



(21) 申請案號：099122799

(22) 申請日：中華民國 99 (2010) 年 07 月 12 日

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

C08G61/10 (2006.01)

C08G61/12 (2006.01)

H01L51/50 (2006.01)

(30) 優先權：2009/07/14 日本

2009-165364

2010/01/21 日本

2010-010742

(71) 申請人：住友化學股份有限公司 (日本) SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED

(JP)

日本

(72) 發明人：上谷保則 UETANI, YASUNORI (JP)

(74) 代理人：洪武雄；陳昭誠

(56) 參考文獻：

JP 2009-073808A

WO 2008/082665A1

WO 2009/022733A1

審查人員：陳衍任

申請專利範圍項數：13 項 圖式數：0 共 53 頁

(54) 名稱

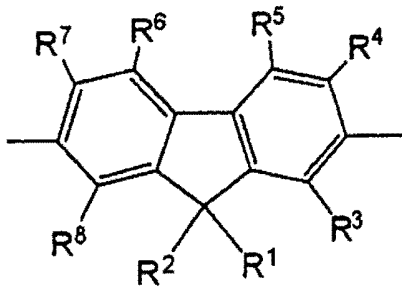
有機電激發光元件及高分子發光體組成物

ORGANIC ELECTROLUMINANCE ELEMENT AND POLYMER LUMINESCENT COMPOSITION

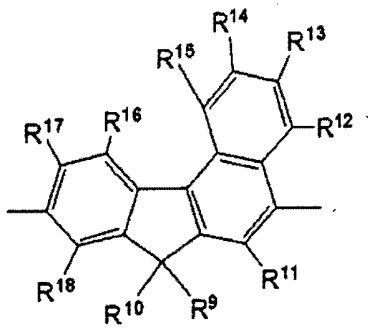
(57) 摘要

本發明提供一種有機電激發光元件，係具備由陽極及陰極所構成之一對電極、與設置於該電極間之發光層者，該發光層含有：具有選自無取代或經取代之第二基及無取代或經取代之苯并第二基所成組群之 1 種以上的二基作為重複單元之高分子發光體、與富勒烯及/或富勒烯之衍生物。

Provided is an organic electroluminescence element having a pair of electrodes including an anode and a cathode, and a luminance layer provided between the electrodes, the luminance layer containing a polymer luminescent composition having at least one diyl group selected from a group consisted of non-substituted or substituted fluorine-diyl group and non-substituted or substituted benzofluorine-diyl group as a repeated unit, and fullerene and/or a derivative of fullerene.



(1)



(2)

六、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

本發明係有關有機電激發光元件(以下亦有稱為有機 EL 元件的情形)、該有機 EL 元件所使用之高分子發光體組成物以及發光裝置。

【先前技術】

有機 EL 元件係具備由陽極及陰極所構成之一對電極與設置於該電極間之發光層的發光元件。在有機 EL 元件之電極間施加電壓時，不僅由陽極注入電洞，同時由陰極注入電子，在發光層中，藉由該等電洞與電子的結合而發光。

有機 EL 元件係使用有機物作為發光層中所含的發光體。由於高分子發光體(高分子量之發光材料)較易溶解於溶媒，因此可使用塗佈法作為形成發光層之方法。塗佈法係可形成大面積之發光層的成膜方法，並且步驟簡易，因而符合元件的大面積化以及步驟簡易化的要求。因此，在近年來有各種高分子發光體之提案(例如：Advanced Materials Vol.12 1737-1750(2000))。

【發明內容】

對於有機 EL 元件，期待著因驅動而使亮度經時地降低之程度減少，換言之，期待使元件壽命延長。然而，使用高分子發光體之有機 EL 元件之壽命至今仍為不足，而要求更加提高元件的壽命。

本發明之目的係提供一種元件壽命長有機 EL 元件、以及該有機 EL 元件中所使用之高分子發光體組成物。

本發明係提供以下之有機 EL 元件以及高分子發光體組成物。

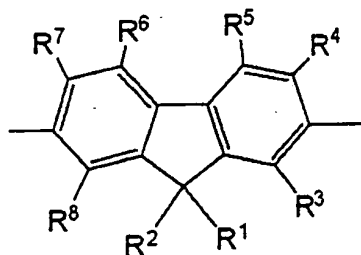
[1]一種有機電激發光元件，係具備由陽極及陰極所構成之一對電極、與設置於該電極間之發光層者，該發光層含有：

具有選自無取代或經取代之第二基(fluorine-diyl)及無取代或經取代之苯并第二基(benzofluorene-diyl)所成組群之 1 種以上的二基(diyl)作為重複單元之高分子發光體、與

富勒烯(fullerene)及/或富勒烯衍生物。

[2]如[1]所述之有機電激發光元件，其中，富勒烯衍生物為甲橋富勒烯(methanofullerene)衍生物、苯基丁酸甲酯衍生物、噻吩基丁酸甲酯衍生物、普拉托(Prato)衍生物、賓格(Bingel)衍生物、二唑啉(diazoline)衍生物、氮雜類富勒烯(azafulleroid)衍生物、酮內醯胺(ketolactam)衍生物、或狄耳士-阿德爾(Diels-Alder)衍生物。

[3]如[1]或[2]所述之有機電激發光元件，其中，無取代或經取代之第二基係式(1)所示之基，

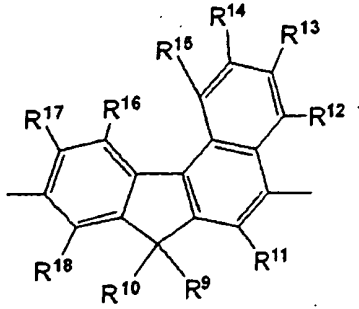


(1)

(式(1)中， R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6 、 R^7 以及 R^8 各自獨立表示氫原子、烷基、烷氧基、芳基或 1 價之芳香族雜環基，

該等基中所含的氫原子可經氟原子取代)。

[4]如[1]至[3]中任一項所述之有機電激發光元件，其中，無取代或經取代之苯并萘二基係下述式(2)所示之基，



(2)

(式(2)中， R^9 、 R^{10} 、 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} 、 R^{15} 、 R^{16} 、 R^{17} 以及 R^{18} 各自獨立表示氫原子、烷基、烷氧基、芳基或 1 價之芳香族雜環基，該等基中所含的氫原子可經氟原子取代)。

[5]如[1]至[4]中任一項所述之有機電激發光元件，其中，高分子發光體為共軛系高分子。

[6]如[1]至[5]中任一項所述之有機電激發光元件，其中，以上述高分子發光體作為 100 重量份時，發光層中之富勒烯及/或富勒烯衍生物的含量為 0.001 至 5 重量份。

[7]如[1]至[5]中任一項所述之有機電激發光元件，其中，以上述高分子發光體作為 100 重量份時，發光層中之富勒烯及/或富勒烯衍生物的含量為 0.01 至 1 重量份。

[8]一種發光裝置，係具備如[1]至[7]中任一項所述之有機電激發光元件者。

[9]一種高分子發光體組成物，係含有：

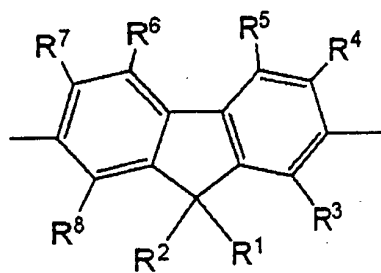
具有選自無取代或經取代之萘二基及無取代或經

取代之苯并萘二基所成組群之 1 種以上的二基作為重複單元之高分子發光體、與

富勒烯及/或富勒烯衍生物。

[10]如[9]所述之高分子發光體組成物，其中，富勒烯衍生物為甲橋富勒烯衍生物、苯基丁酸甲酯衍生物、噻吩基丁酸甲酯衍生物、普拉托衍生物、賓格衍生物、二唑啉衍生物、氮雜類富勒烯衍生物、酮內醯胺衍生物、或狄耳士-阿德爾衍生物。

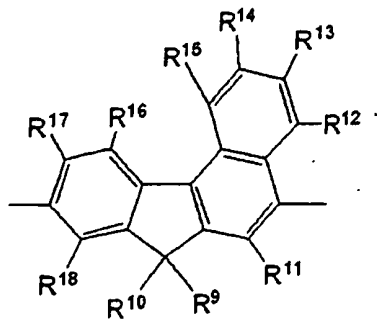
[11]如[9]或[10]所述之高分子發光體組成物，其中，無取代或經取代之萘二基係式(1)所示之基，



(1)

(式(1)中， R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6 、 R^7 以及 R^8 各自獨立表示氫原子、烷基、烷氧基、芳基或 1 價之芳香族雜環基，該等基中所含的氫原子可經氟原子取代)。

[12]如[9]至[11]中任一項所述之高分子發光體組成物，其中，無取代或經取代之苯并萘二基係下述式(2)所示之基，



(2)

(式(2)中， R^9 、 R^{10} 、 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} 、 R^{15} 、 R^{16} 、 R^{17} 以及 R^{18} 各自獨立表示氫原子、烷基、烷氧基、芳基或 1 價之芳香族雜環基，該等基中所含的氫原子可經氟原子取代)。

[13]如[9]至[12]中任一項所述之高分子發光體組成物，其中，高分子發光體為共軛系高分子。

[14]如[9]至[13]中任一項所述之高分子發光體組成物，其中，以上述高分子發光體作為 100 重量份時，富勒烯及/或富勒烯衍生物的含量為 0.001 至 5 重量份。

[15]如[9]至[13]中任一者所述之高分子發光體組成物，其中，以上述高分子發光體作為 100 重量份時，富勒烯及/或富勒烯衍生物的含量為 0.01 至 1 重量份。

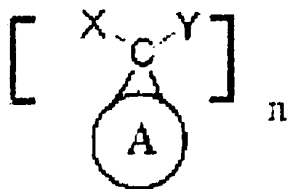
【實施方式】

本發明之有機 EL 元件具備由陽極及陰極所構成之一對電極、與設置於該電極間之發光層。

該發光層含有：具有選自無取代或經取代之第二基、及無取代或經取代之苯并第二基所成組群之 1 種以上的二基作為重複單元之高分子發光體；與富勒烯及/或富勒烯衍生物。富勒烯及/或富勒烯衍生物可各含有 2 種以上。

發光層中所含之富勒烯可列舉如：C₆₀、C₇₀、奈米碳管 (carbon nanotube)。富勒烯衍生物之例可列舉如：甲橋富勒烯衍生物、PCBM(phenyl-C61-butyric acid methyl ester)衍生物(苯基丁酸甲酯衍生物)、ThCBM (thienyl-C61-butyric acid methyl ester)衍生物(噻吩基丁酸甲酯衍生物)、普拉托衍生物、賓格衍生物、二唑啉衍生物、氮雜類富勒烯衍生物、酮內醯胺衍生物、及狄耳士-阿德爾衍生物等(例如參照日本特表 2009-542725)。

甲橋富勒烯衍生物：

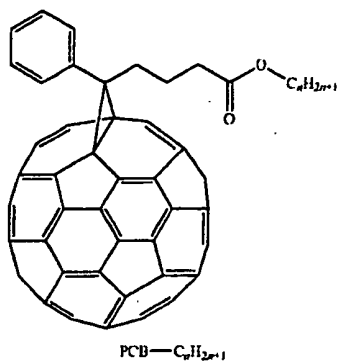
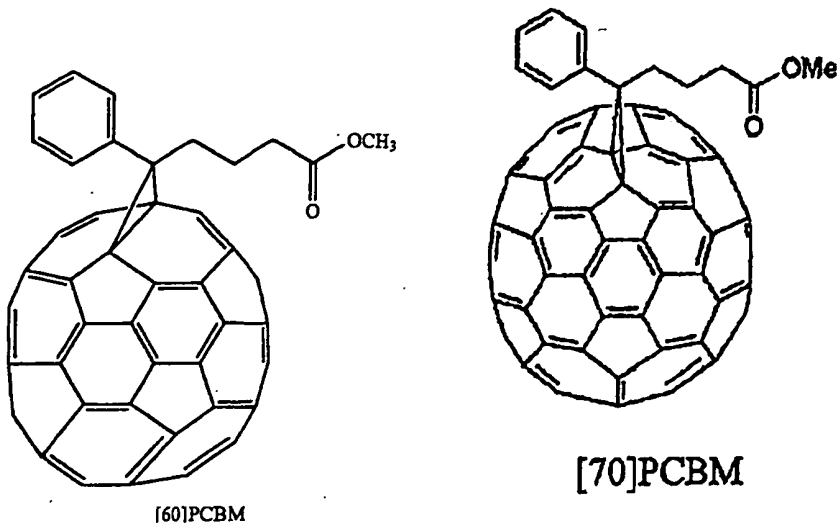


