I438210

(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 I438210 B**

(45)公告日： 中華民國 103 (2014) 年 05 月 21 日

(21)申請案號：098105487 (22)申請日： 中華民國 98 (2009) 年 02 月 20 日

(51)Int. Cl.： *C08F12/26 (2006.01)* *C08F12/32 (2006.01)*
C07D403/14 (2006.01) *C09K11/06 (2006.01)*
H01L51/50 (2006.01)

(30)優先權：2008/02/22 日本 2008-041902

(71)申請人：昭和電工股份有限公司 (日本) SHOWA DENKO K. K. (JP)
日本

(72)發明人：鳥羽正彥 TOBA, MASAHIKO (JP) ；加藤剛 KATO, TSUYOSHI (JP)

(74)代理人：林志剛

(56)參考文獻：

US 2002/0055014A1 US 2003/0186080A1

US 2007/0138953A1

審查人員：陳衍任

申請專利範圍項數：20 項 圖式數：1 共 0 頁

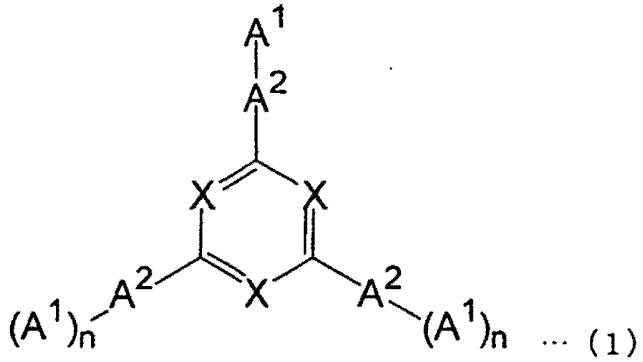
(54)名稱

高分子化合物及使用其之有機電致發光元件

(57)摘要

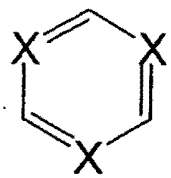
本發明係提供使用於有機 EL 元件時，可降低該有機 EL 元件之驅動電壓，及提高耐久性的高分子材料，以及使用其形成的有機 EL 元件。

本發明之高分子化合物的特徵為，含有來自下述式(1)所表示之單體的構成單位。



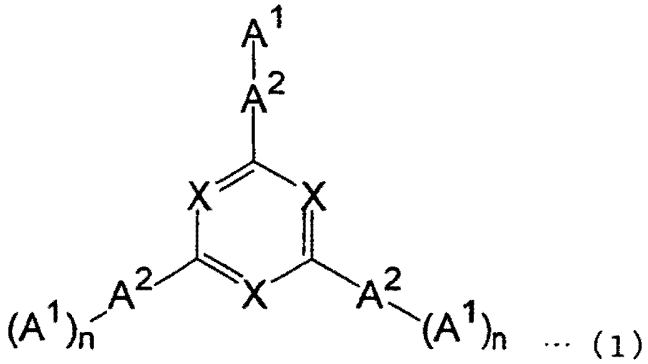
… (1)

(式(1)中，A^1 各自獨立為可具有雜原子作為環構成原子用之縮合多環芳香族基等，對 A^2 之該縮合多環芳香族基的鍵結位置為，對



之鍵結位置為間位，A^2 各自獨立為可具有雜原子作為環構成原子用之 6 員環芳香族基，A^1 及 A^2 中至少 1 個為，具有含有聚合性官能基之取代基，X 中至少 1 個為氮原子，n 各自獨立為 1 或 2)。

化 4



... (1)

六、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

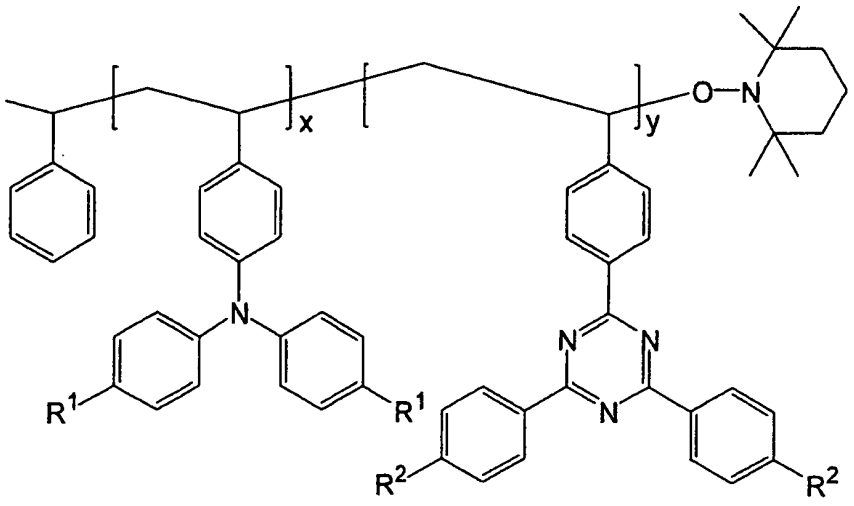
本發明係有關含有芳香族雜環之高分子化合物。更詳細爲，本發明係有關適用於有機電致發光元件（以下也稱爲「有機EL元件」），具有電子輸送性及孔輸送性的含有芳香族雜環之高分子化合物。

【先前技術】

使用有機薄膜之電場發光（電致發光）元件，即有機EL元件一般爲，基板上具有陽極、陰極及設置於兩極間至少含有發光層之有機層。有機層除了發光層外，可設置電孔注入層（陽極緩衝層）、電孔輸送層、電孔阻止層、電子輸送層、電子注入層等。一般此等層係層合於陽極與陰極之間而構成有機EL元件。

非專利文獻1曾揭示，可潛在性應用於有機EL元件及電場效果晶體管的下述式（i）所表示具有三嗪骨架之非共軛高分子的合成例。

[化1]



… (i)

（式中，R^1各自獨立爲氫原子、甲基或n-丁基，R^2各自獨立爲氫原子、甲基、乙基、異丙基、t-丁基、辛基或甲氧基，x及y各自獨立爲1以上之整數）。

又，專利文獻1曾揭示，使用具有全氟伸苯基衍生物作爲取代基用之三嗪衍生物而形成的有機EL元件。使用該類低分子化合物製造有機EL元件之有機層時，一般係使用真空蒸鍍法。因此需具備真空設備，但所形成的有機層膜厚易有不均勻等問題。

另外專利文獻2曾揭示，使用具有三嗪環之甲亞胺螢光發光材料而形成的有機EL元件，非專利文獻2曾揭示，使用具有三嗪骨架之非共軛高分子而形成有機EL元件之製造例。

又，具有電子輸送能之芳香族雜衍生物中導入具有孔洞輸送能之取代基的兩性化合物如，專利文獻3所記載具有雜環基之胺衍生物如下述式（ii）所表示之化合物。因

爲，提供可得驅動電壓較低、耐久性較高之有機EL元件的高分子化合物及使用其形成的有機EL元件。

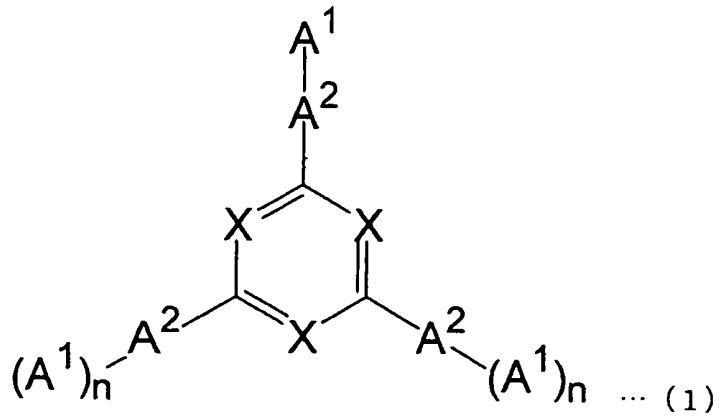
解決課題之方法

爲了解決上述課題而經本發明者專心研究後發現，使用具有作爲有機EL元件之電子輸送部位及孔輸送部位（以下同時將電子輸送及孔洞輸送併稱爲「載體輸送」）用的特定芳香族雜環構造之高分子化合物的有機EL元件，具有較低驅動電壓及較高耐久性，而完成本發明。

本發明例如係有關下述[1]至[20]

[1] 一種高分子化合物，其特徵爲，含有來自下述式（1）所表示之單體的構成單位，

[化4]



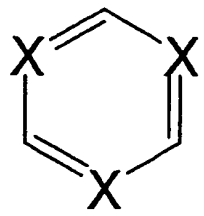
…(1)

（式（1）中，複數A^1各自獨立爲，可具有雜原子作爲環構成原子用之芳香族基、氫原子、鹵原子、胺基、碳原子數1至12之烷基、碳原子數1至12之烷氧基或碳原子數6至10之芳氧基，

複數A^1中至少1個爲，具有雜原子作爲環構成原子用之縮合多環芳香族基，

對A^2之該縮合多環芳香族基的鍵結位置爲，對

[化5]



之鍵結位置爲間位，

3個A^2各自獨立爲，可具有雜原子作爲環構成原子用之6員環芳香族基，

A^1及A^2中直接鍵結於環構成原子之氫原子可各自獨立被，可具有雜原子作爲環構成原子用之芳香族基、鹵原子、胺基、碳原子數1至12之烷基、碳原子數1至12之烷氧基或碳原子數6至10之芳氧基取代，

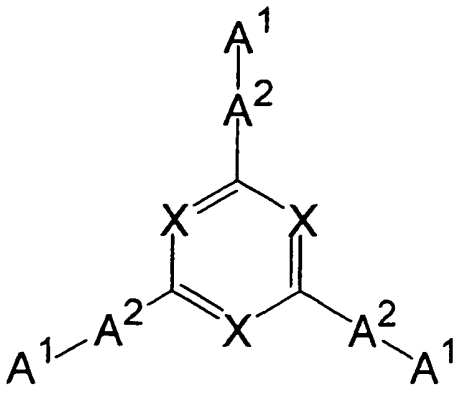
A^1及A^2中至少1個爲，具有含有聚合性官能基之取代基，

3個X各自獨立爲，鍵結1個氫原子之碳原子或氮原子，3個X中至少1個爲氮原子，

2個n各自獨立爲1或2）。

[2] 如[1]所記載之高分子化合物，其中上述式（1）所表之單體如下述式（1-i）所表示。

[化6]



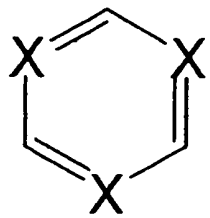
…(1－i)

（式（1-i）中，3個A^1各自獨立爲，可具有雜原子作爲環構成原子用之芳香族基、氫原子、鹵原子、胺基、碳原子數1至12之烷基、碳原子數1至12之烷氧基或碳原子數6至10之芳氧基，

3個A^1中至少1個爲，可具有雜原子作爲環構成原子用之縮合多環芳香族基，

對A^2的該縮合多環芳香族基之鍵結位置爲，對

[化7]



之鍵結位置爲間位，

3個A^2各自獨立爲，可具有雜原子作爲環構成原子用之6員環芳香族基，

A^1及A^2中直接鍵結於環構成原子之氫原子可各自獨立被

，可具有雜原子作爲環構成原子用之芳香族基、鹵原子、胺基、碳原子數1至12之烷基、碳原子數1至12之烷氧基或碳原子數6至10之芳氧基取代，

A^1及A^2中至少1個爲具有含有聚合性官能基之取代基，

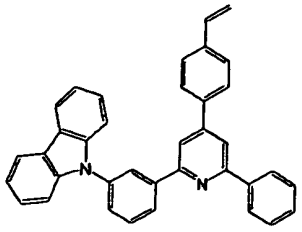
3個X各自獨立爲，鍵結1個氫原子之碳原子或氮原子，

3個X中至少1個爲氮原子）。

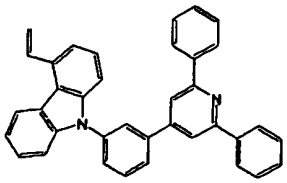
[3] 如[2]所記載之高分子化合物，其中上述式（1-i）中1個A^1爲，具有含有聚合性官能基之取代基，3個A^1中至少1個爲，可具有含有聚合性官能基之取代基的咔唑基或鹵原子、胺基、碳原子數1至12之烷基、碳原子數1至12之烷氧基、碳原子數6至10之芳氧基或可具有雜原子作爲環構成原子用之芳香族基。

[4] 如[2]或[3]所記載之高分子化合物，其中上述式（1）所表示之單體如下述式（A1）、（A13）、（A14）、（A15）、（A31）、（A35）、（A40）、（A42）、（A60）、（A71）、（A73）、（A78）、（A79）、（A80）、（A88）、（A89）、（A107）或（A108）所表示。

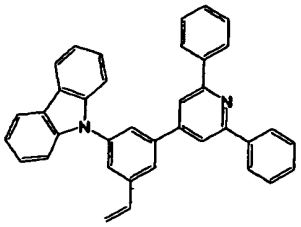
[化8]



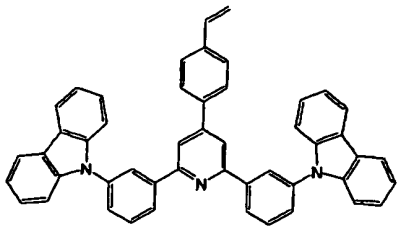
… (A1)



… (A13)

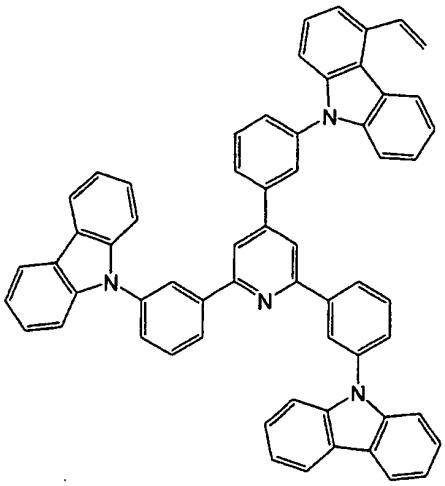


… (A14)

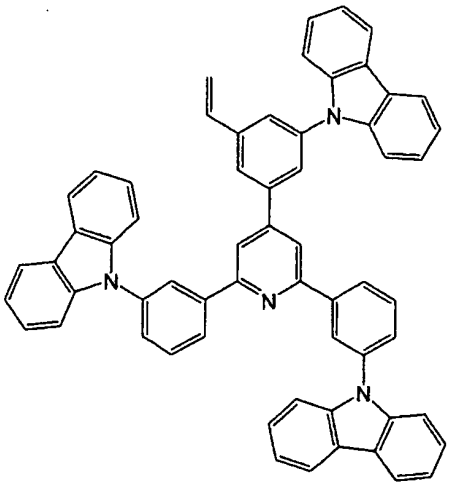


… (A15)

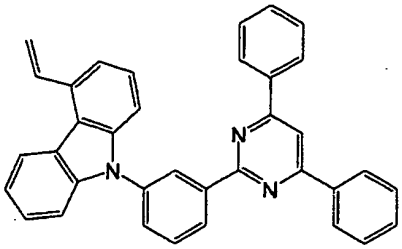
[化9]



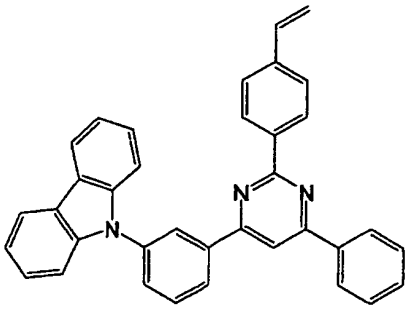
… (A31)



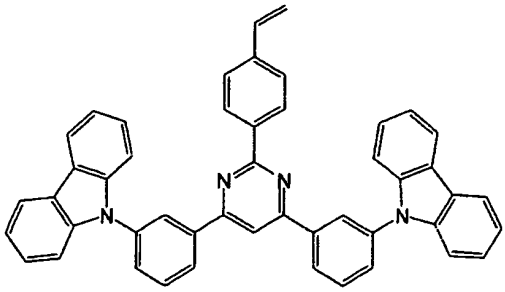
… (A35)



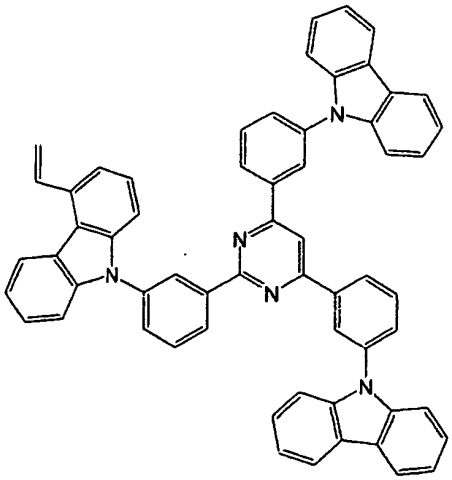
… (A40)



… (A42)

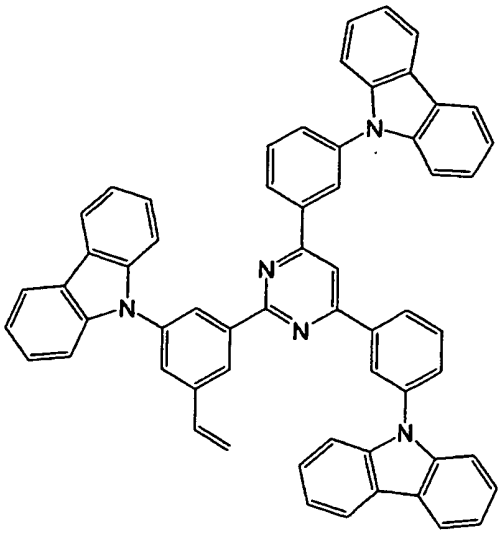


… (A60)

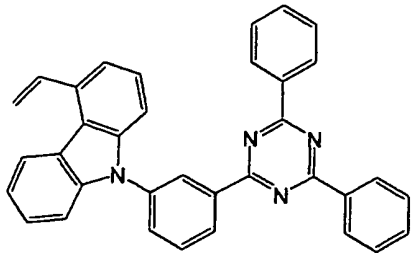


… (A71)

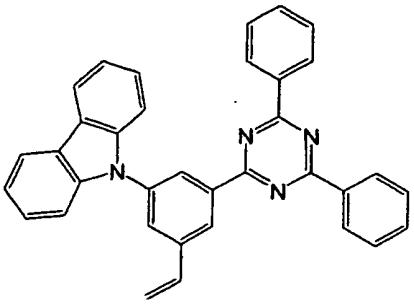
[化10]



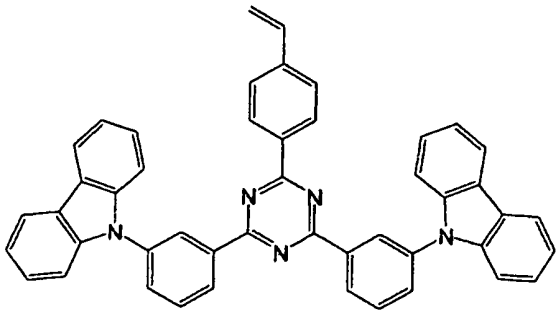
… (A73)



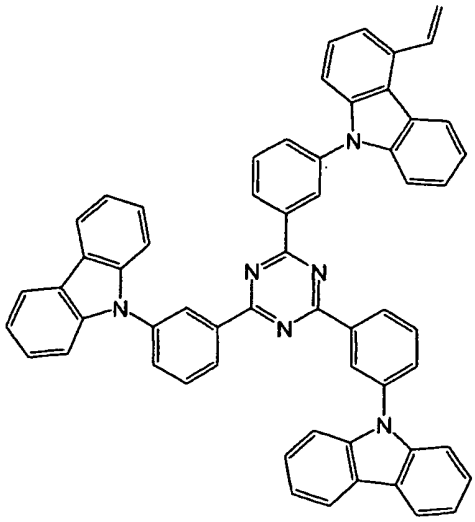
… (A78)



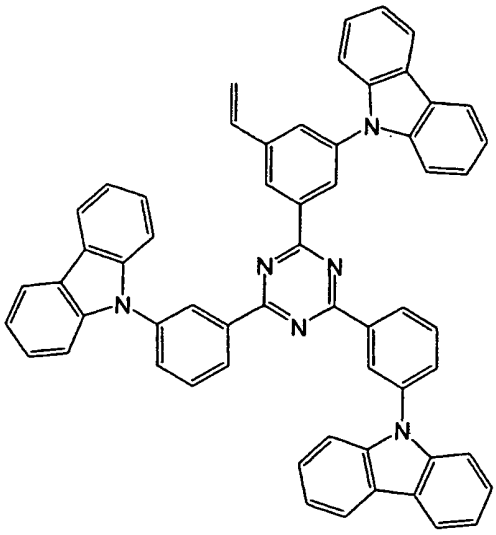
… (A79)



… (A80)

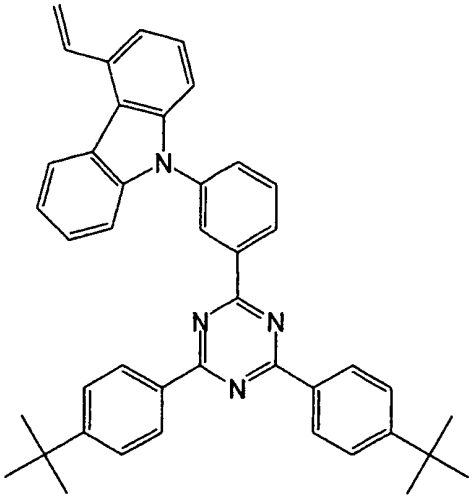


… (A88)

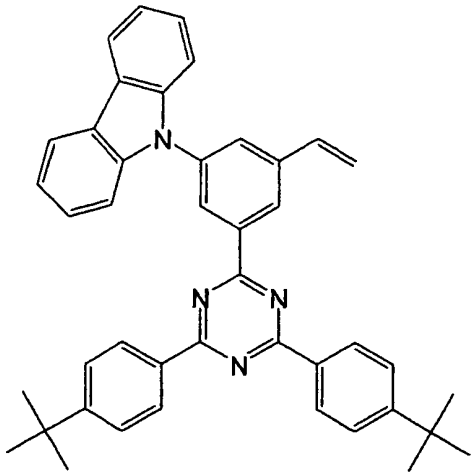


… (A89)

[化11]



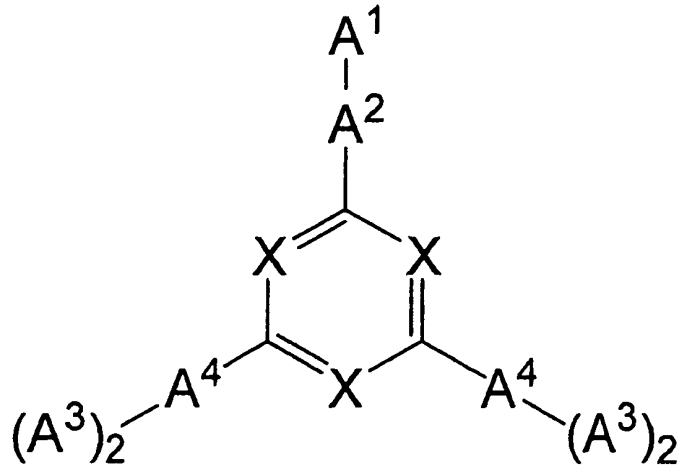
… (A107)



… (A108)

[5] 如[1]所記載之高分子化合物，其中上述式（1）所表示之單體如下述式（1-ii）所表示。

[化12]



… (1－ii)

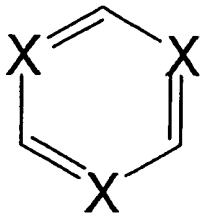
（式（1-ii）中A^1爲，可具有雜原子作爲環構成原子用之芳香族基、氫原子、鹵原子、胺基、碳原子數1至12之烷

基、碳原子數1至12之烷氧基或碳原子數6至10之芳氧基，

4個A^3各自獨立爲，可具有雜原子作爲環構成原子用之縮合多環芳香族基，

對A^2的A^1之鍵結位置，及對A^4的A^3之鍵結位置各自爲，對

[化13]



