

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2005-200416

(P2005-200416A)

(43) 公開日 平成17年7月28日(2005.7.28)

(51) Int. Cl. ⁷	F I	テーマコード (参考)
C07F 15/00	C07F 15/00 CSPE	3K007
C07C 49/92	C07C 49/92	4C034
C07D 213/06	C07D 213/06	4C055
C07D 213/26	C07D 213/26	4H006
C07D 217/02	C07D 217/02	4H050

審査請求 有 請求項の数 7 O L (全 22 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2005-6635 (P2005-6635)
 (22) 出願日 平成17年1月13日 (2005. 1. 13)
 (31) 優先権主張番号 2004-002315
 (32) 優先日 平成16年1月13日 (2004. 1. 13)
 (33) 優先権主張国 韓国 (KR)
 (31) 優先権主張番号 2004-002316
 (32) 優先日 平成16年1月13日 (2004. 1. 13)
 (33) 優先権主張国 韓国 (KR)
 (31) 優先権主張番号 2004-002554
 (32) 優先日 平成16年1月14日 (2004. 1. 14)
 (33) 優先権主張国 韓国 (KR)
 (31) 優先権主張番号 2004-002555
 (32) 優先日 平成16年1月14日 (2004. 1. 14)
 (33) 優先権主張国 韓国 (KR)

(71) 出願人 596066770
 エルジー エレクトロニクス インコーポ
 レーテッド
 大韓民国 ソウル ヨンドンボク ヨード
 ードン 20
 (74) 代理人 100068618
 弁理士 萼 経夫
 (74) 代理人 100104145
 弁理士 宮崎 嘉夫
 (74) 代理人 100080908
 弁理士 館石 光雄
 (74) 代理人 100093193
 弁理士 中村 壽夫
 (74) 代理人 100104385
 弁理士 加藤 勉

最終頁に続く

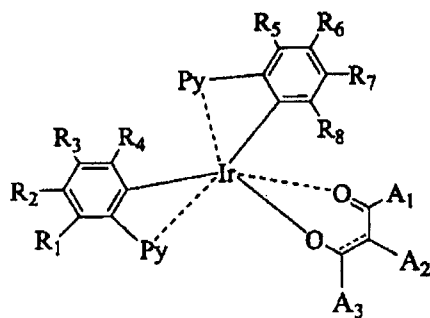
(54) 【発明の名称】 有機電界発光素子用フェニルピリジン-イリジウム金属錯体化合物、その製造方法及びこれを用いた有機電界発光素子

(57) 【要約】

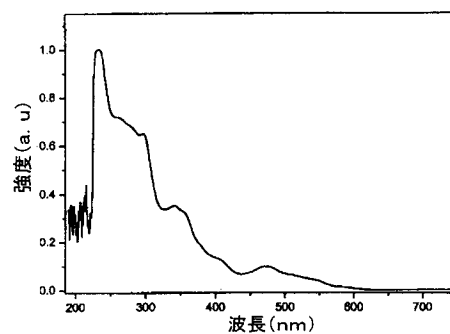
【課題】 有機電界発光素子用発光物質、詳しくは、下記一般式(1)で表されるフェニルピリジン-イリジウム金属錯体化合物及びその製造方法を提供する。また、優れた発光効率と輝度を示すと共に、素子の安定性向上と駆動寿命を増加させることを目的とする本発明の発光物質を使用する有機電界発光素子を提供する。

【解決手段】 下記一般式(1)、

【化1】



(1)

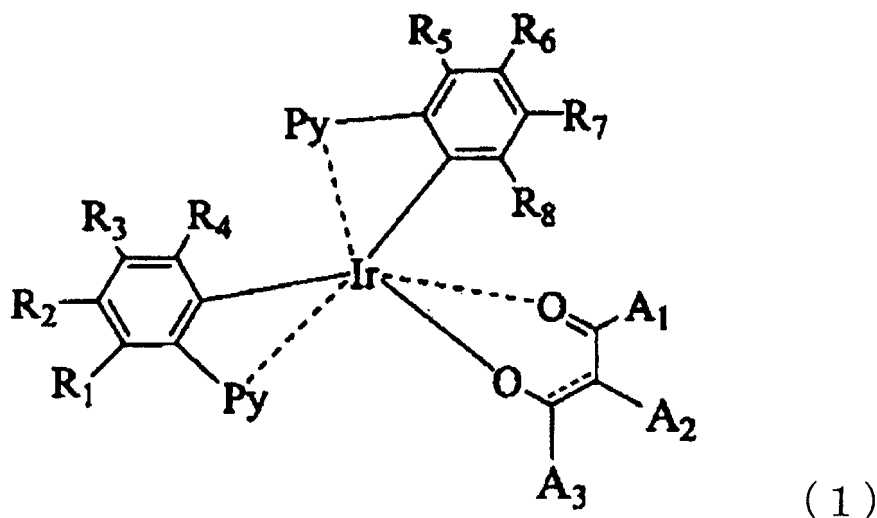


【特許請求の範囲】

【請求項 1】

下記一般式(1)、

【化 1】



10

20

[式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 、 R_7 及び R_8 はそれぞれ独立して水素原子、炭素数1~10の直鎖若しくは分枝型のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、ハロゲン原子、置換若しくは未置換の炭素数5~18の芳香族基、炭素数5~18のシクロアルキル基、またはN、O及びSからなる群より選択される一つ以上のヘテロ原子を含有する5~18員の芳香族複素環基を示し； A_1 は炭素数1~18の直鎖若しくは分枝型のアルキル基、置換若しくは未置換の炭素数5~18の芳香族基、炭素数5~18のシクロアルキル基、カルボニル基、またはN、O及びSからなる群より選択される一つ以上のヘテロ原子を含有する5~18員の芳香族複素環基を示し； A_2 は $-COA_4$ を示し； A_3 は炭素数1~18の直鎖若しくは分枝型のアルキル基、置換若しくは未置換の炭素数5~18の芳香族基、炭素数5~18のシクロアルキル基、カルボニル基、またはN、O及びSからなる群より選択される一つ以上のヘテロ原子を含有する5~18員の芳香族複素環基を示すか；或いは、 A_2 及び A_3 は互いに連結され、炭素数5~18のシクロアルカン、炭素数5~18のシクロアルカノン、炭素数5~18の芳香族環、またはN、O及びSからなる群より選択される一つ以上のヘテロ原子を含有する5~18員の芳香族複素環を形成し； A_4 は炭素数1~18の直鎖若しくは分枝型のアルキル基、置換若しくは未置換の炭素数5~18の芳香族基、炭素数5~18のシクロアルキル基、カルボニル基、またはN、O及びSからなる群より選択される一つ以上のヘテロ原子を含有する5~18員の芳香族複素環基を示し；

30

【化 2】



40

は単結合または二重結合であり；Pyは置換または未置換のピリジル基またはイソキノリル基を示す。]で表される化合物。

【請求項 2】

A_1 、 A_3 、及び A_4 はそれぞれ独立して炭素数1~18の直鎖または分枝型のアルキル基であり、 A_2 は $-COA_4$ である請求項1に記載の化合物。

【請求項 3】

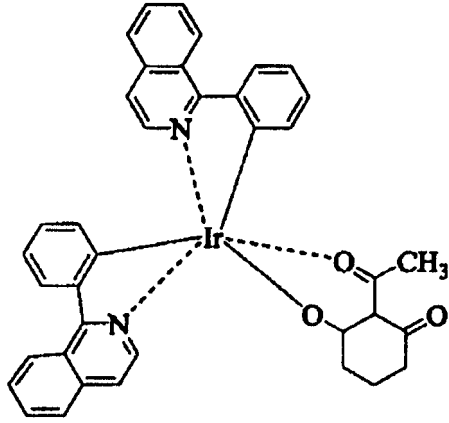
50

A₁は炭素数1～18の直鎖または分枝型のアルキル基であり、A₂及びA₃は互いに連結され、炭素数5～18のシクロアルカンまたは炭素数5～18のシクロアルカノン形成する請求項1に記載の化合物。