此處，A 表示富勒烯骨架(以 C₆₀ 富勒烯骨架、C₇₀ 富勒烯骨架為佳)；

-C(X)(Y)-基係介由甲橋橋鍵而與富勒烯骨架鍵結。X 及 Y 表示碳原子數 6 至 60 之芳基、碳原子數 1 至 20 之烷基、或其它化學基(例如：碳原子數 3 至 20 之烷氧羰基烷基)。n 表示 1 或 2。

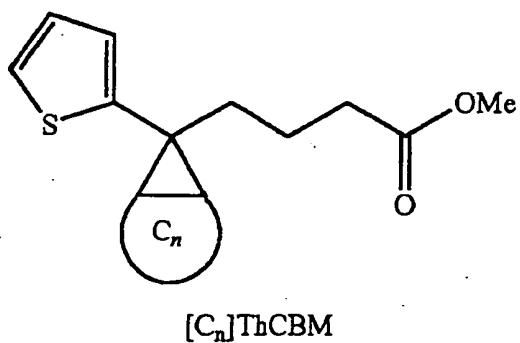
具體例可列舉如：X 為無取代之芳基，Y 為丁酸甲酯的化合物(PCBM)等。

PCBM 衍生物：



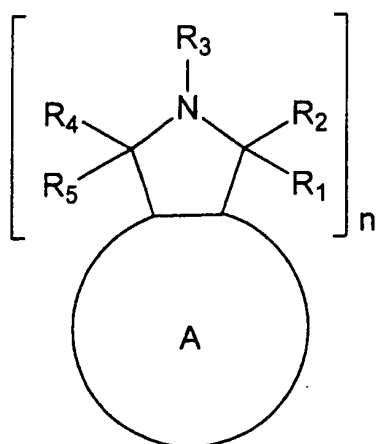
此處，n 表示 1 至 20 之整數。

ThCBM 衍生物：



此處，C_n 表示富勒烯骨架(以 C₆₀ 富勒烯骨架、C₇₀ 富勒烯骨架為佳)。

普拉托衍生物：



此處，

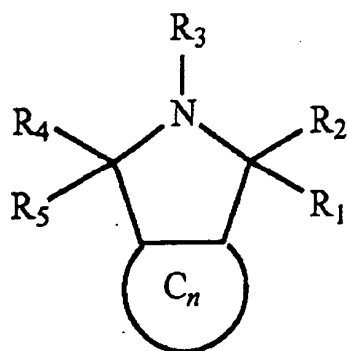
A 為與 $-C(R_4R_5)-N(R_3)-C(R_1R_2)-$ 鍵結之富勒烯骨架 (以 C_{60} 富勒烯骨架、 C_{70} 富勒烯骨架為佳)；

R_1 為可經取代之碳原子數 6 至 60 之芳基或碳原子數 7 至 60 之芳烷基；

R_2 、 R_3 、 R_4 以及 R_5 各自獨立為可經取代之碳原子數 1 至 20 之烷基、可經取代之碳原子數 3 至 60 之環烷基、可經取代之碳原子數 1 至 20 之雜烷基、可經取代之碳原子數 2 至 60 之雜環烷基、可經取代之碳原子數 1 至 20 之烯基、可經取代之碳原子數 7 至 60 之芳烷基；

n 為 1 至 40。

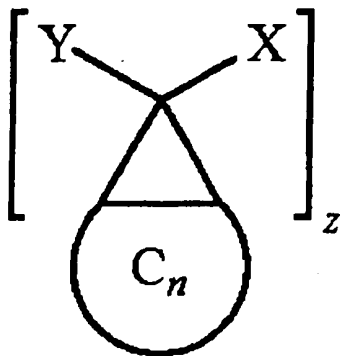
其中，以下述式為佳。



$[C_n]$ 普拉托

此處， C_n 表示富勒烯骨架（以 C_{60} 富勒烯骨架、 C_{70} 富勒烯骨架為佳）。

賓格衍生物



賓格衍生物

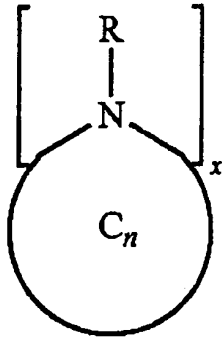
此處，

C_n 表示富勒烯骨架（以 C_{60} 富勒烯骨架、 C_{70} 富勒烯骨架為佳）；

z 為 1 至 40；

X 為碳原子數 1 至 20 之酯、腈、硝基、氰基、碳原子數 1 至 20 之酮、碳原子數 2 至 20 之二烷基磷酸酯、（經取代之）吡啶、 $C \equiv C-R$ （別名乙炔）等拉電子基（EWG：electron withdrawing group）； R 為 $Si-(R)_3$ 、或三取代矽烷基（相同或相異）； Y 為 H 、碳原子數 6 至 60 之芳基、碳原子數 6 至 60 之經取代之芳基、碳原子數 1 至 20 之烷基、碳原子數 1 至 20 之經取代之烷基。

氮雜類富勒烯衍生物：



氮雜類富勒烯

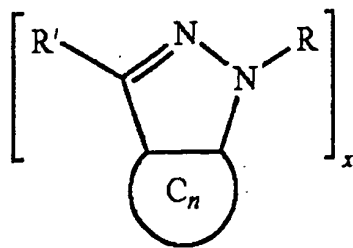
此處，

C_n 表示富勒烯骨架(以 C_{60} 富勒烯骨架、 C_{70} 富勒烯骨架為佳)；

x 為 1 至 40；

R 為碳原子數 1 至 20 之烷基、碳原子數 1 至 20 之經取代之烷基、碳原子數 6 至 60 之芳基、碳原子數 6 至 60 之經取代之芳基、 SO_2-R' 。 R' 為碳原子數 1 至 20 之烷基、碳原子數之芳基、碳原子數 6 至 60 之經取代之芳基。

二唑啉衍生物：



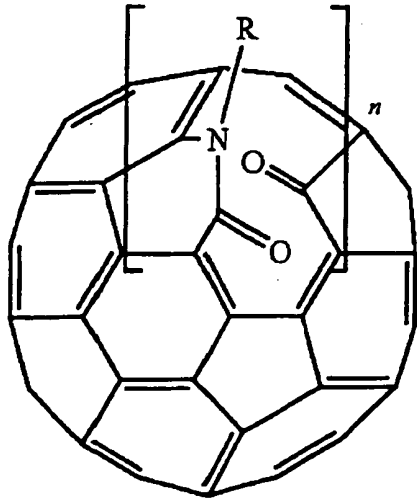
二唑啉

此處， C_n 表示富勒烯骨架(以 C_{60} 富勒烯骨架、 C_{70} 富勒烯骨架為佳)；

R 及 R' 各自獨立為碳原子數 6 至 60 之芳基；

x 為 1 至 40。

酮內醯胺衍生物：



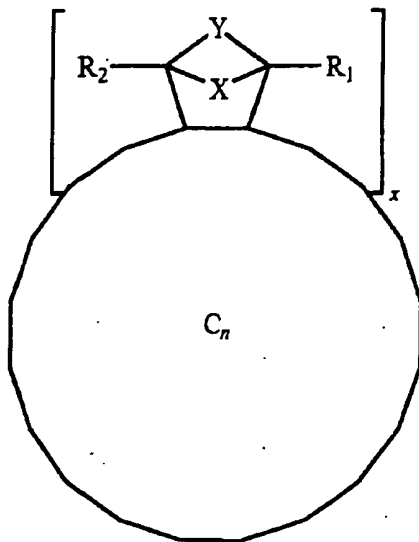
酞內醞胺

此處，

R 為烷基或取代烷基；

n 為 1 至 40。

狄耳士-阿德爾衍生物：



狄耳士-阿德爾衍生物

此處，

X 為 1 至 40；

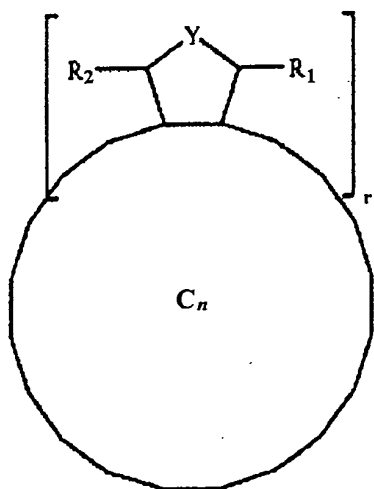
C_n 表示富勒烯骨架 (以 C₆₀ 富勒烯骨架、C₇₀ 富勒烯骨架為佳)；

R_1 為 H、碳原子數 1 至 20 之烷基、碳原子數 1 至 20 之烷氧基、碳原子數 6 至 60 之芳基、碳原子數 1 至 20 之經取代之烷基、碳原子數 6 至 60 之經取代之芳基、碳原子數 6 至 60 之雜芳基、或碳原子數 6 至 60 之經取代之雜芳基；

R_2 為 H、碳原子數 1 至 20 之烷基、碳原子數 1 至 20 之烷氧基、碳原子數 6 至 60 之芳基、碳原子數 1 至 20 之經取代之烷基、碳原子數 6 至 60 之經取代之芳基、碳原子數 6 至 60 之雜芳基、或碳原子數 6 至 60 之經取代之雜芳基；

X 為 0、碳原子數 1 至 20 之烷基、碳原子數 1 至 20 之經取代之烷基、碳原子數 6 至 60 之芳基、碳原子數 6 至 60 之經取代之芳基、碳原子數 5 至 60 之雜芳基、或碳原子數 5 至 60 之經取代之雜芳基；

Y 表示碳原子數 6 至 60 之芳基、碳原子數 6 至 60 之經取代之芳基、碳原子數 5 至 60 之雜芳基、或碳原子數 5 至 60 之經取代之雜芳基、伸乙烯基(vinylene)、或碳原子數 2 至 20 之經取代之伸乙烯基。



狄耳士-阿德爾衍生物

此處，

X 為 1 至 40；

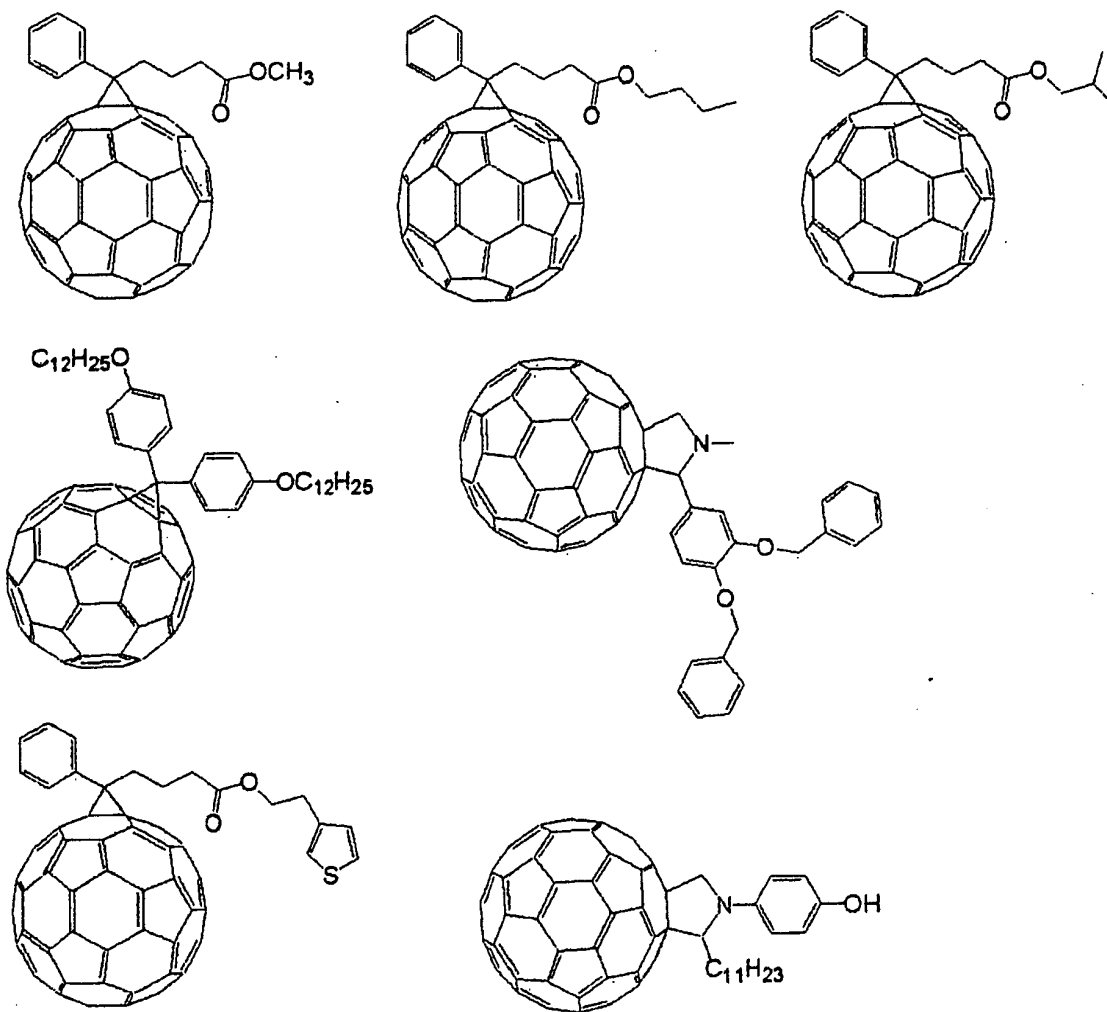
C_n 表示富勒烯骨架(以 C₆₀ 富勒烯骨架、C₇₀ 富勒烯骨架為佳)；

R₁ 為 H、碳原子數 1 至 20 之烷基、碳原子數 1 至 20 之烷氧基、碳原子數 6 至 60 之芳基、碳原子數 1 至 20 之經取代之烷基、碳原子數 6 至 60 之經取代之芳基、碳原子數 5 至 60 之雜芳基、或碳原子數 5 至 60 之經取代之雜芳基；

