

[19] 中华人民共和国国家知识产权局



# [12] 发明专利申请公布说明书

[21] 申请号 200880015074.5

[51] Int. Cl.  
C09K 11/06 (2006.01)  
H01L 51/50 (2006.01)

[43] 公开日 2010 年 3 月 24 日

[11] 公开号 CN 101679852A

[22] 申请日 2008.5.23  
[21] 申请号 200880015074.5  
[30] 优先权  
[32] 2007.5.30 [33] JP [31] 142994/2007  
[86] 国际申请 PCT/JP2008/059523 2008.5.23  
[87] 国际公布 WO2008/149691 日 2008.12.11  
[85] 进入国家阶段日期 2009.11.6  
[71] 申请人 新日铁化学株式会社  
地址 日本东京  
[72] 发明人 古森正树 山本敏浩 甲斐孝弘  
野口胜秀 宫崎浩

[74] 专利代理机构 中国国际贸易促进委员会专利  
商标事务所  
代理人 贾成功

权利要求书 3 页 说明书 22 页 附图 1 页

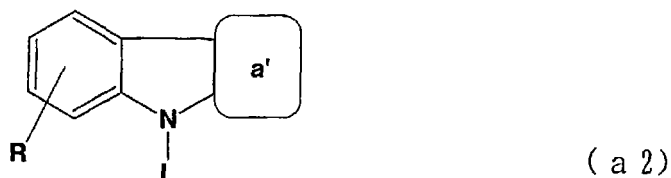
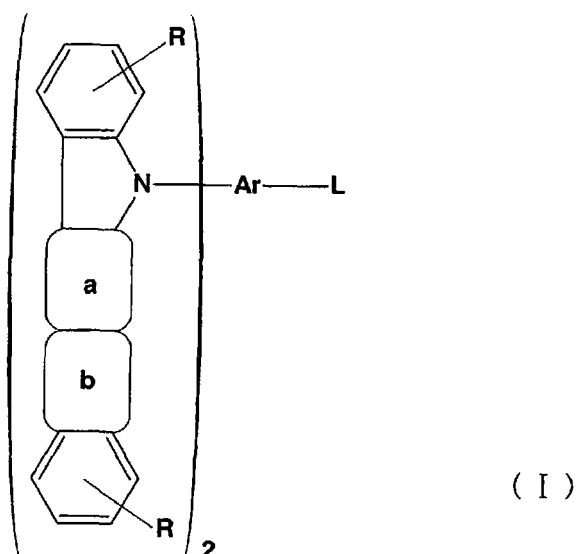
## [54] 发明名称

有机场致发光元件用化合物及有机场致发光  
元件

## [57] 摘要

本发明提供改善元件的发光效率、充分确保驱动稳定性，并且具有简单的构成的有机场致发光元件(有机 EL 元件)用化合物及使用其的有机 EL 元件。该有机 EL 元件用化合物是具有 2 个键合在芳香族基团上的吡啶唑骨架或与其类似的骨架的化合物。该有机 EL 光元件是在层叠于基板上的阳极和阴极之间具有发光层的有机场致发光元件，该发光层含有磷光发光性掺杂剂和上述 EL 元件用化合物作为主体材料。

1、一种有机场致发光元件用化合物，其特征在于，其由下述通式(I)表示，



其中，

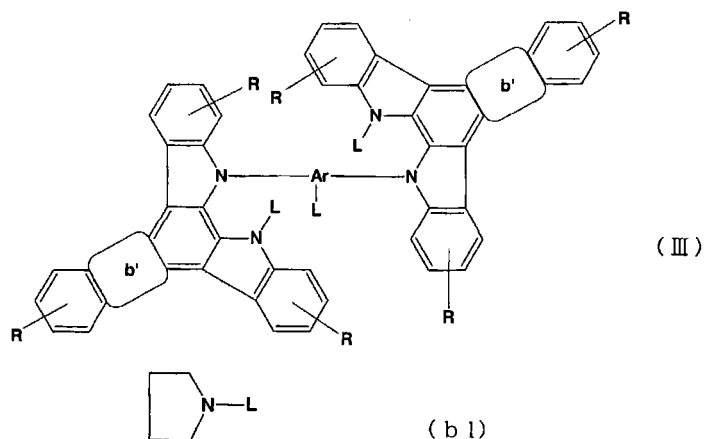
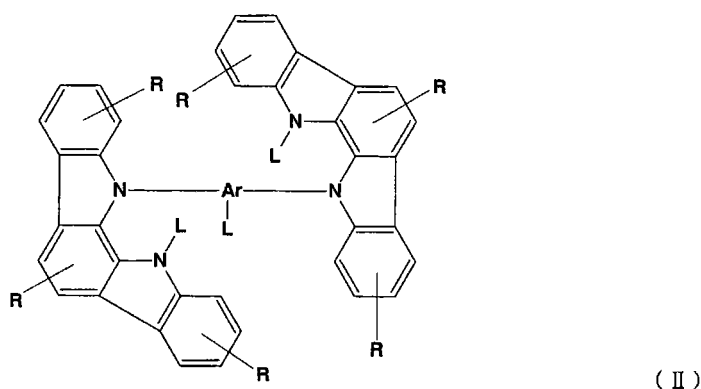
环 a 表示与 2 个邻接环稠合的式 (a1) 或 (a2) 表示的芳香环或杂环，  
环 a' 表示与 3 个邻接环稠合的式 (a1) 表示的芳香环或杂环，X 表示  
CH 或 N；环 b 表示与 2 个邻接环稠合的式 (b1) 表示的杂环，

Ar 表示包含芳香族烃基或芳香族杂环基的 3 价基团，

L 独立地表示具有至少 1 个稠环结构的取代或未取代的芳香族烃基或者芳香族杂环基，

R 独立地表示氢、烷基、芳烷基、烯基、炔基、氰基、二烷基氨基、二芳基氨基、二芳烷基氨基、氨基、硝基、酰基、烷氧基羰基、羧基、烷氧基、烷基磺酰基、卤代烷基、羟基、酰胺基、或者取代或未取代的芳香族烃基或芳香族杂环基。

2、如权利要求 1 所述的有机场致发光元件用化合物，其由下述通式 (II) 或 (III) 表示，



在通式 (II) 及 (III) 中，Ar、L 及 R 具有与通式 (I) 的 Ar、L 及 R 相同的含义，

环 b' 独立地表示与 2 个邻接环稠合的式 (b1) 表示的杂环。

3、如权利要求 2 所述的有机场致发光元件用化合物，其中，在通

式(II)或(III)中, Ar 是由下述式(IV)表示的 3 价基团。



其中, Y 独立地表示 CH 或 N, 至少一个 Y 是 N。

4、一种有机场致发光元件, 其在层叠于基板上的阳极和阴极之间具有发光层, 其特征在于, 该发光层含有磷光发光性掺杂剂和权利要求 1~3 中任一项所述的有机场致发光元件用化合物作为主体材料。

5、如权利要求 4 所述的有机场致发光元件, 其中, 在阳极和发光层之间具有空穴注入传输层, 在阴极和发光层之间具有电子注入传输层。

6、如权利要求 5 所述的有机场致发光元件, 其中, 在发光层和电子注入传输层之间具有空穴阻挡层。

## 有机场致发光元件用化合物及有机场致发光元件

### 技术领域

本发明涉及新型有机场致发光元件用化合物及有机场致发光元件(以下称为有机 EL 元件),详细而言,涉及通过并用磷光发光掺杂剂和具有特定结构的主体化合物而显示高亮度的有机 EL 元件。

### 背景技术

通常,有机 EL 元件,作为其最简单的结构是由发光层及夹持该层的一对对电极构成。即,在有机 EL 元件中,利用的是如下现象:当在两电极之间施加电场时,电子从阴极被注入,空穴从阳极被注入,这些电子和空穴在发光层中在复合能级从导带返回价带时作为能量发出光。

近年来,对使用了有机薄膜的 EL 元件进行了开发。特别是为了提高发光效率,通过以提高由电极注入载流子的效率为目的而对电极种类进行最佳化,在电极之间以薄膜的形式设置有包含芳香族二胺的空穴传输层和包含 8-羟基喹啉合铝络合物(以下称为 Alq3)的发光层的元件的开发,与目前的使用有蒽等单晶的元件相比,发光效率得到了大幅度的改善,因此以具有自发光·高速应答性这样的特征的高性能平板的实用为目标进行了发展。

另外,作为提高元件的发光效率的尝试,还正在研究不使用荧光而使用磷光。以上述设置有包含芳香族二胺的空穴传输层和包含 Alq3 的发光层的元件为代表的许多元件利用的是荧光发光,但如果使用磷光发光、即利用来自三重激发态的发光,则与目前的使用荧光(单态)的元件相比,可以期待 3 倍左右的效率提高。为了该目的,对将香豆素衍生物、二苯甲酮衍生物作为发光层进行了研究,但只得到极低的亮度。之后,作为利用三重态的尝试,对使用钼络合物进行了研究,

