

(19)日本国特許庁(JP)

## (12)特許公報(B2)

(11)特許番号  
特許第7642301号  
(P7642301)

(45)発行日 令和7年3月10日(2025.3.10)

(24)登録日 令和7年2月28日(2025.2.28)

(51)国際特許分類

|                          |     |                |
|--------------------------|-----|----------------|
| C 0 7 D 487/08 (2006.01) | F I | C 0 7 D 487/08 |
| C 0 7 D 487/18 (2006.01) |     | C 0 7 D 487/08 |
| C 0 7 D 491/18 (2006.01) |     | C 0 7 D 487/18 |
| C 0 7 D 498/18 (2006.01) |     | C 0 7 D 491/18 |
| C 0 7 D 513/18 (2006.01) |     | C 0 7 D 498/18 |

C S P

請求項の数 10 (全56頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2018-190110(P2018-190110)  
 (22)出願日 平成30年10月5日(2018.10.5)  
 (65)公開番号 特開2019-81749(P2019-81749A)  
 (43)公開日 令和1年5月30日(2019.5.30)  
 審査請求日 令和3年8月17日(2021.8.17)  
 審判番号 不服2023-9289(P2023-9289/J1)  
 審判請求日 令和5年6月6日(2023.6.6)  
 (31)優先権主張番号 10-2017-0144162  
 (32)優先日 平成29年10月31日(2017.10.31)  
 (33)優先権主張国・地域又は機関  
韓国(KR)

(73)特許権者 512187343  
三星ディスプレイ株式會社  
S a m s u n g D i s p l a y C o .  
, L t d .  
大韓民国京畿道龍仁市器興区三星路1  
1, Samsung-ro, Giheung-gu, Yongin-si,  
Gyeonggi-do, Republic of Korea  
 (74)代理人 110002619  
弁理士法人 P O R T  
宮崎 祐樹  
 (72)発明者 神奈川県 横浜市 鶴見区 菅沢町2-7  
株式会社サムスン日本研究所内  
合議体  
最終頁に続く

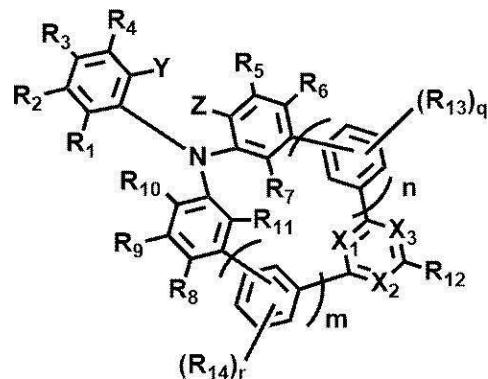
(54)【発明の名称】 含窒素化合物及びそれを含む有機EL素子

## (57)【特許請求の範囲】

## 【請求項1】

下記化学式1で表される含窒素化合物。

## 【化1】



## (化学式1)

前記化学式1において、

X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>、及びX<sub>3</sub>のうち少なくとも2つはNで、残りはC R<sub>15</sub>であり、  
 Y及びZはそれぞれ独立して水素原子、重水素原子、O R<sub>16</sub>、S R<sub>17</sub>、C R<sub>18</sub> R<sub>19</sub>  
 R<sub>20</sub>、もしくはS i R<sub>21</sub> R<sub>22</sub> R<sub>23</sub>であり、

R<sub>1</sub>からR<sub>14</sub>はそれぞれ独立して水素原子、重水素原子、O R<sub>24</sub>、S R<sub>25</sub>、(C=O)R<sub>26</sub>、N R<sub>27</sub> R<sub>28</sub>、C R<sub>29</sub> R<sub>30</sub> R<sub>31</sub>、Si R<sub>32</sub> R<sub>33</sub> R<sub>34</sub>、置換もしくは無置換の炭素数1以上20以下のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、もしくは置換もしくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であるか、または、R<sub>1</sub>からR<sub>14</sub>の基のうち隣接する基同士が互いに結合して環を形成し、ただし、R<sub>1</sub>からR<sub>14</sub>のうち隣接する基として置換もしくは無置換の環形成炭素数7以上30以下のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基が選択される場合は、R<sub>1</sub>からR<sub>14</sub>の基のうち隣接する基同士が互いに結合せず、

R<sub>15</sub>からR<sub>34</sub>はそれぞれ独立して水素原子、重水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、置換されたシリル基、置換もしくは無置換の炭素数1以上20以下のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であるか、または、R<sub>15</sub>からR<sub>34</sub>の基のうち隣接する基同士が互いに結合して環を形成し、ただし、R<sub>13</sub>とR<sub>14</sub>は同じ置換基であり、R<sub>15</sub>からR<sub>34</sub>のうち隣接する基として置換もしくは無置換の環形成炭素数7以上30以下のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基が選択される場合は、R<sub>15</sub>からR<sub>34</sub>の基のうち隣接する基同士が互いに結合せず、

n及びmは1または2の同じ整数であり、

qまたはrは0以上4以下の同じ整数である。

#### 【請求項2】

前記X<sub>1</sub>はNで、X<sub>2</sub>及びX<sub>3</sub>のうち少なくとも一つはNである請求項1に記載の含窒素化合物。

#### 【請求項3】

前記n及びmは1である請求項1に記載の含窒素化合物。

#### 【請求項4】

前記mは1で、前記nは1または2である請求項1に記載の含窒素化合物。

#### 【請求項5】

前記R<sub>12</sub>は置換もしくは無置換のフェニル基、または置換もしくは無置換のジベンゾフラニル基である請求項1に記載の含窒素化合物。

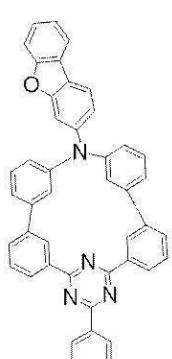
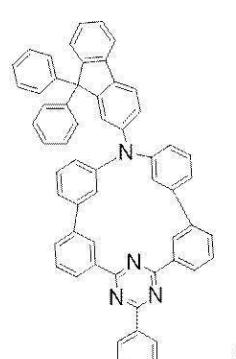
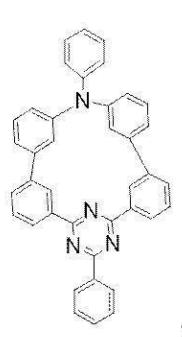
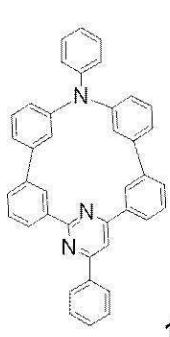
#### 【請求項6】

前記化学式1で表される含窒素化合物は、最低励起一重項エネルギー準位S<sub>1</sub>と最低励起三重項エネルギー準位T<sub>1</sub>の差が0.2eV以下である請求項1に記載の含窒素化合物。

#### 【請求項7】

前記化学式1で表される含窒素化合物は、下記第1化合物群に示した化合物のうちいずれか一つである請求項1に記載の含窒素化合物。

#### 【化2】



10

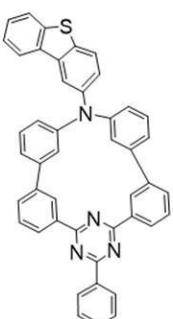
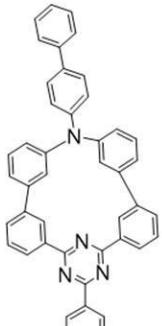
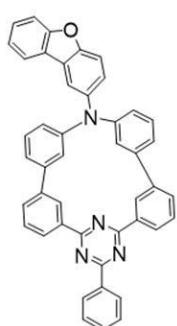
20

