

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6575673号
(P6575673)

(45) 発行日 令和1年9月18日 (2019.9.18)

(24) 登録日 令和1年8月30日 (2019.8.30)

(51) Int. Cl.

F I

H O 1 L 51/50 (2006.01)

H O 5 B 33/14

B

C O 7 D 405/04 (2006.01)

C O 7 D 405/04

C O 7 D 405/14 (2006.01)

C O 7 D 405/14

C O 7 D 405/10 (2006.01)

C O 7 D 405/10

C O 7 D 409/04 (2006.01)

C O 7 D 409/04

請求項の数 10 (全 57 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2018-502092 (P2018-502092)
 (86) (22) 出願日 平成29年8月9日 (2017.8.9)
 (65) 公表番号 特表2019-506729 (P2019-506729A)
 (43) 公表日 平成31年3月7日 (2019.3.7)
 (86) 国際出願番号 PCT/KR2017/008641
 (87) 国際公開番号 W02018/093015
 (87) 国際公開日 平成30年5月24日 (2018.5.24)
 審査請求日 平成30年2月8日 (2018.2.8)
 (31) 優先権主張番号 10-2016-0152691
 (32) 優先日 平成28年11月16日 (2016.11.16)
 (33) 優先権主張国・地域又は機関
 韓国 (KR)
 (31) 優先権主張番号 10-2017-0094877
 (32) 優先日 平成29年7月26日 (2017.7.26)
 (33) 優先権主張国・地域又は機関
 韓国 (KR)

(73) 特許権者 500239823
 エルジー・ケム・リミテッド
 大韓民国 07336 ソウル, ヨンドウ
 ンポグ, ヨイードロ 128
 (74) 代理人 110000877
 龍華国際特許業務法人
 (72) 発明者 チョ、ソン ミ
 大韓民国・ソウル・ヨンドウンポグ・ヨ
 イードロ・128 エルジー・ケム・リミ
 テッド内
 (72) 発明者 ジュン、ミン ウ
 大韓民国・ソウル・ヨンドウンポグ・ヨ
 イードロ・128 エルジー・ケム・リミ
 テッド内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機発光素子

(57) 【特許請求の範囲】

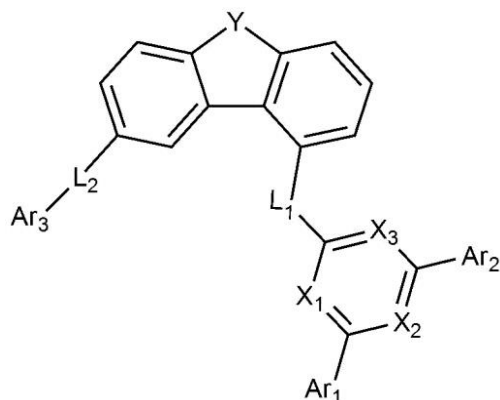
【請求項 1】

陰極；陽極；および前記陰極と陽極の間に少なくとも一つ以上の発光層を含み、

前記発光層は、下記の化学式 1 - 1 または化学式 1 - 2 で表される第 1 ホスト化合物および下記の化学式 2 で表される第 2 ホスト化合物を含む、有機発光素子。

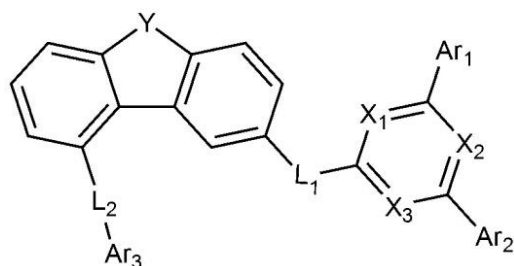
[化学式 1 - 1]

【化 1】



[化学式 1 - 2]

【化 2】



前記化学式 1 - 1 および 1 - 2 において、

Y は O、または S であり、

X₁ から X₃ はそれぞれ独立して N、または C R₃ であり、但し、X₁ から X₃ のうちの少なくとも一つは N であり、

L₁ は単一結合；置換もしくは非置換の C₆ - C₆₀ アリーレン；または置換もしくは非置換の O、N、S i および S のうち 1 つ以上を含む C₂ - C₆₀ ヘテロアリーレンであり、

L₂ は単一結合、フェニレン、ナフチレン、フェナンスレニレン、またはピリジニレンであり、

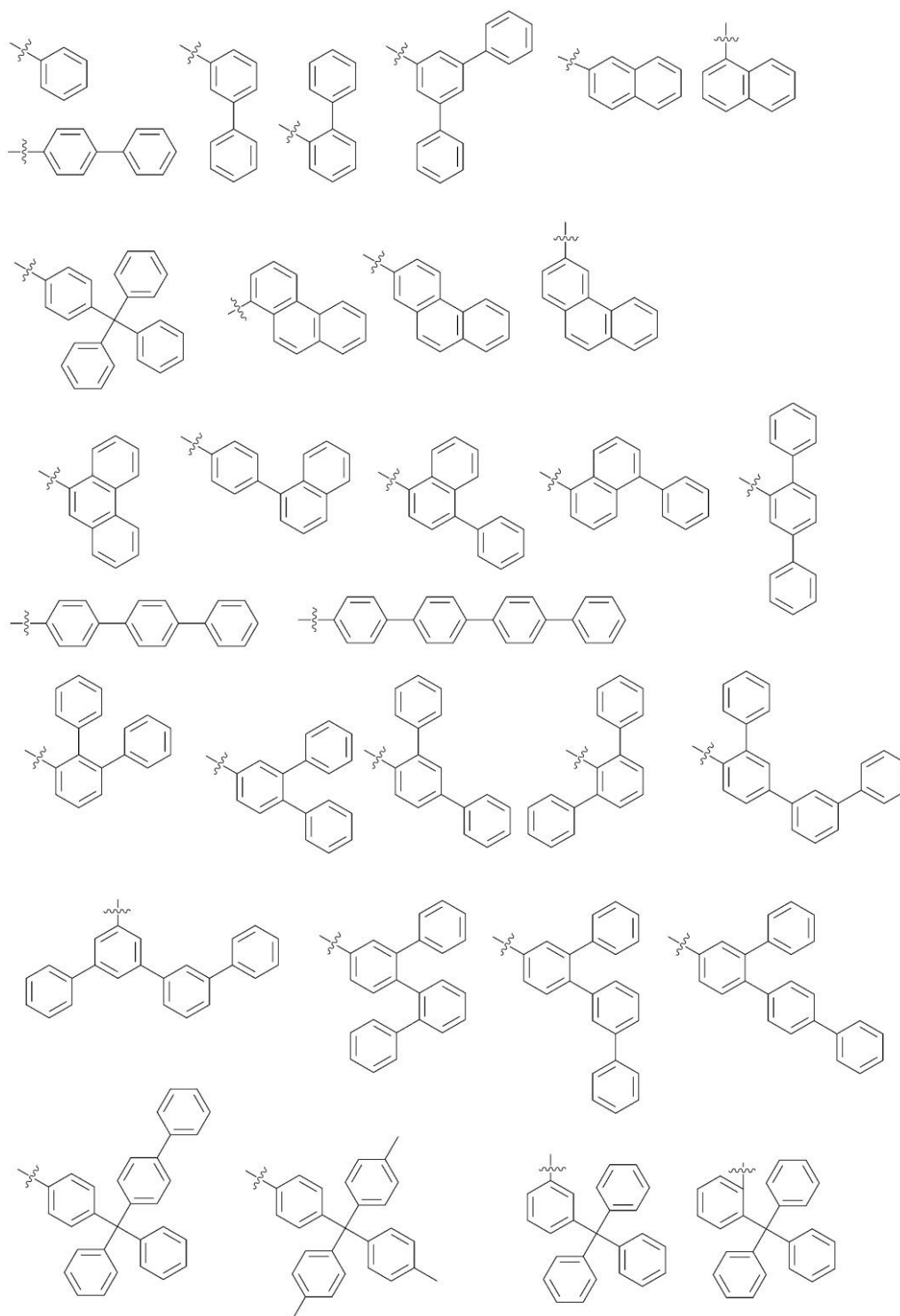
Ar₁ および Ar₂ はそれぞれ独立して置換もしくは非置換の C₆ - C₆₀ アリール；または置換もしくは非置換の O、N、S i および S のうち 1 つ以上を含む C₂ - C₆₀ ヘテロアリールであり、

Ar₃ は下記で構成される群から選択されるいずれか一つであり、

10

20

【化 3】



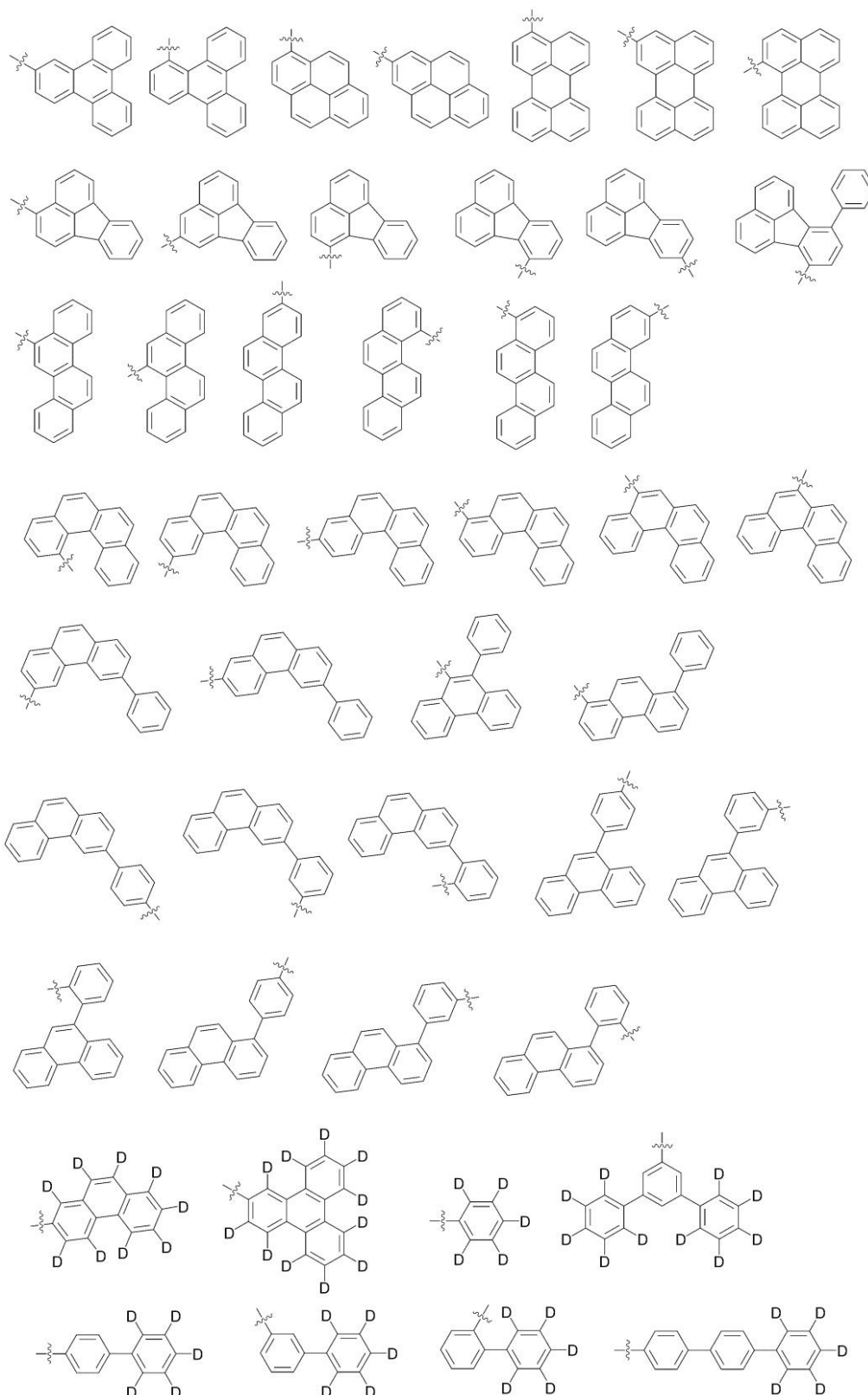
10

20

30

40

【化 4】



R_3 はそれぞれ独立して水素；重水素；ハロゲン；シアノ；ニトロ；アミノ；置換もしくは非置換の C_{1-60} アルキル；置換もしくは非置換の C_{1-60} ハロアルキル；置換もしくは非置換の C_{1-60} ハロアルコキシ；置換もしくは非置換の C_{3-60} シクロアルキル；置換もしくは非置換の C_{2-60} アルケニル；置換もしくは非置換の C_{6-60} アリール；または置換もしくは非置換の O、N、Si および S のうち 1 つ以上を含む C_{2-60} ヘテロアリールであり、

[化学式 2]

10

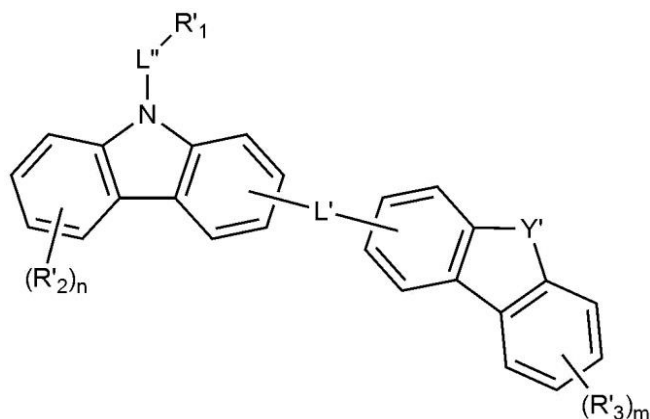
20

30

40

50

【化 5】



10

前記化学式 2 において、

Y' は O 、 S 、 NR' 、または $CR'R''$ であり、

ここで、 R' および R'' はそれぞれ独立して水素；重水素；ハロゲン；シアノ；ニトロ；アミノ；置換もしくは非置換の C_{1-60} アルキル；置換もしくは非置換の C_{1-60} ハロアルキル；置換もしくは非置換の C_{1-60} ハロアルコキシ；置換もしくは非置換の C_{3-60} シクロアルキル；置換もしくは非置換の C_{2-60} アルケニル；置換もしくは非置換の C_{6-60} アリール；または置換もしくは非置換の O 、 N 、 Si および S のうち 1 つ以上を含む C_{2-60} ヘテロアリールであり、または R' および R'' が共に置換もしくは非置換の C_{6-60} 芳香族環を形成し、

20

L' および L'' はそれぞれ独立して単一結合；置換もしくは非置換の C_{6-60} アリーレン；または置換もしくは非置換の O 、 N 、 Si および S のうち 1 つ以上を含む C_{2-60} ヘテロアリーレンであり、

$R'1$ は置換もしくは非置換の C_{1-60} アルキル；置換もしくは非置換の C_{3-60} シクロアルキル；置換もしくは非置換の C_{6-60} アリール；または置換もしくは非置換の O 、 N 、 Si および S のうち 1 つ以上を含む C_{2-60} ヘテロアリールであり、

$R'2$ および $R'3$ はそれぞれ独立して、水素；重水素；ハロゲン；シアノ；置換もしくは非置換の C_{1-60} アルキル；置換もしくは非置換の C_{3-60} シクロアルキル；置換もしくは非置換の C_{6-60} アリール；または置換もしくは非置換の O 、 N 、 Si および S のうち 1 つ以上を含む C_{2-60} ヘテロアリールであり、

30

n および m はそれぞれ独立して 0 から 4 の整数である。

【請求項 2】

X_1 から X_3 はそれぞれ独立して N 、または CH であり、但し、 X_1 から X_3 のうちの少なくとも一つは N である、請求項 1 に記載の有機発光素子。

【請求項 3】

L_1 は、単一結合、フェニレン、シアノで置換されたフェニレン、またはフェニルで置換されたピリジニレンである、請求項 1 または 2 に記載の有機発光素子。

【請求項 4】

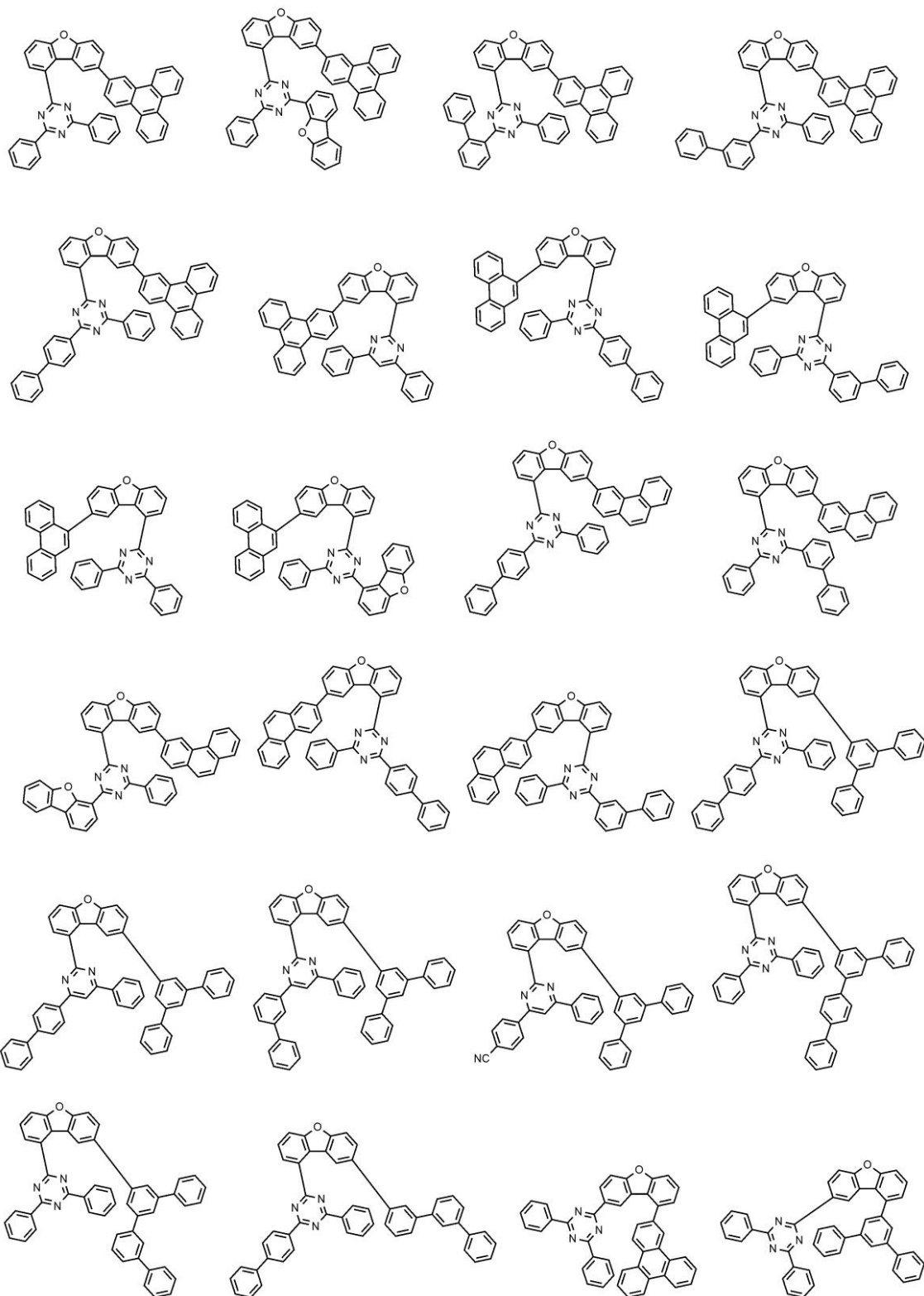
Ar_1 および Ar_2 はそれぞれ独立してフェニル、シアノで置換されたフェニル、1 から 5 個の重水素で置換されたフェニル、ビフェニリル、またはジベンゾフラニルである、請求項 1 から 3 の何れか一項に記載の有機発光素子。

