



(12) 发明专利

(10) 授权公告号 CN 102369614 B

(45) 授权公告日 2013. 06. 19

(21) 申请号 201080015539. 4

(22) 申请日 2010. 03. 25

(30) 优先权数据

081410/2009 2009. 03. 30 JP

292004/2009 2009. 12. 24 JP

(85) PCT申请进入国家阶段日

2011. 09. 29

(86) PCT申请的申请数据

PCT/JP2010/055177 2010. 03. 25

(87) PCT申请的公布数据

W02010/113743 JA 2010. 10. 07

(73) 专利权人 东丽株式会社

地址 日本东京都

(72) 发明人 中野阳平 杉本和则 长尾和真

田中大作 富永刚

(74) 专利代理机构 北京市中咨律师事务所

11247

代理人 田欣 段承恩

(51) Int. Cl.

H01L 51/50 (2006. 01)

C09K 11/06 (2006. 01)

H05B 33/26 (2006. 01)

(56) 对比文件

EP 1942171 A1, 2008. 07. 09, 说明书
第 0096-0100, 0113, 0198-0199 段, 化合物
174-179, 184-228, 267.

CN 1610463 A, 2005. 04. 27, 说明书第 3 页第
17 行至第 5 页第 27 行.

EP 1942171 A1, 2008. 07. 09, 说明书
第 0096-0100, 0113, 0198-0199 段, 化合物
174-179, 184-228, 267.

JP 2008159843 A, 2008. 07. 10, 说明书
0043-0044, 0052 段, 化合物 56-60.

JP 2007191603 A, 2007. 08. 02, 说明书第
0052-0057, 0065 段, 化合物 22-24, 26, 64, 68.

JP 2007208165 A, 2007. 08. 16, 说明书第
0101 段, 化合物 83.

审查员 徐颖

权利要求书1页 说明书47页

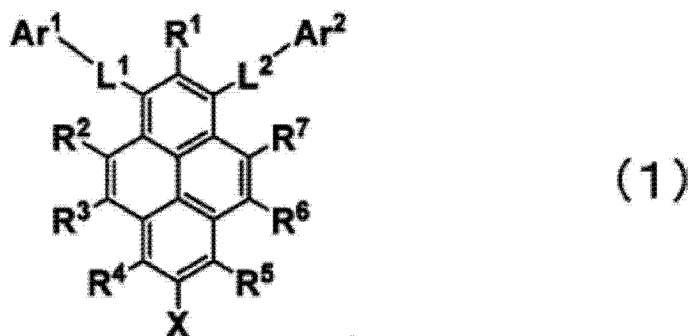
(54) 发明名称

发光元件材料及发光元件

(57) 摘要

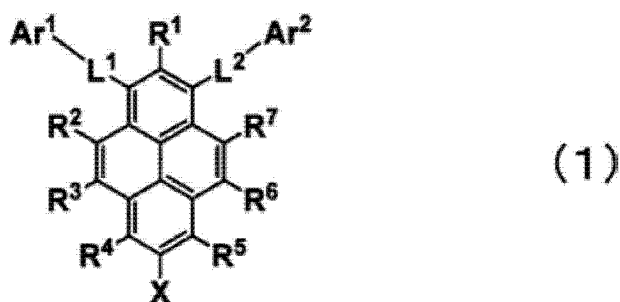
本发明提供一种有机电致发光元件,其通过
在构成发光元件的层的任一层中、优选在发光层
或电子传输层中包含具有特定茈化合物的发光元
件材料,可同时实现高发光效率和低驱动电压。

1. 一种发光元件材料,其特征在于,含有下述通式 (1) 所示的芘化合物,



$R^1 \sim R^7$ 分别可以相同也可以不同,选自由氢、烷基、环烷基、杂环基、链烯基、环烯基、炔基、烷氧基、烷硫基、芳基醚基、芳基硫醚基、芳基、杂芳基、卤素、羰基、羧基、氧羰基、氨基甲酰基、氨基、甲硅烷基及 $-P(=O)R^8R^9$ 组成的组, R^8 及 R^9 为芳基或杂芳基,相邻的取代基之间可以形成环, L^1 为亚芳基、 L^2 为单键或亚芳基, X 选自由烷基、芳基及杂芳基组成的组, Ar^1 为包含吸电子性氮的芳香族杂环基, Ar^2 为芳基或杂芳基,其中, Ar^2 为杂芳基时,不包括二苯并呋喃基、二苯并噻吩基及咔唑基。

2. 一种发光元件,其是在阳极和阴极之间至少存在发光层及电子传输层且利用电能而发光的发光元件,其特征在于,所述阳极和阴极之间的任一层中含有下述通式 (1) 所示的芘化合物,



$R^1 \sim R^7$ 分别可以相同也可以不同,选自由氢、烷基、环烷基、杂环基、链烯基、环烯基、炔基、烷氧基、烷硫基、芳基醚基、芳基硫醚基、芳基、杂芳基、卤素、羰基、羧基、氧羰基、氨基甲酰基、氨基、甲硅烷基及 $-P(=O)R^8R^9$ 组成的组, R^8 及 R^9 为芳基或杂芳基,相邻的取代基之间可以形成环, L^1 为亚芳基、 L^2 为单键或亚芳基, X 选自由烷基、芳基及杂芳基组成的组, Ar^1 为包含吸电子性氮的芳香族杂环基, Ar^2 为芳基或杂芳基,其中, Ar^2 为杂芳基时,不包括二苯并呋喃基及咔唑基。

3. 如权利要求 2 所述的发光元件,电子传输层中包含通式 (1) 所示的芘化合物。
4. 如权利要求 3 所述的发光元件,电子传输层中包含碱金属、含有碱金属的无机盐、碱金属与有机物的络合物、碱土金属、含有碱土金属的无机盐或碱土金属与有机物的络合物。
5. 如权利要求 4 所述的发光元件,其特征在于,电子传输层中包含碱金属与有机物的络合物或碱土金属与有机物的络合物。
6. 如权利要求 2 所述的发光元件,其特征在于,发光层中含有通式 (1) 所示的芘化合物。
7. 如权利要求 2~6 中任一项所述的发光元件,其特征在于,阴极由镁和银构成。

发光元件材料及发光元件

技术领域

[0001] 本发明涉及一种可以将电能转换为光的发光元件,可用于显示元件、平板显示器、背光灯、照明、室内装饰、标识、广告牌、电子照相机及光信号发生器等领域。

背景技术

[0002] 近年来一直在积极地进行由阴极注入的电子与由阳极注入的空穴在被两极夹持的有机荧光体内再结合时发光的有机薄膜发光元件的研究。该发光元件具有薄型且在低驱动电压下高亮度发光和通过选择荧光材料而进行多色发光的特征,一直受到关注。

[0003] 该研究自从由柯达公司的 C. W. Tang 等展示出有机薄膜元件高亮度发光以来,许多研究机构一直在进行研究。柯达公司的研究小组提出的有机薄膜发光元件的代表性的构成为:在 ITO 玻璃基板上依次设置空穴传输性的二胺化合物、作为发光层的 8-羟基喹啉铝、作为阴极的 Mg:Ag,以 10V 左右的驱动电压可以进行 $1,000\text{cd/m}^2$ 的绿色发光(参考非专利文献 1)。

[0004] 另外,有机薄膜发光元件,通过将各种荧光材料用于发光层,可以得到多种多样的发光色,因此,向显示器等的实用化研究盛行。三原色的发光材料中,绿色发光材料的研究最先进,目前,在红色发光材料和蓝色发光材料中,正在以改善特性为目标进行深入研究。

[0005] 有机薄膜发光元件需要满足改善发光效率、降低驱动电压、改善耐久性的要求。其中,发光效率低时不能输出要求高亮度的图像,用于输出希望的亮度的耗电量增多。例如,为了改善发光效率,开发了各种发光材料(例如,参考专利文献 1~4)。另外,开发了以芘为基本骨架的电子传输材料(例如,参考专利文献 5~7)。另外,开发了在用作电子传输层的材料中掺杂碱金属的技术(例如,参考专利文献 8~12)。

[0006] 专利文献 1:国际公开 W02007/29798 号小册子

[0007] 专利文献 2:国际公开 W02008/108256 号小册子

[0008] 专利文献 3:日本特开 2007-131723 号公报

[0009] 专利文献 4:国际公开 W02006/90772 号小册子

[0010] 专利文献 5:欧州专利公开第 1808912 号

[0011] 专利文献 6:中国专利公开第 101407493 号

[0012] 专利文献 7:国际公开 W02010/001817 号小册子

[0013] 专利文献 8:日本特开 2000-348864 号公报

[0014] 专利文献 9:日本特开 2004-277377 号公报

[0015] 专利文献 10:日本特开 2003-347060 号公报

[0016] 专利文献 11:日本特开 2002-352961 号公报

[0017] 专利文献 12:日本特开 2004-2297 号公报

[0018] 非专利文献 1:《应用物理学快报》(Applied Physics Letters),(美国),1987 年,51 卷,12 号,p. 913-915

发明内容

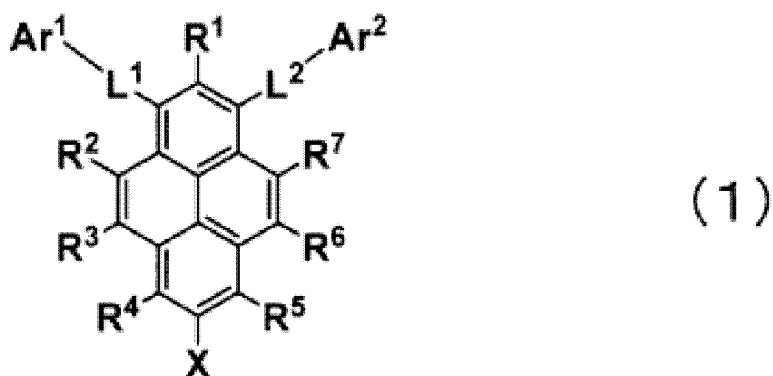
[0019] 但是,如上所述,有机薄膜发光元件需要满足改善发光效率、降低驱动电压、改善耐久性的要求,特别是关于蓝色发光元件,提供耐久性优异、可靠性高的元件的蓝色发光材料少。

[0020] 另外,即使在对用于电子传输层的化合物进行改良的情况下,专利文献 7 ~ 11 那样的目前公知的组合也不能充分兼备低电压驱动和高发光效率。

[0021] 本发明的目的在于,解决这样的现有技术的问题,提供一种可以作成兼备高发光效率 and 低驱动电压的有机薄膜发光元件的发光元件材料及使用有该发光元件材料的发光元件。

[0022] 本发明的发光元件材料的特征在于,含有下述通式 (1) 所示的茈化合物。

[0023]



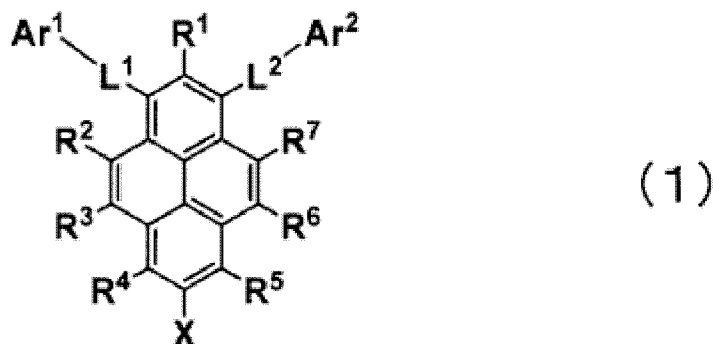
[0024] $R^1 \sim R^7$ 分别可以相同也可以不同,选自由氢、烷基、环烷基、杂环基、链烯基、环烯基、炔基、烷氧基、烷硫基、芳基醚基、芳基硫醚基、芳基、杂芳基、卤素、羰基、羧基、氧羰基、氨基甲酰基、氨基、甲硅烷基及 $-P(=O)R^8R^9$ 组成的组。 R^8 及 R^9 为芳基或杂芳基,相邻的取代基之间可以形成环。 L^1 、 L^2 分别可以相同也可以不同,为单键或亚芳基。 X 选自由烷基、芳基及杂芳基组成的组。 Ar^1 为包含吸电子性氮的芳香族杂环基, Ar^2 为芳基或杂芳基。其中, Ar^2 为杂芳基时,不包括二苯并呋喃基、二苯并噻吩基及卟啉基。

[0025] 通过本发明,可以提供一种兼备高发光效率 and 低驱动电压的有机电致发光元件。

具体实施方式

[0026] 下面对本发明中的通式 (1) 所示的茈化合物详细进行说明。

[0027]



[0028] $R^1 \sim R^7$ 分别可以相同也可以不同,选自由氢、烷基、环烷基、杂环基、链烯基、环烯基、炔基、烷氧基、烷硫基、芳基醚基、芳基硫醚基、芳基、杂芳基、卤素、羰基、羧基、氧羰基、

氨基甲酰基、氨基、甲硅烷基及 $-P(=O)R^8R^9$ 组成的组。 R^8 及 R^9 为芳基或杂芳基,相邻的取代基之间可以形成环。 L^1 、 L^2 分别可以相同也可以不同,为单键或亚芳基。 X 选自烷基、芳基及杂芳基组成的组。 Ar^1 为包含吸电子性氮的芳香族杂环基, Ar^2 为芳基或杂芳基。其中, Ar^2 为杂芳基时,不包括二苯并呋喃基、二苯并噻吩基及咔唑基。

[0029] 在这些取代基中,氢也可以为氘。另外,烷基表示例如甲基、乙基、正丙基、异丙基、正丁基、仲丁基、叔丁基等饱和脂肪族烃基,这些烷基可以具有取代基也可以没有取代基。被取代时追加的取代基没有特别限制,可列举例如:烷基、芳基、杂芳基等,这一点在下面的记载中也通用。另外,烷基的碳数没有特别限制,从容易获得或成本方面考虑,通常为 1 以上 20 以下、更优选 1 以上 8 以下的范围。

[0030] 环烷基表示例如环丙基、环己基、降冰片基、金刚烷基等饱和脂环式烃基,环烷基可以具有取代基也可以没有取代基。烷基部分的碳数没有特别限制,通常为 3 以上 20 以下的范围。

[0031] 杂环基表示例如吡喃环、哌啶环、环状酰胺等环内具有碳以外的原子的脂肪族环,杂环基可以具有取代基也可以没有取代基。杂环基的碳数没有特别限制,通常为 2 以上 20 以下的范围。

[0032] 链烯基表示例如乙烯基、烯丙基、丁二烯基等包含双键的不饱和脂肪族烃基,链烯基可以具有取代基也可以没有取代基。链烯基的碳数没有特别限制,通常为 2 以上 20 以下的范围。

[0033] 环烯基表示例如环戊烯基、环戊二烯基、环己烯基等包含双键的不饱和脂环式烃基,环烯基可以具有取代基也可以没有取代基。

[0034] 炔基表示例如乙炔基等包含三键的不饱和脂肪族烃基,炔基可以具有取代基也可以没有取代基。炔基的碳数没有特别限制,通常为 2 以上 20 以下的范围。

[0035] 烷氧基表示例如甲氧基、乙氧基、丙氧基等介由醚键键合脂肪族烃基的官能团,该脂肪族烃基可以具有取代基也可以没有取代基。烷氧基的碳数没有特别限制,通常为 1 以上 20 以下的范围。

[0036] 烷硫基是烷氧基的醚键的氧原子被置换为硫原子的基团。烷硫基的烃基可以具有取代基也可以没有取代基。烷硫基的碳数没有特别限制,通常为 1 以上 20 以下的范围。

[0037] 芳基醚基表示例如苯氧基等介由醚键键合芳香族烃基的官能团,芳香族烃基可以具有取代基也可以没有取代基。芳基醚基的碳数没有特别限制,通常为 6 以上 40 以下的范围。

[0038] 芳基硫醚基是芳基醚基的醚键的氧原子被置换为硫原子的基团。芳基醚基中的芳香族烃基可以具有取代基也可以没有取代基。芳基醚基的碳数没有特别限制,通常为 6 以上 40 以下的范围。

[0039] 芳基表示例如苯基、萘基、联苯基、菲基、三联苯基、蒽基等芳香族烃基。芳基可以具有取代基也可以没有取代基。芳基的碳数没有特别限制,通常为 6 以上 40 以下的范围。

[0040] 杂芳基表示呋喃基、苯硫基、吡啶基、喹啉基、异喹啉基、吡嗪基、嘧啶基、茶啶基、苯并呋喃基、苯并噻吩基、吡啶基、二苯并呋喃基、二苯并噻吩基、咔唑基等环内具有一个或多个碳以外的原子的环状芳香族基团,杂芳基可以为无取代也可以被取代。杂芳基的碳数没有特别限制,通常为 2 以上 30 以下的范围。

[0041] 卤素原子表示氟、氯、溴、碘。

[0042] 羰基、羧基、氧羰基、氨基甲酰基、氨基、氧化膦基可以具有取代基也可以没有取代基,取代基可列举例如烷基、环烷基、芳基、杂芳基等,这些取代基可以进一步被取代。

[0043] 甲硅烷基表示例如三甲基甲硅烷基等具有与硅原子键合的键的官能团,甲硅烷基可以具有取代基也可以没有取代基。甲硅烷基的碳数没有特别限制,通常为 3 以上 20 以下的范围。另外,硅数通常为 1 以上 6 以下的范围。

[0044] 亚芳基表示由苯基、萘基、联苯基、菲基、三联苯基、茈基等芳香族烃基衍生的 2 价基团,亚芳基可以具有取代基也可以没有取代基。亚芳基的碳数没有特别限制,通常为 6 以上 40 以下的范围。通式 (1) 的 L^1 、 L^2 为亚芳基时,该亚芳基可以具有取代基也可以没有取代基,但包含取代基在内碳数为 6 以上 60 以下的范围。

[0045] 在相邻的取代基之间形成环的情况下,任意的相邻 2 取代基(例如通式 (1) 的 R^2 和 R^3) 相互键合可以形成共轭或非共轭的稠环。作为稠环的构成元素,除了包含碳以外,还可以包含氮、氧、硫、磷、硅原子,也可以进一步与另外的环缩合。

[0046] 包含吸电子性氮的芳香族杂环基表示吡啶基、喹啉基、异喹啉基、喹啉基、吡嗪基、嘧啶基、哒嗪基、菲咯啉基、咪唑并吡啶基、三嗪基、吡啶基、苯并咪唑基、苯并噁唑基、苯并噻唑基等,上述杂芳基中环内至少具有一个或多个吸电子性的氮原子作为碳以外的原子的环状芳香族基团。包含吸电子性氮的芳香族杂环基可以是无取代也可以被取代。包含吸电子性氮的芳香族杂环基所包含的吸电子性氮的个数没有特别限制,通常为 1 以上 3 以下的范围。另外,包含吸电子性氮的芳香族杂环基被取代时的取代基没有特别限制,可以列举例如烷基、芳基、杂芳基等。

[0047] 这里所谓的吸电子性氮表示与相邻原子之间形成多重键的氮原子。由于氮原子具有高电负性,因此,该多重键具有受电子的性质。因而,包含吸电子性氮的芳香族杂环具有高电子亲和性。具有吸电子性氮的本发明的茈化合物容易接受来自具有高电子亲和力的阴极的电子,可以实现更低电压驱动。另外,供给发光层的电子增多,再结合概率提高,因此发光效率提高。包含吸电子性氮的芳香族杂环基的碳数没有特别限制,通常为 2 以上 30 以下的范围。包含吸电子性氮的芳香族杂环基的连接位置可以是任一部分,例如吡啶基的情况,可以是 2- 吡啶基、3- 吡啶基或 4- 吡啶基的任一种。

[0048] 上述取代基中,X 优选为甲基、乙基、正丙基、异丙基、正丁基、仲丁基、叔丁基、金刚烷基、苯基、萘基、联苯基、三联苯基、吡啶基、喹啉基、吡嗪基、萘啶基、苯并呋喃基、苯并噻吩基等。

[0049] 另外, L^1 、 L^2 分别独立地优选为亚苯基或亚萘基。更具体地可列举 1,4- 亚苯基、1,3- 亚苯基、2,6- 亚萘基、2,8- 亚萘基等,更优选列举 1,4- 亚苯基等。

