



(19) 中華民國智慧財產局

(12) 發明說明書公告本

(11) 證書號數：TW I499653 B

(45) 公告日：中華民國 104 (2015) 年 09 月 11 日

(21) 申請案號：100130092

(22) 申請日：中華民國 93 (2004) 年 02 月 02 日

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

C07D235/18 (2006.01)

C07D235/20 (2006.01)

C07D401/10 (2006.01)

H01L51/50 (2006.01)

(30) 優先權：2003/03/13 日本

2003-067847

(71) 申請人：出光興產股份有限公司 (日本) IDEMITSU KOSAN CO., LTD. (JP)

日本

(72) 發明人：山本弘志 YAMAMOTO, HIROSHI (JP) ; 松浦正英 MATSUURA, MASAhide

(JP) ; 窪田峰行 KUBOTA, MINEYUKI (JP) ; 河村昌宏 KAWAMURA, MASAHIRO

(JP)

(74) 代理人：林志剛

(56) 參考文獻：

TW 201202203

審查人員：傅俊中

申請專利範圍項數：10 項 圖式數：0 共 75 頁

(54) 名稱

新穎之含氮雜環衍生物及使用其之有機電致發光構件

NITROGEN-CONTAINING HETEROCYCLE DERIVATIVE AND ORGANIC

ELECTROLUMINESCENT ELEMENT USING THE SAME

(57) 摘要

本發明係提供具有特定之基與苯並咪唑鍵結之結構的含氮雜環衍生物，由含氮雜環衍生物所構成之有機電致發光(EL)元件用材料，及具有被挾於一對之電極間，含發光層之至少一層之有機化合物層的有機 EL 元件，該有機化合物層中之至少一層中含有該含氮雜環衍生物的有機 EL 元件，可作為有機 EL 元件之構成成分使用之新穎含氮雜環衍生物，此含氮雜環衍生物用於有機化合物層之至少一層，可提供低電壓，高發光亮度及高發光效率的有機 EL 元件。

公告本

分割案

發明專利說明書

(本申請書格式、順序，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：

0013009

※申請日期：093年2月2日

※IPC分類：

C07K 11/06 (2006.01)

C07D 335/08 (2006.01)

C07D 335/00 (2006.01)

C07D 401/00 (2006.01)

H01L 51/50 (2006.01)

原申請案號：093102315

一、發明名稱：(中文/英文)

新穎之含氮雜環衍生物及使用其之有機電致發光構件

Nitrogen-containing heterocycle derivative and organic electroluminescent element
using the same

二、中文發明摘要：

本發明係提供具有特定之基與苯並咪唑鍵結之結構的含氮雜環衍生物，由含氮雜環衍生物所構成之有機電致發光(EL)元件用材料，及具有被挾於一對之電極間，含發光層之至少一層之有機化合物層的有機EL元件，該有機化合物層中之至少一層中含有該含氮雜環衍生物的有機EL元件，可作為有機EL元件之構成成分使用之新穎含氮雜環衍生物，此含氮雜環衍生物用於有機化合物層之至少一層，可提供低電壓，高發光亮度及高發光效率的有機EL元件。

三、英文發明摘要：

四、指定代表圖：

(一) 本案指定代表圖為：無

(二) 本代表圖之元件符號簡單說明：無

五、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：無

六、發明說明

【發明所屬之技術領域】

本發明係有關新穎之含氮雜環衍生物，使用該含氮雜環衍生物之有機電致發光（EL）元件用材料、含有該含氮雜環衍生物之有機電致發光元件，特別是關於可作為有機 EL 元件之構成成分使用之含氮雜環衍生物及使用該含氮雜環衍生物之有機電致發光元件用材料、此含氮雜環衍生物用於有機化合物層之至少一層，可達成低電壓但是高亮度、高發光效率之有機 EL 元件。

【先前技術】

使用有機物質之有機電致發光（EL）元件可被期待作為固體發光型之廉價之大面積全彩顯示元件使用，且研究正蓬勃發展。一般 EL 元件係由發光層及夾著該層之一對對向電極所構成。發光係將電場施加於兩電極間時，由陰極側注入電子，由陽極側注入電洞。此電子在發光層中與電洞再結合，產生激發狀態，由激發狀態返回基底狀態時，能量以光的形態釋放的現象。

以往之有機 EL 元件之驅動電壓比無機發光二極體高，且發光亮度或發光效率也較低。特性劣化明顯，無法到達實用階段。最近之有機 EL 元件漸漸改良，但是仍需要低電壓，高發光亮度、高發光效率者。

為了解決這些問題，例如美國專利第 5645948 號說明書中揭示以具有苯並咪唑結構之化合物作為發光材料使用

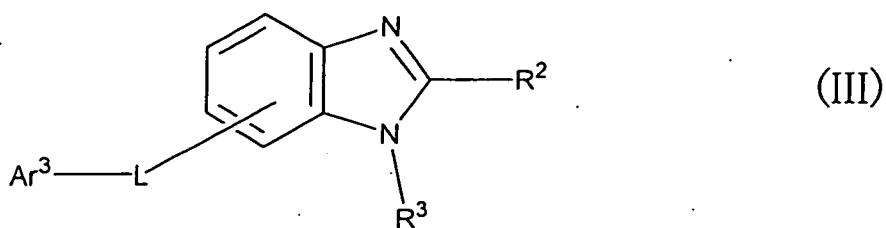
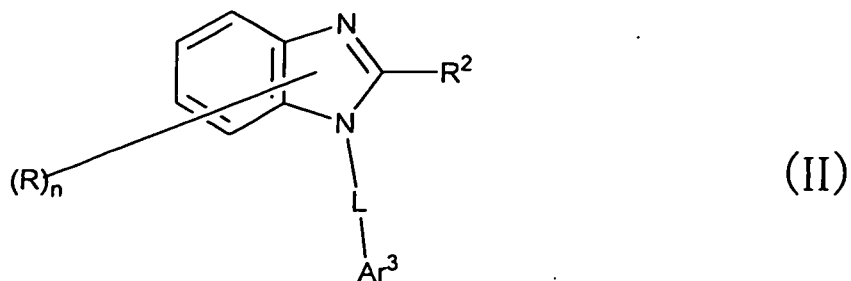
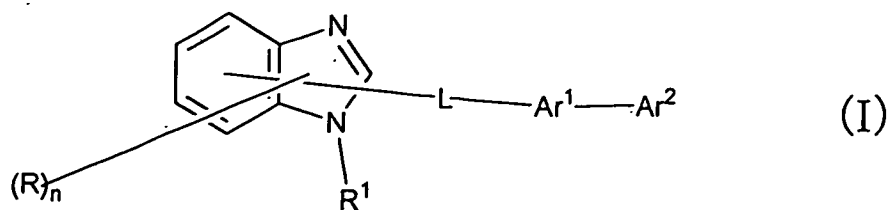
的元件，此元件在電壓 9V 時，產生 200nit 之亮度。另外，日本特開 2002-38141 號公報揭示具有苯並咪唑環及蔥骨架之化合物。但是仍需要比使用這些化合物之有機 EL 元件更高發光亮度及高發光效率者。

【發明內容】

本發明係解決前述問題而完成者，本發明提供可作為有機 EL 元件之構成成分使用之新穎含氮雜環衍生物，此含氮雜環衍生物作為有機 EL 元件用材料用於有機化合物層中之至少一層，可提供低電壓但高亮度、高發光效率之有機 EL 元件。

本發明人等為了達成前述目的，而精心研究結果發現，具有特定之基與苯並咪唑鍵結之結構的含氮雜環衍生物為新穎之化合物，此化合物作為有機 EL 元件用材料用於有機化合物層中之至少一層，可達成低電壓，高亮度化及高發光效率。本發明係依此見解所完成者。

換言之，本發明之含氮雜環衍生物，其特徵係以下述一般式 (I)、(II) 或 (III) 表示，



(式中 R 為氫原子、可具有取代基之碳數 6~60 之芳基、可具有取代基之吡啶基、可具有取代基之喹啉基、可具有取代基之碳數 1~20 之烷基或可具有取代基之碳數 1~20 之烷氧基，n 為 0~4 之整數，

R¹ 為可具有取代基之碳數 6~60 之芳基、可具有取代基之吡啶基、可具有取代基之喹啉基、可具有取代基之碳數 1~20 之烷基或碳數 1~20 之烷氧基，

R² 及 R³ 係分別獨立之氫原子、可具有取代基之碳數 6~60 之芳基、可具有取代基之吡啶基、可具有取代基之喹啉基、可具有取代基之碳數 1~20 之烷基或可具有取代基之碳數 1~20 之烷氧基，

L 為可具有取代基之碳數 6~60 之伸芳基、可具有取代基之伸吡啶基、可具有取代基之伸喹啉基或可具有取代基之伸芴基，

Ar¹ 為可具有取代基之碳數 6~60 之伸芳基、可具有取代基之伸吡啶基或可具有取代基之伸喹啉基，

Ar² 為可具有取代基之碳數 6~60 之芳基、可具有取代基之吡啶基、可具有取代基之喹啉基、可具有取代基之碳數 1~20 之烷基或碳數 1~20 之烷氧基，

Ar³ 為可具有取代基之碳數 6~60 之芳基、可具有取代基之吡啶基、可具有取代基之喹啉基、可具有取代基之碳數 1~20 之烷基、可具有取代基之碳數 1~20 之烷氧基，或 -Ar¹-Ar² 係表示之基（但是 Ar¹ 及 Ar² 係分別與前述相同）。

本發明係提供由上述本發明之含氮雜環衍生物所構成之有機 EL 元件用材料。

本發明係提供一種有機電致發光元件，其係具有被挾於一對之電極間，具有含發光層中之至少一層之有機化合物層之有機 EL 元件，其特徵係該有機化合物層中之至少一層含有上述本發明之含氮雜環衍生物。

實施發明之最佳形態

本發明之含氮雜環衍生物(以下有時稱為本發明化合物)係以上述一般式 (I)、(II) 或 (III) 表示者。

一般式 (I) ~ (III) 中，R 為氫原子、可具有取代

基之碳數 6~60 之芳基、可具有取代基之吡啶基、可具有取代基之喹啉基、可具有取代基之碳數 1~20 之烷基或可具有取代基之碳數 1~20 之烷氧基。

前述碳數 6~60 之芳基較佳為碳數 6~40 之芳基，更佳為碳數 6~20 之芳基，具體例如有例如有苯基、萘基、蔥基、菲基、丁省基、蒾基、芘基、聯苯基、聯三苯基、甲苯基、第三丁基苯基、(2-苯基丙基)苯基、熒蔥基、芴基、螺芴所構成之一價基、全氟苯基、全氟萘基、全氟蔥基、全氟聯苯基、9-苯基蔥所構成之一價基、9-(1'-萘基)蔥所構成之一價基、9-(2'-萘基)蔥所構成之一價基、6-苯基蒾所構成之一價基、9-[4-(二苯基胺基)苯基]蔥所構成之一價基等，較理想為苯基、萘基、聯苯基、聯三苯基、9-(10-苯基)蔥基、9-[10-(1'-萘基)]蔥基、9-[10-(2'-萘基)]蔥基等。

碳數 1~20 之烷基理想為碳數 1~6 之烷基，具體而言，例如有甲基、乙基、丙基、丁基、戊基、己基等，及三氟甲基等之鹵烷基，碳數 3 以上者可為具有直鏈、環狀或支鏈者。

碳數 1~20 之烷氧基理想為碳數 1~6 之烷氧基，具體而言，例如有甲氧基、乙氧基、丙氧基、丁氧基、戊氧基、己氧基等，碳數 3 以上者可為具有直鏈、環狀或支鏈者。

R 所示之各基的取代基例如有鹵原子、可具有取代基之碳數 1~20 之烷基、可具有取代基之碳數 1~20 之烷氧

基、可具有取代基之碳數 6~40 之芳氧基、可具有取代基之碳數 6~40 之芳基或可具有取代基之碳數 3~40 之雜芳基等。

鹵原子例如有氟、氯、溴、碘等。

碳數 1~20 之烷基、碳數 1~20 之烷氧基、碳數 6~40 之芳基例如有錢述相同者。

碳數 6~40 之芳氧基，例如有苯氧基、聯苯氧基等。

碳數 3~40 之雜芳基例如有吡咯基、呋喃基、噻吩基、吡啶基、喹啉基、異喹啉基、苯並呋喃基、咪唑基、嘧啶基、吡嗪基、噻吩基、噻吩基、噻吩基等。

n 為 0~4 之整數， m 為 0~2 之整數。

一般式 (I) 中， R^1 為可具有取代基之碳數 6~60 之芳基、可具有取代基之吡啶基、可具有取代基之喹啉基、可具有取代基之碳數 1~20 之烷基或碳數 1~20 之烷氧基。

這些各基之具體例之理想的碳數及取代基係與前述 R 所說明相同。

一般式 (II) 及 (III) 中， R^2 及 R^3 係分別獨立之氫原子、可具有取代基之碳數 6~60 之芳基、可具有取代基之吡啶基、可具有取代基之喹啉基、可具有取代基之碳數 1~20 之烷基或可具有取代基之碳數 1~20 之烷氧基。

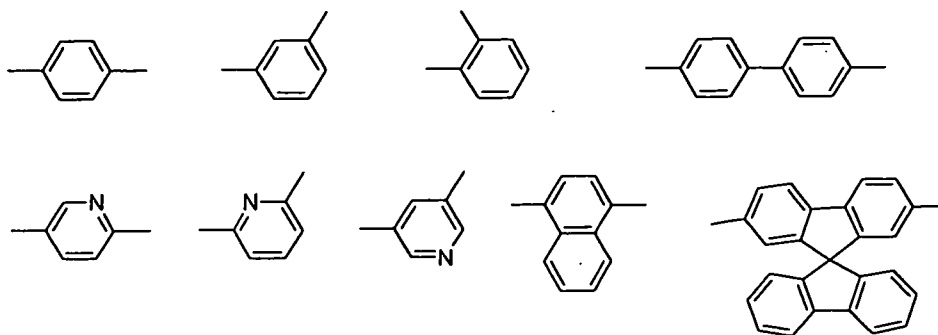
這些各基之具體例之理想的碳數及取代基係與前述 R 所說明者相同。

一般式 (I) ~ (III) 中， L 為可具有取代基之碳數 6~60 之伸芳基、可具有取代基之伸吡啶基、可具有取代

基之伸喹啉基或可具有取代基之伸苄基。

碳數 6~60 之伸芳基理想為碳數 6~40 之伸芳基，更理想為碳數 6~20 之伸芳基，具體而言，由前述 R 所說明之芳基中去除 1 個氫原子所形成之二價基。L 所示之各基之取代基係與前述 R 所說明者相同。

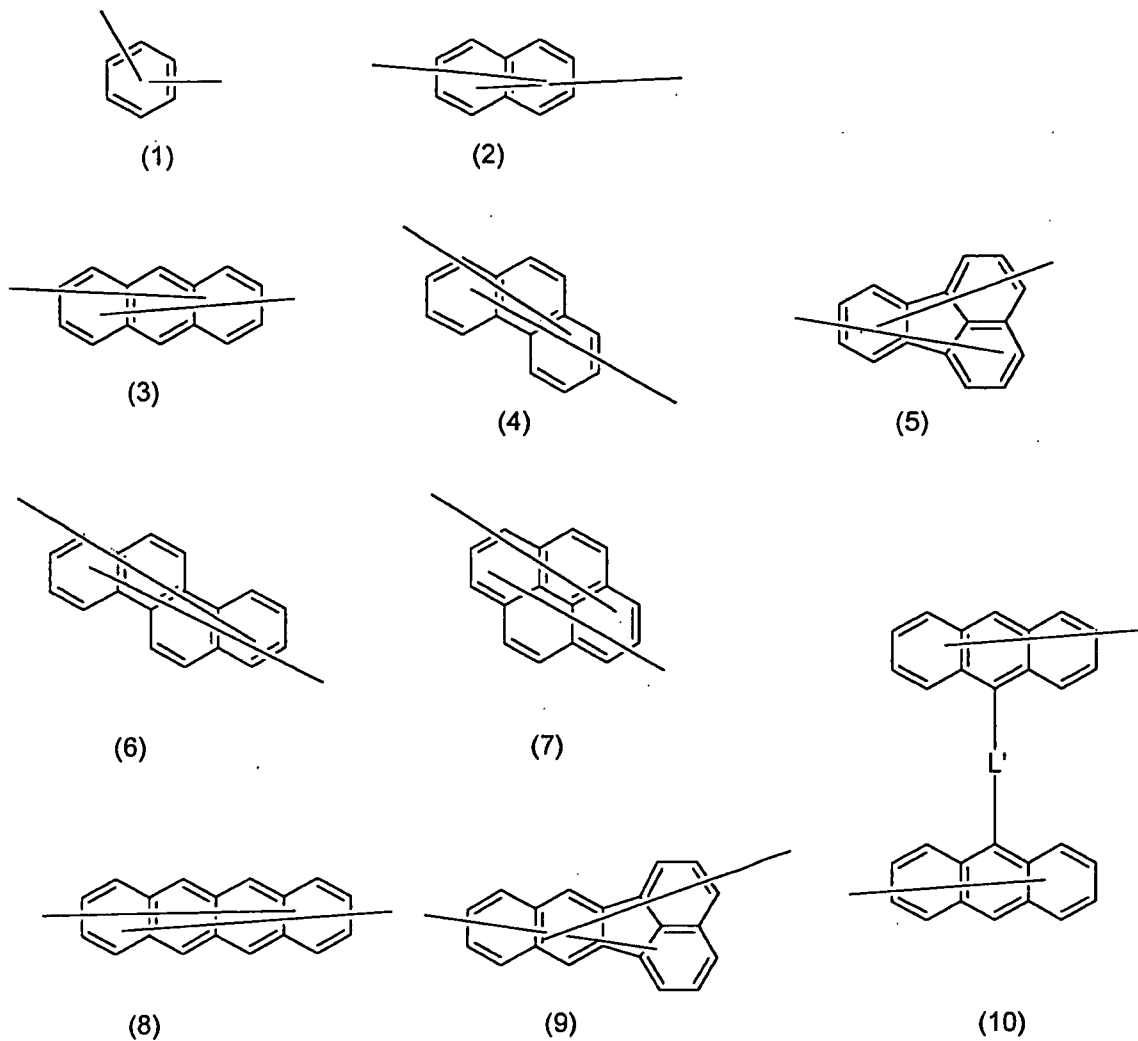
L 理想為選自



所成群之基。

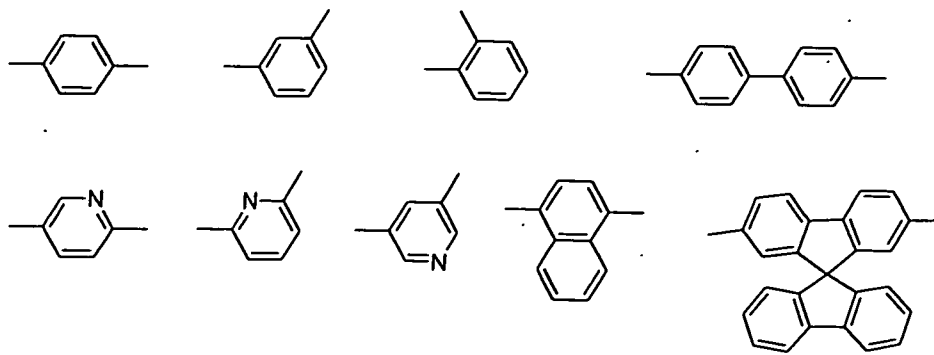
一般式(I)中， Ar^1 為可具有取代基之碳數 6~60 之伸芳基、可具有取代基之伸吡啶基或可具有取代基之伸喹啉基。 Ar^1 及 Ar^2 所示之各基之取代基係與前述 R 所說明者相同。