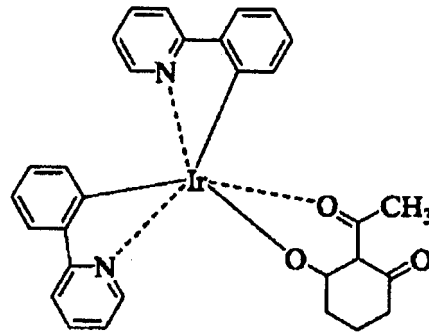
【請求項4】

下記Ir-1、Ir-2、Ir-3、Ir-4またはIr-5、

【化3】



Ir-1

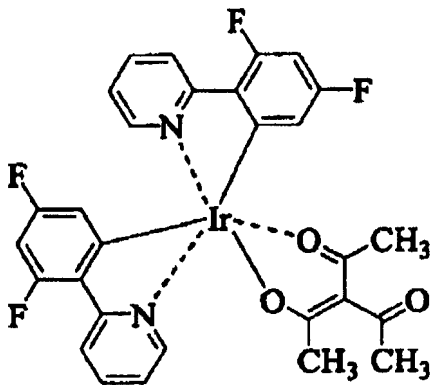


Ir-2

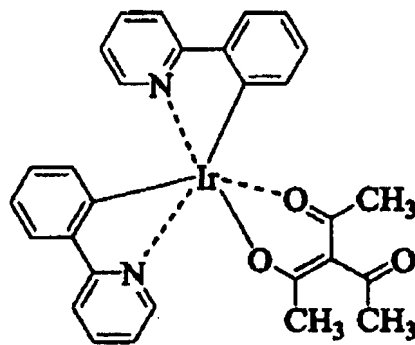
10

20

【化4】



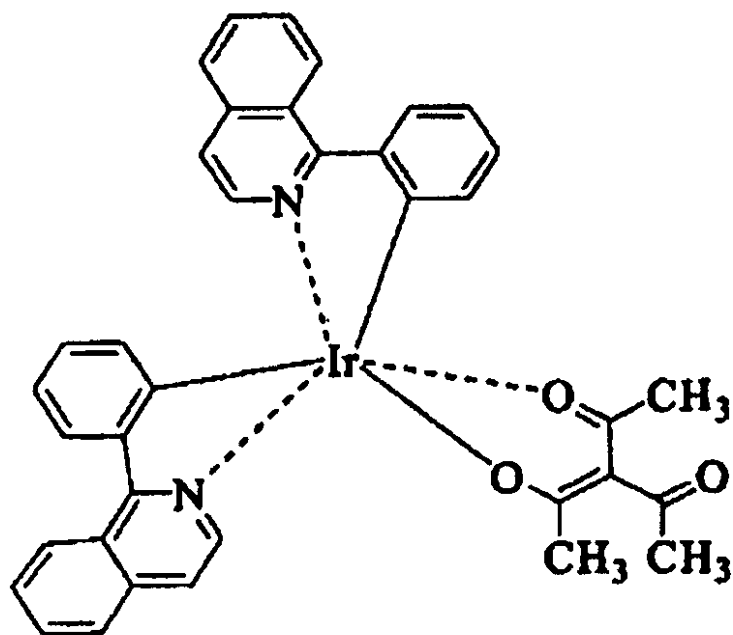
Ir-3



Ir-4

30

【化 5】



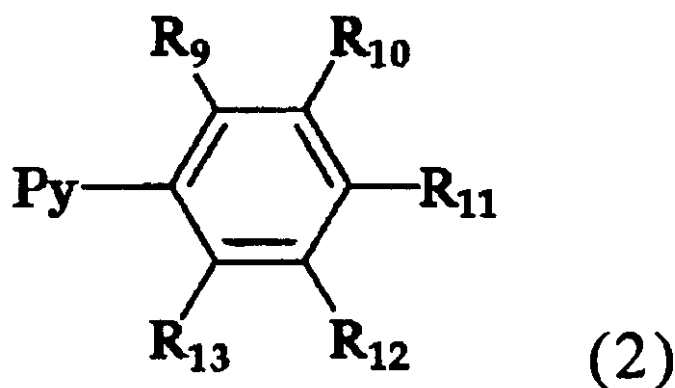
Ir-5

で表される請求項 1 に記載の化合物。

【請求項 5】

1) 下記一般式 (2)、

【化 6】



[式中、Py は請求項 1 の定義と同義であり、 $R_9 \sim R_{13}$ はそれぞれ独立して水素原子、炭素数 1 ~ 10 の直鎖若しくは分枝型のアルキル基、炭素数 1 ~ 10 のアルコキシ基、ハロゲン原子、置換若しくは未置換の炭素数 5 ~ 18 の芳香族基、炭素数 5 ~ 18 のシクロアルキル基、または N、O 及び S からなる群より選択される一つ以上のヘテロ原子を含有する 5 ~ 18 員の芳香族複素環基を示す。] で表される化合物を $\text{IrCl}_3 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ または $\text{Na}_3\text{IrCl}_6 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ (ここで、 x はそれぞれ 1 ~ 3 の範囲を示す) と反応させて前駆体を取得する段階；及び

2) 前記 1) で得られた前駆体を下記一般式 (3)、

10

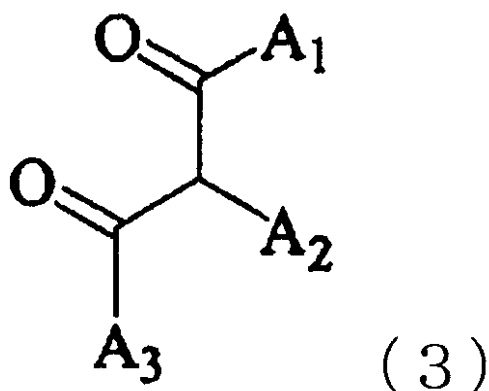
20

30

40

50

【化 7】



10

[式中、 A_1 、 A_2 及び A_3 は請求項 1 の定義と同義である。] で表される化合物と反応させて一般式 (1) の化合物を得る段階；

によって製造されることを特徴とする請求項 1 に記載の一般式 (1) で表される化合物の製造方法。

20

【請求項 6】

発光領域を含む有機薄膜層が第 1 電極 (陽極) と第 2 電極 (陰極) との間に設けられる有機電界発光素子において、

前記有機薄膜層を構成する層のうち少なくとも 1 層が請求項 1 ~ 4 のいずれか一つに記載の一般式 (1) で表される化合物を一種以上含有することを特徴とする有機電界発光素子。

【請求項 7】

請求項 1 ~ 4 のいずれか一つに記載の化合物 1 種以上を、発光層のドーパント及び / またはホストとして用いることを特徴とする請求項 6 に記載の有機電界発光素子。

30

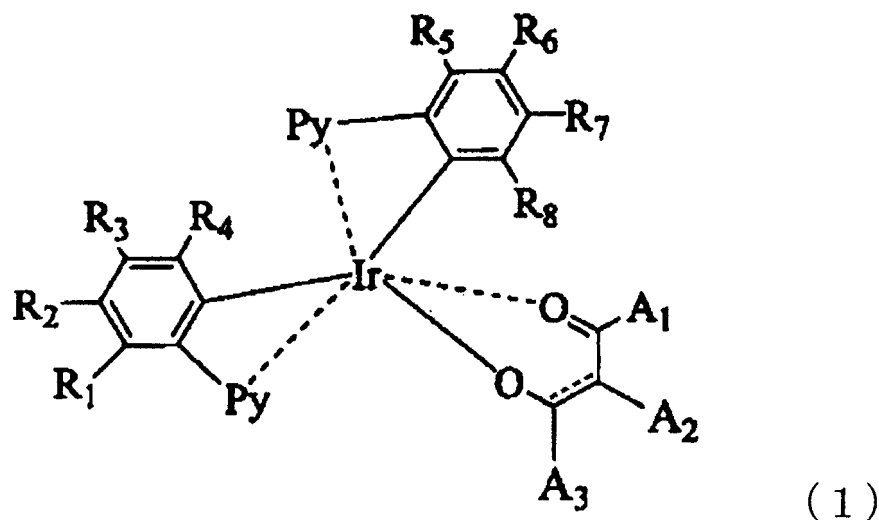
【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は有機電界発光素子用発光物質、詳しくは下記一般式 (1) 、

【化 1】



40

50

[式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 、 R_7 及び R_8 はそれぞれ独立して水素原子、炭素数1～10の直鎖若しくは分枝型のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基、ハロゲン原子、置換若しくは未置換の炭素数5～18の芳香族基、炭素数5～18のシクロアルキル基、またはN、O及びSからなる群より選択される一つ以上のヘテロ原子を含有する5～18員の芳香族複素環基を示し； A_1 は炭素数1～18の直鎖若しくは分枝型のアルキル基、置換若しくは未置換の炭素数5～18の芳香族基、炭素数5～18のシクロアルキル基、カルボニル基、またはN、O及びSからなる群より選択される一つ以上のヘテロ原子を含有する5～18員の芳香族複素環基を示し； A_2 は $-COA_4$ を示し； A_3 は炭素数1～18の直鎖若しくは分枝型のアルキル基、置換若しくは未置換の炭素数5～18の芳香族基、炭素数5～18のシクロアルキル基、カルボニル基、またはN、O及びSからなる群より選択される一つ以上のヘテロ原子を含有する5～18員の芳香族複素環基を示すか；或いは、 A_2 及び A_3 は互いに連結され、炭素数5～18のシクロアルカン、炭素数5～18のシクロアルカノン、炭素数5～18の芳香族環、またはN、O及びSからなる群より選択される一つ以上のヘテロ原子を含有する5～18員の芳香族複素環を形成し； A_4 は炭素数1～18の直鎖若しくは分枝型のアルキル基、置換若しくは未置換の炭素数5～18の芳香族基、炭素数5～18のシクロアルキル基、カルボニル基、またはN、O及びSからなる群より選択される一つ以上のヘテロ原子を含有する5～18員の芳香族複素環基を示し；

10

【化2】

20



は単結合または二重結合であり； Py は置換または未置換のピリジル基またはイソキノリル基を示す。]で表されるフェニルピリジン-イリジウム金属錯体化合物及びその製造方法に関するものである。