之鍵結位置爲間位，

A^2及2個A^4各自獨立爲，可具有雜原子作爲環構成原子用之6員環芳香族基，

A^1至A^4中直接鍵結於環構成原子之氫原子可各自獨立被，可具有雜原子作爲環構成原子用之芳香族基、鹵原子、胺基、碳原子數1至12之烷基、碳原子數1至12之烷氧基或碳原子數6至10之芳氧基取代，

A^1至A^4中至少1個爲，具有含有聚合性官能基之取代基，

3個X各自獨立爲，鍵結1個氫原子之碳原子或氮原子，

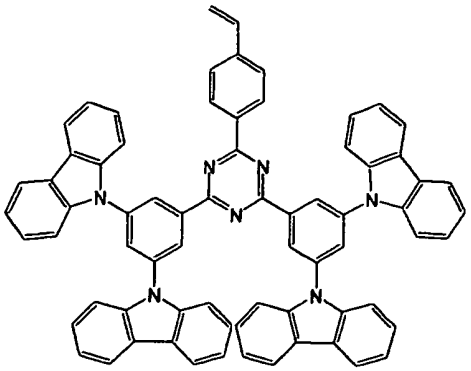
3個X中至少1個爲氮原子）。

[6] 如[5]所記載之高分子化合物，其中上述式（1-ii）中，1個A^1爲具有含有聚合性官能基之取代基，4個A^3中至少1個爲，可具有含有聚合性官能基之取代基的咔唑基

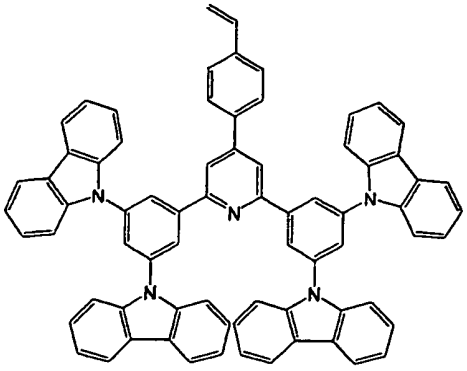
或鹵原子、胺基、碳原子數1至12之烷基、碳原子數1至12之烷氧基、碳原子數6至10之芳氧基或可具有雜原子作爲環構成原子用之芳香族基。

[7] 如[5]或[6]所記載之高分子化合物，其中上述式（1-ii）所表示之單體如下述式（A92）、（A94）、（A96）、（A100）、（A102）或（A104）所表示。

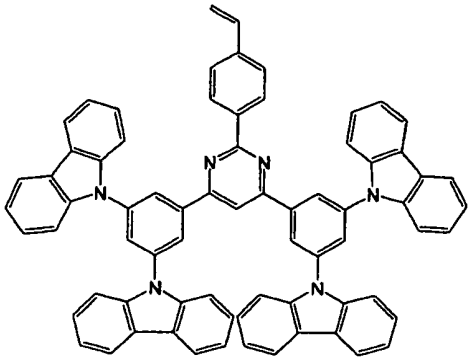
[化14]



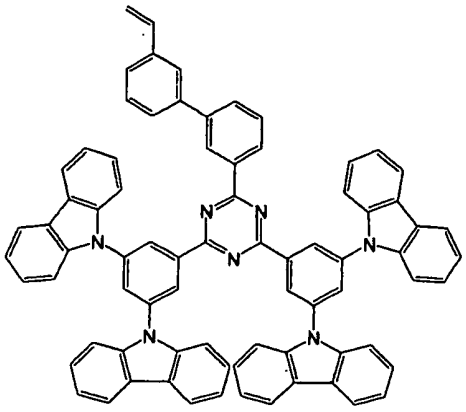
… (A92)



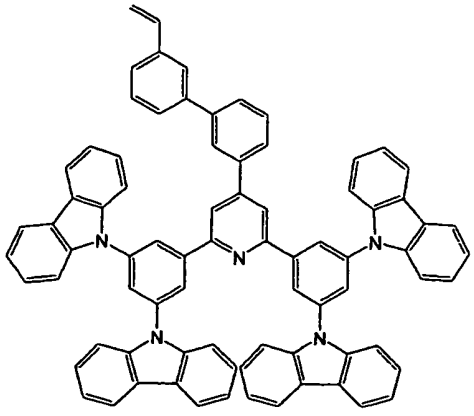
… (A94)



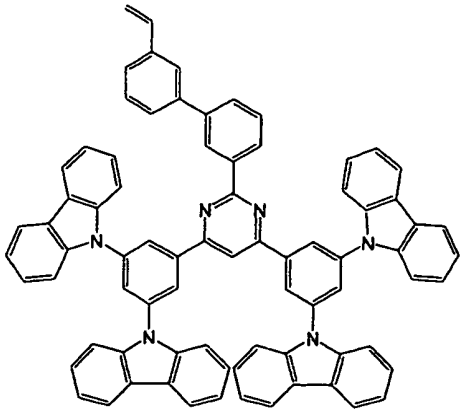
… (A96)



… (A100)



… (A102)



… (A104)

[8] 如[1]至[7]中任何一項所記載之高分子化合物，其中另含有來自孔輸送性之聚合性化合物的構成單位。

[9] 如[8]所記載之高分子化合物，其中上述孔輸送性之聚合性化合物爲，含有咔唑構造或三苯基胺構造。

[10] 如[9]所記載之高分子化合物，其中上述孔輸送性之聚合性化合物爲，含有咔唑構造。

[11] 如[1]至[10]中任何一項所記載之高分子化合物，其中另含有來自電子輸送性之聚合性化合物的構成單位及來自發光性之聚合性化合物的構成單位中任何一種。

[12] 如[11]所記載之高分子化合物，其中上述發光性之聚合性化合物爲，具有磷光發光性。

[13] 如第[11]或[12]所記載之高分子化合物，其中上述發光性之聚合性化合物爲過渡金屬錯合物。

[14] 如[13]所記載之高分子化合物，其中上述過渡金屬錯合物爲銥錯合物。

[15] 如[11]至[14]中任何一項所記載之高分子化合物，其中上述電子輸送性之聚合性化合物爲，具有芳香族雜環取代基或三芳基硼取代基。

[16] 如[1]至[15]中任何一項所記載之高分子化合物，其爲使用於有機電致發光元件。

[17] 一種有機電致發光元件，其特徵爲，含有如[1]至[16]中任何一項所記載之高分子化合物。

[18] 一種有機電致發光元件，其特徵爲，陽極與陰極之間含有，1層以上之有機層的有機電致發光元件中，該有機層所含的發光層中至少1層爲，含有如[1]至[16]中任何一項所記載之高分子化合物。

[19] 一種由顯示器、背光、電子像片、照相光源、記錄光源、曝光光源、讀取光源、標識、看板、裝飾及光通信系統所成群中所選出之物品，其特徵爲，備有如[18]所記載之有機電致發光元件。

[20] 一種有機電致發光元件之製造方法，其特徵爲，包含於陽極上形成至少含有1層如[17]所記載之發光層的有機層之步驟，及於該有機層上形成陰極之步驟。又，爲了簡便，本發明將由陽極至有機層之方向稱爲「上」。

發明之效果

本發明之高分子化合物可提供驅動電壓較低、耐久性較高之有機EL元件。

實施發明之最佳形態

下面將詳細說明本發明。

＜實施形態1＞

本發明之高分子化合物（I）（實施形態1）爲，含有來自上述式（1），較佳爲上述式（1-i）或（1-ii）所表示的載體輸送性之聚合性化合物的構成單位，由上述式（1），較佳爲上述式（1-i）或（1-ii）所表示的載體輸送性之聚合性化合物聚合而得。使用該類高分子化合物（I）時可同時輸送電子及孔等，因此可得驅動電壓較低、耐久性較高之有機EL元件。

上述式（1）中，A^1各自獨立爲，可具有雜原子作爲環構成原子用之芳香族基、氫原子、鹵原子、氰基、碳原子數1至12之烷基、碳原子數1至12之烷氧基或碳原子數6至10之芳氧基。

上述芳香族基如，可具有雜原子作爲環構成原子用之縮合多環芳香族基、苯基、吡啶基、嘧啶基等。其中可具有雜原子作爲環構成原子用之縮合多環芳香族基以外的取代基較佳爲苯基。

上述鹵原子如，氟原子、氯原子、溴原子或碘原子。其中較佳爲氟原子及氯原子，更佳爲氟原子。

上述碳原子數1至12之烷基如，甲基、乙基、丙基、異丙基、丁基、異丁基、t-丁基、戊基、己基、辛基、癸基、2-乙基己基、十二烷基等。其中較佳爲碳數2至8之烷基，更佳爲碳數3至6之烷基。

上述碳原子數1至12之烷氧基如，甲氧基、乙氧基、丙氧基、異丙氧基、丁氧基、異丁氧基、t-丁氧基、己氧基、2-乙基己氧基、癸氧基、十二烷氧基等。其中較佳爲碳數2至8之烷氧基，更佳爲碳數3至6之烷氧基。

上述碳原子數6至10之芳氧基如，苯氧基、苄氧基、苯乙氧基、苯基丙氧基、苯基丁氧基等。其中較佳爲苯氧基、苄氧基及苯乙氧基，更佳爲苯氧基。

上述式（1）中，A^1中至少1個爲，具有雜原子作爲環構成原子用之縮合多環芳香族基。

上述縮合多環芳香族基如，萘基、蒽基、菲基、芘基

爲單鍵、碳原子數1至12之伸烷基或伸苯基。又以，上述式（1）中R^{X71}鍵結於A^1、R^{X72}鍵結於乙烯基爲佳。該類的X^7可得驅動電壓較低、耐久性較高之有機EL元件。

上述碳原子數1至12之伸烷基如，伸甲基、伸乙基、伸丙基、伸異丙基、伸丁基、伸異丁基、t-伸丁基、伸戊基、伸己基、伸辛基、伸癸基、2-乙基伸己基、伸十二烷基等。其中較佳爲碳原子數1至6之伸烷基，更佳爲碳原子數1至3之伸烷基。

其中X^7較佳爲單鍵或碳原子數1至7之伸烷基，更佳爲單鍵。

上述式（1）中，1個A^1爲具有含有上述式（7）所表示之聚合性官能基的取代基，且複數個A^1中至少1個爲可具有，具有鹵原子、胺基、碳原子數1至12之烷基、碳原子數6至10之芳氧基，可具有雜原子作爲環構成原子用之芳香族基或聚合性官能基的取代基之咔唑基爲佳。

該類鹵原子及烷基等取代基之具體例可各自同上述。

爲了使上述式（1）所表示之單體具有優良溶解性及載體輸送能，上述式（1）中之A^1特佳爲，1個A^1爲被上述式（7）所表示之聚合性官能基取代的咔唑基，且鍵結該表示咔唑基之A^1的A^2爲上述式（i）或（ii）之態樣，或1個A^1爲具有上述式（7）所表示之聚合性官能基，且其他A^1中至少1個A^1爲咔唑基之態樣。

上述式（1）中，3個X爲鍵結1個氫原子之碳原子或氮原子，3個X中至少1個爲氮原子。即，上述式（1）所

表示之單體具有吡啶環骨架、嘧啶環骨架及三嗪環骨架中任何一種。

爲了使上述式（1）所表示之單體對電化學性氧化具有優良耐性，而不易形成激發物，又以2個n均爲1之態樣（即上述式（1-i）所表示），及2個n均爲2之態樣（即上述式（1-ii）所表示）爲佳。

上述式（1-ii）中A^3各自獨立爲，可具有雜原子作爲環構成原子用之縮合多環芳香族基，該類縮合多環芳香族基同上述式（1）中之A^1。

上述式（1-ii）中A^4各自獨立爲，可具有雜原子作爲環構成原子用之6員環芳香族基，該類芳香族基同上述式（1）中之A^2。

上述式（1-ii）中A^1至A^4中直接鍵結於環構成原子之氫原子可各自獨立被，可具有雜原子作爲環構成原子用之芳香族基、鹵原子、胺基、碳原子數1至12之烷基、碳原子數1至12之烷氧基或碳原子數6至10之芳氧基取代，此等取代基同上述式（1）中之A^1及A^2。

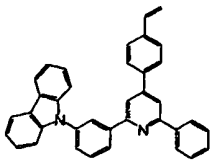
上述式（1-ii）中A^1至A^4中至少1個爲，具有含有聚合性官能基之取代基。其中爲了得到具有更高發光效率之有機EL元件較佳爲，至少1個A^1爲具有含有聚合性官能基之取代基。又上述具有聚合性官能基之取代基也包含聚合性官能基本身。

該類聚合性官能基及具有該官能基之取代基同上述。

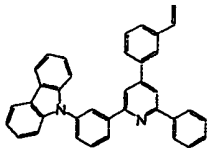
上述式（1-i）所表示之單體的具體例如，下述式（

A1）至（A90）、（A107）或（A108）所表示之單體，上述式（i-ii）所表示之單體的具體例如，下述式（A91）至（A106）中所表示之單體，但本發明非限定於此。

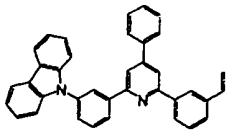
[化19]



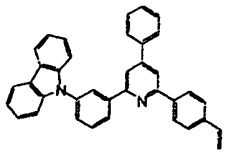
(A1)



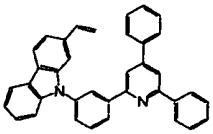
(A2)



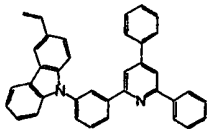
(A3)



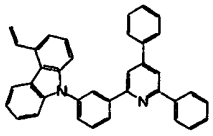
(A4)



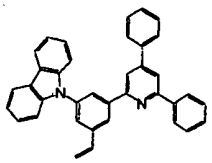
(A5)



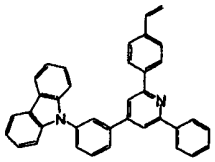
(A6)



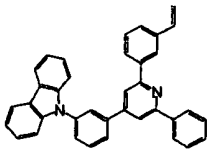
(A7)



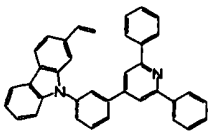
(A8)



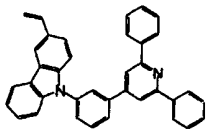
(A9)



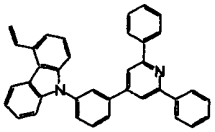
(A10)



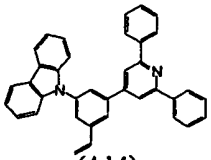
(A11)



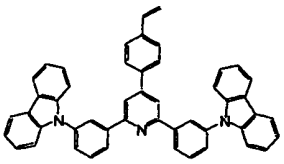
(A12)



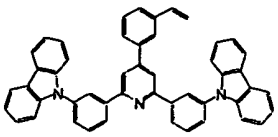
(A13)



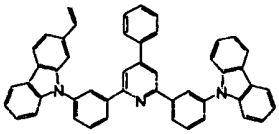
(A14)



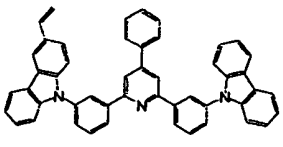
(A15)



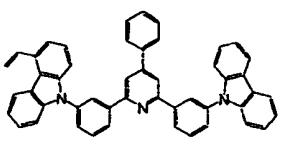
(A16)



(A17)

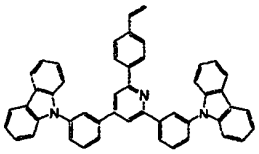


(A18)

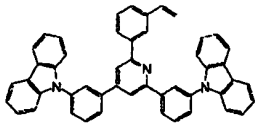


(A19)

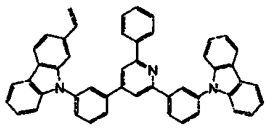
[化20]



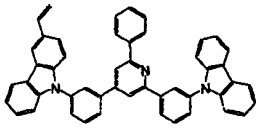
(A20)



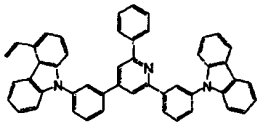
(A21)



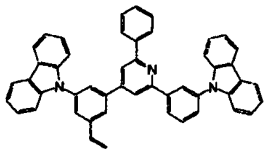
(A22)



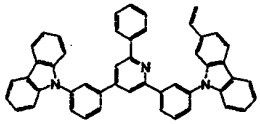
(A23)



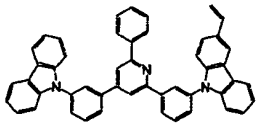
(A24)



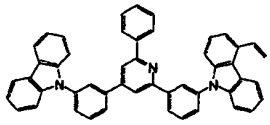
(A25)



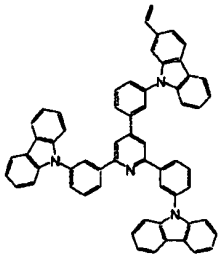
(A26)



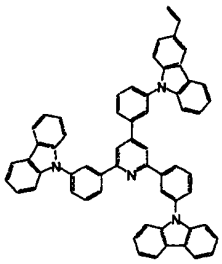
(A27)



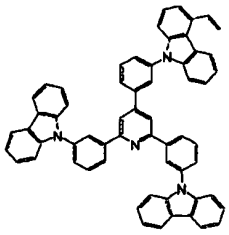
(A28)



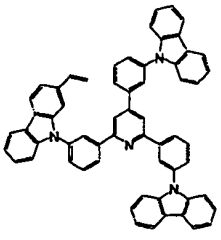
(A29)



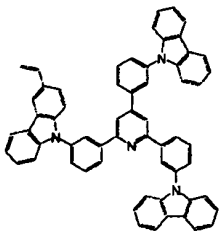
(A30)



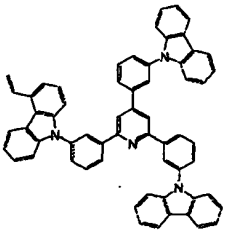
(A31)



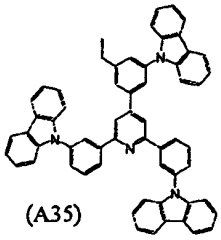
(A32)



(A33)

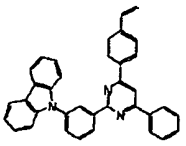


(A34)

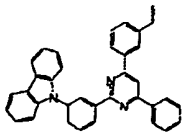


(A35)

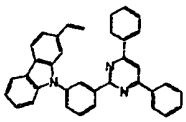
[化21]



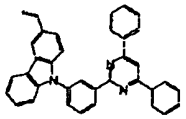
(A36)



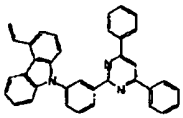
(A37)



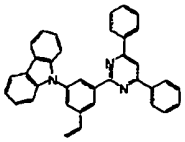
(A38)



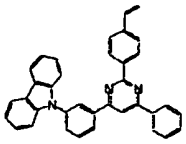
(A39)



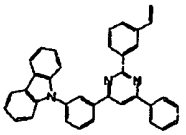
(A40)



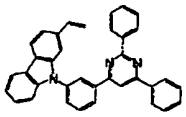
(A41)



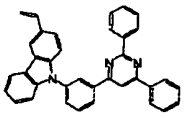
(A42)



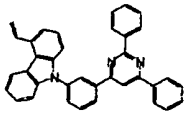
(A43)



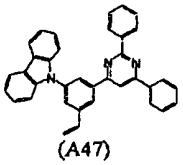
(A44)



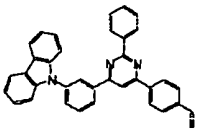
(A45)



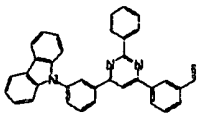
(A46)



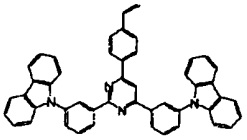
(A47)



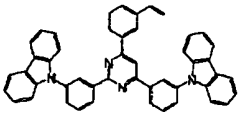
(A48)



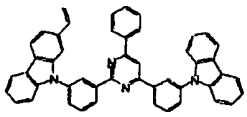
(A49)



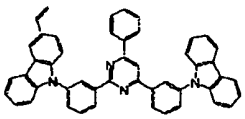
(A50)



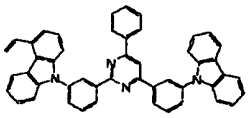
(A51)



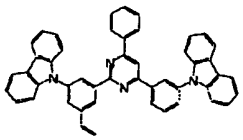
(A52)



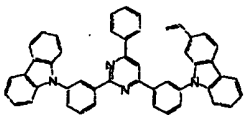
(A53)



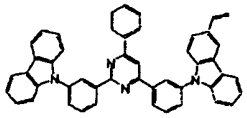
(A54)



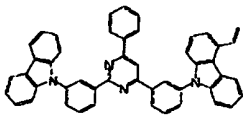
(A55)



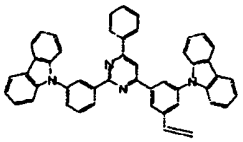
(A56)



(A57)

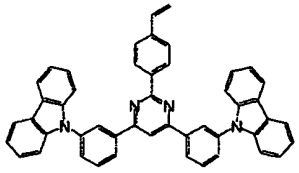


(A58)

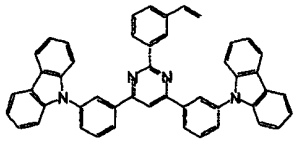


(A59)

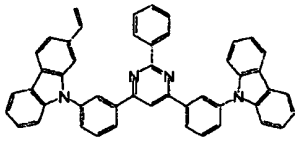
[化22]



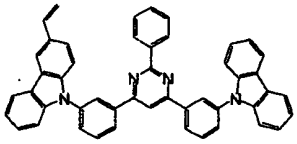
(A60)



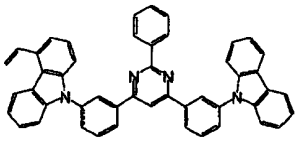
(A61)



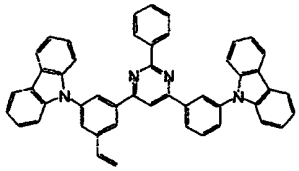
(A62)



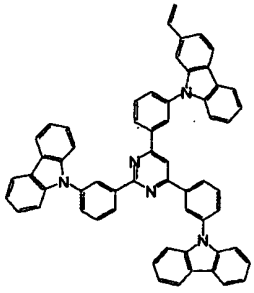
(A63)



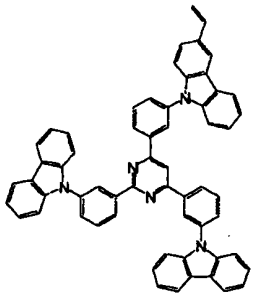
(A64)



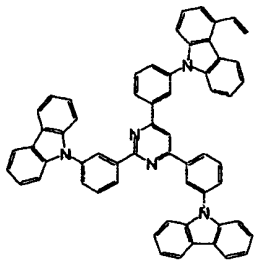
(A65)



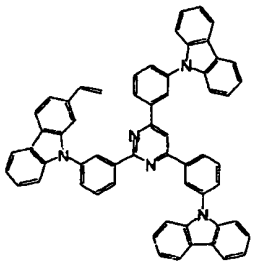
(A66)



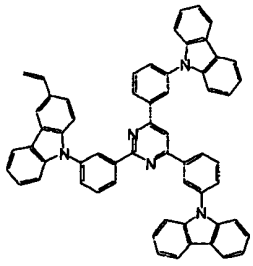
(A67)



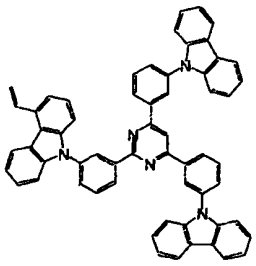
(A68)



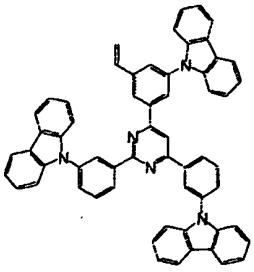
(A69)



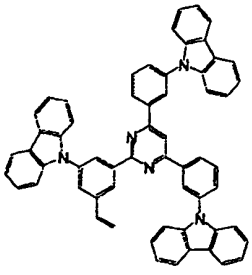
(A70)



