

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7057787号
(P7057787)

(45)発行日 令和4年4月20日(2022.4.20)

(24)登録日 令和4年4月12日(2022.4.12)

(51)国際特許分類	F I			
H 0 1 L 51/50 (2006.01)	H 0 5 B	33/14	B	
H 0 1 L 27/32 (2006.01)	H 0 1 L	27/32		
C 0 9 K 11/06 (2006.01)	C 0 9 K	11/06	6 9 0	
G 0 9 F 9/30 (2006.01)	G 0 9 F	9/30	3 6 5	

請求項の数 9 (全40頁)

(21)出願番号	特願2019-537079(P2019-537079)	(73)特許権者	509266480 ローム・アンド・ハース・エレクトロニクス・マテリアルズ・コリア・リミテッド 大韓民国 331-980 チュンチョンナム・ド チョナン・シ ソブク・ク 3 コンダン 1-ロ 56
(86)(22)出願日	平成30年1月31日(2018.1.31)	(74)代理人	110000589 特許業務法人センダ国際特許事務所
(65)公表番号	特表2020-509575(P2020-509575 A)	(72)発明者	チョン・ウン・ヤン 大韓民国 18449 ギョンギ・ド ファソン・シ サムスン 1-ロ 5-ギル 20
(43)公表日	令和2年3月26日(2020.3.26)	審査官	岩井 好子
(86)国際出願番号	PCT/KR2018/001324		
(87)国際公開番号	WO2018/143663		
(87)国際公開日	平成30年8月9日(2018.8.9)		
審査請求日	令和3年1月8日(2021.1.8)		
(31)優先権主張番号	10-2017-0014450		
(32)優先日	平成29年2月1日(2017.2.1)		
(33)優先権主張国・地域又は機関	韓国(KR)		

最終頁に続く

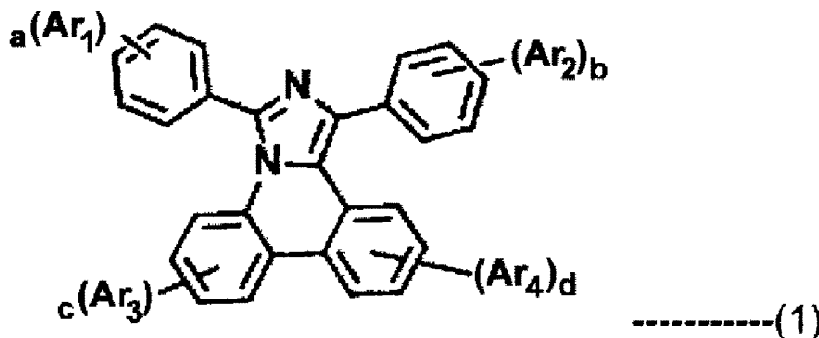
(54)【発明の名称】 有機エレクトロルミネセント化合物及びこれを含む有機エレクトロルミネセントデバイス

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

以下の式1：

【化1】

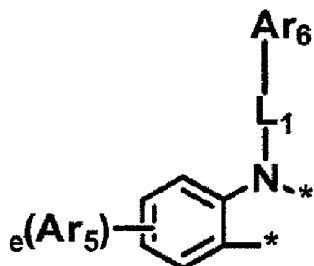


(式中、

Ar₁及びAr₂は、それぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、シアノ、置換又は非置換(C₁-C₃₀)アルキル、置換又は非置換(C₆-C₃₀)アリール、置換又は非置換(5~30員)ヘテロアリール、置換又は非置換(3~7員)ヘテロシクロアルキル、或いは置換又は非置換(C₃-C₃₀)シクロアルキルを表し、

Ar₃及びAr₄は、それぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、シアノ、-NR₁₁R₁₂、置換又は非置換(C₁-C₃₀)アルキル、置換又は非置換(C₆-C₃₀)アリール、置換又は非置換(5~30員)ヘテロアリール、置換又は非置換(3~7員)ヘテロシクロアルキル、或いは置換又は非置換(C₃-C₃₀)シクロアルキルを表し、2つのAr₃及び2つのAr₄のうち少なくとも1つが互いに結合して、

【化2】



10

の縮合環を形成し、

*は、Ar₃又はAr₄の結合部位を表し、

R₁₁及びR₁₂は、それぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、置換又は非置換(C₁-C₃₀)アルキル、置換又は非置換(C₆-C₃₀)アリール、置換又は非置換(5~30員)ヘテロアリール、置換又は非置換(3~7員)ヘテロシクロアルキル、或いは置換又は非置換(C₃-C₃₀)シクロアルキルを表し、

20

L₁は、単結合、或いは置換又は非置換(C₆-C₃₀)アリーレンを表し、

Ar₅は、水素、重水素、ハロゲン、シアノ、置換又は非置換(C₁-C₃₀)アルキル、置換又は非置換(C₆-C₃₀)アリール、或いは置換又は非置換(5~30員)ヘテロアリールを表し、

Ar₆は、置換又は非置換(C₆-C₃₀)アリール、或いは置換又は非置換(5~30員)ヘテロアリールを表し、

前記ヘテロアリールは、B、N、O、S、Si、及びPから選択される少なくとも1つのヘテロ原子を含み、

a及びbは、それぞれ独立して、1~5の整数を表し、c~eは、それぞれ独立して、1~4の整数を表し、

30

a~eが2以上の整数であるとき、各Ar₁、各Ar₂、各Ar₃、各Ar₄、及び各Ar₅は、同一又は異なることができる)

で表される有機エレクトロルミネセント化合物。

【請求項2】

Ar₁からAr₆及びL₁における、前記置換(C₁-C₃₀)アルキル、前記置換(C₆-C₃₀)アリール(エン)、前記置換(5~30員)ヘテロアリール、前記置換(3~7員)ヘテロシクロアルキル、及び前記置換(C₃-C₃₀)シクロアルキルの置換基は、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、(C₂-C₃₀)アルケニル、(C₂-C₃₀)アルキニル、(C₁-C₃₀)アルコキシ、(C₁-C₃₀)アルキルチオ、(C₃-C₃₀)シクロアルキル、(C₃-C₃₀)シクロアルケニル、(3~7員)ヘテロシクロアルキル、(C₆-C₃₀)アリールオキシ、(C₆-C₃₀)アリールチオ、非置換又は(5~30員)ヘテロアリールで置換された(5~30員)ヘテロアリール、非置換又は(5~30員)ヘテロアリールで置換された(C₆-C₃₀)アリール、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、アミノ、モノ-又はジ-(C₁-C₃₀)アルキルアミノ、非置換又は(C₁-C₃₀)アルキルで置換されたモノ-又はジ-(C₆-C₃₀)アリールアミノ、(C₁-C₃₀)アルキル(C₆-C₃₀)アリールアミノ、(

40

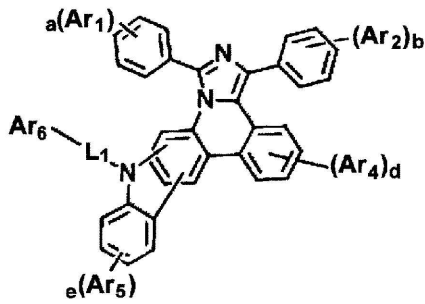
50

(C1 - C30) アルキルカルボニル、(C1 - C30) アルコキシカルボニル、(C6 - C30) アリールカルボニル、ジ(C6 - C30) アリールボロニル、ジ(C1 - C30) アルキルボロニル、(C1 - C30) アルキル(C6 - C30) アリールボロニル、(C6 - C30) アリール(C1 - C30) アルキル、及び(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つである、請求項1に記載の有機エレクトロルミネセント化合物。

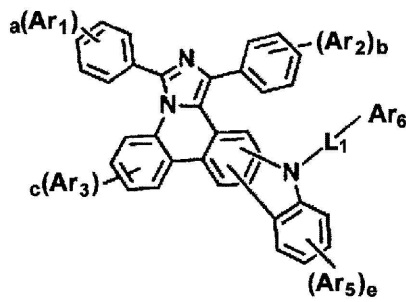
【請求項3】

式1は、以下の式2及び3：

【化3】



10



20

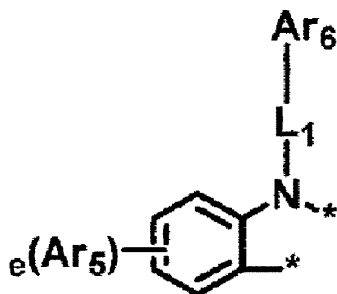
(式中、Ar₁からAr₆、L₁、及びa~eは、式1で定義した通りである)のいずれか1つによって表される、請求項1に記載の有機エレクトロルミネセント化合物。

【請求項4】

Ar₁及びAr₂は、それぞれ独立して、水素、置換又は非置換(C6 - C20)アリール、或いは置換又は非置換(5 ~ 20員)ヘテロアリールを表し、

Ar₃及びAr₄は、それぞれ独立して、水素、ハロゲン、-NR₁₁R₁₂、置換又は非置換(C6 - C20)アリール、或いは置換又は非置換(5 ~ 20員)ヘテロアリールを表し、2つのAr₃及び2つのAr₄のうちの少なくとも1つが互いに結合して、

【化4】



40

の縮合環を形成し、

L₁は、単結合を表し、

R₁₁及びR₁₂は、それぞれ独立して、水素、置換又は非置換(C6 - C20)アリール、或いは置換又は非置換(5 ~ 20員)ヘテロアリールを表し、

50

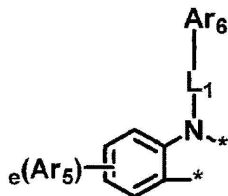
Ar₅ は、水素、~~或いは置換又は非置換~~ (C₆ - C₂₀) アリールを表し、
 Ar₆ は、置換又は非置換 (C₆ - C₂₀) アリール、或いは置換又は非置換 (5 ~ 20 員) ヘテロアリールを表す、請求項 1 に記載の有機エレクトロルミネセント化合物。

【請求項 5】

Ar₁ 及び Ar₂ は、それぞれ独立して、水素、非置換 (C₆ - C₂₀) アリール、又は (C₆ - C₁₂) アリールで置換された (5 ~ 20 員) ヘテロアリールを表し、

Ar₃ 及び Ar₄ は、それぞれ独立して、水素、非置換又はニトロで置換された (C₆ - C₂₀) アリール、或いは非置換又は (C₆ - C₁₂) アリールで置換された (5 ~ 20 員) ヘテロアリールを表し、2つの Ar₃ 及び 2つの Ar₄ のうちの少なくとも1つが互いに結合して、

【化 5】



の縮合環を形成し、

L₁ は、単結合を表し、

Ar₅ は、水素、又は非置換 (C₆ - C₂₀) アリールを表し、

Ar₆ は、非置換 (C₆ - C₂₀) アリール、或いは非置換又は (C₆ - C₁₂) アリールで置換された (5 ~ 20 員) ヘテロアリールを表す、請求項 1 に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 で表される前記化合物は、

10

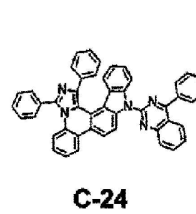
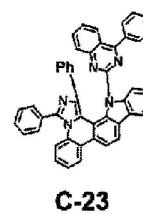
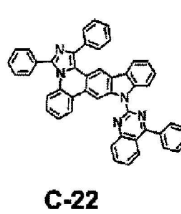
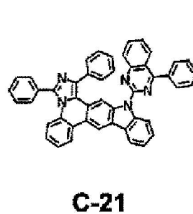
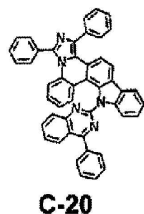
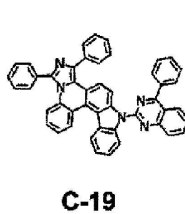
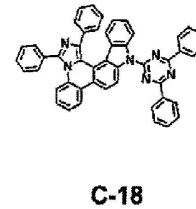
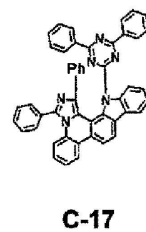
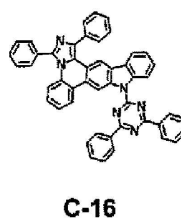
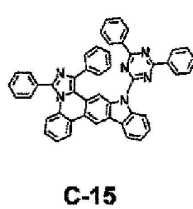
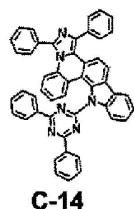
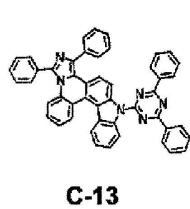
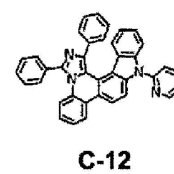
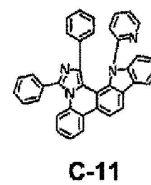
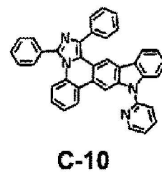
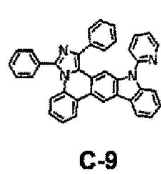
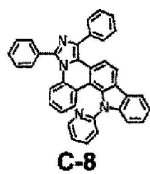
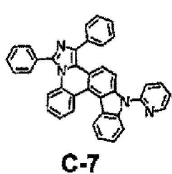
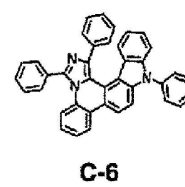
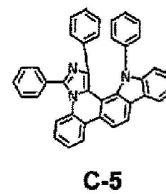
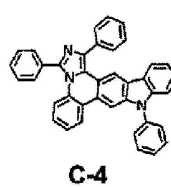
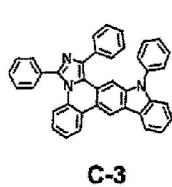
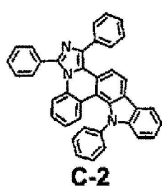
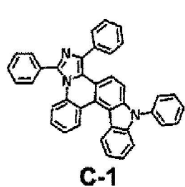
20