但其也未达到高效率的发光。作为磷光发光掺杂剂，提出了许多如专利文献1中列举的方案。

专利文献1：特表2003-515897号公报

专利文献2：特开2001-313178号公报

专利文献3：特开2002-305083号公报

专利文献4：特开2002-352957号公报

专利文献5：特开平11-162650号公报

专利文献6：特开平11-176578号公报

专利文献7：特开2003-142264号公报

在有机EL元件开发中，作为用于发光层的主体材料而提出的为专利文献2所介绍的咔唑化合物的CBP。当作为绿色磷光发光材料的三(2-苯基吡啶)铱络合物(以下称为Ir(ppy)3)的主体材料使用CBP时，由于CBP使空穴易流动而使电子难流动的特性，电荷注入均衡被破坏，过剩的空穴流出到电子传输侧，结果来自Ir(ppy)3的发光效率降低。

作为上述的解决手段，例如如专利文献3所示，存在在发光层和电子传输层之间设置空穴阻挡层的手段。通过利用该空穴阻挡层将空穴有效地积蓄在发光层中，可使其与在发光层中的电子的复合几率提高，达到发光的高效率化。作为目前通常使用的空穴阻挡材料，可以举出2,9-二甲基-4,7-二苯基-1,10-菲咯啉(以下称为BCP)及双(2-甲基-8-喹啉基-N1,08)对苯代苯酚基铝(以下称为BA1q)。由此可以防止在电子传输层电子和空穴的复合，但由于BCP即使在室温下也容易结晶化，缺乏作为材料的可靠性，所以元件寿命极短。另外，据报道，BA1q的Tg为约100℃时，为比较良好的元件寿命结果，但空穴阻挡能力不足，来自Ir(ppy)3的发光效率降低。

另一方面，在专利文献4中介绍的3-苯基-4-(1'-萘基)-5-苯基-1,2,4-三唑(以下称为TAZ)也作为磷光有机EL元件的主体材料而被提出，但由于容易使电子流动而使空穴难以流动的特性，发光区域成为空穴传输层侧。因此，也认为，由于不同的空穴传输层的材料与Ir(ppy)3的相容性问题，来自Ir(ppy)3的发光效率降低。例如，作

为空穴传输层从高性能、高可靠性、高寿命的观点考虑最优选使用的4, 4'-双(N-(1-萘基)-N-苯基氨基)联苯(以下称为NPB)与Ir(ppy)<sub>3</sub>的相容性差, 存在引起从Ir(ppy)<sub>3</sub>向NPB的能量迁移、发光效率降低这样的问题。

另外, 在专利文献7中, 提出了将具有适度的电子传输能力的上述BA1q作为磷光有机EL元件的主体材料使用。根据本文献, 可以不使层构成复杂而实现长寿命的磷光有机EL元件, 但不能说在实用上是充分的。

另外, 在专利文献5及6中进行了吡啶唑啉化合物的公开, 但关于本发明的化合物, 没有公开。另外, 在专利文献5及6中公开的吡啶唑啉化合物被推荐作为空穴传输材料使用, 化合物的稳定性也得到颂扬, 但并没有教导作为磷光主体材料的使用。

## 发明内容

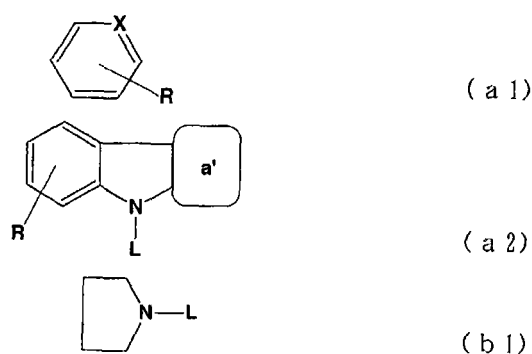
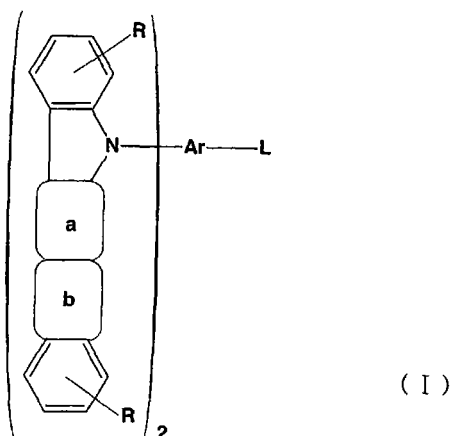
### 发明要解决的课题

为了将有机EL元件应用于平板显示器等显示元件, 有必要在改善元件的发光效率的同时充分确保驱动时的稳定性。鉴于上述现状, 本发明的目的在于, 提供一种高效率且具有高驱动稳定性的实用上有用的有机EL元件及适于其的化合物。

### 用于解决课题的手段

本发明人等进行了深入研究, 结果发现, 通过将具有特定的吡啶唑啉骨架或与其类似的骨架的化合物用于有机EL元件中, 可以解决上述课题, 以至完成本发明。

本发明的有机场致发光元件用化合物, 由下述通式(I)表示。



其中，

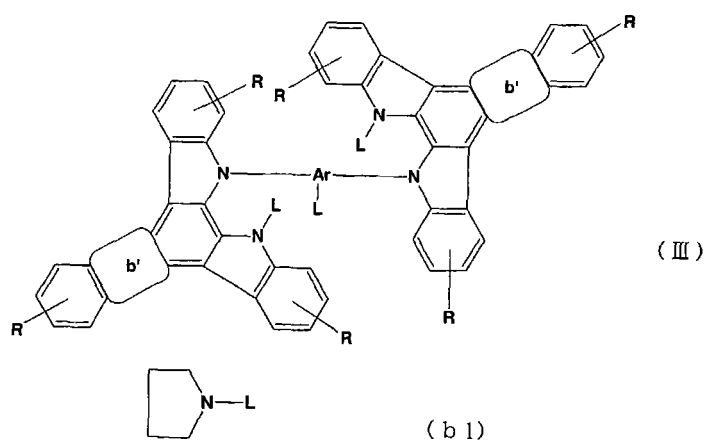
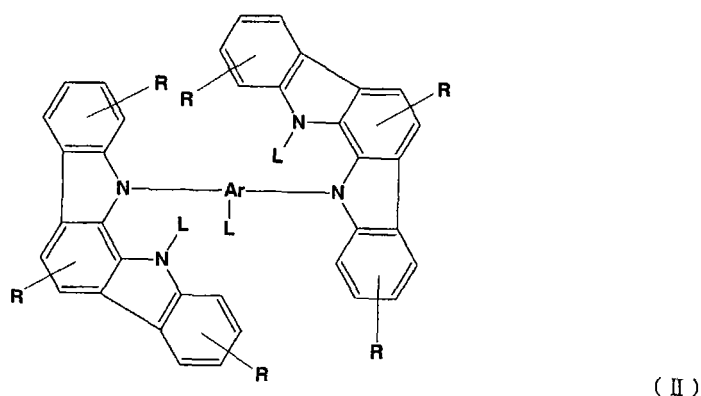
环 a 表示与 2 个邻接环稠合的式 (a1) 或 (a2) 表示的芳香环或杂环，环 a' 表示与 3 个邻接环稠合的式 (a1) 表示的芳香环或杂环，X 表示 CH 或 N。环 b 表示与 2 个邻接环稠合的式 (b1) 表示的杂环。

Ar 表示包含芳香族烃基或芳香族杂环基的 3 价基团。

L 独立地表示取代或未取代的芳香族烃基或芳香族杂环基，至少一个具有稠环结构。

R 独立地表示氢、烷基、芳烷基、烯基、炔基、氰基、二烷基氨基、二芳基氨基、二芳烷基氨基、氨基、硝基、酰基、烷氧基羰基、羧基、烷氧基、烷基磺酰基、卤代烷基、羟基、酰胺基、取代或未取代的芳香族烃基或芳香族杂环基。

通式 (I) 表示的有机场致发光元件用化合物，有由通式 (II) 或 (III) 表示的化合物。



在通式(II)及(III)中,

Ar、L及R具有与通式(I)的Ar、L及R相同的含义。

环b' 独立地表示与2个邻接环稠合的式(b1)表示的杂环。

在式(II)及(III)中, Ar 优选为由下述式(IV)表示的3价基团。



其中,

Y 独立地表示 CH 或氮(N), 至少一个为 N。

另外, 本发明涉及一种机场致发光元件, 其是在层叠于基板上的阳极和阴极之间具有发光层的有机场致发光元件, 其特征在于, 该发

光层含有磷光发光性掺杂剂和上述有机场致发光元件用化合物作为主体材料。

上述有机场致发光元件优选在阳极和发光层之间具有空穴注入传输层、在阴极和发光层之间具有电子注入传输层。另外，优选在发光层和电子注入传输层之间具有空穴阻挡层。

以下，对本发明的实施方式进行详细说明。

本发明的有机场致发光元件用化合物由上述通式(I)表示。作为通式(I)表示的化合物的优选例子，有由通式(II)及(III)表示的化合物。在通式(II)及(III)中，Ar 优选为由通式(IV)表示的3价基团。

