



(19)  
Bundesrepublik Deutschland  
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 603 11 756 T2 2007.06.14**

(12) **Übersetzung der europäischen Patentschrift**

(97) **EP 1 434 286 B1**

(21) Deutsches Aktenzeichen: **603 11 756.2**

(96) Europäisches Aktenzeichen: **03 027 185.2**

(96) Europäischer Anmeldetag: **27.11.2003**

(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: **30.06.2004**

(97) Veröffentlichungstag

der Patenterteilung beim EPA: **14.02.2007**

(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: **14.06.2007**

(51) Int Cl.<sup>8</sup>: **H01L 51/30 (2006.01)**

**C09K 11/06 (2006.01)**

**H05B 33/14 (2006.01)**

(30) Unionspriorität:

**2002076208 03.12.2002 KR**

(73) Patentinhaber:

**LG Electronics Inc., Seoul, KR**

(74) Vertreter:

**Meissner, Bolte & Partner GbR, 86199 Augsburg**

(84) Benannte Vertragsstaaten:

**AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LI, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR**

(72) Erfinder:

**Kim, Ki-Dong, Daeduk-gu 306-775 Daejeon, KR;**

**Kim, Sang-Dae, Suseong-gu 706-781 Daegu, KR;**

**Han, Yoo-Soo, Chilgok-gun 718-840**

**Kyongsangbuk-do, KR; Tak, Yoon-Heung,**

**Gumi-shi 730-765 Kyongsangbuk-do, KR; Kim,**

**Dong-Uk, Nam-gu 705-817 Daegu, KR; Kim,**

**Tae-Jeong, Buk-gu 702-842 Daegu, KR; Yoon,**

**Ung-Chan, Kumjung-gu 609-390 Busan, KR; Kim,**

**Sung-Hoon Dpt. Dyeing & Finishing, Daegu,**

**702-701, KR; Moon, Electronic Material, Hee-Wan**

**OLED Rsrch Team, Yongin-shi 449-912**

**Kyeonggi-do, KR**

(54) Bezeichnung: **Phenyl pyridine-iridium Metal-Komplexverbindungen für organische elektroluminisierende Vorrichtung, Verfahren zur Herstellung der Verbindungen und organische elektroluminisierende Vorrichtung die diese Verbindungen verwendet**

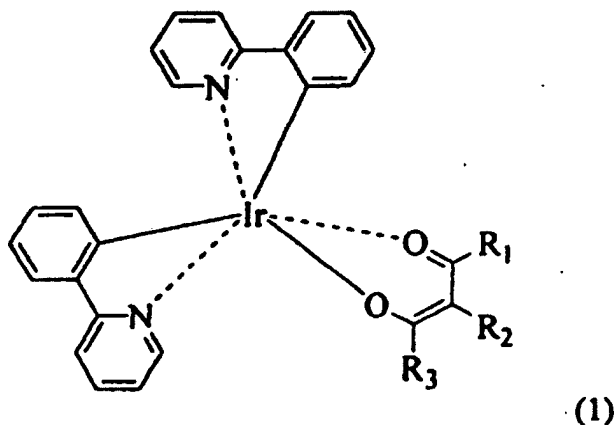
Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99 (1) Europäisches Patentübereinkommen).

Die Übersetzung ist gemäß Artikel II § 3 Abs. 1 IntPatÜG 1991 vom Patentinhaber eingereicht worden. Sie wurde vom Deutschen Patent- und Markenamt inhaltlich nicht geprüft.

**Beschreibung**

## Gebiet der Erfindung

**[0001]** Die vorliegende Erfindung betrifft Lumineszenzmaterialien für eine organische Elektrolumineszenz-Vorrichtung (OELD), insbesondere Phenylpyridin-Iridium-Metallkomplex-Verbindungen, welche durch die folgende Formel (1) dargestellt sind, und ein Herstellungsverfahren dafür:



wobei  $R_1$ ,  $R_2$ , und  $R_3$  je wie unten definiert sind.

**[0002]** Außerdem betrifft die vorliegende Erfindung eine organische Elektrolumineszenz-Vorrichtung, welche die Lumineszenzmaterialien gemäß der vorliegenden Erfindung verwendet, und welche Vorrichtung die Lumineszenzeffizienz stark verbessern und die Betriebslebensdauer der Vorrichtung verlängern kann.

## Hintergrund der Erfindung

**[0003]** Das Gebiet der Displayvorrichtungen ist sehr wichtig für die Informations- und Kommunikationsindustrie. In letzter Zeit wurde eine fortgeschrittenere Leistung in diesem Bereich verlangt entsprechend der Entwicklung der Informations- und Kommunikationstechnologie. Displays können in lumineszierende und nicht lumineszierende Arten eingeteilt werden. Der Lumineszenztyp eines Displays weist Kathodenstrahlröhren (CRT), Elektrolumineszenzdisplays (ELD), Licht emittierende Dioden (LED), Plasma Display Panels (PDP), etc. auf. Der nicht lumineszierende Displaytyp weist Flüssigkristalldisplays (LCD) etc. auf.

**[0004]** Die lumineszierenden und nicht lumineszierenden Displaytypen haben solche Basiseigenschaften wie Betriebsspannung, Stromverbrauch, Helligkeit, Kontrast, Ansprechgeschwindigkeit, Lebensdauer, etc. LCDs, welche bis jetzt weit verbreitet waren, haben jedoch bei den obigen Basiseigenschaften einige Probleme bei der Ansprechgeschwindigkeit, dem Kontrast und der Sichtabhängigkeit. Daher wird angenommen, dass LED verwendende Displays den Platz der nächsten Generation der Displayvorrichtung einnehmen werden durch Lösen der obigen LCD-Probleme und durch Liefern so vieler Vorteile, wie schneller Ansprechgeschwindigkeit, keinen Bedarf an Hintergrundlicht aufgrund von Selbstemission und einer ausgezeichneten Helligkeit.

