

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2005-281563

(P2005-281563A)

(43) 公開日 平成17年10月13日(2005.10.13)

(51) Int.Cl.⁷

C09K 11/06

H05B 33/14

F I

C09K 11/06

H05B 33/14

660

B

テーマコード (参考)

3K007

審査請求 未請求 請求項の数 1 O L (全 10 頁)

(21) 出願番号 特願2004-99053 (P2004-99053)

(22) 出願日 平成16年3月30日 (2004.3.30)

(71) 出願人 000003182

株式会社トクヤマ

山口県周南市御影町1番1号

(72) 発明者 大下 浄治

広島県東広島市西条中央7-9-24

(72) 発明者 九内 淳亮

広島県東広島市西条町郷曾369-72

Fターム(参考) 3K007 AB01 DB03

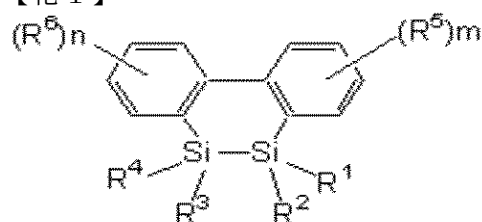
(54) 【発明の名称】 エレクトロルミネッセント材料

(57) 【要約】

【課題】 発光特性に優れたエレクトロルミネッセント材料を提供する。

【解決手段】 1,2-ジメチル-1,2-ジフェニル[1,2-c:2',1'-e]ジベンゾジシラシクロヘキサジエンのような、下記式(1)

【化1】



(1)

(式中、 R^1 乃至 R^6 は、それぞれ独立に、置換若しくは非置換のアルキル基などであり、 m および n は、それぞれ独立に、0～4の整数である。)

で示されるジシラシクロヘキサジエン化合物を有機エレクトロルミネッセント素子用のエレクトロルミネッセント材料として使用する。

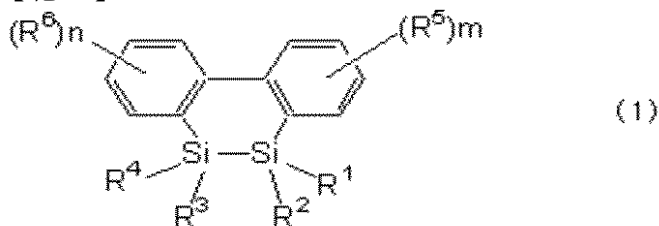
【選択図】 なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

下記式 (1) で示されるジシラシクロヘキサジエン化合物よりなるエレクトロルミネッセント材料。

【化 1】



10

(式中、 R^1 乃至 R^6 は、それぞれ独立に、ハロゲン原子、置換若しくは非置換のアルキル基、置換若しくは非置換のアルコキシ基、置換若しくは非置換のアリール基及び置換若しくは非置換のヘテロアリール基から成る群より選ばれる 1 種の基であり、 m および n は、それぞれ独立に、0～4 の整数である。)

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、ジシラシクロヘキサジエン化合物よりなるエレクトロルミネッセント材料に

20

関する。

【背景技術】

【0002】

有機エレクトロルミネッセンス素子（以下「有機 EL 素子」と称する）は、固体発光型の安価な大面積フルカラー表示素子としての用途が有望視され、現在、盛んに開発が行われている。一般に有機 EL 素子は、発光層及び該層を挟んだ一对の対向電極から構成されている。発光は、両電極間に電界が印加されると、陰極から電子が注入され、陽極から正孔が注入される。更に、この電子と正孔が発光層において再結合し、エネルギー準位が伝導帯から価電子帯に戻る際にエネルギーを光として放出する現象である。

【0003】

30

低電圧駆動、高効率、高輝度の有機 EL 素子を実現する手法として、タング (Tang) らにより、陽極に正孔輸送性化合物、発光性化合物、電子輸送性化合物をこの順に積層した多層構造を有する素子が提案されている。この中で、電子輸送性化合物は、陰極から電子を注入させやすくする機能と、大きな電子ドリフト移動度により電子を容易に輸送し、また小さい正孔ドリフト移動度により正孔をブロックして、発光層での再結合確率を増やす機能を有している。このことから、低駆動電圧、高輝度、高発光効率の有機 EL 素子を得るためには、電子ドリフト移動度の高い電子輸送性化合物が望まれている。現在ドリフト移動度の高い正孔輸送性化合物としては、トリス (8-キノリノール) アルミニウム (通称名: Alq3) 等が知られているが、現在まで、いずれも十分な特性を示す化合物は見