在通式(I)中，环a表示与2个邻接环稠合的式(a1)或(a2)表示的芳香环或杂环，环a'表示与3个邻接环稠合的式(a1)表示的芳香环或杂环，X表示CH或N。环b表示与2个邻接环稠合的式(b1)表示的杂环。这些环的优选例子可以由通式(II)及(III)来理解。Ar表示包含芳香族烃基或芳香族杂环基的3价基团。予以说明的是，所谓包含芳香族烃基或芳香族杂环基的3价基团，是指至少一个键为芳香族烃基或芳香族杂环基即可、其它键也可为连结芳香族烃基或芳香族杂环基的基团或原子。Ar的优选例子为苯环或含杂原子的芳香族杂环，更优选由通式(IV)表示。

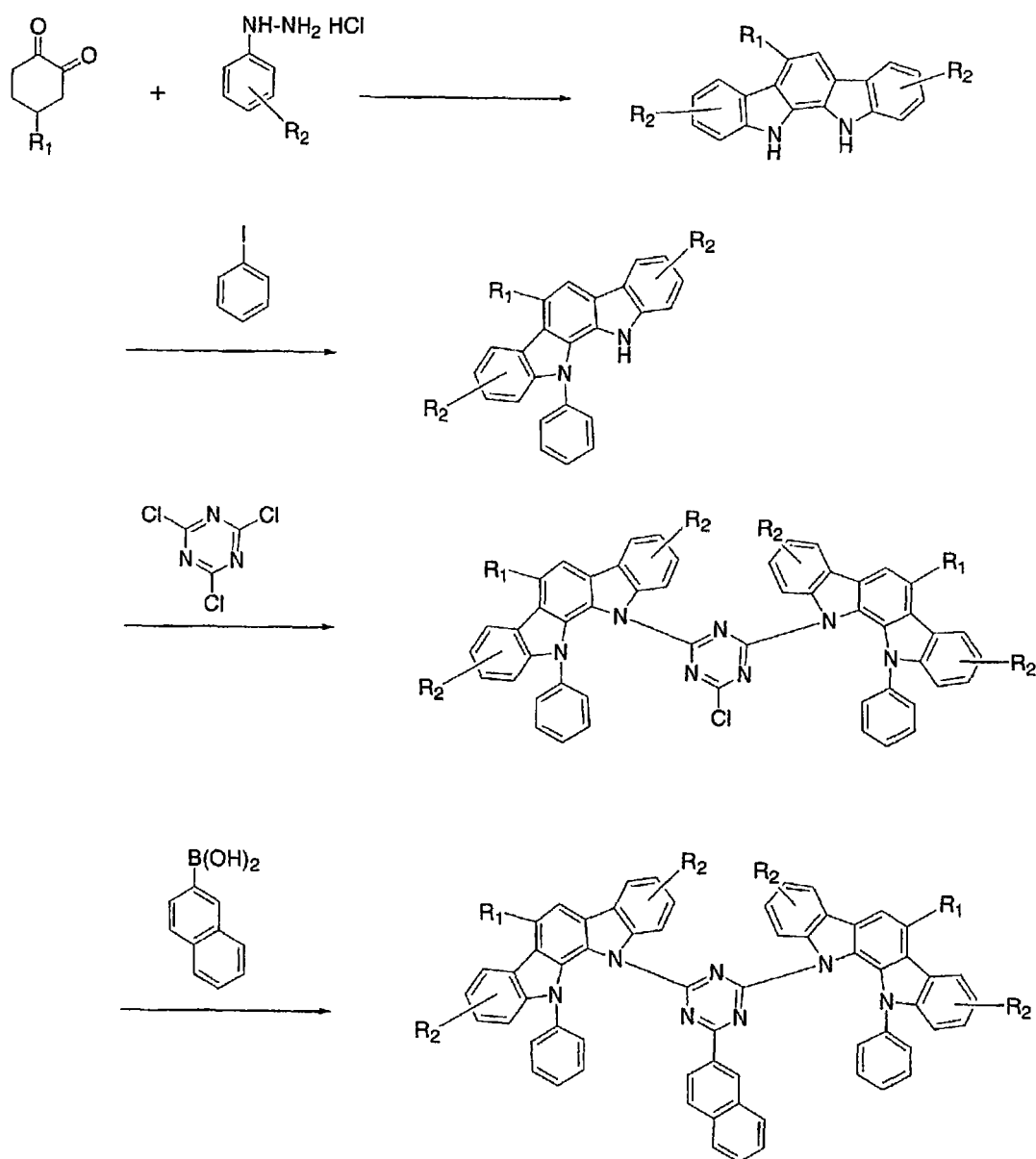
L 独立地表示取代或未取代的芳香族烃基或芳香族杂环基，至少一个具有稠环结构。作为稠环结构，有2~3个芳香族环稠合而成的芳香族烃环或芳香族杂环。在芳香族烃基或芳香族杂环基具有取代基的情况下，作为优选的取代基，可以举出用下述R说明的基团。

R 独立地表示氢、烷基、芳烷基、烯基、炔基、氰基、二烷基氨基、二芳基氨基、二芳烷基氨基、氨基、硝基、酰基、烷氧基羰基、羧基、烷氧基、烷基磺酰基、卤代烷基、羟基、酰胺基、取代或未取代的芳香族烃基或芳香族杂环基。优选的R为氢。予以说明的是，在为烷基、烷氧基、烷基磺酰基、卤代烷基、烷氧基羰基的情况下，优选碳数为1~6，在为烯基、炔基的情况下，优选碳数为2~6。在为酰基、二烷基氨基、二芳基氨基、二芳烷基氨基的情况下，优选碳数为

2~16。

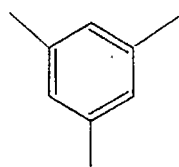
在采用下面说明的制造方法的情况下,相对于 Ar 处于对象的位置的环或取代基相互相同是有利的。例如,通式(I)的各 2 个环 a 和环 b 分别相同是有利的。同样,对于相对于通式(II)~(III)中的 Ar 处于对象的位置的各 3 个 R 及各 2 个 L 也相同是有利的。

由通式(I)~(III)表示的化合物可以用公知的方法容易地进行制造。例如,由通式(I)表示的化合物可以参考 Tetrahedron, 1991, vol.47, No.37, p7739-7750 中所示的合成例进行制造。

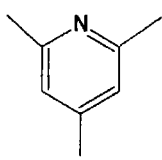


通式(I)~(III)中的 Ar 是包含 L 取代的芳香族烃基或芳香族杂环

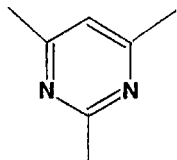
基的 3 价基团, 优选的是, 可举出如下所示的由 Ar-1 ~ Ar-20 表示的基团。其中, 1 个键与 L 键合, 2 个键与 2 个环构成氮原子键合。



