

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2015-520945

(P2015-520945A)

(43) 公表日 平成27年7月23日(2015.7.23)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>H01L 51/50</b> (2006.01)	H05B 33/14	B 3K107
C07D 209/82 (2006.01)	C07D 209/82	4C063
C07D 409/10 (2006.01)	C07D 409/10	4C204

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 40 頁)

(21) 出願番号	特願2015-510188 (P2015-510188)	(71) 出願人	509266480
(86) (22) 出願日	平成25年5月2日 (2013.5.2)		ローム・アンド・ハース・エレクトロニク ク・マテリアルズ・コリア・リミテッド
(85) 翻訳文提出日	平成26年10月31日 (2014.10.31)		大韓民国 331-980 チュンチョン ナムード チョナンシー ソブクーク 3 コンダン 1-ロ 56
(86) 国際出願番号	PCT/KR2013/003810	(74) 代理人	110000589
(87) 国際公開番号	W02013/165189		特許業務法人センダ国際特許事務所
(87) 国際公開日	平成25年11月7日 (2013.11.7)	(74) 代理人	100093861
(31) 優先権主張番号	10-2012-0046150		弁理士 大賀 真司
(32) 優先日	平成24年5月2日 (2012.5.2)	(74) 代理人	100129218
(33) 優先権主張国	韓国 (KR)		弁理士 百本 宏之

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 新規有機エレクトロルミネセンス化合物およびそれを含む有機エレクトロルミネセンスデバイス

## (57) 【要約】

本発明は、新規有機エレクトロルミネセント化合物およびそれを含む有機エレクトロルミネセントデバイスに関する。本発明による有機エレクトロルミネセント化合物を使用して、駆動電圧が低下し、出力効率が改良されたOLEDデバイスを製造することが可能である。

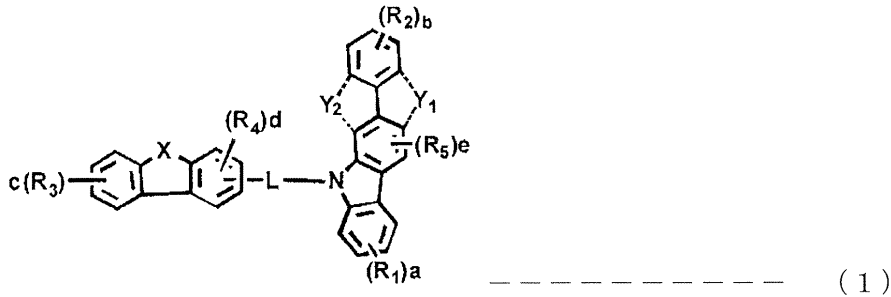
【選択図】なし

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

次式 1 :

## 【化 1】



10

(式中、

L は、単結合、置換もしくは非置換 5 ~ 30 員ヘテロアリーレン、または置換もしくは非置換 (C6 ~ C30) アリーレンを表す；

X は、-O-、-S-、-N(R<sub>6</sub>)-、-C(R<sub>7</sub>)(R<sub>8</sub>)-または-Si(R<sub>9</sub>)(R<sub>10</sub>)-を表す；

Y<sub>1</sub> および Y<sub>2</sub> はそれぞれ独立して、-O-、-S-、-N(R<sub>6</sub>)-、-C(R<sub>7</sub>)(R<sub>8</sub>)-または-Si(R<sub>9</sub>)(R<sub>10</sub>)-を表す；ただし、Y<sub>1</sub> および Y<sub>2</sub> は同時に存在しないものとする；

20

R<sub>1</sub> ~ R<sub>5</sub> はそれぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、置換もしくは非置換 (C1 ~ C30) アルキル、置換もしくは非置換 (C6 ~ C30) アリール、置換もしくは非置換 5 ~ 30 員ヘテロアリール、-NR<sub>11</sub>R<sub>12</sub> または -SiR<sub>13</sub>R<sub>14</sub>R<sub>15</sub> を表す；あるいは、隣接する置換基 (複数可) と結合して、その炭素原子 (複数可) が窒素、酸素およびイオウからなる群から選択される少なくとも 1 つのヘテロ原子で置換されていてもよい単環式または多環式 3 ~ 30 員脂環式または芳香環を形成する；

R<sub>6</sub> ~ R<sub>15</sub> はそれぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、置換もしくは非置換 (C1 ~ C30) アルキル、置換もしくは非置換 (C6 ~ C30) アリール、または置換もしくは非置換 5 ~ 30 員ヘテロアリールを表す；あるいは隣接する置換基 (複数可) と結合して、単環式もしくは多環式 3 ~ 30 員脂環式または芳香環を形成する；

30

a、b および c はそれぞれ独立して、1 ~ 4 の整数を表す；a、b または c が 2 以上の整数である場合、R<sub>1</sub> のそれぞれ、R<sub>2</sub> のそれぞれ、または R<sub>3</sub> のそれぞれは同一または異なってもよい；

d は 1 ~ 3 の整数を表す；d が 2 以上の整数である場合、R<sub>4</sub> のそれぞれは同一または異なってもよい；

e は 1 または 2 の整数を表す；e が 2 である場合、R<sub>5</sub> のそれぞれは同一または異なってもよい；そして

前記ヘテロアリール (エン) は B、N、O、S、P (=O)、Si および P から選択される少なくとも 1 つのヘテロ原子を含有する)

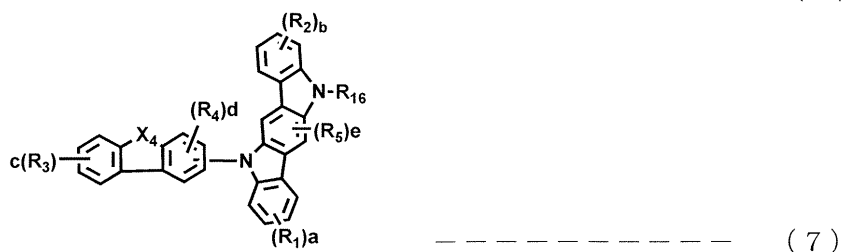
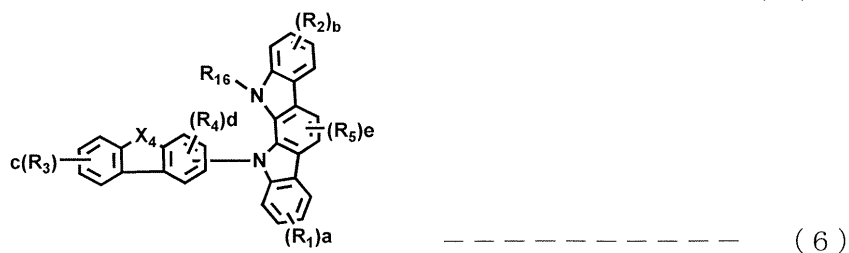
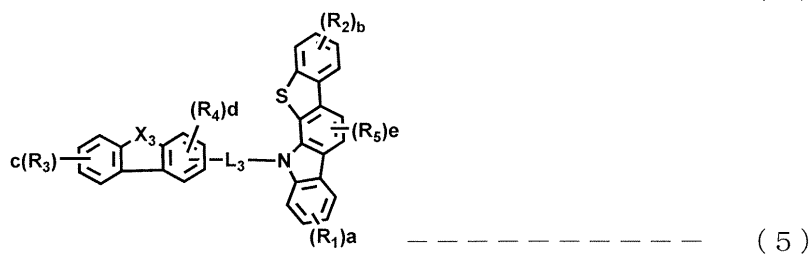
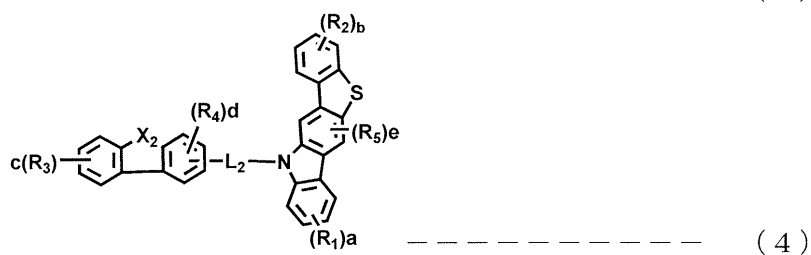
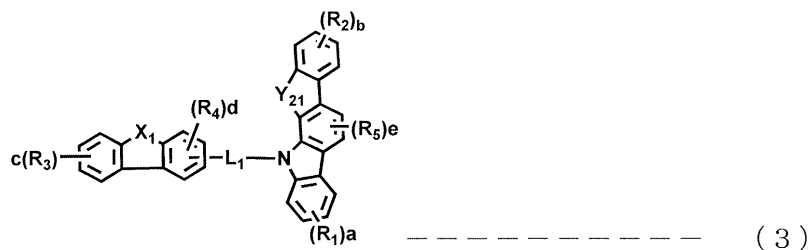
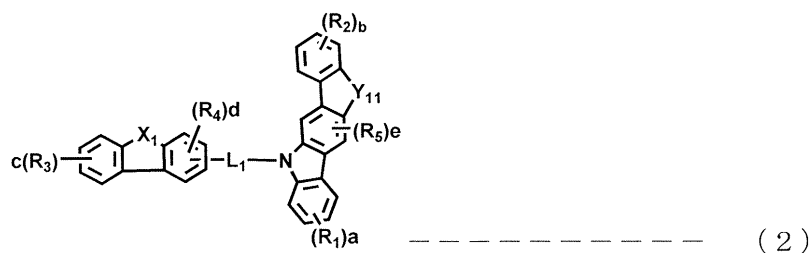
によって表される有機エレクトロルミネセント化合物。

40

## 【請求項 2】

式 1 によって表される前記化合物が、式 2 ~ 7 :

## 【化 2】



( 式中、

$Y_{11}$  および  $Y_{21}$  はそれぞれ独立して、 $-O-$ 、 $-C(R_7)(R_8)-$  または  $-Si(R_9)(R_{10})-$  を表す；

$L_1$  および  $L_3$  はそれぞれ独立して、単結合、または置換もしくは非置換 ( $C_6 \sim C_{30}$ ) アリーレンを表す； $L_2$  は置換もしくは非置換 ( $C_6 \sim C_{30}$ ) アリーレンを表す；

$X_1$  および  $X_2$  はそれぞれ独立して、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-N(R_6)-$  または  $-C(R_7)(R_8)-$  を表す； $X_3$  は、 $-O-$ 、 $-S-$  または  $-N(R_6)-$  を表す； $X_4$  は、 $-S-$ 、 $-N(R_6)-$  または  $-C(R_7)(R_8)-$  を表す；

$R_{16}$  は、水素、重水素、ハロゲン、置換もしくは非置換 ( $C_1 \sim C_{30}$ ) アルキル、

10

20

30

40

50

置換もしくは非置換 (C 6 ~ C 3 0) アリール、または置換もしくは非置換 5 ~ 3 0 員ヘテロアリールを表す；

R<sub>1</sub> ~ R<sub>15</sub>、a、b、c、d および e は請求項 1 で定義されるとおりである；ただし、R<sub>1</sub> および R<sub>2</sub> は式 6 および 7 においてカルバゾリル基ではないとする）

から選択される 1 つによって表される、請求項 1 記載の有機エレクトロルミネセント化合物。

【請求項 3】

L、および R<sub>1</sub> ~ R<sub>15</sub> 中の前記置換 (C 1 ~ C 3 0) アルキル、前記置換 (C 6 ~ C 3 0) アリール (エン)、および前記置換 5 ~ 3 0 員ヘテロアリール (エン) の前記置換基が、それぞれ独立して、重水素、ハロゲン、シアノ、カルボキシル、ニトロ、ヒドロキシル、(C 1 ~ C 3 0) アルキル、ハロ (C 1 ~ C 3 0) アルキル、非置換もしくは 5 ~ 3 0 員ヘテロアリールで置換された (C 6 ~ C 3 0) アリール、非置換もしくは (C 6 ~ C 3 0) アリールで置換された 5 ~ 3 0 員ヘテロアリール、(C 3 - C 3 0) シクロアルキル、3 ~ 7 員ヘテロシクロアルキル、トリ (C 1 ~ C 3 0) アルキルシリル、トリ (C 6 ~ C 3 0) アリールシリル、ジ (C 1 ~ C 3 0) アルキル (C 6 ~ C 3 0) アリールシリル、(C 1 ~ C 3 0) アルキルジ (C 6 ~ C 3 0) アリールシリル、(C 2 ~ C 3 0) アルケニル、(C 2 ~ C 3 0) アルキニル、モノもしくはジ (C 1 ~ C 3 0) アルキルアミノ、モノもしくはジ (C 6 ~ C 3 0) アリールアミノ、(C 1 ~ C 3 0) アルキル (C 6 ~ C 3 0) アリールアミノ、ジ (C 6 ~ C 3 0) アリールポロニル、ジ (C 1 ~ C 3 0) アルキルポロニル、(C 1 ~ C 3 0) アルキル (C 6 ~ C 3 0) アリールポロニル、(C 6 ~ C 3 0) アリール (C 1 ~ C 3 0) アルキル、および (C 1 ~ C 3 0) アルキル (C 6 ~ C 3 0) アリールからなる群から選択される少なくとも 1 つである、請求項 1 記載の有機エレクトロルミネセント化合物。

10

20

【請求項 4】

L が単結合、または置換もしくは非置換 (C 6 ~ C 3 0) アリーレンを表す；  
X が - O -、- S -、- N (R<sub>6</sub>) - または - C (R<sub>7</sub>) (R<sub>8</sub>) - を表し、ここで、R<sub>6</sub> は置換もしくは非置換 (C 6 ~ C 3 0) アリールを表し、そして R<sub>7</sub> および R<sub>8</sub> はそれぞれ独立して置換もしくは非置換 (C 1 ~ C 3 0) アルキルを表すか、または互いに結合して、単環式もしくは多環式 3 ~ 3 0 員脂環式または芳香環を形成する；

Y<sub>1</sub> および Y<sub>2</sub> はそれぞれ独立して、- O -、- S -、- N (R<sub>6</sub>) -、- C (R<sub>7</sub>) (R<sub>8</sub>) - または - Si (R<sub>9</sub>) (R<sub>10</sub>) - を表し、ここで、R<sub>6</sub> は、置換もしくは非置換 (C 6 ~ C 3 0) アリール、または置換もしくは非置換 5 ~ 3 0 員ヘテロアリールを表し、R<sub>7</sub> および R<sub>8</sub> は、それぞれ独立して、置換もしくは非置換 (C 1 ~ C 3 0) アルキル、置換もしくは非置換 (C 6 ~ C 3 0) アリールを表すか、または互いに結合して、単環式もしくは多環式 3 ~ 3 0 員脂環式または芳香環を形成し、そして R<sub>9</sub> および R<sub>10</sub> はそれぞれ独立して、置換もしくは非置換 (C 1 ~ C 3 0) アルキル、または置換もしくは非置換 (C 6 ~ C 3 0) アリールを表す；そして

30

R<sub>1</sub> ~ R<sub>5</sub> はそれぞれ独立して、水素、置換もしくは非置換 (C 1 ~ C 3 0) アルキル、置換もしくは非置換 (C 6 ~ C 3 0) アリール、置換もしくは非置換 5 ~ 3 0 員ヘテロアリール、- N R<sub>11</sub> R<sub>12</sub> または - Si R<sub>13</sub> R<sub>14</sub> R<sub>15</sub> を表すか；または隣接する置換基 (複数可) と結合して、単環式もしくは多環式 3 ~ 3 0 員脂環式または芳香環を形成し、ここで、R<sub>11</sub> および R<sub>12</sub> はそれぞれ独立して置換もしくは非置換 (C 6 ~ C 3 0) アリールを表し、R<sub>13</sub>、R<sub>14</sub> および R<sub>15</sub> はそれぞれ独立して置換もしくは非置換 (C 1 ~ C 3 0) アルキルを表す、請求項 1 記載の有機エレクトロルミネセント化合物。

40

【請求項 5】

L が、単結合、非置換 (C 6 ~ C 1 5) アリーレン、または (C 1 - C 6) アルキルで置換された (C 6 ~ C 1 5) アリーレンを表す；

X が - O -、- S -、- N (R<sub>6</sub>) - または - C (R<sub>7</sub>) (R<sub>8</sub>) - を表し、ここで、R<sub>6</sub> は非置換もしくは (C 1 ~ C 1 0) アルキルで置換された (C 6 ~ C 1 5) アリール

50

またはジ(C6~C15)アリアルアミノを表し、そしてR<sub>7</sub>およびR<sub>8</sub>はそれぞれ独立して、非置換(C1~C10)アルキルを表すか、または互いに結合して単環式もしくは多環式3~15員芳香環を形成する；

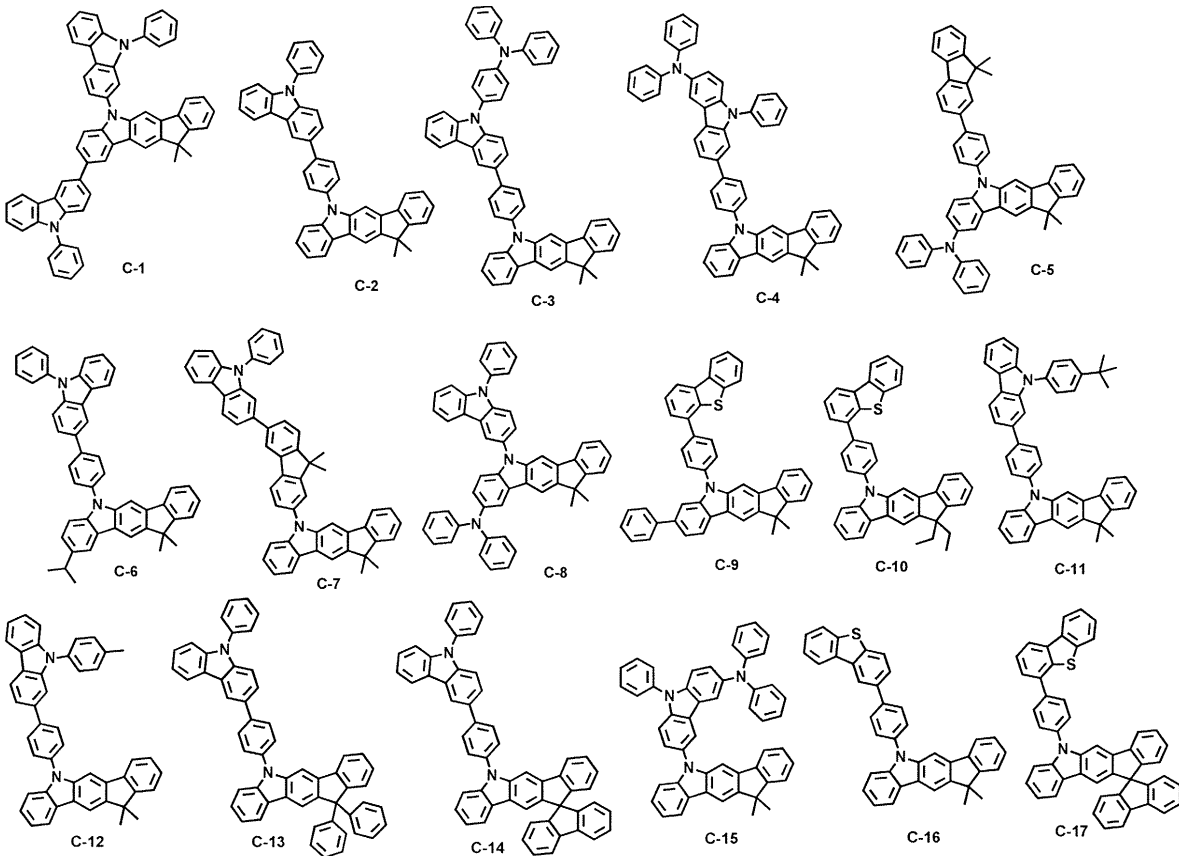
Y<sub>1</sub>およびY<sub>2</sub>はそれぞれ独立して、-O-、-S-、-N(R<sub>6</sub>)-、-C(R<sub>7</sub>)(R<sub>8</sub>)-または-Si(R<sub>9</sub>)(R<sub>10</sub>)-を表し、ここで、R<sub>6</sub>は、非置換もしくは(C1~C6)アルキルで置換された(C6~C15)アリアル、または非置換もしくは(C6~C15)アリアルで置換された5~15員ヘテロアリアルを表し、R<sub>7</sub>およびR<sub>8</sub>はそれぞれ独立して、非置換(C1~C10)アルキル、非置換(C6~C15)アリアルを表すか、または互いに結合して、単環式もしくは多環式3~15員芳香環を形成し、そしてR<sub>9</sub>およびR<sub>10</sub>は、それぞれ独立して、非置換(C1~C10)アルキル、または非置換(C6~C15)アリアルを表す；そして