[0050] Ar^1 优选为吡啶基、喹啉基、异喹啉基、喹啉基、嘧啶基、菲咯啉基、苯并 [d] 咪唑基、咪唑并 [1,2-a] 吡啶基等。更具体地可列举 2- 吡啶基、3- 吡啶基、4- 吡啶基、2- 喹啉基、3- 喹啉基、6- 喹啉基、1- 异喹啉基、3- 异喹啉基、2- 喹啉基、5- 嘧啶基、2- 菲咯啉基、1- 苯并 [d] 咪唑基、2- 苯并 [d] 咪唑基、2- 咪唑并 [1,2-a] 吡啶基、3- 咪唑并 [1,2-a] 吡啶基等,更优选列举 2- 吡啶基、3- 吡啶基等。

[0051] Ar^2 优选为苯基、萘基、菲基、吡啶基、喹啉基、喹啉基、嘧啶基、菲咯啉基、苯并 [d] 咪唑基、咪唑并 [1,2-a] 吡啶基等。更具体地可列举苯基、1- 萘基、2- 萘基、9- 菲基、2- 吡啶

基、3-吡啶基、4-吡啶基、2-喹啉基、3-喹啉基、6-喹啉基、2-喹啉基、5-嘧啶基、2-菲咯啉基、1-苯并[d]咪唑基、2-苯并[d]咪唑基、2-咪唑并[1,2-a]吡啶基、3-咪唑并[1,2-a]吡啶基等,更优选列举苯基、1-萘基、2-萘基、2-吡啶基、3-吡啶基等。

[0052] 通式(1)所示的茈化合物的分子中具有茈骨架和包含吸电子性氮的芳香族杂环。由此,可以兼备茈骨架的高电子传输性及电化学稳定性与包含吸电子性氮的芳香族杂环的高吸电子性,表现出高电子注入传输能力。

[0053] 进而,通过在茈骨架的7位(X)导入选自烷基、芳基及杂芳基的取代基,可抑制茈骨架之间的相互作用,改善发光效率和薄膜稳定性。

[0054] 另外,其中L¹优选为亚芳基。由于包含吸电子性氮的芳香族杂环的氧化弱,因此,与直接键合在茈骨架上相比,介由亚芳基键合可使电化学性更稳定。这与茈骨架的高电子传输性产生协同效应,显现出更高的电子注入传输能力。

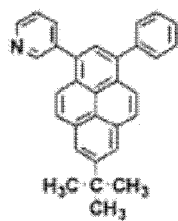
[0055] 通式(1)所示的茈化合物的合成可以使用公知的方法。作为向茈骨架导入包含吸电子性氮的芳香族杂环的方法,可列举例如使用在钯或镍催化剂存在下的卤化茈衍生物与包含吸电子性氮的芳香族杂环的硼酸或硼酸酯的偶合反应的方法,但并不限于这些方法。

[0056] 作为在茈骨架的7位导入烷基的方法,可列举如下方法:使用例如AlCl₃等路易斯酸,使用与t-BuCl等卤化烷基的Friedel-Crafts反应或茈羧醛衍生物茈羧酸衍生物的还原反应。另外,作为在茈骨架的7位导入芳基、杂芳基的方法,可列举例如:使用在铈催化剂存在下在茈的2位导入硼酸酯后,在钯或镍催化剂存在下的茈硼酸酯与卤化芳基或卤化杂芳基的偶合反应的方法,但并不限于这些方法。

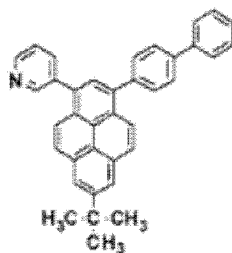
[0057] 作为上述通式(1)所示的茈化合物,没有特别限定,具体可列举如下的例子。

[0058]

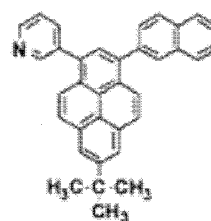
[1]



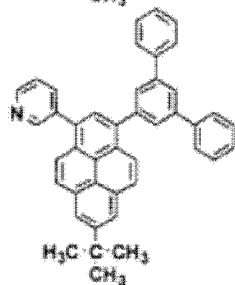
[2]



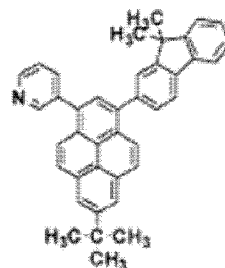
[3]



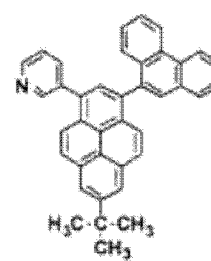
[4]



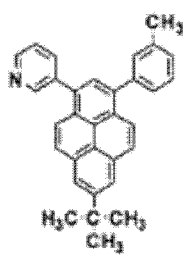
[5]



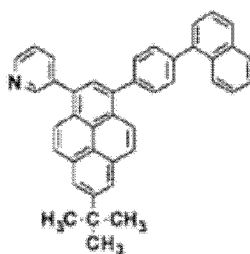
[6]



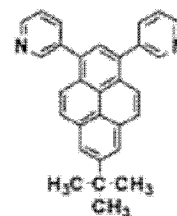
[7]



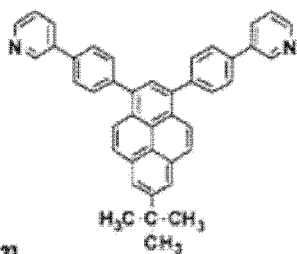
[8]



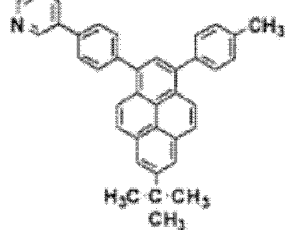
[9]



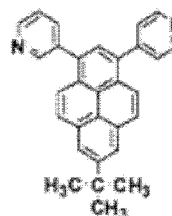
[10]



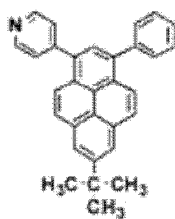
[11]



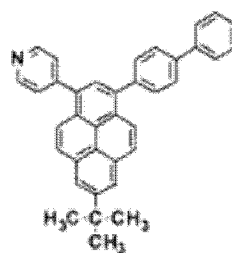
[12]



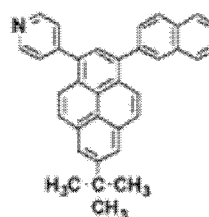
[13]



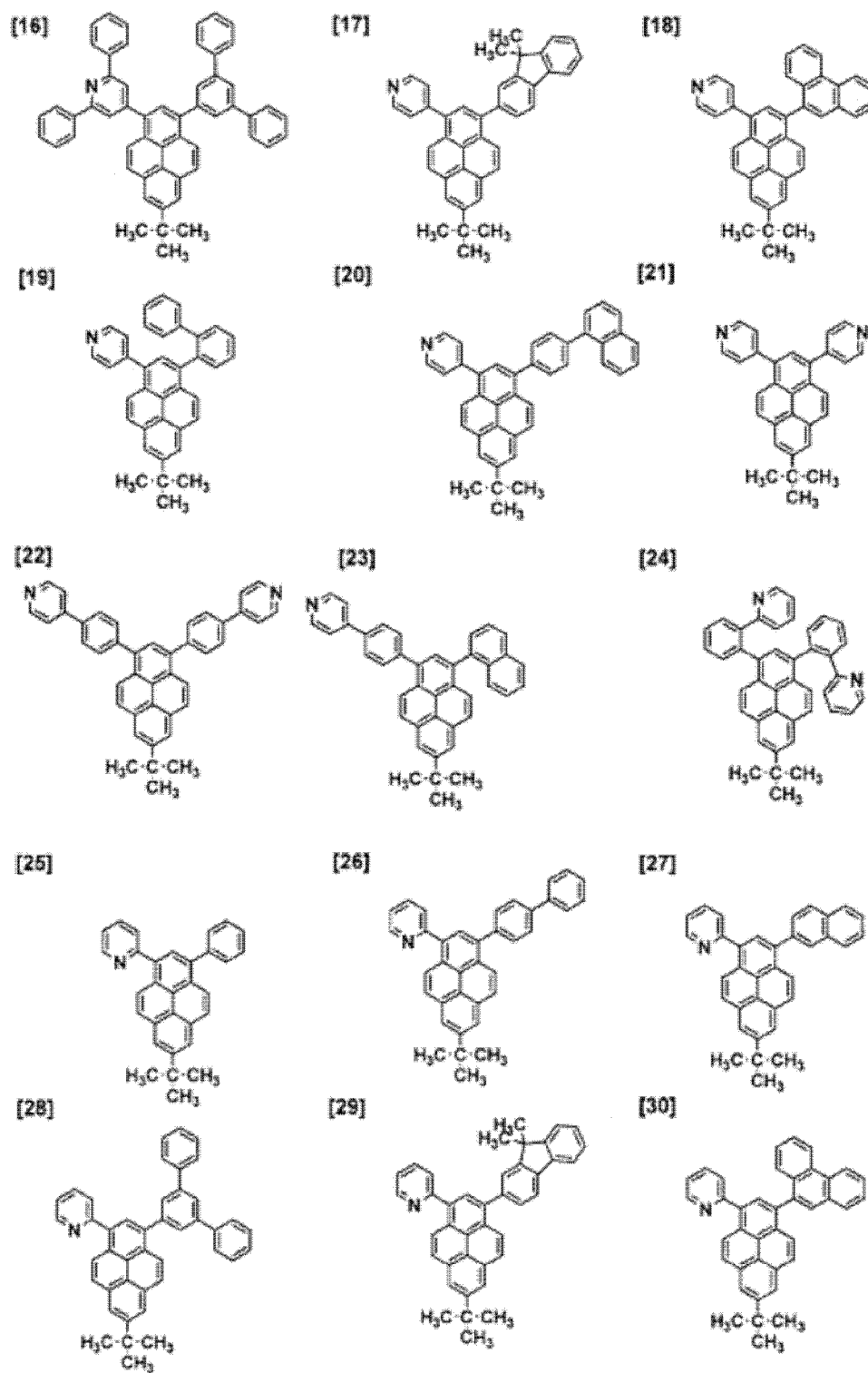
[14]



[15]

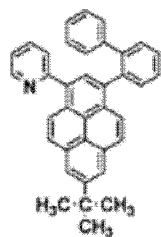


[0059]

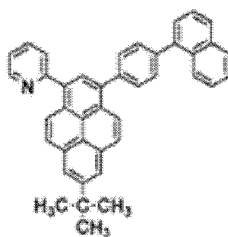


[0060]

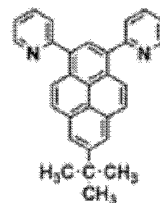
[31]



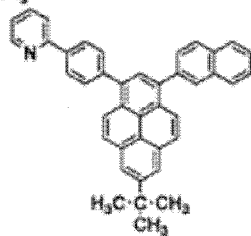
[32]



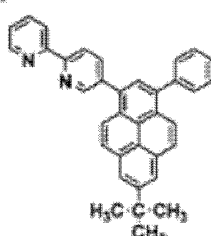
[33]



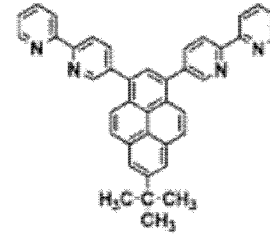
[34]



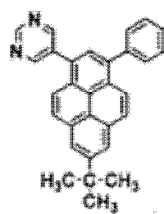
[35]



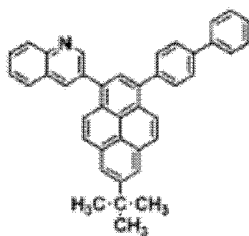
[36]



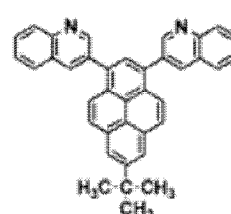
[37]



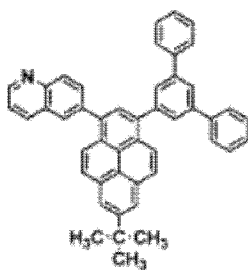
[38]



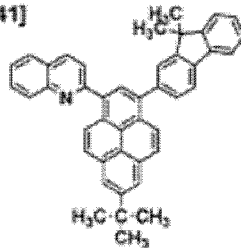
[39]



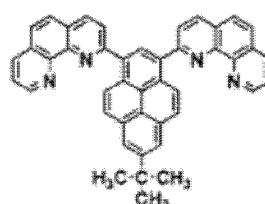
[40]



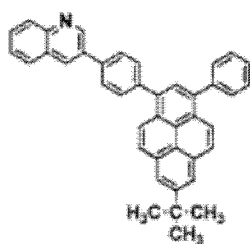
[41]



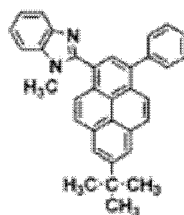
[42]



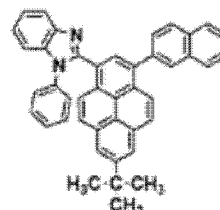
[43]



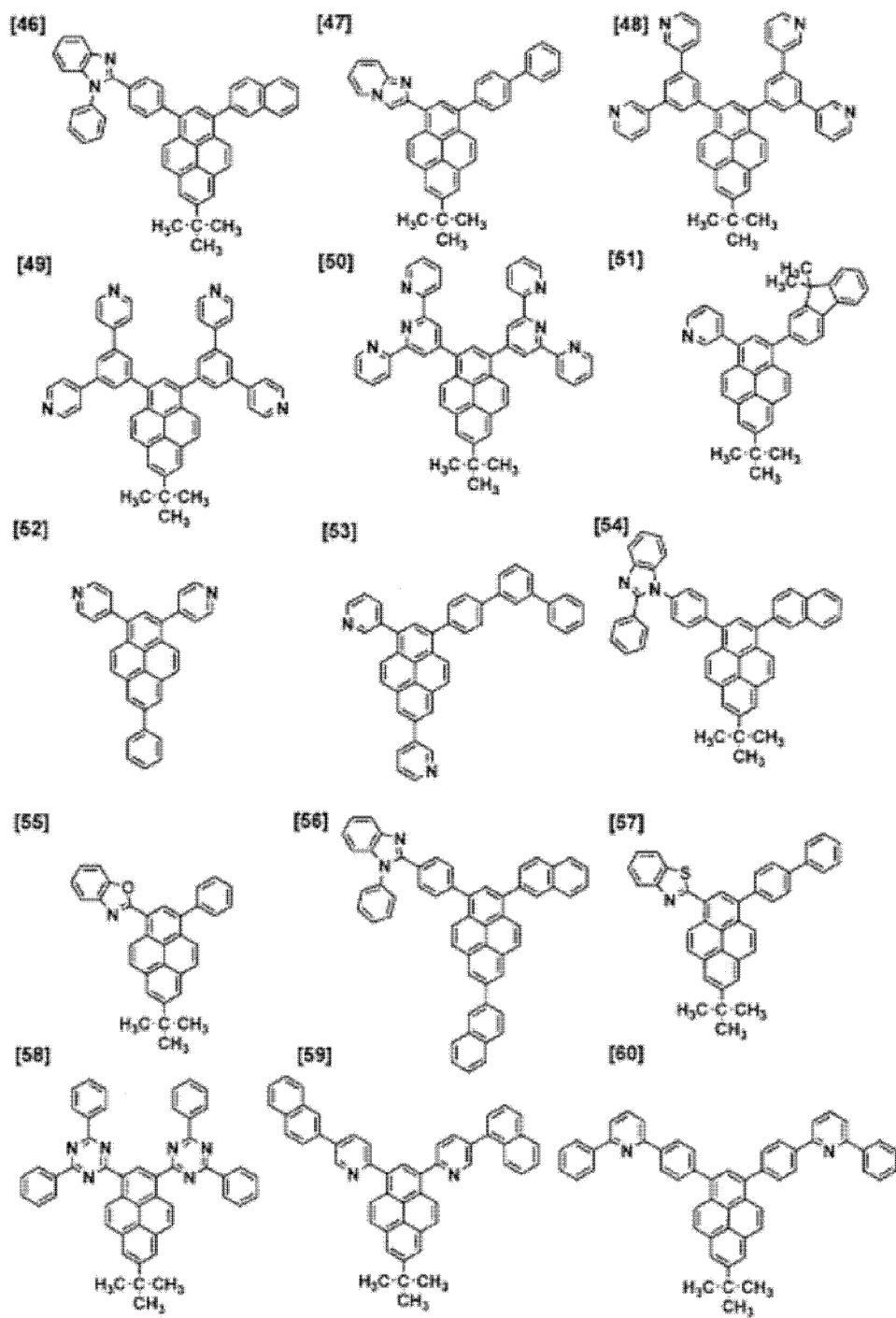
[44]



[45]

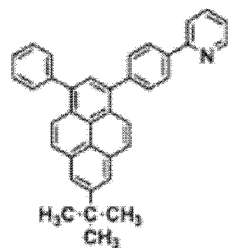


[0061]

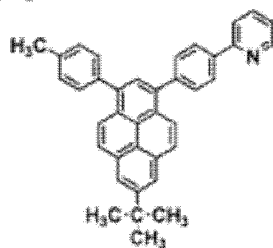


[0062]

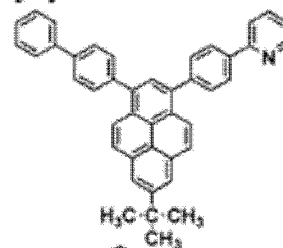
[61]



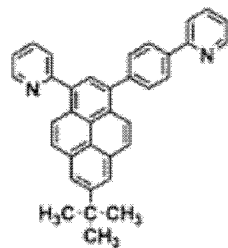
[62]



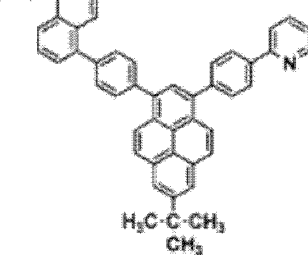
[63]



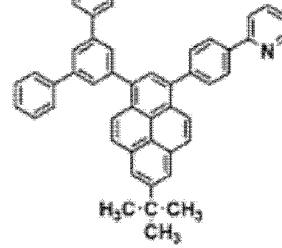
[64]



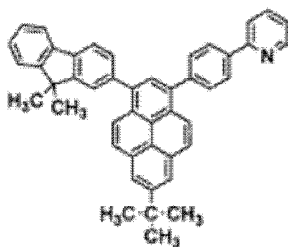
[65]



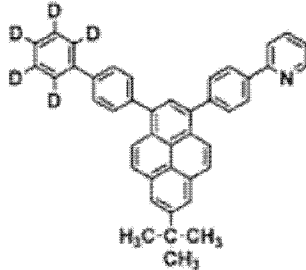
[66]



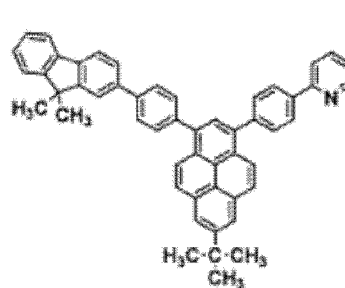
[67]



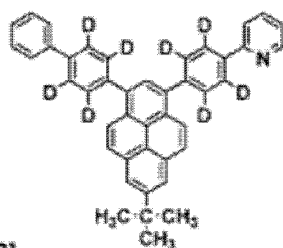
[68]



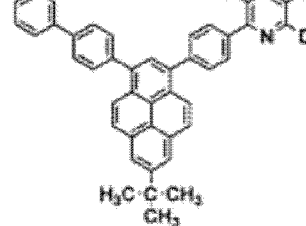
[69]



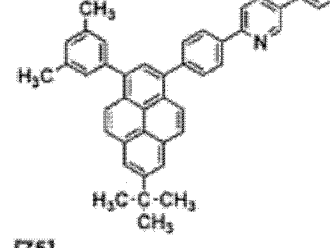
[70]



