

【公報種別】特許法第 17 条の 2 の規定による補正の掲載

【部門区分】第 7 部門第 2 区分

【発行日】平成 24 年 3 月 15 日 (2012.3.15)

【公開番号】特開 2010-278354 (P2010-278354A)

【公開日】平成 22 年 12 月 9 日 (2010.12.9)

【年通号数】公開・登録公報 2010-049

【出願番号】特願 2009-131194 (P2009-131194)

【国際特許分類】

H 0 1 L 51/50 (2006.01)

C 0 9 K 11/06 (2006.01)

【F I】

H 0 5 B 33/14 B

H 0 5 B 33/22 B

C 0 9 K 11/06 6 6 0

C 0 9 K 11/06 6 9 0

【手続補正書】

【提出日】平成 24 年 1 月 26 日 (2012.1.26)

【手続補正 1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

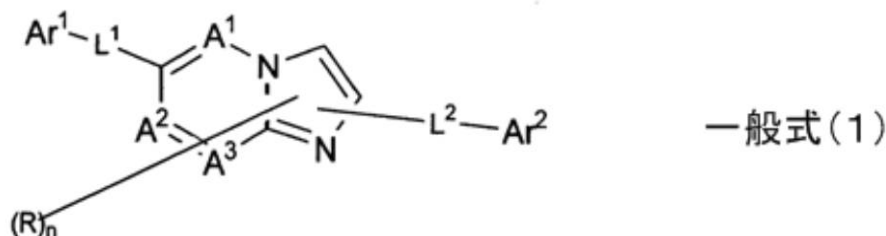
【特許請求の範囲】

【請求項 1】

陽極と陰極の間に、発光層を含む少なくとも一層の有機層を有してなり、

前記有機層における少なくとも 1 層が、電子注入材料及び電子輸送材料の少なくともいずれかとして用いられる下記一般式 (1) で表される含窒素複素環誘導体から選択される少なくとも 1 種を含有し、かつ前記有機層における少なくとも 1 層が、下記構造式 (I - 1) ~ (I - 4)、(I - 7) ~ (I - 12)、(I - 14)、及び (I - 16) ~ (I - 26) のいずれかで表される燐光発光材料を少なくとも 1 種含有することを特徴とする有機電界発光素子。