R<sub>1</sub>~R<sub>5</sub>はそれぞれ独立して、水素、非置換(C1~C10)アルキル、非置換または(C6~C15)アリアルもしくはジ(C6~C15)アリアルアミノで置換された(C6~C15)アリアル、非置換もしくは(C6~C15)アリアルで置換された5~15員ヘテロアリアル、-NR<sub>11</sub>R<sub>12</sub>または-SiR<sub>13</sub>R<sub>14</sub>R<sub>15</sub>を表すか；あるいは隣接する置換基(複数可)と結合して単環式または多環式3~15員芳香環を形成し、ここで、R<sub>11</sub>およびR<sub>12</sub>はそれぞれ独立して非置換(C6~C15)アリアルを表し、R<sub>13</sub>、R<sub>14</sub>およびR<sub>15</sub>はそれぞれ独立して非置換(C1~C10)アルキルを表す、請求項4記載の有機エレクトロルミネセント化合物。

【請求項6】

式1によって表される前記化合物が：

【化3】

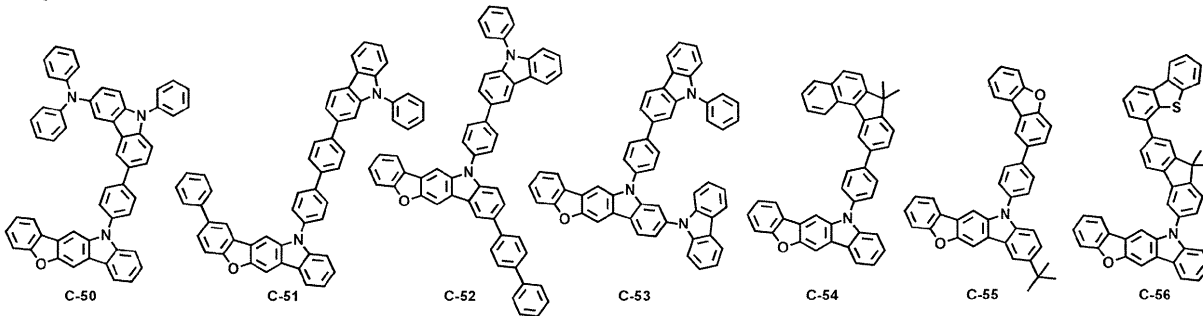
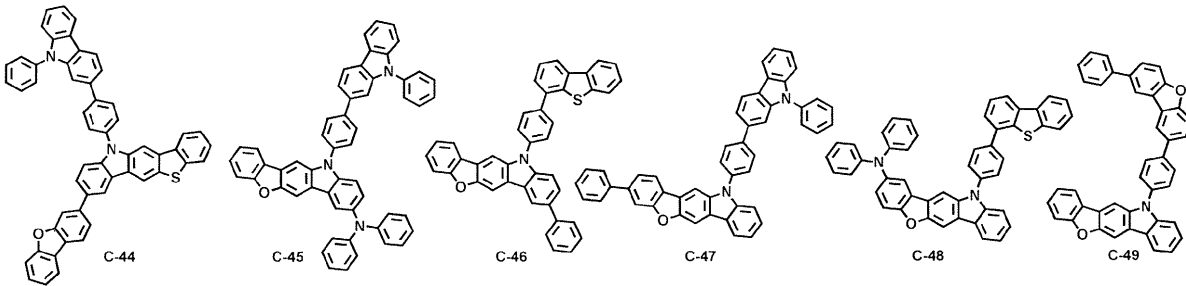
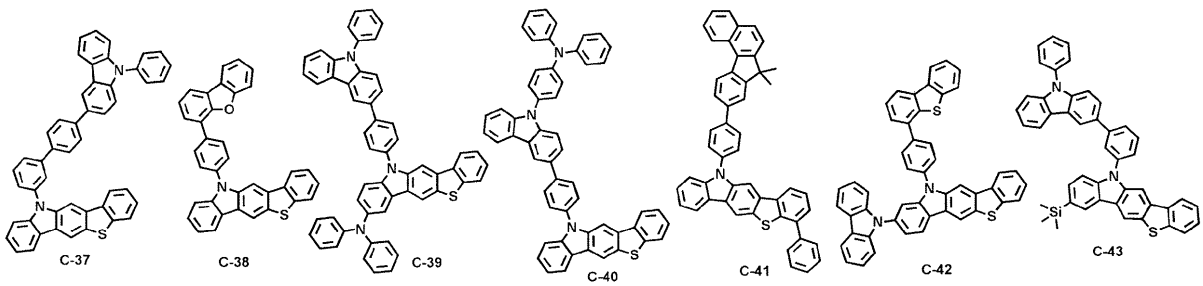
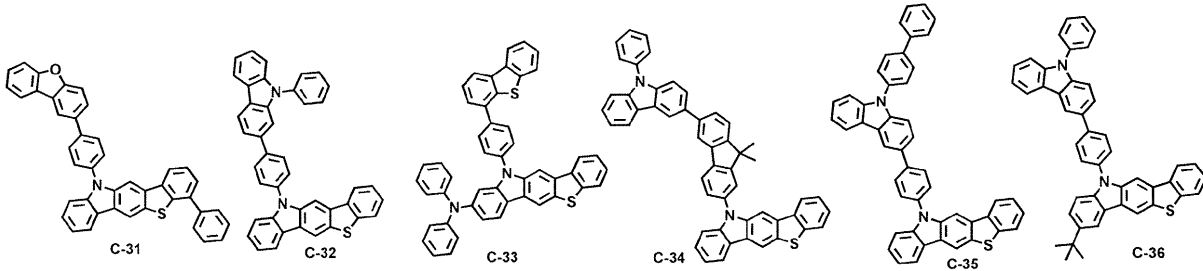
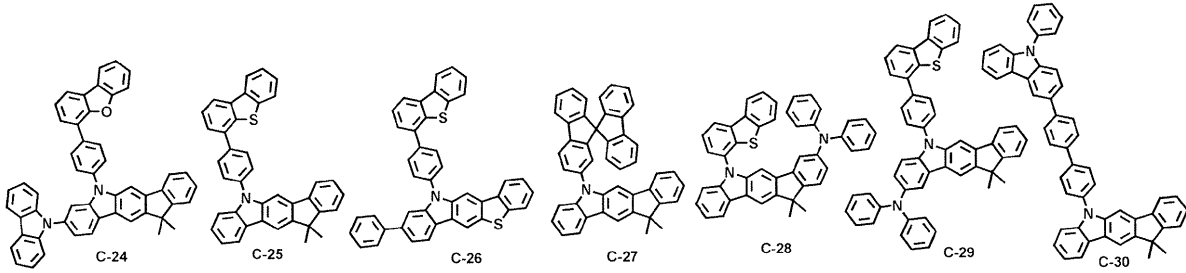
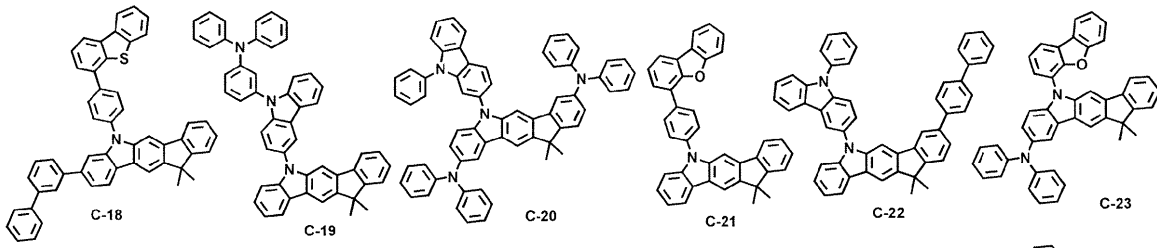


10

20

30

40

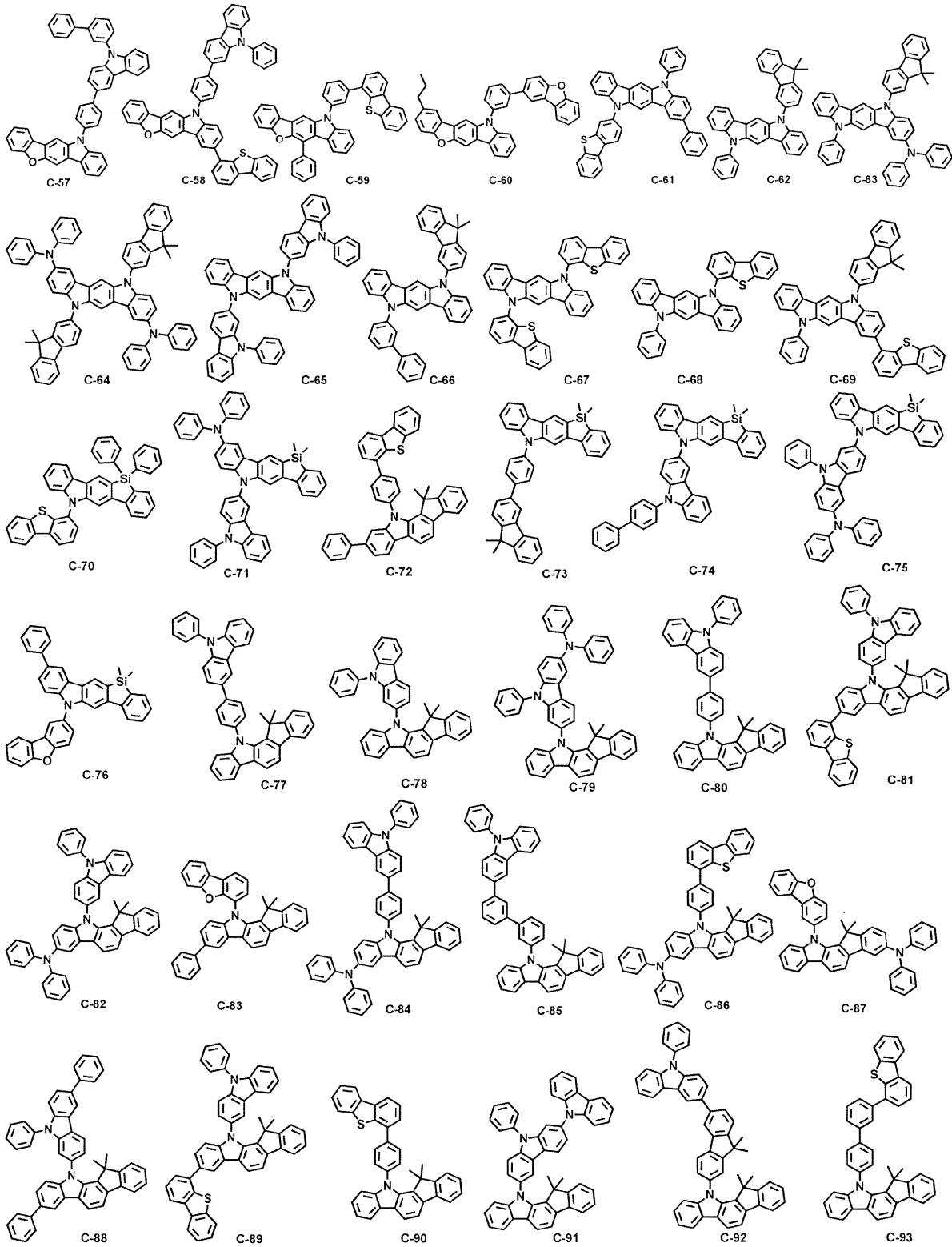


10

20

30

40

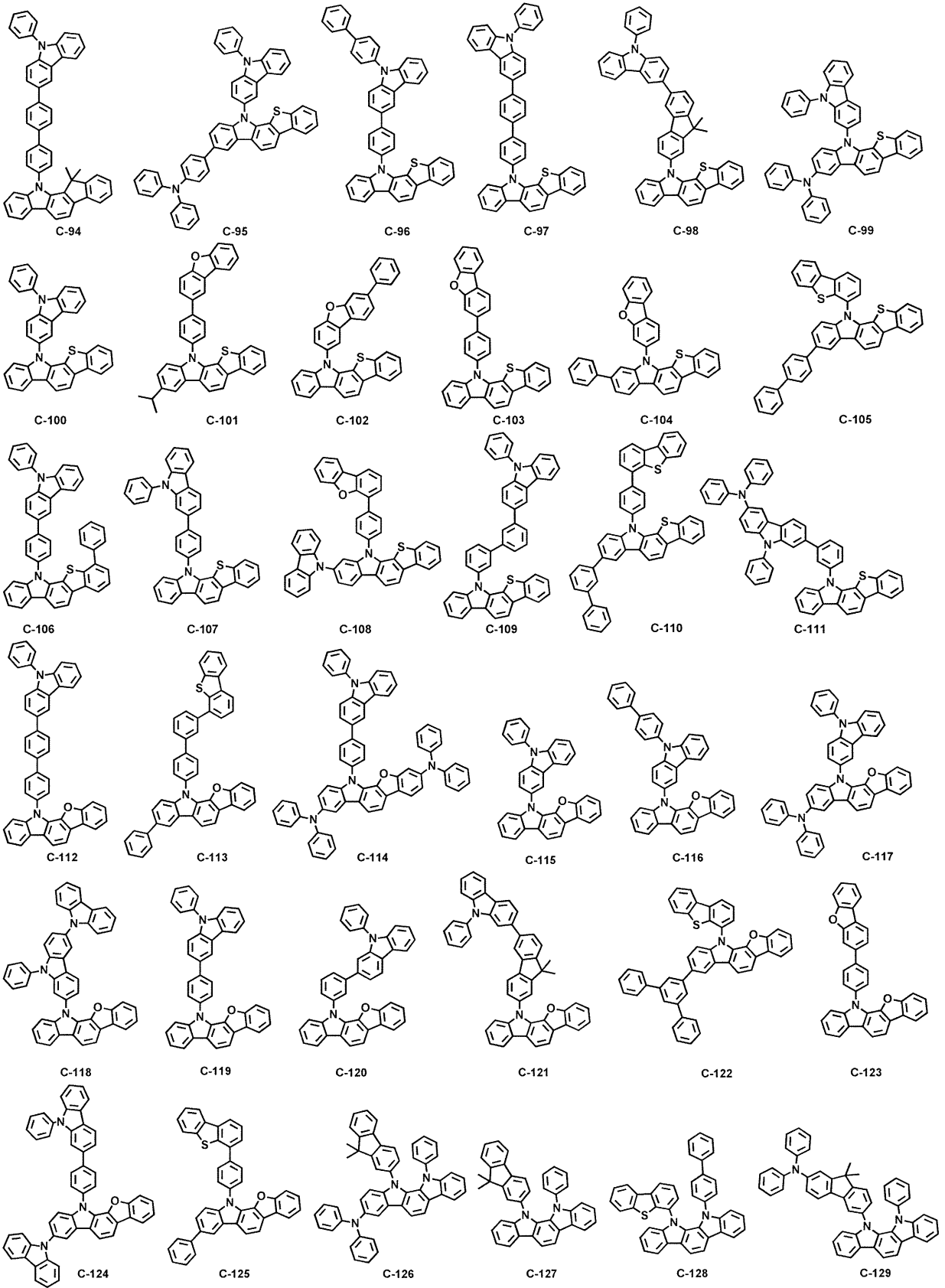


10

20

30

40

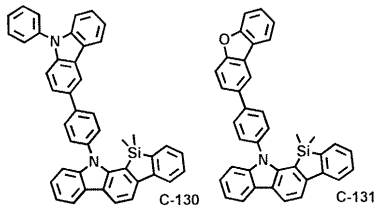


10

20

30

40



からなる群から選択される、請求項 1 記載の有機エレクトロルミネセント化合物。

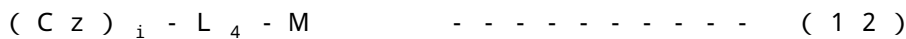
【請求項 7】

請求項 1 記載の有機エレクトロルミネセント化合物を含む有機エレクトロルミネセントデバイス。

10

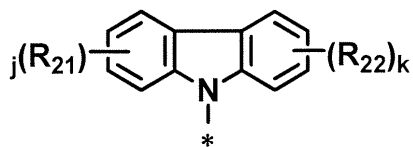
【請求項 8】

第 1 ホスト材料および第 2 ホスト材料を含む有機エレクトロルミネセントデバイスの組成物であって、前記第 1 ホスト材料が請求項 1 記載の有機エレクトロルミネセント化合物を含み、前記第 2 ホスト材料が次式 1 1 および 1 2 :



(式中、  
Cz は

【化 4】



20

を表す；

R<sub>21</sub> および R<sub>22</sub> はそれぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、置換もしくは非置換 (C<sub>1</sub> ~ C<sub>30</sub>) アルキル、置換もしくは非置換 (C<sub>6</sub> ~ C<sub>30</sub>) アリール、置換もしくは非置換 5 ~ 30 員ヘテロアリール、または R<sub>23</sub> R<sub>24</sub> R<sub>25</sub> Si - を表し、ここで、R<sub>23</sub> ~ R<sub>25</sub> はそれぞれ独立して、置換もしくは非置換 (C<sub>1</sub> ~ C<sub>30</sub>) アルキル、または置換もしくは非置換 (C<sub>6</sub> ~ C<sub>30</sub>) アリールを表す；