**[0005]** LEDs werden jedoch hauptsächlich mit einer Kristallform von anorganischem Material verwendet und sind so schwierig bei einer Elektrolumineszenzvorrichtung mit großen Abmessungen anzuwenden. Außerdem braucht die Elektrolumineszenzvorrichtung, welche anorganisches Material verwendet, mehr als 200 V Betriebsspannung und ist sehr teuer. Eastman Kodak berichtete jedoch 1987, dass die Gesellschaft eine Vorrichtung aus einem Material mit einer  $\pi$ -konjugierten Struktur, wie z.B. Aluminiumoxid-Chinin (alumina quinine) hergestellt hatte, und daraufhin wurde das Studium einer Elektrolumineszenz-Vorrichtung, welche organisches Material verwendet, aktiver.

**[0006]** Die Elektrolumineszenzvorrichtungen (EL-Vorrichtung im folgenden) können in anorganische EL-Vorrichtungen und in organische EL-Vorrichtungen eingeteilt werden, abhängig davon, welches Material verwendet wird, um die Emissionsschicht (Emitterschicht) zu bilden.

**[0007]** Die organische EL-Vorrichtung ist ein selbst emittierender Vorrichtungstyp, der eine fluoreszierende organische Verbindung elektrisch anregt, ist der anorganischen EL-Vorrichtung in der Helligkeit, der Betriebsspannung und der Ansprechgeschwindigkeit überlegen und kann auch mehrfache Farben emittieren.

**[0008]** Außerdem ist die organische EL-Vorrichtung eine Lumineszenzvorrichtung zur Emission bei Niederspannungsstrom und hat überlegene Eigenschaften, wie z.B. verstärkte Helligkeit, hohe Ansprechgeschwindigkeit, einen weiten Betrachtungswinkel, Flächenlumineszenz, schlanke Bauform und Mehrfarbenlumineszenz.

**[0009]** Daher wird erwartet, dass die organische EL-Vorrichtung aufgrund solch überlegener Eigenschaften, die nicht bei anderen Displays gefunden werden können, bei einem Vollfarben-Flachpanel-Display anwendbar ist.

**[0010]** C.W. Tang et al berichteten von der ersten praktischen Vorrichtungsausführung der organischen EL-Vorrichtung in Applied Physics Letters, Band 51 (12), Seiten 913–915 (1987). Sie entwickelten eine dünne Folie (eine Lochtransportschicht) laminiertes Struktur, welche aus Diamin-Analogen als organische Schicht gebildet wurde, und einer dünnen Folie (eine Elektronentransportschicht), die aus Tris(8-chinolinolat)aluminium (Alq<sub>3</sub>, unten) gebildet wurde. Die laminierte Struktur kann die Elektronen- und Loch-Injektionssperre von beiden Elektroden auf die organische Schicht absenken und kann auch die Rekombinationswahrscheinlichkeit von Elektron und Loch von der inneren organischen Schicht verbessern.

**[0011]** Später entwickelte C. Adachi et al eine organische EL-Vorrichtung mit einer organischen Lumineszenzschicht mit einer dreifach laminierten Struktur aus Lochtransportschicht, Emissionsschicht und Elektronentransportschicht [Japanese Journal of Applied Physics, Band 27 (2), Seiten L269–L271 (1988)] und eine zweifach laminierte Struktur aus Loch transportierbarer Emissionsschicht und Elektronentransportschicht [Applied Physics Letter, Band 55 (15), Seiten 1489–1491 (1989)] und zeigte, dass die Optimierung der Vorrichtungseigenschaften erreicht werden kann durch Konstruktion einer Mehrschichtenstruktur, die für Materialien und Kombinationen davon geeignet ist.

**[0012]** Die organische EL weist eine erste Elektrode (Anode), eine zweite Elektrode (Kathode) und organische Lumineszenzmedien auf. Die organischen Lumineszenzmedien haben mindestens zwei separate organische Lumineszenzschichten, d.h. eine Schicht zum Injizieren und Transportieren von Elektronen, und die andere Schicht zum Injizieren und Transportieren von Löchern in die Vorrichtung. Außerdem kann eine weitere Mehrfachschicht einer dünnen organischen Folie enthalten sein. Die obigen Schichten zum Injizieren und Transportieren von Elektronen und Löchern können je in eine Elektroneninjektionsschicht, eine Elektronentransportschicht, eine Lochinjektionsschicht und eine Lochtransportschicht aufgeteilt sein. Außerdem können die organischen Lumineszenzmedien ferner eine Emissionsschicht neben den obigen Schichten aufweisen.

**[0013]** Die einfache Struktur der organischen EL-Vorrichtung weist eine erste Elektrode/eine Elektronentransportschicht und eine Emissionsschicht/eine zweite Elektrode auf. Die Struktur der organischen EL-Vorrichtung kann außerdem in eine erste Elektrode/eine Lochinjektionsschicht/eine Lochtransportschicht/eine Emissionsschicht/eine Elektronentransportschicht/eine Elektroneninjektionsschicht/eine zweite Elektrode aufgeteilt sein.

**[0014]** Das Betriebsprinzip der organischen EL-Vorrichtung mit der obigen Struktur ist wie folgt.

**[0015]** Wenn die Spannung an die Anode und Kathode angelegt wird, wird das von der Anode injizierte Loch über die Lochtransportschicht zur Emissionsschicht übertragen. Inzwischen wird das Elektron von der Kathode über die Elektronentransportschicht in die Emissionsschicht injiziert. Das Loch und das Elektron werden in der Emissionsschicht rekombiniert, um ein Exciton zu bilden. Das Exciton wird vom Anregungszustand in den Basiszustand versetzt, wodurch das fluoreszierende Molekül der Emissionsschicht lumineszierend wird, um Bilder zu bilden.