【0002】

また、本発明は前記一般式(1)で表される化合物を含有する有機電界発光素子、さらに詳しくは、有機薄膜層を構成する層のうち少なくとも1層以上が前記一般式(1)で表示される化合物1種以上を含有することを特徴とする発光領域を含む有機薄膜層が第1電極(陽極)と第2電極(陰極)と間に設けられる有機電界発光素子に関するものである。

30

【背景技術】

【0003】

最近、情報通信産業の発達の加速化につれて最も重要な分野の一つであるディスプレイ素子分野においてより高度な性能が求められている。このようなディスプレイは発光型と非発光型とに分けられる。発光型に属するディスプレイとしては、陰極線管(Cathode Ray Tube: CRT)、電界発光素子(Electroluminescence Display: ELD)、発光ダイオード(Light-Emitting Diode: LED)、プラズマディスプレイパネル(Plasma Display Panel: PDP)などがある。また、非発光型ディスプレイとしては液晶ディスプレイ(Liquid Crystal Display: LCD)などがある。

40

【0004】

前述した発光型及び非発光型ディスプレイは作動電圧、消費電力、輝度、コントラスト、応答速度、寿命などの基本性能を持っている。ところが、この中で現在までたくさん使われている液晶ディスプレイは前記した基本性能の中で応答速度、コントラスト及び視覚依存性に対して問題点を持っている。このような状況下で、発光ダイオードを用いたディスプレイは応答速度が速く、自己発光型であるため、背面光(back light)を必要とせず、輝度に優れているだけでなく種々の長所を持っており、液晶ディスプレイの問題点を補完する次世代ディスプレイ素子として代替できるものと展望されている。

【0005】

50

発光ダイオードは、主に結晶形態を持つ無機材料が用いられるために大面積の電界発光素子への適用が難しい。また、無機材料を用いた電界発光素子の場合は、駆動電圧を200V以上必要とし、価格も高価であるという短所がある。

しかし、1987年イーストマン・コダック(Eastman Kodak)でアルミナキノン(aluminaquinone)という - 共役構造を持つ材料より製作された素子が発表されて以来、有機物を用いた電界発光素子の研究が活発になっている。

【0006】

有機電界発光素子は、蛍光性有機化合物を電氣的に励起して発光させる自発光型素子であり、無機電界発光素子に比べて輝度、駆動電圧、応答速度、広視野角、面発光及び薄型の特性に優れ、多色化が可能であるという長所を持っており、フルカラーフラットパネルディスプレイへの応用が期待されている。

10

【0007】

有機電界発光素子に対しては1987年にC. W. Tangらが最初に実用的な素子性能を報告した(例えば、非特許文献1参照。)。ここで彼らは有機層としてジアミン誘導体から得られる薄膜(正孔輸送層)と、トリス-(8-ヒドロキシ-キノリレート)アルミニウム(以下、'Alq3'と略する)から得られる薄膜(電子輸送性発光層)を積層した構造を考案した。このような積層構造を用いることによって、電極から有機層への電子と正孔の注入障壁を低下させ、また有機層内部において電子と正孔の再結合確率を増加させることが可能となった。

【0008】

その後、C. Adachiらが正孔輸送層、発光層、電子輸送層の3層構造(例えば、非特許文献2参照。)及び正孔輸送性発光層、電子輸送層からなる2層階構造(例えば、非特許文献3参照。)の有機層を持つ有機電界発光素子を考案し、材料及びその組合せに適した多層構造をなすことによって、素子特性を最適化できることを明らかにした。

20

【0009】

通常有機電界発光素子は第1電極(陽極)と第2電極(陰極)、有機発光媒体とから構成され得る。前記有機発光媒体は発光層のほかに、少なくとも二つの分離された有機層、即ち、素子において電子を注入して輸送する一つの層と、正孔を注入して輸送する領域を形成する一つの層とを含み、前記電子を注入して輸送する層と、正孔を注入して輸送する層はそれぞれ電子注入層、電子輸送層及び正孔注入層、正孔輸送層とに分けられること

30

【0010】

簡単な構造の有機電界発光素子は、第1電極/電子輸送層及び発光層/第2電極より構成することができる。さらに、各有機機能層を分離して第1電極/正孔注入層/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/電子注入層/第2電極より有機電界発光素子を構成することもできる。

前述したような構造を持つ有機電界発光素子の駆動原理は次の通りである。

【0011】

前記陽極及び陰極の間に電圧を印加すると、陽極から注入されたホール(正孔)は正孔輸送層を經由して発光層に移動する。一方、電子は陰極から電子輸送層を經由して発光層に注入され、発光層領域でキャリアらが再結合して励起子(exciton)を生成する。この励起子が励起状態から基底状態に変化し、これにより発光層の蛍光性分子が発光することによって画像が形成される。

40

【0012】

現在、正孔輸送層として一般に用いられる物質はトリフェニルアミン誘導体である。また、電子輸送層としては有機金属錯体化合物あるいはヘテロ環化合物が用いられている。発光層としては有機化合物あるいは有機金属錯体化合物を単独で用いられるか、または、発光層のホストとして用いられる。有機化合物あるいは有機金属錯体化合物が発光層のホストとして用いられるとき、ドーパントとして有機発光物質あるいは金属錯体型有機発光物質を用いて発光色を調節する。

50

【0013】

有機電界発光素子の内部量子効率には外部電極から注入された電荷数に対して素子内部で発生した光子数の比率で示されるが、このような量子効率を改善することができれば、素子の寿命を延長させることができる。一般に分子が一重項励起状態から基底状態に降りるとき光を放出するが、これを蛍光という。反面、燐光は三重項励起状態から基底状態に降りるとき放出する光を示す。分子が励起状態から光を放出する最大効率は、蛍光の場合25%であり、燐光の場合75%となる。従って、このような高い発光効率を持つ燐光物質を有機電界発光素子の有機薄膜層、好ましくは発光層に導入して素子の寿命を延長させようとする試みが多くなされているが、これに適した物質が未だに開発されていない。

【0014】

10

【非特許文献1】Applied Physics Letters、第51巻12号、913-915頁(1987年)

【非特許文献2】Japanese Journal of Applied Physics、第27巻第2号、L269-L271(1988年)

【非特許文献3】Applied Physics Letter、第55巻第15号、1489-1491(1989年)

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0015】

このようなフルカラーディスプレイの実用化のための一つ方法は、有機電界発光素子の有機薄膜層、好ましくは、発光層に適用する高い発光効率を持つ物質を開発することである。現在、有機電界発光素子のための高効率の発光物質として燐光物質であるイリジウム金属錯体有機化合物に対する研究が行われている。この物質を発光層のドーパントとして用いた有機電界発光素子は、駆動時、高い発光効率を持つものと知られている(Nature、403巻、750-753頁(2000年))。

20

【0016】

発光層を構成するイリジウム金属錯体有機化合物は、配位子の分子構造によって発光色が異なる。この場合、発光層は燐光物質であるイリジウム金属錯体有機化合物のみからなるか、ドーパントとして燐光物質であるイリジウム金属錯体有機化合物を含んでなる。

従って、本発明は有機電界発光素子に適用する新規なフェニルピリジン-イリジウム金属錯体化合物及びその製造方法を提供することを目的とする。

30

【0017】

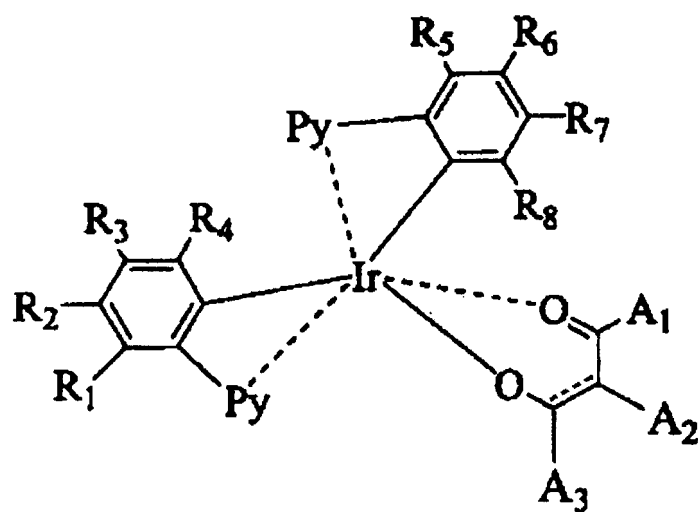
また、本発明は前記発光物質を含有する有機電界発光素子、より詳しくは、有機薄膜層を構成する層のうち少なくとも1層以上が前記一般式(1)で表される化合物1種以上を含有することを特徴とする発光領域を含む有機薄膜層が第1電極(陽極)と第2電極(陰極)と間に設けられる有機電界発光素子を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0018】