30

L<sub>4</sub> は、単結合、置換もしくは非置換 (C<sub>6</sub> ~ C<sub>30</sub>) アリーレン、または置換もしくは非置換 5 ~ 30 員ヘテロアリーレンを表す；

M は、置換もしくは非置換 (C<sub>6</sub> ~ C<sub>30</sub>) アリール、または置換もしくは非置換 5 ~ 30 員ヘテロアリールを表す；

h および i はそれぞれ独立して 1 ~ 3 の整数を表す；そして

j および k はそれぞれ独立して 1 ~ 4 の整数を表す)

によって表される化合物から選択される、組成物。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、新規有機エレクトロルミネセント化合物およびそれを含む有機エレクトロルミネセントデバイスに関する。

40

【背景技術】

【0002】

エレクトロルミネセント (EL) デバイスは、より広い視野角、より大きなコントラスト比を提供し、より速い応答時間を有する点で、他の種類のディスプレイ装置に勝る利点を有する自己発光デバイスである。有機 EL デバイスは、芳香族ジアミンである小分子、およびアルミニウム錯体を、発光層を形成するための材料として使用することによって、イーストマン・コダック (Eastman Kodak) によって最初に開発された [Appl. Phys. Lett. 51, 913, 1987]。

50

## 【0003】

有機ELデバイスにおける発光効率を決定するための最も重要な因子は発光材料である。現在までのところ、蛍光発光材料が発光材料として広く使用されている。しかしながら、エレクトロルミネセント機序を考慮して、リン光性発光材料は、理論上は蛍光発光材料よりも4倍高い発光効率を示す。したがって、近年、リン光性発光材料が研究されている。それぞれ赤色、緑色、および青色材料として、ビス(2-(2'-ベンゾチエニル)-ピリジナート-N, C3')イリジウム(アセチルアセトネート) [(acac)Ir(btpp)<sub>2</sub>]、トリス(2-フェニルピリジン)イリジウム [Ir(ppp)<sub>3</sub>] およびビス(4,6-ジフルオロフェニルピリジナート-N, C2)ピコリナートイリジウム (Firpic)をはじめとするイリジウム (III) 錯体がリン光性発光材料として広く知られている。

10

## 【0004】

ルミネセント材料(ドーパント)を発光材料としてのホスト材料と組み合わせて使用して、色純度、発光効率、および安定性を改善することができる。ホスト材料は発光材料としてホスト材料/ドーパント系を使用する場合にELデバイスの効率および性能に大きく影響を及ぼすので、それらの選択は重要である。

## 【0005】

現在のところ、4,4'-N,N'-ジカルバゾール-ビフェニル(CBP)はリン光性物質の最も広く知られているホスト材料である。近年、Pioneer(日本)らは、正孔ブロック層材料として知られていたバトクプロイン(BCP)およびアルミニウム(III)ビス(2-メチル-8-キノリネート)(4-フェニルフェノレート)(BALq)などをホスト材料として使用する高性能有機ELデバイスを開発した。

20

## 【0006】

これらのリン系ホスト材料は良好な発光特性を提供するが、それらは以下の不利益を有する:(1)それらの低いガラス転移温度および不十分な熱安定性のために、真空中での高温蒸着プロセスの間にそれらの劣化が起こる可能性がある。(2)有機ELデバイスの出力効率は[(電圧)×電流効率]によって与えられ、出力効率は電圧に反比例する。リン光性ホスト材料を含む有機ELデバイスは、蛍光材料を含むものよりも高い電流効率(cd/A)を提供するが、著しく高い駆動電圧が必要である。したがって、出力効率(lm/W)の観点からメリットはない。(3)さらに、有機ELデバイスの操作上の寿命は短く、発光効率は依然として改善される必要がある。

30

## 【0007】

その一方で、銅フタロシアニン(CuPc)、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(NPB)、N,N'-ジフェニル-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)、4,4',4''-トリス(3-メチルフェニルフェニルアミノ)トリフェニルアミン(MTDA)などは正孔注入および輸送材料として使用された。

## 【0008】

しかしながら、これらの材料を使用する有機ELデバイスは量子効率および操作上の寿命で問題がある。なぜなら、有機ELデバイスが高電流下で駆動される場合、アノードと正孔注入層との間に熱応力が起こるからである。熱応力はデバイスの操作上の寿命を著しく減少させる。さらに、正孔注入層で使用される有機材料は非常に高い正孔移動度を有するので、正孔-電子電荷バランスが崩れる可能性があり、量子収率(cd/A)が減少する可能性がある。

40

## 【0009】

国際特許公開第WO2009/148015号は、カルバゾール、ジベンゾチオフェン、およびジベンゾフランなどのヘテロアリアルが、インデン、インドール、ベンゾフラン、およびベンゾチオフェンなどのヘテロアリアルと縮合したフルオレン、カルバゾール、ジベンゾフラン、およびジベンゾチオフェンによって形成される多環式化合物の構造の炭素原子の位置で直接結合している有機ELデバイス用の化合物を開示する。

50

## 【 0 0 1 0 】

加えて、米国特許出願公開第 2 0 1 1 / 0 2 7 9 0 2 0 A 1 号は、2つのカルバゾール部分が炭素 - 炭素単結合によって結合している有機エレクトロルミネセント用の化合物を開示する。

## 【 0 0 1 1 】

しかしながら、前記参考文献で開示される化合物を含む有機 E L デバイスは、出力効率、発光効率、量子効率、および寿命において依然として改善される必要がある。

## 【 発明の概要 】

## 【 発明が解決しようとする課題 】

## 【 0 0 1 2 】

本発明の目的は、通常の方法よりも高い発光効率およびより長い操作上の寿命を有する有機エレクトロルミネセント化合物；ならびに前記化合物を使用する、高効率および長寿命を有する有機エレクトロルミネセントデバイスを提供することである。

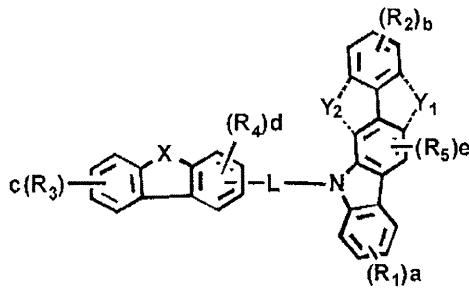
## 【 課題を解決するための手段 】

## 【 0 0 1 3 】

本発明者らは上記目的が次式 1 :

## 【 0 0 1 4 】

## 【 化 1 】



## 【 0 0 1 5 】

(式中、

L は、単結合、置換もしくは非置換 5 ~ 3 0 員ヘテロアリーレン、または置換もしくは非置換 ( C 6 ~ C 3 0 ) アリーレンを表す；

## 【 0 0 1 6 】

X は、 - O - 、 - S - 、 - N ( R 6 ) - 、 - C ( R 7 ) ( R 8 ) - または - S i ( R 9 ) ( R 1 0 ) - を表す；

## 【 0 0 1 7 】

Y 1 および Y 2 はそれぞれ独立して、 - O - 、 - S - 、 - N ( R 6 ) - 、 - C ( R 7 ) ( R 8 ) - または - S i ( R 9 ) ( R 1 0 ) - を表す；ただし、Y 1 および Y 2 は同時に存在しないものとする；

## 【 0 0 1 8 】

R 1 ~ R 5 はそれぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、置換もしくは非置換 ( C 1 ~ C 3 0 ) アルキル、置換もしくは非置換 ( C 6 ~ C 3 0 ) アリール、置換もしくは非置換 5 ~ 3 0 員ヘテロアリール、 - N R 1 1 R 1 2 または - S i R 1 3 R 1 4 R 1 5 を表す；あるいは、隣接する置換基 ( 複数可 ) と結合して、その炭素原子 ( 複数可 ) が窒素、酸素およびイオウからなる群から選択される少なくとも 1 つのヘテロ原子で置換されていてもよい単環式または多環式 3 ~ 3 0 員脂環式または芳香環を形成する；

## 【 0 0 1 9 】

R 6 ~ R 1 5 はそれぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、置換もしくは非置換 ( C 1 ~ C 3 0 ) アルキル、置換もしくは非置換 ( C 6 ~ C 3 0 ) アリール、または置換もしくは非置換 5 ~ 3 0 員ヘテロアリールを表す；あるいは隣接する置換基 ( 複数可 ) と結合して、単環式もしくは多環式 3 ~ 3 0 員脂環式もしくは芳香環を形成する；

## 【 0 0 2 0 】

10

20

30

40

50

a、bおよびcはそれぞれ独立して、1～4の整数を表す；a、bまたはcが2以上の整数である場合、 $R_1$ のそれぞれ、 $R_2$ のそれぞれ、または $R_3$ のそれぞれは同一または異なっているもよい；

【0021】

dは1～3の整数を表し；dが2以上の整数である場合、 $R_4$ のそれぞれは同一または異なっているもよい；

【0022】

eは1または2の整数を表す；eが2である場合、 $R_5$ のそれぞれは同一または異なっているもよい；そして

【0023】

ヘテロアリール(エン)はB、N、O、S、P(=O)、SiおよびPから選択される少なくとも1つのヘテロ原子を含有する)

によって表される有機エレクトロルミネセント化合物によって達成することができることを見出した。

【発明の効果】

【0024】

本発明による有機エレクトロルミネセント化合物は、高発光効率および長い操作上の寿命を有する有機エレクトロルミネセントデバイスを製造することができる。加えて、本発明による有機エレクトロルミネセント化合物を使用して、駆動電圧が低下し、出力効率が改善されたエレクトロルミネセントデバイスを製造することが可能である。

【0025】

発明の実施形態

以下、本発明を詳細に説明する。しかしながら、以下の記載は本発明を説明することを意図し、本発明の範囲を制限することを決して意味しない。

【0026】

以下、上記式1によって表される有機エレクトロルミネセント化合物を詳細に記載する。

【0027】

上記式1中、Lは好ましくは単結合、または置換もしくは非置換(C6～C30)アリーレンを表し、さらに好ましくは単結合、非置換(C6～C15)アリーレン、または(C1～C6)アルキルで置換された(C6～C15)アリーレンを表す。

【0028】

上記式1中、Xは、好ましくは-O-、-S-、-N( $R_6$ )-または-C( $R_7$ )( $R_8$ )-を表し、ここで、 $R_6$ は好ましくは置換もしくは非置換(C6～C30)アリールを表し、さらに好ましくは非置換(C6～C15)アリール、または(C1～C10)アルキルもしくはジ(C6～C15)アリールアミノで置換された(C6～C15)アリールを表す； $R_7$ および $R_8$ は、好ましくはそれぞれ独立して置換もしくは非置換(C1～C30)アルキルを表すか、または互いに結合して単環式もしくは多環式3～30員脂環式または芳香環を形成し、さらに好ましくはそれぞれ独立して非置換(C1～C10)アルキルを表すか、または互いに結合して単環式または多環式3～15員芳香環を形成する。

【0029】

上記式1中、 $Y_1$ および $Y_2$ は好ましくはそれぞれ独立して、-O-、-S-、-N( $R_6$ )-、-C( $R_7$ )( $R_8$ )-、または-Si( $R_9$ )( $R_{10}$ )-を表し、ここで、 $R_6$ は好ましくは置換もしくは非置換(C6～C30)アリール、または置換もしくは非置換5～30員ヘテロアリールを表し、さらに好ましくは非置換(C6～C15)アリール、(C1～C6)アルキルで置換された(C6～C15)アリール、非置換5～15員ヘテロアリール、または(C6～C15)アリールで置換された5～15員ヘテロアリールを表す； $R_7$ および $R_8$ は、好ましくはそれぞれ独立して、置換もしくは非置換(C1～C30)アルキル、置換もしくは非置換(C6～C30)アリールを表すか、または

10

20

30

40

50

互いに結合して単環式もしくは多環式 3 ~ 30 員脂環式または芳香環を形成し、さらに好ましくは、それぞれ独立して、非置換 (C 1 ~ C 10) アルキル、非置換 (C 6 ~ C 15) アリールを表すか、または互いに結合して単環式もしくは多環式 3 ~ 15 員芳香環を形成する；そして R<sub>9</sub> および R<sub>10</sub> は、好ましくはそれぞれ独立して、置換もしくは非置換 (C 1 ~ C 30) アルキル、または置換もしくは非置換 (C 6 ~ C 30) アリールを表し、さらに好ましくはそれぞれ独立して、非置換 (C 1 ~ C 10) アルキル、または非置換 (C 6 ~ C 15) アリールを表す。

## 【0030】

上記式 1 中、R<sub>1</sub> ~ R<sub>5</sub> は、好ましくはそれぞれ独立して、水素、置換もしくは非置換 (C 1 ~ C 30) アルキル、置換もしくは非置換 (C 6 ~ C 30) アリール、置換もしくは非置換 5 ~ 30 員ヘテロアリール、-NR<sub>11</sub>R<sub>12</sub> もしくは -SiR<sub>13</sub>R<sub>14</sub>R<sub>15</sub> を表す；または隣接する置換基 (複数可) と結合して、単環式もしくは多環式 3 ~ 30 員脂環式または芳香環を形成し、さらに好ましくはそれぞれ独立して、水素、非置換 (C 1 ~ C 10) アルキル、非置換 (C 6 ~ C 15) アリール、(C 6 ~ C 15) アリールもしくはジ (C 6 ~ C 15) アリールアミノで置換された (C 6 ~ C 15) アリール、非置換 5 ~ 15 員ヘテロアリール、(C 6 ~ C 15) アリールで置換された 5 ~ 15 員ヘテロアリール、-NR<sub>11</sub>R<sub>12</sub> または -SiR<sub>13</sub>R<sub>14</sub>R<sub>15</sub> を表すか；あるいは隣接する置換基 (複数可) と結合して、単環式または多環式 3 ~ 15 員芳香環を形成する。本明細書中で、R<sub>11</sub> および R<sub>12</sub> は好ましくはそれぞれ独立して、置換もしくは非置換 (C 6 ~ C 30) アリールを表し、さらに好ましくはそれぞれ独立して非置換 (C 6 ~ C 15) アリールを表す；そして R<sub>13</sub>、R<sub>14</sub> および R<sub>15</sub> は好ましくはそれぞれ独立して、置換もしくは非置換 (C 1 ~ C 30) アルキルを表し、さらに好ましくはそれぞれ独立して非置換 (C 1 ~ C 10) アルキルを表す。

10

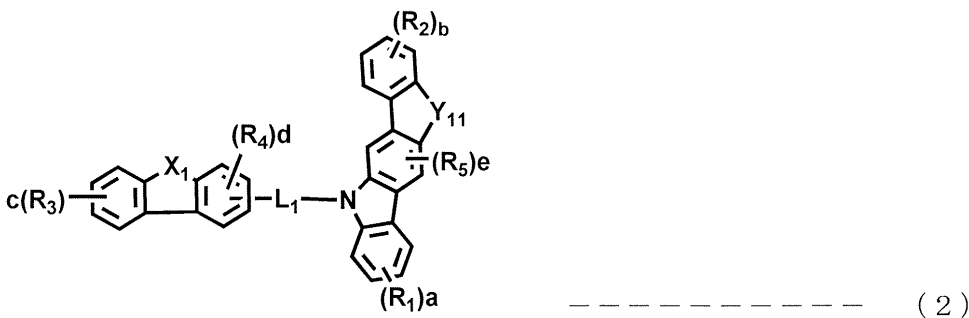
20

## 【0031】

好ましくは、式 1 によって表される有機エレクトロルミネセント化合物は、式 2 ~ 7 から選択される 1 つによって表すことができる：

## 【0032】

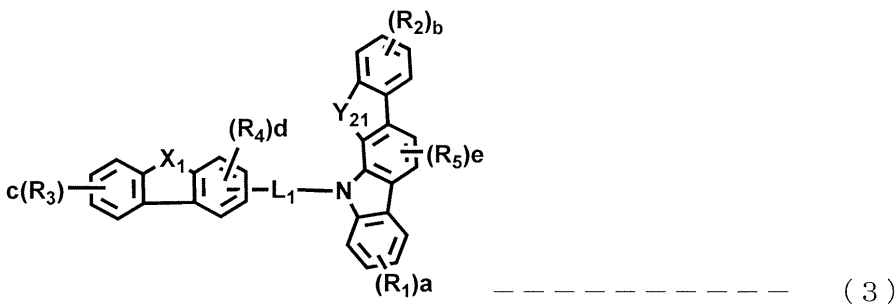
## 【化 2】



30

## 【0033】

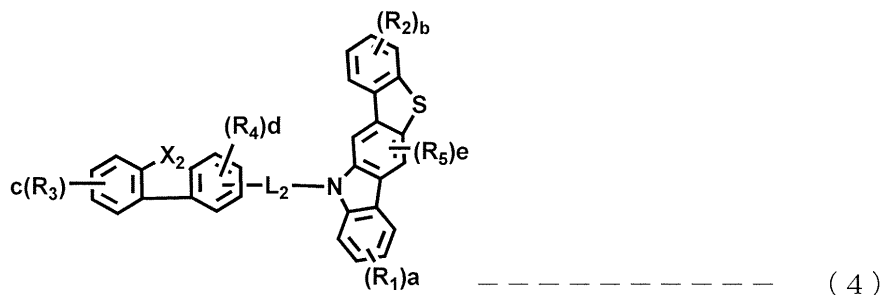
## 【化 3】



40

## 【0034】

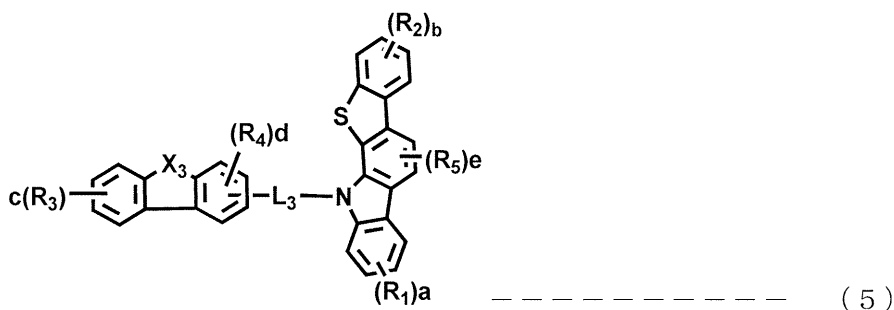
【化4】



【0035】

10

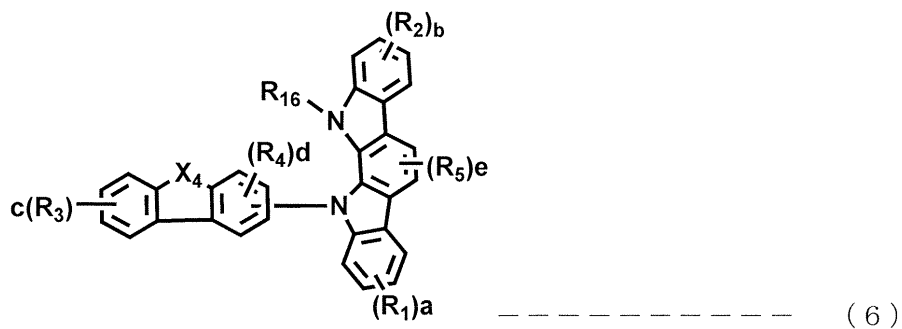
【化5】



20

【0036】

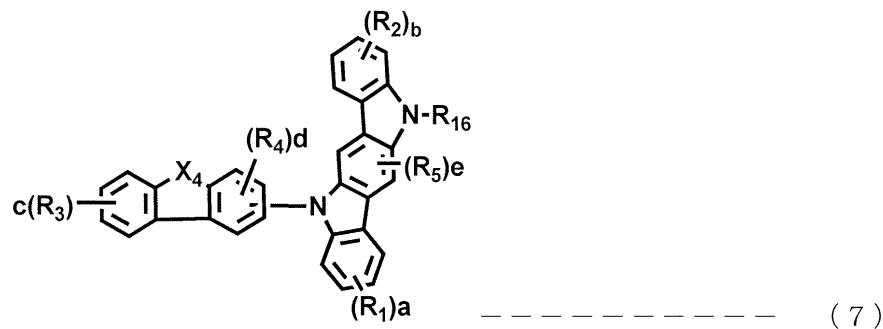
【化6】



30

【0037】

【化7】



40

【0038】

式中、

$Y_{11}$  および  $Y_{21}$  はそれぞれ独立して、 $-O-$ 、 $-C(R_7)(R_8)-$  または  $-Si(R_9)(R_{10})-$  を表す；

