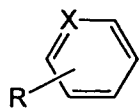
## 二、中文發明摘要：

本發明提供一種改善元件之發光效率、充分確保驅動安定性且具有簡略構成之有機電致發光元件(有機 EL 元件)。

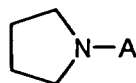
該有機 EL 元件係在層合於基板上之陽極與陰極之間具有發光層之有機電致發光元件，為其中該發光層係含有磷光發光性摻雜物及吡啶嗪化合物作為主體材料之有機電致發光元件。作為吡啶嗪化合物有以下述式(1)表示之化合物。又，式中環 A、環 B 分別以式(1a)、(1b)表示，Ar 表示芳香族烴基或芳香族雜環基，R 表示氫、烷基或環烷基，X 表示次甲基或氮，A 表示芳香族烴基、烷基、環烷基或以式(1c)表示之基，n 表示 0 或 1，



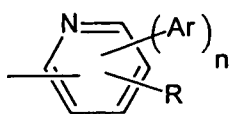
(1)



(1 a)



(1 b)



(1 c)

三、英文發明摘要：

四、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

五、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：無

## 六、發明說明：

### 【發明所屬之技術領域】

本發明係關於有機電致發光元件用之磷光發光元件用材料及使用其之有機電致發光元件，詳細而言係關於對由有機化合物所構成之發光層施加電場使之發光之薄膜型裝置者。

### 【先前技術】

通常，有機電致發光元件（以下稱為有機 EL 元件）其最簡單的構造為由發光層及挾持該層之一對對向電極所構成。亦即，有機 EL 元件係利用將電場施加於二電極間時，注入來自陰極之電子、注入來自陽極之電洞，該等於發光層中再結合產生激子（exciton），放出光之現象。

近年來，已進行使用有機薄膜之有機 EL 元件之開發。尤其，為为了提高發光效率，而進行進行目的為提高來自電極之載體注入效率之電極種類最適化，藉由使由芳香族二胺所構成之電洞輸送層與由 8-羥基喹啉鋁錯合物（以下稱為 Alq3）所構成之發光層成為薄膜而設置於電極間之元件之開發，相較於過去之使用蔥等單結晶之元件，由於可大幅改善發光效率，故以具有自發光、高速應答性之特徵之高性能平面面板之實用化為目標進行。

另外，作為嘗試提高元件之發光效率，亦已探討不使用螢光而使用磷光。以設置上述之由芳香族二胺所構成之電洞輸送層與由 Alq3 所構成之發光層之元件為代表之多

數元件雖係利用螢光發光者，但藉由利用磷光發光，亦即，利用來自三重態激發狀態之發光，期待有相較於以往使用螢光（單重態）之元件提高 3~4 倍左右之效率。基於該目的雖已探討以香豆素衍生物或二苯甲酮衍生物作為發光層，但僅獲得極低之亮度。又，雖探討有使用銻錯合物作為利用三重態狀態之嘗試，但此仍無法達到高效率的發光。近年來，如專利文獻 1 所列舉之以發光之高效率化及長壽命化為目的之以銻錯合物等之有機金屬錯合物為中心之研究被大量進行。

[先前技術文獻]

[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]特開平 11-162650 號公報

[專利文獻 4]特開平 11-176578 號公報

就獲得高的發光效率重要的是與前述摻雜物材料同時使用主體材料。作為主體材料而提出之代表性材料列舉為專利文獻 2 所介紹之咪唑化合物之 4,4'-雙（9-咪唑基）聯苯（以下稱為 CBP）。於 CBP 使用作為以參（2-苯基吡啶）銻錯合物（以下稱為 Ir(ppy)<sub>3</sub>）為代表之綠色磷光發光材料之主體材料時，CBP 就容易傳送電洞而不容易傳送電子之特性方面而言，會使電荷注入之均衡性崩解，使過量電洞流到電子輸送層側，其結果使來自 Ir(ppy)<sub>3</sub> 之發光效率降低。

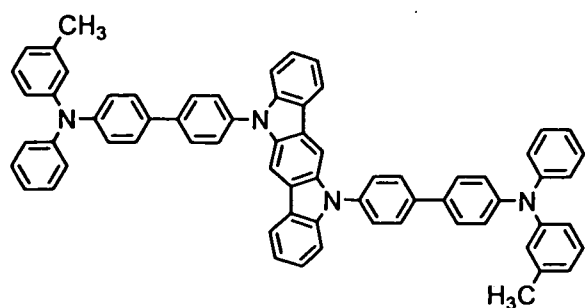
如前述，就獲得有機 EL 元件中高的發光效率而言，



需要具有高的三重態激發能，且可獲取兩電荷（電洞・電子）注入輸送特性中之均衡性之主體材料。再者，期望有具備電化學安定，且高耐熱性亦優異之非晶型安定性之化合物，而要求進一步改良。

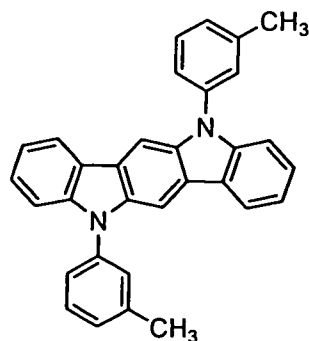
專利文獻 3 中揭示以下所示之吡啶唑化合物作為電洞輸送材料：

【化 1】



另外，專利文獻 4 中揭示以下所示之吡啶唑化合物作為電洞輸送材料：

【化 2】



然而，該等雖然推薦使用具有吡啶唑骨架之化合物作為電洞輸送材料，但僅為有關螢光發光元件之實施例，並無揭示作為磷光發光元件用材料而使用者。

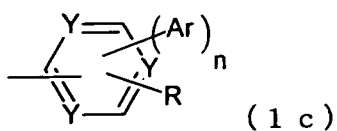
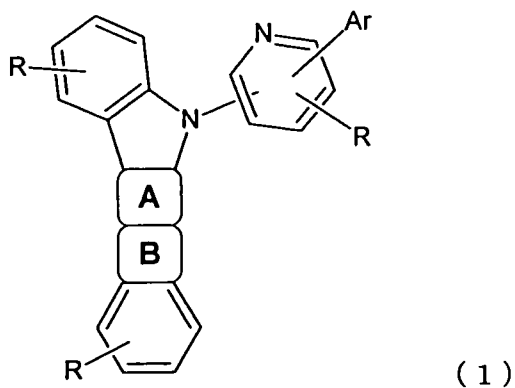
## 【發明內容】

爲了將有機 EL 元件應用於平面面板顯示器等之顯示元件中，在改善元件之發光效率之同時需充分確保驅動時之安定性。本發明係鑑於上述現狀，目的在於提供一種具有高效率及高驅動安定性之實用上有用之有機 EL 元件及其所適用之化合物。

本發明人等經積極探討之結果，發現使用具有特定構造之吡啶嗪骨架之化合物作爲有機 EL 元件時，可顯示優異之特性因而完成本發明。

本發明係關於一種磷光發光元件用材料，其特徵爲由以通式 (1) 表示之吡啶嗪化合物所構成：

【化 3】



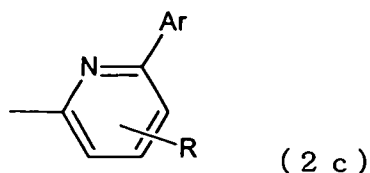
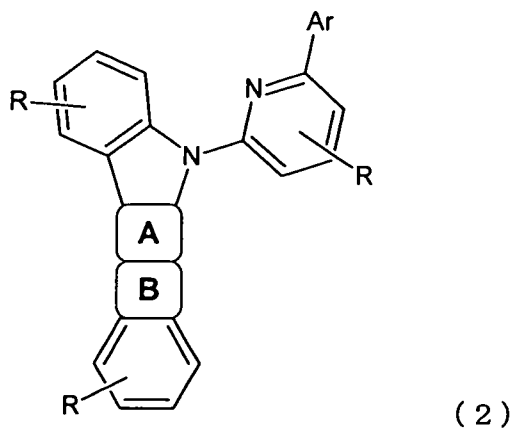
通式 (1) 中，環 A 表示與鄰接環縮合之以式 (1 a) 表示之芳香環，環 B 表示與鄰接環縮合之以式 (1 b) 表示

之雜環；

式 (1a) 中，X 表示次甲基或氮；式 (1b) 中，A 表示碳數 6~38 之芳香族烴基、碳數 1~10 之烷基、碳數 3~11 之環烷基或以式 (1c) 表示之基；式 (1c) 中，Y 表示次甲基或氮，但至少一個為氮，n 表示 0 或 1；式 (1) 及 (1c) 中，Ar 分別獨立表示碳數 6~30 之芳香族烴基、碳數 3~30 之芳香族雜環基；式 (1)、(1a) 及 (1c) 中，R 分別獨立表示氫、碳數 1~10 之烷基或碳數 3~11 之環烷基。

以通式 (1) 表示之吡啶啞化合物中，列舉較佳之化合物為以下述通式 (2) 表示之吡啶啞衍生物：

【化 4】

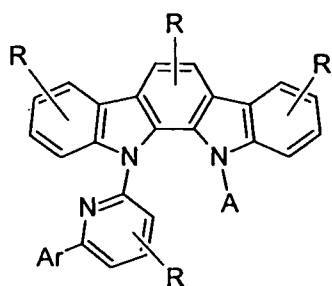


其中，環 A、環 B、Ar、X、n 及 R 與通式 (1) 相同意義；式 (1b) 中，A 為碳數 6~38 之芳香族烴基或以式 (2c) 表示之芳香族雜環基。

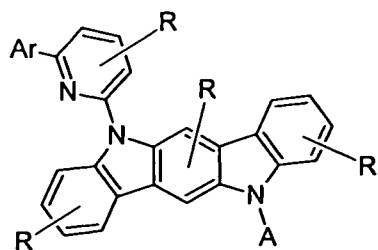
以通式 (2) 表示之吲哚啞化合物中，列舉較佳之化合物為 A 係非縮環構造之碳數 6~38 之芳香族烴基或係以上述式 (2c) 表示之芳香族雜環基之吲哚啞化合物。又，列舉更佳之化合物為 Ar 係非縮環構造之芳香族烴基或芳香族雜環基之吲哚啞化合物。

以通式 (1) 或通式 (2) 表示之吲哚啞化合物中，列舉更好之化合物為以下述通式 (3) ~ (6) 表示之吲哚啞化合物，

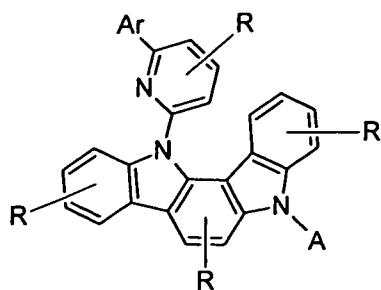
【化 5】



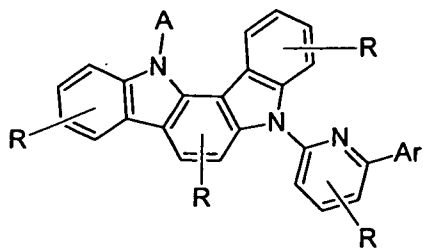
(3)



(4)



(5)



(6)

通式 (3) ~ (6) 中，A、Ar 及 R 與通式 (1) 或 (2) 之該等相同意義。

又，本發明係關於一種有機電致發光元件，其係在基板上層合有陽極、有機層及陰極所成之有機電致發光元件，其中具有含有上述磷光發光元件用材料之有機層。

### 【實施方式】

本發明之磷光發光元件用材料為以前述通式 (1) 表示之吡啶喹啉化合物。具有該吡啶喹啉化合物之一個氮經吡啶取代，進而該吡啶經一個芳香族烴或芳香族雜環取代之構造，藉此認為具有優異效果。

通式 (1) 中，環 A 為與鄰接之環縮合之以式 (1a) 表示之雜環，環 B 為與鄰接之環縮合之以式 (1b) 表示之雜環。

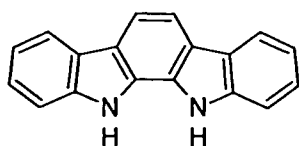
通式 (1) 或 (2) 由於內含式 (1a)、(1b)、及 (1c) 或 (2c)，故稱為通式 (1) 或 (2) 時，有使用包含

該等式之意思。又，於通式（1）之說明由於大部分與通式（2）之說明共通，共通部分亦應理解為對通式（2）之說明。

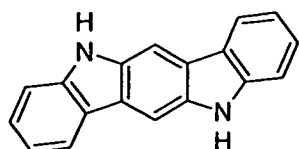
以通式（1）表示之吲哚啉化合物中，以式（1a）表示之芳香環可與兩個鄰接之環以任意位置縮合，但亦有構造上非縮合之位置。以式（1a）表示之芳香環雖具有六個邊，但並非以鄰接之兩個邊與兩個鄰接之環縮合。又，以式（1b）表示之雜環可與兩鄰接之環以任意位置縮合，但亦有構造上非縮合之位置。亦即，以式（1b）表示之雜環雖具有五個邊，但並非以鄰接的兩個邊與兩個鄰接之環縮合，又，不於包含氮原子之邊上與鄰接之環縮合。因此，限制了吲哚啉骨架之種類。

通式（1）中，吲哚啉骨架較好為以下列形態表示者。由該例，可理解吲哚啉骨架中之芳香族烴環及雜環之較佳縮合位置。

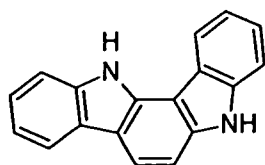
【化6】



(IC-1)



(IC-2)



(IC-3)

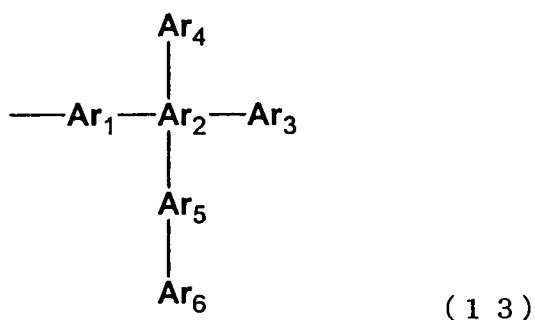
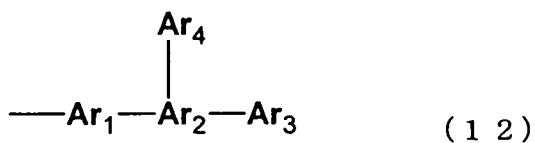
關於通式 (1)，式 (1a) 中，X 表示次甲基或氮，且較好為次甲基。

通式 (1) 中，式 (1b) 中之 A 表示碳數 6~38 之芳香族烴基、碳數 1~10 之烷基、碳數 3~11 之環烷基，或以式 (1c) 表示之基。較好為碳數 6~18 之芳香族烴基、碳數 1~8 之烷基、碳數 3~8 之環烷基或以式 (1c) 表示之基。

芳香族烴基之具體例列舉為自連結有複數個苯、萘、蒽、丙炔合萘 (phenalene)、蒽、菲、熒蒽 (fluoranthene)、芘 (pyrene)、苯并菲 (chrysene)、四并苯 (tetraphene)、并四苯 (tetracene)、丁省 (naphthacene)、紅熒烯 (rubrene)、芘 (picene)、芘 (perylene)、五并苯 (pentaphene)、五并苯 (pentaphene) 或芳香環而成之芳香族化合物去除氫所產生之一價基。較好為自複數個連結有萘、蒽、丙炔合萘、蒽、菲、熒蒽或芳香環而成之芳香族化合物去除氫所產生之一價基。成為複數個連結之芳香族烴基時，亦可與吡啶、嘧啶、三嗪、喹啉、異喹啉、咪唑等一起複數個連結而成之芳香族烴基。上述芳香族烴基亦可具有取代基，具有取代基時，較佳之取代基為碳數 1~4 之烷基、碳數 3~6 之環烷基、碳數 1~2 之烷氧基、乙醯基或碳數 6~12 之二芳基胺基。

其中，連結複數個芳香環所生成之一價基係以例如下式表示。

【化7】



(式(11)~(13)中， $\text{Ar}_1\sim\text{Ar}_6$ 表示經取代或未經取代之芳香環)。

本說明書中，連結複數個芳香環時，所謂芳香族烴基為例如式(11)~(13)中之 $\text{Ar}_1$ 係芳香族烴之情況，所謂芳香族雜環基為 $\text{Ar}_1$ 係芳香族雜環之情況。又，所謂非縮環構造為 $\text{Ar}_1$ 並非縮環構造之情況。又，此時， $\text{Ar}_2\sim\text{Ar}_6$ 可相同亦可不同。

自上述連結複數個芳香環而成之芳香族化合物去除氫所產生之芳香族烴基之具體例列舉為由例如聯苯、三聯苯、苯基萘、苯基蒽、雙三嗪基苯、苯基吡啶、二苯基吡啶、二苯基嘧啶、二苯基三嗪、苯基咪唑等生成之一價基，與吡啶咪唑之氮連結位置並無限定，於末端之環或於中央部之環均無妨，但較好為與氮鍵結之環並非縮環構造者。為自連結複數個芳香環而成之芳香族化合物所生成之基時，所連結之數較好為2~5，更好為2或3。上述芳香族烴基或芳香族雜環基亦可具有取代基，具有取代基時，較佳