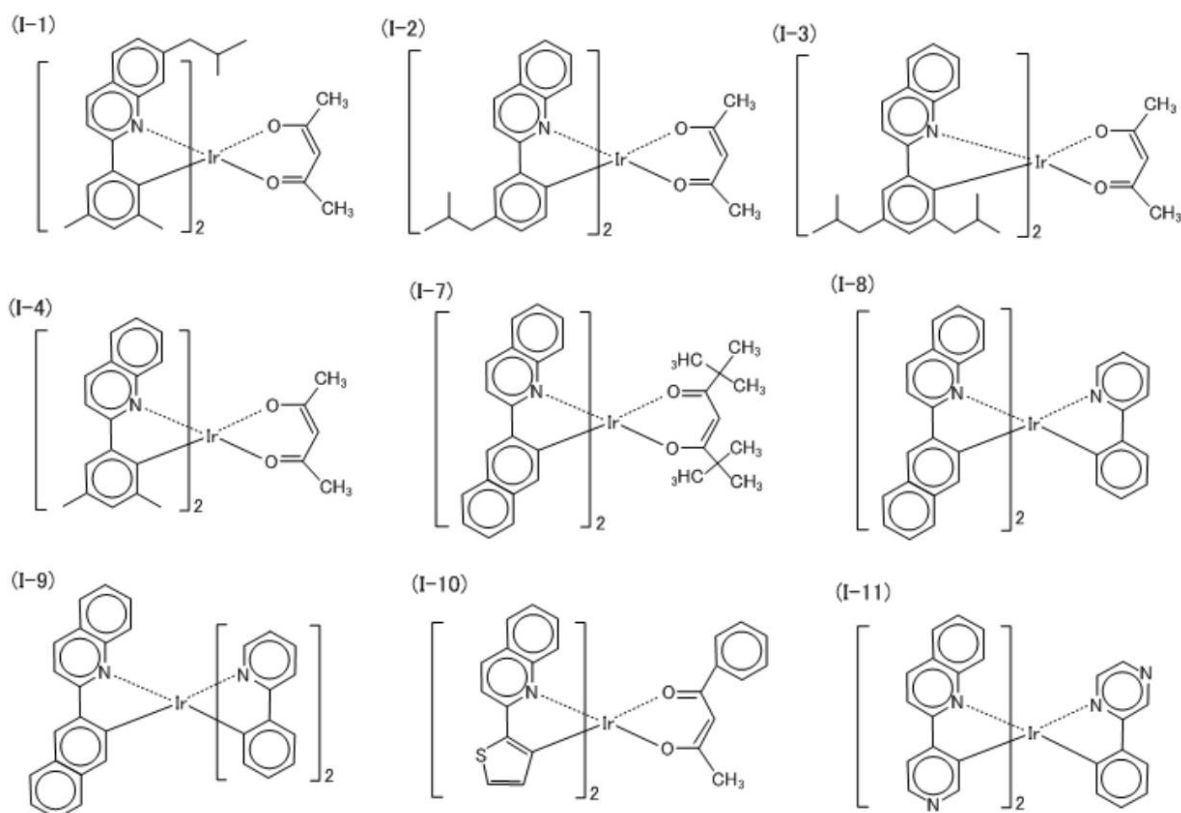
【化 1】



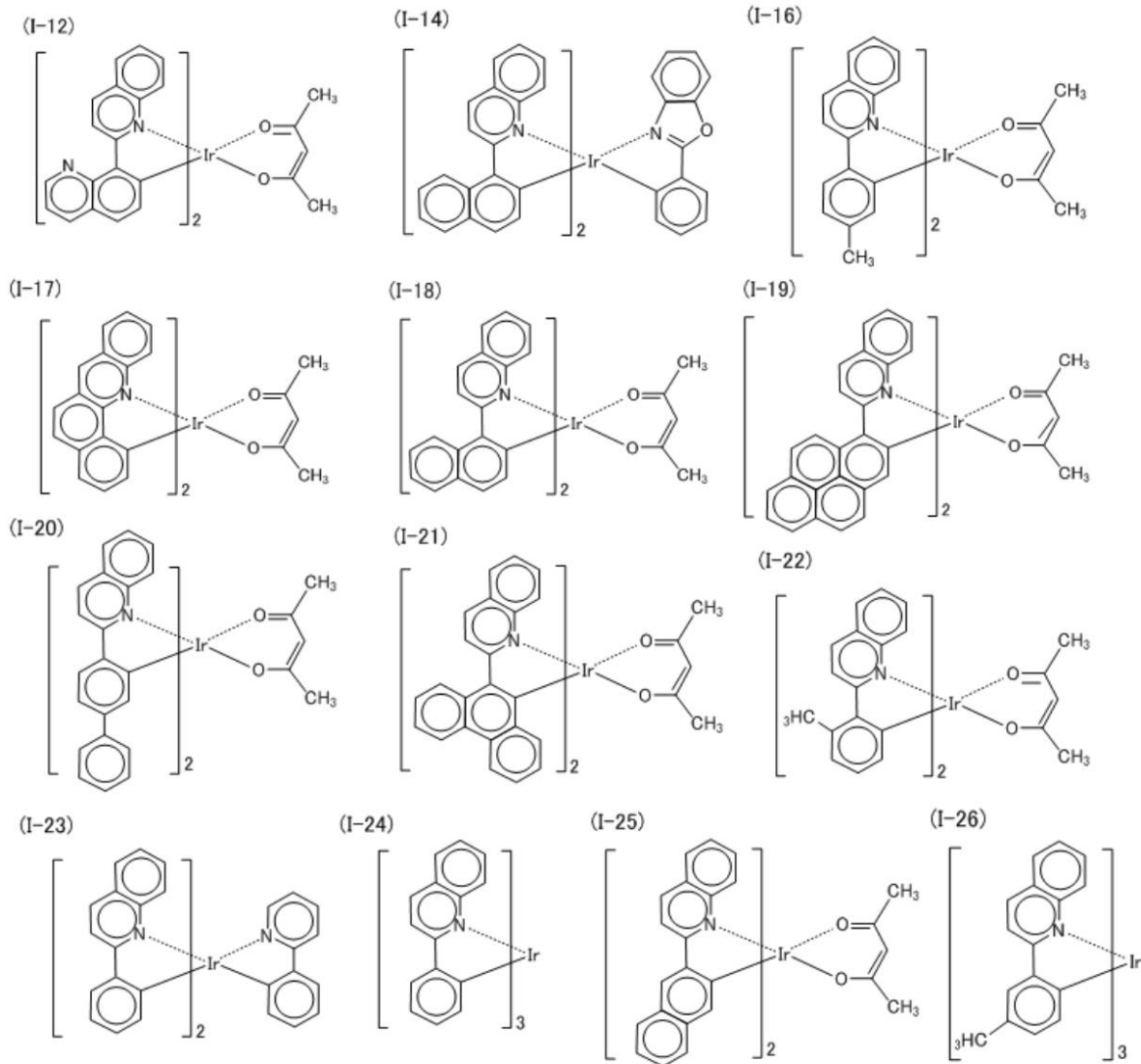
ただし、前記一般式 (1) 中、 $A^1 \sim A^3$  は、それぞれ独立に、窒素原子又は炭素原子である。 $Ar^1$  は、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ~ 60 のアリール基、又は置換もしくは無置換の核炭素数 3 ~ 60 のヘテロアリール基である。 $Ar^2$  は、水素原子、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ~ 60 のアリール基、置換もしくは無置換の核炭素数 3 ~ 60 のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、又は置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基である。ただし、 $Ar^1$  及び  $Ar^2$  のいずれか一方は、置換もしくは無置換の核炭素数 10 ~ 60 の縮合環基、又は置換もしくは無置換の核炭素数 3 ~ 60 のモノヘテロ縮合環基である。 $L^1$  及び  $L^2$  は、それぞれ独立に、

単結合、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ~ 60 のアリーレン基、置換もしくは無置換の核炭素数 3 ~ 60 のヘテロアリーレン基、又は置換もしくは無置換のフルオレニレン基である。R は、水素原子、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ~ 60 のアリアル基、置換もしくは無置換の核炭素数 3 ~ 60 のヘテロアリアル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、又は置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基であり、n は 0 ~ 5 の整数であり、n が 2 以上の場合、複数の R は同一でも異なってもよく、また、隣接する複数の R 基同士で結合して、炭素環式脂肪族環又は炭素環式芳香族環を形成していてもよい。

【化 2】



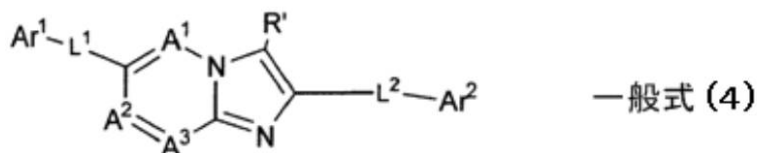
## 【化 3】



## 【請求項 2】

一般式 (1) で表される含窒素複素環誘導体が、下記一般式 (4) で表される含窒素複素環誘導体である請求項 1 に記載の有機電界発光素子。

## 【化 6 5】



ただし、前記一般式 (4) 中、 $A^1 \sim A^3$  は、それぞれ独立に、窒素原子又は炭素原子である。 $Ar^1$  は、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ~ 60 のアリール基、又は置換もしくは無置換の核炭素数 3 ~ 60 のヘテロアリール基であり、 $Ar^2$  は、水素原子、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ~ 60 のアリール基、置換もしくは無置換の核炭素数 3 ~ 60 のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、又は置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基である。ただし、 $Ar^1$  及び  $Ar^2$  のいずれか一方は、置換もしくは無置換の核炭素数 10 ~ 60 の縮合環基、又は置換もしくは無置換の核炭素数 3 ~ 60 のモノヘテロ縮合環基である。