【0039】

$L_1$  および  $L_3$  はそれぞれ独立して、単結合、または置換もしくは非置換 ( $C_6 \sim C_{30}$ ) アリーレンを表す； $L_2$  は置換もしくは非置換 ( $C_6 \sim C_{30}$ ) アリーレンを表す；

50

## 【 0 0 4 0 】

$X_1$  および  $X_2$  はそれぞれ独立して、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-N(R_6)$  - または  $-C(R_7)(R_8)$  - を表す； $X_3$  は  $-O-$ 、 $-S-$  または  $-N(R_6)$  - を表す； $X_4$  は  $-S-$ 、 $-N(R_6)$  - または  $-C(R_7)(R_8)$  - を表す；

## 【 0 0 4 1 】

$R_{16}$  は、水素、重水素、ハロゲン、置換もしくは非置換 ( $C1 \sim C30$ ) アルキル、置換もしくは非置換 ( $C6 \sim C30$ ) アリール、または置換もしくは非置換 5 ~ 30 員ヘテロアリールを表す；

## 【 0 0 4 2 】

$R_1 \sim R_{15}$ 、 $a$ 、 $b$ 、 $c$ 、 $d$  および  $e$  は式 1 で定義されるとおりである；ただし、 $R_1$  および  $R_2$  は式 6 および 7 ではカルバゾリル基ではないとする。

## 【 0 0 4 3 】

本明細書中で、「( $C1 \sim C30$ ) アルキル」は、1 ~ 30 個の炭素原子を有する直線状または分枝アルキルであることを意味し、ここで、炭素原子の数は好ましくは 1 ~ 20 であり、さらに好ましくは 1 ~ 10 であり、メチル、エチル、 $n$ -プロピル、イソプロピル、 $n$ -ブチル、イソブチル、*tert*-ブチルなどが挙げられる；「( $C2 \sim C30$ ) アルケニル」は、2 ~ 30 個の炭素原子を有する直線状または分枝アルケニルであることを意味し、ここで、炭素原子の数は好ましくは 2 ~ 20、さらに好ましくは 2 ~ 10 であり、ビニル、1-プロペニル、2-プロペニル、1-ブテニル、2-ブテニル、3-ブテニル、2-メチルプロ-2-エニルなどが挙げられる；「( $C2 \sim C30$ ) アルキニル」は、2 ~ 30 個の炭素原子を有する直線状または分枝アルキニルであり、ここで、炭素原子の数は好ましくは 2 ~ 20 であり、さらに好ましくは 2 ~ 10 であり、エチニル、1-プロピニル、2-プロピニル、1-ブチニル、2-ブチニル、3-ブチニル、1-メチルペン-2-イニルなどが挙げられる；「( $C3 \sim C30$ ) シクロアルキル」は、3 ~ 30 個の炭素原子を有する単環式または多環式炭化水素であり、ここで、炭素原子の数は、好ましくは 3 ~ 20 であり、さらに好ましくは 3 ~ 7 であり、シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げられる；「3 ~ 7 員ヘテロシクロアルキル」は、B、N、O、S、P(=O)、Si および P、好ましくは O、S および N から選択される少なくとも 1 個のヘテロ原子、および 3 ~ 7 個の環骨格原子を有するシクロアルキルであり、テトラヒドロフラン、ピロリジン、チオラン、テトラヒドロピランなどが挙げられる；「( $C6 \sim C30$ ) アリール(エン)」は、6 ~ 30 個の炭素原子を有する芳香族炭化水素から誘導される単環式または縮合環であり、ここで、炭素原子の数は、好ましくは 6 ~ 20 であり、さらに好ましくは 6 ~ 12 であり、フェニル、ピフェニル、ターフェニル、ナフチル、フルオレニル、フェナントレニル、アントラセニル、インデニル、トリフェニレニル、ピレニル、テトラセニル、ペリレニル、クリセニル、ナフタセニル、フルオランテニルなどが挙げられ；「5 ~ 30 員ヘテロアリール(エン)」は、B、N、O、S、P(=O)、Si および P からなる群から選択される少なくとも 1 個、好ましくは 1 ~ 4 個のヘテロ原子ならびに 5 ~ 30 個の環骨格原子を有するアリール基であり；単環式環、または少なくとも 1 つのベンゼン環と縮合した縮合環であり；好ましくは 5 ~ 21 個、さらに好ましくは 5 ~ 15 個の環骨格原子を有し；部分飽和であってよく；少なくとも 1 つのヘテロアリールまたはアリール基をヘテロアリール基に単結合(複数可)を介して結合させることによって形成されるものであってよく；単環式環型ヘテロアリール、例えばフリル、チオフェニル、ピロリル、イミダゾリル、ピラゾリル、チアゾリル、チアジアゾリル、イソチアゾリル、イソキサゾリル、オキサゾリル、オキサジアゾリル、トリアジニル、テトラジニル、トリアゾリル、テトラゾリル、フラザニル、ピリジニル、ピラジニル、ピリミジニル、ピリダジニルなど、および縮合環型ヘテロアリール、例えばベンゾフラニル、ベンゾチオフェニル、イソベンゾフラニル、ジベンゾフラニル、ジベンゾチオフェニル、ベンゾイミダゾリル、ベンゾチアゾリル、ベンゾイソチアゾリル、ベンゾイソキサゾリル、ベンゾキサゾリル、イソインドリル、インドリル、インダゾリル、ベンゾチアジアゾリル、キノリル、イソキノリル、シンノリニル、キナゾリニル、キノキサリニル

10

20

30

40

50

、カルバゾリル、フェノキサジニル、フェナントリジニル、ベンゾジオキサリルなどが挙げられる。さらに、「ハロゲン」は、F、Cl、BrおよびIを包含する。

【0044】

本明細書中では、「置換または非置換」という表現における「置換」とは、ある官能基中の水素原子が別の原子または基、すなわち置換基で置換されていることを意味する。

【0045】

上記式中の置換(C1~C30)アルキルの置換基、および置換(C6~C30)アリール(エン)、および置換5~30員ヘテロアリール(エン)の置換基は、それぞれ独立して、重水素、ハロゲン、シアノ、カルボキシル、ニトロ、ヒドロキシル、(C1~C30)アルキル、ハロ(C1~C30)アルキル、(C6~C30)アリール、5~30員ヘテロアリール、(C6~C30)アリールで置換された5~30員ヘテロアリール、5~30員ヘテロアリールで置換された(C6~C30)アリール、(C3~C30)シクロアルキル、3~7員ヘテロシクロアルキル、トリ(C1~C30)アルキルシリル、トリ(C6~C30)アリールシリル、ジ(C1~C30)アルキル(C6~C30)アリールシリル、(C1~C30)アルキルジ(C6~C30)アリールシリル、(C2~C30)アルケニル、(C2~C30)アルキニル、モノもしくはジ(C1~C30)アルキルアミノ、モノもしくはジ(C6~C30)アリールアミノ、(C1~C30)アルキル(C6~C30)アリールアミノ、ジ(C6~C30)アリールポロニル、ジ(C1~C30)アルキルポロニル、(C1~C30)アルキル(C6~C30)アリールポロニル、(C6~C30)アリール(C1~C30)アルキル、および(C1~C30)アルキル(C6~C30)アリールからなる群から選択される少なくとも1つであり、好ましくはそれぞれ独立して、(C1~C10)アルキル、(C6~C15)アリール、またはジ(C6~C15)アリールアミノからなる群から選択される少なくとも1つである。