之取代基為碳數 1~4 之烷基、碳數 3~6 之環烷基、碳數 1~2 之烷氧基、乙醯基或碳數 6~12 之二芳基胺基。

本說明書中，具有取代基時之碳數係包含取代基之碳數一起計算。

式 (1b) 中，A 為碳數 1~10 之烷基、碳數 3~11 之環烷基時之較佳具體例為自甲烷、乙烷、第三丁烷、正辛烷或環己烷去除氫所生成之一價基。上述之烷基或環烷基亦可具有取代基，具有取代基時，較佳之取代基為碳數 1~2 之烷氧基、乙醯基、碳數 6~12 之芳基、碳數 3~12 之雜芳基。更好為苯基、萘基、咪唑基、喹啉基、異喹啉基。

式 (1b) 中，A 較佳之形態列舉為碳數 6~38 之芳香族烴基或以式 (1c) 表示者，更佳之形態列舉為非縮環構造之碳數 6~38 之芳香族烴基或以式 (1c) 表示者。

式 (1c) 中，Y 表示次甲基或氮氣，但至少一個為氮。較好 Y 係一個為氮。

式 (1c) 中，n 表示 0 或 1。較好 n 為 1。

較佳之形態列舉為式 (1c) 所限定構造之以式 (2c) 表示之芳香族雜環基。

通式 (1) 中，Ar 表示碳數 6~30 之芳香族烴基或碳數 3~30 之芳香族雜環基。較好 Ar 為一價之碳數 6~18 之芳香族烴基或碳數 3~17 之芳香族雜環基。較佳 Ar 之具體例為自苯、萘、芴、蔥、菲、熒蔥、芘、苯并菲、吡啶、嘧啶、三嗪、吡啶、喹啉、異喹啉、喹啉、喹啉、嘧啶、咪唑、菲啶 (phenanthridine)、菲繞啉 (phenanthroline)、

氮丙啶、吩嗪 (phenazine)、吩噁嗪 (phenoxazine)、吩噁嗪、蔥啶或連結複數個該等芳香環而成之芳香族化合物去除氫所產生之一價基。Ar 較好為未形成縮環構造者，具體而言，舉例有自苯、吡啶、嘧啶、三嗪或連結複數個該等芳香環而成之芳香族化合物去除氫所產生之一價基。連結複數個上述芳香環時，該等可相同亦可不同。

自連結複數個上述芳香環之芳香族化合物去除氫所產生之基之具體例，列舉為例如自聯苯、四聯苯、聯吡啶、聯嘧啶、聯三嗪、聯三嗪基苯、苯基吡啶、二苯基吡啶、二苯基嘧啶、二苯基三嗪、苯基咪唑、吡啶咪唑等產生之一價基，與吡啶環之鍵結位置並無限制，可為末端之環或中央部之環均無妨，較好與吡啶環鍵結之環不為縮環構造者。為由連結複數個芳香環而成之芳香族化合物所產生之基之情況，連結之數較好為 2~5，更好為 2 或 3。上述芳香族烴基及芳香族雜環基亦可具有取代基，具有取代基時，較佳之取代基為碳數 1~4 之烷基、碳數 1~2 之烷氧基、乙醯基。

通式 (1) 中，R 分別獨立表示氫、碳數 1~10 之烷基或碳數 3~11 之環烷基。較好為氫、碳數 1~4 之烷基、碳數 3~6 之環烷基。而且，更好為氫。

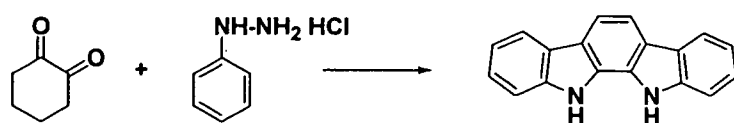
以通式 (1) 表示之吡啶咪唑化合物中，列舉較佳之化合物為以上述通式 (2) 表示之吡啶咪唑化合物，列舉更佳之化合物為以通式 (3) ~ (6) 表示之吡啶咪唑化合物。

通式 (1) ~ (6) 中，各相同之記號及式只要未特別說明則解釋為具有相同之意義。例如，通式 (1) 中之 A 與通式 (2) 中之 A 由於其中所含基之定義不同，故理解為特別說明者。

以通式 (1) ~ (6) 表示之吲哚啉化合物可依據成為目的之化合物之構造選擇原料，並使用習知之方法合成。

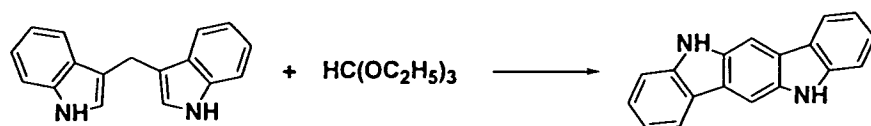
例如，以通式 (3) 表示之吲哚啉化合物之吲哚啉骨架可參考 Synlett, 2005, No. 1, p42-48 中所示之合成例，依據以下之反應式合成。

【化 8】



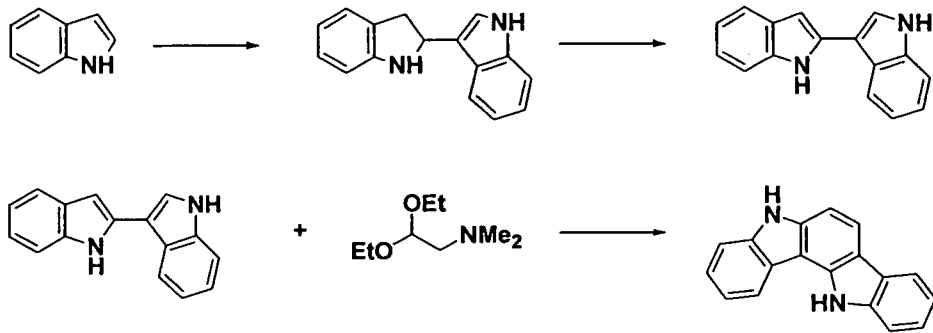
又，以通式 (4) 表示之吲哚啉骨架可參考 Archiv der Pharmazie (Weinheim, Germany), 1987, 320(3), p280-2 中所示之合成例，依據以下反應式合成。

【化 9】



另外，以通式 (5) 及 (6) 表示之吲哚啉骨架可參考 The Journal of Organic Chemistry, 2007, 72(15) 5886 及 Tetrahedron, 1999, 55, p2371 所示之合成例，依據以下反應式合成。

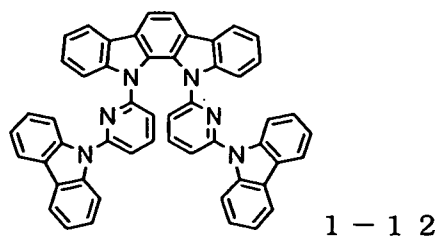
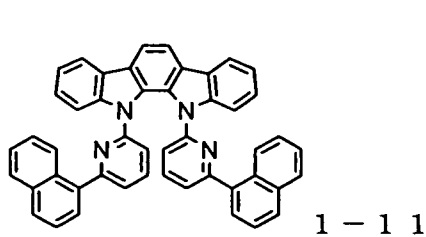
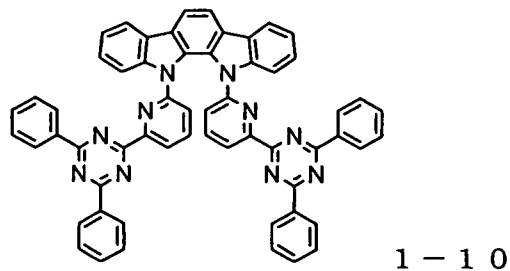
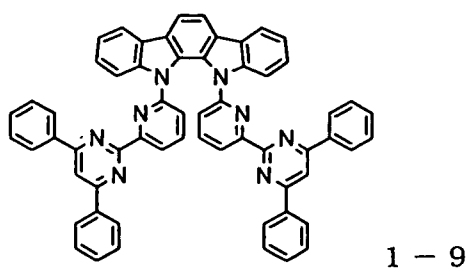
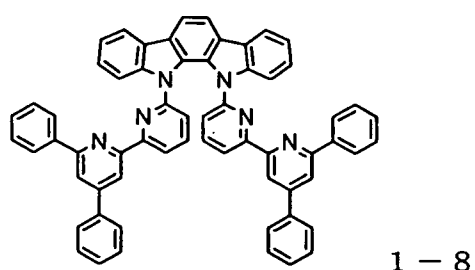
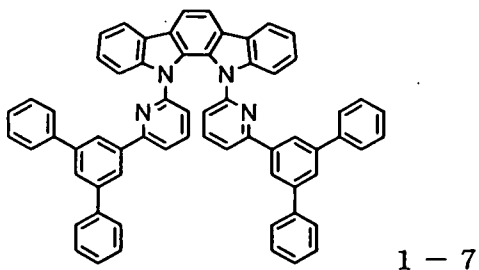
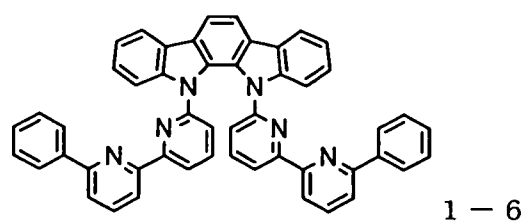
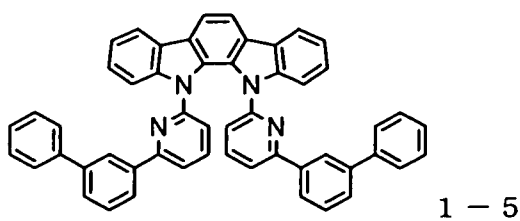
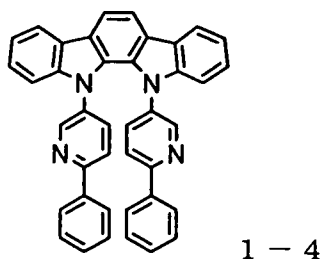
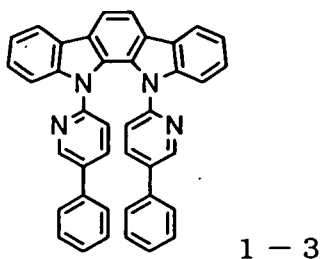
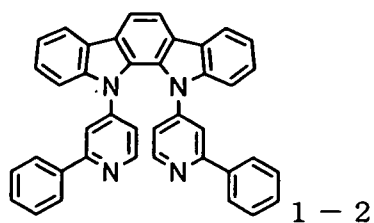
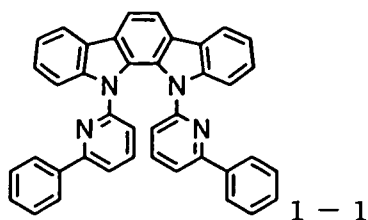
【化10】



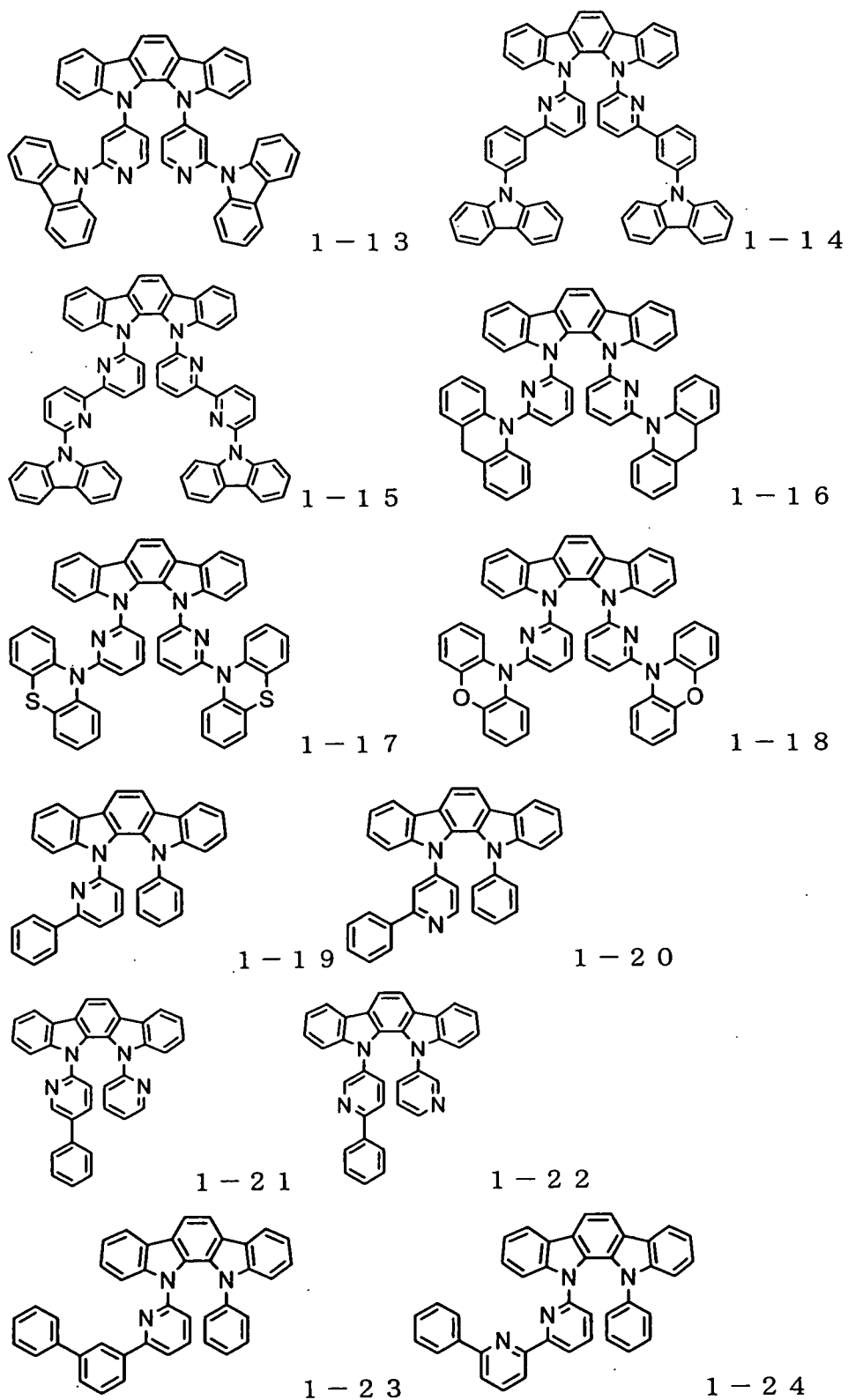
依循一定方法，將前述反應式所得之各吲哚咪唑骨架之氮上之氫取代成對應之芳香族基，可合成以通式（1）～（6）表示之本發明化合物群。

