

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
6. März 2003 (06.03.2003)

PCT

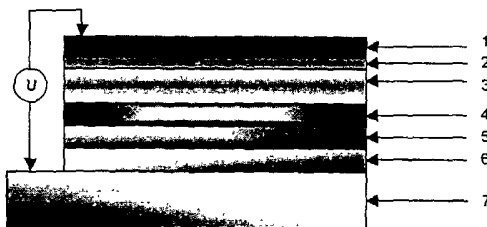
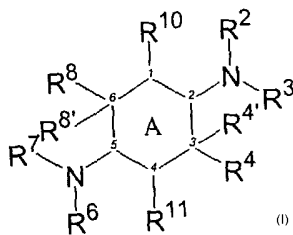
(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 03/019697 A3

- (51) Internationale Patentklassifikation⁷: **H01L 51/30**, C09K 11/06, C07C 229/62, 255/58, C07D 209/08, 213/74, 239/42, 295/12, 295/18, 317/66, 455/04, 498/04
- (72) **Erfinder; und**
(75) **Erfinder/Anmelder (nur für US): RICHTER, Andreas, M.** [DE/DE]; Im Mühlengrund 25, 06188 Plössnitz (DE). **SCHÖNEWERK, Jens** [DE/DE]; Nerchauer Strasse 2, 04668 Grimma (DE). **DIENER, Gerhard** [DE/DE]; Friedrich-Ebert-Strasse 8, 06366 Köthen (DE).
- (21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE02/03110
- (22) Internationales Anmeldedatum: 21. August 2002 (21.08.2002)
- (74) **Anwalt: WALTER, Wolf-Jürgen**; Felke & Walter, Normannenstrasse 1-2, 10367 Berlin (DE).
- (25) Einreichungssprache: Deutsch
- (81) **Bestimmungsstaaten (national):** AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (26) Veröffentlichungssprache: Deutsch
- (30) **Angaben zur Priorität:** 101 41 266.5 21. August 2001 (21.08.2001) DE
- (71) **Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): SENSIENT IMAGING TECHNOLOGIES GMBH** [DE/DE]; ChemiePark Bitterfeld-Wolfen, Areal A, Emil-Fischer-Strasse 3, 06766 Wolfen (DE).
- (84) **Bestimmungsstaaten (regional):** ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW),

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) **Title:** ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE BASED ON 2,5-DIAMINOTEREPHTHALIC ACID DERIVATIVES

(54) **Bezeichnung:** ORGANISCHE ELEKTROLUMINESZIERENDE VORRICHTUNG AUF BASIS VON 2,5-DIAMINOTEREPHTHALSÄUREDERIVATEN



(57) **Abstract:** The invention relates to an organic electroluminescent device which contains 2,5-diaminoterephthalic acid derivatives of formula 1a as emitter substances in one or several emitter layers in a pure or doped manner. The ring A is a triple unsaturated benzole ring wherein R^{4'} and R^{8'} are equal to zero or ring A is a double unsaturated ring respectively provided with a double bond in the 1,2 position and 4,5-position, and wherein R¹⁰ is a nitrile radical -CN or a radical C(=X¹)-X²R¹, R¹¹ is a nitrile radical -CN or a radical -C(=X³)-X⁴R⁵, X¹ and X³ are oxygen, sulphur or imino, X² and X⁴ are oxygen, sulphur or optionally substituted amino, R¹ - R⁸, R^{4'} and R^{8'} are H, C1-C20-alkyl, aryl, heteroaryl, R⁴ and R⁸ can also be halogen, nitro, cyanogen or amino, R² - R⁴, R⁶ - R⁸, R^{4'} and R^{8'} can also be trifluoromethyl or pentafluorophenyl, and wherein certain radicals can form a saturated or unsaturated ring. The novel devices are characterised by narrow emission bands, low driver voltages, high photometric efficiency and high thermal stability within a broad spectral range.