40

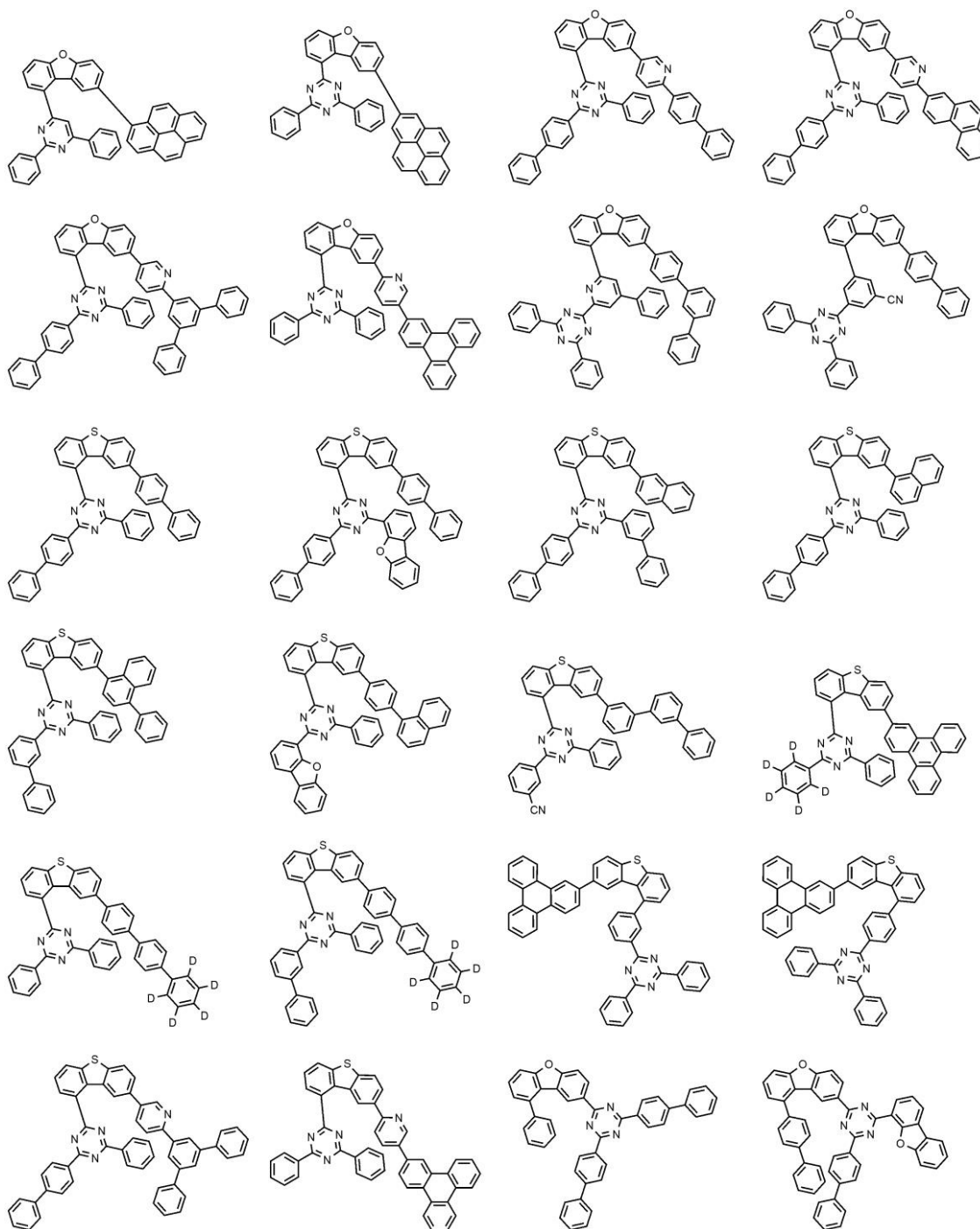
【請求項 5】

前記化学式 1 - 1 または 1 - 2 で表される化合物は、下記で構成される群から選択されるいずれか一つである、

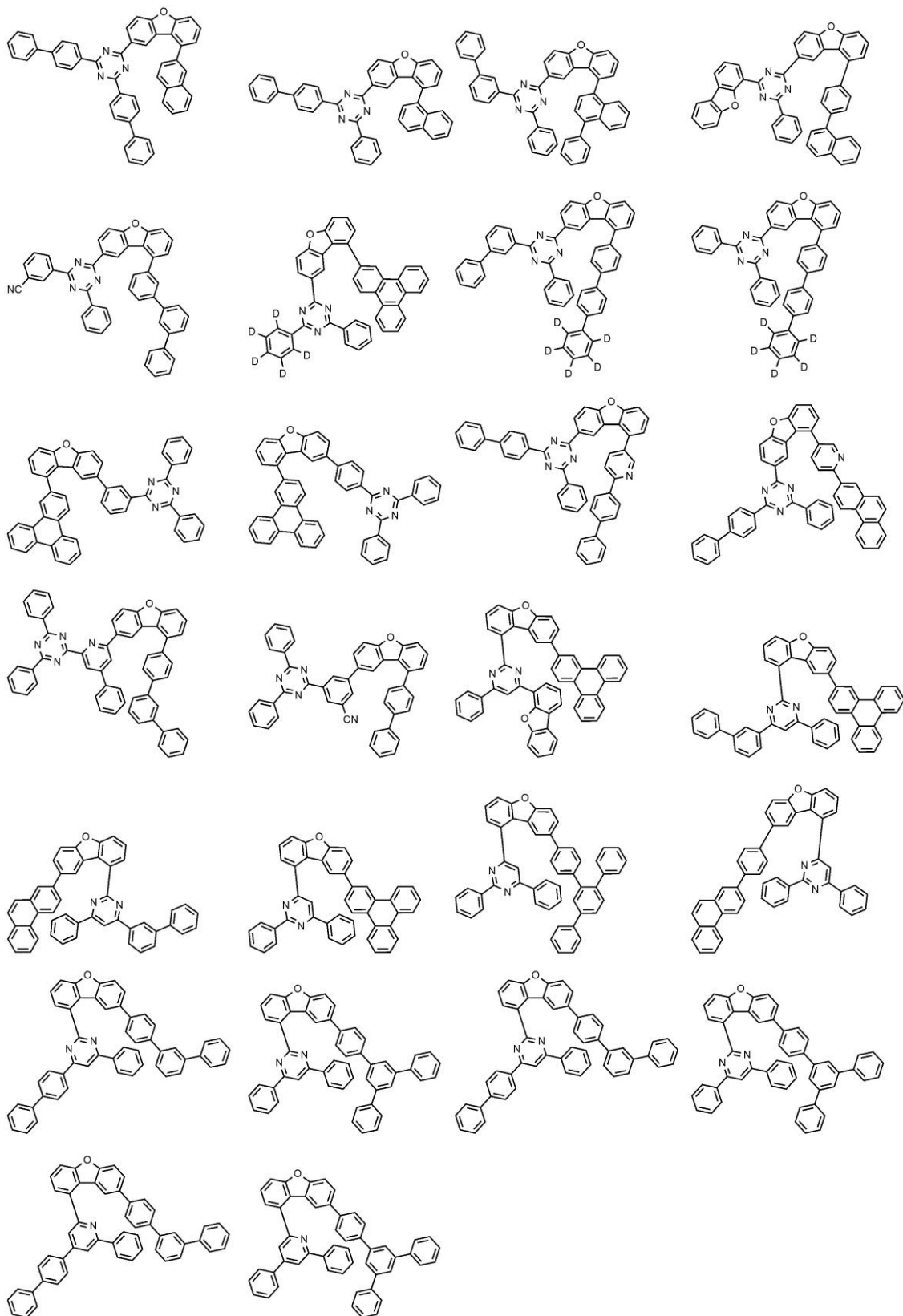
【化 6】



【化 8】



【化 9】

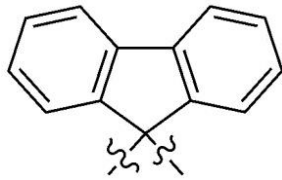


請求項 1 から 4 の何れか一項に記載の有機発光素子。

【請求項 6】

Y' は O、S、NR'、C(CH₃)₂、または

【化 10】



であり、

ここで、 R' はフェニル、シアノで置換されたフェニル、ビフェニリル、トリフェニレニル、シクロヘキシル、ジメチルフルオレニル、またはジベンゾフラニルである、請求項 1 から 5 の何れか一項に記載の有機発光素子。

10

【請求項 7】

L' および L'' はそれぞれ独立して、単一結合、またはフェニレンである、請求項 1 から 6 の何れか一項に記載の有機発光素子。

【請求項 8】

R'_1 はフェニル、tert-ブチルで置換されたフェニル、ビフェニリン、トリフェニレニル、フェナントレニル、ターフェニリル、ピリジニル、フェニルで置換されたカルバゾリル、ジメチルフルオレニル、またはジベンゾチオフェニルである、請求項 1 から 7 の何れか一項に記載の有機発光素子。

【請求項 9】

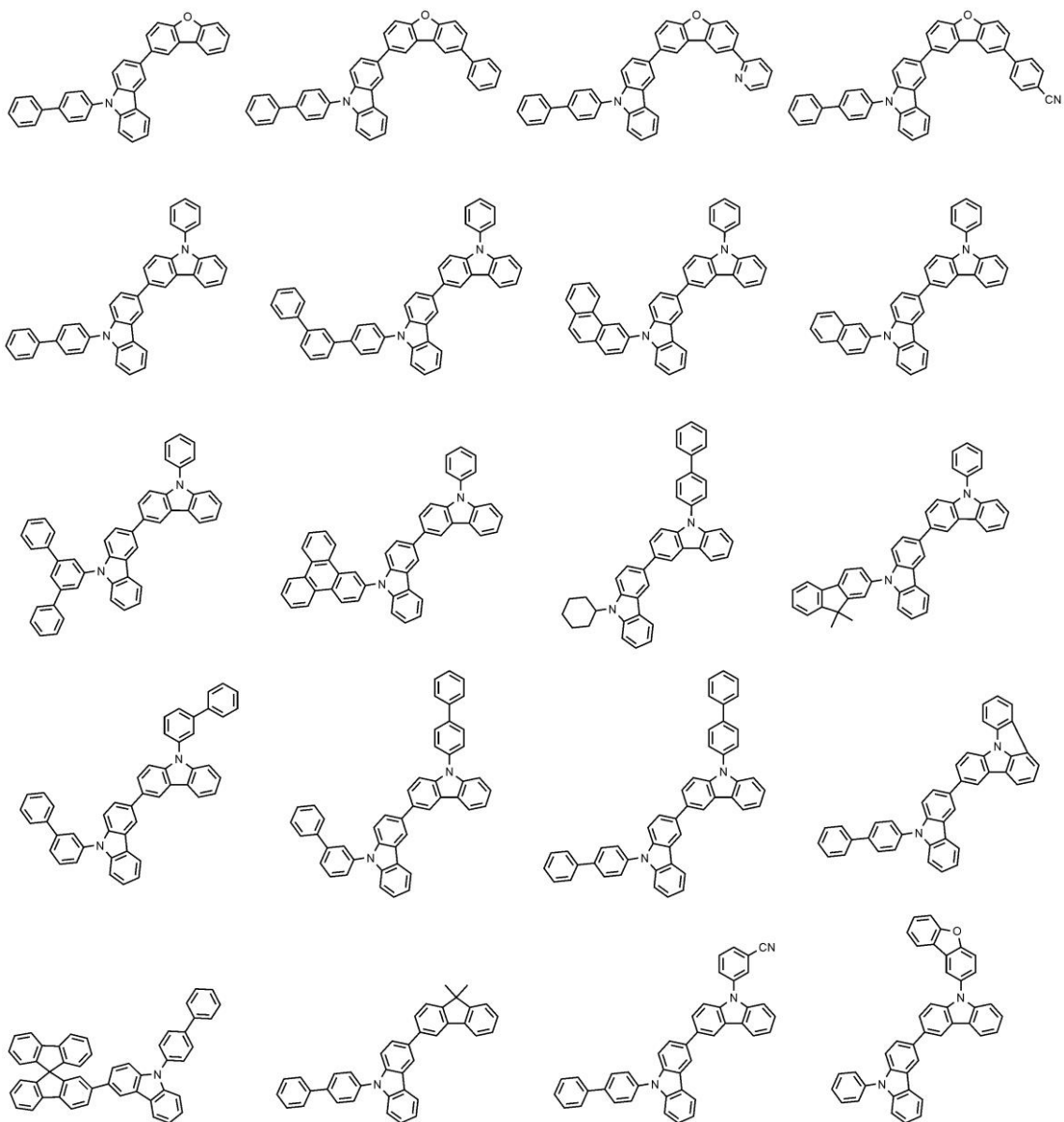
R'_2 および R'_3 はそれぞれ独立して、水素；tert-ブチル；シアノ；フェニル；シアノで置換されたフェニル；またはピリジニルである、請求項 1 から 8 の何れか一項に記載の有機発光素子。

20

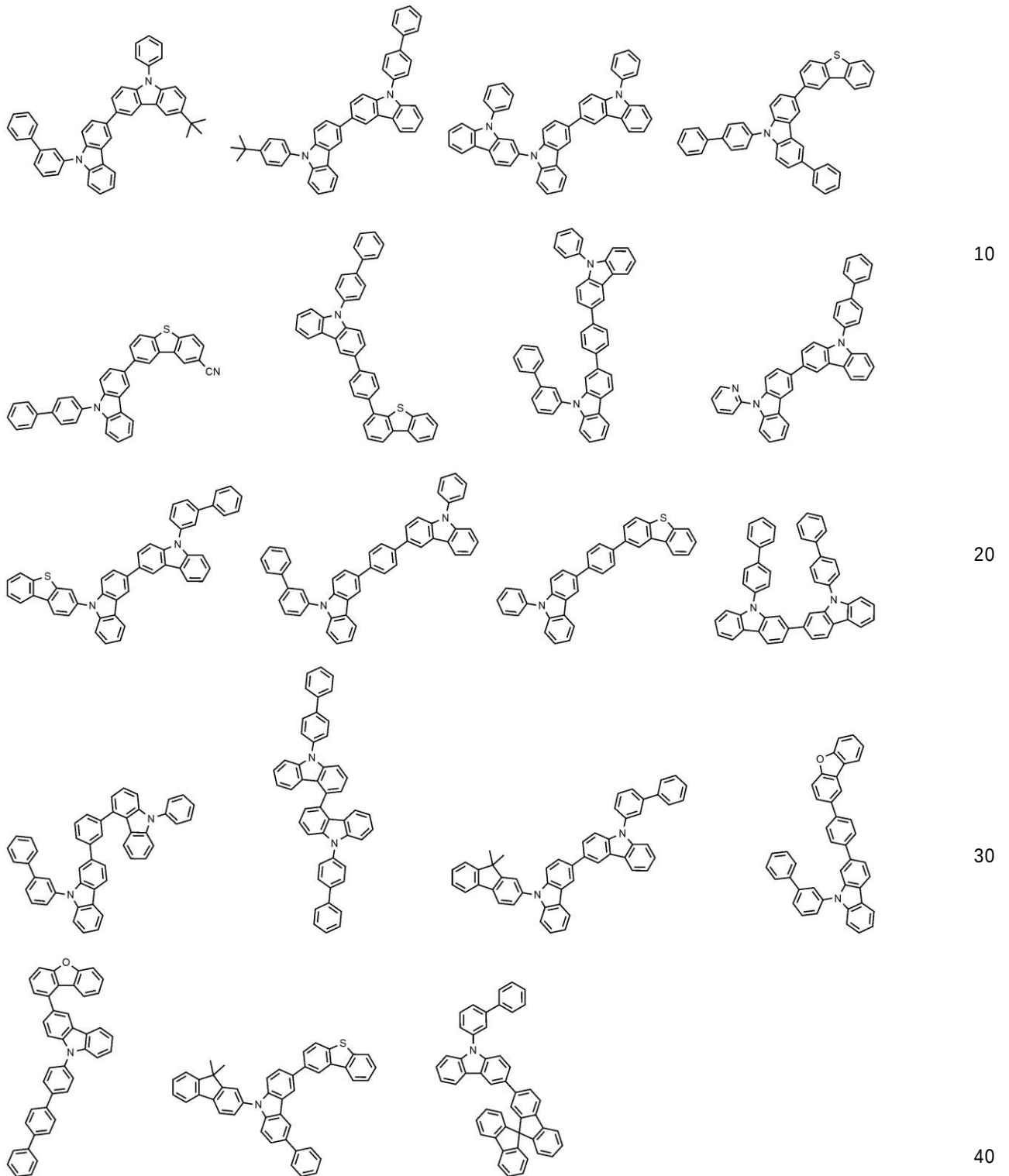
【請求項 10】

前記化学式 2 で表される化合物は、下記で構成される群から選択されるいずれか一つである、

【化 1 1】



【化 1 2】



請求項 1 から 9 の何れか一項に記載の有機発光素子。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

[関連出願の相互参照]

本出願は、2016年11月16日付の韓国特許出願第10-2016-0152691号および2017年7月26日付の韓国特許出願第10-2017-0094877号に基づく優先権の利益を主張し、当該韓国特許出願の文献に開示された全ての内容は本明細書の一部として含まれる。

【 0 0 0 2 】

本発明は、駆動電圧、効率および寿命が改善された有機発光素子に関する。

【 背景技術 】

【 0 0 0 3 】

一般に、有機発光現象とは、有機物質を利用して電気エネルギーを光エネルギーに転換させる現象をいう。

【 0 0 0 4 】

有機発光現象を利用する有機発光素子は、広い視野角、優れたコントラスト、速い応答時間を有し、輝度、駆動電圧および応答速度特性に優れて多くの研究が進められている。

【 0 0 0 5 】

有機発光素子は、一般に、陽極と陰極および前記陽極と陰極との間に有機物層を含む構造を有する。

【 0 0 0 6 】

前記有機物層は、有機発光素子の効率と安全性を高めるために、それぞれ異なる物質で構成された多層の構造からなる場合が多く、例えば、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層などからなることができる。

【 0 0 0 7 】

このような有機発光素子の構造で二つの電極の間に電圧をかけるようになれば、陽極からは正孔が、陰極からは電子が有機物層に注入されるようになり、注入された正孔と電子が会った時エキシトン (e x c i t o n) が形成され、このエキシトンが再び基底状態に落ちる時に光が出るようになる。

【 0 0 0 8 】

このような有機発光素子に使用される有機物に対して新たな材料の開発が持続的に要求されている。

【 0 0 0 9 】

このような有機発光素子で、駆動電圧、効率および寿命が改善された有機発光素子の開発が持続的に要求されている。

【 先行技術文献 】

【 特許文献 】

【 0 0 1 0 】

特許文献 0 0 0 1 : 韓国特許公開第 1 0 - 2 0 0 0 - 0 0 5 1 8 2 6 号公報

【 発明の概要 】

【 発明が解決しようとする課題 】

【 0 0 1 1 】

本発明は、駆動電圧、効率および寿命が改善された有機発光素子に関する。

【 課題を解決するための手段 】

【 0 0 1 2 】

本発明は、下記の有機発光素子を提供する。

【 0 0 1 3 】

陰極、陽極、および前記陰極と陽極との間に少なくとも一つ以上の発光層を含み、

【 0 0 1 4 】

前記発光層は第 1 ホストと第 2 ホストとを含み、

【 0 0 1 5 】

前記第 1 ホストの H O M O は 5 . 6 e V から 6 . 4 e V であり、前記第 2 ホストの H O M O は 5 . 4 e V から 5 . 8 e V であり、前記第 1 ホストの H O M O と前記第 2 ホストの H O M O との差は 0 . 2 e V 以上であり、

【 0 0 1 6 】

前記第 1 ホストおよび第 2 ホストの混合物の最大発光波長が、前記第 1 ホストの最大発光波長より 2 0 n m 以上高い、有機発光素子。

【 0 0 1 7 】

10

20

30

40

50

上述した有機発光素子は、駆動電圧、効率および寿命に優れている。

【図面の簡単な説明】

【0018】

【図1】基板1、陽極2、発光層3、陰極4からなる有機発光素子の例を示した図である。

【図2】基板1、陽極2、正孔注入層5、正孔輸送層6、発光層7、電子輸送層8および陰極4からなる有機発光素子の例を示した図である。

【図3】本発明による第1ホスト、第2ホスト、およびこれらの混合物に対する PL_{max} の測定結果を示した図である。

【図4】本発明による第1ホスト、第2ホスト、およびこれらの混合物に対する PL_{max} の測定結果を示した図である。

【発明を実施するための形態】

【0019】

以下、本発明の理解を助けるためにより詳しく説明する。

【0020】

本明細書において、

【化1】



は異なる置換基に連結される結合を意味する。

【0021】

本明細書において、"置換もしくは非置換の"という用語は、重水素；ハロゲン基；ニトリル基；ニトロ基；ヒドロキシ基；カルボニル基；エステル基；イミド基；アミノ基；ホスフィンオキシド基；アルコキシ基；アリーロキシ基；アルキルチオキシ基；アリーロチオキシ基；アルキルスルホキシ基；アリールスルホキシ基；シリル基；ホウ素基；アルキル基；シクロアルキル基；アルケニル基；アリール基；アラルキル基；アラルケニル基；アルキルアリール基；アルキルアミン基；アラルキルアミン基；ヘテロアリールアミン基；アリールアミン基；アリールホスフィン基；またはN、OおよびS原子のうち1つ以上を含むヘテロ環基からなる群より選択された1以上の置換基で置換もしくは非置換されたり、前記例示された置換基のうち2以上の置換基が連結された置換もしくは非置換されたことを意味する。

【0022】

例えば、"2以上の置換基が連結された置換基"は、ビフェニル基であってもよい。

【0023】

つまり、ビフェニル基はアリール基であってもよく、2つのフェニル基が連結された置換基と解釈されることができる。

【0024】

本明細書においてカルボニル基の炭素数は特に限定されないが、炭素数1から40であることが好ましい。

【0025】

具体的に、下記のような構造の化合物になってもよいが、これに限定されるものではない。

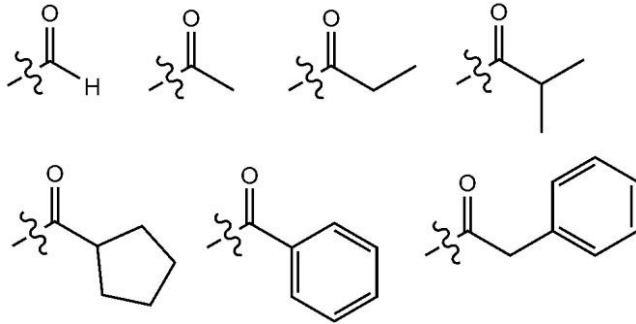
10

20

30

40

【化 2】



10

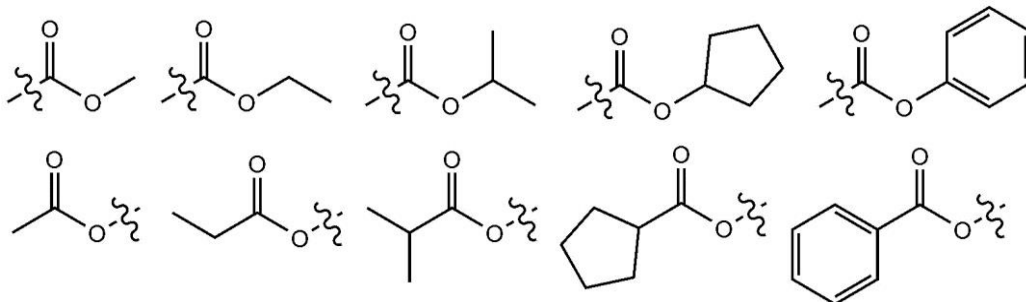
【0026】

本明細書において、エステル基はエステル基の酸素が炭素数 1 から 25 の直鎖、分枝鎖または環鎖アルキル基または炭素数 6 から 25 のアリール基で置換されることができる。

【0027】

具体的に、下記構造式の化合物になってもよいが、これに限定されるものではない。

【化 3】



20

【0028】

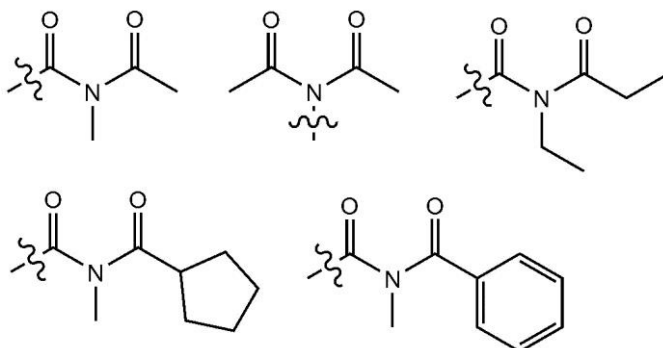
本明細書において、イミド基の炭素数は特に限定されないが、炭素数 1 から 25 であることが好ましい。

【0029】

具体的に、下記のような構造の化合物になってもよいが、これに限定されるものではない。

30

【化 4】



40

【0030】

本明細書において、シリル基は具体的に、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、t-ブチルジメチルシリル基、ビニルジメチルシリル基、プロピルジメチルシリル基、トリフェニルシリル基、ジフェニルシリル基、フェニルシリル基などがあるが、これに限定されない。

【0031】

本明細書において、ハウ素基は具体的に、トリメチルハウ素基、トリエチルハウ素基、t-ブチルジメチルハウ素基、トリフェニルハウ素基、フェニルハウ素基などがあるが、これに限定されない。

50

【 0 0 3 2 】

本明細書において、ハロゲン基の例としては、フッ素、塩素、臭素またはヨウ素がある。

【 0 0 3 3 】

本明細書において、前記アルキル基は直鎖または分枝鎖であってもよく、炭素数は特に限定されないが、1 から 4 0 であることが好ましい。

【 0 0 3 4 】

一実施形態によれば、前記アルキル基の炭素数は 1 から 2 0 である。また一つの実施形態によれば、前記アルキル基の炭素数は 1 から 1 0 である。

【 0 0 3 5 】

また一つの実施形態によれば、前記アルキル基の炭素数は 1 から 6 である。

【 0 0 3 6 】

アルキル基の具体的な例としては、メチル、エチル、プロピル、n - プロピル、イソプロピル、ブチル、n - ブチル、イソブチル、tert - ブチル、sec - ブチル、1 - メチル - ブチル、1 - エチル - ブチル、ペンチル、n - ペンチル、イソペンチル、ネオペンチル、tert - ペンチル、ヘキシル、n - ヘキシル、1 - メチルペンチル、2 - メチルペンチル、4 - メチル - 2 - ペンチル、3 , 3 - ジメチルブチル、2 - エチルブチル、ヘブチル、n - ヘブチル、1 - メチルヘキシル、シクロペンチルメチル、シクロヘキシルメチル、オクチル、n - オクチル、tert - オクチル、1 - メチルヘブチル、2 - エチルヘキシル、2 - プロピルペンチル、n - ノニル、2 , 2 - ジメチルヘブチル、1 - エチル - プロピル、1 , 1 - ジメチル - プロピル、イソヘキシル、2 - メチルペンチル、4 - メチルヘキシル、5 - メチルヘキシルなどがあるが、これらに限定されない。