30

40

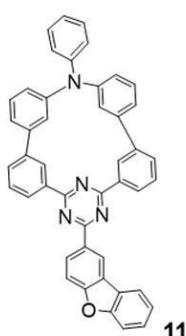
50

## 【化 3】



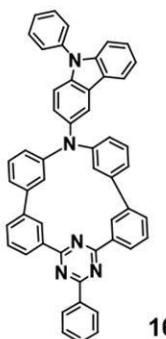
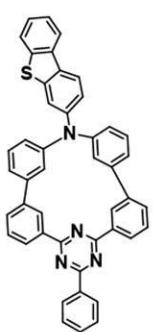
10

## 【化 4】



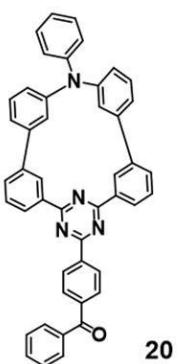
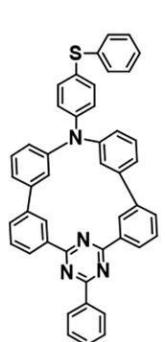
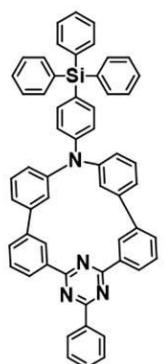
20

## 【化 5】



30

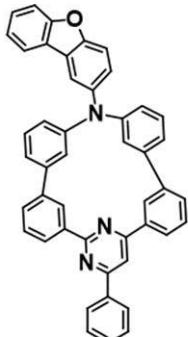
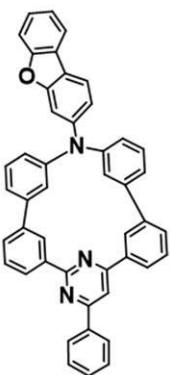
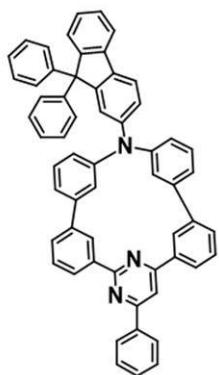
## 【化 6】



40

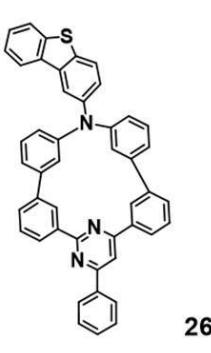
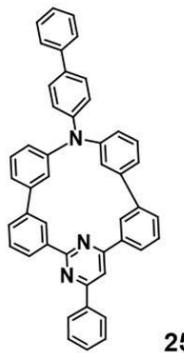
50

## 【化 7】



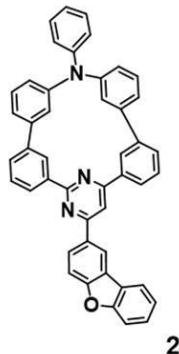
10

## 【化 8】



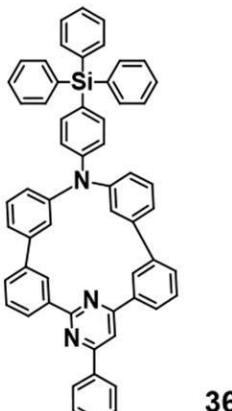
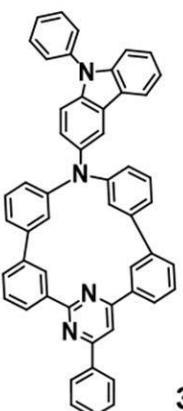
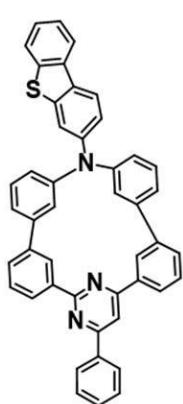
20

## 【化 9】



30

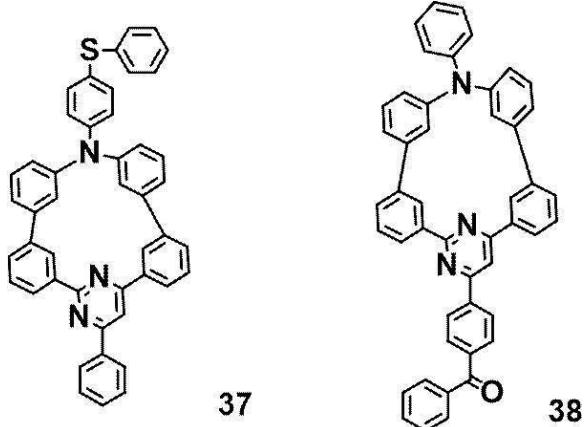
## 【化 10】



40

50

## 【化 1 1】



(第1化合物群)

## 【請求項 8】

第1電極と、

前記第1電極の上に配置された正孔輸送領域と、

前記正孔輸送領域の上に配置され、請求項1乃至請求項7のいずれか一項に記載の含窒素化合物を含む発光層と、

前記発光層の上に配置された電子輸送領域と、

前記電子輸送領域の上に配置された第2電極と、を含み、

前記第1電極と前記第2電極は、それぞれ独立して、Ag、Mg、Cu、Al、Pt、Pd、Au、Ni、Nd、Ir、Cr、Li、Ca、LiF/Ca、LiF/Al、Mo、Ti、In、Sn、及びZnからなる群から選択されるいずれか一つ、これらの中から選択される複数を含む化合物、これらの中から選択される複数を含む混合物、またはこれらの中から選択される1つ以上の酸化物を含む有機EL素子。

## 【請求項 9】

前記発光層は、青色光を放出する熱活性化遅延蛍光発光層である請求項8に記載の有機EL素子。

## 【請求項 10】

前記発光層はホスト及びドーパントを含み、

前記ドーパントは前記含窒素化合物である請求項8に記載の有機EL素子。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、含窒素化合物及びそれを含む有機EL素子に関し、より詳しくは、遅延蛍光発光材料として使用される含窒素化合物及びそれを含む有機EL素子に関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

最近、画像表示装置として、有機EL素子(Organic Electroluminescence element)の開発が盛んに行われている。有機EL表示装置は液晶表示装置などとは異なり、第1電極及び第2電極から注入された正孔及び電子を発光層において再結合させることで、発光層において有機化合物を含む発光材料を発光させて表示を実現する、いわゆる自発光型表示装置である。

## 【0003】

有機EL素子を表示装置に応用するには、有機EL素子の低駆動電圧化、高発光効率化及び長寿命化が要求されており、これを安定的に実現し得る有機EL素子用材料の開発が持続的に要求されている。

## 【0004】

最近、高効率の有機EL素子を実現するために三重項状態のエネルギーを利用するりん光

発光や、三重項励起子の衝突によって一重項励起子が生成される現象 (Triplet-triplet annihilation, TTA) を利用した遅延蛍光発光に関する技術が開発されており、特に遅延蛍光を利用した熱活性化遅延蛍光 (Thermally Activated Delayed Fluorescence, TADF) 材料に関する開発が進んでいる。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【文献】特開2007-194506号公報

10

【文献】韓国公開特許第10-2013-0042368号公報

【文献】韓国公開特許第10-2015-0000967号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

本発明の目的は、発光効率を改善し得る有機EL素子用発光材料である含窒素化合物を提供することである。

【0007】

本発明の他の目的は、含窒素化合物を含んで発光効率を改善した有機EL素子を提供することである。

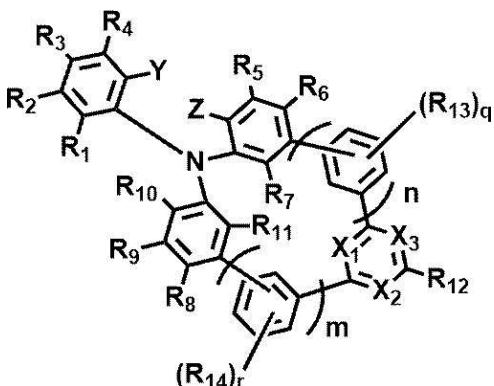
20

【課題を解決するための手段】

【0008】

本発明の一実施形態に係る下記化学式1で表される含窒素環化合物を提供する。

【化1】



30

(化学式1)