(57) **Zusammenfassung:** Die Erfindung betrifft eine organische elektro-lumineszierende Vorrichtung, die als Emittersubstanzen 2,5-Diaminote-

rephthalsäurederivate der Formel 1a in einer oder mehreren Emitterschichten rein oder dotiert enthält. Darin ist der Ring A ein dreifach ungesättigter Benzolring, in dem R^{4'} und R^{8'} gleich null sind, oder der Ring A ist ein zweifach ungesättigter Ring mit je einer Doppelbindung in 1,2-Position und 4,5-Position, und worin R¹⁰ einen Nitrilrest -CN oder einen Rest -C(=X¹)-X²R¹ bedeutet, R¹¹ ist ein Nitrilrest -CN oder ein Rest -C(=X³)-X⁴R⁵, X¹ und X³ sind Sauerstoff, Schwefel oder Imino, X² und X⁴ sind Sauerstoff, Schwefel oder gegebenenfalls substituiertes Amino, R¹ bis R⁸, R^{4'} und R^{8'} sind H, C1-C20-Alkyl, Aryl, Heteroaryl, R⁴ und R⁸ können auch Halogen, Nitro, Cyan oder Amino sein, R² bis R⁴, R⁶ bis R⁸, R^{4'} und R^{8'} können auch Trifluormethyl oder Pentafluorphenyl sein, und worin bestimmte Reste einen gesättigten oder ungesättigten Ring bilden können. Die neuen Vorrichtungen zeichnen sich durch schmale Emissionsbanden, niedrige Treiberspannungen, hohe photometrische Effizienz und hohe thermische Stabilität bei einem breiten Spektralbereich aus.



WO 03/019697 A3



eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SK, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

- mit internationalem Recherchenbericht
- vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen eintreffen

(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen**Recherchenberichts:**

24. Dezember 2003

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/DE 02/03110

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 H01L51/30 C09K11/06 C07C229/62 C07C255/58 C07D209/08
 C07D213/74 C07D239/42 C07D295/12 C07D295/18 C07D317/66
 C07D455/04 C07D498/04

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 H01L C09K C07C C07D

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 practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, BEILSTEIN Data, PAJ, CHEM ABS Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	<p>PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1999, no. 02, 26 February 1999 (1999-02-26) -& JP 10 294178 A (MITSUI CHEM INC), 4 November 1998 (1998-11-04)</p> <p>Formel (1) abstract</p> <p style="text-align: center;">----- -/--</p>	<p>1-6, 23, 24, 26, 31-33, 38-40, 45, 46, 48-50, 55-59</p>

 Further documents are listed in the continuation of box C. Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"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)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"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

"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

"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.

"Z" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

15 July 2003

Date of mailing of the international search report

16. 10. 03

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5618 Patentlaan 2
 NL - 2280 HV Rijswijk
 Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
 Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Rivat, C.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/DE 02/03110

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1999, no. 01, 29 January 1999 (1999-01-29) -& JP 10 284250 A (MITSUI CHEM INC), 23 October 1998 (1998-10-23) Formel (1) abstract	1-6,23, 24,26, 31-33, 38-40, 45,46, 48-50, 55-59
A	EP 0 468 439 A (EASTMAN KODAK CO) 29 January 1992 (1992-01-29) Ansprüche; Formel (IV) -----	1-6,23, 24,26, 31-33, 38-40, 45,46, 48-50, 55-59

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 02/03110

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES		
IPK 7	H01L51/30 C07D213/74 C07D455/04	C09K11/06 C07D239/42 C07D498/04
	C07C229/62 C07D295/12	C07C255/58 C07D295/18
		C07D209/08 C07D317/66
Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK		
B. RESEARCHIERTE GEBIETE		
Recherchiertes Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)		
IPK 7	H01L	C09K C07C C07D
Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen		
Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)		
EPO-Internal, WPI Data, BEILSTEIN Data, PAJ, CHEM ABS Data		
C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN Bd. 1999, Nr. 02, 26. Februar 1999 (1999-02-26) -& JP 10 294178 A (MITSUI CHEM INC), 4. November 1998 (1998-11-04) Formel (1) Zusammenfassung ----- -/-	1-6, 23, 24, 26, 31-33, 38-40, 45, 46, 48-50, 55-59
<input checked="" type="checkbox"/>	Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen	<input checked="" type="checkbox"/> Siehe Anhang Patentfamilie
<p>* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :</p> <p>"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist</p> <p>"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist</p> <p>"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)</p> <p>"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht</p> <p>"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist</p> <p>"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist</p> <p>"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden</p> <p>"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist</p> <p>"Z" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist</p>		
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche		Absenddatum des internationalen Recherchenberichts
15. Juli 2003		16. 10. 03
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Bevollmächtigter Beauftragter Rivat, C.