【 0 0 3 7 】

本明細書において、前記アルケニル基は直鎖または分枝鎖であってもよく、炭素数は特に限定されないが、2 から 4 0 であることが好ましい。

【 0 0 3 8 】

一実施形態によれば、前記アルケニル基の炭素数は 2 から 2 0 である。また一つの実施形態によれば、前記アルケニル基の炭素数は 2 から 1 0 である。

【 0 0 3 9 】

また一つの実施形態によれば、前記アルケニル基の炭素数は 2 から 6 である。

【 0 0 4 0 】

具体的な例としては、ビニル、1 - プロフェニル、イソプロフェニル、1 - ブテニル、2 - ブテニル、3 - ブテニル、1 - ペンテニル、2 - ペンテニル、3 - ペンテニル、3 - メチル - 1 - ブテニル、1 , 3 - ブタジエニル、アリル、1 - フェニルビニル - 1 - イル、2 - フェニルビニル - 1 - イル、2 , 2 - ジフェニルビニル - 1 - イル、2 - フェニル - 2 - (ナフチル - 1 - イル) ビニル - 1 - イル、2 , 2 - ビス (ジフェニル - 1 - イル) ビニル - 1 - イル、スチルベニル基、スチレニル基などがあるが、これらに限定されない。

【 0 0 4 1 】

本明細書において、シクロアルキル基は特に限定されないが、炭素数 3 から 6 0 のものが好ましく、一実施形態によれば、前記シクロアルキル基の炭素数は 3 から 3 0 である。

【 0 0 4 2 】

また一つの実施形態によれば、前記シクロアルキル基の炭素数は 3 から 2 0 である。

【 0 0 4 3 】

また一つの実施形態によれば、前記シクロアルキル基の炭素数は 3 から 6 である。

【 0 0 4 4 】

具体的に、シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、3 - メチルシクロペンチル、2 , 3 - ジメチルシクロペンチル、シクロヘキシル、3 - メチルシクロヘキシル、4 - メチルシクロヘキシル、2 , 3 - ジメチルシクロヘキシル、3 , 4 , 5 - トリメチルシクロヘキシル、4 - tert - ブチルシクロヘキシル、シクロヘブチル、シクロオクチル

10

20

30

40

50

などがあるが、これに限定されない。

【 0 0 4 5 】

本明細書において、アリール基は特に限定されないが、炭素数 6 から 6 0 のものが好ましく、単環式アリール基または多環式アリール基であってもよい。

【 0 0 4 6 】

一実施形態によれば、前記アリール基の炭素数は 6 から 3 0 である。一実施形態によれば、前記アリール基の炭素数は 6 から 2 0 である。

【 0 0 4 7 】

前記アリール基が単環式アリール基としては、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基などになってもよいが、これに限定されるものではない。

10

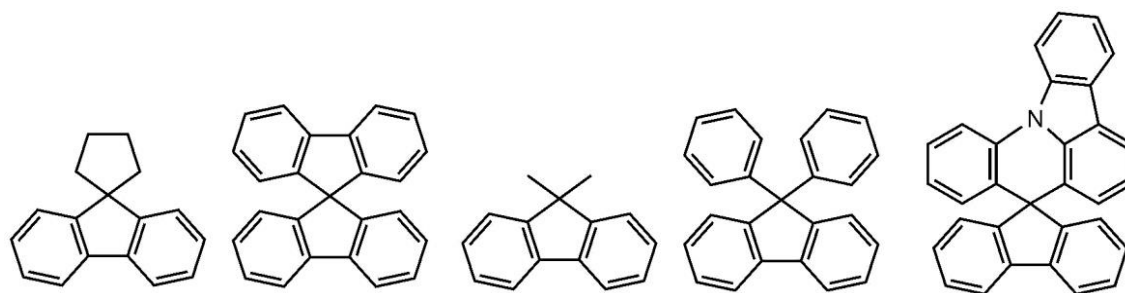
【 0 0 4 8 】

前記多環式アリール基としては、ナフチル基、アントラセニル基、フェナントリル基、ピレニル基、ペリレニル基、クリセニル基、フルオレニル基などになってもよいが、これに限定されるものではない。

【 0 0 4 9 】

本明細書において、フルオレニル基は置換されていてもよく、置換基 2 つが互いに結合してスピロ構造を形成してもよい。前記フルオレニル基が置換される場合、

【 化 5 】



20

などになってもよい。ただし、これに限定されるものではない。

【 0 0 5 0 】

本明細書において、ヘテロ環基は、異種元素として O、N、Si および S のうち 1 つ以上を含むヘテロ環基であって、炭素数は特に限定されないが、炭素数 2 から 6 0 であることが好ましい。ヘテロ環基の例としては、チオフェン基、フラン基、ピロール基、イミダゾール基、チアゾール基、オキサゾール基、オキサジアゾール基、トリアゾール基、ビリジル基、ビビリジル基、ピリミジル基、トリアジン基、トリアゾール基、アクリジル基、ピラダジン基、ピラジニル基、キノリニル基、キナゾリン基、キノキサリニル基、フタラジニル基、ピリドピリミジニル基、ピリドピラジニル基、ピラジノピラジニル基、イソキノリン基、インドール基、カルバゾール基、ベンゾオキサゾール基、ベンゾイミダゾール基、ベンゾチアゾール基、ベンゾカルバゾール基、ベンゾチオフェン基、ジベンゾチオフェン基、ベンゾフラニル基、フェナントロリン基 (phenanthroline)、チアゾリル基、イソオキサゾリル基、オキサジアゾリル基、チアジアゾリル基、ベンゾチアゾリル基、フェノチアジニル基およびジベンゾフラニル基などがあるが、これらにのみ限定

30

40

【 0 0 5 1 】

本明細書において、アラルキル基、アラルケニル基、アルキルアリール基、アリールアミン基中のアリール基は、上述したアリール基の例示と同様である。

【 0 0 5 2 】

本明細書において、アラルキル基、アルキルアリール基、アルキルアミン基中のアルキル基は、上述したアルキル基の例示と同様である。

【 0 0 5 3 】

本明細書において、ヘテロアリールアミン中のヘテロアリールは、上述したヘテロ環基に関する説明が適用されることができる。

50

【 0 0 5 4 】

本明細書において、アラルケニル基中のアルケニル基は、上述したアルケニル基の例示と同様である。

【 0 0 5 5 】

本明細書において、アリーレンは、2価基であることを除いては、上述したアリール基に関する説明が適用されることができる。

【 0 0 5 6 】

本明細書において、ヘテロアリーレンは、2価基であることを除いては、上述したヘテロ環基に関する説明が適用されることができる。

【 0 0 5 7 】

本明細書において、炭化水素環は、1価基ではなく、2つの置換基が結合して形成したことを除いては、上述したアリール基またはシクロアルキル基に関する説明が適用されることができる。

【 0 0 5 8 】

本明細書において、ヘテロ環は、1価基ではなく、2つの置換基が結合して形成したことを除いては、上述したヘテロ環基に関する説明が適用されることができる。

【 0 0 5 9 】

本発明は、下記の有機発光素子を提供する。

【 0 0 6 0 】

陰極、陽極、および前記陰極と陽極との間に少なくとも一つ以上の発光層を含み、前記発光層は第1ホストと第2ホストとを含み、前記第1ホストのHOMOは5.6 eVから6.4 eVであり、前記第2ホストのHOMOは5.4 eVから5.8 eVであり、前記第1ホストのHOMOと前記第2ホストのHOMOとの差は0.2 eV以上であり、前記第1ホストおよび第2ホストの混合物の最大発光波長が、前記第1ホストの最大発光波長より20 nm以上高い、有機発光素子。

【 0 0 6 1 】

以下、各構成別に本発明を詳しく説明する。

【 0 0 6 2 】

陰極および陽極

本発明で使用される陽極および陰極は、有機発光素子に使用される電極を意味する。

【 0 0 6 3 】

前記陽極物質としては、通常、有機物層に正孔注入が円滑になるように、仕事関数が高い物質が好ましい。

【 0 0 6 4 】

前記陽極物質の具体的な例としては、バナジウム、クロム、銅、亜鉛、金のような金属またはこれらの合金；亜鉛酸化物、インジウム酸化物、インジウム錫酸化物（ITO）、インジウム亜鉛酸化物（IZO）のような金属酸化物；ZnO：AlまたはSnO₂：Sbのような金属と酸化物との組み合わせ；ポリ（3-メチルチオフェン）、ポリ[3,4-(エチレン-1,2-ジオキシ)チオフェン]（PEDOT）、ポリピロールおよびポリアニリンのような伝導性高分子などがあるが、これらにのみ限定されるものではない。

【 0 0 6 5 】

前記陰極物質としては、通常、有機物層に電子注入が容易になるように、仕事関数が小さい物質であることが好ましい。

【 0 0 6 6 】

前記陰極物質の具体的な例としては、マグネシウム、カルシウム、ナトリウム、カリウム、チタニウム、インジウム、イットリウム、リチウム、ガドリニウム、アルミニウム、銀、錫および鉛のような金属またはこれらの合金；LiF/AlまたはLiO₂/Alのような多層構造物質などがあるが、これらにのみ限定されるものではない。

【 0 0 6 7 】

また、前記陽極上には正孔注入層をさらに含むことができる。前記正孔注入層は、正孔

10

20

30

40

50

注入物質からなっており、正孔注入物質としては、正孔を輸送する能力を有して陽極からの正孔注入の効果、発光層または発光材料に対して優れた正孔注入の効果を有し、発光層で生成された励起子の電子注入層または電子注入材料への移動を防止し、また、薄膜形成能力に優れた化合物が好ましい。

【0068】

正孔注入物質のHOMO (highest occupied molecular orbital) が陽極物質の仕事関数と周辺有機物層のHOMOとの間であることが好ましい。

【0069】

正孔注入物質の具体的な例としては、金属ポルフィリン (porphyrin)、オリゴチオフェン、アリールアミン系の有機物、ヘキサニトリルヘキサアザトリフェニレン系の有機物、キナクリドン (quinacridone) 系の有機物、ペリレン (perylene) 系の有機物、アントラキノンおよびポリアニリンとポリチオフェン系の伝導性高分子などがあるが、これらにのみ限定されるものではない。

【0070】

発光層

本発明による発光層は第1ホストと第2ホストとを含み、前記第1ホストのHOMOは5.6 eVから6.4 eVであり、前記第2ホストのHOMOは5.4 eVから5.8 eVであり、前記第1ホストのHOMOと前記第2ホストのHOMOとの差は0.2 eV以上であり、前記第1ホストおよび第2ホストの混合物の最大発光波長が、前記第1ホストの最大発光波長より20 nm以上高いという特徴がある。

【0071】

上述した第1ホスト化合物を単一ホストで発光層に用いる場合、隣接した正孔輸送層とのHOMOの差が大きすぎて正孔に対するバリア (barrier) が生じ、発光層への正孔伝達が容易でなくなって正孔輸送層に隣接して発光ゾーンが形成されるようになる。

【0072】

このような理由で正孔と電子のバランスが合わなくて効率および寿命が減少するようになる。

【0073】

そこで、正孔輸送型の前記第2ホストを共に使用することによって、有機発光素子の効率および寿命を改善することができる。

【0074】

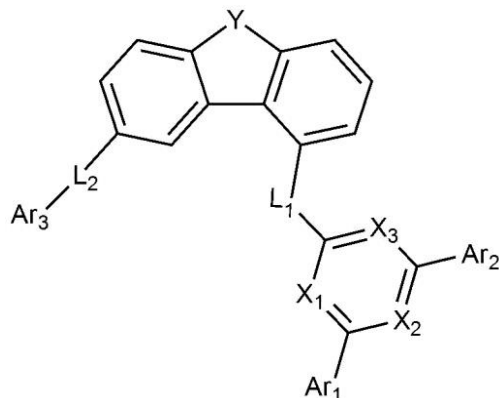
好ましくは、前記発光層は、下記の化学式1-1または化学式1-2で表される第1ホスト化合物および下記の化学式2で表される第2ホスト化合物を含む：

【0075】

[化学式1-1]

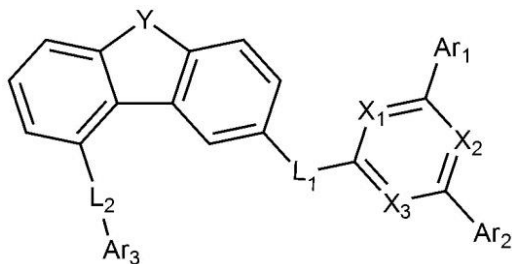
【0076】

【化6】



【0077】

[化学式 1 - 2]
 【 0 0 7 8 】
 【 化 7 】



10

【 0 0 7 9 】

前記化学式 1 - 1 および 1 - 2 において、
 Y は O、S、または Si R₁ R₂ であり、
 X₁ から X₃ はそれぞれ独立して N、または C R₃ であり、但し、X₁ から X₃ のうちの少なくとも一つは N であり、

L₁ および L₂ はそれぞれ独立して、単一結合；置換もしくは非置換の C₆₋₆₀ アリール；または置換もしくは非置換の O、N、Si および S のうち 1 つ以上を含む C₂₋₆₀ ヘテロアリールであり、

Ar₁ および Ar₂ はそれぞれ独立して置換もしくは非置換の C₆₋₆₀ アリール；または置換もしくは非置換の O、N、Si および S のうち 1 つ以上を含む C₂₋₆₀ ヘテロアリールであり、

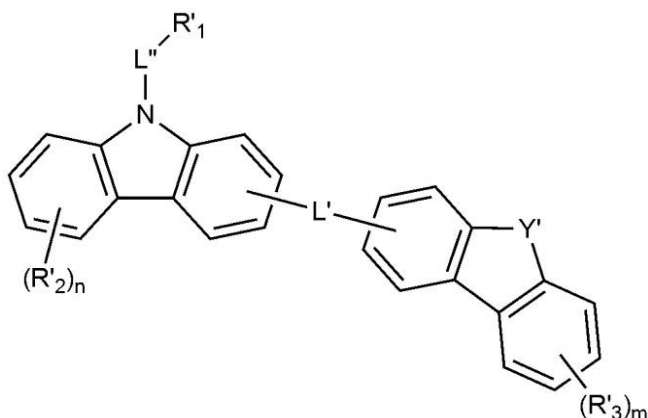
20

Ar₃ は置換もしくは非置換の C₆₋₆₀ アリールであり、

R₁、R₂ および R₃ はそれぞれ独立して水素；重水素；ハロゲン；シアノ；ニトロ；アミノ；置換もしくは非置換の C₁₋₆₀ アルキル；置換もしくは非置換の C₁₋₆₀ ハロアルキル；置換もしくは非置換の C₁₋₆₀ ハロアルコキシ；置換もしくは非置換の C₃₋₆₀ シクロアルキル；置換もしくは非置換の C₂₋₆₀ アルケニル；置換もしくは非置換の C₆₋₆₀ アリール；または置換もしくは非置換の O、N、Si および S のうち 1 つ以上を含む C₂₋₆₀ ヘテロアリールであり、

【 0 0 8 0 】

[化学式 2]
 【 0 0 8 1 】
 【 化 8 】



40

【 0 0 8 2 】

前記化学式 2 において、

Y' は O、S、N R'、または C R' R'' であり、

ここで、R' および R'' はそれぞれ独立して水素；重水素；ハロゲン；シアノ；ニトロ；アミノ；置換もしくは非置換の C₁₋₆₀ アルキル；置換もしくは非置換の C₁₋₆₀ ハロアルキル；置換もしくは非置換の C₁₋₆₀ ハロアルコキシ；置換もしくは非置換の C₃₋₆₀ シクロアルキル；置換もしくは非置換の C₂₋₆₀ アルケニル；置換もしくは

50

非置換の C_{6-60} アリール；または置換もしくは非置換の O、N、S i および S のうち 1 つ以上を含む C_{2-60} ヘテロアリールであり、または R' および R'' が共に置換もしくは非置換の C_{6-60} 芳香族環を形成し、

L' および L'' はそれぞれ独立して単一結合；置換もしくは非置換の C_{6-60} アリーレン；または置換もしくは非置換の O、N、S i および S のうち 1 つ以上を含む C_{2-60} ヘテロアリーレンであり、

R' ₁ は置換もしくは非置換の C_{1-60} アルキル；置換もしくは非置換の C_{3-60} シクロアルキル；置換もしくは非置換の C_{6-60} アリール；または置換もしくは非置換の O、N、S i および S のうち 1 つ以上を含む C_{2-60} ヘテロアリールであり、

R' ₂ および R' ₃ はそれぞれ独立して、水素；重水素；ハロゲン；シアノ；置換もしくは非置換の C_{1-60} アルキル；置換もしくは非置換の C_{3-60} シクロアルキル；置換もしくは非置換の C_{6-60} アリール；または置換もしくは非置換の O、N、S i および S のうち 1 つ以上を含む C_{2-60} ヘテロアリールであり、

n および m はそれぞれ独立して 0 から 4 の整数である。

【0083】

前記化学式 1 において、好ましくは、X₁ から X₃ はそれぞれ独立して N、または CH であり、但し、X₁ から X₃ のうちの少なくとも一つは N である。

【0084】

好ましくは、L₁ は単一結合、フェニレン、シアノで置換されたフェニレン、またはフェニルで置換されたピリジニレンである。

【0085】

好ましくは、L₂ は単一結合、フェニレン、ナフチレン、フェナンスレニレン、またはピリジニレンである。

【0086】

好ましくは、Ar₁ および Ar₂ はそれぞれ独立してフェニル、シアノで置換されたフェニル、1 から 5 個の重水素で置換されたフェニル、ピフェニル、またはジベンゾフラニルである。

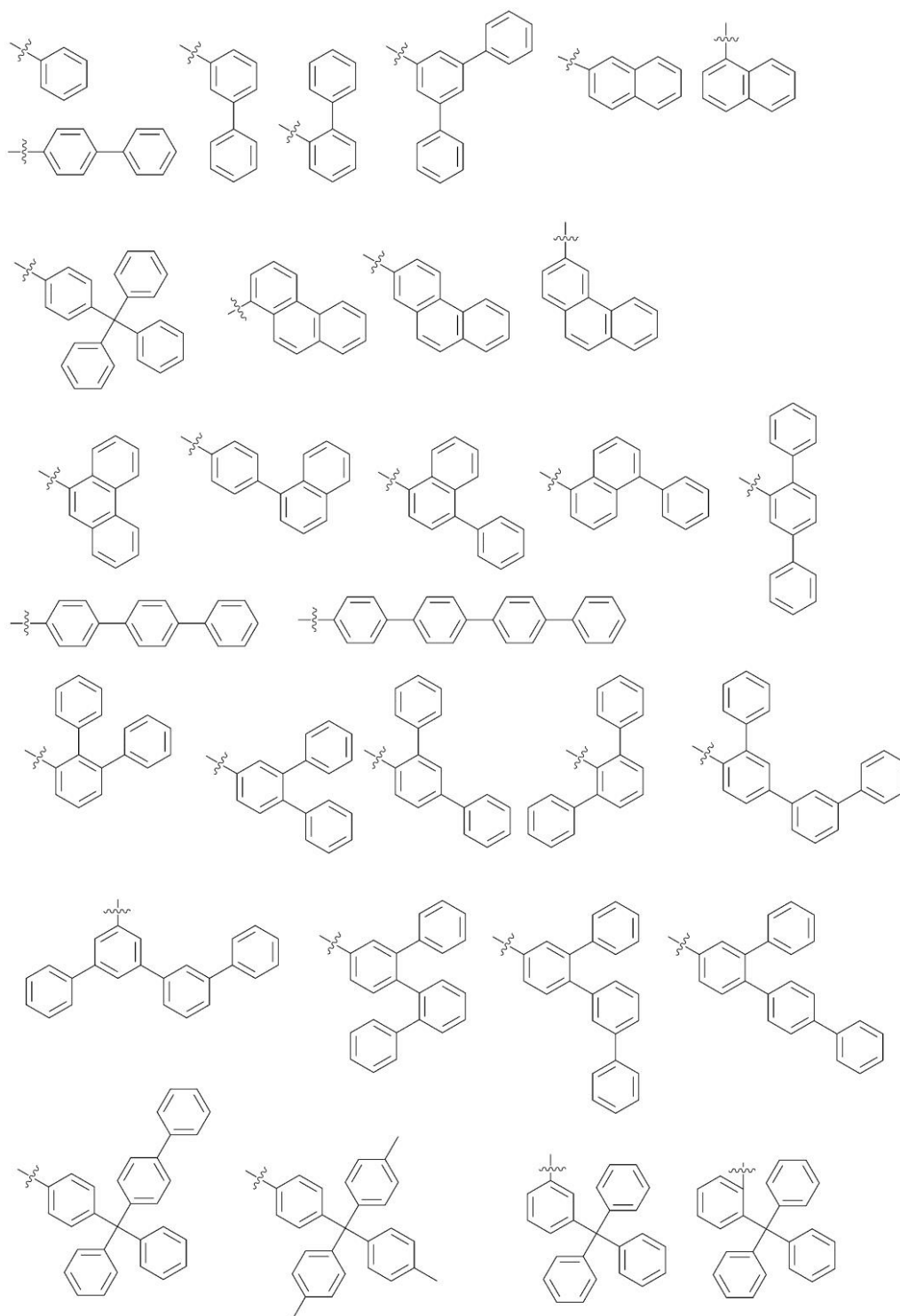
【0087】

好ましくは、Ar₃ は下記で構成される群から選択されるいずれか一つである：

10

20

【化 9】



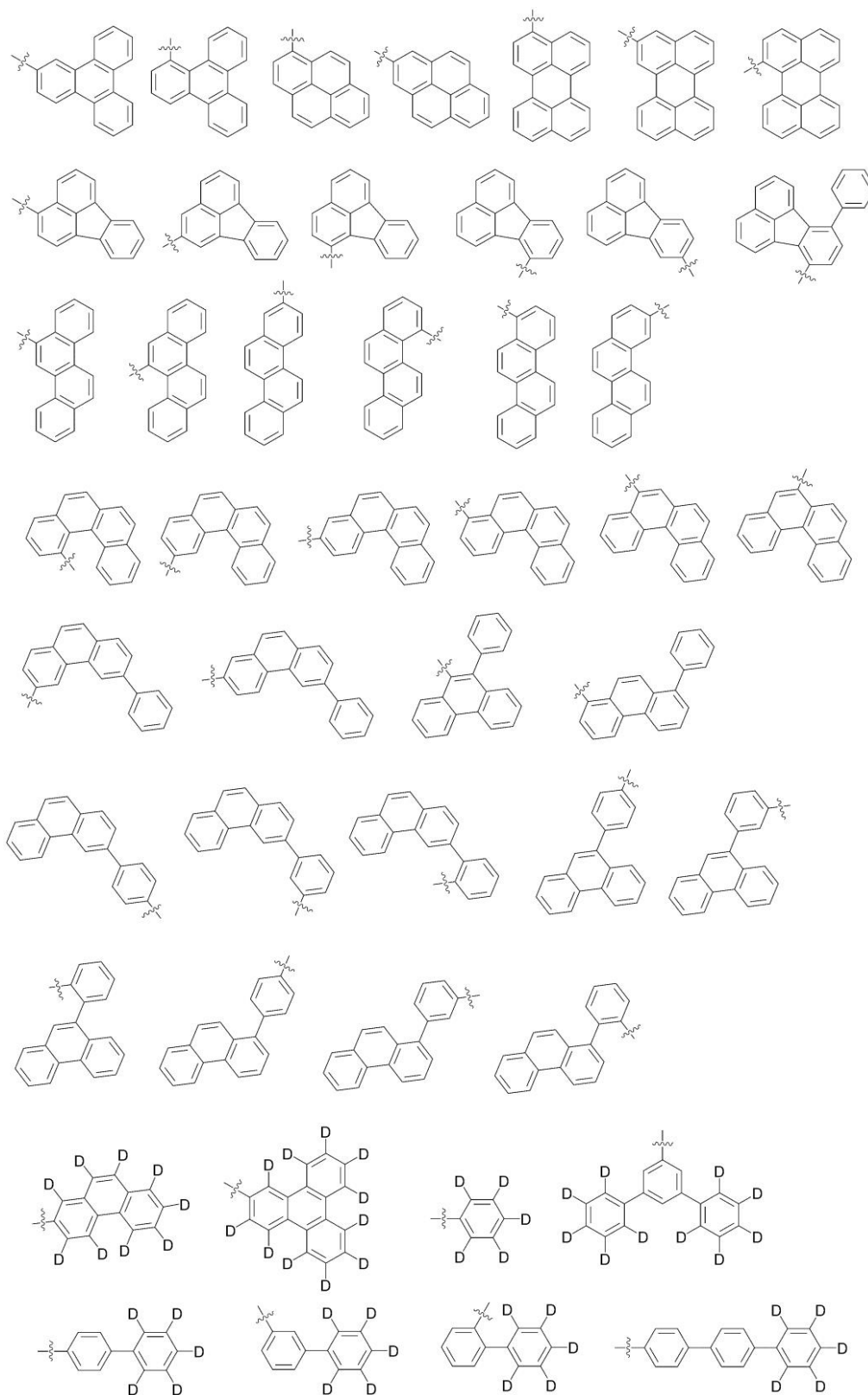
10

20

30

40

【化 10】



【0088】

より好ましくは、 Ar_3 はフェニル、1 から 5 個の重水素で置換されたフェニル、ピフェニル、ターフェニル、クォーターフェニル、ナフチル、トリフェニレニル、フェナントレニル、またはピレニルである。