10

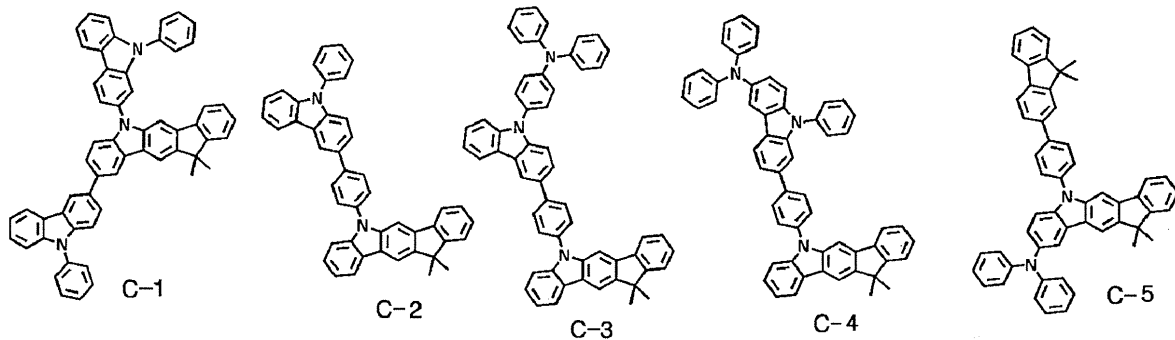
20

【0046】

本発明の代表的な有機エレクトロルミネセント化合物には以下の化合物が含まれる：

【0047】

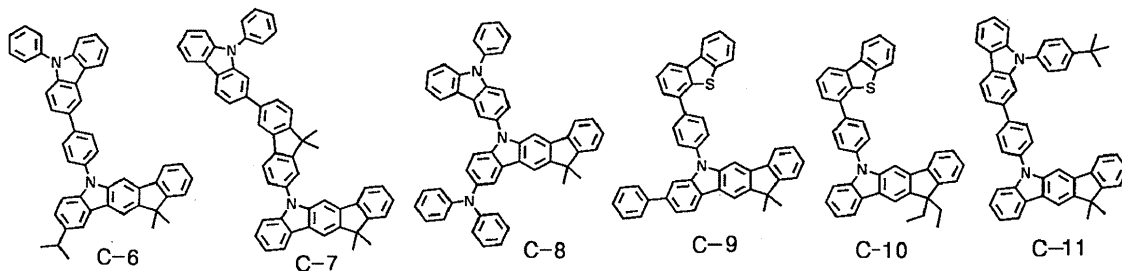
【化8】



30

【0048】

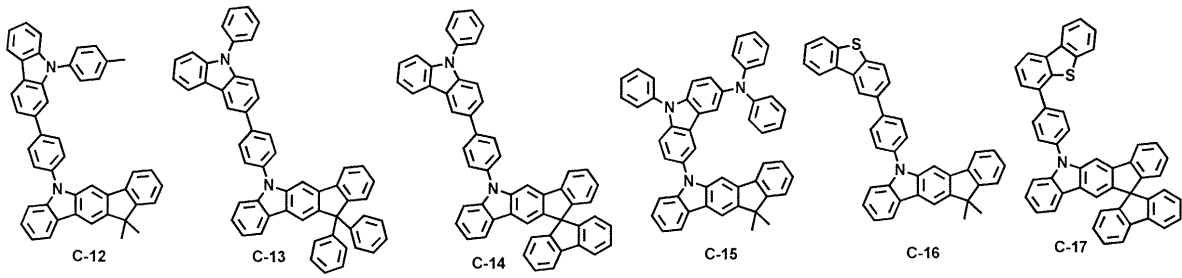
【化9】



40

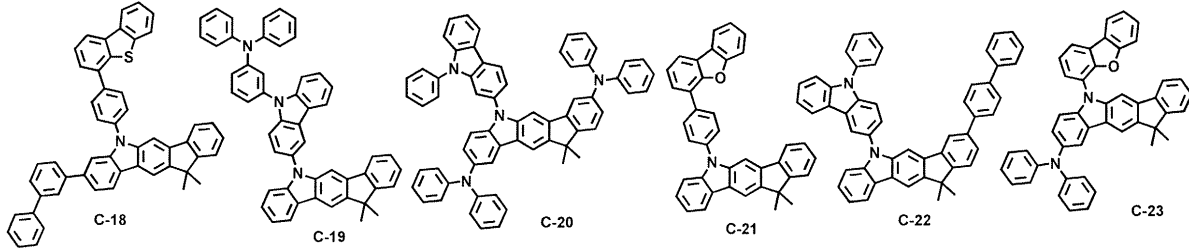
【0049】

【化 1 0】



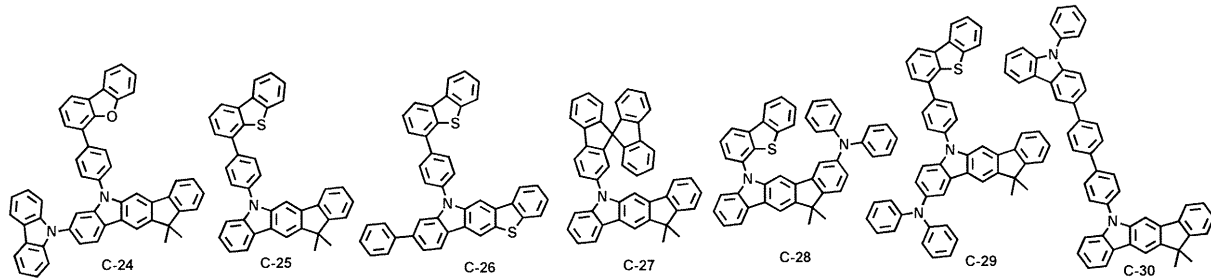
【 0 0 5 0】

【化 1 1】



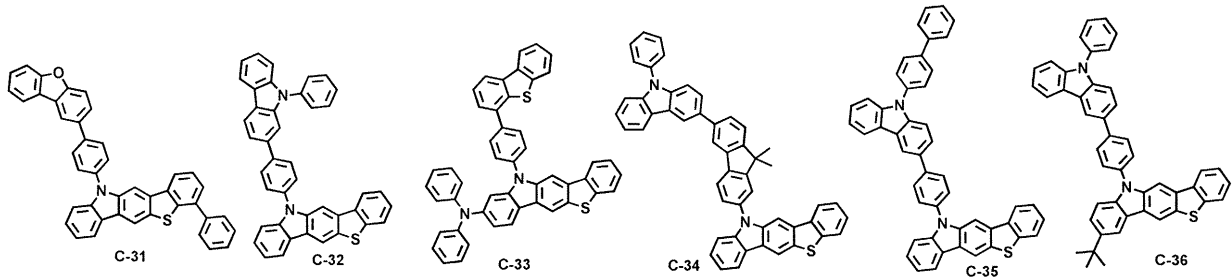
【 0 0 5 1】

【化 1 2】



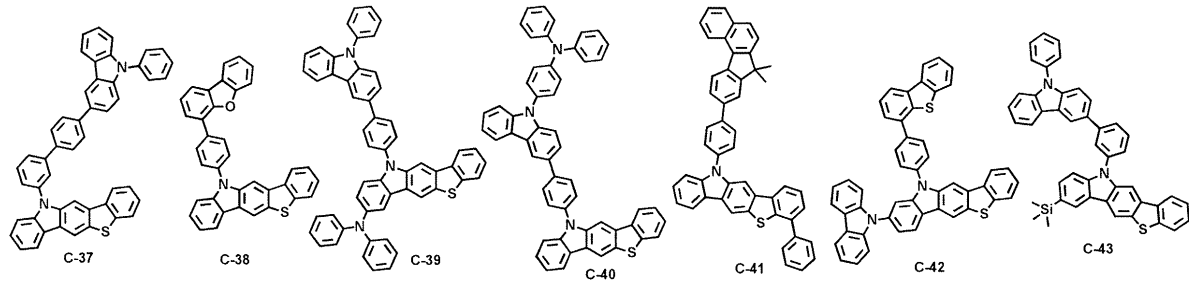
【 0 0 5 2】

【化 1 3】



【 0 0 5 3】

【化 1 4】



【 0 0 5 4】

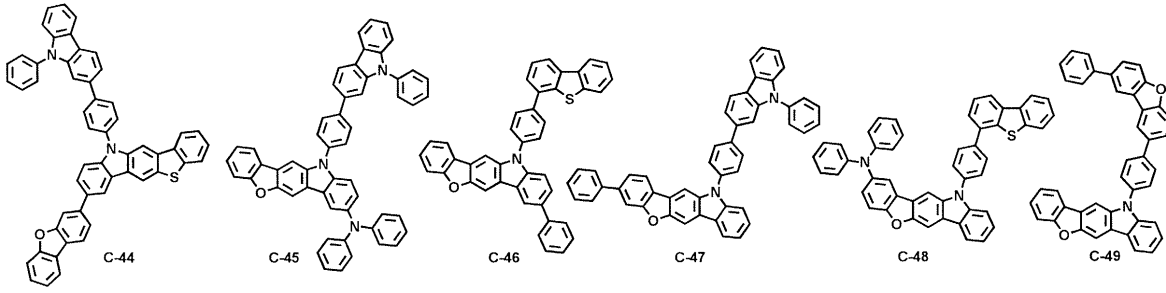
10

20

30

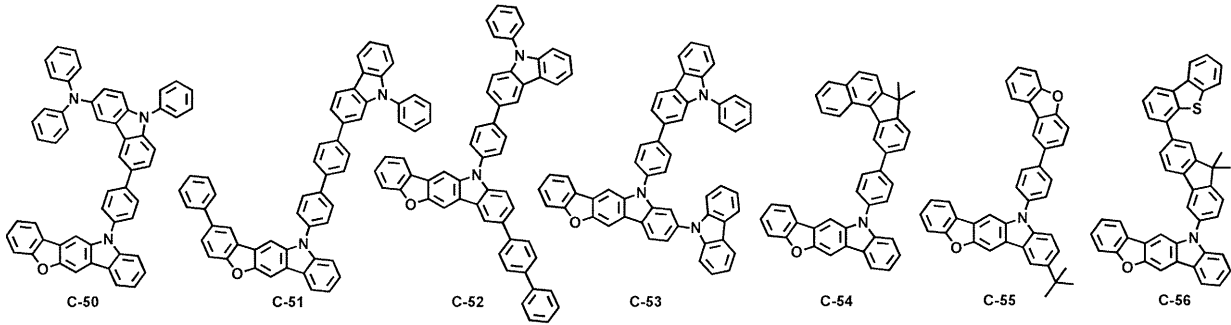
40

【化 1 5】



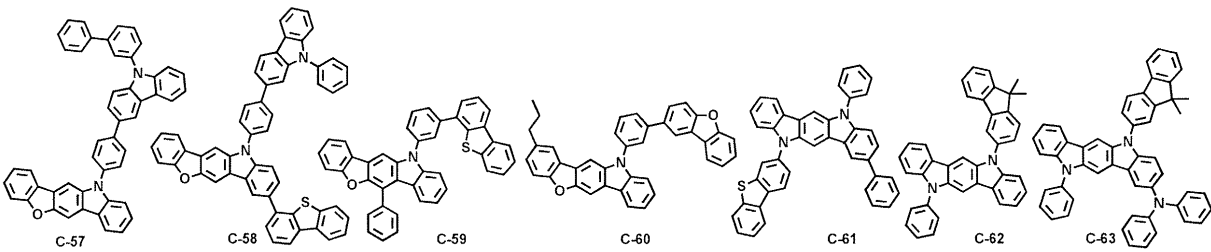
【 0 0 5 5】

【化 1 6】



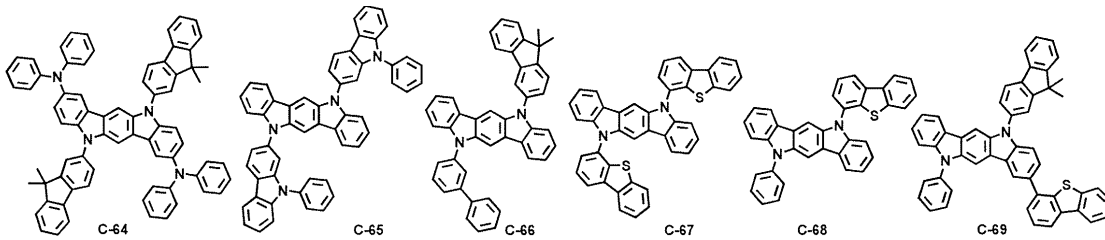
【 0 0 5 6】

【化 1 7】



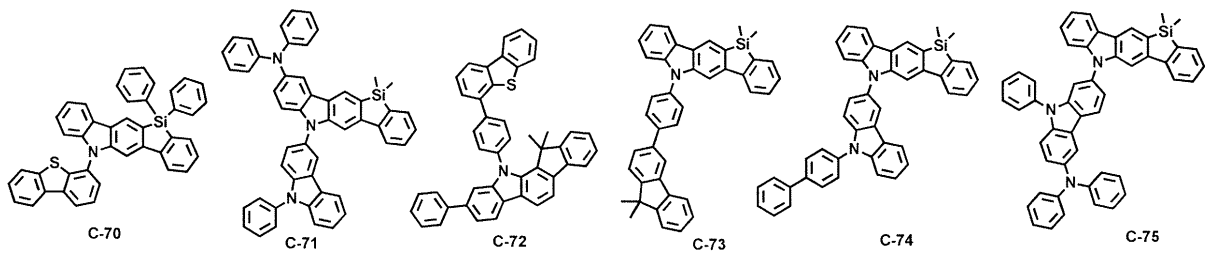
【 0 0 5 7】

【化 1 8】



【 0 0 5 8】

【化 1 9】



【 0 0 5 9】

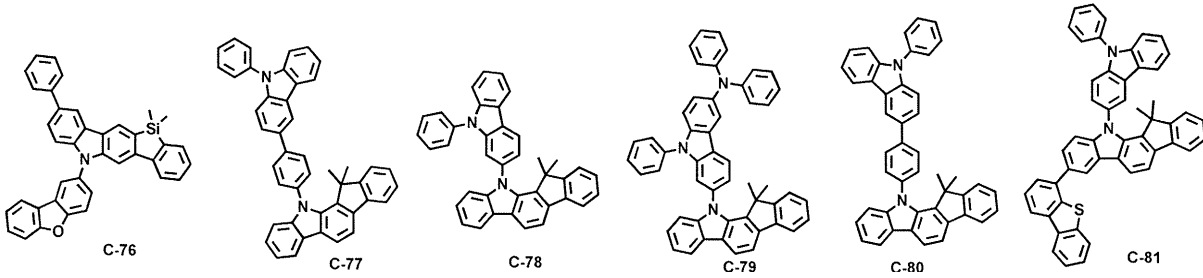
10

20

30

40

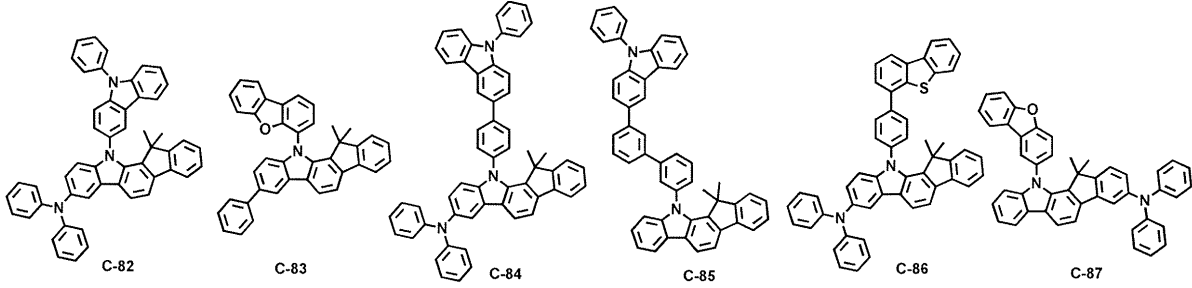
【化 2 0】



【 0 0 6 0】

【化 2 1】

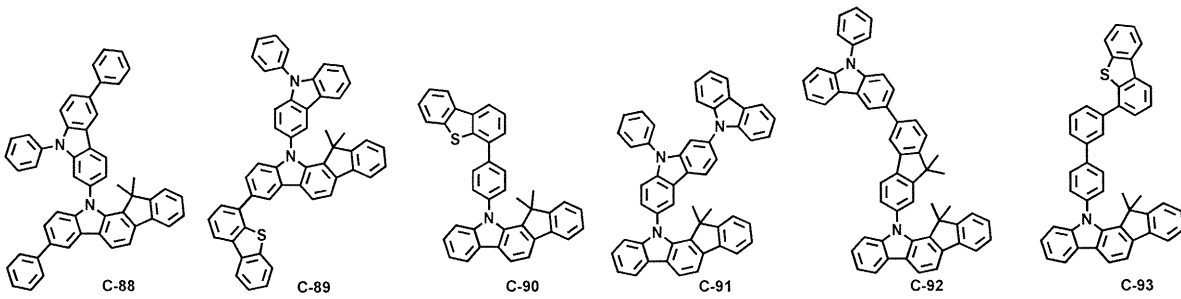
10



【 0 0 6 1】

【化 2 2】

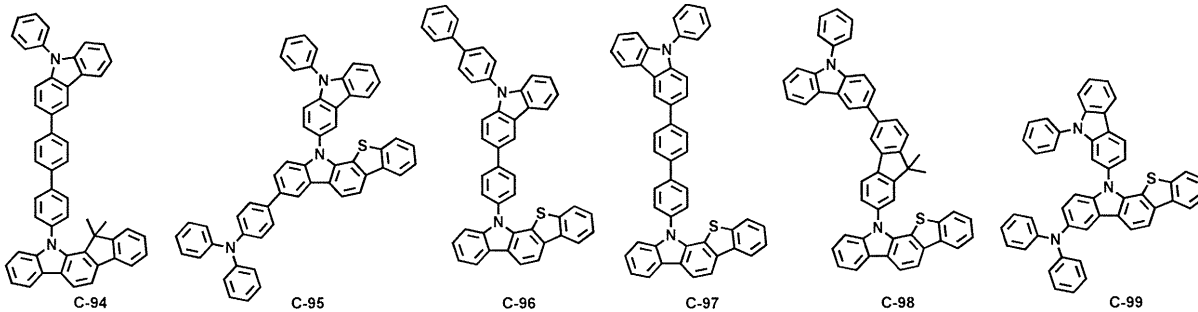
20



30

【 0 0 6 2】

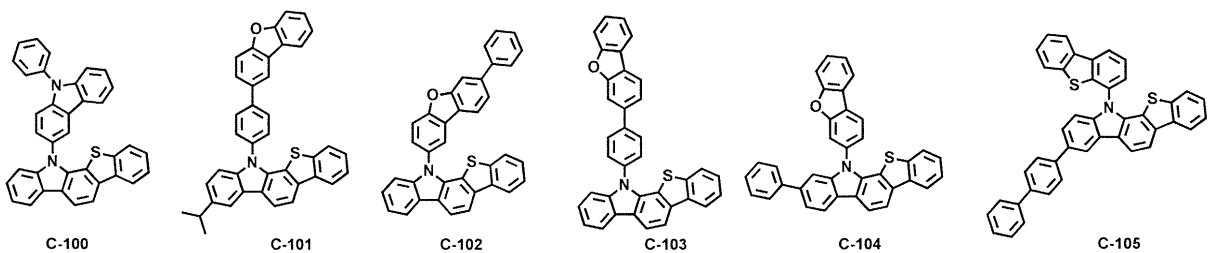
【化 2 3】



40

【 0 0 6 3】

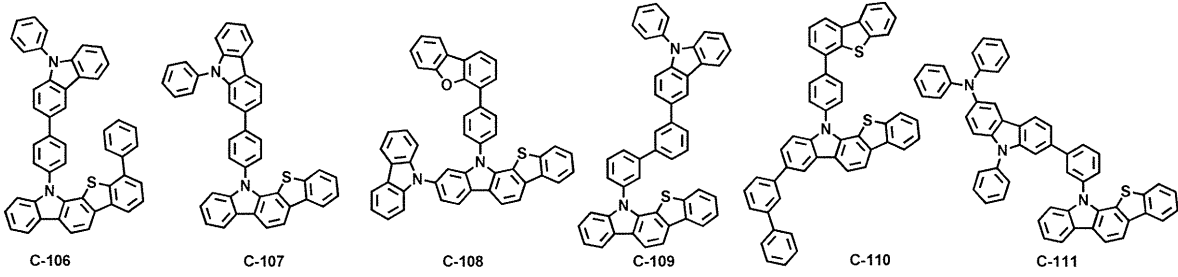
【化 2 4】



【 0 0 6 4】

50

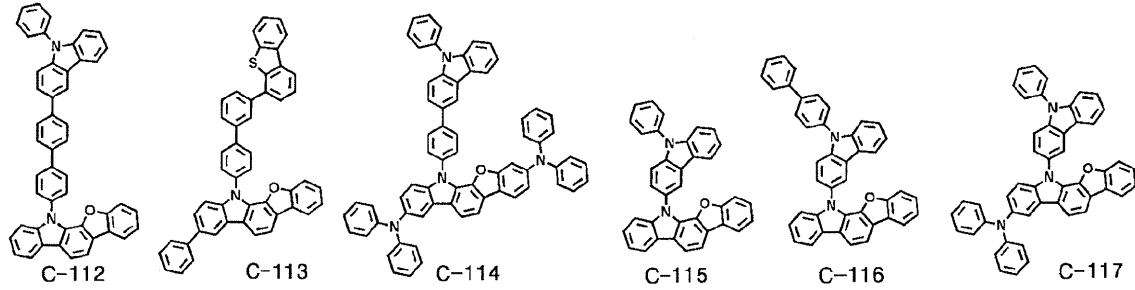
【化 2 5】



【 0 0 6 5】

10

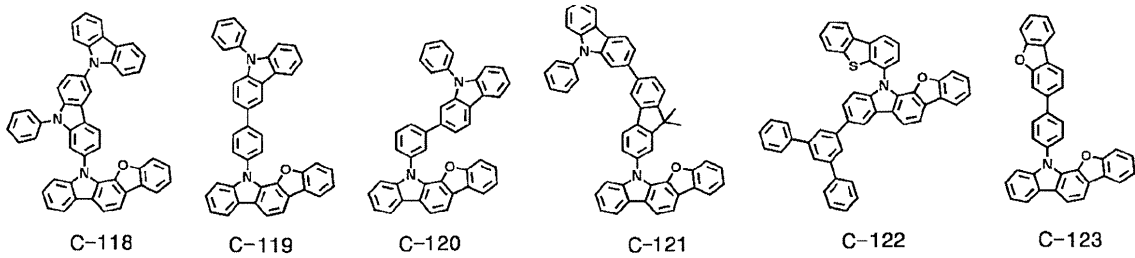
【化 2 6】



【 0 0 6 6】

20

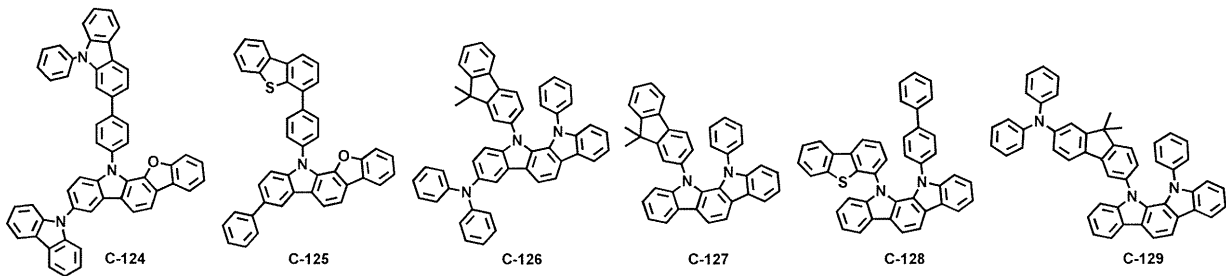
【化 2 7】



【 0 0 6 7】

30

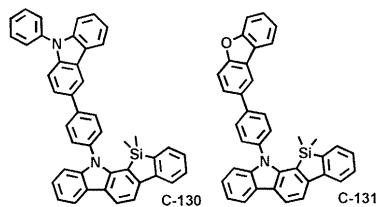
【化 2 8】



【 0 0 6 8】

40

【化 2 9】



【 0 0 6 9】

本発明の有機エレクトロルミネセント化合物は当業者に公知の合成法によって調製する

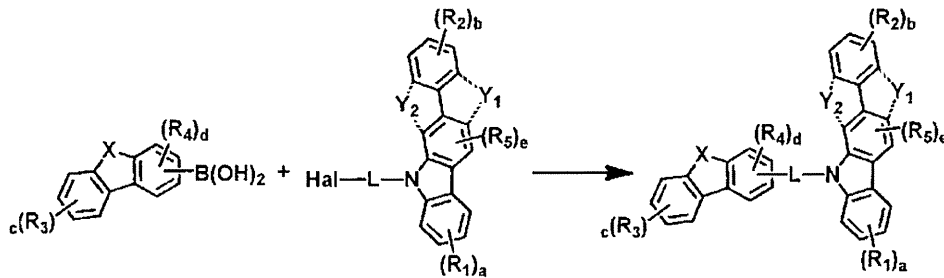
50

ことができる。例えば、それらは以下の反応スキーム 1 または 2 にしたがって調製することができる。

【0070】

[ 反応スキーム 1 ]

【化30】

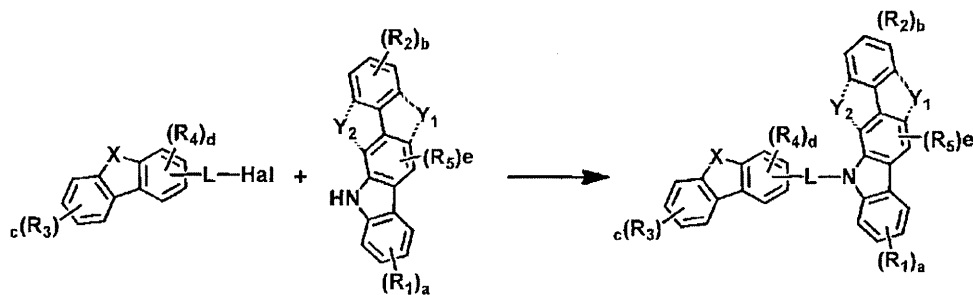


10

【0071】

[ 反応スキーム 2 ]

【化31】



20

【0072】

式中、 $L$ 、 $X$ 、 $Y_1$ 、 $Y_2$ 、 $R_1 \sim R_5$ 、 $a$ 、 $b$ 、 $c$ 、 $d$  および  $e$  は上記式 1 で定義されたとおりであり、 $Hal$  はハロゲンを表す。

【0073】

本発明の別の実施形態は、式 1 の有機エレクトロルミネセント化合物を含む有機エレクトロルミネセントデバイスを提供する。前記有機エレクトロルミネセントデバイスは、第 1 電極と、第 2 電極と、前記第 1 および第 2 電極間の少なくとも 1 つの有機層とを含む。前記有機層は、少なくとも 1 つの本発明による式 1 の有機エレクトロルミネセント化合物を含んでもよい。

30

【0074】

第 1 および第 2 電極の一方はアノードであり、他方はカソードである。有機層は、発光層と、正孔注入層、正孔輸送層、電子輸送層、電子注入層、中間層、および正孔ブロック層からなる群から選択される少なくとも 1 つの層とを含む。

【0075】

式 1 によって表される有機エレクトロルミネセント化合物を、発光層および正孔輸送層のうちの少なくとも 1 つに含めることができる。正孔輸送層で使用される場合、式 1 によって表される有機エレクトロルミネセント化合物を正孔輸送材料として含めることができる。発光層で使用される場合、式 1 によって表される有機エレクトロルミネセント化合物をホスト材料として含めることができる；好ましくは、発光層は少なくとも 1 つのドーパントをさらに含んでもよい；そして必要ならば、式 1 によって表される有機エレクトロルミネセント化合物以外の化合物を第 2 ホスト材料としてさらに含めることができる。

40

【0076】

ドーパントは好ましくは少なくとも 1 つのリン光性ドーパントである。本発明によるエレクトロルミネセントデバイスに適用されるリン光性ドーパント材料は、限定されるもの

50

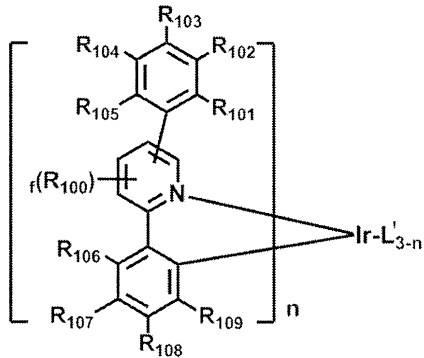
ではないが、好ましくはイリジウム、オスミウム、銅および白金の金属酸 (metallic acid) 錯体化合物から選択され、さらに好ましくはイリジウム、オスミウム、銅および白金のオルト金属酸錯体化合物から選択され、そしてなお一層好ましくはオルト金属酸イリジウム錯体化合物から選択され得る。