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 02/03110

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN Bd. 1999, Nr. 01, 29. Januar 1999 (1999-01-29) -& JP 10 284250 A (MITSUI CHEM INC), 23. Oktober 1998 (1998-10-23) Formel (I) ----- Zusammenfassung -----	1-6,23, 24,26, 31-33, 38-40, 45,46, 48-50, 55-59
A	EP 0 468 439 A (EASTMAN KODAK CO) 29. Januar 1992 (1992-01-29) Ansprüche; Formel (IV) -----	1-6,23, 24,26, 31-33, 38-40, 45,46, 48-50, 55-59

1

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/DE 02/03110

Feld I Bemerkungen zu den Ansprüchen, die sich als nicht recherchierbar erwiesen haben (Fortsetzung von Punkt 2 auf Blatt 1)

Gemäß Artikel 17(2)a) wurde aus folgenden Gründen für bestimmte Ansprüche kein Recherchenbericht erstellt:

1. Ansprüche Nr. _____
weil sie sich auf Gegenstände beziehen, zu deren Recherche die Behörde nicht verpflichtet ist, nämlich _____

2. Ansprüche Nr. _____
weil sie sich auf Teile der internationalen Anmeldung beziehen, die den vorgeschriebenen Anforderungen so wenig entsprechen, daß eine sinnvolle internationale Recherche nicht durchgeführt werden kann, nämlich _____

3. Ansprüche Nr. _____
weil es sich dabei um abhängige Ansprüche handelt, die nicht entsprechend Satz 2 und 3 der Regel 6.4 a) abgefaßt sind.

Feld II Bemerkungen bei mangelnder Einheitlichkeit der Erfindung (Fortsetzung von Punkt 3 auf Blatt 1)

Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, daß diese internationale Anmeldung mehrere Erfindungen enthält:

siehe Zusatzblatt

1. Da der Anmelder alle erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht auf alle recherchierbaren Ansprüche.

2. Da für alle recherchierbaren Ansprüche die Recherche ohne einen Arbeitsaufwand durchgeführt werden konnte, der eine zusätzliche Recherchegebühr gerechtfertigt hätte, hat die Behörde nicht zur Zahlung einer solchen Gebühr aufgefordert.

3. Da der Anmelder nur einige der erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht nur auf die Ansprüche, für die Gebühren entrichtet worden sind, nämlich auf die Ansprüche Nr. _____

4. Der Anmelder hat die erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren nicht rechtzeitig entrichtet. Der internationale Recherchenbericht beschränkt sich daher auf die in den Ansprüchen zuerst erwähnte Erfindung; diese ist in folgenden Ansprüchen erfaßt:
1-6 (Teil), 23-24 (Teil), 26 (Teil), 31-33 (Teil), 38-40 (Teil)
45-46 (Teil), 48-49 (Teil), 50, 55-58, 59 (Teil)

Bemerkungen hinsichtlich eines Widerspruchs

- Die zusätzlichen Gebühren wurden vom Anmelder unter Widerspruch gezahlt.
- Die Zahlung zusätzlicher Recherchegebühren erfolgte ohne Widerspruch.

WEITERE ANGABEN

PCT/ISA/ 210

Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, dass diese internationale Anmeldung mehrere (Gruppen von) Erfindungen enthält, nämlich:

1. Ansprüche: 1-6 (Teil), 23-24 (Teil), 26 (Teil), 31-33 (Teil), 38-40 (Teil), 45-46 (Teil), 48-49 (Teil), 50, 55-58, 59 (Teil)

1-Cyano-2,5-diamino(ungesättigte Cyclohexan)-Derivate und ihre Verwendung als Emittersubstanzen

2. Ansprüche: 1-6 (Teil), 7-22, 23-24 (Teil), 25, 26 (Teil), 27-30, 31-33 (Teil), 34-37, 38-40 (Teil), 41-44, 45-46 (Teil), 47, 48-49 (Teil), 51-52, 59 (Teil), 60

1-(C(=X)-X'R)-2,5-diamino(ungesättigte Cyclohexan)-Derivate und ihre Verwendung als Emittersubstanzen

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 02/03110

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
JP 10294178	A	04-11-1998	KEINE
JP 10284250	A	23-10-1998	KEINE
EP 0468439	A	29-01-1992	US 5059861 A 22-10-1991
		AT 112437 T	15-10-1994
		CA 2046220 A1	27-01-1992
		DE 69104297 D1	03-11-1994
		DE 69104297 T2	16-02-1995
		DK 468439 T3	24-10-1994
		EP 0468439 A2	29-01-1992
		ES 2061132 T3	01-12-1994
		JP 2846979 B2	13-01-1999
		JP 4233194 A	21-08-1992