Ar^1 為選自下述一般式(1)~(10)表示之縮合環基中任一之基。



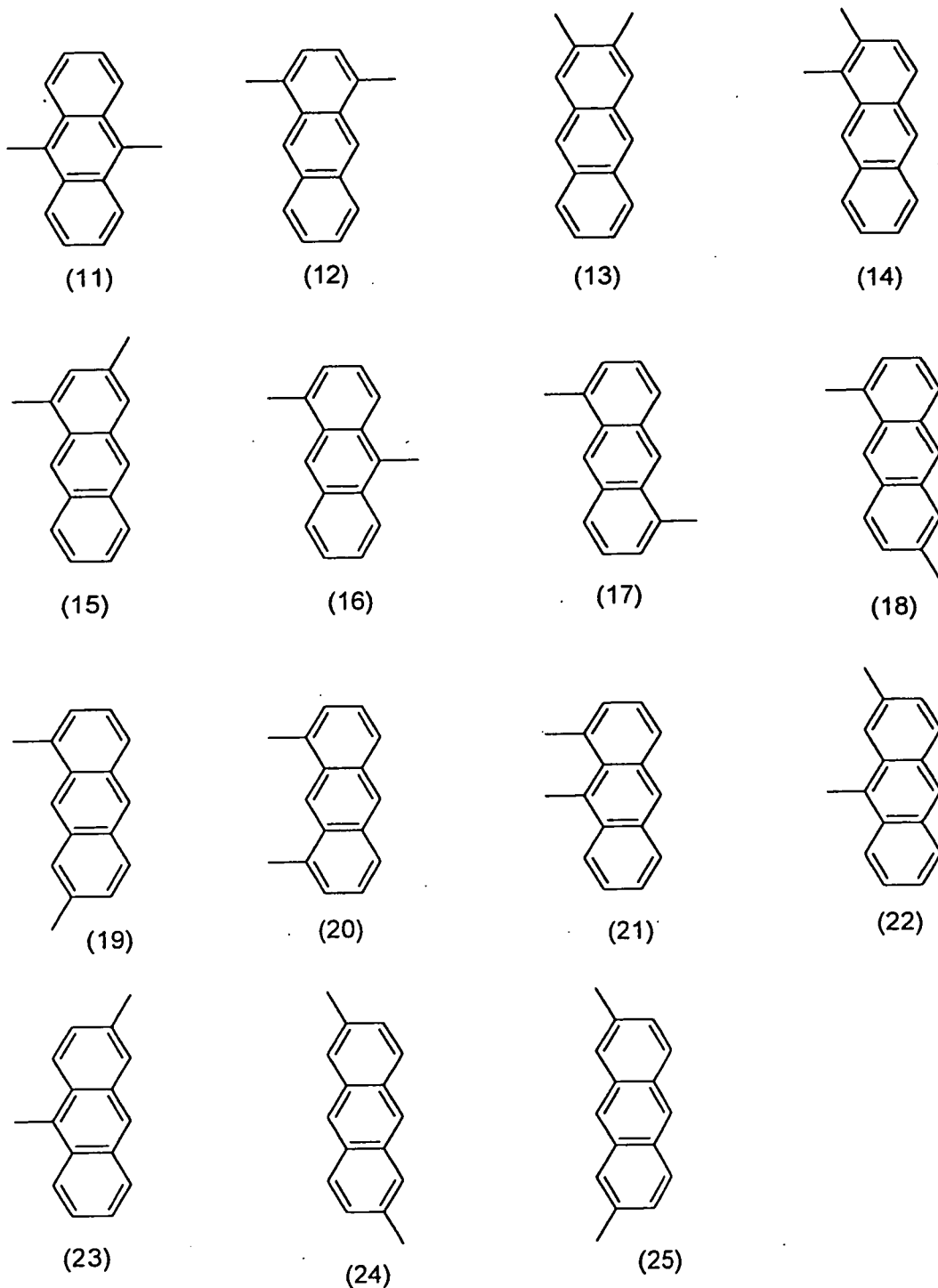
一般式(1)~(10)中，各縮合環為鹵原子、可具有取代基之碳數1~20之烷基、可具有取代基之碳數1~20之烷氧基、可具有取代基之碳數6~40之芳氧基、可具有取代基之碳數6~40之芳基或可具有取代基之碳數3~40之雜芳基所構成之連結基所連結，該連結基為多數時，該連結基彼此可相同。這些各基之具體例係與前述相同。

一般式(10)中，L'為單鍵、或選自



所成群之基。

Ar¹ 所示之一般式(3)為選自下述一般式(11)~(25)表示之縮合環基。



一般式(11)~(25)中，各縮合環為鹵原子、可具有取代基之碳數1~20之烷基、可具有取代基之碳數1~20之烷氧基、可具有取代基之碳數6~40之芳氧基、可具有取代基之碳數6~40之芳基或可具有取代基之碳數3~40之雜芳基所構成之連結基所連結，該連結基為多數時，該連結基彼此可相同。這些各基之具體例係與前述相同。

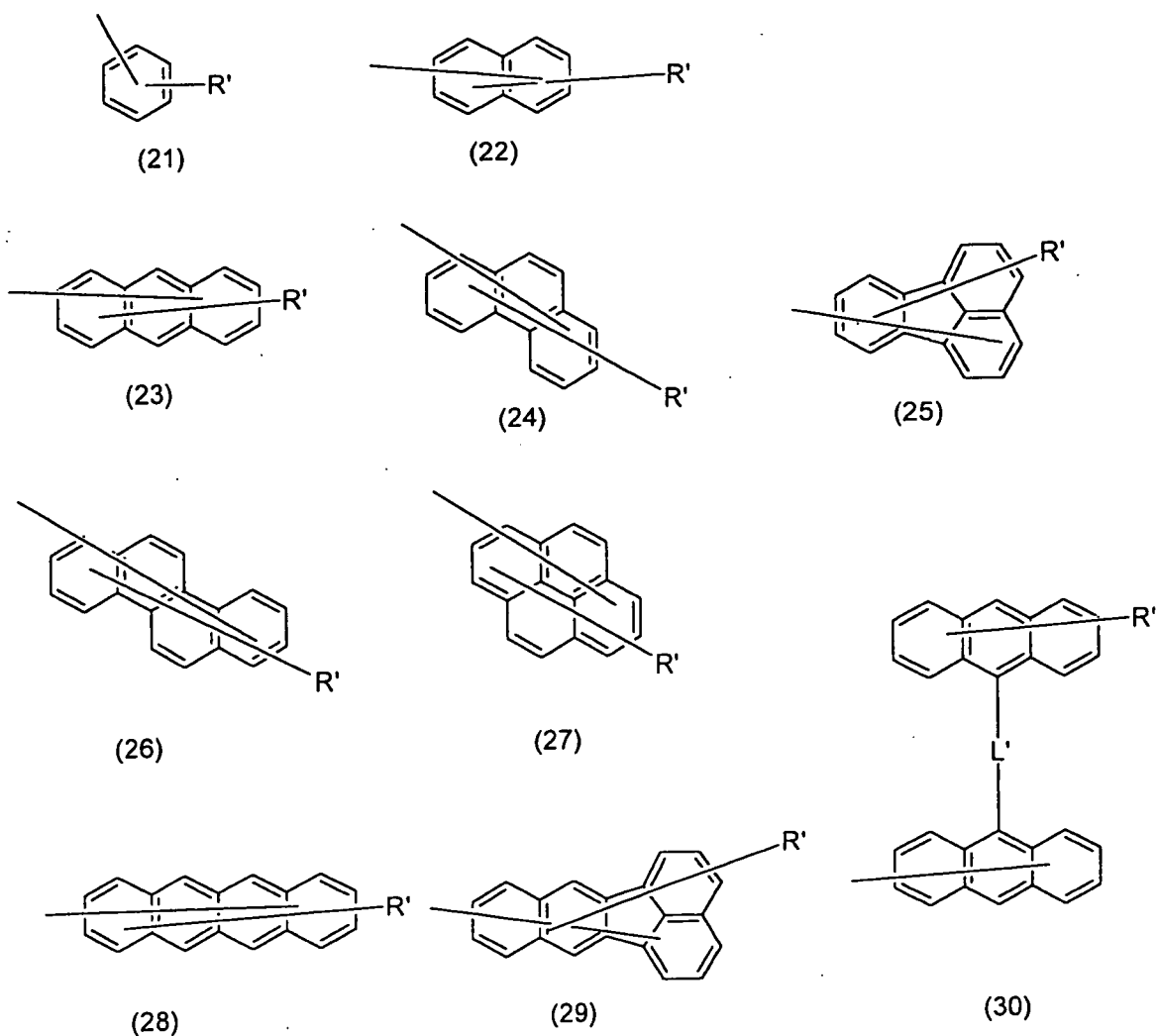
一般式(I)中， Ar^2 為可具有取代基之碳數 6~60 之芳基、可具有取代基之吡啶基、可具有取代基之喹啉基、可具有取代基之碳數 1~20 之烷基或碳數 1~20 之烷氧基。

這些各基之具體例之理想的碳數及取代基係與前述 R 所說明者相同。

一般式(II)及(III)中， Ar^3 為可具有取代基之碳數 6~60 之芳基、可具有取代基之吡啶基、可具有取代基之喹啉基、可具有取代基之碳數 1~20 之烷基、可具有取代基之碳數 1~20 之烷氧基，或 $-Ar^1-Ar^2$ 係表示之基（但是 Ar^1 及 Ar^2 係分別與前述相同）。

這些各基之具體例之理想的碳數及取代基係與前述 R 所說明者相同。

Ar^3 為選自下述一般式(21)~(30)表示之縮合環基中任一之基。

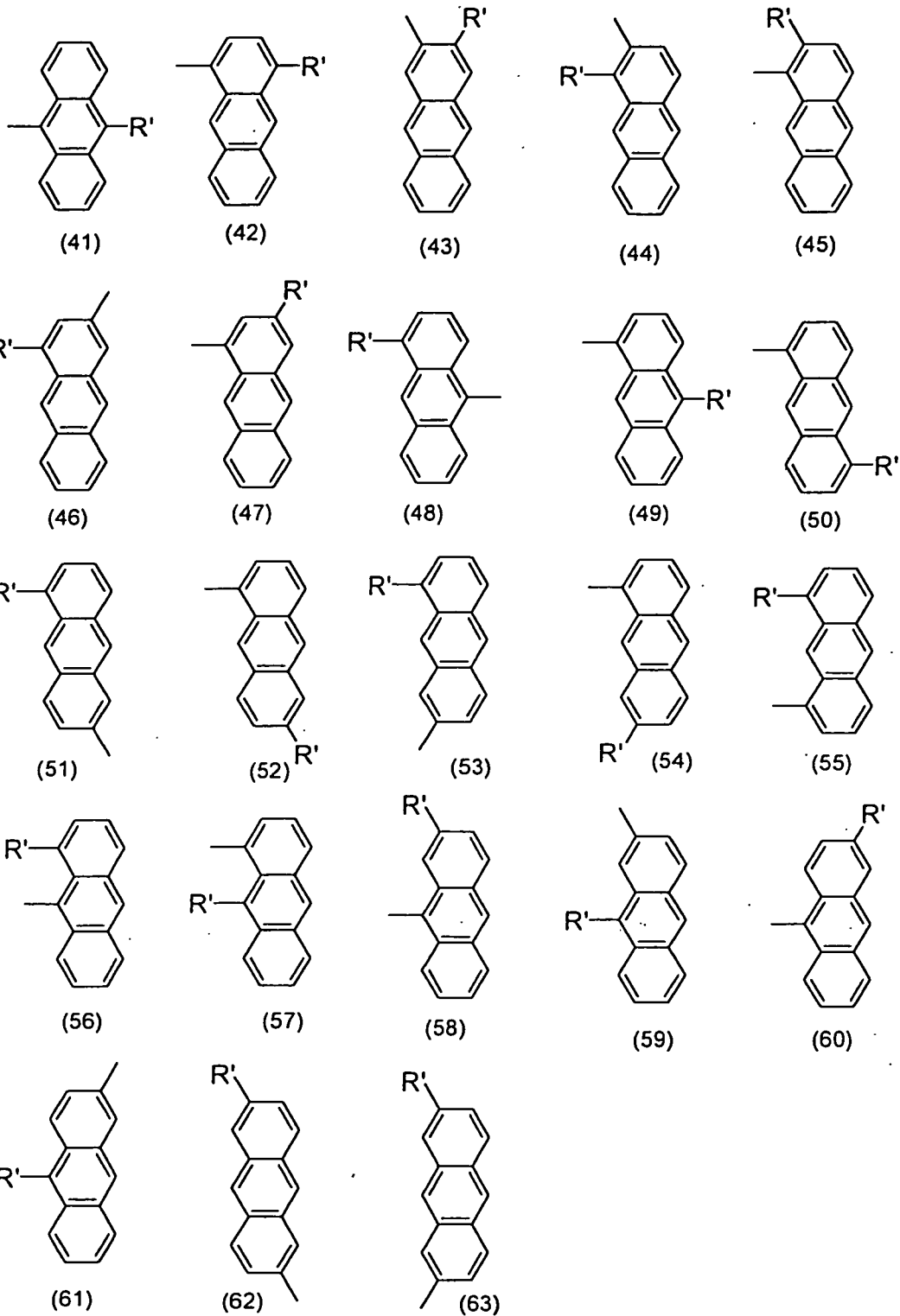


一般式(21)~(30)中，各縮合環為鹵原子、可具有取代基之碳數1~20之烷基、可具有取代基之碳數1~20之烷氧基、可具有取代基之碳數6~40之芳氧基、可具有取代基之碳數6~40之芳基或可具有取代基之碳數3~40之雜芳基所構成之連結基所連結，該連結基為多數時，該連結基彼此可相同。這些各基之具體例係與前述相同。

一般式(30)中，L'係與前述相同。

一般式(21)~(30)中，R'為氫原子、可具有取代基之碳數1~20之烷基、可具有取代基之碳數6~40之芳基或可具有取代基之碳數3~40之雜芳基。這些各基之具體例係與前述相同。

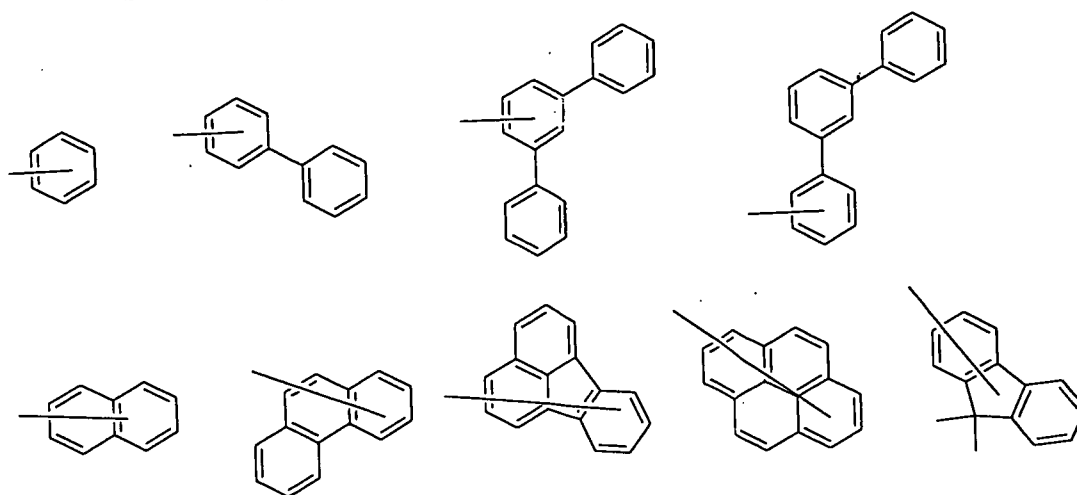
Ar^3 所示之一般式 (23) 為選自下述一般式 (41) ~ (63) 表示之縮合環基。



一般式 (41) ~ (63) 中，各縮合環為鹵原子、可具有取代基之碳數 1 ~ 20 之烷基、可具有取代基之碳數 1 ~ 20 之

烷氧基、可具有取代基之碳數 6~40 之芳氧基、可具有取代基之碳數 6~40 之芳基或可具有取代基之碳數 3~40 之雜芳基所構成之連結基所連結，該連結基為多數時，該連結基彼此可相同。這些各基之具體例係與前述相同。R'係與前述相同。

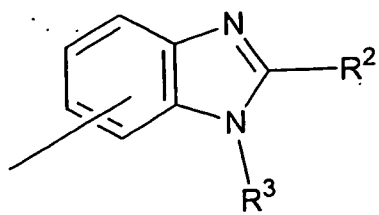
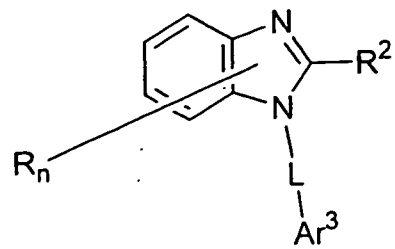
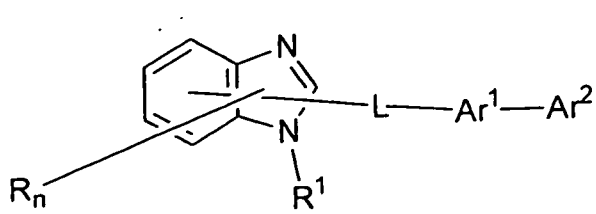
Ar² 及 Ar³ 係選自分別獨立之

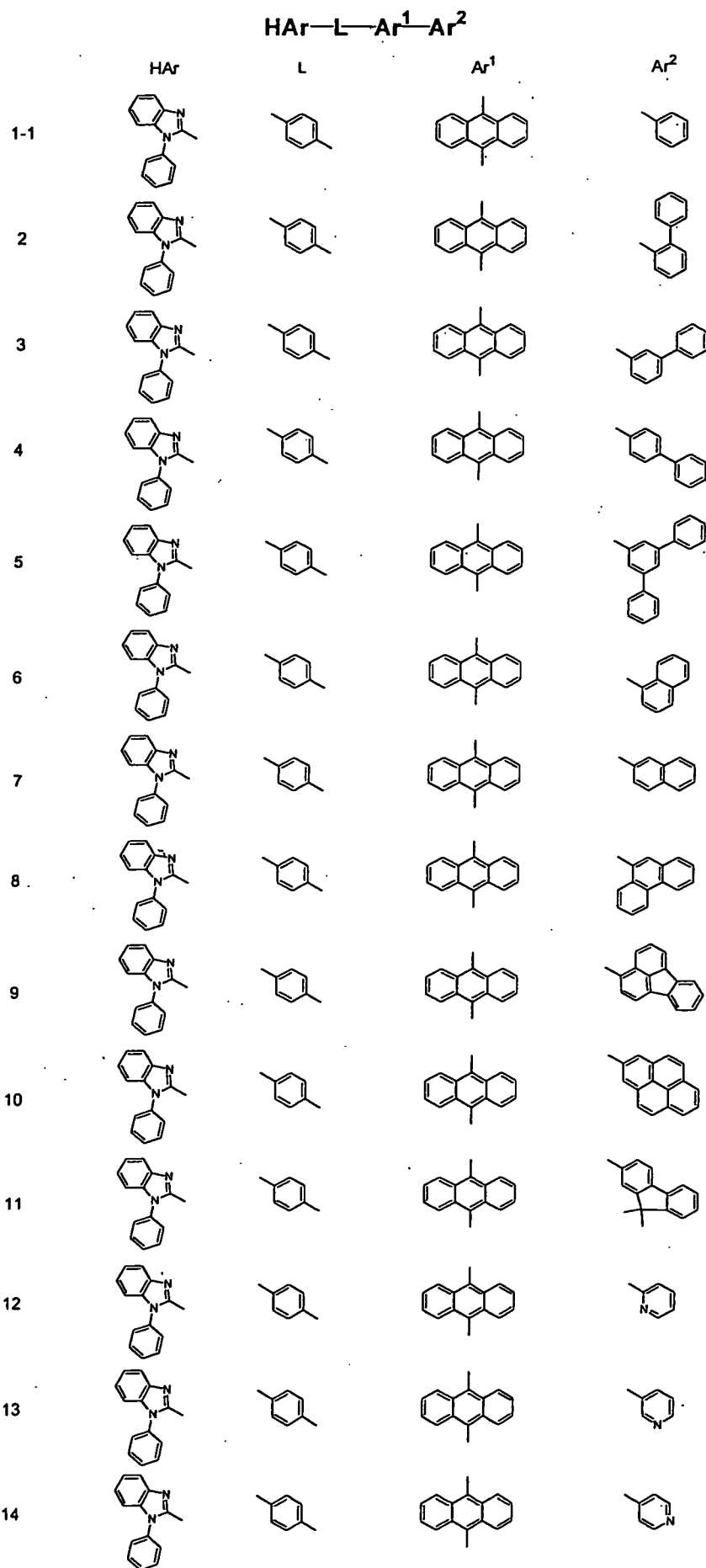


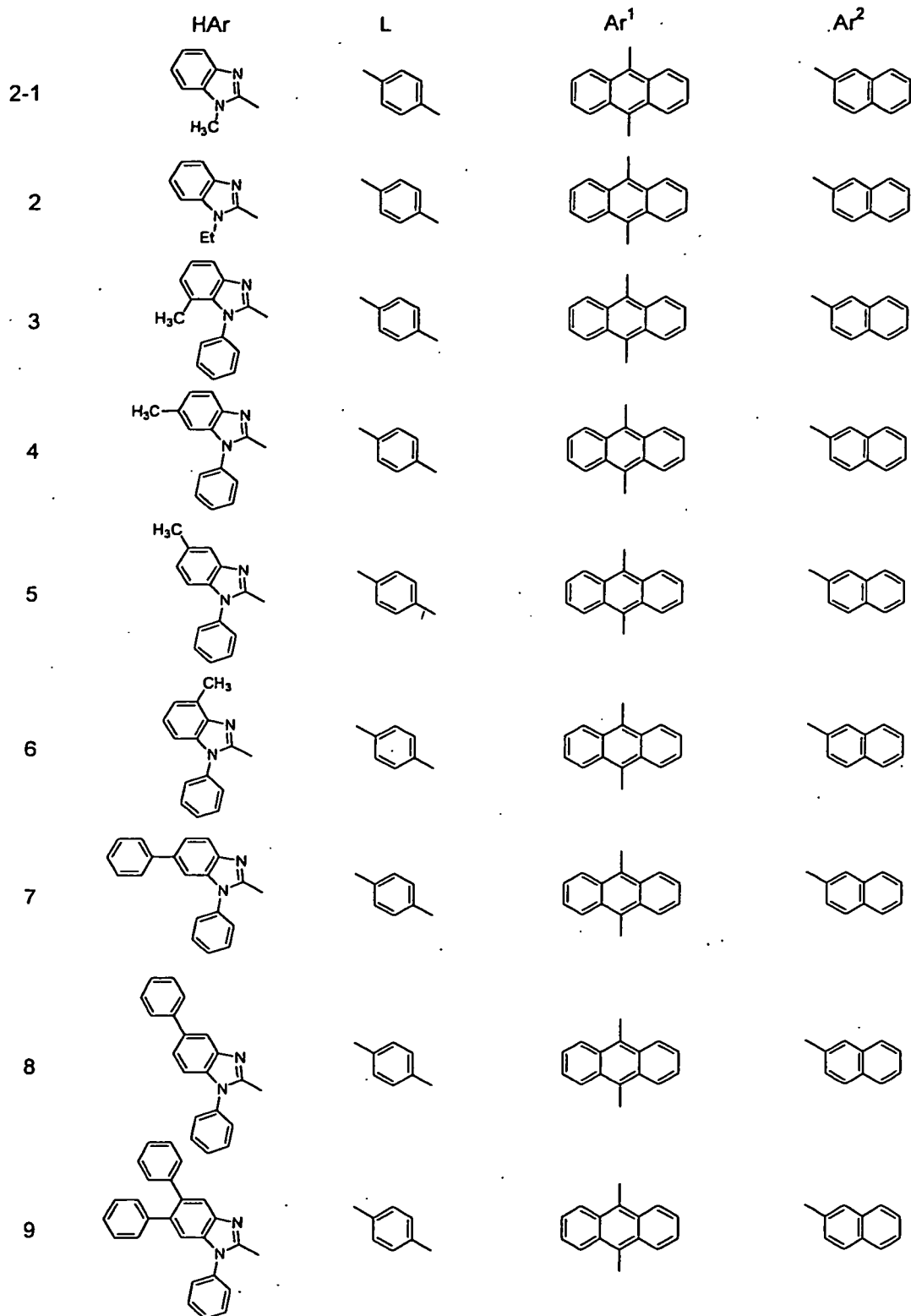
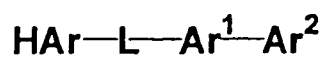
所成群之基。