40

【0004】

一方、エレクトロルミネッセント材料として、最近低分子ケイ素系化合物が注目されている。本系統の化合物は溶解性が良好であるため、合成および単離精製が容易である。さらに Alq3 とは異なり、真空蒸着法以外で例えばスピンコート法による成膜も可能である等の優れた特徴を有する。しかしながら、例えばジシラシクロヘキサジエン化合物 (非特許文献 1) については、電子輸送能に問題があり、実用レベルには至っていない。このため、発光特性の改良が求められていた。

【0005】

【非特許文献 1】 Y. Nakadaira ら, J. Organomet. Chem., 47 (1973) 61.

【発明の開示】

50

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

本発明の目的は、優れた発光特性を与えるエレクトロルミネッセント材料、特に発光特性に優れた材料を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0007】

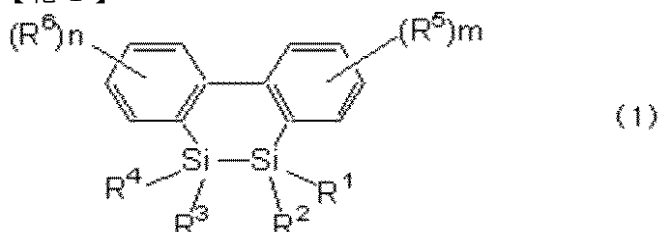
本発明者らは上記の課題を解決するために鋭意検討を進めた結果、低分子ケイ素系化合物の中でも、特定の構造を有するジシラシクロヘキサジエン化合物が、高発光特性を与えるエレクトロルミネッセント材料であることを見出し、本発明を提供するに至った。

【0008】

即ち本発明は、下記式(1)

【0009】

【化1】



10

20

【0010】

(式中、 R^1 乃至 R^6 は、それぞれ独立に、ハロゲン原子、置換若しくは非置換のアルキル基、置換若しくは非置換のアルコキシ基、置換若しくは非置換のアリール基及び置換若しくは非置換のヘテロアリール基から成る群より選ばれる1種の基であり、 m および n は、それぞれ独立に、0～4の整数である。)

で示されるジシラシクロヘキサジエン化合物よりなるエレクトロルミネッセント材料である。

【発明の効果】

【0011】

本発明のジシラシクロヘキサジエン化合物からなるエレクトロルミネッセント材料は、特に電子輸送材料として用いた時に、高発光特性を示すため、有機EL素子を構成するエレクトロルミネッセント材料として極めて有用である。

30

【発明を実施するための最良の形態】

【0012】

本発明で用いられるジシラシクロヘキサジエン化合物は、前記式(1)で示される。式(1)中、 R^1 乃至 R^6 は、それぞれ独立に、ハロゲン原子、置換若しくは非置換のアルキル基、置換若しくは非置換のアルコキシ基、置換若しくは非置換のアリール基、置換若しくは非置換のヘテロアリール基から成る群より選ばれる1種の基であり、 m および n は、それぞれ独立に、0～4の整数である。

【0013】

R^1 乃至 R^6 がハロゲン原子である場合には、フッ素原子、クロル原子、臭素原子等のハロゲン原子を用いることが出来、特にフッ素原子が好ましい。

40

【0014】

R^1 乃至 R^6 が置換若しくは非置換のアルキル基である場合における当該アルキル基は特に制限されないが、その炭素数は1～20であるのが好適である。置換基としてはハロゲン原子、水酸基、アルコキシ基、アミノ基、置換アミノ基、シアノ基等を挙げることができる。置換若しくは非置換のアルキル基として好適な基を例示すればメチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、オクチル基、ステアリル基、トリフルオロメチル基、3-クロロプロピル基、2-ヒドロキシブチル基、2-エトキシエチル基、2-(N,N-ジメチル)エチル基等を挙げることができる。