【0077】

リン光性ドーパントは、次式 8 ~ 10 によって表される化合物から好ましくは選択され得る。

【0078】

【化32】



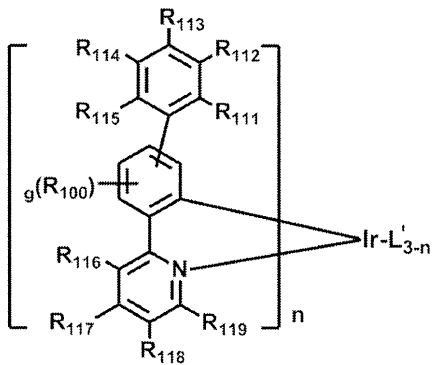
----- (8)

10

20

【0079】

【化33】

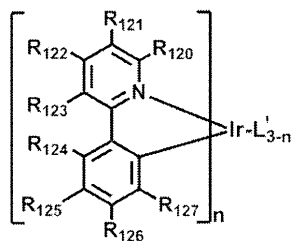


----- (9)

30

【0080】

【化34】



----- (10)

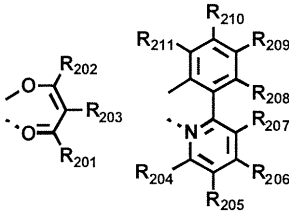
40

【0081】

式中、L' は以下の構造から選択される：

【0082】

【化35】



【0083】

R<sub>100</sub>は、水素、置換もしくは非置換(C1~C30)アルキル基、または置換もしくは非置換(C3-C30)シクロアルキル基を表す；

10

【0084】

R<sub>101</sub>~R<sub>109</sub>、およびR<sub>111</sub>~R<sub>123</sub>はそれぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、非置換もしくはハロゲン(複数可)で置換された(C1~C30)アルキル基、置換もしくは非置換(C3-C30)シクロアルキル基、シアノ基、または置換もしくは非置換(C1~C30)アルコキシ基を表す；R<sub>120</sub>~R<sub>123</sub>の隣接する置換基は互いに結合して、縮合環、例えばキノリンを形成してもよい；

【0085】

R<sub>124</sub>~R<sub>127</sub>はそれぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、置換もしくは非置換(C1~C30)アルキル基、または置換もしくは非置換(C6~C30)アリール基を表す；R<sub>124</sub>~R<sub>127</sub>がアリール基である場合、隣接する置換基を互いに結合させて、縮合環、例えばフルオレンを形成してもよい；

20

【0086】

R<sub>201</sub>~R<sub>211</sub>はそれぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、非置換もしくはハロゲン(複数可)で置換された(C1~C30)アルキル基、または置換もしくは非置換(C3-C30)シクロアルキル基を表す；

【0087】

fおよびgはそれぞれ独立して1~3の整数を表す；fまたはgが2以上の整数である場合、R<sub>100</sub>のそれぞれは同一または異なってもよい；そして

【0088】

nは0~3の整数である。

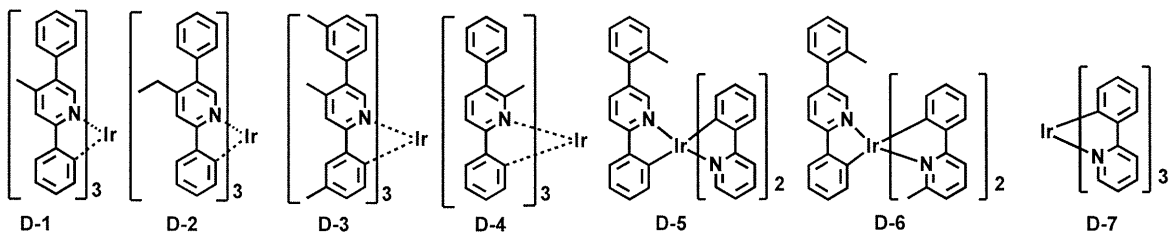
30

【0089】

特に、リン光性ドーパント材料は以下のものを含む；

【0090】

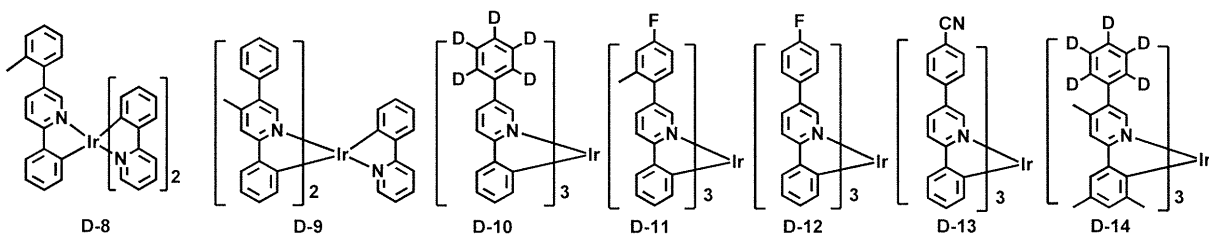
【化36】



40

【0091】

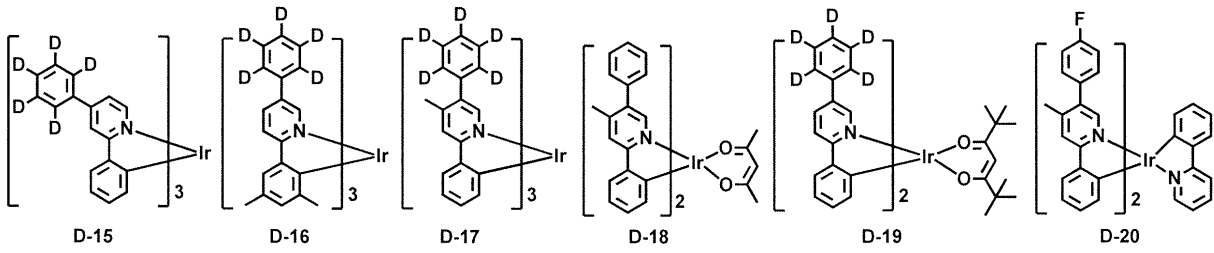
【化37】



50

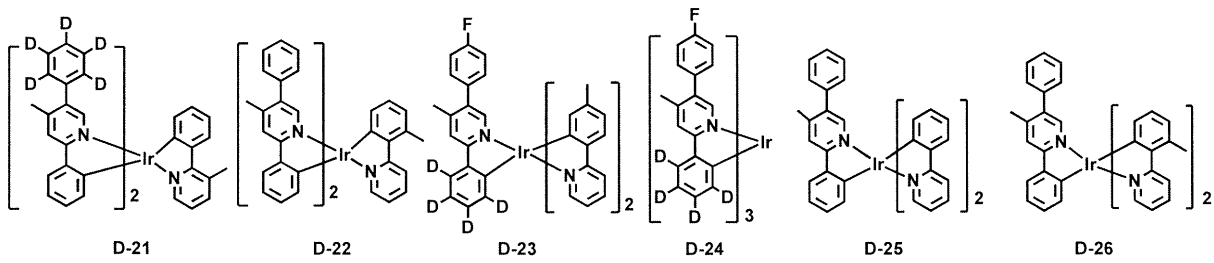
【 0 0 9 2 】

【 化 3 8 】



【 0 0 9 3 】

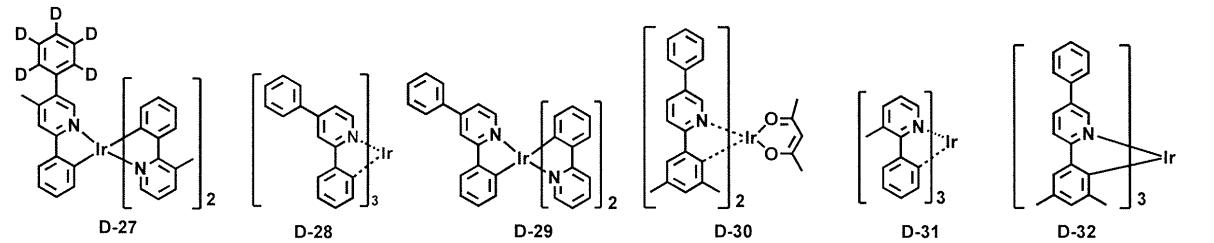
【 化 3 9 】



10

【 0 0 9 4 】

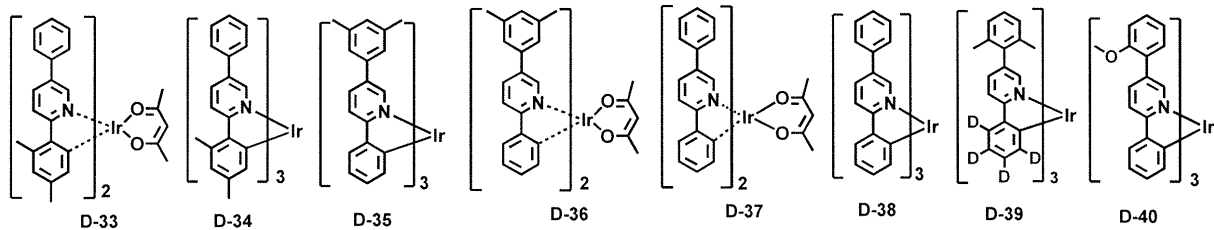
【 化 4 0 】



20

【 0 0 9 5 】

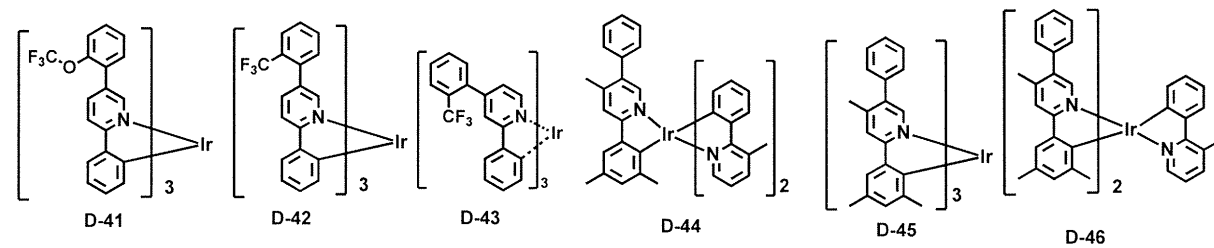
【 化 4 1 】



30

【 0 0 9 6 】

【 化 4 2 】

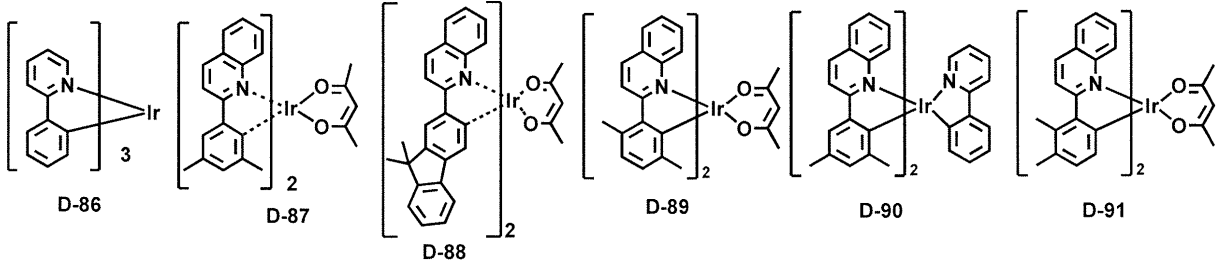


40

【 0 0 9 7 】



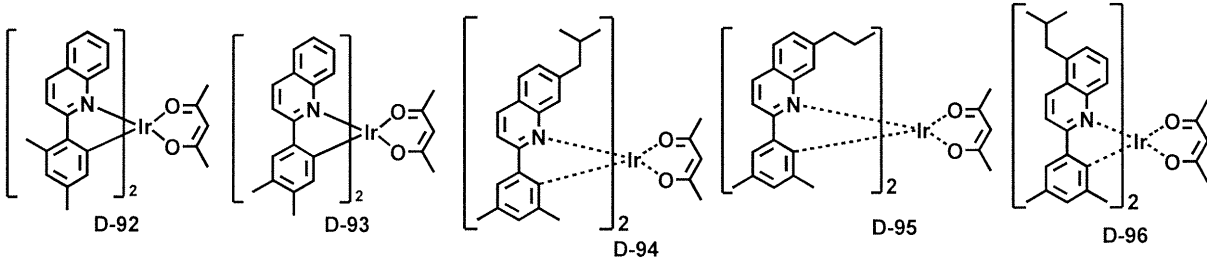
【化 4 9】



【 0 1 0 4】

【化 5 0】

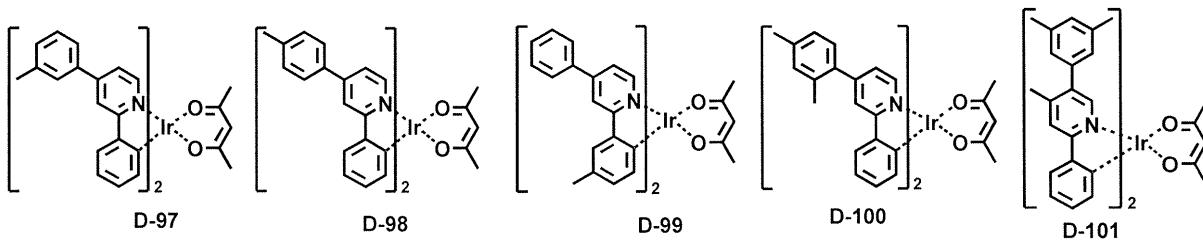
10



【 0 1 0 5】

【化 5 1】

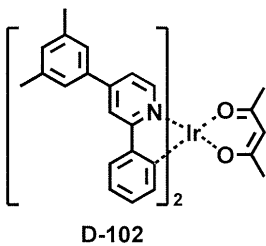
20



【 0 1 0 6】

【化 5 2】

30



【 0 1 0 7】

本発明の別の実施形態は、有機エレクトロルミネセントデバイスを製造するために使用される組成物を提供する。この組成物は第1および第2ホスト材料を含み、本発明による有機エレクトロルミネセント化合物は第1ホスト材料中に含まれる。第1ホスト材料の第2ホスト材料に対する比は、好ましくは1：99～99：1の範囲内であり得る。

40

【 0 1 0 8】

第2ホスト材料は、下記式11または12によって表されるリン光性ホストから選択することができる。

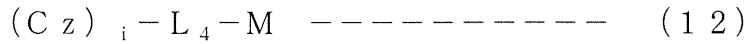
【 0 1 0 9】

【化 5 3】



【 0 1 1 0】

【化54】

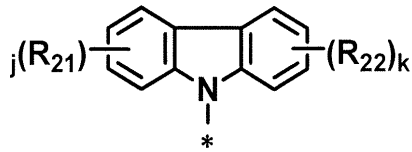


【0111】

式中、Czは以下の構造を有する；

【0112】

【化55】



10

【0113】

$R_{21}$  および  $R_{22}$  はそれぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、置換もしくは非置換 (C1 ~ C30) アルキル、置換もしくは非置換 (C6 ~ C30) アリール、置換もしくは非置換 5 ~ 30 員ヘテロアリール、または  $R_{23} R_{24} R_{25} Si-$  を表し、ここで、 $R_{23} \sim R_{25}$  はそれぞれ独立して、置換もしくは非置換 (C1 ~ C30) アルキル、または置換もしくは非置換 (C6 ~ C30) アリールを表す； $R_{21}$  または  $R_{22}$  のそれぞれは、同一または異なってもよい； $L_4$  は、単結合、置換もしくは非置換 (C6 ~ C30) アリーレン、または置換もしくは非置換 5 ~ 30 員ヘテロアリーレンを表す； $M$  は、置換もしくは非置換 (C6 ~ C30) アリール、または置換もしくは非置換 5 ~ 30 員ヘテロアリールを表す； $h$  および  $i$  はそれぞれ独立して 1 ~ 3 の整数を表す；そして  $j$  および  $k$  はそれぞれ独立して 1 ~ 4 の整数を表す。