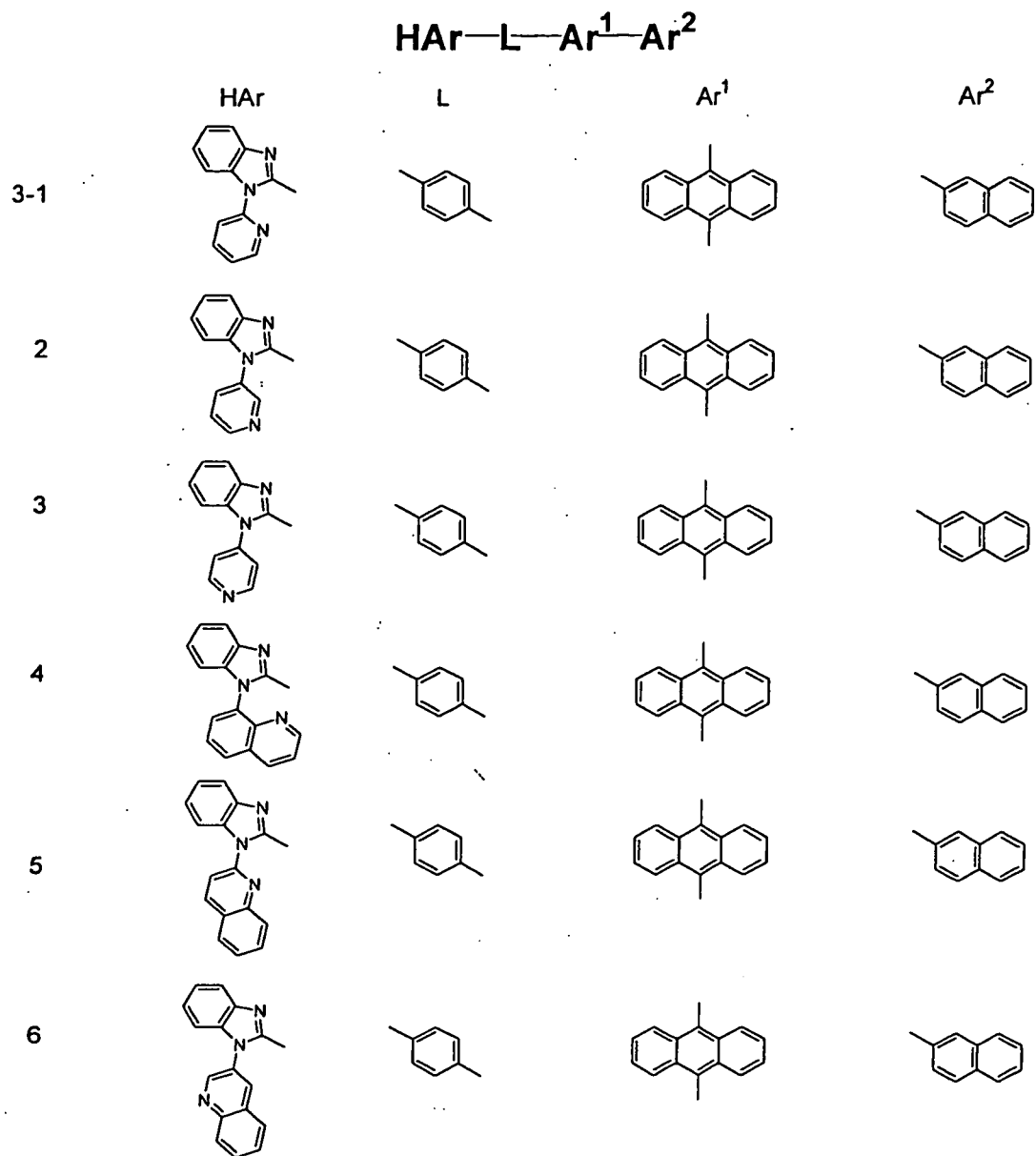
本發明之以一般式 (I) ~ (III) 表示之新穎含氮雜環衍生物之具體例如下數，但是本發明不受這些例示之化合物所限定。

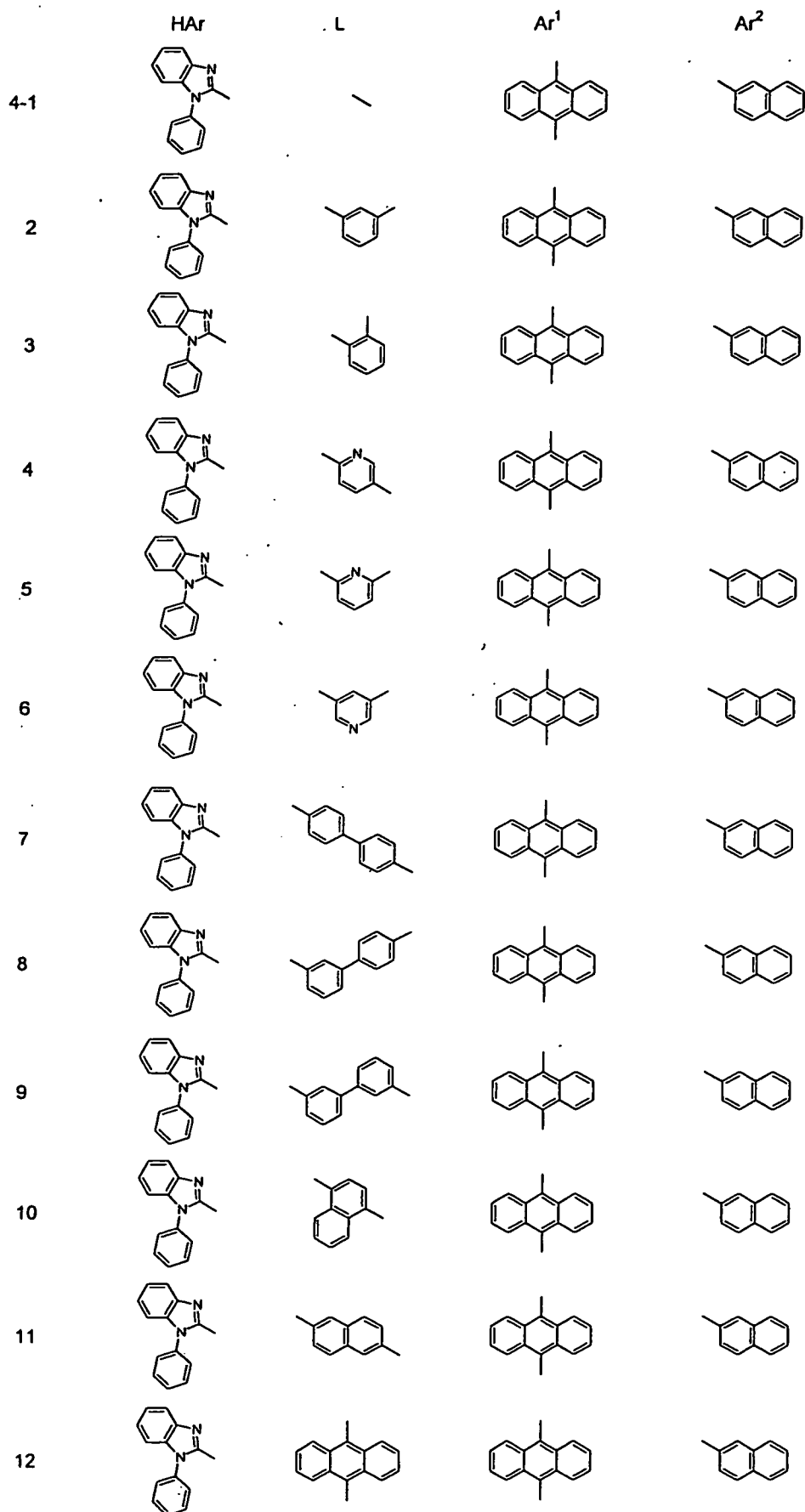
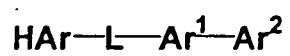
下述中，HAr 係一般式 (I) ~ (III) 之

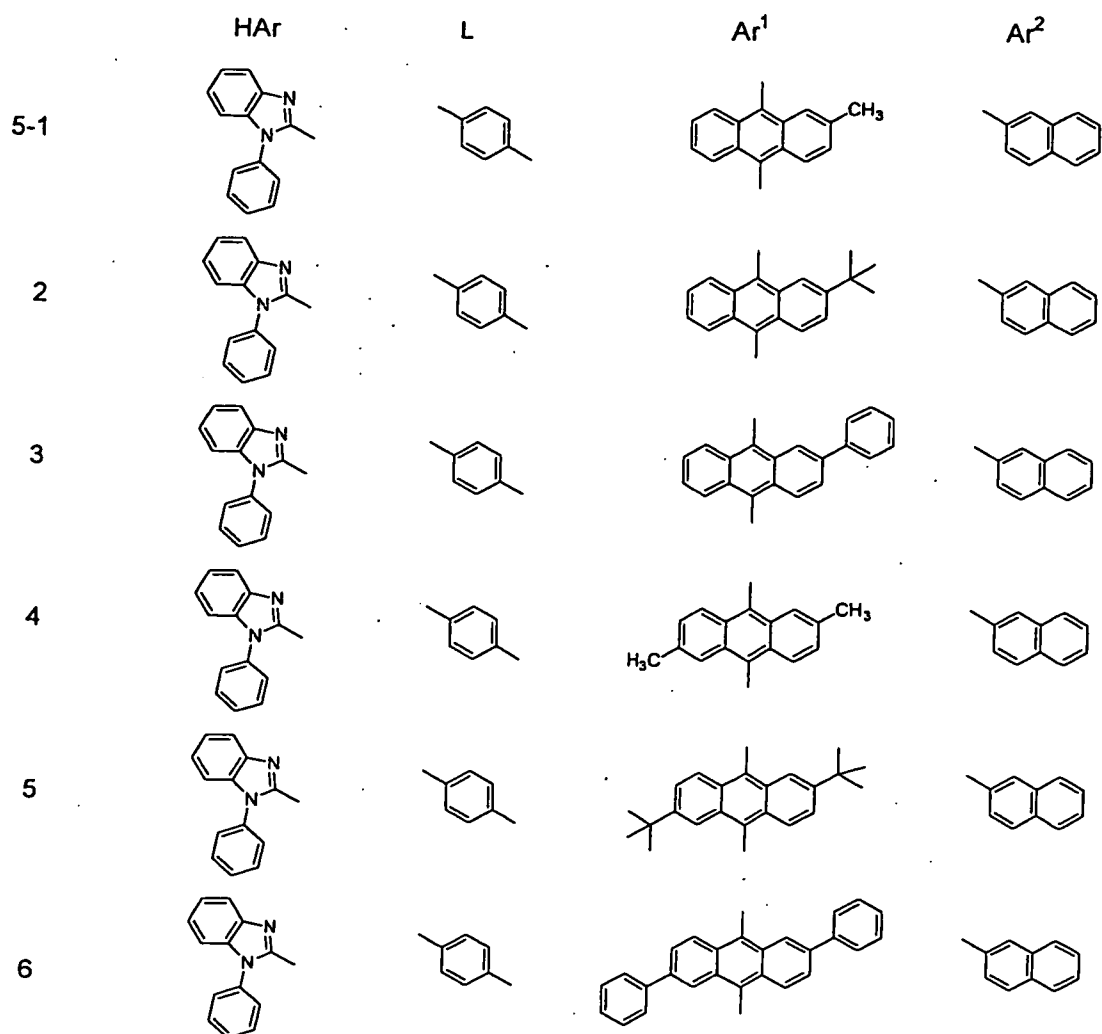
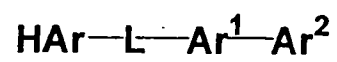


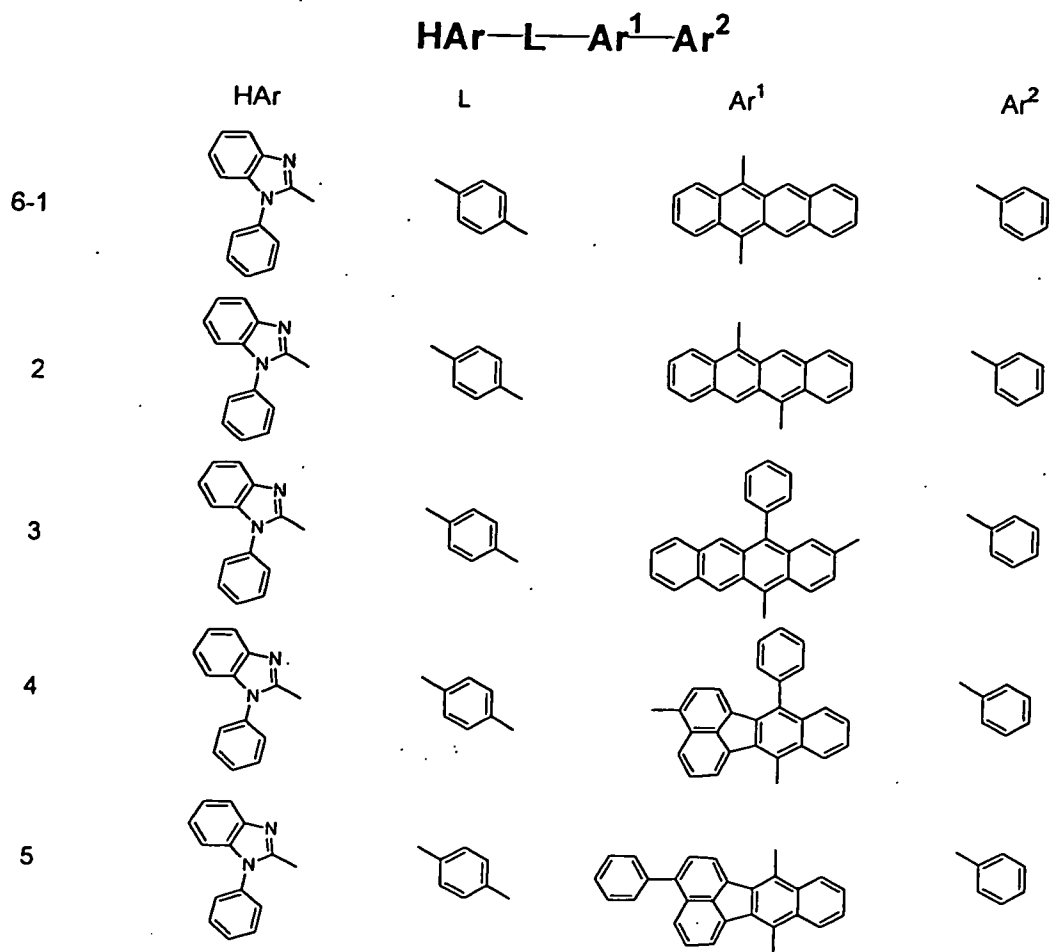


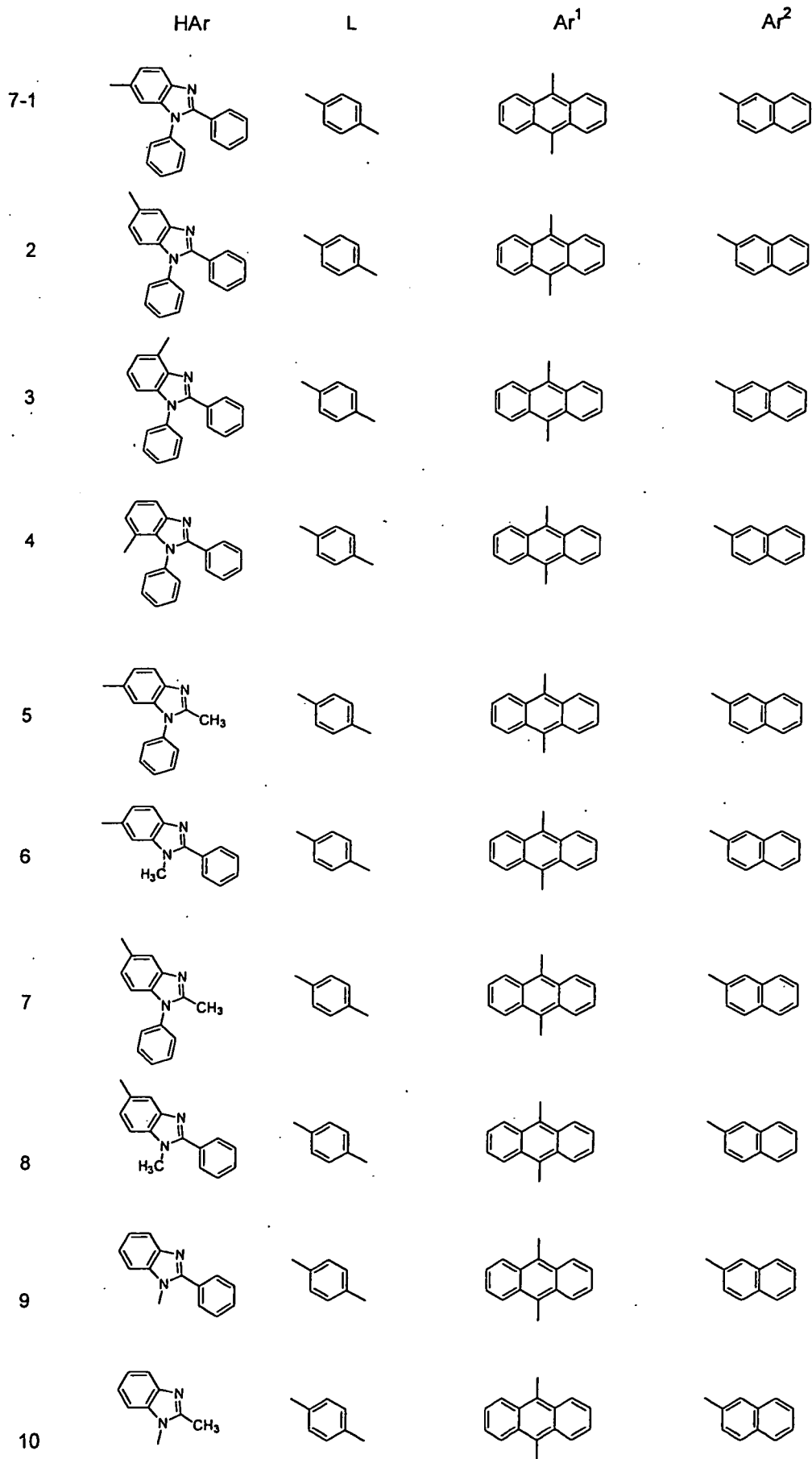
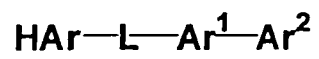