以下列出以通式（1）表示之吲哚咪唑化合物之具體例，但本發明之磷光發光元件用材料並不限於該等。

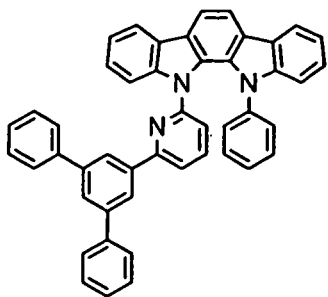
## 【化11】



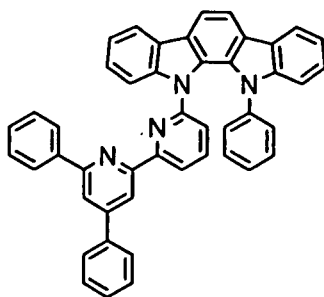
## 【化12】



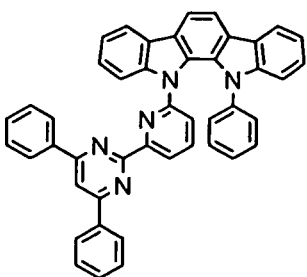
## 【化13】



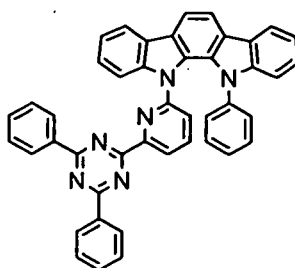
1-25



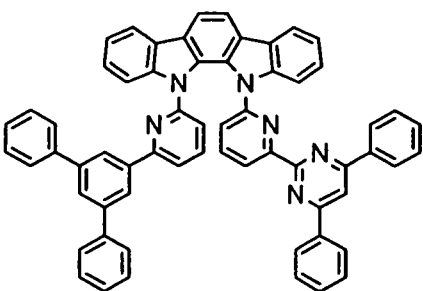
1-26



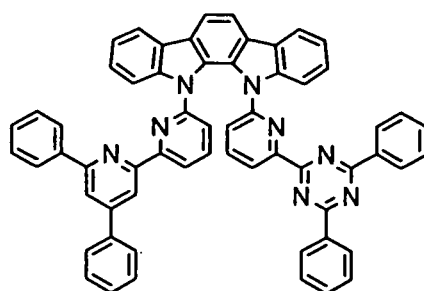
1-27



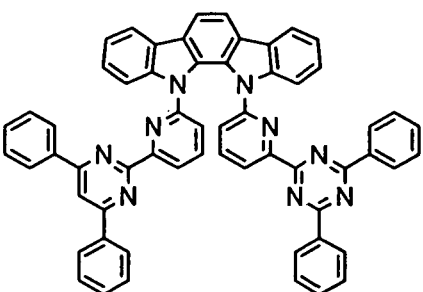
1-28



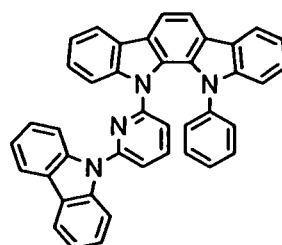
1-29



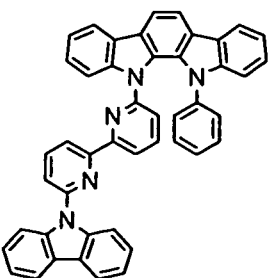
1-30



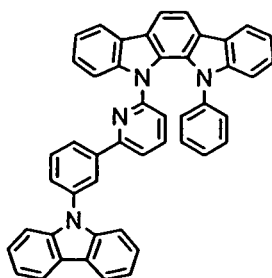
1-31



1-32

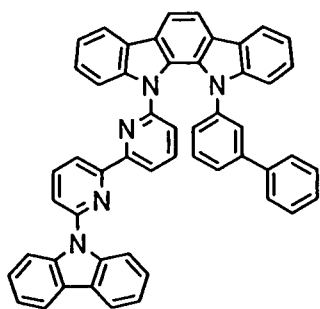


1-33

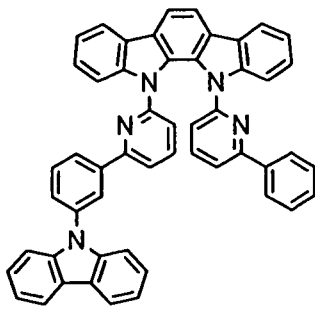


1-34

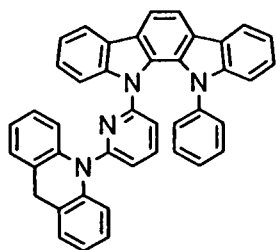
## 【化14】



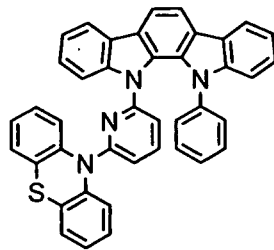
1-35



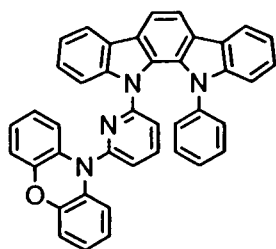
1-36



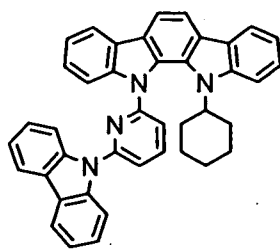
1-37



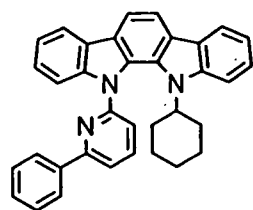
1-38



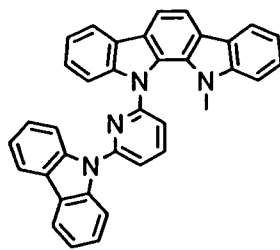
1-39



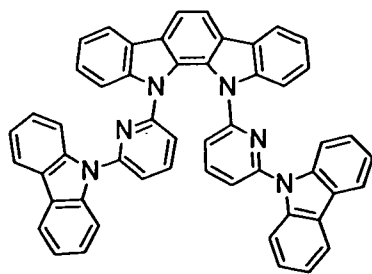
1-40



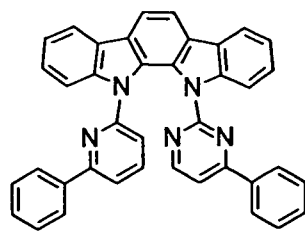
1-41



1-42



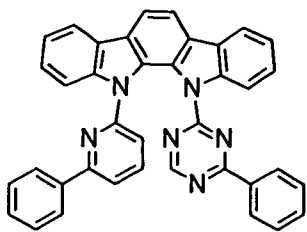
1-43



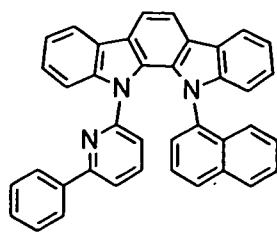
1-44



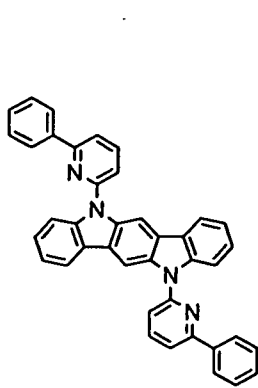
## 【化15】



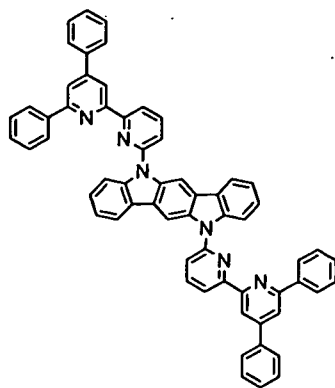
1-45



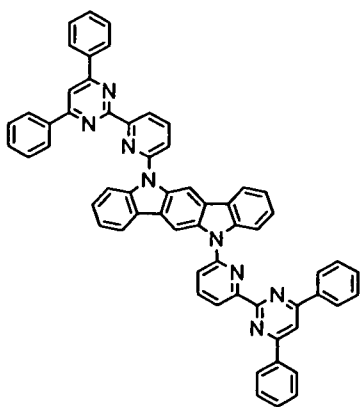
1-46



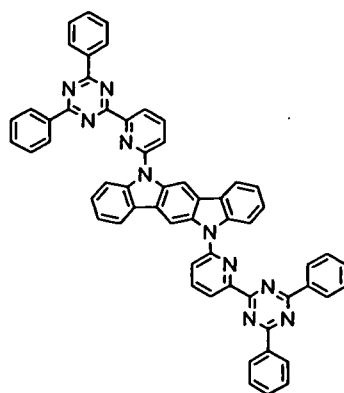
2-1



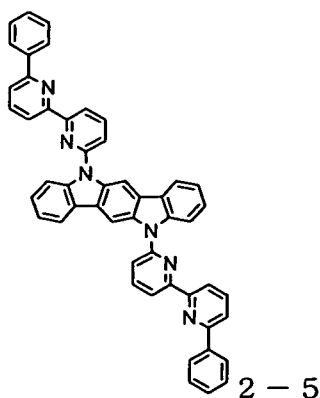
2-2



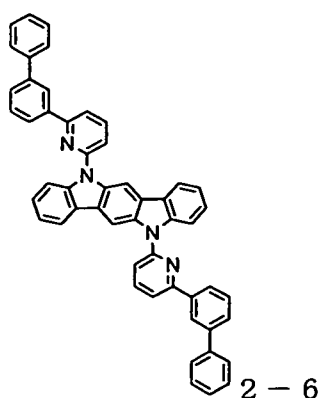
2-3



2-4

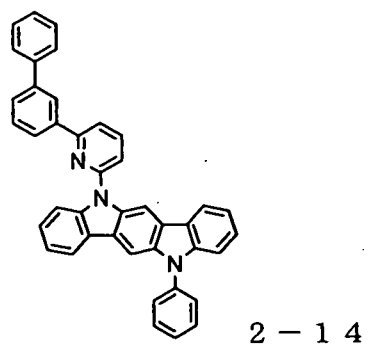
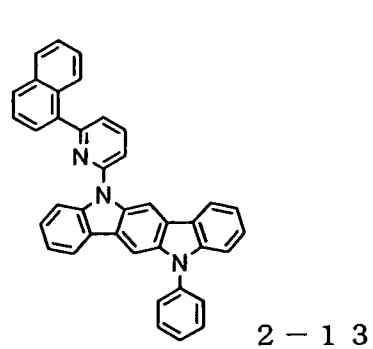
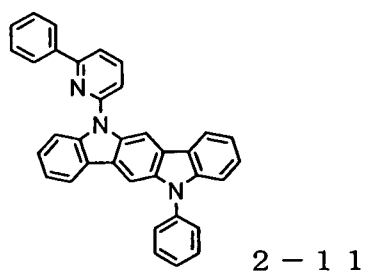
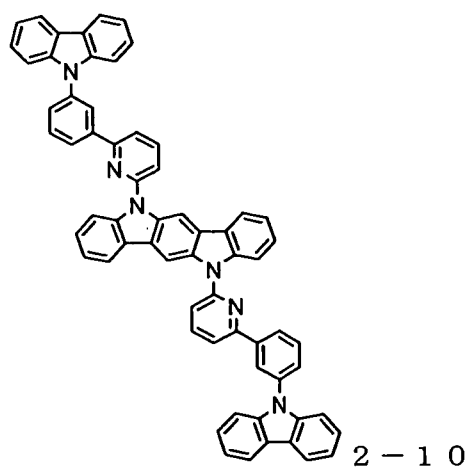
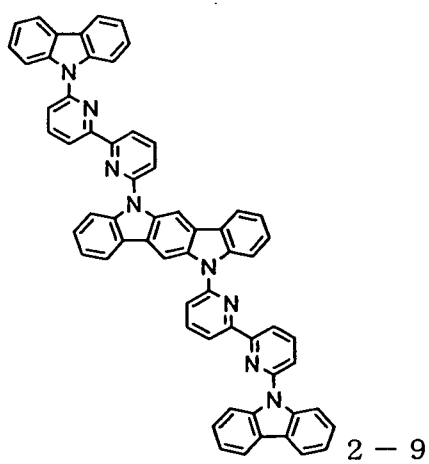
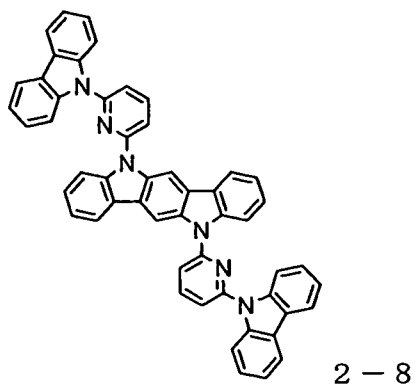
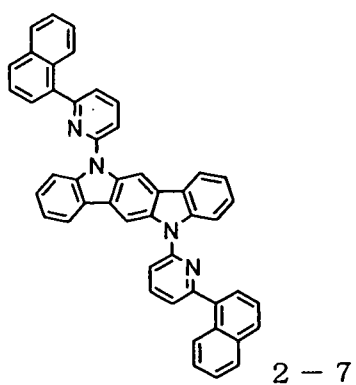