R₂ 為 H、碳原子數 1 至 20 之烷基、碳原子數 1 至 20 之烷氧基、碳原子數 6 至 60 之芳基、碳原子數 1 至 20 之經取代之烷基、碳原子數 6 至 60 之經取代之芳基、碳原子數 5 至 60 之雜芳基、或碳原子數 5 至 60 之經取代之雜芳基；

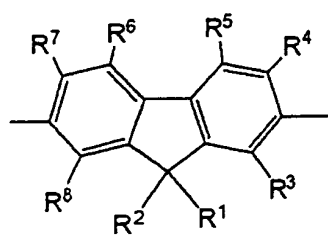
Y 表示碳原子數 6 至 60 之芳基、碳原子數 6 至 60 之經取代之芳基、碳原子數 5 至 60 之雜芳基、或碳原子數 5 至 60 之經取代之雜芳基、伸乙烯基、或碳原子數 2 至 20 之經取代之伸乙烯基。

具體上可列舉如下列示者。



其次，對本發明中使用之高分子發光體進行說明。本發明中使用之高分子發光體具有選自無取代或經取代之第二基、及無取代或經取代之苯并第二基所成組群之 1 種以上的二基作為重複單元。

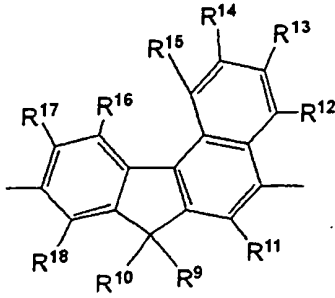
無取代或經取代之第二基的重複單元係如下述式(1)所示。



(1)

(式(1)中， R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6 、 R^7 以及 R^8 各自獨立表示氫原子、烷基、烷氧基、芳基或 1 價之芳香族雜環基，該等基中所含的氫原子可經氟原子取代。)

無取代或經取代之苯并第二基的重複單元係如下述式(2)所示。



(2)

(式(2)中， R^9 、 R^{10} 、 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} 、 R^{15} 、 R^{16} 、 R^{17} 以及 R^{18} 各自獨立表示氫原子、烷基、烷氧基、芳基或 1 價之芳香族雜環基，該等基中所含的氫原子可經氟原子取代。)

式(1)、(2)中， R^1 至 R^{18} 所示之烷基可為直鏈狀或分支狀，亦可為環烷基。烷基之碳原子數一般為 1 至 20 左右。

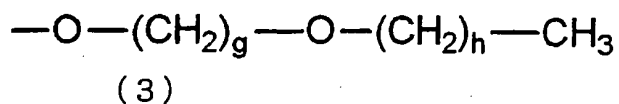
烷基之例可列舉如：甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、異丁基、第三丁基、第二丁基、3-甲基丁基、正戊基、正己基、2-乙基己基、正庚基、正辛基、正壬基、正癸基、3,7-二甲基辛基、正十二烷基(n-lauryl)等。烷基中之氫原子可經氟原子取代。經氟原子取代之烷基，可列舉例如：三氟甲基、五氟乙基、全氟丁基、全氟己基、全氟辛基等。

式(1)、(2)中， R^1 至 R^{18} 所示之烷氧基可為直鏈狀或分支狀，亦可為環烷氧基。烷氧基之碳原子數一般為 1 至 20

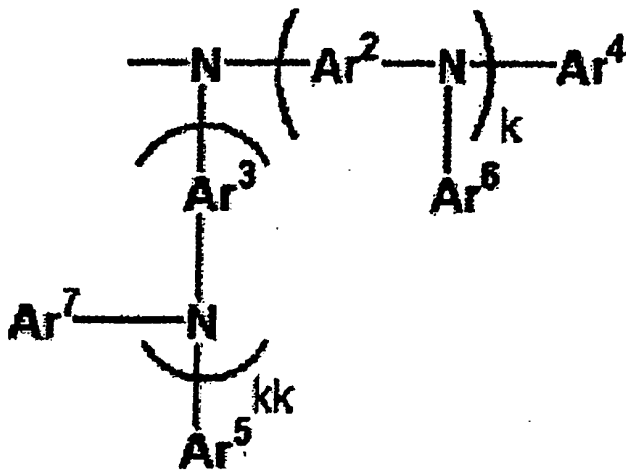
左右。烷氧基之例可列舉如：甲氧基、乙氧基、正丙氧基、異丙氧基、正丁氧基、異丁氧基、第二丁氧基、第三丁氧基、正戊氧基、正己氧基、環己氧基、正庚氧基、正辛氧基、2-乙基己氧基、正壬氧基、正癸氧基、3,7-二甲基辛氧基、正十二烷氧基(n-lauryloxy)等。烷氧基中之氫原子可經氟原子取代。經氟原子取代之烷氧基，可列舉例如：三氟甲氧基、五氟乙氧基、全氟丁氧基、全氟己基、全氟辛基等。

式(1)、(2)中， R^1 至 R^{18} 所示之芳基係從芳香族烴去除1個氫原子後而得之原子團。芳基亦包含：具有縮合環者、由2個以上獨立之苯環或縮合環直接或介由伸乙烯基等基進行鍵結者。芳基之碳原子數一般為6至60左右，以6至48為佳。芳基可具有取代基。取代基可列舉如：碳原子數1至20之直鏈狀、分支狀的烷基或碳原子數1至20之環烷基；在構造中含有碳原子數1至20之直鏈狀、分支狀的烷基或碳原子數1至20之環烷基的烷氧基；下述式(3)所示之基；下述式(4)所示之基。芳基之例可列舉如：苯基、 C_1 至 C_{12} 烷氧基苯基(C_1 至 C_{12} 表示碳原子數1至12者，以下亦同)、 C_1 至 C_{12} 烷基苯基、1-萘基、2-萘基、1-蒎基、2-蒎基、9-蒎基、五氟苯基等，以 C_1 至 C_{12} 烷氧基苯基、 C_1 至 C_{12} 烷基苯基為佳。 C_1 至 C_{12} 烷氧基苯基在具體上可列舉如：甲氧基苯基、乙氧基苯基、正丙氧基苯基、異丙氧基苯基、正丁氧基苯基、異丁氧基苯基、第二丁氧基苯基、第三丁氧基苯基、正戊氧基苯基、正己氧基苯基、環己氧

基苯基、正庚氧基苯基、正辛氧基苯基、2-乙基己氧基苯基、正壬氧基苯基、正癸氧基苯基、3,7-二甲基辛氧基苯基、正十二烷氧基苯基等。C₁至C₁₂烷基苯基在具體上可列舉如：甲基苯基、乙基苯基、二甲基苯基、正丙基苯基、1,3,5-三甲基苯基(mesityl)、甲基乙基苯基、異丙基苯基、正丁基苯基、異丁基苯基、第二丁基苯基、第三丁基苯基、正戊基苯基、異戊基苯基、己基苯基、正庚基苯基、正辛基苯基、正壬基苯基、正癸基苯基、正十二烷基苯基等。芳基中之氫原子可經氟原子取代。



(式(3)中，g表示1至6之整數；h表示0至5之整數。)



(4)

[式中，Ar²及Ar³各自獨立表示伸芳基(arylene)、或是由2個以上相同或相異之伸芳基以單鍵鍵結而成之2價基。Ar⁴、Ar⁵、Ar⁶及Ar⁷各自獨立表示芳基或1價之芳香族雜環基。從Ar³、Ar⁶及Ar⁷所示之基中選出的基，係可與跟

該基鍵結在同一個氮原子上的從 Ar^2 、 Ar^3 、 Ar^4 、 Ar^5 、 Ar^6 及 Ar^7 所示基中選出之基，互相以單鍵或以 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-C(=O)-$ 、 $-C(=O)-O-$ 、 $-N(R^{19})-$ 、 $-C(=O)-N(R^{19})-$ 或 $-C(R^{19})(R^{19})-$ 鍵結而形成 5 至 7 員環。 R^{19} 表示氫原子、烷基、芳基或 1 價之芳香族雜環基。 Ar^2 、 Ar^3 、 Ar^4 、 Ar^5 、 Ar^6 、 Ar^7 及 R^{19} 所示之基各自可經烷基、烷氧基、烷硫基、經取代之羰基、經取代之羧基、芳基、芳氧基、芳硫基、芳烷基、1 價之芳香族雜環基、氟原子或氫基所取代。 K 及 kk 各自獨立地為 0 至 3 之整數，惟 K 及 kk 之至少一方為 1 至 3 之整數。 Ar^2 、 Ar^3 、 Ar^4 、 Ar^5 、 Ar^6 、 Ar^7 及 R^{19} 中有複數個存在者可為相同或相異。]

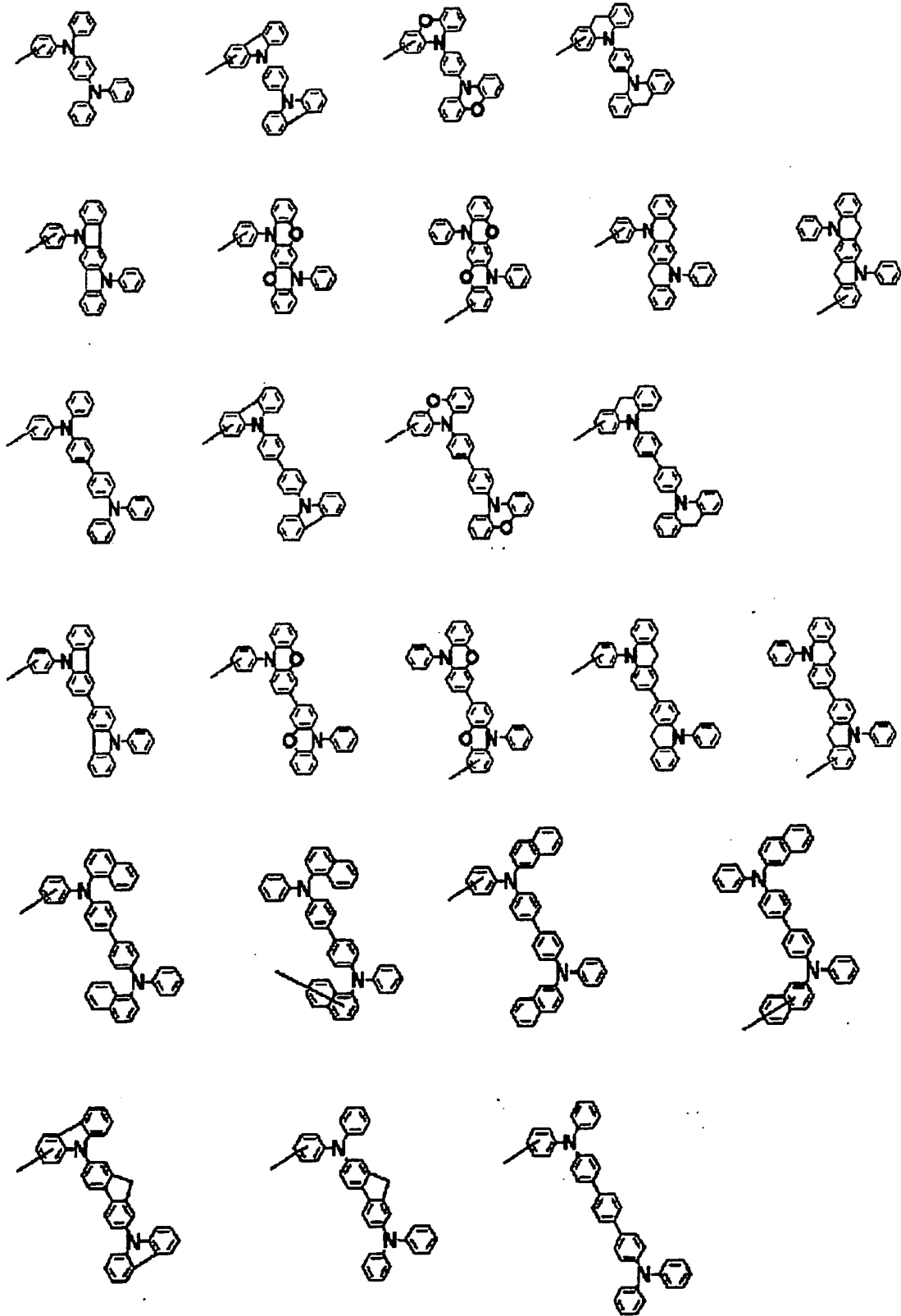
式(1)、(2)、(4)中之 1 價的芳香族雜環基，其碳原子數一般為 3 至 60 左右，以 3 至 20 為佳。碳原子數中不含取代基之碳原子數。1 價之芳香族雜環基可列舉如：2-噁二唑基、2-噻二唑基、2-噻唑基、2-噁唑基、2-噻吩基、2-吡咯基、2-咪喃基、2-吡啶基、3-吡啶基、4-吡啶基、2-吡嗪基、2-嘧啶基、2-三嗪基、3-噁嗪基、喹啉基、異喹啉基、2-咪唑基、3-咪唑基、2-啡嗪基(2-phenoxazinyl)、3-啡嗪基、2-啡噻嗪基(2-phenothiazinyl)、3-啡噻嗪基等。