【0009】

前記化学式1において、 $X_1$ 、 $X_2$ 、及び $X_3$ のうち少なくとも2つはNで残りはCR<sub>15</sub>であり、Y及びZはそれぞれ独立して水素原子、重水素原子、OR<sub>16</sub>、SR<sub>17</sub>、CR<sub>18</sub>R<sub>19</sub>R<sub>20</sub>、もしくはSiR<sub>21</sub>R<sub>22</sub>R<sub>23</sub>であるか、または互いに結合して環を形成し、R<sub>1</sub>からR<sub>14</sub>はそれぞれ独立して水素原子、重水素原子、OR<sub>24</sub>、SR<sub>25</sub>、(C=O)R<sub>26</sub>、NR<sub>27</sub>R<sub>28</sub>、CR<sub>29</sub>R<sub>30</sub>R<sub>31</sub>、SiR<sub>32</sub>R<sub>33</sub>R<sub>34</sub>、置換もしくは無置換の炭素数1以上20以下のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、もしくは置換もしくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であるか、または隣接する基と互いに結合して環を形成し、R<sub>15</sub>からR<sub>34</sub>はそれぞれ独立して水素原子、重水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、置換もしくは無置換のシリル基、置換もしくは無置換の炭素数1以上20以下のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、もしくは置換もしくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であるか、または隣接する基と互いに結合して環を形成し、n及びmはそれぞれ独立して1または2であり、qまたはrはそれぞれ独立して0以上4以下の整数である。

40

50

## 【 0 0 1 0 】

前記  $X_1$  は N で、  $X_2$  及び  $X_3$  のうち少なくとも一つは N であってもよい。

## 【 0 0 1 1 】

前記 n 及び m は 1 であってもよい。

## 【 0 0 1 2 】

前記 m は 1 で、 前記 n は 1 または 2 であってもよい。

## 【 0 0 1 3 】

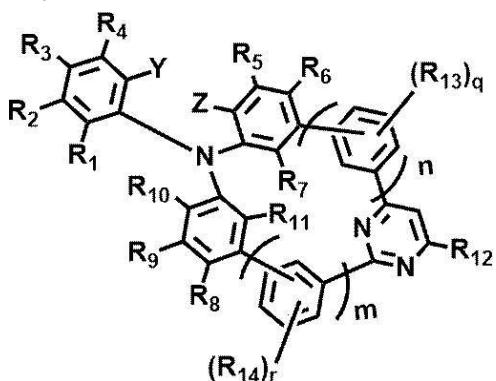
前記  $R_{12}$  は 置換もしく無置換のフェニル基、 または 置換もしく無置換のジベンゾフラニル基であってもよい。

## 【 0 0 1 4 】

化学式 1 は、 下記化学式 1 - 1 または化学式 1 - 2 で表される含窒素化合物であってもよい。

10

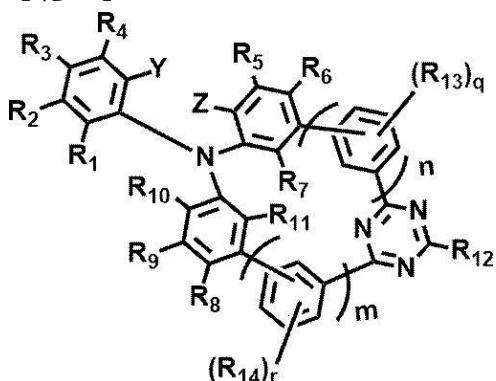
## 【 化 2 】



20

( 化学式 1 - 1 )

## 【 化 3 】



30

( 化学式 1 - 2 )

## 【 0 0 1 5 】

前記化学式 1 - 1 及び化学式 1 - 2 において、 Y、 Z、 n、 m、  $R_1$  から  $R_{14}$ 、 q 及び r は、 前記化学式 1 で定義した通りである。

40

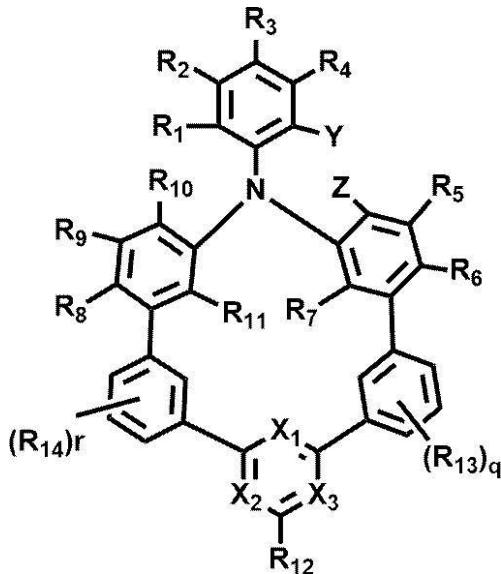
## 【 0 0 1 6 】

化学式 1 は、 下記化学式 1 - 3 または化学式 1 - 4 で表される含窒素化合物であってもよい。

40

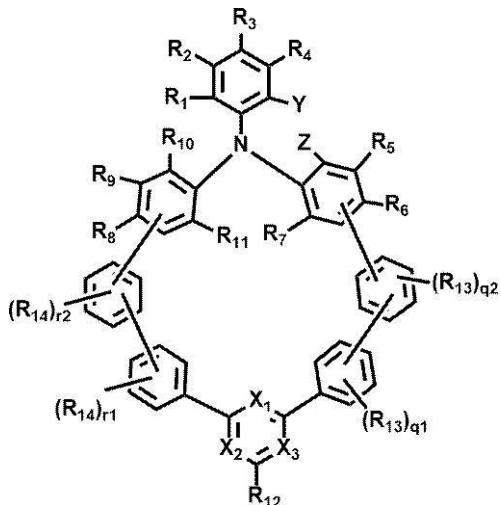
50

【化4】



(化学式1-3)

【化5】



(化学式1-4)

【0017】

前記化学式1-4において、q1、q2、r1及びr2はそれぞれ独立して0以上4以下の整数であり、前記化学式1-3及び化学式1-4において、X1からX3、Y、Z、R1からR34、q及びrは、前記化学式1で定義した通りである。