(A71)

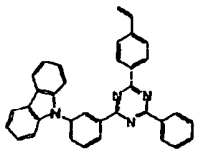


(A72)

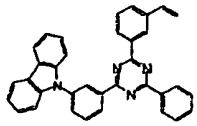


(A73)

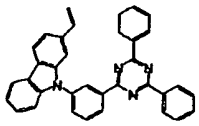
[化23]



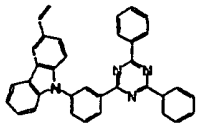
(A74)



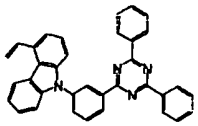
(A75)



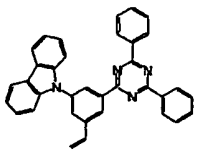
(A76)



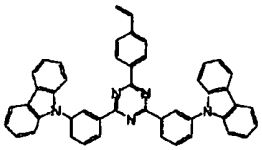
(A77)



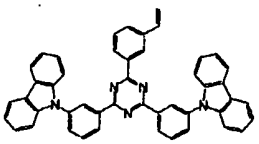
(A78)



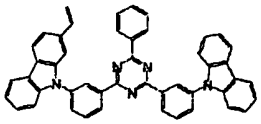
(A79)



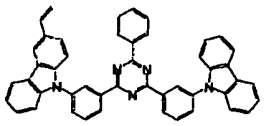
(A80)



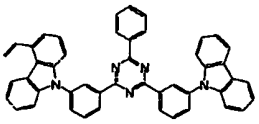
(A81)



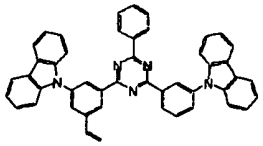
(A82)



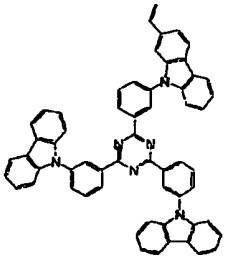
(A83)



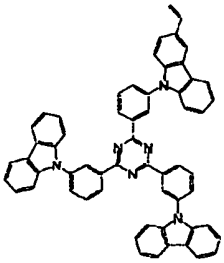
(A84)



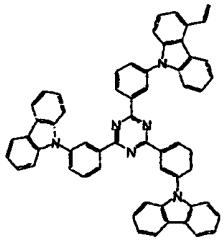
(A85)



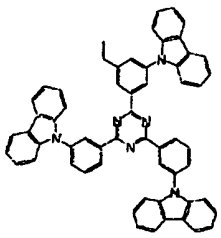
(A86)



(A87)

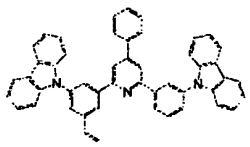


(A88)

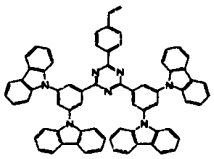


(A89)

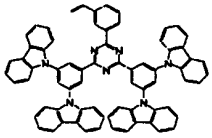
[化24]



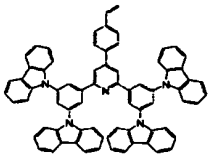
(A90)



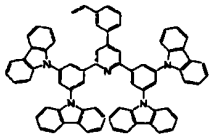
(A91)



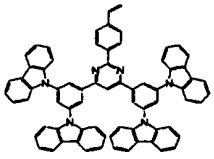
(A92)



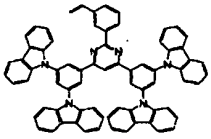
(A93)



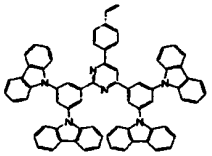
(A94)



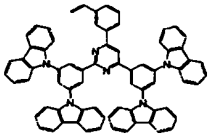
(A95)



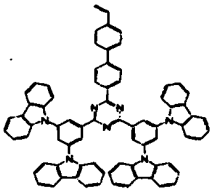
(A96)



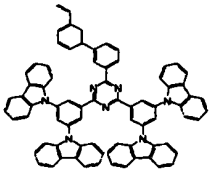
(A97)



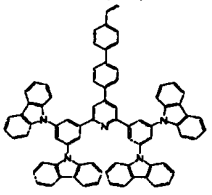
(A98)



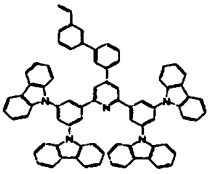
(A99)



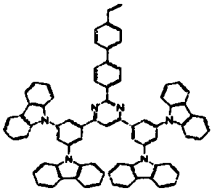
(A100)



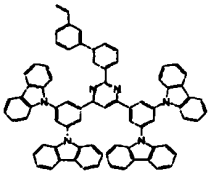
(A101)



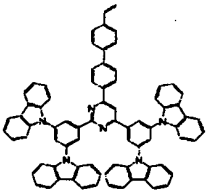
(A102)



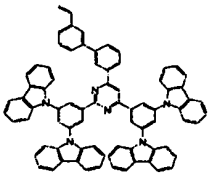
(A103)



(A104)



(A105)



(A106)

態1。

又，高分子化合物（II）中，以來自孔輸送性之聚合性化合物的構成單位數爲m，以來自上述式（1）所表示之載體輸送性的聚合性化合物之構成單位數爲n時（m、n爲1以上之整數），相對於全部構成單位數，來自孔輸送性之聚合性化合物的構成單位數比率，即m/（m+n）之值較佳爲0.1至0.9，更佳爲0.2至0.9，特佳爲0.4至0.9、m/（m+n）之值爲該範圍時，可得具有較高載體移動度及耐久性之有機EL元件。又，上述高分子化合物中各構成單位之比率可由ICP元素分析及^{13}C-NMR測定而得。

又，將上述載體輸送性之聚合性化合物及上述孔輸送性之聚合性化合物的比率適當調整爲上述範圍內進行聚合時，可得具有所希望之構造的高分子化合物（II）。

又，高分子化合物（II）可爲無規共聚物、嵌段共聚物及交互共聚物中任何一種。

＜實施形態3＞

本發明之高分子化合物（III）（實施形態3）爲，除了來自上述式（1）所表示之載體輸送性的聚合性化合物之構成單位，及來自孔輸送性之聚合性化合物的構成單位，另含有來自發光性之聚合性化合物的構成單位，由上述式（1）所表示之載體輸送性的聚合性化合物、孔輸送性之聚合性化合物及發光性之聚合性化合物聚合而得。

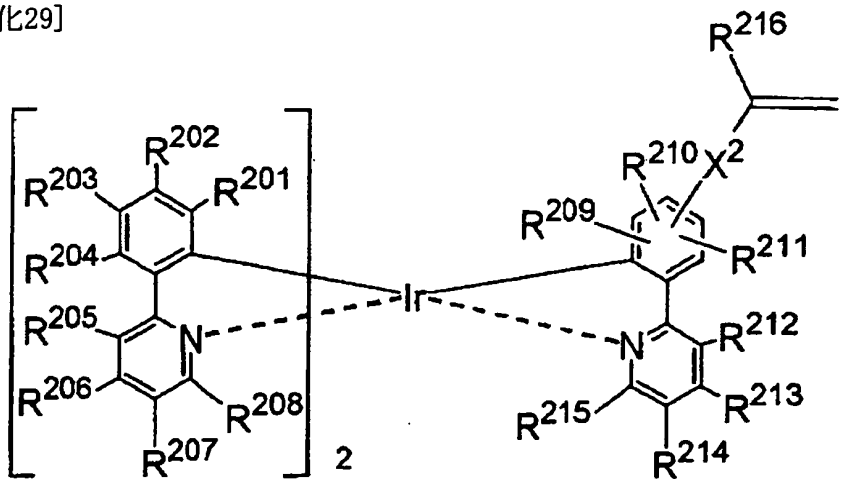
上述式（1）所表示之載體輸送性的聚合性化合物及

孔輸送性之聚合性化合物，同實施形態2所使用的載體輸送性之聚合性化合物，較佳範圍及其理由也相同。

上述發光性之聚合性化合物較佳爲具有磷光發光性，更佳爲具有含有聚合性官能基之取代基的過渡金屬錯合物，特佳爲具有含有聚合性官能基之取代基的銥錯合物。

該類銥錯合物較佳爲下述一般式（2）至（4）所表示之錯合物。此等聚合性化合物具有聚合性官能基之乙烯基。

[化29]



(2)

上述式（2）中，R^{201}至R^{215}各自獨立爲，氫原子、鹵原子、氰基、碳原子數1至10之烷基、碳原子數6至10之芳基、可被碳原子數1至10之烷基取代的胺基、碳原子數1至10之烷氧基及矽烷基所成群中所選出之原子或取代基。

上述鹵原子如，氟原子、氯原子、溴原子或碘原子。

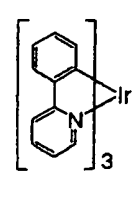
上述碳原子數1至10之烷基如，甲基、乙基、丙基、異丙基、丁基、異丁基、t-丁基、戊基、己基、辛基、癸基等。

份之量。由該類載體輸送性之高分子化合物（I）、發光性化合物及孔輸送性之高分子化合物（I'）形成發光層時，既使未設置其他有機材料層，也可製作具有較高發光效率之有機EL元件。

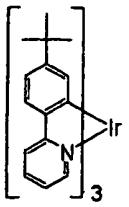
上述發光性化合物較佳爲磷光發光性之化合物，更佳爲銥錯合物。

上述銥錯合物適用之具體例如，下述錯合物（E-1）至（E-39）。

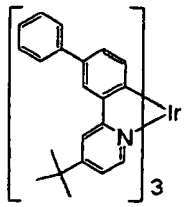
[化35]



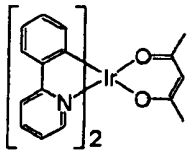
E-1



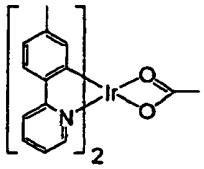
E-2



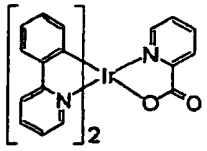
E-3



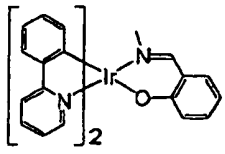
E-4



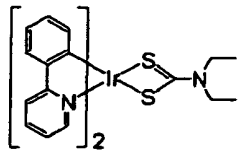
E-5



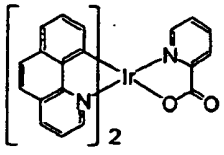
E-6



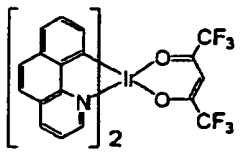
E-7



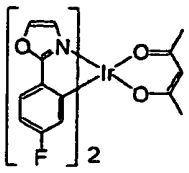
E-8



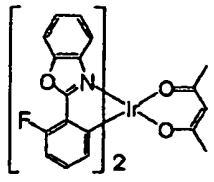
E-9



E-10

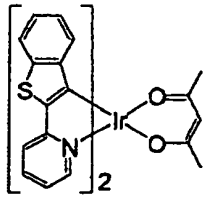


E-11

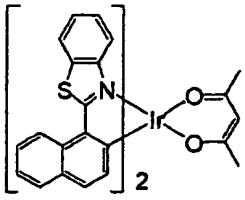


E-12

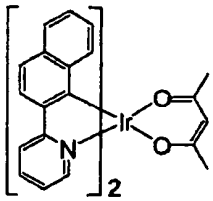
[化36]



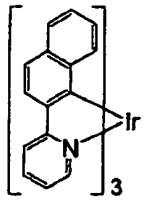
E-13



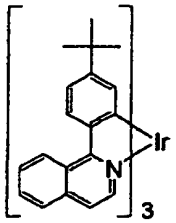
E-14



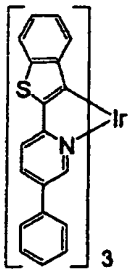
E-15



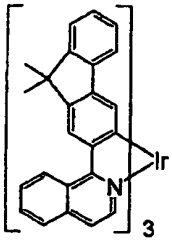
E-16



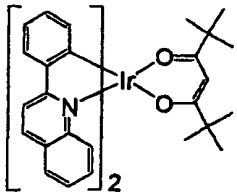
E-17



E-18

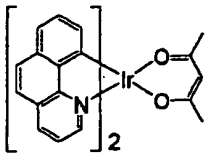


E-19

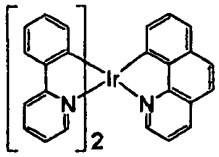


E-20

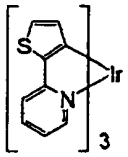
[化37]



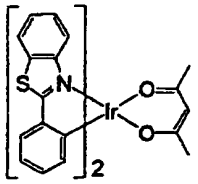
E-21



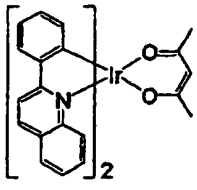
E-22



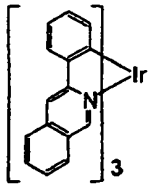
E-23



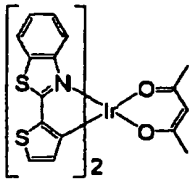
E-24



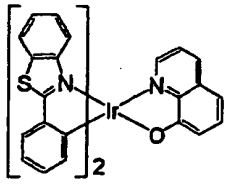
E-25



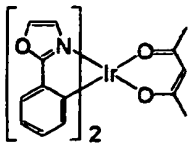
E-26



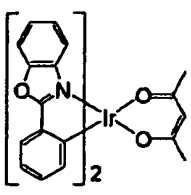
E-27



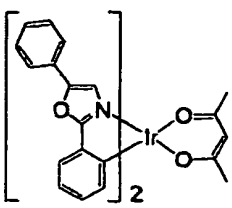
E-28



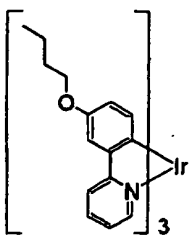
E-29



E-30



E-31



E-32

6之有機EL元件。

又，實施形態6所使用的基板較佳爲，相對於上述發光材料之發光波長爲透明狀之絕緣性基板，具體例除了玻璃，另可使用PET（聚對苯二甲酸乙二醇酯）、聚碳酸酯等透明塑料等。

又，實施形態6所使用的陽極材料較佳如，ITO（氧化銦錫）、氧化錫、氧化鋅、聚噻吩、聚吡咯、聚苯胺等導電性高分子等已知的透明導電材料。由該透明導電材料形成的電極表面電阻較佳爲1至50Ω/□（歐姆/矩形）。陽極之厚度較佳爲50至300nm。

又，實施形態6所使用的陰極材料較佳如，Li、Na、K、Cs等鹼金屬；Mg、Ca、Ba等鹼土類金屬；Al；MgAg合金；AlLi、AlCa等Al與鹼金屬或鹼土類金屬之合金等已知的陰極材料。陰極之厚度較佳爲10nm至1μm，更佳爲50至500nm。使用鹼金屬、鹼土類金屬等活性較高之金屬時，陰極之厚度較佳爲0.1至100nm，更佳爲0.5至50nm。又，此時爲了保護上述陰極金屬，可於該陰極上層含相對於大氣爲安定狀之金屬層。形成上述金屬層之金屬如，Al、Ag、Au、Pt、Cu、Ni、Cr等。上述金屬層之厚度較佳爲10nm至1μm，更佳爲50至500nm。

又，上述陽極材料之成膜方法如，電子束蒸鍍法、濺射法、化學反應法、塗覆法等。上述陰極材料之成膜法如，電阻加熱蒸鍍法、電子束蒸鍍法、濺射法、離子電鍍法等。

＜實施形態7＞

本發明之有機EL元件（實施形態7）爲，陽極與陰極之間備有一層含有特定高分子化合物（II）及實施形態6所示之發光性化合物的發光層。此時發光層較佳爲，相對於高分子化合物（II）100質量份含有上述發光性化合物0.1至50質量份，更佳爲0.5至30質量份之量。該類由併持載體輸送性及孔輸送性之高分子化合物（II）及發光性化合物形成發光層時，既使未設有其他有機材料之層，也可製作具有較高發光效率之有機EL元件。

上述發光層一般係於下述方法形成於設置於基板上之陽極上。首先，調製溶解高分子化合物（II）及上述發光性化合物之溶液。調製上述溶液用之溶劑同實施形態5。調製而得之溶液的成膜方法同實施形態6。又，雖依存於所使用的化合物及成膜條件等，但例如使用旋塗法或浸漬塗佈法時，上述溶液較佳爲相對於高分子化合物（II）100質量份含有發光性化合物0.5至30質量份之量，及溶劑1000至20000質量份之量。

於上述所形成之發光層上設置陰極後，可得實施形態7之有機EL元件。

又，實施形態7所使用的基板、陽極材料、陰極材料及陽極材料與陰極材料之成膜方法同實施形態6。

＜實施形態8＞

本發明之有機EL元件（實施形態8）爲，陽極與陰極之間備有一層含有特定高分子化合物（III）的發光層。使用併持載體輸送性、磷光發光性及孔輸送性之高分子化合物（III）形成發光層時，既使未設置其他有機材料之層，也可製作具有較高發光效率之有機EL元件。另外實施形態8中僅由高分子化合物（III）構成發光層，因此具有製造步驟更簡略化之優點。

上述發光層一般係以下述方法形成於設置於基板上之陽極上。首先，調製溶解高分子化合物（III）之溶液。調製上述溶液用之溶劑同實施形態6。調製而得之溶液的成膜方法同實施形態6。又，雖依存於所使用的化合物及成膜條件等，但例如使用旋塗法或浸漬塗佈法時，上述溶液較佳爲相對於高分子化合物（III）100質量份含有溶劑1000至20000質量份之量。

於上述所形成之發光層上設置陰極後，可得實施形態8之有機EL元件。

又，實施形態8所使用的基板、陽極材料、陰極材料及陽極材料與陰極材料之成膜方法同實施形態6。

＜實施形態9＞

本發明之有機EL元件（實施形態9）爲，陽極與陰極之間備有一層含有特定高分子化合物（IV）及實施形態6所示之發光性化合物的發光層。此時發光層較佳爲相對於高分子化合物（IV）100質量份含有上述發光性化合物0.1

至50質量份，更佳爲0.5至30質量份之量。該類由併持載體輸送性、電子輸送性及孔輸送性之高分子化合物（IV）及發光性化合物形成發光層時，既使未設置其他有機材料之層，也可製作具有較高發光效率之有機EL元件。

上述發光層一般係以下述方法形成於設置於基板上之陽極上。首先，調製溶解高分子化合物（IV）及上述發光性化合物之溶液。調製上述溶液用之溶劑同實施形態6。調製而得之溶液的成膜方法同實施形態6。又，雖依存於所使用的化合物及成膜條件等，但例如使用旋塗法或浸漬塗佈法時，上述溶液較佳爲相對於高分子化合物（IV）100質量份含有發光性化合物0.5至30質量份之量，及溶劑1000至20000質量份之量。

於上述所形成之發光層上設置陰極後，可得實施形態9之有機EL元件。

又，實施形態9所使用的基板、陽極材料、陰極材料及陽極材料與陰極材料之成膜方法同實施形態6。

＜實施形態10＞

本發明之有機EL元件（實施形態10）爲，陽極與陰極之間備有一層含有特定高分子化合物（V）之發光層。使用併持載體輸送性、孔輸送性、電子輸送性及磷光發光性之高分子化合物（V）形成發光層時，既使未設置其他有機材料之層，也可製作具有較高發光效率之有機EL元件。另外實施形態10中僅由高分子化合物（V）形成發光

層，因此具有製造步驟更簡略化之優點。

上述發光層一般係以下述方法形成於設置於基板上之陽極上。首先，調製溶解高分子化合物（V）之溶液。調製上述溶液用之溶劑同實施形態6。調製而得之溶液的成膜方法同實施形態6。又，雖依存於所使用的化合物及成膜條件等，但例如使用旋塗法或浸漬塗佈法時，上述溶液較佳爲相對於高分子化合物（V）100質量份含有溶劑1000至20000質量份之量。

於上述所形成之發光層上設置陰極後，可得實施形態10之有機EL元件。

又，實施形態10所使用的基板、陽極材料、陰極材料及陽極材料與陰極材料之成膜方法同實施形態6。

＜實施形態11＞

本發明之有機EL元件可爲，陽極與陰極之間除了實施形態6至10所說明的發光層，另備有其他有機層之有機EL元件（實施形態11）。

其他有機層如，孔輸送層、電子輸送層、孔閉塞層、緩衝層等。設置此等有機層時，可進一步提高發光效率。

圖1爲本發明之有機EL元件（實施形態11）構造之一例。圖1中，設置於透明基板（1）上陽極（2）與陰極（6）之間，依序設有孔輸送層（3）、實施形態1或2所說明的發光層（4）及電子輸送層（5）。

又，實施形態11可爲，於陽極（2）與陰極（6）之間

設置1）孔輸送層/上述發光層、2）上述發光層/電子輸送層中任何一種。

上述各有機層可混合黏合劑用之高分子材料等而形成。上述高分子材料如，聚甲基甲基丙烯酸酯、聚碳酸酯、聚酯、聚碸、聚二苯醚等。

又，上述孔輸送層及電子輸送層用之孔輸送性化合物及電子輸送性化合物可各自單獨形成各層，又可混合機能不同之材料形成各層。

形成上述孔輸送層之孔輸送性化合物如，TPD（N,N'-二甲基-N,N'-（3-甲基苯基）-1,1'-聯苯基-4,4'二胺）；α-NPD（4,4'-雙[N-（1-萘基）-N-苯基胺基]聯苯）；m-MTDATA（4,4',4"-三（3-甲基苯基苯基胺基）三苯基胺）等低分子三苯基胺衍生物；聚乙烯基咔唑；上述三苯基胺衍生物導入聚合性官能基聚合而得之高分子化合物；聚對苯亞乙烯酯、聚二烷基芴等螢光發光性高分子化合物等。上述高分子化合物如，特開平8-157575號公報所揭的三苯基胺骨架之高分子化合物等。上述孔輸送性化合物可1種單獨或2種以上混合使用，或層合不同孔輸送性化合物再使用。孔輸送層之厚度雖依存於孔輸送層之導電率等，但一般較佳爲1nm至5μm，更佳爲5nm至1μm，特佳爲10nm至500nm。

形成上述電子輸送層之電子輸送性化合物如，Alq_3（鋁三喹啉酸酯）等喹啉酚衍生物金屬錯合物、噁二唑衍生物、三唑衍生物、咪唑衍生物、三嗪衍生物、三芳基甲硼

烷衍生物等低分子化合物；上述低分子化合物導入聚合性取代基聚合而得之高分子化合物。上述高分子化合物如，特開平10-1665號公報所揭示之聚PBD等。上述電子輸送性化合物可1種單獨，或2種以上混合使用，又可層合不同的電子輸送性化合物再使用。電子輸送層之厚度雖依存於電子輸送層之導電率等，但一般較佳爲1nm至5μm，更佳爲5nm至1μm，特佳爲10nm至500nm。

又，爲了抑制孔通過發光層，而使發光層內孔及電子更有效率再結合，可接鄰上述發光層之陰極側設置孔閉塞層。形成上述孔閉塞層可使用三唑衍生物、噁二唑衍生物、菲繞啉衍生物等已知的材料。

又，爲了緩和陽極與孔輸送層之間、或陽極與接鄰層合於陽極的有機層之間於注入孔時的注入障礙，可設置緩衝層。形成上述緩衝層可使用酮酞菁、聚伸乙基二氧基噻吩及聚苯乙烯磺酸之混合物（PEDOT：PSS）等已知的材料。

另外爲了提升陰極與電子輸送層之間、或陰極與接鄰層合於陰極的有機層之間的電子注入效率，可設置厚0.1至10nm之絕緣層。形成上述絕緣層可使用氟化鋰、氟化鈉、氟化鎂、氧化鎂、氧化鋁等已知的材料。

上述孔輸送層及電子輸送層之成膜方法除了電阻加熱蒸鍍法、電子束蒸鍍法、濺射法等乾式成膜法，另可使用旋塗法、鑄造法、微照相凹版法、照相凹版法、棒塗法、輥塗法、金屬絲棒塗法、浸漬塗佈法、噴霧塗佈法、篩網