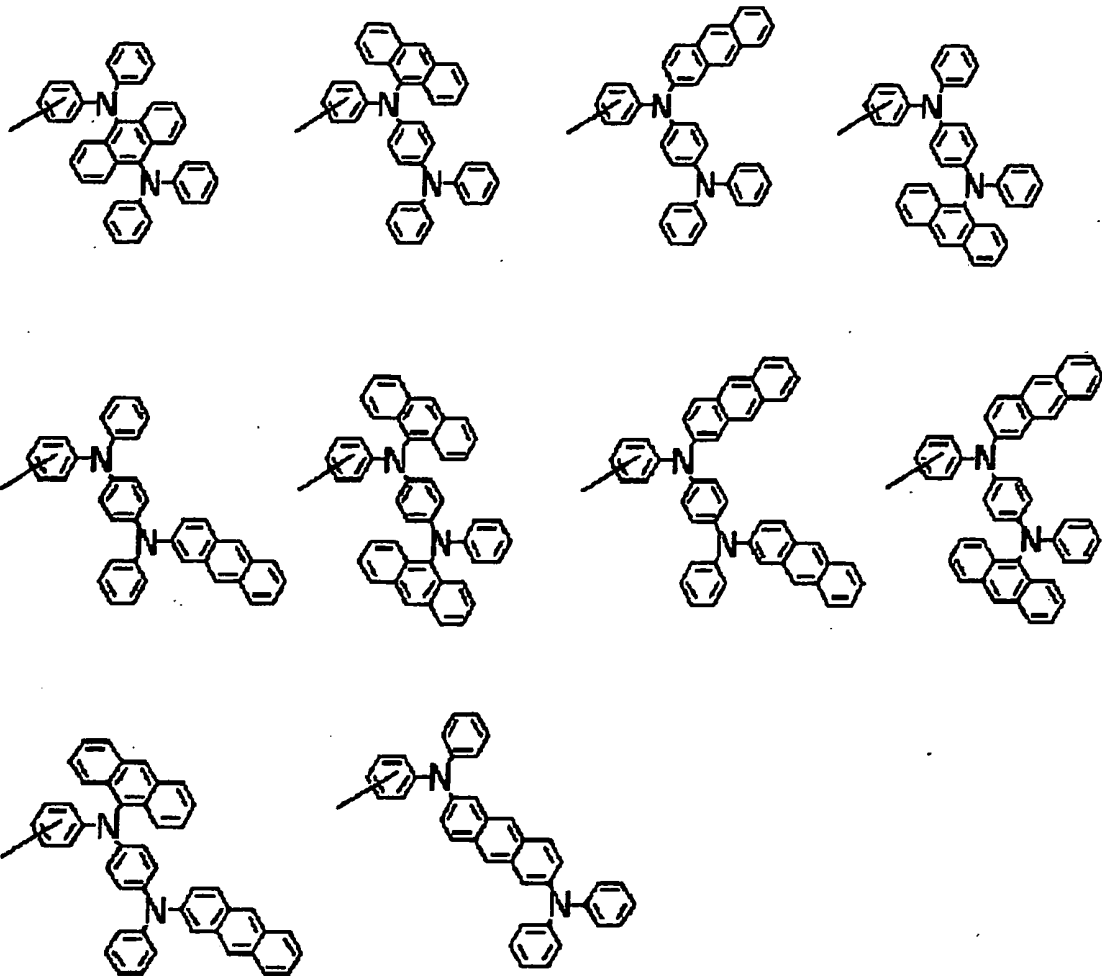
R^1 至 R^{19} 所示之芳基可具有取代基，從 EL 發光之色純度的觀點，特別是從提升藍色之色純度的觀點來看，芳基係以具有式(4)所示之取代基者為佳。

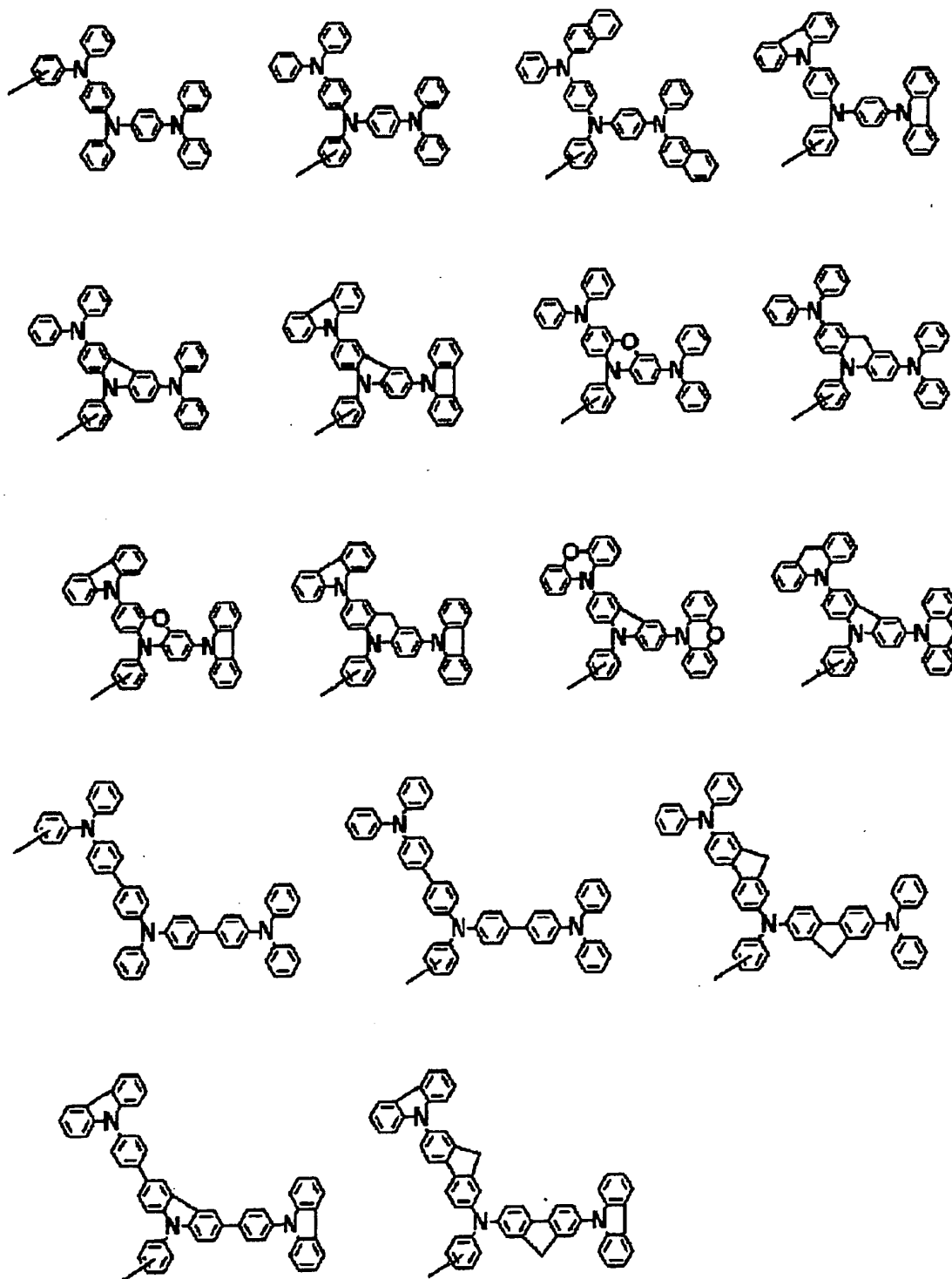
芳基具有式(4)所示之取代基時，該芳基可與從式(4)中之 Ar^2 、 Ar^3 、 Ar^4 、 Ar^5 所示之基選出的基互相以單鍵或

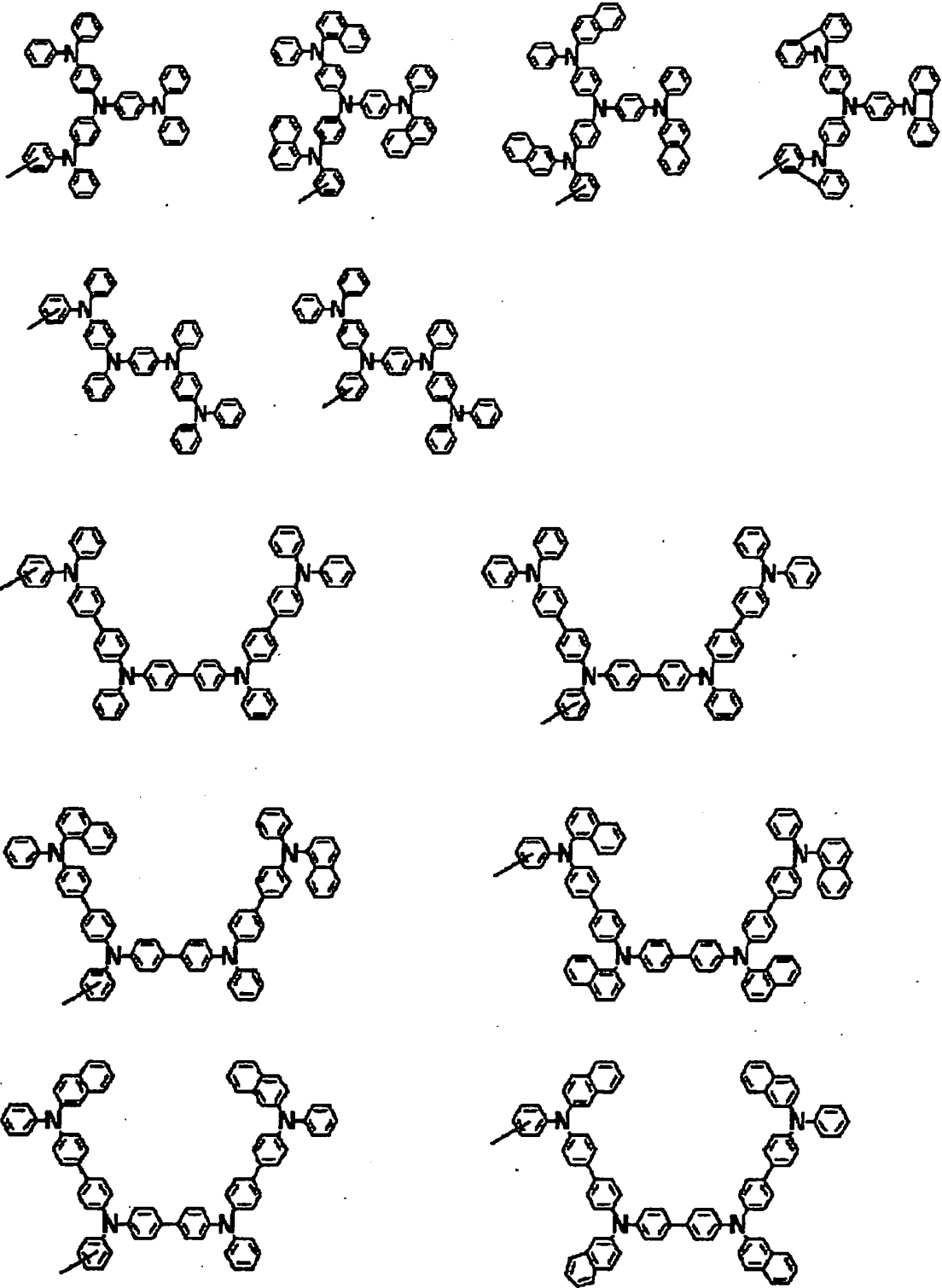
以 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-C(=O)-$ 、 $-C(=O)-O-$ 、 $-N(R^{19})-$ 、 $-C(=O)-N(R^{19})-$ 或 $-C(R^{19})(R^{19})-$ 鍵結而形成 5 至 7 員環。