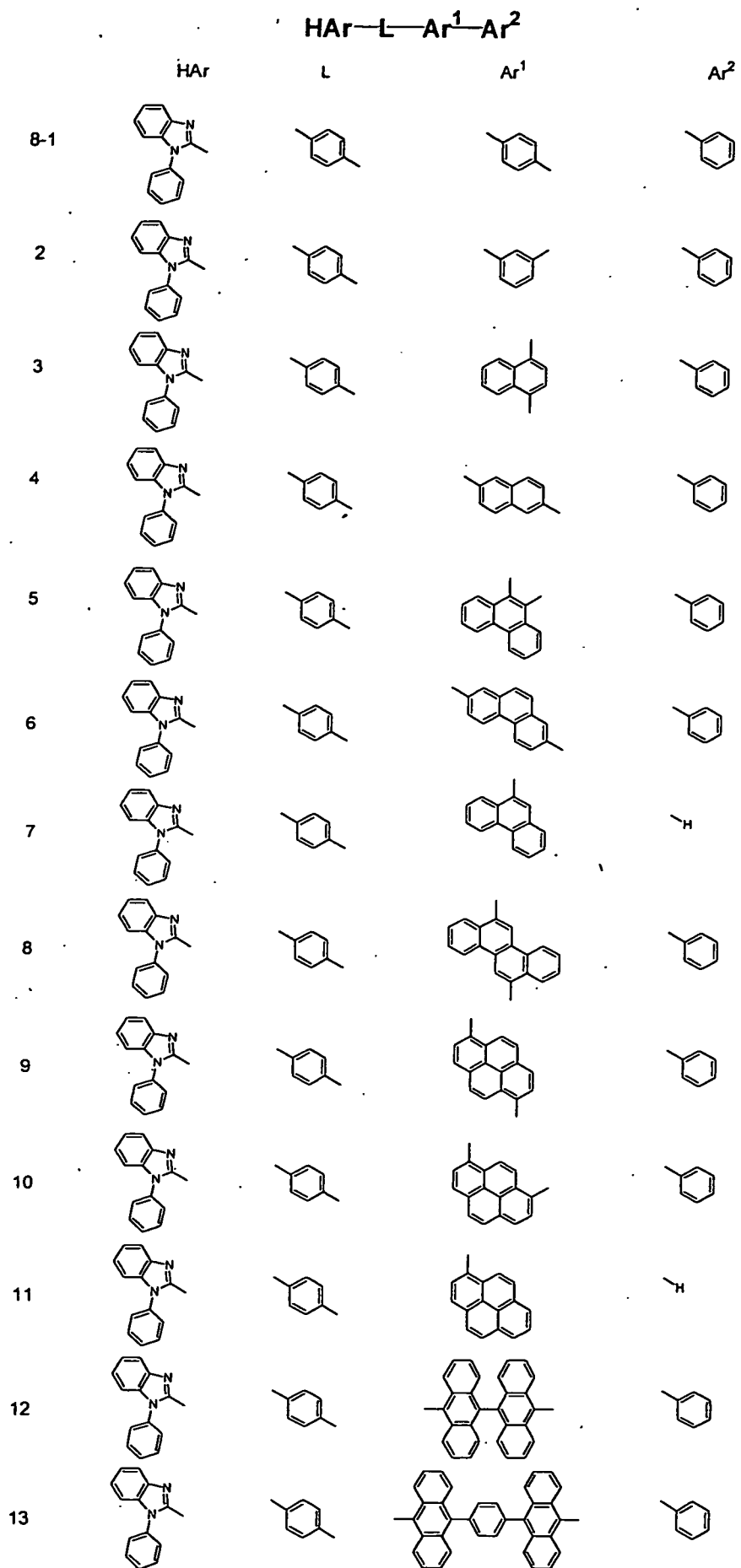


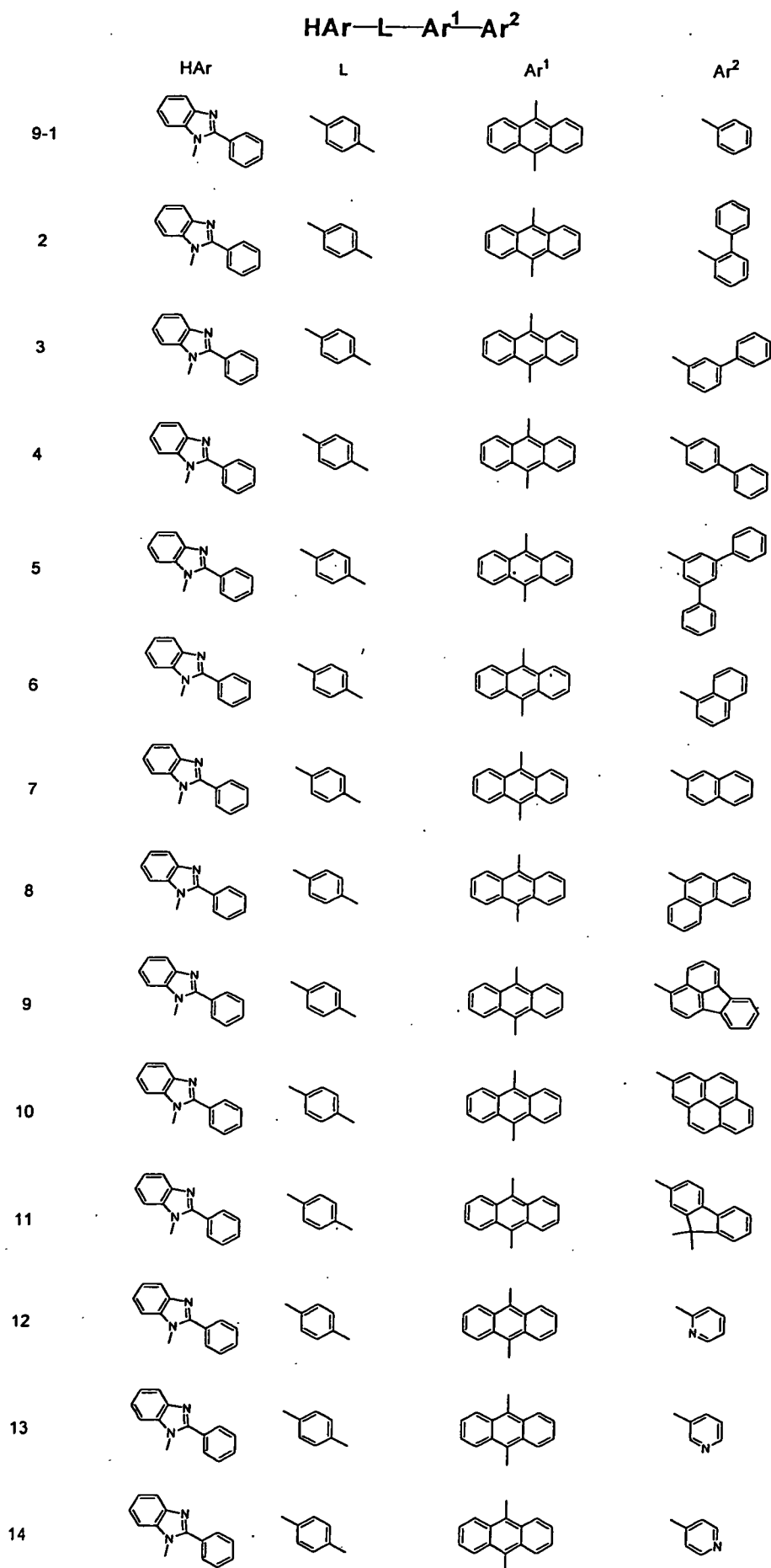


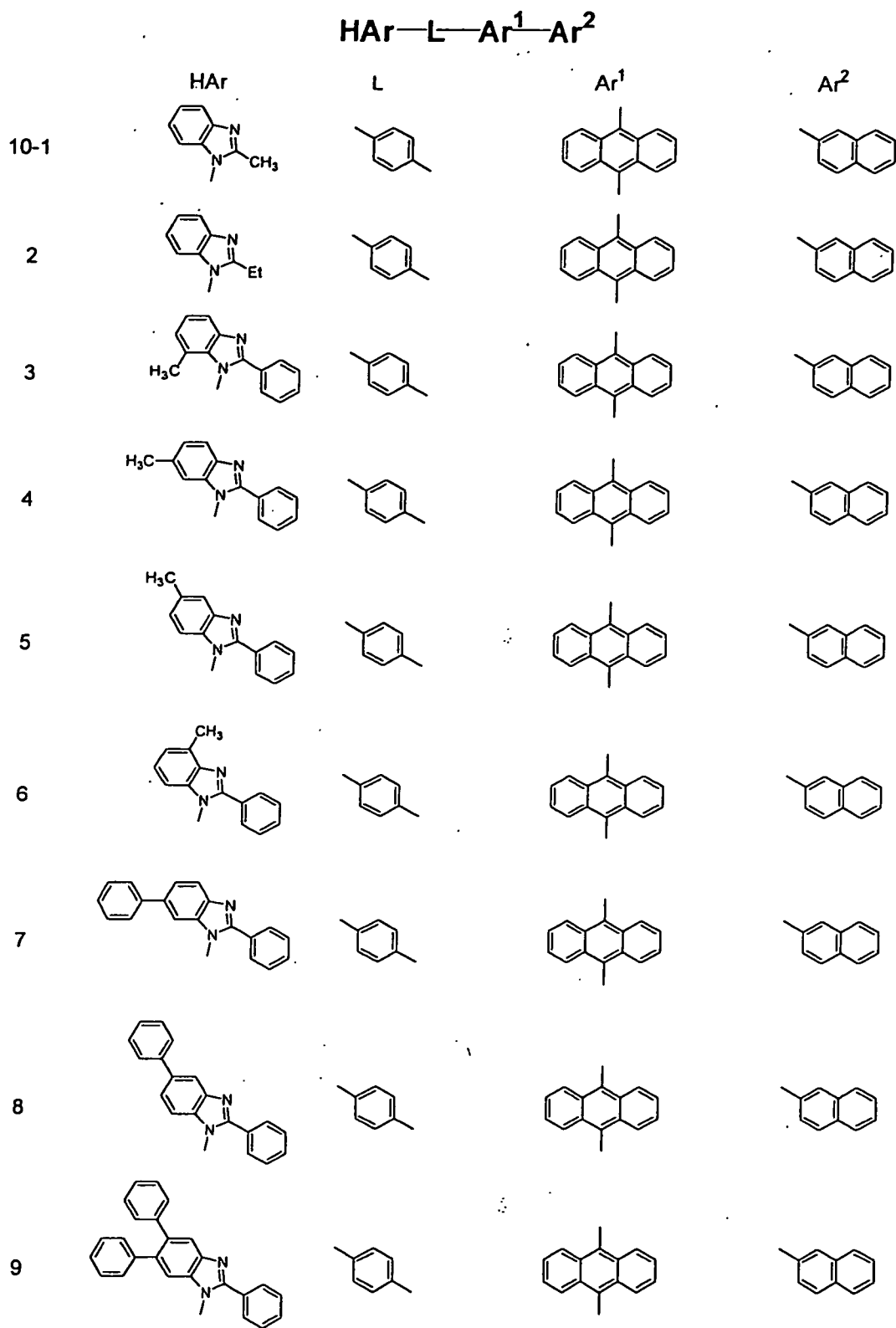


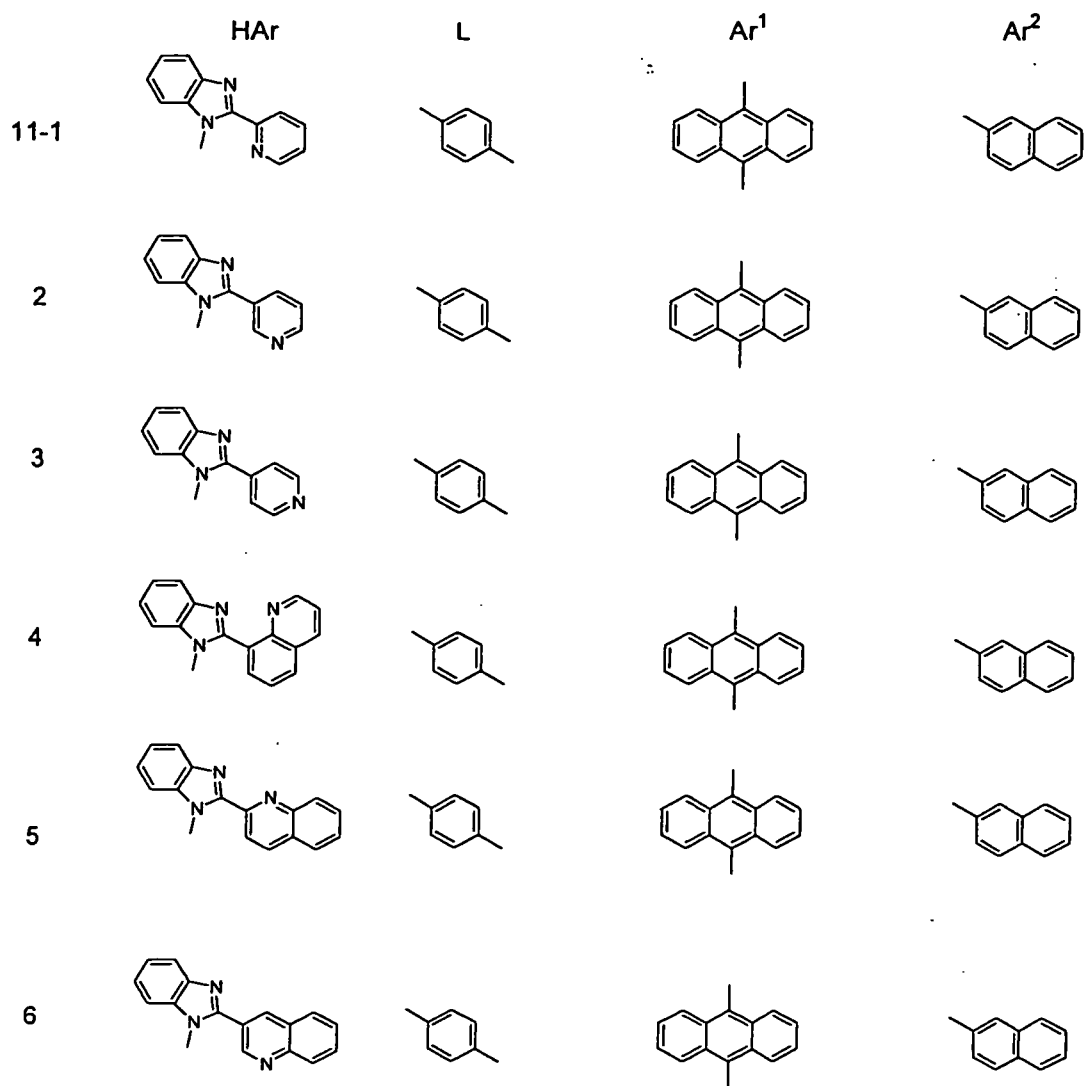
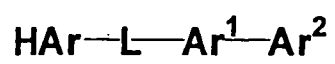


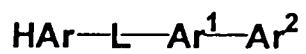


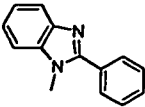

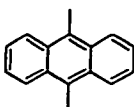
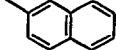
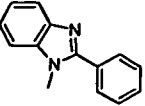

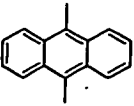
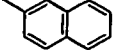
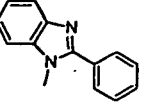

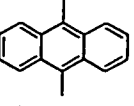
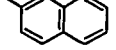
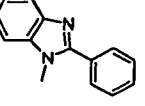

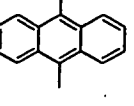
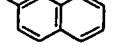
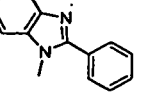

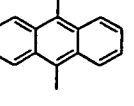
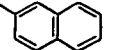
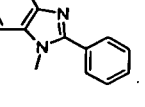
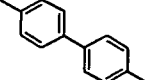
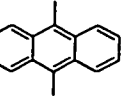
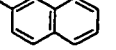
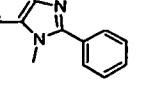
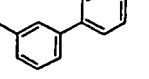
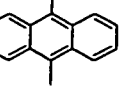
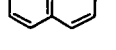
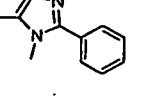
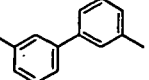
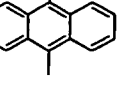
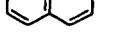
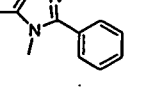

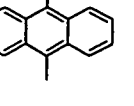
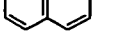
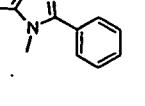
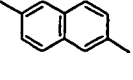
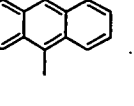
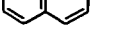
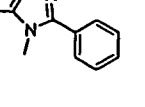
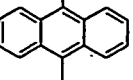
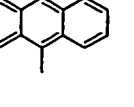
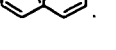


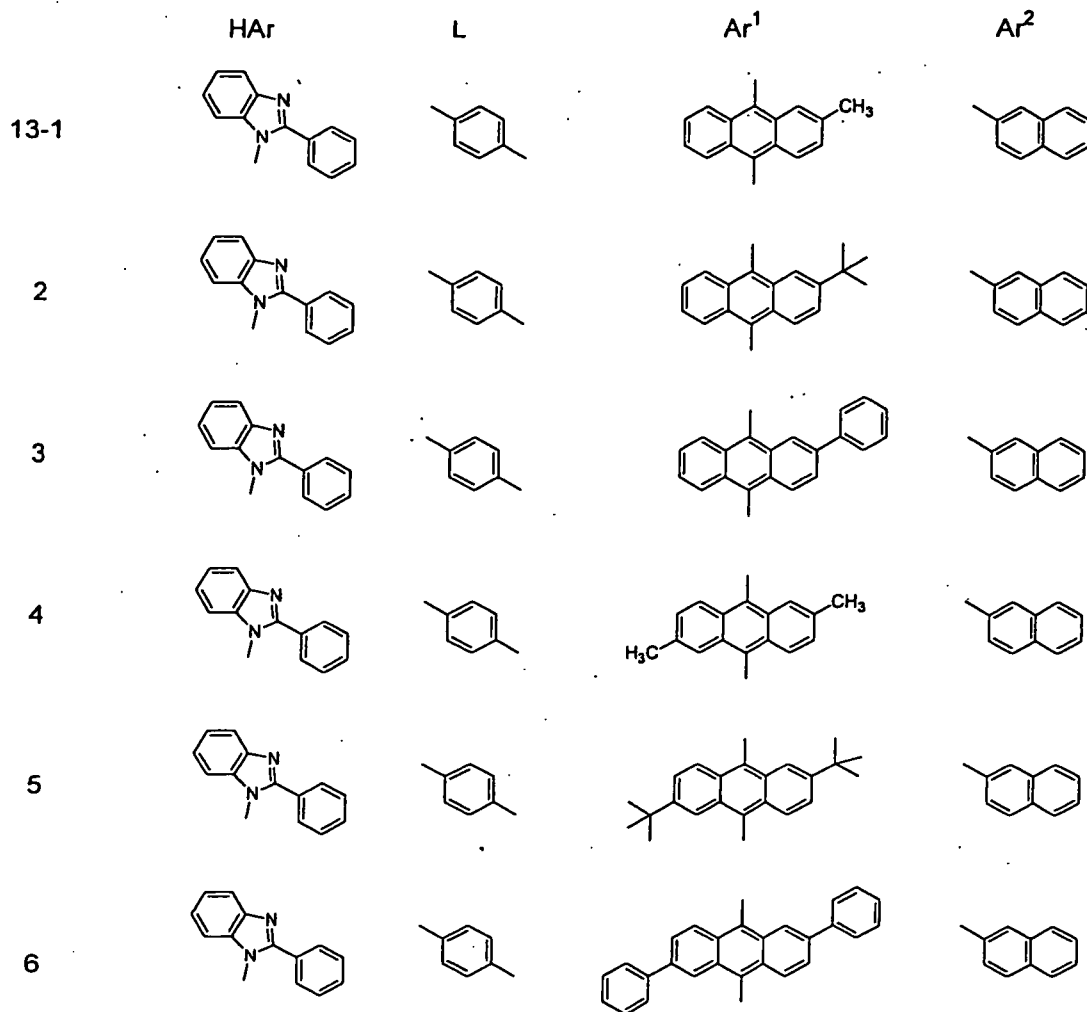
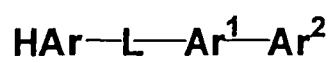