$L^1$  及び  $L^2$  は、それぞれ独立に、単結合、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ~ 60 のアリーレン基、置換もしくは無置換の核炭素数 3 ~ 60 のヘテロアリーレン基、又は置換

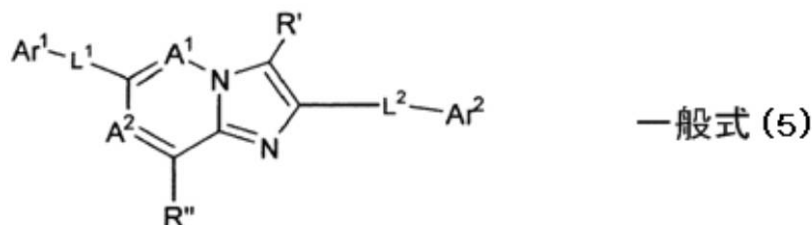
もしくは無置換のフルオレニレン基である。

R' は、水素原子、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ~ 60 のアリール基、置換もしくは無置換の核炭素数 3 ~ 60 のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、又は置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基である。

【請求項 3】

一般式 (4) で表される含窒素複素環誘導体が、下記一般式 (5) で表される含窒素複素環誘導体である請求項 2 に記載の有機電界発光素子。

【化 6 6】



ただし、前記一般式 (5) 中、A<sup>1</sup> 及び A<sup>2</sup> は、それぞれ独立に、窒素原子又は炭素原子である。

Ar<sup>1</sup> は、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ~ 60 のアリール基、又は置換もしくは無置換の核炭素数 3 ~ 60 のヘテロアリール基である。Ar<sup>2</sup> は、水素原子、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ~ 60 のアリール基、置換もしくは無置換の核炭素数 3 ~ 60 のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、又は置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基である。ただし、Ar<sup>1</sup> 及び Ar<sup>2</sup> のいずれか一方は、置換もしくは無置換の核炭素数 10 ~ 60 の縮合環基、又は置換もしくは無置換の核炭素数 3 ~ 60 のモノヘテロ縮合環基である。

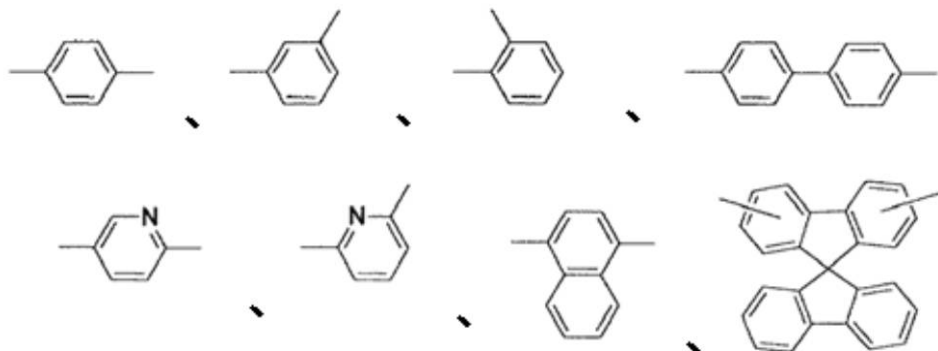
L<sup>1</sup> 及び L<sup>2</sup> は、それぞれ独立に、単結合、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ~ 60 のアリーレン基、置換もしくは無置換の核炭素数 3 ~ 60 のヘテロアリーレン基、又は置換もしくは無置換のフルオレニレン基である。

R' 及び R'' は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ~ 60 のアリール基、置換もしくは無置換の核炭素数 3 ~ 60 のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、又は置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基であり、R' 及び R'' は同一でも異なってもよい。

【請求項 4】

一般式 (1)、(4)、及び (5) の少なくともいずれかで表される含窒素複素環誘導体において、L<sup>1</sup> 及び L<sup>2</sup> の少なくともいずれかが、下記構造式で表される基から選択される請求項 1 から 3 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【化 6 7】

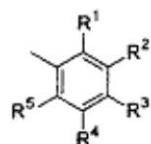


【請求項 5】

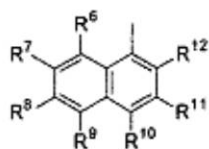
一般式 (1)、(4)、及び (5) の少なくともいずれかで表される含窒素複素環誘導体に

において、 $Ar^1$  が、下記一般式(6)から(15)で表される基から選択される請求項1から4のいずれかに記載の有機電界発光素子。

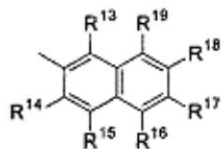
【化68】



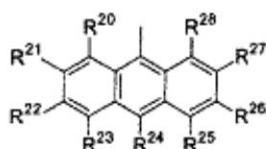
一般式(6)



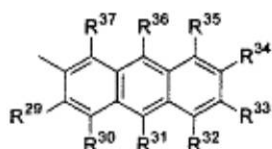
一般式(7)



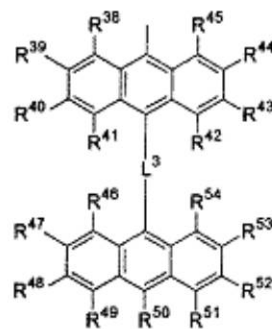
一般式(8)



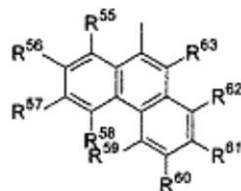
一般式(9)