具有式(4)所示之取代基的芳基之例可列舉如：以下之式所示者；以及該等經選自烷基、烷氧基、烷硫基、經取代之羰基、經取代之羧基、芳基、芳氧基、芳硫基、芳烷基、1 價之芳香族雜環基、氟原子以及氰基所成組群之基所取代者。







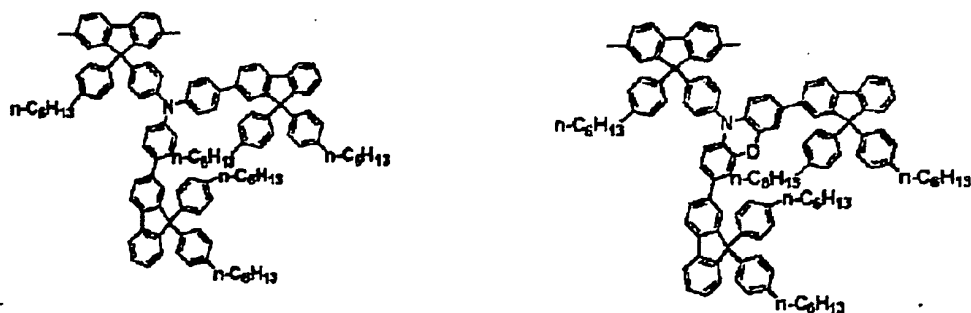
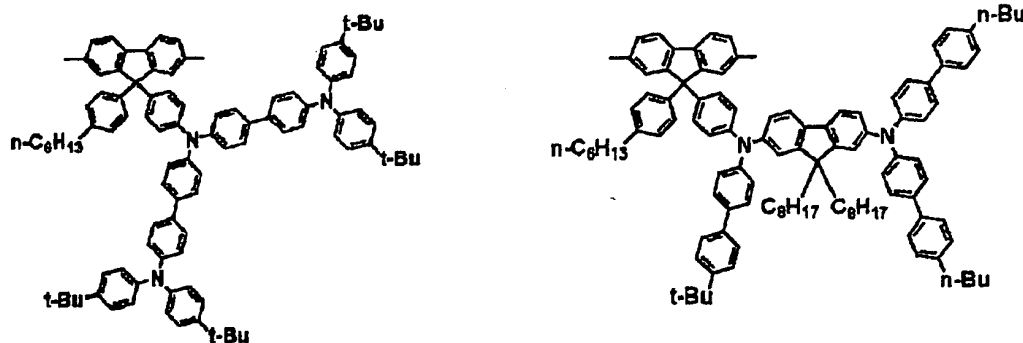
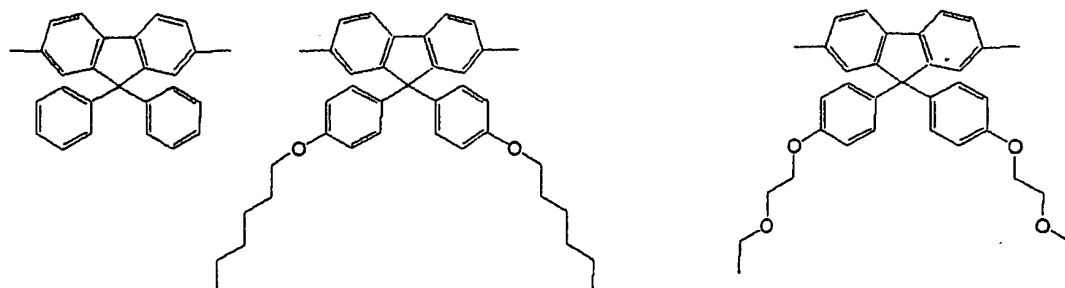
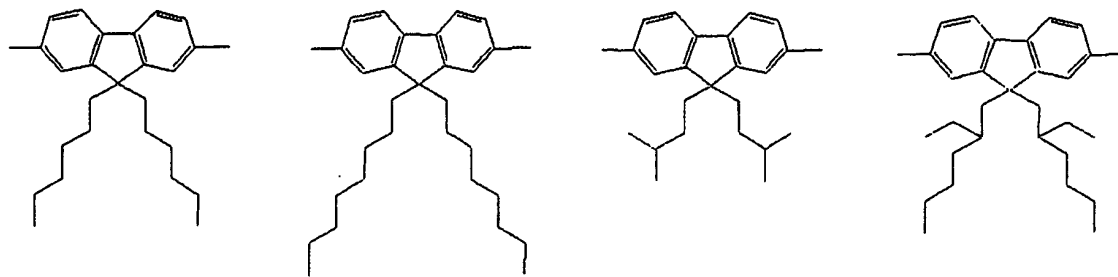


(式中，自芳香環伸出之結合鍵係直接表示結合鍵、或表示介由伸芳基之結合鍵。)

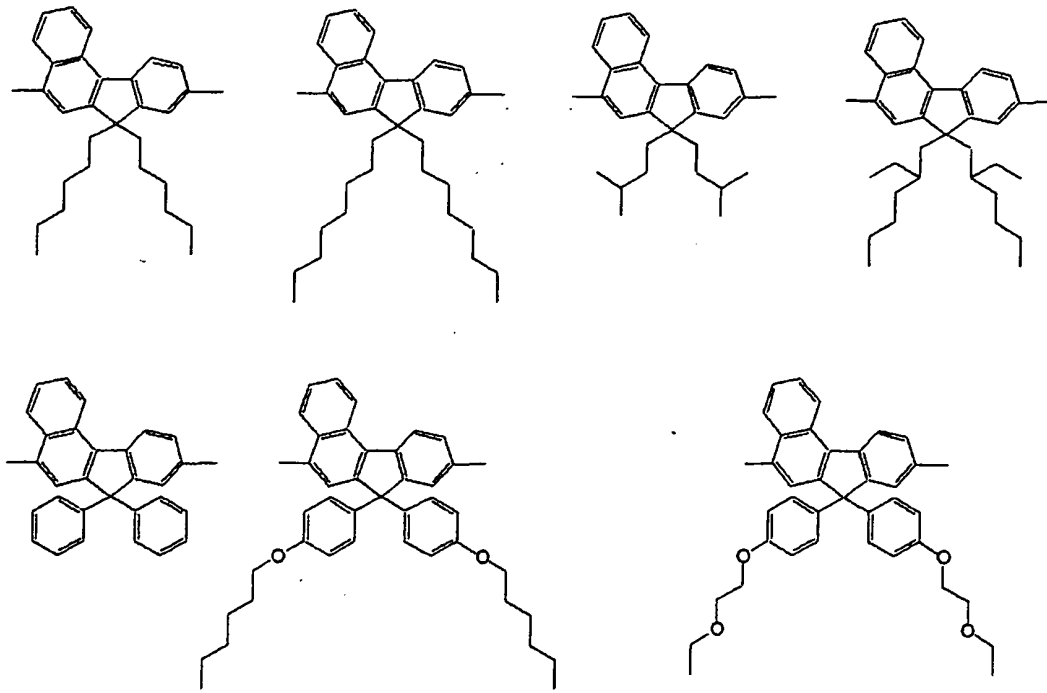
從對有機溶媒之溶解性的觀點來看，式(1)、(2)中之 R^1 、 R^2 、 R^9 以及 R^{10} 係以烷基、烷氧基或芳基為佳，以烷基

或芳基為更佳。

式(1)所示之二基可列舉例如以下之二基。



式(2)所示之二基可列舉例如下述之二基。



本發明所使用之高分子發光體可為均聚物 (homopolymer) 或共聚物。

本發明所使用之高分子發光體的數量平均分子量，從膜形成能力、對溶劑的溶解性之觀點來看，以聚苯乙烯換算係 10^3 至 10^8 左右為佳，以聚苯乙烯換算係 10^3 至 10^6 左右更佳。發明所使用之高分子發光體的重量平均分子量，以聚苯乙烯換算係 10^3 至 10^8 左右為佳，以聚苯乙烯換算係 10^3 至 10^6 左右更佳。

本發明之高分子發光體中的無取代或經取代之第二基以及無取代或經取代之苯并第二基的總量，相對於該高分子發光體所具有之總重複單元的量，一般為 10mol% 以上，以 20mol% 以上為佳。

本發明所使用之高分子發光體可為共軛系高分子，亦可為非共軛系高分子，以屬於共軛系高分子者為佳。

共軛系高分子係意指：(1)由雙鍵與單鍵交互排列之構造而實質地構成的高分子、(2)由雙鍵與單鍵介由氮原子排列之構造而實質地構成的高分子、(3)由雙鍵與單鍵交互排列之構造以及由雙鍵與單鍵介由氮原子排列之構造而實質地構成的高分子等，本說明書中，具體上係指至少具有選自無取代或經取代之第₂基及無取代或經取代之苯并第₂基所成組群中之1種以上的二基作為重複單元，並且該重複單元彼此直接或介由連結基鍵結而成的高分子。共軛系高分子除了具有選自無取代或經取代之第₂基及無取代或經取代之苯并第₂基所成組群中之1種以上之外，亦可具有選自二苯并呋喃二基(dibenzofuran-diyl)、無取代或經取代之二苯并噻吩二基、無取代或經取代之咪唑二基、無取代或經取代之噻吩二基、無取代或經取代之呋喃二基、無取代或經取代之吡咯二基、無取代或經取代之苯并噻二唑二基、無取代或經取代之伸苯基伸乙烯基二基、無取代或經取代之伸噻吩基伸乙烯基二基、以及無取代或經取代之三苯基胺二基(triphenylamine-diyl)、啡咩二基(phenoxazine-diyl)、啡噻咩二基(phenothiazine-diyl)所成組群中之一種或2種以上作為重複單元，並且，亦可為除了上述無取代或經取代之第₂基及無取代或經取代之苯并第₂基以外，由該等重複單元彼此直接或介由連結基鍵結而成的高分子。

在共軛系高分子中，上述重複單元彼此係介由連結基而鍵結時，該連結基之例可列舉如：伸苯基、伸聯苯基

(biphenylene)、萘二基、蒽二基等。

共軛系高分子之數量平均分子量，從膜形成能力、對溶劑的溶解性之觀點來看，以聚苯乙烯換算係 10^3 至 10^8 左右為佳，以聚苯乙烯換算係 10^3 至 10^6 左右更佳。上述共軛系高分子之重量平均分子量，以聚苯乙烯換算係 10^3 至 1×10^8 為佳，以聚苯乙烯換算係 1×10^3 至 1×10^6 更佳。

關於構成共軛系高分子之無取代或經取代之萘二基與無取代或經取代之苯并萘二基的總分子量在共軛系高分子中之比例，如共軛系高分子之分子量為 1 時，一般為 0.3 以上，以 0.5 以上為佳。

共軛系高分子係在合成具有適於所使用之聚合反應的官能基之單體後，可因應必要而溶解於有機溶媒中，例如可藉由使用鹼或適當的觸媒、配位基之習知的芳基偶合 (aryl coupling) 等之聚合方法進行聚合而合成。

經由芳基偶合而進行之聚合方法並無特別限定。可列舉如下方法：

將具有硼酸基或硼酸酯基作為適於上述聚合反應之官能基的單體，與具有溴原子、碘原子、氯原子等鹵原子或三氟甲磺酸酯基、對甲苯磺酸酯基等磺酸酯基作為官能基之單體，在碳酸鈉、碳酸鉀、碳酸銨、磷酸三鉀、氟化鉀等無機鹼，氟化四丁基銨、氯化四丁基銨、溴化四丁基銨、氫氧化四丁基銨等有機鹼之存在下，使用由 [肆(三苯基膦)] 鈣、[參(二亞苈基丙酮)] 二鈣、乙酸鈣、雙(三苯基膦)二氯化鈣、雙(環辛二烯)鎳等 Pd 或 Ni 錯合物，與因應必要

之三苯基膦、三(2-甲基苯基)膦、三(2-甲氧基苯基)膦、二苯基膦基丙烷、三(環己基)膦、三(第三丁基)膦等配位基所構成之觸媒的經由 Suzuki 偶合反應而進行聚合之方法；

將具有鹵原子或三氟甲磺酸酯基等磺酸酯基之單體彼此，使用由雙(環辛二烯)鎳等鎳 0 價錯合物與聯吡啶(bipyridine)等配位基所構成的觸媒、或是使用由[雙(二苯基膦基)乙烷]二氯化鎳、[雙(二苯基膦基)丙烷]二氯化鎳等 Ni 錯合物與因應必要之三苯基膦、二苯基膦基丙烷、三(環己基)膦、三(第三丁基)膦等配位基所構成之觸媒與鋅、鎂等還原劑，並因應必要在脫水條件下使其反應之經由 Yamamoto 偶合反應而進行聚合之方法；

將具有鹵化鎂基之化合物與具有鹵原子之化合物，使用[雙(二苯基膦基)乙烷]二氯化鎳、[雙(二苯基膦基)丙烷]二氯化鎳等 Ni 觸媒，在脫水條件下使其反應之以芳基偶合反應而聚合的經由 Kumada-Tamao 偶合反應而進行聚合之方法；