**[0016]** Gegenwärtig ist das Material, das herkömmlicherweise für die Lochtransportschicht verwendet wird, Triphenylamin-Analoge. Außerdem werden organische Metallkomplexverbindungen oder heterozyklische Verbindungen für die Elektronentransportschicht verwendet. Organische Verbindungen oder organische Metallkomplexverbindungen werden nur für die Emissionsschicht oder als Wirtsmaterial der Emissionsschicht verwendet. Wenn organische Verbindungen oder organische Metallkomplexverbindungen als Wirtsmaterial der Emissionsschicht verwendet werden, werden organische Lumineszenzmaterialien oder organische Lumineszenzmaterialien des Metallkomplextyps als Dotierungsmaterial verwendet, um die Farbe der Lumineszenz zu steuern.

**[0017]** Die maximale Quanteneffizienz der Lumineszenzmaterialien, die in einer organischen EL-Vorrichtung verwendet werden, beträgt ungefähr 5% nach theoretischer Berechnung. Wenn so eine geringe Quanteneffizienz verbessert werden kann, kann die Lebensdauer der Vorrichtung erhöht werden. Wenn das Molekül vom

einfachen Erregungszustand in den Grundzustand gefallen ist, wird es allgemein als Fluoreszenz bezeichnet. Andererseits, wenn das Molekül vom Triplett-Erregungszustand in den Grundzustand gefallen ist, wird es Phosphoreszenz genannt. Im Fall von Fluoreszenz beträgt die maximale Effizienz, die vom Grundzustand des Moleküls emittiert wird, ungefähr 25%. Im Fall von Phosphoreszenz beträgt sie ungefähr 75%. Deshalb wurden die Phosphoreszenzmaterialien mit einer hohen Lumineszenzeffizienz an einer organischen dünnen Schicht, insbesondere der Emissionsschicht der organischen EL-Vorrichtung, angewendet, aber es wurden keine geeigneten Materialien für die organische dünne Schicht entwickelt.

**[0018]** Ein geeignetes Verfahren für das Vollfarbendisplay ist, ein Material mit hoher Lumineszenzeffizienz für die organische dünne Schicht zu entwickeln, insbesondere die Emissionsschicht der organischen EL-Vorrichtung. Daher wurden Studien nach organischen Iridium-Metallkomplex-Verbindungen als Phosphoreszenzmaterialien für die organische EL-Vorrichtung durchgeführt. Von der organischen EL-Vorrichtung, die solches Material als Dotierungsmaterial der Emissionsschicht verwendet, ist bekannt, dass sie eine hohe Lumineszenzeffizienz im Betrieb zeigt [siehe Nature, Band 403, Seiten 750–753 (2000)].

**[0019]** Organische Iridium-Metallkomplex-Verbindungen, die die Emissionsschicht darstellen sollen, haben eine unterschiedliche Lumineszenzfarbe gemäß der Molekularstruktur des Liganden. In diesem Fall weist die Emissionsschicht nur organische Iridium-Metallkomplex-Verbindungen von Phosphoreszenzmaterialien oder von Phosphoreszenzmaterialien als Dotierungsmaterial auf. Jedoch wurden keine Phosphoreszenzmaterialien mit geeigneter Lumineszenzeffizienz entwickelt.

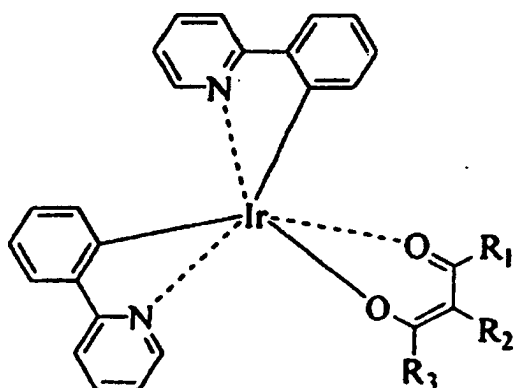
**[0020]** Im Hinblick auf das oben erwähnte, haben die gegenwärtigen Erfinder intensive Studien durchgeführt, um neuartige Phenylpyridin-Iridium-Metallkomplex-Verbindungen der Formel (1) zu entwickeln, welche eine geeignete Lumineszenzeffizienz aufweisen, und haben die vorliegende Erfindung fertig gestellt.

#### Zusammenfassung der Erfindung

**[0021]** Ein Ziel der vorliegenden Erfindung ist es, neuartige Phenylpyridin-Iridium-Metallkomplex-Verbindungen und Herstellungsverfahren dafür zu schaffen.

**[0022]** Ein weiteres Ziel der vorliegenden Erfindung ist, eine organische Elektrolumineszenzvorrichtung mit einer oder mehreren organischen dünnen Schichten zu schaffen, die zwischen der ersten Elektrode und der zweiten Elektrode gebildet sind, wobei mindestens irgendeine Schicht der organischen dünnen Schichten ein oder mehrere Lumineszenzmaterialien gemäß der vorliegenden Erfindung aufweist.

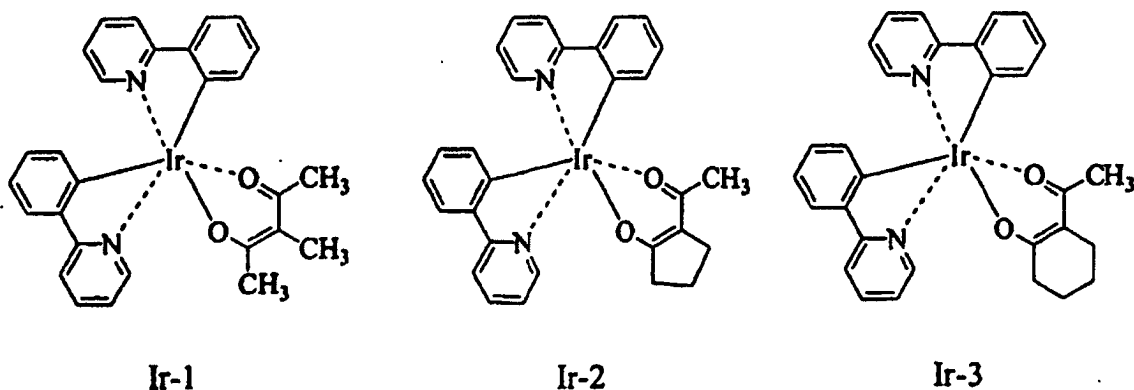
**[0023]** Um diese Ziele der vorliegenden Erfindung zu erreichen, liefert die vorliegende Erfindung neuartige Phenylpyridin-Iridium-Metallkomplex-Verbindungen, die durch die folgende Formel (1) dargestellt werden:



(1)

wobei R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub> und R<sub>3</sub> je unabhängig eine gerade oder verzweigte Alkylgruppe mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, vorzugsweise 1 bis 8, noch bevorzugter 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, eine substituierte oder unsubstituierte aromatische Gruppe mit 5 bis 18 Kohlenstoffatomen, eine heterocyclische aromatische Gruppe mit 5 bis 18 Kohlenstoffatomen und einem oder mehreren Heteroatomen aus der Gruppe bestehend aus N, O und S sind; oder zwei oder mehr von R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub> und R<sub>3</sub> zusammengenommen einen aliphatischen Ring mit 5 bis 20 Kohlenstoffatomen, einen aromatischen Ring mit 5 bis 20 Kohlenstoffatomen oder einen heterocyclischen aromatischen Ring mit 5 bis 20 Kohlenstoffatomen und einem oder mehreren Heteroatomen ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus N, O und S bilden.

[0024] Die repräsentativen Beispiele der Formel (1) sind unten beschrieben. Die vorliegende Erfindung soll jedoch nicht durch die repräsentativen Beispiele beschränkt sein.

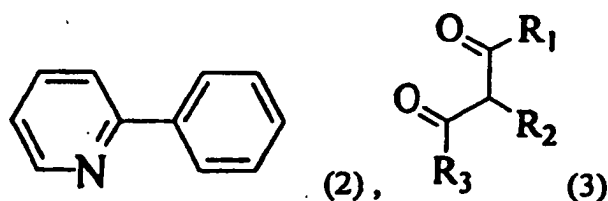


[0025] Die Substituenten der Verbindungen der Formel (1) können durch eine gerade oder durch eine verzweigte Alkylgruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen, oder eine Alkoxygruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen ersetzt werden, sind aber nicht darauf beschränkt.

[0026] Die vorliegende Erfindung liefert auch ein Herstellungsverfahren der Verbindung der Formel (1).

[0027] Die Verbindung der Formel (1) kann hergestellt werden durch:

- 1) zur Reaktion Bringen der Phenylpyridinverbindung der Formel (1) unten mit  $\text{IrCl}_3 \cdot x\text{H}_2\text{O}$  oder  $\text{Na}_3\text{IrCl}_6 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ , um eine Vorstufe der Verbindung der Formel (1) zu bilden; und
- 2) zur Reaktion Bringen der durch den obigen Schritt 1) erhaltenen Vorstufe mit der Verbindung der Formel (3) unten, um die gewünschte Verbindung der Formel (1) zu erhalten:



wobei  $R_1$ ,  $R_2$  und  $R_3$  je wie oben definiert sind.

[0028] Die Reaktionstemperatur des obigen Schritts 1) beim Herstellungsverfahren beträgt  $0^\circ\text{C}$  bis  $140^\circ\text{C}$ , vorzugsweise  $100^\circ\text{C}$  bis  $135^\circ\text{C}$ , und die Reaktionszeit beträgt 1 bis 240 Stunden, vorzugsweise 10 bis 48 Stunden. Das herkömmliche organische Lösungsmittel, vorzugsweise alkoholische Derivate, bevorzugter 2-Ethoxyethanol, kann als Reaktionslösungsmittel verwendet werden. Das molare Verhältnis der Phenylpyridinverbindung von Formel (2) zur Iridiumkomplexverbindung kann 0,0001 bis 10 sein, vorzugsweise 0,1 bis 1.

[0029] Die Reaktionstemperatur des obigen Schritts 2) beträgt  $0^\circ\text{C}$  bis  $140^\circ\text{C}$ , vorzugsweise  $100^\circ\text{C}$  bis  $135^\circ\text{C}$ , und die Reaktionszeit beträgt 1 bis 240 Stunden, vorzugsweise 10 bis 48 Stunden. Das herkömmliche organische Lösungsmittel, vorzugsweise alkoholische Derivate, bevorzugter 2-Ethoxyethanol, kann als Reaktionslösungsmittel verwendet werden. Das molare Verhältnis einer Vorstufenverbindung der Iridiumkomplexverbindung, welche durch den obigen Schritt 1) erhalten wurde, zur Verbindung der Formel (3) kann 0,01 bis 100 sein, vorzugsweise 0,1 bis 10. Alkalische Substanzen, wie z.B. Metalloxide, Metallhydroxide, Metallcarbonate, vorzugsweise Metallcarbonate, bevorzugter  $\text{K}_2\text{CO}_3$ , können verwendet werden, um die Reaktion zu beschleunigen.

[0030] Außerdem liefert die vorliegende Erfindung eine organische EL-Vorrichtung, die die Verbindung von Formel (1) aufweist, insbesondere eine organische EL-Vorrichtung mit einer oder mehreren organischen dünnen Schichten, die zwischen der ersten Elektrode und der zweiten Elektrode gebildet sind, wobei mindestens irgend eine der Schichten der organischen dünnen Schichten ein oder mehr Lumineszenzmaterialien gemäß der vorliegenden Erfindung aufweist.

[0031] Die Verbindung der Formel (1) kann alleine, in einer Art Kombination oder als Wirtsmaterial, das mit anderen Materialien dotiert ist, für irgendeine der organischen dünnen Schichten verwendet werden, oder als Dotierungsmaterial für das weitere Lochtransportmaterial, Emissionsmaterial oder Elektronentransportmaterial

verwendet werden. Die Verbindung der vorliegenden Erfindung kann vorzugsweise allein oder als Dotierungsmaterial I für die Emissionsschicht verwendet werden.