前記した目的を達成するために、本発明は下記一般式(1)、

【化3】



10

[式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 、 R_7 及び R_8 はそれぞれ独立して水素原子、炭素数1～10の直鎖若しくは分枝型のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基、ハロゲン原子、置換若しくは未置換の炭素数5～18の芳香族基、炭素数5～18のシクロアルキル基、またはN、O及びSからなる群より選択される一つ以上のヘテロ原子を含有する5～18員の芳香族複素環基を示し； A_1 は炭素数1～18の直鎖若しくは分枝型のアルキル基、置換若しくは未置換の炭素数5～18の芳香族基、炭素数5～18のシクロアルキル基、カルボニル基、またはN、O及びSからなる群より選択される一つ以上のヘテロ原子を含有する5～18員の芳香族複素環基を示し； A_2 は $-COA_4$ を示し； A_3 は炭素数1～18の直鎖若しくは分枝型のアルキル基、置換若しくは未置換の炭素数5～18の芳香族基、炭素数5～18のシクロアルキル基、カルボニル基、またはN、O及びSからなる群より選択される一つ以上のヘテロ原子を含有する5～18員の芳香族複素環基を示すか；或いは、 A_2 及び A_3 は互いに連結され、炭素数5～18のシクロアルカン、炭素数5～18のシクロアルカノン、炭素数5～18の芳香族環、またはN、O及びSからなる群より選択される一つ以上のヘテロ原子を含有する5～18員の芳香族複素環を形成し； A_4 は炭素数1～18の直鎖若しくは分枝型のアルキル基、置換若しくは未置換の炭素数5～18の芳香族基、炭素数5～18のシクロアルキル基、カルボニル基、またはN、O及びSからなる群より選択される一つ以上のヘテロ原子を含有する5～18員の芳香族複素環基を示し；

20

30

【化4】



40

は単結合または二重結合であり；Pyは置換または未置換のピリジル基またはイソキノリン基を示す。]で表されるフェニルピリジンまたはフェニルイソキノリン-イリジウム金属錯体化合物を提供する。

【0019】

本発明において、アルキル基は、例えば、炭素原子の数が1～18、好ましくは1～10の直鎖または分枝型の飽和炭化水素基をいう。具体的には、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、第三ブチル基、ペンチル基、イソペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基などが挙げられ、より好ましくは、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブ

50

チル基、第三ブチル基またはペンチル基が挙げられる。

【0020】

本発明において、アルコキシ基は、例えば、炭素原子の数が1～18、好ましくは1～10の直鎖または分枝型のアルキル基を含む基をいう。具体的にはメトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基、イソブトキシ基、第三ブトキシ基、ペントキシ基、イソペントキシ基などが挙げられ、より好ましくは、メトキシ基、エトキシ基が挙げられる。

【0021】

本発明において、ハロゲン原子はフッ素原子、塩素原子、臭素原子及びヨウ素原子を総称する。

10

【0022】

本発明において、芳香族基は、例えば、炭素原子の数が5～18の芳香族炭化水素基をいう。例えば、フェニル基、ナフチル基などが挙げられる。

【0023】

本発明において、シクロアルキル基は、例えば、炭素原子の数が1～18の環状炭化水素基をいう。具体的にはシクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基、シクロオクチル基などが挙げられ、より好ましくは、シクロペンチル基、シクロヘキシル基が挙げられる。

【0024】

本発明において、シクロアルカノン、例えば、炭素原子の数が1～18の環状炭化水素基及び-COを含む基をいう。具体的には、シクロペントノン、シクロヘキサノン、シクロヘプタノン、シクロオクタノンなどが挙げられ、より好ましくは、シクロペントノン、シクロヘキサノンなどが挙げられる。

20

【0025】

本発明において、芳香族複素環基は炭素原子の数が1～18のモノ-及びポリヘテロ芳香族基をいう。例えば、ピリジル基、ピラジニル基、ピリミジニル基、ピリダジニル基などが挙げられる。

【0026】

また、前記アルキル基、アルコキシ基、芳香族基、シクロアルキル基、シクロアルカノン、芳香族複素環基は、通常の置換基により置換でき、本発明において置換基はハロゲン原子、シアノ基、アミノ基、ニトロ基、カルボキシル基、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、第二ブチル基、第三ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基などが挙げられるが、このような置換体に限定されたものではない。

30

【0027】

本発明の好ましい具体例において、本発明の一般式(1)で表される化合物は A_1 、 A_3 及び A_4 がそれぞれ独立して炭素数1～18の直鎖または分枝型のアルキル基であり、 A_2 が炭素数-CO A_4 の化合物である。

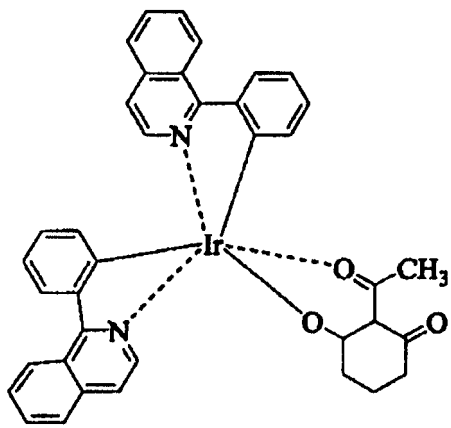
また、本発明の好ましい具体例において、本発明の一般式(1)で表される化合物は、 A_1 が炭素数1～18の直鎖または分枝型のアルキル基であり、 A_2 及び A_3 が互いに連結され、炭素数5～18のシクロアルカンまたは炭素数5～18のシクロアルカノン形成する。

40

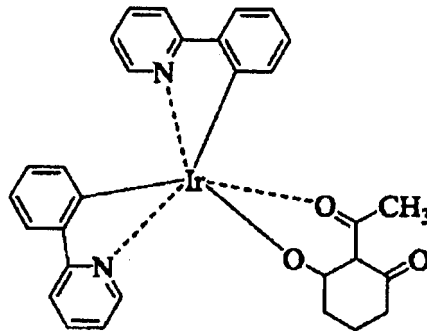
【0028】

前記一般式(1)で表される化合物の代表例を下記より具体的に例示する。しかし、本発明は以下代表例に限定されるものではない。

【化 5】



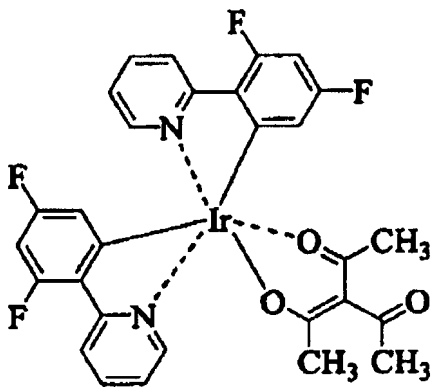
Ir-1



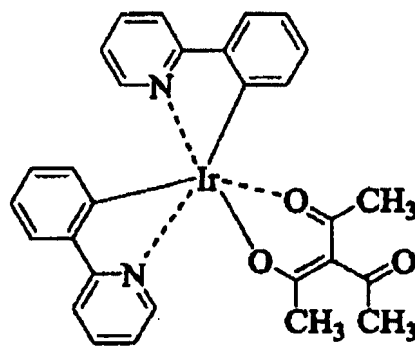
Ir-2

10

【化 6】



Ir-3

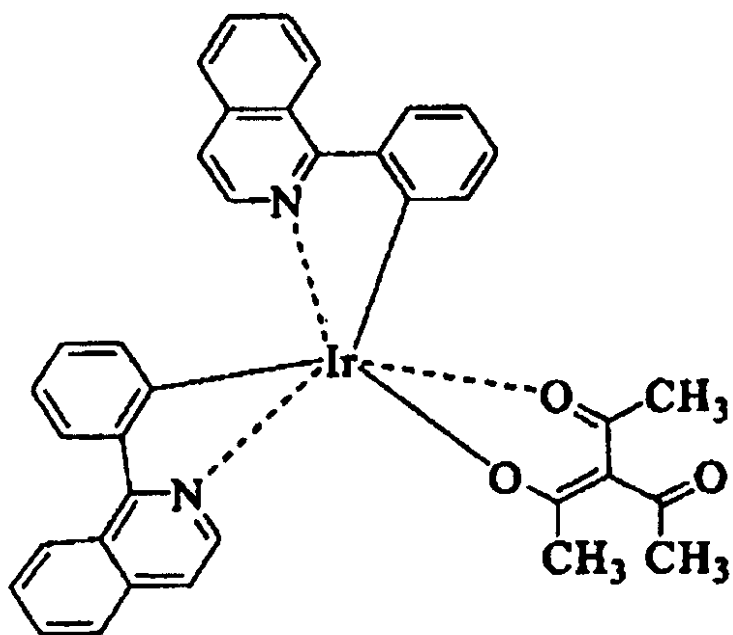


Ir-4

20

30

【化 7】



Ir-5

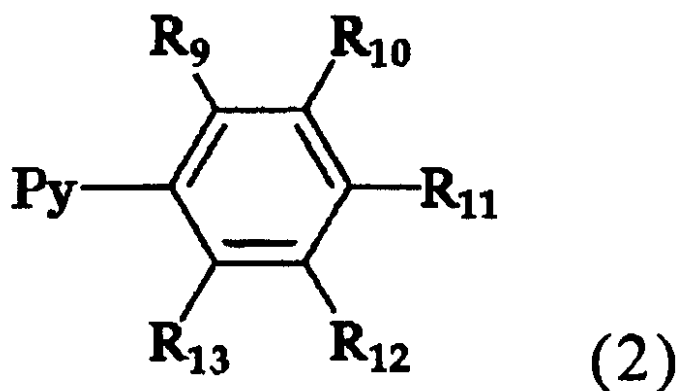
【0029】

本発明は前記一般式(1)で表される化合物を製造する方法を提供する。

前記一般式(1)で表される化合物は、

1)一般式(2)、

【化 8】



[式中、Pyは請求項1の定義と同義であり、 $R_9 \sim R_{13}$ はそれぞれ独立して水素原子、炭素数1~10の直鎖若しくは分枝型のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、ハロゲン原子、置換若しくは未置換の炭素数5~18の芳香族基、炭素数5~18のシクロアルキル基、またはN、O及びSからなる群より選択される一つ以上のヘテロ原子を含有する5~18員の芳香族複素環基を示す。]で表される化合物を $\text{IrCl}_3 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ または $\text{Na}_3\text{IrCl}_6 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ (ここで、 x はそれぞれ1~3の範囲を示す)と反応させ