2-5

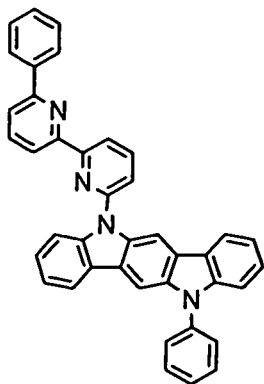


2-6

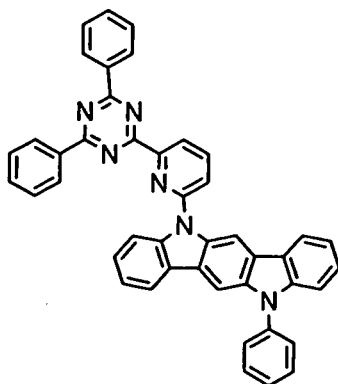
## 【化16】



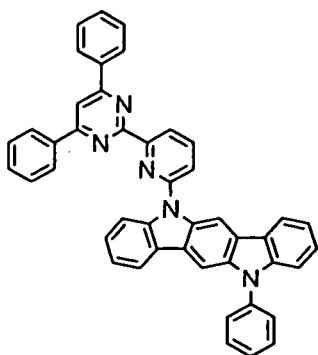
【化17】



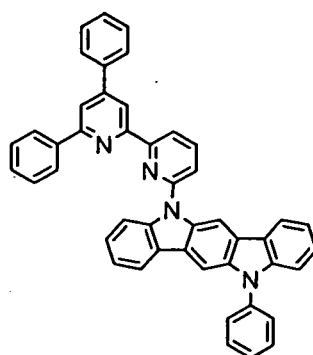
2-15



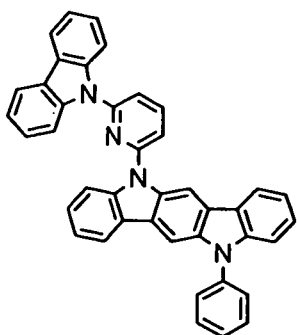
2-16



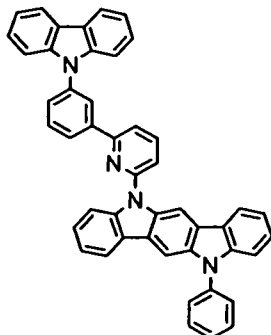
2-17



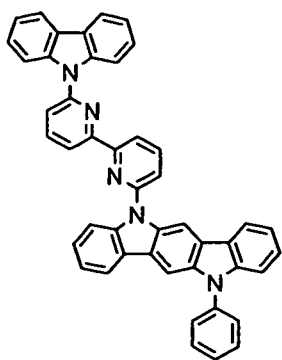
2-18



2-19

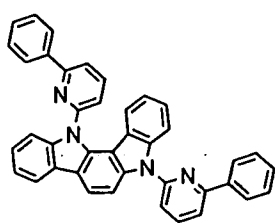


2-20

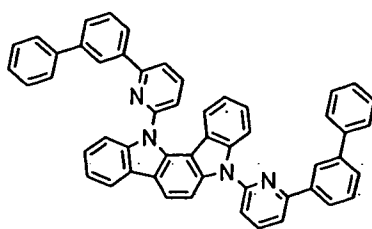


2-21

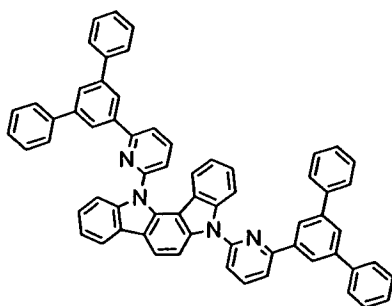
## 【化18】



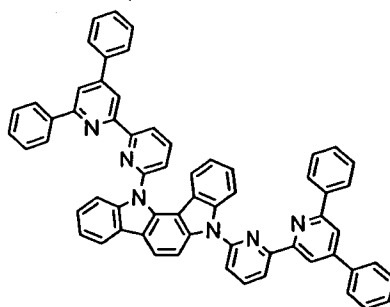
3-1



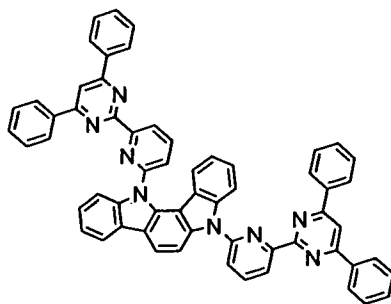
3-2



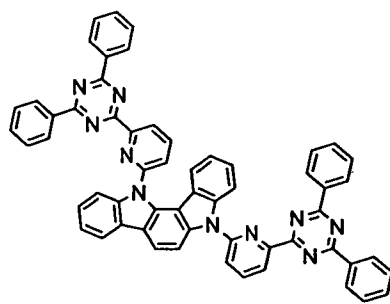
3-3



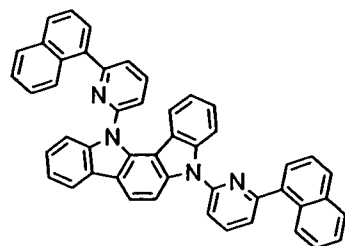
3-4



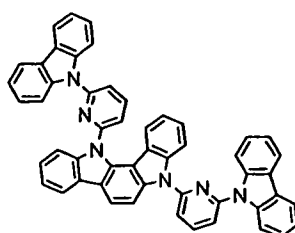
3-5



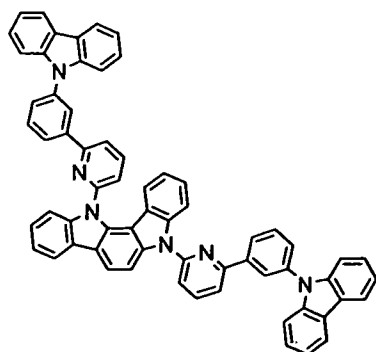
3-6



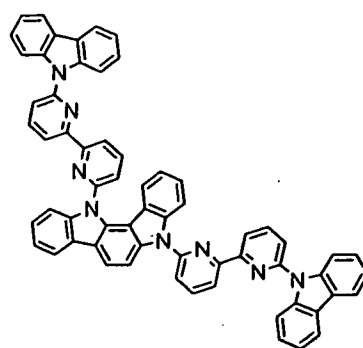
3-7



3-8

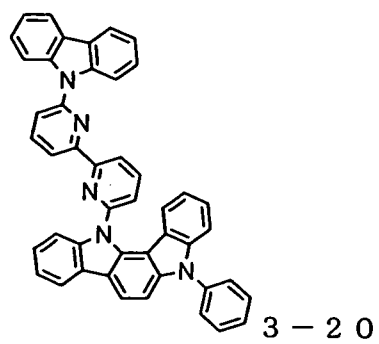
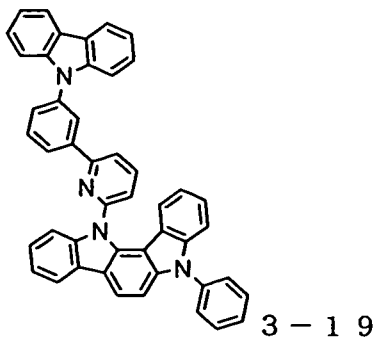
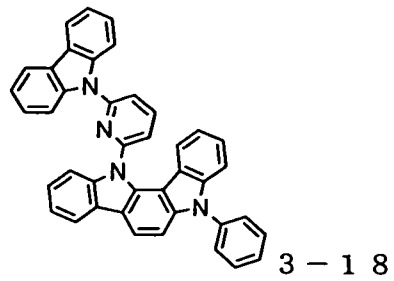
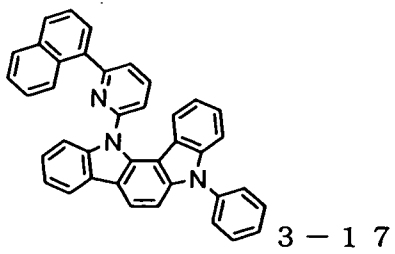
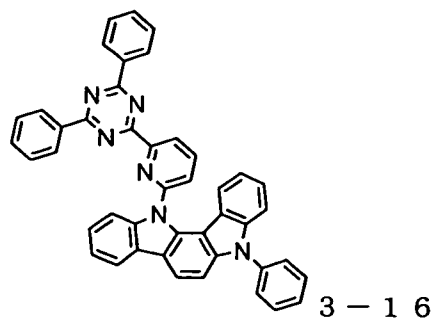
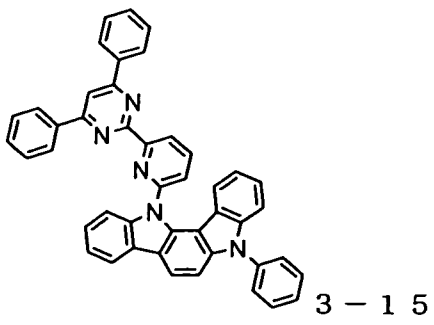
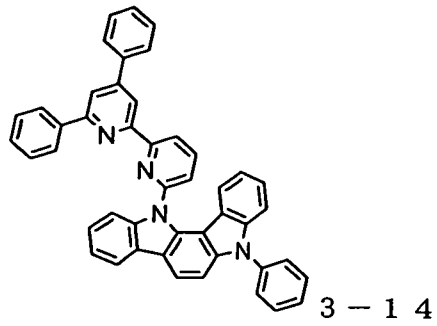
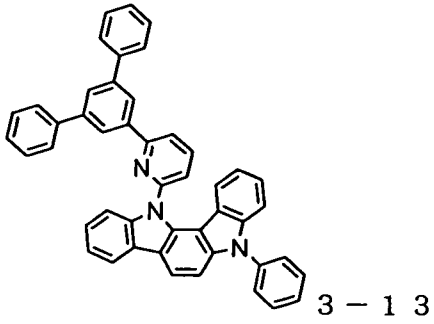
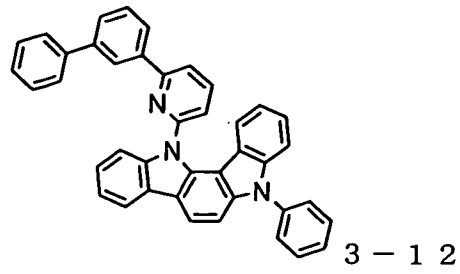
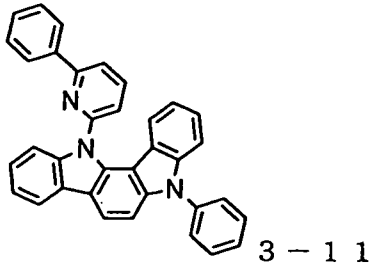


3-9

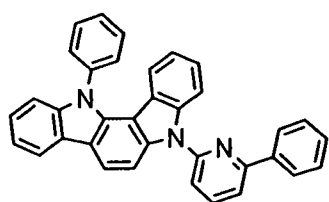


3-10

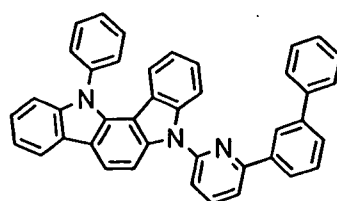
【化19】



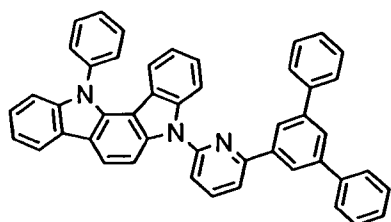
## 【化20】



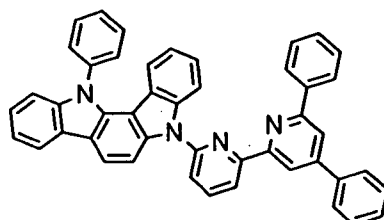
3-21



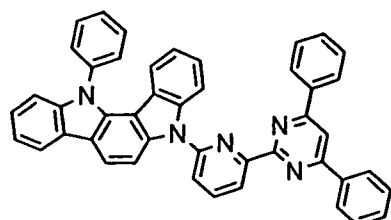
3-22



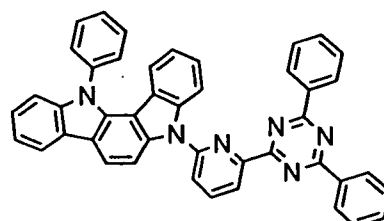
3-23



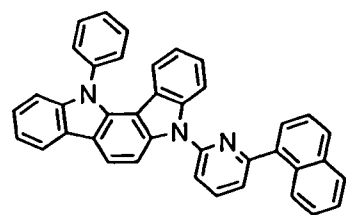
3-24



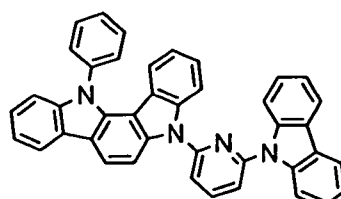
3-25



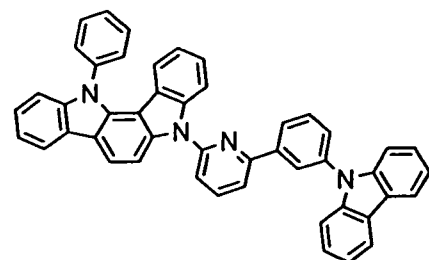
3-26



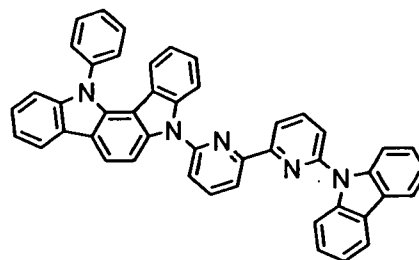
3-27



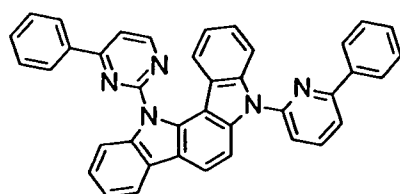
3-28



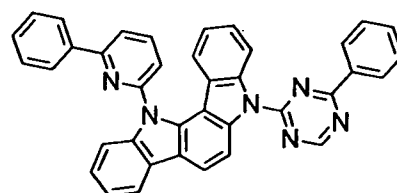
3-29



3-30

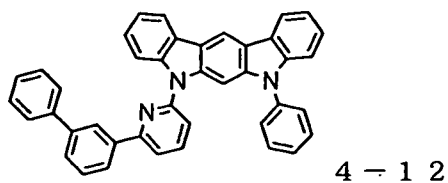
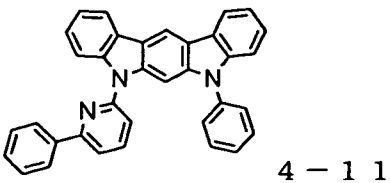
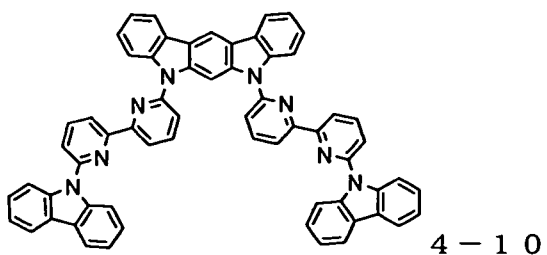
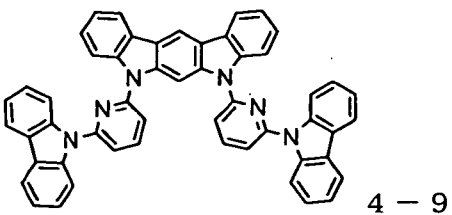
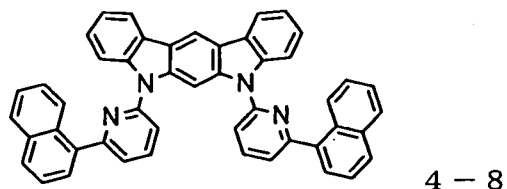
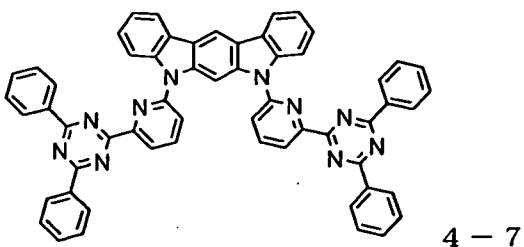
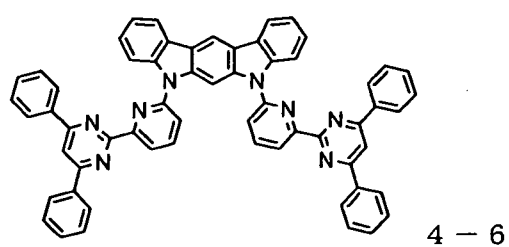
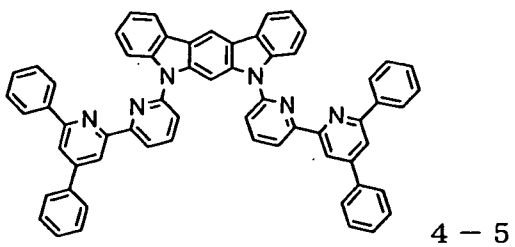
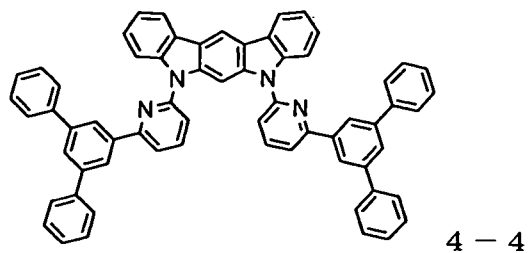
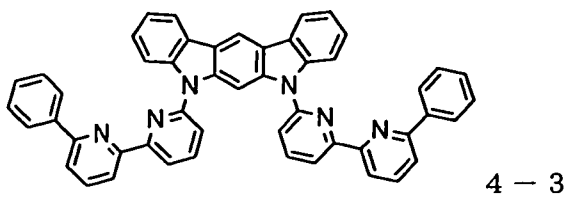
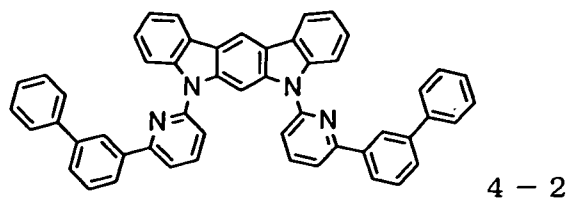
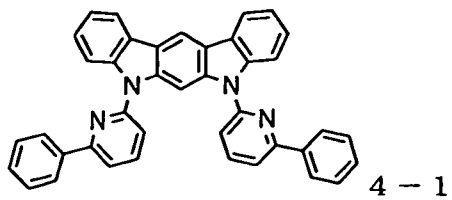