50

【0015】

R¹ 乃至 R⁶ が置換若しくは非置換のアルコキシ基である場合における当該置換若しくは非置換のアルコキシ基としては炭素数 1～20 のアルコキシ基及び該アルコキシ基の水素原子の少なくとも一つ、好適には 1～2 個がハロゲン原子、ヒドロキシル基、アルコキシ基等の置換基で置換されたものが好適である。好適な置換若しくは非置換のアルコキシ基としてはメトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、オクチルオキシ基、イソオクチルオキシ基、ステアシルオキシ基、3-クロロプロピルオキシ基、4-ヒドロキシブチルオキシ基、2-エトキシエトキシ基、6-プロピルオキシヘキシルオキシ基等を挙げることができる。

【0016】

R¹ 乃至 R⁶ が置換若しくは非置換のアリール基である場合における当該置換若しくは非置換のアリール基の種類は特に制限されないがその炭素数は 6～20 であるのが好適である。置換基としてはハロゲン原子、水酸基、アルキル基、アルコキシ基、アミノ基、置換アミノ基、シアノ基等が挙げられる。置換若しくは非置換のアリール基として好適な基としてはフェニル基、p-メチルフェニル基、ナフチル基、アンスリル基、フェナンスリル基、キシリル基、トリル基、p-クロロフェニル、2-ヒドロキシナフチル基、3-エトキシアンスリル基、3-(N, N-ジエチル)-4-エトキシフェニル基、4-(N, N-ジメチルアミノ)フェニル基、4-(N, N-ジエチルアミノ)ナフチル基、3-(N, N-ジフェニルアミノ)フェニル基、3-(N, N-フェニル-ナフチルアミノ)アンスリル基、3-シアノフェニル基、3-トリフルオロメチルフェニル基等を挙げることができる。アリール基の中で、好適な基としては、フェニル基、p-メチルフェニル基、ナフチル基、3-(N, N-ジエチル)-4-エトキシフェニル基、4-(N, N-ジメチルアミノ)フェニル基、4-(N, N-ジエチルアミノ)ナフチル基、3-(N, N-ジフェニルアミノ)フェニル基、3-(N, N-フェニル-ナフチルアミノ)アンスリル基等を挙げることができ、特に好適な基としてフェニル基、p-メチルフェニル基を挙げることができる。

10

20

【0017】

R¹ 乃至 R⁶ におけるヘテロアリール基の種類は特に制限はないが、ヘテロアリール基としては、オキサゾール環、イミダゾール環、ピリジン環、チオフェン環、ピラゾール環、ベンゾイミダゾール環、ベンゾピラゾール環、カルバゾール環、ベンゾチオフェン環、ベンゾフラン環、ジベンゾチオフェン環、ジベンゾフラン環等から誘導される 1 価の基を挙げることができる。これらヘテロアリール基は置換基を有していてもよく、当該置換基としてはハロゲン原子、水酸基、アルキル基、アルコキシ基、アミノ基、置換アミノ基、シアノ基、ハロアルキル基等が挙げられる。

30

【0018】

前記 R¹ 乃至 R⁴ において、特に化合物の安定性、発光特性などの点が優れていることから、アルキル基、アリール基が好ましい。

【0019】

前記 R¹、R² の組合せにおいて、特に化合物の安定性および合成のしやすさなどの点が優れていることから、いずれかの基がアルキル基であり、他方の基がアリール基であることが好ましい。

40

【0020】

前記 R³、R⁴ の組合せにおいて、特に化合物の安定性および合成のしやすさなどの点が優れていることから、いずれかの基がアルキル基であり、他方の基がアリール基であることが好ましい。