【0089】

前記化学式 1 - 1 または 1 - 2 で表される化合物の代表的な例は、以下のとおりである：

10

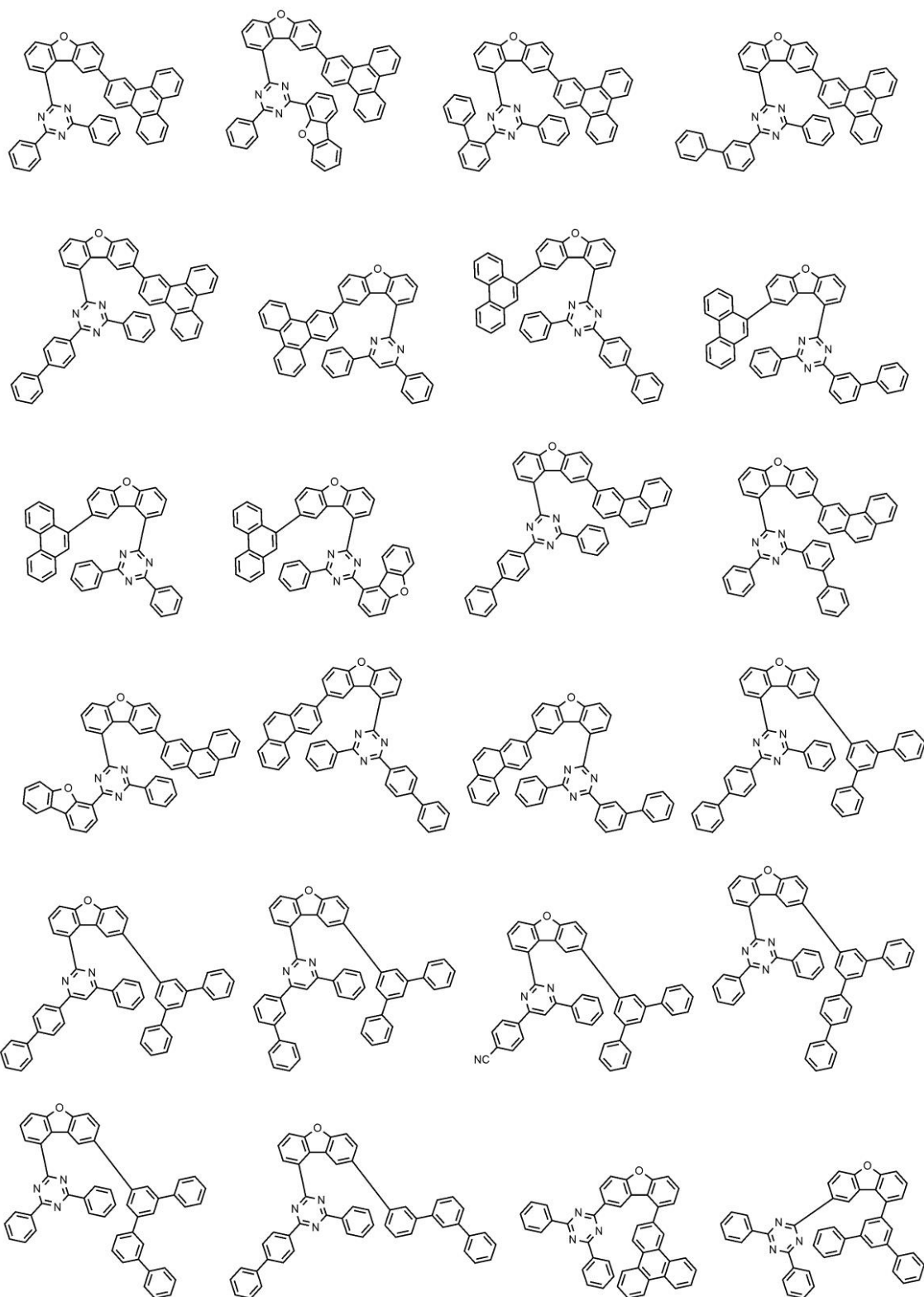
20

30

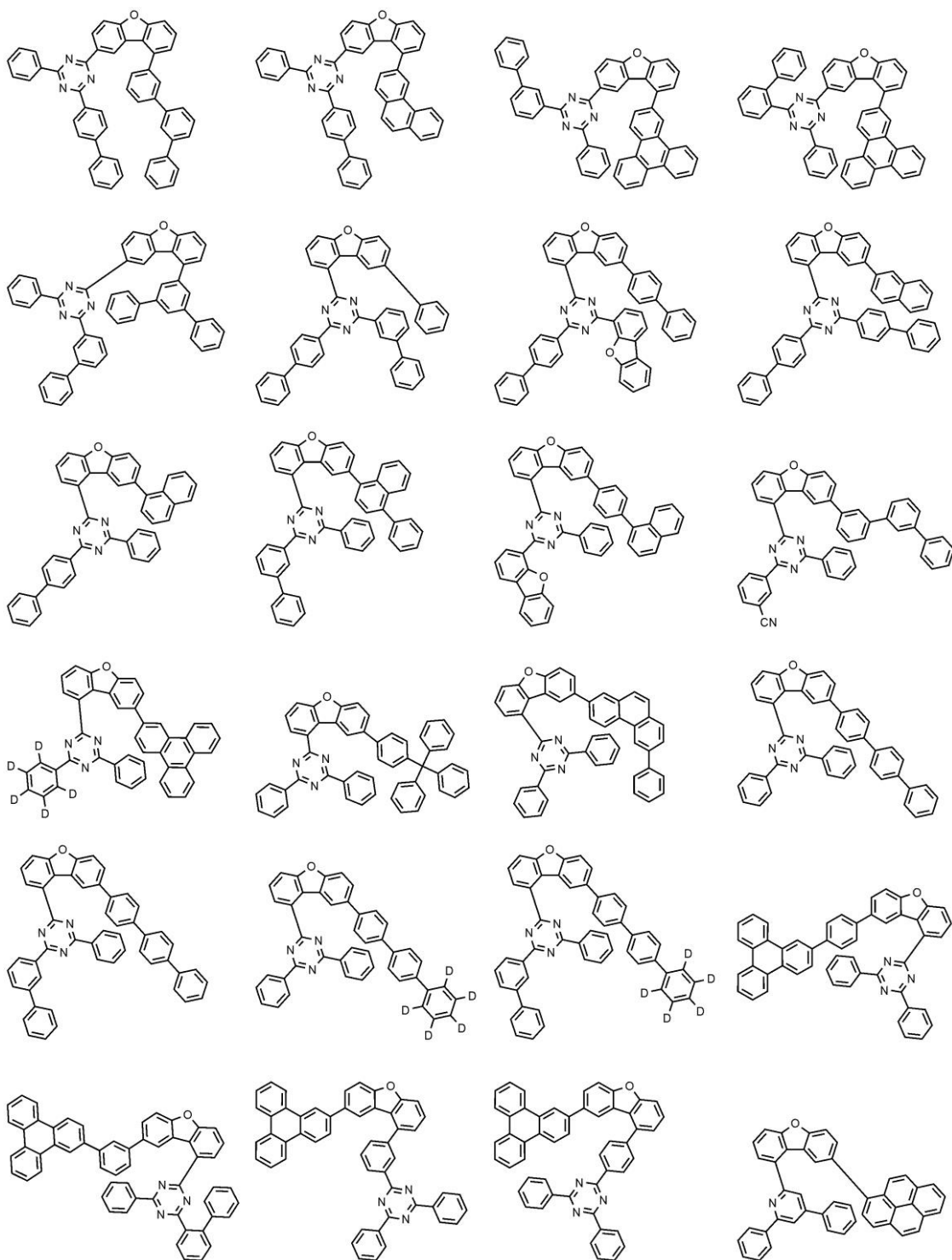
40

50

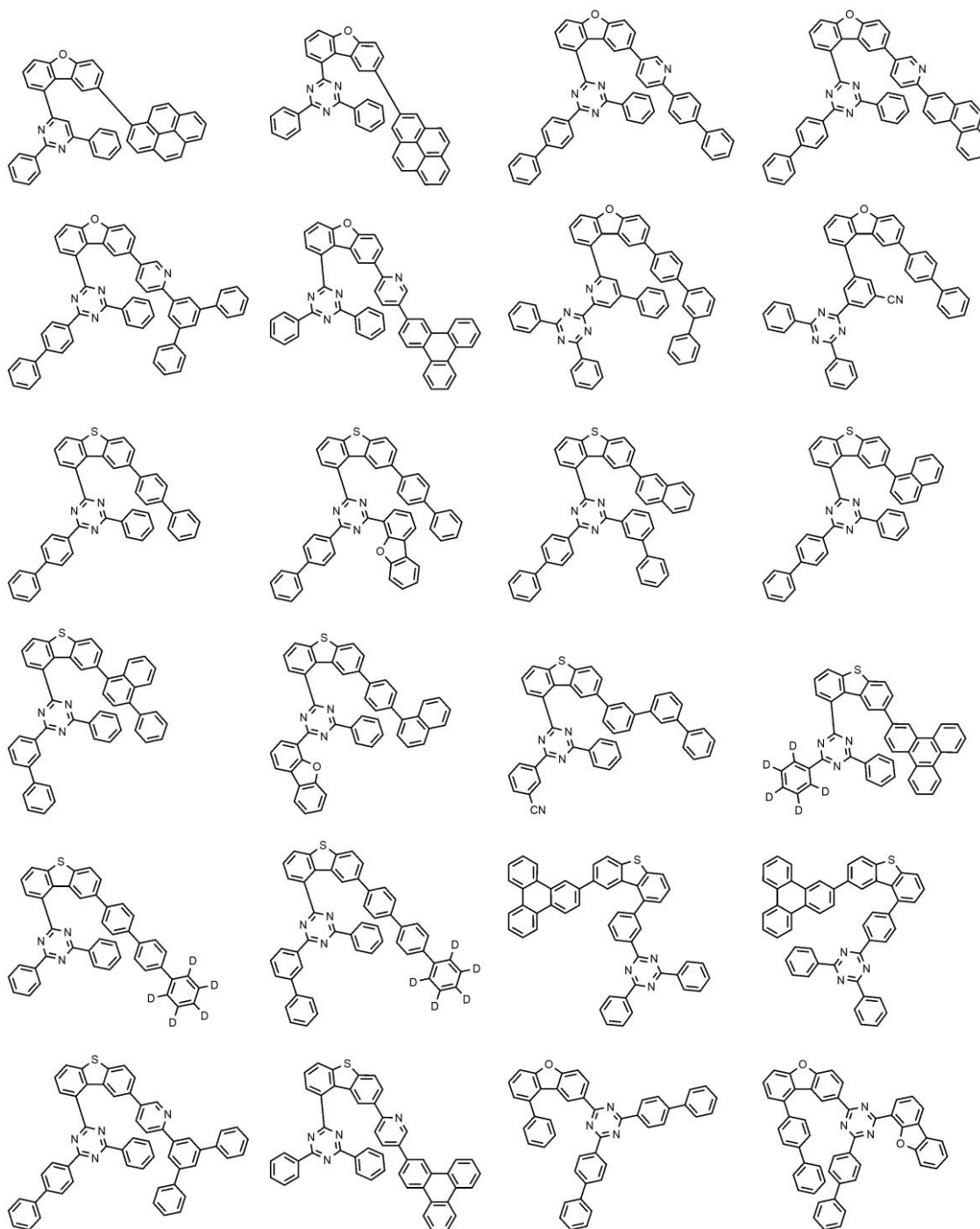
【化 1 1】



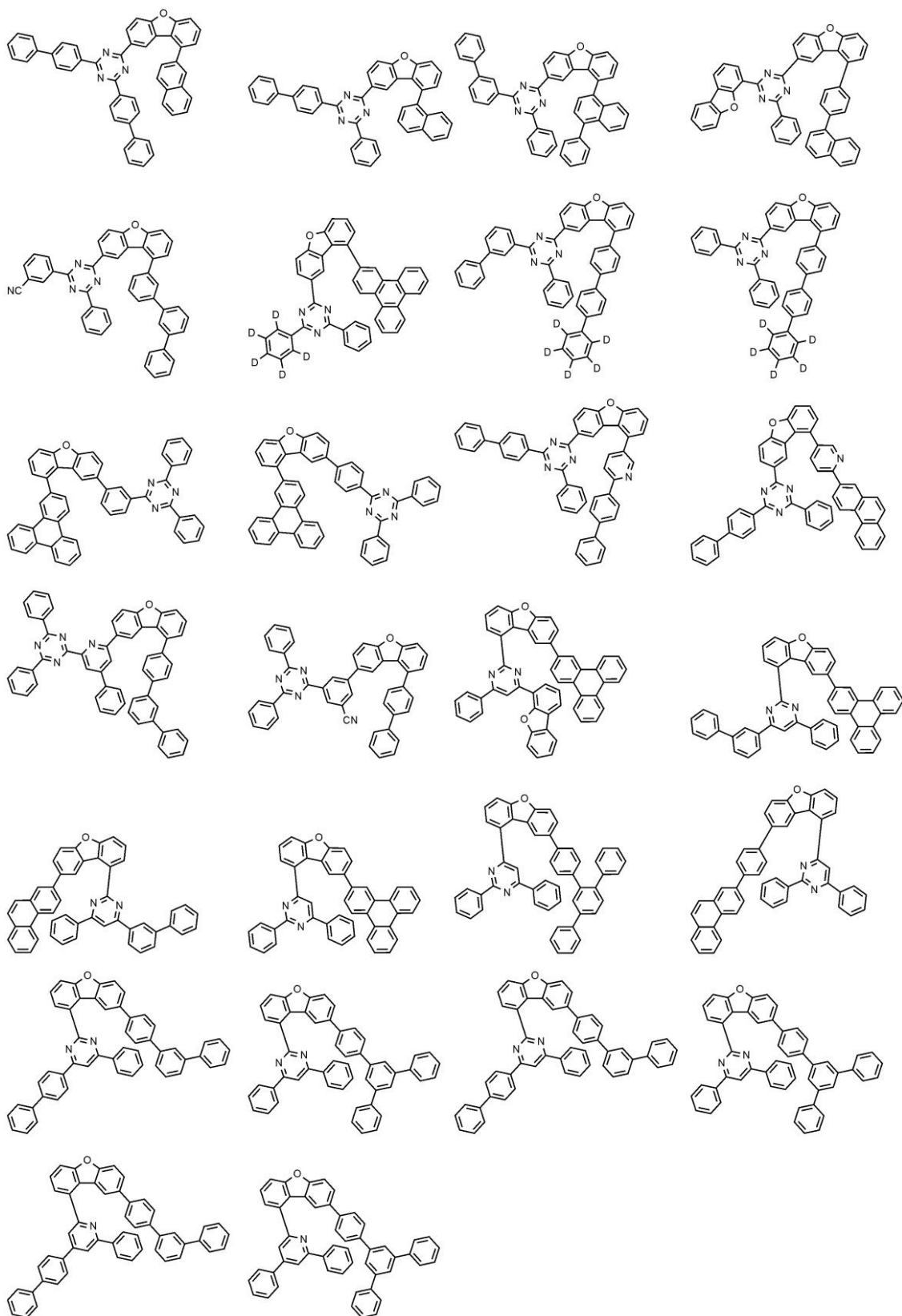
【化 1 2】



【化 1 3】



【化 1 4】



【 0 0 9 0 】

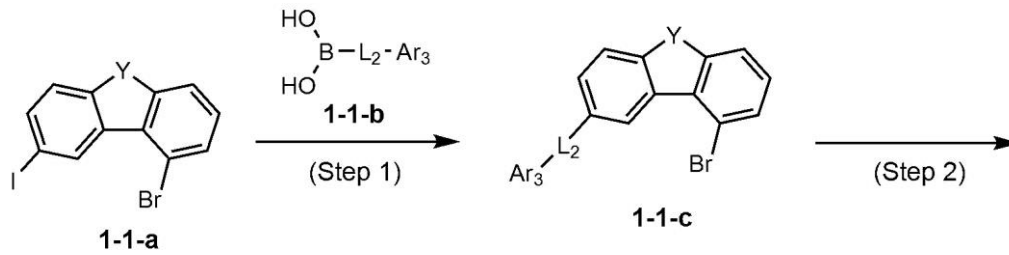
また、前記化学式 1 - 1 および 1 - 2 で表される化合物は、一例として、それぞれ下記反応式 1 - 1 および 1 - 2 で表される製造方法で製造することができる。

【 0 0 9 1 】

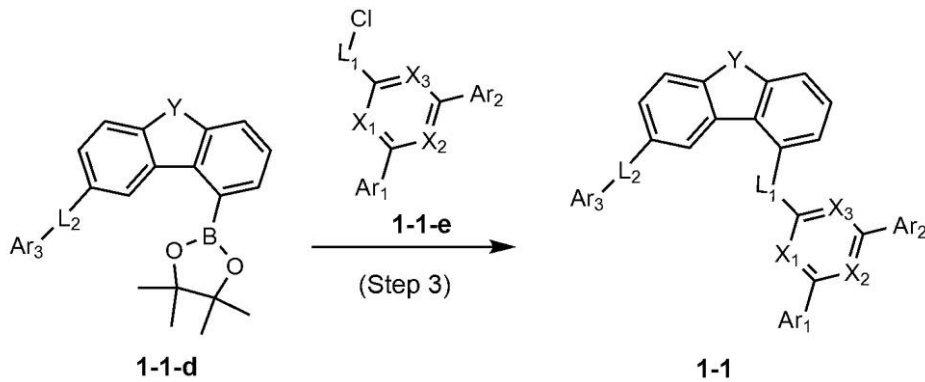
[反応式 1 - 1]

【 0 0 9 2 】

【化 1 5】



10



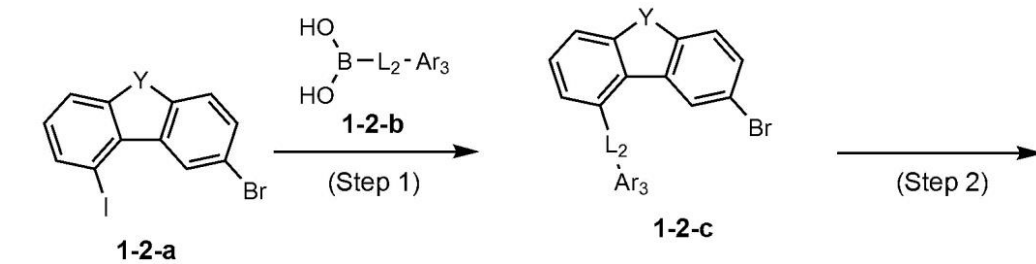
20

【 0 0 9 3 】

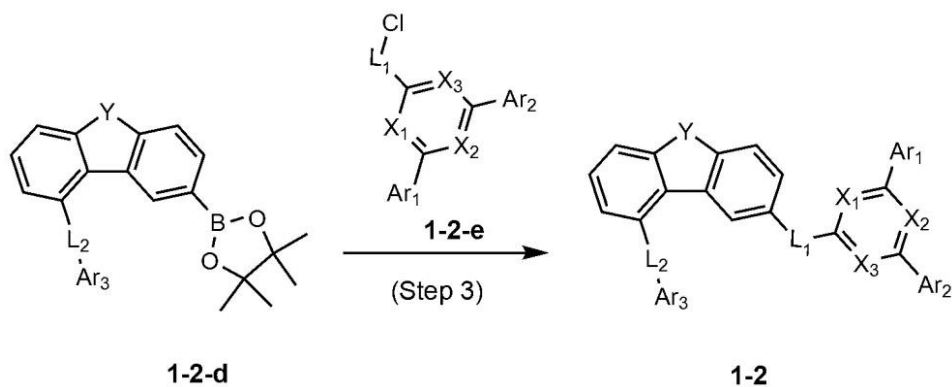
[反 応 式 1 - 2]

【 0 0 9 4 】

【化 1 6】



30



40

【 0 0 9 5 】

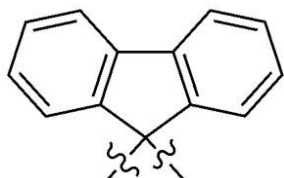
前記反応式 1 - 1 および 1 - 2 は、鈴木カップリング反応を利用して、前記化学式 1 - 1 および 1 - 2 で表される化合物を製造するものであり、反応の順序および鈴木カップリングのための反応基の種類の変更も可能である。前記製造方法は、後述する実施例でより具体化される。

【 0 0 9 6 】

前記化学式 2 において、好ましくは Y' は O、S、NR'、C(CH₃)₂、または

50

【化 17】



であり、ここで R' はフェニル、シアノで置換されたフェニル、ビフェニリル、トリフェニレニル、シクロヘキシル、ジメチルフルオレニル、またはジベンゾフラニルである。