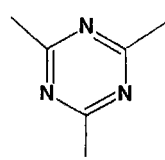
Ar-1



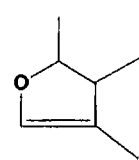
Ar-2



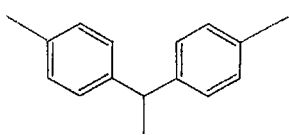
Ar-3



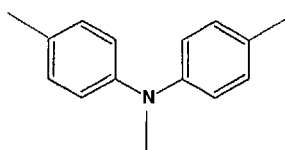
Ar-4



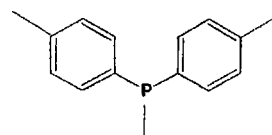
Ar-5



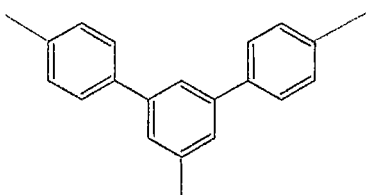
Ar-6



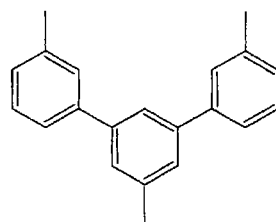
Ar-7



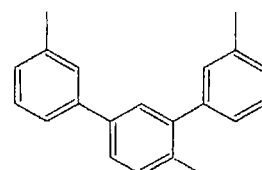
Ar-8



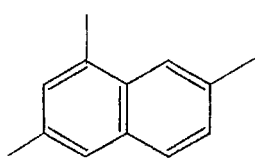
Ar-9



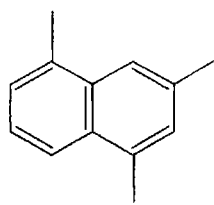
Ar-10



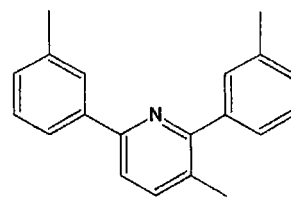
Ar-11



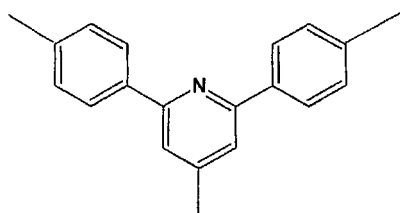
Ar-12



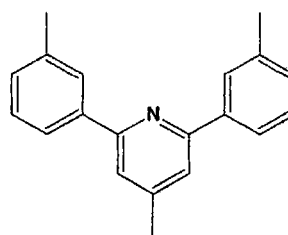
Ar-13



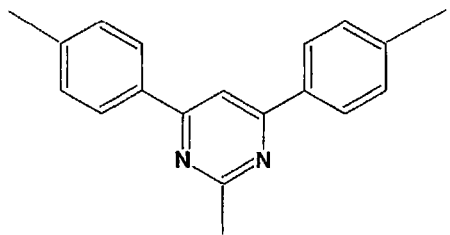
Ar-14



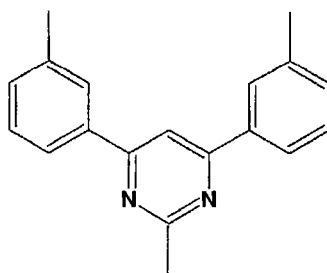
Ar-15



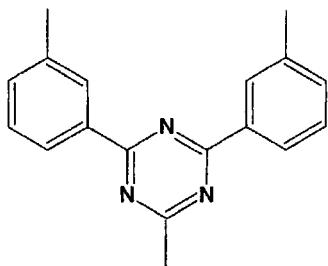
Ar-16



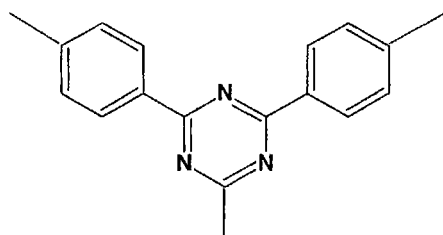
Ar - 17



Ar - 18

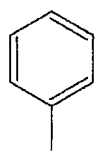


Ar - 19

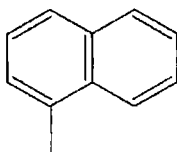


Ar - 20

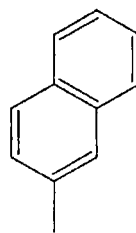
另外,取代基 L 表示取代或未取代的芳香族烃基或芳香族杂环基,优选为稠环结构。作为优选的例子,可以举出如下所示的 L-1 ~ L-15。作为更优选的例子,可以举出如下所示的 L-2 ~ L-15。