10

20

30

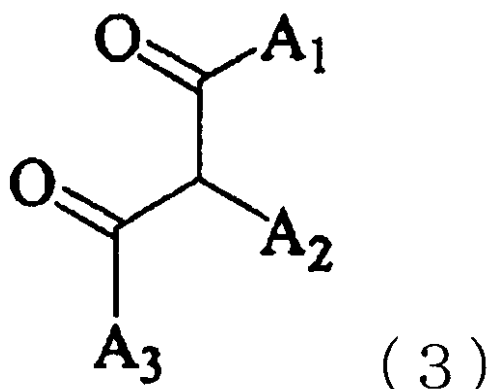
40

50

て前駆体を取得する段階；及び

2) 前記1) で得られた前駆体を下記一般式(3)、

【化9】



10

[式中、 A_1 、 A_2 及び A_3 は請求項1の定義と同義である。] で表される化合物と反応させて一般式(1)の化合物を得る段階；
 によって製造することができる。

20

[式中、 P_y 、 A_1 、 A_2 、及び A_3 は請求項1の定義と同義であり、 $R_9 \sim R_{13}$ はそれぞれ独立して水素原子、炭素数1~10の直鎖若しくは分枝型のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、ハロゲン原子、置換若しくは未置換の炭素数5~18の芳香族基、炭素数5~18のシクロアルキル基、またはN、O及びSからなる群より選択される一つ以上のヘテロ原子を含有する5~18員の芳香族複素環基を示す。]

【0030】

前記製造方法のうち、第1段階での反応温度は0 ~ 140、好ましくは100 ~ 135であり、反応時間は1~240時間、好ましくは10~48時間であり、溶媒としては化学反応に用いられる通常の有機溶媒が用いられるが、好ましくはアルコール誘導体が挙げられ、より好ましくは、2-エトキシエタノールを用いることができる。

30

また、一般式(2)で表される化合物に対するイリジウム錯体化合物の使用量は0.0001~10倍のモル当量、好ましくは0.1~1倍のモル当量が用いられる。

【0031】

前記製造方法のうち、第2段階での反応温度は0 ~ 140、好ましくは100 ~ 135であり、反応時間は0.01~240時間、好ましくは0.1~10時間であり、溶媒としては化学反応に用いられる通常の有機溶媒が使用され、好ましくは、アルコール誘導体が挙げられ、より好ましくは、2-エトキシエタノールを使用することができる。前記第1段階で得られたイリジウム錯体化合物の前駆体に対する一般式(3)で表される化合物の使用量は0.01倍~100倍のモル当量、好ましくは0.1倍~5倍のモル当量が用いられる。反応のために塩基性物質の酸化金属類、水酸化金属類、炭酸金属類が用いられ、好ましくは炭酸金属類が挙げられ、より好ましくは、 K_2CO_3 (炭酸カリウム)が用いられる。

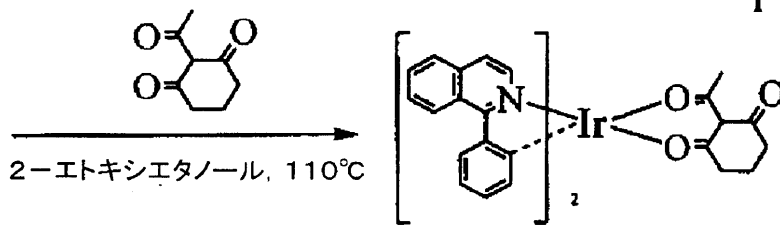
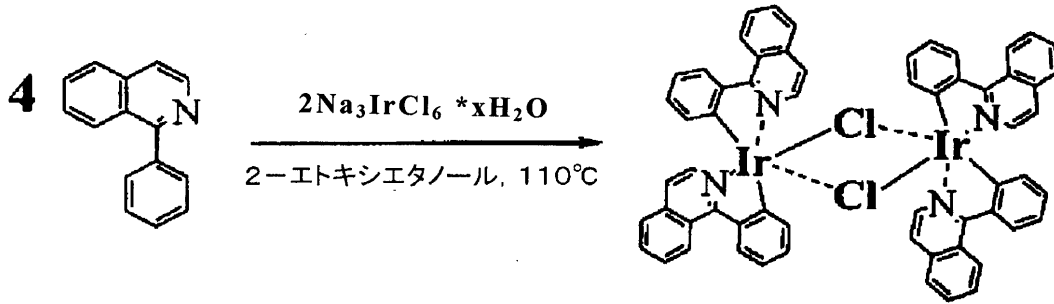
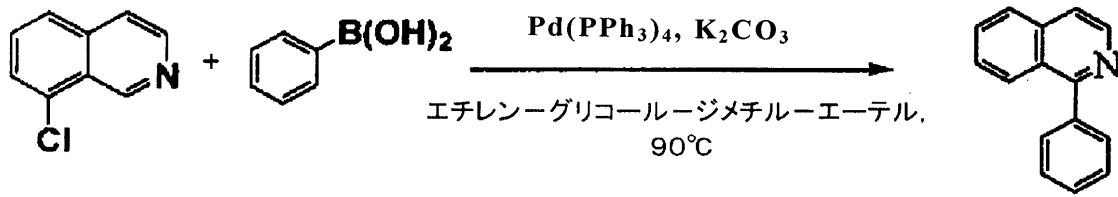
40

【0032】

前述した一般式(1)で表される化合物の製造過程を、一例を挙げて説明すれば、次の通りである。一般式(1)に属する他の化合物も下記と類似な過程によって製造することができる。