30

40

50

【化 6】



10

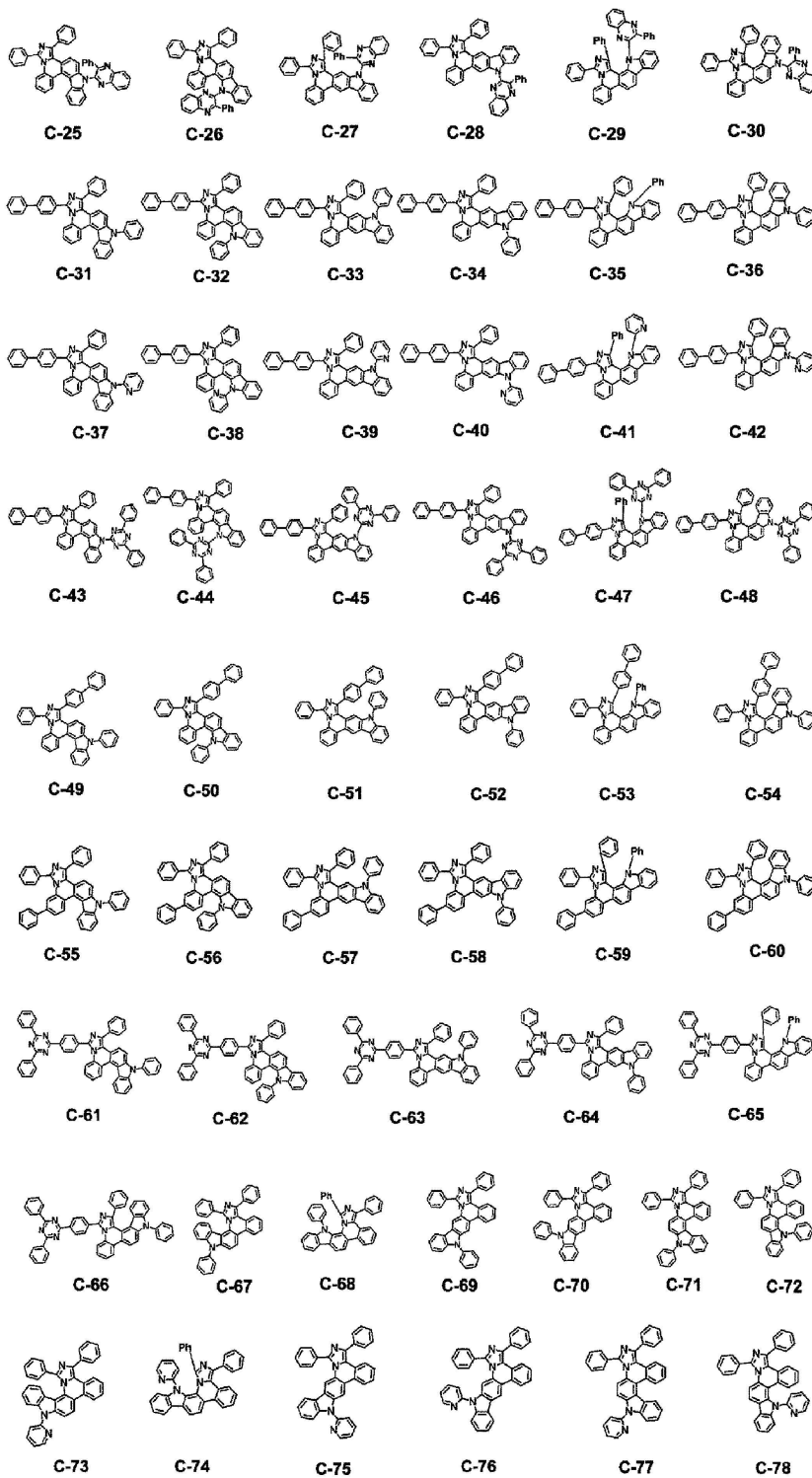
20

30

40

50

【化 7】



10

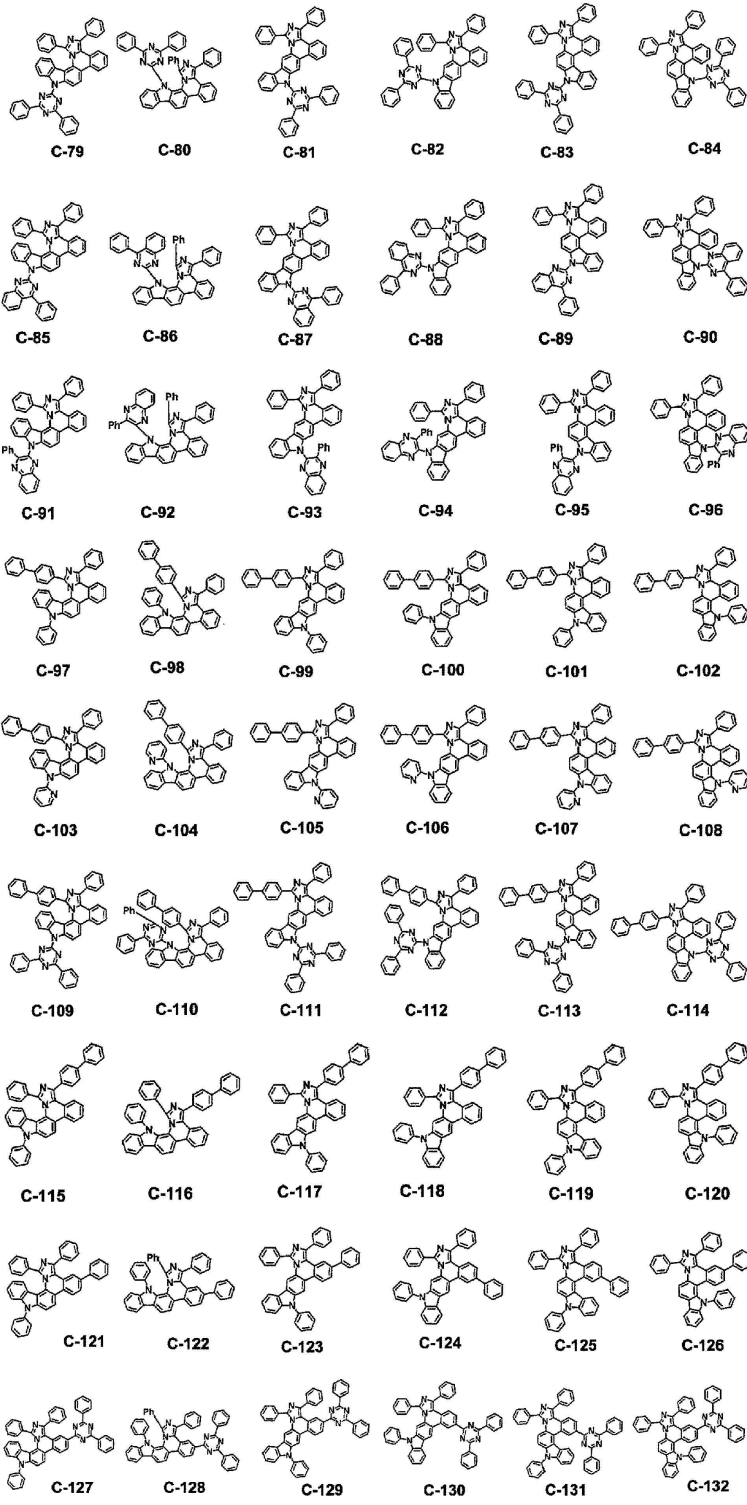
20

30

40

50

【化 8】



10

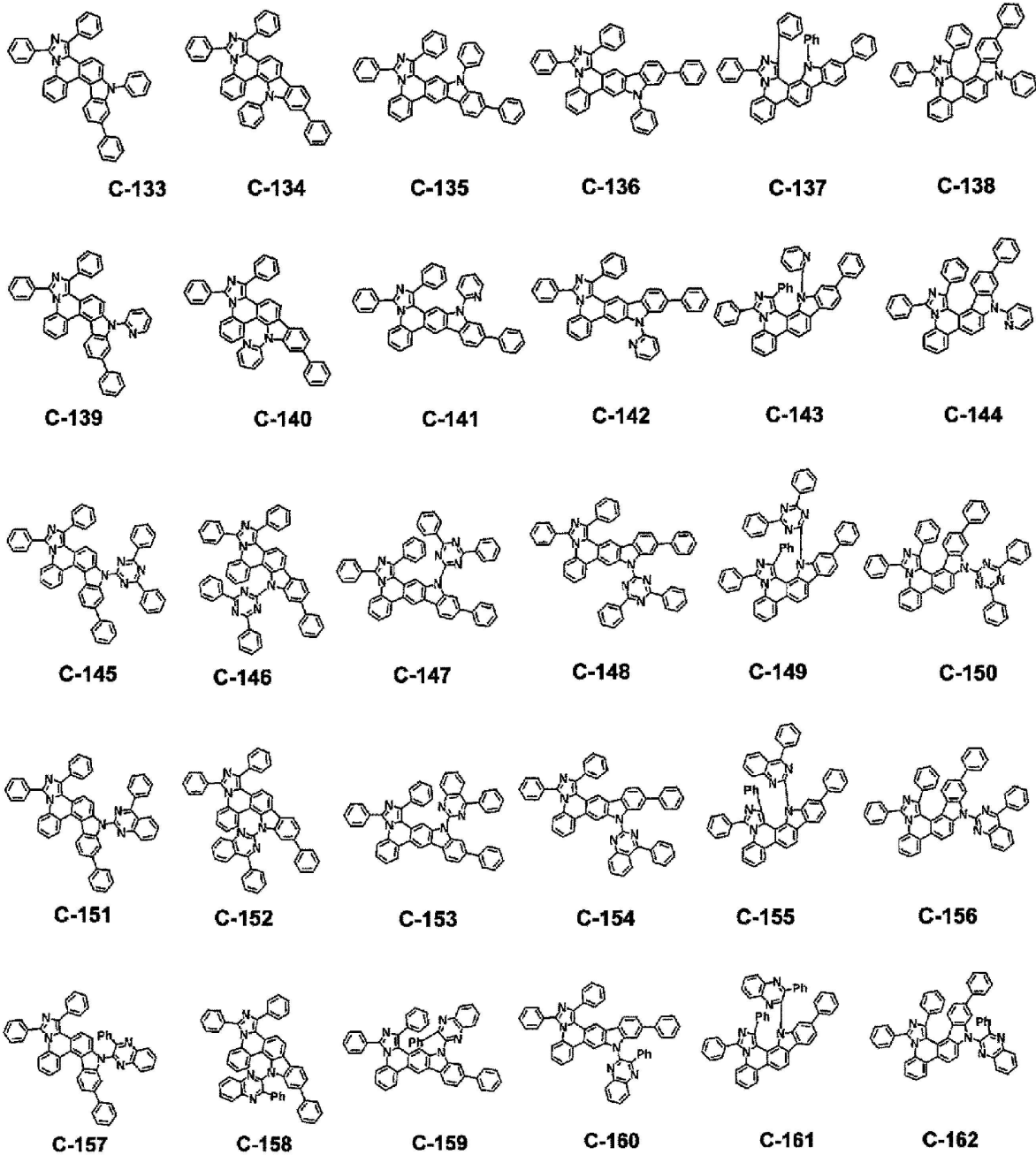
20

30

40

50

【化 9】



10

20

30

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に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に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材料。

40

【請求項8】

請求項1に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。

【請求項9】

請求項1に記載の有機エレクトロルミネセント化合物を含む、表示デバイス。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本開示は、有機エレクトロルミネセント化合物及びこれを含む有機エレクトロルミネセン

50

トデバイスに関する。

【背景技術】

【0002】

エレクトロルミネセントデバイス（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、及びより速い応答時間を提供するという点で利点を有する自発光デバイスである。1987年にEastman Kodakによって発光層を形成するための材料として小さい芳香族ジアミン分子とアルミニウム錯体を用いて最初の有機ELデバイスが開発された[Appl. Phys. Lett. 51、913、1987]。

【0003】

有機エレクトロルミネセントデバイスにおける発光効率を決定する際の最も重要な要素は発光材料である。これまで、蛍光材料は発光材料として広く使用されてきた。しかしながら、エレクトロルミネセント機構の観点から、燐光発光材料は、蛍光発光材料と比較して理論的に4倍まで発光効率を高めることから、燐光発光材料の開発が広く研究されている。今日まで、それぞれ赤色、緑色、及び青色の材料として、ビス（2-（2'-ベンゾチエニル）-ピリジナト-N, C3'）イリジウム（アセチルアセトネート）（(acac)Ir(btpp)₂）、トリス（2-フェニルピリジン）イリジウム（Ir(pppy)₃）及びビス（4,6-ジフルオロフェニルピリジン-N, C2）ピコリン酸イリジウム（Firpic）を含むイリジウム（III）錯体が燐光発光材料として広く知られている。

10

【0004】

現在、4,4'-N, N'-ジカルバゾール-ビフェニル（CBP）が、最も広く知られている燐光ホスト材料である。近年、Pioneer（Japan）らは、バソクプロイン（BCP）及びアルミニウム（III）ビス（2-メチル-8-キノリナート）（4-フェニルフェノレート）（BALq）等を用いた高性能有機エレクトロルミネセントデバイスを開発し、これは、ホスト材料として、正孔阻止層材料として使用されていた。

20

【0005】

これらの材料は良好な発光特性を提供するが、これらは以下の欠点を有する。（1）低いガラス転移温度及び不十分な熱安定性のために、劣化が真空での高温蒸着プロセス中に起こり得、デバイスの寿命は減少する。（2）有機エレクトロルミネセントデバイスの電力効率は、 $[(\text{cd}/\text{A}) \times \text{電圧}]$ で与えられ、電力効率は電圧に反比例する。燐光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は、蛍光材料を含むものよりも高い電流効率（cd/A）をもたすが、著しく高い駆動電圧が必要である。従って、電力効率（lm/W）の面でメリットはない。（3）更に、これらの材料が有機エレクトロルミネセントデバイスに使用される場合、有機エレクトロルミネセントデバイスの寿命は短く、発光効率の向上が依然として求められている。

30

【0006】

一方、韓国特許出願公開2014-0065357A号明細書は、有機エレクトロルミネセントデバイスの発光材料として、ベンズイミダゾールがビフェニルと6員環の縮合環に縮合されたコア構造を有する化合物を開示している。しかしながら、前述の参考文献には、2つのアリアルで置換されたイミダゾールがビフェニルと6員環の縮合環に縮合されているコア構造を有する化合物は、具体的に開示されていない。更に、デバイスの寿命特性及び薄膜の品質の点で十分満足できるものではない。

40

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

本開示の目的は、低駆動電圧及び/又は高発光効率を有する有機エレクトロルミネセントデバイスを効率的に作製することができる有機エレクトロルミネセント化合物を提供することである。同時に又は選択的に、本開示の目的は、優れた寿命特性を有する有機エレクトロルミネセントデバイス、及び/又は優れた品質の薄膜を形成することができる有機エレクトロルミネセント化合物を提供することである。

【課題を解決するための手段】

50

【 0 0 0 8 】

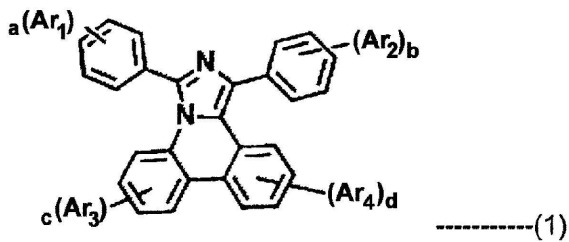
本発明者らは、上記参考文献に開示されている有機エレクトロルミネセント化合物が、低いHOMO（最高被占分子軌道）エネルギー準位を有し、これは補助層から発光層への効率的な正孔輸送を制限し、補助層とドープントのHOMOエネルギー準位の差は、補助層と発光層のHOMOエネルギー準位の差よりも小さく、これはデバイスの寿命を制限することを見出した。更に、本発明者らは、上記参考文献の有機エレクトロルミネセント化合物が、ほぼ完全な平面構造を有し、薄膜を形成する際に結晶性及び凝集性が増加し、薄膜の品質が低下することを見出した。

【 0 0 0 9 】

本発明者らは、上記技術的課題を解決し、優れた駆動電圧又は発光効率を有する化合物を開発するために鋭意検討した結果、以下の式1：

【 0 0 1 0 】

【化1】



【 0 0 1 1 】

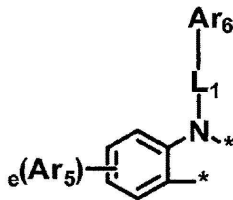
(式中、

Ar₁及びAr₂は、それぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、シアノ、置換又は非置換(C₁-C₃₀)アルキル、置換又は非置換(C₆-C₃₀)アリール、置換又は非置換(5~30員)ヘテロアリール、置換又は非置換(3~7員)ヘテロシクロアルキル、或いは置換又は非置換(C₃-C₃₀)シクロアルキルを表し、

Ar₃及びAr₄は、それぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、シアノ、-NR₁₁R₁₂、置換又は非置換(C₁-C₃₀)アルキル、置換又は非置換(C₆-C₃₀)アリール、置換又は非置換(5~30員)ヘテロアリール、置換又は非置換(3~7員)ヘテロシクロアルキル、或いは置換又は非置換(C₃-C₃₀)シクロアルキルを表し、2つのAr₃及び2つのAr₄のうち少なくとも1つが互いに結合して

【 0 0 1 2 】

【化2】



【 0 0 1 3 】

の縮合環を形成し、

*は、Ar₃又はAr₄の結合部位を表し、

R₁₁及びR₁₂は、それぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、置換又は非置換(C₁-C₃₀)アルキル、置換又は非置換(C₆-C₃₀)アリール、置換又は非置換(5~30員)ヘテロアリール、置換又は非置換(3~7員)ヘテロシクロアルキル、或いは置換又は非置換(C₃-C₃₀)シクロアルキルを表し、

L₁は、単結合、或いは置換又は非置換(C₆-C₃₀)アリーレンを表し、

Ar₅は、水素、重水素、ハロゲン、シアノ、置換又は非置換(C₁-C₃₀)アルキル、置換又は非置換(C₆-C₃₀)アリール、或いは置換又は非置換(5~30員)ヘテ

10

20

30

40

50

ロアリアルを表し、

Ar₆は、置換又は非置換(C₆-C₃₀)アリアル、或いは置換又は非置換(5~30員)ヘテロアリアルを表し、

ヘテロアリアルは、B、N、O、S、Si、及びPから選択される少なくとも1つのヘテロ原子を含み、

a及びbは、それぞれ独立して、1~5の整数を表し、c~eは、それぞれ独立して、1~4の整数を表し、

a~eが2以上の整数であるとき、各Ar₁、各Ar₂、各Ar₃、各Ar₄、及び各Ar₅はそれぞれ、同一又は異なることができる)

で表される有機エレクトロルミネセント化合物によって上記目的が達成できることを見出した。

10

【発明を実施するための形態】

【0014】

発明の有利な効果

本開示による有機エレクトロルミネセント化合物を用いることにより、低駆動電圧、高発光効率、及び/又は改善された寿命特性を有する有機エレクトロルミネセントデバイスを作製することができる。同時に又は選択的に、本開示の有機エレクトロルミネセント化合物は、平面構造よりもわずかに歪んだ分子構造を有し、分子間相互作用を効果的に制御することによって再結晶化及び凝集消光を制限することができ、従って、薄膜の品質を向上させる。

20

【0015】

発明の形態

以下、本開示を詳細に説明する。しかしながら、以下の説明は本開示を説明することを意図しており、決して本開示の範囲を限定することを意味していない。

【0016】

本開示における「有機エレクトロルミネセント化合物」という用語は、有機エレクトロルミネセントデバイスに使用することができ、必要に応じて、有機エレクトロルミネセントデバイスを構成する任意の層に含まれることができる化合物を意味する。

【0017】

本開示における「有機エレクトロルミネセント材料」という用語は、有機エレクトロルミネセントデバイスに使用することができ、少なくとも1つの化合物を含み得る材料を意味する。有機エレクトロルミネセント材料は、必要に応じて、有機エレクトロルミネセントデバイスを構成する任意の層に含まれることができる。例えば、有機エレクトロルミネセント材料は、正孔注入材料、正孔輸送材料、正孔補助材料、発光補助材料、電子阻止材料、発光材料、電子緩衝材料、正孔阻止材料、電子輸送材料、又は電子注入材料であり得る。

30

【0018】

本開示の有機エレクトロルミネセント材料は、式1で表される少なくとも1つの化合物を含み得る。式1の化合物は、発光層に含まれることができるが、これに限定されない。発光層に含まれる場合、式1の化合物はホストとして含まれることができる。更に、式1の化合物は、電子緩衝層に含まれることができる。電子緩衝層に含まれる場合、式1の化合物は、電子緩衝材料として含まれることができる。更に、式1の化合物は電子輸送層に含まれることができる。電子輸送層に含まれる場合、式1の化合物は電子輸送材料として含まれることができる。