【0018】

化学式1は、下記化学式1-5または化学式1-6で表される含窒素化合物であってよい。

10

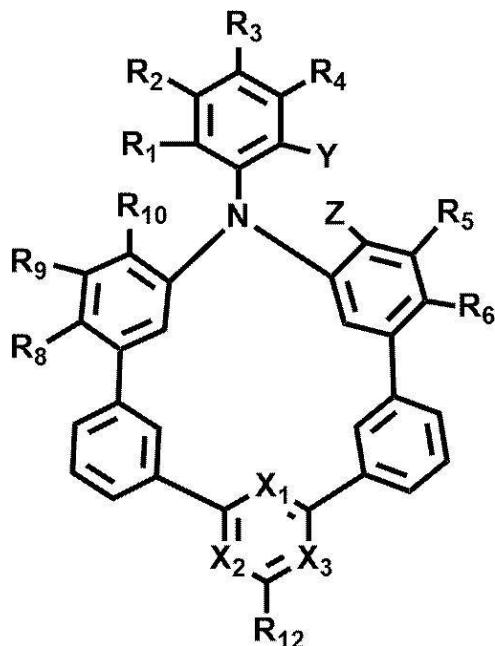
20

30

40

50

【化6】

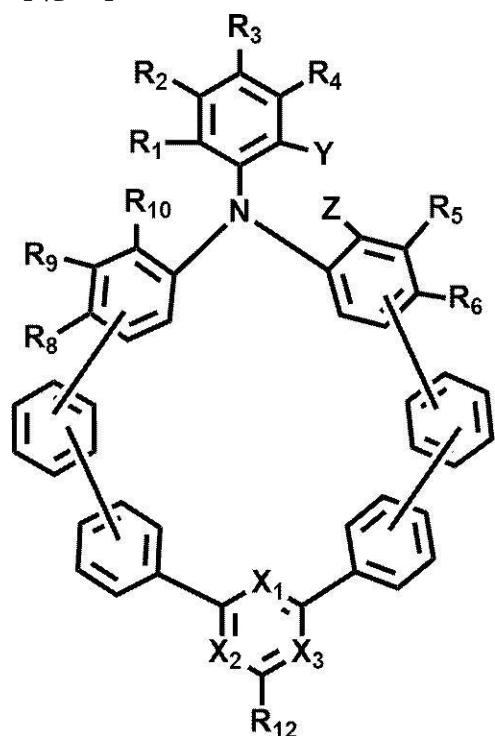


10

(化学式1-5)

20

【化7】



30

40

(化学式1-6)

【0019】

前記化学式1-5及び化学式1-6において、 $X_1$ から $X_3$ 、Y、Z、R<sub>1</sub>からR<sub>6</sub>、R<sub>8</sub>、R<sub>9</sub>、R<sub>10</sub>、及びR<sub>12</sub>は、前記化学式1で定義した通りである。

【0020】

前記化学式1で表される含窒素化合物は、最低励起一重項エネルギー準位S<sub>1</sub>と最低励起三重項エネルギー準位T<sub>1</sub>の差が0.2 eV以下であってもよい。

【0021】

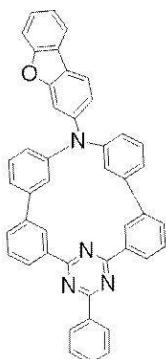
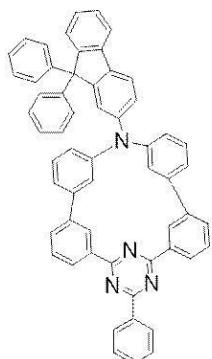
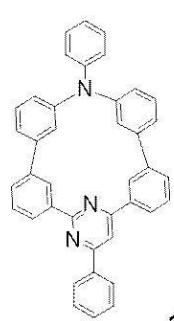
化学式1で表される含窒素化合物は、熱活性化遅延蛍光発光材料であってもよい。

50

## 【0022】

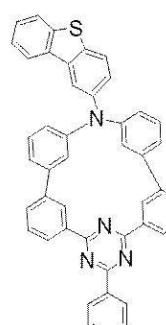
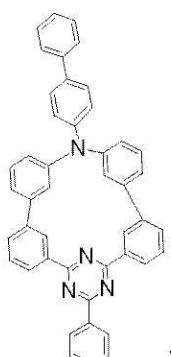
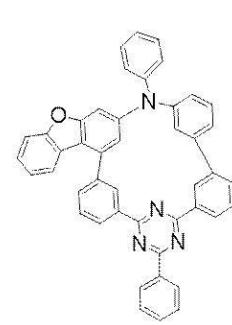
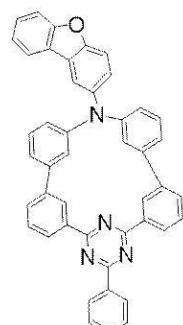
前記化学式 1 で表される含窒素化合物は、下記第 1 化合物群（1～38）に示した化合物のうちいずれか一つであってもよい。

## 【化 8】



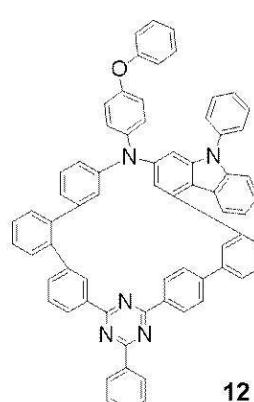
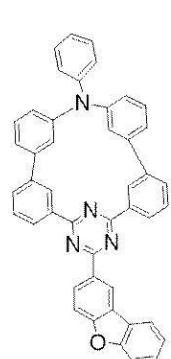
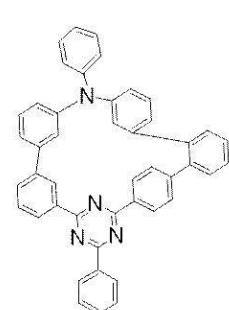
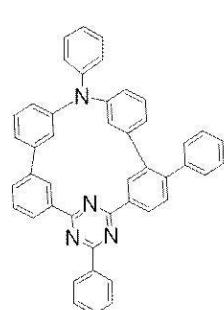
10

## 【化 9】



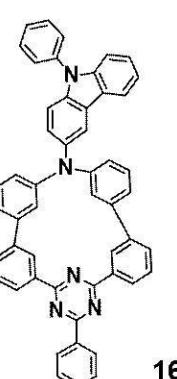
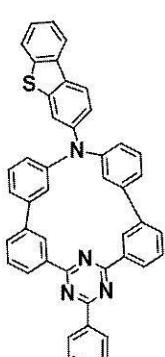
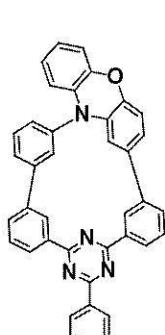
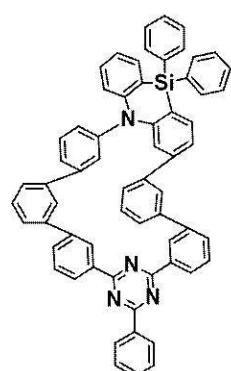
20