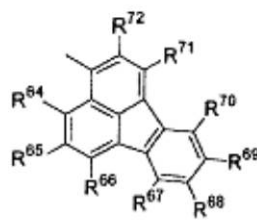
一般式(10)



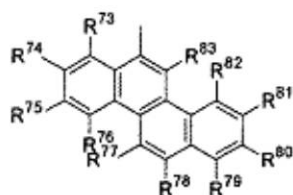
一般式(11)



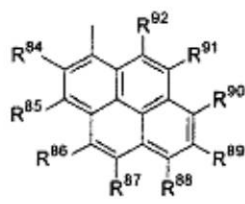
一般式(12)



一般式(13)



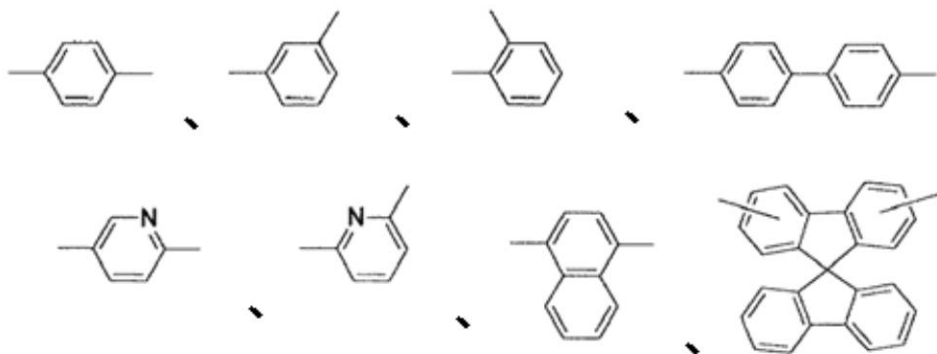
一般式(14)



一般式(15)

ただし、前記一般式(6)から(15)中、 $R^1 \sim R^{92}$  は、それぞれ独立して、水素原子、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の核炭素数6～40のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の核炭素数12～80のジアリールアミノ基、置換もしくは無置換の核炭素数6～40のアリール基、置換もしくは無置換の核炭素数3～40のヘテロアリール基、又は置換もしくは無置換の核炭素数18～120のジアリールアミノアリール基を表す。 $L^3$  は、単結合、及び下記構造式で表される置換基を表す。

## 【化 6 9】



## 【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0010

【補正方法】変更

【補正の内容】

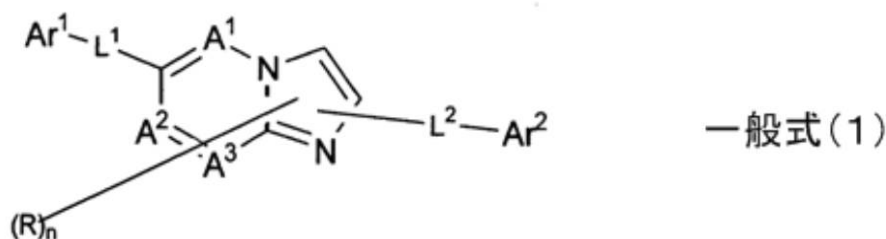
【0010】

本発明は、本発明者らによる前記知見に基づくものであり、前記課題を解決するための手段としては以下の通りである。即ち、

< 1 > 陽極と陰極の間に、発光層を含む少なくとも一層の有機層を有してなり、

前記有機層における少なくとも一層が、電子注入材料及び電子輸送材料の少なくともいずれかとして用いられる下記一般式(1)で表される含窒素複素環誘導体から選択される少なくとも1種を含有し、かつ前記有機層における少なくとも一層が、下記構造式(I-1)~(I-4)、(I-7)~(I-12)、(I-14)、及び(I-16)~(I-26)のいずれかで表される燐光発光材料を少なくとも1種含有することを特徴とする有機電界発光素子である。