將氫原子作為官能基並經 FeCl_3 等氧化劑聚合的方法；以及

以電化學之方式進行氧化聚合的方法等。

反應溶媒係考量所使用之聚合反應、單體及聚合物之溶解性等而選擇。具體係例示如：四氫呋喃、甲苯、1,4-二噁烷、二甲氧基乙烷、N,N-二甲基乙醯胺、N,N-二甲基甲醯胺、該等 2 種以上之混合溶媒等的有機溶媒、或該等

與水之二相系。

Suzuki 偶合反應中，係以四氫呋喃、甲苯、1,4-二噁烷、二甲氧基乙烷、N,N-二甲基乙醯胺、N,N-二甲基甲醯胺、該等 2 種以上之混合溶媒等的有機溶媒、或該等與水之二相系為佳。反應溶媒一般為了抑制副反應而以經進行脫氧處理者為佳。

Yamamoto 偶合反應中，係以四氫呋喃、甲苯、1,4-二噁烷、二甲氧基乙烷、N,N-二甲基乙醯胺、N,N-二甲基甲醯胺、該等 2 種以上之混合溶媒等的有機溶媒為佳。反應溶媒一般為了抑制副反應而以經進行脫氧處理者為佳。

即使在上述芳基偶合反應之中，從反應性之觀點來看，亦以 Suzuki 偶合反應、Yamamoto 偶合反應為佳，以 Suzuki 偶合反應與使用鎳 0 價錯合物之 Yamamoto 偶合反應更佳。關於經由 Suzuki 偶合而進行之聚合，更詳細而言，可參考例如：Journal of Polymer Science: Part A: Polymer Chemistry, Vol. 39, 1533-1556(2001)所記載之習知方法。關於經由 Yamamoto 偶合而進行之聚合，可參考例如：Macromolecules 1992, 25, 1214-1223 所記載之習知方法。

該等反應中之反應溫度，只要是反應溶液仍保持液狀之溫度範圍，則無特別限定，惟其下限，從反應性之觀點來看，係以 -100°C 為佳，以 -20°C 更佳，以 0°C 為特佳；而其上限，從上述共軛系高分子及上述式(1)或式(2)所示化合物之安定性的觀點來看，係以 200°C 為佳，以 150°C 更

佳，以 120°C 為特佳。

上述共軛系高分子之取出可依據習知方法而進行。例如：在甲醇等低級醇中添加反應溶液，藉由將所析出之沉澱進行過濾、乾燥，即可得到上述共軛系高分子。所得共軛系高分子為低純度時，可用再結晶、經索式萃取器 (Soxhlet extractor) 之連續萃取、管柱層析等一般方法進行精製。

本發明之高分子發光體組成物，除了含有上述高分子發光體與富勒烯及/或富勒烯衍生物之外，亦可再含有溶媒或分散媒。亦即，本發明之高分子發光體組成物，亦可為將上述高分子發光體與富勒烯及/或富勒烯衍生物溶解於溶媒中或分散於分散媒中而成之液體狀組成物。

上述溶媒可從習知溶媒中適當地選用可均勻地溶解或分散上述高分子發光體及富勒烯及/或富勒烯衍生物之安定溶媒。如此之溶媒可列舉如：醇類(甲醇、乙醇、異丙醇等)、酮類(丙酮、甲基乙基酮等)、有機氯類(氯仿、1,2-二氯乙烷等)、芳香族烴類(苯、甲苯、二甲苯等)、脂肪族烴類(正己烷、環己烷等)、醯胺類(二甲基甲醯胺等)、亞砷類(二甲基亞砷等)等。該等溶媒可單獨使用，亦可將二種以上併用。

發光層中的富勒烯及/或富勒烯衍生物之含量係在將上述高分子發光體作為 100 重量份時，一般為 0.001 至 10 重量份，以 0.001 至 5 重量份為佳，以 0.01 至 1 重量份更佳，尤以 0.05 至 1 重量份為特佳。

當本發明之高分子發光體組成物含有溶媒時，相對於上述高分子發光體與富勒烯及/或富勒烯衍生物之總量 100 重量份，高分子發光體組成物中之溶媒量一般為 1000 至 100000 重量份左右。

本發明之高分子發光體組成物中，在無損及電荷輸送性、電荷注入性之範圍內，除了上述高分子發光體、富勒烯及/或富勒烯衍生物，亦可含有其它之成分。有機 EL 元件中，高分子發光體與富勒烯及/或富勒烯衍生物之總量，相對於發光層 100 重量份，一般為 30 重量份以上，以 50 重量份以上為佳，以 70 重量份以上更佳。

本發明之有機 EL 元件係如前述，具備一對電極與設於該電極間之發光層，而該發光層含有：具有選自無取代或經取代之第二基及無取代或經取代之苯并第二基所成組群之 1 種以上的二基作為重複單元之高分子發光體、與富勒烯及/或富勒烯衍生物。

有機 EL 元件中，在電極間除了發光層之外，亦可具備所預定之層，並且，亦可具備 2 層以上之發光層。

本實施型態之有機 EL 元件係具有陽極、陰極、在陽極與陰極間所配置之發光層作為必要的構成要件，且亦可在陽極與發光層之間、及/或發光層與陰極之間具有與發光層相異之其它層。在陽極與陰極之間，不僅限於一層的發光層，可配置複數之發光層。

設置在陰極與發光層之間的層可列舉如：電子注入層、電子輸送層、電洞阻擋層等。在陰極與發光層之間設

有電子注入層與電子輸送層雙方之層時，陰極所相接之層稱為電子注入層，而去除該電子注入層之層則稱為電子輸送層。

電子注入層係具有改善來自陰極之電子的注入效率之機能。電子輸送層係具有改善來自陰極側之表面所相接之層的電子注入之機能。電洞阻擋層係具有阻擋電洞輸送之機能。另外，當電子注入層及/或電子輸送層具有阻擋電洞輸送之機能時，該等之層可兼作為電洞阻擋層。

關於電洞阻擋層具有阻擋電洞輸送之機能一事，例如可藉由製作僅有霍爾電流(Hall current)流動之元件並以其電流值的減少而確認阻擋效果。

設置在陽極與發光層之間的層可列舉如：電洞注入層、電洞輸送層、電子阻擋層等。在陽極與發光層之間設有電洞注入層與電洞輸送層雙方之層時，陽極所相接之層稱為電洞注入層，而去除該電洞注入層之層則稱為電洞輸送層。

電洞注入層係具有改善來自陽極之電洞的注入效率之機能。電洞輸送層係具有改善來自陽極側之表面所相接之層的電洞注入之機能。電子阻擋層係具有阻擋電子輸送之機能。另外，當電洞注入層及/或電洞輸送層具有阻擋電子輸送之機能時，該等之層可兼作為電子阻擋層。

關於電子阻擋層具有阻擋電子輸送之機能一事，例如可藉由製作僅有電子電流流動之元件並以其電流值的減少而確認阻擋效果。

電子注入層以及電洞注入層有總稱為電荷注入層的情形，電子輸送層以及電洞輸送層有總稱為電荷輸送層的情形。

以下係呈示本實施型態之有機 EL 元件所採用之層構造之一例。

- a) 陽極 / 發光層 / 陰極
- b) 陽極 / 電洞注入層 / 發光層 / 陰極
- c) 陽極 / 電洞注入層 / 發光層 / 電子注入層 / 陰極
- d) 陽極 / 電洞注入層 / 發光層 / 電子輸送層 / 陰極
- e) 陽極 / 電洞注入層 / 發光層 / 電子輸送層 / 電子注入層 / 陰極
- f) 陽極 / 電洞輸送層 / 發光層 / 陰極
- g) 陽極 / 電洞輸送層 / 發光層 / 電子注入層 / 陰極
- h) 陽極 / 電洞輸送層 / 發光層 / 電子輸送層 / 陰極
- i) 陽極 / 電洞輸送層 / 發光層 / 電子輸送層 / 電子注入層 / 陰極
- j) 陽極 / 電洞注入層 / 電洞輸送層 / 發光層 / 陰極
- k) 陽極 / 電洞注入層 / 電洞輸送層 / 發光層 / 電子注入層 / 陰極
- l) 陽極 / 電洞注入層 / 電洞輸送層 / 發光層 / 電子輸送層 / 陰極
- m) 陽極 / 電洞注入層 / 電洞輸送層 / 發光層 / 電子輸送層 / 電子注入層 / 陰極
- n) 陽極 / 發光層 / 電子注入層 / 陰極

o)陽極/發光層/電子輸送層/陰極

p)陽極/發光層/電子輸送層/電子注入層/陰極

(此處，記號「/」表示夾著記號「/」之各層係相接而層積，以下亦同。)

本實施型態之有機 EL 元件可具有 2 層以上的發光層。在上述 a)至 p)之層構造之任一者中，以經陽極與陰極所夾持之積層體作為「構造單元 A」時，具有 2 層發光層之有機 EL 元件的構造可列舉如下述 q)所示之層構造。又，有 2 個(構造單元 A)之層構造可互同或互異。

q)陽極/(構造單元 A)/電荷產生層/(構造單元 A)/陰極

以「(構造單元 A)/電荷產生層」作為「構造單元 B」時，具有 3 層以上發光層之有機 EL 元件的構造可列舉如下述 r)所示之層構造。

r)陽極/(構造單元 B)_x/(構造單元 A)/陰極

又，記號「_x」表示 2 以上之整數，(構造單元 B)_x 表示構造單元 B 經 _x 段層積之積層體。有複數個(構造單元 B)之層構造可互同或互異。

有機 EL 元件通常可藉由將構成上述有機 EL 元件之各層依序以預定的方法層積在支撐基板上而製得，例如可在上述 a)至 r)的構造中，由右側至左側、或由左側至右側依序將各層層積在支撐基板上而製得。

<陽極>

當為從發光層所發射之光通過陽極而射出至元件外部的構造之有機 EL 元件時，陽極係使用呈現透光性之電極。

鋁合金等。陰極可使用由導電性金屬氧化物以及導電性有機物等所構成之透明導電性電極。具體而言，導電性金屬氧化物可列舉如：氧化銦、氧化鋅、氧化錫、ITO 以及 IZO，導電性有機物可列舉如：聚苯胺或其衍生物、聚噻吩或其衍生物等。另外，陰極可由層積 2 層以上之積層體所構成。又，電子注入層亦有作為陰極使用的情形。

陰極之膜厚係考量所要求之特性以及步驟的難易度等而適當地設定，例如為 10nm 至 10 μ m，以 20nm 至 1 μ m 為佳，以 50nm 至 500nm 更佳。

陰極之製作方法可列舉如：真空蒸鍍法、濺鍍法、或將金屬薄膜進行熱壓接合之層壓法等。

<發光層>

發光層宜藉由塗佈法而形成。塗佈法係因可簡化製程之特點、生產性優異之特點而為佳。塗佈法可列舉如：澆鑄法(casting method)、旋轉塗佈法、棒塗法、刮刀塗佈法、輓塗法、凹版印刷、網版印刷、噴墨法等。使用上述塗佈法而形成發光層時，首先調製含有上述高分子發光體與富勒烯及/或富勒烯衍生物與溶媒之溶液型態的組成物作為塗佈液，將該塗佈液依上述所預定之塗佈法而塗佈在所期望之層或電極上，再將此進行乾燥，藉此而形成所期待之膜厚的發光層。

<其它之層>

電洞注入層、電洞輸送層、電子注入層以及電子輸送層等之材料並無特別限制，可依塗佈法、真空蒸鍍法、濺

鍍法以及層壓法等預定之成膜方法形成。

以上所說明之有機 EL 元件可適用在曲面狀或平面狀之照明裝置，例如作為掃描器之光源使用的面狀光源、以及顯示裝置等的發光裝置。

具備有機 EL 元件之顯示裝置可列舉如：節段(segment)顯示裝置、點矩陣(dot matrix)顯示裝置等。點矩陣顯示裝置係有主動矩陣顯示裝置以及被動矩陣顯示裝置等。有機 EL 元件在主動矩陣顯示裝置、被動矩陣顯示裝置中，可作為構成各像素之發光元件使用。有機 EL 元件在節段顯示裝置中，可作為構成各節段之發光元件或背光(backlight)使用，在液晶顯示裝置中，可作為背光使用。

[實施例]

以下，為了更詳加說明本發明而呈示實施例，惟本發明並不受該等所限定。

—分子量之測定方法—

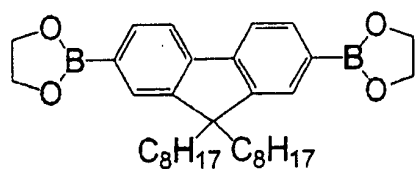
實施例中，數量平均分子量(Mn)以及重量平均分子量(Mw)係經由凝膠滲透層析儀(gel permeation chromatography, GPC)換算聚苯乙烯而求得者。具體上，係經由 GPC(東曹公司製造；商品名稱：HLC-8220GPC)，使用 3 支 TSKgel SuperHM-H(東曹公司製造)串聯之管柱，將作為展開溶劑之四氫呋喃以 0.5ml/分鐘之流速流動，在 40℃下測定。檢測器係使用示差折射率檢測器。