【0097】

好ましくは、 L' および L'' はそれぞれ独立して、単一結合、またはフェニレンである

10

【0098】

好ましくは、 R'_1 はフェニル、tert-ブチルで置換されたフェニル、ビフェニリン、トリフェニレニル、フェナントレニル、ターフェニリル、ピリジニル、フェニルで置換されたカルバゾリル、ジメチルフルオレニル、またはジベンゾチオフェニルである。

【0099】

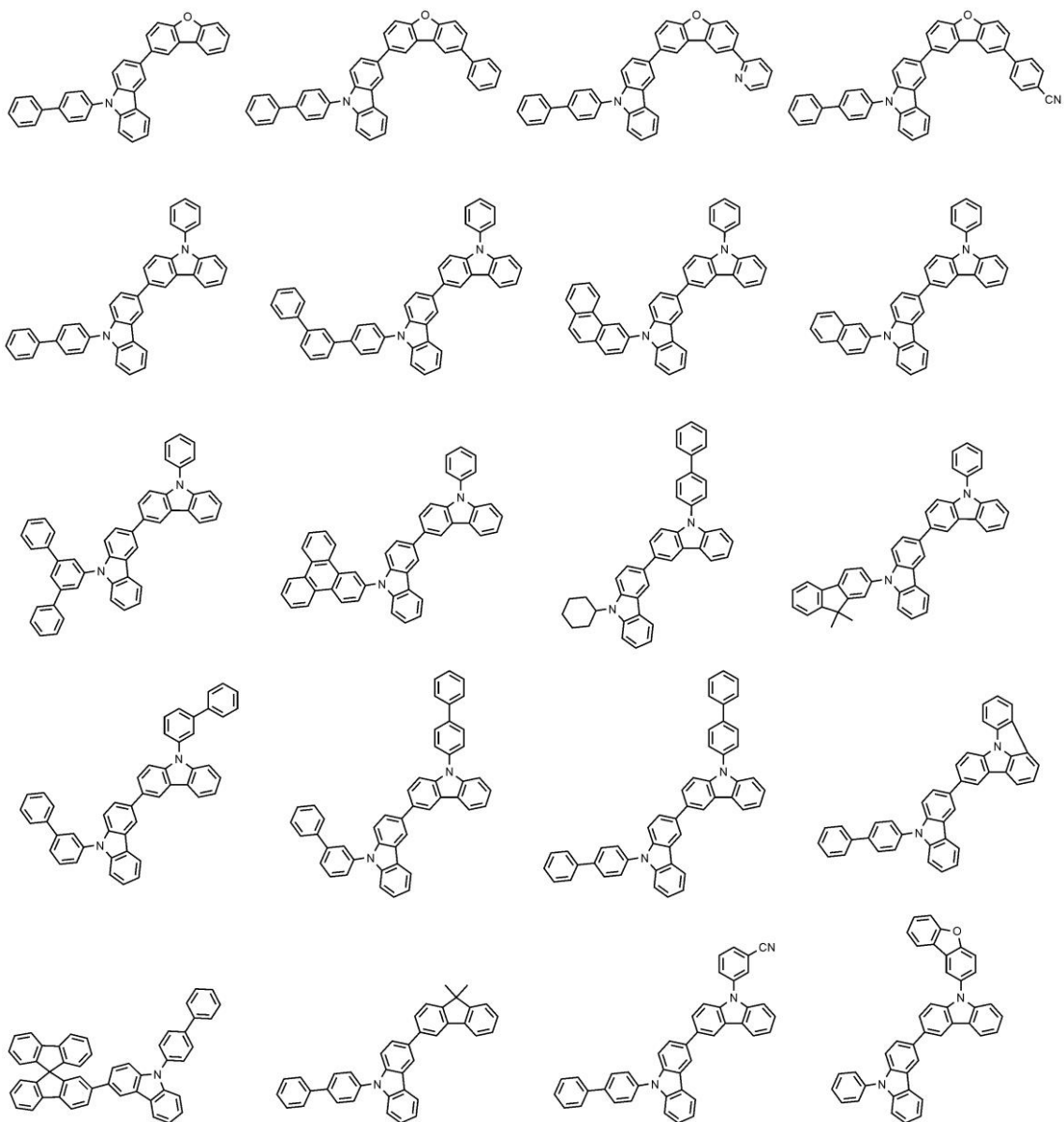
好ましくは、 R'_2 および R'_3 はそれぞれ独立して、水素；tert-ブチル；シアノ；フェニル；シアノで置換されたフェニル；またはピリジニルである。

【0100】

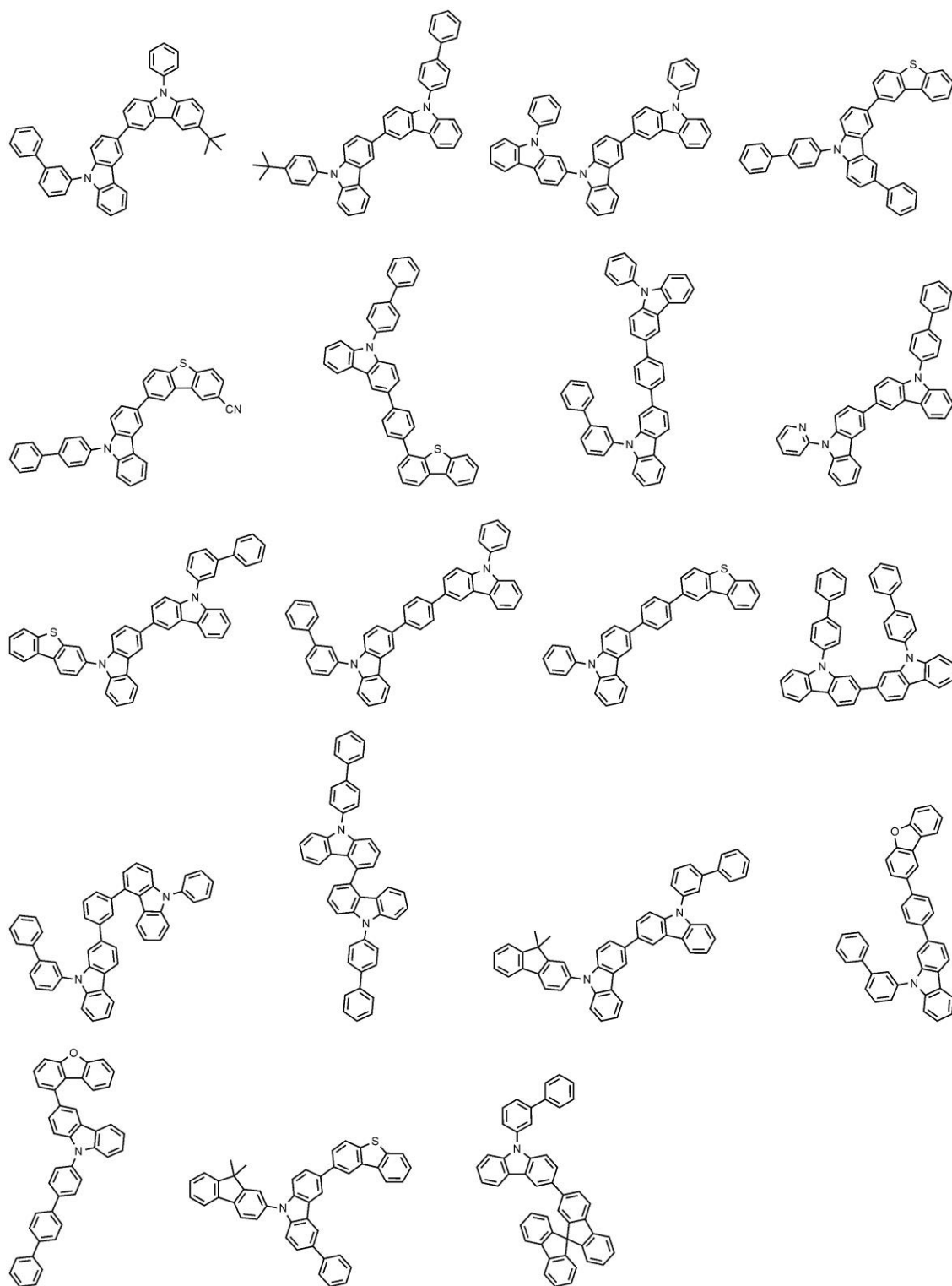
前記化学式 2 で表される化合物の代表的な例は、以下のとおりである：

20

【化 18】



【化 19】



【0101】

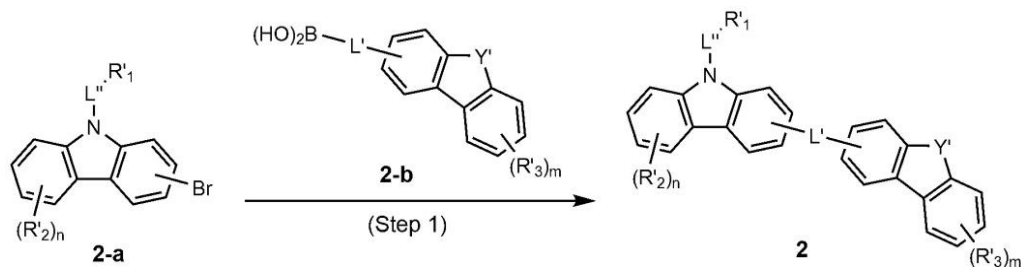
また、前記化学式 2 で表される化合物は、一例として、下記反応式 2 で表される製造方法で製造することができる。

【0102】

[反応式 2]

【0103】

【化 2 0】



【 0 1 0 4 】

前記反応式 2 は、鈴木カップリング反応を利用して、前記化学式 2 で表される化合物を製造するものであり、鈴木カップリングのための反応基の種類の変更も可能である。前記製造方法は、後述する実施例でより具体化される。

10

【 0 1 0 5 】

好ましくは、前記第 1 ホスト化合物と第 2 ホスト化合物の重量比は 1 : 99 から 99 : 1 に用いられる。

【 0 1 0 6 】

また、前記発光層は、前記ホスト化合物以外にドーパント材料を含むことができる。

【 0 1 0 7 】

前記ドーパント材料としては、有機発光素子に使用されるものであれば特に制限されず、一例として芳香族アミン誘導体、スチリルアミン化合物、ホウ素錯体、フルオランテン化合物、金属錯体などがある。

20

【 0 1 0 8 】

具体的に、芳香族アミン誘導体としては、置換もしくは非置換のアリールアミノ基を有する縮合芳香族環誘導体であって、アリールアミノ基を有するピレン、アントラセン、クリセン、ペリフランテンなどがあり、スチリルアミン化合物としては、置換もしくは非置換のアリールアミンに少なくとも 1 個のアリールビニル基が置換されている化合物であって、アリール基、シリル基、アルキル基、シクロアルキル基およびアリールアミノ基からなる群より 1 または 2 以上選択される置換基が置換または非置換される。

【 0 1 0 9 】

具体的に、スチリルアミン、スチリルジアミン、スチリルトリアミン、スチリルテトラアミンなどがあるが、これに限定されない。

30

【 0 1 1 0 】

また、金属錯体としてはイリジウム錯体、白金錯体などがあるが、これに限定されない。

【 0 1 1 1 】

その他層

また、本発明による有機発光素子は、必要に応じて正孔注入層、正孔輸送層、電子輸送層、および/または電子伝達層を含むことができる。

【 0 1 1 2 】

前記正孔注入層は電極から正孔を注入する層であって、正孔注入物質としては、正孔を輸送する能力を有し、陽極からの正孔注入効果、発光層または発光材料に対して優れた正孔注入効果を有し、発光層で生成された励起子の電子注入層または電子注入材料への移動を防止し、また、薄膜形成能力に優れた化合物が好ましい。

40

【 0 1 1 3 】

正孔注入物質の HOMO (highest occupied molecular orbital) が、陽極物質の仕事関数と周辺有機物層の HOMO との間であることが好ましい。

【 0 1 1 4 】

正孔注入物質の具体的な例としては、金属ポルフィリン (porphyrin)、オリゴチオフエン、アリールアミン系の有機物、ヘキサニトリルヘキサアザトリフェニレン系

50

の有機物、キナクリドン (quinacridone) 系の有機物、ペリレン (perylene) 系の有機物、アントラキノンおよびポリアニリンとポリチオフェン系の伝導性高分子などがあるが、これらにのみ限定されるものではない。

【0115】

前記正孔輸送層は、陽極または正孔注入層から正孔を受け取って発光層まで正孔を輸送する層であって、正孔輸送物質としては、陽極や正孔注入層から正孔が輸送されて発光層に移すことができる物質で、正孔に対する移動性の大きい物質が適合する。

【0116】

具体的な例としては、アリアルアミン系の有機物、伝導性高分子、および共役部分と非共役部分が共にあるブロック共重合体などがあるが、これらにのみ限定されるものではない。

10

【0117】

前記電子輸送層は、電子注入層または陰極から電子を受け取って発光層まで電子を輸送する層であって、電子輸送物質としては、陰極から電子を円滑に注入を受けて発光層に移すことができる物質であって、電子に対する移動性の大きい物質が適合する。

【0118】

具体的な例としては、8 - ヒドロキシキノリンの Al 錯体；Alq₃ を含む錯体；有機ラジカル化合物；ヒドロキシフラボン - 金属錯体などがあるが、これらにのみ限定されるものではない。

【0119】

電子輸送層は、従来技術により使用されているような、任意の所望のカソード物質と共に使用することができる。

20

【0120】

特に、適切なカソード物質の例は、低い仕事関数を有しアルミニウム層またはシルバ層が伴う通常の物質である。

【0121】

具体的に、セシウム、バリウム、カルシウム、イッテルビウムおよびサマリウムであり、この場合、アルミニウム層またはシルバ層が伴う。

【0122】

前記電子注入層は、電極から電子を注入する層であって、電子を輸送する能力を有し、陰極からの電子注入効果、発光層または発光材料に対して優れた電子注入効果を有し、発光層で生成された励起子の正孔注入層への移動を防止し、かつ薄膜形成能力に優れた化合物が望ましい。

30

【0123】

具体的には、フルオレノン、アントラキノジメタン、ジフェノキノン、チオピランジオキシド、オキサゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、イミダゾール、ペリレンテトラカルボン酸、フレオレニリデンメタン、アントロンなどと、それらの誘導体、金属錯体化合物および含窒素 5 員環誘導体などがあるが、これに限定されない。

【0124】

前記金属錯体化合物としては、8 - ヒドロキシキノリナートリチウム、ビス (8 - ヒドロキシキノリナート) 亜鉛、ビス (8 - ヒドロキシキノリナート) 銅、ビス (8 - ヒドロキシキノリナート) マンガン、トリス (8 - ヒドロキシキノリナート) アルミニウム、トリス (2 - メチル - 8 - ヒドロキシキノリナート) アルミニウム、トリス (8 - ヒドロキシキノリナート) ガリウム、ビス (10 - ヒドロキシベンゾ[h]キノリナート) ベリリウム、ビス (10 - ヒドロキシベンゾ[h]キノリナート) 亜鉛、ビス (2 - メチル - 8 - キノリナート) クロロガリウム、ビス (2 - メチル - 8 - キノリナート) (o - クレゾラート) ガリウム、ビス (2 - メチル - 8 - キノリナート) (1 - ナフトラート) アルミニウム、ビス (2 - メチル - 8 - キノリナート) (2 - ナフトラート) ガリウムなどがあるが、これに限定されない。

40

【0125】

50

有機発光素子

本発明による有機発光素子は、前記発光層に第1ホストと第2ホストとを含むことを除いては、当技術分野で知られている材料と方法で製造されることができる。

【0126】

例えば、本発明による有機発光素子は、基板上に陽極、有機物層および陰極を順次積層させて製造することができる。

【0127】

この時、スパッタリング法(sputtering)や電子ビーム蒸発法(e-beam evaporation)のようなPVD(physical Vapor Deposition)方法を利用して、基板上に金属または伝導性を有する金属酸化物またはこれらの合金を蒸着させて陽極を形成し、その上に正孔注入層、正孔輸送層、発光層および/または電子輸送層を含む有機物層を形成した後、その上に陰極として使用可能な物質を蒸着させて製造することができる。

10

【0128】

このような方法以外にも、基板上に陰極物質から有機物層、陽極物質を順に蒸着させて有機発光素子を作ることができる。

【0129】

また、前記第1ホスト化合物および第2ホスト化合物は有機発光素子の製造時に真空蒸着法だけでなく、溶液塗布法によって発光層に形成することもできる。

【0130】

ここで、溶液塗布法とは、スピンコーティング、ディップコーティング、ドクターブレディング、インクジェットプリンティング、スクリーンプリンティング、スプレー法、ロールコーティングなどを意味するが、これらにのみ限定されるものではない。

20

【0131】

このような方法以外にも、基板上に陰極物質から有機物層、陽極物質を順に蒸着させて有機発光素子を製造することができる(WO 2003/012890)。

【0132】

ただし、製造方法は、これに限定されるものではない。

【0133】

本発明による有機発光素子は、使用される材料に応じて、前面発光型、後面発光型または両面発光型でありうる。

30

【0134】

以下、本発明の理解を助けるために望ましい実施例を提示する。

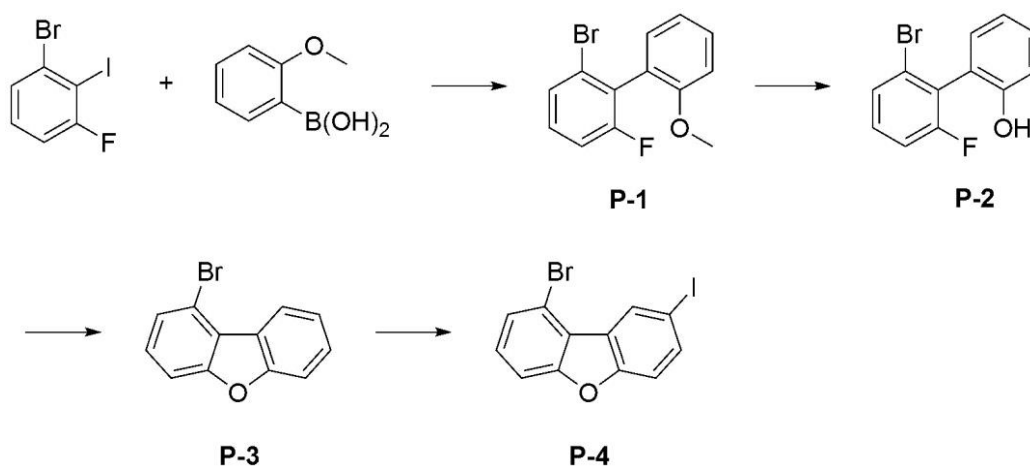
【0135】

しかし、下記の実施例は、本発明をより容易に理解するために提供されるものに過ぎず、本発明の内容を限定するのではない。

【0136】

製造例：中間体P-4化合物の製造

【化 2 1】



10

【0137】

(段階1: 化合物 P - 1 の製造)

ブromo - 3 - フルオロ - 2 - ヨードベンゼン (1 - bromo - 3 - fluoro - 2 - iodobenzene) (100 g、333.5 mmol)、2 - メトキシフェニルボロン酸 ((2 - methoxyphenyl)boronic acid) (50.6 g、333.5 mmol) をテトラヒドロフラン (THF) 800 mL に溶かした。

【0138】

ここに、炭酸ナトリウム (Na_2CO_3) 2 M 溶液 (500 mL)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) [$\text{Pd}(\text{PPh}_3)_4$] (7.7 g、6.7 mmol) を入れて12時間還流させた。

20

【0139】

反応が終わった後、常温に冷却させ、生成された混合物を水とトルエンで3回抽出した。

【0140】

トルエン層を分離した後、硫酸マグネシウム (magnesium sulfate) で乾燥してろ過した濾液を減圧蒸留して得た混合物をクロロホルムおよびエタノールで3回再結晶して化合物 P - 1 (49.7 g、収率53%) を得た。

30

【0141】

MS: $[\text{M} + \text{H}]^+ = 281$

【0142】

(段階2: 化合物 P - 2 の製造)

化合物 P - 1 (45 g、158 mmol) をジクロロメタン (Dichloromethane) (600 mL) に溶かした後、0 に冷却させた。

【0143】

ボロントリブROMID (boron tribromide) (15.8 mL、166.4 mmol) をゆっくり滴加した後、12時間攪拌した。

【0144】

反応が終わった後、水で3回洗浄し、硫酸マグネシウム (magnesium sulfate) で乾燥してろ過した濾液を減圧蒸留しカラムクロマトグラフィーで精製して化合物 P - 2 (40 g、収率85%) を得た。

40

【0145】

MS: $[\text{M} + \text{H}]^+ = 298$

【0146】

(段階3: 化合物 P - 3 の製造)

窒素雰囲気下で化合物 P - 2 (33 g、110 mmol) をジメチルホルムアミド 200 mL に入れて攪拌した。

【0147】

50

以降、ポタシウムカーボネート（30.4 g、220 mmol）を投入した後、還流した。

【0148】

2時間後、常温に温度を下げてろ過した。

【0149】

ろ過物をクロロホルムと水で抽出した後、有機層を硫酸マグネシウムを利用して乾燥した。

【0150】

前記混合物を減圧蒸留して得た混合物を、クロロホルムおよび酢酸エチルで再結晶して化合物 P - 3（20.3 g、収率75%）を得た。

10

【0151】

MS : $[M + H]^+ = 247$

【0152】

（段階4：化合物 P - 4の製造）

窒素雰囲気下で化合物 P - 3（20 g、80 mmol）にヨウ素（2.06 g、40 mmol）、ヨウ素酸（3.13 g、17.8 mmol）を投入し、80 mLの酢酸と20 mLの硫酸混合物を溶媒にして投入し、10 mLの水および4 mLのクロロホルムを追加で投入して65℃で3時間撹拌した。

【0153】

冷却後に水を混合物に添加し、沈殿した固体をろ過して水で3回洗浄した。

20

【0154】

ろ過されたる過物をトルエンとヘキサンで再結晶して P - 4（20.0 g、収率67%）を得た。

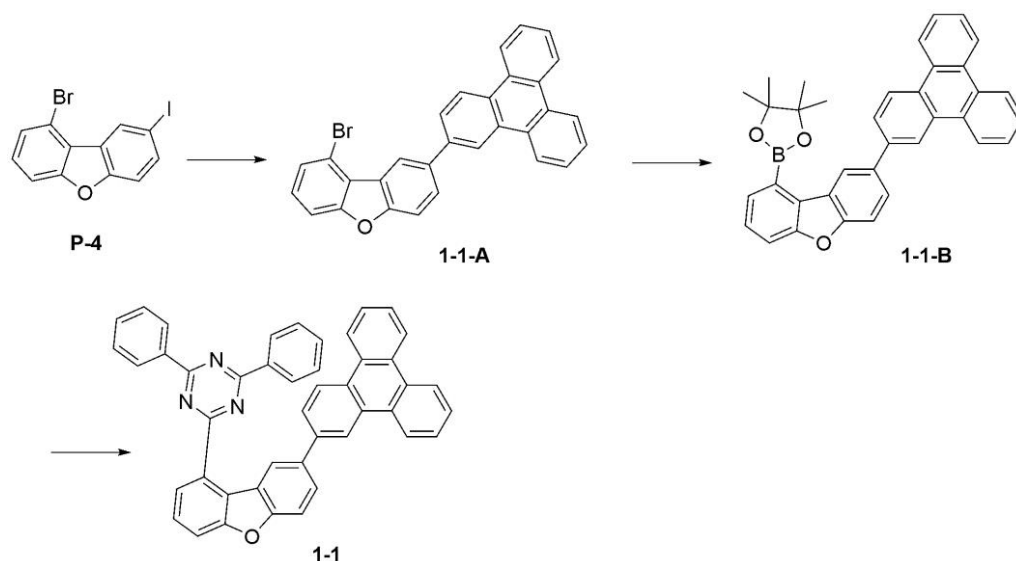
【0155】

MS : $[M + H]^+ = 374$

【0156】

実施例 1 - 1：化合物 1 - 1の製造

【化22】



30

40

【0157】

（段階1：化合物 1 - 1 - Aの製造）

化合物 P - 4（20 g、54 mmol）とトリフェニレン - 2 - イルボロン酸（15 g、54 mmol）をテトラヒドロフラン（200 mL）に分散させた後、2 M炭酸カリウム水溶液（aq. K_2CO_3 ）（80 mL、162 mmol）を添加し、テトラキストリフェニルホスフィノパラジウム $[Pd(PPh_3)_4]$ （0.6 g、1 mol%）を入れた後、5時間撹拌還流した。