印刷法、撓版印刷法、膠版印刷法、噴墨印刷法等濕式成膜法。使用低分子化合物時較佳爲乾式成膜法，使用高分子化合物時較佳爲濕式成膜法。

＜用途＞

本發明之有機EL元件可利用已知方法以矩陣方式或扇形方式形成畫素使用於畫像顯示裝置。又，上述有機EL元件可不用形成畫素，作爲面發光光源用。

本發明之有機EL元件具體上適用於顯示器、背景光、電子像片、照明光源、記錄光源、曝光光源、讀取光源、標識、看板、裝飾、光通信系統等。

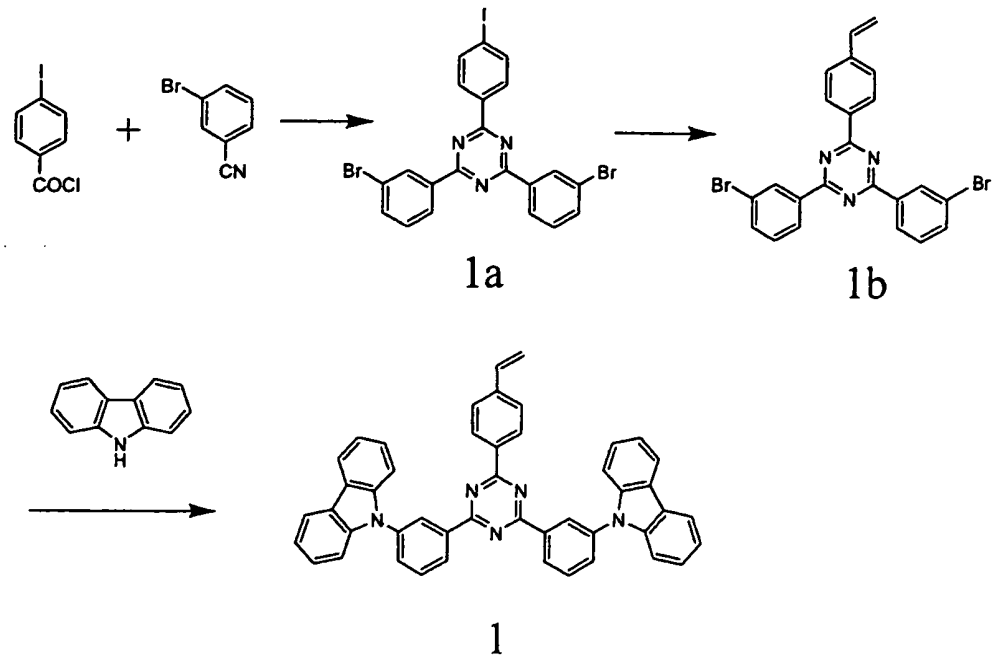
【實施方式】

實施例

下面將基於實施例更具體說明本發明，但本發明非限於此等實施例。

[合成例1]

[化39]



…流程1

下面將參考上述流程1進行說明。

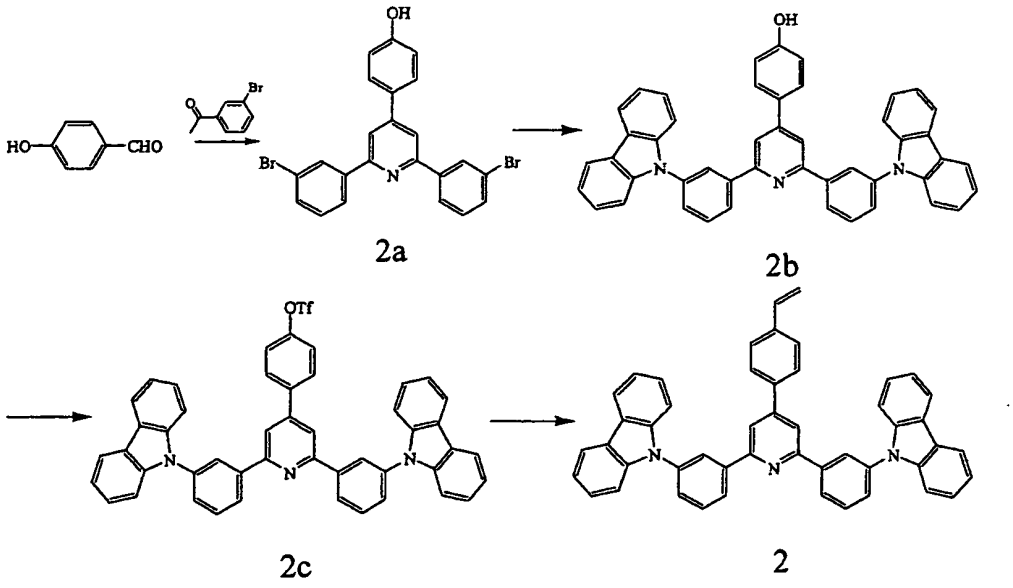
將4-碘苯醯氯化物10mmol及3-溴苯甲腈30mmol溶解於脫水氯仿50mL中，加入氯化鋁10mmol及銨氯化物40mmol後，50℃下加熱攪拌24小時。冷卻至室溫後注入10%鹽酸再攪拌1小時。使用氯仿萃取後，藉由柱色譜法精製，得鹵化三嗪衍生物（1a）。

將所得的鹵化三嗪衍生物（1a）3mmol、乙烯基硼酸2.8mmol及四丁基銨溴化物1.5mmol溶解於甲苯45mL中，加入少量聚合禁止劑後，加入2M碳酸鉀水溶液30mL。加入四三苯基膦鈀0.15mmol後加熱回流3小時，再冷卻至室溫。使用乙酸乙酯萃取後，藉由柱色譜法精製，得三嗪之鹵化乙烯酯單體（1b）。

將所得的鹵化乙烯酯單體（1b）2.5mmol、咔唑5.5mmol及叔丁氧基鈉8mmol溶解於甲苯50mL中，加入少量聚合禁止劑後，加入乙酸鈀0.13mmol及三（叔丁基）膦0.5mmol，再加熱回流2小時。使用乙酸乙酯萃取後，藉由柱色譜法精製，得導入咔唑基之三嗪乙烯酯單體（1）。

[合成例2]

[化40]



…流程2

下面將參考上述流程2進行說明。

將3'-溴乙醯苯62.8mmol、4-羥基苯甲醛31.4mmol、乙酸銨0.4mol溶解於乙酸80mL中，加熱回流8小時。加入純水停止反應後，使用氯仿萃取，再藉由柱色譜法精製，得鹵化吡啶衍生物（2a）。

將鹵化吡啶衍生物（2a）10mmol、咔唑22mmol及叔

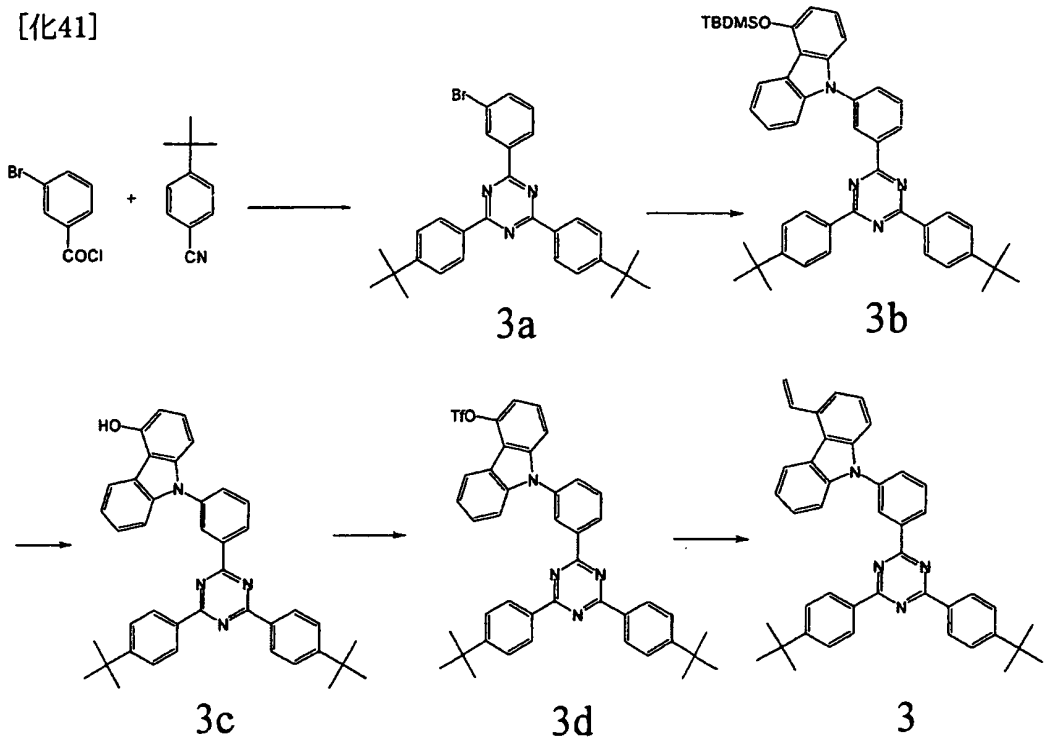
丁氧基鈉8mmol溶解於甲苯50mL中，加入乙酸鈀0.13mmol及三（叔丁基）膦0.5mmol，再加熱回流2小時。使用乙酸乙酯萃取後，藉由柱色譜法精製，得導入咔唑基之吡啶衍生物（2b）。

將所得的導入咔唑基之吡啶衍生物（2b）9mmol溶解於吡啶30mL中，冰浴下加入三氟磺酸酐10mmol後，室溫下攪拌14小時，再使用稀鹽酸停止反應。使用乙酸乙酯萃取後，藉由柱色譜法精製，得導入咔唑基之吡啶衍生物（2c）。

將導入咔唑基之吡啶衍生物（2c）6mmol、乙烯基硼酸6.6mmol及四丁基銨溴化物3mmol溶解於甲苯75mL中，加入少量聚合禁止劑後，加入2M碳酸鉀水溶液50mL。加入四三苯基膦鈀0.3mmol後，加熱回流3小時，再冷卻至室溫。使用乙酸乙酯萃取後，藉由柱色譜法精製，得導入咔唑基之吡啶乙烯酯單體（2）。

[合成例3]

[化41]



…流程3

下面將參考上述流程3進行說明。

將3-溴苯醯氯化物10mmol及4-t-丁基苯甲腈30mmol溶解於脫水氯仿50mL中，加入氯化鋁10mmol及銨氯化物40mmol後，50℃下加熱攪拌24小時。冷卻至室溫後注入10%鹽酸，再攪拌1小時。使用氯仿萃取後，藉由柱色譜法精製，得鹵化三嗪衍生物（3a）。

將所得的鹵化三嗪衍生物（3a）3mmol，以Si基保護羥基之咔唑3.3mmol及叔丁氧基鈉8mmol溶解於甲苯50mL中，加入乙酸鈀0.13mmol及三（叔丁基）膦0.5mmol後，加熱回流2小時。使用乙酸乙酯萃取後，藉由柱色譜法精製，得導入咔唑基之三嗪衍生物（3b）。

將導入咔唑基之三嗪衍生物（3b）2.8mmol溶解於四

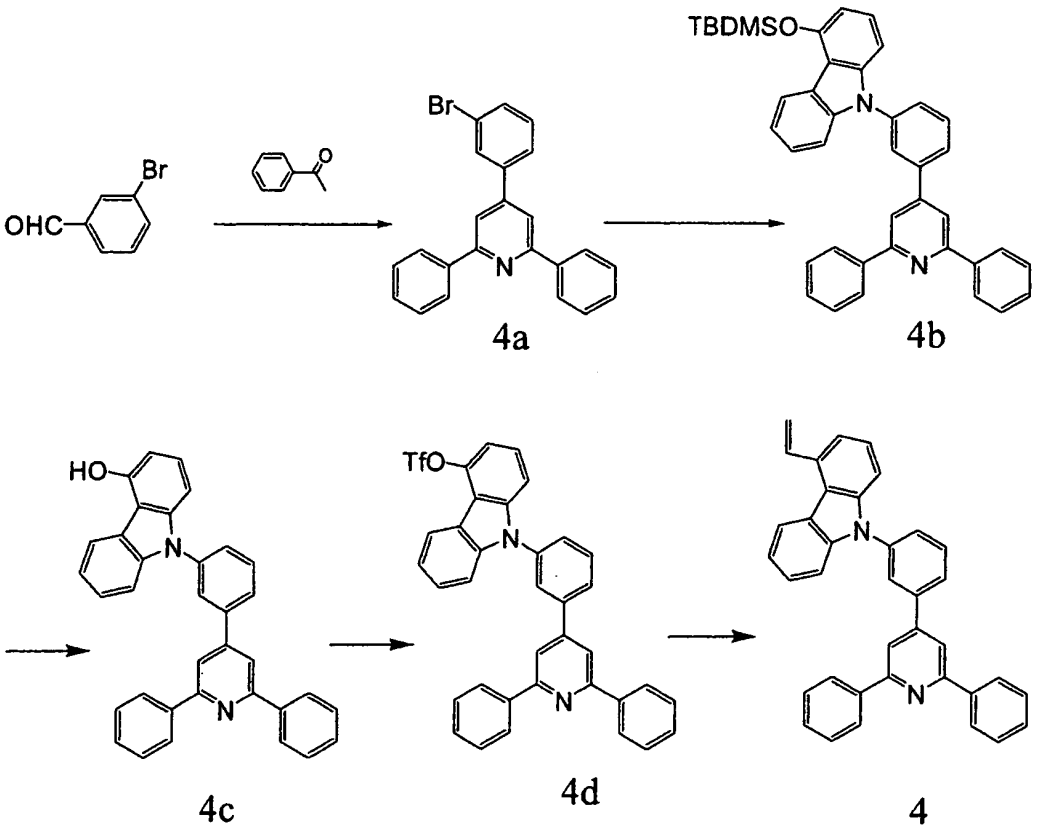
氫呋喃20mL中，冰浴下加入四丁基銨氟化物9mmol後，室溫下再攪拌1小時。使用乙酸乙酯萃取後，藉由柱色譜法精製，得導入咔唑基之三嗪衍生物（3c）。

將所得的導入咔唑基之三嗪衍生物（3c）2.7mmol溶解於吡啶10mL中，冰浴下加入三氟磺酸酐3mmol後，室溫下攪拌14小時，再使用稀鹽酸停止反應。使用乙酸乙酯萃取後，藉由柱色譜法精製，得導入咔唑基之三嗪衍生物（3d）。

將導入咔唑基之三嗪衍生物（3d）2.5mmol、乙烯基硼酸3mmol及四丁基銨溴化物1.3mmol溶解於甲苯45mL中，加入聚合禁止劑後，加入2M碳酸鉀水溶液30mL。加入四三苯基膦鈀0.13mmol後，加熱回流3小時，再冷卻至室溫。使用乙酸乙酯萃取後，藉由柱色譜法精製，得導入咔唑基之三嗪乙烯酯單體（3）。

[合成例4]

[化42]



…流程4

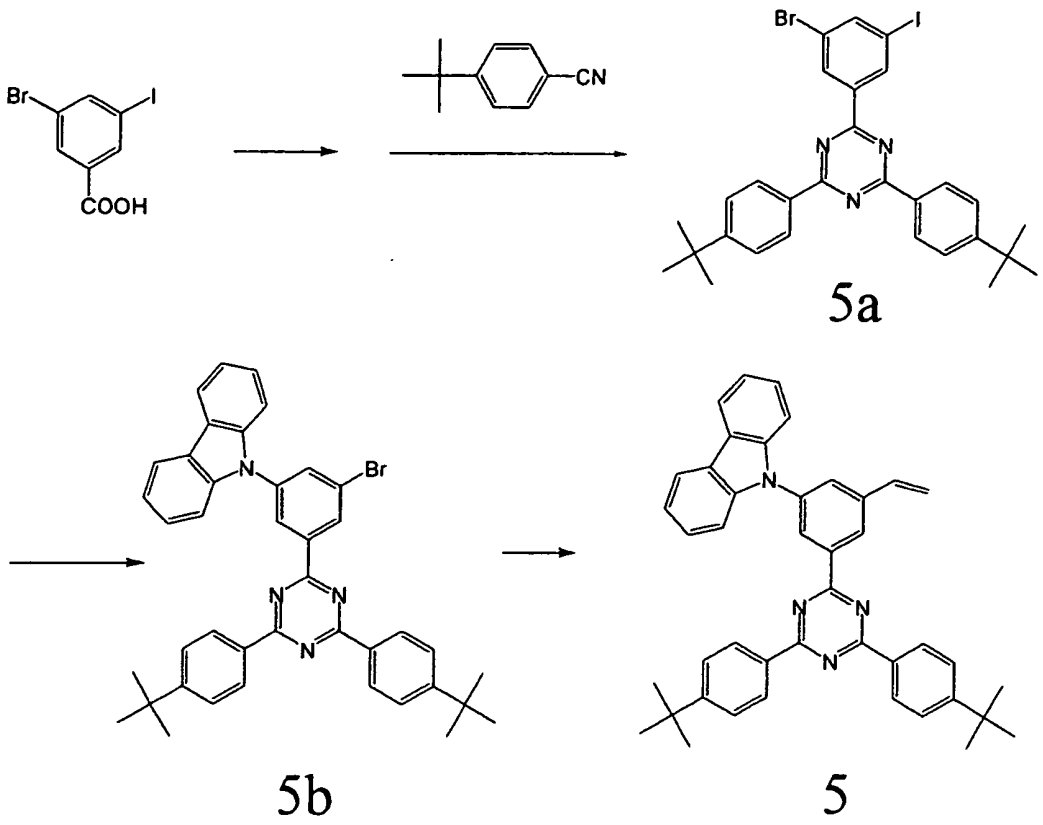
下面將參考上述流程4進行說明。

將乙酸80mL加入乙醯苯62.8mmol、3-溴苯甲醛31.4mmol、乙酸銨0.4mol中，加熱回流8小時後加入純水停止反應。使用氯仿萃取後，藉由柱色譜法精製，得鹵化吡啶衍生物（4a）。

除了使用鹵化吡啶衍生物（4a），其他同合成例3進行合成，得導入咔唑基之吡啶乙烯酯單體（4）。

[合成例5]

[化43]



…流程5

下面將參考上述流程5進行說明。

將3-溴-5-碘安息香酸10mmol溶解於二氯乙烷100mL中，加入氯化亞硫醯10mL後加熱回流2小時。減壓下由反應液餾去溶劑後，加入4-t-丁基苯甲腈30mmol及氯仿75mL，有加入氯化鋁10mmol及銨氯化物40mmol，50℃下加熱攪拌24小時。冷卻至室溫後注入10%鹽酸，再攪拌1小時。使用氯仿萃取後，藉由柱色譜法精製，得二鹵化三嗪衍生物（5a）。

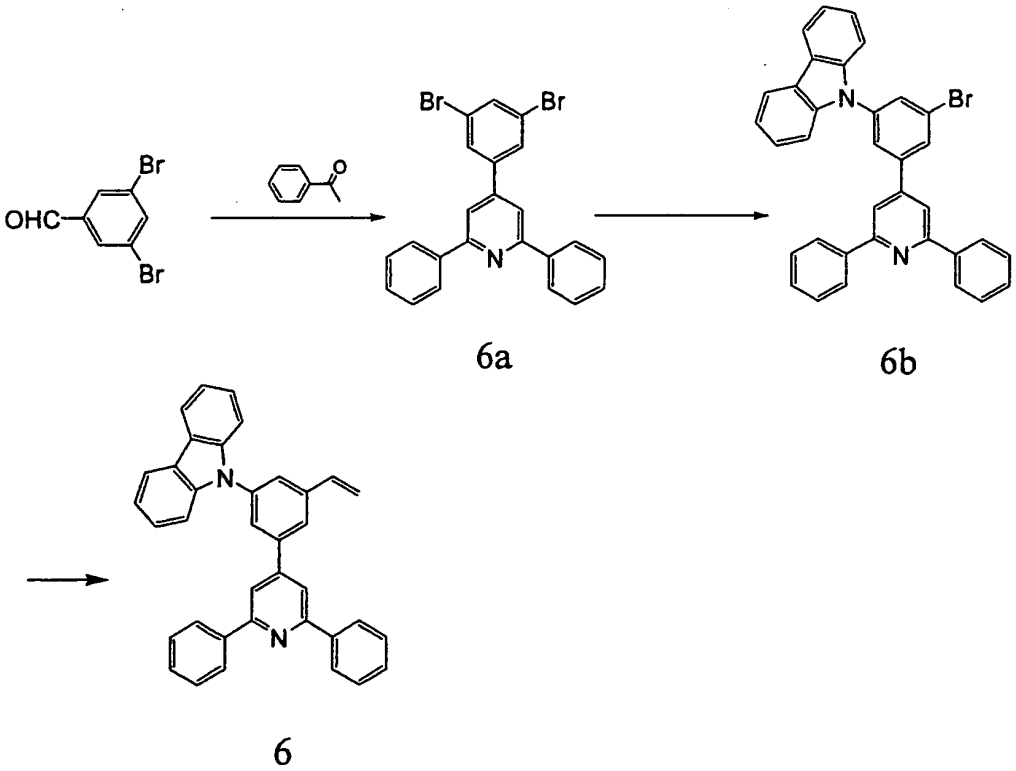
將二鹵化三嗪衍生物（5a）3mmol及咔唑3mmol溶解於二甲基亞碸15mL中，加入碳酸鉀9mmol、碘化銅

0.15mmol、L-脯胺酸0.6mmol後，80℃下反應6小時。將反應溶液冷卻至室溫後進行氟鎂石過濾，再使用氯仿萃取。藉由柱色譜法精製，得導入咔唑基之鹵化三嗪衍生物（5b）。

使所得的導入咔唑基之三嗪衍生物與乙烯基硼酸進行鈴木偶合，得導入咔唑基之三嗪乙烯酯單體（5）。

[合成例6]

[化44]



…流程6

下面將參考上述流程6進行說明。

將乙酸80mL加入乙醯苯62.8mmol、3,5-二溴苯甲醛31.4mmol、乙酸銨0.4mol中，加熱回流8小時後加入純水

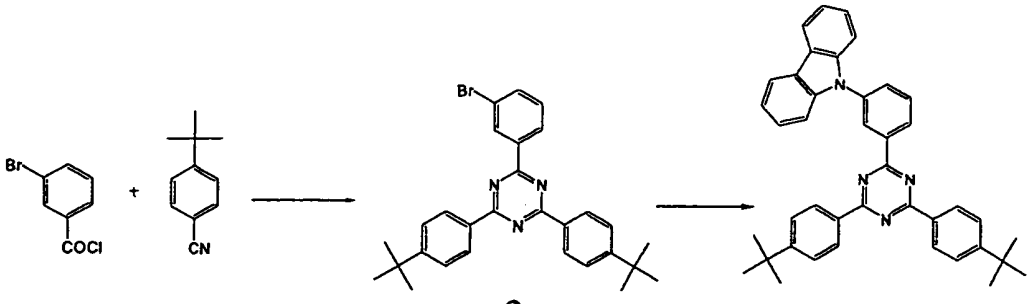
停止反應。使用氯仿萃取後，藉由柱色譜法精製，得二鹵化吡啶衍生物（6a）。

將二鹵化吡啶衍生物（6a）10mmol及咔唑10mmol加入二甲基亞碸30mL中，加入碳酸銫30mmol、碘化銅0.5mmol、環己烷二胺2mmol後，80℃下反應6小時。將反應溶液冷卻至室溫後進行氟鎂石過濾，再使用氯仿萃取。藉由柱色譜法精製，得導入咔唑之鹵化吡啶衍生物（6b）。

使所得的導入咔唑之吡啶衍生物（6b）與乙烯基硼酸進行鈴木偶合後，得導入咔唑基之吡啶乙烯酯單體（6）。

[合成例7]

[化45]