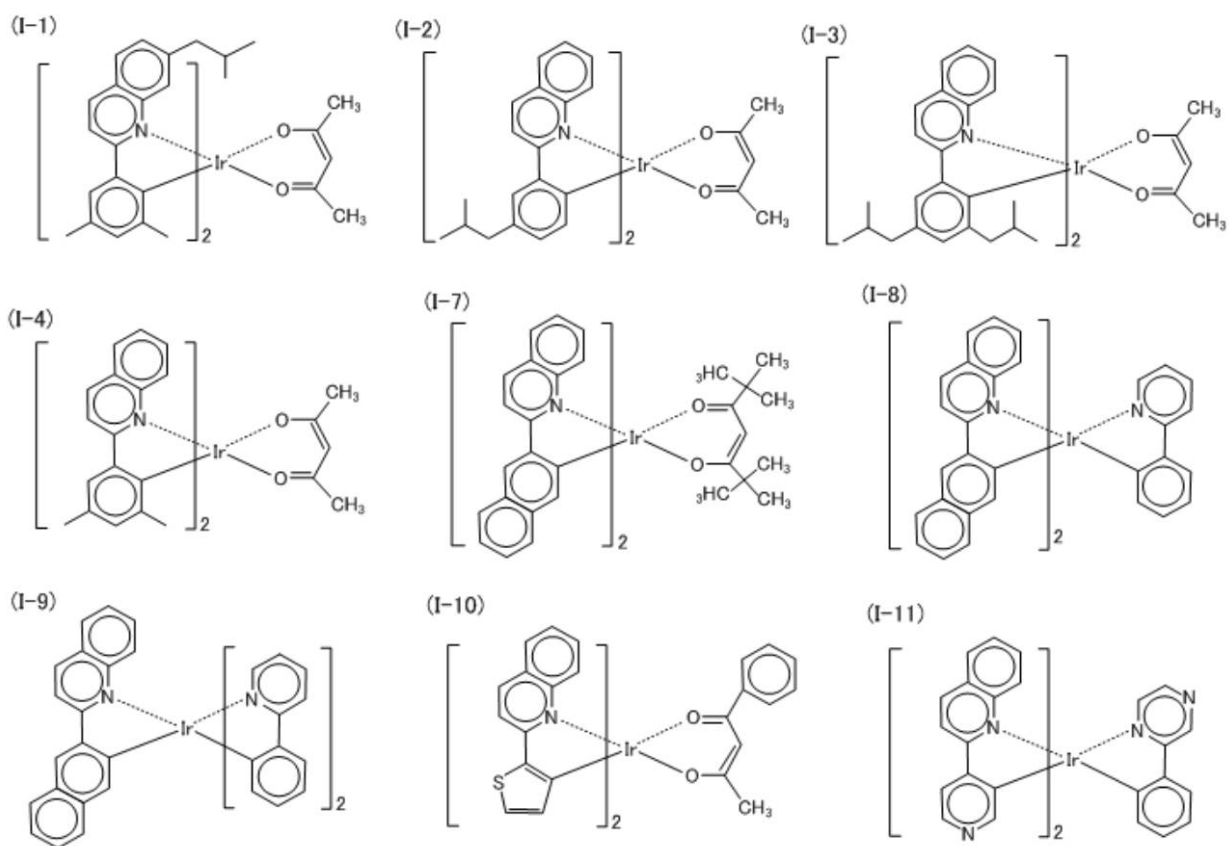
【化 1】



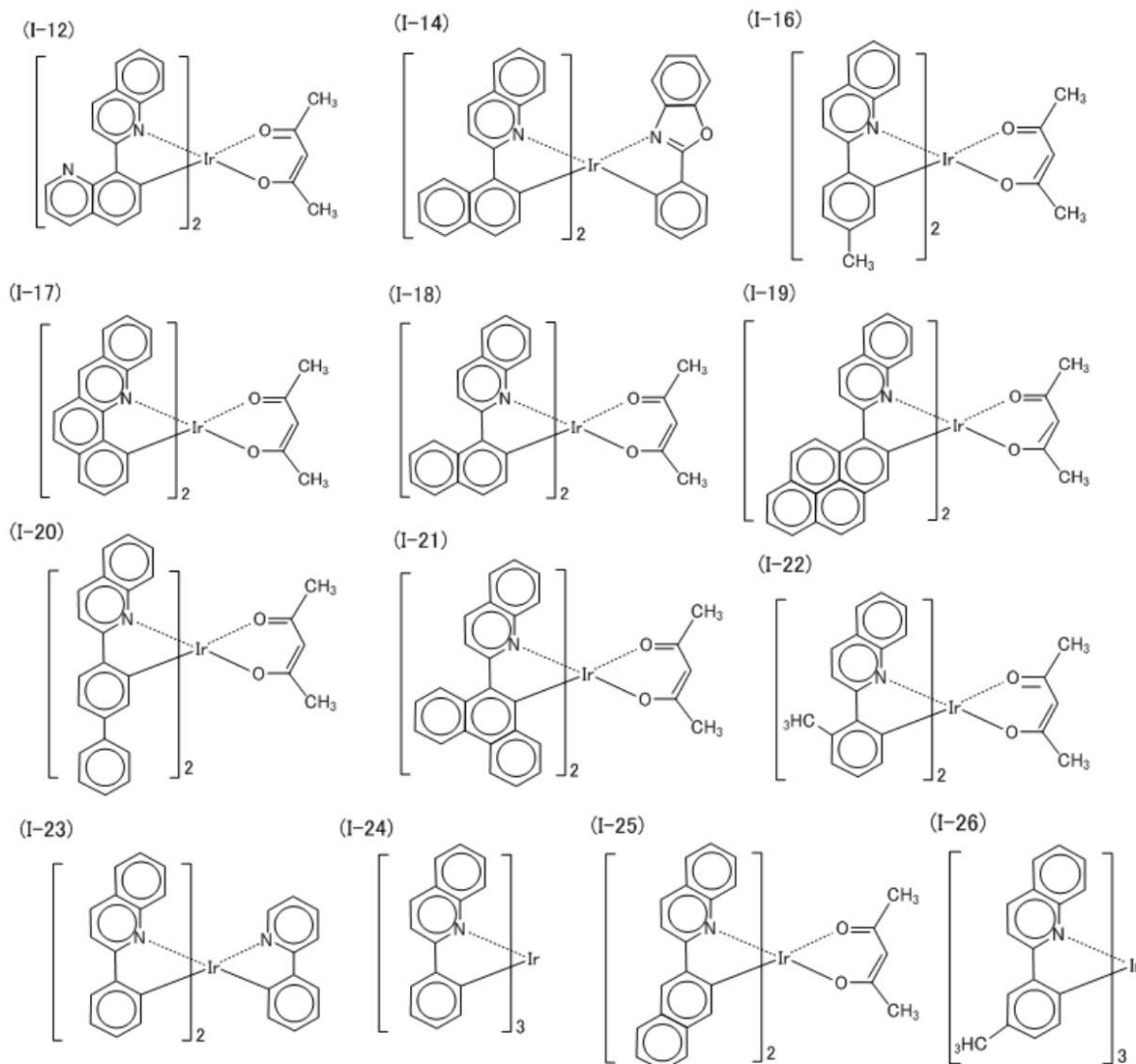
ただし、前記一般式(1)中、 $A^1 \sim A^3$ は、それぞれ独立に、窒素原子又は炭素原子である。 $Ar^1$ は、置換もしくは無置換の核炭素数6~60のアリール基、又は置換もしくは無置換の核炭素数3~60のヘテロアリール基である。 $Ar^2$ は、水素原子、置換もしくは無置換の核炭素数6~60のアリール基、置換もしくは無置換の核炭素数3~60のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルキル基、又は置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルコキシ基である。ただし、 $Ar^1$ 及び $Ar^2$ のいずれか一方は、置換もしくは無置換の核炭素数10~60の縮合環基、又は置換もしくは無置換の核炭素数3~60のモノヘテロ縮合環基である。 $L^1$ 及び $L^2$ は、それぞれ独立に、単結合、置換もしくは無置換の核炭素数6~60のアリーレン基、置換もしくは無置換の核炭素数3~60のヘテロアリーレン基、又は置換もしくは無置換のフルオレニレン基である。 $R$ は、水素原子、置換もしくは無置換の核炭素数6~60のアリール基、置換もしくは無置換の核炭素数3~60のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルキル基、又は置換もしくは無置換の炭素数1~20のアルコキシ基であり、 $n$ は0~5の整数であり、 $n$ が2以上の場合、複数の $R$ は同一でも異なってもよく、また