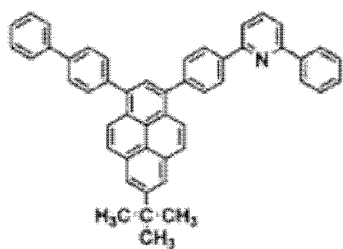
[71]



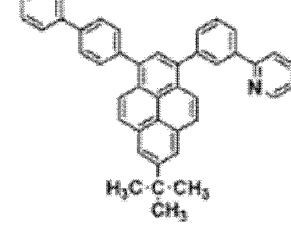
[72]



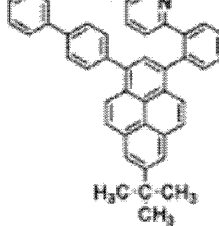
[73]



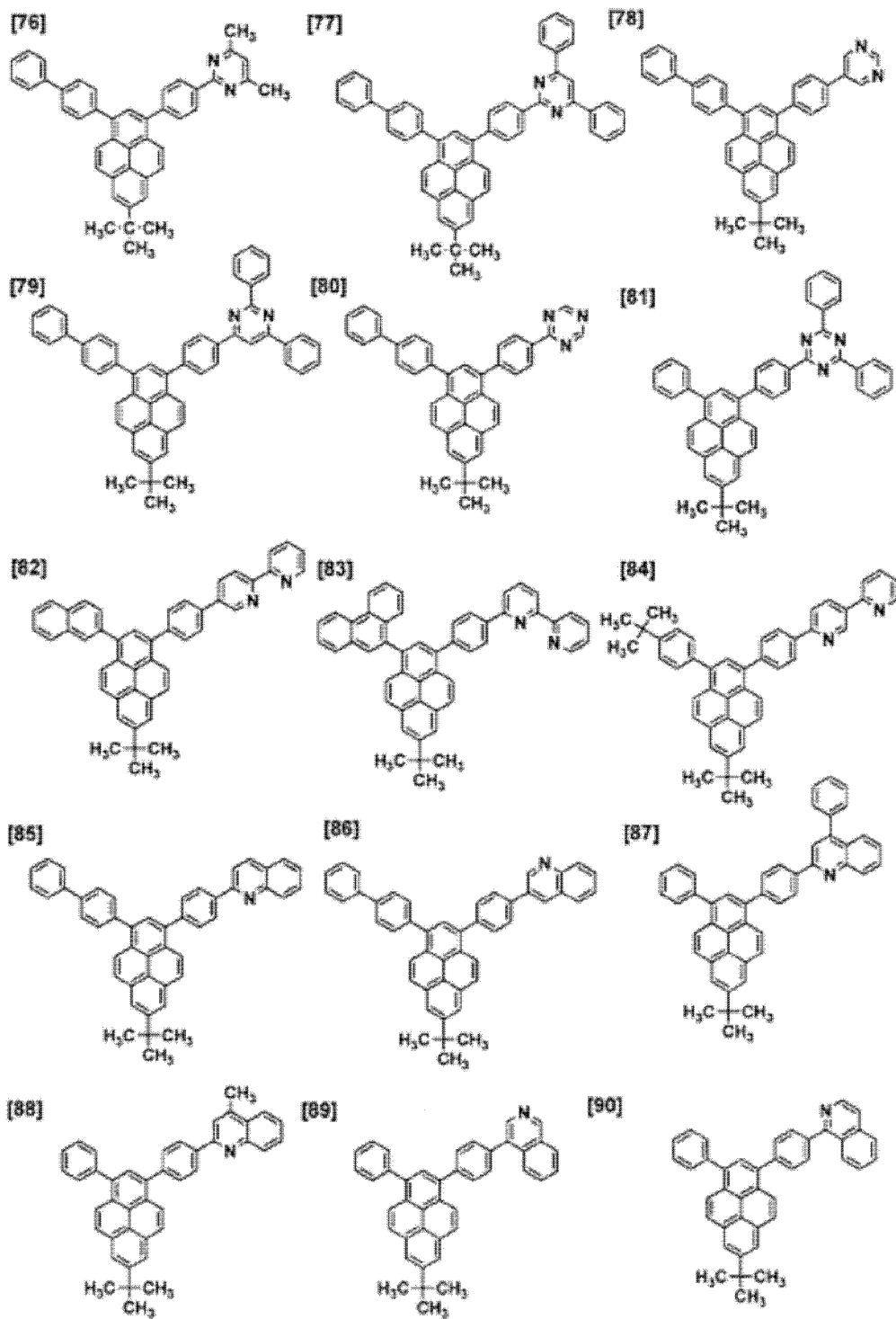
[74]



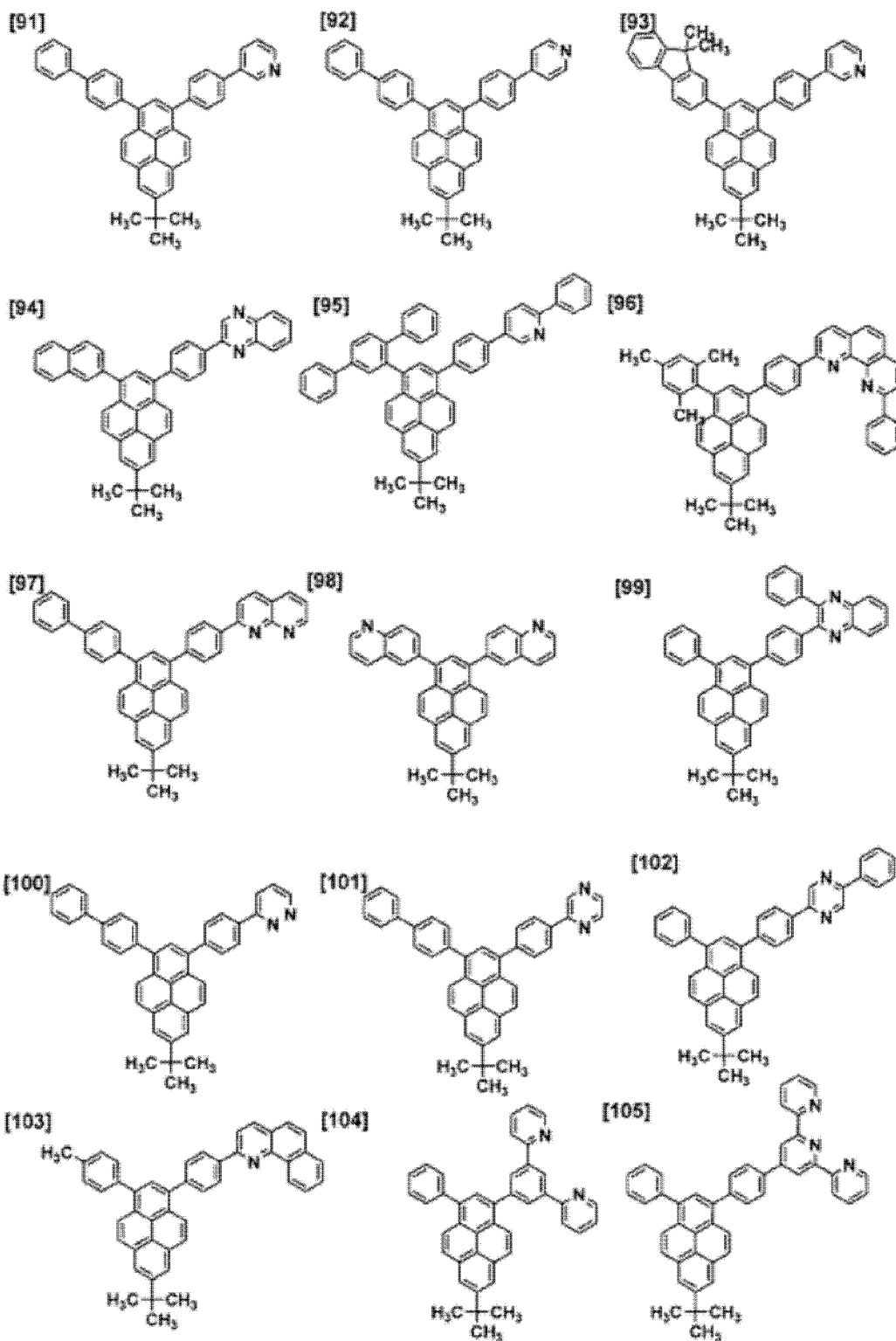
[75]



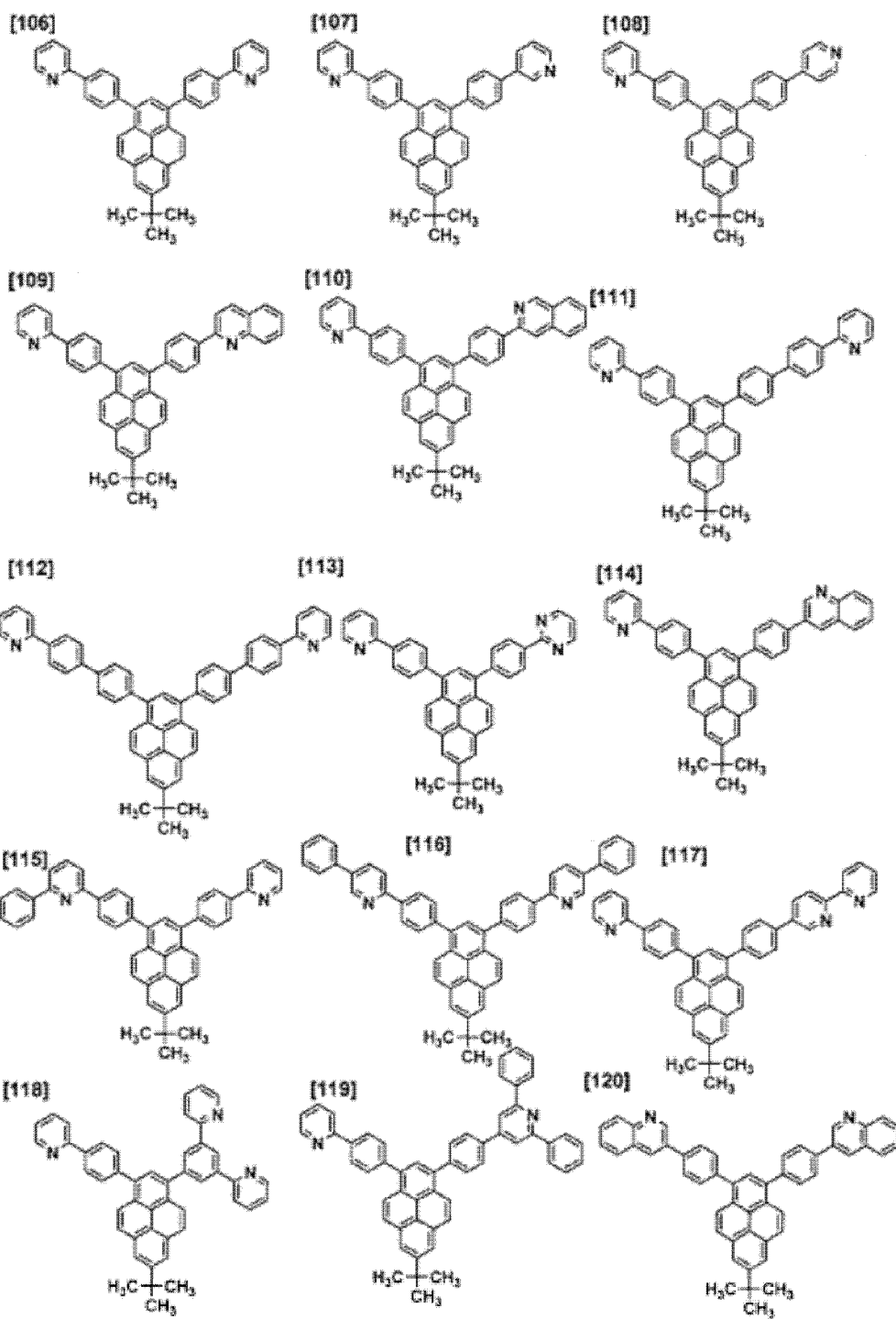
[0063]



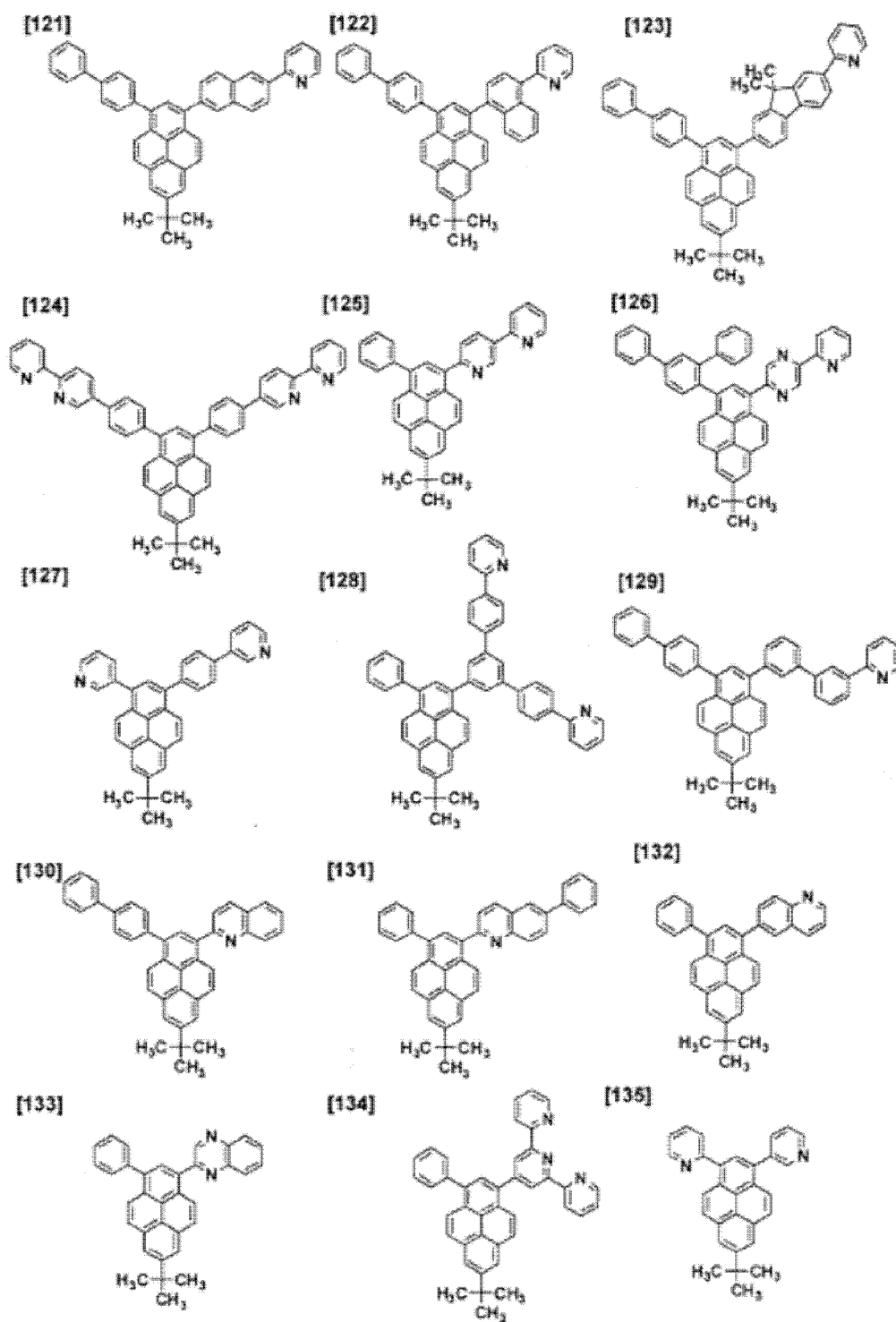
[0064]



[0065]

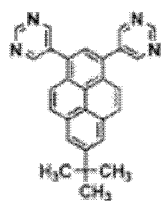


[0066]

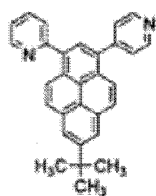


[0067]

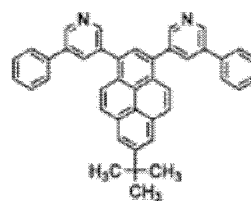
[136]



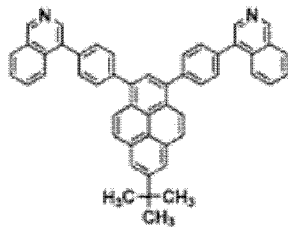
[137]



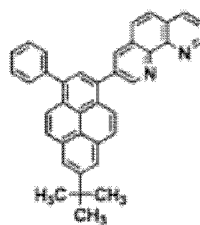
[138]



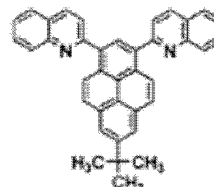
[139]



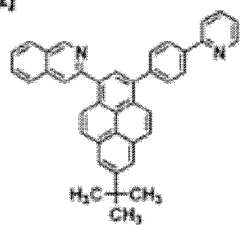
[140]



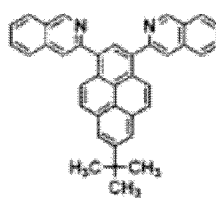
[141]



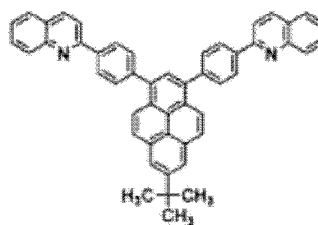
[142]



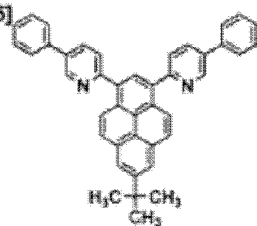
[143]



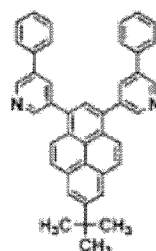
[144]



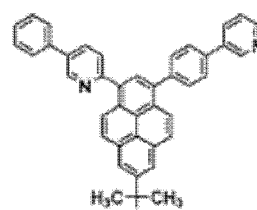
[145]



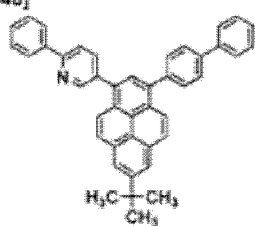
[146]



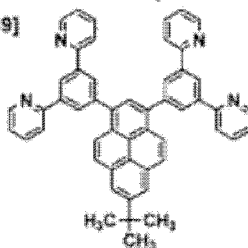
[147]



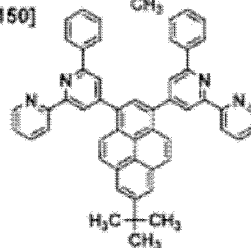
[148]



[149]

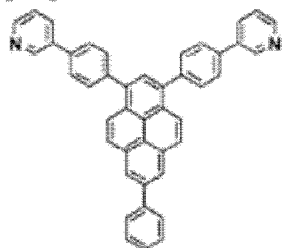


[150]

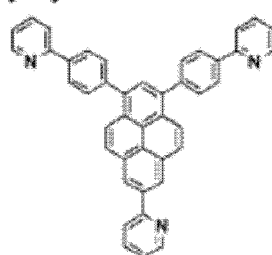


[0068]

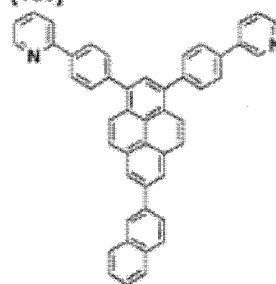
[151]



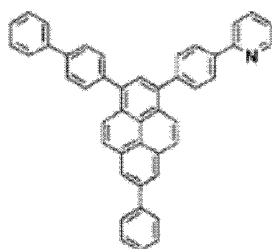
[152]



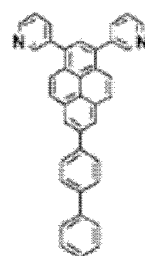
[153]



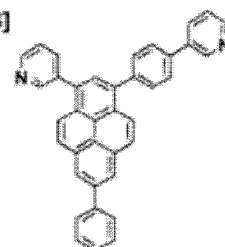
[154]