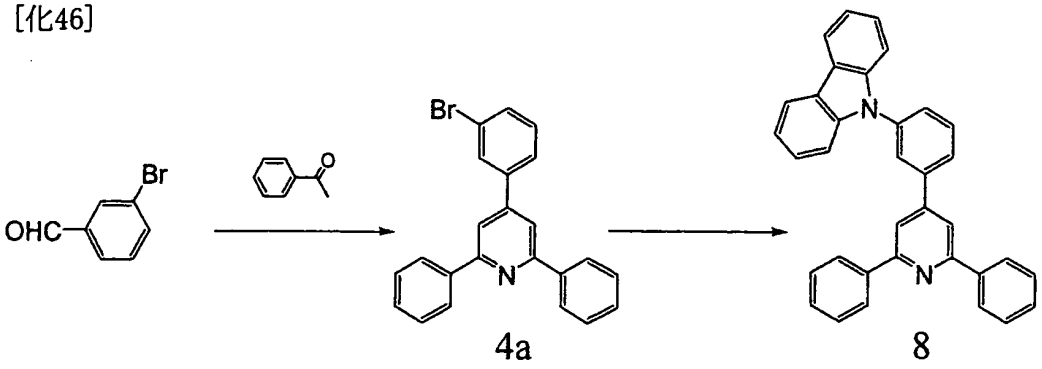
…流程7

下面將參考上述流程7進行說明。

至中間物3a爲止同合成例3進行合成。使3a與咔唑反應後，得目的低分子化合物7。

[合成例8]

[化46]



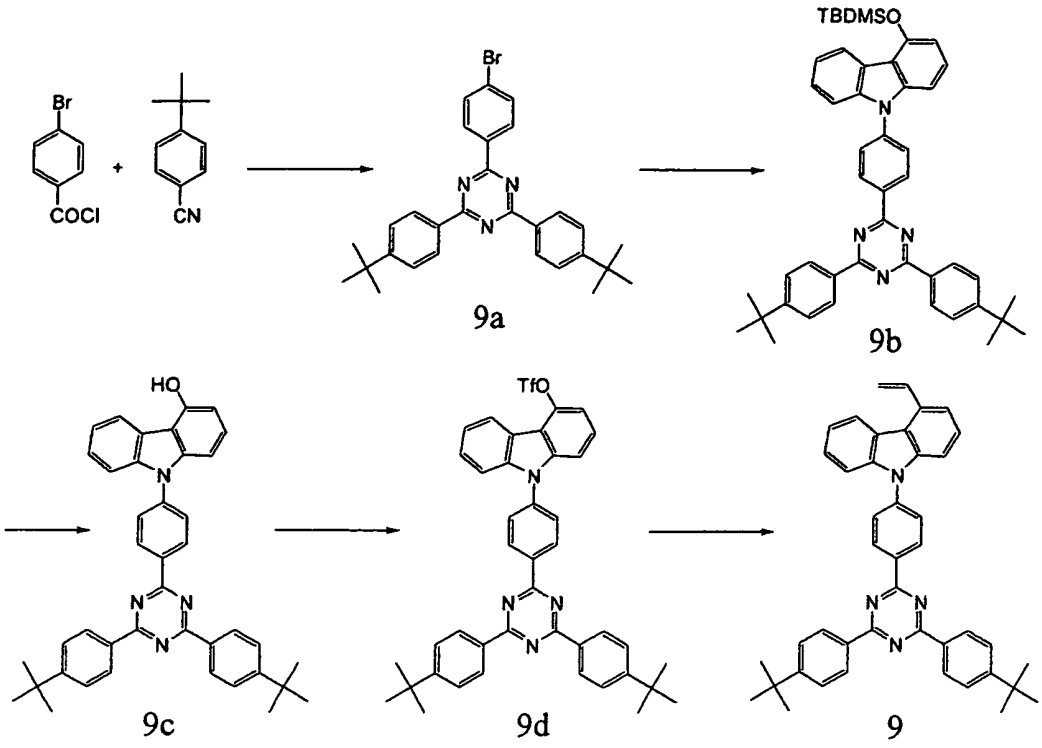
…流程8

下面將參考上述流程8進行說明。

至中間物4a爲止同合成例4進行合成。使4a與咔唑反應後，得目的低分子化合物8。

[合成例9]

[化47]



…流程9

下面將參考上述流程9進行說明。

除了以3-溴苯醯氯化物取代4-溴苯醯氯化物，其他同合成例3，得導入咔唑基之三嗪乙烯酯單體（9）。

[實施例1] 合成高分子化合物（I-1）

將合成例1所合成的導入咔唑基之三嗪乙烯酯單體（1）200mg放入密閉容器中，加入脫水甲苯3.2mL後，加入自由基聚合引發劑用之V-601（和光純藥工業（股）製）的甲苯溶液（0.1M，34μL），再重覆5次凍結脫氣操作。真空下直接密封後，60℃下攪拌60小時。反應後將反應液滴入丙酮100mL中，得沈澱物。其次使用甲苯-丙酮重

覆2次再沈澱操作後，50℃下乾燥一晚，得高分子化合物（I-1）。高分子化合物（I-1）之重量平均分子量（Mw）、分子量分佈指數（Mw/Mn）如表1所示。

[實施例2至6] 合成高分子化合物（I-2）至（I-6）

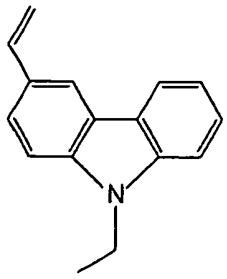
除了各自以合成例2至6所合成的導入咔唑基之三嗪乙烯酯單體（2）、導入咔唑基之三嗪乙烯酯單體（3）、導入咔唑基之吡啶乙烯酯單體（4）、導入咔唑基之三嗪乙烯酯單體（5）及導入咔唑基之吡啶乙烯酯單體（6）取代合成例1所合成的化合物（1），其他同高分子化合物（I-1），得高分子化合物（I-2）至（I-6）。所得的高分子化合物之重量平均分子量等如表1所示。

[實施例7] 合成高分子化合物（II-1）

將合成例1所合成的化合物（1）50mg及下述式（8-3）所表示的孔輸送性之聚合性化合物100mg放入密閉容器中，加入脫水甲苯2.6mL後，再加入V-601（和光純藥工業（股）製）之甲苯溶液（0.1M，53μL）。重覆5次凍結脫氣操作後，真空下直接密閉，60℃下再攪拌60小時。反應後將反應液滴入丙酮100mL中，得沈澱物。其次使用甲苯-丙酮重覆2次再沈澱操作後，50℃下乾燥一晚，得高分子化合物（II-1）。高分子化合物（II-1）之重量平均分子量（Mw）、分子量分佈指數（Mw/Mn）如表1所示。由ICP元素分析及^{13}C-NMR測定結果求取的高分子化合物

之 m/（ m+n ）值爲 0.64。

[化48]



…（8－3）

[實施例8至12] 合成高分子化合物（II-2）至（II-6）

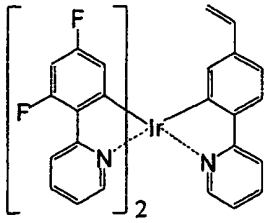
合成高分子化合物（II-2）至（II-6）時，除了各自以合成例2至6所合成的化合物（2）至（6）取代合成例1所合成的化合物（1），其他同高分子化合物（II-1），得高分子化合物（II-2）至（II-6）。所得的高分子化合物之重量平均分子量等如表1所示。

[實施例13] 合成高分子化合物（III-1）

將合成例1所合成的化合物（1）60mg、孔輸送性之聚合性化合物（8-3）120mg及下述式（X）所表示的磷光發光性之聚合性化合物40mg放入密閉容器中，加入脫水甲苯3.1mL後，再加入V-601（和光純藥工業（股）製）之甲苯溶液（0.1M，64μL）。重覆5次凍結脫氣操作後，真空下直接密閉，60℃下再攪拌60小時。反應後將反應液滴下丙酮100mL中，得沈澱物。其次使用甲苯-丙酮重覆2次再沈澱操作，50℃下乾燥一晚後，得高分子化合物（III-1）。高分子化合物（III-1）之重量平均分子量（

Mw）、分子量分佈指數（Mw/Mn）如表1所示。由ICP元素分析及^{13}C-NMR測定結果求取的高分子化合物之m/（m+n）值爲0.68，x/（x+y）值爲0.16。

[化49]



… (X)

[實施例14至18] 合成高分子化合物（III-2）至（III-6）

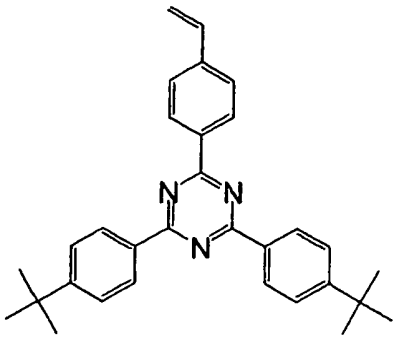
合成高分子化合物（III-2）至（III-6）時，除了各自以合成例2至6所合成的化合物（2）至（6）取代合成例1所合成的化合物（1），其他同高分子化合物（III-1），得高分子化合物（III-2）至（III-6）。所得的高分子化合物（III-2）至（III-6）之重量平均分子量等如表1所示。

[實施例19] 合成高分子化合物（IV-1）

將合成例1所合成的化合物（1）50mg、孔輸送性之聚合性化合物（8-3）200mg及下述式（Y）所表示的電子輸送性之聚合性化合物50mg放入密閉容器中，加入脫水甲苯5.5mL後，再加入V-601（和光純藥工業（股）製）之甲苯溶液（0.1M，110μL）。重覆5次凍結脫氣操作後，真空下直接密閉，60℃下再攪拌60小時。反應後將反應液滴入丙酮100mL中，得沈澱物。其次使用甲苯-丙酮重

覆2次再沈澱操作。50℃下乾燥一晚後，得高分子化合物（IV-1）。高分子化合物（IV-1）之重量平均分子量（Mw）、分子量分佈指數（Mw/Mn）如表1所示。由ICP元素分析及^{13}C-NMR測定結果求取得高分子化合物之m/（m+n）值爲0.68，x/（x+y）值爲0.16。

[化50]



… (Y)

[實施例20至24] 合成高分子化合物（IV-2）至（IV-6）

合成高分子化合物（IV-2）至（IV-6）時，除了各自以合成例2至6所合成的化合物（2）至（6）取代合成例1所合成的化合物（1），其他同高分子化合物（IV-1），得高分子化合物（IV-2）至（IV-6）。所得的高分子化合物（IV-2）至（IV-6）之重量平均分子量等如表1所示。

[表 1]

	高分子化合物	重量平均分子量 (Mw)	分子量分佈指數 (Mw/Mn)
實施例1	I-1	73,000	1.97
實施例2	I-2	68,000	1.84
實施例3	I-3	68,000	1.48
實施例4	I-4	57,000	1.56
實施例5	I-5	54,000	2.00
實施例6	I-6	61,000	1.82
實施例7	II-1	68,000	2.12
實施例8	II-2	56,000	1.79
實施例9	II-3	69,000	1.88
實施例10	II-4	66,000	1.94
實施例11	II-5	62,000	1.64
實施例12	II-6	59,000	1.56
實施例13	III-1	63,000	1.59
實施例14	III-2	68,000	1.64
實施例15	III-3	53,000	1.87
實施例16	III-4	71,000	1.84
實施例17	III-5	62,000	1.55
實施例18	III-6	58,000	1.47
實施例19	IV-1	70,000	1.81
實施例20	IV-2	75,000	1.95
實施例21	IV-3	67,000	2.04
實施例22	IV-4	59,000	1.65
實施例23	IV-5	71,000	1.75
實施例24	IV-6	69,000	1.69

[實施例25] 製作有機EL元件1及測定其發光亮度

首先以下述方法合成高分子化合物（I'）。將孔輸送性之聚合性化合物（8-3）200mg放入密閉容器中，加入脫水甲苯4.5mL後，再加入V-601（和光純藥工業（股）製）之甲苯溶液（0.1M，90μL）。重覆5次凍結脫氣操作後，真空下直接密閉，60℃下再攪拌60小時。反應後將反應液滴入丙酮100mL中，得沈澱物。其次使用甲苯-丙酮重覆2次再沈澱操作，50℃下乾燥一晚後，得高分子化合物（I'）。

其次以下述步驟製作有機EL元件。首先，使用角25mm之玻璃基板的單面上，形成2條條狀的寬4mm之ITO（氧化銦錫）電極（陽極）的附ITO基板（日本電機（股）製），以回轉數3500rpm、塗佈時間40秒之條件利用塗佈法將聚（3,4-伸乙基二氧基噻吩）・聚苯乙烯磺酸（拜耶魯（股）製，商品名「拜特隆P」）塗佈於該基板上。其後利用乾燥器以減壓下，60℃乾燥2小時，形成陽極緩衝層。所得的陽極緩衝層之膜厚約50nm。其次將高分子化合物（I-1）40.5mg、磷光發光性之化合物（E-38）9mg及高分子化合物（I'）40.5mg溶解於甲苯2910mg中，以孔徑0.2μm之濾器過濾該溶液，調製塗佈溶液。接著以回轉數3000rpm、塗佈時間30秒之條件利用塗佈法將上述塗佈溶液塗佈於上述陽極緩衝層上，塗佈後以室溫（25℃）乾燥30分鐘，形成發光層。所得發光層之膜厚約爲100nm。

其次將形成發光層之基板載置於蒸鍍裝置內。接著以

重量比1：10共蒸鍍銀及鋁，而以直交於陽極之延伸方向形成2條條狀的寬3mm之陰極。所得陰極之膜厚約爲50nm。

最後於氬氣中將導線（配線）附著於陽極及陰極上，製作4個長4mm×寬3mm之有機EL元件。合併此等4個有機EL元件得有機EL元件1。使用程序式直流電壓/電流源（TR6143，艾得曼（股）公司製）將電壓施加於有機EL元件1使其發光。

使用亮度計（BM-8，特普康（股）公司製）測定其發光亮度。所製作的有機EL元件1之最大外部量子效率、最高到達亮度、驅動電壓，以初期亮度100cd/m^2點燈後定電流驅動時之亮度半衰壽命如表2所示。

[實施例26至30] 製作有機EL元件2至6及測定其發光亮度

除了以高分子化合物（I-2）至（I-6）取代高分子化合物（I-1），其他同實施例25之方法製作有機EL元件2至6，及測定其發光亮度。有機EL元件2至6之最大外部量子效率、最高到達亮度、驅動電壓，以初期亮度100cd/m^2點燈後定電流驅動時之亮度半衰壽命如表2所示。

[實施例31至36] 製作有機EL元件7至12及測定其發光亮度

除了各自以高分子化合物（II-1）至（II-6）取代高分子化合物（I-1）及高分子化合物（I'），其他同實施形態25各自製作有機EL元件7至12，及測定其發光亮度。有

機EL元件7至12之最大外部量子效、最高到達亮度、驅動電壓，初期亮度100cd/m^{2}點燈後定電流驅動時之亮度半衰壽命如表2所示。

[實施例37至42] 製作有機EL元件13至18及測定其發光亮度

除了各自以高分子化合物（III-1）至（III-6）取代高分子化合物（II-1）及發光性化合物（E-38），其他同實施例31各自製作有機EL元件13至18，及測定其發光亮度。有機EL元件13至18之最大外部量子效率、最高到達亮度、驅動電壓，以初期亮度100cd/m^{2}點燈後定電流驅動時之亮度半衰壽命如表2所示。

[實施例43至48] 製作有機EL元件18至24及測定其發光亮度

除了各自以高分子化合物（IV-1）至（IV-6）取代高分子化合物（III-1），其他同實施例37各自製作有機EL元件19至24，及測定其發光亮度。有機EL元件19至24之最大外部量子效率、最高到達亮度、驅動電壓，以初期亮度100cd/m^{2}點燈後定電流驅動時之亮度半衰壽命如表2所示。

[比較例1] 製作有機EL元件25及測定其發光亮度

除了以低分子化合物7取代高分子化合物（I-1），其

他同實施例25製作有機EL元件25，及測定其發光亮度。有機EL元件25之最大外部量子效率、最高到達亮度、驅動電壓，以初期亮度100cd/m^{2}點燈後定電流驅動時之亮度半衰壽命如表2所示。

[比較例2] 製作有機EL元件26及測定其發光亮度

除了以低分子化合物8取代高分子化合物（I-1），其他同實施例25製作有機EL元件26，及測定其發光亮度。有機EL元件26之最大外部量子效率、最高到達亮度、驅動電壓，以初期亮度100cd/m^{2}點燈後定電流驅動時之亮度半衰壽命如表2所示。

[比較例3] 製作有機EL元件27及測定其發光亮度

首先以合成例9所合成的導入咔唑基之三嗪乙烯基單體（9）取代合成例1所合成的化合物（1），其他同高分子化合物（I-1），得高分子化合物（I"）。所得的高分子化合物（I"）之重量平均分子量爲68,000，分子量分佈指數爲2.14。

除以高分子化合物（I"）取代高分子化合物（I-1），其他同實施例25製作有機EL元件27，及測定其發光亮度。有機EL元件27之最大外部量子效率、最高到達亮度、驅動電壓，以初期亮度100cd/m^{2}點燈後定電流驅動時之亮度半衰壽命如表2所示。

又，表2所示之亮度半衰壽命爲，以有機EL元件26之

亮度半衰壽命爲1相對評估之值。

[表 2]

	有機EL元件	最大外部量子效率(%)	最高到達亮度(cd/m^2)	驅動電壓(V)	亮度半衰壽命(相對評價)
實施例25	1	5.6	9,500	2.9	7
實施例26	2	6.0	7,000	3.6	5
實施例27	3	6.1	20,000	3.0	45
實施例28	4	5.7	7,000	3.3	35
實施例29	5	7.2	26,000	3.0	40
實施例30	6	6.3	27,000	3.5	40
實施例31	7	5.1	22,000	2.9	425
實施例32	8	6.4	30,000	3.0	370
實施例33	9	6.2	12,000	3.2	450
實施例34	10	5.4	28,000	3.2	390
實施例35	11	6.6	37,000	2.8	115
實施例36	12	6.1	23,000	3.6	130
實施例37	13	4.9	15,000	3.3	470
實施例38	14	4.1	11,000	3.4	415
實施例39	15	5.3	21,000	3.1	523
實施例40	16	4.9	19,000	3.1	476
實施例41	17	4.3	17,000	3.5	179
實施例42	18	3.9	12,000	3.7	165
實施例43	19	5.3	24,000	3.0	481
實施例44	20	6.5	32,000	3.1	439
實施例45	21	6.4	18,000	3.2	538
實施例46	22	6.1	31,000	3.3	482
實施例47	23	6.8	23,000	3.2	206
實施例48	24	6.9	34,000	3.4	181
比較例1	25	1.2	7,000	3.9	1.5
比較例2	26	2.6	10,000	3.3	1
比較例3	27	3.7	11,000	3.4	2.5

【圖式簡單說明】

[圖1]圖1係本發明之有機EL元件之一例之剖面圖。

【主要元件符號說明】

1：透明基板

2：陽極

3：孔輸送層

4：發光層

5：電子輸送層

6：陰極

三、英文發明摘要：

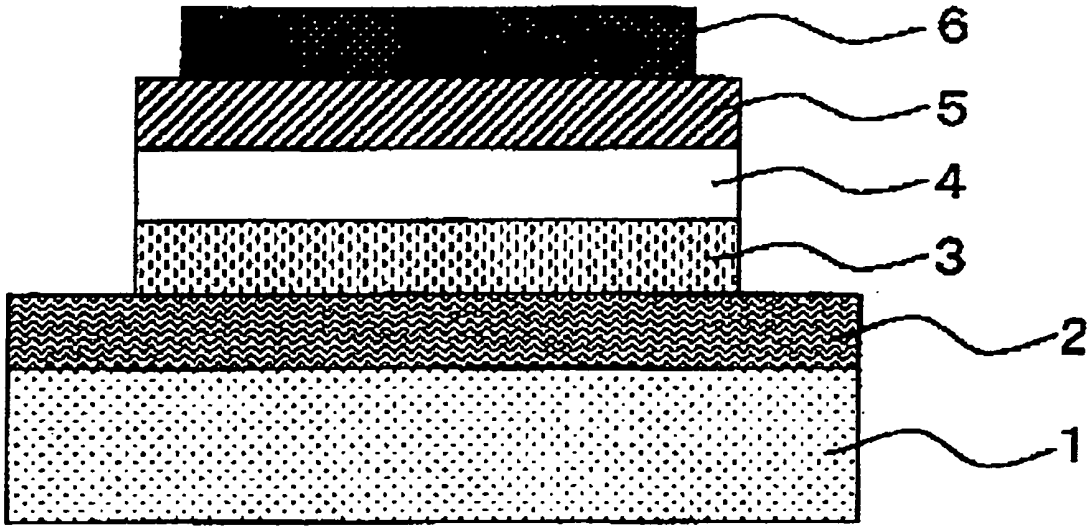


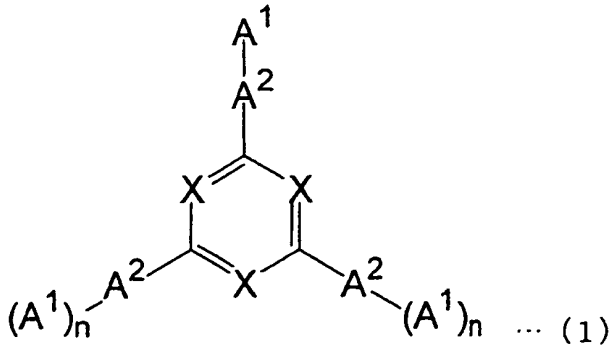
圖1

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

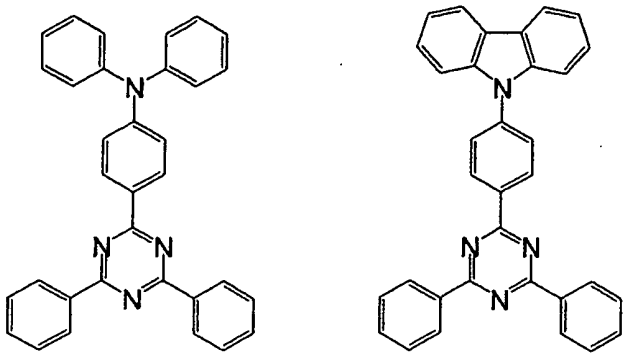
五、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：化 4



… (1)

其芳香族其上之二苯基三嗪環基位置為，對二苯基胺基之氮原子或咔唑基之氮原子為對位，故該氮原子及該雜環基上之氮原子具有可共軛的構造，因此該化合物易形成激發物等，又可使分子內電荷之分極現象明顯化，而使三重態激發能階較低。故使用該類化合物形成的磷光發光性有機EL元件，特別是發出短波長光之磷光發光性有機EL元件含有耐久性問題。

[化2]

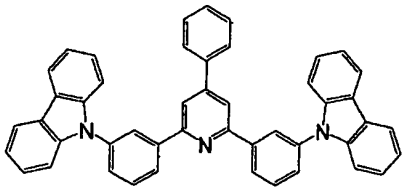


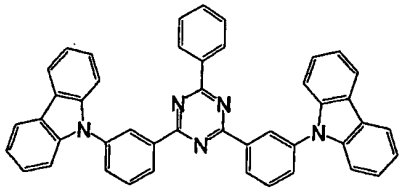
…(ii)

另外專利文獻4及5曾揭示，作為使用於磷光發光性有機EL元件之電荷輸送材料用，下述式（iii）及下述式（iv）所表示之化合物。

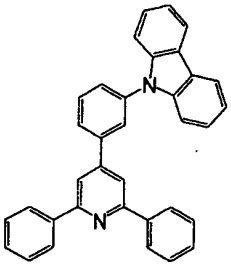
此等化合物雖具有難形成激發物之構造，但玻璃化點為100℃至200℃，就耐熱性觀點會有問題存在。又，使用其製造有機EL元件之有機層時，專利文獻4及5所記載的低分子化合物係使用蒸鍍法製膜，而有有機EL元件之製造方法煩雜的問題。

[化3]





…(iii)



…(iv)