## 【化 10】



30

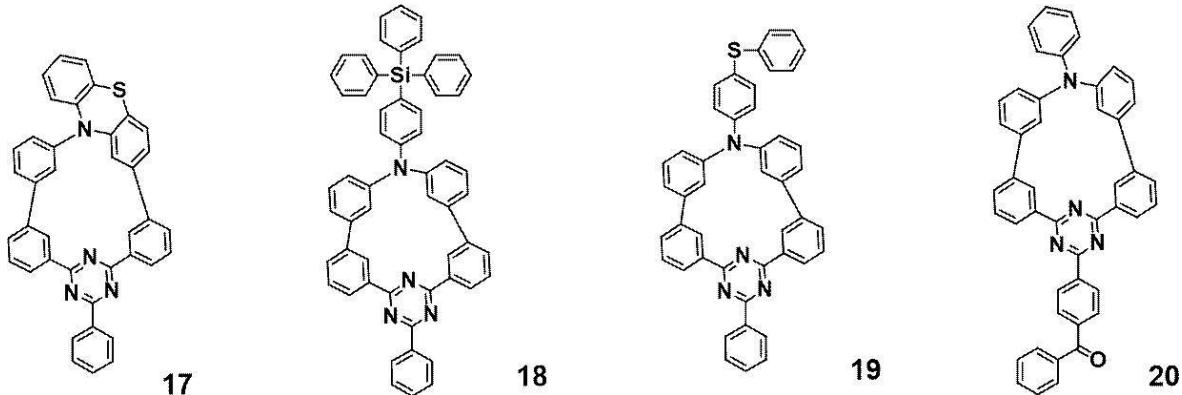
## 【化 11】



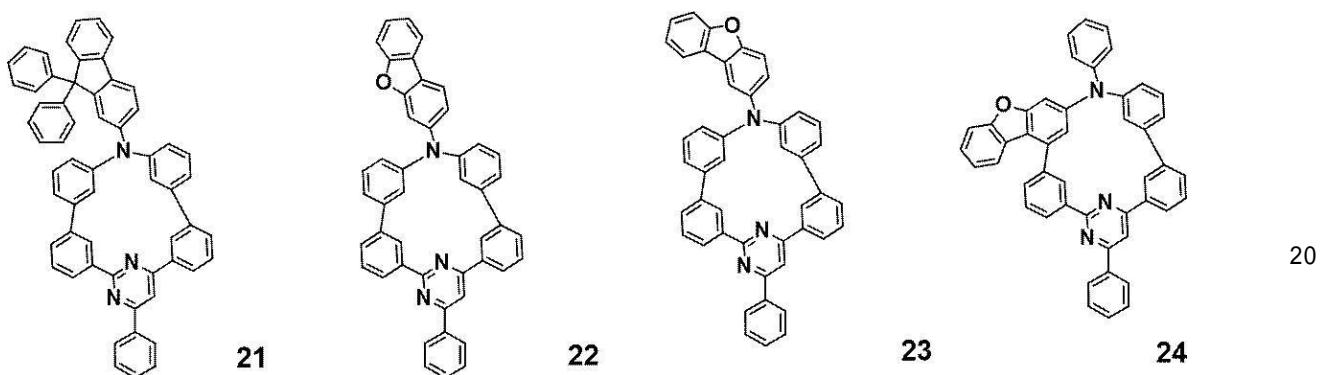
40

50

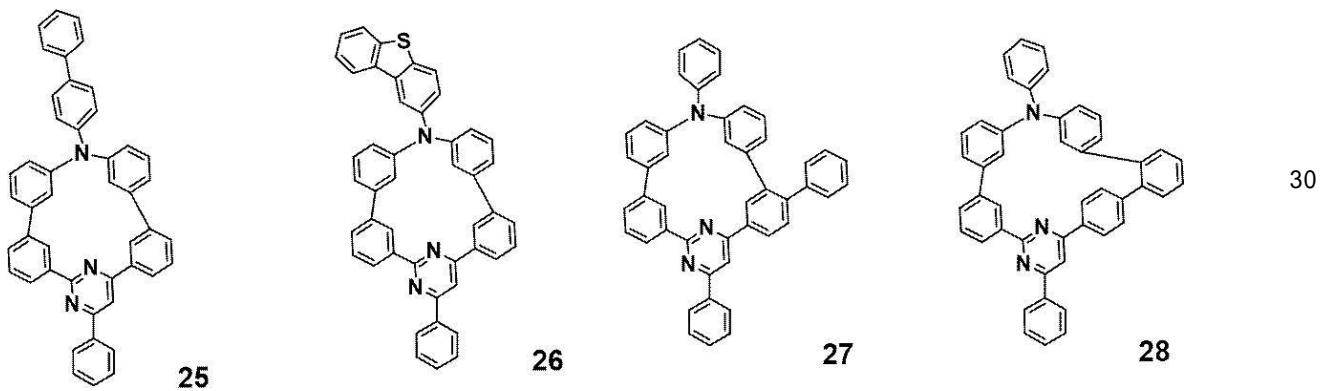
## 【化 1 2】



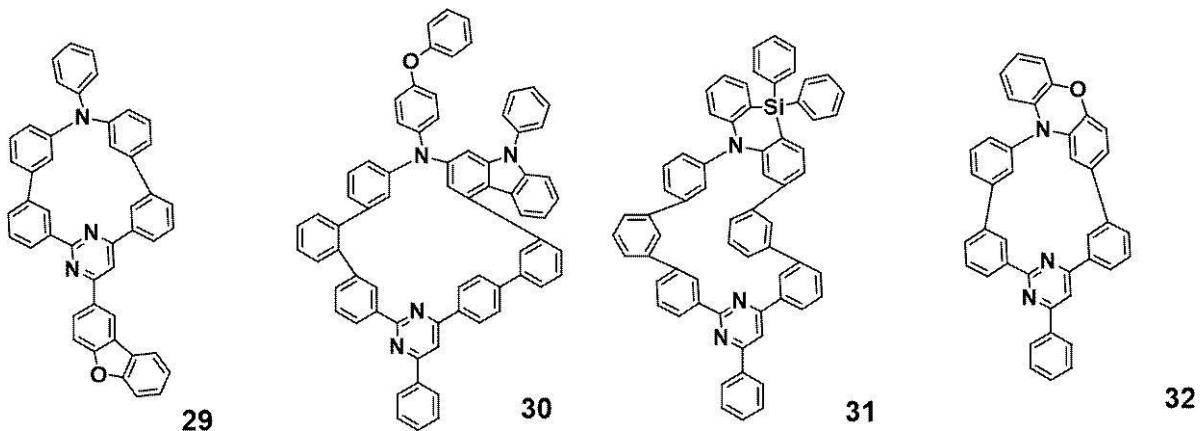
## 【化 1 3】



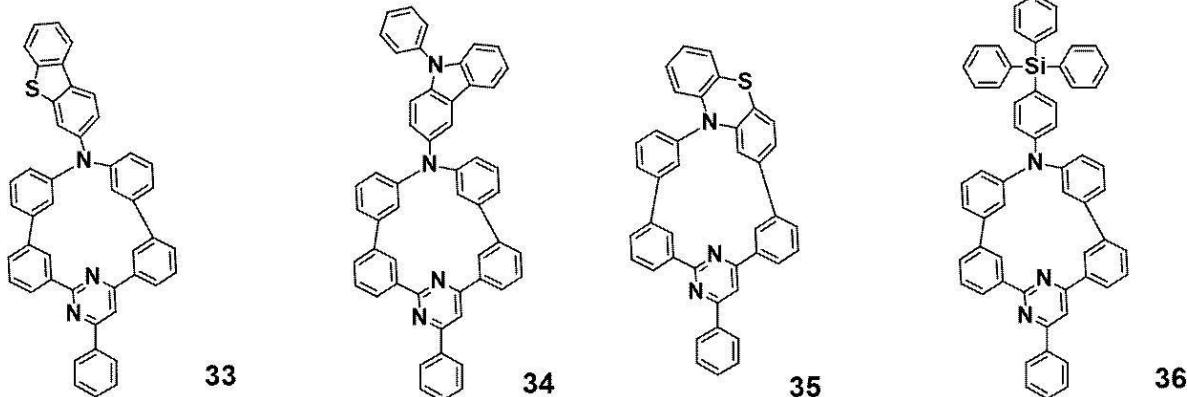
## 【化 1 4】



## 【化 1 5】

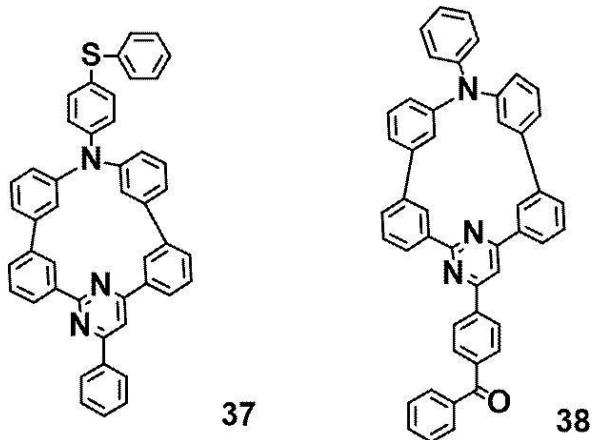


## 【化16】



10

## 【化17】



20

(第1化合物群)