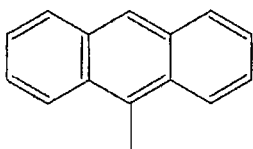
L-1



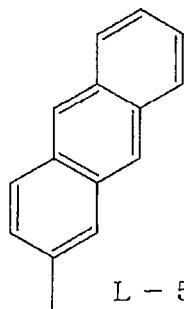
L-2



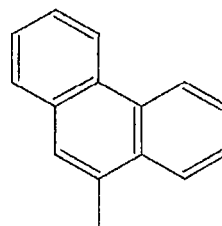
L-3



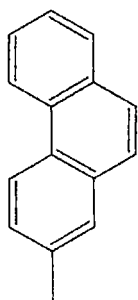
L-4



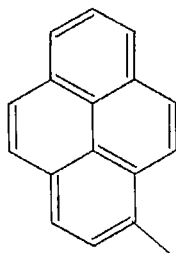
L-5



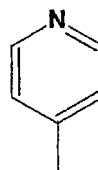
L-6



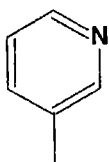
L-7



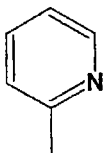
L-8



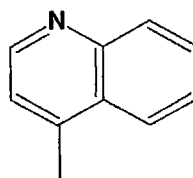
L-9



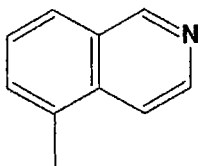
L-10



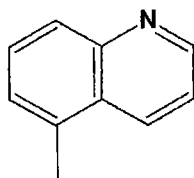
L-11



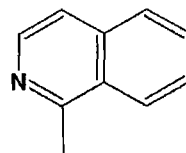
L-12



L-13

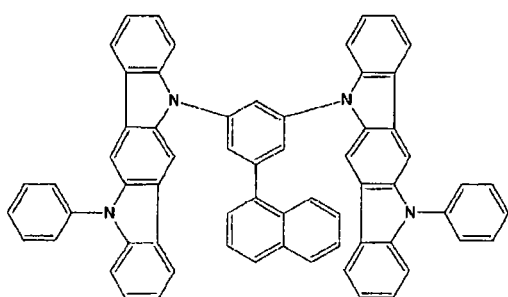


L-14

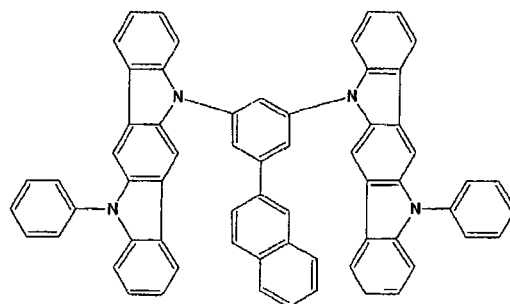


L-15

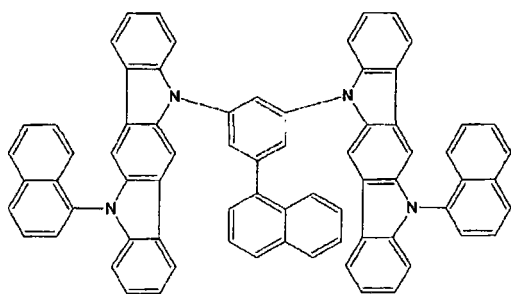
以下示出由上述通式(I)~(III)表示的化合物的优选的具体例子,但不限于此。



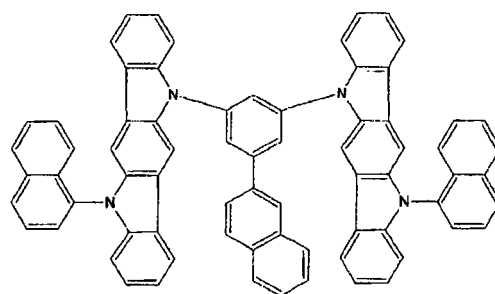
1



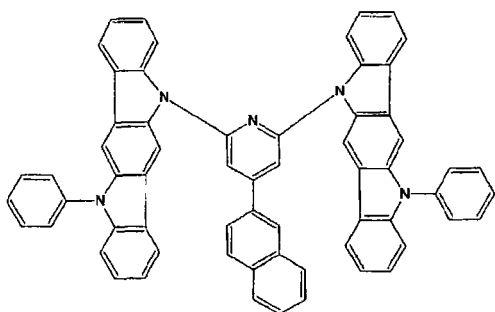
2



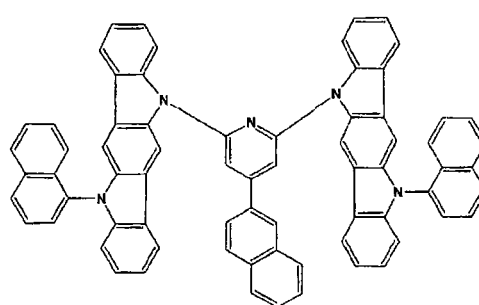
3



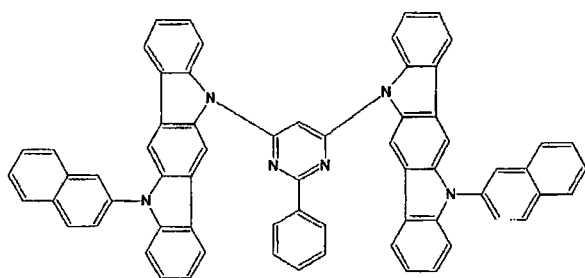
4



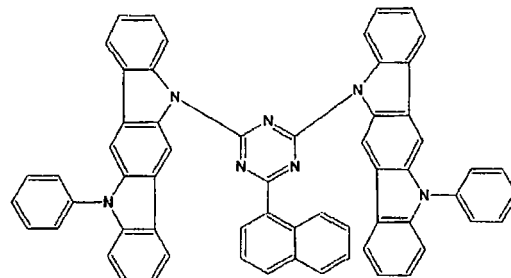
5



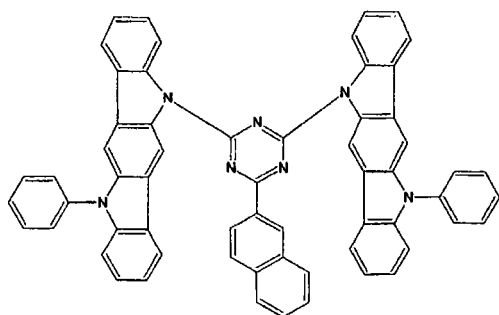
6



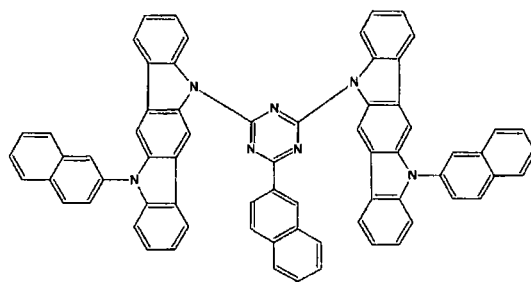
7



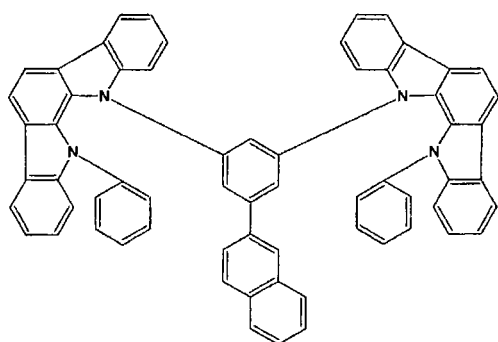
8



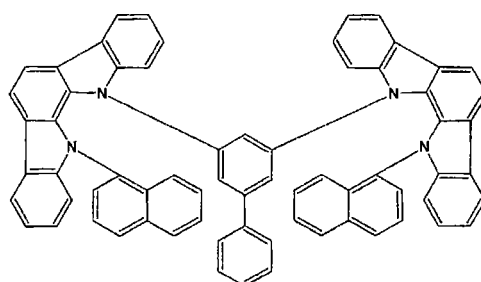
9



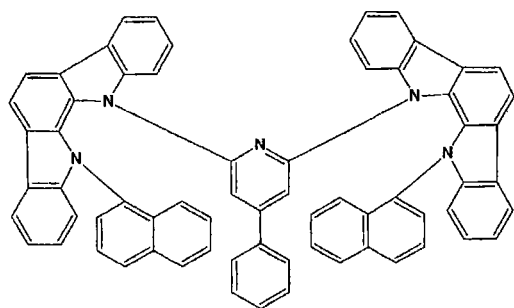
10



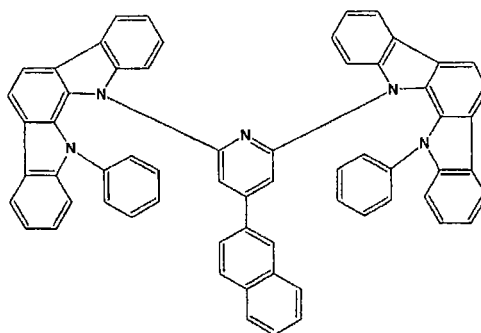
11



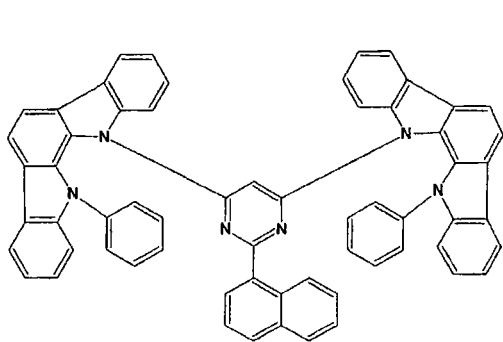
12



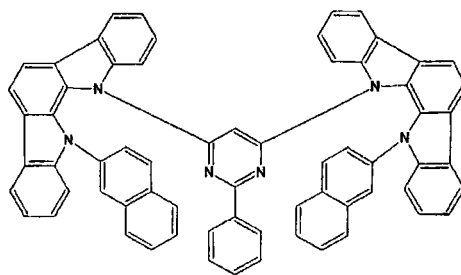
13



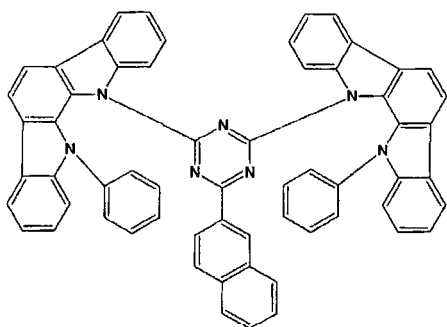
14



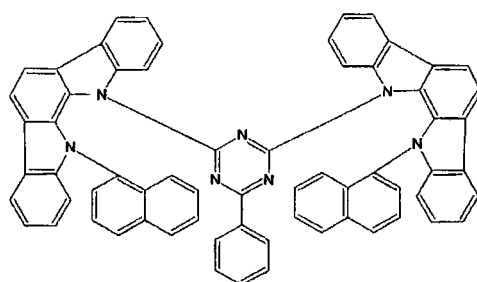
1 5



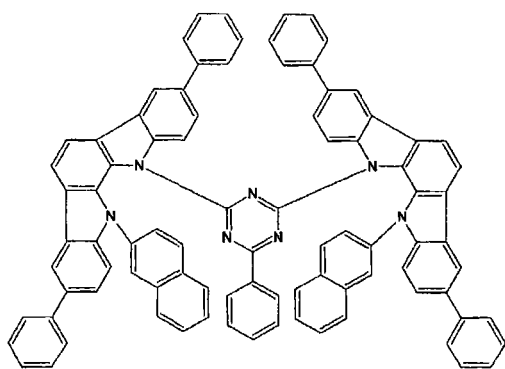
1 6



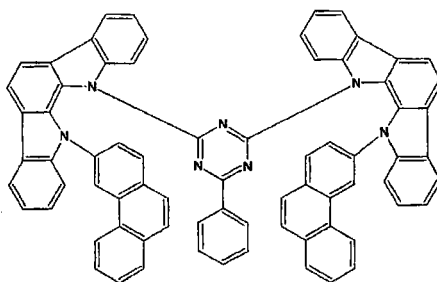
1 7



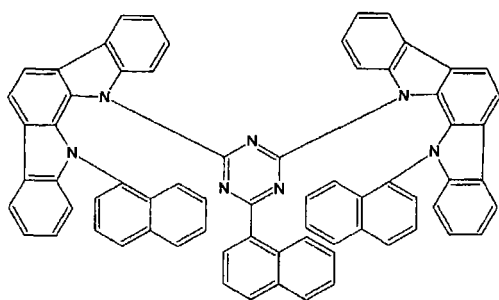
1 8



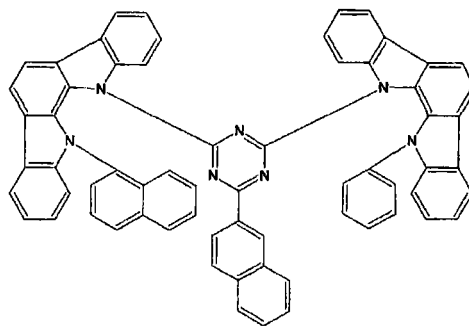
1 9



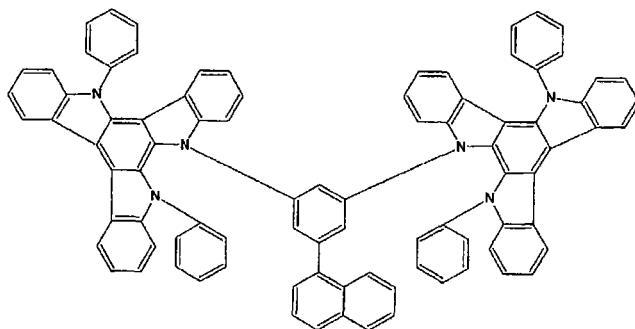
2 0



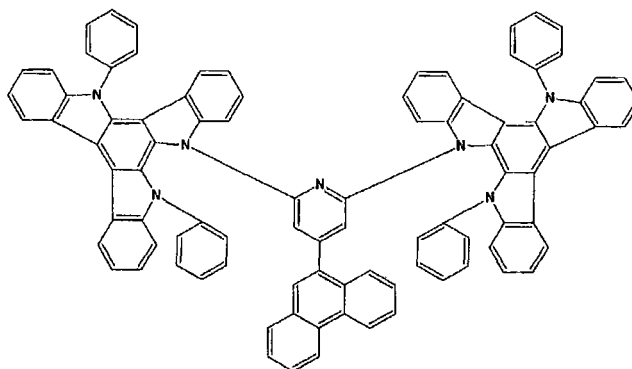
2 1



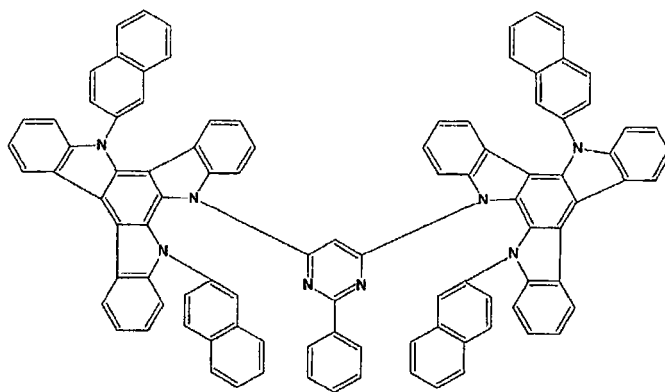
2 2



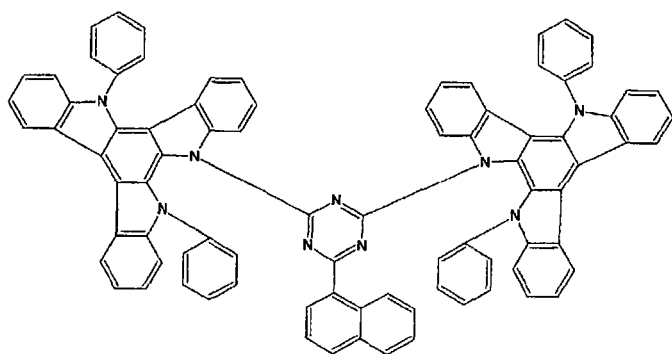
2 3