【0021】

前記 R⁵ 乃至 R⁶ において、特に化合物の安定性、発光特性などの点が優れていることから、フッ素原子、トリフルオロメチル基、フェニル基、ピリジル基が好ましい。

【0022】

前記式(1)中、mおよびnにおいて、発光特性および合成のしやすさなどの点から、

50

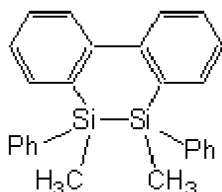
0～2の整数であることが好ましく、特に0～1であることが好ましい。

【0023】

前記式(1)で示される化合物の中で、好適な化合物を以下に示す。

【0024】

【化2】



10

【0025】

本発明で用いられるジシラシクロヘキサジエン化合物は、一般に常温常圧下で無色又は淡黄色の固体または液状物として存在し、その構造はプロトン (^1H)、炭素 (^{13}C)、ケイ素 (^{29}Si) 等の各種核磁気共鳴スペクトル (NMR)、分子量測定 (MASS)、元素分析、融点等の分析手法によって確認することができる。

【0026】

本発明で用いられるジシラシクロヘキサジエン化合物を得るための製造方法は特に限定されるものではなく、如何なる合成方法によって得てもよく、例えば次のような方法により好適に製造することができる。

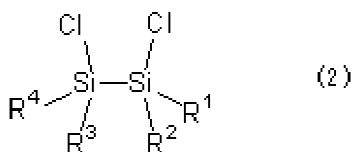
20

【0027】

即ち、テトラヒドロフラン等の有機溶媒中、下記式(2)

【0028】

【化3】



(2)

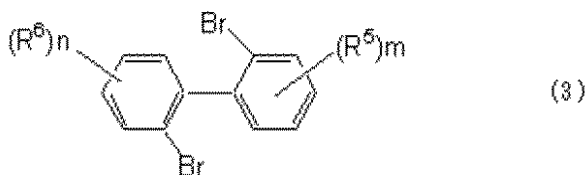
【0029】

{式中、 R^1 乃至 R^4 は前記式(1)におけるものと同義である。}
で示される化合物と、2当量のマグネシウム金属との共存下、下記式(3)

30

【0030】

【化4】



(3)

【0031】

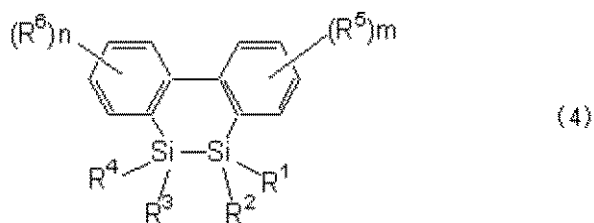
{式中、 R^5 及び R^6 は前記式(1)におけるものと同義であり、mおよびnは前記式(1)におけるものと同義である。}

40

で示される化合物を加え反応させることにより、下記式(4)

【0032】

【化 5】



【0033】

{式中の各基は上記(3)および(4)における夫々対応する基と同義である。}

10

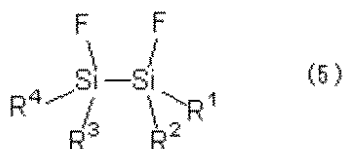
で示される本発明で用いられる化合物を得ることが出来る(A法)。

【0034】

また、テトラヒドロフラン等の有機溶媒中、前記式(3)で示される化合物に、2当量のn-ブチルリチウムとのアルキルリチウム試薬を加えリチオ化した後、下記式(5)

【0035】

【化 6】



20

【0036】

{式中、R¹乃至R⁴は前記式(1)におけるものと同義である。}

で示される化合物を加え反応させることにより、前記式(4)で示される本発明で用いられる化合物を得ることが出来る(B法)。

【0037】

これらの方法のうち、特に反応収率が高いことから、金属マグネシウムを用いる方法(A法)が特に優れている。

【0038】

このようにして得られたジシラシクロヘキサジエン化合物は、シリカゲルカラム精製、再結晶、再沈殿等の処理を行うことによって、単離精製することができる。

30

【0039】

本発明のジシラシクロヘキサジエン化合物からなるエレクトロルミネッセント材料は、優れた発光特性を示すという特徴を有し、特に電子輸送性材料として好適に使用でき、本発明のエレクトロルミネッセント材料を電子輸送性材料として用いて有機EL素子を作成することができる。本発明のエレクトロルミネッセント材料を電子輸送性材料として用いた有機EL素子の構造については、少なくとも一方が透明または半透明である一対の電極間に、本発明の電子輸送性材料が発光層もしくは電荷輸送層と組み合わせられて形成されておれば特に制限されず、公知の構造を採用することができる。例えば、陽極上に正孔輸送体を含む正孔輸送層を設けその上に発光層を、そしてその上に本発明の電子輸送性材料を積層したものを挙げることができる。