3-31

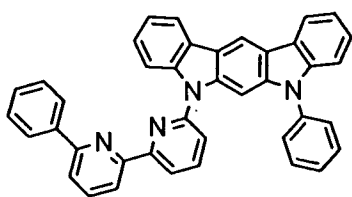


3-32

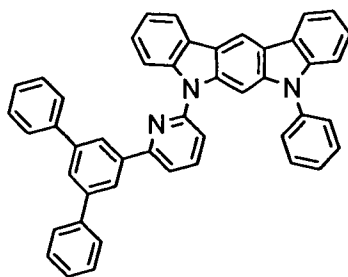
【化21】



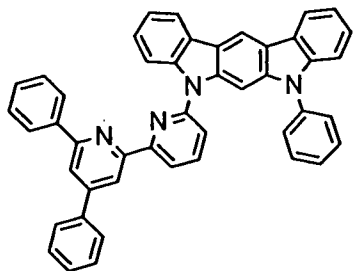
## 【化22】



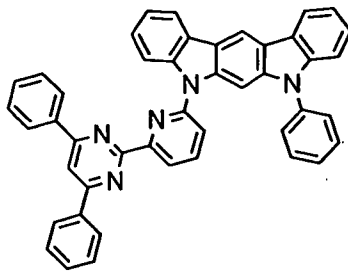
4-13



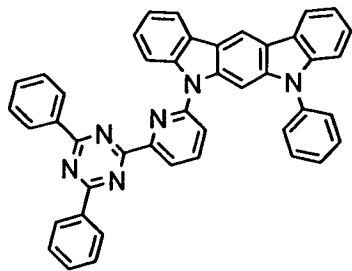
4-14



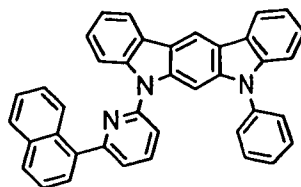
4-15



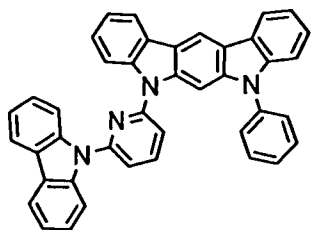
4-16



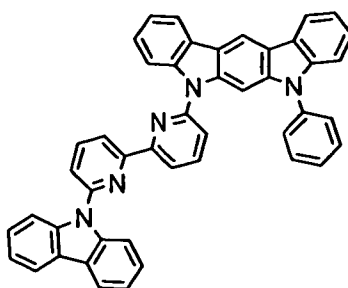
4-17



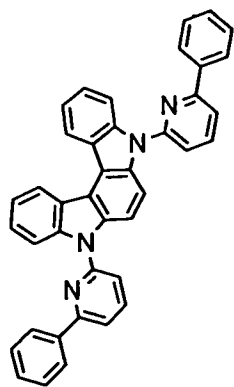
4-18



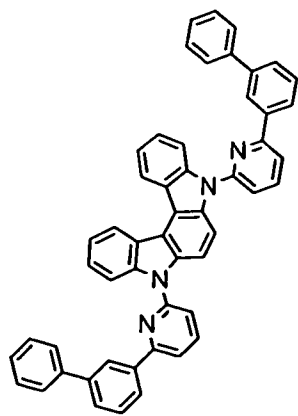
4-19



4-20



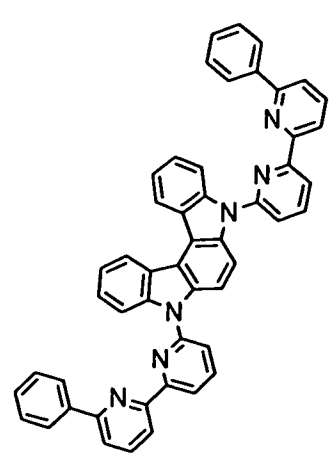
5-1



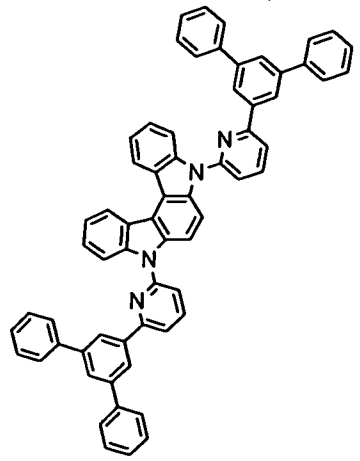
5-2



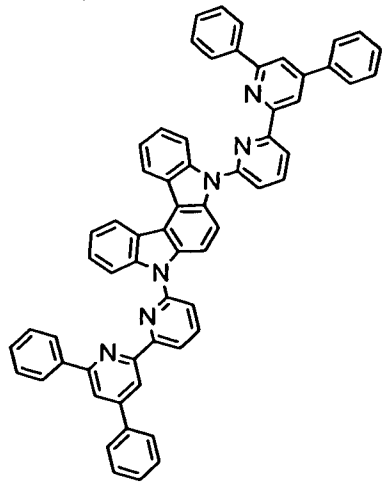
【化23】



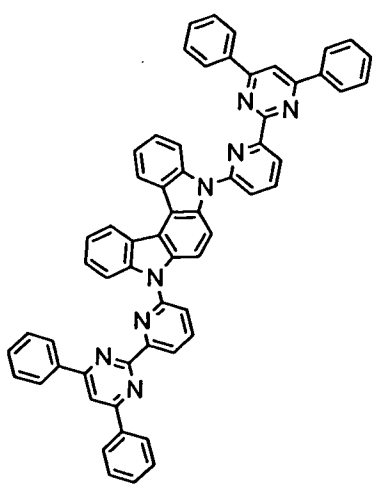
5-3



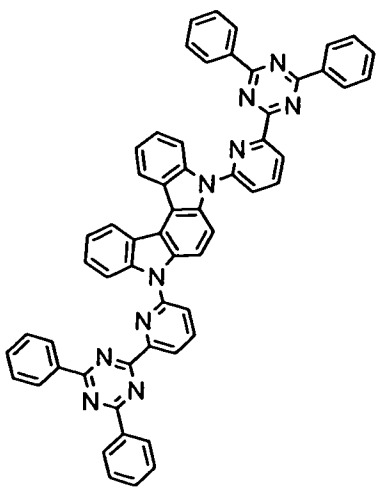
5-4



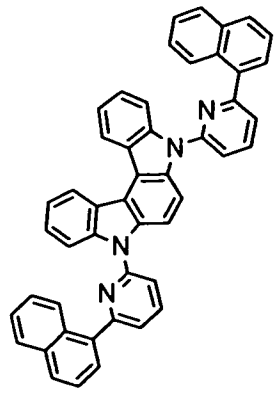
5-5



5-6

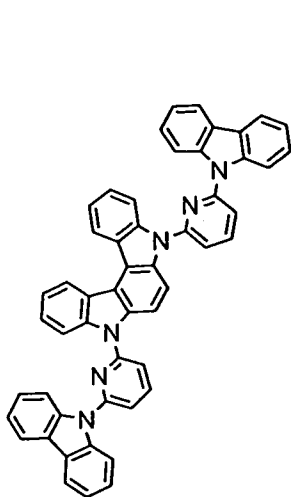


5-7

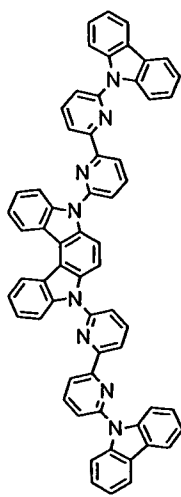


5-8

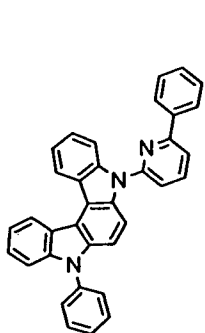
## 【化24】



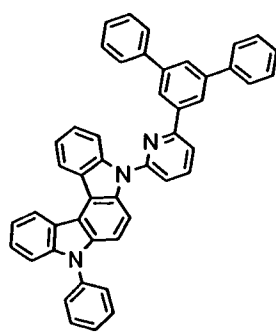
5-9



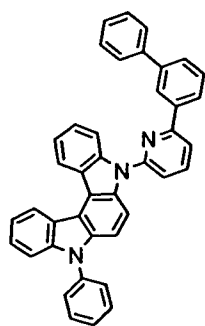
5-10



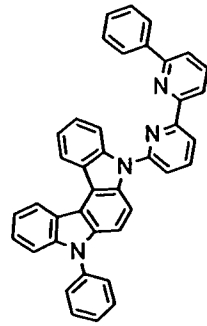
5-11



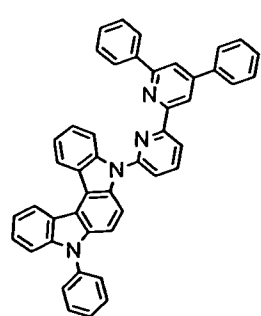
5-12



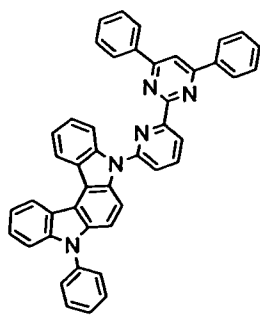
5-13



5-14

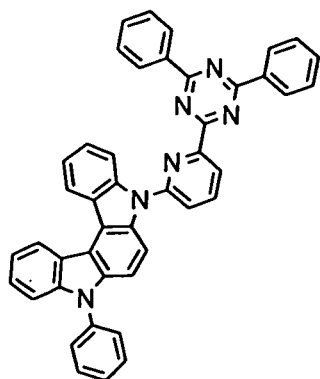


5-15

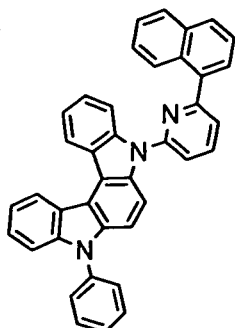


5-16

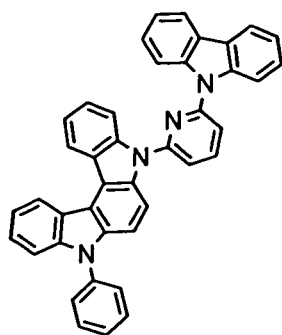
【化 2 5】



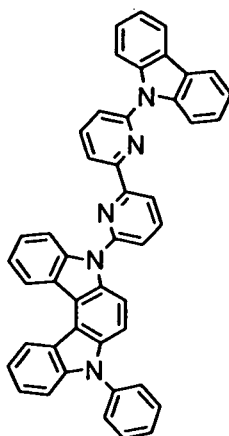
5-17



5-18



5-19



5-20

藉由於基板上層合陽極、複數之有機層及陰極而成之有機 EL 元件之至少一層有機層中包含本發明之磷光發光元件用材料，可獲得優異之有機電致發光元件。所含有之有機層適用於發光層、電洞輸送層、電子輸送層或電洞阻止層。更好作為含有磷光發光摻雜物之發光層之主體材料而含有。

接著，就使用本發明之磷光發光元件用材料之有機 EL 元件加以說明。

本發明之有機 EL 元件具有在層合於基板上之陽極與陰極之間至少一層具有發光層之有機層，且至少一層之有機層含有本發明之磷光發光元件用材料。有利的是，發光層中同時包含磷光發光摻雜物及本發明之磷光發光元件用

材料。

接著，就本發明之有機 EL 元件之構造，參考圖式加以說明，但本發明之有機 EL 元件之構造完全未限於圖示者。

圖 1 為顯示本發明所用之一般有機 EL 元件之構造例之剖面圖，1 表示基板，2 表示陽極，3 表示電洞注入層，4 表示電洞輸送層，5 表示發光層，6 表示電子輸送層，7 表示陰極。本發明之有機 EL 元件較好具有與發光層鄰接之激子阻止層，又，發光層與電洞注入層之間亦可具有電子阻止層，激子阻止層可插入於發光層之陽極側、陰極側之任一方，亦可同時插入於兩方中。本發明之有機 EL 元件具有基板、陽極、發光層及陰極作為必要之層，但於必要層以外之層，亦可具有電洞注入輸送層、電子注入輸送層，進而於發光層與電子注入層之間亦可具有電洞阻止層。又，電洞注入輸送層意指電洞注入層與電洞輸送層之任一層或二者，電子注入輸送層意指電子注入層與電子輸送層之任一層或二者。

又，亦可與圖 1 相反之構造，亦即以陰極 7、電子輸送層 6、發光層 5、電洞輸送層 4、陽極 2 之順序層合於基板 1 上，該情況下，亦可依據需要追加、省略掉層。

— 基板 —

本發明之有機 EL 元件較好支撐於基板上。該基板並無特別限制，只要是以往慣用於有機 EL 元件者即可，例

如，可使用由玻璃、透明塑膠、石英等所構成者。

#### — 陽極 —

有機 EL 元件中之陽極，較好使用功函數較大（ $4\text{eV}$  以上）之金屬、合金、導電性化合物及該等之混合物作為電極物質者。該等電極物質之具體例列舉為 Au 等金屬、CuI、銦錫氧化物（ITO）、 $\text{SnO}_2$ 、ZnO 等導電性透明材料。又，亦可使用可以 IDIXO（ $\text{In}_2\text{O}_3\text{-ZnO}$ ）等非晶質製作透明導電膜之材料。陽極係利用蒸鍍或濺鍍該等電極物質等方法形成薄膜，亦可以微影法形成期望形狀之圖型，或者稍不需要圖形精度之情況下（ $100\ \mu\text{m}$  以上左右），於上述電極物質之蒸鍍或濺鍍時亦可透過期望形狀之光罩形成圖型。或者，使用如有機導電性化合物之可塗佈物質時，亦可使用印刷方式、塗佈方式等濕式成膜法。自該陽極取出發光時，較好使透過率大於 10%，又作為陽極時之薄片阻抗較好為數百  $\Omega/\square$  以下。另外，膜厚係依材料而定，但通常在  $10\sim 1000\text{nm}$ ，較好在  $10\sim 200\text{nm}$  之範圍內選擇。

#### — 陰極 —

另一方面，陰極為使用功函數較小（ $4\text{eV}$  以下）之金屬（稱為電子注入性金屬）、合金、導電性化合物及該等之混合物作為電極物質者。該等電極物質之具體例列舉為鈉、鈉-鉀合金、鎂、鋰、鎂/銅混合物、鎂/銀混合物、鎂

/鋁混合物、鎂/銦混合物、鋁/氧化鋁 ( $Al_2O_3$ ) 混合物、銦、鋰/鋁混合物、稀土類金屬等。該等中，就電子注入性及對於氧化等之耐久性之觀點而言，較好為電子注入性金屬與功函數之值比其大的安定金屬之第二金屬之混合物，例如，鎂/銀混合物、鎂/鋁混合物、鎂/銦混合物、鋁/氧化鋁 ( $Al_2O_3$ ) 混合物、鋰/鋁混合物、鋁等。陰極可藉由將該等電極物質以蒸鍍或濺鍍等方法形成薄膜而製作。又作為陰極之薄片阻抗較好為數百  $\Omega/\square$  以下，膜厚通常在  $10\text{nm}\sim 5\mu\text{m}$ ，較好  $50\sim 200\text{nm}$  之範圍內選擇。又，為了使發光之光透過，有機 EL 元件之陽極或陰極之任一方若為透明或半透明則可提高發光亮度而較適合。

又，於陰極上以  $1\sim 20\text{nm}$  之膜厚製作上述金屬後，藉由於其上製作於陽極說明中列舉之導電性透明材料，可製作透明或半透明之陰極，藉由應用該等可製作陽極與陰極二者均具有透過性之元件。

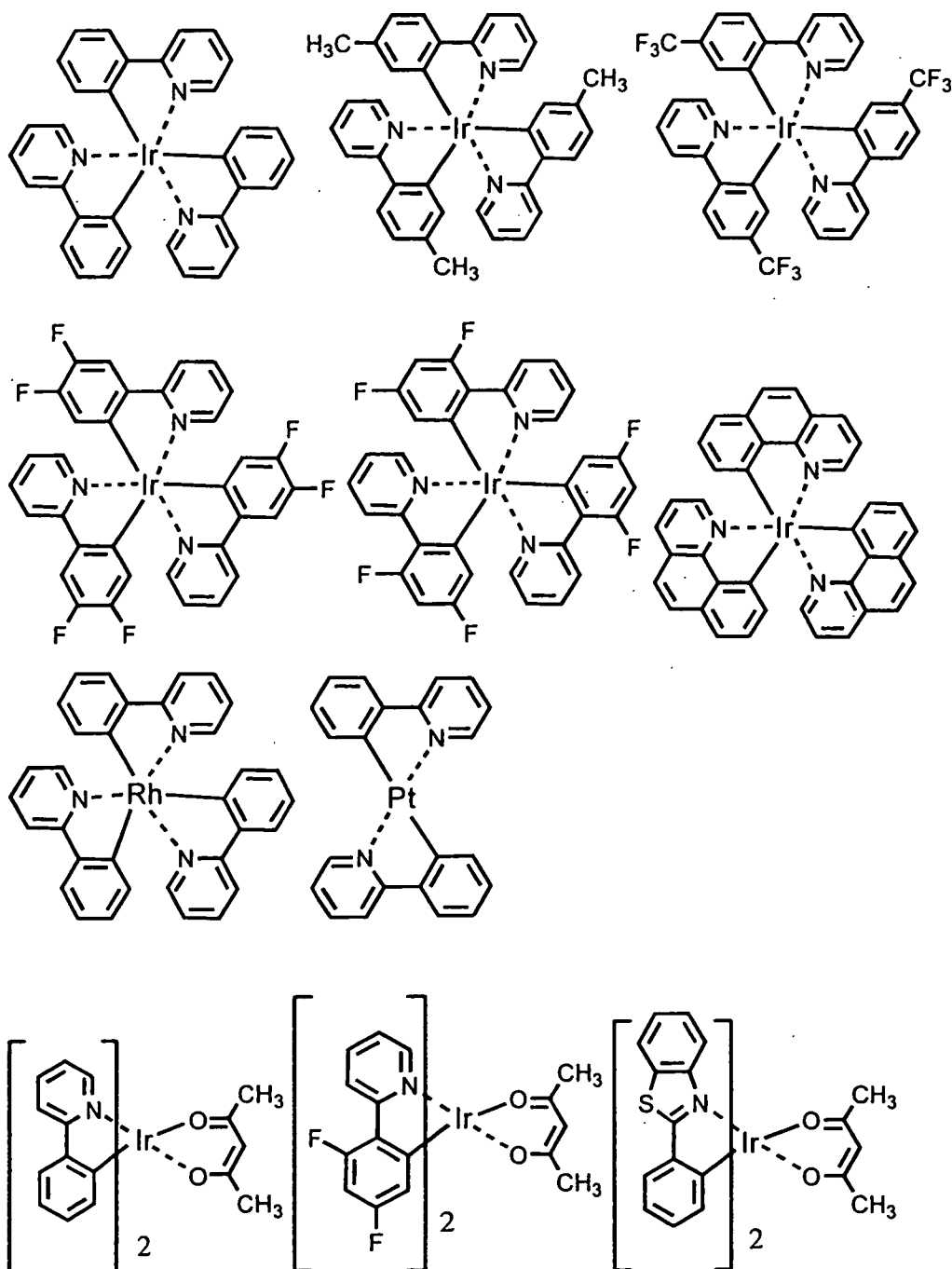
#### — 發光層 —

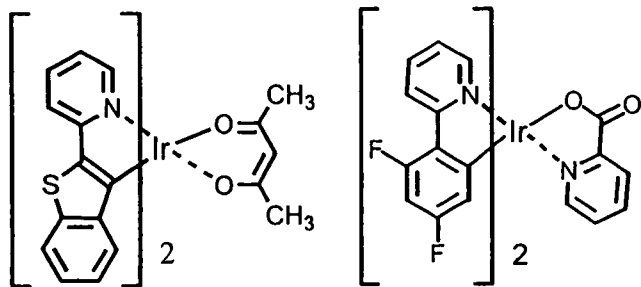
發光層為磷光發光層，包含磷光發光摻雜物與主體材料。磷光摻雜物材料為含有選自鈮、銻、鈮、銀、銻、鐵、銦、鉑及金之至少一種金屬之有機金屬錯合物者即可。該有機金屬錯合物為前述先前技術文獻等所習知，可選擇該等而使用。

較佳之磷光發光摻雜物為具有 Ir 等貴金屬元素作為中心金屬之  $Ir(\text{ppy})_3$  等之錯合物類， $Ir(\text{bt})_2\text{-acac}_3$  等之錯合

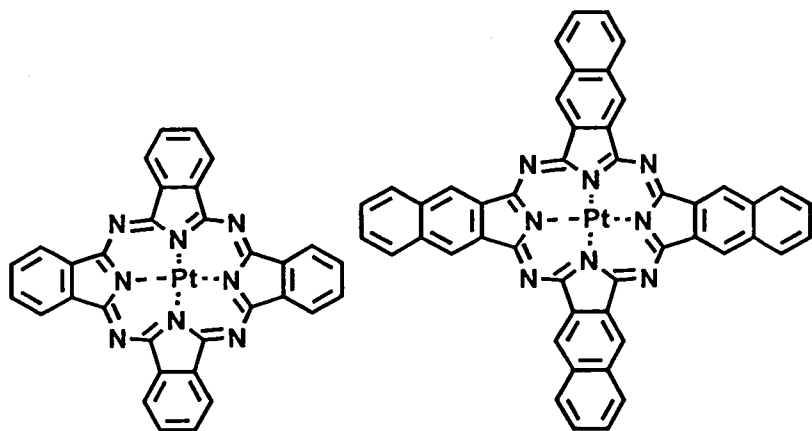
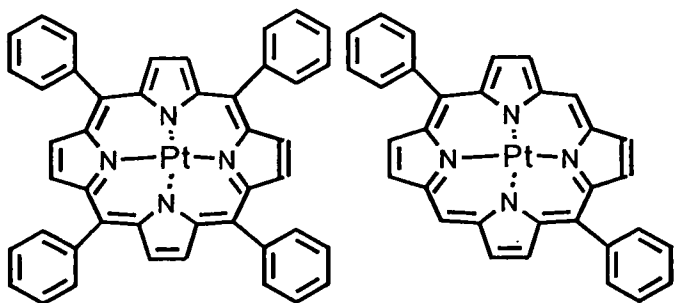
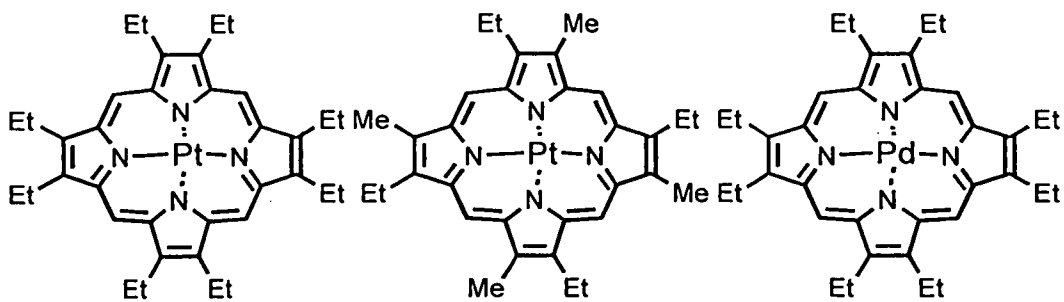
物類、PtOEt<sub>3</sub> 等之錯合物類。該等錯合物類之具體例列示於下，但並不限於下述之化合物。