、隣接する複数の R 基同士で結合して、炭素環式脂肪族環又は炭素環式芳香族環を形成していてもよい。

【化 2】

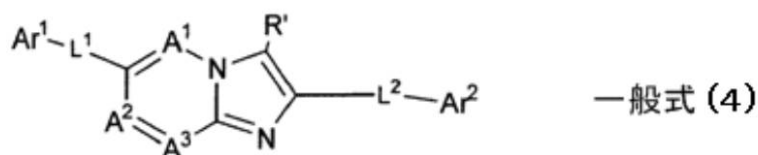


## 【化 3】



< 2 > 一般式 ( 1 ) で表される含窒素複素環誘導体が、下記一般式 ( 4 ) で表される含窒素複素環誘導体である前記 < 1 > に記載の有機電界発光素子である。

## 【化 3】



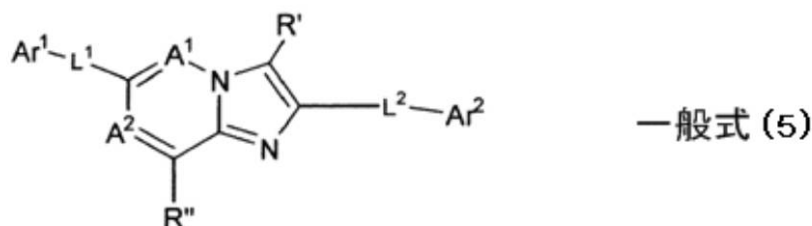
ただし、前記一般式 ( 4 ) 中、 $A^1 \sim A^3$  は、それぞれ独立に、窒素原子又は炭素原子である。 $Ar^1$  は、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ～ 60 のアリール基、又は置換もしくは無置換の核炭素数 3 ～ 60 のヘテロアリール基であり、 $Ar^2$  は、水素原子、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ～ 60 のアリール基、置換もしくは無置換の核炭素数 3 ～ 60 のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 20 のアルキル基、又は置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 20 のアルコキシ基である。ただし、 $Ar^1$  及び  $Ar^2$  のいずれか一方は、置換もしくは無置換の核炭素数 10 ～ 60 の縮合環基、又は置換もしくは無置換の核炭素数 3 ～ 60 のモノヘテロ縮合環基である。

$L^1$  及び  $L^2$  は、それぞれ独立に、単結合、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ～ 60 のアリーレン基、置換もしくは無置換の核炭素数 3 ～ 60 のヘテロアリーレン基、又は置換もしくは無置換のフルオレニレン基である。

R' は、水素原子、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ~ 60 のアリール基、置換もしくは無置換の核炭素数 3 ~ 60 のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、又は置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基である。

< 3 > 一般式 (4) で表される含窒素複素環誘導体が、下記一般式 (5) で表される含窒素複素環誘導体である前記 < 2 > に記載の有機電界発光素子である。

【化 4】



ただし、前記一般式 (5) 中、A<sup>1</sup> 及び A<sup>2</sup> は、それぞれ独立に、窒素原子又は炭素原子である。

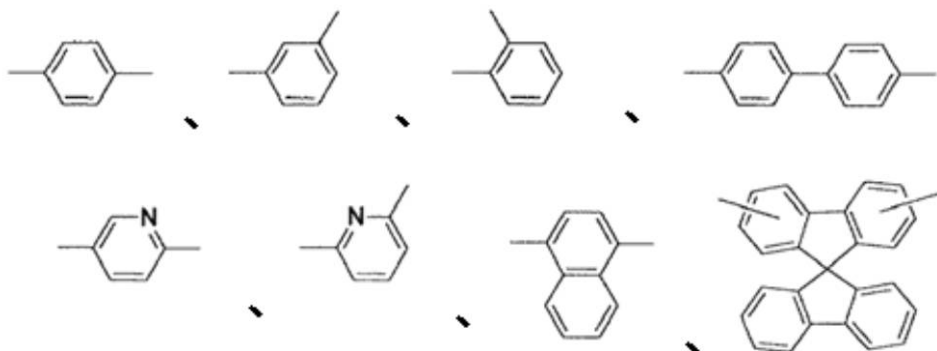
Ar<sup>1</sup> は、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ~ 60 のアリール基、又は置換もしくは無置換の核炭素数 3 ~ 60 のヘテロアリール基である。Ar<sup>2</sup> は、水素原子、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ~ 60 のアリール基、置換もしくは無置換の核炭素数 3 ~ 60 のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、又は置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基である。ただし、Ar<sup>1</sup> 及び Ar<sup>2</sup> のいずれか一方は、置換もしくは無置換の核炭素数 10 ~ 60 の縮合環基、又は置換もしくは無置換の核炭素数 3 ~ 60 のモノヘテロ縮合環基である。

L<sup>1</sup> 及び L<sup>2</sup> は、それぞれ独立に、単結合、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ~ 60 のアリーレン基、置換もしくは無置換の核炭素数 3 ~ 60 のヘテロアリーレン基、又は置換もしくは無置換のフルオレニレン基である。