**[0032]** Eine Vielzahl von Ausführungsformen der organischen EL-Vorrichtung, die die Lumineszenzmaterialien der vorliegenden Erfindung verwendet, kann erzielt werden. Grundsätzlich wird die Emissionsschicht, falls erforderlich, in das Paar von Elektroden (Anode und Kathode) eingeführt. Dann kann, falls erforderlich, eine Lochinjektionsschicht und/oder eine Lochtransportschicht und/oder eine Elektroneninjectionsschicht und/oder eine Elektronentransportschicht eingeführt werden. Die Strukturbeispiele der Vorrichtung sind insbesondere: (1) Anode/Emissionsschicht/Kathode; (2) Anode/Lochtransportschicht/Emissionsschicht/Kathode; (3) Anode/Lochtransportschicht/Elektronentransportschicht/Kathode; (4) Anode/Lochinjektionsschicht/Lochtransportschicht/Emissionsschicht/Kathode; (5) Anode/Lochinjektionsschicht/Lochtransportschicht Emissionsschicht/Elektronentransportschicht/Kathode; (6) Anode/Lochinjektionsschicht/Lochtransportschicht/Emissionsschicht/Elektronentransportschicht/Elektroneninjektionsschicht/Kathode; (7) Anode/Lochinjektionsschicht/Emissionsschicht/Elektroneninjektionsschicht/Kathode; und (8) Anode/Lochtransportschicht/Emissionsschicht/Lochblockierungsschicht/Elektronentransportschicht/Elektroneninjektionsschicht/Kathode, etc. Falls erforderlich, wird die Vorrichtung mit den obigen Strukturen durch ein Substrat getragen. Es besteht keine besondere Beschränkung für das Substrat und herkömmliche Substrate, die bei der organischen EL-Vorrichtung verwendet werden, wie z.B. Glas, transparenter Kunststoff, Quarz, etc., können verwendet werden.

**[0033]** Jede Schicht, die die organische EL-Vorrichtung der vorliegenden Erfindung bildet, kann geformt werden durch Aufbringen der enthaltenen Materialien unter herkömmlichen Verfahren, wie z.B. Abscheidungsverfahren, Spinbeschichtungsverfahren oder Gussverfahren, um die Schichten zu laminieren.

**[0034]** Es besteht keine besondere Beschränkung für die Dicke jeder Schicht, wie z.B. der Emissionsschicht, die durch solch ein Verfahren gebildet werden, und es kann je nach den Bedingungen der Vorrichtung eine geeignete Auswahl getroffen werden.

**[0035]** Außerdem kann für die Anode der organischen EL-Vorrichtung ein Metall mit einer Austrittsarbeit von mehr als 4,0 eV, eine Legierung, eine elektrisch leitende Verbindung oder eine Kombination davon als Elektrode verwendet werden. Das Beispiel solch eines Elektrodenmaterials ist ein elektrisch leitfähiges, transparentes oder nicht-transparentes Material, wie z.B. ITO, SnO<sub>2</sub>, ZnO, Au, etc. Die Anode kann hergestellt werden durch Bilden einer dünnen Schicht durch das Verfahren der Abscheidung, Kathodenzerstäubung (Sputtering), etc.

**[0036]** Außerdem kann als Kathode der organischen EL-Vorrichtung ein Metall mit einer Austrittsarbeit von weniger als 4,2 eV, eine Legierung, eine elektrisch leitfähige Verbindung oder eine Kombination davon als Elektrode verwendet werden. Die Beispiele solchen Elektrodenmaterials sind Calcium, Magnesium, Lithium, Aluminium, Magnesiumlegierung, Lithiumlegierung, Aluminiumlegierung, Aluminium/Lithium-Mischung, Magnesium/Silber-Mischung, Indium etc. Die Kathode kann auch hergestellt werden durch Bilden einer dünnen Schicht durch das Verfahren der Abscheidung, Kathodenzerstäubung, etc.

**[0037]** Der Flächenwiderstand als Elektrode ist vorzugsweise weniger als einige hundert  $\Omega$ /mm und die Dicke der Schicht wird im Bereich von 10 nm bis 1  $\mu$ m gewählt, vorzugsweise 50 bis 200 nm.

**[0038]** Für die organische EL-Vorrichtung der vorliegenden Erfindung wird es bevorzugt, eine oder beide der Anode und Kathode transparent oder halbtransparent zu machen und die Lumineszenz durch die Anode oder Kathode hindurch zu übertragen, um den Übertragungseffekt der Lumineszenz zu verstärken.

**[0039]** Für andere Materialien für die Lochinjektionsschicht und die Lochtransportschicht in der organischen EL-Vorrichtung der vorliegenden Erfindung kann irgend ein Material verwendet werden, welches herkömmlicherweise als Lochtransportmaterial unter photoleitfähigen Materialien verwendet wurde, und jedes zufällig ausgewählte Material unter bekannten Materialien, die als Lochinjektionsschicht oder Lochtransportschicht verwendet wurden.

**[0040]** Für die organische EL-Vorrichtung der vorliegenden Erfindung weist eine Elektronentransportschicht eine Elektronentransportverbindung auf und spielt eine Rolle dabei, Elektronen zu transportieren, die von der Kathode in die Emissionsschicht injiziert wurden. Es besteht keine besondere Beschränkung für solch eine Elektronentransportverbindung, und jede bekannte herkömmliche Verbindung kann dabei ausgewählt werden.