40

【0019】

以下、式1で表される化合物について詳細に説明する。

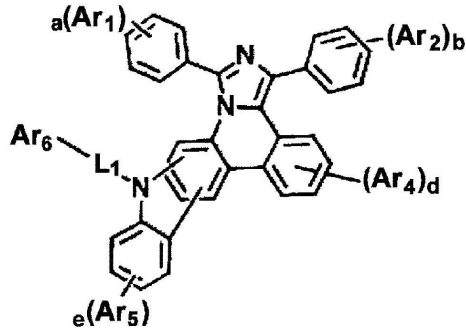
【0020】

式1の化合物は、以下の式2及び3：

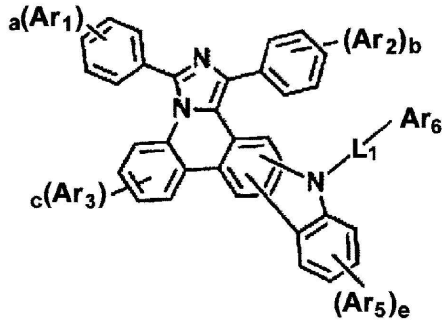
【0021】

50

【化3】



10



20

【0022】

(式中、Ar₁~Ar₆、L₁、及びa~eは、式1で定義した通りである)のいずれか1つによって表されることができる。

【0023】

上記式1において、Ar₁及びAr₂は、それぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、シアノ、置換又は非置換(C₁-C₃₀)アルキル、置換又は非置換(C₆-C₃₀)アリール、置換又は非置換(5~30員)ヘテロアリール、置換又は非置換(3~7員)ヘテロシクロアルキル、或いは置換又は非置換(C₃-C₃₀)シクロアルキルを表し、好ましくはそれぞれ独立して、水素、置換又は非置換(C₆-C₂₀)アリール、或いは置換又は非置換(5~20員)ヘテロアリールを表し、より好ましくはそれぞれ独立して、水素、非置換(C₆-C₂₀)アリール、又は(C₆-C₁₂)アリールで置換された(5~20員)ヘテロアリールを表す。具体的には、Ar₁及びAr₂は、それぞれ独立して、水素、フェニル又はジフェニルトリアジンを表すことができる。

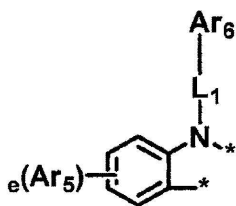
30

【0024】

Ar₃及びAr₄は、それぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、シアノ、-NR₁₁R₁₂、置換又は非置換(C₁-C₃₀)アルキル、置換又は非置換(C₆-C₃₀)アリール、置換又は非置換(5~30員)ヘテロアリール、置換又は非置換(3~7員)ヘテロシクロアルキル、或いは置換又は非置換(C₃-C₃₀)シクロアルキルを表し、2つのAr₃及び2つのAr₄のうちの少なくとも1つが互いに結合して、

【0025】

【化4】



【0026】

の縮合環を形成し、*は、Ar₃又はAr₄の結合部位を表し、好ましくはそれぞれ独立

50

して、水素、ハロゲン、 $\text{NR}_{11}\text{R}_{12}$ 、置換又は非置換（ $\text{C}6 - \text{C}20$ ）アリール、或いは置換又は非置換（ $5 \sim 20$ 員）ヘテロアリールを表し、2つの Ar_3 及び2つの Ar_4 のうちの少なくとも1つが互いに結合して前述の縮合環を形成し、より好ましくはそれぞれ独立して水素、非置換又はニトロで置換された（ $\text{C}6 - \text{C}20$ ）アリール、非置換又は（ $\text{C}6 - \text{C}12$ ）アリールで置換された（ $5 \sim 20$ 員）ヘテロアリールを表し、2つの Ar_3 及び2つの Ar_4 のうちの少なくとも1つが互いに結合して前述の縮合環を形成する。具体的には、 Ar_3 及び Ar_4 は、それぞれ独立して、水素、フェニル、又はジフェニルtriaジンを表すことができる。ここで、 R_{11} 及び R_{12} は、それぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、置換又は非置換（ $\text{C}1 - \text{C}30$ ）アルキル、置換又は非置換（ $\text{C}6 - \text{C}30$ ）アリール、置換又は非置換（ $5 \sim 30$ 員）ヘテロアリール、置換又は非置換（ $3 \sim 7$ 員）ヘテロシクロアルキル、或いは置換又は非置換（ $\text{C}3 - \text{C}30$ ）シクロアルキルを表し、好ましくはそれぞれ独立して、水素、置換又は非置換（ $\text{C}6 - \text{C}20$ ）アリール、或いは置換又は非置換（ $5 \sim 20$ 員）ヘテロアリールを表す。

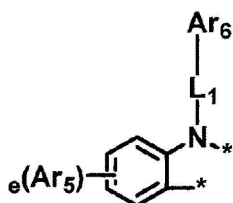
10

【0027】

本開示の一実施形態によれば、2つの Ar_3 及び2つの Ar_4 のうちの1つが互いに結合して、

【0028】

【化5】



20

【0029】

の縮合環を形成し、 L_1 は、単結合、或いは置換又は非置換（ $\text{C}6 - \text{C}30$ ）アリーレンを表し、好ましくは単結合を表す。

【0030】

Ar_5 は、水素、重水素、ハロゲン、シアノ、置換又は非置換（ $\text{C}1 - \text{C}30$ ）アルキル、置換又は非置換（ $\text{C}6 - \text{C}30$ ）アリール、或いは置換又は非置換（ $5 \sim 30$ 員）アテロアリールを表し、好ましくは水素、或いは置換又は非置換（ $\text{C}6 - \text{C}20$ ）アリールを表し、より好ましくは水素、又は非置換の（ $\text{C}6 - \text{C}20$ ）アリールを表す。具体的には、 Ar_5 は、水素又はフェニルを表すことができる。

30

【0031】

Ar_6 は、置換又は非置換（ $\text{C}6 - \text{C}30$ ）アリール、或いは置換又は非置換（ $5 \sim 30$ 員）ヘテロアリールを表し、好ましくは置換又は非置換（ $\text{C}6 - \text{C}20$ ）アリール、或いは置換又は非置換（ $5 \sim 20$ 員）ヘテロアリールを表し、より好ましくは非置換（ $\text{C}6 - \text{C}20$ ）アリール、或いは非置換又は（ $\text{C}6 - \text{C}12$ ）アリールで置換された（ $5 \sim 20$ 員）ヘテロアリールを表す。具体的には、 Ar_6 は、フェニル、ピリジニル、ジフェニルtriaジン、フェニルキナゾリニル、又はフェニルキノキサリニルを表すことができる。

40

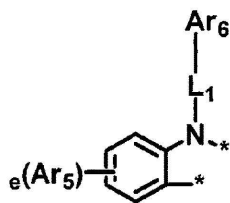
【0032】

本開示の一実施形態によれば、上記式1において、 Ar_1 及び Ar_2 は、それぞれ独立して、水素、置換又は非置換（ $\text{C}6 - \text{C}20$ ）アリール、或いは置換又は非置換（ $5 \sim 20$ 員）ヘテロアリールを表し、 Ar_3 及び Ar_4 は、それぞれ独立して、水素、ハロゲン、 $\text{NR}_{11}\text{R}_{12}$ 、置換又は非置換（ $\text{C}6 - \text{C}20$ ）アリール、或いは置換又は非置換（ $5 \sim 20$ 員）ヘテロアリールを表し、2つの Ar_3 及び2つの Ar_4 のうちの少なくとも1つが互いに結合して、

【0033】

50

【化6】



【0034】

の縮合環を形成し、 L_1 は、単結合を表し、 R_{11} 及び R_{12} は、それぞれ独立して、水素、置換又は非置換(C6-C20)アリール、或いは置換又は非置換(5~20員)ヘテロアリールを表し、 Ar_5 は、水素、或いは置換又は非置換(C6-C20)アリールを表し、 Ar_6 は、置換又は非置換(C6-C20)アリール、或いは置換又は非置換(5~20員)ヘテロアリールを表す。

10

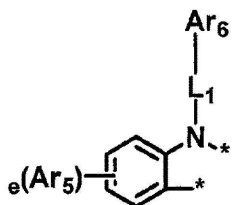
【0035】

本開示の別の実施形態によれば、上記式1において、 Ar_1 及び Ar_2 は、それぞれ独立して、水素、非置換(C6-C20)アリール、又は(C6-C12)アリールで置換された(5~20員)ヘテロアリールを表し、 Ar_3 及び Ar_4 は、それぞれ独立して、水素、非置換又はニトロで置換された(C6-C20)アリール、或いは非置換又は(C6-C12)アリールで置換された(5~20員)ヘテロアリールを表し、2つの Ar_3 及び2つの Ar_4 のうちの少なくとも1つが互いに結合して、

20

【0036】

【化7】



30

【0037】

の縮合環を形成し、 L_1 は、単結合を表し、 Ar_5 は、水素、又は非置換(C6-C20)アリールを表し、 Ar_6 は、非置換(C6-C20)アリール、或いは非置換又は(C6-C12)アリールで置換された(5~20員)ヘテロアリールを表す。

【0038】

ここで、「(C1-C30)アルキル」は、鎖を構成する1~30の炭素原子を有する直鎖状又は分岐状アルキルであることを意味し、炭素原子の数は1~20が好ましく、1~10がより好ましく、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*-ブチル等を含む。「(C2-C30)アルケニル」は、鎖を構成する2~30の炭素原子を有する直鎖状又は分岐状アルケニルであることを意味し、炭素原子の数は2~20が好ましく、2~10がより好ましく、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-エニル等を含む。「(C2-C30)アルキニル」は、鎖を構成する2~30の炭素原子を有する直鎖状又は分岐状アルキニルであることを意味し、炭素原子の数は、2~20が好ましく、2~10がより好ましく、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-イニル等を含む。「(C3-C30)シクロアルキル」は、3~30の環主鎖炭素原子を有する単環式又は多環式炭化水素であることを意味し、炭素原子の数は、3~20が好ましく、3~7がより好ましく、シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシル等を含む。「(3~7員)ヘテロシクロアルキル」は、B、N、O、S、Si、及びPからなる群から選択され

40

50

る、好ましくはO、S、及びN、並びに3～7の環主鎖原子、好ましくは5～7の環主鎖原子からなる群から選択される少なくとも1つのヘテロ原子を有するシクロアルキルであることを意味し、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等を含む。「(C6-C30)アリール(エン)」は、6～30の環主鎖炭素原子を有する芳香族炭化水素から誘導され、部分的に飽和されることができる単環式又は縮合環基であることを意味し、環主鎖炭素原子の数は、6～25が好ましく、6～18がより好ましく、スピロ構造を含み得、フェニル、ピフェニル、ターフェニル、ナフチル、ピナフチル、フェニルナフチル、ナフチルフェニル、フェニルテルフェニル、フルオレニル、フェニルフルオレニル、ベンゾフルオレニル、ジベンゾフルオレニル、フェナントレニル、フェ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、スピロピフルオレニル等を含む。「(3～30員)ヘテロアリール」は、B、N、O、S、Si、及びP、並びに3～30の環主鎖原子からなる群から選択される少なくとも1つ、好ましくは1～4のヘテロ原子を有するアリール基であることを意味し、単環式環、又は少なくとも1つのベンゼン環と縮合した縮合環であり、部分的に飽和されていることができ、単結合を介してヘテロアリール基に少なくとも1つのヘテロアリール又はアリール基を結合することにより形成されるものであり得、スピロ構造を含むことができ、フリル、チオフエニル、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、イソオキサゾリル、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、ピリジル、ピラジニル、ピリミジニル、ピリダジニル等を含む単環式ヘテロアリールを含み、ベンゾフラニル、ベンゾチオフエニル、イソベンゾフラニル、ジベンゾフラニル、ジベンゾチオフエニル、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、ベンゾイソオキサゾリル、ベンゾオキサゾリル、イソインドリル、インドリル、ベンゾインドリル、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、ベンゾキナゾリニル、キノキサリニル、ベンゾキノキサリニル、ナフチリジニル、カルバゾリル、ベンゾカルバゾリル、ジベンゾカルバゾリル、フェノキサジニル、フェノチアジニル、フェナントリジニル、ベンゾジオキサリル、ジヒドロアクリジニル等を含む縮合環式ヘテロアリールを含む。「ハロゲン」は、F、Cl、Br、及びIを含む。

【0039】

ここで、「置換又は非置換」という表現における「置換」は、特定の官能基中の水素原子が別の原子又は官能基、即ち置換基で置き換えられていることを意味する。Ar₁からAr₆及びL₁における、置換(C1-C30)アルキル、置換(C6-C30)アリール(エン)、置換(5～30員)ヘテロアリール、置換(3～7員)ヘテロシクロアルキル、及び置換(C3-C30)シクロアルキルの置換基は、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、(C2-C30)アルケニル、(C2-C30)アルキニル、(C1-C30)アルコキシ、(C1-C30)アルキルチオ、(C3-C30)シクロアルキル、(C3-C30)シクロアルケニル、(3～7員)ヘテロシクロアルキル、(C6-C30)アリールオキシ、(C6-C30)アリールチオ、非置換又は(C6-C30)アリールで置換された(5～30員)ヘテロアリール、非置換又は(5～30員)ヘテロアリールで置換された(C6-C30)アリール、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、アミノ、モノ-又はジ-(C1-C30)アルキルアミノ、非置換又は(C1-C30)アルキルで置換されたモノ-又はジ-(C6-C30)アリールアミノ、(C1-C30)アルキル(C6-C30)アリールアミノ、(C1-C30)アルキルカルボニル、(C1-C30)アルコキシカルボニル、(C6-C30)アリールカルボニル、ジ(C6-C30)アリールボロニル、ジ(C1-C30)アルキルボロニル、(C1-C30)アルキル(C6-C30)アリールボロニル、(C6-C30)アリール(C1-C

10

20

30

40

50

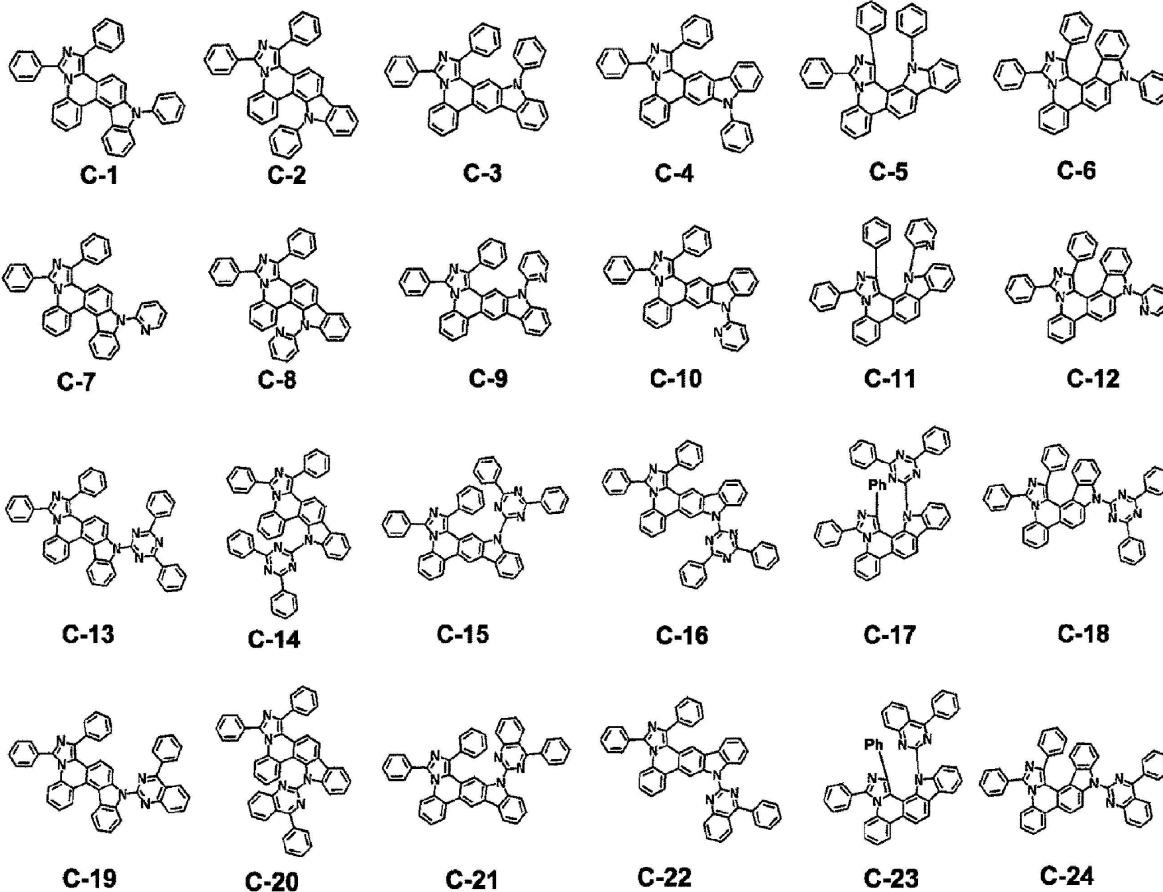
30) アルキル、及び(C1 - C30)アルキル(C6 - C30)アリールからなる群から選択される少なくとも1つであり、好ましくはそれぞれ独立して、ニトロ、(C6 - C12)アリール、或いは非置換又は(C6 - C12)アリールで置換された(5 ~ 20員)ヘテロアリールである。