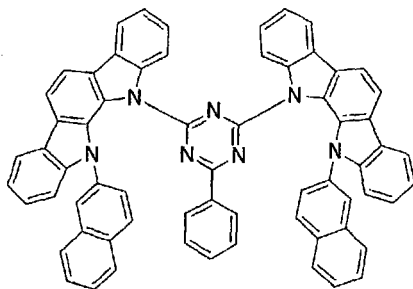
2 4



2 5



26

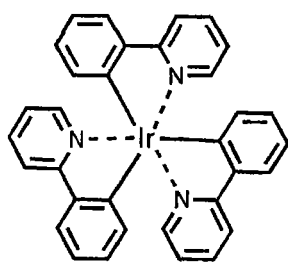


27

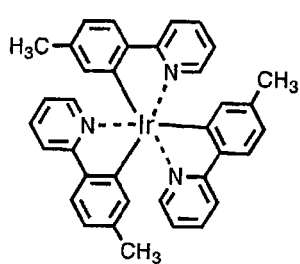
本发明的有机 EL 元件，在层叠于基板上的阳极和阴极之间具有至少一个发光层，在该发光层中含有磷光发光性掺杂剂和由上述通式 (I) ~ (III) 表示的有机 EL 元件用化合物作为主体材料。而且，可以在阳极和发光层之间具有空穴注入传输层及在阴极和发光层之间具有电子注入传输层。另外，可以在发光层和电子注入传输层之间具有空穴阻挡层。

作为发光层中的磷光发光掺杂剂材料，可以含有包含选自钕、铈、钐、银、镱、钪、钇、铪及金中的至少一种金属的有机金属络合物。这样的有机金属络合物在上述专利文献等中是公知的，可选择使用这些有机金属络合物。

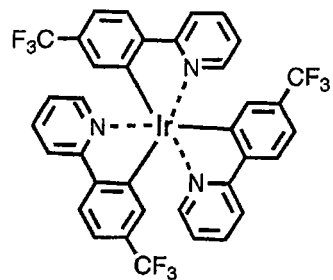
作为优选的磷光发光掺杂剂，可举出具有 Ir 等贵金属元素为中心金属的 Ir(ppy)<sub>3</sub> 等的络合物类、Ir(bt)<sub>2</sub>acac<sub>3</sub> 等的络合物类、PtOEt<sub>3</sub> 等的络合物类。以下示出这些络合物类的具体例子，但并不限定于下述的化合物。



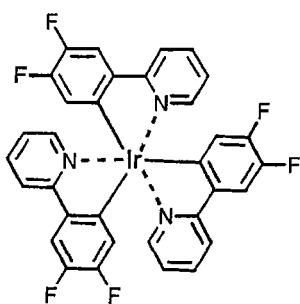
3 0



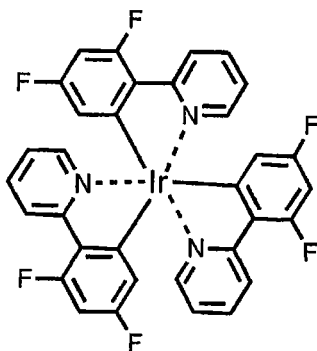
3 1



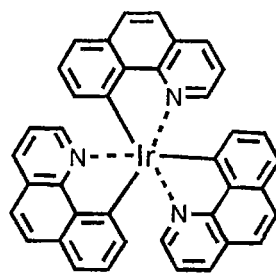
3 2



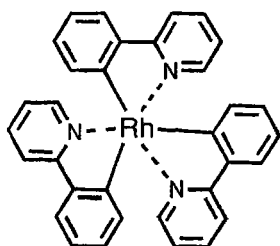
3 3



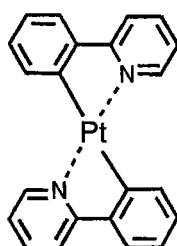
3 4



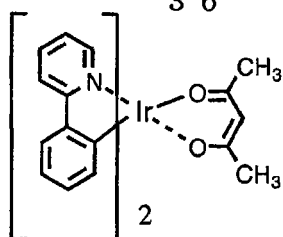
3 5



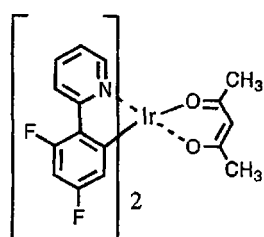
3 6



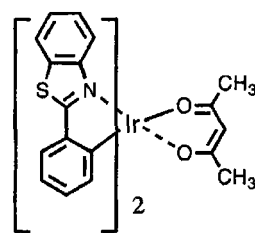
3 7



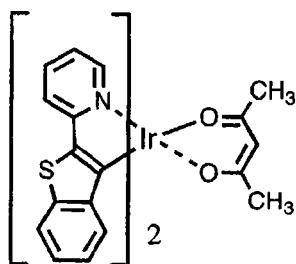
3 8



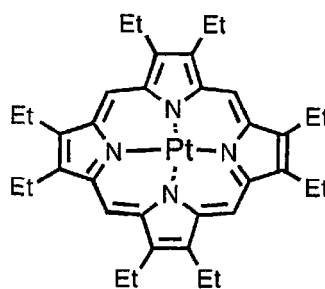
3 9



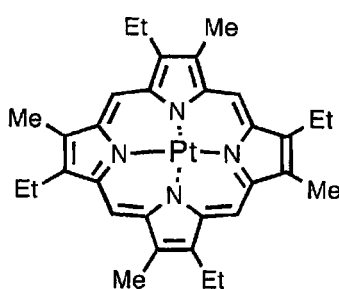
4 0



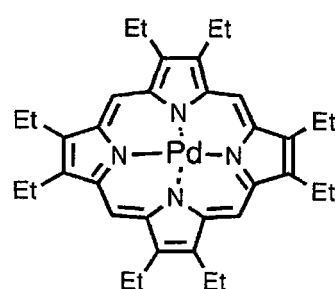
4 1



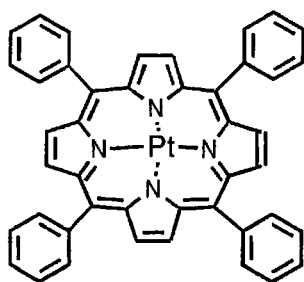
4 2



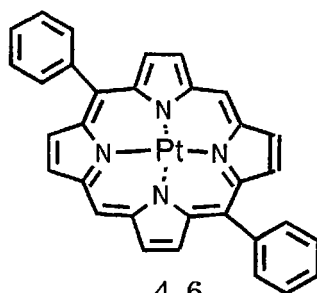
4 3



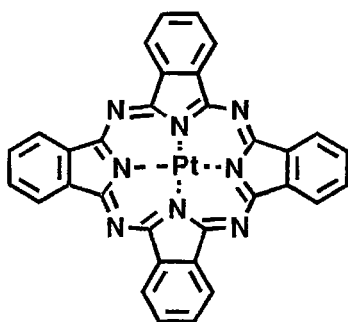
4 4



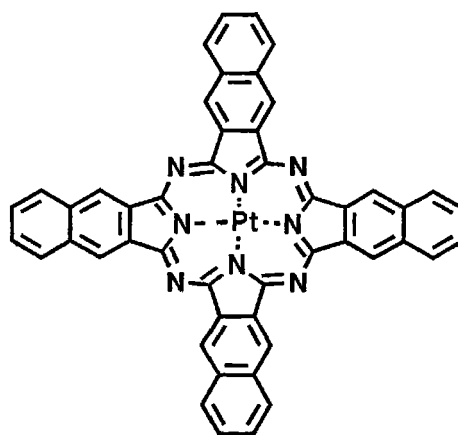
4 5



4 6



4 7



4 8

上述磷光发光掺杂剂在发光层中的所含有的量优选在 5~10 重量 % 的范围。

附图说明

图 1 是表示有机 EL 元件的一例的示意剖面图。

#### 符号的说明

1 表示基板；2 表示阳极；3 表示空穴注入层；4 表示空穴传输层；5 表示发光层；6 表示电子传输层；7 表示阴极。

#### 具体实施方式

下面，对本发明的有机 EL 元件的结构一边参照附图一边进行说明，本发明的有机 EL 元件的结构不限于任何图示的结构。

图 1 是示意性表示用于本发明的通常的有机 EL 元件的结构例的剖面图，1 表示基板，2 表示阳极，3 表示空穴注入层，4 表示空穴传输层，5 表示发光层，6 表示电子传输层，7 表示阴极。在本发明的有机 EL 元件中，具有基板、阳极、发光层及阴极作为必须的层，在必须的层以外的层以外，可以具有空穴注入传输层、电子注入传输层，进而可以在发光层和电子注入传输层之间具有空孔阻挡层。予以说明的是，空穴注入传输层是指空穴注入层和空穴传输层中的任一者或两者，电子注入传输层是指电子注入层和电子传输层中的任一者或两者。