50

【0158】

常温に温度を下げて生成された固体をろ過した。

【0159】

ろ過された固体をクロロホルムと酢酸エチルで再結晶しろ過した後、乾燥して化合物 1 - 1 - A (20.7 g、収率 81%) を製造した。

【0160】

(段階2: 化合物 1 - 1 - B の製造)

化合物 1 - 1 - A (20 g、42.2 mmol)、ビス(ピナコラト)ジボロン(Bis(pinacolato)diborone)(14.5 g、50.6 mmol)、ポ
10
タシウムアセテート(potassium acetate)(8.5 g、85 mmol)
ラジウム0.73 g(1.3 mmol)とトリシクロヘキシルホスフィン0.71 g(1.3 mmol)を添加し、12時間還流撹拌した。反応が終わった後、混合物を室温に冷却し、セルライトを通してろ過した。

【0161】

濾液を減圧下で濃縮した後、残留物にクロロホルムを入れて溶かした後、水で洗浄して有機層を分離した後、無水硫酸マグネシウム(Magnesium sulfate)で乾燥した。

【0162】

これを減圧蒸留し、酢酸エチルとエタノールを撹拌して化合物 1 - 1 - B (19.3 g、
20
収率 88%) を製造した。

【0163】

(段階3: 化合物 1 - 1 の製造)

化合物 1 - 1 - B (20 g、38 mmol)と2-クロロ-4,6-ジフェニル-1,3,5-トリアジン(10.3 g、38 mmol)をテトラヒドロフラン(150 mL)に分散させた後、2 M炭酸カリウム水溶液(aq. K₂CO₃)(58 mL、115 mmol)を添加し、テトラキストリフェニルホスフィノパラジウム[Pd(PPh₃)₄](0.45 g、1 mol%)を入れた後、6時間撹拌還流した。

【0164】

常温に温度を下げて生成された固体をろ過した。

【0165】

ろ過された固体をクロロホルムと酢酸エチルで再結晶しろ過した後、乾燥して化合物 1 - 1 (17.5 g、収率 73%) を製造した。

【0166】

MS: [M + H]⁺ = 626

【0167】

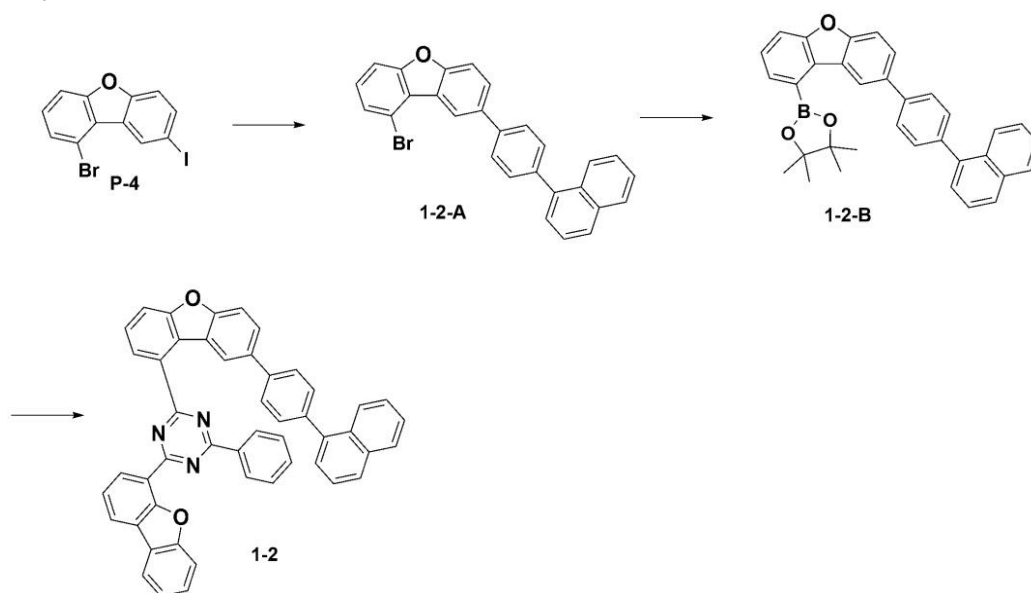
実施例 1 - 2: 化合物 1 - 2 の製造

10

20

30

【化 2 3】



10

【0168】

(段階1：化合物1-2-Aの製造)

化合物P-4 (20 g、54 mmol) と4-(ナフタレン-1-イル)フェニル) ボロン酸 (13.3 g、54 mmol) をテトラヒドロフラン (200 mL) に分散させた後、2 M炭酸カリウム水溶液 (aq. K_2CO_3) (80 mL、160 mmol) を添加し、テラキストリフェニルホスフィノパラジウム [$Pd(PPh_3)_4$] (0.6 g、1 mmol%) を入れた後、5時間攪拌還流した。常温に温度を下げて生成された固体をろ過した。

20

【0169】

ろ過された固体をクロロホルムと酢酸エチルで再結晶しろ過した後、乾燥して化合物1-2-A (17.0 g、収率82%) を製造した。

【0170】

(段階2：化合物1-2-Bの製造)

化合物1-2-A (20 g、44.5 mmol)、ビス(ピナコラト)ジボロン ($Bis(pinacolato)diborone$) (15.3 g、53.4 mmol)、ポタシウムアセテート ($potassium\ acetate$) (8.7 g、89 mmol) を1,4-ジオキサン200 mLに投入し、還流攪拌状態でジベンジリデンアセトンパラジウム0.8 g (1.3 mmol) とトリシクロヘキシルホスフィン0.8 g (1.3 mmol) を添加し、12時間還流攪拌した。

30

【0171】

反応が終わった後、混合物を室温に冷却し、セルライトを通してろ過した。

【0172】

濾液を減圧下で濃縮した後、残留物にクロロホルムを入れて溶かした後、水で洗浄して有機層を分離した後、無水硫酸マグネシウム ($Magnesium\ sulfate$) で乾燥した。

40

【0173】

これを減圧蒸留し、酢酸エチルとエタノールを攪拌して化合物1-2-B (19 g、収率86%) を製造した。

【0174】

(段階3：化合物1-2の製造)

化合物1-2-B (20 g、40 mmol) と2-クロロ-4-(ジベンゾ[*b*,*d*]フラン-4-イル)-6-フェニル-1,3,5-トリアジン (14.4 g、40 mmol) をテトラヒドロフラン (180 mL) に分散させた後、2 M炭酸カリウム水溶液 (aq

50

・ K_2CO_3) (60 mL、121 mmol) を添加し、テトラキストリフェニルホスフィノパラジウム $[Pd(PPh_3)_4]$ (0.47 g、1 mol %) を入れた後、6 時間攪拌還流した。

【 0 1 7 5 】

常温に温度を下げて生成された固体をろ過した。

【 0 1 7 6 】

ろ過された固体をクロロホルムと酢酸エチルで再結晶しろ過した後、乾燥して化合物 1 - 2 (19.5 g、収率 70 %) を製造した。

【 0 1 7 7 】

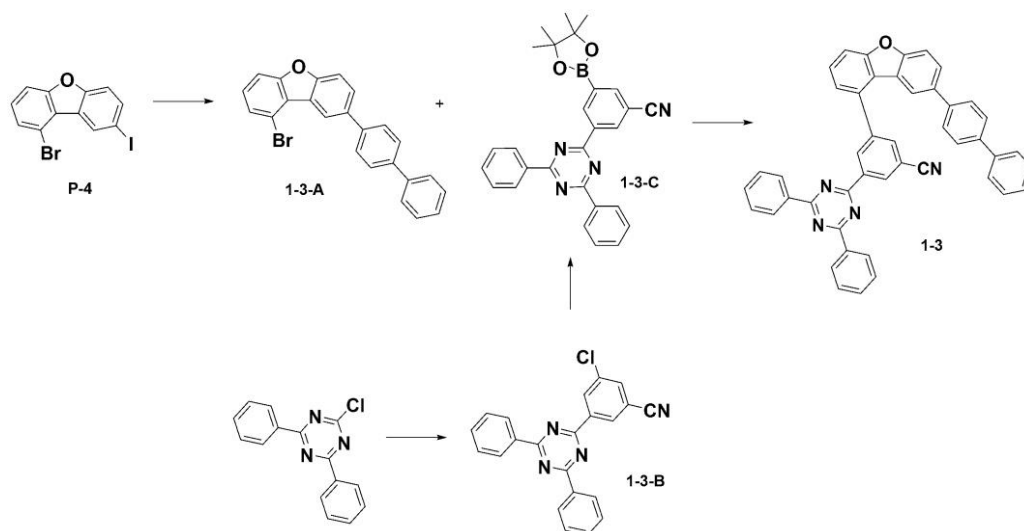
MS : $[M + H]^+ = 692$

10

【 0 1 7 8 】

実施例 1 - 3 : 化合物 1 - 3 の製造

【 化 2 4 】



20

【 0 1 7 9 】

(段階 1 : 化合物 1 - 3 - A の製造)

化合物 P - 4 (20 g、54 mmol) と [1 , 1' - ビフェニル] - 4 - イルボロン酸を用いて化合物 1 - A - 1 の製造例と同様の方法で化合物 1 - 3 - A (18.4 g、収率 86 %) を製造した。

30

【 0 1 8 0 】

(段階 2 : 化合物 1 - 3 - B の製造)

2 - クロロ - 4 , 6 - ジフェニル - 1 , 3 , 5 - トリアジン (30 g、112 mmol) と (3 - クロロ - 5 - シアノフェニル) ボロン酸 (20 g、112 mmol) をテトラヒドロフラン (480 mL) に分散させた後、2 M 炭酸カリウム水溶液 (aq . K_2CO_3) (160 mL、336 mmol) を添加し、テトラキストリフェニルホスフィノパラジウム $[Pd(PPh_3)_4]$ (1.2 g、1 mol %) を入れた後、5 時間攪拌還流した。

40

【 0 1 8 1 】

常温に温度を下げて水層を除去し減圧濃縮して、エタノールと酢酸エチルを投入して攪拌後、ろ過した。

【 0 1 8 2 】

得られた固体を水とエタノールで洗浄した後、乾燥して 1 - 3 - B (32.0 g、収率 91 %) を製造した。

【 0 1 8 3 】

(段階 3 : 化合物 1 - 3 - C の製造)

化合物 1 - 3 - B (20 g、54 mmol) を用いて化合物 1 - A - 2 の製造例と同様の方法で化合物 1 - 3 - B (19 g、収率 76 %) を製造した。

50

【 0 1 8 4 】

(段階 4 : 化合物 1 - 3 の製造)

化合物 1 - 3 - A (17.3 g、43 mmol) と化合物 1 - 3 - C (20 g、43 mmol) を用いて化合物 1 - 1 の製造例と同様の方法で化合物 1 - 3 (20.7 g、収率 73%) を製造した。

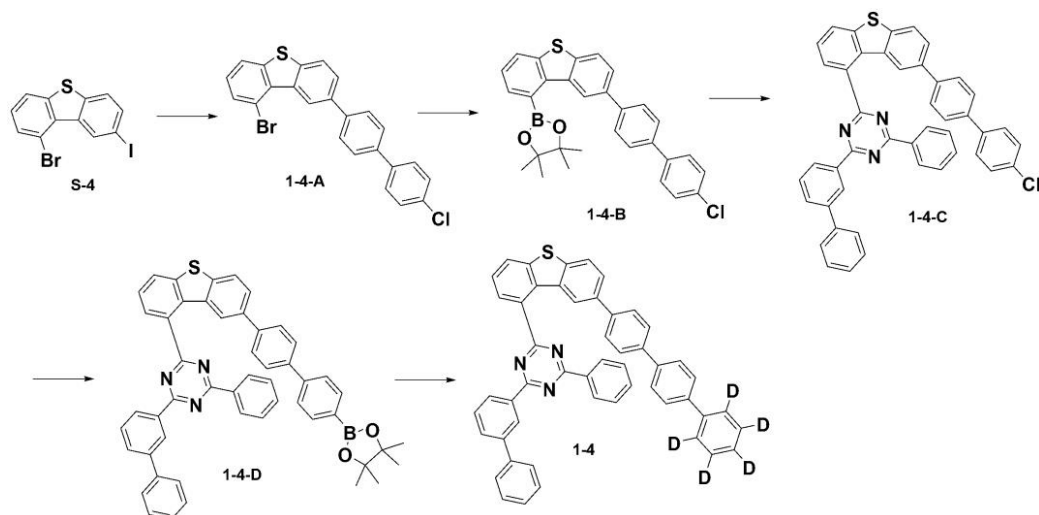
【 0 1 8 5 】

MS : $[M + H]^+ = 653$

【 0 1 8 6 】

実施例 1 - 4 : 化合物 1 - 4 の製造

【 化 2 5 】



【 0 1 8 7 】

(段階 1 : 中間体 S - 4 の製造)

1 - ブロモ - ジベンゾチオフェン (20 g、76 mmol) を用いて中間体 P - 4 の製造例と同様の方法で化合物 S - 4 (16.5 g、収率 65%) を得た。

【 0 1 8 8 】

MS : $[M + H]^+ = 390$

【 0 1 8 9 】

(段階 2 : 化合物 1 - 4 - A の製造)

化合物 S - 4 (20 g、51 mmol) と (4' - クロロ - [1 , 1' - ビフェニル] - 4 - イル) ボロン酸 (13.2 g、57 mmol) を用いて化合物 1 - 1 - A の製造例と同様の方法で化合物 1 - 4 - A (20 g、収率 83%) を製造した。

【 0 1 9 0 】

(段階 3 : 化合物 1 - 4 - B の製造)

化合物 1 - 4 - A (20 g、44.5 mmol) を用いて化合物 1 - 1 - B の製造例と同様の方法で化合物 1 - 4 - B (19 g、収率 86%) を製造した。

【 0 1 9 1 】

(段階 4 : 化合物 1 - 4 - C の製造)

化合物 1 - 4 - B (20 g、40.3 mmol) と 2 - ([1 , 1' - ビフェニル - 3 - イル] - 4 - クロロ - 6 - フェニル - 1 , 3 , 5 - トリアジン) (13.8 g、40.3 mmol) を用いて化合物 1 - 1 - C の製造例と同様の方法で化合物 1 - 4 - C (19 g、収率 86%) を製造した。

【 0 1 9 2 】

(段階 5 : 化合物 1 - 4 - D の製造)

化合物 1 - 4 - C (20 g、30 mmol) を用いて化合物 1 - 3 - C の製造例と同様に実験を行って化合物 1 - 4 - D (16 g、収率 82%) を製造した。

【 0 1 9 3 】

10

20

30

40

50

(段階6：化合物1-4の製造)

化合物1-4-D (20 g、26 mmol) とプロモベンゼン-d₅ (5 g、31 mmol) を用いて1-1-Aの製造例と同様に実験を行って化合物1-4 (13 g、収率70%) を製造した。

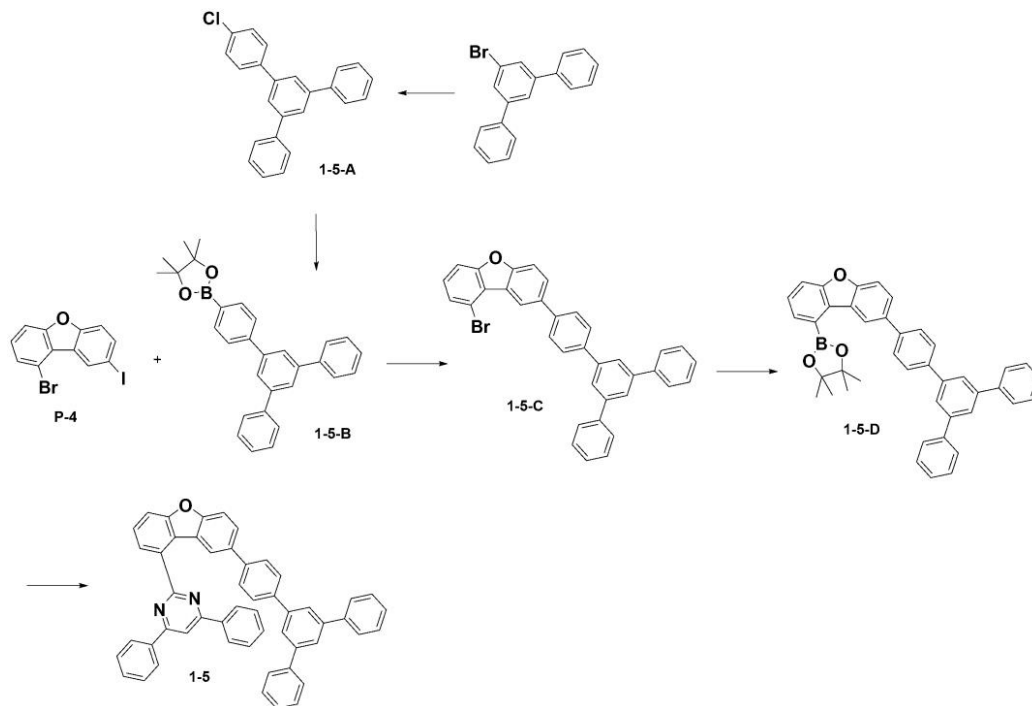
【0194】

MS: $[M + H]^+ = 726$

【0195】

実施例1-5：化合物1-5の製造

【化26】



【0196】

(段階1：化合物1-5-Aの製造)

5'-ブromo-1,1':3',1''-ターフェニル (20 g、65 mmol) と (4-クロロフェニル) ボロン酸 (12.1 g、78 mmol) を用いて化合物1-1-Aの製造例と同様の方法で化合物1-5-A (19 g、収率86%) を製造した。

【0197】

(段階2：化合物1-5-Bの製造)

化合物1-5-A (20 g、59 mmol) を用いて化合物1-1-Bの製造例と同様の方法で化合物1-5-B (21 g、収率81%) を製造した。

【0198】

(段階3：化合物1-5-Cの製造)

化合物1-5-B (20 g、46 mmol) と中間体P-4 (17 g、46 mmol) を用いて化合物1-1-Aの製造例と同様の方法で化合物1-5-C (19.3 g、収率76%) を製造した。

【0199】

(段階4：化合物1-5-Dの製造)

化合物1-5-C (15 g、27 mmol) を用いて化合物1-1-Bの製造例と同様の方法で化合物1-5-D (11.5 g、収率80%) を製造した。

【0200】

(段階5：化合物1-5の製造)

化合物1-5-D (12 g、20 mmol) と2-クロロ-4,6-ジフェニルピリミジン (5.7 g、20 mmol) を用いて化合物1-1の製造例と同様の方法で化合物1

10

20

30

40

50

- 5 (8 . 2 g、収率 7 7 %) を製造した。

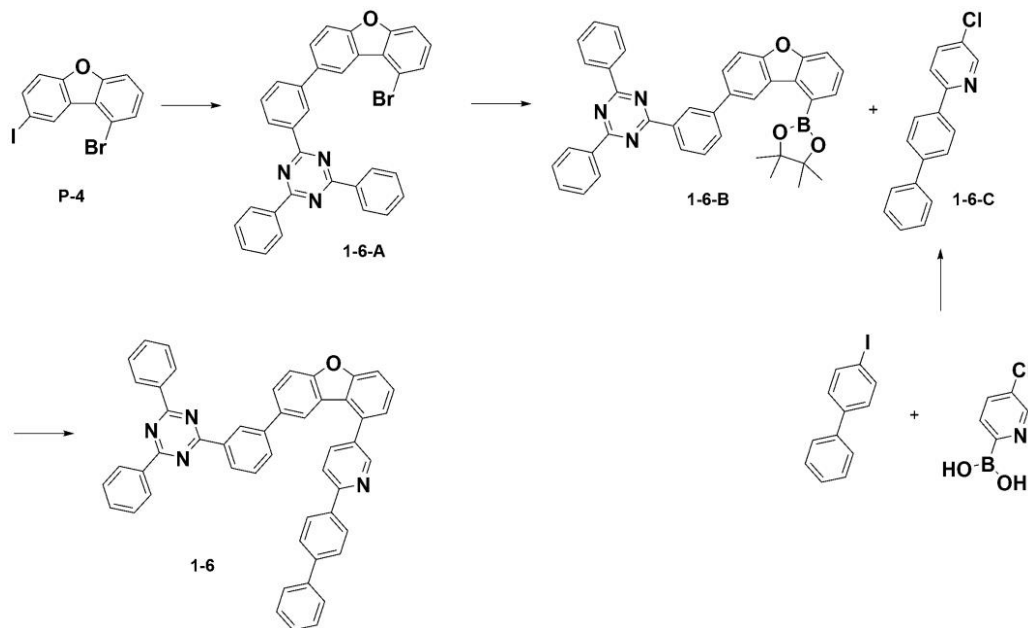
【 0 2 0 1 】

MS : $[M + H]^+ = 703$

【 0 2 0 2 】

実施例 1 - 6 : 化合物 1 - 6 の製造

【 化 2 7 】



【 0 2 0 3 】

(段階 1 : 化合物 1 - 6 - A の製造)

中間体 P - 4 (2 5 g、6 7 m m o l) と 2 , 4 - ジフェニル - 6 - (3 - (4 , 4 , 5 , 5 - テトラフェニル - 1 , 3 , 2 - ジオキサボラン - 2 - イル) フェニル - 1 , 3 , 5 - トリアジン (2 9 . 2 g、6 7 m m o l) を用いて化合物 1 - 1 - A の製造例と同様の方法で化合物 1 - 6 - A (2 6 . 2 g、収率 8 2 %) を製造した。

【 0 2 0 4 】

(段階 2 : 化合物 1 - 6 - B の製造)

化合物 1 - 6 - A (1 7 g、3 1 m m o l) を用いて化合物 1 - 1 - B の製造例と同様に実験を行って化合物 1 - 6 - B (1 3 . 0 g、収率 8 0 %) を製造した。

【 0 2 0 5 】

(段階 3 : 化合物 1 - 6 - C の製造)