【化10】

反応式1



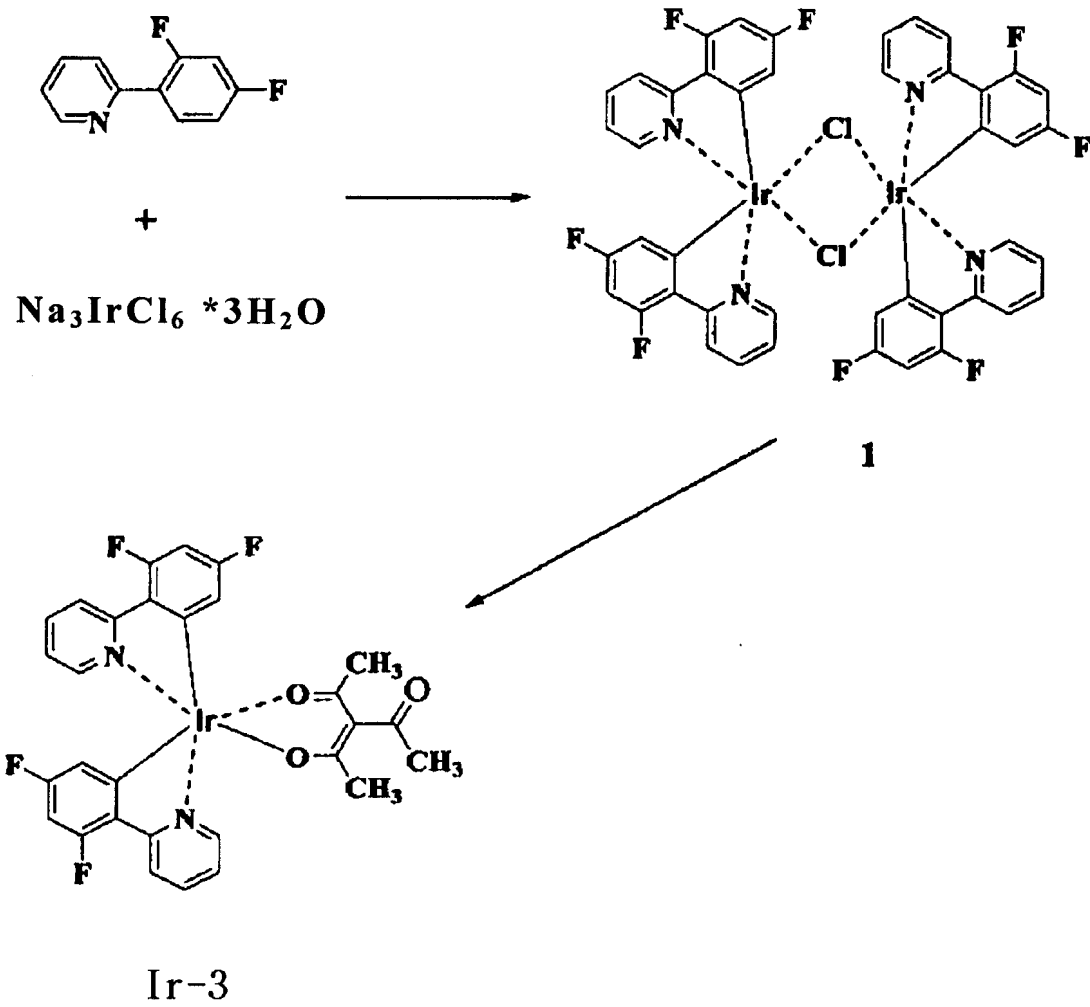
10

20

30

【化 1 1】

反応式 2



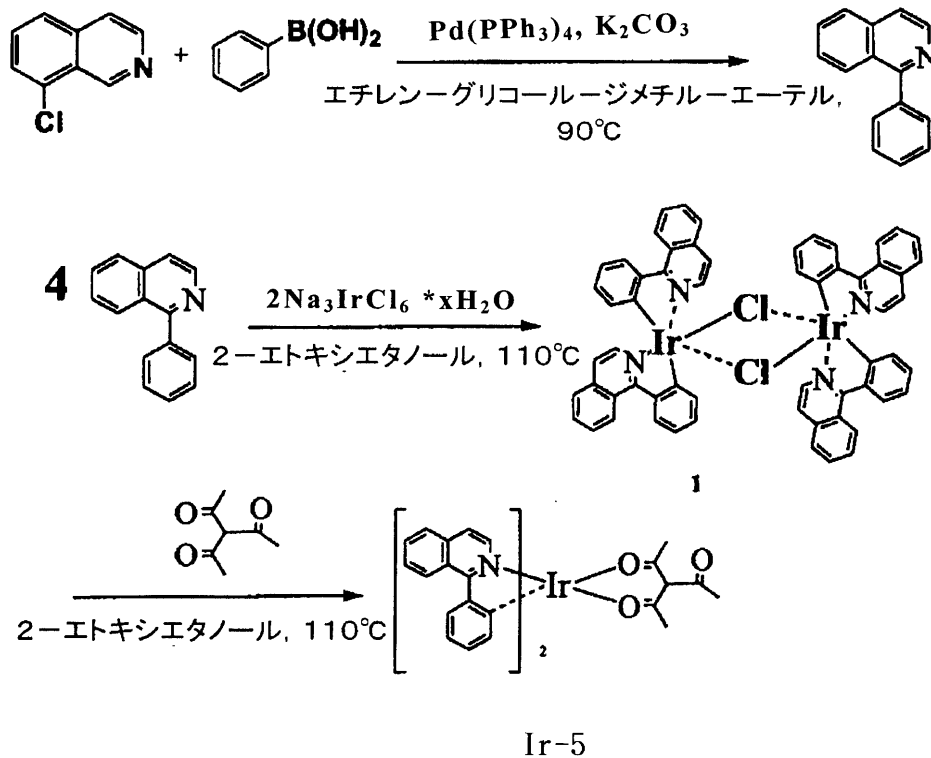
10

20

30

【化 1 2】

反応式 3



10

20

【0033】

また、本発明は前記発光物質を含有する有機電界発光素子、さらに詳しくは、発光領域を含む有機薄膜層が第1電極（陽極）と第2電極（陰極）と間に設けられる有機電界発光素子において、前記有機薄膜層を構成する層のうち少なくとも1層以上が本発明に係る発光物質1種以上を含有することを特徴とする有機電界発光素子を提供する。

30

【0034】

本発明で用いる式（1）で表される化合物は、前記したあらゆる有機薄膜層において単独または混合物の形態で使用することができ、これらの層で別の材料をドーパントとしたホストとして使用することができ、別の正孔輸送材料、発光材料、電子輸送材料等にドーパントとしてドーピングすることができる。好ましくは、本発明に係る化合物は発光層で単独、またはドーパントとして用いられる。

【0035】

本発明の発光物質を用いて製作した有機電界発光素子は、様々な実施形態が可能である。基本的には、一对の電極（陽極及び陰極）間に発光層を挿入し、ここに、必要に応じて正孔注入層及び/または正孔輸送層及び/または電子注入層及び/または電子輸送層を挿入する。具体的に、例えば、（1）陽極/発光層/陰極、（2）陽極/正孔輸送層/発光層/陰極、（3）陽極/正孔注入層/正孔輸送層/発光層/陰極、（4）陽極/正孔注入層/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/陰極、（5）陽極/正孔注入層/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/電子注入層/陰極、（6）陽極/正孔注入層/発光層/電子注入層/陰極、及び（7）陽極/正孔輸送層/発光層/正孔ブロッキング層/電子輸送層/電子注入層/陰極などがある。前記した構成を持つ素子はそれぞれ基板により支持されるのが好ましい。基板には特別な制限がなく、有機電界発光素子に通常用いられるもの、例えば、ガラス、透明プラスチック、石英等が挙げられる。

40

【0036】

50

本発明の有機電界発光素子を構成する各層は、各層をなすべき材料について既知の方法、例えば、蒸着法、スピンコート法、キャスト法などを適用して薄膜化することによって形成することができる。

このように形成された各層、例えば、発光層の膜厚に対しては特に制限はなく、適宜に状況に応じて選定することができる。

【0037】

また、本発明の有機電界発光素子における陽極としては、仕事関数が4.0 eV以上で大きな金属、合金、電気伝導性化合物またはこれらの混合物を電極物質として使用し得る。このような電極物質の例としては、ITO、SnO₂、ZnO、Auなどの導電性透明あるいは不透明材料が挙げられる。

10

このような陽極は前述した電極物質の蒸着またはスパッタ法などを実施して薄膜を形成することによって製作することができる。

【0038】

一方、陰極としては仕事関数が4.2 eV以下で小さな金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質として使用することができる。このような電極物質の例としては、カルシウム、マグネシウム、リチウム、アルミニウム、マグネシウム合金、リチウム合金、アルミニウム合金、アルミニウム/リチウム混合物、マグネシウム/銀混合物、インジウム等が挙げられる。

このような陰極は、これらの電極物質に蒸着やスパッタなどの方法を適用して薄膜を形成することによって製作することができる。また、電極としてのシート抵抗は数百 / m m以下とすることが好ましく、膜厚は通常10 nm ~ 1 μm、好ましくは50 ~ 200 nmの範囲内で選定される。

20

【0039】

本発明の有機電界発光素子では、陽極及び陰極の一方または両方を透明 ~ 半透明とし、発光を透過させて光の取出効果を向上させることが好ましい。

【0040】

本発明の有機電界発光素子に用いることができる別の正孔注入材料及び正孔輸送材料に対しては、光導電材料において正孔の電荷輸送材料として従来から慣用されてきたもの、または有機電界発光素子の正孔注入層及び正孔輸送層にそれぞれ使われる公知材料の中から任意のものを選択して使用することができる。

30

【0041】

本発明の有機電界発光素子における電子輸送層は、電子伝達化合物を含有するものであり、陰極で注入された電子を発光層に伝達する機能を有している。このような電子伝達化合物については特に制限がなく、従来公知された化合物の中から任意のものを選択して使用することができる。

【発明の効果】

【0042】

本発明の発光物質が適用された有機電界発光素子は、公知の発光物質を適用した素子に比べて顕著に優れた発光効率と輝度とを示すと同時に、素子の安全性向上と素子の寿命とを増大させる効果がある。

40

【実施例】

【0043】

以下、本発明のフェニルイソキノリン - イリジウム金属錯体化合物の合成例及びこの化合物らが適用される有機電界発光素子に関しては下記合成例及び実施例により詳しく説明するが、本発明はこのような実施例などによって限定されるものでなく、添付した特許請求の範囲に記載された発明の範囲内で種々変更して実施することができる。

合成例 1

【0044】

1) イリジウム錯体化合物の前駆体の合成

まず、100 mL 反応容器に1-クロロ-イソキノリン(3.0 g、18 mmol)

50

、フェニルボロン酸 (2 . 7 g、21 mmol)、Pd (PPh₃)₄ (テトラキス - トリフェニルホスフィンパラジウム) (1 . 6 g、0 . 8 mmol) 及び炭酸カリウム (2 . 9 g、21 mmol) を入れ、窒素気流下、精製された溶媒、エチレン - グリコール - ジメチル - エーテル (50 mL) を加えて、12時間90 で還流反応させた。常温まで温度を下げ、クロロホルム及び蒸留水で抽出した後、カラムクロマトグラフィー (クロロホルム : ヘキサン = 1 : 3) で分離して1 - フェニル - イソキノリン 3 . 32 g (90 %) を得た。