40

【0040】

また、発光層や電荷輸送層は1層であってもよく、また、複数の層を組み合わせることもできる。さらに、本発明の電子輸送性材料の中に発光体を混合して使用することもできる。また、本発明の電子輸送性材料を発光性電子輸送性材料として使用しても良い。

【0041】

本発明の電子輸送性材料と共に使用できる公知の発光体としては特に限定されないが、例えば、ナフタレン誘導体、アントラセンもしくはその誘導体、ペリレンもしくはその誘導体、ポリメチン系、キサントン系、クマリン系、シアニン系などの色素類、8-ヒドロキシキノリンもしくはその誘導体の金属錯体、芳香族アミン、テトラフェニルシクロペン

50

タジエンもしくはその誘導体、またはテトラフェニルブタジエンもしくはその誘導体などを用いることができる。具体的には、例えば、特開昭57-51781号公報、特開昭59-194393号公報に記載されているもの等、公知のものが使用可能である。

【0042】

また、上記した本発明の電子輸送性材料と共に使用できる公知の電荷輸送体を例示すれば、正孔輸送体としてはピラゾリン誘導体、アリールアミン誘導体、スチルベン誘導体、トリフェニルジアミン誘導体などを挙げることができ、電子輸送体としてはオキサジアゾール誘導体、アントラキノジメタンもしくはその誘導体、テトラシアノアンスラキノジメタンもしくはその誘導体、フルオレノン誘導体、ジフェノキノン誘導体、または8-ヒドロキシキノリンもしくはその誘導体の金属錯体などを挙げることができる。

10

【0043】

これらの化合物の具体例は、特開昭63-70257号公報、同63-175860号公報、特開平2-135359号公報、同2-135361号公報、同2-209988号公報、同3-37992号公報、同3-152184号公報等に記載されている。

【0044】

上記した電荷輸送体の中でも正孔輸送体としては、トリフェニルジアミン誘導体、電子輸送体としてはオキサジアゾール誘導体、または8-ヒドロキシキノリンもしくはその誘導体の金属錯体が好ましく、特に、正孔輸送体としては、4,4'-ビス(N(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ)ビフェニルが、電子輸送体としては2-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール、ベンゾキノン、アントラキノン、トリス(8-キノリノール)アルミニウムが好ましい。

20

【0045】

これらのうち、正孔輸送体と電子輸送体のいずれか一方、または両方を同時に使用することができる。これらの各材料は一種を用いてもよいし、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

【0046】

また、本発明の電子輸送性材料を発光性電子輸送性化合物として使用する場合、電荷輸送体を発光性電子輸送層に混合して使用しても良い。その場合、電荷輸送体の使用量は使用する化合物の種類などによっても異なるので、十分な成膜性と発光特性を阻害しない範囲でそれらを考慮して適宜決めればよい。通常、発光性電子輸送性材料に対して1~40重量%が好ましく、さらに好ましくは2~30重量%である。

30

【0047】

次に、本発明の電子輸送性材料を用いた有機EL素子の代表的な作製方法について述べる。まずは、ガラス、透明プラスチック等の透明基板の上に透明または半透明な金属酸化物あるいは金属薄膜を用いて陽極を形成する。その材料としては、導電性の金属酸化物膜、半透明の金属薄膜等が用いられる。具体的にはインジウム・スズ・オキサイド(ITO)、酸化スズ等からなる導電性ガラスを用いて作成された膜(NESAなど)、Au、Pt、Ag、Cu等が用いられる。作製方法としては真空蒸着法、スパッタリング法、メッキ法などが用いられる。