## 【0023】

他の実施形態としては、第1電極と、前記第1電極の上に配置された正孔輸送領域と、前記正孔輸送領域の上に配置され、上述した一実施形態の含窒素化合物を含む発光層と、前記発光層の上に配置された電子輸送領域と、前記電子輸送領域の上に配置された第2電極と、を含む有機EL素子を提供する。また、本発明の一実施形態に係る有機EL素子において、前記第1電極と前記第2電極は、それぞれ独立して、Ag、Mg、Cu、Al、Pt、Pd、Au、Ni、Nd、Ir、Cr、Li、Ca、LiF/Ca、LiF/Al、Mo、Ti、In、Sn、及びZnからなる群から選択されるいずれか一つ、これらの中から選択される複数を含む化合物、これらの中から選択される複数を含む混合物、またはこれらの中から選択される1つ以上の酸化物を含むことができる。

30

## 【0024】

前記発光層は、遅延蛍光を放出するものであってもよい。

## 【0025】

前記発光層は、青色光を放出する熱活性化遅延蛍光発光層であってもよい。

40

## 【0026】

前記発光層はホスト及びドーパントを含み、前記ドーパントは前記化学式1で表される含窒素化合物であってもよい。

## 【0027】

前記ホストは、DPEPO(ビス[2-(ジフェニルホスフィノ)フェニル]エーテルオキシド)、CBP(4,4'-ビス(カルバゾール-9-イル)ビフェニル)、mCP(1,3-ビス(カルバゾール-9-イル)ベンゼン)、PPF(2,8-ビス(ジフェニルホスホリル)ジベンゾ[b,d]フラン)、TCTa(4,4',4'''-トリス(カルバゾール-9-イル)トリフェニルアミン)、TPBi(1,3,5-トリス(N-フェニル

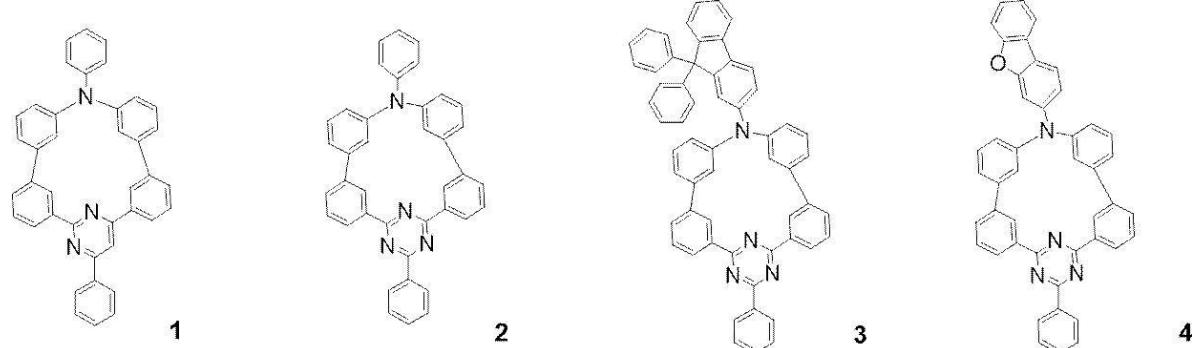
50

ベンズイミダゾール-2-イル)ベンゼン)、mCBP(3,3'-ジ(9H-カルバゾール-9-イル)1,1'-ビフェニル)、及びT2T(2,4,6-トリス(ビフェニル-3-イル)-1,3,5-トリアジン)のうち少なくとも一つを含むものであってもよい。

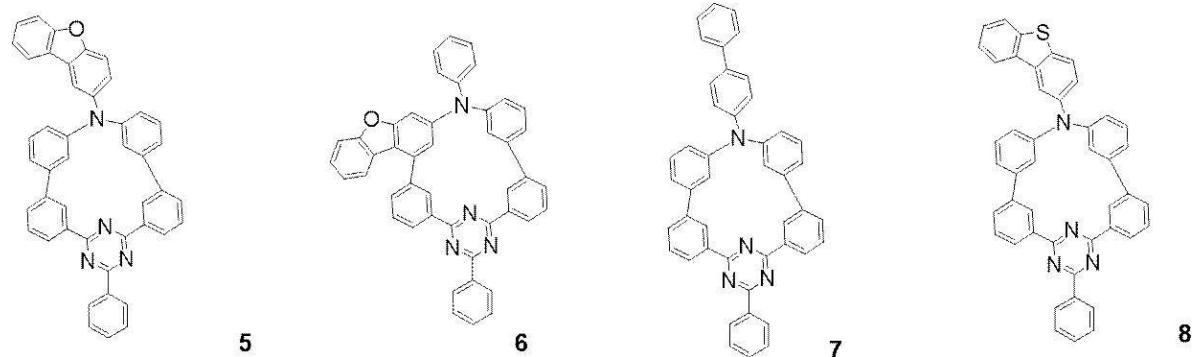
**【0028】**

前記発光層は、下記第1化合物群(1~38)に示した含窒素化合物のうち少なくとも一つを含んでもよい。

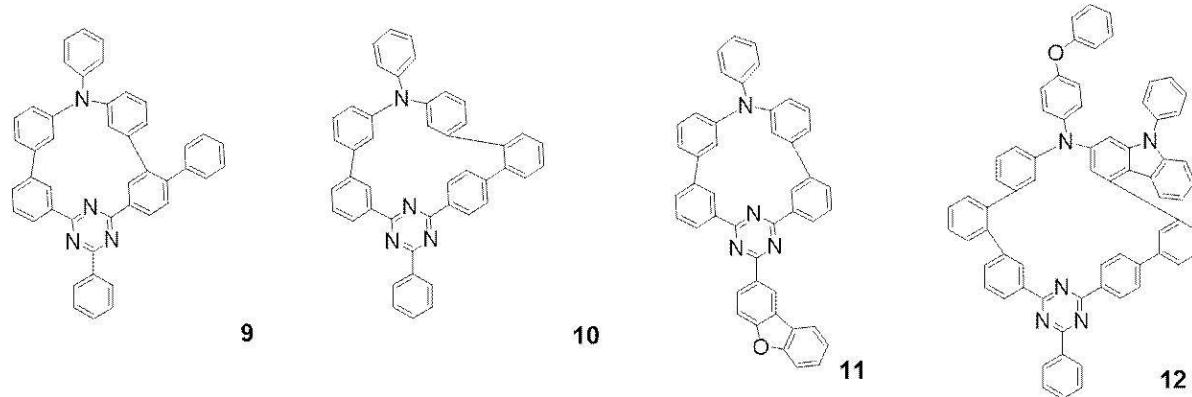
**【化18】**



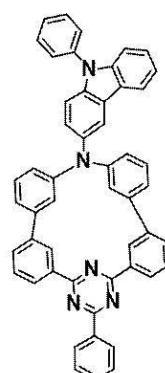
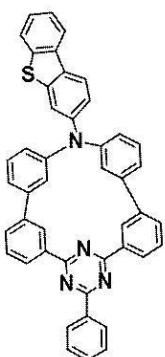
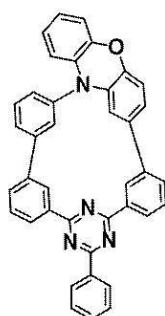
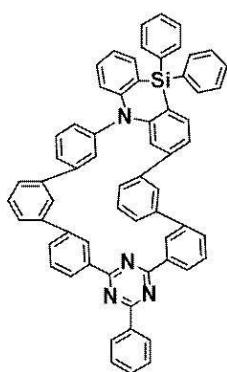
**【化19】**