100 mL 反応容器に1 - フェニル - イソキノリン (900 mg、4 . 4 mmol) 及び Na₃IrCl₆ · 3H₂O (947 . 8 mg、2 . 0 mmol) を入れ、窒素気流下、精製された溶媒、2 - エトキシエタノール (30 mL) を加え、12時間110 で還流反応させた。常温まで温度を下げ、蒸留水15 mLを加えて、得られた沈澱物をG4のガラスフィルタで濾過した後、メタノール (15 mL) 及びエチルエーテル (15 mL) で洗浄した。この沈澱物を乾燥してイリジウム錯体化合物の前駆体を得た。

10

【0045】

2) イリジウム錯体化合物 (Ir - 1) の合成

50 mL 反応容器に合成例1で製造された前駆体 (900 . 0 mg、0 . 7 mmol) と2 - アセチル - 1, 3 - シクロヘキサジオン (218 mg、1 . 4 mmol) と炭酸カリウム (100 mg) を入れ、窒素気流下、精製された溶媒、2 - エトキシエタノール (30 mL) を加えて、1時間110 で還流反応させた。常温まで温度を下げ、沈澱物をG4のガラスフィルタで濾過した後、この沈澱物をメタノール (15 mL) で洗浄し、回収した。合成した物質は有機電界発光素子に使用するために真空昇華装置を用いて昇華精製した。

20

得られた物質をNMR及び質量分析器を使用して分子構造を確認し、その分析結果よりIr - 1の化合物が合成されていることが確認された。

NMR分析 (¹H NMR (CDCl₃)) : 9 . 06 - 6 . 36 (m , 芳香族 20 H) , 2 . 34 (s , 2 CH₂ - CO , 4 H) , 1 . 55 (s , CH₃ - CO , CH₂CH₂CH₂ . 5 H)

質量分析 ; 計算値 : 756、実験値 : 756

合成例2

【0046】

1) イリジウム錯体化合物の前駆体の合成

100 mL 反応容器に2 - (2, 4 - ジフルオロフェニル) ピリジン (420 . 6 mg、2 . 2 mmol) 及び Na₃IrCl₆ · 3H₂O (947 . 8 mg、2 . 0 mmol) を入れ、窒素気流下、精製された溶媒、2 - エトキシエタノール (30 mL) を加えて、6時間常温で攪拌した後、12時間110 で還流反応させた。常温まで温度を下げ、蒸留水15 mLを加え、得られた沈澱物をG4のガラスフィルタで濾過した後、メタノール (15 mL) 及びエチルエーテル (15 mL) で洗浄した。この沈澱物を乾燥してイリジウム錯体化合物の前駆体を得た。

30

【0047】

2) イリジウム錯体化合物 (Ir - 3) の合成

50 mL 反応容器に合成例1で製造された前駆体 (900 . 0 mg、0 . 7 mmol) とトリ - アセチル - メタン (198 mg、1 . 4 mmol) と炭酸カリウム (100 mg) を加え、窒素気流下、精製された溶媒、2 - エトキシエタノール (30 mL) を加えて1時間110 で還流反応させた。常温まで温度を下げ、沈澱物をG4のガラスフィルタで濾過した後、この沈澱物をメタノール (15 mL) で洗浄し、回収した。合成した物質は有機電界発光素子に使用するために真空昇華装置を用いて昇華精製した。

40

得られた物質をNMR及び質量分析器を使用して分子構造を確認し、その分析結果より、Ir - 3の化合物が合成されていることが確認された。

NMR分析 (¹H NMR (CDCl₃)) : 8 . 44 - 5 . 63 (m , 芳香族 12 H) , 1 . 75 (s , CH₃ - CO , 9 H)

50

質量分析；計算値：714、実験値：714

合成例 3

【0048】

1) イリジウム錯体化合物の前駆体の合成

まず、100 mL 反応容器に1-クロロ-イソキノリン(3.0 g、18 mmol)、フェニルボロン酸(2.7 g、21 mmol)、テトラキス-トリフェニルホスフィンパラジウム(1.6 g、0.8 mmol)及び炭酸カリウム(2.9 g、21 mmol)を入れ、窒素気流下、精製された溶媒、エチレン-グリコール-ジメチル-エーテル(50 mL)を加えて、12時間90℃で還流反応させた。常温まで温度を下げ、クロロホルム及び蒸留水で抽出した後、カラムクロマトグラフィー(クロロホルム：ヘキサン = 1 : 3)で分離して1-フェニル-イソキノリン 3.32 g (90%)を得た。

10

100 mL 反応容器に1-フェニル-イソキノリン(900 mg、4.4 mmol)及び $\text{Na}_3\text{IrCl}_6 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ (947.8 mg、2.0 mmol)を入れ、窒素気流下、精製された溶媒、2-エトキシエタノール(30 mL)を加えて、12時間110℃で還流反応させた。常温まで温度を下げ、蒸留水15 mLを加え、得られた沈澱物をG4のガラスフィルタで濾過した後、メタノール(15 mL)及びエチルエーテル(15 mL)で洗浄した。この沈澱物を乾燥してイリジウム錯体化合物の前駆体を得た。

【0049】

2) イリジウム錯体化合物(Ir-5)の合成

50 mL 反応容器に合成例1で製造された前駆体(900.0 mg、0.7 mmol)とトリ-アセチル-メタン(198 mg、1.4 mmol)と炭酸カリウム(100 mg)を入れ、窒素気流下、精製された溶媒、2-エトキシエタノール(30 mL)を加えて、1時間110℃で還流反応させた。常温まで温度を下げ、沈澱物をG4のガラスフィルタで濾過した後、この沈澱物をメタノール(15 mL)で洗浄し、回収した。合成した物質は有機電界発光素子に使用するために真空昇華装置を用いて昇華精製した。

20

得られた物質をNMR及び質量分析器を使用して分子構造を確認し、その分析結果より、Ir-5の化合物が合成されていることが確認された。

NMR分析($^1\text{H NMR}$ (CDCl_3))：9.06 - 6.36 (m, 芳香族 20H), 1.75 (s, $\text{CH}_3\text{-CO}$, 9H)

質量分析；計算値：742、実験値：742

30

実施例 1

【0050】

透明基板上に100 nm厚さで第1電極ITOを形成し、その上に、NPD(N, N-ジナフチル-N, N-フェニル-(1,1-ピフェニル)-4,4-ジアミン)を用いて50 nm厚さで正孔輸送層を形成した。次に、CBP(4,4-ビス(カルバゾール-9-イル)-ピフェニル)を用いて30 nm厚さで有機発光層を蒸着した。このとき、化合物Ir-1をドーパントとして10%添加した。その上に、BCP(2,9-ジメチル-4,7-ジフェニル-1,10-フェナントロリン)を用いて5 nm厚さで正孔ブロッキング層を形成し、Alq3を用いて30 nm厚さで電子輸送層を蒸着した。以後、0.3 nm厚さのアルカリ金属LiFからなる電子注入層を形成し、100 nm厚さの第2電極Alを蒸着した。

40

このように製作された実施例1の有機電界発光素子に順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は赤色であり、分光測定を行った結果、612 nm付近に発光ピークを持つスペクトルを得た。また、電圧-輝度測定を行った結果、8 Vで3,400 cd/m²の輝度を得ることができ、この時の効率は1.35 lm/Wであった。

実施例 2

【0051】

透明基板上に100 nm厚さで第1電極ITOを形成し、その上に、NPDを用いて50 nm厚さで正孔輸送層を形成した。次に、CBPを用いて30 nm厚さで有機発光層を蒸着した。このとき、化合物Ir-3をドーパントとして10%添加した。その上に、B

50

C Pを用いて5 nm厚さで正孔ブロッキング層を形成し、A l q 3を用いて30 nm厚さで電子輸送層を蒸着した。以後、0.3 nm厚さのアルカリ金属L i Fからなる電子注入層を形成し、100 nm厚さの第2電極A lを蒸着した。

このように製作された実施例2の有機電界発光素子に順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は赤色であり、分光測定を行った結果、600 nm付近に発光ピークを持つスペクトルを得た。また、電圧-輝度測定を行った結果、8 Vで3,500 c d / m²の輝度を得ることができ、この時の効率は1.44 L m / Wであった。

実施例 3

【0052】

透明基板上に100 nm厚さで第1電極I T Oを形成し、その上に、N P Dを用いて50 nm厚さで正孔輸送層を形成した。次に、C B Pを使用して30 nm厚さで有機発光層を蒸着した。このとき、化合物I r - 5をドーパントとして10%添加した。その上に、B C Pを用いて5 nm厚さで正孔ブロッキング層を形成し、A l q 3を使用して30 nm厚さで電子輸送層を蒸着した。以後、0.3 nm厚さのアルカリ金属L i Fからなる電子注入層を形成し、100 nm厚さの第2電極A lを蒸着した。

このように製作された実施例3の有機電界発光素子に順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は赤色であり、分光測定を行った結果、620 nm付近に発光ピークを持つスペクトルを得た。また、電圧-輝度測定を行った結果、8 Vで3,360 c d / m²の輝度を得ることができ、この時の効率は1.25 L m / Wであった。