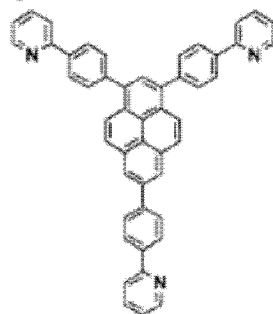
[155]



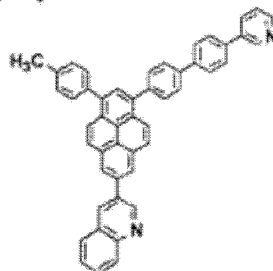
[156]



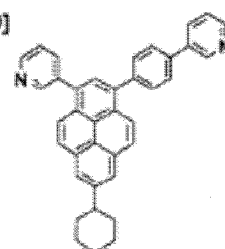
[157]



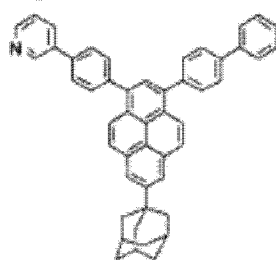
[158]



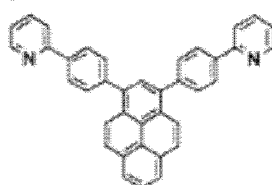
[159]



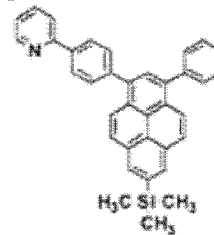
[160]



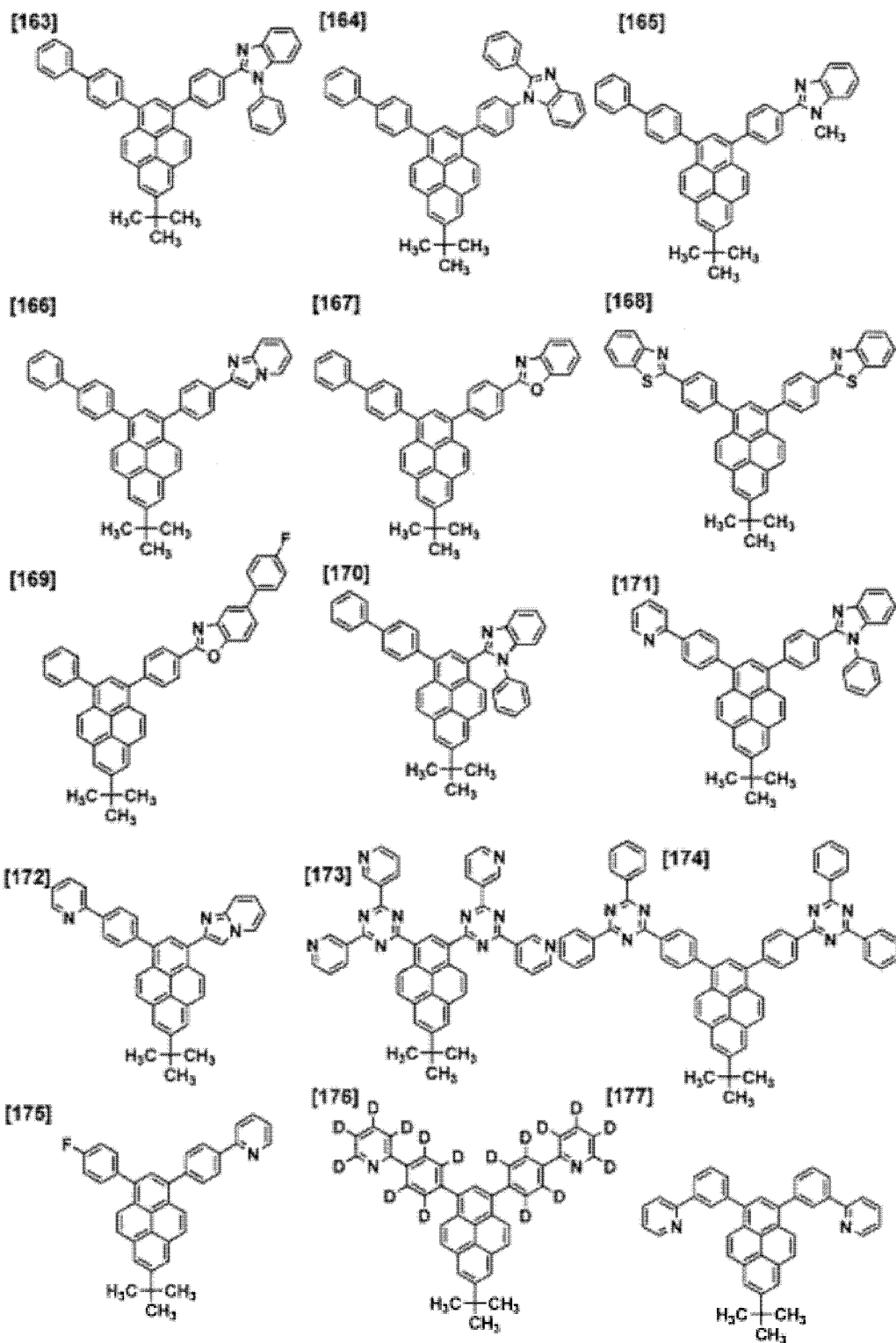
[161]



[162]



[0069]



[0070] 本发明中的通式 (1) 所示的茈化合物可用作发光元件材料。这里所谓本发明中的发光元件材料,表示可用于发光元件的任一层的材料,如后所述,除了是可用于空穴传输层、发光层及 / 或电子传输层的材料以外,还包括可用于阴极保护膜层的材料。通过将本发明中的通式 (1) 所示的茈化合物用于发光元件的任一层中,可获得高发光效率,且可得到低驱动电压的发光元件。

[0071] 通式 (1) 所示的茈化合物,由于具有较高的电子注入传输能力、发光效率及薄膜稳定性,因此优选用于发光元件的发光层或电子传输层。由于具有优异的电子注入传输能

力,因此特别优选用于电子传输层。

[0072] 下面对本发明的发光元件的实施方式详细进行说明。本发明的发光元件具有阳极和阴极、及介于这些阳极和阴极之间的有机层,该有机层至少包含发光层,该发光层利用电能进行发光。

[0073] 有机层,除了仅包含发光层的构成以外,还可列举 1) 空穴传输层 / 发光层 / 电子传输层、2) 发光层 / 电子传输层、3) 空穴传输层 / 发光层等的层叠构成。另外,上述各层可以分别为单层、多层的任一种。空穴传输层及电子传输层具有多层时,有时将与电极相接侧的层分别称为空穴注入层及电子注入层,在下面的说明中,如果没有特别说明,则空穴注入材料包括在空穴传输材料中、电子注入材料包括在电子传输材料中。

[0074] 在本发明的发光元件中,阳极和阴极具有用于供给充分的电流以使元件发光的作用,为了取出光,希望至少一方为透明或半透明。通常将形成于基板上的阳极设定为透明电极。

[0075] 用于阳极的材料,只要是可以对有机层有效地注入空穴的材料、且为了取出光而为透明或半透明即可,氧化锡、氧化铟、氧化锡铟 (ITO)、氧化锌铟 (IZO) 等导电性金属氧化物、或者金、银、铬等金属、碘化铜、硫化铜等无机导电性物质、聚噻吩、聚吡咯、聚苯胺等导电性聚合物等没有特别限定,特别希望使用 ITO 玻璃或奈塞玻璃。这些电极材料可以单独使用,也可以将多种材料层叠或混合来使用。对于透明电极的电阻,只要能供给充分的电流以使元件发光即可,没有限定,从元件的耗电量的观点考虑,优选为低电阻。例如,虽然是 $300\ \Omega/\square$ 以下的 ITO 基板就可以作为元件电极发挥功能,但从目前可以供给 $10\ \Omega/\square$ 左右的基板考虑,特别希望使用 $20\ \Omega/\square$ 以下的低电阻的基板。ITO 的厚度可以对照电阻值来任意选择,多数情况下通常以 $100\sim 300\text{nm}$ 之间来使用。

[0076] 另外,为了保持发光元件的机械强度,优选在基板上形成发光元件。基板优选使用钠玻璃或无碱玻璃等玻璃基板。对于玻璃基板的厚度,只要是为了保持机械强度而具有充分的厚度即可,只要为 0.5mm 以上就足够。对于玻璃的材质,从玻璃中溶出的离子越少越好,因此,优选无碱玻璃。或者,因为实施了 SiO_2 等防护涂层的碱石灰玻璃(钠钙玻璃)市场也有销售,故也可以使用这种市售品。进而,如果第一电极稳定地发挥功能,则基板不必要为玻璃,例如,也可以在塑料基板上形成阳极。对于 ITO 膜形成方法,可列举电子束法、溅射法及化学反应法等,不受特别限制。

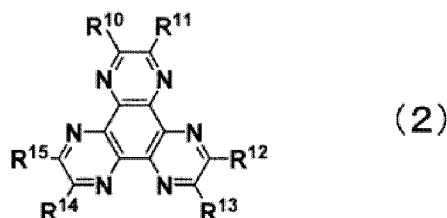
[0077] 用于阴极的材料,只要是可以对发光层有效地注入电子的物质即可,没有特别限制。通常情况下,优选铂、金、银、铜、铁、锡、铝、铟等金属或这些金属与锂、钠、钾、钙、镁等低功函数金属的合金或多层层叠等。其中,作为主要成分,从电阻值、制膜容易程度、膜的稳定性、发光效率等方面考虑,优选铝、银、镁。特别是由镁和银构成时,容易向本发明中的电子传输层及电子注入层注入电子,可以低电压驱动,故优选。

[0078] 进而,为了保护阴极,作为优选例可以列举将铂、金、银、铜、铁、锡、铝及铟等金属或使用有这些金属的合金、二氧化硅、氧化钛及氮化硅等无机物、聚乙烯醇、聚氯乙烯、烃系高分子化合物等有机高分子化合物作为保护膜层层叠在阴极上。另外,通式 (I) 所示的茈化合物也可以用作该保护膜层。其中,在从阴极侧取出光的元件结构(顶部发光结构)的情况下,保护膜层可从在可见光区域具有光透过性的材料中选择。对于这些电极的制作法,可列举电阻加热、电子束、溅射、离子喷镀及上胶涂布等,没有特别限制。

[0079] 空穴传输层,可通过将空穴传输材料的一种或二种以上层叠或混合的方法、或使用空穴传输材料和高分子粘合剂的混合物的方法来形成。另外,也可以在空穴传输材料中添加氯化铁(III)之类的无机盐来形成空穴传输层。空穴传输材料,需要在施加了电场的电极间有效地传输来自正极的空穴,因此希望空穴注入效率高、有效地传输注入的空穴。因此,要求空穴传输材料为具有适当的离子势、且空穴迁移率大、进而稳定性优异、制造时及使用使用时不容易产生成为陷阱的杂质的物质。作为满足这样的条件的物质,没有特别限定,优选4,4'-双(N-(3-甲基苯基)-N-苯基氨基)联苯、4,4'-双(N-(1-萘基)-N-苯基氨基)联苯、4,4',4''-三(3-甲基苯基(苯基)氨基)三苯基胺等三苯基胺衍生物、双(N-烯丙基吡唑)或双(N-烷基吡唑)等双吡唑衍生物、吡唑啉衍生物、芪系化合物、腺系化合物、苯并咪唑衍生物或噻吩衍生物、噁二唑衍生物、酞菁衍生物、卟啉衍生物等杂环化合物、富勒烯衍生物、聚合物系中侧链具有上述单体的聚碳酸酯或苯乙烯衍生物、聚噻吩、聚苯胺、聚茚、聚乙烯基吡唑及聚硅烷等。

[0080] 进而也可以使用p型Si、p型SiC等无机化合物。另外,也可以使用下述通式(2)所示的化合物、四氟四氰基醌二甲烷(4F-TCNQ)或氧化钼。

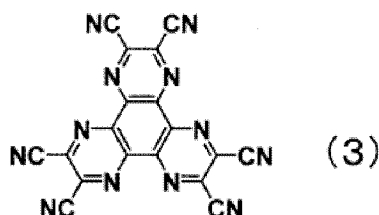
[0081]



[0082] R¹⁰ ~ R¹⁵ 分别可以相同也可以不同,选自由卤素、磺酰基、羰基、硝基、氰基、三氟甲基组成的组。

[0083] 其中,化合物(3)(1,4,5,8,9,12-六氮杂苯并菲六甲腈)包含在空穴传输层或空穴注入层中时,可更低电压驱动,故优选。

[0084]



[0085] 本发明中,发光层可以是单层、多层的任一种,可分别利用发光材料(主体材料、掺杂材料)来形成,其可以是主体材料和掺杂材料的混合物,也可以仅为主体材料,任一情况都可以。即,在本发明的发光元件中,各发光层中,可以是仅主体材料或仅掺杂材料发光,也可以是主体材料和掺杂材料一起发光。从有效利用电能、得到高色纯度的发光的观点考虑,优选发光层由主体材料和掺杂材料的混合构成。另外,主体材料和掺杂材料分别可以为一种也可以为多个的组合,任一情况都可以。掺杂材料可以被整个主体材料包含也可以被部分包含,任一情况都可以。掺杂材料可以被层叠也可以被分散,任一情况都可以。掺杂材料可以控制发光色。掺杂材料的量过多时会发生浓度消光现象,因此,其用量相对主体材料优选为20重量%以下、进一步优选为10重量%以下。对于掺杂方法,可以利用与主体材料的共蒸镀法来形成,也可以预先与主体材料混合后同时进行蒸镀。

[0086] 通式 (1) 所示的茈化合物具有较高的发光性能,因此优选用作发光材料。另外,通式 (1) 所示的茈化合物在紫外~蓝色区域 (300 ~ 450nm 区域) 显示出较强的发光,因此可以优选用作蓝色发光材料。另外,在用作主体-掺杂系的发光材料时,本发明的茈化合物虽然也可以用作掺杂材料,但从薄膜稳定性优异方面考虑,优选用作主体材料。

[0087] 发光材料,除了通式 (1) 所示的茈化合物以外,具体而言,还可以使用:目前作为发光体已知的蒽或茈等稠环衍生物、以三 (8-羟基喹啉) 铝为代表的金属螯合化羟基喹啉化合物、双苯乙烯基蒽衍生物或二苯乙烯基苯衍生物等双苯乙烯基衍生物、四苯基丁二烯衍生物、茛衍生物、香豆素衍生物、噻二唑衍生物、吡咯并吡啶衍生物、茈酮衍生物、环戊二烯衍生物、噻二唑衍生物、噻二唑并吡啶衍生物、二苯并呋喃衍生物、咔唑衍生物、吲哚并咔唑衍生物、聚合物系的情况下可以使用聚亚苯基亚乙烯基衍生物、聚对亚苯基衍生物、以及聚噻吩衍生物等,没有特别限定。

[0088] 发光材料所含有的主体材料没有必要仅限于通式 (1) 所示的茈化合物一种,可以将本发明的多个茈化合物混合来使用,或将其他主体材料的一种以上与本发明的茈化合物混合来使用。作为可以混合的主体材料,没有特别限制,可以使用:萘、蒽、菲、茈、蒹、并四苯、苯并 [9,10] 菲、茈、蒽、茛、茛等具有缩合芳基环的化合物或其衍生物、N, N'-二萘基-N, N'-二苯基-4,4'-二苯基-1,1'-二胺等芳香族胺衍生物、以三 (8-羟基喹啉) 铝 (III) 为代表的金属螯合化羟基喹啉化合物、二苯乙烯基苯衍生物等双苯乙烯基衍生物、四苯基丁二烯衍生物、茛衍生物、香豆素衍生物、噻二唑衍生物、吡咯并吡啶衍生物、茈酮衍生物、环戊二烯衍生物、吡咯并吡咯衍生物、噻二唑并吡啶衍生物、二苯并呋喃衍生物、咔唑衍生物、吲哚并咔唑衍生物、三嗪衍生物、聚合物系的情况下可以使用聚亚苯基亚乙烯基衍生物、聚对亚苯基衍生物、聚茛衍生物、聚乙烯基咔唑衍生物、聚噻吩衍生物等,没有特别限定。其中,作为发光层进行磷光发光时使用的主体,优选使用金属螯合化羟基喹啉化合物、二苯并呋喃衍生物、咔唑衍生物、吲哚并咔唑衍生物、三嗪衍生物等。

[0089] 掺杂材料没有特别限制,可列举:萘、蒽、菲、茈、蒹、苯并 [9,10] 菲、茈、蒽、茛、茛等具有缩合芳基环的化合物或其衍生物 (例如 2-(苯并噻唑-2-基)-9,10-二苯基蒽、5,6,11,12-四苯基并四苯等)、呋喃、吡咯、噻吩、噻咯、9-硅杂茛、9,9'-螺二硅杂茛、苯并噻吩、苯并呋喃、吲哚、二苯并噻吩、二苯并呋喃、咪唑并吡啶、菲咯啉、吡啶、吡嗪、萘啶、喹啉、吡咯并吡啶、噻吨等具有杂芳基环的化合物或其衍生物、硼烷衍生物、二苯乙烯基苯衍生物、4,4'-双 (2-(4-二苯基氨基苯基) 次乙基) 联苯基、4,4'-双 (N-(茈-4-基)-N-苯基氨基) 茈等氨基苯乙烯基衍生物、芳香族乙炔衍生物、四苯基丁二烯衍生物、茈衍生物、醛连氮衍生物、吡咯甲川衍生物、二酮基吡咯并 [3,4-c] 吡咯衍生物、2,3,5,6-1H,4H-四氢-9-(2'-苯并噻唑基) 喹啉并 [9,9a,1-gh] 香豆素等香豆素衍生物、咪唑、噻唑、噻二唑、咔唑、噻唑、噻二唑、三唑等唑衍生物及其金属络合物及以 N, N'-二苯基-N, N'-二 (3-甲基苯基)-4,4'-二苯基-1,1'-二胺为代表的芳香族胺衍生物等。

[0090] 另外,作为发光层进行磷光发光时使用的掺杂剂,优选为包含选自铱 (Ir)、铷 (Ru)、钯 (Pd)、铂 (Pt)、钨 (Os) 及铼 (Re) 中的至少一种金属的金属配位化合物。配位基优选具有苯基吡啶骨架或苯基喹啉骨架等含氮芳香族杂环。但是,并不限于这些,可根据所要求的发光色、元件性能、与主体化合物的关系选择适当的络合物。

[0091] 在本发明中,电子传输层为从阴极被注入电子、进而将电子进行传输的层。希望电

子传输层的电子注入效率高、有效传输被注入的电子。因此,要求电子传输层的电子亲和力大且电子迁移率大、进而稳定性优异、制造时及使用时不容易产生成为陷阱的杂质的物质。特别是在进行层叠而使膜厚变厚时,低分子量的化合物结晶化等容易使膜质劣化,因此,优选保持稳定的膜质的分子量 400 以上的化合物。但是,在考虑空穴和电子的传输均衡时,如果电子传输层主要发挥可以有效阻止来自阳极的空穴在没有再结合的情况下流向阴极侧的作用,则即使由电子传输能力不那么高的材料构成,改善发光效率的效果也会与由电子传输能力高的材料构成的情况同样。因而,本发明中的电子传输层中也包含与可以有效阻止空穴迁移的空穴阻止层同样意义的物质。

[0092] 通式 (1) 所示的茈化合物是满足上述条件的化合物,具有较高的电子注入传输能力,因此优选用作电子传输材料。

[0093] 在电子传输层进一步包含给体化合物的情况下,可改善与给体化合物在薄膜状态下的相容性,显现出更高的电子注入传输能力。通过该混合物层的作用,可促进电子从阴极向发光层传输,可以兼备高发光效率和低驱动电压。