予以说明的是，也可以为与图 1 相反的结构，即在基板 1 上依次层叠阴极 7、电子传输层 6，发光层 5、空穴传输层 4、阳极 2，也可如上所述在至少方为高透明性的 2 张基板之间设置本发明的有机 EL 元件。即使在该情况下，也可根据需要追加层或省略层。

本发明的有机 EL 元件，可适用于单一元件、包含配置成阵列状的结构元件、阳极和阴极配置成 X-Y 矩阵状的结构中的任一种。根据本发明的有机 EL 元件，通过在发光层中含有具有特定骨架的化合物和磷光发光掺杂剂，可以得到与以往的使用来自单重态的发光的元件相比发光效率高且驱动稳定性也得到大幅改善的元件，可在向全色(full color)或多色的面板的应用中发挥优异的性能。

#### 实施例

以下对于本发明，通过实施例进一步详细说明，当然，本发明并

不限于这些实施例，只要没有超出其宗旨，就可以以各种方式进行实施。

#### 实施例 1

##### (化合物 17 的合成)

在进行了脱气氮置换的 200ml 三口烧瓶中加入 1, 2-环己烷二酮 33.3g (0.297mol)、盐酸苯肼 86.0g (0.595mol)，向其中加入 1000ml 乙醇进行搅拌。其后，用 5 分钟在同一烧瓶内滴加浓硫酸 3.0g (0.03mol)。其后，加热至 65℃，搅拌 4 小时。冷却至室温后，滤取生成的紫茶色结晶，然后用乙醇 500ml 对滤取的结晶进行 2 次再再浆料化 (reslurry) 洗涤。将其进行减压干燥，得到紫茶色粉末 80.0g (0.286mol、收率 96.3%)。

接着，在上述紫茶色粉末 72.0g (0.258mol) 中，向其加入醋酸 720g、三氟醋酸 72.0g，进行搅拌。其后，加热至 100℃，搅拌 15 小时。冷却至室温后，滤取生成的黄色结晶，然后用醋酸 200ml 对滤取的结晶进行冲洗洗涤后，用己烷 200ml 进行冲洗洗涤。将其进行减压干燥，得到白色粉末 A 30.0g (0.117mol、收率 45.3%)。

接着，在进行了脱气氮置换的 1000ml 三口烧瓶中加入上述得到的白色粉末 A 26.0g (0.101mol)、碘化苯 122.7g (0.601mol)、碘化铜 54.7g (0.287mol)、碳酸钾 66.7g (0.482mol) 和喹啉 800ml，进行搅拌。其后，加热至 190℃，搅拌 72 小时。一旦冷却至室温后，加入水 500ml、二氯甲烷 500ml，进行搅拌后，滤取生成的黄色结晶。将滤液移至 2000ml 分液漏斗中，分成有机层和水层。用 500ml 的水对有机层进行洗涤 3 次，其后，将得到的有机层用硫酸镁进行脱水，一旦过滤分离硫酸镁后，减压蒸馏除去溶剂。其后，用柱色谱法进行精制，得到白色粉末 B 13.7g (0.04mol、收率 40.8%)。

接着，在进行了脱气氮置换的 500ml 三口烧瓶中加入 55% 氢氧化钠 2.16g (0.0495mol)、脱水 N, N'-二甲基甲酰胺 70ml，在氮气流中进行搅拌。在上述得到的白色粉末 B 13.7g (0.04mol) 中加入脱水 N, N'-二甲基甲酰胺 70ml，使其溶解，其后，用 15 分钟滴加在同一烧瓶内。

滴加完成后,继续进行1小时的搅拌。其后,在氰尿酸氯 3.76g (0.02mol) 中加入脱水 N, N' -二甲基甲酰胺 70ml, 使其溶解, 其后, 用 15 分钟滴加在同一烧瓶内。滴加完成后, 继续进行 2 小时的搅拌, 然后加水 350g, 滤取析出的结晶。用水 300g 对滤取的结晶进行两次再浆料化, 其后, 用甲醇 300g 进行再浆料。对其进行减压干燥后, 用柱色谱法进行精制, 得到白色粉末 C 10.9g (0.014mol、收率 70.0%)。

接着, 在 300ml 三口烧瓶中加入上述得到的白色粉末 C 10.0g (0.013mol)、2-萘硼酸 2.8g (0.016mol)、四(三苯基膦)钼(0) 1.5g (0.0013mol) 乙醇 50ml、甲苯 100ml, 进行搅拌。其后, 使碳酸钠 6.5g 溶解于水 50ml 中, 加入同一烧瓶内, 加热至 85℃, 搅拌 5 小时。一旦冷却至室温后, 加入水 100ml、甲苯 100ml, 进行搅拌后, 过滤分离不溶物。将滤液移至 1000ml 分液漏斗中, 分成有机层和水层。用 100ml 的水对有机层进行 3 次洗涤, 其后, 将得到的有机层用硫酸镁进行脱水, 一旦过滤分离硫酸镁后, 减压蒸馏除去溶剂。其后, 用柱色谱法进行精制, 得到 34.7g (0.04mol、收率 40.8%) 黄色固体的示例化合物 17。

示例化合物 17 的 EI-MS (M+1) 为 868, 熔点为 398℃。

## 实施例 2

在空穴注入层使用铜酞菁 (CuPC), 在空穴传输层使用  $\alpha$ -NPD 及在电子传输层使用 Alq3。在形成有包含膜厚 150nm 的 ITO 的阳极的玻璃基板上, 用真空蒸镀法以真空度  $5.0 \times 10^{-4}$  Pa 使各薄膜层叠。首先, 在 ITO 上作为空穴注入层以 3.0Å/秒以 25nm 的膜厚对 CuPC 进行成膜。其次, 在空穴注入层上作为空穴传输层以 3.0Å/秒的蒸镀速度以 55nm 的厚度形成  $\alpha$ -NPD。

接着, 在空穴传输层上, 作为发光层从不同的蒸镀源对(示例化合物 17)和 (Btp)2Iracac (示例化合物 41) 进行共蒸镀, 以 47.5nm 的厚度形成。这时, (Btp)2Iracac 的浓度为 8.0%。

接着, 作为电子传输层用 3.0Å/秒的蒸镀速度以 30nm 的厚度形成 Alq3。进而, 在电子传输层上, 作为电子注入层用 0.1Å/秒的蒸镀速

度以 1nm 的厚度形成氟化锂 (LiF)。最后, 在电子注入层上, 作为电极用 10Å/秒的蒸镀速度以 200nm 的厚度形成铝 (Al), 制成有机 EL 元件。

### 实施例 3

#### (化合物 27 的合成)

在氮置换了的 200ml 三口烧瓶中加入实施例 1 中得到的白色粉末 A 10.0g (0.036mol)、碳酸钾 12.9g (0.093mol)、铜粉 5.7g (0.090mol)、四乙二醇二甲醚 (tetraglyme) 50.0g, 在氮气流下进行搅拌。其后, 在同一烧瓶内用 10 分钟滴加使 2-溴代萘 9.87g (0.047mol) 溶解于四乙二醇二甲醚 10.0g 中得到的溶液。滴加完成后, 在 195℃ 下继续搅拌 1 小时。其后, 冷却至室温, 滤取不溶物。在滤液中加入甲醇 30g 及水 150g, 搅拌 2 小时。其后, 滤取析出物, 将其用水 100g 进行 2 次再浆料化洗涤, 再用甲醇 100g 进行 1 次再浆料化洗涤。减压干燥后, 用柱色谱法进行精制, 得到白色粉末 D 13.0g (0.034mol、收率 94.7%)。

接着, 在氮置换了的 200ml 三口烧瓶中加入镁 9.7g (0.399mol)、脱水 THF 20.6ml、碘 0.01g, 在氮气流下进行搅拌。升温至 60℃ 后, 用 1 小时滴加溴苯 64.0g (0.408mol) 的脱水 THF (120.0ml) 溶液。其后, 在加热回流下继续搅拌 2 小时。冷却至室温, 得到 34.5% 苯基溴化镁 / THF 溶液 209.5g (反应溶液 A)。