**[0041]** Eine Ausführungsform für geeignete Verfahren, um die organische EL-Vorrichtung der vorliegenden Erfindung mit den obigen (8) Strukturen herzustellen, wird wie folgt erklärt:

- (1) eine erste Elektrode, ITO, wird auf einem transparenten Substrat mit der Dicke von ungefähr 10–1000 nm gebildet;
- (2) eine Lochtransportschicht wird darauf gebildet unter Verwendung von NPD (N,N'-Dinaphthyl-N,N'-phenyl-(1,1'-biphenyl)-4,4'-diamin) mit der Dicke von ungefähr 1 nm–200 nm;
- (3) dann wird eine organische Emissionsschicht darauf abgeschieden unter Verwendung von CBP (4,4'-Bis(carbazol-9-yl)-biphenyl) mit der Dicke von ungefähr 1 nm–200 nm [eine Verbindung der Formel (1) wird zu ungefähr 0,01%–40% als Dotierungsmaterial hinzugefügt];
- (4) eine Lochblockierungsschicht wird auf der Emissionsschicht unter Verwendung von BCP (2,9-Dimethyl-4,7-diphenyl-1,10-phenanthrolin) mit der Dicke von ungefähr 1 nm–200 nm gebildet;
- (5) eine Elektronentransportschicht wird darauf abgeschieden unter Verwendung von Alq3 (Tris(8-hydroxy-chinolat)aluminium) mit einer Dicke von ungefähr 1 nm–200 nm;
- (6) dann wird eine Elektroneninjektionsschicht, die eine Alkalimetall- oder Erdalkalimetall-Verbindung aufweist in der Dicke von ungefähr 0,1 nm–200 nm gebildet; und
- (7) eine zweite Elektrode, die Mg/Ag aufweist, mit der Dicke von ungefähr 10 nm–1000 nm wird laminiert.

#### Kurze Beschreibung der Zeichnungen

**[0042]** Die vorliegende Erfindung wird besser verständlich aus der detaillierten Beschreibung in Verbindung mit den folgenden Zeichnungen.

**[0043]** [Fig. 1](#) ist eine schematische Schnittansicht der herkömmlichen organischen EL-Vorrichtung.

#### Detaillierte Beschreibung der Erfindung

**[0044]** Die Synthesebeispiele der Verbindungen der Formel (1) der vorliegenden Erfindung und die organische EL-Vorrichtung, die mit den Verbindungen angewendet wird, werden durch die Synthesebeispiele und die Ausführungsbeispiele unten erläutert. Zusätzliche Vorteile, Ziele und Merkmale der vorliegenden Erfindung werden in der folgenden Beschreibung dargelegt, und werden auch denjenigen, die die vorliegende Erfindung praktizieren, offensichtlich. Die Ziele und anderen Vorteile der vorliegenden Erfindung werden in der schriftlichen Beschreibung, welche die Ansprüche einschließt, erläutert.

#### Synthesebeispiele

##### Synthesebeispiel 1

##### (1) Synthese der Vorstufenverbindung der Iridiumkomplexverbindung, 1

**[0045]** Phenylpyridin (1408 mg, 9,07 mmol) und  $\text{IrCl}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$  (800 mg, 2,27 mmol) wurden in ein 100 ml-Reaktionsgefäß gegeben und 30 ml gereinigtes Lösungsmittel und 2-Ethoxyethanol wurden unter einem Stickstoffstrom hinzugegeben, und dann wurde die Mischung 6 Stunden bei Raumtemperatur gemischt und 12 Stunden bei 100°C unter Rückfluss erhitzt. Die Mischung wurde dann auf Raumtemperatur abgekühlt und mit einem Glasfilter der Größe G4 filtriert, und der Niederschlag wurde mit MeOH (15ml) dreimal gewaschen. Der Niederschlag wurde gelöst durch Zugabe von  $\text{CH}_2\text{Cl}_2$  zum Glasfilter und die aufgelöste Lösung wurde aufgefangen und dann durch eine Destillationsvorrichtung im Vakuum verdampft. Das resultierende Material wurde mit Säulenchromatographie gereinigt, um 700 mg der Vorstufe der Iridiumkomplexverbindung, 1, zu erhalten (Ausbeute: 58%).

##### (2) Synthese der Iridium-Komplexverbindung (Ir-1)

**[0046]** Die oben synthetisierte Vorstufenverbindung (Synthesebeispiel 1), 1 (50 mg, 0,0467 mmol) und 3-Methyl-2,4-pentandion (53,3 mg, 0,467 mmol) und  $\text{K}_2\text{CO}_3$  (50 mg) wurden in ein 50 ml-Reaktionsgefäß gegeben, und 10 ml gereinigten Lösungsmittels, 2-Ethoxyethanol, wurde unter einem Stickstoffstrom zugegeben und eine Stunde bei 100°C unter Rückfluss erhitzt. Die Temperatur dieser Mischung wurde auf Raumtemperatur abgesenkt und die Mischung wurde mit einem Glasfilter der Größe G4 filtriert, und der Niederschlag wurde mit MeOH (15 ml) dreimal gewaschen. Der Niederschlag wurde gelöst durch Zugabe von  $\text{CH}_2\text{Cl}_2$  zum Glasfilter und die aufgelöste Lösung wurde aufgefangen und dann durch eine Destillationsvorrichtung im Vakuum verdampft. Das resultierende Material wurde mit Säulenchromatographie gereinigt, um 55 mg der gewünschten Verbindung, Ir-1 zu erhalten (Ausbeute: 96%).