R' 及び R'' は、それぞれ独立に、水素原子、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ~ 60 のアリール基、置換もしくは無置換の核炭素数 3 ~ 60 のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、又は置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基であり、R' 及び R'' は同一でも異なってもよい。

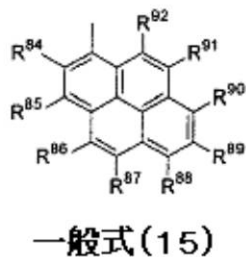
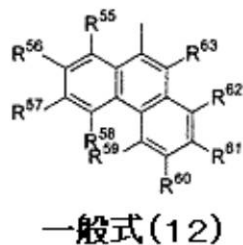
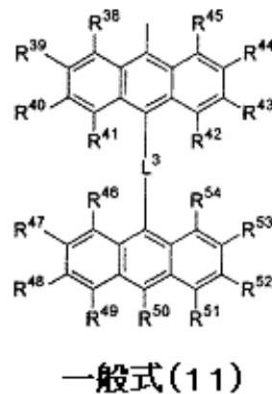
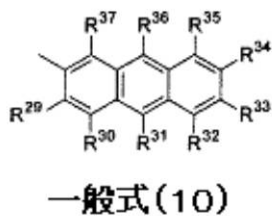
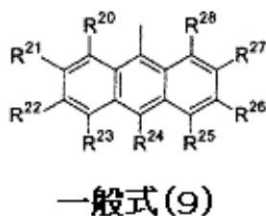
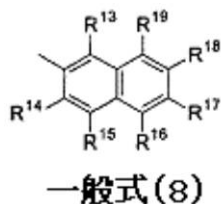
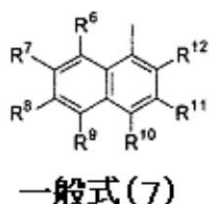
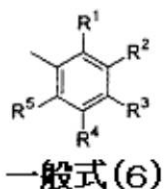
< 4 > 一般式 (1)、(4)、及び (5) の少なくともいずれかで表される含窒素複素環誘導体において、L<sup>1</sup> 及び L<sup>2</sup> の少なくともいずれかが、下記構造式で表される基から選択される前記 < 1 > から < 3 > のいずれかに記載の有機電界発光素子である。

【化 5】



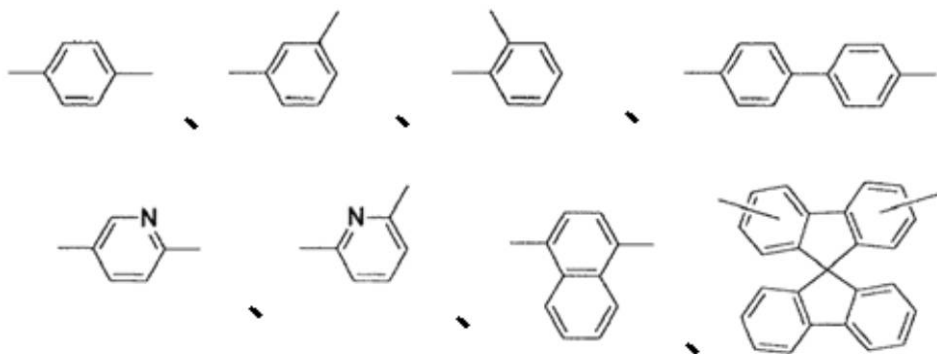
< 5 > 一般式 (1)、(4)、及び (5) の少なくともいずれかで表される含窒素複素環誘導体において、Ar<sup>1</sup> が、下記一般式 (6) から (15) で表される基である前記 < 1 > から < 4 > のいずれかに記載の有機電界発光素子である。

## 【化 6】



ただし、前記一般式(6)から(15)中、 $R^1 \sim R^{92}$ は、それぞれ独立して、水素原子、ハロゲン原子、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～20のアルコキシ基、置換もしくは無置換の核炭素数6～40のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の核炭素数12～80のジアリールアミノ基、置換もしくは無置換の核炭素数6～40のアリール基、置換もしくは無置換の核炭素数3～40のヘテロアリール基、又は置換もしくは無置換の核炭素数18～120のジアリールアミノアリール基を表す。 $L^3$ は、単結合、及び下記構造式で表される置換基を表す。

## 【化 7】



< 6 > 構造式 ( I - 1 ) ~ ( I - 4 )、( I - 7 ) ~ ( I - 12 )、( I - 14 )、及び ( I - 16 ) ~ ( I - 26 ) のいずれかで表される 燐光発光材料の少なくとも 1 種が、発光層に含有される前記 < 1 > から < 5 > のいずれかに記載の有機電界発光素子である。

< 7 > 含窒素複素環誘導体を含む層が、還元性ドーパントを含む前記 < 1 > から < 6 > のいずれかに記載の有機電界発光素子である。

< 8 > 還元性ドーパントが、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類金属、アルカリ金属の酸化物、アルカリ金属のハロゲン化物、アルカリ土類金属の酸化物、アルカリ土類金属のハロゲン化物、希土類金属の酸化物、希土類金属のハロゲン化物、アルカリ金属の有機錯体、アルカリ土類金属の有機錯体、及び希土類金属の有機錯体の中から選ばれる少なくとも 1 種である前記 < 7 > に記載の有機電界発光素子である。