【化26】





【化 2 7】



前述磷光發光摻雜物於發光層中所含之量較好在 5~30 重量%之範圍。

發光層中之主體材料較好使用以本發明之通式 (1) 表示之吡啶啉化合物。然而，該吡啶啉化合物使用於



除發光層以外之其他任何有機層之中時，發光層中使用之材料亦可為吡啶喹化合物以外之其他主體材料。又，亦可併用吡啶喹化合物與其他主體材料。再者，亦可併用複數種之習知主體材料而使用。

至於可使用之習知主體化合物較好為具有電洞輸送能、電子輸送能，且可防止發光之長波長化，以及具有高的玻璃轉移溫度之化合物。

該等其他主體材料由於可由多數專利文獻等悉知，因此可自該等加以選擇。主體材料之具體例並無特別限制，列舉為吡啶衍生物、喹衍生物、三喹衍生物、噁喹衍生物、噁二喹衍生物、咪喹衍生物、聚芳基烷衍生物、吡啶衍生物、吡啶酮衍生物、苯二胺衍生物、芳基胺衍生物、胺基取代之查爾酮 (chalcone) 衍生物、苯乙烯蔥衍生物、萘酮衍生物、脞衍生物、二苯乙烯衍生物、矽氮烷衍生物、芳香族三級胺化合物、苯乙烯基胺化合物、芳香族二次甲基系化合物、吡啶系化合物、蔥醌二甲烷衍生物、蔥酮衍生物、二苯基醌衍生物、噁喃二氧化物衍生物、二萘嵌苯等之雜環四羧酸酐、酞菁衍生物、8-羥基喹啉衍生物之金屬錯合物或金屬酞菁、苯并噁喹或苯并噁喹衍生物之金屬錯合物為代表之各種金屬錯合物、聚矽烷系化合物、聚(N-乙基喹)衍生物、苯胺系共聚物、噁吩寡聚物、聚噁吩衍生物、聚伸苯衍生物、聚伸苯伸乙烯衍生物、聚萘衍生物等之高分子化合物等。

### — 注入層 —

所謂注入層為設置於電極與有機層之間用以降低驅動電壓或提高發光亮度之層，有電洞注入層與電子注入層，亦可存在於陽極與發光層或與電洞輸送層之間，及陰極與發光層或與電子輸送層之間。注入層可依據需要設置。

### — 電洞阻止層 —

所謂電洞阻止層廣泛意指具有電子輸送層之功能，由一方面具有輸送電子之功能，另一方面使輸送電洞之能力顯著變小之電動阻止材料所構成，可一方面輸送電子一方面阻止電洞，提高電子與電洞之再結合概率。

電洞阻止層較好使用本發明之以通式(1)表示之吡啶唑化合物，但吡啶唑化合物使用於其他任何有機層中時，亦可使用習知之電洞阻止層材料。又，電洞阻止層材料可依據需要使用後述之電子輸送層之材料。

### — 電子阻止層 —

所謂電子阻止層係由一方面具有輸送電洞之功能一方面使輸送電子之能力顯著變小之材料所構成，一方面可輸送電洞一方面阻止電子以提高電子與電洞再結合之概率。

電子阻止層之材料可依據需要使用後述之電洞輸送層之材料。電子阻止層之膜厚較好為 3~100nm，更好為 5~30nm。

### — 激子阻止層 —

所謂激子阻止層為阻止在發光層內電洞與電子再結合產生之激子擴散至電荷輸送層之層，藉由插入該層可有效地將激子封鎖在發光層內，可提高元件之發光效率。激子阻止層可插入於與發光層鄰接之陽極側、陰極側之任一側，亦可同時插入於兩側。

激子阻止層材料列舉為例如 1,3-二咪唑基苯 (mCP) 或雙 (2-甲基-8-羥基喹啉酸)-4-苯基酚酸鋁 (III) (BAIq)。

### — 電洞輸送層 —

所謂電洞輸送層為由具有輸送電洞之功能之電洞輸送材料所構成，且電洞輸送層可為單層或複數層設置。

電洞輸送材料為具有電洞之注入或輸送、電子之障壁性之任一種者，亦可為有機物、無機物之任一種。電洞輸送層較好使用以本發明之通式 (1) 表示之材料，但亦可由過去習知之化合物中選擇任意者使用。可使用之習知電洞輸送材料列舉為例如三唑衍生物、噁二唑衍生物、咪唑衍生物、聚芳基烷衍生物、吡啶衍生物及吡啶酮衍生物、苯二胺衍生物、芳基胺衍生物、胺基取代之查爾酮 (chalcone) 衍生物、噁唑衍生物、苯乙烯蔥衍生物、萘酮衍生物、脞衍生物、二苯乙烯衍生物、矽氮烷衍生物、苯胺系共聚物或導電性高分子寡聚物，尤其是噻吩寡聚物等，但較好使用卟啉化合物、芳香族三級胺化合物及苯乙烯

基胺化合物，更好使用芳香族三級胺化合物。

#### — 電子輸送層 —

所謂電子輸送層係由具有輸送電子之功能之材料所構成，電子輸送層可設置單層或複數層。

電子輸送材料（亦有兼具電洞阻止材料之情況）較好具有將由陰極注入之電子傳送到發光層之功能。電子輸送層較好使用以本發明之通式（1）表示之材料，但亦可選擇使用由過去已知之化合物中選擇任意者，例如，硝基取代之萸衍生物、二苯基醌衍生物、噻喃二氧化物衍生物、碳二醯亞胺、亞萸甲烷衍生物、蔥醌二甲烷及蔥醌衍生物、噁二唑衍生物等。再者，上述噁二唑衍生物中，亦可使用將噁二唑環之氧原子取代成硫原子而成之噻二唑衍生物、已知作為電子吸引基之具有喹噁啉環之喹噁啉衍生物作為電子輸送材料。另外亦可使用將該等材料導入於高分子鏈中，或者使用以該等材料作為高分子之主鏈而成之高分子材料。

#### [實施例]

以下以實施例更詳細說明本發明，但本發明無論如何不受該等實施例之限制，且只要在不逾越其主旨，可以各種形態實施。

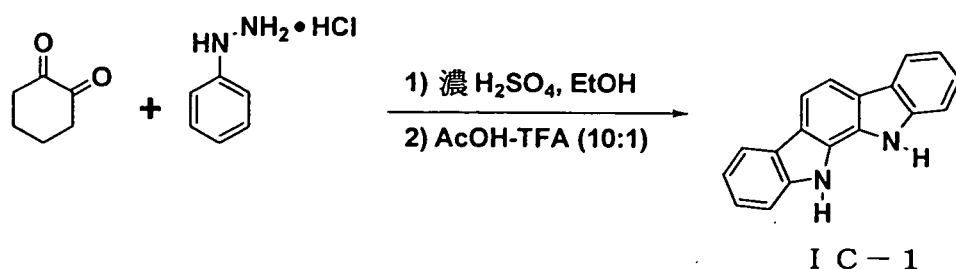
藉由以下所示之路徑合成成為磷光發光元件用材料之喹啉喹唑啉化合物。又，化合物編號係對應於附註於上述化

學式上之編號。

### 合成例 1

11,12-二氫吲哚并[2,3-a]咪唑 (IC-1) 之合成

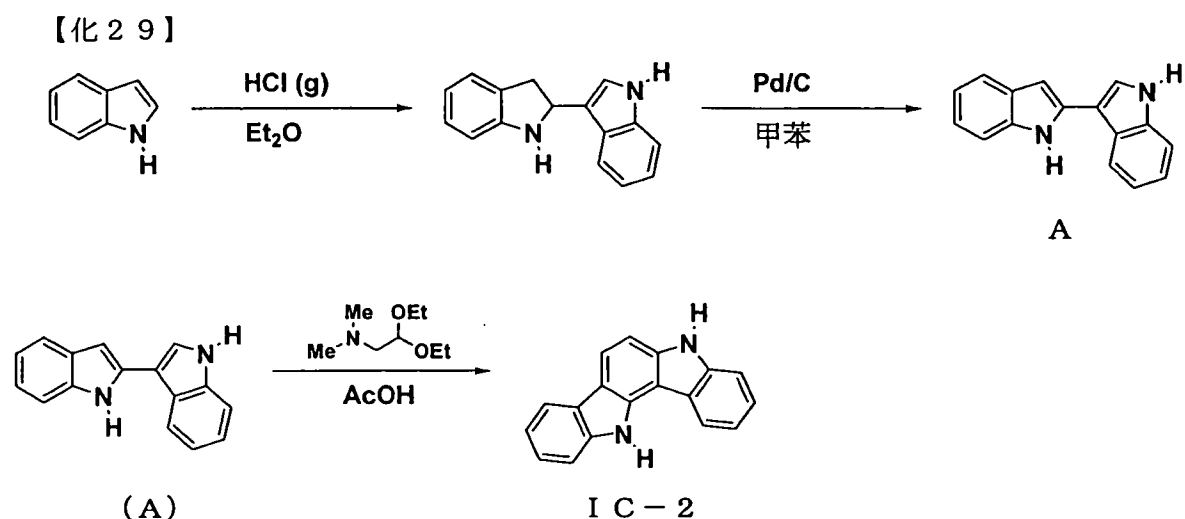
【化 28】



在氮氣氛圍下，於室溫下攪拌 33.3g (0.30mol) 之 1,2-環己二酮、86.0g (0.60mol) 苯基聯胺鹽酸鹽及 1000ml 乙醇，於 5 分鐘內滴加 3.0g (0.031mol) 濃硫酸後，邊於 65℃ 加熱邊攪拌 4 小時。反應溶液冷卻至室溫後，濾取所析出之結晶，使用乙醇 (2×500ml) 進行洗淨，獲得 80.0g 紫茶色結晶。邊在 100℃ 加熱邊使 72.0g (0.26mol) 之該結晶、72.0g 之三氟乙酸及 720.0g 之乙酸攪拌 15 小時。反應溶液冷卻至室溫後，濾取所析出之結晶，以乙酸 (200ml) 洗淨。進行再漿料純化，獲得 30.0g (收率 45%) 之白色結晶 IC-1。

### 合成例 2

5,12-二氫吲哚并[3,2-a]咪唑 (IC-2) 之合成



於氮氣氛圍下，邊在室溫下攪拌含 20.0g (0.17mol) 吲哚之 300ml 脫水二乙醚溶液，邊吹入將 112.0g (1.10mol) 濃鹽酸於一小時內滴加於 211.7g (2.16mol) 濃硫酸內產生之氯化氫氣體。在室溫下攪拌反應溶液 15 小時後，添加 121.0g 之乙酸乙酯及 303.2g 之飽和碳酸氫鈉水溶液。以乙酸乙酯 (2×100ml) 萃取水層後，以飽和碳酸氫鈉水溶液 (100ml) 及蒸餾水 (2×100ml) 洗淨有機層。有機層以無水硫酸鎂乾燥後，過濾掉硫酸鎂，減壓餾除溶劑。將所得殘留物溶解於 150ml 甲苯中，添加 2.5g 之鈀/活性碳後，在 111℃ 加熱回流攪拌 3 小時。反應溶液冷卻至室溫後，過濾掉鈀/活性碳，減壓餾除溶劑。以再結晶進行純化，獲得 14.7g (收率 37%) 之白色結晶中間物 A。

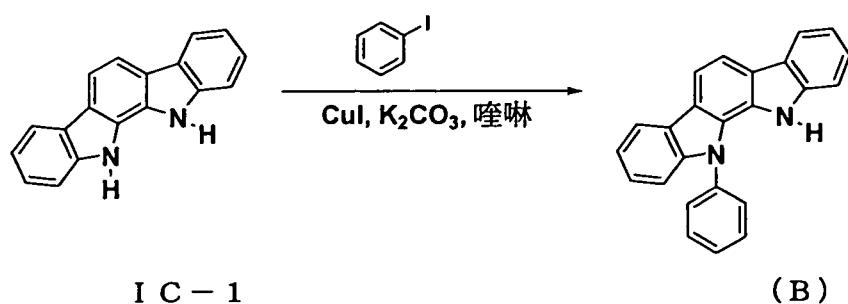
在氮氣氛圍下，在 118℃ 下邊加熱回流邊使 14.1g (0.061mol) 中間物 A、11.4g (0.071mol) N,N'-二甲基胺基乙醛二乙基乙縮醛及 110.0g 乙酸攪拌 8 小時。反應溶液冷卻至室溫後，濾取所析出之結晶，以乙酸 (30ml) 洗

淨。使所得結晶再漿料化純化，獲得 10.4g (收率 67%) 之白色結晶 IC-2。

### 實施例 1

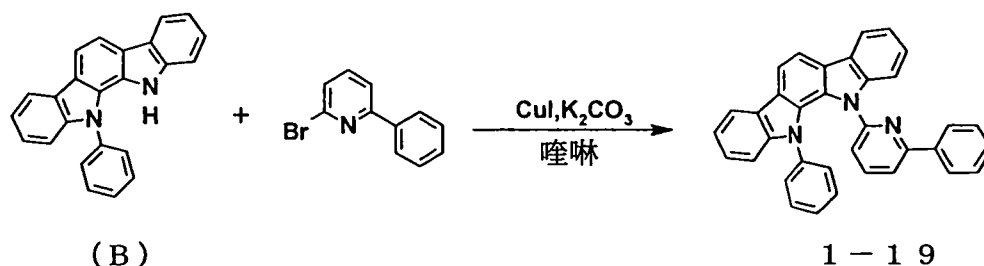
化合物 1-19 之合成

【化30】



在氮氣氛圍下，邊於 190°C 加熱邊使 26.0g (0.10mol) 之 IC-1、122.7g (0.60mol) 碘苯、54.7g (0.29mol) 碘化銅、66.7g (0.48mol) 碳酸鉀及 800ml 之喹啉攪拌 72 小時。反應溶液冷卻至室溫後，攪拌下添加蒸餾水 (500ml) 及二氯甲烷 (500ml)。濾取所析出之結晶後，以蒸餾水 (3×500ml) 洗淨有機層。有機層以無水硫酸鎂乾燥後，濾除硫酸鎂，減壓餾除溶劑。所得殘留物以矽膠管柱層析法進行純化，獲得 13.7g (收率 41%) 之白色固體中間物 B。

## 【化 3 1】



在氮氣氛圍下，邊於 190℃ 加熱邊使 1.00g (0.0030 mol) 中間物 B、0.70g (0.0030mol) 2-溴-6-苯基吡啶、1.14g (0.0060mol) 碘化銅、1.24g (0.0090mol) 碳酸鉀及 50ml 之喹啉攪拌 20 小時。20 小時後，追加注入將 0.30g (0.0013mol) 2-溴-6-苯基吡啶溶解於 10ml 喹啉中而成之混合溶液，在 190℃ 下攪拌 6 小時。反應溶液冷卻至室溫後，在攪拌下添加蒸餾水 (200ml) 及二氯甲烷 (300ml)。過濾所析出之結晶後，以蒸餾水 (3×200ml) 洗淨有機層。有機層以無水硫酸鎂乾燥後，過濾硫酸鎂，減壓餾除溶劑。所得殘留物以矽膠管柱層析法進行純化，獲得 0.39g (0.00081mol, 收率 27%) 之白色固體化合物 1-19。

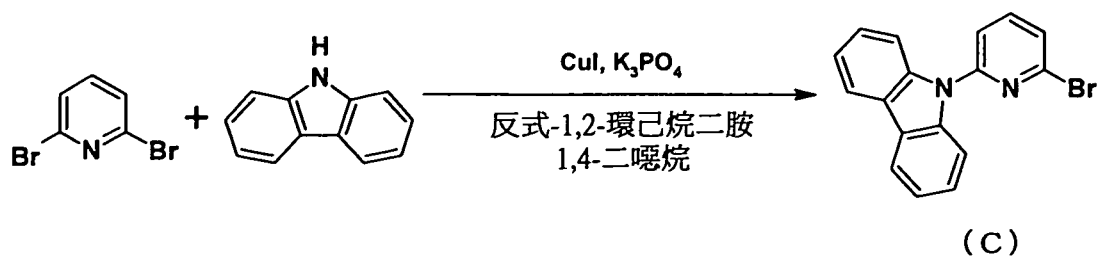
APCI-TOFMS,  $m/z$  486 $[M+H]^+$ ,  $^1H$ -NMR 測定結果 (測定溶劑: THF-d8) 示於圖 2。