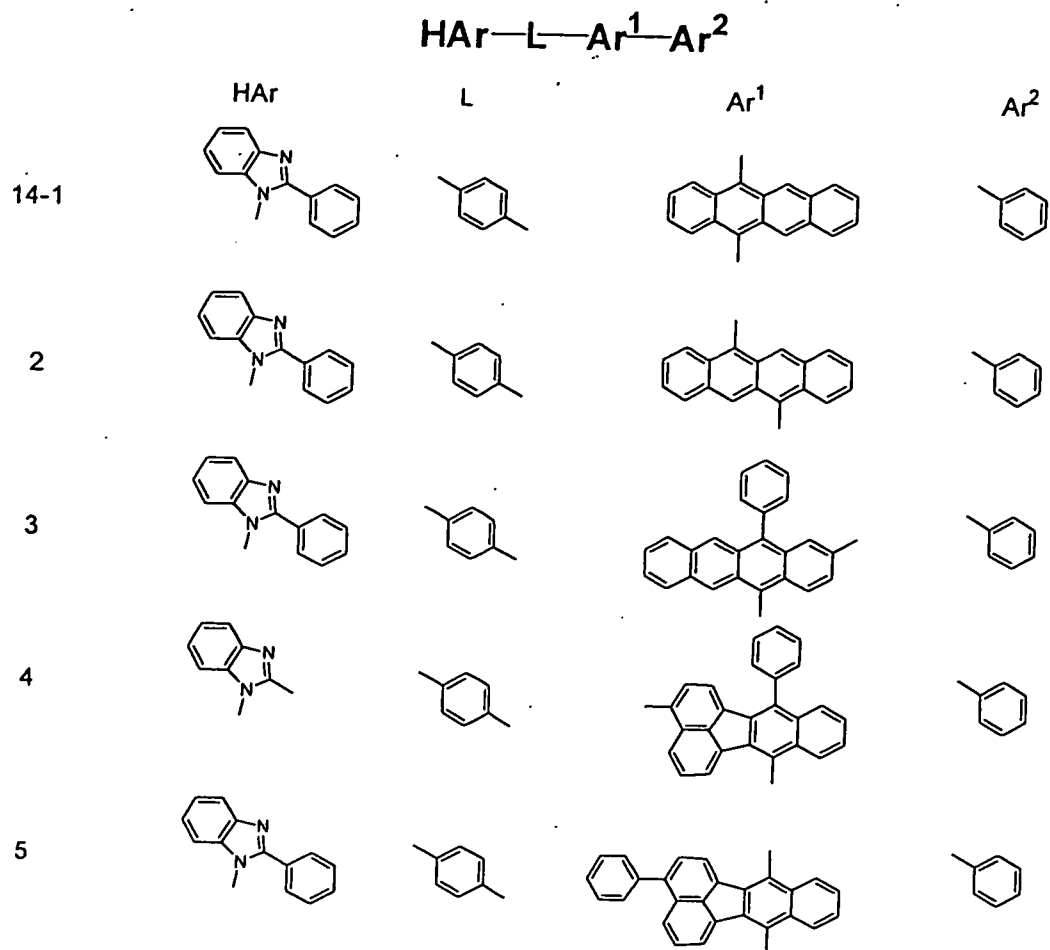


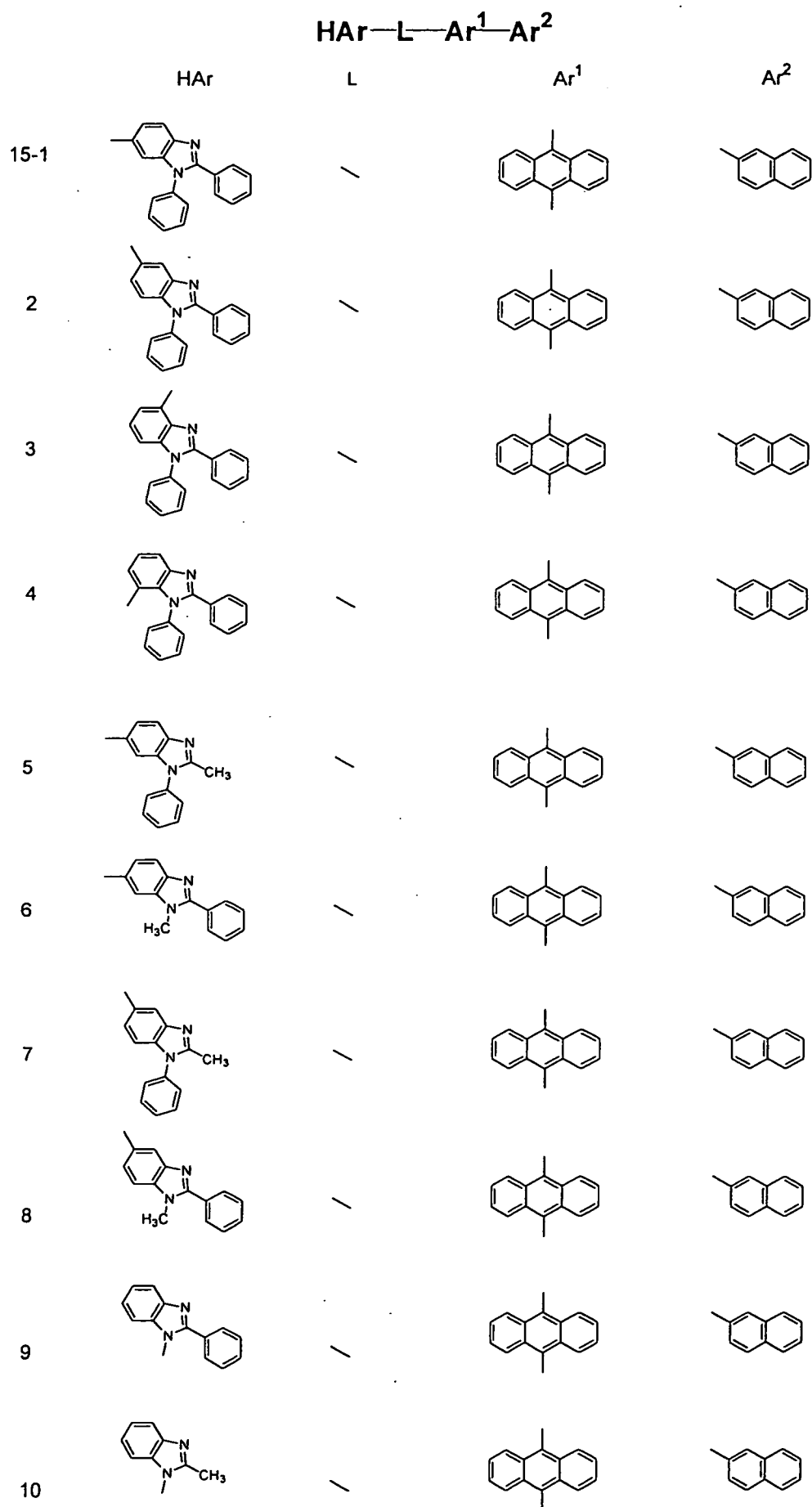


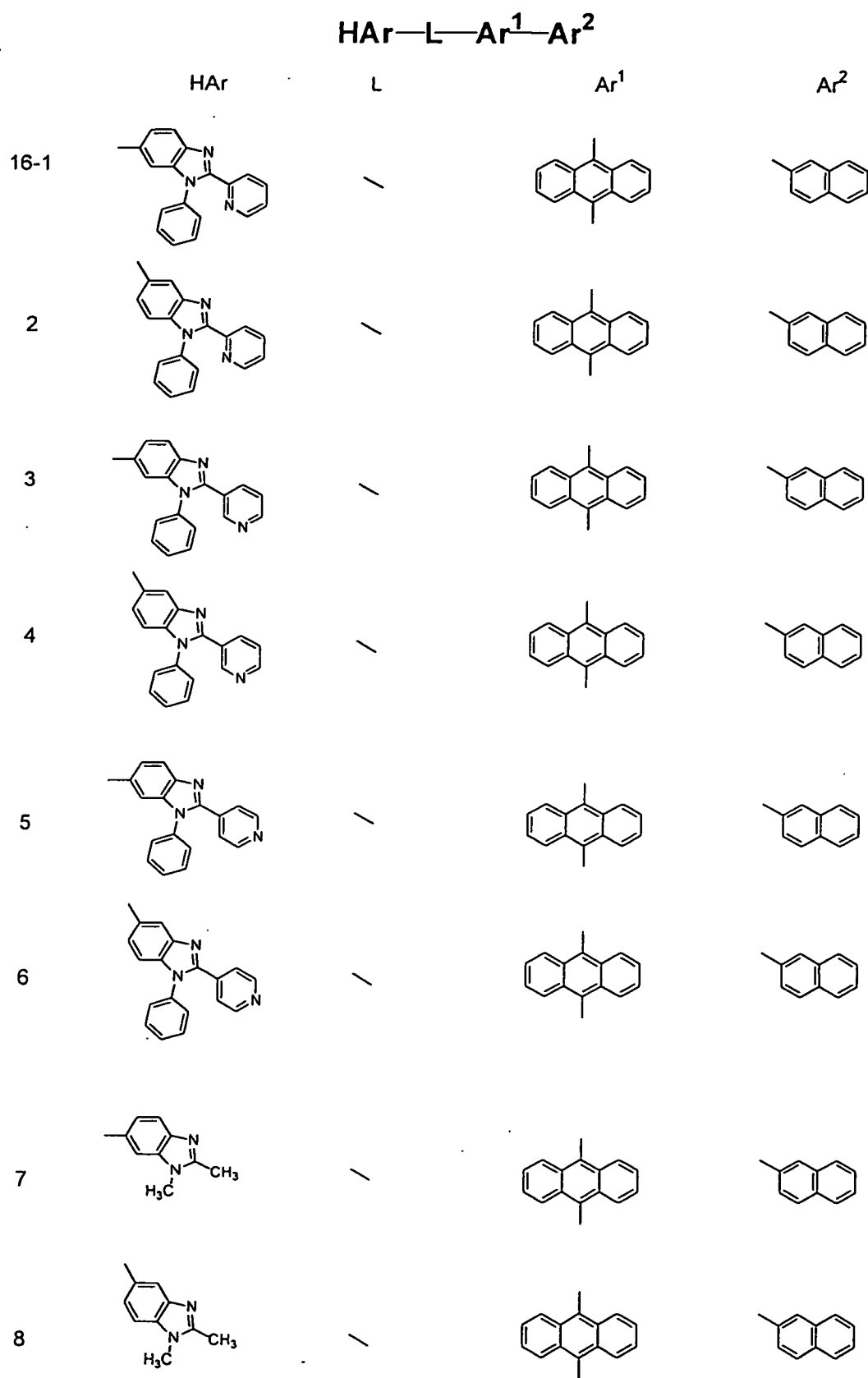


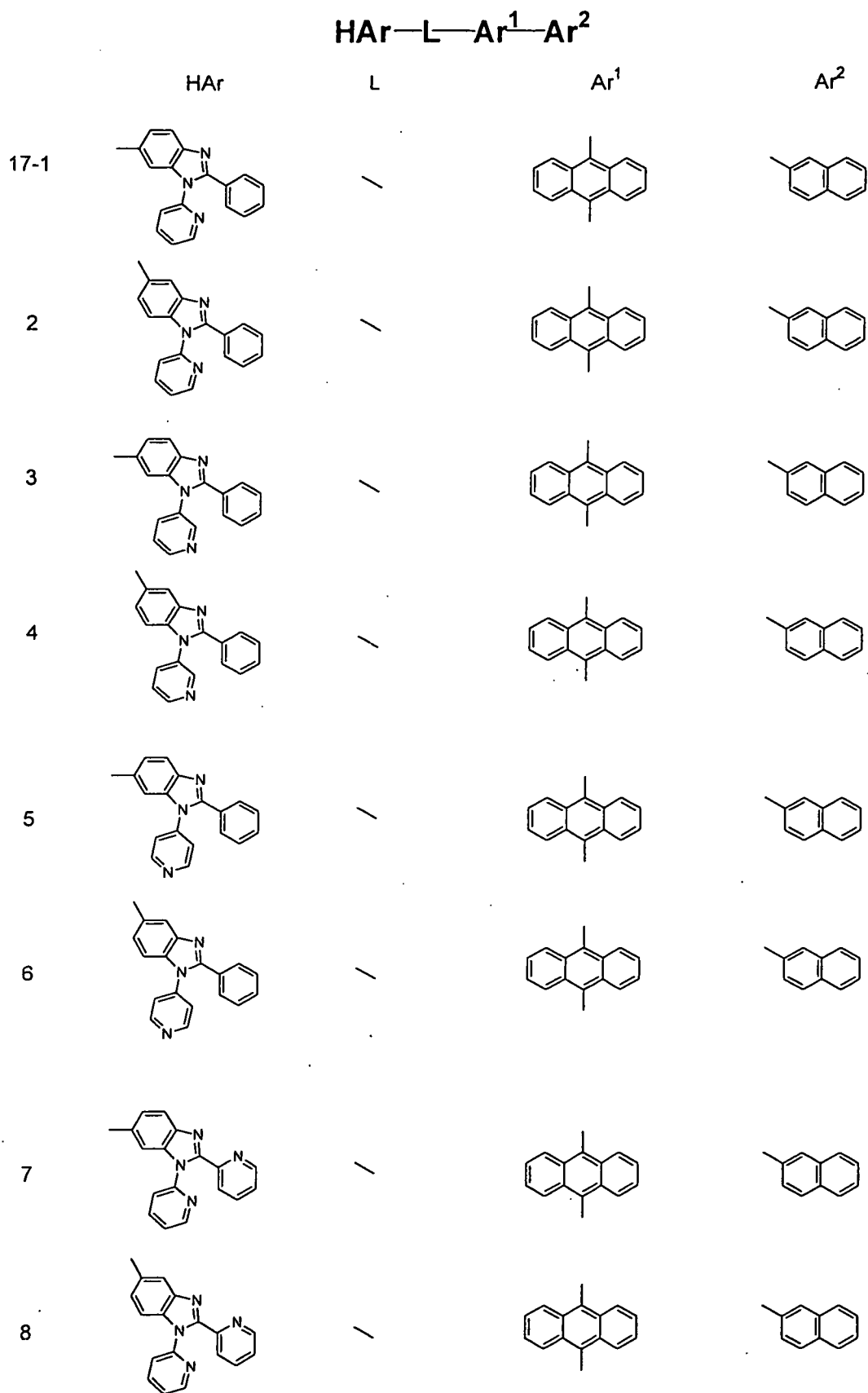
	HAr	L	Ar ¹	Ar ²
12-1				
2				
3				
4				
5				
6				
7				
8				
9				
10				
11				











上述具體例中，特別理想者為(1-1)、(1-5)、(1-7)、
(2-1)、(3-1)、(4-2)、(4-6)、(7-2)、(7-7)、(7-8)、(7-

9)、(9-7)。

本發明之一般式 (I) 、 (II) 或 (III) 表示含氮雜環衍生物，可作為有機電致發光元件用材料使用。

有機 EL 元件之有機化合物層之至少一層中含有本發明之含氮雜環衍生物，可得到比以往更低電壓、更高亮度及更高效率之發光。

本發明之含氮雜環衍生物用於有機 EL 元件之發光帶域、發光層及/或電子傳輸層（電子注入層）較佳。特別是本發明之含氮雜環衍生物作為電子注入材料及/或電子傳輸材料使用較佳。含有電子注入材料及/或電子傳輸材料之層含有還原性摻雜劑較佳。

發光帶域係指含有將電場施加於有機 EL 元件時，會發光之發光材料之整個部分。目前，有機 EL 元件一般係具有由具有不同功能或功用之材料所構成之各薄膜經層合所成的構造，發光材料大部分僅存在於被稱為發光層之有機薄膜層中。此時發光層相當於發光帶域。關於發光層、電子傳輸層、電子注入材料如下述。

以下，說明本發明之有機 EL 元件。

本發明之有機 EL 元件係具有被夾於一對之電極間，且含有發光層之至少一層之有機化合物層之有機 EL 元件，其特徵係該有機化合物層之至少一層中含有前述本發明之以一般式 (I) 、 (II) 及 (III) 表示之含氮雜環衍生物中之至少一種。

本發明之有機 EL 元件係有機化合物層中至少一層含

有前述本發明化合物者，其元件構成例如有

陽極／電洞注入層／發光層／電子注入層／陰極型

陽極／發光層／電洞注入層／陰極型

陽極／電洞注入層／發光層／陰極型

陽極／發光層／陰極型等，但不受此限定。

本發明之有機 EL 元件中，本發明化合物作為構成發光層及/或電子注入層之材料使用較理想。元件構成中，不一定需要電洞注入層或電子注入層，但是具有這些層之元件具有提高發光性能之優點。上述電洞注入層、發光層、電子注入層可以混合的形態挾於一對電極間。為了使各構成成分安定，可使用高分子化合物等之黏結劑，製作混合層。

此處以陽極/電洞注入層/發光層/電子注入層/陰極型為例說明本發明之有機 EL 元件。本發明之有機 EL 元件以基板支撐較佳。此基板無特別限定，可使用習知有機 EL 元件慣用的基板，例如可使用玻璃、透明塑膠、石英等所構成的基板。

此有機 EL 元件之陽極理想為使用以功函數較大(4eV 以上)之金屬、合金、電傳導性化合物或其混合物為電極物質者。這種電極物質之具體例有 Au 等之金屬、CuI、ITO、SnO₂、ZnO 等之導電性透明材料。將這些電極物質以蒸鍍法或濺鍍法等方法形成薄膜，可製作陽極。由陽極側取得發光時，穿透率大於 10% 較佳，電極之薄片電阻為數百 Ω/□ 以下較佳。陽極之膜厚係因材料而異，通常

為 $10\text{nm} \sim 1\mu\text{m}$ ，較佳為 $10 \sim 200\text{nm}$ 之範圍。

陰極可使用以功函數較小 (4eV 以下) 之金屬、合金、電傳導性化合物及其混合物為電極物質者。這種電極物質之具體列有鈉、鈉-鉀合金、鎂、鎂-銀合金、鋰、鎂/銅混合物、鎂-銻合金、 $\text{Al}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 、銻、鋁-鋰合金等。將這些電極物質以蒸鍍或濺鍍等方法形成薄膜可製作該陰極。陰極之薄片電阻為數百 Ω/\square 以下較佳，膜厚通常為 $10 \sim 500\text{nm}$ ，理想為 $50 \sim 200\text{nm}$ 。為了使發光穿透，因此有機 EL 元件之陽極或陰極其中之一為透明或半透明時，可提高發光效率。

構成本發明之有機 EL 元件之發光層的發光材料可使用上述本發明化合物。本發明化合物作為發光材料使用時，本發明化合物可單獨或與公知之發光材料併用。本發明化合物用於發光層以外時，對於發光層之發光材料無特別限定，可選擇使用公知之發光材料中任意者。這種發光材料例如可使用多環縮合芳香族化合物、苯并噁唑系、苯并噻唑系、苯并咪唑系等之螢光增白劑、金屬螯合化合物、二苯乙烯基苯系化合物等之薄膜形成性佳之化合物。上述多環縮合芳香族化合物例如含有蔥、蔡、菲、芘、蒽、茈骨架之縮合環發光物質或含有約 8 個縮合環之其他縮合環發光物質等。具體而言，可使用 1, 1', 4, 4'-四苯基-1, 3-丁二烯、4, 4'-(2, 2-二苯基乙烯基) 聯苯等。此發光層可由這些發光材料之一種或兩種以上所構成之一層所構成或層合一種與該發光層不同之其他化合物所構成

之發光層者。

本發明之有機 EL 元件之電洞注入層係由電洞傳達化合物所構成，具有將由陽極注入之電洞傳達至發光層的功能，此電洞注入層存在於陽極與發光層之間，可以低電場施加使大量之電洞注入於發光層中。而且，由陰極或電子注入層注入發光層的電子因存在於發光層與電洞注入層之間之電子的障壁，因而累積於發光層內之界面，提高發光效率等，可得到發光性能優異之元件。用於這種電洞注入層之電洞傳達化合物被配置於被施加電場之 2 個電極間，由陽極注入電洞時，可將電洞正確傳達至發光層，例如施加 $10^4 \sim 10^6 \text{ V/cm}$ 之電場時，至少具有 $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{V} \cdot \text{秒}$ 之電洞移動度者為佳。此電洞傳達化合物只要具有前述理想特性者，則無特別限定，可任意選用以往光傳導材料中，常作為電洞之電荷注入・傳輸材料使用者，或用於有機 EL 元件之電洞注入層之公知物質。