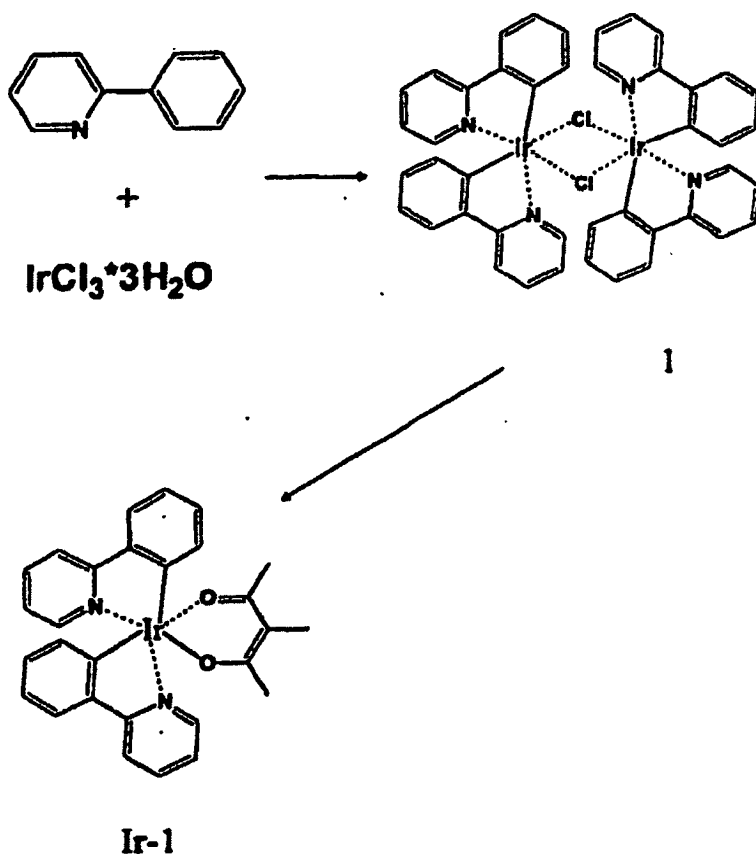
## (3) Analyse der Verbindung Ir-1

[0047] Die Molekularstruktur des oben erhaltenen Materials wurde analysiert unter Verwendung von NMR und Massenspektrometer und aus dem Ergebnis der Analyse bestätigte sich, dass Ir-1 hergestellt wurde.

$^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ):  $\delta$  8,5 (d, 2H), 7,8 (d, 2H), 7,7 (t, 2H), 7,5 (d, 2H), 7,1 (t, 2H), 6,8 (t, 2H), 6,7 (t, 2H), 6,2 (t, 2H), 2,1 (s, 3H), 1,8 (s, 6H)

Masse: berechneter Wert: 614, 15; experimenteller Wert: 614,25.

[0048] Die Herstellungsschritte der obigen Verbindung Ir-1 werden unten zusammengefasst, und andere Verbindungen, die die Formel (1) einschließen, werden durch ein dem Synthesebeispiel 1 ähnliches Verfahren synthetisiert.



[0049] Die wie oben synthetisierten Materialien wurden zur Verwendung in der organischen EL-Vorrichtung weiter mit einer Vakuumsublimationsvorrichtung gereinigt.

## Beispiel 1

[0050] Bei dem gegenwärtigen Beispiel wurde die organische EL-Vorrichtung unter Verwendung von Ir-1 als Dotierungsmaterial und CBP als Wirtsmaterial grüner Lumineszenz hergestellt. Zuerst wurde eine Lochtransportschicht mit der Dicke von 50 nm durch Abscheiden von NPD (N,N'-Dinaphthyl-N,N'-phenyl-(1,1'-biphenyl)-4,4'-diamin) im Vakuum auf einem ITO-abgeschiedenen Glas gebildet, welches durch eine Mikrowelle gewaschen wurde. Dann wird eine Emissionsschicht mit der Dicke von 30 nm auf der Lochtransportschicht durch Abscheiden von CBP (Wirtsmaterial) gebildet, welches mit 1,0 % Ir-1 (Dotierungsmaterial) dotiert war. Eine Lochblockierungsschicht (BCP; 5 nm), eine Elektronentransportschicht (Alq3; 40 nm), eine Elektroneninjektionsschicht ( $\text{Li}_2\text{O}$ ; 25 nm), und eine Kathode (Mg/Ag; 100 nm) wurden der Reihe nach durch Abscheiden im Vakuum darauf gebildet, um die organische EL-Vorrichtung zu vervollständigen.

[0051] Gleichspannung mit einer Vorwärtvorspannung wurde an die durch Beispiel 1 hergestellte EL-Vorrichtung angelegt und deren Lumineszenzeigenschaft wurde ausgewertet. Die Lumineszenzfarbe war grün. Als Ergebnis der Spektroskopie wurde ein Spektrum mit einem Lumineszenzpeak von ungefähr 530 nm erhalten. Außerdem wurde als ein Ergebnis des Spannungs-Helligkeitstests 5000  $\text{cd/m}^2$  Helligkeit bei 8,2 V erhalten, an welchem Punkt die Effizienz 14  $\text{lm/W}$  betrug (siehe Tabelle 1).



## Beispiel 2

**[0052]** Für das vorliegende Beispiel wurde die organische EL-Vorrichtung unter Verwendung von Ir-2 als Dotierungsmaterial und CBP als Wirtsmaterial grüner Lumineszenz hergestellt. Zuerst wurde eine Lochtransportschicht mit der Dicke von 50 nm durch Abscheiden von NPD (N,N'-Dinaphthyl-N,N'-phenyl-(1,1'-biphenyl)-4,4'-diamin) im Vakuum auf einem ITO-abgeschiedenen Glas gebildet, gewaschen durch eine Mikrowelle. Dann wurde eine Emissionsschicht mit der Dicke von 30 nm auf der Lochtransportschicht durch Abscheiden von CBP (Wirtsmaterial), welches mit 1% Ir-2 (Dotierungsmaterial) dotiert war, gebildet. Eine Lochblockierungsschicht (BCP; 5 nm), eine Elektronentransportschicht (Alq3; 40 nm), eine Elektroneninjectionsschicht (Li<sub>2</sub>O; 25 nm), und eine Kathode (Mg/Ag; 100 nm) wurden der Reihe nach darauf durch Abscheiden im Vakuum gebildet, um die organische EL-Vorrichtung zu vollenden.

**[0053]** Gleichspannung mit Vorwärtvorspannung wurde an die durch Beispiel 2 hergestellte organische EL-Vorrichtung angelegt und deren Lumineszenzeigenschaft wurde ausgewertet. Die Lumineszenzfarbe war grün. Als ein Ergebnis der Spektroskopie wurde ein Spektrum mit einem Lumineszenzpeak von ungefähr 525 nm erhalten. Außerdem wurde als ein Ergebnis des Spannungs-Helligkeitstest 5000 cd/m<sup>2</sup> Helligkeit bei 6,8 V erhalten, an welchem Punkt die Effizienz 13 lm/W betrug (siehe Tabelle 1).