## 實施例 2

## 化合物 1-43 之合成

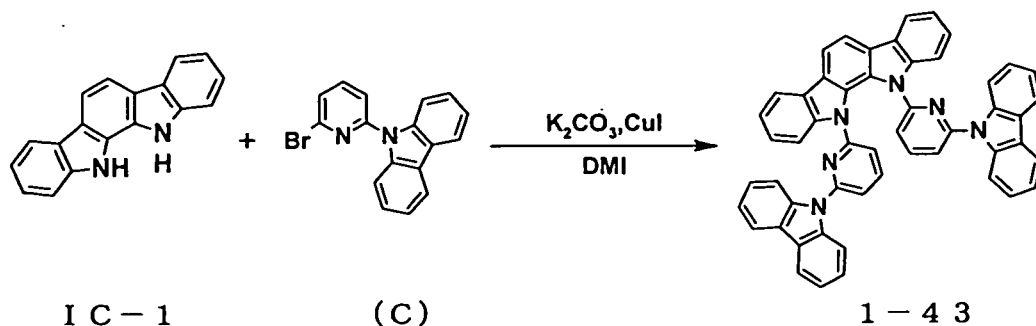


## 【化 3 2】



在氮氣氛圍下，攪拌下添加 50g (0.21mol) 之 2,6-二溴吡啶、17.5g (0.10mol) 吲哚、0.53g (0.0028mol) 碘化銅、116.2g (0.55mol) 磷酸三鉀、1000ml 之 1,4-二噁烷。於其中添加 3.5g (0.031mol) 之反式-1,2-環己烷二胺，加熱至 110℃ 並攪拌 4 小時。反應溶液冷卻至室溫後，過濾無機物，減壓餾除溶劑。使所得殘留物溶解於 300ml 二氯甲烷中，添加 100ml 蒸餾水，分離有機層與水層，以蒸餾水 (2×200ml) 洗淨有機層。有機層以硫酸鎂進行脫水，過濾硫酸鎂後，減壓餾除溶劑。所得黃色結晶經減壓乾燥後，以管柱層析法純化，獲得白色粉末。以再結晶進行純化，獲得 17.0g (0.053mol，收率 31%) 白色粉末狀中間物 C。

## 【化 3 3】



在氮氣氛圍下。邊於 170℃ 加熱邊使 2.5g (0.0098mol) 之 IC-1、12.6g (0.039mol) 之中間物 C、8.4g (

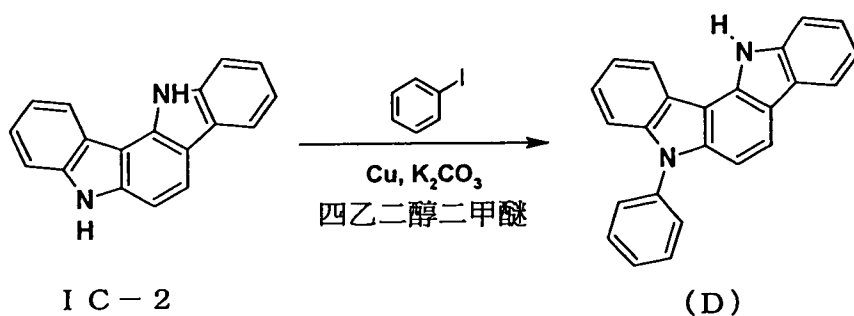
0.044mol) 之碘化銅、10.1g (0.073mol) 之碳酸鉀及 150ml 之 1,3-二甲基咪唑啉酮攪拌 40 小時。反應溶液冷卻至室溫後，過濾無機物。將所得濾液添加於 1000ml 之水中並攪拌，過濾所析出之結晶。使之減壓乾燥後，以管柱層析法純化，獲得 2.9g (0.0039mol, 收率 40.0%) 之白色粉末狀化合物 1-43。

APCI-TOFMS,  $m/z$  741 $[M+H]^+$ ,  $^1H$ -NMR 測定結果 (測定溶劑: THF- $d_8$ ) 示於圖 3。

### 實施例 3

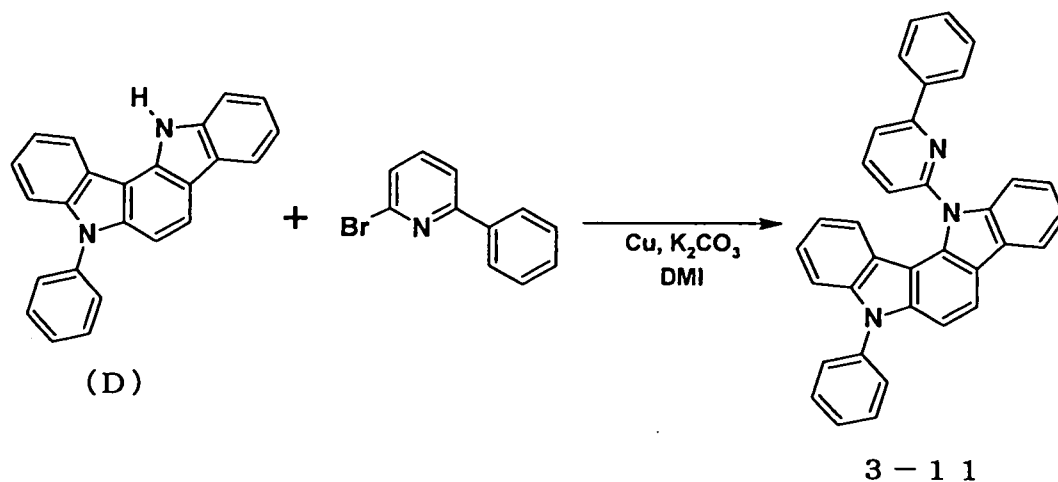
#### 化合物 3-11 之合成

##### 【化 3 4】



在氮氣氛圍下，添加 10.0g (0.039mol) 之 IC-2、39.8g (0.20mol) 之碘苯、6.2g (0.098mol) 銅、8.1g (0.059mol) 碳酸鉀及 200ml 四乙二醇二甲醚並攪拌。隨後加熱至 190°C，攪拌 24 小時。反應溶液冷卻至室溫後，過濾銅、無機物。在攪拌下於濾液中添加 200ml 蒸餾水，過濾析出之結晶。使之減壓乾燥後，以管柱層析法純化，獲得 9.7g (0.029mol, 收率 75.0%) 之白色粉末狀中間物 D。

## 【化 3 5】



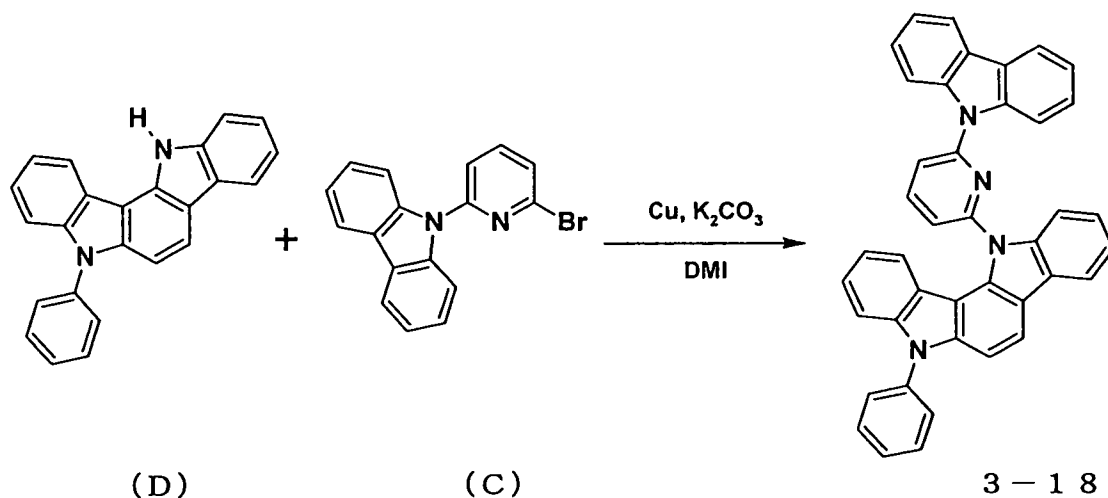
在氮氣氛圍下，添加 26.0g (0.078mol) 之中間物 (D)、15.0g (0.064mol) 之 2-溴-6-苯基吡啶、4.2g (0.065mol) 銅、16.6g (0.12mol) 碳酸鉀、250ml 之 1,3-二甲基-2-咪唑啉酮 (DMI)，加熱至 200°C 並攪拌 4 天。反應溶液冷卻至室溫後，過濾無機物。將濾液滴加於 1000ml 蒸餾水中，攪拌隔夜，過濾所析出之結晶。使過濾之結晶溶於 300ml 二氯甲烷中，於其中添加 100ml 蒸餾水，分離有機層及水層，以蒸餾水 (2×200ml) 洗淨有機層。有機層以硫酸鎂進行脫水，過濾硫酸鎂後，減壓餾除溶劑。所得黏性液體以管柱層析法純化，獲得白色粉末。以再結晶進行純化，獲得 10.3g (0.021mol, 收率 27%) 之白色粉末狀化合物 3-11。

APCI-TOFMS,  $m/z$  486  $[\text{M}+\text{H}]^+$ ,  $^1\text{H-NMR}$  測定結果 (測定溶劑:  $\text{CD}_2\text{Cl}_2$ ) 示於圖 4。

## 實施例 4

## 化合物 3-18 之合成

## 【化36】



在氮氣氛圍下，添加 13.6g (0.041mol) 中間物 D、11.0g (0.034mol) 中間物 C、4.4g (0.068mol) 銅、18.8g (0.14mol) 碳酸鉀、125ml 之 1,3-二甲基-2-咪唑啉酮 (DMI)，加熱至 200℃ 並攪拌 5 天。反應溶液冷卻至室溫後，過濾無機物。將濾液滴加於裝入有 500ml 蒸餾水之三角燒瓶中，攪拌 2 小時，過濾所析出之結晶。使過濾之結晶溶於 200ml 二氯甲烷中，於其中添加 100ml 蒸餾水，分離有機層及水層，以蒸餾水 (2×100ml) 洗淨有機層。有機層以硫酸鎂進行脫水，過濾硫酸鎂後，減壓餾除溶劑。所得黏性液體以管柱層析法純化，獲得 8.2g (0.014mol，收率 35%) 之白色粉末狀化合物 3-18。

APCI-TOFMS,  $m/z$  575 $[M+H]^+$ ,  $^1H$ -NMR 測定結果 (測定溶劑:  $CD_2Cl_2$ ) 示於圖 5。

又，依據上述合成例及說明書中所述之合成方法，合成化合物 1-1、2-1、3-1 及 3-22，且提供於有機 EL 元件之製作。

### 實施例 5

在形成膜厚 150nm 之由 ITO 所構成之陽極之玻璃基板上，以真空蒸鍍法，以真空度  $4.0 \times 10^{-4}$  Pa 層合各薄膜。首先，於 ITO 上以 20nm 厚形成銅酞菁 (CuPC)。接著，形成 40nm 厚之作為電洞輸送層之 4,4'-雙[N-(1-萘基)-N-苯基胺基]聯苯 (NPB)。接著，於電洞輸送層上，自不同之蒸鍍源共蒸鍍作為發光層之主體材料之例示化合物 1-1，作為客體材料之參(2-苯基吡啶)銱(III) ( $\text{Ir(ppy)}_3$ )，形成厚度 35nm 之發光層。此時， $\text{Ir(ppy)}_3$  之濃度為 7.0wt%。接著，形成厚 40nm 之參(8-羥基喹啉酸)鋁(III) ( $\text{Alq}_3$ ) 作為電子輸送層。進而，於電子輸送層上形成厚 0.5nm 之氟化鋰 (LiF) 作為電子注入層。最後，於電子注入層上形成厚 170nm 之鋁 (Al) 作為電極，製作有機 EL 元件。

將外部電源連接於所得之有機 EL 元件上且施加直流電壓後，確認具有如表 1 之發光特性。表 1 中，亮度、電壓及發光效率係顯示於  $10\text{mA/cm}^2$  之值。又，元件發光光譜之極大波長為 517nm，可了解獲得自  $\text{Ir(ppy)}_3$  之發光。

### 實施例 6

除使用化合物 1-19 作為發光層之主體材料以外，餘如實施例 5 般，製作有機 EL 元件。

### 實施例 7

除使用化合物 1-43 作為發光層之主體材料以外，餘如實施例 5 般，製作有機 EL 元件。

#### 實施例 8

除使用化合物 2-1 作為發光層之主體材料以外，餘如實施例 5 般，製作有機 EL 元件。

#### 實施例 9

除使用化合物 3-1 作為發光層之主體材料以外，餘如實施例 5 般，製作有機 EL 元件。

#### 實施例 10

除使用化合物 3-11 作為發光層之主體材料以外，餘如實施例 5 般，製作有機 EL 元件。

#### 實施例 11

除使用化合物 3-18 作為發光層之主體材料以外，餘如實施例 5 般，製作有機 EL 元件。

#### 實施例 12

除使用化合物 3-22 作為發光層之主體材料以外，餘如實施例 5 般，製作有機 EL 元件。

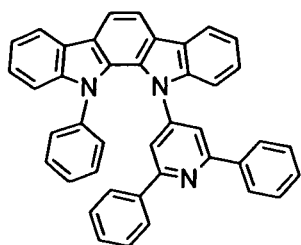
#### 比較例 1

除使用 CBP 作為發光層之主體材料以外，餘如實施例 5 般，製作有機 EL 元件。

### 比較例 2

除使用下述化合物 H-1 作為發光層之主體材料以外，餘如實施例 5 般，製作有機 EL 元件。

【化 37】



H-1

實施例 5~12 及比較例 1~2 獲得之有機 EL 元件之元件發光光譜之極大波長均為 517nm，了解獲得來自 Ir(ppy)<sub>3</sub> 之發光。發光特性示於表 1 中。

[表 1]

	主體材料	初期特性 (@10mA/cm <sup>2</sup> )		
		亮度 (cd/m <sup>2</sup> )	電壓 (V)	視感發光效率 (lm/W)
實施例 5	1-1	2790	6.0	14.6
實施例 6	1-19	2840	6.2	14.4
實施例 7	1-43	2810	6.4	13.8
實施例 8	2-1	2840	6.5	13.7
實施例 9	3-1	2770	6.2	14.0
實施例 10	3-11	2930	5.9	15.6
實施例 11	3-18	2820	6.3	14.1
實施例 12	3-22	2760	6.3	13.8
比較例 1	CBP	2250	9.2	7.7
比較例 2	H-1	2740	6.7	12.8

## 實施例 13

在形成膜厚 110nm 之由氧化銦錫 (ITO) 所構成之陽極之玻璃基板上，以真空蒸鍍法，以真空度  $2.0 \times 10^{-5}$  Pa 層合各薄膜。首先，於 ITO 上以 25nm 厚形成作為電洞注入層之銅酞菁 (CuPC)。接著，形成 90nm 厚之作為電洞輸送層之 N,N-二(萘-1-基)-N,N-二苯基-聯苯胺 (NPB)。接著，於電洞輸送層上，自不同之蒸鍍源共蒸鍍作為發光層之主體材料之化合物 3-1 及作為摻雜物之藍色磷光材料之銹錯合物 [銹(III)雙(4,6-二氟苯基)吡啶酸-N,C2']吡啶甲酸鹽] (FIrpic)，形成厚度 30nm 之發光層。FIrpic 之濃度為 10%。接著，形成厚 30nm 之作為電子輸送層之 Alq3。進而，於電子輸送層上形成厚 1.0nm 之氟化鋰 (LiF) 作為電子注入層。最後，於電子注入層上形成厚 70nm 之作為電極之鋁 (Al)。所得有機 EL 元件為具有圖 1 中所示之有機 EL 元件中，在陰極與電子輸送層之間追加有電子注入層而成之層構造。

將外部電源連接於所得之有機 EL 元件上且施加直流電壓後，確認具有如表 2 之發光特性。表 2 中，亮度、電壓及發光效率係顯示於  $2.5 \text{ mA/cm}^2$  之值。又，元件發光光譜之極大波長為 475nm，可了解獲得自 FIrpic 之發光。

## 實施例 14

除使用化合物 3-11 作為發光層之主體材料以外，餘如實施例 13 般，製作有機 EL 元件。



### 實施例 15

除使用化合物 3-18 作為發光層之主體材料以外，餘如實施例 13 般，製作有機 EL 元件。

### 實施例 16

除使用化合物 3-22 作為發光層之主體材料以外，餘如實施例 13 般，製作有機 EL 元件。

### 比較例 3

除使用 CBP 作為發光層之主體材料以外，餘如實施例 13 般，製作有機 EL 元件。

### 比較例 4

除使用 H-1 作為發光層之主體材料以外，餘如實施例 13 般，製作有機 EL 元件。

實施例 13~16 及比較例 3~4 獲得之有機 EL 元件之元件發光光譜之極大波長均為 475nm，了解獲得自 FIrpic 之發光。發光特性示於表 2。

[表 2]

	主體材料	發光特性 (@2.5mA/cm <sup>2</sup> )		
		亮度 (cd/m <sup>2</sup> )	電壓 (V)	視感發光效率 (lm/W)
實施例 13	3-1	140	7.5	2.3
實施例 14	3-11	135	7.3	2.3
實施例 15	3-18	140	7.2	2.4
實施例 16	3-22	120	7.4	2.0
比較例 3	CBP	90	8.5	1.3
比較例 4	H-1	55	8.1	0.9