專利文獻1：特開2006-173569號公報

專利文獻2：特開2002-129155號公報

專利文獻3：特開2003-22893號公報

專利文獻4：國際公開WO 03/080760號報告

專利文獻5：特開2006-188493號公報

非專利文獻1：Macromolecular Chemistry and Physics, 2004, 205, 1633-1643

非專利文獻2：Molecular Crystals and Liquid Crystals, 2006, 458, 227-235

【發明內容】

發明之揭示

發明所欲解決之課題

使用上述低分子化合物及高分子化合物之有機EL元件仍有改善驅動電壓、耐久性之餘地。因此本發明之課題

、丁省基、戊省基、芴基、三磷亞苯基、芘基、吲哚基、咔唑基、苯并噁唑基、苯并噻唑基、苯并噻吩基、二苯并呋喃基、二苯并噻吩基、氮雜吲哚基、喹啉基、吡啶并吲哚基、苯并噻二唑基等，其中較佳為咔唑基、吲哚基、氮雜吲哚基及吡啶并吲哚基，更佳為咔唑基及吲哚基，特佳為咔唑基。

上述式（1）中，3個A^2各自獨立為，可具有雜原子作為環構成原子用之芳香族基。

上述芳香族基如，伸苯基、伸吡啶基、伸嘧啶基等。其中較佳為伸苯基。

上述式（1）中，A^1及A^2中直接鍵結環構成原子之氫原子可各自獨立被，可具有雜原子作為環構成原子用之芳香族基、鹵原子、氰基、碳原子數1至12之烷基、碳原子數1至12之烷氧基或碳原子數6至10之芳氧基取代。

上述芳香族基如，苯基、吡啶基、嘧啶基等。其中較佳為苯基及吡啶基，更佳為苯基。

上述鹵原子如，氟原子、氯原子、溴原子或碘原子。其中較佳為氟原子及氯原子，更佳為氟原子。

上述碳原子數1至12之烷基如，甲基、乙基、丙基、異丙基、丁基、異丁基、t-丁基、戊基、己基、辛基、癸基、2-乙基己基、十二烷基等。其中較佳為碳數2至8之烷基，更佳為碳數3至6之烷基。

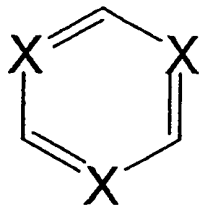
上述碳原子數1至12之烷氧基如，甲氧基、乙氧基、丙氧基、異丙氧基、丁氧基、異丁氧基、t-丁氧基、己氧

基、2-乙基己氧基、癸氧基、十二烷氧基等。其中較佳為碳數2至8之烷氧基，更佳為碳數3至6之烷氧基。

上述碳原子數6至10之芳氧基如，苯氧基、苄氧基、苯乙氧基、苯基丙氧基、苯基丁氧基等。其中較佳為苯氧基、苄氧基及苯乙氧基，更佳為苯氧基。

上述式（1）中，A^1中至少1個為可具有雜原子作為環構成原子用之縮合多環芳香族基，表示該縮合多環芳香族基及芳香族基之全部的A^1對A^2之的鍵結位置為，對

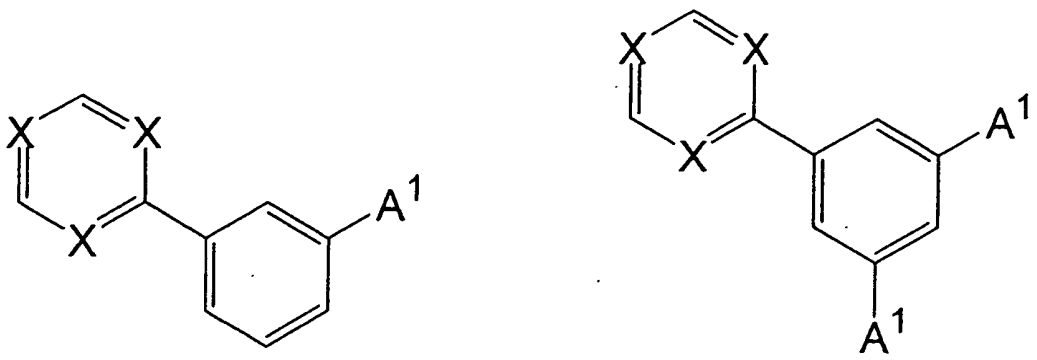
[化15]



（即，吡啶環、嘧啶環或三嗪環）之鍵結位置為間位，例如A^2為僅由碳原子作為環構成原子用之6員環芳香族基時，鍵結位置如下述式（i）或（ii）所表示。該類上述式（1）所表示之單體，對電性氧化具有優良耐性，而不易形成激發物，故較佳。

103年1月23日修正替換頁(本)

[化16]



…(i)　　…(ii)

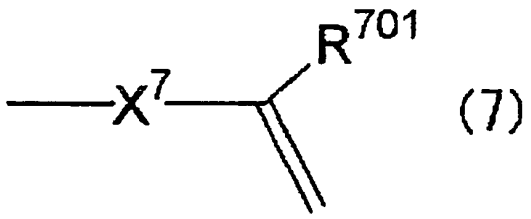
上述式（1）中，A^1及A^2中至少1個為具有含有聚合性官能基之取代基。其中為了得到具有更高發光效率之有機EL元件，又以至少1個A^1為具有含有聚合性官能基之取代基為佳。上述具有聚合性官能基之取代基可也包含聚合性官能基本身。

上述聚合性官能基可為自由基聚合性、陽離子聚合性、陰離子聚合性、加成聚合性及縮合聚合性之官能基中任何一種。其中就聚合物之易製性較佳為自由基聚合性之官能基。

上述聚合性官能基之具體例如，烯丙基；鏈烯基；丙烯酸酯基；甲基丙烯酸酯基；甲基丙烯醯氧基乙基胺基甲酸酯基等胺基甲酸乙酯（甲基）丙烯酸酯基；乙烯醯胺基；及其衍生物等。

具體上具有上述聚合性官能基之取代基較佳為，下述一般式（7）所表示之取代基。

[化17]



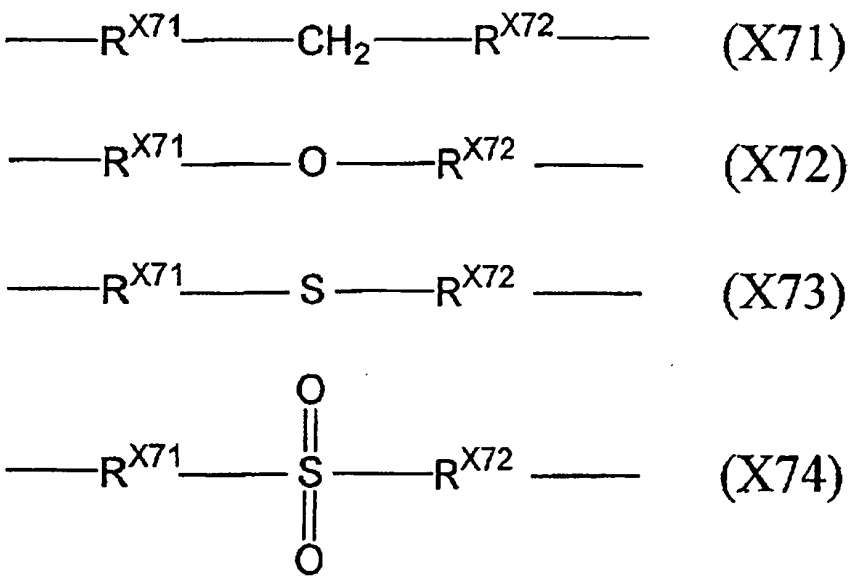
(7)

上述式（7）中，R^{701}為氫原子或碳原子數1至12之烷基。

上述碳原子數1至12之烷基如，甲基、乙基、丙基、異丙基、丁基、異丁基、t-丁基、戊基、己基、辛基、癸基、2-乙基己基、十二烷基等。其中就具有優良載體輸送能，R^{701}較佳為氫原子。

X^7為單鍵或下述式（X71）至（X74）所表示之基。

[化18]



(X71)

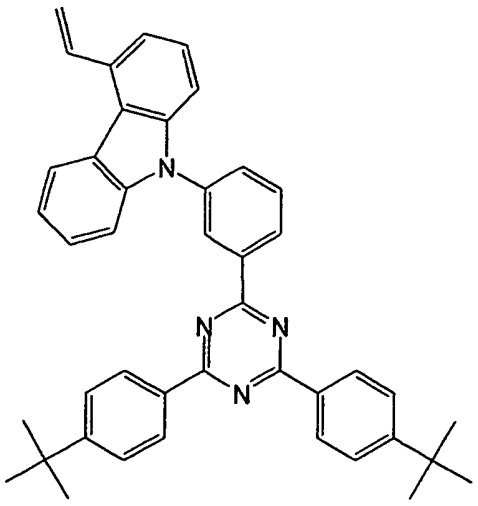
(X72)

(X73)

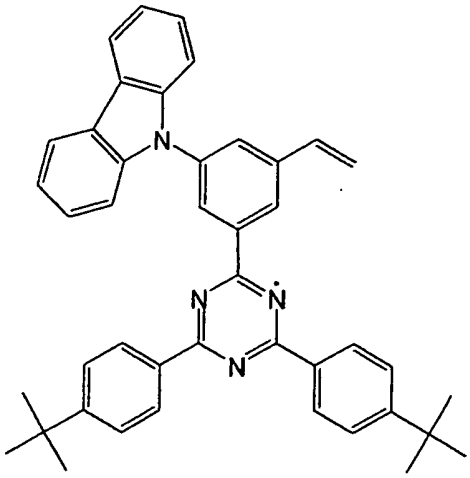
(X74)

式中，R^{X71}為單鍵或碳原子數1至12之伸烷基，R^{X72}

[化25]



…(A107)



…(A108)

其中較佳為上述式（A1）、（A13）、（A14）、（A15）、（A31）、（A35）、（A40）、（A42）、（A60）、（A71）、（A73）、（A78）、（A79）、（A80）、（A88）、（A89）、（A92）、（A94）、（A96）、（A100）、（A102）、（A104）、（A107）及（A108）中任何一式所表示之化合物，更佳為上述式（A13）、（A15）、（A31）、（A40）、（A60）、（A71）、（A78）、（A80）、（A88）及（A107）中任何一式所表示之化合物。

上述載體輸送性之聚合性化合物可單獨使用1種或2種以上組合使用。

該類載體輸送性之聚合性化合物可由，例如使用路易斯酸，使苄腈與3-溴-5-碘苯醯氯化物環化反應後，利用鈴本偶合法依序使乙烯基苯基硼酸及咔唑偶合而可製造。

又，製造高分子化合物（I）時可另使用其他聚合性化合物。上述其他聚合性化合物如，丙烯酸甲酯、甲基丙烯酸甲酯等（甲基）丙烯酸烷基酯、苯乙烯及其衍生物等之不具有載體輸送性的化合物，但非限制於此。高分子化合物（I）中，由其他聚合性化合物衍生之構造單位的含量，於全部構造單位100莫耳%中較佳為0至50莫耳%。

製造高分子化合物（I）時使用上述聚合性化合物時，可進行自由基聚合、陽離子聚合、陰離子聚合及加成聚合中任何一種，但以進行自由基聚合為佳。

高分子化合物（I）之重量平均分子量一般為1,000至2,000,000，較佳為5,000至500,000。重量平均分子量為該範圍時，高分子化合物（I）可溶於有機溶劑，而得均勻薄膜故為佳。該重量平均分子量為，利用凝膠滲透色譜（GPC）法，以四氫呋喃為溶劑於40℃下測定之值。

就高分子化合物（I）對甲苯、氯仿等有機溶劑之溶解性較佳為，高分子化合物（I）1質量份溶解於有機溶劑1至200質量份之量，更佳為溶解於10至50質量份之量。溶解性為該範圍時，易以塗佈法製膜而為佳。

＜實施形態2＞

本發明之高分子化合物（II）（實施形態2）為，除了來自上述式（1）所表示之載體輸送性的聚合性化合物之構成單位，另含有來自孔輸送性之聚合性化合物的單位，由上述式（1）所表示之載體輸送性的聚合性化合物及

孔輸送性之聚合性化合物聚合而得。

上述式（1）所表示之載體輸送性的聚合性化合物同實施形態1所使用的載體輸送性之聚合性化合物，較佳之範圍及其理由也相同。

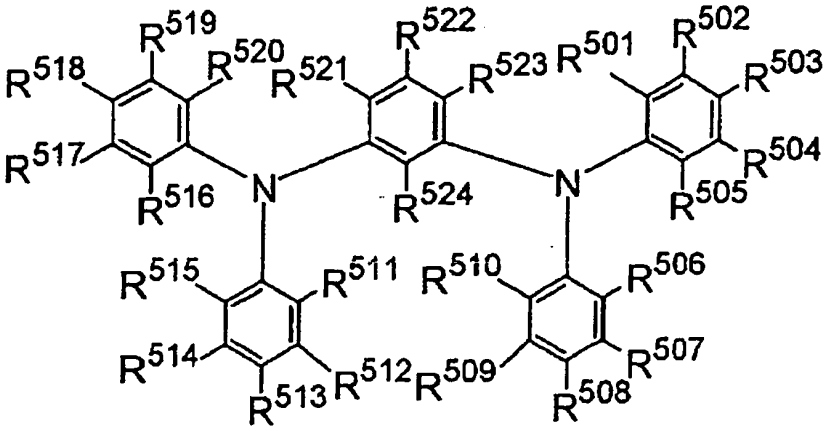
上述孔輸送性之聚合性化合物較佳為，含有上述具有聚合性官能基之取代基，及含有咔唑基構造或三苯基胺構造，更佳為含有咔唑構造。

該類含有咔唑構造或三苯基胺構造之聚合性化合物如，含有具有聚合性官能基之取代基的N,N'-二苯基-N,N'-（3-甲基苯基）-1,1'-聯苯基-4,4'-二胺（TPD）、N,N,N',N'-四（3-甲基苯基）-1,1'-（3,3'-二甲基）聯苯基-4,4'-二胺（HMTPD）、4,4',4"-三（3-甲基苯基苯基胺基）三苯基胺（m-MTDATA）、9-乙烯基咔唑、9-乙基咔唑、4,4'-雙咔唑基聯苯（CBP）、4,4'-雙咔唑基、2,2'-二甲基聯苯（CDBP）等。其中較佳為9-乙烯基咔唑、9-乙基咔唑、CBP及CDBP，更佳為9-乙基咔唑及CDBP。

上述孔輸送性之聚合性化合物可單獨使用1種，或2種以上組合使用。

又，下述一般式（5）、（6）所表示之孔輸送性的聚合性化合物因具有優良載體輸送能及光物性，故適用於本發明。

[化26]



(5)

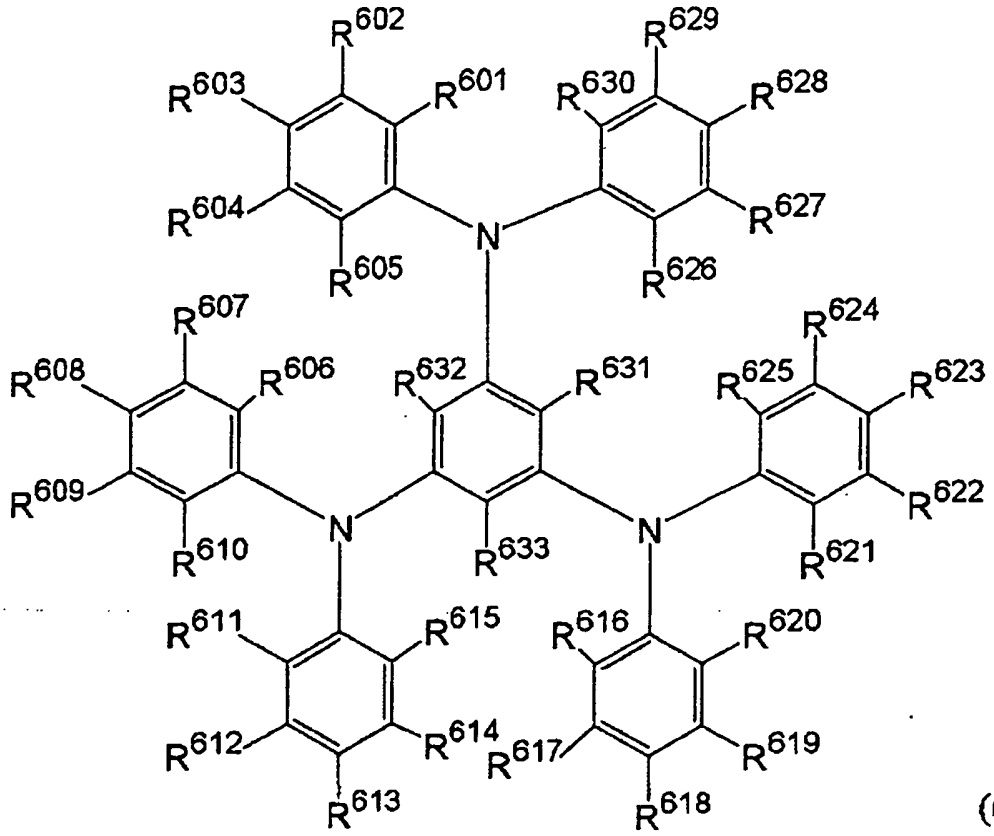
上述式（5）中，R^{501}至R^{524}中至少1個為具有聚合性官能基之取代基，又不為該具有聚合性官能基之取代基的R^{501}至R^{524}各自獨立為，可被氫原子、鹵原子、氰基、碳原子數1至10之烷基、碳原子數6至10之芳基、碳原子數1至10之烷基取代的胺基、碳原子數1至10之烷氧基、咔唑基及矽烷基所成群中所選出之原子或取代基。

上述原子或取代基之具體例如，上述原子或取代基。上述咔唑基可具有甲基、乙基、t-丁基、甲氧基等之取代基。

R^{501}至R^{505}、R^{506}至R^{510}、R^{511}至R^{515}、R^{516}至R^{520}及R^{521}至R^{523}中，隔著構成環之2個碳原子而相鄰的2個基亦可相互鍵結而形成縮合環。

(103年1月23日修正替換頁)(本)

[化27]



(6)

上述式（6）中，R^{601}至R^{633}中至少1個為具有聚合性官能基之取代基，又不為該具有聚合性官能基之取代基的R^{601}至R^{633}各自獨立為，可被氫原子、鹵原子、氰基、碳原子數1至10之烷基、碳原子數6至10之芳基、碳原子數1至10之烷基取代的胺基、碳原子數1至10之烷氧基、及矽烷基所成群中所選出之原子或取代基。

上述原子或取代基之具體例如，上述原子或取代基。

R^{601}至R^{605}、R^{606}至R^{610}、R^{611}至R^{615}、R^{616}至R^{620}、R^{621}至R^{625}、R^{626}至R^{630}中，隔著構成環之2個碳原子而相鄰的2個基亦可相互鍵結而形成縮合環。

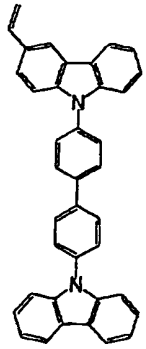
其中較佳為，上述式（5）所表示之聚合性化合物中R^{501}至R^{505}、R^{506}至R^{510}、R^{511}至R^{515}、R^{516}至R^{520}各自為，至少1個為氫原子以外之上述原子或取代基。此時不為聚合性官能基或上述原子或取代基之R^{501}至R^{524}為氫原子。又較佳為，上述式（6）所表示之聚合性化合物中R^{601}至R^{605}、R^{606}至R^{610}、R^{611}至R^{615}、R^{616}至R^{620}、R^{621}至R^{625}、R^{626}至R^{630}各自為，至少1個為氫原子以外之上述原子或取代基。此時不為聚合性官能基或上述原子或取代基之R^{601}至R^{633}為氫原子。

上述具有聚合性官能基之取代基較佳為，上述一般式（7）所表示之取代基。R^{701}為，氫原子或碳原子數1至12之烷基。R^{701}之較佳範圍及其理由同實施形態1所述之電子輸送性的聚合性化合物。X^7為，單鍵或上述式（X71）至（X74）所表示之基。X^7之較佳範圍及理由同實施形態1所述之電子輸送性的聚合性化合物。

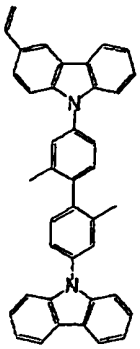
上述孔輸送性之聚合性化合物更具體如，下述式（8-1）至（8-11）所表示之化合物。

103年1月23日修正替換頁(本)

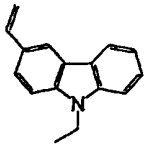
[化28]



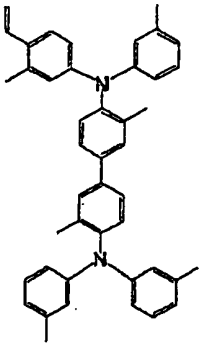
(8-1)



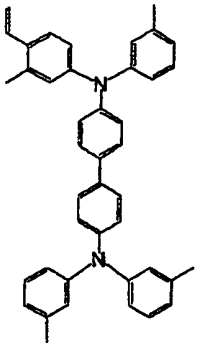
(8-2)



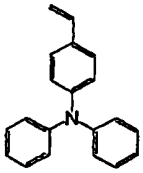
(8-3)



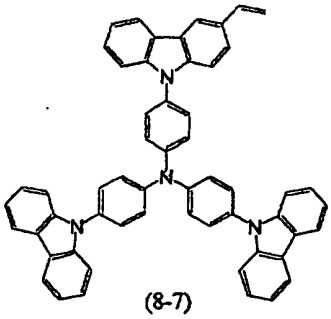
(8-4)



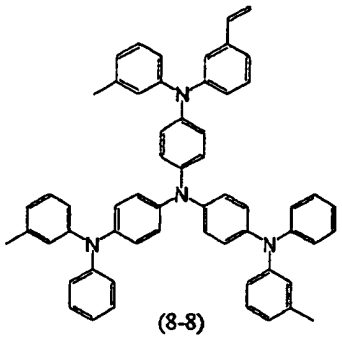
(8-5)



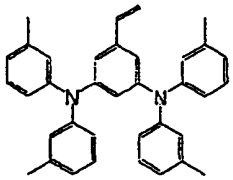
(8-6)



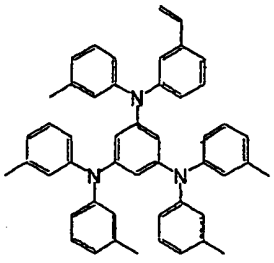
(8-7)



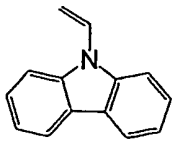
(8-8)



(8-9)



(8-10)



(8-11)

上述孔輸送性之聚合性化合物可單獨使用1種，或2種以上組合使用。

上述式（5）所表示之化合物例如可由，n-伸苯基二胺衍生物與鹵化芳酯之鈀觸媒取代反應，或二芳基胺與m-二溴苯衍生物之鈀觸媒取代反應而得。取代反應之具體方法如Tetrahedron Letters、1998年、39卷、2367頁等所記載。

又，上述式（6）所表示之化合物例如可由，1,3,5-三胺基苯與鹵化芳酯之鈀觸媒取代反應，或二芳基胺與1,3,5-三鹵化苯之鈀觸媒取代反應而得。取代反應之具體方法如，Tetrahedron Letters、1998、39卷、2367頁等所記載。

上述式（1）中，3個A^1中至少1個A^1為可具有雜原子作為環構成原子用之縮合多環芳香族基（較佳為咔唑基），因此孔輸送性之聚合性化合物具有咔唑構造，故可減少載體輸送性之聚合性化合物與孔輸送性之聚合性化合物的聚合反應性差異而為佳。

又，製造高分子化合物（II）時可另外使用之其他聚合性化合物同實施形態1。

製造上述高分子化合物（II）時使用上述聚合性化合物時，可進行自由基聚合、陽離子聚合、陰離子聚合及加成聚合中任何一種，但以進行自由基聚合為佳。

高分子化合物（II）之重量平均分子量同實施形態1。又，高分子化合物（II）對有機溶劑之溶解性同實施形

103年1月23日修正替換頁(本)