化合物 4 - ヨード - 1 , 1' - ビフェニル (2 0 g、7 1 m m o l) と (5 - クロロピリジン - 2 - イル) ボロン酸を用いて化合物 1 - 1 - A の製造例と同様に実験を行って化合物 1 - 6 - C (1 3 . 2 g、収率 7 0 %) を製造した。

【 0 2 0 6 】

(段階 4 : 化合物 1 - 6 の製造)

化合物 1 - 6 - B (2 3 g、3 8 m m o l) と化合物 1 - 6 - C (1 0 . 2 g、3 8 m m o l) を 1 , 4 - ジオキサン (1 5 0 m L) に投入し、ポタシウムホスフェート (2 4 g、1 1 5 m m o l) と水 (4 0 m L) を追加で投入した。

【 0 2 0 7 】

還流攪拌状態でジベンジリデンアセトンパラジウム 0 . 7 g (1 . 2 m m o l) とトリシクロヘキシルホスフィン 0 . 7 g (1 . 2 m m o l) を添加し、1 2 時間還流攪拌した。

【 0 2 0 8 】

反応が終わった後、混合物を室温に冷却して水層を分離し、減圧下で濃縮した後、残留物にクロロホルムを入れて溶かした後、水で洗浄して有機層を分離した。

【 0 2 0 9 】

分離した有機層に無水硫酸マグネシウム (M a g n e s i u m s u l f a t e) で乾燥してろ過した。還流下で濃縮しながら酢酸エチルを投入する方法で再結晶して化合物 1 - 6 (1 8 . 3 g 、収率 6 8 %) を製造した。

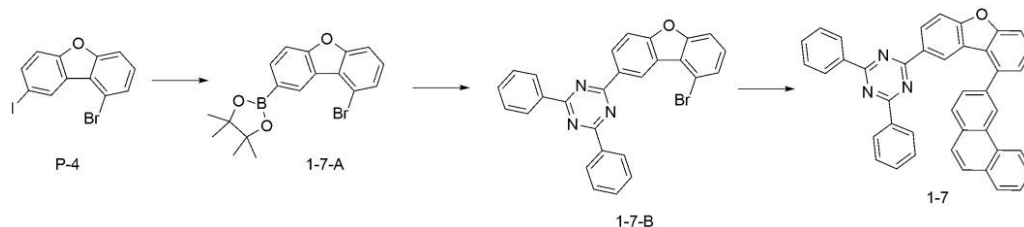
【 0 2 1 0 】

M S : [M + H] ⁺ = 7 0 5

【 0 2 1 1 】

実施例 1 - 7 : 化合物 1 - 7 の製造

【 化 2 8 】



10

【 0 2 1 2 】

(段階 1 : 化合物 1 - 7 - A の製造)

化合物 P - 4 (1 5 g 、 4 0 m m o l) を用いて化合物 1 - 1 - B の製造例と同様に実験を行って化合物 1 - 7 - A (1 1 . 6 g 、収率 7 7 %) を製造した。

【 0 2 1 3 】

(段階 2 : 化合物 1 - 7 - B の製造)

化合物 1 - 7 - A (1 1 g 、 2 3 m m o l) と 2 - クロロ - 4 , 6 - ジフェニル - 1 , 3 , 5 - トリアジン (6 . 2 g 、 2 3 m m o l) を用いて化合物 1 - 1 の製造例と同様の方法で化合物 1 - 7 - B (9 . 0 g 、収率 8 2 %) を製造した。

20

【 0 2 1 4 】

(段階 3 : 化合物 1 - 7 の製造)

化合物 1 - 7 - B (9 . 0 g 、 1 8 . 8 m m o l) とフェナントレン - 3 - イルボロン酸 (4 . 2 g 、 1 9 m m o l) を用いて化合物 1 - 1 の製造例と同様の方法で化合物 1 - 7 (8 . 4 g 、収率 7 7 %) を製造した。

【 0 2 1 5 】

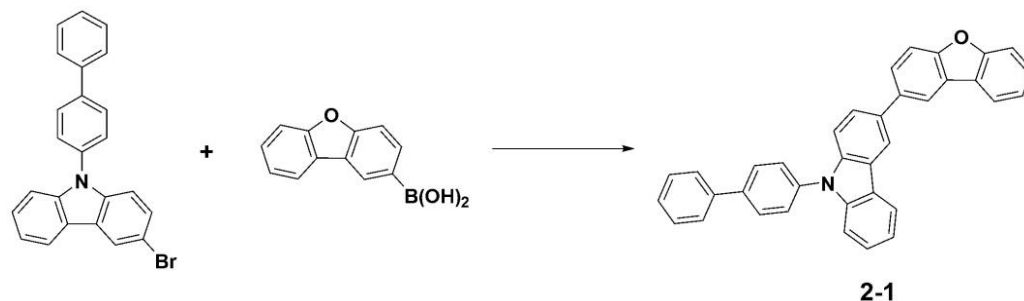
M S : [M + H] ⁺ = 5 7 6

30

【 0 2 1 6 】

実施例 2 - 1 : 化合物 2 - 1 の製造

【 化 2 9 】



40

【 0 2 1 7 】

化合物 9 - (1 , 1' - ビフェニル) - 4 - イル) - 3 - プロモ - 9 H - カルバゾール (1 5 g 、 2 7 m m o l) と化合物ジベンゾ[b , d]フラン - 2 イルボロン酸 (5 . 7 g 、 2 7 m m o l) をテトラヒドロフラン (8 0 m L) に分散させた後、 2 M 炭酸カリウム水溶液 (a q . K ₂ C O ₃) (4 0 m L 、 8 1 m m o l) を添加し、テトラキストリフェニルホスフィノパラジウム[P d (P P h ₃) ₄] (0 . 3 g 、 1 m o l %) を入れた後、 6 時間攪拌還流した。

【 0 2 1 8 】

50

常温に温度を下げて水層を除去して減圧濃縮し、酢酸エチルを投入して1時間還流下で攪拌して、室温に冷却した後、固体をろ過した。

【0219】

得られた固体にクロロホルムを入れて還流下で溶かし、酢酸エチルを追加して再結晶で化合物2-1(11.5g、収率73%)を製造した。

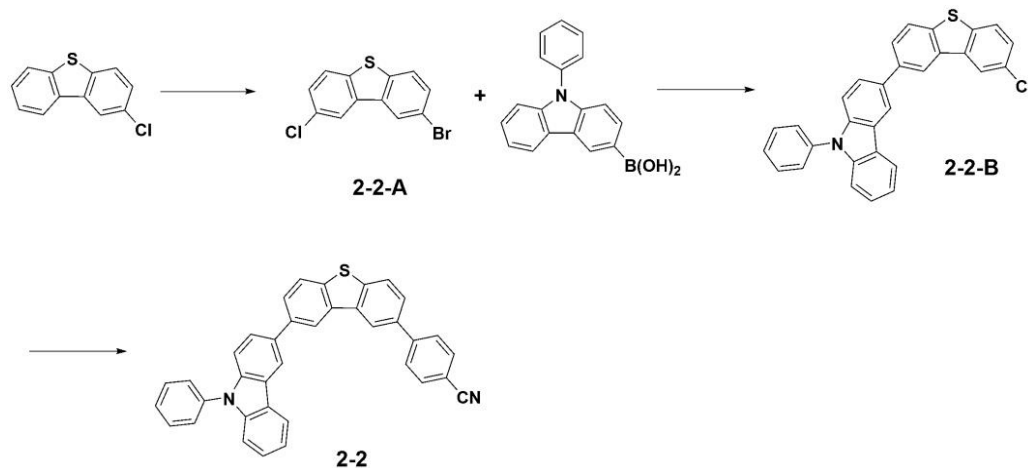
【0220】

MS: $[M + H]^+ = 486$

【0221】

実施例2-2: 化合物2-2の製造

【化30】



【0222】

(段階1: 化合物2-2-Aの製造)

2-クロロジベンゾ[b,d]チオフェン(22g、101mmol)をクロロホルム50mLに溶かし、冷却して0℃に温度を下げて、Br₂溶液(5.5mL、108mmol)をゆっくり滴加した。

【0223】

3時間攪拌して反応が終わった後、炭酸ナトリウム水溶液を投入して攪拌した。

【0224】

水層を分離し有機層を集めて無水硫酸マグネシウムで乾燥しろ過して減圧濃縮した。

【0225】

濃縮した化合物をカラム精製を通して分離して化合物2-2-A(10g、収率49%)を得た。

【0226】

(段階2: 化合物2-2-Bの製造)

化合物2-2-A(15g、50mmol)と(9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル)ボロン酸(15.2g、53mmol)をテトラヒドロフラン(200mL)に分散させた後、2M炭酸カリウム水溶液(aq. K₂CO₃)(75mL、151mmol)を添加し、テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム[Pd(PPh₃)₄](0.6g、1mol%)を入れた後、6時間攪拌還流した。

【0227】

常温に温度を下げて水層を除去して減圧濃縮し、酢酸エチルを投入して3時間攪拌して析出された固体をろ過した。

【0228】

得られた固体をクロロホルムとエタノール混合液で追加攪拌後、ろ過して化合物2-2-B(18.8g、収率81%)を製造した。

【0229】

(段階3: 化合物2-2の製造)

10

20

30

40

50

化合物 2 - 2 - B (17 g、37 mmol) と (4 - シアノフェニル) ボロン酸 (5.7 g、38.8 mmol) をテトラヒドロフラン (160 mL) に分散させた後、2 M 炭酸カリウム水溶液 (aq. K_2CO_3) (65 mL、111 mmol) を添加し、テトラキストリフェニルホスフィノパラジウム [$Pd(PPh_3)_4$] (0.4 g、1 mol %) を入れた後、6 時間攪拌還流した。

【 0230 】

常温に温度を下げて水層を除去して減圧濃縮し、濃縮された化合物をクロロホルム 300 mL に溶かして水で洗浄して分離し、有機層を無水硫酸マグネシウムで処理してろ過した。

【 0231 】

濾液を加温して還流下で半分程度除去し、酢酸エチル 100 mL を追加して再結晶を通して化合物 2 - 2 (14.2 g、収率 73 %) を製造した。

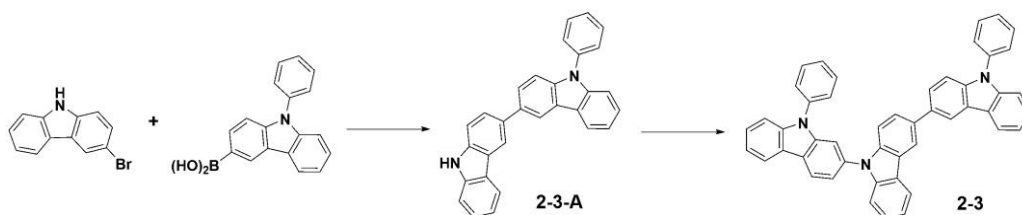
【 0232 】

MS : $[M + H]^+ = 527$

【 0233 】

実施例 2 - 3 : 化合物 2 - 3 の製造

【 化 31 】



【 0234 】

(段階 1 : 化合物 2 - 3 - A の製造)

3 - プロモ - 9 H - カルバゾール (15 g、61 mmol) と (9 - フェニル - 9 H - カルバゾール - 3 - イル) ボロン酸 (18.4 g、64 mmol) を用いて化合物 2 - 1 の製造例と同様に化合物 2 - 3 - A (20.2 g、収率 81 %) を製造した

【 0235 】

(段階 2 : 化合物 2 - 3 の製造)

化合物 2 - 3 - A (12 g、30 mmol) と 2 - プロモ - 9 - フェニル - 9 H - カルバゾール (9.5 g、30 mmol) をトルエン 150 mL に投入して溶かし、ナトリウム tert - ブトキシド (5.6 g、59 mmol) を添加して加温した。

【 0236 】

ビス (トリ - tert - ブチルホスフィン) パラジウム (0.15 g、1 mol %) を投入して 12 時間還流攪拌した。

【 0237 】

反応が終わった後、常温に温度を下げて生成された固体をろ過した。薄い黄色の固体をクロロホルムに溶かし、水で 2 回洗浄後に有機層を分離して、無水硫酸マグネシウムと酸性白土を入れて攪拌した後、ろ過して減圧蒸留した。

【 0238 】

クロロホルムと酢酸エチルを利用して再結晶して白色の固体化合物である化合物 2 - 3 (14.5 g、収率 76 %) を得た。

【 0239 】

MS : $[M + H]^+ = 650$

【 0240 】

実施例 2 - 4 : 化合物 2 - 4 の製造

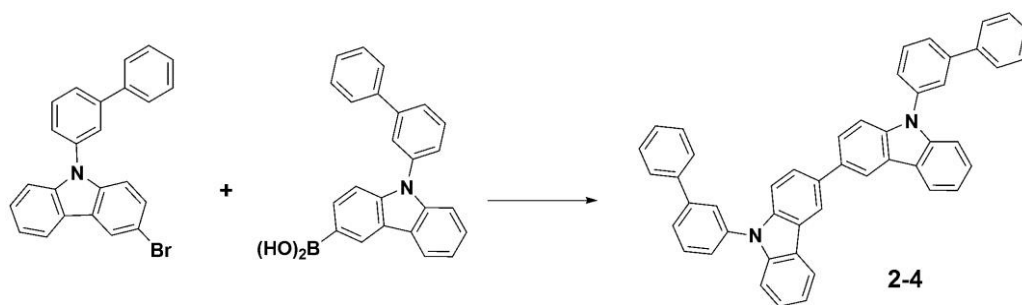
10

20

30

40

【化 3 2】



【 0 2 4 1】

9 - ([1, 1' - ビフェニル] - 3 - イル) - 3 - プロモ - 9 H - カルバゾール (16 g、40 mmol) と 9 - ([1, 1' - ビフェニル] - 3 - イル) - 9 H - カルバゾール - 3 - イル) ボロン酸 (14.6 g、40 mmol) を用いて化合物 2 - 1 の製造例と同様の方法で化合物 2 - 4 (19.7 g、収率 77%) を製造した。

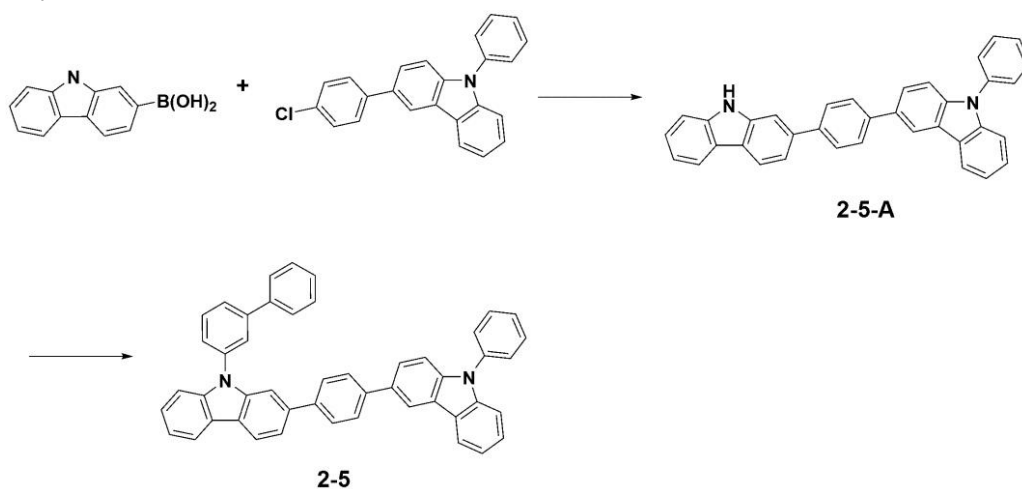
【 0 2 4 2】

MS : $[M + H]^+ = 637$

【 0 2 4 3】

実施例 2 - 5 : 化合物 2 - 5 の製造

【化 3 3】



【 0 2 4 4】

(段階 1 : 化合物 2 - 5 - A の製造)

(9 H - カルバゾール - 2 - イル) ボロン酸 (20 g、95 mmol) と 3 - (4 - クロロフェニル) - 9 - フェニル - 9 H - カルバゾール (33.5 g、95 mmol) を用いて化合物 1 - 6 の製造例と同様の方法で化合物 2 - 5 - A (38 g、収率 83%) を製造した。

【 0 2 4 5】

(段階 2 : 化合物 2 - 5 の製造)

化合物 2 - 5 - A (15 g、31 mmol) と 3 - プロモ - 1, 1' - ビフェニル (7.2 g、31 mmol) を用いて化合物 2 - 3 の製造例と同様の方法で化合物 2 - 5 (15 g、収率 76%) を製造した。

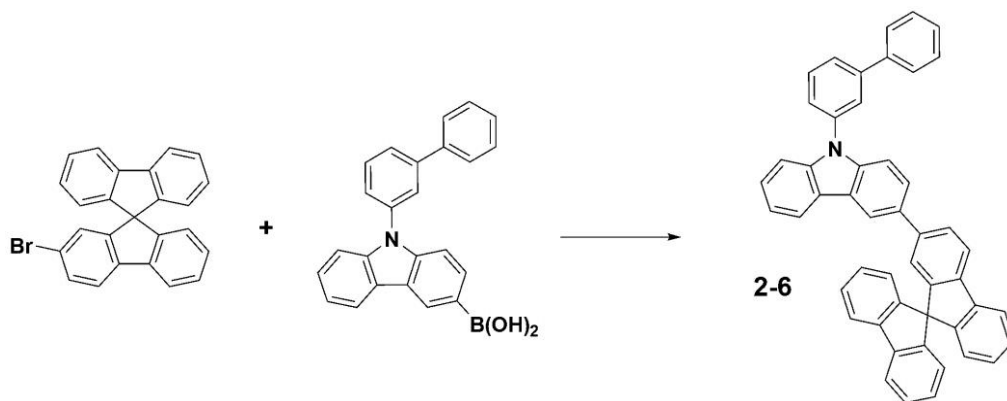
【 0 2 4 6】

MS : $[M + H]^+ = 637$

【 0 2 4 7】

実施例 2 - 6 : 化合物 2 - 6 の製造

【化 3 4】



10

【 0 2 4 8 】

2 - プロモ - 9 , 9 ' - スピロピ[フルオレン] (1 1 g 、 2 9 m m o l) と 9 - ([1 , 1 ' - ビフェニル] - 3 - イル) - 9 H - カルバゾール - 3 - イル) ボロン酸 (1 0 . 4 g 、 2 9 m m o l) を用いて化合物 2 - 1 の製造例と同様の方法で化合物 2 - 6 (1 3 . 5 g 、 収率 7 5 %) を製造した。

【 0 2 4 9 】

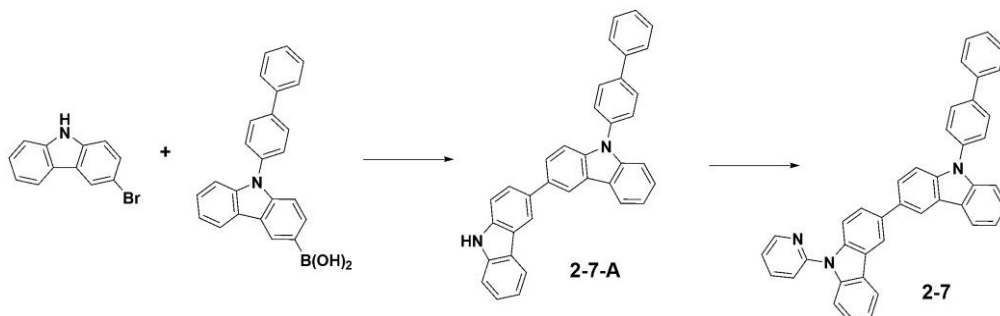
M S : [M + H] ⁺ = 6 3 4

【 0 2 5 0 】

実施例 2 - 7 : 化合物 2 - 7 の製造

20

【化 3 5】



30

【 0 2 5 1 】

(段階 1 : 化合物 2 - 7 - A の製造)

3 - プロモ - 9 H - カルバゾール (1 5 g 、 6 1 m m o l) と 9 - ([1 , 1 ' - ビフェニル] - 4 - イル) - 9 H - カルバゾール - 3 - イル) ボロン酸 (2 2 g 、 6 1 m m o l) を用いて化合物 2 - 1 の製造例と同様の方法で化合物 2 - 7 - A (2 4 g 、 収率 8 1 %) を製造した。

【 0 2 5 2 】

(段階 2 : 化合物 2 - 7 の製造)

化合物 2 - 7 - A (1 3 g 、 2 7 m m o l) と 2 - プロモピリジン (4 . 3 g 、 2 7 m m o l) を用いて化合物 2 - 3 の製造例と同様の方法で化合物 2 - 7 (8 . 5 g 、 収率 6 5 %) を製造した。

40

【 0 2 5 3 】

M S : [M + H] ⁺ = 5 6 2

【 0 2 5 4 】

実験例 1

I T O (i n d i u m t i n o x i d e) が 1 、 3 0 0 の厚さで薄膜コーティングされたガラス基板を洗剤を溶かした蒸留水に入れて超音波で洗浄した。

【 0 2 5 5 】

この時、洗剤としてはフィッシャー社 (F i s c h e r C o .) の製品を用い、蒸溜

50

水としてはミリポア社 (Millipore Co.) の製品のフィルター (Filter) によって2次ろ過した蒸留水を用いた。

【0256】

I T Oを30分間洗浄した後、蒸留水で2回繰り返し超音波洗浄を10分間進行した。

【0257】

蒸留水の洗浄が終わった後、イソプロピルアルコール、アセトン、メタノールの溶剤で超音波洗浄をして乾燥させた後、プラズマ洗浄機に輸送させた。

【0258】

また、酸素プラズマを用いて前記基板を5分間洗浄した後、真空蒸着器に基板を輸送させた。

10

【0259】

前記のように準備されたI T O透明電極の上に、下記H I - 1化合物を50 の厚さで熱真空蒸着して、正孔注入層を形成した。

【0260】

前記正孔注入層上に、下記H T - 1化合物を250 の厚さで熱真空蒸着して正孔輸送層を形成し、H T - 1蒸着膜上に下記H T - 2化合物を50 の厚さで真空蒸着して電子阻止層を形成した。

【0261】

次に、前記H T - 2蒸着膜上に上記で製造した化合物1 - 1と上記で製造した化合物2 - 4を下記表1の重量比(200 : 200)で同時蒸発によって蒸着し、この時、下記表1の重量比(12 % ; 化合物1 - 1、化合物2 - 4、およびG D - 1総重量対比)で燐光ドーパントである下記G D - 1化合物を共蒸着して下記表1の厚さ(400)で発光層を形成した。