【0040】

式1で表される化合物は、以下の化合物を含むが、これらに限定されない。

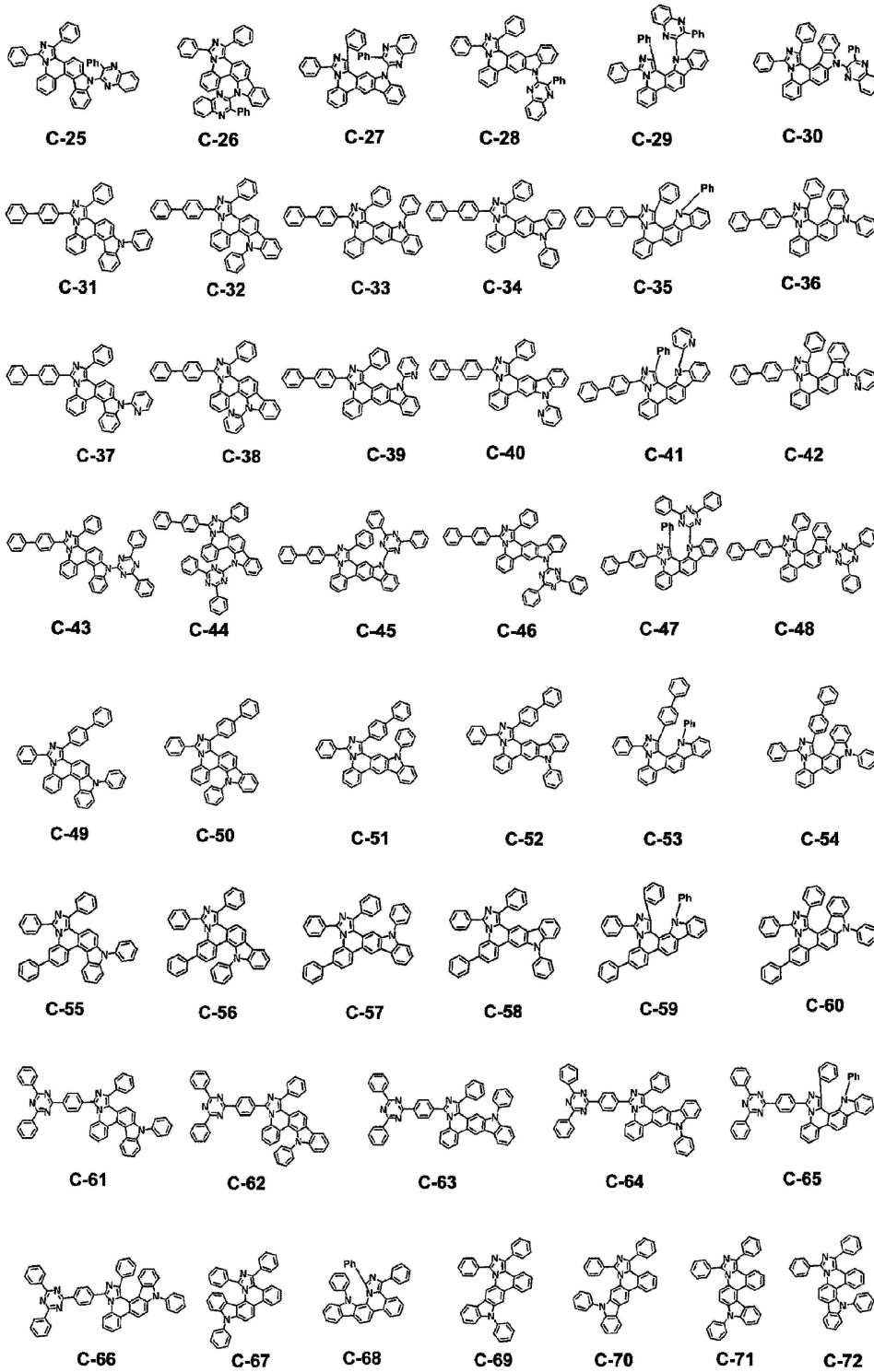
【0041】

【化8】



【0042】

【化 9】



10

20

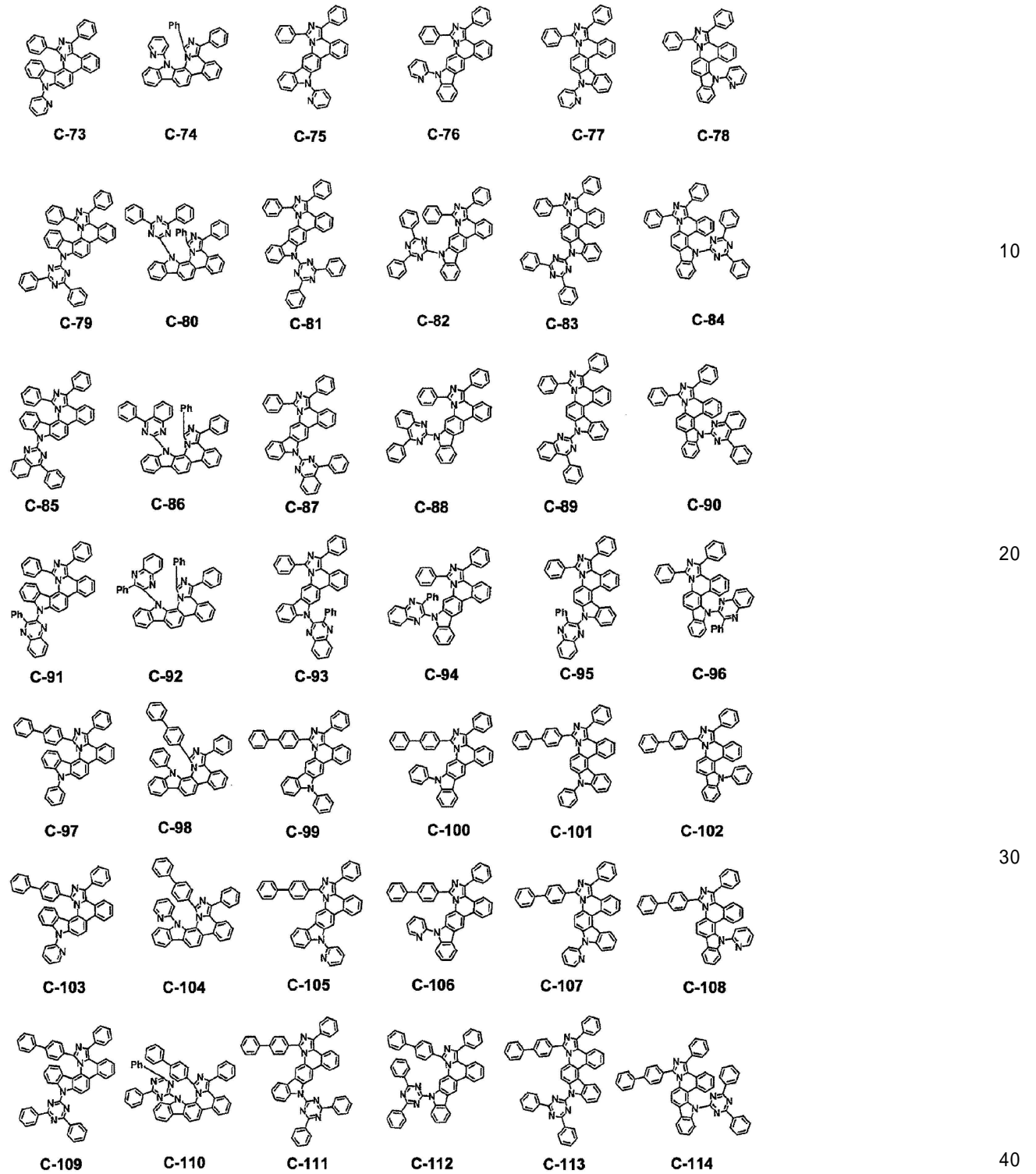
30

40

【 0 0 4 3 】

50

【化 1 0】



【 0 0 4 4】

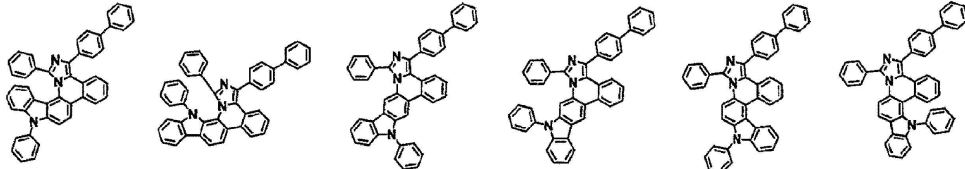
10

20

30

40

【化 1 1】



C-115

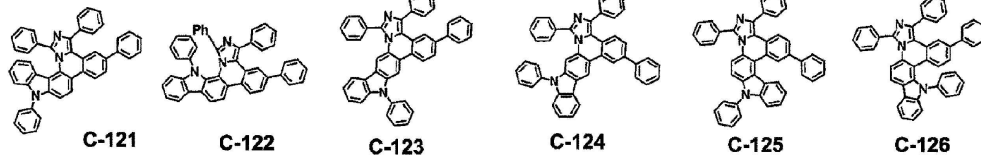
C-116

C-117

C-118

C-119

C-120



C-121

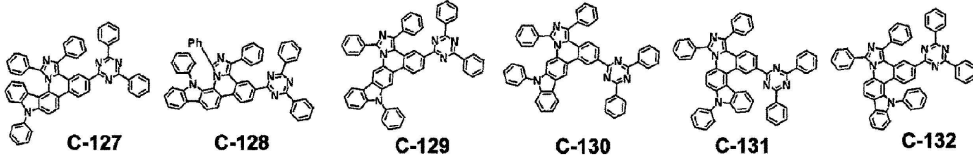
C-122

C-123

C-124

C-125

C-126



C-127

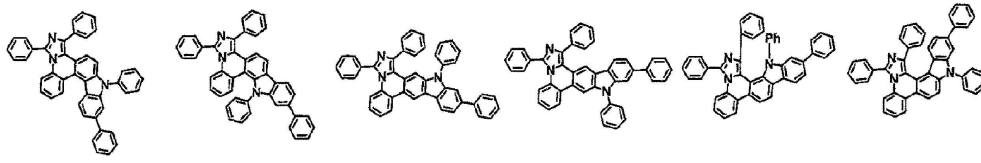
C-128

C-129

C-130

C-131

C-132



C-133

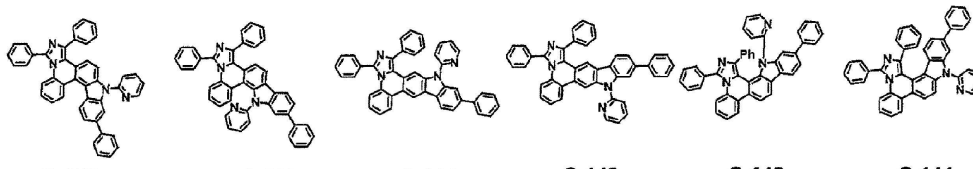
C-134

C-135

C-136

C-137

C-138



C-139

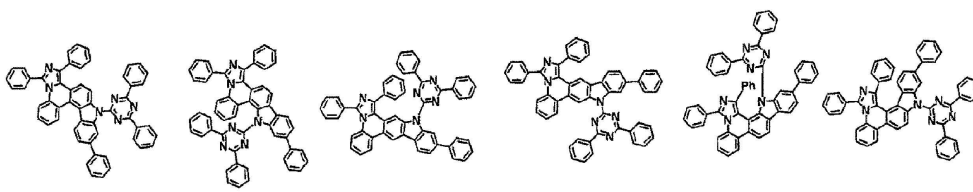
C-140

C-141

C-142

C-143

C-144



C-145

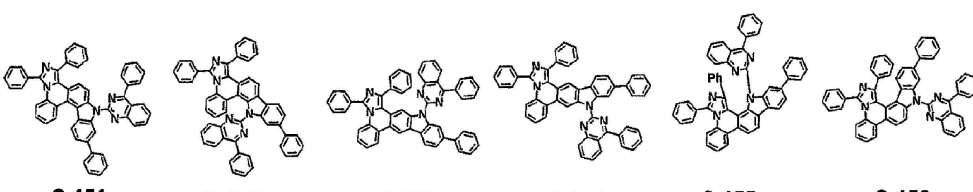
C-146

C-147

C-148

C-149

C-150



C-151

C-152

C-153

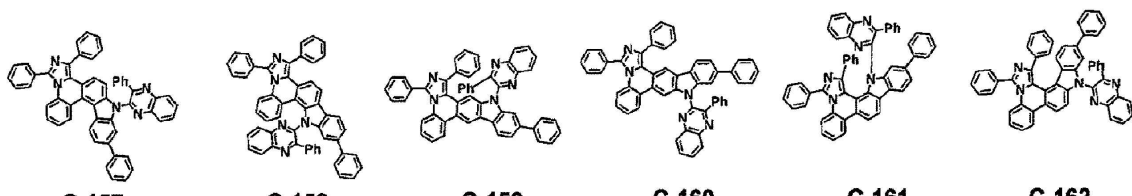
C-154

C-155

C-156

【 0 0 4 5】

【化 1 2】



C-157

C-158

C-159

C-160

C-161

C-162

10

20

30

40

50

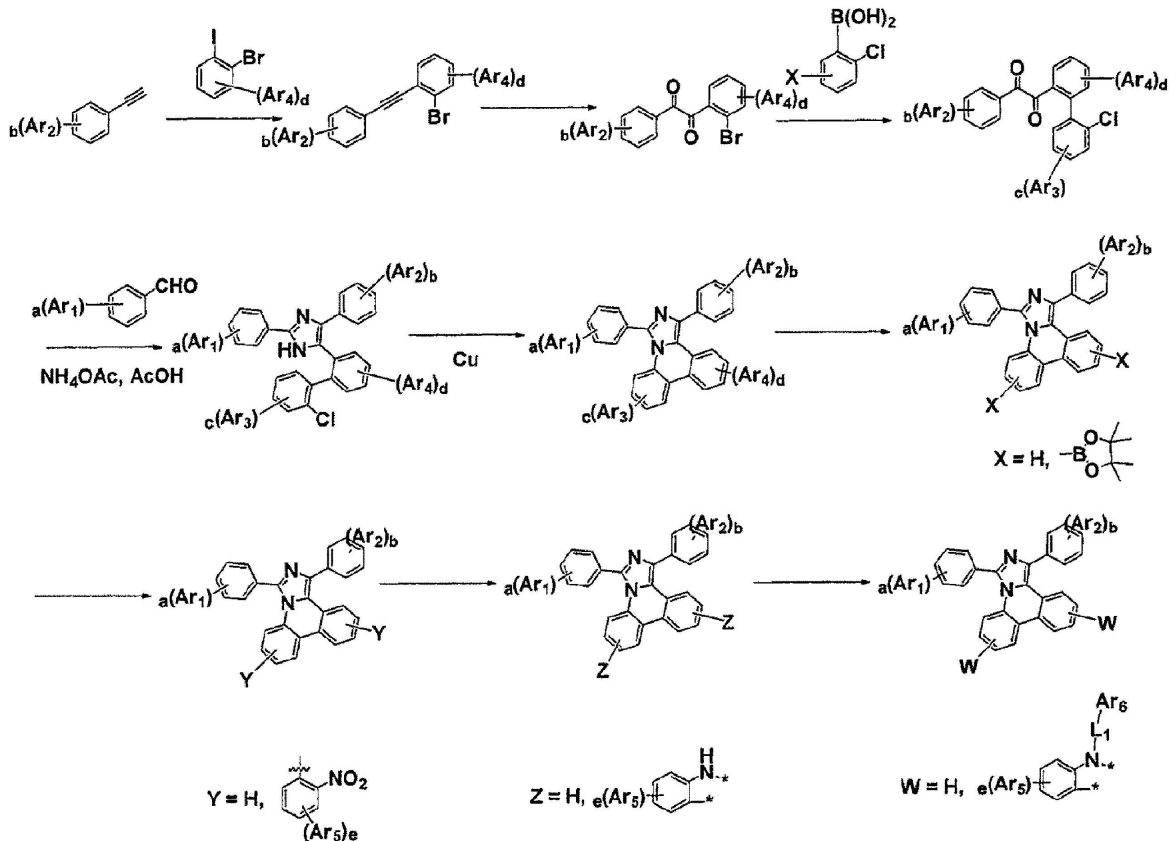
【 0 0 4 6 】

本開示による式 1 の化合物は、当業者に公知の合成方法によって調製することができる。
例えば、以下の反応スキーム

【 0 0 4 7 】

【 化 1 3 】

〔反応スキーム 1〕



10

20

30

【 0 0 4 8 】

(式中、 Ar_1 から Ar_6 、 L_1 、及び $a \sim e$ は、式 1 で定義された通りであり、 X は、水素又はボロン酸エステルを表す) に従って調製することができる。

【 0 0 4 9 】

本開示は、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材料、及びこの材料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。

【 0 0 5 0 】

上記の材料は、本開示による有機エレクトロルミネセント化合物のみから構成されることができ、又は有機エレクトロルミネセント材料において一般的に使用される従来の材料を更に含むことができる。