【0048】

次にこの陽極上に、正孔輸送性材料を含む正孔輸送層を形成する。形成方法としては、これら材料の真空蒸着塗布法または熔融液、溶液または混合液を使用するスピンコーティング法、キャスト法、ディッピング法、バーコード法、ロールコート法、グラビアコート法、フレキソ印刷法、スプレーコート法、インクジェット印刷法などの塗布法により成膜することができる。

40

【0049】

正孔輸送層の膜厚としては、好ましくは1nm~1μm、さらに好ましくは2~500nmである。電流密度を上げて発光効率を上げるためには5~200nmの範囲が好ましい。なお、塗布法により薄膜化した場合には、好ましくは溶媒を除去するため、減圧下または不活性雰囲気下、好ましくは30~300℃、さらに好ましくは60~200℃の温

50

度で加熱乾燥することが望ましい。

【0050】

また、電荷注入効率を向上させるためにさらに正孔注入層を陽極と正孔輸送層の間に設ける場合には、陽極上に上述と同様の製膜方法で形成するかあるいは公知のその他の方法で形成し、その後、正孔輸送性材料を上述した製膜方法で形成し、その上に発光層および電荷輸送層を上述と同様の製膜方法で形成するかあるいはその他公知の方法で形成する。

【0051】

次いで、発光体からなる発光層を形成する。発光体の成膜方法としては特に限定されないが、粉末状態からの真空蒸着法、または溶液に溶かした後のスピンコーティング法、キャスト法、ディッピング法、バーコード法、ロールコート法などの塗布法を使用できる。

10

【0052】

発光層の厚さについては、少なくともピンホールが発生しないような厚さが必要であるが、あまり厚いと、素子の抵抗が増加し、高い駆動電圧が必要となり好ましくない。したがって、層の厚さは、好ましくは1 nm～1 μm、さらに好ましくは2 nm～500 nm、特に好ましくは5 nm～200 nmである。

【0053】

その上に、本発明の電子輸送材料からなる電子輸送層を形成する。形成方法としては、これら材料の真空蒸着塗布法または熔融液、溶液または混合液を使用するスピンコーティング法、キャスト法、ディッピング法、バーコード法、ロールコート法、グラビアコート法、フレキソ印刷法、スプレーコート法、インクジェット印刷法などの塗布法により成膜することができる。

20

【0054】

正孔輸送層の膜厚としては、好ましくは1 nm～1 μm、さらに好ましくは2～500 nmである。電流密度を上げて発光効率を上げるためには5～200 nmの範囲が好ましい。なお、塗布法により薄膜化した場合には、好ましくは溶媒を除去するため、減圧下または不活性雰囲気下、好ましくは30～300℃、さらに好ましくは60～200℃の温度で加熱乾燥することが望ましい。

【0055】

電子輸送層の厚さについては、少なくともピンホールが発生しないような厚さが必要であるが、あまり厚いと、素子の抵抗が増加し、高い駆動電圧が必要となり好ましくない。したがって、層の厚さは、好ましくは1 nm～1 μm、さらに好ましくは2 nm～500 nm、特に好ましくは5 nm～200 nmである。

30

【0056】

次いで、陰極を設ける。この電極は電子注入陰極となる。その材料としては、特に限定されないが、イオン化エネルギーの小さい材料が好ましい。例えば、Al、In、Mg、Ca、Li、Mg-Al合金、In-Al合金、Mg-In合金、Mg-Al合金、Mg-Li合金、Al-Li合金、Al-Ca合金、グラファイト薄膜等が用いられる。陰極の作製方法としては真空蒸着法、スパッタリング法等が用いられる。

【0057】

40

また、本材料は単層EL材料、正孔輸送材料としても、用いることが可能である。

【0058】

以下に実施例を記載して本発明をさらに具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

【0059】

製造例1

30 mlの3つ口フラスコに還流冷却器、滴下漏斗および攪拌器を備え、マグネシウム 0.17 g (6.9 mmol)を入れた。ポンプで装置内を減圧にし、ヒートガンでマグネシウムを乾燥させた。次に装置内を窒素置換し、THFを5 ml加え、THFに溶かした1,2-ジクロロ-1,2-ジメチル-1,2-ジフェニルジシラン 1.0 g (3.2 mmol)を加えた。さらに、THF 2 mlに