<合成例 1>(高分子化合物 1 之合成)

在 500ml 之四口燒瓶中，量取氯化三辛基甲基銨

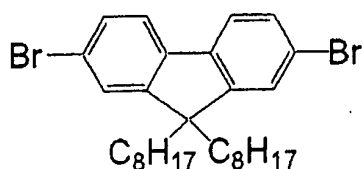
(Triscaprylylmethylammoniumchloride ; 商品名稱 : Aliquat336)1.72g、

下述式所示之化合物 A 6.2171g、



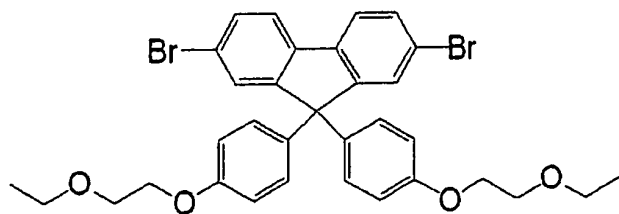
化合物A

下述式所示之化合物 B 0.5085g、



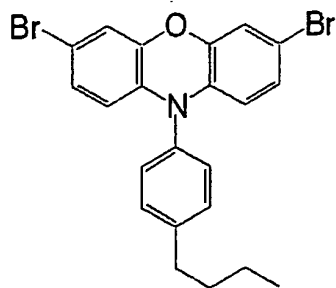
化合物B

下述式所示之化合物 C 6.2225g、



化合物C

以及下述式所示之化合物 D 0.5487g、



化合物D

，並以氮氣置換。加入甲苯 100ml，再添加雙(三苯基膦)二

氯化鈮(II) 7.6mg、碳酸鈉水溶液 24ml，在回流下攪拌 3 小時後，添加苯基硼酸 0.40g，攪拌一整夜。添加 N,N-二乙二硫胺甲酸鈉(sodium N,N-diethyldithiocarbamate) 水溶液，再於回流下攪拌 3 小時。將所得反應液進行分液，將有機相以乙酸水溶液及水清洗後，將其滴入甲醇中而產生沉澱。將所得沉澱經過濾、減壓乾燥後，溶解於甲苯中，通過矽膠(silica gel)-氧化鋁(alumina)管柱後，以甲苯清洗。將所得甲苯溶液滴入甲醇中而產生沉澱。將所得沉澱經過濾、減壓乾燥後，溶解於甲苯中，滴入甲醇中而產生沉澱。將所得沉澱過濾、減壓乾燥後，得到 7.72g 之高分子化合物 1(共軛系高分子)。高分子化合物 1 之聚苯乙烯換算之數量平均分子量 M_n 為 1.2×10^5 ，聚苯乙烯換算之重量平均分子量 M_w 為 2.9×10^5 。

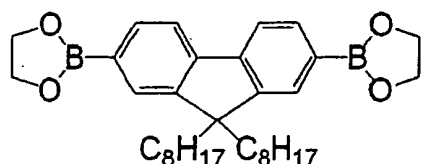
<合成例 2> (高分子化合物 2 之合成)

在 5L 之可分離式燒瓶(separable flask)中，量取氯化三辛基甲基銨

(Triscaprylylmethylammoniumchloride；商品名稱：

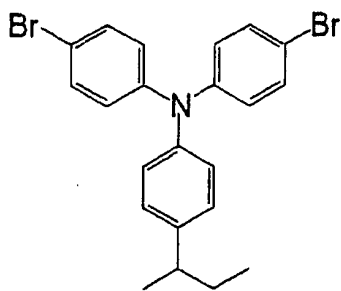
Aliquat336) 40.18g、

下述式所示之化合物 A 234.06g、



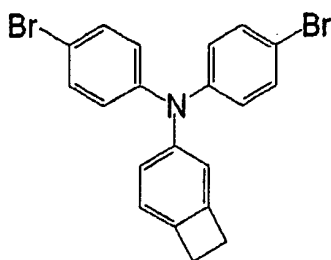
化合物A

下述式所示之化合物 E 172.06g、



化合物E

以及下述式所示之化合物 F 28.5528g，



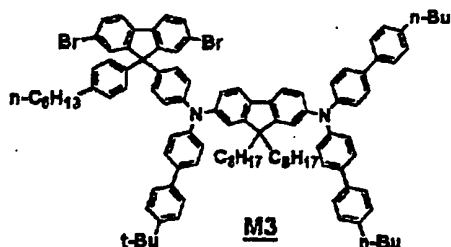
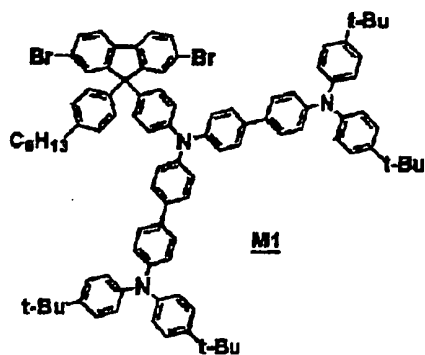
化合物F

，並以氮氣置換。加入經氫氣冒泡之甲苯 2620g，一邊攪拌一邊再冒泡 30 分鐘。添加乙酸鈣 99.1mg、參(鄰甲苯基)磷 937.0mg，以 158g 甲苯沖洗，加熱至 95°C。於其中滴入 17.5 重量%碳酸鈉水溶液 855g 後，將浴溫升至 110°C，攪拌 9.5 小時後，將苯基硼酸 5.39g 溶解在甲苯 96ml 中而添加，攪拌 14 小時。再加入 200ml 之甲苯，將所得反應液進行分液，並將有機相經添加 3 重量%乙酸水溶液 850ml 2 次，再添加 850ml 之水與 N,N-二乙二硫胺甲酸鈉 19.89g，攪拌 4 小時。分液後，通過矽膠-氧化鋁管柱，以甲苯清洗。將所得甲苯溶液滴入甲醇 50L 中而產生沉澱。將所得沉澱以甲醇清洗。減壓乾燥後，使其溶解於 11L 之甲苯中，並將所得甲苯溶液滴入甲醇 50L 中而產生沉澱。將所得沉澱過濾、減壓乾燥後，得到 278.39g 之高分子化合物 2。高分

子化合物 2 之聚苯乙烯換算之數量平均分子量 M_n 為 7.7×10^4 ，聚苯乙烯換算之重量平均分子量 M_w 為 3.8×10^5 。

上述化合物 A 至 F 可依例如 W02005/52027 所記載之方法進行合成。

對於下述單體化合物 M1、M3 以及下述所示合成例 3 之高分子化合物 P9，可依日本特開 2009-149850 號公報所記載之方法進行合成。



<合成例 3> (高分子化合物 P9 之合成)

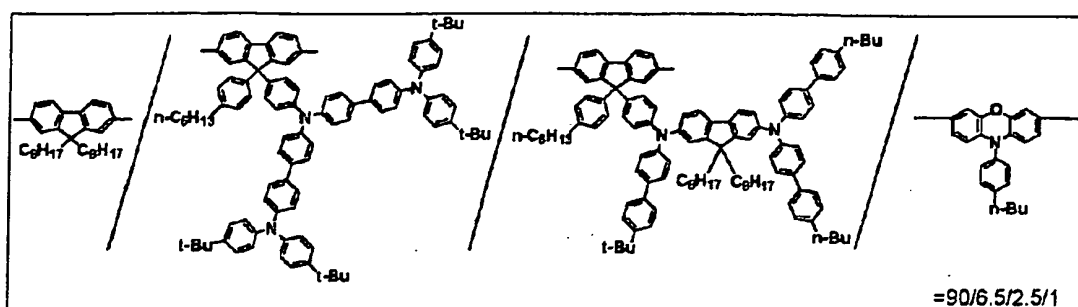
將 2,7-雙(1,3,2-二氧雜硼烷-2-基)-9,9-二辛基芴 (2,7-bis(1,3,2-dioxaborolan-2-yl)-9,9-dioctylfluorene (1.0675g; 2.012mmol)、2,7-二溴-9,9-二辛基芴 (0.8873g; 1.618mmol)、化合物 M1(0.3782g、0.263mmol)、化合物 M3(0.1622g; 0.101mmol)、N-(4-正丁基苯基)-3,7-二溴啡啶(化合物 D)(0.0191g; 0.040mmol)以及氯化三辛

基甲基胺(Aldrich 公司製造；商品名稱：Aliquat 336) (0.26g; 0.65mmol)在氫氣環境下，使其溶解於甲苯(20ml)中。將氫氣在溶液中冒泡後，升溫至 80°C 後，添加雙(三苯基膦)二氯化鈣(2.8mg; 4.0 μ mol)以及 17.5 重量%碳酸鈉水溶液(5.5ml; 9.1mmol)，在回流下反應 7 小時。一經冷卻後，添加苯基硼酸(0.02g; 0.2mmol)以及雙(三苯基膦)二氯化鈣(1.4mg; 2.0 μ mol)，再於回流下反應 2 小時。添加甲苯(20ml)並稀釋後，除去水層，添加 9 重量%之 N,N-二乙二硫胺甲酸鈉水溶液(12ml)，在 90°C 下攪拌 2 小時後，將有機層依序以離子交換水(26ml)清洗 2 次、以 3 重量%乙酸水溶液(26ml)清洗 2 次、以離子交換水(26ml)清洗 2 次，接著，滴入甲醇(300ml)中，攪拌 30 分鐘後，濾取所析出之聚合物，並以甲醇(60ml)清洗，再進行減壓乾燥而得到粗聚合物。

將此粗聚合物溶解於甲苯(80ml)中，於充填有氧化鋁(14g)、矽膠(31g)之管柱中通液，再將甲苯(50ml)通液。將所得溶液滴入甲醇(300ml)中，攪拌 30 分鐘後，濾取所析出之聚合物，並以甲醇(60ml)清洗，再進行減壓乾燥而得到屬於聚合物之高分子化合物 P9(1.38g; 收率 72%)。高分子化合物 P9 之聚苯乙烯換算之數量平均分子量 M_n 為 1.2×10^5 ，聚苯乙烯換算之重量平均分子量 M_w 為 3.3×10^5 ，玻璃轉換溫度為 109°C，薄膜之螢光波峰波長為 446nm 以及 462nm。

推測高分子化合物 P9 係饋入原料中以下述比例(莫耳

比)含有下述重複單元者。



<塗佈溶液 A1 之製作>

將高分子化合物 1 以 1.0 重量%之濃度溶解於二甲苯中，然後，將該溶液以孔徑 $0.2 \mu\text{m}$ 之鐵氟龍 (Teflon; 註冊商標) 濾器過濾，製成塗佈溶液 A1。

<塗佈溶液 B 之製作>

將高分子化合物 2 以 0.5 重量%之濃度溶解於二甲苯中，然後，將該溶液以孔徑 $0.2 \mu\text{m}$ 之鐵氟龍 (註冊商標) 濾器過濾，製成塗佈溶液 B。

<塗佈溶液 A2 之製作>

將高分子化合物 1 以 1.0 重量%之濃度溶解於二甲苯中，再使作為富勒烯衍生物之 [6,6]-苯基 C_{61} -丁酸甲酯 (PCBM) (American Dye Source 公司製造之 ADS61BFB) 溶解 (高分子化合物 1 : PCBM = 100 : 0.2 (重量比))，然後，將該溶液以孔徑 $0.2 \mu\text{m}$ 之鐵氟龍 (註冊商標) 濾器過濾，製成塗佈溶液 A2。

<塗佈溶液 A3 之製作>

將高分子化合物 1 以 1.0 重量%之濃度溶解於二甲苯中，再使作為富勒烯衍生物之 [6,6]-苯基 C_{61} -丁酸甲酯

(PCBM)(American Dye Source 公司製造之 ADS61BFB)溶解 (高分子化合物 1 : PCBM=100 : 0.1(重量比))，然後，將該溶液以孔徑 $0.2 \mu\text{m}$ 之鐵氟龍(註冊商標)濾器過濾，製成塗佈溶液 A3。

< 塗佈溶液 A4 之製作 >

將高分子化合物 1 以 1.0 重量%之濃度溶解於二甲苯中，再使作為富勒烯衍生物之 [6,6]-苯基 C_{61} -丁酸甲酯 (PCBM)(American Dye Source 公司製造之 ADS61BFB)溶解 (高分子化合物 1 : PCBM=100 : 0.01(重量比))，然後，將該溶液以孔徑 $0.2 \mu\text{m}$ 之鐵氟龍(註冊商標)濾器過濾，製成塗佈溶液 A4。