上述碳原子數6至10之芳基如，苯基、甲苯基、二甲苯基、萘基、蒽基等。

上述可被碳原子數1至10之烷基取代的胺基如，胺基、二甲基胺基、二乙基胺基、二丁基胺基等。

上述碳原子數1至10之烷氧基如，甲氧基、乙氧基、丙氧基、異丙氧基、丁氧基、異丁氧基、t-丁氧基、己氧基、2-乙基己氧基、癸氧基等。

上述矽烷基如，三甲基矽烷基、三乙基矽烷基、t-丁基二甲基矽烷基、三甲氧基矽烷基等。

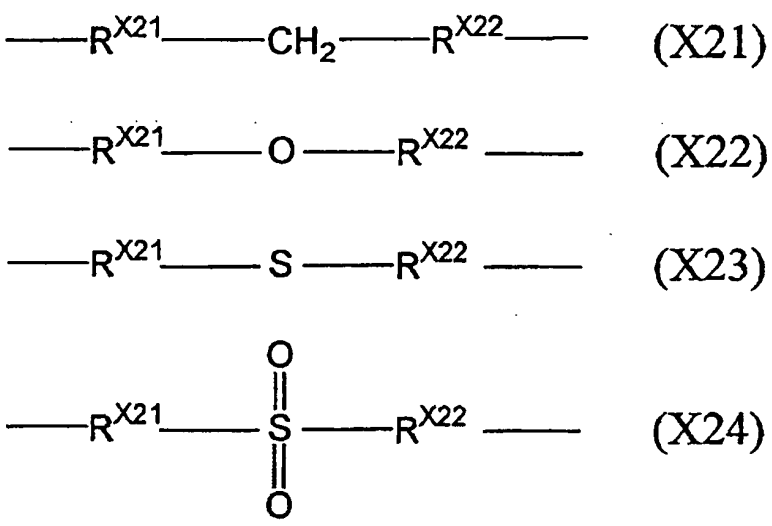
為了得到優良的磷光發光性，其中R^{201}至R^{215}較佳為氫原子、氟原子、氰基、甲基、t-丁基、二甲基胺基、丁氧基、2-乙基己氧基，更佳為，R^{202}為t-丁基，除了R^{202}之R^{201}至R^{215}為氫原子。

R^{201}至R^{204}、R^{205}至R^{208}、R^{209}至R^{211}、R^{212}至R^{215}中，隔著構成環之2個碳原子而相鄰的2個基亦可相互鍵結形成縮合環。

R^{216}為氫原子或碳原子數1至12之烷基。上述碳原子數1至12之烷基如上述烷基。為了得到優良的載體輸送性，其中R^{216}較佳為氫原子。

X^2為單鍵或下述式（X21）至（X24）所表示之基。

[化30]



(X21)

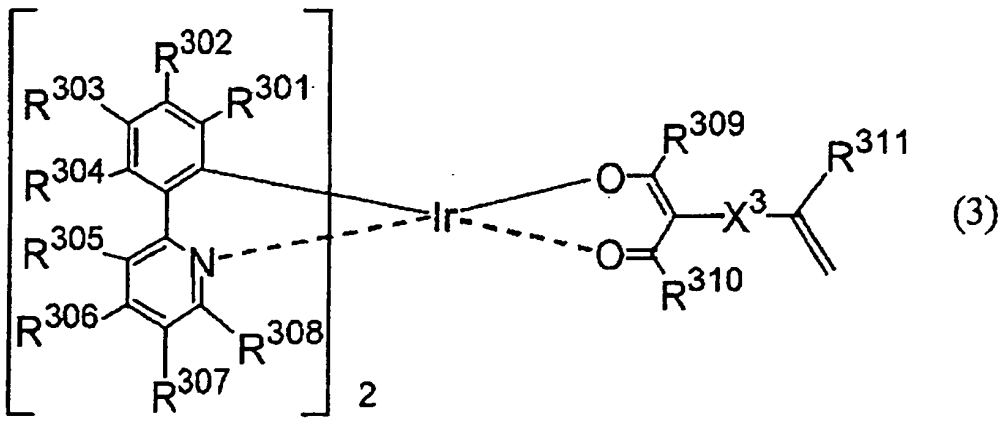
(X22)

(X23)

(X24)

式中，R^{X21}為單鍵或碳原子數1至12之伸烷基，R^{X22}為單鍵、碳原子數1至12之伸烷基或伸苯基。又，上述式（2）較佳為，R^{X21}鍵結於苯環，R^{X22}鍵結於乙烯基。X^2不含雜原子，因此可得具有更高之發光效率的有機EL元件。

[化31]



(3)

上述式（3）中，R^{301}至R^{308}各自獨立為，同R^{201}之原子或取代基。

R^{309}至R^{310}各自獨立為，同R^{201}之原子或取代基（但鹵原子除外）。

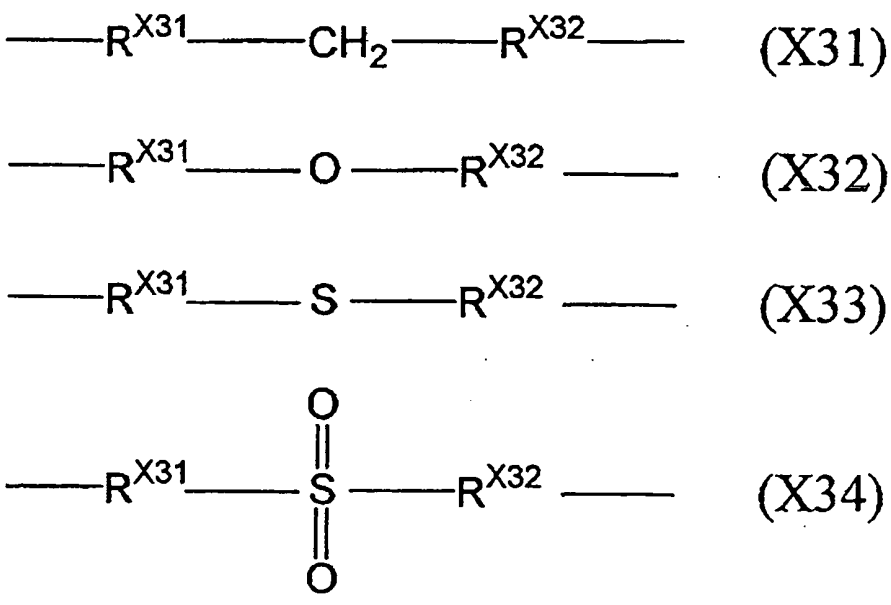
為了得到優良的磷光發光性，其中R^{301}至R^{310}較佳為，各自獨立為氫原子、氟原子、氰基、甲基、t-丁基、二甲基胺基、丁氧基、2-乙基己氧基，更佳為R^{302}為t-丁基，除了R^{302}之R^{301}至R^{310}為氫原子。

R^{301}至R^{304}、R^{305}至R^{308}中，隔著構成環之2個碳原子而相鄰的2個基亦可相互鍵結形成縮合環。

R^{311}為同R^{216}之原子或取代基，較佳範圍及其理由也同R^{216}。

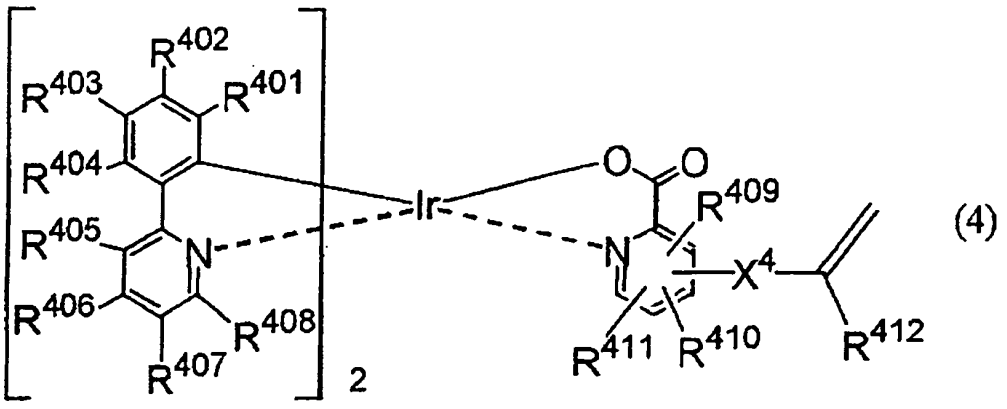
X^3為單鍵或下述式（X31）至（X34）所表示之基。

[化32]



式中，R^{X31}為為單鍵或碳原子數1至12之伸烷基，R^{X32}為單鍵、碳原子數1至12之伸烷基或伸苯基。X^3之較佳範圍及理由同X^2。

[化33]



(4)

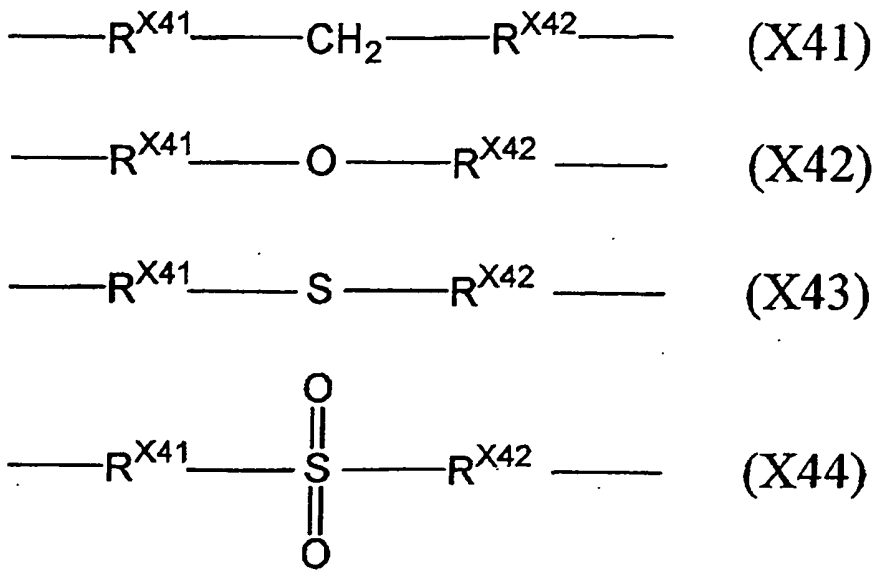
上述式（4）中，R^{401}至R^{411}各自獨立為，同R^{201}原子或取代基。為了得到優良的磷光發光性，其中R^{401}至R^{411}較佳為，各自獨立為氫原子、氟原子、氰基、甲基、t-丁基、二甲基胺基、丁氧基、2-乙基己氧基，更佳為，R^{402}為t-丁基，除了R^{402}之R^{401}至R^{411}為氫原子。

R^{401}至R^{404}、R^{405}至R^{408}、R^{409}至R^{411}中，隔著構成環之2個碳原子而相鄰的2個基亦可相互鍵結形成縮合環。

R^{412}為同R^{216}之原子或取代基，較佳範圍及其理由也同R^{216}。

X^4為單鍵或下述式（X41）至（X44）所表示之基。

[化34]



式中R^{X41}為單鍵或碳原子數1至12之伸烷基，R^{X42}為單鍵、碳原子數1至12之伸烷基或伸苯基。X^4之較佳範圍及理由同X^2。

上述磷光發光性之聚合性化合物可單獨使用1種，或2種以上組合使用。

該類磷光發光性之聚合性化合物例如可由，使氯化銥與苯基吡啶衍生物反應，形成銀（Ir）之雙核錯合物後，與具有聚合性官能基之配位基（上述式（2）至（4）中配位於Ir右側之配位基）反應而得。

又，製造高分子化合物（III）時可另外使用的其他聚合性化合物，同實施形態1。

製造高分子化合物（III）時使用上述聚合性化合物時，可進行自由基聚合、陽離子聚合、陰離子聚合及加成聚合中任何一種，較佳為進行自由基聚合。

高分子化合物（III）之重量平均分子量同實施形態1。高分子化合物（III）對有機溶劑之溶解性同實施形態1。

又，高分子化合物（III）中，以來自磷光發光性之聚合性化合物的構造單位數為x，以來自上述式（1）所表示之載體輸送性及孔輸送性之聚合性化合物的構造單位數為y時（x、y為1以上之整數），相對於全部構造單位數的來自磷光發光性之聚合性化合物的構造單位數比率，即x/（x+y）之值較佳為0.001至0.5的範圍，更佳為0.001至0.2的範圍。x/（x+y）之值為該範圍時，可得載體移動度較大、濃度消光影響較小、發光效率較高之有機EL元件。

又，高分子化合物（III）中，以來自孔輸送性之聚合性化合物的構造單位數為m，以來自載體輸送性之聚合性化合物的構造單位數為n時（m、n為1以上之整數），與上述y之間係符合y=m+n之關係。相對於來自電荷輸送性化合物之構造單位數，來自孔輸送性之聚合性化合物的構造單位數比率m/y，及來自載體輸送性之聚合性化合物的構造單位數比率n/y之最佳值係由各構造單位的電荷輸送能、濃度等決定。由該高分子化合物（III）形成有機EL元件之發光層時，m/y及n/y之值較佳為，各自為0.05至0.95，更佳為0.20至0.80。又，m/y+n/y=1。上述該類高分子化合物中，各構造單位之比率可由ICP元素分析及^{13}C-NMR測定而得。

又，將上述載體輸送性之聚合性化合物、上述孔輸送

性之聚合性化合物及上述磷光發光性之聚合性化合物的比率適當調整為上述範圍內進行聚合時，可得具有所希望之構造的高分子化合物（III）。

又，高分子化合物（III）可為無規共聚物、嵌段共聚物及交互共聚物中任何一種。

＜實施形態4＞

本發明之高分子化合物（IV）（實施形態4）除了來自上述式（1）所表示之載體輸送性的聚合性化合物之構成單位及來自孔輸送性之聚合性化合物的構成單位，另含有來自電子輸送性之聚合性化合物的構成單位，由上述式（1）所表示之載體輸送性的聚合性化合物、孔輸送性之聚合性化合物及電子輸送性之聚合性化合物聚合而得。

上述式（1）所表示之載體輸送性的聚合性化合物及孔輸送性之聚合性化合物同實施形態2所使用的載體輸送性之聚合性化合物，較佳範圍及其理由也相同。

上述電子輸送性之聚合性化合物較佳為，含有具有聚合性官能基之取代基的芳香族雜環構造或三芳基硼構造，更佳為芳香族環構造。

又，製造高分子化合物（IV）時可另外使用的其他聚合性化合物同實施形態1。

製造高分子化合物（IV）時使用上述聚合性化合物時，可進行自由基聚合、陽離子聚合、陰離子聚合及加成聚合中任何一種，但以進行自由基聚合為佳。

高分子化合物（IV）之重量平均分子量同實施形態1。高分子化合物（IV）對有機溶劑的溶解同實施形態1。

又，高分子化合物（IV）中，以來自電子輸送性之聚合性化合物構成單位數為x'，以來自孔輸送性之聚合性化合物的構成單位數為y'，及以來自上述式（1）所表示之載體輸送性之聚合性化合物的構成單位數為z'時（x'、y'及z'為1以上之整數），相對於全部構成單位數的來自電子輸送性之聚合性化合物的構成單位數比率，即x'/（x'+y'+z'）之值較佳為0.1至0.9，更佳為0.1至0.5，特佳為0.1至0.3。x'/（x'+y'+z'）之值為該範圍時，可得載體移動度較高、耐久性較高之有機EL元件。上述高分子化合物之各構成單位的比率，可由ICP元素分析及^{13}C-NMR測定求取。

又，將上述載體輸送性之聚合性化合物、上述孔輸送性之聚合性化合物及上述電子輸送性之聚合性化合物的比率適當調整為上述範圍內進行聚合時，可得具有所希望之構造的高分子化合物（IV）。

又，高分子化合物（IV）可為無規共聚物、嵌段共聚物及交互共聚物中任何一種。

＜實施形態5＞

本發明之高分子化合物（V）（實施形態5）為，含有來自上述式（1）所表示之載體輸送性的聚合性化合物的構成單位、來自孔輸送性之聚合性化合物的構成單位、

來自電子輸送性之聚合性化合物的構成單位及來自發光性之聚合性化合物的構成單位，由上述式（1）所表示之載體輸送性的聚合性化合物、孔輸送性之聚合性化合物、電子輸送性的聚合性化合物與發光性之聚合性化合物聚合而得。

上述式（1）所表示之載體輸送性的聚合性化合物、孔輸送性之聚合性化合物、電子輸送性之聚合性化合物及發光性之聚合性化合物同實施形態1至4所使用的各聚合性化合物，較佳範圍及其理由也相同。

又，製造高分子化合物（V）時可另外使用的其他聚合性化合物同實施形態1。

製造高分子化合物（V）時使用上述聚合性化合物時，可進行自由基聚合、陽離子聚合、陰離子聚合及加成聚合中任何一種，但以進行自由基聚合為佳。

高分子化合物（V）之重量平均分子量同實施形態1。高分子化合物（V）對有機溶劑之溶解性同實施形態1。

又，高分子化合物（V）中，以來自電子輸送性之聚合性化合物的構成單位數為p，以來自發光性之聚合性化合物的構成單位數為q，以來自孔輸送性之聚合性化合物的構成單位數為r，及以來自上述式（1）所表示之載體輸送性的聚合性化合物之構成單位數為s時（p至s各自為1以上之整數）；相對於全部構成單位數的來自電子輸送性之聚合性化合物的構造單位數比率，即p/（p+q+r+s）之值

較佳為0.1至0.9，更佳為0.1至0.5，特佳為0.1至0.3。又，相對於全部構成單位數的來自發光性之聚合性化合物的構成單位數比率，即q/(p+q+r+s)之值較佳為0.001至0.5，更佳為0.001至0.2。相對於全部構成單位數的來自電子輸送性及發光性之聚合性化合物的構成單位數為該範圍時，可得載體移動度較高、耐久性較高之有機EL元件。上述高分子化合物的各構成單位之比率可由ICP元素分析及^{13}C-NMR測定求取。

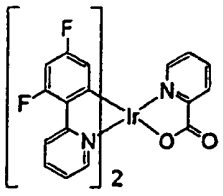
又，將上述載體輸送性之聚合性化合物、上述孔輸送性之聚合性化合物、上述電子輸送性之聚合性化合物及上述發光性之聚合性化合物的比率適當調整為上述範圍內進行聚合時，可得具有所希望之構造的高分子化合物(V)。

又，高分子化合物(V)可為無規共聚物、嵌段共聚物及交互共聚物中任何一種。

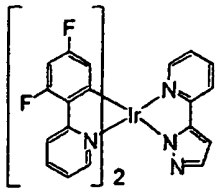
<實施形態6>

本發明之有機EL元件(實施形態6)為，陽離與陰極之間備有一層含有特定高分子化合物(I)、後述發光性化合物及具有來自後述孔輸送性之聚合性化合物的構成單位之高分子化合物(I')的發光層。此時發光層較佳為，相對於高分子化合物(I)100質量份，含有上述發光性化合物0.1至50質量份，更佳為0.5至30質量份之量，及含有高分子化合物(I')10至200質量份，更佳為50至150質量

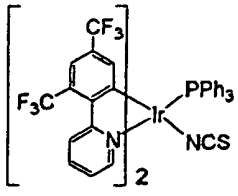
[化38]



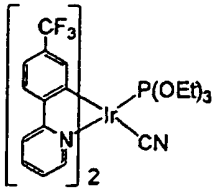
E-33



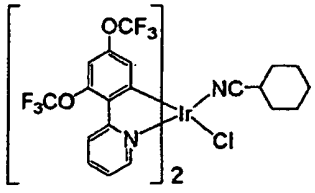
E-34



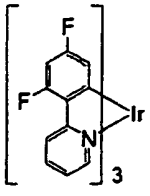
E-35



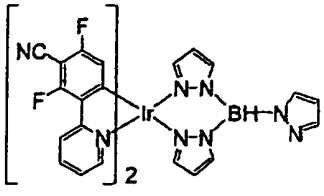
E-36



E-37



E-38



E-39

其中較佳為E-1、E-2、E-6、E-33、E-34、E-38及E-39中任何一式所表示之化合物，更佳為E-33及E-38中任何一式所表示之化合物。

上述發光性化合物可單獨使用1種，或2種以上組合使用。

高分子化合物（I'）可由孔輸送性之聚合性化合物聚合而得。上述孔輸送性之聚合性化合物同實施形態3所使用的孔輸送性之聚合性化合物，較佳範圍及其理由也相同。

製造高分子化合物（I'）時使用上述聚合性化合物時，可進行自由基聚合、陽離子聚合、陰離子聚合及加成聚合中任何一種，但以進行自由基聚合為佳。

高分子化合物（I'）之重量平均分子量一般為1,000至

2,000,000，較佳為5,000至500,000。重量平均分子量為該範時，高分子化合物（I'）可溶於有機溶劑，而得均勻薄膜故為佳。該重量平均分子量為，利用凝膠滲透色譜（GPC）法，以四氫呋喃為溶劑，於40℃下測定之值。又，高分子化合物（I'）對有機溶劑之溶解性同實施形態1。

製造由上述陽極與陰極之間備有一層含有高分子化合物（I）、發光性化合物及高分子化合物（I'）之發光層構成的有機EL元件時，該發光層一般係以下述方法形成於設置於基板上之陽極上。首先，調製溶解高分子化合物（I）、發光性化合物及高分子化合物（I'）之溶液。調製上述溶液用之溶劑並無特別限制，例如可使用氯仿、二氯甲烷、二氯乙烷等氯系溶劑、四氫呋喃、苯甲醚等醚系溶劑、甲苯、二甲苯等芳香族烴系溶劑、丙酮、甲基乙基酮等酮系溶劑、乙酸乙酯、乙酸丁酯、乙基溶纖劑、乙酸酯等酯系溶劑等。其次使用旋塗法、鑄塑法、微照相凹版法、照相凹版法、棒塗法、輥塗法、金屬絲棒塗法、浸漬塗佈法、噴霧塗佈法、篩網印刷法、撓版印刷法、平版印刷法、噴墨印刷法等濕式成膜法等，將調製而得之溶液成膜於基板上。又，雖依存於所使用之化合物及成膜條件等，但例如使用旋塗法或浸漬塗佈法時，上述溶液較佳為，相對於高分子化合物（I）100質量份含有發光性化合物0.5至30質量份、高分子化合物（I'）10至200質量份之量及溶劑1000至20000質量份之量。

於上述所形成之發光層上設置陰極後，可得實施形態

I438210 公告本
第098105487號
103年1月23日修正替換頁
民國103年1月 23 日修正

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：098105487

※申請日：098 年 02 月 20 日　※IPC 分類：C08F 12/26 (2006.01)
C08F 12/32 (2006.01)
C07D 403/14 (2006.01)
C09K 11/06 (2006.01)
H01L 51/50 (2006.01)

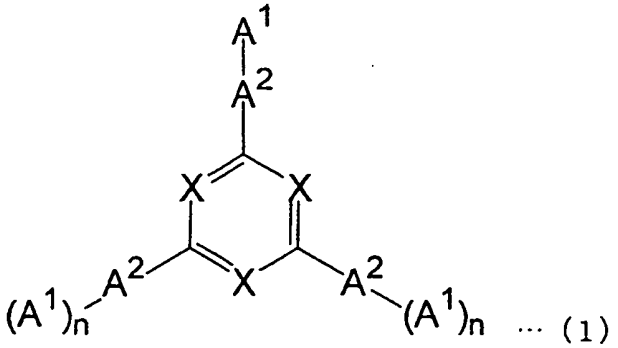
一、發明名稱：（中文／英文）

高分子化合物及使用其之有機電致發光元件

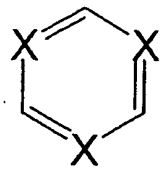
二、中文發明摘要：

本發明係提供使用於有機 EL 元件時，可降低該有機 EL 元件之驅動電壓，及提高耐久性的高分子材料，以及使用其形成的有機 EL 元件。

本發明之高分子化合物的特徵為，含有來自下述式（1）所表示之單體的構成單位。



（式（1）中，A^1 各自獨立為可具有雜原子作為環構成原子用之縮合多環芳香族基等，對 A^2 之該縮合多環芳香族基的鍵結位置為，對



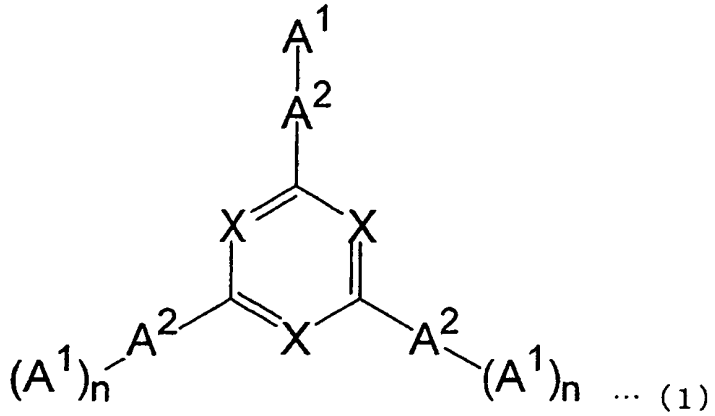
之鍵結位置為間位，A^2 各自獨立為可具有雜原子作為環構成原子用之 6 員環芳香族基，A^1 及 A^2 中至少 1 個為，具有含有聚合性官能基之取代基，X 中至少 1 個為氮原子，n 各自獨立為 1 或 2）。