前述電洞傳達化合物例如有銅酞菁、N, N, N', N'-四苯基-4, 4'-二胺基苯、N, N'-二苯基-N, N'-(3-甲基苯基)-4, 4'-二胺基聯苯 (TPDA)、2, 2-雙(4-二-對甲苯胺基苯基)丙烷、1, 1-雙(4-二-對甲苯胺基苯基)環己烷、N, N, N', N'-四對甲苯基-4, 4'-二胺基聯苯等。也可使用 Si、SiC、CdS 等之無機物半導體之結晶、非結晶材料。此電洞注入層可由這些電洞注入材料之 1 種或 2 種以上所構成之 1 層所構成，或層合與該電洞注入層不同之其他化合物所構成之電洞注入層者。

本發明之有機 EL 元件之電子注入層係由電子注入材料所構成，具有將由陰極注入之電子傳達至發光層的功能。本發明之有機 EL 元件中，上述本發明化合物作為電子注入材料使用較佳。用於電子注入層以外時，對於電子注入材料無特別限定，可任意選用以往公知之電子注入材料化合物。

本發明之有機 EL 元件之理想的實施形態，例如有在傳輸電子之區域或在陰極與有機化合物層之界面區域含有還原性摻雜劑之元件。本發明中，在本發明化合物中含有還原性摻雜劑之有機 EL 元件較佳。還原性摻雜劑係定義為可將電子傳輸性化合物還原之物質。因此，只要具有一定還原性者皆可使用，例如選自鹼金屬、鹼土金屬、稀土金屬、鹼金屬之氧化物、鹼金屬之鹵化物、鹼土金屬之氧化物、鹼土金屬之鹵化物、稀土金屬之氧化物、稀土金屬之鹵化物、鹼金屬之有機錯合物、鹼土金屬之有機錯合物及稀土金屬之有機錯合物所成群中之至少一種的物質較佳。

理想之還原性摻雜劑為功函數 2.9eV 以下者，具體例選自 Na（功函數： 2.36eV ）、K（功函數： 2.28eV ）、Rb（功函數： 2.16eV ）及 Cs（功函數： 1.95eV ）所成群中之一種或兩種以上之鹼金屬或，選自 Ca（功函數： 2.9eV ）、Sr（功函數： $2.0\sim 2.5\text{eV}$ ）及 Ba（功函數： 2.52eV ）所成群中之一種或兩種以上之鹼土金屬。

其中較理想之還原性摻雜劑為選自 K、Rb 及 Cs 所成

群之一種或兩種以上之鹼金屬，更理想為 Rb 或 Cs，最理想為 Cs。這些鹼金屬之還原能力高，少量添加於電子注入區域，可提高有機 EL 元件之發光亮度或達到長壽命。功函數 2.9eV 以下之還原性摻雜劑理想為 2 種以上之鹼金屬之組合，特別是含有 Cs 之組合，例如 Cs 與 Na、Cs 與 K、Cs 與 Rb、或 Cs 與 Na、K 之組合。組合 Cs 可有效發揮還原能力，添加於電子注入區域，可提高有機 EL 元件之發光亮度或達成長壽命化。除鹼金屬外，使用選自鹼金屬硫化物、鹼土金屬硫化物、鹼金屬鹵化物及鹼土金屬鹵化物所成群之一種或兩種以上之金屬化合物，也可得到相同的結果，或使用鹼金屬有機錯合物、鹼土金屬有機錯合物也可得到相同的結果。

本發明之有機 EL 元件還可在陰極與有機層之間可設置以絕緣體或半導體、無機化合物所構成之電子注入層。設置此電子注入層可有效防止漏電流，提高電子注入性。這種絕緣體例如可使用選自鹼金屬硫化物、鹼土金屬硫化物、鹼金屬之鹵化物及鹼土金屬之鹵化物所成群之一種或兩種以上之金屬化合物。電子注入層為這些之金屬化合物所構成時，可進一步提高電子注入性。理想之鹼金屬硫化物之具體例有 Li_2O 、 LiO 、 Na_2S 、 Na_2Se 及 NaO 。理想之鹼土金屬硫化物例如有 CaO 、 BaO 、 SrO 、 BeO 、 BaS 及 CaSe 。理想之鹼金屬之鹵化物例如有 LiF 、 NaF 、 KF 、 LiCl 、 KCl 及 NaCl 等。理想之鹼土金屬之鹵化物例如有 CaF_2 、 BaF_2 、 SrF_2 、 MgF_2 及 BeF_2 等之氟化物或氟化物以

外之鹵化物。

構成電子注入層之半導體例如含有選自 Ba、Ca、Sr、Yb、Al、Ga、In、Li、Na、Cd、Mg、Si、Ta、Sb 及 Zn 所成群之一種或兩種以上之元素的氧化物、氮化物或氧化氮化物等之一種單獨或二種以上之組合。構成電子注入層之無機化合物為微結晶或非晶質之絕緣性薄膜較佳。電子注入層為這些無機化合物所構成時，可形成更均質之薄膜，因此，可減少暗點等之像素缺陷。這種無機化合物例如有上述鹼金屬硫化物、鹼土金屬硫化物、鹼金屬之鹵化物及鹼土金屬之鹵化物等。

將本發明化合物或其他電子注入材料例如以真空蒸鍍法、旋轉塗佈法、鑄膜法、LB 法等公知之薄膜化法製成薄膜，可形成本發明之有機 EL 元件之電子注入層。電子注入層之膜厚無特別限制，通常為 5nm~5 μ m。此電子注入層可以這些電子注入材料之一種單獨或二種以上所構成之一層所構成，或層合由另外的化合物所構成之 2 層以上之電子注入層者。無機物之 p 型-Si、p 型-SiC 之電洞注入材料、n 型 α -Si、n 型 α -SiC 之電子注入材料，可作為構成電子注入層之電子注入材料使用。具體而言，例如國際專利公開第 WO90/05998 號公報所揭示之無機半導體等。

其次，說明本發明之有機 EL 元件的製作方法。於茲說明例如陽極／電洞注入層／發光層／電子注入層／陰極型之有機 EL 元件之製作方法。首先，藉由蒸鍍或濺鍍等

方法在適當之基板上形成厚度 $1\mu\text{m}$ 以下，理想為 $10\sim 200\text{nm}$ 之所要的電極物質，例如由陽極用物質所構成之薄膜作為陽極。接著此陽極上依序形成由各構成材料所構成之薄膜，經層合 EL 元件構成要素之電洞注入層、發光層、電子注入層來製造。此處所用之薄膜形成方法例如有前述旋轉塗佈法、鑄膜法、蒸鍍法等，但是從易取得均質膜，且不易產生針孔等觀點而言，使用真空蒸鍍法較佳。此薄膜化採用真空蒸鍍法時，其蒸鍍條件係因使用之化合物的種類、分子堆積膜之目的之結晶構造或再結合構造等而異，但一般理想條件為蒸鍍源溫度 $50\sim 400^\circ\text{C}$ ，真空度 $10^{-6}\sim 10^{-3}\text{Pa}$ 、蒸鍍速度 $0.01\sim 50\text{nm/秒}$ 、基板溫度 $-50\sim 300^\circ\text{C}$ 、膜厚 $5\text{nm}\sim 5\mu\text{m}$ 的範圍。這些層形成後，例如藉由蒸鍍或濺鍍等方法在這些層上形成由陰極用物質所構成，膜厚 $1\mu\text{m}$ 以下，理想為 $50\sim 200\text{nm}$ 之薄膜，作為陰極，可得到所要的有機 EL 元件。製作此有機 EL 元件時，也可以相反製作順序來製作，例如陰極、電子注入層、發光層、電洞注入(輸送)層、陽極之順序。

製作在一對電極間挾著混合電洞注入層、發光層、電子注入層之形態之陽極／發光層／陰極型之有機 EL 元件的方法，例如在適當之基板上，形成由陽極用物質所構成之薄膜，然後塗佈由電洞注入材料、發光材料、電子注入材料及聚乙烯吡啶、聚碳酸酯、聚丙烯酸酯、聚酯及聚醚等之黏結劑等所構成的溶液，或以此溶液藉由浸漬塗佈法形成薄膜，作為發光層（或發光帶域），其上形成由陰極

用物質所構成之薄膜者。製作後之發光層上再真空蒸鍍一種為發光層或電子注入層之材料的元件材料後，其上可形成由陰極用物質所構成之薄膜。

對於上述製得之有機 EL 元件施加直流電壓時，若以陽極為+、陰極為-之極性，外加 3~50 V 的電壓時，可觀測到發光。又，以相反極性即使外加電壓也不會產生電流，完全不發光。外加交流電壓時，僅在陽極為+、陰極為-的狀態時，可觀測到發光。此時，外加之交流波形可為任意波形。

本發明之有機 EL 元件係將本發明之含氮雜環衍生物用於有機化合物層，特別是電子注入層，可改善含有本發明化合物之有機化合物層與電極（特別是陰極）之間的附著性。

依據如上述製作之本發明之有機 EL 元件時，可達成高亮度且高發光效率。

【實施方式】

以下使用合成例、實施例更詳細說明本發明，但是本發明不受這些合成例、實施例所限定。

合成例 1：化合物（1-7）之合成

（1）2-（4-溴苯基）-1-苯基-1H-苯並咪唑之合成

將 4-溴苯甲酸 3.0g（15mmol）懸浮於 1，2-二氯乙烷 30ml 中，然後添加氯化甲硫醯 2.7g（23mmol）、N，N-

二甲基甲醯胺 3 滴，以約 50°C 加熱攪拌 1 小時 30 分鐘，直到原料之苯甲酸消失為止。反應結束後，餾去溶媒、過多之氯化甲硫醯，將得到之酸氯溶解於 N-甲基吡咯烷酮 30ml 中，添加 N-苯基-1, 2-苯二胺 2.8g (15mmol)，室溫下攪拌 1 晚。反應結束後，添加水，將析出之固體過濾，以水洗淨，減壓乾燥得到 4-溴-N-(2-苯胺基苯基)苯並醯胺 5.2g。

此苯並醯胺減壓 (約 20mmHg) 下，以約 300°C 加熱攪拌 30 分鐘。反應結束後，溶解於二氯甲烷，藉由矽凝膠色譜分析純化，得到 2-(4-溴苯基)-1-苯基-1H-苯並咪唑 3.5g (收率 80%)。

(2) 2-[4-(10-萘-2-基-蔥-9-基)苯基]-1-苯基-1H-苯並咪唑 (化合物 1-7) 之合成

將 (1) 製得之 2-(4-溴苯基)-1-苯基-1H-苯並咪唑 4.0g (11mmol)、10-萘-2-基-蔥-9-硼酸 4.0g (11mmol)、四(三苯基膦)鈀 0.27g 溶解於 1, 2-二甲氧基乙烷 40ml，添加 2.0M 碳酸鈉水溶液 18ml，加熱回流 7 小時。反應結束後，經過濾，將所得之結晶以水、甲醇洗淨得到 5.1g (收率 78%) 之黃白色固體。此固體以質譜 (MS) 分析的結果為目的物，對於分子量 572.23 之 m/e (測定值) = 572。

合成例 2：化合物 (4-2) 之合成

(1) 2-(3-溴苯基)-1-苯基-1H-苯並咪唑之合成

將除了使用 3-溴苯甲酸取代合成例 1 之 (1) 之 4-溴苯甲酸外，同樣操作，得到 2-(3-溴苯基)-1-苯基-1H-苯並咪唑 3.8g (收率 81%)。

(2) 2-[3-(10-萘-2-基-蔥-9-基)苯基]-1-苯基-1H-苯並咪唑 (化合物 4-2) 之合成

除了使用 (1) 製得之 2-(3-溴苯基)-1-苯基-1H-苯並咪唑取代合成例 1 之 (2) 之 2-(4-溴苯基)-1-苯基-1H-苯並咪唑外，同樣操作得到 3.7g (收率 74%) 之黃白色固體。此固體以質譜 (MS) 分析結果為目的物，對於分子量 572.23 之 $m/e=572$ 。

合成例 3：化合物 (1-1) 之合成

(1) 2-(4-碘苯基)-1-苯基-1H-苯並咪唑之合成

將 4-碘苯甲酸 5.0g (20mmol) 懸浮於 1,2-二氯乙烷 50ml 中，然後添加 N,N-二甲基甲醯胺 3 滴。再添加氯化甲硫醯 3.6g (20mmol) 加熱回流 2 小時。接著餾去溶媒，將殘渣溶解於 N-甲基吡咯烷酮 50ml 中，添加 N-苯基-1,2-苯二胺 3.7g (20mmol)，室溫下攪拌 5 小時。反應結束後，添加水，將析出之固體過濾，水洗後，在以甲醇洗淨，得到粗 4-碘-N-(2-苯胺基苯基)苯並醯胺 8.0g。

將 (1) 製得之 2-(4-溴苯基)-1-苯基-1H-苯並咪唑 4.5g (11mmol) 及對甲苯磺酸一水合物 0.57g (3mmol) 分散於二甲苯 45ml 中，加熱回流 3 小時。反應結束後，

放置冷卻，添加 5% 碳酸鉀水溶液及甲苯，萃取有機層。有機層使用 5% 碳酸鉀水溶液、食鹽水洗淨，以硫酸鈉乾燥。餾去溶媒所得之生成物以己烷洗淨，得到 2-(4-碘苯基)-1-苯基-1H-苯並咪唑 3.9g (收率 91%)。

(2) 1-苯基-2-[4-(10-苯基-萸-9-基)苯基]-1-苯基-1H-苯並咪唑 (化合物 1-1) 之合成

除了使用 10-苯基萸-9-硼酸取代合成例 1 之 (2) 之 10-萸-2-基-萸-9-硼酸，使用 2-(4-碘苯基)-1-苯基-1H-苯並咪唑取代合成例 1 之 (2) 之 2-(4-溴苯基)-1-苯基-1H-苯並咪唑外，同樣操作得到目的化合物 (1-1) (收率 59%)。此物質以 MS 分析結果為目的物，對於分子量 522.21 之 $m/e=522$ 。

合成例 4：化合物 (2-1) 之合成

(1) 2-(4-碘苯基)-1-甲基-1H-苯並咪唑之合成

將 4-碘苯甲酸 10.0g (41mmol) 懸浮於 1, 2-二氯乙烷 100ml 中，然後添加 N, N-二甲基甲醯胺 3 滴。再添加氯化甲硫醯 7.3g (61mmol) 加熱回流 2 小時。接著餾去溶媒，將殘渣溶解於 N-甲基吡咯烷酮 100ml 中，冰冷狀態下，添加 N-甲基-1, 2-苯二胺 5.0g (41mmol)，室溫下攪拌 5 小時。反應結束後，添加水，將析出之固體過濾，所得之固體中添加乙酸乙酯及水，萃取有機層。有機層使用 5% 碳酸鉀水溶液、水、食鹽水洗淨，以硫酸鈉乾燥。餾去溶媒得到粗 4-碘-N-(2-甲胺基苯基) 苯並醯胺

與粗 N- (2-胺 苯 基) -4-碘 -N-甲 基 苯 並 噁 胺 之 混 合 物 11g。

將 製 得 之 混 合 物 11g (31mmol) 及 對 甲 苯 磺 酸 一 水 合 物 1.75g (9mmol) 分 散 於 二 甲 苯 100ml 中 ， 加 熱 回 流 7 小 時 。 反 應 結 束 後 ， 放 置 冷 卻 ， 添 加 5% 碳 酸 鉀 水 溶 液 及 甲 苯 ， 萃 取 有 機 層 。 有 機 層 使 用 5% 碳 酸 鉀 水 溶 液 、 水 、 食 鹽 水 洗 淨 ， 以 硫 酸 鈉 乾 燥 。 餾 去 溶 媒 所 得 之 褐 色 油 使 用 矽 膠 柱 質 譜 儀 (展 開 溶 媒 : 己 烷 / 乙 酸 乙 酯 = 3/1) 純 化 ， 得 到 目 的 之 2- (4-碘 苯 基) -1-甲 基 -1H-苯 並 咪 唑 2.7g (收 率 20%) 。

(2) 1-甲 基 -2- [4- (10-萘 -2-基 -蔥 -9-基) 苯 基] -1H-苯 並 咪 唑 (化 合 物 2-1) 之 合 成

除 了 使 用 使 用 2- (4-碘 苯 基) -1-甲 基 -1H-苯 並 咪 唑 取 代 合 成 例 1 之 (2) 之 2- (4-溴 苯 基) -1-苯 基 -1H-苯 並 咪 唑 外 ， 同 樣 操 作 得 到 目 的 化 合 物 (2-1) (收 率 33%) 。 此 物 質 以 MS 分 析 結 果 為 目 的 物 ， 對 於 分 子 量 510.21 之 $m/e=510$ 。

合 成 例 5 : 化 合 物 (3-1) 之 合 成

(1) 2-硝 基 -N-吡 啶 基 苯 胺 之 合 成

氮 氣 氛 下 ， 將 2-硝 基 苯 胺 15.0g (109mmol) 、 2-溴 吡 啶 17.2g (109mmol) 、 碘 化 銅 2.06g (10.9mmol) 、 碳 酸 鉀 30g (218mmol) 以 160°C 加 熱 攪 拌 9 小 時 。 將 反 應 溶 液 冷 卻 至 室 溫 ， 使 用 乙 酸 乙 酯 稀 釋 ， 然 後 過 濾 。 將 濾 液

濃縮使用矽膠柱質譜儀純化，得到 2-硝基-N-吡啶基苯胺 6.30 g (收率 27%)。

(2) 2-(2-吡啶基胺基)-4'-溴苯醯苯胺之合成

將(1)製得之 2-硝基-N-吡啶基苯胺 6.3 g (10.9 mmol) 溶解於四氫呋喃 50 ml 中，氮氣氛下，室溫攪拌，將亞硫酸氫鈉 26 g (146 mmol) / 水 90 ml 之溶液滴下。再添加甲醇 5 ml，攪拌 3 小時。接著添加乙酸乙酯 50 ml，添加碳酸氫鈉 5.0 g (59.5 mmol) / 水 50 ml 之溶液。再將 4-溴苯醯氯 6.6 g (30.0 mmol) / 乙酸乙酯 20 ml 之溶液滴下，室溫下攪拌 5 小時。將析出之固體過濾，以水、甲醇洗淨，得到 2-(2-吡啶基胺基)-4'-溴苯醯苯胺 5.5 g (收率 51%)。

(3) 1-(2-吡啶基)-2-(4-溴苯基)-1H-苯並咪唑之合成

將(2)所得之 2-(2-吡啶基胺基)-4'-溴苯醯苯胺 5.5 g (15.0 mmol) 懸浮於二甲苯 60 ml 中，添加對甲苯磺酸一水合物 0.86 g (4.5 mmol)，加熱回流 8 小時的狀態下進行共沸脫水。反應溶液冷卻至室溫，餾去溶媒。所得之固體溶解於乙酸乙酯中，依序以水、10% 碳酸鉀水溶液、飽和食鹽水洗淨後，以無水硫酸鎂乾燥，減壓餾去溶媒得到 1-(2-吡啶基)-2-(4-溴苯基)-1H-苯並咪唑 3.5 g (收率 67%)。

(4) 2-[4-(10-萘-2-基-蔥-9-基)苯基]-1-(2-吡啶基)-1H-苯並咪唑 (化合物 3-1) 之合成

將 (3) 所得之 1-(2-吡啶基)-2-(4-溴苯基)-1H-苯並咪唑 3.5g (10mmol)、10-蔡-2-基-蔥-9-硼酸 4.2g (12.1mmol)、四(三苯基磷)鈀 0.23g (0.20mmol) 溶解於 1,2-二甲氧基乙烷 60ml, 添加 2.0M 碳酸鈉水溶液 30ml, 加熱回流 8 小時。反應結束後, 過濾製得之結晶以水、甲醇、甲苯洗淨, 得到 5.0g (收率 86%) 之綠白色固體。此固體以 MS 分析的結果為目的物, 對於分子量 573.22 之 $m/e=573$ 。

合成例 6: 化合物 (4-6) 之合成

(1) 2-(5-溴吡啶-3-基)-1-苯基-1H-苯並咪唑之合成

將除了使用 5-溴吡啶甲酸取代合成例 1 之 (1) 之 5-溴苯甲酸外, 同樣操作, 得到 2-(5-溴吡啶甲酸-3-基)-1-苯基-1H-苯並咪唑 5.93g (收率 49%)。

(2) 2-[5-(10-蔡-2-基-蔥-9-基)-吡啶-3-基]-1-苯基-1H-苯並咪唑 (化合物 4-6) 之合成

除了使用 2-(5-溴吡啶甲酸-3-基)-1-苯基-1H-苯並咪唑取代合成例 1 之 (2) 之 2-(4-溴苯基)-1-苯基-1H-苯並咪唑外, 同樣操作得到目的之化合物 (4-6) (收率 36%)。此物以 MS 分析結果, 對於目的物之分子量 573.22 之 $m/e=573$ 。