50

2,2'-ジブロモビフェニル 1.0 g (3.2 mmol)を溶かして室温で滴下した。滴下終了後、0.5 h 還流させた。反応終了後、加水分解し、エーテルで有機層を抽出した後、無水硫酸マグネシウムで乾燥後、エバポレーターエーテルを除去した。これをヘキサン/酢酸エチル(10:1)を展開溶媒とするシリカゲルカラムで分離後、リサイクル型GPCカラムで精製し、白色固体を得た。得られた化合物は、下記分析結果より、1,2-ジメチル-1,2-ジフェニル[1,2-c:2',1'-e]ジベンゾジシラシクロヘキサジエン(化合物 1、収率 51 %)であることを確認した。尚、化合物 1 は、シス体とトランス体との混合物であった。

【0060】

化合物 1 同定データ

・ mp 84.5~89.0 °C; MS m/z 392 (M^+); ^1H NMR (δ in CDCl_3); 0.49 (s, 6H, CH_3), 7.07-7.28 (m, 14H, phenyl ring protons), 7.35(t, 2H, $J = 7.85$ Hz phenyl ring protons), 7.43(d, 2H, $J = 7.85$ Hz phenyl ring protons). Anal. Calcd for $\text{C}_{26}\text{H}_{24}\text{Si}_3$: C, 79.53; H, 6.16. Found: C, 77.70; H, 6.29.

【0061】

製造例 2

還流冷却器、滴下漏斗を備えた50 mlの2口フラスコに、2,2'-ジブロモビフェニル 1.1 g (3.6 mmol)を入れ、エーテル10 ml に溶解させた。これを低温恒温槽で - 80 °C に冷却し、n-ブチルリチウム n-ヘキサン溶液(1.58 M溶液) 4.6 ml (7.2 mmol)をゆっくり滴下し、30分攪拌した。徐々に室温に戻した後、15分攪拌した。再び低温恒温槽で 40°C に冷却し、エーテル10 ml に溶かした1,2-ジフルオロ-1,2-ジメチル-1,2-ジフェニルジシラン 1.0 g (3.6mmol) をゆっくり滴下後、30分程攪拌し、徐々に室温に戻してさらに1日攪拌した。反応終了後、加水分解し、エーテルで有機層を抽出した後、無水硫酸マグネシウムで乾燥後、エバポレーターでエーテルを留去した。これをヘキサン/酢酸エチル(8:1)を展開溶媒とするシリカゲルカラムで分離後、リサイクル型GPCカラムで単離することにより、白色固体を得た。得られた化合物は、分析の結果、製造例 1 と同様に、シス体とトランス体との混合物である1,2-ジメチル-1,2-ジフェニル[1,2-c:2',1'-e]ジベンゾジシラシクロヘキサジエン(化合物 1、収率 19 %)であることを確認した。

【0062】

製造例 3

還流冷却器を備えた50 mlのナスフラスコにリチウム 0.098 g (0.14 mol)を入れて、エーテル15 mlを注いだ。これにジフェニルアセチレン 2.5 g (0.014 mol)を加えて36時間攪拌した。反応終了後、エーテルに溶解した1,2-ジフルオロ-1,2-ジメチル-1,2-ジフェニルジシラン5.1 g (0.018mol)を徐々に滴下し、5時間還流させた。反応終了後、加水分解し、有機層をエーテルで抽出し、塩化カルシウムで乾燥後、エバポレーターにより溶媒を留去した。反応混合物をヘキサン/酢酸エチル(20:1)を展開溶媒とするシリカゲルカラムにより分離し、エタノールで再結晶をさせ、リサイクル型GPCカラムにより単離を行い、黄色の固体を得た。下記分析結果より、1,2-ジメチル-1,2-ジフェニルテトラフェニル-1,2-ジシラシクロヘキサジエン(化合物 2)であることを確認した(収率 6 %)。尚、化合物 2 は、シス体とトランス体との混合物であった。

【0063】

化合物 2 同定データ

・ MS m/z 596 (M^+); ^1H NMR (δ in CDCl_3); -0.0074 (s, 6H, SiMe), 0.53 (s, 6H, SiMe), 6.62 (d, 4H, $J = 6.93$ Hz, phenyl ring protons), 6.69-7.17 (m, 16H, phenyl ring protons), 7.18-7.37 (m, 4H, phenyl ring protons), 7.40-7.51 (m, 8H, phenyl ring protons), 7.94-7.97 (m, 4H, phenyl ring protons). Anal. Calcd for $\text{C}_{42}\text{H}_{36}\text{Si}_2$: C, 84.51, H, 6.08. Found: C, 82.60; H, 6.08.