10年1月23日修正劃線頁(本)

七、申請專利範圍：

1. 一種高分子化合物，其特徵為，含有來自下述式（1）所表示之單體的構成單位，

[化1]



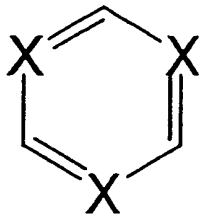
…(1)

（式（1）中，複數個A^1各自獨立為，可具有雜原子作為環構成原子用的芳香族基、氫原子、鹵原子、胺基、碳原子數1至12之烷基、碳原子數1至12之烷氧基或碳原子數6至10之芳氧基，

複數個A^1中至少1個為，可具有雜原子作為環構成原子用的縮合多環芳香族基，

對A^2的該縮合多環芳香族基之鍵結位置為，對

[化2]



之鍵結位置為間位，

3個A^2各自獨立為，可具有雜原子作為環構成原子用的6

103年1月23日修正替換頁(本)

員環芳香族基，

A^1及A^2中直接鍵結於環構成原子的氫原子可各自獨立被，可具有雜原子作為環構成原子用的芳香族基、鹵原子、胺基、碳原子數1至12之烷基、碳原子數1至12之烷氧基或碳原子數6至10之芳氧基取代，

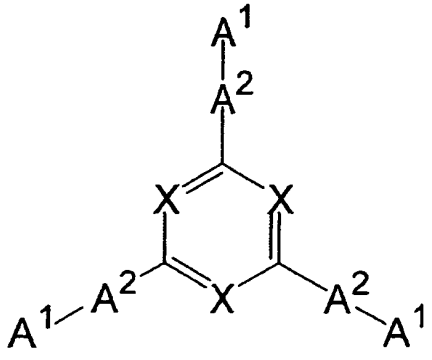
A^1及A^2中至少1個為，具有含有聚合性官能基之取代基，

3個X各自獨立為，鍵結1個氫原子之碳原子或氮原子，3個X中至少1個為氮原子，

2個n各自獨立為1或2）。

2. 如申請專利範圍第1項之高分子化合物，其中上述式（1）所表示之單體為，下述式（1-i）所表示之單體，

[化3]



…（1－i）

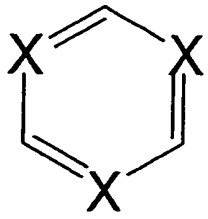
（式（1-i）中，3個A^1各自獨立為，可具有雜原子作為環構成原子用的芳香族基、氫原子、鹵原子、胺基、碳原子數1至12之烷基、碳原子數1至12之烷氧基或碳原子數6至10之芳氧基，

3個A^1中至少1個為，可具有雜原子作為環構成原子用的縮合多環芳香族基，

103年1月23日修正替換頁(本)

對A^2的該縮合多環芳香族基之鍵結位置為，對

[化4]



之鍵結位置為間位，

3個A^2各自獨立為，可具有雜原子作為環構成原子用的6員環芳香族基，

A^1及A^2中直接鍵結於環構成原子之氫原子可各自獨立被，可具有雜原子作為環構成原子用的芳香族基、鹵原子、胺基、碳原子數1至12之烷基、碳原子數1至12之烷氧基或碳原子數6至10之芳氧基取代，

A^1及A^2中至少1個為，具有含有聚合性官能基之取代基，

3個X各自獨立為，鍵結1個氫原子之碳原子或氮原子，3個X中至少1個為氮原子）。

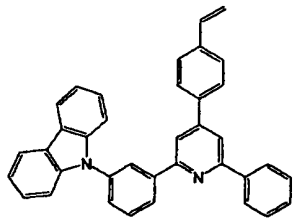
3. 如申請專利範圍第2項之高分子化合物，其中上述式（1-i）中之1個A^1為，具有含有聚合性官能基之取代基，

3個A^1中至少1個為，可具有含有聚合性官能基之取代基的咔唑基或鹵原子、胺基、碳原子數1至12之烷基、碳原子數1至12之烷氧基、碳原子數6至10之芳氧基或可具有雜原子作為環構成原子用的芳香族基。

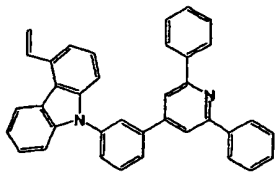
103年1月23日修正替換頁(本)
劃線

4. 如申請專利範圍第2或3項之高分子化合物，其中上述式（1-i）所表示之單體為，下述式（A1）、（A13）、（A14）、（A15）、（A31）、（A35）、（A40）、（A42）、（A60）、（A71）、（A73）、（A78）、（A79）、（A80）、（A88）、（A89）、（A107）或（A108）所表示之單體，

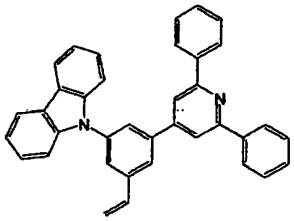
[化5]



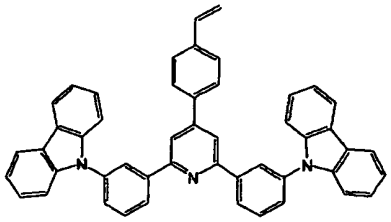
…（A1）



…（A13）



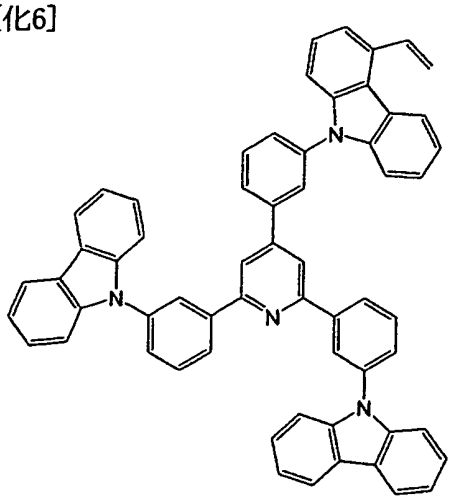
…（A14）



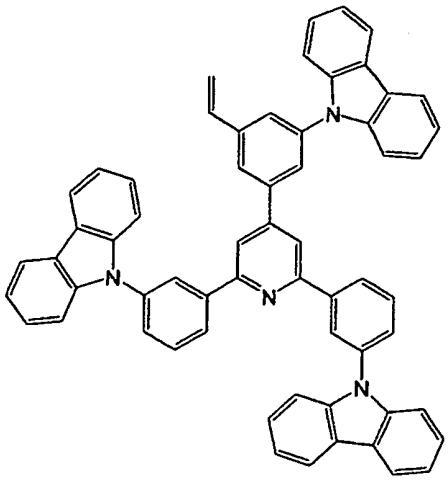
…（A15）

103年1月23日修正替換頁(本)

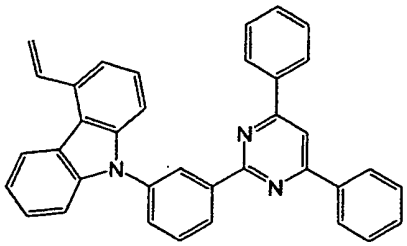
[化6]



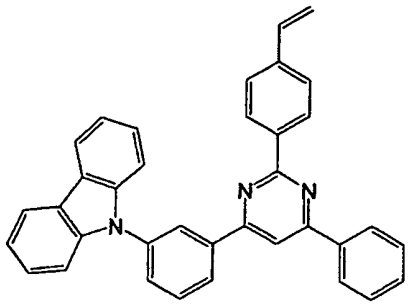
… (A31)



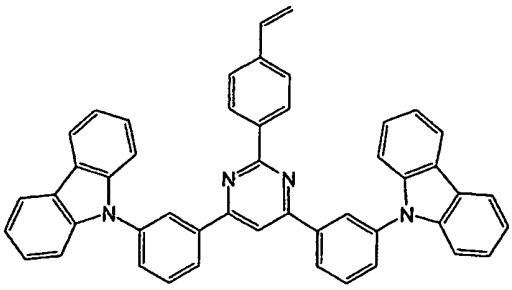
… (A35)



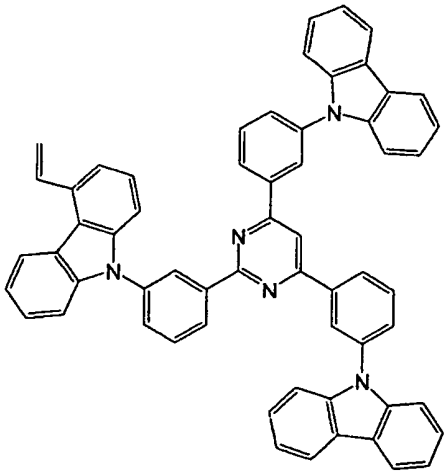
… (A40)



… (A42)



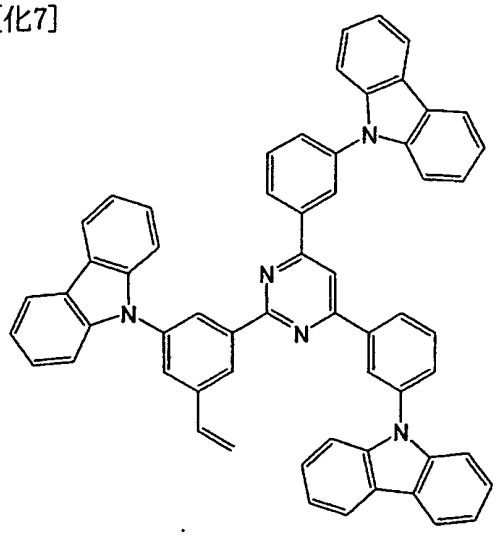
… (A60)



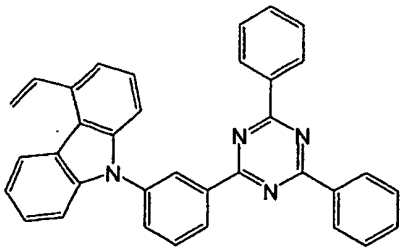
… (A71)

103年1月23日修正劃線頁(本)

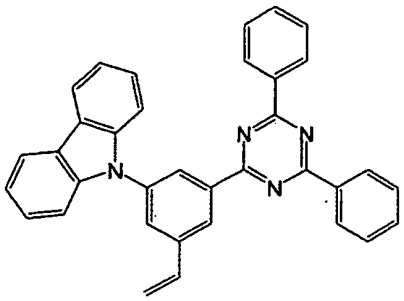
[化7]



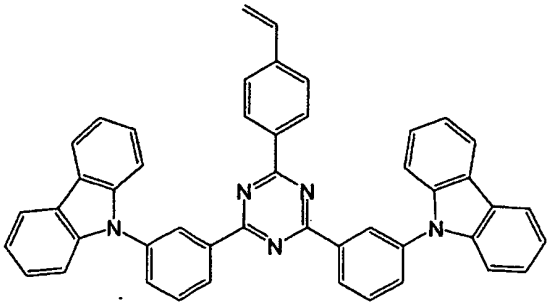
… (A73)



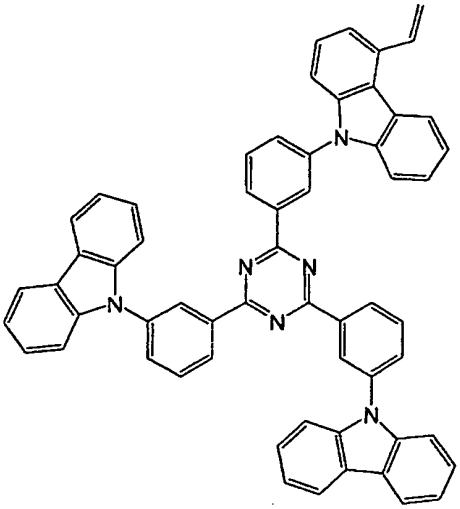
… (A78)



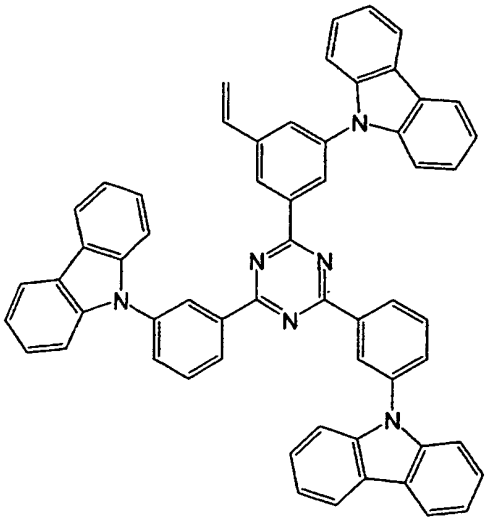
… (A79)



… (A80)



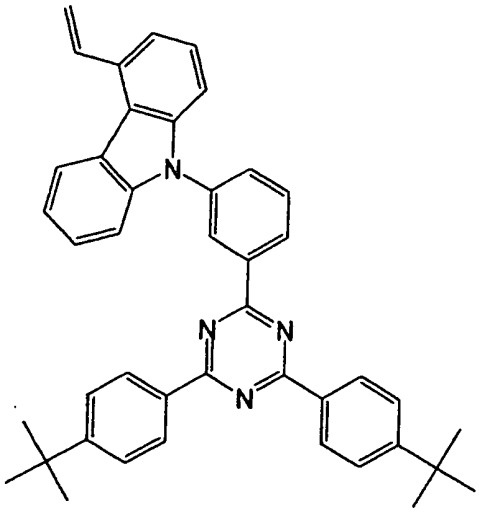
… (A88)



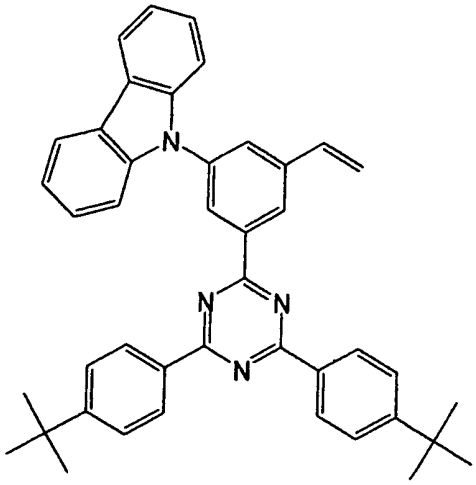
… (A89)

103年1月23日修正替換頁(本)

[化8]



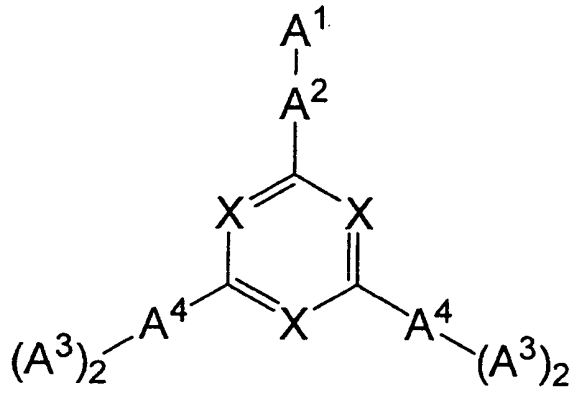
…(A107)



…(A108)。

5. 如申請專利範圍第1項之高分子化合物，其中上述式（1）所表示之單體如下述式（1-ii）所表示，

[化9]



…(1-ii)

（式（1-ii）中A^1為，可具有雜原子作為環構成原子用的芳香族基、氫原子、鹵原子、胺基、碳原子數1至12之烷基、碳原子數1至12之烷氧基或碳原子數6至10之芳氧基，

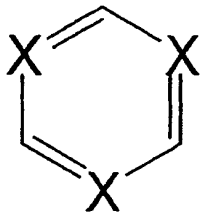
4個A^3各自獨立為，可具有雜原子作為環構成原子用的縮合多環芳香族基，

對A^2的A^1之鍵結位置，及對A^4的A^3之鍵結位置各自為，

103年1月23日修正劃線頁(本)

對

[化10]



之鍵結位置為間位，

A^2及2個A^4各自獨立為，可具有雜原子作為環構成原子用的6員環芳香族基，

A^1至A^4中直接鍵結於環構成原子之氫原子可各自獨立被，可具有雜原子作為環構成原子用的芳香族基、鹵原子、胺基、碳原子數1至12之烷基、碳原子數1至12之烷氧基或碳原子數6至10之芳氧基取代，

A^1至A^4中至少1個為，具有含有聚合性官能基之取代基，

3個X各自獨立為，鍵結1個氫原子之碳原子或氮原子，3個X中至少1個為氮原子）。

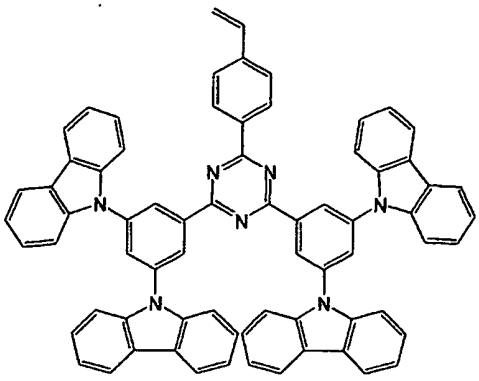
6. 如申請專利範圍第5項之高分子化合物，其中上述式（1-ii）中A^1為，具有聚合性官能基之取代基，4個A^3中至少1個為，可具有含有聚合性官能基之取代基的咔唑基或鹵原子、胺基、碳原子數1至12之烷基、碳原子數1至12之烷氧基、碳原子數6至10之芳氧基或可具有雜原子作為環構成原子用的芳香族基。

7. 如申請專利範圍第5或6項之高分子化合物，其中

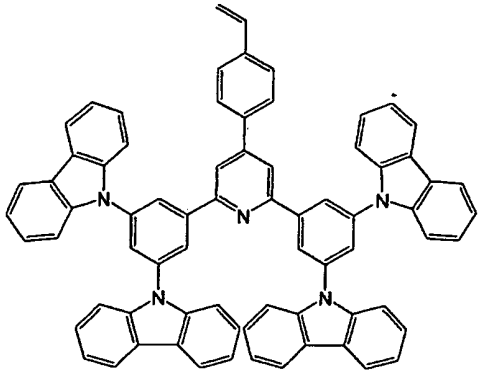
103年1月23日修正劃線頁(本)

上述式（1-ii）所表示之單體如下述式（A92）、（A94）、（A96）、（A100）、（A102）或（A104）所表示，

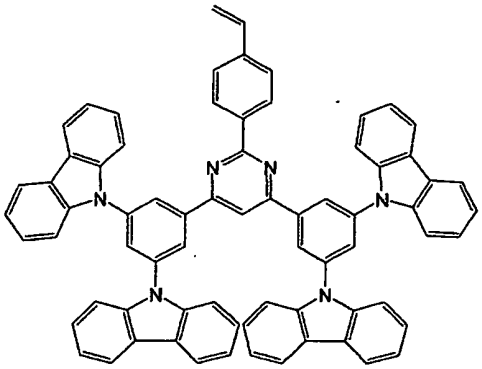
[化11]



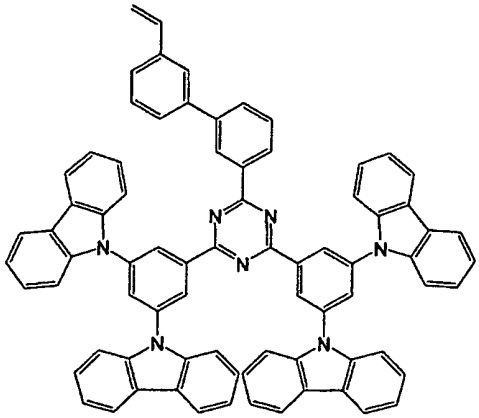
…(A92)



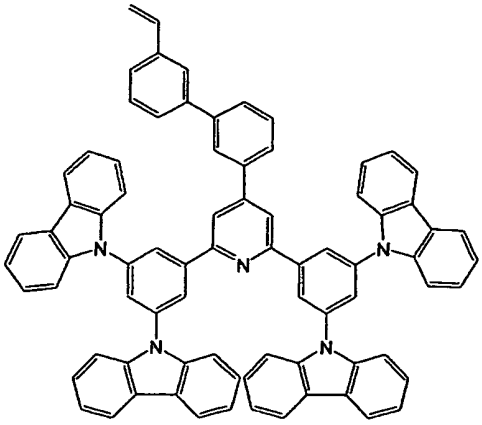
…(A94)



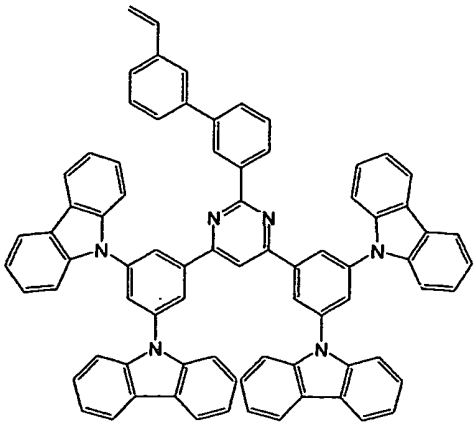
…(A96)



…(A100)



…(A102)



…(A104)

103年1月23日修正替換頁(本)

8. 如申請專利範圍第1項之高分子化合物，其中另含有來自孔輸送性之聚合性化合物的構成單位。

9. 如申請專利範圍第8項之高分子化合物，其中上述孔輸送性之聚合性化合物為，含有咔唑構造或三苯基胺構造。

10. 如申請專利範圍第9項之高分子化合物，其中上述孔輸送性之聚合性化合物為，含有咔唑構造。

11. 如申請專利範圍第1項之高分子化合物，其中另含有來自電子輸送性之聚合性化合物的構成單位及來自發光性之聚合性化合物的構成單位中至少一種。

12. 如申請專利範圍第11項之高分子化合物，其中上述發光性之聚合性化合物為，具有磷光發光性。

13. 如申請專利範圍第11或12項之高分子化合物，其中上述發光性之聚合性化合物為過渡金屬錯合物。

14. 如申請專利範圍第13項之高分子化合物，其中上述過渡金屬錯合物為銥錯合物。

15. 如申請專利範圍第11項之高分子化合物，其中上述電子輸送性之聚合性化合物為，具有芳香族雜環取代基或三芳基硼取代基。

16. 如申請專利範圍第1項之高分子化合物，其為使用於有機電致發光元件。

17. 一種有機電致發光元件用發光層，其特徵為，含有如申請專利範圍第1至16項中任何一項之高分子化合物。

103年1月23日修正替換頁(本)

18. 一種有機電致發光元件，其特徵為，陽極與陰極之間含有1層以上之有機層的有機電致發光元件中，該有機層所含的發光層中至少1層為，含有如申請專利範圍第1至16項中任何一項之高分子化合物。

19. 一種由顯示器、背光、電子像片、照明光源、記錄光源、曝光光源、讀取光源、標識、看板、裝飾及光通信系統所成群中所選出之物品，其特徵為，具備有如申請專利範圍第18項之有機電致發光元件。

20. 一種有機電致發光元件之製造方法，其特徵為，包含於陽極上形成含有至少1層如申請專利範圍第17項之發光層的有機層之步驟，及

於該有機層上形成陰極之步驟。