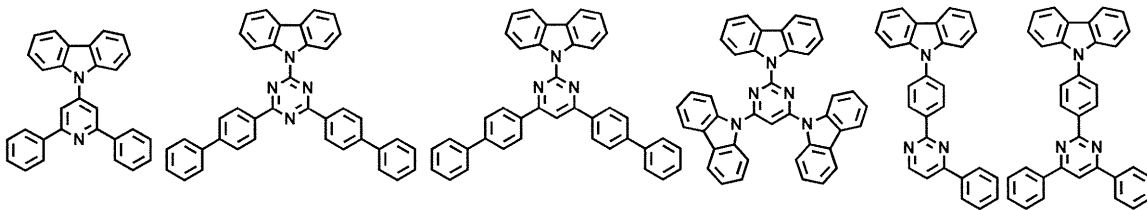
20

【0114】

特に、第2ホスト材料は以下のものを含む；

【0115】

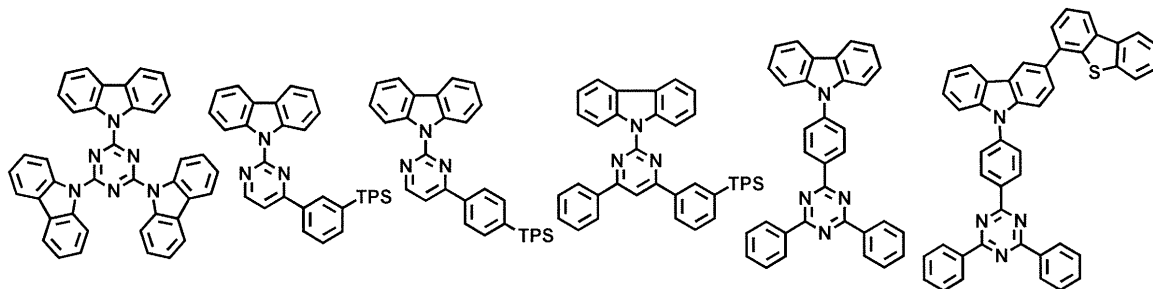
【化56】



30

【0116】

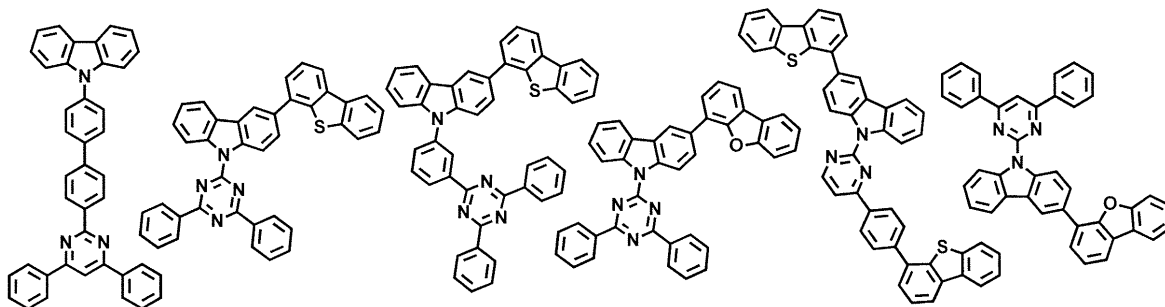
【化57】



40

【0117】

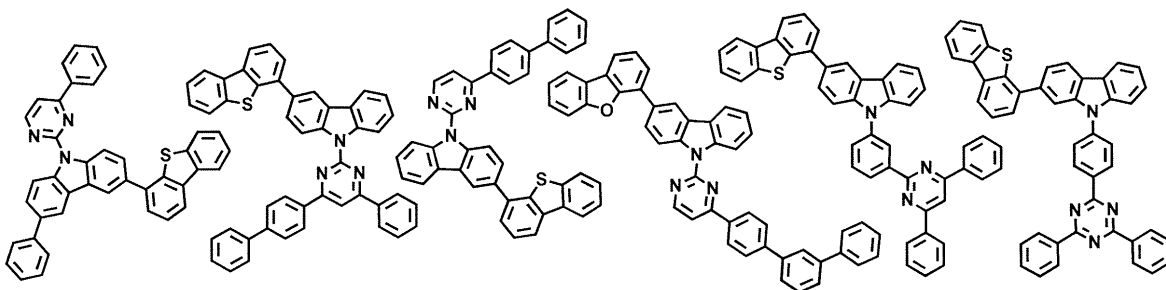
【化 5 8】



【 0 1 1 8】

10

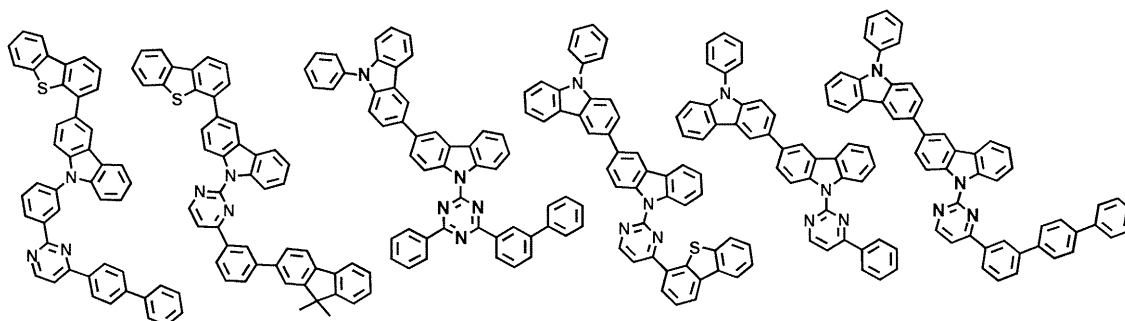
【化 5 9】



【 0 1 1 9】

20

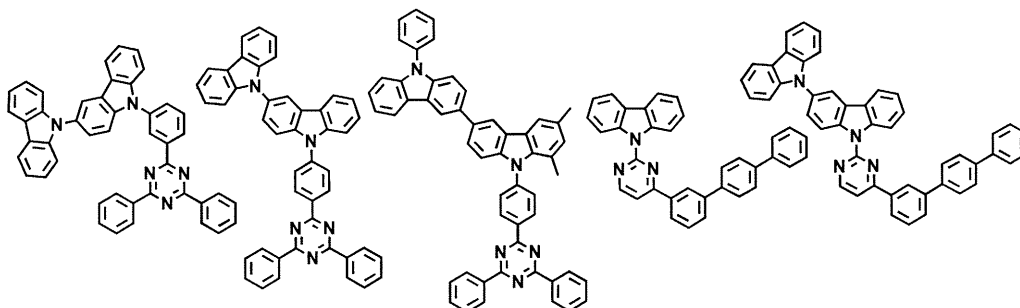
【化 6 0】



【 0 1 2 0】

30

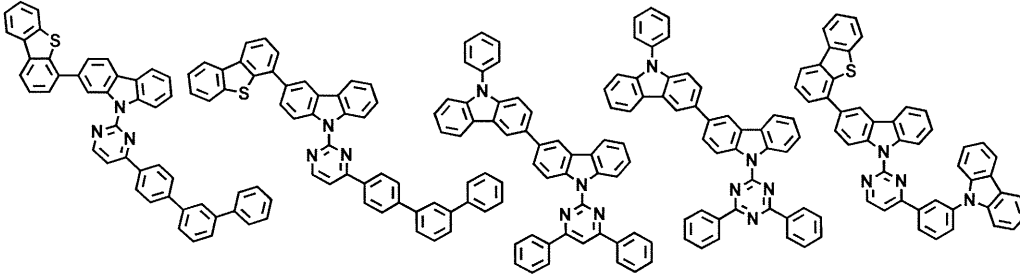
【化 6 1】



【 0 1 2 1】

40

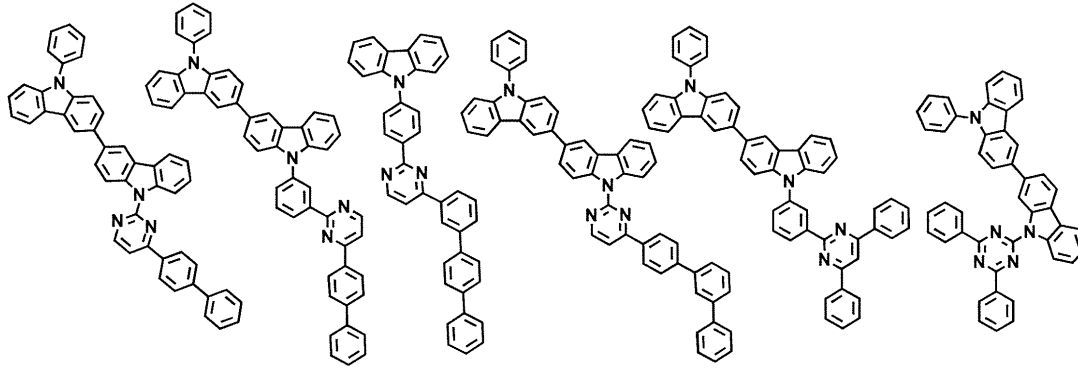
## 【化 6 2】



## 【 0 1 2 2】

10

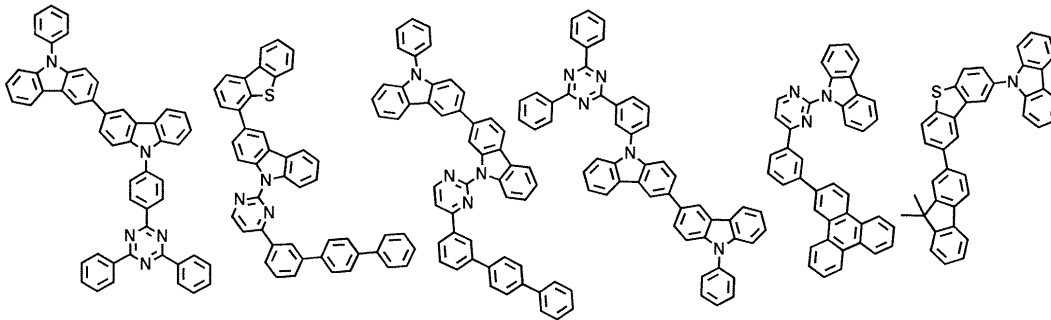
## 【化 6 3】



20

## 【 0 1 2 3】

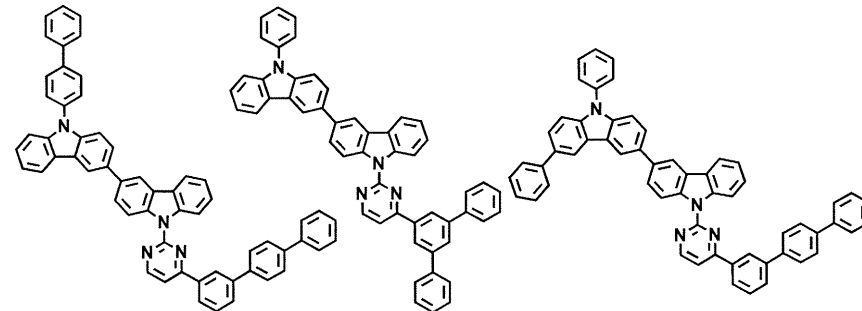
## 【化 6 4】



30

## 【 0 1 2 4】

## 【化 6 5】



40

## 【 0 1 2 5】

加えて、本発明による有機エレクトロルミネセントデバイスは、第1電極と、第2電極と、前記第1および第2電極間の少なくとも1つの有機層とを含む。前記有機層は発光層を含む。前記発光層は、本発明による有機エレクトロルミネセント組成物とリン光性ドーパント材料とを含む。前記有機エレクトロルミネセント組成物は宿主材料として使用される。

50

## 【0126】

本発明による有機エレクトロルミネセントデバイスは、式1によって表される化合物に加えて、アリアルアミン系化合物およびスチリルアリアルアミン系化合物からなる群から選択される少なくとも1つの化合物をさらに含んでもよい。

## 【0127】

本発明による有機エレクトロルミネセントデバイスにおいて、有機層は、1族の金属、2族の金属、第4周期の遷移金属、第5周期の遷移金属、ランタニドおよび周期表のd遷移元素の有機金属、または前記金属を含む少なくとも1つの錯体化合物からなる群から選択される少なくとも1つの金属をさらに含んでもよい。有機層は発光層および電荷発生層をさらに含んでもよい。

10

## 【0128】

加えて、本発明による有機エレクトロルミネセントデバイスは、本発明による有機エレクトロルミネセント化合物に加えて、当該分野で公知の青色エレクトロルミネセント化合物、赤色エレクトロルミネセント化合物または緑色エレクトロルミネセント化合物を含む少なくとも1つの発光層をさらに含むことによって白色発光し得る。さらに、必要ならば、黄色または橙色発光層をデバイス中に含めることができる。

## 【0129】

本発明にしたがって、カルコゲニド層、金属ハロゲン化物層および金属酸化物層から選択される少なくとも1つの層（以下、「表面層」）が好ましくは一方または両方の電極の内面（複数可）上に配置されていてもよい。特に、ケイ素またはアルミニウムのカルコゲニド（酸化物を含む）層が好ましくはエレクトロルミネセント媒体層のアノード表面上に配置され、そして金属ハロゲン化物層または金属酸化物層が好ましくはエレクトロルミネセント媒体層のカソード表面上に配置されている。そのような表面層は、有機エレクトロルミネセントデバイスについて操作安定性を提供する。好ましくは、前記カルコゲニドは、 $SiO_x$ （ $1 < x < 2$ ）、 $AlO_x$ （ $1 < x < 1.5$ ）、 $SiON$ 、 $SiAlON$ などを含み；前記金属ハロゲン化物は、 $LiF$ 、 $MgF_2$ 、 $CaF_2$ 、希土類金属フッ化物などを含み；前記金属酸化物は $Cs_2O$ 、 $Li_2O$ 、 $MgO$ 、 $SrO$ 、 $BaO$ 、 $CaO$ などを含む。

20

## 【0130】

好ましくは、本発明による有機エレクトロルミネセントデバイスにおいて、電子輸送化合物と還元性ドーパントとの混合領域、または正孔輸送化合物と酸化性ドーパントとの混合領域が1対の電極の少なくとも1つの表面上に配置されていてもよい。この場合、電子輸送化合物はアニオンに還元され、したがって混合領域からエレクトロルミネセント媒体への電子の注入および輸送がさらに容易になる。さらに、正孔輸送化合物はカチオンに酸化され、したがって混合領域からエレクトロルミネセント媒体への正孔の注入および輸送がさらに容易になる。好ましくは、酸化性ドーパントは様々なルイス酸およびアクセプタ化合物を含み；還元性ドーパントは、アルカリ金属、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属、希土類金属、およびそれらの混合物を含む。還元性ドーパント層を電荷発生層として用いて、2以上のエレクトロルミネセント層を有し、そして白色発光するエレクトロルミネセントデバイスを調製することができる。

30

40

## 【0131】

本発明による有機エレクトロルミネセントデバイスの各層を形成するために、真空蒸発、スパッタリング、プラズマおよびイオンめっき法などの乾式フィルム形成法、またはスピニング、ディップコーティング、フローコーティングなどの湿式フィルム形成法を使用することができる。

## 【0132】

湿式フィルム形成法を使用する場合、各層を形成する材料を、例えばエタノール、クロロホルム、テトラヒドロフラン、ジオキサンなどの任意の好適な溶媒中に溶解または拡散させることによって薄膜を形成することができる。溶媒は、各層を形成する材料を溶解または拡散させることができ、フィルム形成能に問題のない任意の溶媒であり得る。

50

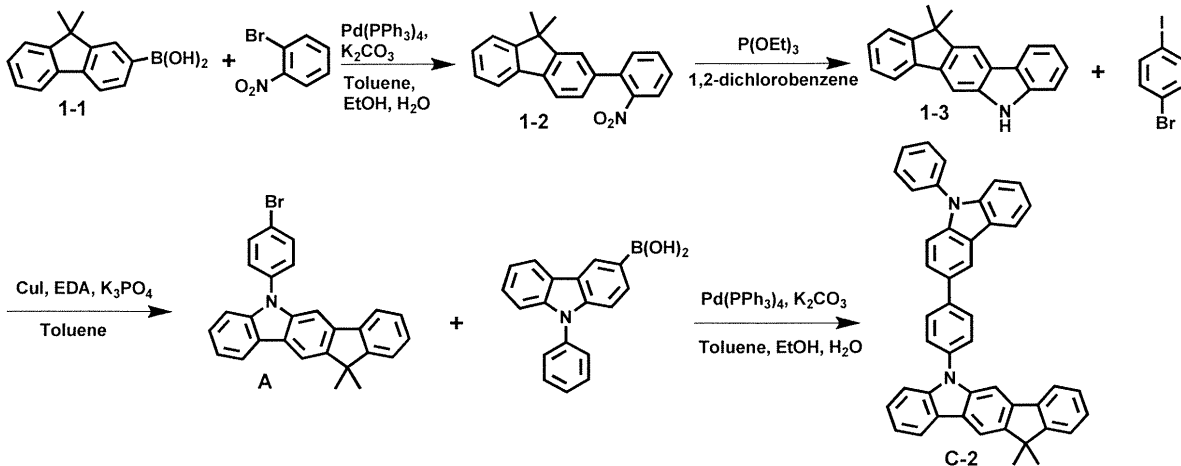
## 【 0 1 3 3 】

以下、有機エレクトロルミネセント化合物、化合物の調製法、およびデバイスの発光特性を、下記実施例を参照して詳細に説明する。

## 【 0 1 3 4 】

## 実施例 1 : 化合物 C - 2 の調製

## 【 化 6 6 】



10

## 【 0 1 3 5 】

## 化合物 1 - 3 の調製

(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)ボロン酸(化合物1-1)40g(168ミリモル)、2-ブロモニトロベンゼン28.3g(140ミリモル)、Pd(PPh<sub>3</sub>)<sub>4</sub> 8.1g(7ミリモル)、およびK<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 58g(420ミリモル)をトルエン1L、エタノール200mLおよび水200mLの混合溶媒中で混合した後、混合物を120で2時間攪拌した。反応混合物を酢酸エチル(EA)/H<sub>2</sub>Oで抽出し、次いで、MgSO<sub>4</sub>で水分を除去し、次いで残存する生成物を減圧下で蒸留した。次いで、残存する生成物をカラムクロマトグラフィーによって精製して、化合物1-2、41g(93%)を得た。

## 【 0 1 3 6 】

1,2-ジクロロベンゼン430mL、およびP(OEt)<sub>3</sub> 430mLを得られた化合物1-2、41g(130モル)に添加した後、混合物を150で3時間攪拌した。次いで、蒸留装置を用いて1,2-ジクロロベンゼンを除去し、反応混合物をEA/H<sub>2</sub>Oで抽出した。次いで、MgSO<sub>4</sub>で水分を除去し、残存する生成物を減圧下で蒸留し、次いでカラムクロマトグラフィーによって精製して、化合物1-3、10.3g(28%)を得た。

30

## 【 0 1 3 7 】

## 化合物 A の調製

化合物1-3、10.3g(36ミリモル)、4-ブロモヨードベンゼン11.3g(40ミリモル)、CuI 3.4g(18ミリモル)、K<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> 23g(108ミリモル)、およびエチレンジアミン4.9mL(72ミリモル)をトルエン180mL中で混合した後、混合物を120で3.5時間攪拌した。反応混合物をEA/H<sub>2</sub>Oによって仕上げ処理し、次いで水分をMgSO<sub>4</sub>で除去し、次いで減圧下で蒸留した。次いで、残存する生成物をカラムクロマトグラフィーによって精製して、化合物A、8.7g(54%)を得た。

40

## 【 0 1 3 8 】

## 化合物 C - 2 の調製

化合物A、4.2g(9.6ミリモル)、(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)ボロン酸3.3g(11.5ミリモル)、Pd(PPh<sub>3</sub>)<sub>4</sub> 0.5g(0.48ミリモル)、およびK<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 3.3g(24ミリモル)を、トルエン60mL、エ

50

タノール 15 mL および水 15 mL の混合溶媒中で混合した後、混合物を 120 で 2 時間攪拌した。反応混合物を EA / H<sub>2</sub>O で抽出し、次いで、MgSO<sub>4</sub> で水分を除去し、次いで残存する生成物を減圧下で蒸留した。次いで、残存する生成物をカラムクロマトグラフィーによって精製して、化合物 C - 2、4 g (70%) を得た。

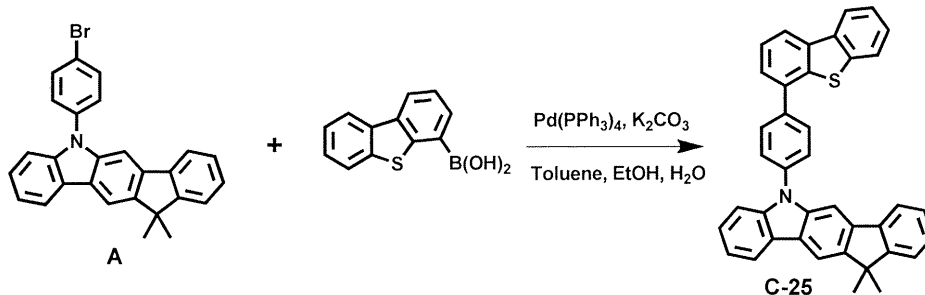
【0139】

MS / FAB 実測値 600.7 ; 計算値 600.26

【0140】

実施例 2 : 化合物 C - 25 の調製

【化 67】



10

【0141】

化合物 A、4.5 g (10.3 ミリモル)、ジベンゾ [b, d] チオフェン - 4 - イルボロン酸 2.8 g (12.3 ミリモル)、Pd(PPh<sub>3</sub>)<sub>4</sub> 0.6 g (0.5 ミリモル)、および K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 3.6 g (26 ミリモル) を、トルエン 60 mL、エタノール 15 mL および水 15 mL の混合溶媒中で混合した後、混合物を 120 で 2 時間攪拌した。反応混合物を EA / H<sub>2</sub>O で抽出し、次いで、MgSO<sub>4</sub> で水分を除去し、次いで残存する生成物を減圧下で蒸留した。次いで、残存する生成物をカラムクロマトグラフィーによって精製して、化合物 C - 25、4 g (73%) を得た。