[0094] 本发明中所使用的电子传输材料没有必要仅限于通式 (1) 所示的茈化合物中的一种,可以将多个茈化合物混合来使用,或在不损害本发明效果的范围内将其他电子传输材料的一种以上混合来使用。作为可以混合的电子传输材料,没有特别限制,可列举萘、蒽、茈等具有缩合芳基环的化合物或其衍生物、以 4,4'-双(二苯基次乙基)联苯基为代表的苯乙烯基系芳香环衍生物、茈衍生物、茈酮衍生物、香豆素衍生物、萘二甲酰亚胺衍生物、蒽醌、联对苯醌等醌衍生物、氧化膦衍生物、咪唑衍生物及吡啶衍生物、三(8-羟基喹啉)铝(III)等羟基喹啉络合物或羟基苯基噁唑络合物等羟基唑络合物、偶氮甲碱络合物、环庚三烯酚酮金属络合物及黄酮醇金属络合物。

[0095] 下面,对给体化合物进行说明。本发明中的给体化合物是通过改善电子注入障碍而使电子容易从阴极或电子注入层向电子传输层注入、进而改善电子传输层的电传导性的化合物。即,在本发明的发光元件中,更优选电子传输层除了包含通式 (1) 所示的茈化合物以外,还掺杂有用于提高电子传输能力的给体化合物。

[0096] 作为本发明中的给体化合物的优选例,可列举:碱金属、含有碱金属的无机盐、碱金属与有机物的络合物、碱土金属、含有碱土金属的无机盐或碱土金属与有机物的络合物等。作为碱金属、碱土金属的优选种类,可列举低功函数且改善电子传输能力的效果大的锂、钠、铯之类的碱金属或镁、钙之类的碱土金属。

[0097] 另外,从在真空中容易蒸镀且操作性优异方面考虑,与金属单质相比,优选为无机盐或与有机物的络合物的状态。进而,从在空气中容易操作、容易控制添加浓度方面考虑,更优选为金属与有机物的络合物的状态。作为无机盐的例子,可列举:LiO、Li₂O 等氧化物;氮化物;LiF、NaF、KF 等氟化物;Li₂CO₃、Na₂CO₃、K₂CO₃、Rb₂CO₃、Cs₂CO₃ 等碳酸盐等。另外,作为碱金属或碱土金属的优选例,从原料廉价且容易合成方面考虑,可列举锂。另外,作为与有机物的络合物中的有机物的优选例,可列举羟基喹啉、苯并羟基喹啉、黄酮醇、羟基咪唑并吡啶、羟基苯并吡咯、羟基三唑等。其中,优选碱金属和有机物的络合物,更优选锂和有机物的络合物,特别优选羟基喹啉锂。

[0098] 另外,当电子传输层中的给体化合物的掺杂比例适当时,电子从阴极或电子注入层向电子传输层的注入比例增加,阴极与电子注入层间或电子注入层与电子传输层间的能

量障碍降低而低驱动电压化。优选的掺杂浓度因材料或掺杂区域的膜厚而异,但优选有机化合物和给体化合物的摩尔比为 100 : 1 ~ 1 : 100 的范围、更优选为 10 : 1 ~ 1 : 10。

[0099] 在电子传输层中掺杂给体化合物来改善电子传输能力的方法在薄膜层的膜厚厚的情况下可格外发挥效果。特别优选用于电子传输层及发光层的总膜厚为 50nm 以上的情况。例如有为了改善发光效率而利用干涉效果的方法,其是使从发光层直接放射的光与被阴极反射的光的相位匹配来改善光的取出效率。其最佳条件根据光的发光波长而发生变化,但结果电子传输层及发光层的总膜厚为 50nm 以上,在红色等长波长发光的情况下有时达到接近 100nm 的厚膜。

[0100] 掺杂的电子传输层的膜厚可以是电子传输层的一部分或全部的任一种情况,以整个电子传输层的膜厚越厚掺杂的浓度越浓为宜。在掺杂于一部分的情况下,希望至少在电子传输层 / 阴极界面设置掺杂区域,只要掺杂于阴极界面附近就可得到低电压化的效果。另一方面,给体化合物掺杂于发光层时会带来使发光效率下降的不良影响时,希望在发光层 / 电子传输层界面设置无掺杂区域。

[0101] 构成发光元件的上述各层的形成方法,可列举电阻加热蒸镀、电子束蒸镀、溅射、分子层叠法、涂层法等,没有特别限制,通常情况下,从元件特性的观点考虑,优选电阻加热蒸镀或电子束蒸镀。

[0102] 有机层的厚度因发光物质的电阻值不同而不同,因此不能限定,优选为 1 ~ 1000nm。发光层、电子传输层、空穴传输层的膜厚分别优选为 1nm 以上 200nm 以下、进一步优选为 5nm 以上 100nm 以下。

[0103] 本发明的发光元件具有可以将电能转换为光的功能。这里,电能主要使用直流电流,也可以使用脉冲电流或交流电流。电流值及电压值没有特别限制,考虑元件的耗电量或寿命时,应以尽可能低的能量得到最大的亮度的方式来选择。

[0104] 本发明的发光元件可优选用作以例如矩阵及 / 或片段方式进行显示的显示器。

[0105] 矩阵方式是指用于显示的像素以方格状或马赛克状等二维配置,通过像素的集合来显示文字或图像。像素的形状、尺寸可根据用途来确定。例如,在个人计算机、监控器、电视的图像及文字显示中,通常使用边长为 300 μm 以下的四边形的像素,另外,在显示面板那样的大型显示器的情况下,使用边长为 mm 等级的像素。在单色显示的情况下,只要排列同色的像素即可,但在彩色显示的情况下,使红像素、绿像素、蓝像素并排显示。这时,代表性的有三角型和条纹型。而且,该矩阵的驱动方法可以是逐行传送制驱动方法或有源矩阵的任一种。逐行传送制驱动的构造简单,但考虑动作特性时,往往有源矩阵优异,因此,都需要根据用途来分别使用。

[0106] 本发明中的片段方式是为了显示预先确定的信息而形成图案、使由该图案的配置确定的区域发光的方式。可列举例如:数字钟或温度计中的时刻或温度显示、音响设备或电磁灶等的工作状态显示及汽车的面板显示等。而且,所述矩阵显示和片段显示也可以在同一个面板中共存。

[0107] 本发明的发光元件还优选用作各种设备等的背光灯。背光灯主要是为了改善不自发光的显示装置的可视性而使用的,可用于液晶显示装置、时钟、音响装置、汽车面板、显示板及标识等。特别是液晶显示装置、其中研究薄型化的个人计算机用途的背光灯中优选使用本发明的发光元件,可以提供比现有的背光灯更加薄型且轻质的背光灯。

[0108] 实施例

[0109] 下面,列举实施例说明本发明,但本发明并不限于这些实施例。需要说明的是,下述各实施例中的化合物的编号是指上述记载的化合物的编号。

[0110] 合成例 1**[0111] 化合物 [1] 的合成**

[0112] 将芘 4.1g、叔丁基氯 2g 和二氯甲烷 33ml 的混合溶液在氮气流下冷却至 0℃,加入氯化铝 2.7g。在室温下将该混合溶液搅拌 3 小时后,注入水 30ml,用二氯甲烷 30ml 进行萃取。将有机层用水 20ml 洗涤 2 次、用硫酸镁干燥后,进行蒸发。利用硅胶柱色谱法进行精制,进行真空干燥后,得到 2-叔丁基芘 3g(含有率 65%)。

[0113] 接着,将 2-叔丁基芘 3g(含有率 65%)、二氯甲烷 50ml 和甲醇 15ml 的混合溶液在氮气流下冷却至 0℃,滴加溶解于二氯甲烷 10ml 中的苄基三甲基三溴化铵 3.3g。在室温下将该混合溶液搅拌 2 小时后,注入水 50ml,用二氯甲烷 50ml 进行萃取。将有机层用水 50ml 洗涤 2 次、用硫酸镁干燥后,进行蒸发。在得到的固体中加入甲醇 10ml,搅拌 10 分钟后,进行过滤。进一步加入己烷 30ml,搅拌 30 分钟后,进行过滤。进行真空干燥后,得到 1-溴-7-叔丁基芘 2.3g。

[0114] 接着,将 1-溴-7-叔丁基芘 2.3g(含有率 79.2%)、苯基硼酸 1.1g、磷酸三钾 3.8g、四丁基溴化铵 0.58g、乙酸钡 12mg 和二甲基甲酰胺 30ml 的混合溶液在氮气流下、130℃加热搅拌 2 小时。冷却至室温后,注入水 30ml,用二氯甲烷 50ml 进行萃取。将有机层用水 20ml 洗涤 2 次、用硫酸镁干燥后,进行蒸发。利用硅胶柱色谱法进行精制,进行真空干燥后,得到 7-叔丁基-1-苯基芘 1.5g。

[0115] 接着,将 7-叔丁基-1-苯基芘 1.5g、二氯甲烷 25ml 和甲醇 8ml 的混合溶液在氮气流下冷却至 0℃,滴加溶解于二氯甲烷 5ml 中的苄基三甲基三溴化铵 1.7g。在室温下将该混合溶液搅拌 2 小时后,注入水 20ml,用二氯甲烷 20ml 进行萃取。将有机层用水 20ml 洗涤 2 次、用硫酸镁干燥后,进行蒸发。在得到的固体中加入甲醇 10ml,放置一夜。对析出的固体进行过滤,进行真空干燥后,得到 1-溴-7-叔丁基-3-苯基芘 1.9g。

[0116] 接着,将 1-溴-7-叔丁基-3-苯基芘 1.9g、3-吡啶硼酸 0.57g、乙酸钡 10mg、三苯基膦 24mg、2M 碳酸钠水溶液 4.4ml 和二氧基乙烷 23ml 的混合溶液在氮气流下、回流下加热搅拌 5 小时。冷却至室温后,注入水 40ml,进行过滤。用甲醇 40ml 洗涤后,利用硅胶色谱法进行精制,进行真空干燥后,得到淡黄色结晶 1.4g。

[0117] 得到的粉末的 ¹H-NMR 分析结果如下所示,可确认上述得到的淡黄色结晶为化合物 [1]。

[0118] ¹H-NMR(CDCl₃(d = ppm)): 1.61(s, 9H), 7.30-8.81(m, 16H)。

[0119] 另外,该化合物 [1],在用油扩散泵在 1×10⁻³Pa 的压力下、约 230℃下进行升华精制后用作发光元件材料。HPLC 纯度(测定波长 254nm 中的面积%),升华精制前为 99.4%,升华精制后为 99.6%。

[0120] 合成例 2**[0121] 化合物 [10] 的合成**

[0122] 将芘 150g、叔丁基氯 75.52g 和二氯甲烷 742ml 的混合溶液在氮气流下冷却至 0℃,加入氯化铝 98.9g。在室温下将该混合溶液搅拌 3 小时后,注入水 1100ml,用二氯甲烷

1100ml 进行萃取。将有机层用水 750ml 洗涤 3 次、用硫酸镁干燥、蒸发后,利用甲醇洗涤进行精制、过滤。进行真空干燥后,得到 2-叔丁基芘 272g(含有率 79.2%)。

[0123] 接着,在 2-叔丁基芘 77.15g(含有率 79.2%)、四氢呋喃 1380ml 的混合溶液中,在氮气流下加入 N-溴代琥珀酰亚胺 123g。在 30℃将该混合溶液搅拌约 8 小时后,进行过滤。将得到的固体用甲醇洗涤后,用甲苯 1500ml 进行重结晶,进行真空干燥后,得到 1,3-二溴-7-叔丁基芘 57.3g。

[0124] 接着,将 1,3-二溴-7-叔丁基芘 20.0g、4-氯苯基硼酸 16.52g、双(三苯基膦)二氯钯 0.034g、2M-碳酸钠水溶液 106ml 和 1,2-二甲氧基乙烷 240ml 的混合溶液在氮气流下、回流下加热搅拌约 5 小时后,冷却至 5℃。注入水 240ml,对析出的固体进行过滤后,将固体用水 125ml 洗涤 2 次、用甲醇 125ml 洗涤 1 次。进行真空干燥后,使灰色固体溶于甲苯 48ml 中,加入活性炭 2g,搅拌约 15 分钟后,过滤活性炭。将得到的滤液蒸发后,加入己烷 100ml,搅拌约 1 小时后,进行过滤。进行真空干燥后,得到 7-叔丁基-1,3-双(4-氯苯基)芘 7.7g。

[0125] 接着,将 7-叔丁基-1,3-双(4-氯苯基)芘 7.0g、3-吡啶硼酸 5.4g、双(二亚苄基丙酮)钯 0.34g、三环己基膦·四氟硼酸酯 0.26g、1.27M-磷酸三钾水溶液 53ml 和 1,4-二噁烷 51ml 的混合溶液在氮气流下、回流下加热搅拌约 8 小时。冷却至室温后,注入水 100ml,用甲苯 300ml 进行萃取。将有机层用氯化钠水溶液 100ml 洗涤 2 次、用硫酸镁干燥、蒸发后,利用硅胶柱色谱法进行精制。将进行蒸发而得到的淡黄色固体用甲苯 50ml、甲醇 50ml 洗涤后,进行过滤。进行真空干燥后,得到淡黄色结晶 7.2g。

[0126] 得到的粉末的 $^1\text{H-NMR}$ 分析结果如下所示,可确认上述得到的淡黄色结晶为化合物 [10]。

[0127] $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3(\text{d} = \text{ppm}))$: 1.61(9H, s), 7.43(2H, dd, $J = 4.6\text{Hz}, 7.8\text{Hz}$), 7.77-7.85(8H, m), 7.99-8.02(3H, m), 8.07(2H, d, $J = 9.5\text{Hz}$), 8.24(2H, d, $J = 9.5\text{Hz}$), 8.24(2H, s), 8.65(2H, dd, $J = 1.1\text{Hz}, 4.9\text{Hz}$), 9.00(2H, d, $J = 1.9\text{Hz}$)。

[0128] 另外,该化合物 [10],在用油扩散泵在 $1 \times 10^{-3}\text{Pa}$ 的压力下、约 290℃下进行升华精制后用作发光元件材料。HPLC 纯度(测定波长 254nm 中的面积%),升华精制前为 99.8%,升华精制后为 99.9%。

[0129] 合成例 3

[0130] 化合物 [107] 的合成

[0131] 在 2-叔丁基芘 120g(含有率 79.2%)、四氢呋喃 3000ml 的混合溶液中,在氮气流下加入 N-溴代琥珀酰亚胺 69.66g。在 30℃将该混合溶液搅拌约 3 小时后,进行浓缩,加入甲醇 500ml,搅拌约 1 小时后,进行过滤。在得到的固体中加入己烷 500ml,加热搅拌约 1 小时后,进行过滤。进行真空干燥后,得到 1-溴-7-叔丁基芘 106.9g。

[0132] 接着,将 1-溴-7-叔丁基芘 106.9g、4-氯苯基硼酸 54.5g、双(三苯基膦)二氯钯 0.223g、2M-碳酸钠水溶液 350ml 和 1,2-二甲氧基乙烷 1586ml 的混合溶液在氮气流下、回流下加热搅拌约 5 小时。冷却至室温后,注入水 640ml,用甲苯 1170ml 进行萃取。将有机层用水 640ml 洗涤 2 次、用硫酸镁干燥、蒸发后,加入甲苯 270ml、甲醇 1350ml,搅拌约 2 小时后,进行过滤。进行真空干燥后,得到 7-叔丁基-1-(4-氯苯基)芘 105.16g。

[0133] 接着,在 7-叔丁基-1-(4-氯苯基)芘 100.6g、四氢呋喃 1638ml 的混合溶液中,在

氮气流下加入 N- 溴代琥珀酰亚胺 53.5g。在 30℃ 将该混合溶液搅拌约 5 小时后,进行浓缩,加入甲醇 984ml,搅拌约 1 小时后,进行过滤。在得到的固体中加入己烷 539ml,加热搅拌约 1 小时后,进行过滤。进行真空干燥后,得到 1- 溴 -7- 叔丁基 -3-(4- 氯苯基) 苌 112.0g。

[0134] 接着,将 1- 溴 -7- 叔丁基 -3-(4- 氯苯基) 苌 10.0g、4-(2- 吡啶基苯基) 硼酸频那醇酯 6.9g、双(三苯基膦) 二氯化钯 0.016g、1.5M- 碳酸钠水溶液 33ml 和 1,2- 二甲氧基乙烷 112ml 的混合溶液在氮气流下、回流下加热搅拌约 5 小时。冷却至室温后,注入水 223ml,用乙酸乙酯 236ml 进行萃取。将有机层用氯化钠水溶液 640ml 洗涤 2 次、用硫酸镁干燥、蒸发后,加入 2- 丙醇 200ml,搅拌约 2 小时后,进行过滤。进行真空干燥后,得到 1-(4-(2- 吡啶基) 苯基)-3-(4- 氯苯基)-7- 叔丁基苌 10.5g。

[0135] 接着,将 1-(4-(2- 吡啶基) 苯基)-3-(4- 氯苯基)-7- 叔丁基苌 6.5g、3- 吡啶硼酸 1.68g、双(二亚苄基丙酮) 钯 0.143g、三环己基膦·四氟硼酸酯 0.11g、1.27M- 磷酸三钾水溶液 17ml 和 1,4- 二噁烷 63ml 的混合溶液在氮气流下、回流下加热搅拌约 6 小时。冷却至室温后,注入水 34ml,用乙酸乙酯 70ml 进行萃取。将有机层用氯化钠水溶液 34ml 洗涤 2 次、用硫酸镁干燥、蒸发后,加入乙酸乙酯 18ml、己烷 72ml,搅拌约 2 小时后,进行过滤。利用硅胶柱色谱法进行精制后,进行蒸发,对于由此得到的淡黄色固体,用乙酸乙酯 40ml 进行重结晶、过滤,将由此得到的固体进行真空干燥后,得到白色结晶 4.1g。

[0136] 得到的粉末的 $^1\text{H-NMR}$ 分析结果如下所示,可确认上述得到的白色结晶为化合物 [107]。

[0137] $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3(\text{d} = \text{ppm}))$: 1.60(9H, s), 7.23-7.31(1H, m), 7.43(1H, ddd, $J = 1.1\text{Hz}, 4.9\text{Hz}, 7.8\text{Hz}$), 7.77-7.90(8H, m), 7.98-8.11(4H, m), 8.16-8.29(6H, m), 8.65(1H, dd, $J = 1.6\text{Hz}, 4.6\text{Hz}$), 8.76(1H, dt, $J = 0.5\text{Hz}, 4.6\text{Hz}$), 9.00(1H, dd, $J = 0.5\text{Hz}, 2.2\text{Hz}$)。

[0138] 另外,该化合物 [107],在用油扩散泵在 $1 \times 10^{-3}\text{Pa}$ 的压力下、约 300℃ 下进行升华精制后用作发光元件材料。HPLC 纯度(测定波长 254nm 中的面积%),升华精制前为 99.4%,升华精制后为 99.9%。

[0139] 合成例 4

[0140] 化合物 [91] 的合成

[0141] 将 1- 溴 -7- 叔丁基 -3-(4- 氯苯基) 苌 9.4g、4- 联苯基硼酸 4.58g、双(三苯基膦) 二氯化钯 0.015g、2M- 碳酸钠水溶液 23ml 和 1,2- 二甲氧基乙烷 105ml 的混合溶液在氮气流下、回流下加热搅拌约 4 小时。冷却至室温后,注入水 141ml,用甲苯 164ml 进行萃取。将有机层用氯化钠水溶液 141ml 洗涤 2 次、用硫酸镁干燥、蒸发后,加入甲苯 33ml、己烷 132ml,搅拌约 2 小时后,进行过滤。进行真空干燥后,得到 1-(4- 联苯基)-3-(4- 氯苯基)-7- 叔丁基苌 10.5g。

[0142] 接着,将 1-(4- 联苯基)-3-(4- 氯苯基)-7- 叔丁基苌 10.0g、3- 吡啶硼酸 2.6g、双(二亚苄基丙酮) 钯 0.22g、三环己基膦·四氟硼酸酯 0.17g、1.27M- 磷酸三钾水溶液 26ml 和 1,4- 二噁烷 110ml 的混合溶液在氮气流下、回流下加热搅拌约 4 小时。冷却至室温后,注入水 30ml,用甲苯 100ml 进行萃取。将有机层用氯化钠水溶液 30ml 洗涤 2 次、用硫酸镁干燥、蒸发后,加入甲苯 32ml、己烷 96ml,搅拌约 2 小时后,进行过滤。利用硅胶柱色谱法进行精制后,进行蒸发,使由此得到的淡黄色固体溶解于甲苯 29ml 中,加入甲醇 87ml,搅拌约 2 小时后,进行过滤。将得到的固体进行真空干燥后,得到白色结晶 8.9g。