40

【 0 0 5 1 】

本開示の式 1 の有機エレクトロルミネセント化合物は、発光層、正孔注入層、正孔輸送層、正孔補助層、発光補助層、電子輸送層、電子緩衝層、電子注入層、中間層、正孔阻止層、及び電子阻止層のうちの 1 つ以上の層に含まれることができ、好ましくは、発光層、電子緩衝層、及び電子輸送層のうちの 1 つ以上の層に含まれることができる。発光層に使用される場合、本開示の式 1 の有機エレクトロルミネセント化合物は、ホスト材料として含まれることができる。更に、電子緩衝層に使用される場合、本開示の式 1 の有機エレクトロルミネセント化合物は、電子緩衝材料として含まれることができる。更に、電子輸送層に使用される場合、本開示の式 1 の有機エレクトロルミネセント化合物は、電子輸送材料として含まれることができる。好ましくは、発光層は 1 つ以上のドーパントを更に含み得

50

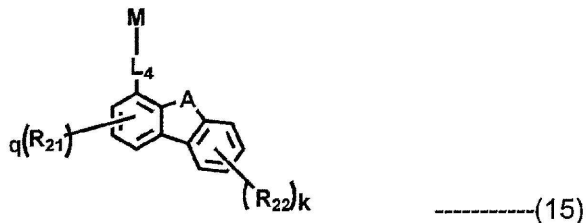
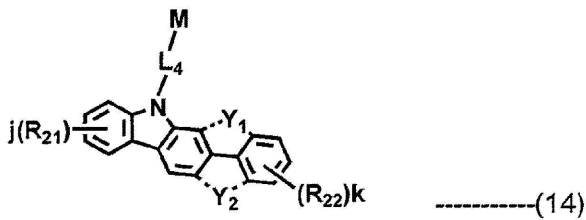
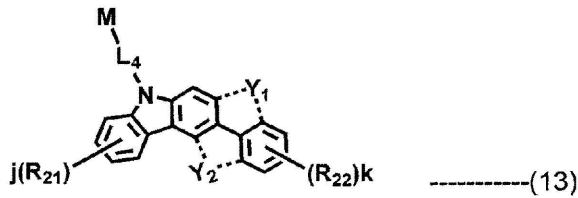
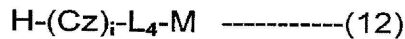
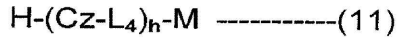
る。必要に応じて、本開示の有機エレクトロルミネセント化合物を共ホスト材料として使用することができる。即ち、発光層は、第2のホスト材料として、本開示の式1の有機エレクトロルミネセント化合物（第1のホスト材料）以外の化合物を更に含むことができる。ここで、第1のホスト材料の第2のホスト材料に対する重量比は、1：99から99：1の範囲である。

【0052】

第2のホスト材料は、公知のホストのいずれかであり得る。下記式11～16の化合物からなる群から選択されるホストが好ましくあり得る。

【0053】

【化14】

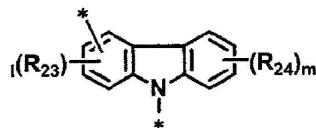


【0054】

(式中、Czは以下の構造

【0055】

【化15】



【0056】

を表し、Aは-O-又は-S-を表し、R₂₁からR₂₄は、それぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、置換又は非置換(C₁-C₃₀)アルキル、置換又は非置換(C₆-C₃₀)アリール、置換又は非置換(5~30員)ヘテロアリール、或いはSiR₂₅R₂₆R₂₇を表し、R₂₅からR₂₇は、それぞれ独立して、置換又は非置換(C₁-C₃₀)アルキル、或いは置換又は非置換(C₆-C₃₀)アリールを表し、L₄は、単結合、置換又は非置換(C₆-C₃₀)アリーレン、或いは置換又は非置換(5~30員)ヘテロアリーレンを表し、Mは置換又は非置換(C₆-C₃₀)アリール、或いは置換又

10

20

30

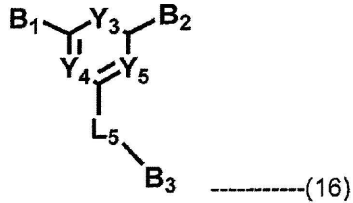
40

50

は非置換（5～30員）ヘテロアリールを表し、 Y_1 及び Y_2 は、それぞれ独立して、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-N(R_{31})-$ 又は $-C(R_{32})(R_{33})-$ を表し、但し、 Y_1 及び Y_2 は同時には存在せず、 R_{31} から R_{33} は、それぞれ独立して、置換又は非置換（ C_1-C_{30} ）アルキル、置換又は非置換（ C_6-C_{30} ）アリール、或いは置換又は非置換（5～30員）ヘテロアリールを表し、 R_{32} 及び R_{33} は、同一又は異なることができ、 h 及び i は、それぞれ独立して、1～3の整数を表し、 j 、 k 、 l 、及び m は、それぞれ独立して1～4の整数を表し、 q は、1～3の整数を表し、 h 、 i 、 j 、 k 、 l 、 m 、又は q が2以上の整数を表す場合、 (C_z-L_4) 、 (C_z) 、 R_{21} 、 R_{22} 、 R_{23} 、又は R_{24} はそれぞれ、同一又は異なることができる）。

【0057】

【化16】



10

【0058】

（式中、 Y_3 から Y_5 は、それぞれ独立して、 CR_{34} 又は N を表し、 R_{34} は、水素、置換又は非置換（ C_1-C_{30} ）アルキル、置換又は非置換（ C_6-C_{30} ）アリール、或いは置換又は非置換（5～30員）ヘテロアリールを表し、 B_1 及び B_2 は、それぞれ独立して、水素、置換又は非置換（ C_6-C_{30} ）アリール、或いは置換又は非置換（5～30員）ヘテロアリールを表し、 B_3 は、置換又は非置換（ C_6-C_{30} ）アリール、或いは置換又は非置換（5～30員）ヘテロアリールを表し、 L_5 は、単結合、置換又は非置換（ C_6-C_{30} ）アリーレン、或いは置換又は非置換（5～30員）ヘテロアリーレンを表す）。

20

【0059】

具体的には、第2のホスト材料の例は以下の通りであるが、これらに限定されない。

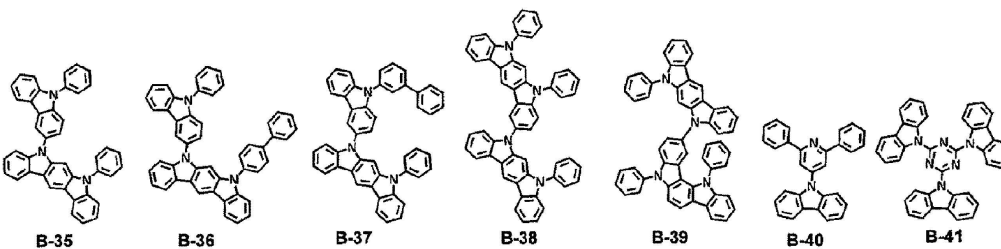
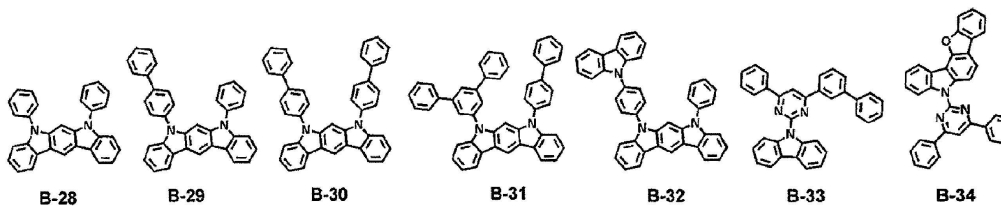
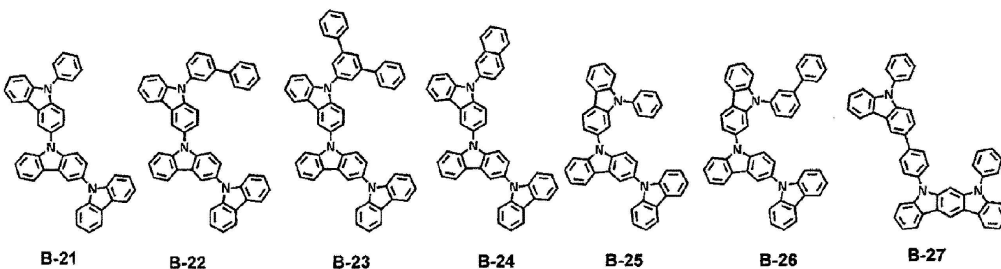
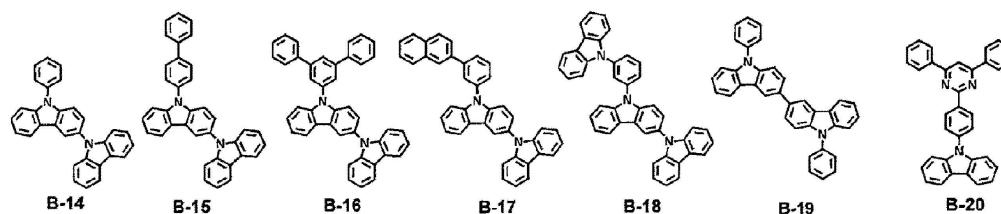
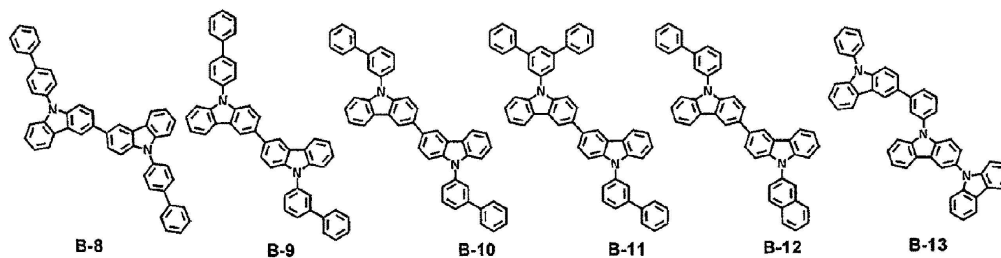
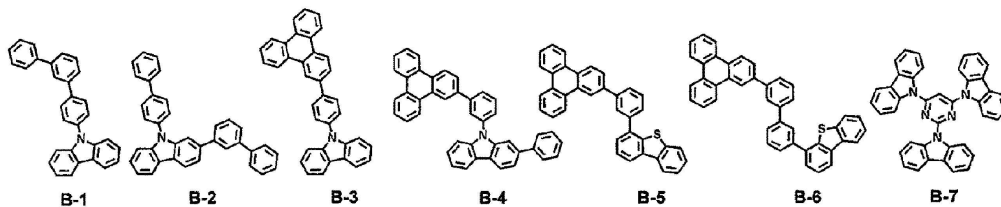
【0060】