## Vergleichsbeispiel 1

**[0054]** Eine organische EL-Vorrichtung wurde durch das gleiche Verfahren wie die Beispiele 1 und 2 hergestellt, mit der Ausnahme, dass Ir(ppy)<sub>3</sub> (Iridium(III)tris(2-phenylpyridin)) als Dotierungsmaterial verwendet wurde.

**[0055]** Die Gleichspannung mit Vorwärtvorspannung wurde an die durch Vergleichsbeispiel 1 hergestellte organische EL-Vorrichtung angelegt und deren Lumineszenzeigenschaft wurde ausgewertet. Die Lumineszenzfarbe war grün. Als ein Ergebnis der Spektroskopie wurde ein Spektrum mit einem Lumineszenzpeak von ungefähr 510 nm erhalten. Außerdem wurde als ein Ergebnis des Spannungs-Helligkeitstest 5000 cd/m<sup>2</sup> Helligkeit bei 9,8 V erhalten, an welchem Punkt die Effizienz 5,3 lm/W betrug (siehe Tabelle 1).

Tabelle 1

	Wirts-Material	Dotierungs-material	Angelegte Spannung (V)	Helligkeit (cd/m <sup>2</sup> )	Effizienz (lm/W)	Spektrum (nm)
Beisp. 1	CBP	Ir-1	8,2	5000	14	530 nm
Beisp. 2	CBP	Ir-2	6,8	5000	13	525 nm
Vergleichs-Beisp. 1	CBP	Ir(ppy) <sub>3</sub>	9,8	5000	5,3	510 nm

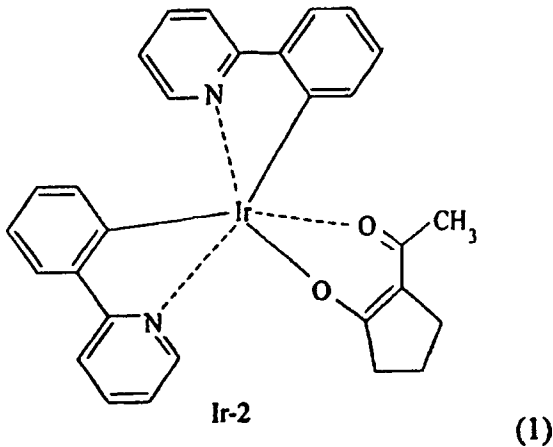
**[0056]** Wie in den obigen Ergebnissen gezeigt, ist es offensichtlich, dass die Effizienz, wenn, nicht in Übereinstimmung mit der Erfindung, eine Iridiumkomplexverbindung als Dotierungsmaterial verwendet wurde, wesentlich reduziert war. Außerdem kann die organische EL-Vorrichtung, die die neuartige Phenylpyridin-Iridiumkomplexverbindung von Formel (1) gemäß der vorliegenden Erfindung verwendet, eine geeignete Lumineszenzeffizienz und eine verbesserte Betriebslebensdauer und Stabilität erreichen.

**[0057]** Es ist für einen Fachmann offensichtlich, dass verschiedene Modifikationen und Variationen bei der vorliegenden Erfindung vorgenommen werden können. Deshalb ist es beabsichtigt, dass die vorliegende Erfindung die Modifikationen und Variationen dieser Erfindung abdeckt, die in den Umfang der beigefügten Ansprüche und ihrer Äquivalente fallen.

**[0058]** Die Merkmale der Beschreibung, der Ansprüche und der Zeichnung, einzeln oder in irgendeiner Kombination sind patentierbar und werden hiermit beansprucht, sofern sie nicht durch den Stand der Technik ausgeschlossen sind. Jeder Patentanspruch kann von irgendeinem oder mehreren der anderen Ansprüche abhängen.

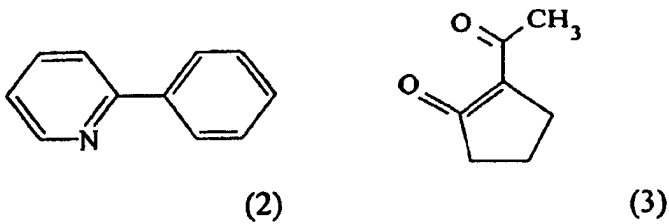
## Patentansprüche

1. Verbindung, dargestellt durch die folgende Formel:



2. Herstellungsverfahren der Verbindung Ir-2, aufweisend die Schritte:

- 1) die Phenylpyridin-Verbindung der Formel (2) unten mit  $\text{IrCl}_3 \cdot x\text{H}_2\text{O}$  oder  $\text{Na}_3\text{IrCl}_6 \cdot x\text{H}_2\text{O}$  zur Reaktion bringen, um eine Vorstufenverbindung zu bilden; und
- 2) die Vorstufen-Verbindung, welche durch den obigen Schritt 1) erhalten wurde, mit der Verbindung der Formel (3) unten zur Reaktion bringen, um die Verbindung Ir-2 gemäß Anspruch 1 zu erhalten:



3. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung mit einer oder mehreren organischen dünnen Schichten, die zwischen einer ersten Elektrode und einer zweiten Elektrode gebildet sind, wobei mindestens irgendeine der organischen dünnen Schichten die Verbindung Ir-2 nach Anspruch 1 aufweist.

4. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung nach Anspruch 3, wobei die organische dünne Schicht eine oder mehrere Schichten aufweist, die ausgewählt sind aus der Gruppe bestehend aus einer Lochtransport-schicht, einer Emissionsschicht, einer Lochblockierungsschicht, einer Elektronentransportschicht und einer Elektroneninjectionsschicht.

5. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung nach Anspruch 4, wobei die Verbindung Ir-2 nach Anspruch 1 als Dotierungsmittel der Emissionsschicht verwendet wird.

6. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung nach Anspruch 4, wobei die Verbindung Ir-2 nach Anspruch 1 als Wirtsmaterial der Emissionsschicht verwendet wird.

Es folgt ein Blatt Zeichnungen

【FIGUR 1】

【FIG. 1】