接着, 在氮置换了的 500ml 三口烧瓶中加入氰尿酸氯 70.0g (0.380mol)、脱水 THF 240ml, 在氮气流下进行搅拌。在冰浴中保持在 10℃ 以下, 同时用 50 分钟滴加上述得到的反应溶液 A。滴加完成后, 在 10℃ 以下继续进行 2 小时搅拌。其后, 将同一烧瓶浸渍于冰浴中, 保持在 15℃ 以下, 同时用 30 分钟滴加 10% 盐酸 130.0g。从冰浴中取出, 加入 200ml 甲苯, 用 1000ml 分液漏斗, 分成有机层和水层。用 150ml 的水对有机层进行 3 次洗涤, 其后, 将得到的有机层用硫酸镁进行脱水, 一旦过滤分离硫酸镁后, 将通过减压蒸馏除去溶剂而得到的浓缩物用己烷进行再结晶, 得到 61.6g (0.272mol、收率 71.7%) 淡褐色结晶。

接着, 在氮置换了的 500ml 三口烧瓶中加入 60.8% 氢化钠

1.61g (0.040mol)、脱水 N, N' -二甲基甲酰胺 140ml, 在氮气流下进行搅拌。用 20 分钟向其中滴加上述得到的白色粉末 D 13.0g (0.034mol) 的脱水 N, N' -二甲基甲酰胺 (20ml) 溶液, 滴加完成后, 再搅拌 1 小时。其后, 用 20 分钟滴加上述得到的淡褐色结晶 3.84g (0.017mol) 的脱水 N, N' -二甲基甲酰胺 (10ml) 溶液, 滴加完成后, 再搅拌 65 小时。其后, 加水 230g、甲醇 200g, 滤取析出的结晶。用甲醇 100g 对其进行再浆料化洗涤后, 进行减压干燥, 得到 13.5g (0.015mol、收率 80.4%) 淡黄色结晶的示例化合物 27。

示例化合物 27 的 APCI-MS 为  $m/z$  918  $[M+H]^+$ , 熔点为 331℃。

#### 实施例 4

除了使用示例化合物 27 代替示例化合物 17 作为发光层的主体材料以外, 与实施例 2 同样, 制成有机 EL 元件。

#### 比较例 1

除了使用 BA1q 代替示例化合物 17 作为发光层的主体材料以外, 与实施例 2 同样, 制成有机 EL 元件。

实施例及比较例中得到的各有机 EL 元件的发光峰波长、最高发光效率、亮度半衰期 (初期亮度 2000cd/m<sup>2</sup>) 示于表 1。

表 1

|       | 发光峰波长<br>(nm) | 最高发光效<br>率 (cd/A) | 亮度半衰期<br>(hr) |
|-------|---------------|-------------------|---------------|
| 实施例 2 | 620           | 9.2               | 3000          |
| 实施例 4 | 620           | 9.1               | 2500          |
| 比较例 1 | 620           | 8.8               | 1500          |

本发明的有机 EL 元件可以在低压下以高亮度·高效率进行发光。因此, 根据本发明的有机 EL 元件可希望用于平板显示器 (例如 OA 计算机用或壁挂电视)、车载显示元件、手机显示或利用作为面发光体的特征的光源 (例如复印机的光源、液晶显示器或仪器类的背光源)、显示板、标志灯中, 其技术价值大。

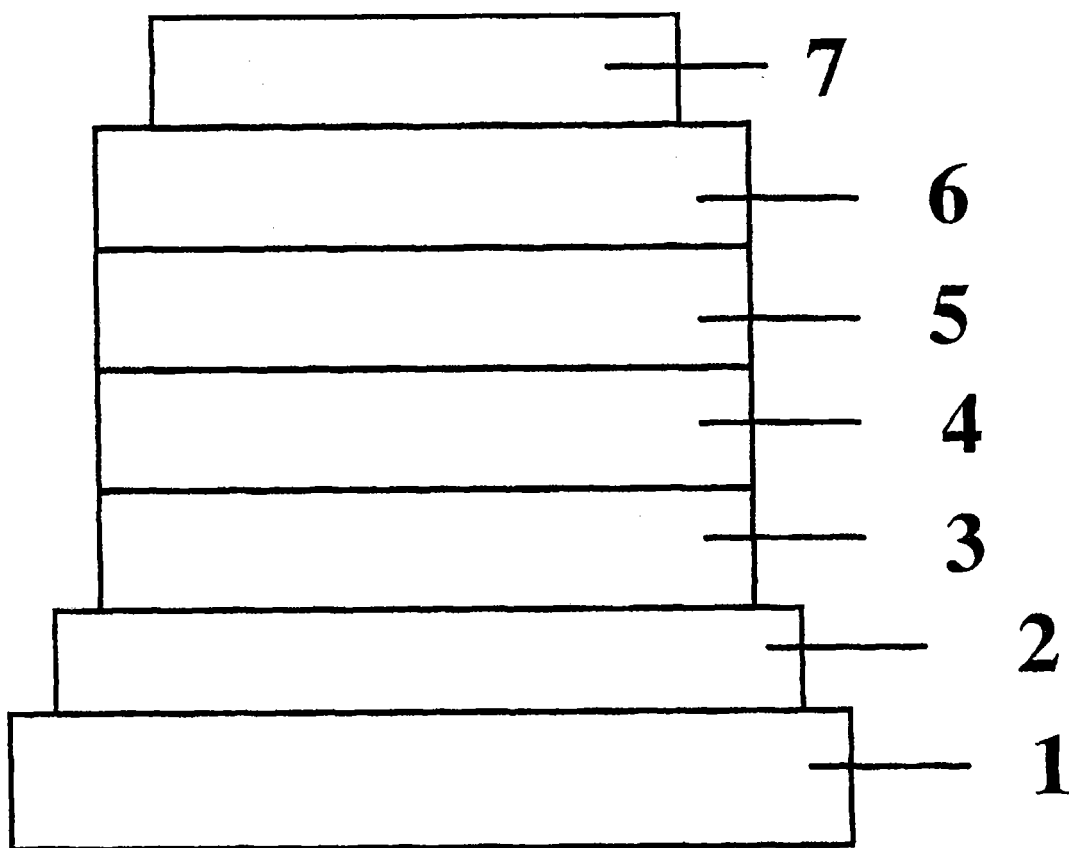
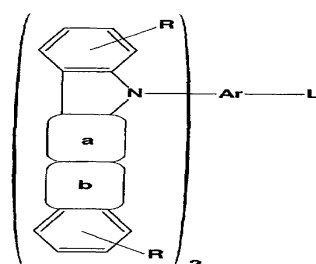


图1

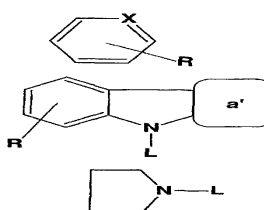
|                |                                                                                                                                                                                           |         |            |
|----------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---------|------------|
| 专利名称(译)        | 有机场致发光元件用化合物及有机场致发光元件                                                                                                                                                                     |         |            |
| 公开(公告)号        | <a href="#">CN101679852A</a>                                                                                                                                                              | 公开(公告)日 | 2010-03-24 |
| 申请号            | CN200880015074.5                                                                                                                                                                          | 申请日     | 2008-05-23 |
| [标]申请(专利权)人(译) | 新日铁化学株式会社                                                                                                                                                                                 |         |            |
| 申请(专利权)人(译)    | 新日铁化学株式会社                                                                                                                                                                                 |         |            |
| 当前申请(专利权)人(译)  | 新日铁化学株式会社                                                                                                                                                                                 |         |            |
| [标]发明人         | 古森正树<br>山本敏浩<br>甲斐孝弘<br>野口胜秀<br>宫崎浩                                                                                                                                                       |         |            |
| 发明人            | 古森正树<br>山本敏浩<br>甲斐孝弘<br>野口胜秀<br>宫崎浩                                                                                                                                                       |         |            |
| IPC分类号         | C09K11/06 H01L51/50                                                                                                                                                                       |         |            |
| CPC分类号         | C09K2211/1011 H01L51/5012 H01L51/0072 H01L51/0078 C09K2211/1029 H01L51/0085 H01L51/0052 C09K2211/1007 H05B33/14 C09K11/06 H01L51/0087 C09K2211/1059 H01L51/0067 H01L51/0058 C09K2211/1044 |         |            |
| 代理人(译)         | 贾成功                                                                                                                                                                                       |         |            |
| 优先权            | 2007142994 2007-05-30 JP                                                                                                                                                                  |         |            |
| 其他公开文献         | CN101679852B                                                                                                                                                                              |         |            |
| 外部链接           | <a href="#">Espacenet</a> <a href="#">SIPO</a>                                                                                                                                            |         |            |

#### 摘要(译)

本发明提供改善元件的发光效率、充分确保驱动稳定性，并且具有简单的构成的有机场致发光元件(有机EL元件)用化合物及使用其的有机EL元件。该有机EL元件用化合物是具有2个键合在芳香族基团上的吡啶咪唑骨架或与其类似的骨架的化合物。该有机EL光元件是在层叠于基板上的阳极和阴极之间具有发光层的有机场致发光元件，该发光层含有磷光发光性掺杂剂和上述EL元件用化合物作为主体材料。



( I )



( a 1 )

( a 2 )

( b 1 )