20

【0262】

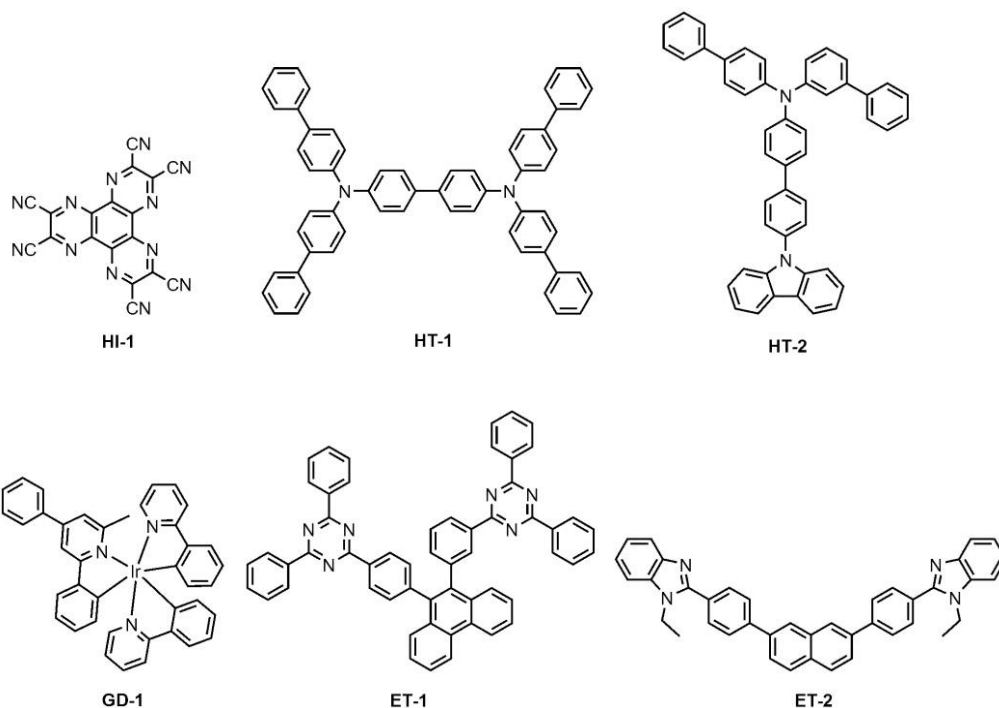
前記発光層上に下記E T - 1化合物を250 の厚さで真空蒸着し、追加で、下記E T - 2化合物を100 の厚さで2 %重量比のL iと共蒸着して電子輸送層および電子注入層を形成した。

【0263】

前記電子注入層上に1000 の厚さでアルミニウムを蒸着して陰極を形成した。

【化36】

30



40

【0264】

50

前記過程において、有機物の蒸着速度は $0.4 \sim 0.7$ / sec を維持し、アルミニウムは 2 / sec の蒸着速度を維持し、蒸着時の真空度は $1 \times 10^{-7} \sim 5 \times 10^{-8}$ torr を維持した。

【0265】

実験例 2 から 9

前記実験例 1 と同様の方法で製造するが、発光層形成時に燐光ホスト物質およびドーパント含有量を下記表 1 のように変更したことを除いては、前記実験例 1 と同様の方法を利用して有機発光素子をそれぞれ製作した。

【0266】

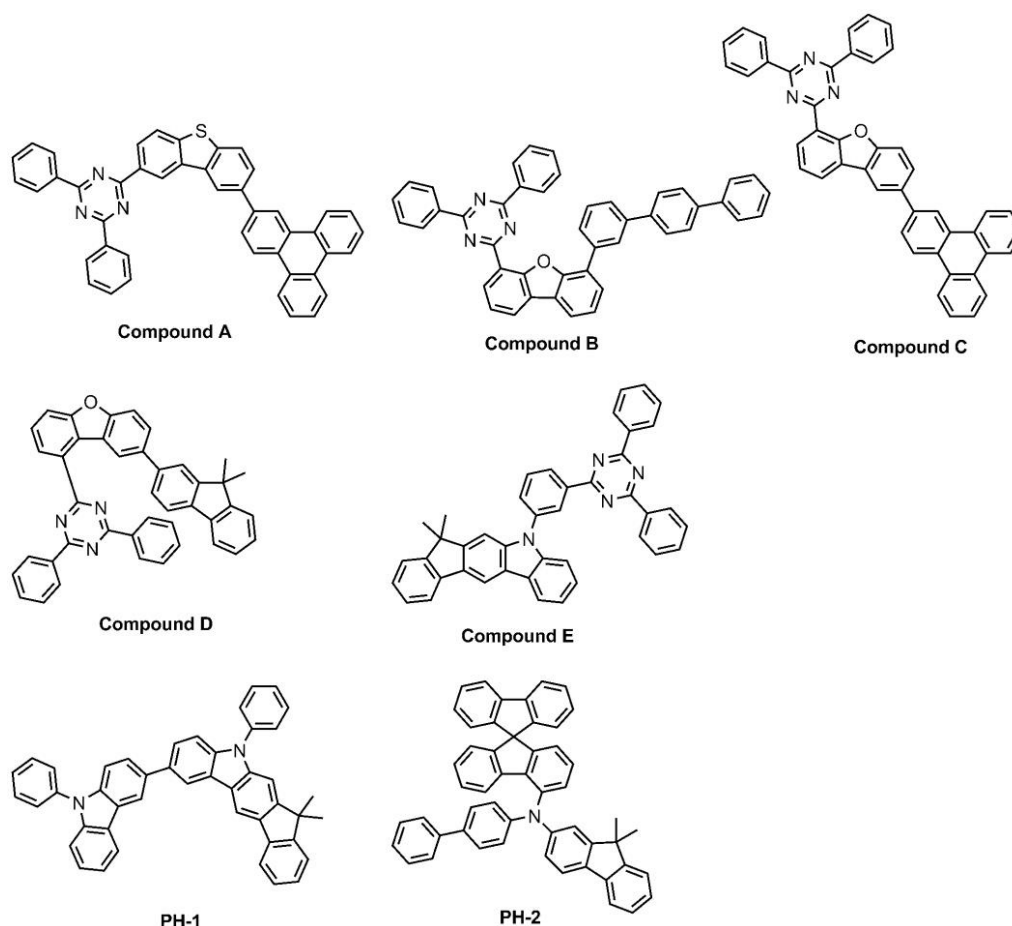
比較実験例 1 から 11

前記実験例 1 と同様の方法で製造するが、発光層形成時に燐光ホスト物質およびドーパント含有量を下記表 1 のように変更したことを除いては、前記実験例 1 と同様の方法を利用して有機発光素子をそれぞれ製作した。

【0267】

この時、使用されたホスト物質 A から E、PH-1、および PH-2 は下記の通りである。

【化 37】



【0268】

前記実験例および比較実験例で製造した有機発光素子に電流を印加して、電圧、効率、輝度、色座標および寿命を測定し、その結果を下記表 1 に示した。

【0269】

この時、T95 とは、光密度 20 mA/cm^2 での初期輝度を 100% としたとき、輝度が 95% に減少するのに要する時間を意味する。

【0270】

【表 1 - 1】

No.	(ホスト)／ドープント含有量	発光層の厚さ(Å)	電圧(V)	EQE(%)	色座標(x、y)	寿命(T95、h)
			(@10mA/cm ²)			
実験例 1	(化合物1-1:化合物2-4)/GD-1 (200:200)/12%	400	3.25	19.5	(0.35, 0.62)	141.0
実験例 2	(化合物1-1:化合物2-3)/GD-1 (200:200)/12%	400	3.35	19.5	(0.35, 0.61)	126.4
実験例 3	(化合物1-2:化合物2-5)/GD-1 (200:200)/12%	400	3.44	19.4	(0.35, 0.61)	99.5
実験例 4	(化合物1-2:化合物2-7)/GD-1 (200:200)/12%	400	3.53	19.9	(0.34, 0.62)	124.8
実験例 5	(化合物1-3:化合物2-4)/GD-1 (200:200)/6%	400	3.14	18.8	(0.34, 0.62)	98.5
実験例 6	(化合物1-4:化合物2-4)/GD-1 (200:200)/6%	400	3.25	19.2	(0.35, 0.61)	72.7
実験例 7	(化合物1-5:化合物2-4)/GD-1 (200:200)/6%	400	3.41	19.5	(0.34, 0.62)	64.0
実験例 8	(化合物1-6:化合物2-4)/GD-1 (120:280)/10%	400	3.08	21.1	(0.33, 0.63)	67.2
実験例 9	(化合物1-7:化合物2-3)/GD-1 (200:200)/10%	400	3.22	19.7	(0.32, 0.63)	66.1
比較実験例1	(化合物1-1)/GD-1	400	3.19	17.3	(0.31, 0.63)	37.5

10

20

30

40

【表 1 - 2】

	(400)/10%					
比較実験 例2	(化合物1-1:PH-1)/GD-1 (150:150)/15%	300	3.33	19.1	(0.32, 0.63)	55.1
比較実験 例3	(化合物1-1:PH-2)/GD-1 (200:200)/12%	400	3.25	20.7	(0.34, 0.62)	45.3
比較実験 例4	(化合物A)/GD-1 (300)/10%	300	3.61	13.1	(0.38, 0.59)	12.1
比較実験 例5	(化合物B:PH-1)/GD-1 (150:150)/15%	300	3.43	19.0	(0.32, 0.63)	32.8
比較実験 例6	(化合物C:化合物 2-4)/GD-1 (150:150)/10%	300	3.33	18.5	(0.32, 0.63)	41.6
比較実験 例7	(化合物D)/D-1 (400)/12%	400	3.66	16.4	(0.33, 0.63)	30.2
比較実験 例8	(化合物D:化合物 2-4)/GD-1 (120:280)/12%	400	3.80	14.4	(0.32, 0.63)	43.1
比較実験 例9	(化合物E)/GD-1 (400)/12%	400	4.08	19.3	(0.33, 0.63)	14.9
比較実験 例10	(化合物E:PH-2)/GD-1 (200:200)/12%	400	4.23	20.3	(0.35, 0.62)	21.5
比較実験 例11	(化合物E:化合物 2-5)/GD-1 (200:200)/12%	400	3.54	20.0	(0.34, 0.62)	25.0

【0271】

実験例10

ITO(indium tin oxide)が1、300の厚さで薄膜コーティングされたガラス基板を洗剤を溶かした蒸留水に入れて超音波で洗浄した。

【0272】

この時、洗剤としてはフィッシャー社(Fischer Co.)の製品を用い、蒸留水としてはミリポア社(Millipore Co.)の製品のフィルタ(Filter)で2次ろ過した蒸留水を用いた。

【0273】

10

20

30

40

50

I T Oを30分間洗浄した後、蒸留水で2回繰り返し超音波洗浄を10分間進行した。

【0274】

蒸留水の洗浄が終わった後、イソプロピルアルコール、アセトン、メタノールの溶剤で超音波洗浄をして乾燥させた後、プラズマ洗浄機に輸送させた。

【0275】

また、酸素プラズマを用いて前記基板を5分間洗浄した後、真空蒸着器に基板を輸送させた。

【0276】

前記のように準備されたI T O透明電極の上に下記H I - 1化合物を500 の厚さで熱真空蒸着して正孔注入層を形成した。

【0277】

前記正孔注入層上に下記H T - 3化合物を800 の厚さで熱真空蒸着し、順次下記H T - 4化合物を500 の厚さで真空蒸着して正孔輸送層を形成した。

【0278】

次に、前記H T - 3蒸着膜上に上記で製造した化合物1 - 1と上記で製造した化合物2 - 1を下記表1の重量比(175 : 175)で同時蒸発によって蒸着し、この時、下記表2の重量比(5% ; 化合物1 - 1、化合物2 - 1、およびG D - 2総重量対比)で燐光ドーパントである下記G D - 2化合物を共蒸着して下記表2の厚さ(350)で発光層を形成した。

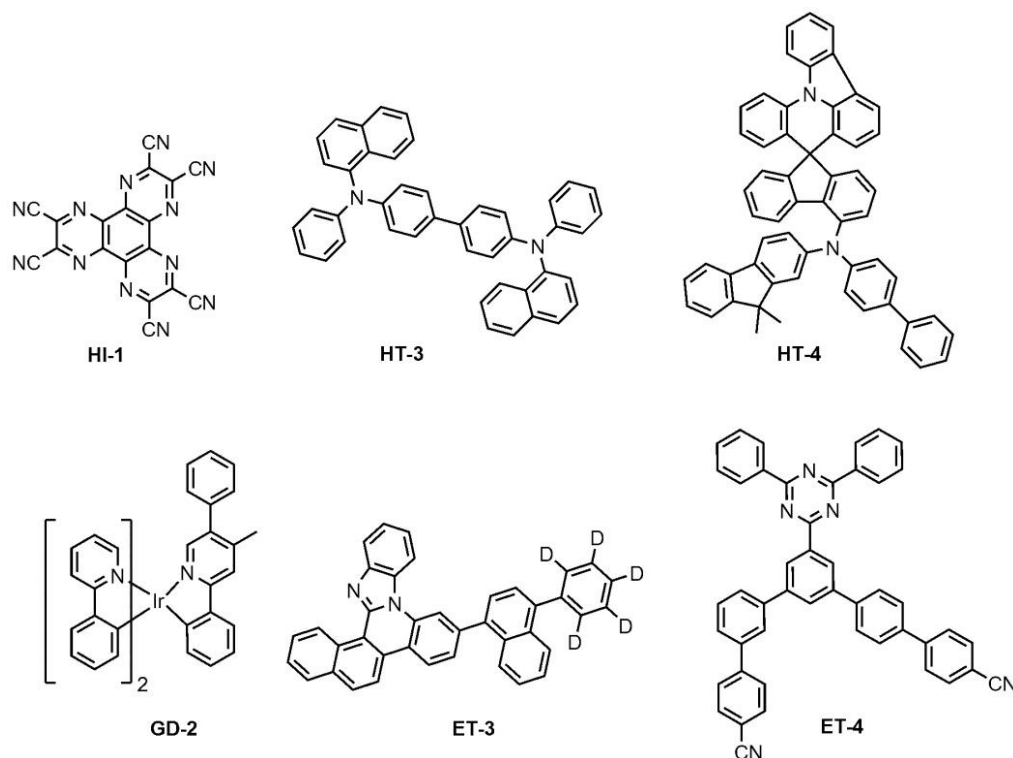
【0279】

前記発光層上に下記E T - 3化合物を50 の厚さで真空蒸着して正孔阻止層を形成し、前記正孔阻止層の上に下記E T - 4化合物およびL i Qを1 : 1の重量比で真空蒸着して250 の電子輸送層を形成した。

【0280】

前記電子輸送層上に順次10 の厚さのフッ化リチウム(L i F)を蒸着し、次に1000 の厚さでアルミニウムを蒸着して陰極を形成した。

【化38】



【0281】

前記過程において、有機物の蒸着速度は0.4 ~ 0.7 / secを維持し、陰極のフッ化リチウムは0.3 / sec、アルミニウムは2 / secの蒸着速度を維持し、蒸

着時の真空度は $1 \times 10^{-7} \sim 5 \times 10^{-8}$ torr を維持した。

【 0 2 8 2 】

実験例 1 1 から 1 8

前記実験例 1 0 と同様の方法で製造するが、発光層形成時に燐光ホスト物質およびドーパント含有量を下記表 2 のように変更したことを除いては、前記実験例 1 0 と同様の方法を利用して有機発光素子をそれぞれ製作した。

【 0 2 8 3 】

比較実験例 1 2 から 1 6

前記実験例 1 0 と同様の方法で製造するが、発光層形成時に燐光ホスト物質およびドーパント含有量を下記表 2 のように変更したことを除いては、前記実験例 1 0 と同様の方法を利用して有機発光素子をそれぞれ製作した。

【 0 2 8 4 】

この時、使用されたホスト物質 A、D および E は、前記比較実験例 1 から 1 1 で使用したものとそれぞれ同一である。

【 0 2 8 5 】

【表 2 - 1】

No.	(ホスト) / ドーパント含有量	発光層の厚さ (Å)	電圧 (V)	EQE (%)	色座標 (x、y)	寿命 (T95、h)
			(@10mA/cm ²)			
実験例 10	(化合物1-1:化合物2-1)/GD-2 (175:175)/5%	350	4.15	17.3	(0.32, 0.63)	189.5
実験例 11	(化合物1-1:化合物2-2)/GD-2 (175:175)/5%	350	4.20	17.5	(0.32, 0.63)	180.0
実験例 12	(化合物1-1:化合物2-6)/GD-2 (140:210)/6%	350	4.22	18.0	(0.33, 0.63)	140.9
実験例 13	(化合物1-2:化合物2-2)/GD-2 (175:175)/5%	350	3.93	18.1	(0.32, 0.64)	123.5

【表 2 - 2】

実験例 14	(化合物1-2:化合物 2-1)/GD-2 (200:200)/5%	400	4.11	18.3	(0.35, 0.61)	158.1
実験例 15	(化合物1-3:化合物 2-1)/GD-2 (175:175)/5%	350	4.06	18.4	(0.33, 0.64)	130.8
実験例 16	(化合物1-4:化合物 2-2)/GD-2 (200:200)/5%	400	4.20	17.6	(0.34, 0.62)	133.7
実験例 17	(化合物1-5:化合物 2-2)/GD-2 (140:210)/5%	350	4.26	17.6	(0.33, 0.62)	100.3
実験例 18	(化合物1-6:化合物 2-6)/GD-2 (175:175)/5%	350	4.28	18.2	(0.31, 0.64)	133.0
比較実 験例 12	(化合物E:化合物2-4)/GD-2 (175:175)/5%	350	4.17	16.9	(0.31, 0.64)	61.8
比較実 験例 13	(化合物D:化合物2-1)/GD-2 (200:200)/5%	400	4.35	16.6	(0.35, 0.61)	65.0
比較実 験例 14	(化合物1-1)/GD-2 (350)/5%	350	3.78	15.5	(0.35, 0.61)	34.9
比較実 験例 15	(化合物A)/GD-2 (350)/6%	350	3.97	14.1	(0.35, 0.61)	22.3
比較実 験例 16	(化合物A:化合物2-2)/GD-2 (140:210)/6%	350	4.51	18.2	(0.34, 0.62)	47.2

【0286】

実験例19

前記実施例で製造した化合物のHOMOおよび PL_{max} （最大発光波長）を下記の方法で測定した。

【0287】

10

20

30

40

50

1) HOMOレベル測定 HOMOレベルは、AC-3装置(Rinken Keiki社製、AC-3)を通じて測定した。

【0288】

具体的に、実験例1のように有機発光素子の製作時に使用するITO基板上に測定しようとする化合物を1000の厚さで真空蒸着したフィルムを用い、10nWのUV intensityでフィルムに照射して発生するPhotonのQuantum yieldを測定し、その結果を下記表3に示した。

【0289】

2) PL_{max}値の測定 JASCO社のspectrofluorometerのモデルFP-8600を用いて測定した。

10

【0290】

具体的に、測定しようとする化合物をbare Glassの上に1000の厚さで真空蒸着してフィルムを準備し、このフィルムの上に特定波長のUVを照射して放出される波長をスキャンした。

【0291】

この時、得られたスペクトルで最もintensityが高い位置をPL_{max}と決めて、その結果を下記表3に示した。

【0292】

【表3】

第1ホスト	HOMO (eV)	PL _{max} (nm)	第2ホスト	HOMO (eV)	PL _{max} (nm)
化合物1-1	5.99	447	化合物2-1	5.68	397
化合物1-2	5.95	443	化合物2-2	5.61	422
化合物1-3	5.93	445	化合物2-3	5.55	415
化合物1-4	5.98	441	化合物2-4	5.46	414
化合物1-5	6.02	420	化合物2-5	5.65	412
化合物1-6	6.30	407	化合物2-6	5.70	371
			化合物2-7	5.58	432

20

30

【0293】

また、前記第1ホストと第2ホストを1:1重量比で混合した混合物に対して前記と同様な方法でPL_{max}値を測定し、その結果を図3および図4に示した。

【符号の説明】

【0294】

40

- 1 基板
- 2 陽極
- 3 発光層
- 4 陰極
- 5 正孔注入層
- 6 正孔輸送層
- 7 発光層
- 8 電子輸送層

【図 1】

【図 1】

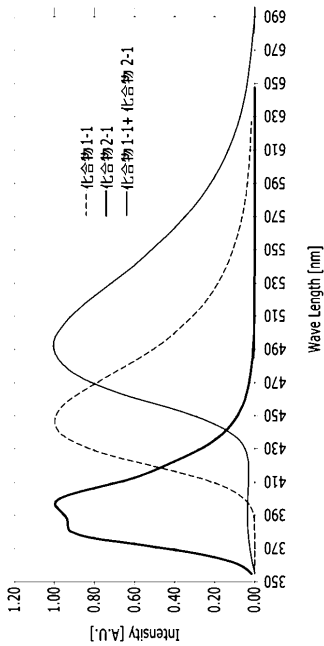
4
3
2
1

【図 2】

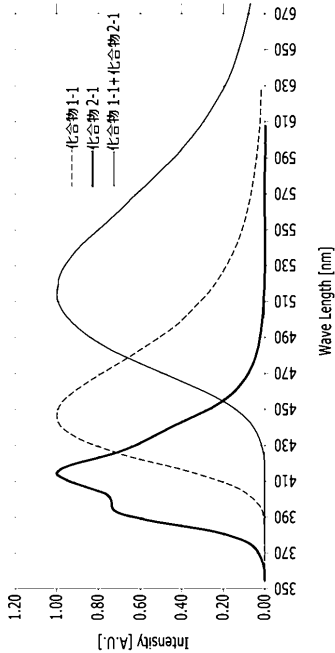
【図 2】

4
8
7
6
5
2
1

【図 3】



【図 4】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I	
C 0 7 D 401/14	(2006.01)	C 0 7 D 401/14	
C 0 7 D 209/86	(2006.01)	C 0 7 D 209/86	
C 0 9 K 11/06	(2006.01)	C 0 9 K 11/06	6 9 0

早期審査対象出願

(72)発明者 リー、ドン ホーン
大韓民国・ソウル・ヨンドゥンボ - グ・ヨイ - デロ・１２８ エルジー・ケム・リミテッド内

(72)発明者 パク、テ ユーン
大韓民国・ソウル・ヨンドゥンボ - グ・ヨイ - デロ・１２８ エルジー・ケム・リミテッド内

(72)発明者 マン、ジョン ウク
大韓民国・ソウル・ヨンドゥンボ - グ・ヨイ - デロ・１２８ エルジー・ケム・リミテッド内

(72)発明者 リー、ジュン ハ
大韓民国・ソウル・ヨンドゥンボ - グ・ヨイ - デロ・１２８ エルジー・ケム・リミテッド内

(72)発明者 リー、ジュ ヤン
大韓民国・ソウル・ヨンドゥンボ - グ・ヨイ - デロ・１２８ エルジー・ケム・リミテッド内

審査官 岩井 好子

(56)参考文献 特開２０１２－２２７５２４（ＪＰ，Ａ）
特開２０１６－１８４７５８（ＪＰ，Ａ）
特表２０１７－５１４８７８（ＪＰ，Ａ）
国際公開第２０１８／０１６７４２（ＷＯ，Ａ１）
特表２０１８－５３１４８０（ＪＰ，Ａ）
米国特許出願公開第２０１７／００５４０８７（ＵＳ，Ａ１）
特表２０１７－５２４７０７（ＪＰ，Ａ）
特表２０１６－５３２３０７（ＪＰ，Ａ）
特開２０１５－２１８１６５（ＪＰ，Ａ）
国際公開第２０１７／１７８３１１（ＷＯ，Ａ１）
韓国公開特許第１０－２０１５－００７７５８７（ＫＲ，Ａ）

(58)調査した分野(Int.Cl.，ＤＢ名)

H 0 1 L 5 1 / 5 0
C 0 7 D 2 0 9 / 8 6
C 0 7 D 4 0 1 / 1 4
C 0 7 D 4 0 5 / 0 4
C 0 7 D 4 0 5 / 1 0
C 0 7 D 4 0 5 / 1 4
C 0 7 D 4 0 9 / 0 4
C 0 9 K 1 1 / 0 6
CAplus / REGISTRY (STN)