【0064】

実施例 1

<EL 発光特性>

ITO陽極基盤上にN,N'-ビフェニル-N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-1,1'-ビフェニル-

4,4'-ジアミン (TPD) を 40 nm、発光層としてトリス (8-キノリノール) アルミニウム (Alq3) を 50 nm、電子輸送層として化合物 1 を 20nm で順に真空蒸着した。さらに、陰極としてマグネシウム-銀 (10:1) 合金を 200 nm で真空蒸着した。蒸着のときの真空度は、すべて 2×10^{-5} Torr 以下であった。この素子に電圧を印可したところ、6 V より電流が流れ始め発光が見られた。この素子に 8 V の電圧を印加し、分光光度計 (瞬間マルチチャンネルフォトディテクター MCPD1000 : 大塚電子製) を用いて蛍光発光を測定したところ、蛍光の最大発光波長は、540 nm であった。また、13 V における発光強度は 22000 cd/m^2 であった。また、化合物 1 を加圧成型したペレットの Tg は、22.6 °C であった。

【0065】

10

比較例 1

化合物 1 の代わりに化合物 2 を蒸着したこと以外は、実施例 1 と同様にして素子を作成した。この素子に電圧を印可したところ、15 V より電流が流れ始め発光が見られた。この素子に 18 V の電圧を印加し、分光光度計 (瞬間マルチチャンネルフォトディテクター MCPD1000 : 大塚電子製) を用いて蛍光発光を測定したところ、蛍光の最大発光波長は、540 nm であった。また、21 V における発光強度は 700 cd/m^2 であった。

【0066】

比較例 2

化合物 1 を蒸着しなかったこと以外は、実施例 1 と同様にして素子を作成した。この素子に電圧を印可したところ、7 V より電流が流れ始め発光が見られた。この素子に電圧を印可したところ、この素子に 9 V の電圧を印加し、分光光度計 (瞬間マルチチャンネルフォトディテクター MCPD1000 : 大塚電子製) を用いて蛍光発光を測定したところ、蛍光の最大発光波長は、540 nm であった。また、14 V における発光強度は 18000 cd/m^2 であった。

20

【産業上の利用可能性】

【0067】

本発明のジシラシクロヘキサジエン化合物よりなるエレクトロルミネッセント材料は、大面積フルカラー表示素子としての用途が有望視されている有機エレクトロルミネッセンス素子 (有機 EL 素子) として利用できる。

30

专利名称(译)	电致发光材料		
公开(公告)号	JP2005281563A	公开(公告)日	2005-10-13
申请号	JP2004099053	申请日	2004-03-30
申请(专利权)人(译)	德山公司		
[标]发明人	大下 浄治 九内 淳堯		
发明人	大下 浄治 九内 淳堯		
IPC分类号	H01L51/50 C09K11/06 H05B33/14		
FI分类号	C09K11/06.660 H05B33/14.B		
F-TERM分类号	3K007/AB01 3K007/DB03 3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC01 3K107/DD59 3K107/DD78		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

要解决的问题：提供发光特性优异的电致发光材料。ZSOLUTION：用于有机电致发光器件的电致发光材料使用由式（1）表示的二硅杂环己二烯化合物，例如1,2-二甲基-1,2-二苯基[1,2-c：2''，1''-e]二苯并二硅杂二环己二烯。在该式中，R1-R6各自独立地为取代或未取代的烷基等，并且m和n各自独立地为0的整数-4。Z

(57)【要約】

【課題】 発光特性に優れたエレ

【解決手段】 1, 2- ジメチル- 1, 2 キサジエンのような、下記式（1）

【化1】