**【化20】**

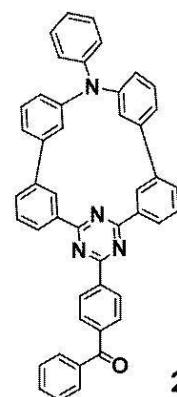
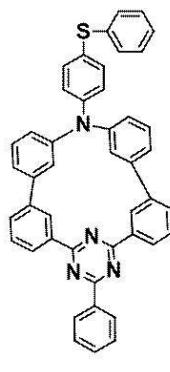
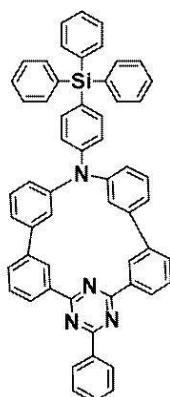
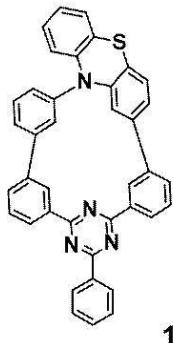


## 【化 2 1】



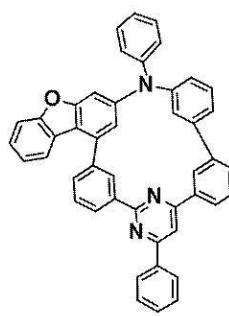
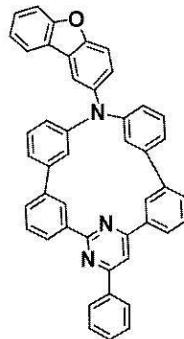
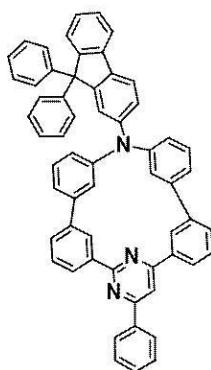
10

## 【化 2 2】



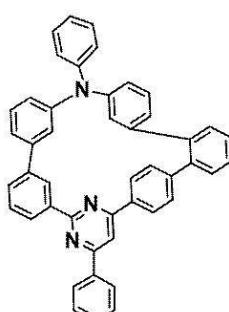
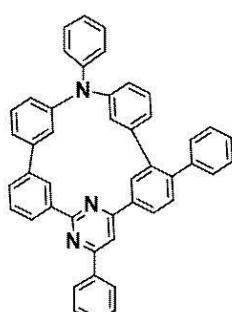
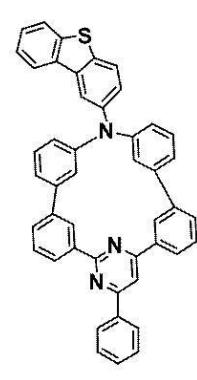
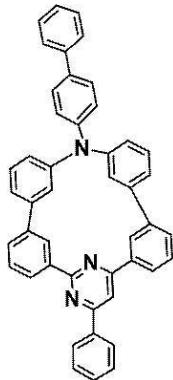
20

## 【化 2 3】



30

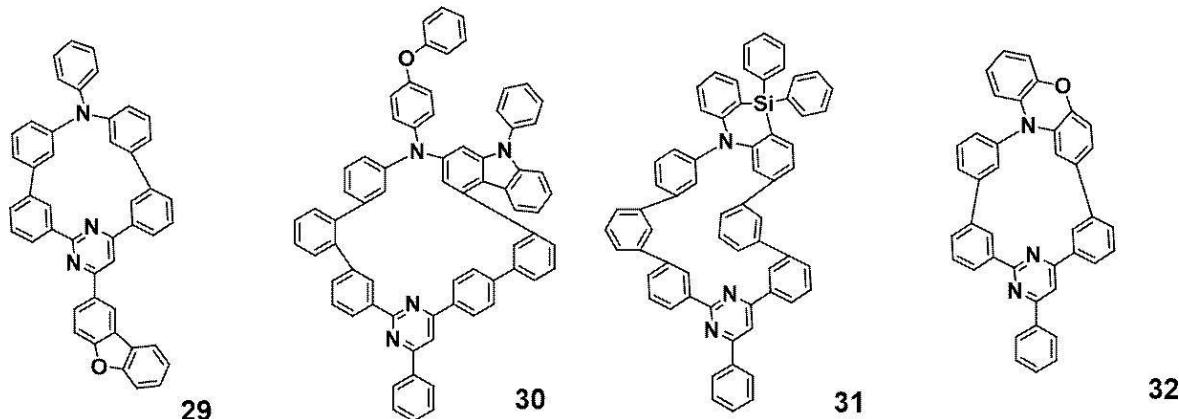
## 【化 2 4】



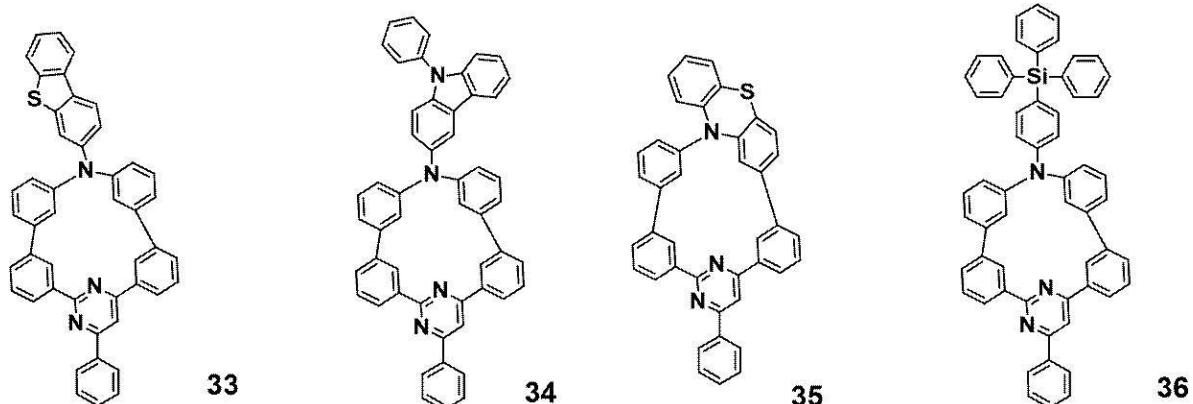
40

50

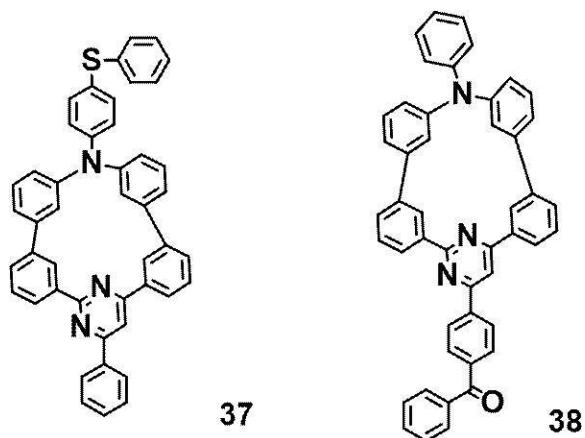
## 【化 2 5】



## 【化 2 6】



## 【化 2 7】



(第1化合物群)

40

## 【発明の効果】

## 【0029】

本発明の一実施形態に係る含窒素化合物は、有機EL素子の発光効率を改善することができる。

## 【0030】

本発明の一実施形態に係る有機EL素子は、発光層に一実施形態に係る含窒素化合物を含むことで高効率を実現することができる。

## 【図面の簡単な説明】

## 【0031】

【図1】本発明の一実施形態に係る有機EL素子を概略的に示す断面図である。

50

【図2】本発明の一実施形態に係る有機EL素子を概略的に示す断面図である。

【図3】本発明の一実施形態に係る有機EL素子を概略的に示す断面図である。

【発明を実施するための形態】

【0032】

本発明は、多様な変更を加えることができ、多様な形態を有することができるゆえ、特定の実施形態を図面に例示し、本文に詳細に説明する。しかし、これは本発明を特定の実施形態に限定するのではなく、本発明の思想及び技術範囲に含まれる全ての変更、均等物または代替物を含むと理解されるべきである。