< 塗佈溶液 A5 之製作 >

將高分子化合物 P9 以 1.0 重量%之濃度溶解於二甲苯中，然後，將該溶液以孔徑 $0.2 \mu\text{m}$ 之鐵氟龍(註冊商標)濾器過濾，製成塗佈溶液 A5。

< 塗佈溶液 A6 之製作 >

將高分子化合物 P9 以 1.0 重量%之濃度溶解於二甲苯中，再使作為富勒烯衍生物之 [6,6]-苯基 C_{61} -丁酸甲酯 (PCBM)(American Dye Source 公司製造之 ADS61BFB)溶解 (高分子化合物 P9 : PCBM=100 : 0.1(重量比))，然後，將該溶液以孔徑 $0.2 \mu\text{m}$ 之鐵氟龍(註冊商標)濾器過濾，製成塗佈溶液 A6。

(有機 EL 元件之製作、評估)

< 實施例 1 >

在依濺鍍法於表面形成作為陽極之 ITO 膜(膜厚：150nm)的玻璃基板上，將電洞注入層形成用溶液(Plextronics 公司製造；商品名稱：HIL764)進行旋轉塗佈，再將此在大氣中於熱盤上以 170°C 乾燥 15 分鐘，藉此而形成電洞注入層(膜厚：50nm)。接著，於電洞注入層上將塗佈溶液 B 進行旋轉塗佈，在手套箱中，於氮氣環境下以 180°C 進行 60 分鐘之烘烤，藉此而形成電洞輸送層(膜厚：20nm)。進一步於電洞輸送層上將上述塗佈溶液 A2 進行旋轉塗佈而形成發光層。在發光層之形成中，調整該膜厚成為 80nm。

然後，於氮氣環境下以 130°C 之熱盤進行 10 分鐘之烘烤，再將 NaF 以 4nm 之厚度進行蒸鍍，接著，將 Al 以 100nm 之厚度進行蒸鍍而形成陰極。

蒸鍍時之真空度係在 1×10^{-4} Pa 至 9×10^{-3} Pa 之範圍。元件之形狀為 2mm×2mm 之正四方形。將所得元件以初期亮度 5000cd/m² 進行定電流驅動，而進行壽命試驗。測定初期亮度降低至 4000cd/m²(初期亮度之 80%)為止的時間(將此稱為 LT80)。測定亮度為 100cd/m² 時之 EL 的發光色度，亦即測定在色度座標(C. I. E. 1931)上的座標值。將測定結果示於表 1。

<實施例 2>

除了使用塗佈溶液 A3 取代塗佈溶液 A2 之外，以與實施例 1 相同之方法製作有機 EL 元件，測定有機 EL 元件之 LT80 與色度。將測定結果示於表 1。

< 實施例 3 >

除了使用塗佈溶液 A4 取代塗佈溶液 A2 之外，以與實施例 1 相同之方法製作有機 EL 元件，測定有機 EL 元件之 LT80 與色度。將測定結果示於表 1。

< 實施例 4 >

除了使用塗佈溶液 A6 取代塗佈溶液 A2 之外，以與實施例 1 相同之方法製作有機 EL 元件，測定有機 EL 元件之 LT80 與色度。將測定結果示於表 1。

< 比較例 1 >

除了使用塗佈溶液 A1 取代塗佈溶液 A2 之外，以與實施例 1 相同之方法製作有機 EL 元件，測定有機 EL 元件之 LT80 與色度。將測定結果示於表 1。

< 比較例 2 >

除了使用塗佈溶液 A5 取代塗佈溶液 A2 之外，以與實施例 1 相同之方法製作有機 EL 元件，測定有機 EL 元件之 LT80 與色度。將測定結果示於表 1。

發明專利說明書

(本說明書格式、順序，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：99122799 C09K 3/00 (2006.01)

※申請日：99.7.12 ※IPC分類：C09K 3/00 (2006.01)

一、發明名稱：(中文/英文) C09K 3/00 (2006.01)

有機電激發光元件及高分子發光體組成物

ORGANIC ELECTROLUMINANCE ELEMENT AND POLYMER

LUMINESCENT COMPOSITION H01L 51/00 (2006.01)

二、中文發明摘要：

本發明提供一種有機電激發光元件，係具備由陽極及陰極所構成之一對電極、與設置於該電極間之發光層者，該發光層含有：具有選自無取代或經取代之第二基及無取代或經取代之苯并第二基所成組群之1種以上的二基作為重複單元之高分子發光體、與富勒烯及/或富勒烯之衍生物。

三、英文發明摘要：

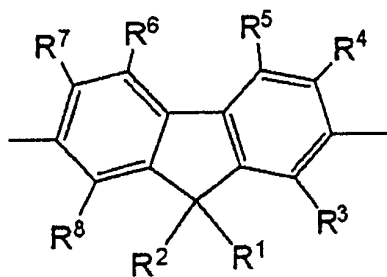
Provided is an organic electroluminescence element having a pair of electrodes including an anode and a cathode, and a luminescence layer provided between the electrodes, the luminescence layer containing a polymer luminescent composition having at least one diyl group selected from a group consisted of non-substituted or substituted fluorine-diyl group and non-substituted or substituted benzofluorine-diyl group as a repeated unit, and fullerene and/or a derivative of fullerene.

四、指定代表圖：本案無圖式

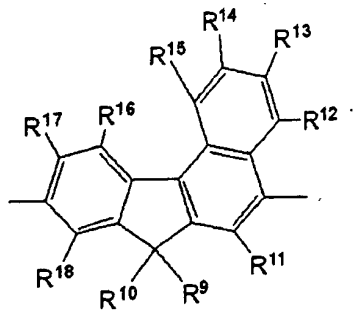
(一)本案指定代表圖為：第 () 圖。

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：

五、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：



(1)



(2)

103年10月7日修正
劃線(圓)標

表 1

	發光層	LT80 (時間)	色度 色度座標(x, y)
實施例 1	高分子化合物 1/PCBM= 100/0.2(重量比例)	12	0.14, 0.19
實施例 2	高分子化合物 1/PCBM= 100/0.1(重量比例)	7	0.14, 0.20
實施例 3	高分子化合物 1/PCBM= 100/0.01(重量比例)	0.75	0.15, 0.21
實施例 4	高分子化合物 P9/PCBM= 100/0.1(重量比例)	3	0.14, 0.14
比較例 1	高分子化合物 1	0.6	0.16, 0.22
比較例 2	高分子化合物 P9	0.4	0.15, 0.17

由表 1 可知，相較於具備僅由高分子發光體所構成之發光層的有機 EL 元件，具備含有高分子發光體(高分子化合物 1)與富勒烯及/或富勒烯衍生物之發光層有機 EL 元件，係即使初期亮度相同，其 LT80 壽命亦顯著地提高。因而認定具備含有本發明之高分子發光體組成物的發光層之有機 EL 元件的元件壽命優異。藉由形成含有具有式(4)所示之取代基的高分子發光體之發光層，可得到色純度高之藍色發光的有機 EL 元件。

[產業上之可利用性]

如依本發明即可實現元件壽命提高之有機 EL 元件。

【圖式簡單說明】 無

【主要元件符號說明】 無

103年10月7日修正頁
劃線

七、申請專利範圍：

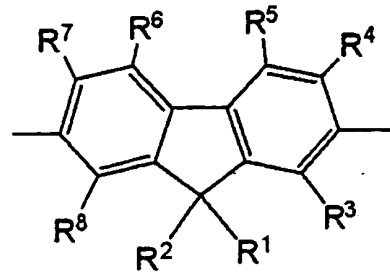
1. 一種有機電激發光元件，係具備由陽極及陰極所構成之一對電極、與設置於該電極間之發光層者，該發光層含有：

具有選自無取代或經取代之第二基及無取代或經取代之苯并第二基所成組群之 1 種以上的二基作為重複單元之高分子發光體、與

富勒烯及/或富勒烯衍生物；

以上述高分子發光體作為 100 重量份時，發光層中之富勒烯及/或富勒烯衍生物的含量為 0.001 至 5 重量份。

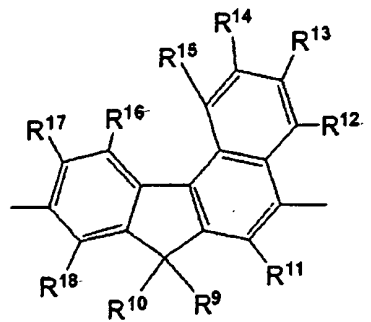
2. 如申請專利範圍第 1 項所述之有機電激發光元件，其中，富勒烯衍生物為甲橋富勒烯(methanofullerene)衍生物、苯基丁酸甲酯衍生物、噻吩基丁酸甲酯衍生物、普拉托(Prato)衍生物、賓格(Bingel)衍生物、二唑啉(diazoline)衍生物、氮雜類富勒烯(azafulleroid)衍生物、酮內醯胺(ketolactam)衍生物、或狄耳士-阿德爾(Diels-Alder)衍生物。
3. 如申請專利範圍第 1 或 2 項所述之有機電激發光元件，其中，無取代或經取代之第二基係式(1)所示之基：



(1)

(式(1)中， R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6 、 R^7 以及 R^8 各自獨立表示氫原子、烷基、烷氧基、芳基或 1 價之芳香族雜環基，該等基中所含的氫原子可經氟原子取代)。

4. 如申請專利範圍第 1 或 2 項所述之有機電激發光元件，其中，無取代或經取代之苯并第二基係下述式(2)所示之基：



(2)

(式(2)中， R^9 、 R^{10} 、 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} 、 R^{15} 、 R^{16} 、 R^{17} 以及 R^{18} 各自獨立表示氫原子、烷基、烷氧基、芳基或 1 價之芳香族雜環基，該等基中所含的氫原子可經氟原子取代)。

5. 如申請專利範圍第 1 或 2 項所述之有機電激發光元件，其中，高分子發光體為共軛系高分子。
6. 如申請專利範圍第 1 或 2 項所述之有機電激發光元件，

其中，以上述高分子發光體作為 100 重量份時，發光層中之富勒烯及/或富勒烯衍生物的含量為 0.01 至 1 重量份。

7. 一種發光裝置，係具備如申請專利範圍第 1 至 6 項中任一項所述之有機電激發光元件者。

8. 一種高分子發光體組成物，係含有：

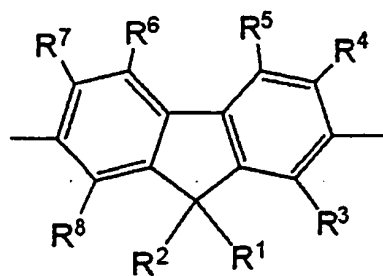
具有選自無取代或經取代之第 2 基及無取代或經取代之苯并第 2 基所成組群之 1 種以上的二基作為重複單元之高分子發光體、與

富勒烯及/或富勒烯衍生物；

以上述高分子發光體作為 100 重量份時，富勒烯及/或富勒烯衍生物的含量為 0.001 至 5 重量份。

9. 如申請專利範圍第 8 項所述之高分子發光體組成物，其中，富勒烯衍生物為甲橋富勒烯衍生物、苯基丁酸甲酯衍生物、噻吩基丁酸甲酯衍生物、普拉托衍生物、賓格衍生物、二唑啉衍生物、氮雜類富勒烯衍生物、酮內醯胺衍生物、或狄耳士-阿德爾衍生物。

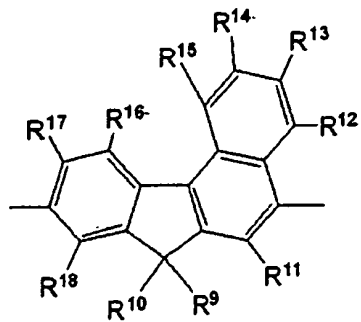
10. 如申請專利範圍第 8 或 9 項所述之高分子發光體組成物，其中，無取代或經取代之第 2 基係式(1)所示之基：



(1)

(式(1)中， R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6 、 R^7 以及 R^8 各自獨立表示氫原子、烷基、烷氧基、芳基或 1 價之芳香族雜環基，該等基中所含的氫原子可經氟原子取代)。

11. 如申請專利範圍第 8 或 9 項所述之高分子發光體組成物，其中，無取代或經取代之苯并萘二基係下述式(2)所示之基：



(2)

(式(2)中， R^9 、 R^{10} 、 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} 、 R^{15} 、 R^{16} 、 R^{17} 以及 R^{18} 各自獨立表示氫原子、烷基、烷氧基、芳基或 1 價之芳香族雜環基，該等基中所含的氫原子可經氟原子取代)。

12. 如申請專利範圍第 8 或 9 項所述之高分子發光體組成物，其中，高分子發光體為共軛系高分子。
13. 如申請專利範圍第 8 或 9 項所述之高分子發光體組成物，其中，以上述高分子發光體作為 100 重量份時，富勒烯及/或富勒烯衍生物的含量為 0.01 至 1 重量份。