## 【手続補正 3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0014

【補正方法】変更

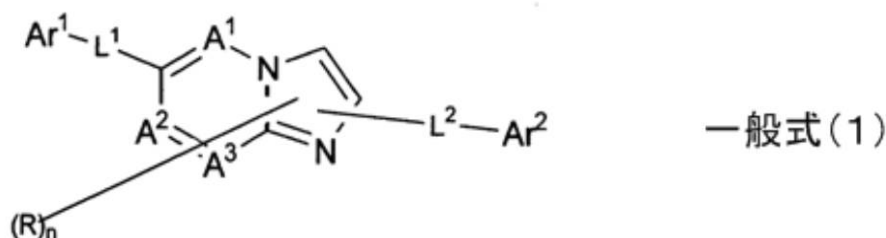
【補正の内容】

【0014】

< 含窒素複素環誘導体 >

前記含窒素複素環誘導体としては、下記一般式 ( 1 ) で表される含窒素複素環誘導体から選択される少なくとも 1 種を含む。

## 【化 8】



ただし、前記一般式 ( 1 ) 中、A<sup>1</sup> ~ A<sup>3</sup> は、それぞれ独立に、窒素原子又は炭素原子である。Ar<sup>1</sup> は、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ~ 60 のアリール基、又は置換もしくは無置換の核炭素数 3 ~ 60 のヘテロアリール基である。Ar<sup>2</sup> は、水素原子、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ~ 60 のアリール基、置換もしくは無置換の核炭素数 3 ~ 60 のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、又は置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基である。ただし、Ar<sup>1</sup> 及び Ar<sup>2</sup> のいずれか一方は、置換もしくは無置換の核炭素数 10 ~ 60 の縮合環基、又は置換もしくは無置換の核炭素数 3 ~ 60 のモノヘテロ縮合環基である。L<sup>1</sup> 及び L<sup>2</sup> は、それぞれ独立に、単結合、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ~ 60 のアリーレン基、置換もしくは無置換の

核炭素数 3 ~ 60 のヘテロアリーレン基、又は置換もしくは無置換のフルオレニレン基である。R は、水素原子、置換もしくは無置換の核炭素数 6 ~ 60 のアリール基、置換もしくは無置換の核炭素数 3 ~ 60 のヘテロアリール基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルキル基、又は置換もしくは無置換の炭素数 1 ~ 20 のアルコキシ基であり、n は 0 ~ 5 の整数であり、n が 2 以上の場合、複数の R は同一でも異なってもよく、また、隣接する複数の R 基同士で結合して、炭素環式脂肪族環又は炭素環式芳香族環を形成していてもよい。

【手続補正 4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0075

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0075】

( 比較例 2 ~ 17、実施例 1 ~ 6 及び 10 ~ 15、参考例 7 ~ 9 及び 16 ~ 18 )

- 有機電界発光素子の作製 -

比較例 1 において、発光材料と、電子輸送材料（電子輸送層）を表 1 に記載のものに代えた以外は、比較例 1 と同様にして比較例 2 ~ 17、実施例 1 ~ 6 及び 10 ~ 15、参考例 7 ~ 9 及び 16 ~ 18 の有機電界発光素子を作製した。

【手続補正 5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0076

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0076】

【表 1】

	発光材料	電子輸送層
比較例1	Ir(ppy)3	Balq
比較例2	Ir(ppy)3	含窒素複素環誘導体1
比較例3	Ir(ppy)3	含窒素複素環誘導体2
比較例4	FIrpic	Balq
比較例5	FIrpic	含窒素複素環誘導体3
比較例6	FIrpic	含窒素複素環誘導体4
比較例7	発光材料A	Balq
比較例8	発光材料A	含窒素複素環誘導体1
比較例9	発光材料A	含窒素複素環誘導体3
比較例10	化合物(I-24)	Balq
比較例11	化合物(I-24)	Alq
比較例12	化合物(I-26)	Balq
比較例13	化合物(I-15)	Balq
比較例14	化合物(I-15)	Alq
比較例15	化合物(I-16)	Balq
比較例16	化合物(I-20)	Balq
比較例17	化合物(I-5)	Balq
実施例1	化合物(I-24)	含窒素複素環誘導体1
実施例2	化合物(I-24)	含窒素複素環誘導体2
実施例3	化合物(I-24)	含窒素複素環誘導体3
実施例4	化合物(I-26)	含窒素複素環誘導体2
実施例5	化合物(I-26)	含窒素複素環誘導体3
実施例6	化合物(I-26)	含窒素複素環誘導体4
参考例7	化合物(I-15)	含窒素複素環誘導体1
参考例8	化合物(I-15)	含窒素複素環誘導体2
参考例9	化合物(I-15)	含窒素複素環誘導体3
実施例10	化合物(I-16)	含窒素複素環誘導体2
実施例11	化合物(I-16)	含窒素複素環誘導体3
実施例12	化合物(I-16)	含窒素複素環誘導体4
実施例13	化合物(I-20)	含窒素複素環誘導体1
実施例14	化合物(I-20)	含窒素複素環誘導体2
実施例15	化合物(I-20)	含窒素複素環誘導体3
参考例16	化合物(I-5)	含窒素複素環誘導体2
参考例17	化合物(I-5)	含窒素複素環誘導体3
参考例18	化合物(I-5)	含窒素複素環誘導体4

【手続補正 6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0079

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0079】

次に、作製した実施例1～6及び10～15、参考例7～9及び16～18、並びに比較例1～17について、以下のようにして、外部量子効率、及び輝度半減時間を測定した

。

【手続補正 7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0087

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0087】

【表 7】

	発光材料	電子輸送層	外部量子効率	輝度半減時間
比較例13 (基準)	化合物(I-15)	Balq	100	100
比較例14	化合物(I-15)	Alq	98	70
参考例7	化合物(I-15)	含窒素複素環誘導体1	115	124
参考例8	化合物(I-15)	含窒素複素環誘導体2	112	128
参考例9	化合物(I-15)	含窒素複素環誘導体3	113	119

【手続補正 8】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0090

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0090】

【表 10】

	発光材料	電子輸送層	外部量子効率	輝度半減時間
比較例17 (基準)	化合物(I-5)	Balq	100	100
参考例16	化合物(I-5)	含窒素複素環誘導体2	108	116
参考例17	化合物(I-5)	含窒素複素環誘導体3	109	107
参考例18	化合物(I-5)	含窒素複素環誘導体4	108	109