20

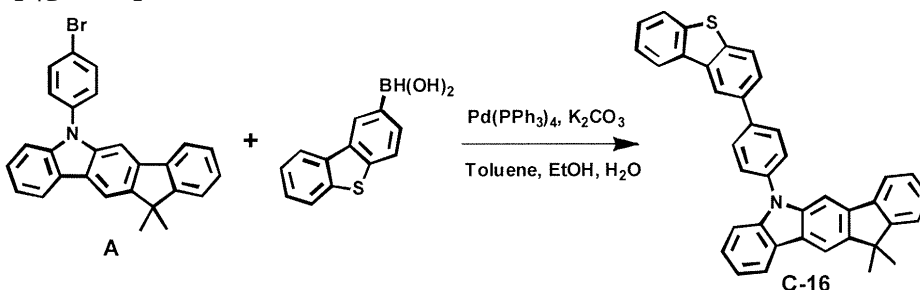
【0142】

MS / FAB 実測値 541.7 ; 計算値 541.19

【0143】

実施例 3 : 化合物 C - 16 の調製

【化 68】



30

【0144】

化合物 A、5.0 g (11 ミリモル)、ジベンゾ [b, d] チオフェン - 4 - イルボロン酸 4 g (16 ミリモル)、Pd(PPh<sub>3</sub>)<sub>4</sub> 0.6 g (0.5 ミリモル)、および K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 4.5 g (33 ミリモル) を、トルエン 40 mL、エタノール 20 mL および水 20 mL の混合溶媒中で混合した後、混合物を 120 で 12 時間攪拌した。反応混合物を EA / H<sub>2</sub>O で抽出し、次いで、MgSO<sub>4</sub> で水分を除去し、次いで残存する生成物を減圧下で蒸留した。次いで、残存する生成物をカラムクロマトグラフィーによって精製して、化合物 C - 16、2 g (34%) を得た。

40

【0145】

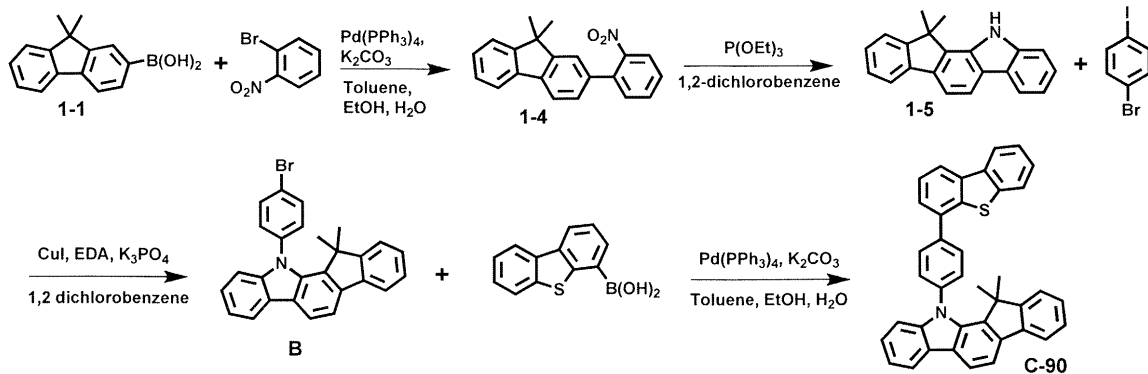
MS / FAB 実測値 541.7 ; 計算値 541.19

【0146】

50

## 実施例 4 : 化合物 C - 90 の調製

## 【化 6 9】



10

## 【0147】

## 化合物 B の調製

化合物 1 - 5、40 g (49%) を、前述の化合物 1 - 3 の製造においてと同じ方法によって得た。次いで、化合物 1 - 5、33.5 g (11.8 ミリモル)、1 - ブロモ - 4 - ヨードベンゼン 67 g (23.6 ミリモル)、CuI (11 g、0.177 モル)、18 - クラウン - 6 (2.5 g、0.009 モル)、および  $K_2CO_3$  (98 g、0.709 モル) を 1, 2 - ジクロロベンゼン 1 L 中に溶解させた後、化合物 B、35 g (68%) を、前述の化合物 A の製造においてと同じ方法によって得た。

20

## 【0148】

## 化合物 C - 90 の調製

化合物 B、10.6 g (24 ミリモル)、ジベンゾ [ b , d ] チオフェン - 4 - イルボン酸 6.6 g (29 ミリモル)、 $Pd(PPh_3)_4$  1.6 g (1.4 ミリモル)、および  $K_2CO_3$  10 g (72 ミリモル) を、トルエン 720 mL、エタノール 36 mL および水 36 mL の混合溶媒中で混合した後、混合物を 120 で 5 時間攪拌した。反応混合物を EA /  $H_2O$  で抽出し、次いで、 $MgSO_4$  で水分を除去し、次いで残存する生成物を減圧下で蒸留した。次いで、残存する生成物をカラムクロマトグラフィーによって精製して、化合物 C - 90、8 g (60%) を得た。

## 【0149】

MS / FAB 実測値 541.7 ; 計算値 541.19

30

## 【0150】

デバイス実施例 1 : 本発明による有機エレクトロルミネセント化合物を使用した OLED デバイスの製造

本発明による有機エレクトロルミネセント化合物を使用して OLED デバイスを製造した。有機発光ダイオード (OLED) デバイス (Samsung Corning、大韓民国) 用のガラス基板上の透明電極インジウムスズ酸化物 (ITO) 薄膜 (15 / sq) を、トリクロロエチレン、アセトン、エタノールおよび蒸留水を連続して用いた超音波洗浄に供し、次いでイソプロパノール中で保管した。次いで、ITO 基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに取り付けた。N<sup>1</sup>, N<sup>1'</sup> - ([1, 1' - ビフェニル] - 4, 4' - ジイル) ビス (N<sup>1</sup> - (ナフタレン - 1 - イル) - N<sup>4</sup>, N<sup>4</sup> - ジフェニルベンゼン - 1, 4 - ジアミン) を前記真空蒸着装置のセルに導入し、次いで前記装置のチャンパー中の圧力を  $10^{-6}$  torr に制御した。その後、セルに電流をかけて、上記導入物質を蒸発させ、それによって、ITO 基板の上に 60 nm の厚さを有する正孔注入層を形成した。次いで、化合物 C - 2 を前記真空蒸着装置の別のセルに導入し、セルに電流をかけることによって蒸発させ、それによって正孔注入層上に 20 nm の厚さを有する正孔輸送層を形成した。その後、9 - (3 - (4, 6 - ビフェニル - 1, 3, 5 - トリアジン - 2 - イル) フェニル) - 9' - フェニル - 9H, 9' H - 3, 3' - ビカルバゾールを真空蒸着装置の 1 つのセル中にホスト材料として導入し、化合物 D - 1 を別のセル中にドーパントとして導入した。2 つの材料を異なる速度で蒸発させ、ホストおよびドーパントの総量に基づ

40

50

いて15重量%のドーピング量で堆積させて、正孔輸送層上に30nmの厚さを有する発光層を形成した。次いで、2-(4-(9,10-ジ(ナフタレン-2-イル)アントラセン-2-イル)フェニル)-1-フェニル-1H-ベンゾ[d]イミダゾールを1つのセルに導入し、リチウムキノレートを別のセルに導入した。2つの材料を同じ速度で蒸発させ、それぞれ50重量%のドーピング量で堆積させて、30nmの厚さを有する電子輸送層を発光層上に形成した。次いで、リチウムキノレートを、2nmの厚さを有する電子注入層として電子輸送層上に堆積させた後、150nmの厚さを有するAlカソードを別の真空蒸着装置によって電子注入層上に堆積させた。このように、OLEDデバイスを製造した。OLEDデバイスを製造するために使用したすべての材料は、使用前に $10^{-6}$  torrでの真空昇華によって精製した。

10

## 【0151】

製造されたOLEDデバイスは、 $5550\text{cd}/\text{m}^2$ の輝度および $12.3\text{mA}/\text{cm}^2$ の電流密度を有する緑色発光を示した。

## 【0152】

デバイス実施例2：本発明による有機エレクトロルミネセント化合物を使用するOLEDデバイスの製造

化合物C-25を正孔輸送層材料として使用する以外は、デバイス実施例1においてと同じ方法でOLEDデバイスを製造した。

## 【0153】

製造されたOLEDデバイスは、 $7020\text{cd}/\text{m}^2$ の輝度および $15.9\text{mA}/\text{cm}^2$ の電流密度を有する緑色発光を示した。

20

## 【0154】

デバイス実施例3：本発明による有機エレクトロルミネセント化合物を使用するOLEDデバイスの製造

20nmの厚さを有するN,N'-ジ(4-ピフェニル)-N,N'-ジ(4-ピフェニル)-4,4'-ジアミノピフェニルを使用して正孔輸送層を堆積させ；化合物C-2および9-(4,6-ジ(ピフェニル-4-イル)-1,3,5-トリアジン-2-イル)-9H-カルバゾールを異なるセル中、同じ速度で蒸発させ、それぞれ50重量%のドーピング量で堆積させて、ホスト材料として使用し、そして化合物D-31をホストおよびドパントの総量に基づいて15重量%のドーピング量で堆積させて、正孔輸送層上に30nmの厚さを有する発光層を形成する以外は、デバイス実施例1においてと同じ方法でOLEDデバイスを製造した。

30

## 【0155】

製造されたOLEDデバイスは、 $3215\text{cd}/\text{m}^2$ の輝度および $7.3\text{mA}/\text{cm}^2$ の電流密度を有する緑色発光を示した。

## 【0156】

デバイス実施例4：本発明による有機エレクトロルミネセント化合物を使用するOLEDデバイスの製造

化合物C-25および9-(4,6-ジ(ピフェニル-4-イル)-1,3,5-トリアジン-2-イル)-9H-カルバゾールを異なるセル中で同じ速度で蒸発させ、それぞれ50重量%のドーピング量で堆積させ、ホスト材料として使用する以外はデバイス実施例3においてと同じ方法でOLEDデバイスを製造した。

40

## 【0157】

製造されたOLEDデバイスは、 $2388\text{cd}/\text{m}^2$ の輝度および $5.2\text{mA}/\text{cm}^2$ の電流密度を有する緑色発光を示した。

## 【0158】

比較例1：通常の有機エレクトロルミネセント化合物を使用するOLEDデバイスの製造

20nmの厚さを有するN,N'-ジ(4-ピフェニル)-N,N'-ジ(4-ピフェニル)-4,4'-ジアミノピフェニルを使用し、ホスト材料として4,4'-N,N'

50

- ジカルバゾール - ビフェニルを使用し、そして発光材料用のドーパントとして化合物 D - 7 を使用して、正孔輸送層を堆積させて、正孔輸送層上に 30 nm の厚さを有する発光層を形成し、そしてアルミニウム ( I I I ) ビス ( 2 - メチル - 8 - キノリナート ) 4 - フェニルフェノレート を堆積させて、発光層上に 10 nm の厚さを有する正孔ブロック層を形成する以外は、デバイス実施例 1 と同じ方法で O L E D デバイスを製造した。

【 0 1 5 9 】

製造された O L E D デバイスは  $3360 \text{ cd} / \text{m}^2$  の輝度および  $9.7 \text{ mA} / \text{cm}^2$  の電流密度を有する緑色発光を示した。

【 0 1 6 0 】

本発明の有機エレクトロルミネセント化合物が通常の方法よりも優れた発光特性を有することが実証される。加えて、本発明の有機エレクトロルミネセント化合物を使用するデバイスは優れた発光特性を有する。

## 【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. <b>PCT/KR2013/003810</b>
<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> [See Supplemental Sheet]		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b>		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) STN file Registry, CAplus; Structure search based on Formula I as defined in claim 1		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
	Documents are listed in the continuation of Box C	
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex		
* Special categories of cited documents:		
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention	
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone	
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art	
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	"&" document member of the same patent family	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		
Date of the actual completion of the international search 1 August 2013	Date of mailing of the international search report 01 August 2013	
Name and mailing address of the ISA/AU AUSTRALIAN PATENT OFFICE PO BOX 200, WODEN ACT 2606, AUSTRALIA Email address: pct@ipaustralia.gov.au Facsimile No.: +61 2 6283 7999	Authorised officer Andrew Bryce AUSTRALIAN PATENT OFFICE (ISO 9001 Quality Certified Service) Telephone No. 0262833132	

<b>INTERNATIONAL SEARCH REPORT</b>		International application No.
C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		<b>PCT/KR2013/003810</b>
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2011/136755 A1 (UNIVERSAL DISPLAY CORPORATION et al.) 03 November 2011 See pages 105 and 106; Claim 5	1-5, 7, 8
X	WO 2012/026780 A1 (ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALS KOREA LTD.) 01 March 2012 See page 11; Claim 5	1, 2, 4, 5, 7, 8
X	US 2011/0309345 A1 (Balaganesan et al.) 22 December 2011 See page 34; Abstract; Claims	1-3, 7, 8
X	WO 2011/108901 A2 (DUKSAN HIGH METAL CO., LTD.) 09 September 2011 See page 8; Abstract	1, 2, 4, 5, 7, 8
X	KR 2011-0079402 A (CS ELSOLAR CO., LTD.) 07 July 2011 See pages 8 and 9	1-5, 7, 8
X	WO 2009/148062 A1 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) 10 December 2009 See page 43; Abstract	1, 2, 4, 5, 7, 8
X	WO 2009/136595 A1 (NIPPON STEEL CHEMICAL CO., LTD.) 12 November 2009 See page 10; Abstract	1-5, 7, 8
P,X	WO 2013/011891 A1 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) 24 January 2013 See pages 18-20	1-5, 7, 8

INTERNATIONAL SEARCH REPORT	International application No. <b>PCT/KR2013/003810</b>
<b>Supplemental Box – IPC Marks</b>	
<p><i>C07D 491/048 (2006.01)</i></p> <p><i>C07D 209/82 (2006.01)</i></p> <p><i>C07D 209/88 (2006.01)</i></p> <p><i>C07D 209/96 (2006.01)</i></p> <p><i>C07D 405/04 (2006.01)</i></p> <p><i>C07D 405/10 (2006.01)</i></p> <p><i>C07D 405/14 (2006.01)</i></p> <p><i>C07D 409/04 (2006.01)</i></p> <p><i>C07D 409/10 (2006.01)</i></p> <p><i>C07D 409/14 (2006.01)</i></p> <p><i>C07D 487/04 (2006.01)</i></p> <p><i>C07D 495/04 (2006.01)</i></p> <p><i>C07F 7/10 (2006.01)</i></p> <p><i>C09K 11/06 (2006.01)</i></p> <p><i>H01L 27/32 (2006.01)</i></p> <p><i>H01L 51/50 (2006.01)</i></p> <p><i>H01L 51/54 (2006.01)</i></p> <p><i>H05B 33/14 (2006.01)</i></p>	

<b>INTERNATIONAL SEARCH REPORT</b> Information on patent family members		International application No. <b>PCT/KR2013/003810</b>			
This Annex lists known patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned international search report. The Australian Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.					
<b>Patent Document/s Cited in Search Report</b>		<b>Patent Family Member/s</b>			
<b>Publication Number</b>	<b>Publication Date</b>	<b>Publication Number</b>	<b>Publication Date</b>		
WO 2011/136755 A1	03 Nov 2011	EP 2564438 A1	06 Mar 2013		
		TW 201209047 A	01 Mar 2012		
		US 2013112952 A1	09 May 2013		
		WO 2011136755 A1	03 Nov 2011		
WO 2012/026780 A1	01 Mar 2012	KR 20120042633 A	03 May 2012		
		TW 201213504 A	01 Apr 2012		
		WO 2012026780 A1	01 Mar 2012		
US 2011/0309345 A1	22 Dec 2011	KR 20110137712 A	23 Dec 2011		
		TW 201200579 A	01 Jan 2012		
		US 2011309345 A1	22 Dec 2011		
WO 2011/108901 A2	09 Sep 2011	WO 2011108901 A2	09 Sep 2011		
KR 2011-0079402 A	07 Jul 2011	KR 20120013278 A	14 Feb 2012		
WO 2009/148062 A1	10 Dec 2009	EP 2301921 A1	30 Mar 2011		
		KR 20110025906 A	14 Mar 2011		
		TW 201006909 A	16 Feb 2010		
		US 2010012931 A1	21 Jan 2010		
		US 8318323 B2	27 Nov 2012		
		US 2013020563 A1	24 Jan 2013		
		WO 2009148062 A1	10 Dec 2009		
		WO 2009/136595 A1	12 Nov 2009	CN 102017220 B	07 Nov 2012
WO 2009/136595 A1	12 Nov 2009	EP 2284920 A1	16 Feb 2011		
		JP 4819181 B2	24 Nov 2011		
		KR 20110010750 A	07 Feb 2011		
		TW 201006908 A	16 Feb 2010		
		US 2011062429 A1	17 Mar 2011		
		WO 2009136595 A1	12 Nov 2009		
		WO 2013/011891 A1	24 Jan 2013	TW 201307352 A	16 Feb 2013
				WO 2013011891 A1	24 Jan 2013
<b>End of Annex</b>					
Due to data integration issues this family listing may not include 10 digit Australian applications filed since May 2001. Form PCT/ISA/210 (Family Annex)(July 2009)					

## フロントページの続き

(81) 指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), EP(AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN

- (72) 発明者 ヒー - リョン・カン  
大韓民国 151 - 815 ソウル クァナク - ク インハン - ドン 180 - 232 セシン・ビラ 301
- (72) 発明者 ユン - ギル・キム  
大韓民国 440 - 320 ギョンギ - ド スウォン - シ チャンアン - ク ユルチョン - ドン ジェイル・オフィステル 304
- (72) 発明者 ジョン - ウン・ヤン  
大韓民国 442 - 782 ギョンギ - ド スウォン - シ パルダル - ク ファソ 2 - ドン ジュゴン・アパートメント 403 - 1203
- (72) 発明者 テ - ジン・リー  
大韓民国 130 - 758 ソウル トンデムン - ク タブシムニ 2 - ドン ドンガ・アパートメント 109 - 903
- (72) 発明者 ソン - エ・キム  
大韓民国 431 - 845 ギョンギ - ド アニョン - シ トンアン - ク プリム - ドン ハンガラム・サムスン・アパートメント 208 - 205
- (72) 発明者 キュン - ジュ・リー  
大韓民国 121 - 773 ソウル マポ - ク トファ - ドン ヒュンダイ・ホームタウン 210 - 1001
- (72) 発明者 ヒュク - ジュ・ウォン  
大韓民国 135 - 877 ソウル カンナム - ク サムスン - ドン ヒルステイト 105 - 2003
- (72) 発明者 ボン - オク・キム  
大韓民国 135 - 877 ソウル カンナム - ク サムスン - ドン ヒルステイト 50 208 - 401

F ターム(参考) 3K107 AA01 BB01 CC04 CC21 DD53 DD59 DD67 DD68  
4C063 AA01 BB06 CC94 DD08 EE10  
4C204 BB05 CB25 CB26 EB01 FB08 FB16 GB01 GB13