30

40

50

【化 1 7】



【 0 0 6 1】

10

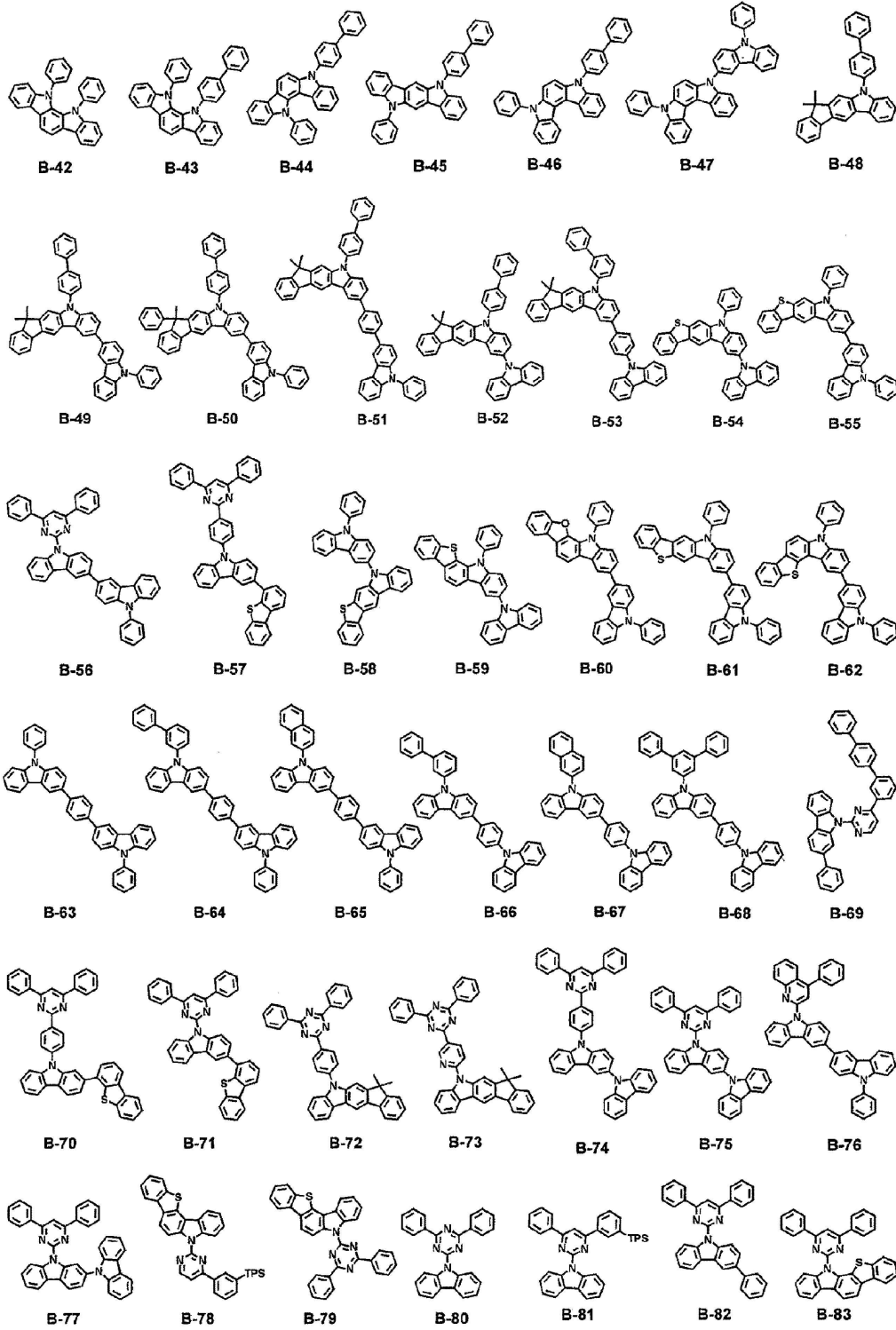
20

30

40

50

【化 1 8】



10

20

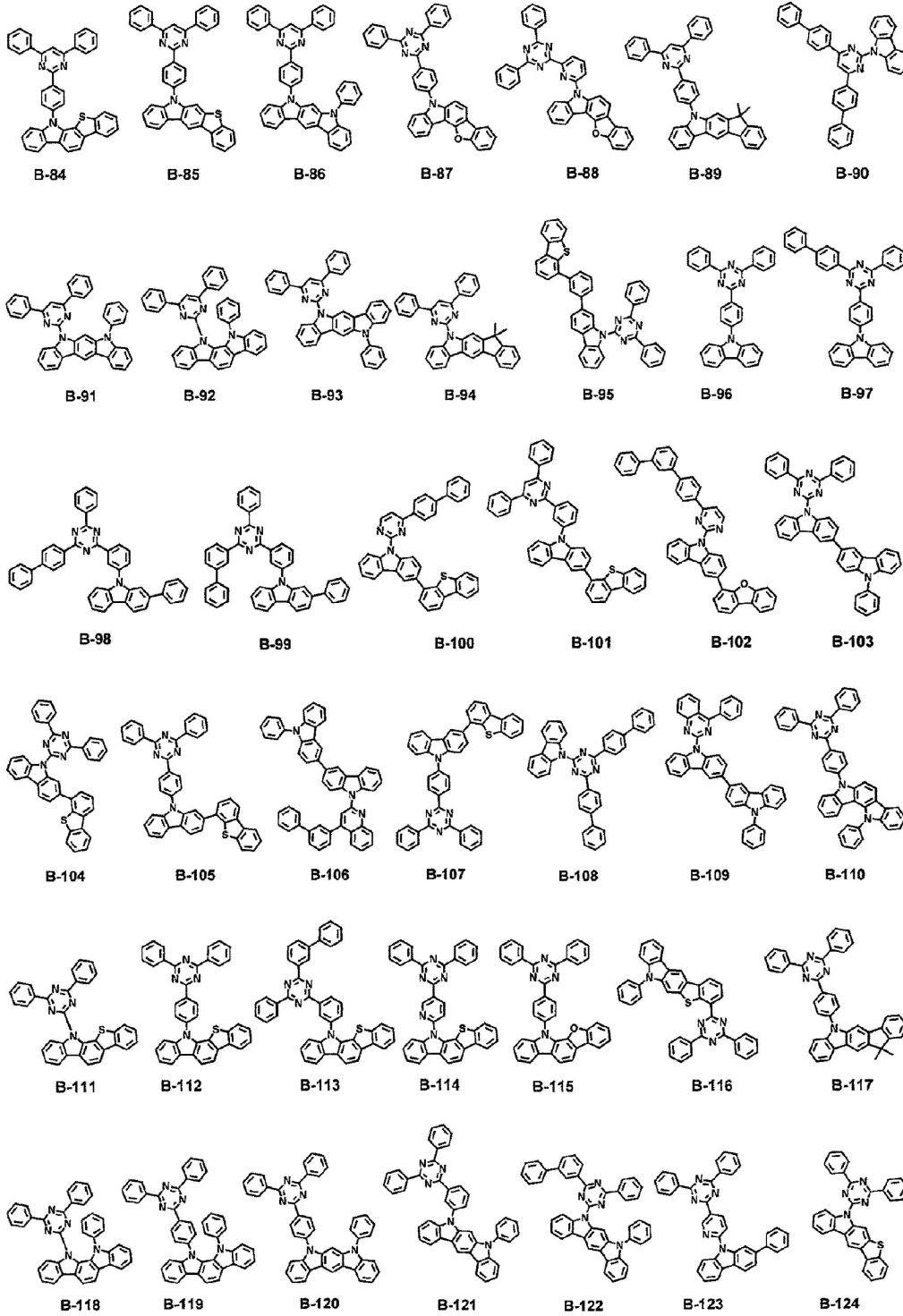
30

40

【 0 0 6 2】

50

【化 1 9】



10

20

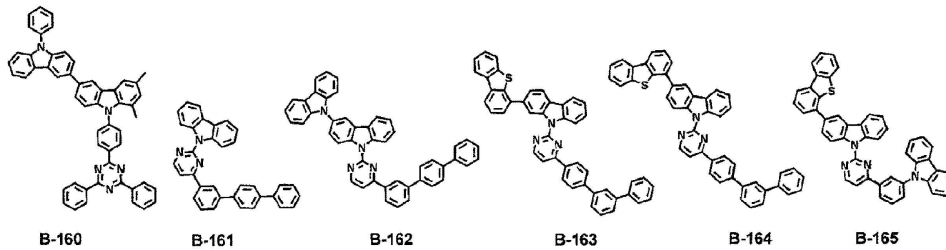
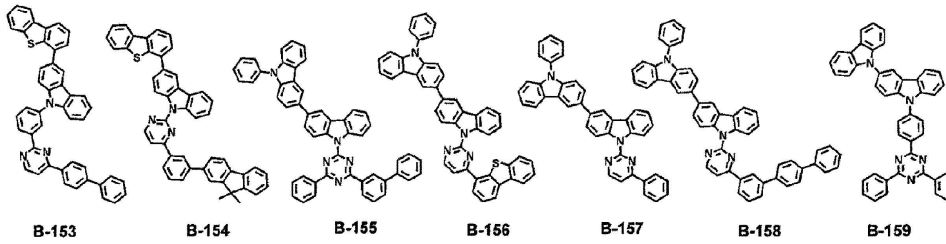
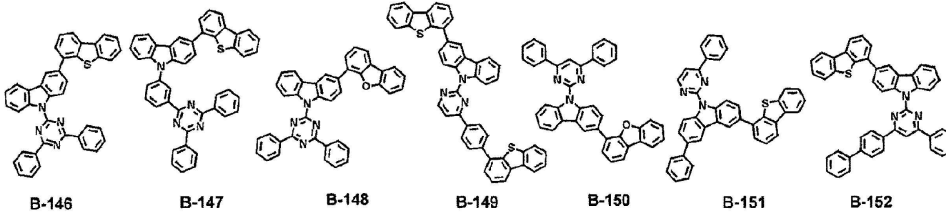
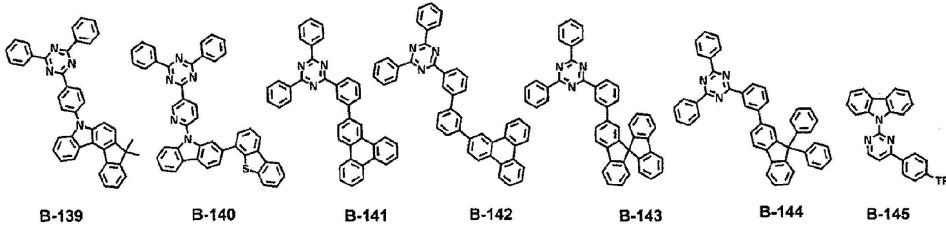
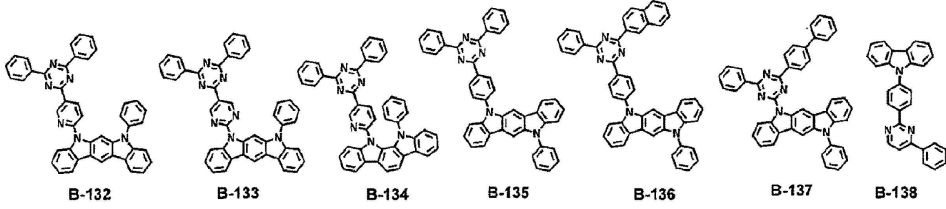
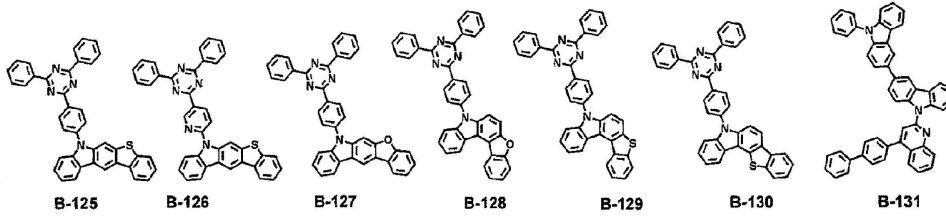
30

40

【 0 0 6 3】

50

【化 2 0】



【 0 0 6 4】

10

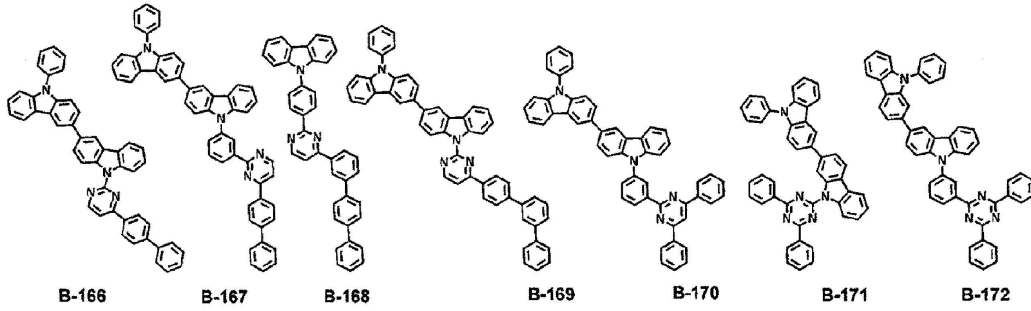
20

30

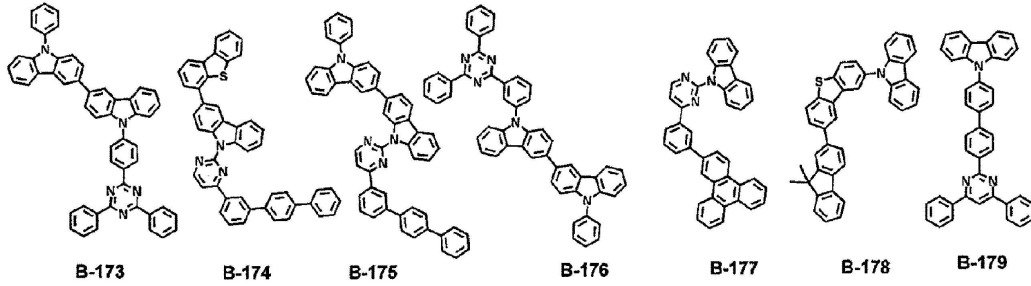
40

50

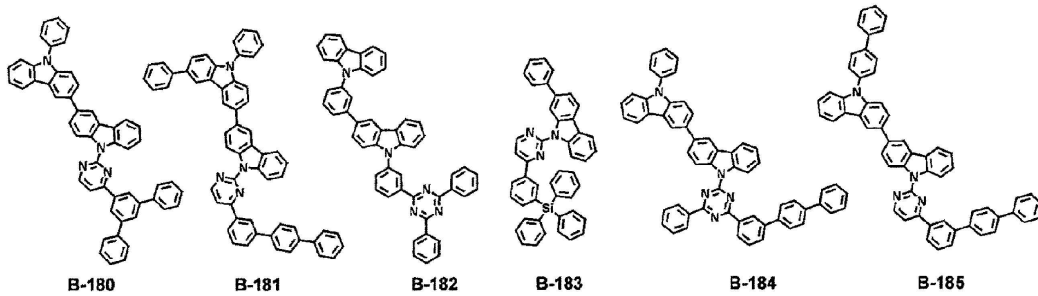
【化 2 1】



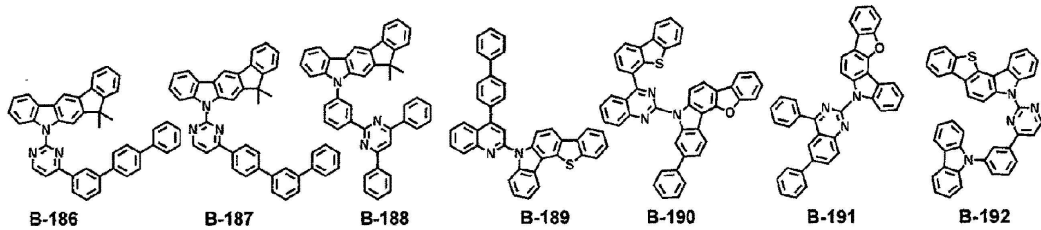
10



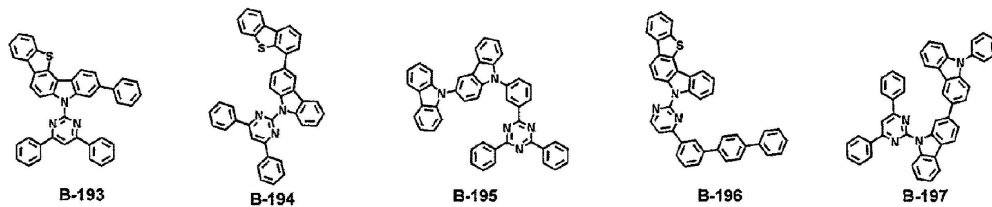
20



30



40



【 0 0 6 5】

[式中、 T P S はトリフェニルシリル基を表す]。

【 0 0 6 6】

本開示による有機エレクトロルミネセントデバイスに含まれるドーパントについては、少なくとも1つの燐光又は蛍光ドーパントを使用することができ、少なくとも1つの燐光ドーパントが好ましくあり得る。本発明による有機エレクトロルミネセントデバイスに適用される燐光ドーパント材料は、特に限定されないが、イリジウム (I r)、オスmium (O s)、銅 (C u)、及び白金 (P t) の金属化錯体化合物から選択されることができ、好ましくは、イリジウム (I r)、オスmium (O s)、銅 (C u)、及び白金 (P t)

50

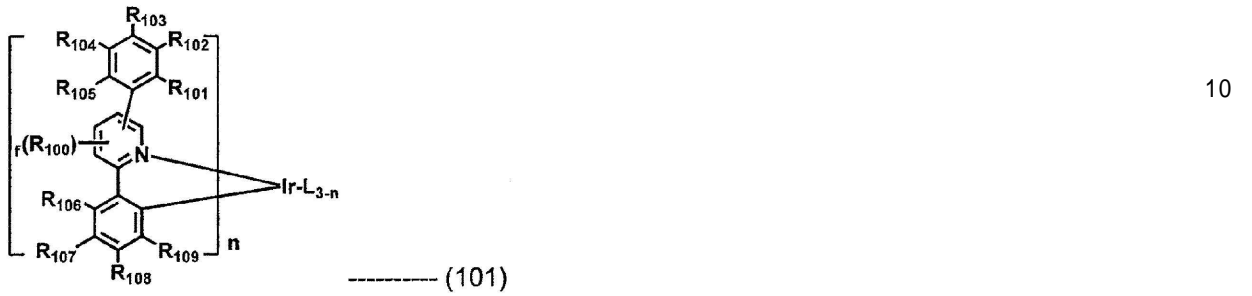
のオルト金属化錯体化合物から選択されることができ、より好ましくはオルト金属化イリジウム錯体化合物であり得る。

【 0 0 6 7 】

本開示の有機エレクトロルミネセントデバイスに含まれるドーパントは、下記式 1 0 1 ~ 1 0 4

【 0 0 6 8 】

【 化 2 2 】

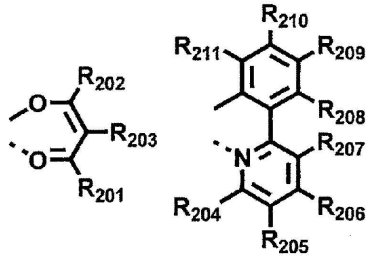


【 0 0 6 9 】

(式 中 、 L は 以 下 の 構 造 :

【 0 0 7 0 】

【化 2 3】



【 0 0 7 1】

から選択される)で表される化合物からなる群から選択されることができ、これらに限定されない。

【 0 0 7 2】

R 1 0 0、R 1 3 4、及び R 1 3 5 は、それぞれ独立して、水素、重水素、置換又は非置換の (C 1 - C 3 0) アルキル、或いは置換又は非置換 (C 3 - C 3 0) シクロアルキルを表し、

【 0 0 7 3】

R 1 0 1 から R 1 0 9 及び R 1 1 1 から R 1 2 3 は、それぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、非置換又は重水素又はハロゲンで置換された (C 1 - C 3 0) アルキル、置換又は非置換 (C 3 - C 3 0) シクロアルキル、置換又は非置換 (C 6 - C 3 0) アリール、シアノ、或いは置換又は非置換 (C 1 - C 3 0) アルコキシを表し、R 1 0 6 から R 1 0 9 の隣接する置換基は互いに結合して、例えば、非置換又はアルキルで置換されたフルオレン、非置換又はアルキルで置換されたジベンゾチオフェン、或いは非置換又はアルキルで置換されたジベンゾフランなどの、置換又は非置換縮合環を形成することができ、R 1 2 0 から R 1 2 3 の隣接する置換基は互いに結合して、例えば、非置換、又は少なくとも 1 つのアルキル、アリール、アラルキル、及びアルキルアリールで置換されたキノリンなどの置換又は非置換縮合環を形成することができ、

【 0 0 7 4】

R 1 2 4 から R 1 3 3 及び R 1 3 6 から R 1 3 9 は、それぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、置換又は非置換 (C 1 - C 3 0) アルキル、或いは置換又は非置換 (C 6 - C 3 0) アリールを表し、R 1 2 4 から R 1 2 7 の隣接する置換基は、互いに結合して置換又は非置換縮合環、例えば、非置換又はアルキルで置換されたフルオレン、非置換又はアルキルで置換されたジベンゾチオフェン、或いは非置換又はアルキルで置換されたジベンゾフランを形成することができ、X は、C R 5 1 R 5 2、O、又は S を表し、R 5 1 及び R 5 2 は、それぞれ独立して、置換又は非置換 (C 1 - C 1 0) アルキル、或いは置換又は非置換 (C 6 - C 3 0) アリールを表し、R 2 0 1 から R 2 1 1 は、それぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、非置換又は重水素又はハロゲンで置換された (C 1 - C 3 0) アルキル、置換又は非置換 (C 3 - C 3 0) シクロアルキル、或いは非置換又はアルキル又は重水素で置換された (C 6 - C 3 0) アリールを表し、R 2 0 8 から R 2 1 1 の隣接する置換基は互いに結合して、例えば、非置換又はアルキルで置換されたフルオレン、非置換又はアルキルで置換されたジベンゾチオフェン、或いは非置換又はアルキルで置換されたジベンゾフランなどの、置換又は非置換縮合環を形成することができ、f 及び g は、それぞれ独立して、1 ~ 3 の整数を表し、f 又は g は 2 以上の整数であり、R 1 0 0 はそれぞれ、同一又は異なることができ、n は 1 ~ 3 の整数を表す。