合成例 7: 化合物 (7-2) 之合成

(1) 4-溴-2-硝基二苯胺之合成

氮氣氛下，將 2,5-二溴硝基苯 10g (35.6mmol)、乙酸鈉 8.8g (107mmol)、苯胺 6.6g (71mmol) 以 160°C 加熱攪拌 9 小時。將反應溶液冷卻至室溫，使用乙酸乙酯稀釋，然後過濾。將濾液濃縮使用矽膠柱質譜儀純化，得到 4-溴-2-硝基二苯胺 9.9g (收率 63%)。

(2) 5-溴-2-苯基胺基苯醯苯胺之合成

將 (1) 製得之 4-溴-2-硝基二苯胺 9.9g (33.8mmol) 溶解於四氫呋喃 75ml 中，氮氣氛下，室溫攪拌，將亞硫酸氫鈉 30g (170mmol) / 水 100ml 之溶液滴下。再添加甲醇 10ml，攪拌 3 小時。接著添加乙酸乙酯 75ml，添加碳酸氫鈉 5.7g (67.8mmol) / 水 60ml 之溶液。再將苯醯氯 4.8g (34mmol) / 乙酸乙酯 25ml 之溶液滴下，室溫下攪拌 5 小時。使用乙酸乙酯萃取，依序以水、10% 碳酸鉀水溶液、飽和食鹽水洗淨後，以無水硫酸鎂乾燥，減壓餾去溶媒得到 5-溴-2-苯基胺基苯醯苯胺 5.6g (收率 45%)。

(3) 5-溴-1,2-二苯基-1H-苯並咪唑之合成

將 (2) 所得之 5-溴-2-苯基胺基苯醯苯胺 5.6g (15mmol) 懸浮於二甲苯 60ml 中，添加對甲苯磺酸一水合物 0.88g (4.6mmol)，加熱回流 5 小時的狀態下進行共沸脫水。反應溶液冷卻至室溫，餾去溶媒。所得之固體以甲醇洗淨，得到 5-溴-1,2-二苯基-1H-苯並咪唑 2.5g (收率 46%)。

(4) 1,2-二苯基-5-(10-萘-2-基-蔥-9-基)-1H-苯

並咪唑（化合物 7-2）之合成

將（3）所得之 5-溴-1, 2-二苯基-1H-苯並咪唑 2.5g (7.1mmol)、10-羧基-2-萘基-9-硼酸 3.0g (8.5mmol)、四（三苯基膦）鈀 0.16g (0.14mmol) 溶解於 1, 2-二甲氧基乙烷 60ml 中，添加 2.0M 碳酸鈉水溶液 30ml，加熱回流 8 小時。反應結束後，過濾製得之結晶以水、甲醇、甲苯洗淨，得到 2.0g (收率 49%) 之綠白色固體。此固體以 MS 分析的結果為目的物，對於分子量 572.23 之 $m/e=572$ 。

合成例 8：化合物（9-7）之合成

（1）（4-溴苯基）-（2-硝基苯）胺之合成

氬氣氛下，將 2-硝基苯 10g (49.5mmol)、乙酸鈉 13g (163mmol)、4-溴苯胺 10g (59mmol) 以 180℃ 加熱攪拌 8 小時。將反應溶液冷卻至室溫，使用乙酸乙酯稀釋，然後過濾。將濾液濃縮，殘渣使用甲醇洗淨得到（4-溴苯基）-（2-硝基苯）胺 3.8g 之橙色結晶（收率 22%）。

（2）N-〔2-（4-溴苯基胺基）苯基〕苯醯苯胺之合成

將（1）製得之（4-溴苯基）-（2-硝基苯）胺 3.8g (13mmol) 溶解於四氫呋喃 30ml 中，氬氣氛下，室溫攪拌，將亞硫酸氫鈉 11g (64mmol) / 水 30ml 之溶液滴下。攪拌 5 小時後，添加乙酸乙酯 20ml，添加碳酸氫鈉 2.2g

(26mmol) / 水 20ml 之溶液。再將苯醯氯 2.5g (18mmol) / 乙酸乙酯 10ml 之溶液滴下，室溫下攪拌 1 小時。使用乙酸乙酯萃取，依序以 10% 碳酸鉀水溶液、水、飽和食鹽水洗淨後，以無水硫酸鈉乾燥，減壓餾去溶媒得到 N- [2- (4-溴苯基胺基) 苯基] 苯醯苯胺 2.1g (收率 45%)。

(3) 1- (4-溴苯基) -2-苯基 -1H-苯並咪唑之合成

將 (2) 所得之 N- [2- (4-溴苯基胺基) 苯基] 苯醯苯胺 2.1g (5.7mmol) 懸浮於二甲苯 30ml 中，添加對甲苯磺酸一水合物 0.6g (2.9mmol)，加熱回流 3 小時的狀態下進行共沸脫水。放置冷卻後，反應溶液中添加乙酸乙酯、二氯甲烷、水，濾除不溶物。由母液中萃取有機層，使用水、飽和食鹽水洗淨後，以無水硫酸鈉乾燥，減壓餾去溶媒。殘渣使用矽膠柱質譜儀純化，得到 1- (4-溴苯基) -2-苯基 -1H-苯並咪唑之微粉紅之白色結晶 1.0g (收率 52%)。

(4) 1- [4- (10-萘 -2-基 -蒽 -9-基) 苯基] -2-苯基 -1H-苯並咪唑 (化合物 9-7) 之合成

將 (3) 所得之 1- (4-溴苯基) -2-苯基 -1H-苯並咪唑之微粉紅之白色結晶 1.0g (2.9mmol)、10-萘 -2-基 -蒽 -9-硼酸 1.1g (3.1mmol)、四 (三苯基膦) 鈀 0.1g (0.09mmol) 溶解於 1, 2-二甲氧基乙烷 15ml 及甲苯 2ml 中，添加 2.0M 碳酸鈉水溶液 5ml，加熱回流 7 小時。反應結束後，過濾製得之結晶以水、甲醇洗淨，得到 1.45g

(收率 89%) 之乳白色固體。此固體以 MS 分析的結果為目的物，對於分子量 572.23 之 $m/e=572$ 。

合成例 9：化合物 (4-5) 之合成

(1) 6-溴-2'-(N-苯胺基)-甲基吡啶鹽苯胺之合成

將 6-溴甲基吡啶酸 5.1g (25mmol) 懸浮於 1,2-二氯乙烷 70ml 中，然後添加氯化甲硫鹽 4.2g (35mmol)，再添加 N,N-二甲基甲醯胺 3 滴，加熱回流 4 小時。反應結束後，餾去溶媒得到 6-溴甲基吡啶鹽氫。

將 N-苯基-1,2-苯二胺 4.4g (24mmol) 溶解於 N-甲基吡咯烷酮 30ml 中，冰冷狀態下，將 6-溴甲基吡啶鹽氫/N-甲基吡咯烷酮 10ml 滴下。室溫下攪拌 4 小時。反應結束後，將反應溶液注入水 400ml 中，然後攪拌。所得之固體過濾，以水、甲醇洗淨，減壓下乾燥得到 6-溴-2'-(N-苯胺基)-甲基吡啶鹽苯胺 4.5g (49mmol)。

(2) 2-(6-溴吡啶基-2-基)-1-苯基-1H-苯並咪唑之合成

將 (1) 所得之 6-溴-2'-(N-苯胺基)-甲基吡啶鹽苯胺 4.5g (12mmol) 懸浮於二甲苯 50ml 中，添加對甲苯磺酸一水合物 0.70g (3.7mmol)，加熱回流 6 小時的狀態下進行共沸脫水。反應溶液冷卻至室溫後，餾去溶媒。所得之固體溶解於乙酸乙酯中，依序以水、10% 碳酸鉀水溶液、飽和食鹽水洗淨後，以無水硫酸鎂乾燥，減壓餾去溶媒得到 2-(6-溴吡啶基-2-基)-1-苯基-1H-苯並咪唑

3.0 g (收率 70%) 。

(3) 2- [6- (10-萘-2-基-蔥-9-基) 吡啶基-2-基] -1-苯基-1H-苯並咪唑 (化合物 4-5) 之合成

將 (2) 所得之 2- (6-溴吡啶基-2-基) -1-苯基-1H-苯並咪唑 3.0 g (8.6 mmol) 、 10-萘-2-基-蔥-9-硼酸 3.6 g (10 mmol) 、 四 (三苯基磷) 鈰 0.20 g (0.17 mmol) 溶解於 1, 2-二甲氧基乙烷 60 ml 中，添加 2.0 M 碳酸鈉水溶液 30 ml，氬氣氛下加熱回流 8 小時。反應結束後，過濾製得之固體以水、甲醇、甲苯洗淨，得到 2.0 g (收率 41%) 之綠白色固體。此固體以 MS 分析的結果為目的物，對於分子量 573.22 之 $m/e=573$ 。

合成例 10：化合物 (11-1) 之合成

(1) 2-甲基吡啶酸 [2- (4-溴苯基胺基) 苯基] 醯胺之合成

將 (4-溴苯基) - (2-硝基苯基) 胺 5.0 g (17 mmol) 溶解於四氫呋喃 50 ml 中，添加連二亞硫酸鈉 15 g (86 mmol) 溶解於水 60 ml 之水溶液。接著添加甲醇 10 ml，室溫下攪拌 3 小時。溶液之顏色 (橙色) 幾乎消失時，添加水，使用乙酸乙酯萃取。有機層以硫酸鈉充分乾燥後，

餾去溶媒得到苯二胺。將所得之苯二胺溶解於乙酸乙酯 150 ml 中，萃取之有機層中添加吡啶 5.4 g (68 mmol) 、 2-甲基吡啶酸氬·鹽酸鹽 3.6 g

(23mmol) 、 4-二甲基胺基吡啶 (DMPA) 觸媒量，室溫下攪拌 3 小時，放置 1 晚。反應結束後添加水，將析出的固體過濾，使用水、甲醇充分洗淨，得到白色固體之 2-甲基吡啶酸鹽胺 3.8g (收率 60%) 。

(2) 1- (4-溴苯基) -2-吡啶-2-基-1H-苯並咪唑之合成

將上述 2-甲基吡啶酸鹽胺 3.8g (10mmol) 在減壓下 (約 20mmHg) 以約 300°C 加熱攪拌 30 分鐘。反應結束後，溶解於二氯甲烷中，使用矽膠柱質譜儀純化，得到 1- (4-溴苯基) -2-吡啶-2-基-1H-苯並咪唑 2.5g (收率 69%) 。

(3) 1- [4- (10-萘-2-基-蒽-9-基) 苯基] -2-甲基-1H-苯並咪唑 (化合物 11-1) 之合成

將 1- (4-溴苯基) -2-吡啶-2-基-1H-苯並咪唑 1.2g (3.4mmol) 、 10-萘-2-基-蒽-9-硼酸 1.2g (3.4mmol) 、 四 (三苯基磷) 鉀 0.10g 溶解於 1, 2-二甲氧基乙烷 15ml 中，添加 2.0M 碳酸鈉水溶液 6ml，加熱回流 7 小時。反應結束後，將析出的固體溶解於二氯甲烷中，水洗後，以硫酸鎂乾燥。餾去溶媒所得之生成物使用矽膠柱質譜儀 (二氯甲烷-乙酸乙酯) 純化，得到 1.2g (收率 61%) 之黃白色固體。此固體以 MS 分析的結果為目的物，對於分子量 573.22 之 $m/e=573$ 。

合成例 11：化合物 (12-2) 之合成

(1) N-〔2-(4-溴苯基胺基)苯基〕乙醯胺之合成

將(4-溴苯基)-(2-硝基苯基)胺 8.0g (30mmol) 溶解於四氫呋喃 80ml 中，添加連二亞硫酸鈉 24g (0.14mmol) 溶解於水 100ml 之水溶液。接著添加甲醇 10ml，室溫下攪拌 3 小時。溶液之顏色(橙色)幾乎消失時，添加水，使用乙酸乙酯萃取。有機層以硫酸鈉充分乾燥後，餾去溶媒得到苯二胺。將所得之苯二胺溶解於乙酸乙酯 150ml 中，萃取之有機層中添加吡啶 3.0g (38mmol)、醋酐 1.8g (18mmol)、4-二甲基胺基吡啶(DMPA)觸媒量，室溫下攪拌 3 小時，放置 1 晚。反應結束後添加水，將析出的固體過濾，使用水、甲醇充分洗淨，得到白色固體之苯並醯胺 4.1g (收率 49%)。

(2) 1-(4-溴苯基)-2-甲基-1H-苯並咪唑之合成

將上述苯並醯胺 4.1g (13mmol) 在減壓下(約 20mmHg)以約 300°C 加熱攪拌 30 分鐘。反應結束後，溶解於二氯甲烷中，使用矽膠柱質譜儀純化，得到 1-(4-溴苯基)-2-甲基-1H-苯並咪唑 3.8g (收率 97%)。

(3) 1-〔4-(10-萘-2-基-蔥-9-基)苯基〕-2-甲基-1H-苯並咪唑(化合物 12-2)之合成

將 1-(4-溴苯基)-2-甲基-1H-苯並咪唑 3.3g (11mmol)、10-萘-2-基-蔥-9-硼酸 4.0g (11mmol)、四(三苯基磷)鈰 0.27g 溶解於 1,2-二甲氧基乙烷 40ml 中，添加 2.0M 碳酸鈉水溶液 20ml，加熱回流 7 小時。反應結束後，將析出的固體溶解於二氯甲烷中，水洗後，以

硫酸鈉乾燥。餾去溶媒所得之生成物使用矽膠柱質譜儀（二氯甲烷-乙酸乙酯）純化，得到 2.9g（收率 49%）之黃白色固體。此固體以 MS 分析的結果為目的物，對於分子量 510.21 之 $m/e=510$ 。

合成例 12：化合物（14-7）之合成

（1）5'-溴-2'-(N-苯基胺基)乙醯胺之合成

將 4-溴-2-硝基苯胺 4.5g（15mmol）溶解於四氫呋喃 40ml 中，氮氣氛下，室溫攪拌，添加亞硫酸氫鈉 13.4g（77mmol）/水 45ml 之溶液。再添加甲醇 4ml，攪拌 3 小時。接著添加乙酸乙酯 40ml，添加碳酸氫鈉 2.6g（31mmol）/水 30ml 之溶液。攪拌 30 分鐘後，使用乙酸乙酯萃取。除去水層，有機層以水、飽和食鹽水洗淨後，使用硫酸鎂乾燥。過濾之溶液中添加吡啶 2.4g（31mmol）、醋酐 2.0g（19mmol），室溫下攪拌 5 小時。使用乙酸乙酯萃取，依序以 10% 碳酸鉀水溶液、飽和食鹽水洗淨後，以無水硫酸鎂乾燥，減壓餾去溶媒得到 5'-溴-2'-(N-苯基胺基)乙醯胺 3.6g（收率 77%）。

（2）5-溴-2-甲基-苯基-1H-苯並咪唑之合成

將（1）製得之 5'-溴-2'-(N-苯基胺基)乙醯胺 3.6g（12mmol）懸浮於二甲苯 30ml 中，添加對甲苯磺酸一水合物 0.68g（3.6mmol），加熱回流 5 小時的狀態下進行共沸脫水。反應溶液冷卻至室溫後，餾去溶媒。所得之固體溶解於乙酸乙酯中，依序以水、10% 碳酸鉀水溶液、飽

和食鹽水洗淨後，以無水硫酸鎂乾燥，減壓餾去溶媒得到 5-溴-2-甲基-苯基-1H-苯並咪唑 3.0g (收率 90%)。

(3) 2-甲基-5-(10-萘-2-基-蔥-9-基)-1-苯基-1H-苯並咪唑 (化合物 14-7) 之合成

將(2)所得之 5-溴-2-甲基-苯基-1H-苯並咪唑 3.0g (11mmol)、10-萘-2-基-蔥-9-硼酸 4.5g (13mmol)、四(三苯基膦)鈦 0.25g (0.22mmol) 溶解於 1,2-二甲氧基乙烷 60ml 中，添加 2.0M 碳酸鈉水溶液 30ml，氬氣氛下，加熱回流 8 小時。反應結束後，將過濾所得的固體使用水、甲醇、甲苯分洗淨，得到綠白色固體。此固體以甲苯再結晶，得到黃綠色固體 2.0g (收率 37%)。此固體以 MS 分析的結果為目的物，對於分子量 510.21 之 $m/e=510$ 。

合成例 13：化合物 (15-8) 之合成

(1) 4-溴-N-甲基-2-硝基苯胺之合成

N-甲基-2-硝基苯胺 5.0g (33mmol)、N-溴琥珀醯亞胺 5.9g (33mmol) 中添加乙酸 60ml，加熱回流 7 小時。反應結束後，將反應溶液注入 500ml 水中，將析出之固體過濾。所得之固體溶解於乙酸乙酯中，以無水硫酸鎂乾燥。過濾後，減壓餾去溶媒，室溫下減壓乾燥得到 4-溴-N-甲基-2-硝基苯胺 7.1g (收率 93%)。

(2) 4'-溴-N-甲基-2'-硝基苯醯苯胺之合成

將(1)製得之 4-溴-N-甲基-2-硝基苯胺 6.8g

(29mmol) 溶解於吡啶 20ml 中，再添加苯醯氯 5.0g (35mmol)，氬氣氛下，以 90°C 加熱攪拌 7 小時。反應結束後，添加乙酸乙酯 20ml，以 10% HCl、10% K₂CO₃、飽和食鹽水洗淨後，以無水硫酸鎂乾燥。過濾後，減壓餾去溶媒，殘渣使用矽膠柱質譜儀 (己烷：乙酸乙酯 = 初期 10：1 → 中途為 2：1) 純化，得到綠白色固體之 4'-溴-N-甲基-2'-硝基苯醯苯胺 9.5g (收率 96%)。

(3) 4'-溴-N-甲基-2'-胺基苯醯苯胺之合成

將 (2) 所得之 4'-溴-N-甲基-2'-硝基苯醯苯胺 9.5g (28mmol) 溶解於四氫呋喃 100ml 中，氬氣氛下，室溫攪拌，添加亞硫酸氫鈉 25g (0.14mmol) / 水 90ml 之溶液。再添加甲醇 10ml，攪拌 3 小時。接著添加乙酸乙酯 100ml，添加碳酸氫鈉 12g (0.14mmol) / 水 125ml 之溶液。攪拌 1 小時後，使用乙酸乙酯萃取。除去水層，有機層以 10% K₂CO₃ 水溶液、飽和食鹽水洗淨後，使用硫酸鎂乾燥。過濾後，減壓餾去溶媒得到白色固體之 4'-溴-N-甲基-2'-胺基苯醯苯胺 7.8g (收率 90%)。

(4) 5'-溴-1-甲基-2-苯基-1H-苯並咪唑之合成

將 (3) 所得之 4'-溴-N-甲基-2'-胺基苯醯苯胺 7.8g (26mmol) 懸浮於二甲苯 50ml 中，添加對甲苯磺酸一水合物 1.5g (7.7mmol)，加熱回流 7 小時。反應結束後過濾。所得之固體溶解於二氯甲烷，以 10% K₂CO₃ 水溶液、飽和食鹽水洗淨後，使用硫酸鎂乾燥，減壓餾去溶媒。濾液使用 10% K₂CO₃ 水溶液、飽和食鹽水洗淨後，

以硫酸鎂乾燥，減壓餾去溶媒。所得之 2 種殘渣混合，再使用矽膠柱質譜儀純化，得到白色固體之 5'-溴-1-甲基-2-苯基-1H-苯並咪唑 6.50g (收率 89%)。

(5) 1-甲基-5-(10-萘-2-基-蔥-9-基)-2-苯基-1H-苯並咪唑 (化合物 15-8) 之合成

將 (4) 所得之 5'-溴-1-甲基-2-苯基-1H-苯並咪唑 1.5g (5.6mmol)、10-萘-2-基-蔥-9-硼酸 2.3g (5.6mmol)、四(三苯基膦)鈦 0.12g (0.11mmol) 溶解於 1,2-二甲氧基乙烷 60ml，添加 2.0M 碳酸鈉水溶液 30ml，氬氣氛下加熱回流 8 小時。反應結束後，過濾製得之固體以水、甲醇、甲苯洗淨，得到綠白色固體。此固體以甲苯再結晶得到黃綠色固體 2.0g (收率 74%)。此固體以 MS 分析的結果為目的物，對於分子量 510.21 之 $m/e=510$ 。