[0143] 得到的粉末的 $^1\text{H-NMR}$ 分析结果如下所示,可确认上述得到的白色结晶为化合物 [91]。

[0144] $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3(\text{d} = \text{ppm}))$: 1.60 (9H, s), 7.35–7.46 (2H, m), 7.51 (2H, t, $J = 7.0\text{Hz}$), 7.70–7.85 (8H, m), 7.98–8.08 (4H, m), 8.22–8.30 (6H, m), 8.65 (1H, dd, $J = 1.6\text{Hz}, 4.6\text{Hz}$), 9.00 (1H, d, $J = 1.9\text{Hz}$)。

[0145] 另外,该化合物 [91],在用油扩散泵在 $1 \times 10^{-3}\text{Pa}$ 的压力下、约 270°C 下进行升华精制后用作发光元件材料。HPLC 纯度 (测定波长 254nm 中的面积%), 升华精制前为 99.8%, 升华精制后为 99.9%。

[0146] 合成例 5

[0147] 化合物 [63] 的合成

[0148] 将 1-溴-7-叔丁基芘 7.08g、4-联苯基硼酸 4.57g、双(二亚苄基丙酮)钼 0.075g、2M-碳酸钠水溶液 23ml 和 1,2-二甲氧基乙烷 105ml 的混合溶液在氮气流下、回流下加热搅拌约 6 小时。冷却至室温后,注入水 177ml,用甲苯 200ml 进行萃取。将有机层用氯化钠水溶液 177ml 洗涤 2 次、用硫酸镁干燥、蒸发后,加入甲醇 52ml,搅拌约 2 小时后,进行过滤。进行真空干燥后,得到 1-(4-联苯基)-7-叔丁基芘 8.65g。

[0149] 接着,在 1-(4-联苯基)-7-叔丁基芘 8.65g、四氢呋喃 126ml 的混合溶液中,在氮气流下加入 N-溴代琥珀酰亚胺 4.1g。在 30°C 将该混合溶液搅拌约 3 小时后,进行浓缩,加入甲醇 126ml,搅拌约 1 小时后,进行过滤。在得到的固体中加入四氢呋喃 30ml,加热溶解后,加入甲醇 180ml,搅拌约 1 小时后,进行过滤。利用硅胶柱色谱法进行精制后,进行蒸发,将由此得到的固体用甲醇 126ml 洗涤,进行真空干燥后,得到 1-溴-3-(4-联苯基)-7-叔丁基芘 8.8g。

[0150] 接着,将 1-溴-3-(4-联苯基)-7-叔丁基芘 4.33g、4-(2-吡啶基苯基)硼酸频那醇酯 2.76g、双(二亚苄基丙酮)钼 0.035g、1.5M-碳酸钠水溶液 60ml 和 1,2-二甲氧基乙烷 44ml 的混合溶液在氮气流下、回流下加热搅拌约 6 小时。冷却至室温后,注入水 120ml,用甲苯 140ml 进行萃取。将有机层用氯化钠水溶液 120ml 洗涤 2 次、用硫酸镁干燥、蒸发后,利用硅胶柱色谱法进行精制。进行蒸发,使由此得到的淡黄色固体加热溶解于甲苯 30ml 中后,加入己烷 150ml,搅拌约 2 小时后,进行过滤。将得到的固体进行真空干燥后,得到白色结晶 3.55g。

[0151] 得到的粉末的 $^1\text{H-NMR}$ 分析结果如下所示,可确认上述得到的白色结晶为化合物 [63]。

[0152] $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3(\text{d} = \text{ppm}))$: 1.60 (9H, s), 7.22–7.31 (1H, m), 7.36–7.44 (1H, m), 7.51 (2H, t, $J = 6.7\text{Hz}$), 7.70–7.90 (10H, m), 8.04 (2H, t, $J = 2.4\text{Hz}$), 8.07 (1H, d, $J = 2.2\text{Hz}$), 8.16–8.30 (6H, m), 8.76 (1H, d, $J = 4.9\text{Hz}$)。

[0153] 另外,该化合物 [63],在用油扩散泵在 $1 \times 10^{-3}\text{Pa}$ 的压力下、约 260°C 下进行升华精制后用作发光元件材料。HPLC 纯度 (测定波长 254nm 中的面积%), 升华精制前为 99.8%, 升华精制后为 99.9%。

[0154] 合成例 6

[0155] 化合物 [106] 的合成

[0156] 将 1,3-二溴-7-叔丁基芘 15.0g、4-(2-吡啶基苯基)硼酸频那醇酯 22.3g、双(三

苯基膦) 二氯化钯 0.25g、1.5M- 碳酸钠水溶液 107ml 和 1,2- 二甲氧基乙烷 180ml 的混合溶液在氮气流下、回流下加热搅拌约 6 小时。冷却至室温后,注入水 151ml,用甲苯 204ml 进行萃取。将有机层用水洗涤 3 次、用硫酸镁干燥、蒸发后,加入甲苯 30ml、己烷 120ml,搅拌约 2 小时后,进行过滤。利用硅胶柱色谱法进行精制后,进行蒸发,使由此得到的淡黄色固体溶解于甲苯 57ml 中,加入甲醇 171ml,搅拌约 2 小时后,进行过滤。将得到的固体进行真空干燥后,得到白色结晶 18.25g。

[0157] 得到的粉末的 $^1\text{H-NMR}$ 分析结果如下所示,可确认上述得到的白色结晶为化合物 [106]。

[0158] $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3(\text{d} = \text{ppm}))$: 1.59 (9H, s), 7.17–7.31 (2H, m), 7.68–7.89 (8H, m), 8.05 (2H, d, $J = 9.2\text{Hz}$), 8.05 (1H, s), 8.13–8.28 (8H, m), 8.76 (2H, d, $J = 5.1\text{Hz}$)。

[0159] 另外,该化合物 [106],在用油扩散泵在 $1 \times 10^{-3}\text{Pa}$ 的压力下、约 290°C 下进行升华精制后用作发光元件材料。HPLC 纯度(测定波长 254nm 中的面积%),升华精制前为 99.8%,升华精制后为 99.9%。

[0160] 合成例 7

[0161] 化合物 [144] 的合成

[0162] 将 1,3- 二溴 -7- 叔丁基芘 2.0g、4-(2- 喹啉基苯基) 硼酸频那醇酯 3.5g、双(三苯基膦) 二氯化钯 34mg、2M 碳酸钠水溶液 11mL 和 1,2- 二甲氧基乙烷 24mL 的混合溶液在氮气流下、回流下加热搅拌 5 小时。冷却至室温后,注入水 50mL,在室温下搅拌 1 小时。对析出的固体进行过滤,用甲醇 70mL 洗涤。利用硅胶色谱法对得到的固体进行精制后,用甲苯 30mL 进行重结晶,进行过滤。将得到的固体进行真空干燥后,得到淡黄色粉末 2.2g。

[0163] 得到的粉末的 $^1\text{H-NMR}$ 分析结果如下所示,可确认上述得到的淡黄色粉末为化合物 [144]。

[0164] $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3(\text{d} = \text{ppm}))$: 1.60 (9H, s), 7.57 (2H, t, $J = 6.8\text{Hz}$), 7.77 (2H, dt, $J = 1.4\text{Hz}, 8.4\text{Hz}$), 7.88 (6H, d, $J = 8.4\text{Hz}$), 7.99–8.11 (5H, m), 8.21–8.33 (7H, m), 8.25 (1H, s), 8.39 (4H, d, $J = 8.4\text{Hz}$)。

[0165] 另外,该化合物 [144],在用油扩散泵在 $1 \times 10^{-3}\text{Pa}$ 的压力下、 320°C 下进行升华精制后用作发光元件材料。HPLC 纯度(测定波长 254nm 中的面积%),升华精制前为 99.8%,升华精制后为 99.9%。

[0166] 合成例 8

[0167] 化合物 [93] 的合成

[0168] 除了使用 9,9- 二甲基芴 -2- 基硼酸代替 4- 联苯基硼酸以外,用与合成例 4 同样的方法进行合成,得到淡黄色结晶。得到的粉末的 $^1\text{H-NMR}$ 分析结果如下所示,可确认上述得到的淡黄色结晶为化合物 [93]。

[0169] $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3(\text{d} = \text{ppm}))$: 1.58 (3H, s), 1.59 (3H, s), 1.60 (9H, s), 7.35–7.51 (4H, m), 7.66 (1H, dd, $J = 1.6\text{Hz}, 7.8\text{Hz}$), 7.73–7.92 (7H, m), 7.98–8.08 (4H, m), 8.20–8.30 (4H, m), 8.65 (1H, dd, $J = 1.6\text{Hz}, 4.9\text{Hz}$), 9.00 (1H, d, $J = 1.9\text{Hz}$)。

[0170] 另外,该化合物 [93],在用油扩散泵在 $1 \times 10^{-3}\text{Pa}$ 的压力下、约 260°C 下进行升华精制后用作发光元件材料。HPLC 纯度(测定波长 254nm 中的面积%),升华精制前为 99.5%,升华精制后为 99.7%。

[0171] 合成例 9**[0172] 化合物 [67] 的合成**

[0173] 将 1-溴-7-叔丁基-3-(4-氯苯基)芘 10.0g、9,9-二甲基芴-2-基硼酸 5.86g、双(三苯基膦)二氯化钯 0.016g、1.5M-碳酸钠水溶液 33ml 和 1,2-二甲氧基乙烷 112ml 的混合溶液在氮气流下、回流下加热搅拌 3 小时。冷却至室温后,注入水 223ml,用甲苯 236ml 进行萃取。将有机层用氯化钠水溶液 640ml 洗涤 2 次、用硫酸镁干燥、蒸发后,加入 2-丙醇 50ml,搅拌 2 小时后,进行过滤。进行真空干燥后,得到 1-(4-氯苯基)-3-(9,9-二甲基芴-2-基)-7-叔丁基芘 9.5g。

[0174] 接着,将 1-(4-氯苯基)-3-(9,9-二甲基芴-2-基)-7-叔丁基芘 4g、双(频那醇合)二硼 1.81g、乙酸钾 1.2g、双(二亚苄基丙酮)钯 72mg、S-Phos 225mg 和 1,4-二噁烷 24ml 的混合溶液在氮气流下、回流下加热搅拌 4 小时。冷却至室温后,加入溶解于 1,4-二噁烷 6ml 中的 2-溴吡啶 932mg、5M 磷酸三钾水溶液 6ml,在氮气流下、回流下加热搅拌 4 小时。冷却至室温后,注入水 30ml,用甲苯 100ml 进行萃取。将有机层用氯化钠水溶液 30ml 洗涤 2 次、用硫酸镁干燥、蒸发后,利用硅胶柱色谱法进行精制。进行蒸发,将由此得到的固体进行真空干燥后,得到淡黄色结晶 1.1g。

[0175] 得到的粉末的 $^1\text{H-NMR}$ 分析结果如下所示,可确认上述得到的淡黄色结晶为化合物 [67]。

[0176] $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3(\text{d} = \text{ppm}))$: 1.58 (6H, s), 1.60 (9H, s), 7.26-7.31 (1H, m), 7.31-7.43 (2H, m), 7.46-7.51 (1H, m), 7.67 (1H, dd, $J = 1.4\text{Hz}, 7.6\text{Hz}$), 7.72-7.92 (7H, m), 8.01-8.08 (3H, m), 8.17-8.30 (6H, m), 8.76 (1H, d, $J = 4.6\text{Hz}$)。

[0177] 另外,该化合物 [67],在用油扩散泵在 $1 \times 10^{-3}\text{Pa}$ 的压力下、约 260°C 下进行升华精制后用作发光元件材料。HPLC 纯度(测定波长 254nm 中的面积%),升华精制前为 99.4%,升华精制后为 99.8%。

[0178] 合成例 10**[0179] 化合物 [86] 的合成**

[0180] 除了使用 3-喹啉硼酸代替 3-吡啶硼酸以外,用与合成例 4 同样的方法进行合成,得到淡黄白色结晶。得到的粉末的 $^1\text{H-NMR}$ 分析结果如下所示,可确认上述得到的淡黄白色结晶为化合物 [86]。

[0181] $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3(\text{d} = \text{ppm}))$: 1.60 (9H, s), 7.38-7.72 (1H, m), 7.51 (2H, t, $J = 6.2\text{Hz}$), 7.61 (1H, t, $J = 8.4\text{Hz}$), 7.69-7.90 (7H, m), 7.91-7.96 (4H, m), 8.02-8.09 (4H, m), 8.18 (1H, d, $J = 8.6\text{Hz}$), 8.21-8.32 (4H, m), 8.44 (1H, d, $J = 1.6\text{Hz}$), 9.33 (1H, d, $J = 2.2\text{Hz}$)。

[0182] 另外,该化合物 [86],在用油扩散泵在 $1 \times 10^{-3}\text{Pa}$ 的压力下、约 300°C 下进行升华精制后用作发光元件材料。HPLC 纯度(测定波长 254nm 中的面积%),升华精制前为 99.6%,升华精制后为 99.7%。

[0183] 合成例 11**[0184] 化合物 [120] 的合成**

[0185] 除了使用 3-喹啉硼酸代替 3-吡啶硼酸以外,用与合成例 2 同样的方法进行合成,得到白色结晶。得到的粉末的 $^1\text{H-NMR}$ 分析结果如下所示,可确认上述得到的白色结晶为化合物 [120]。

[0186] $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3(\text{d} = \text{ppm}))$: 1.60 (9H, s), 7.61 (2H, dt, $J = 0.8\text{Hz}, 7.0\text{Hz}$), 7.75 (2H, t, $J = 6.8\text{Hz}$), 7.82–7.96 (10H, m), 8.07 (1H, s), 8.08 (2H, d, $J = 9.5\text{Hz}$), 8.19 (2H, d, $J = 7.8\text{Hz}$), 8.22–8.30 (4H, m), 8.44 (2H, d, $J = 4.9\text{Hz}$), 9.33 (2H, d, $J = 2.4\text{Hz}$)。

[0187] 另外, 该化合物 [120], 在用油扩散泵在 $1 \times 10^{-3}\text{Pa}$ 的压力下、约 340°C 下进行升华精制后用作发光元件材料。HPLC 纯度 (测定波长 254nm 中的面积%), 升华精制前为 99.7%, 升华精制后为 99.8%。

[0188] 合成例 12

[0189] 化合物 [177] 的合成

[0190] 除了使用 3-(2-吡啶基苯基) 硼酸频那醇酯代替 4-(2-吡啶基苯基) 硼酸频那醇酯以外, 用与合成例 6 同样的方法进行合成, 得到淡黄白色结晶。得到的粉末的 $^1\text{H-NMR}$ 分析结果如下所示, 可确认上述得到的淡黄白色结晶为化合物 [177]。

[0191] $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3(\text{d} = \text{ppm}))$: 1.59 (9H, s), 7.21–7.28 (2H, m), 7.63–7.85 (8H, m), 8.07 (4H, dd, $J = 9.5\text{Hz}, 18.6\text{Hz}$), 8.12 (1H, dt, $J = 1.6\text{Hz}, 7.6\text{Hz}$), 8.20–8.30 (6H, m), 8.71 (2H, d, $J = 4.9\text{Hz}$)。

[0192] 另外, 该化合物 [177], 在用油扩散泵在 $1 \times 10^{-3}\text{Pa}$ 的压力下、约 240°C 下进行升华精制后用作发光元件材料。HPLC 纯度 (测定波长 254nm 中的面积%), 升华精制前为 99.7%, 升华精制后为 99.9%。

[0193] 合成例 13

[0194] 化合物 [111] 的合成

[0195] 将 1-(4-(2-吡啶基) 苯基)-3-(4-氯苯基)-7-叔丁基芘 3.0g、4-(2-吡啶基苯基) 硼酸频那醇酯 1.78g、双(二亚苄基丙酮) 钼 66mg、三环己基膦·四氟硼酸酯 50mg、1.27M-磷酸三钾水溶液 7.6ml 和 1,4-二噁烷 20ml 的混合溶液在氮气流下、回流下加热搅拌 3 小时。冷却至室温后, 注入甲醇 40ml, 进行过滤。将得到的固体用甲苯 40ml 进行重结晶, 进行过滤, 将由此得到的固体进行真空干燥后, 得到淡黄白色结晶 3.2g。

[0196] 得到的粉末的 $^1\text{H-NMR}$ 分析结果如下所示, 可确认上述得到的淡黄白色结晶为化合物 [111]。

[0197] $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3(\text{d} = \text{ppm}))$: 1.60 (9H, s), 7.22–7.31 (2H, m), 7.73–7.92 (12H, m), 8.02–8.10 (3H, m), 8.11–8.30 (8H, m), 8.75 (2H, t, $J = 5.9\text{Hz}$)。

[0198] 另外, 该化合物 [111], 在用油扩散泵在 $1 \times 10^{-3}\text{Pa}$ 的压力下、约 300°C 下进行升华精制后用作发光元件材料。HPLC 纯度 (测定波长 254nm 中的面积%), 升华精制前为 99.4%, 升华精制后为 99.9%。

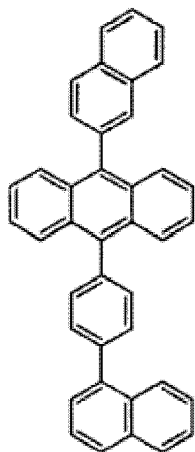
[0199] 实施例 1

[0200] 将沉积有 150nmITO 透明导电膜的玻璃基板 (GEOMATEC 株式会社制、 $11\Omega/\square$ 、溅射品) 裁切成 $38 \times 46\text{mm}$ 并进行蚀刻。对于得到的基板, 用“Semicoclean 56”(商品名、FURUCHI 化学株式会社制) 进行超声波洗涤 15 分钟后, 用超纯水进行洗涤。对于该基板, 在制作元件之前进行 UV-臭氧处理 1 小时, 设置在真空蒸镀装置内, 抽气至装置内的真空度达到 $5 \times 10^{-4}\text{Pa}$ 以下。利用电阻加热法, 首先蒸镀作为空穴注入材料的铜酞菁 10nm、作为空穴传输材料的 4,4'-双(N-(1-萘基)-N-苯基氨基) 联苯 50nm。接着, 在发光材料上, 以 40nm 的厚度、以使掺杂浓度为 5 重量% 的方式蒸镀作为主体材料的化合物 (H-1)、作为掺杂

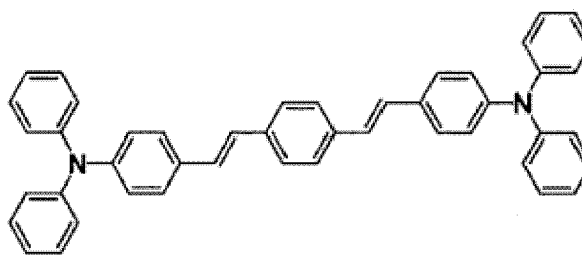
材料的化合物 (D-1)。接着,将混合化合物 [1] 和给体化合物 (氟化锂) 而成的层作为电子传输层、以蒸镀速度比 1 : 1 ($= 0.05\text{nm/s} : 0.05\text{nm/s}$), 蒸镀、层叠到 20nm 的厚度。

[0201] 接着,蒸镀氟化锂 0.5nm 后、蒸镀铝 1000nm 作成阴极,制成 $5 \times 5\text{mm}$ 见方的元件。这里所说的膜厚为水晶振动式膜厚监控器显示值。以 $10\text{mA}/\text{cm}^2$ 直流驱动该发光元件,结果可得到驱动电压 4.8V、外部量子效率 5.0% 的高效率蓝色发光。

[0202]



(H-1)

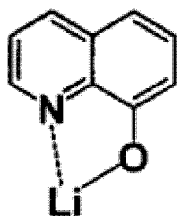


(D-1)