由表 2，可判定實施例之有機 EL 元件相對於比較例之有機 EL 元件顯示出良好之發光特性，顯示本發明之優異性。

#### [發明效果]

本發明之磷光發光元件用材料之特徵為以吡啶取代於吡啶嗪骨架之氮上，進而取代有芳香環。尤其於吡啶之 2,6-位分別以吡啶嗪骨架、芳香環取代，藉此認為可提高分子之安定性。認為上述磷光發光元件用材料顯示良好之電荷注入輸送特性，且具有良好之耐久性。使用其之有機 EL 元件之元件驅動電壓低，尤其是發光層中包含該磷光發光元件用材料時，由於電荷之均衡性良好，故認為可提高再結合概率。又，該磷光發光元件用材料由於封鎖住摻雜物之最低激發三重態狀態之能量而具有充分高的最低激發三重態狀態之能量，故被認為可有效抑制三重態激發

能量來自摻雜物之朝主體分子之移動。由上述觀點，達成高的發光效率。此外，由於該磷光發光元件用材料顯示良好的非晶型特性與高的熱安定性，又由於電化學上安定，故可實現驅動壽命長且耐久性高之有機 EL 元件。

依據本發明之有機 EL 元件於發光特性、驅動壽命以及耐久性方面成爲可滿足實用上之位準，於平面面板顯示器（行動電話顯示元件、車用顯示元件、辦公設備（OA）電腦顯示元件或電視等）、產生作爲面發光體特徵之光源（照明、影印機之光源、液晶顯示器或儀錶類之背光光源）、顯示板或標誌燈等之應用中，其技術價值大。

#### 【圖式簡單說明】

圖 1 爲顯示有機 EL 元件之一構造例之剖面圖。

圖 2 爲顯示本發明之化合物 1~19 之  $^1\text{H-NMR}$  圖。

圖 3 爲顯示本發明之化合物 1~43 之  $^1\text{H-NMR}$  圖。

圖 4 爲顯示本發明之化合物 3~11 之  $^1\text{H-NMR}$  圖。

圖 5 爲顯示本發明之化合物 3~18 之  $^1\text{H-NMR}$  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

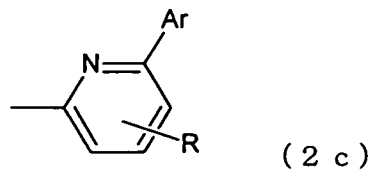
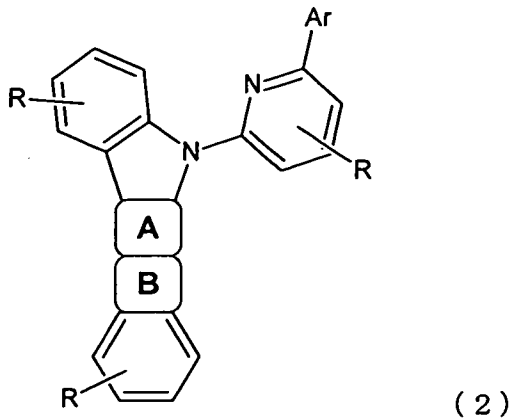
6 : 電子輸送層

7 : 陰極

## 七、申請專利範圍：

1. 一種磷光發光元件用材料，其特徵為由以通式 (2) 表示之吡啶唑化合物所構成：

【化 2】



通式 (2) 中，環 A 表示與鄰接環縮合之以式 (1a) 表示之芳香環，環 B 表示與鄰接環縮合之以式 (1b) 表示之雜環；式 (1a) 中，X 表示次甲基；式 (1b) 中，A 表示碳數 6~38 之芳香族烴基、碳數 1~10 之烷基、碳數 3~11 之環烷基或以式 (2c) 表示芳香族雜環基；

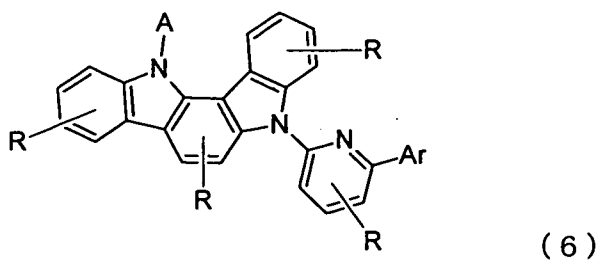
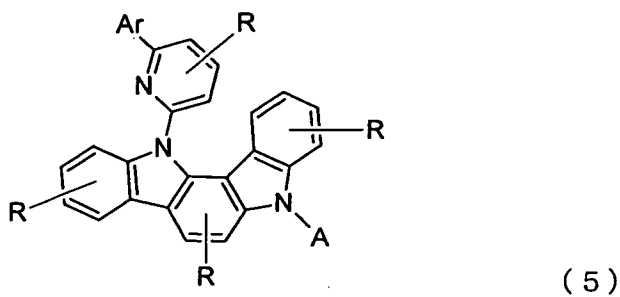
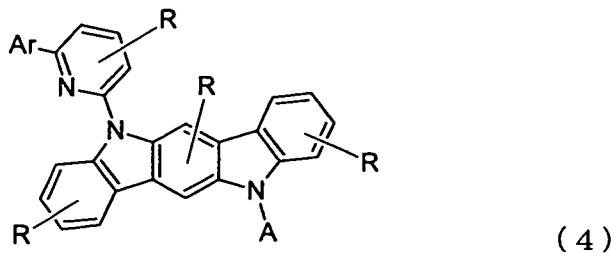
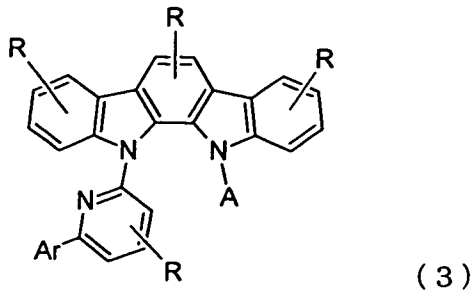
通式 (2) 及 (2c) 中，Ar 分別獨立表示碳數 6~18 之芳香族烴基或碳數 3~17 之芳香族雜環基；通式 (2)、(1a) 及 (2c) 中，R 分別獨立表示氫、碳數 1~10 之烷基或碳數 3~11 之環烷基。

2.如申請專利範圍第 1 項之磷光發光元件用材料，其中通式 (2) 中，A 為非縮環構造之碳數 6~38 之芳香族烴基或以上述式 (2c) 表示之芳香族雜環基。

3.如申請專利範圍第 1 項之磷光發光元件用材料，其中通式 (2) 中，Ar 為非縮環構造之碳數 6~18 之芳香族烴基或碳數 3~17 之芳香族雜環基。

4.如申請專利範圍第 1 項之磷光發光元件用材料，其中以通式 (2) 表示之吡啶唑啉化合物為以通式 (3) ~ (6) 之任一者表示之吡啶唑啉化合物：

【化 3】



通式 (3) ~ (6) 中，A、Ar 及 R 與通式 (2) 相同意義。

5. 一種有機電致發光元件，其特徵為其係在基板上層合有陽極、有機層及陰極所成之有機電致發光元件中，具有含有如申請專利範圍第 1 至 4 項中任一項之磷光發光元件用材料之有機層。

6. 如申請專利範圍第 5 項之有機電致發光元件，其中

含有磷光發光元件用材料之有機層係選自發光層、電洞輸送層、電子輸送層及電洞阻止層所組成組群之至少一層。

7.如申請專利範圍第 6 項之有機電致發光元件，其中含有磷光發光元件用材料之有機層係含有磷光發光摻雜物之發光層。



圖 1

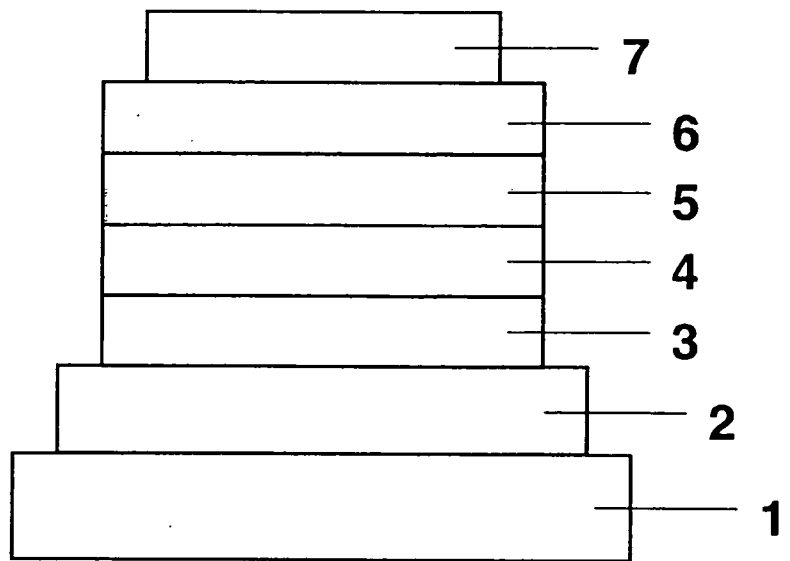


圖 2

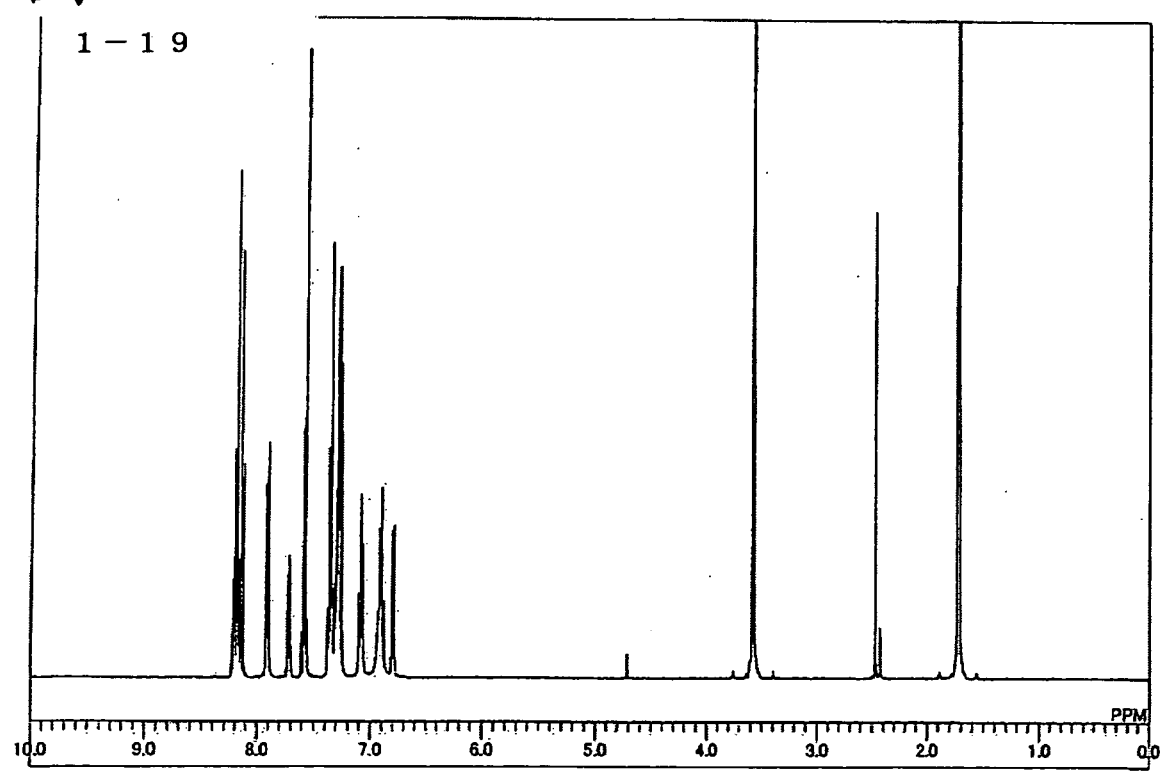


圖 3

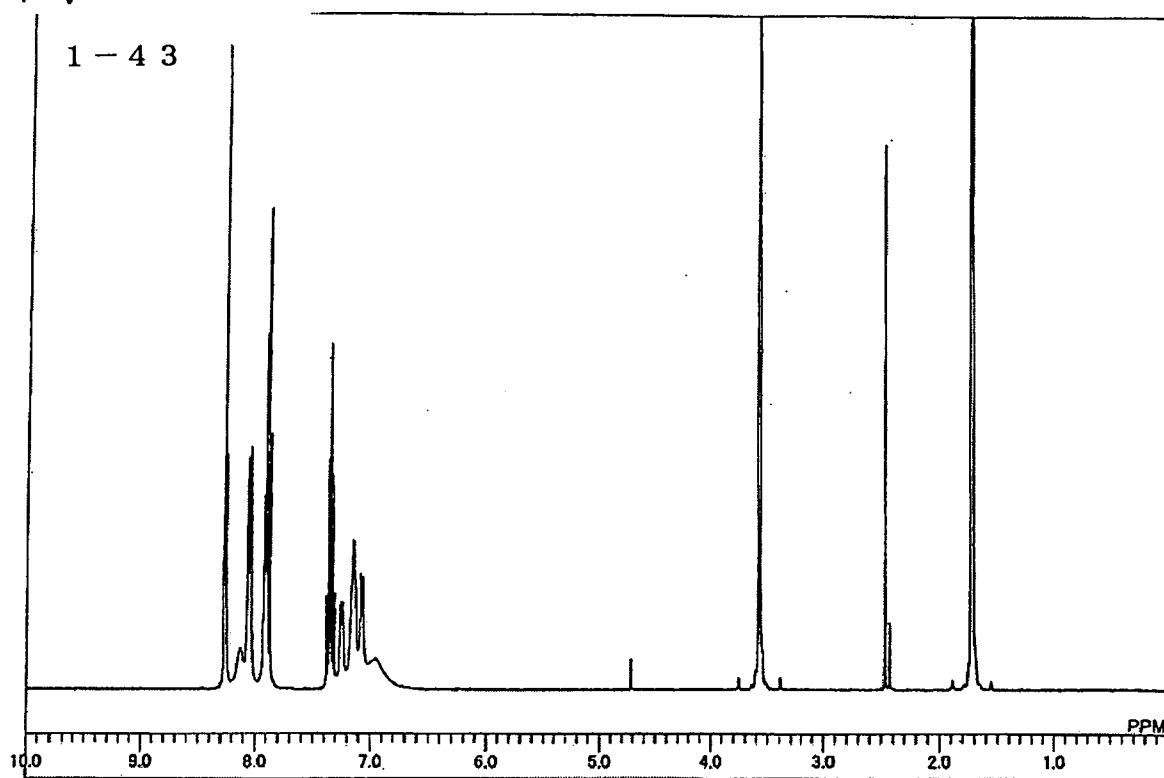


圖 4

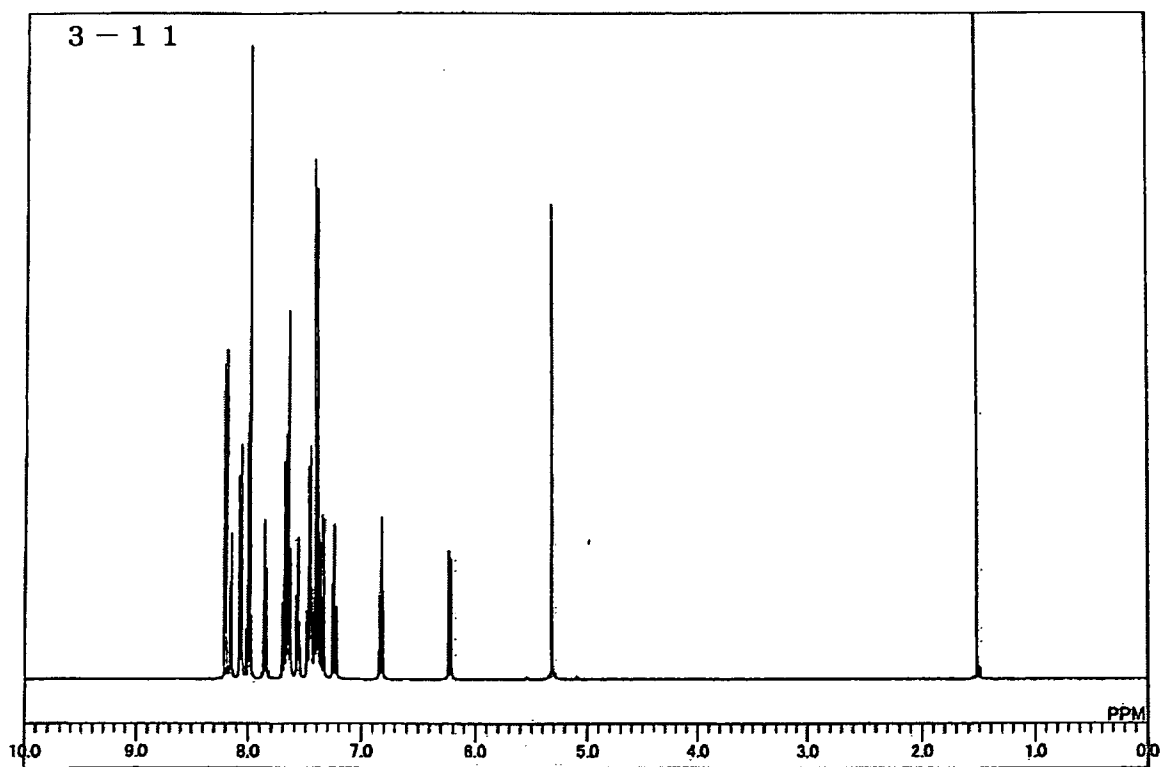


圖 5