【 0 0 7 5】

具体的には、ドーパント化合物の例としては、以下の通りであるが、これらに限定されない。

【 0 0 7 6】

10

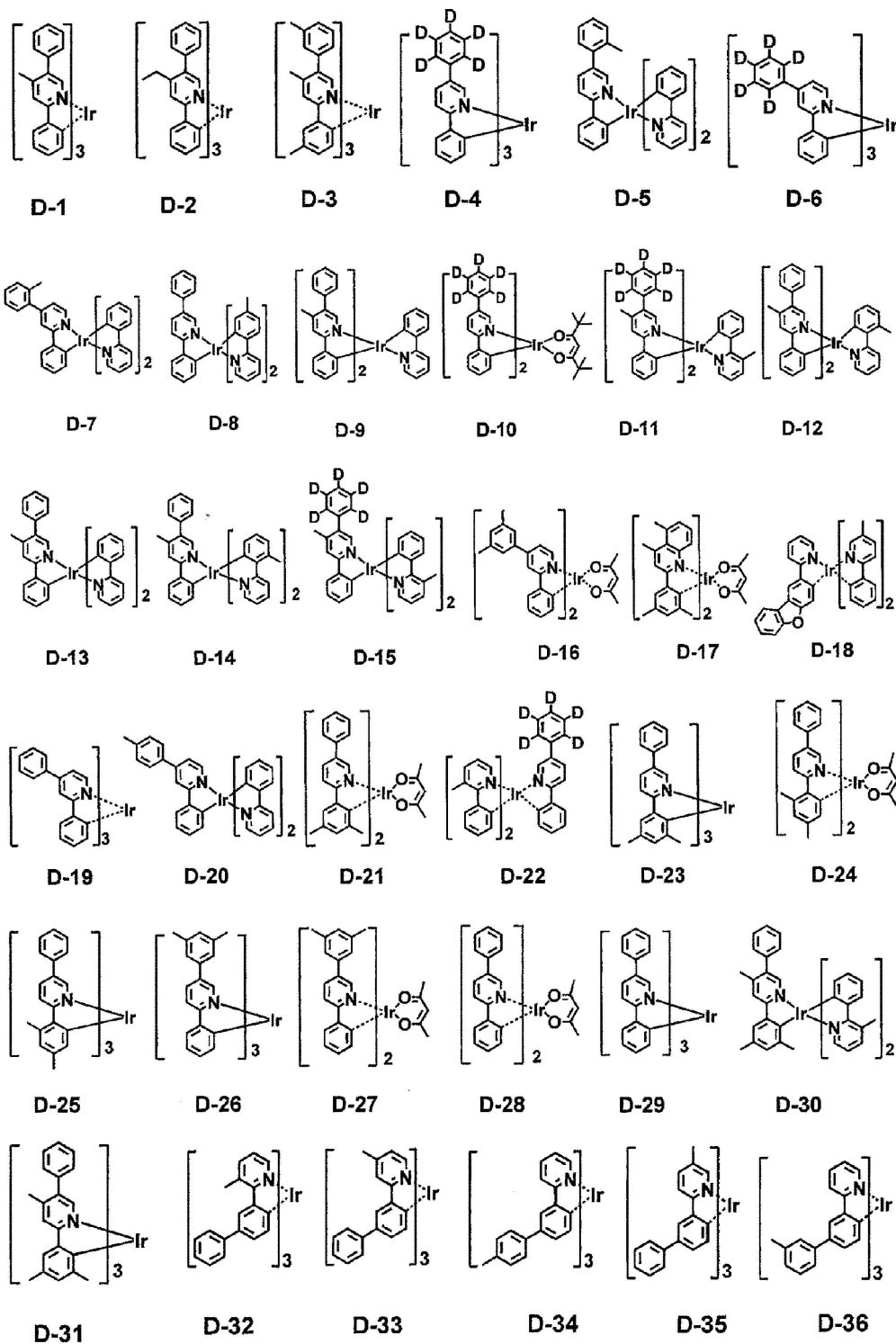
20

30

40

50

【化 2 4】



10

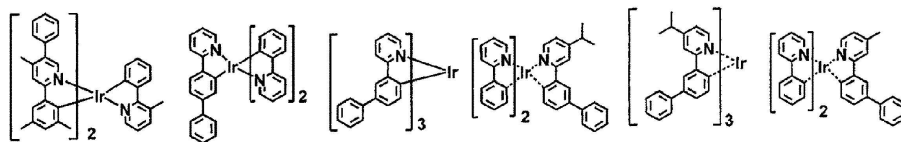
20

30

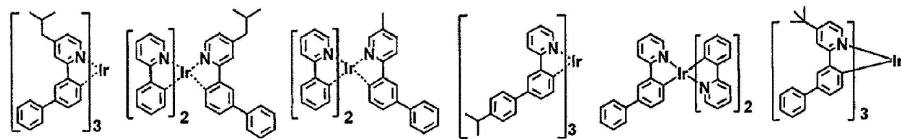
40

【 0 0 7 7 】

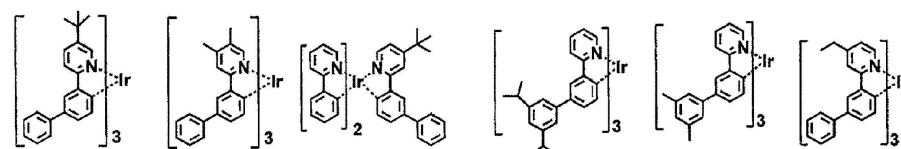
【化 2 5】



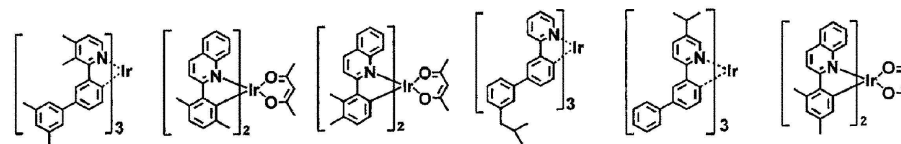
D-37 D-38 D-39 D-40 D-41 D-42



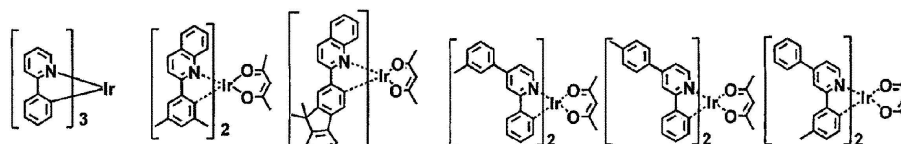
D-43 D-44 D-45 D-46 D-47 D-48



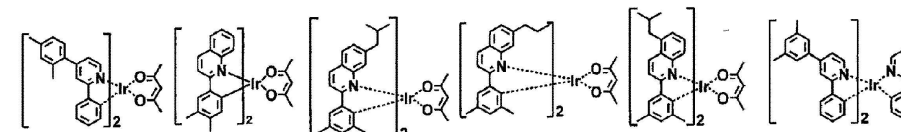
D-49 D-50 D-51 D-52 D-53 D-54



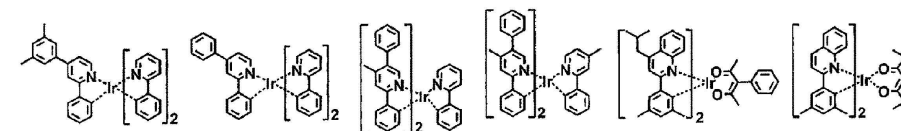
D-55 D-56 D-57 D-58 D-59 D-60



D-61 D-62 D-63 D-64 D-65 D-66



D-67 D-68 D-69 D-70 D-71 D-72



D-73 D-74 D-75 D-76 D-77 D-78

【 0 0 7 8】

10

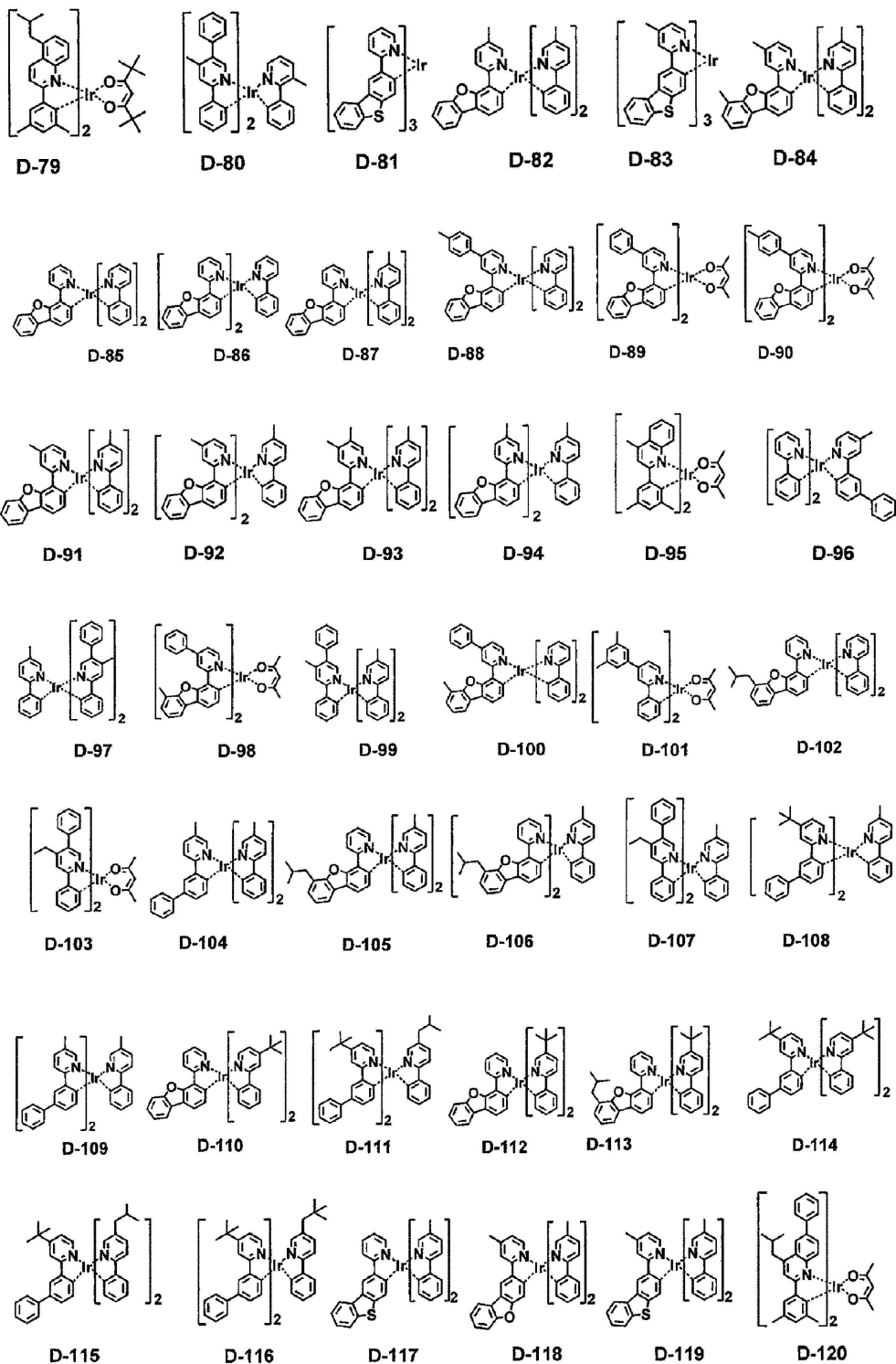
20

30

40

50

【化 2 6】



10

20

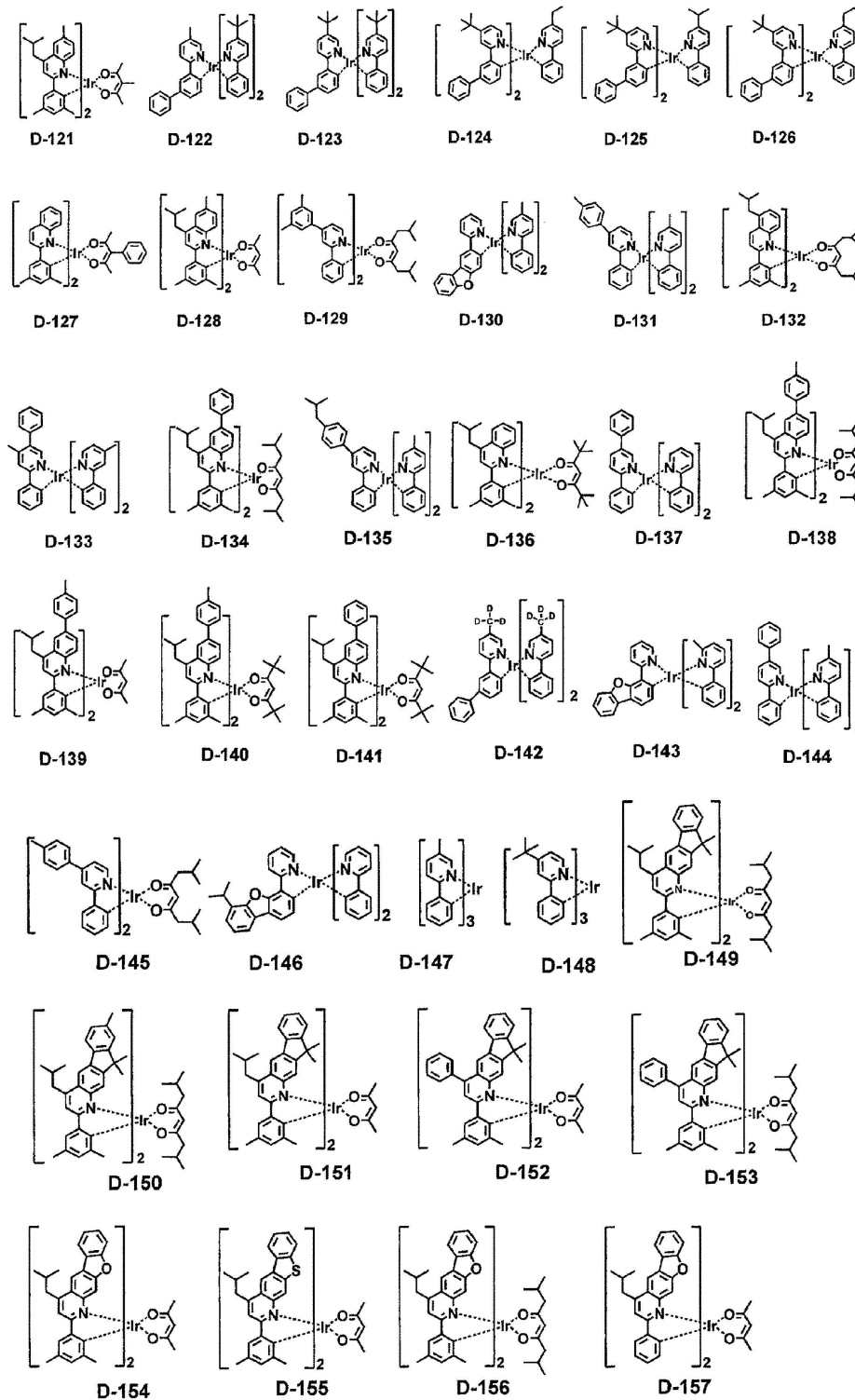
30

40

【 0 0 7 9】

50

【化 2 7】



10

20

30

40

【0080】

本開示による有機エレクトロルミネセントデバイスは、第1の電極と、第2の電極と、第1の電極と第2の電極の間の少なくとも1つの有機層とを含む。

【0081】

第1及び第2の電極のうち的一方はアノードであり得、他方はカソードであり得る。有機層は、発光層を含み得、正孔注入層、正孔輸送層、正孔補助層、発光補助層、電子輸送層、電子緩衝層、電子注入層、中間層、正孔阻止層、及び電子阻止層から選択される少なくとも1つの層を更に含む得る。

【0082】

50

有機層は、アリールアミン系化合物及びスチリルアリー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つの化合物を更に含み得る。

【0083】

更に、本開示の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、4族の遷移金属、5族の遷移金属、周期律表のd-遷移元素のランタニド及び有機金属、前述の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つの金属を更に含み得る。

【0084】

更に、本開示による有機エレクトロルミネセントデバイスは、本開示による化合物に加えて、当分野で公知の、青色エレクトロルミネセン化合物、赤色エレクトロルミネセン化合物、又は緑色エレクトロルミネセン化合物を含む少なくとも1つの発光層を更に含むことによって白色光を放出することができる。又、必要に応じて、黄色又は橙色の発光層が更にデバイスに含まれることができる。

10

【0085】

本開示による有機エレクトロルミネセントデバイスにおいて、少なくとも1つの層（以下、「表面層」）は、好ましくは、一方又は両方の電極の内面に配置され、カルコゲナイド層、金属ハロゲン化物層、及び金属酸化物層から選択される。具体的には、エレクトロルミネセント媒体層のアノード表面にシリコン又はアルミニウムのカルコゲナイド（酸化物を含む）層を配置することが好ましく、エレクトロルミネセント媒体層のカソード表面に金属ハロゲン化物層又は金属酸化物層を配置することが好ましい。このような表面層は、有機エレクトロルミネセントデバイスに動作安定性をもたらす。好ましくは、前述のカルコゲナイドは、 SiO_x ($1 < x < 2$)、 AlO_x ($1 < x < 1.5$)、 $SiON$ 、 $SiAlON$ 等を含み、前述の金属ハロゲン化物は、 LiF 、 MgF_2 、 CaF_2 、希土類金属フッ化物等を含み、前述の金属酸化物は、 Cs_2O 、 Li_2O 、 MgO 、 SrO 、 BaO 、 CaO 等を含む。

20

【0086】

アノードと発光層の間に、正孔注入層、正孔輸送層、電子阻止層、又はこれらの組み合わせを使用することができる。正孔注入層は、正孔注入障壁（又は正孔注入電圧）をアノードから正孔輸送層又は電子阻止層まで下げるために多層であり得、多層のそれぞれは、2つの化合物を同時に使用できる。又、正孔輸送層又は電子阻止層は、多層であり得る。

30

【0087】

電子緩衝層、正孔阻止層、電子輸送層、電子注入層、又はこれらの組み合わせは、発光層とカソードの間に用いることができる。電子緩衝層は、電子の注入を制御し、発光層と電子注入層の間の界面特性を改善するために多層であり得、多層のそれぞれは、2つの化合物を同時に使用することができる。又、正孔阻止層又は電子輸送層は、多層であり得、多層のそれぞれは、複数の化合物を使用することができる。