実施例 4、5

【0053】

本実施例では化合物I r - 2またはI r - 4をそれぞれドーパントとして、C B Pをホストとして用いることを除いては、前記実施例1と同じ条件で有機電界発光照射を製造した。発光特性を測定して、それぞれ図3及び5に示した。

【図面の簡単な説明】

【0054】

【図1】本発明の一実施例に係る有機電界発光素子の断面図である。

【図2】本発明の一実施例に係る一般式(1)で表される化合物、I r - 1を利用して示した吸収スペクトルである。

【図3】本発明の一実施例に係る一般式(1)で表される化合物、I r - 2を利用して示した吸収スペクトルである。

【図4】本発明の一実施例に係る一般式(1)で表される化合物、I r - 3を利用して示した吸収スペクトルである。

【図5】本発明の一実施例に係る一般式(1)で表される化合物、I r - 4を利用して示した吸収スペクトルである。

【図6】本発明の一実施例に係る一般式(1)で表される化合物、I r - 5を利用して示した吸収スペクトルである。

【符号の説明】

【0055】

- 1 : ガラス基板
- 2 : 第1電極
- 3 : 正孔輸送層
- 4 : 有機発光層
- 5 : 正孔ブロッキング層
- 6 : 電子輸送層
- 7 : 電子注入層
- 8 : 第2電極

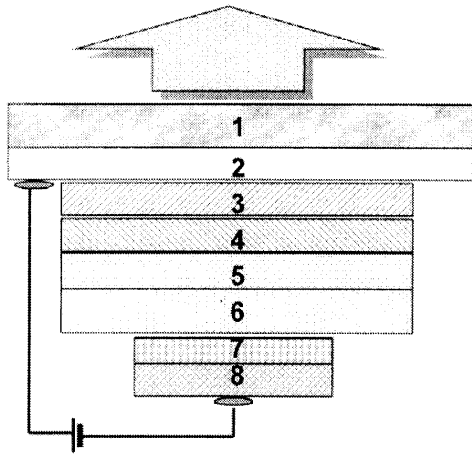
10

20

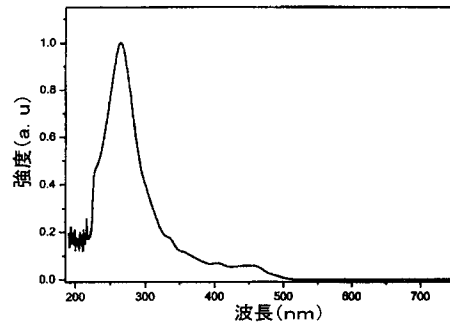
30

40

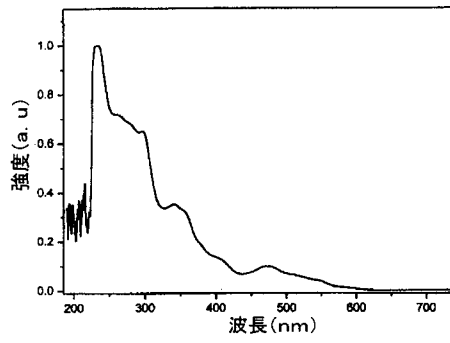
【 図 1 】



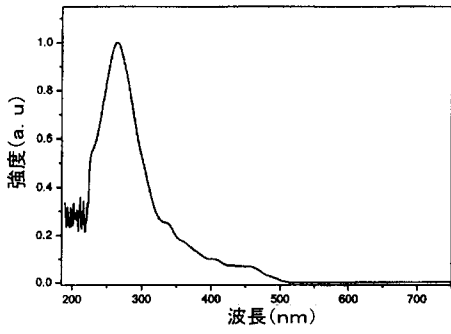
【 図 2 】



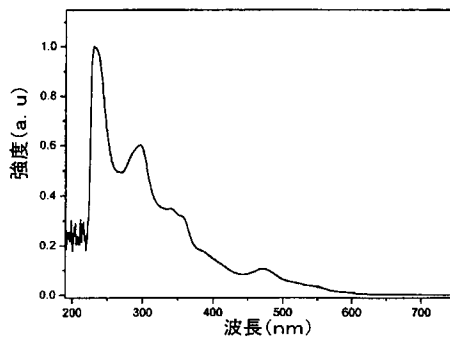
【 図 3 】



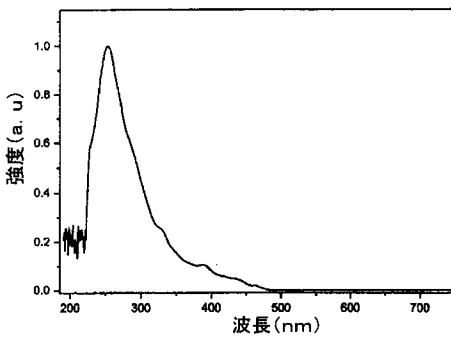
【 図 4 】



【 図 6 】



【 図 5 】



フロントページの続き

(51) Int. Cl. ⁷	F I	テーマコード(参考)
C 0 9 K 11/06	C 0 9 K 11/06	6 6 0
H 0 5 B 33/14	H 0 5 B 33/14	B
(74)代理人 100109690 弁理士 小野塚 薫		
(74)代理人 100131266 弁理士 高 昌宏		
(74)代理人 100093414 弁理士 村越 祐輔		
(74)代理人 100131141 弁理士 小宮 知明		
(72)発明者 キム クァンヒョン 大韓民国 6 0 9 - 8 4 1	ブサンクァンヨクシ	ギンジョンク ザンジョン2ドン 5 6 5 - 6 , 4 / 1
(72)発明者 キム ドンウック 大韓民国 7 0 5 - 8 1 7	デググァンヨクシ	ナンク デミョン2ドン 1 7 9 7 - 6
(72)発明者 キム テジョン 大韓民国 7 0 2 - 8 4 2	デググァンヨクシ	ブク サンギョクドン 1 3 7 0
(72)発明者 キム ウンチャン 大韓民国 6 0 9 - 3 9 0	プサングァンヨクシ	ギインジョンク ザンジェンドンサン 3 0
(72)発明者 キム スンフン 大韓民国 7 0 2 - 8 4 2	デググァンヨクシ	ブク サンギョクドン 1 3 7 0
(72)発明者 キム キドン 大韓民国 3 0 6 - 7 7 5	デゾングァンヨクシ	デドック ソンリムドン ソンビマウルアパー ト 1 1 0 - 8 0 1
F ターム(参考)	3K007 AB03 AB11 DB03 FA01 4C034 AA09 4C055 AA01 BA02 BA08 BA13 CA01 DA01 GA02 4H006 AA01 AB92 4H050 AA01 AB92 WB13 WB14 WB21	

【要約の続き】

[式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 、 R_7 、及び R_8 は明細書で定義したものと同義である。] で表される化合物。

【選択図】 図3

专利名称(译)	用于有机电致发光器件的苯基吡啶 - 铱金属配合物，其制备方法以及使用其的有机电致发光器件		
公开(公告)号	JP2005200416A	公开(公告)日	2005-07-28
申请号	JP2005006635	申请日	2005-01-13
申请(专利权)人(译)	Eruji电子公司		
[标]发明人	キムクアンヒョン キムドンウック キムテジョン キムウンチャン キムスンフン キムキドン		
发明人	キム クアンヒョン キム ドンウック キム テジョン キム ウンチャン キム スンフン キム キドン		
IPC分类号	H01L51/50 C07C49/92 C07D213/06 C07D213/26 C07D217/02 C07F15/00 C09K11/06 H05B33/14		
CPC分类号	C07F15/0033 Y10S428/917		
FI分类号	C07F15/00.CSP.E C07C49/92 C07D213/06 C07D213/26 C07D217/02 C09K11/06.660 H05B33/14.B C07D213/24 C07F15/00.ECS.P		
F-TERM分类号	3K007/AB03 3K007/AB11 3K007/DB03 3K007/FA01 4C034/AA09 4C055/AA01 4C055/BA02 4C055/BA08 4C055/BA13 4C055/CA01 4C055/DA01 4C055/GA02 4H006/AA01 4H006/AB92 4H050/AA01 4H050/AB92 4H050/WB13 4H050/WB14 4H050/WB21 3K107/AA01 3K107/CC02 3K107/CC04 3K107/CC21 3K107/DD64 3K107/DD67 3K107/DD68 3K107/DD69 3K107/FF14		
代理人(译)	加藤 勉		
优先权	1020040002315 2004-01-13 KR 1020040002316 2004-01-13 KR 1020040002554 2004-01-14 KR 1020040002555 2004-01-14 KR		
其他公开文献	JP4338651B2		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

提供一种用于有机电致发光器件的发光材料，更具体地，由以下通式(1)表示的苯基吡啶-铱金属络合物及其制造方法。此外，本发明提供一种使用本发明的发光材料的有机电致发光器件，其具有优异的发光效率和亮度，并且旨在提高器件的稳定性和驱动寿命。解决方案：以下通式(1)，[化学1][其中在规范中定义了R1，R2，R3，R4，R5，R6，R7和R8是一个的代名词。]所代表的化合物。[选择图]图3