[0203] 实施例 2 ~ 9

[0204] 使用表 1 记载的材料作为主体材料、掺杂材料、电子传输层,除此以外,与实施例 1 同样操作制成发光元件。结果示于表 1 中。另外,表 1 中,2E-1 为下述所示的化合物。

[0205]

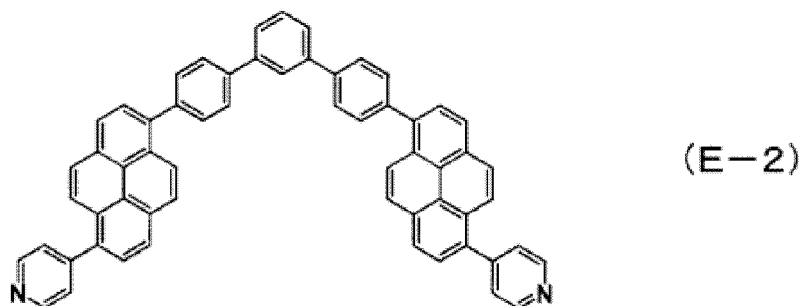
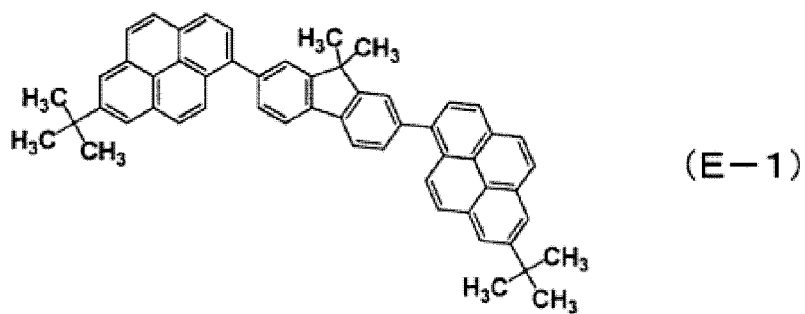


(2E-1)

[0206] 比较例 1 ~ 6

[0207] 使用表 1 记载的材料作为主体材料、掺杂材料、电子传输材料,除此以外,与实施例 1 同样操作制成发光元件。结果示于表 1 中。另外,表 1 中,E-1、E-2 为下述所示的化合物。

[0208]



[0209] [表 1]

[0210]

	发光材料			电子传输层		阴极	外部量子效率	驱动电压
	主体材料	掺杂材料	发光色	化合物	给体化合物	金属	(%)	(V)
实施例 1	H-1	D-1	蓝色	化合物[1]	氟化锂	Al	5.0	4.8
实施例 2			蓝色	化合物[1]	无	Al	4.2	4.9
实施例 3			蓝色	化合物[53]	氟化锂	Al	5.0	4.9
实施例 4			蓝色	化合物[53]	无	Al	4.1	5.0
实施例 5			蓝色	化合物[56]	氟化锂	Al	5.5	4.4
实施例 6			蓝色	化合物[56]	无	Al	5.0	4.7
实施例 7			蓝色	化合物[1]	2E-1	Al	5.7	4.2
实施例 8			蓝色	化合物[53]	2E-1	Al	5.6	4.3
实施例 9			蓝色	化合物[56]	2E-1	Al	5.9	4.0
比较例 1			蓝色	E-1	氟化锂	Al	3.2	6.4
比较例 2			蓝色	E-1	2E-1	Al	3.4	6.2

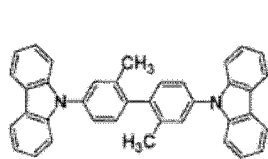
[0211]

比较例 3			蓝色	E-1	无	Al	2.5	7.8
比较例 4			蓝色	E-2	氟化锂	Al	3.8	5.6
比较例 5			蓝色	E-2	2E-1	Al	3.9	5.5
比较例 6			蓝色	E-2	无	Al	3.0	5.8

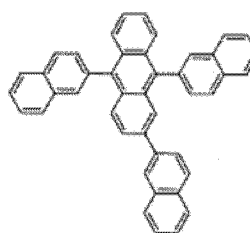
[0212] 实施例 10 ~ 20

[0213] 使用表 2 记载的材料作为主体材料、掺杂材料、电子传输层,除此以外,与实施例 1 同样操作制成发光元件。结果示于表 2 中。另外,表 2 中, H-2 ~ H-8、D-2 ~ D-10 为下述所示的化合物。

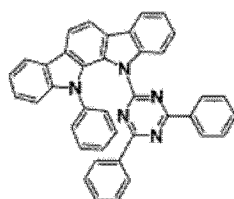
[0214]



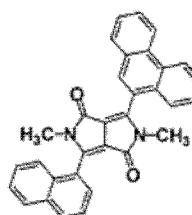
(H-2)



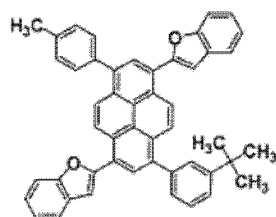
(H-3)



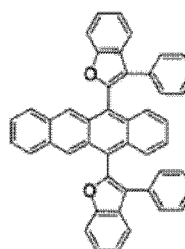
(H-4)



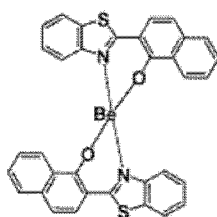
(H-5)



(H-6)

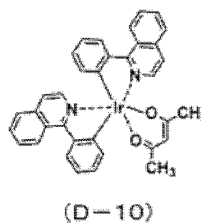
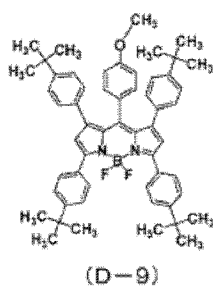
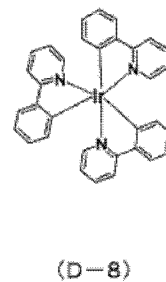
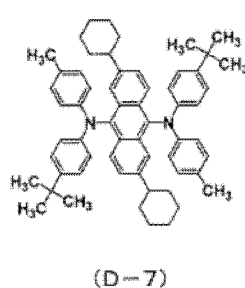
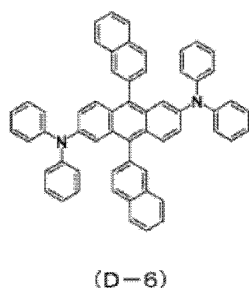
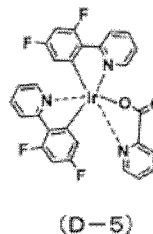
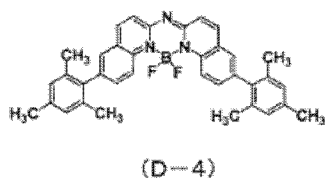
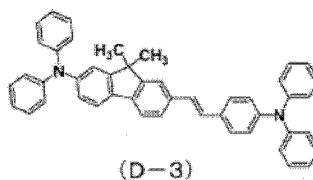
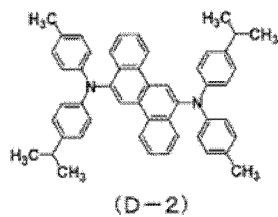


(H-7)



(H-8)

[0215]



[0216] [表 2]

[0217]

	发光材料			电子传输层		阴极	外部量子效率 (%)	驱动电压 (V)
	主体材料	掺杂材料	发光色	化合物	给体化合物	金属		
实施例 10	H-1	D-2	蓝色	化合物[1]	2E-1	Al	5.9	4.2
实施例 11		D-3	蓝色			Al	5.8	4.1
实施例 12		D-4	蓝色			Al	5.7	4.2
实施例 13	H-2	D-5	蓝色			Al	7.2	4.9
实施例 14	H-3	D-6	绿色	化合物[1]	2E-1	Al	7.3	4.5

[0218]

实施例 15		D-7	绿色			Al	7.2	4.5
实施例 16	H-4	D-8	绿色			Al	11.3	5.0
实施例 17	H-5	D-9	红色	化合物[1]	2E-1	Al	5.0	4.6
实施例 18	H-6		红色			Al	6.2	4.5
实施例 19	H-7		红色			Al	6.0	4.5
实施例 20	H-8	D-10	红色			Al	10.1	5.1

[0219] 实施例 21

[0220] 将沉积有 165nm ITO 透明导电膜的玻璃基板 (GEOMATEC 株式会社制、 $11\ \Omega/\square$ 、溅射品) 裁切成 $38\times 46\text{mm}$ 并进行蚀刻。对于得到的基板, 用 “Semicoclean 56” (商品名、FURUCHI 化学株式会社制) 进行超声波洗涤 15 分钟后, 用超纯水进行洗涤。对于该基板, 在制作元件之前进行 UV- 臭氧处理 1 小时, 设置在真空蒸镀装置内, 抽气至装置内的真空度达到 $5\times 10^{-4}\text{Pa}$ 以下。利用电阻加热法, 首先蒸镀作为空穴注入材料的 1,4,5,8,9,12- 六氮杂苯并菲六甲腈 10nm、作为空穴传输材料的 4,4'- 双 (N-(1- 萘基)-N- 苯基氨基) 联苯 50nm。接着, 在发光材料上, 以 40nm 的厚度、以使掺杂浓度为 5 重量% 的方式蒸镀作为主体材料的化合物 (H-1)、作为掺杂材料的化合物 (D-2)。接着, 以 10nm 的厚度层叠以蒸镀速度比 1 : 1 ($= 0.05\text{nm/s} : 0.05\text{nm/s}$) 混合化合物 [1] 和给体化合物 (2E-1 : 羟基喹啉锂) 而成的层作为电子传输层。

[0221] 接着, 蒸镀羟基喹啉锂 1nm 后、以蒸镀速度比为镁 : 银 $= 10 : 1$ ($= 0.5\text{nm/s} : 0.05\text{nm/s}$) 蒸镀镁和银的共蒸镀膜 100nm 作成阴极, 制成 $5\times 5\text{mm}$ 见方的元件。这里所说的膜厚为水晶振动式膜厚监控器显示值。以 $10\text{mA}/\text{cm}^2$ 直流驱动该发光元件, 结果可得到驱动电压 3.9V、外部量子效率 6.2% 的高效率蓝色发光。

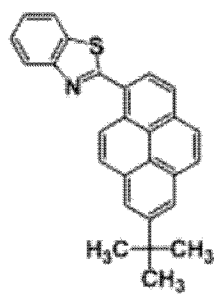
[0222] 实施例 22 ~ 23

[0223] 使用表 3 记载的材料作为主体材料、掺杂材料、电子传输层, 除此以外, 与实施例 21 同样操作制成发光元件。结果示于表 3 中。

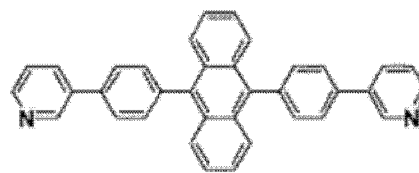
[0224] 比较例 7 ~ 12

[0225] 使用表 3 记载的材料作为电子传输层, 除此以外, 与实施例 21 同样操作制成发光元件。结果示于表 3 中。另外, 表 3 中, E-3 ~ E-8 为下述所示的化合物。

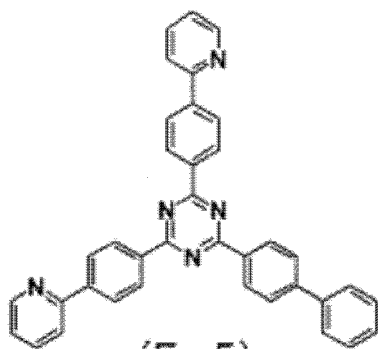
[0226]



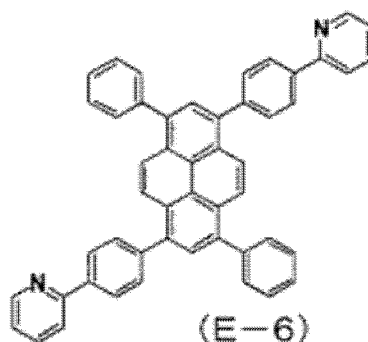
(E-3)



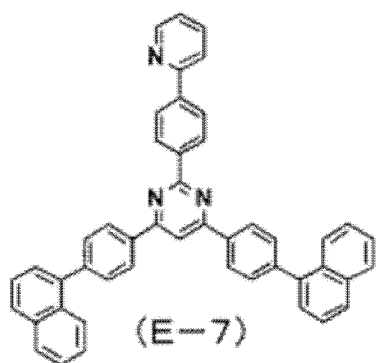
(E-4)



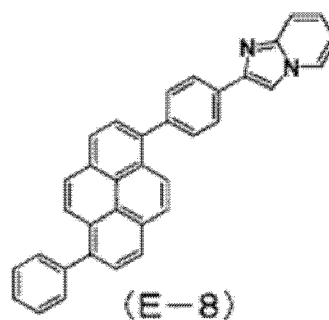
(E-5)



(E-6)



(E-7)



(E-8)

[0227] [表 3]

[0228]

	发光材料			电子传输层		阴极	外部量子效率 (%)	驱动电压 (V)
	主体材料	掺杂材料	发光色	化合物	给体化合物	金属		
实施例 21	H-1	D-2	蓝色	化合物[1]	2E-1	Mg/Ag	6.2	3.9
实施例 22			蓝色	化合物[53]	2E-1	Mg/Ag	6.1	4.0
实施例 23			蓝色	化合物[56]	2E-1	Mg/Ag	6.4	3.7
比较例 7			蓝色	E-3	2E-1	Mg/Ag	3.9	4.6
比较例 8			蓝色	E-4	2E-1	Mg/Ag	4.9	4.5
比较例 9			蓝色	E-5	2E-1	Mg/Ag	4.8	4.8
比较例 10			蓝色	E-6	2E-1	Mg/Ag	5.1	4.7
比较例 11			蓝色	E-7	2E-1	Mg/Ag	4.6	4.7
比较例 12			蓝色	E-8	2E-1	Mg/Ag	5.2	4.6

[0229] 实施例 24

[0230] 使用化合物 [1] 作为主体材料、使用三 (8- 羟基喹啉) 铝 (III) 作为电子传输层, 除此以外, 与实施例 1 同样操作制成发光元件。以 $10\text{mA}/\text{cm}^2$ 直流驱动该发光元件, 结果可得到驱动电压 5.0V、外部量子效率 4.8% 的高效率蓝色发光。

[0231] 实施例 25

[0232] 使用化合物 [91] 作为主体材料, 除此以外, 与实施例 24 同样操作制成发光元件。以 $10\text{mA}/\text{cm}^2$ 直流驱动该发光元件, 结果可得到驱动电压 4.9V、外部量子效率 4.9% 的高效率蓝色发光。

[0233] 实施例 26

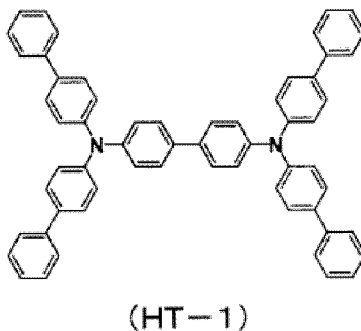
[0234] 使用化合物 [106] 作为主体材料, 除此以外, 与实施例 24 同样操作制成发光元件。以 $10\text{mA}/\text{cm}^2$ 直流驱动该发光元件, 结果可得到驱动电压 5.1V、外部量子效率 4.6% 的高效率蓝色发光。

[0235] 实施例 27

[0236] 将沉积有 165nm ITO 透明导电膜的玻璃基板 (GEOMATEC 株式会社制、 $11\Omega/\square$ 、溅射品) 裁切成 $38\times 46\text{mm}$ 并进行蚀刻。对于得到的基板, 用 “Semicoclean 56” (商品名、FURUCHI 化学株式会社制) 进行超声波洗涤 15 分钟后, 用超纯水进行洗涤。对于该基板, 在制作元件之前进行 UV- 臭氧处理 1 小时, 设置在真空蒸镀装置内, 抽气至装置内的真空度达

到 5×10^{-4} Pa 以下。利用电阻加热法,首先蒸镀作为空穴注入材料的铜酞菁 10nm、作为空穴传输材料的化合物 (HT-1) 50nm。接着,在发光材料上,以 40nm 的厚度、以使掺杂浓度为 5 重量%的方式蒸镀作为主体材料的化合物 (H-1)、作为掺杂材料的化合物 (D-1)。接着,蒸镀化合物 [10] 20nm 作为电子传输层。接着,蒸镀氟化锂 0.5nm 后、蒸镀铝 1000nm 作成阴极,制成 5×5 mm 见方的元件。这里所说的膜厚为水晶振动式膜厚监控器显示值。以 10 mA/cm^2 直流驱动该发光元件,结果可得到驱动电压 4.9V、外部量子效率 4.6% 的高效率蓝色发光。

[0237]



[0238] 实施例 28 ~ 35

[0239] 使用表 4 记载的材料作为电子传输层,除此以外,与实施例 27 同样操作制成发光元件。结果示于表 4 中。

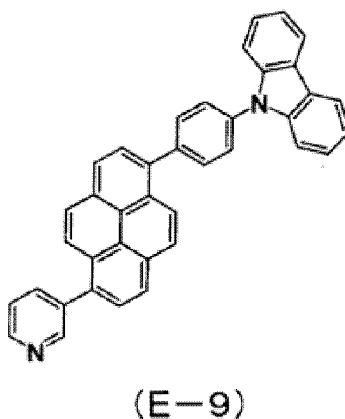
[0240] 实施例 36

[0241] 以混合化合物 [10] 和化合物 [106] 而成的层为电子传输层、以蒸镀速度比 1 : 1 (= 0.05nm/s : 0.05nm/s)、20nm 的厚度进行蒸镀、层叠。除此以外,与实施例 27 同样操作制成发光元件。结果示于表 4 中。

[0242] 实施例 37

[0243] 以混合化合物 [10] 和化合物 [E-9] 而成的层为电子传输层、以蒸镀速度比 1 : 1 (= 0.05nm/s : 0.05nm/s)、20nm 的厚度进行蒸镀、层叠。除此以外,与实施例 36 同样操作制成发光元件。结果示于表 4 中。另外,表 4 中的 E-9 为下述所示的化合物。

[0244]



[0245] 比较例 13 ~ 14

[0246] 使用表 4 记载的材料作为电子传输层,除此以外,与实施例 27 同样操作制成发光元件。结果示于表 4 中。

[0247] [表 4]

[0248]

	发光材料			电子传输层		阴极	外部量子效率 (%)	驱动电压 (V)
	主体材料	掺杂材料	发光色	化合物	给体化合物	金属		
实施例 27	H-1	D-1	蓝色	化合物[10]	无	Al	4.6	4.9
实施例 28			蓝色	化合物[107]	无	Al	4.8	4.8
实施例 29			蓝色	化合物[91]	无	Al	4.6	4.9
实施例 30			蓝色	化合物[63]	无	Al	4.5	5.0
实施例 31			蓝色	化合物[106]	无	Al	4.7	4.8
实施例 32			蓝色	化合物[144]	无	Al	4.6	5.0
实施例 33			蓝色	化合物[1]	无	Al	4.2	5.1
实施例 34			蓝色	化合物[26]	无	Al	4.0	5.2
实施例 35			蓝色	化合物[32]	无	Al	4.0	5.1
实施例 36			蓝色	化合物[10]	化合物[106]	Al	4.5	5.1
实施例 37			蓝色	化合物[10]		Al	4.6	5.0
比较例 13			蓝色	E-1	无	Al	2.5	7.7
比较例 14			蓝色	E-2	无	Al	3.0	5.7

[0249] 实施例 38

[0250] 以混合化合物 [10] 和给体化合物 (氟化锂) 而成的层为电子传输层、以蒸镀速度比 1 : 1 (= 0.05nm/s : 0.05nm/s)、20nm 的厚度进行蒸镀、层叠。除此以外,与实施例 27 同样操作制成发光元件。结果示于表 5 中。