【0088】

発光補助層は、アノードと発光層の間、又はカソードと発光層の間に配置することができる。発光補助層をアノードと発光層の間に配置する場合、正孔注入及び/又は正孔輸送を促進するために、或いは電子のオーバーフローを防止するために用いることができる。発光補助層をカソードと発光層の間に配置する場合、電子注入及び/又は電子輸送を促進するために、或いは正孔のオーバーフローを防止するために用いることができる。又、正孔補助層は、正孔輸送層（又は正孔注入層）と発光層の間に配置されることができ、正孔輸送速度（又は正孔注入速度）を促進又は阻止するのに有効であり得、これにより電荷バランスを制御することができる。更に、電子阻止層は、正孔輸送層（又は正孔注入層）と発光層の間に配置されることができ、発光層からの電子のオーバーフローを阻止することによって励起子を発光層内に閉じ込めて発光漏れを防止することができる。有機エレクトロルミネセントデバイスが2つ以上の正孔輸送層を含む場合、更に含まれる正孔輸送層は正孔補助層又は電子阻止層として使用することができる。正孔補助層及び電子阻止層は、有機エレクトロルミネセントデバイスの効率及び/又は寿命を向上させる効果を有し得る。

40

50

【0089】

好ましくは、本開示の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、又は正孔輸送化合物と酸化性ドーパントとの混合領域は、一対の電極の少なくとも1つの表面に配置されていることができる。この場合、電子輸送化合物はアニオンに還元されるので、混合領域から発光媒体への電子の注入及び輸送がより容易になる。更に、正孔輸送化合物はカチオンに酸化されるので、混合領域から発光媒体への正孔の注入及び輸送がより容易になる。好ましくは、酸化性ドーパントは、種々のルイス酸及びアクセプター化合物を含み、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、及びこ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使用して、2つ以上の発光層を有し白色光を放出する有機ELデバイスを調製することができる。

10

【0090】

本開示の有機エレクトロルミネセントデバイスを構成するそれぞれの層を形成するために、真空蒸着、スパッタリング、プラズマ、イオンプレーティング法等などの乾式成膜法、或いはスピコーティング、ディップコーティング、フローコーティング法等などの湿式成膜法を使用することができる。本開示の第1及び第2のホスト化合物の膜を形成する場合、共蒸着法又は混合蒸着法が使用される。

【0091】

湿式製膜法を用いる場合、それぞれの層を構成する材料をエタノール、クロロホルム、テトラヒドロフラン、ジオキサン等などの適切な溶媒に溶解又は分散させることにより薄膜を形成する。溶媒は、それぞれの層を構成する材料が、溶媒に可溶又は分散可能であり、成膜時に問題となることがない限り、特に制限されない。

20

【0092】

本開示の有機エレクトロルミネセントデバイスを用いることによって、例えば、スマートフォン、タブレット、ノートブック、PC、TV、又は車両用の表示デバイス、或いは例えば屋内又は屋外の照明デバイスなどの照明デバイスを製造することができる。

【0093】

以下、本開示の代表的な化合物に関して、本開示の化合物の調製方法、この化合物の物理的特性、及びこの化合物を含むこの有機エレクトロルミネセントデバイスの発光特性について詳細に説明する。しかしながら、本開示は以下の実施例に限定されない。

30

【実施例】

【0094】

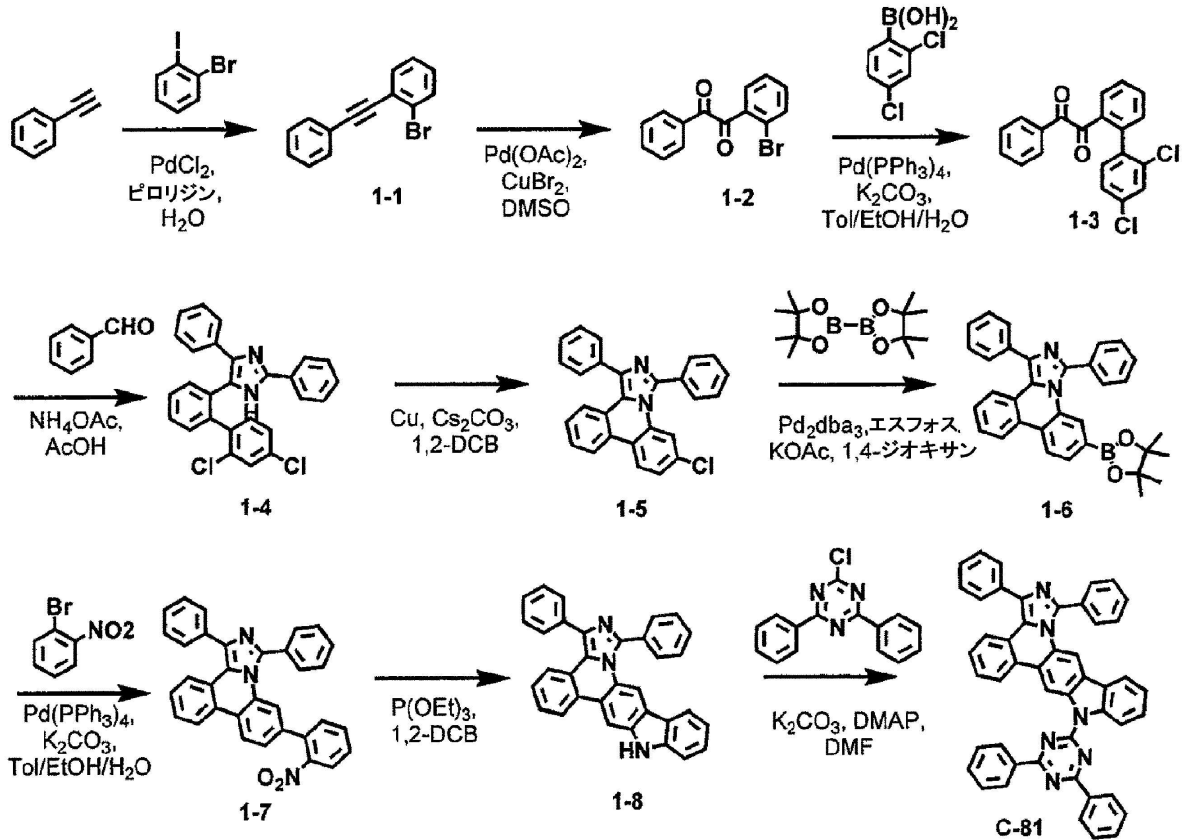
実施例1：化合物C-81の調製

【0095】

40

50

【化 2 8】



10

20

【0096】

1) 化合物 1 - 1 の合成

17.3 g のフェニルアセチレン (170 ミリモル)、40 g の 1 - ブロモ - 2 - ヨードベンゼン (141 ミリモル)、0.2 g の塩化パラジウム (II) (1 ミリモル)、50 g のピロリジン (707 ミリモル)、及び 180 mL の水をフラスコに入れて溶解させ、50 で 24 時間攪拌した。反応終了後、有機層を酢酸エチルで抽出し、残った水分を硫酸マグネシウムを用いて除去した。その後、得られた生成物を乾燥しカラムクロマトグラフィーで分離して、29 g の化合物 1 - 1 を得た (収率: 80%)。

30

【0097】

2) 化合物 1 - 2 の合成

28 g の化合物 1 - 1 (109 ミリモル)、2.4 g の酢酸パラジウム (II) (11 ミリモル)、2.4 g の臭化第二銅 (11 ミリモル)、及び 440 mL の DMSO をフラスコに入れて溶解させ、混合物を 20 時間還流した。反応終了後、有機層を酢酸エチルで抽出し、残った水分を硫酸マグネシウムを用いて除去した。その後、得られた生成物を乾燥しカラムクロマトグラフィーで分離して、16.3 g の化合物 1 - 2 を得た (収率: 52%)。

40

【0098】

3) 化合物 1 - 3 の合成

18.2 g の化合物 1 - 2 (63 ミリモル)、14.4 g の 2,4 - ジクロロフェニルボロン酸 (76 ミリモル)、3.6 g のテトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム (0) (3 ミリモル)、21.7 g の 2 M 炭酸カリウム (80 ミリモル)、320 mL のトルエン、及び 80 mL のエタノールをフラスコに入れて溶解させ、混合物を 5 時間還流した。反応終了後、有機層を酢酸エチルで抽出し、残った水分を硫酸マグネシウムを用いて除去した。その後、得られた生成物を乾燥しカラムクロマトグラフィーで分離して、20.6 g の化合物 1 - 3 を得た (収率: 92%)。

【0099】

50

4) 化合物 1 - 4 の合成

20.6 g の化合物 1 - 3 (58 ミリモル)、6.1 g のベンズアルデヒド (58 ミリモル)、26.8 g の酢酸アンモニウム (348 ミリモル)、及び 290 mL の酢酸をフラスコに入れて溶解させ、混合物を 24 時間還流した。反応終了後、有機層を酢酸エチルで抽出し、残った水分を硫酸マグネシウムを用いて除去した。その後、得られた生成物を乾燥しカラムクロマトグラフィーで分離して、23.5 g の化合物 1 - 4 を得た (収率: 91.8%)。

【0100】

5) 化合物 1 - 5 の合成

23.5 g の化合物 1 - 4 (53 ミリモル)、3.38 g の銅粉末 (53 ミリモル)、69 g の炭酸セシウム (213 ミリモル)、及び 350 mL の 1, 2 - ジクロロベンゼンをフラスコに入れて溶解させ、混合物を 17 時間還流した。反応終了後、有機層を酢酸エチルで抽出し、残った水分を硫酸マグネシウムを用いて除去した。その後、得られた生成物を乾燥しカラムクロマトグラフィーで分離して、18.3 g の化合物 1 - 5 を得た (収率: 85%)。

【0101】

6) 化合物 1 - 6 の合成

18.3 g の化合物 1 - 5 (45 ミリモル)、13.7 g のビス (ピナコラト) ジボロン (54 ミリモル)、2.0 g のトリス (ジベンジリデンアセトン) ジパラジウム (2 ミリモル)、1.85 g の 2 - ジクロロヘキシルホスフィン - 2', 6' - ジメトキシピフェニル (エスフォス) (5 ミリモル)、11 g の酢酸カリウム (113 ミリモル)、及び 230 mL の 1, 4 - ジオキサンをフラスコに入れて溶解させ、混合物を 4 時間還流下撈拌した。反応終了後、有機層を酢酸エチルで抽出し、残った水分を硫酸マグネシウムを用いて除去した。その後、得られた生成物を乾燥しカラムクロマトグラフィーで分離して、13.7 g の化合物 1 - 6 を得た (収率: 61%)。

【0102】

7) 化合物 1 - 7 の合成

13.2 g の化合物 1 - 6 (27 ミリモル)、4.45 g の 2 - プロモニトロベンゼン (22 ミリモル)、1.26 g のテトラキス (トリフェニルホスフィン) パラジウム (0) (1 ミリモル)、7.64 g の 2 M 炭酸カリウム (55 ミリモル)、120 mL のトルエン、及び 30 mL のエタノールをフラスコに入れて溶解させ、混合物を 6 時間還流した。反応終了後、有機層を酢酸エチルで抽出し、残った水分を硫酸マグネシウムを用いて除去した。その後、得られた生成物を乾燥しカラムクロマトグラフィーで分離して、7.2 g の化合物 1 - 7 を得た (収率: 55%)。

【0103】

8) 化合物 1 - 8 の合成

6.2 g の化合物 1 - 7 (13 ミリモル)、42 mL の亜リン酸トリエチル、及び 42 mL の 1, 2 - ジクロロベンゼンをフラスコに入れて溶解させ、混合物を 17 時間還流した。反応終了後、減圧蒸留後に有機層を酢酸エチルで抽出し、残った水分を硫酸マグネシウムを用いて除去した。その後、得られた生成物を乾燥しカラムクロマトグラフィーで分離して、1.5 g の化合物 1 - 8 を得た (収率: 25%)。

【0104】

9) 化合物 C - 81 の合成

1.5 g の化合物 1 - 8 (3 ミリモル)、1.05 g の 2 - クロロ - 4, 6 - ジフェニル - 1, 3, 5 - トリアジン (4 ミリモル)、0.9 g の炭酸カリウム (7 ミリモル)、0.04 g の 4 - ジメチルアミノピリジン (0.3 ミリモル)、及び 32 mL のジメチルホルムアミドをフラスコに入れて溶解させ、混合物を 4 時間還流した。反応終了後、生成した固体を濾過し、濾液をカラムクロマトグラフィーで分離して、1.7 g の化合物 C - 81 を得た (収率: 75%)。

【0105】

10

20

30

40

50

【表 1】

化合物	分子量	紫外線	PL	融点
C-81	690.81	342 nm	463 nm	389°C

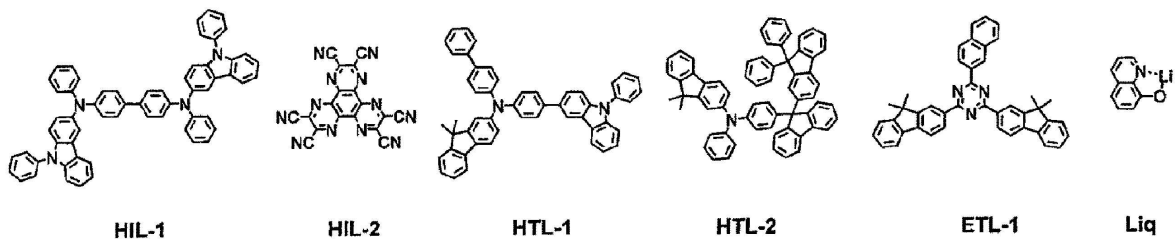
【0106】

デバイスの実施例 1：ホストとして本開示による有機エレクトロルミネセント化合物を用いた OLED デバイスの作製

本開示の有機エレクトロルミネセント化合物を含む OLED デバイスを作製した。OLED デバイス用ガラス基板（ジオマテック株式会社、日本）の透明電極酸化インジウム錫（ITO）薄膜（10 / sq）を、アセトン、エタノール、及び蒸留水で順次超音波洗浄し、次いでイソプロパノール中に貯蔵した。次に、ITO 基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着した。化合物 HIL-1 を前述の真空蒸着装置のセルに導入し、次いで、前述の装置のチャンパー内の圧力を 10^{-6} トールに制御した。その後、セルに電流を流して上記導入された物質を蒸発させて、これにより ITO 基板に厚さ 80 nm の第 1 の正孔注入層を形成した。次いで、化合物 HIL-2 を前述の真空蒸着装置の別のセルに導入し、セルに電流を流して蒸発させ、これにより第 1 の正孔注入層に厚さ 5 nm の第 2 の正孔注入層を形成した。化合物 HTL-1 を前述の真空蒸着装置の別のセルに導入し、セルに電流を流して蒸発させ、これにより第 2 の正孔注入層に厚さ 10 nm の第 1 の正孔輸送層を形成した。化合物 HTL-2 を前述の真空蒸着装置の別のセルに導入し、セルに電流を流して蒸発させ、これにより第 1 の正孔輸送層に厚さ 60 nm の第 2 の正孔輸送層を形成した。正孔注入層及び正孔輸送層を形成した後、発光層を以下の通り蒸着した。化合物 C-81 をホストとして真空蒸着装置の一方のセルに導入し、化合物 D-71 をドーパントとして他方のセルに導入した。2つの材料を異なる速度で蒸発させ、ホストとドーパントの総量に基づいて 3 重量% のドーパ量で蒸着させて、第 2 の正孔輸送層に 40 nm の厚さの発光層を形成した。次いで、化合物 ETL-1 及び Liq を他の 2 つのセルに導入し、同時に 1 : 1 の速度で蒸発させ蒸着して、発光層に 30 nm の厚さの電子輸送層を形成した。次に、電子輸送層に、厚さ 2 nm の電子注入層として Liq を蒸着した後、他の真空蒸着装置により電子注入層に厚さ 80 nm の Al カソードを蒸着した。このようにして、OLED デバイスを作製した。

【0107】

【化 29】



【0108】

結果として、3.5 V の駆動電圧で 21.7 cd/A の発光効率を示し、 $1,000 \text{ cd/m}^2$ の赤色光が発光した。

【0109】

比較例 1：ホストとして従来の有機エレクトロルミネセント化合物を用いた OLED デバイスの作製

発光層のホストとして化合物 A を用いた以外は、デバイスの実施例 1 と同じ方法で OLED 装置を作製した。

【0110】

10

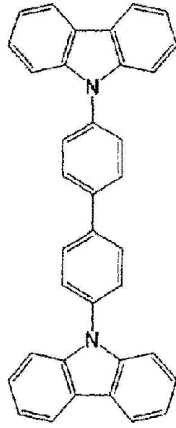
20

30

40

50

【化 3 0】



A

【 0 1 1 1】

結果として、10.0 Vの駆動電圧で14.3 cd/Aの発光効率を示し、1,000 cd/m²の赤色光が発光した。

【 0 1 1 2】

ホストとして本開示の有機エレクトロルミネセント化合物を用いた有機エレクトロルミネセントデバイスの駆動電圧及び発光効率特性は、従来の有機エレクトロルミネセント化合物を用いた有機エレクトロルミネセントデバイスよりもはるかに優れていることが確認された。

10

20

30

40

50

フロントページの続き

- (56)参考文献 特開2001-035664(JP,A)
国際公開第2018/084619(WO,A1)
韓国公開特許第10-2014-0065357(KR,A)
- (58)調査した分野 (Int.Cl., DB名)
H01L 51/50
H01L 27/32
C09K 11/06
G09F 9/30
Caplus/REGISTRY(STN)