合成例 14：化合物 (16-2) 之合成

(1) 5'-溴-2'-(N-苯基胺基)-甲基吡啶醯苯胺之合成

將甲基吡啶酸 2.3g (19mmol) 懸浮於 1,2-二氯乙烷 30ml 中，然後添加氯化甲硫醯 3.1g (26mmol)，再添加 N,N-二甲基甲醯胺 3 滴，加熱回流 3 小時。反應結束後，減壓餾去溶媒得到甲基吡啶基氯。將 4-溴-2-硝基苯胺 5.0g (17mmol) 溶解於四氫呋喃 40ml 中，氬氣氛下，室溫攪拌，添加亞硫酸氫鈉 14.9g (85mmol) / 水

50ml 之溶液。再添加甲醇 4ml，攪拌 3 小時。接著添加乙酸乙酯 40ml，添加碳酸氫鈉 2.9g (34mmol) / 水 30ml 之溶液。攪拌 30 分鐘後，使用乙酸乙酯萃取。除去水層，有機層以水、飽和食鹽水洗淨後，使用硫酸鎂乾燥。過濾之溶液中添加吡啶 2.7g (40mmol)，再將甲基吡啶基氯 / 乙酸乙酯之溶液滴下，室溫下攪拌 5 小時。使用乙酸乙酯萃取，依序以 10% 碳酸鉀水溶液、飽和食鹽水洗淨後，以無水硫酸鎂乾燥。減壓餾去溶媒得到 5'-溴-2'-(N-苯基胺基)-甲基吡啶醯苯胺 3.1g (收率 49%)。

(2) 5'-溴-1-苯基-2-(6-吡啶基)-1H-苯並咪唑之合成

將 (1) 所得之 5'-溴-2'-(N-苯基胺基)-甲基吡啶醯苯胺 3.1g (8.4mmol) 懸浮於二甲苯 30ml 中，添加對甲苯磺酸一水合物 0.48g (2.5mmol)，加熱回流 5 小時的狀態下進行共沸脫水。反應溶液冷卻至室溫後，餾去溶媒。所得之固體溶解於乙酸乙酯中，依序以水、10% 碳酸鉀水溶液、飽和食鹽水洗淨後，以無水硫酸鎂乾燥，減壓餾去溶媒得到 5'-溴-1-苯基-2-(6-吡啶基)-1H-苯並咪唑 2.0g (收率 69%)。

(3) 5-(10-萘-2-基-蔥-9-基)-1-苯基-2-(2-吡啶基)-1H-苯並咪唑之合成

將 (2) 所得之 5'-溴-1-苯基-2-(6-吡啶基)-1H-苯並咪唑 2.0g (5.8mmol)、10-萘-2-基-蔥-9-硼酸 2.2g (6.3mmol)、四(三苯基磷)鈾 0.13g (0.11mmol) 溶

解於 1, 2-二甲氧基乙烷 30ml 中，添加 2.0M 碳酸鈉水溶液 15ml，氬氣氛下加熱回流 8 小時。反應結束後，過濾製得之固體以水、甲醇、甲苯洗淨，得到 2.0g (收率 61%) 之綠白色固體。此固體以 MS 分析的結果為目的物，對於分子量 573.22 之 $m/e=573$ 。

實施例 1 (製作一種將本發明化合物用於電子注入層之有機 EL 元件)

將 25mm×75mm×1.1mm 厚之含 ITO 透明電極的玻璃基板 (ZIOMATIC 公司製) 置於異丙醇中進行超音波清洗 5 分鐘後，以 UV 臭氧清洗 30 分鐘。將清洗後之含透明電極線之玻璃基板安裝於真空蒸鍍裝置之基板架上，首先在形成透明電極線側之面上，以電阻加熱蒸鍍形成膜厚 60nm 之 N, N'-雙 (N, N'-二苯基-4-胺基苯基) - N, N'-二苯基-4, 4'-二胺基-1, 1'-聯苯膜 (以下簡稱為「TPD232 膜」)，以覆蓋上述透明電極。該 TPD 232 膜具有電洞注入層之功能。其次在 TPD232 膜上，以電阻加熱蒸鍍形成膜厚 20nm 之 4, 4'-雙 [N-(1-萘基)-N-苯基胺基] 聯苯膜 (NPD 膜)。該 NPD 膜具有電洞注入層之功能。該 NPD 膜上再以電阻加熱蒸鍍形成厚度 40nm 之 4', 4''-雙 (2, 2-二苯基乙烯基) -9, 10-二苯基蒽 (以下簡稱為「DPVDPAN」) 膜。此 DPVDPAN 膜具有發光層的功能。此 DPVDPAN 膜上以蒸鍍形成膜厚 10nm 之化合物 (1-7) 膜。此化合物 (1-7) 膜具有電子注入層的功能。

能。然後將化合物 (1-7) 與 Li (Li 源：SAYESGETTER 公司製) 進行二元蒸鍍，將化合物 (1-7) : Li 膜以成膜速度 1.5 Å/秒 : 1 Å/分形成膜厚 10nm 之電子注入層 (或陰極)。此化合物 (1-7) : Li 膜上蒸鍍金屬 Al 形成膜厚 130nm 之金屬陰極，製得有機 EL 元件。

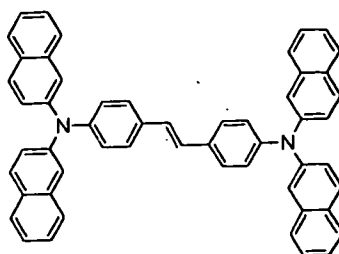
實施例 2

除了使用化合物 (4-2) 取代實施例 1 之化合物 (1-7) 外，同樣製作有機 EL 元件。

實施例 3~8 (製作一種將本發明化合物用於電子注入層之有機 EL 元件)

將 25mm×75mm×1.1mm 厚之含 ITO 透明電極的玻璃基板 (ZIOMATIC 公司製) 置於異丙醇中進行超音波清洗 5 分鐘後，以 UV 臭氧清洗 30 分鐘。將清洗後之含透明電極線之玻璃基板安裝於真空蒸鍍裝置之基板架上，首先在形成透明電極線側之面上，以電阻加熱蒸鍍形成膜厚 60nm 之 TPD232 膜，以覆蓋上述透明電極。此 TPD 232 膜具有電洞注入層的功能。在此 TPD232 膜上，以電阻加熱蒸鍍形成膜厚 20nm 之 NPD 膜。此 NPD 膜具有電洞傳輸層之功能。此 NPD 膜上蒸鍍形成膜厚比 40 : 2 之苯乙烯基衍生物 DPVDPAN 與下述苯乙烯基胺 S1 (離子電勢 $I_p=5.3\text{eV}$ ，能隙 $E_g=2.8\text{eV}$) 膜，作為藍色系發光層。此膜上形成膜厚 20nm 之表 1 化合物膜，作為電子傳輸層。

然後形成 1mm 之 LiF (Li 源 : SAYESGETTER 公司製) 膜。此薄膜上蒸鍍 150nm 之金屬 Al 形成金屬陰極，製得有機 EL 元件。



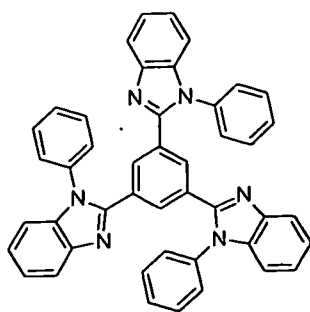
S1

比較例 1

除使用 Alq (8-羥基喹啉之 Al 錯合物) 取代實施例 1 之化合物 (1-7) 外，同樣製作有機 EL 元件。

比較例 2

除使用美國專利第 5645948 號公報說明書所記載之下述化合物 A 取代實施例 1 之化合物 (1-7) 外，同樣製作有機 EL 元件。

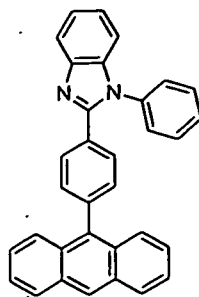


A

比較例 3

除使用日本特開 2002-38141 號公報所記載之下述化合物 B 取代實施例 1 之化合物 (1-7) 外，同樣製作有機

EL 元件。



B

(有機 EL 元件之評價)

以下表 1 所記載之外加直流電壓的條件，測定上述實施例 1~8 及比較例 1~2 之有機 EL 元件之發光亮度、發光效率及色度，然後觀察發光色。對於實施例 1~8 及比較例 1~2 所得之有機 EL 元件，以初期亮度 500nit 測定亮度減半壽命。其結果如表 1 所示。

表 1

	電子注入層 之化合物	電壓 (V)	電流密度 (mA/cm ²)	發光亮度 (nit)	發光效率 (cd/A)	色度(x,y)	發光色	亮度減半壽 命(時間)
實施例 1	1-7	7.0	20.0	795	4.0	(0.144,0.148)	藍	850
實施例 2	4-2	7.0	25.0	1,000	4.0	(0.147,0.156)	藍	1000
實施例 3	1-7	6.5	18.6	1,050	5.65	(0.142,0.145)	藍	
實施例 4	15-2	5.5	13.6	1,020	7.50	(0.142,0.149)	藍	
實施例 5	7-8	5.0	29.5	1,090	3.69	(0.141,0.147)	藍	
實施例 6	7-7	5.5	13.4	950	7.09	(0.143,0.152)	藍	
實施例 7	7-9	5.75	15.8	1,150	7.28	(0.142,0.148)	藍	
實施例 8	3-1	5.75	16.5	1,055	6.40	(0.143,0.149)	藍	
比較例 1	Alq	7.0	13.0	500	3.8	(0.149,0.164)	藍	1000
比較例 2	化合物 A	7.0	7.4	185	2.5	(0.144,0.148)	藍	30
比較例 3	化合物 B	7.0	15.0	600	4.0	(0.145,0.153)	藍	20

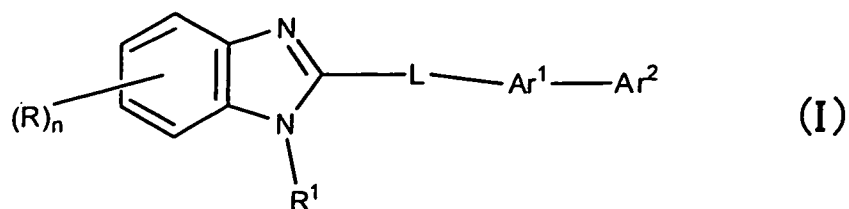
如表 1 之結果得知以一般式 (I) ~ (III) 表示之化合物用於電子注入層，可製造極高之發光亮度及發光效率的元件。特別是以一般式 (II)、(III) 表示之化合物用於電子傳輸層之元件，可得到低電壓，且高發光亮度，另外，將一般式 (I) ~ (III) 之 R¹、R² 或 R³ 中導入烷基或吡啶基的化合物用於電子傳輸層之元件，也可得到低電壓，且高發光亮度。

產業上之利用性

依據本發明時，將本發明之含氮雜環衍生物用於有機 EL 元件之有機化合物層中之至少一層，可得到低電壓，高亮度及高發光效率之有機 EL 元件。

七、申請專利範圍

1. 一種含氮雜環衍生物，其特徵係以下述一般式 (I) 表示，

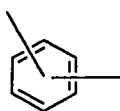


(式中，R 為氫原子、可具有取代基之碳數 6~60 之芳基、可具有取代基之吡啶基、可具有取代基之喹啉基、可具有取代基之碳數 1~20 之烷基或可具有取代基之碳數 1~20 之烷氧基，n 為 0~4 之整數，

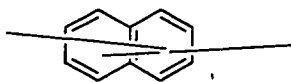
R¹ 為可具有取代基之碳數 6~60 之芳基、可具有取代基之吡啶基、可具有取代基之喹啉基、可具有取代基之碳數 1~20 之烷基（但是排除丙基）或碳數 1~20 之烷氧基，

L 為可具有取代基之碳數 6~60 之伸芳基、可具有取代基之伸吡啶基、可具有取代基之伸喹啉基或可具有取代基之伸苄基，

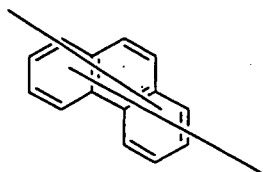
Ar¹ 為下述一般式 (1)、(2)、(4)~(21) 及 (25)



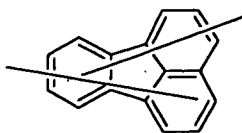
(1)



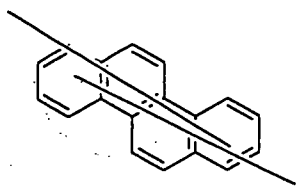
(2)



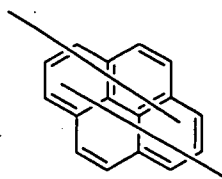
(4)



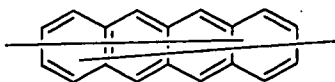
(5)



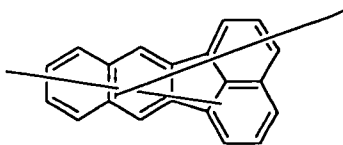
(6)



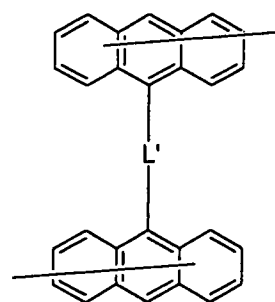
(7)



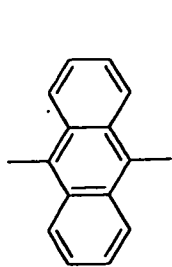
(8)



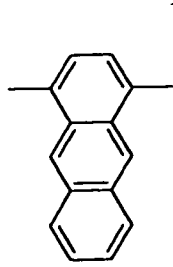
(9)



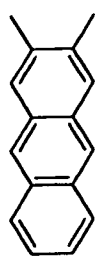
(10)



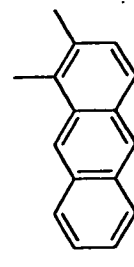
(11)



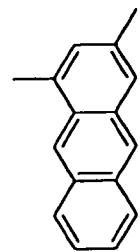
(12)



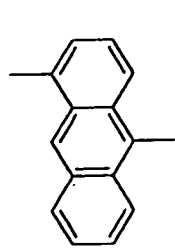
(13)



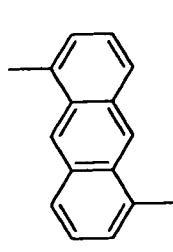
(14)



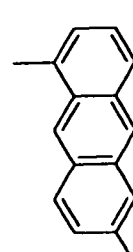
(15)



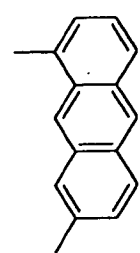
(16)



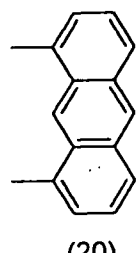
(17)



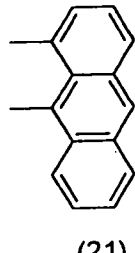
(18)



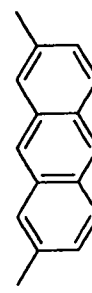
(19)



(20)



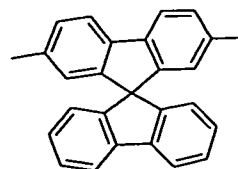
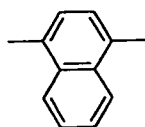
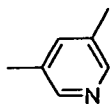
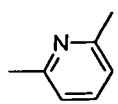
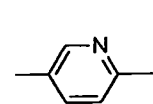
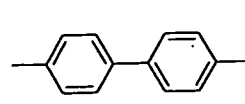
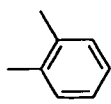
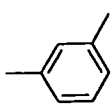
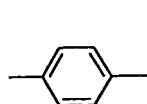
(21)



(25)

(式中，各環基可具有由鹵原子、碳數 1~20 之烷基、碳數 1~20 之烷氧基、碳數 6~40 之芳氧基、或碳數 6~40 之芳基所構成之取代基，該取代基為複數時，彼此可相同或相異，

L' 為單鍵、或選自



所成群之基團)

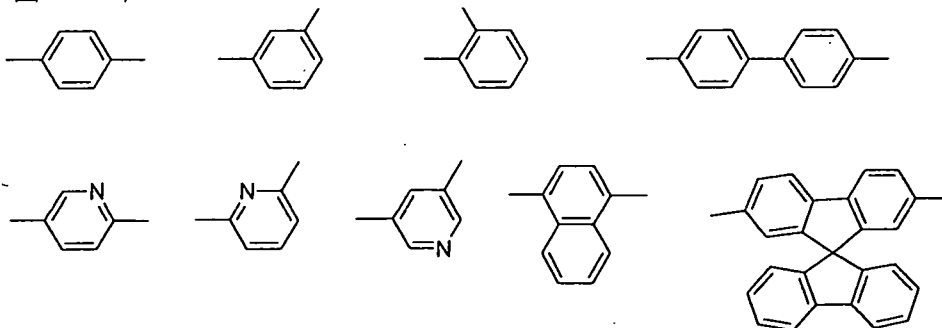
Ar^2 為可具有取代基之碳數 6~60 之芳基、可具有取代基之吡啶基、可具有取代基之喹啉基、可具有取代基之碳數 1~20 之烷基或碳數 1~20 之烷氧基，

前述 R 及 R^1 可具有之取代基係分別獨立為鹵原子、碳數 1~20 之烷基、碳數 1~20 之烷氧基、碳數 6~40 之芳氧基、碳數 6~40 之芳基或碳數 3~40 之雜芳基，

L、 Ar^1 及 Ar^2 可具有之取代基係分別獨立為鹵原子、碳數 1~20 之烷基、碳數 1~20 之烷氧基、碳數 6~40 之芳氧基或碳數 6~40 之芳基。

2. 如申請專利範圍第 1 項之含氮雜環衍生物，其中

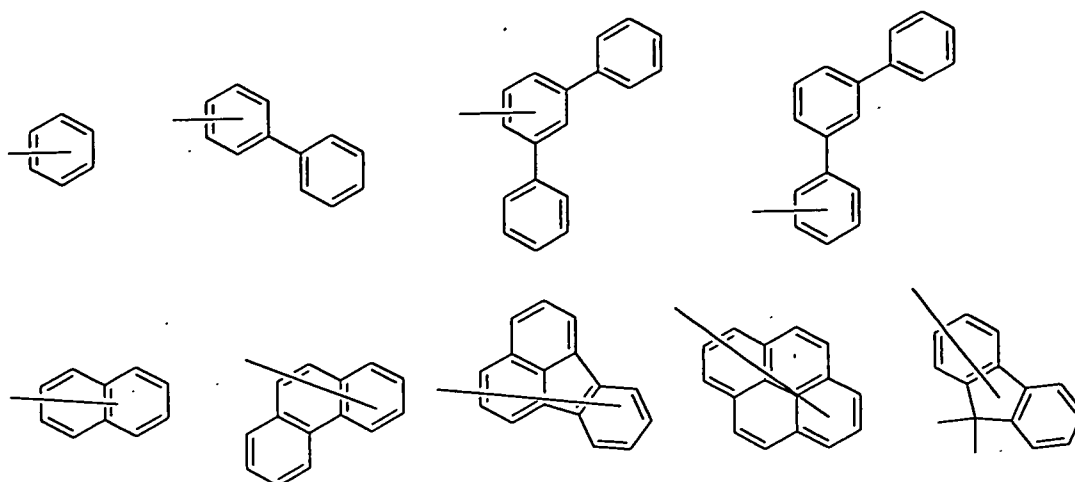
L 為選自



所成群之基團。

3. 如申請專利範圍第 1 項之含氮雜環衍生物，其中

Ar^2 為選自



所成群之基團。

4. 一種有機電致發光元件用材料，其特徵係由申請專利範圍第 1 項之一般式 (I) 表示含氮雜環衍生物所構成。

5. 一種有機電致發光元件，其係具有被夾於一對電極間之含發光層之至少一層之有機化合物層的有機 EL 元件，其特徵係該有機化合物層之至少一層中含有如申請專利範圍第 1 項之含氮雜環衍生物。

6. 如申請專利範圍第 5 項之有機電致發光元件，其中前述含氮雜環衍生物主要含於發光帶域中。

7. 如申請專利範圍第 5 項之有機電致發光元件，其中前述含氮雜環衍生物主要含於發光層中。

8. 如申請專利範圍第 5 項之有機電致發光元件，其中前述含氮雜環衍生物作為電子注入材料及/或電子傳輸材料使用。

9. 如申請專利範圍第 8 項之有機電致發光元件，其中前述含有電子注入材料及/或電子傳輸材料之層含有還原

性摻雜劑。

10.如申請專利範圍第 9 項之有機電致發光元件，其中前述還原性摻雜劑為選自鹼金屬、鹼土金屬、稀土金屬、鹼金屬之氧化物、鹼金屬之鹵化物、鹼土金屬之氧化物、鹼土金屬之鹵化物、稀土金屬之氧化物、稀土金屬之鹵化物、鹼金屬之有機錯合物、鹼土金屬之有機錯合物及稀土金屬之有機錯合物所成群中之至少一種的物質。