[0251] 实施例 39 ~ 43

[0252] 使用表 5 记载的材料作为电子传输层,除此以外,与实施例 38 同样操作制成发光

元件。结果示于表 5 中。

[0253] 实施例 44

[0254] 以混合化合物 [10] 和给体化合物 (2E-1) 而成的层为电子传输层、以蒸镀速度比 1 : 1 ($= 0.05\text{nm/s} : 0.05\text{nm/s}$)、20nm 的厚度进行蒸镀、层叠。除此以外,与实施例 38 同样操作制成发光元件。结果示于表 5 中。

[0255] 实施例 45 ~ 49

[0256] 使用表 5 记载的材料作为电子传输层,除此以外,与实施例 44 同样操作制成发光元件。结果示于表 5 中。

[0257] 实施例 50

[0258] 以混合化合物 [10] 和给体化合物 (2E-1) 而成的层为电子传输层、以蒸镀速度比 7 : 3 ($= 0.07\text{nm/s} : 0.03\text{nm/s}$)、20nm 的厚度进行蒸镀、层叠。除此以外,与实施例 44 同样操作制成发光元件。结果示于表 5 中。

[0259] 实施例 51 ~ 55

[0260] 使用表 5 记载的材料作为电子传输层,除此以外,与实施例 50 同样操作制成发光元件。结果示于表 5 中。

[0261] 实施例 56

[0262] 以混合化合物 [10] 和给体化合物 (2E-1) 而成的层为电子传输层、以蒸镀速度比 3 : 7 ($= 0.03\text{nm/s} : 0.07\text{nm/s}$)、20nm 的厚度进行蒸镀、层叠。除此以外,与实施例 44 同样操作制成发光元件。结果示于表 5 中。

[0263] 实施例 57 ~ 61

[0264] 使用表 5 记载的材料作为电子传输层,除此以外,与实施例 56 同样操作制成发光元件。结果示于表 5 中。

[0265] [表 5]

[0266]

	发光材料			电子传输层			阴极	外部量	驱动
	主体材料	掺杂材料	发光色	化合物	给体化合物	混合比	金属	子效率 (%)	电压 (V)
实施例 38	H-1	D-1	蓝色	化合物[10]	氟化锂	1:1	Al	5.2	4.6
实施例 39			蓝色	化合物[107]				5.1	4.5
实施例 40			蓝色	化合物[91]				5.2	4.6
实施例 41			蓝色	化合物[63]				5.2	4.7
实施例 42			蓝色	化合物[106]				5.1	4.5
实施例 43			蓝色	化合物[144]				5.0	4.6
实施例 44	H-1	D-1	蓝色	化合物[10]	2E-1	1:1	Al	6.1	4.0
4.0 实施例 45			蓝色	化合物[107]				5.8	4.1

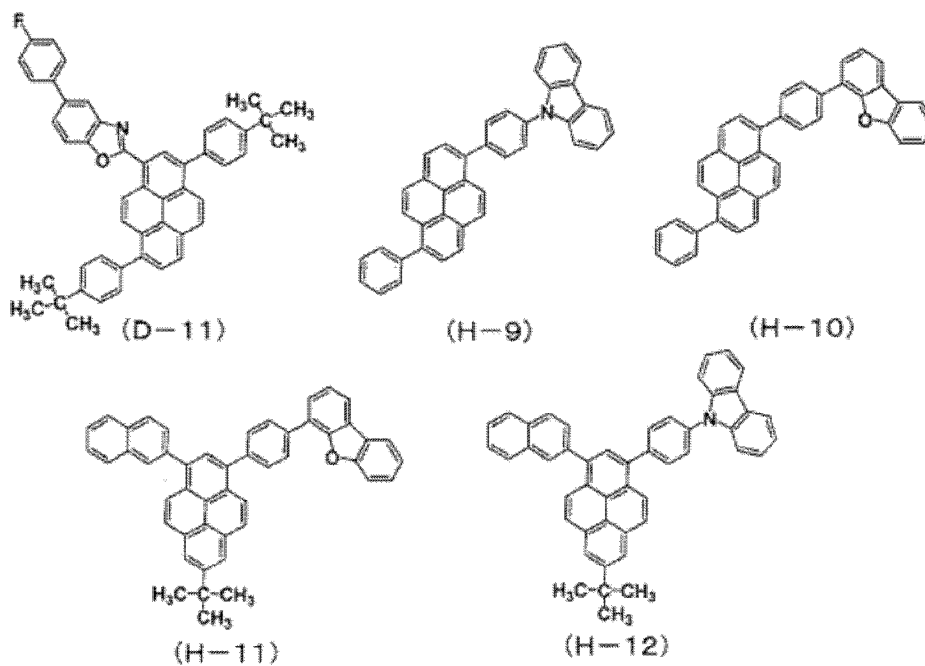
[0267]

实施例 46			蓝色	化合物[91]				6.0	4.0
实施例 47			蓝色	化合物[63]				5.8	4.1
实施例 48			蓝色	化合物[106]				5.9	4.0
实施例 49			蓝色	化合物[144]				5.7	4.1
实施例 50	H-1	D-1	蓝色	化合物[10]	2E-1	7:3	Al	5.7	4.1
实施例 51			蓝色	化合物[107]				5.8	4.1
实施例 52			蓝色	化合物[91]				5.9	4.1
实施例 53			蓝色	化合物[63]				5.8	4.1
实施例 54			蓝色	化合物[106]				6.0	3.9
实施例 55			蓝色	化合物[144]				5.7	4.2
实施例 56	H-1	D-1	蓝色	化合物[10]	2E-1	3:7	Al	6.0	4.1
实施例 57			蓝色	化合物[107]				6.0	4.0
实施例 58			蓝色	化合物[91]				5.9	4.0
实施例 59			蓝色	化合物[63]				6.0	4.1
实施例 60			蓝色	化合物[106]				6.2	3.8
实施例 61			蓝色	化合物[144]				5.9	4.0

[0268] 实施例 62 ~ 109

[0269] 使用表 6 记载的材料作为主体材料、掺杂材料,除此以外,与实施例 38 同样操作制成发光元件。结果示于表 6 中。另外,表 6 中,D-11、H-9 ~ H-12 为下述所示的化合物。

[0270]



[0271] [表 6]

	发光材料			电子传输层		阴极	外部量子效率	驱动电压
	主体材料	掺杂材料	发光色	化合物	给体化合物	金属	(%)	(V)
实施例 62	H-1	D-2	蓝色	化合物[107]	2E-1	Al	6.0	4.1
实施例 63		D-3	蓝色				5.9	4.0
实施例 64		D-4	蓝色				5.8	4.1
实施例 65		D-11	蓝色				6.0	4.1
实施例 66	H-9	D-3	蓝色				5.8	4.2
实施例 67	H-10		蓝色				5.9	4.2
实施例 68	H-11		蓝色				5.7	4.4
实施例 69	H-12		蓝色				5.8	4.3
实施例 70	H-2	D-5	蓝色				7.4	4.7
实施例 71	H-3	D-6	绿色				7.4	4.4
实施例 72		D-7	绿色				7.3	4.5
实施例 73	H-4	D-8	绿色				11.3	4.9

[0272]

[0273]

实施例 74	H-5	D-9	红色				5.2	4.5
实施例 75	H-6		红色				6.4	4.4
实施例 76	H-7		红色				6.1	4.5
实施例 77	H-8	D-10	红色				10.3	4.9
实施例 78	H-1	D-2	蓝色	化合物[91]	2E-1	Al	6.0	4.0
实施例 79		D-3	蓝色				6.0	3.9
实施例 80		D-4	蓝色				5.9	3.9
实施例 81		D-11	蓝色				5.9	4.2
实施例 82	H-9	D-3	蓝色				5.7	4.2
实施例 83	H-10		蓝色				5.8	4.2
实施例 84	H-11		蓝色				5.8	4.3
实施例 85	H-12		蓝色				5.7	4.2
实施例 86	H-2	D-5	蓝色				7.3	4.7
实施例 87	H-3	D-6	绿色				7.4	4.3
实施例 88		D-7	绿色				7.3	4.6
实施例 89	H-4	D-8	绿色				11.2	4.9
实施例 90	H-5	D-9	红色				5.3	4.6
实施例 91	H-6		红色				6.6	4.4
实施例 92	H-7		红色				6.2	4.5
实施例 93	H-8	D-10	红色				10.1	5.0
实施例 94	H-1	D-2	蓝色	化合物[106]	2E-1	Al	6.0	4.1
实施例 95		D-3	蓝色				5.9	4.0
实施例 96		D-4	蓝色				5.8	4.0
实施例 97		D-11	蓝色				6.1	4.0
实施例 98	H-9	D-3	蓝色				5.8	4.1
实施例 99	H-10		蓝色				5.8	4.3
实施例 100	H-11		蓝色				5.7	4.4

[0274]

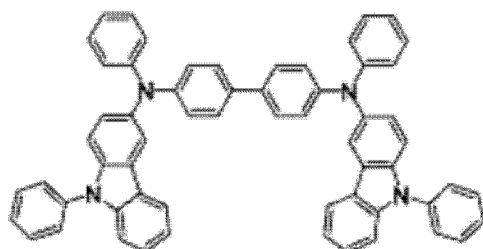
实施例 101	H-12		蓝色				5.8	4.2
实施例 102	H-2	D-5	蓝色				7.3	4.8
实施例 103	H-3	D-6	绿色				7.5	4.3
实施例 104		D-7	绿色				7.2	4.6
实施例 105	H-4	D-8	绿色				11.2	4.9
实施例 106	H-5	D-9	红色				5.3	4.5
实施例 107	H-6		红色				6.5	4.4
实施例 108	H-7		红色				6.2	4.4
实施例 109	H-8	D-10	红色				10.2	4.9

[0275] 实施例 110

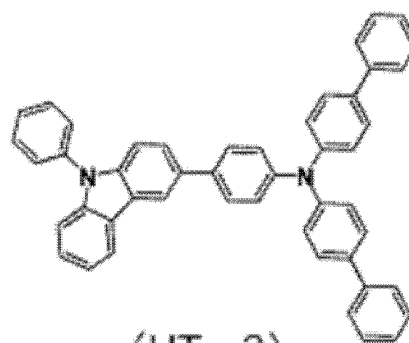
[0276] 将沉积有 165nm ITO 透明导电膜的玻璃基板 (GEOMATEC 株式会社制、 $11\Omega/\square$ 、溅射品) 裁切成 $38\times 46\text{mm}$ 并进行蚀刻。对于得到的基板, 用“Semicoclean 56”(商品名、FURUCHI 化学株式会社制) 进行超声波洗涤 15 分钟后, 用超纯水进行洗涤。对于该基板, 在制作元件之前进行 UV-臭氧处理 1 小时, 设置在真空蒸镀装置内, 抽气至装置内的真空度达到 $5\times 10^{-4}\text{Pa}$ 以下。利用电阻加热法, 首先作为空穴注入材料依次层叠化合物 (HT-2) 65nm、1,4,5,8,9,12-六氮杂苯并菲六甲腈 5nm。作为空穴传输材料蒸镀化合物 (HT-3) 60nm。接着, 在发光材料上, 以 20nm 的厚度、以使掺杂浓度为 5 重量%的方式蒸镀作为主体材料的化合物 (H-1)、作为掺杂材料的化合物 (D-3)。接着, 以 30nm 的厚度层叠以蒸镀速度比 1 : 1 ($= 0.05\text{nm/s} : 0.05\text{nm/s}$) 混合化合物 [10] 和给体化合物 (2E-1 : 羟基喹啉锂) 而成的层作为电子传输层。

[0277] 接着, 蒸镀羟基喹啉锂 5nm 后、以蒸镀速度比为镁 : 银 $= 10 : 1$ ($= 0.5\text{nm/s} : 0.05\text{nm/s}$) 蒸镀镁和银的共蒸镀膜 15nm 作成阴极, 制成 $5\times 5\text{mm}$ 见方的元件。这里所说的膜厚为水晶振动式膜厚监控器显示值。以 $10\text{mA}/\text{cm}^2$ 直流驱动该发光元件, 结果可得到驱动电压 3.8V、外部量子效率 6.3% 的高效率蓝色发光。

[0278]



(HT-2)



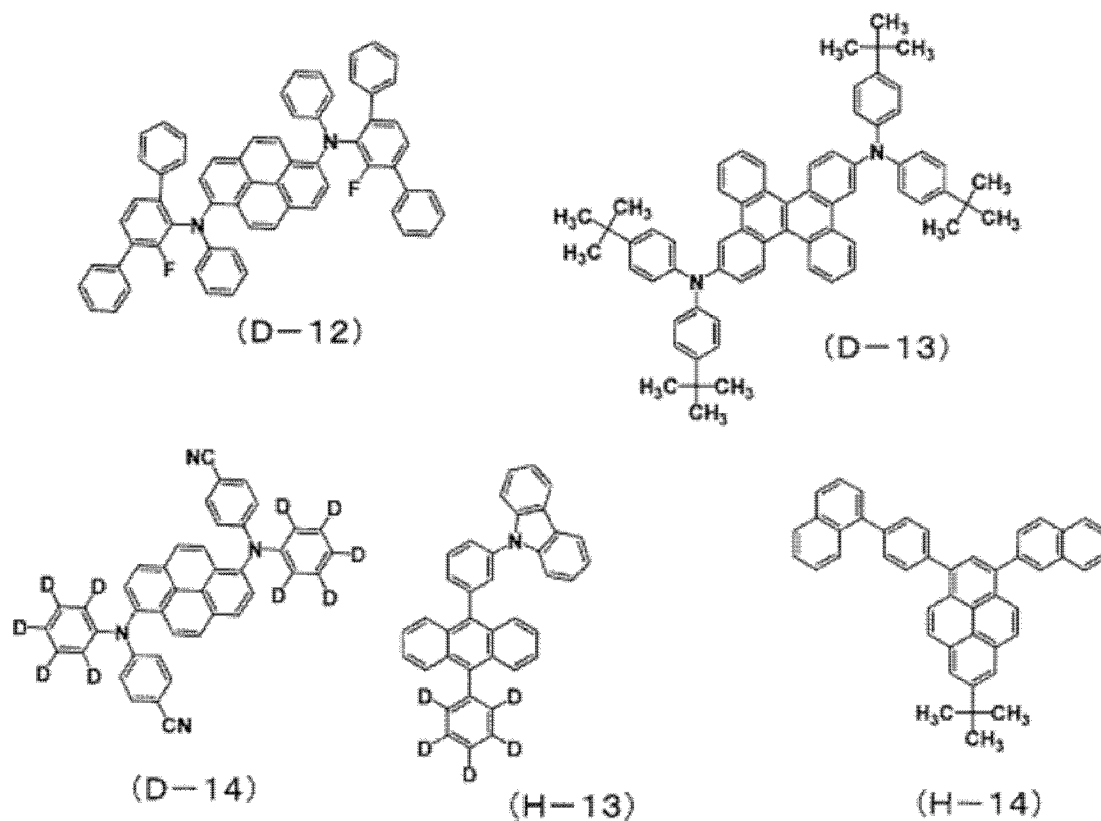
(HT-3)

[0279] 实施例 111 ~ 147

[0280] 使用表 7 ~ 8 记载的材料作为电子传输层, 除此以外, 与实施例 110 同样操作制成

发光元件。结果示于表 7 ~ 8 中。另外,表 7 ~ 8 中,D-12 ~ D-14、H-13 ~ H-14 为下述所示的化合物。

[0281]



[0282] [表 7]

[0283]

	发光材料			电子传输层		阴极	外部量子效率 (%)	驱动电压 (V)
	主体材料	掺杂材料	发光色	化合物	给体化合物	金属		
实施例 110	H-1	D-3	蓝色	化合物[10]	2E-1	Mg/Ag	6.3	3.8
实施例 111			蓝色	化合物[107]			6.4	3.8
实施例 112			蓝色	化合物[91]			6.5	3.7
实施例 113			蓝色	化合物[63]			6.2	3.9
实施例 114			蓝色	化合物[106]			6.3	3.7
实施例 115			蓝色	化合物[144]			6.2	3.7
实施例 116	H-1	D-12	蓝色	化合物[34]	2E-1	Mg/Ag	6.2	3.8
实施例 117			蓝色	化合物[36]			5.8	4.4
实施例 118			蓝色	化合物[46]			5.7	4.1
实施例 119			蓝色	化合物[47]			5.7	4.4
实施例 120			蓝色	化合物[49]			6.1	3.9
实施例 121			蓝色	化合物[60]			6.2	3.8
实施例 122			蓝色	化合物[65]			6.2	3.8
实施例 123			蓝色	化合物[67]			6.3	3.9
实施例 124			蓝色	化合物[86]			6.1	3.8
实施例 125			蓝色	化合物[93]			6.2	3.7
实施例 126			蓝色	化合物[111]			6.3	3.7
实施例 127			蓝色	化合物[120]			6.1	3.9
实施例 128			蓝色	化合物[177]			6.0	3.9

[0284] [表 8]

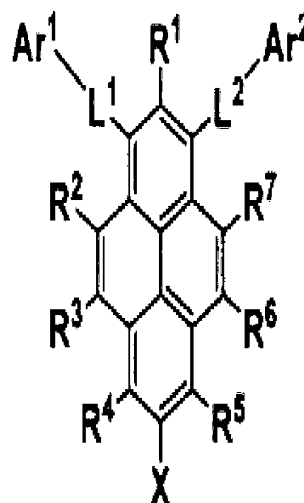
[0285]

	发光材料			电子传输层		阴极	外部量	驱动		
	主体材料	掺杂材料	发光色	化合物	给体化合物	金属	子效率 (%)	电压 (V)		
实施例 129	H-1	D-13	蓝色	化合物[66]	2E-1	Mg/Ag	6.1	3.8		
实施例 130			蓝色	化合物[81]			6.0	3.9		
实施例 131			蓝色	化合物[88]			6.2	3.7		
实施例 132			蓝色	化合物[96]			6.0	3.9		
实施例 133			蓝色	化合物[105]			6.0	3.8		
实施例 134			蓝色	化合物[168]			5.6	4.2		
实施例 135			蓝色	化合物[176]			6.3	3.7		
实施例 136	H-13			蓝色			化合物[76]		6.0	3.9
实施例 137				蓝色			化合物[82]		5.8	4.0
实施例 138				蓝色			化合物[85]		6.1	3.8
实施例 139				蓝色			化合物[90]		6.2	3.7
实施例 140				蓝色			化合物[94]		6.0	3.9
实施例 141	H-1	D-14	蓝色	化合物[112]	2E-1	Mg/Ag	6.2	3.7		
实施例 142			蓝色	化合物[116]			6.1	3.8		
实施例 143			蓝色	化合物[160]			5.9	3.9		
实施例 144			蓝色	化合物[164]			5.6	4.2		
实施例 145	H-14			蓝色			化合物[69]	6.2	3.8	
实施例 146				蓝色			化合物[97]	6.0	3.9	
实施例 147				蓝色			化合物[169]	5.7	4.2	

专利名称(译)	发光元件材料及发光元件		
公开(公告)号	CN102369614B	公开(公告)日	2013-06-19
申请号	CN201080015539.4	申请日	2010-03-25
[标]申请(专利权)人(译)	东丽株式会社		
申请(专利权)人(译)	东丽株式会社		
当前申请(专利权)人(译)	东丽株式会社		
[标]发明人	中野阳平 杉本和则 长尾和真 田中大作 富永刚		
发明人	中野阳平 杉本和则 长尾和真 田中大作 富永刚		
IPC分类号	H01L51/50 C09K11/06 H05B33/26		
CPC分类号	C09K2211/1011 H01L51/5012 C09B57/00 C09B57/001 H01L51/006 H01L51/0054 H01L51/5052 H01L51/0072 H01L51/0056 C09K11/06 H01L51/0058 Y10S428/917 Y10T428/265 Y10T428/31504		
代理人(译)	田欣 段承恩		
审查员(译)	徐颖		
优先权	2009081410 2009-03-30 JP 2009292004 2009-12-24 JP		
其他公开文献	CN102369614A		
外部链接	Espacenet SIPO		

摘要(译)

本发明提供一种有机电致发光元件，其通过在构成发光元件的层的任一层中、优选在发光层或电子传输层中包含具有特定蒽化合物的发光元件材料，可同时实现高发光效率和低驱动电压。



(1)