【0033】

各図面において、類似の構成要素に対して類似の参照符号を使用した。添付した図面において、構造物の寸法は本発明の明確性のために実際より拡大して示している。第1、第2などの用語は多用な構成要素を説明するために使用されるが、構成要素は用語に限定されない。用語は一つの構成要素を他の構成要素から区別する目的にのみ使用される。例えば、本発明の権利範囲を逸脱しないかぎり第1構成要素は第2構成要素と称されてもよく、類似して第2構成要素も第2構成要素と称されてもよい。単数の表現は、文脈上明確に異なるように記載しない限り、複数の表現を含む。

10

【0034】

本出願において、「含む」または「有する」などの用語は明細書の上に記載された特徴、数字、ステップ、動作、構成要素、部品またはこれらを組み合わせたものが存在することを示すものであって、一つまたはそれ以上の他の特徴や数字、ステップ、動作、構成要素、部品またはこれらを組み合わせたものの存在または付加可能性を予め排除しないと理解すべきである。また、層、膜、領域、板などの部分が他の部分の「上」にあるとする場合、これは他の部分の「直上」にある場合だけでなく、その間に他の部分がある場合も含む。

20

【0035】

本明細書において、- \* は結合される位置を意味する。

【0036】

本明細書において、「置換または無置換の」とは重水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、アミノ基、シリル基、ホウ素基、ホスフィンオキシド基、ホスフィンスルフィド基、アルキル基、アリール基、及びヘテロ環基からなる群から選択される一つ以上の置換基に置換されるか、無置換であることを意味する。また、例示された置換基それぞれは、置換または無置換であってもよい。例えば、ビフェニル基はアリール基と解釈されてもよく、フェニル基に置換されたフェニル基と解釈されてもよい。

30

【0037】

本明細書において、ハロゲン原子の例としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、またはヨウ素原子が挙げられる。

【0038】

本明細書において、アルキル基は直鎖、分枝鎖、または環鎖であってもよい。アルキル基の炭素数は、1以上50以下、1以上30以下、1以上20以下、1以上10以下、または1以上6以下で

ある。アルキル基の例としては、メチル基、エチル基、n - プロピル基、イソプロピル基、n - ブチル基、s - ブチル基、t - ブチル基、i - ブチル基、2 - エチルブチル基、3 - 3 - ジメチルブチル基、n - ペンチル基、i - ペンチル基、ネオペンチル基、t - ペンチル基、シクロペンチル基、1 - メチルペンチル基、3 - メチルペンチル基、2 - エチルペンチル基、4 - メチル - 2 - ペンチル基、n - ヘキシル基、1 - メチルヘキシル基、2 - エチルヘキシル基、2 - ブチルヘキシル基、シクロヘキシル基、4 - メチルシクロヘキシル基、4 - t - ブチルシクロヘキシル基、n - ヘプチル基、1 - メチルペプチル基、2 - 2 - ジメチルヘプチル基、2 - エチルヘプチル基、2 - ブチルヘプチル基、n - オクチル基、t - オクチル基、2 - エチルオクチル基、2 - ブチルオクチル基、2 - ヘキシルオクチル基、3 - 7 - ジメチルオクチル基、シクロオクチル基、n - ノニル基、n - デシル基、アダマンチル基、2 - エチルデシル基、2 - ブチルデシル基、2 - ヘキシルデシル基

40

50

、2-オクチルデシル基、n-ウンデシル基、n-ドデシル基、2-エチルドデシル基、2-ブチルドデシル基、2-ヘキシルドデシル基、2-オクチルデシル基、n-トリデシル基、n-テトラデシル基、n-ペンタデシル基、n-ヘキサデシル基、2-エチルヘキサデシル基、2-ブチルヘキサデシル基、2-ヘキシルヘキサデシル基、2-オクチルヘキサデシル基、n-ヘプタデシル基、n-オクタデシル基、n-ノナデシル基、n-イコシル基、2-エチルイコシル基、2-ブチルイコシル基、2-ヘキシルイコシル基、2-オクチルイコシル基、n-ヘンイコシル基、n-ドコシル基、n-トリコシル基、n-テトラコシル基、n-ペンタコシル基、n-ヘキサコシル基、n-ヘプタコシル基、n-オクタコシル基、n-ノナコシル基、及びn-トリアコンチル基などが挙げられるが、これに限定されない。

10

## 【0039】

本明細書において、アリール基は芳香族炭化水素環から誘導された任意の作用基または置換基を意味する。アリール基は、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。アリール基の環を形成する炭素数は、6以上30以下、6以上20以下、または6以上15以下である。アリール基の例としては、フェニル基、ナフチル基、フルオレニル基、アントラセニル基、フェナントリル基、ビフェニル基、テルフェニル基、クアテルフェニル基、キンクフェニル基、セクシフェニル基、トリフェニルエニル基、ピレニル基、ベンゾフルオランテニル基、クリセニル基などが挙げられるが、これに限定されない。

## 【0040】

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

20

## 【0041】

本明細書において、ヘテロアリール基は二重元素としてO、N、P、Si及びSのうち一つ以上を含むヘテロアリール基である。ヘテロアリール基の環を形成する炭素数は、2以上30以下、または2以上20以下である。ヘテロアリール基は、単環式ヘテロアリール基または多環式ヘテロアリール基であってもよい。多環式ヘテロアリール基は、例えば2環または3環構造を有するものであってもよい。ヘテロアリール基の例としては、チオフェニル基、フラニル基、ピロリル基、イミダゾリル基、チアゾリル基、オキサゾリル基、オキサジアゾリル基、トリアゾリル基、ピリジル基、ビピリジル基、ピリミジル基、トリアジニル基、アクリジル基、ピリダジニル基、ピリジニル基、キノリニル基、キナゾリニル基、キノキサリニル基、フェノキサジル基、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、イソキノリニル基、インドリル基、カルバゾリル基、N-アリールカルバゾリル基、N-ヘテロアリールカルバゾリル基、N-アルキルカルバゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾカルバゾリル基、ベンゾチオフェニル基、ジベンゾチオフェニル基、チエノチオフェニル基、ベンゾフラニル基、フェナントロリニル基、チアゾリル基、イソオキサリル基、オキサジアゾリル基、チアジアゾリル基、フェノチアジニル基、ジベンゾシリル基、及びジベンゾフラニル基などが挙げられるが、これに限定されない。

30

## 【0042】

本明細書において、シリル基はアルキルシリル基及びアリールシリル基を含む。シリル基の例としては、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挙げられるが、これに限定されない。

40

## 【0043】

本明細書において、ホウ素基はアルキルホウ素基及びアリールホウ素基を含む。ホウ素基の例としては、トリメチルホウ素基、トリエチルホウ素基、t-ブチルジメチルホウ素基、トリフェニルホウ素基、ジフェニルホウ素基、フェニルホウ素基などが挙げられるが、これに限定されない。

## 【0044】

本明細書において、アルケニル基は直鎖または分枝鎖であってもよい。炭素数は特に限定

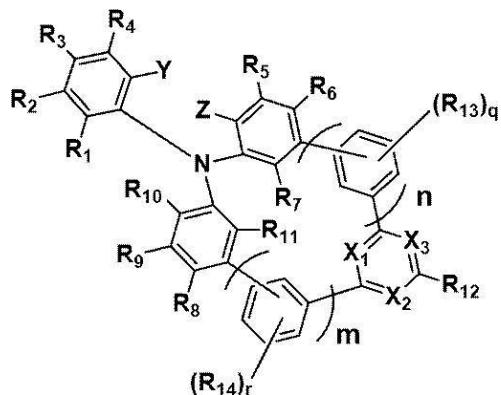
50

されないが、2以上30以下、2以上20以下、または2以上10以下である。アルケニル基の例としては、ビニル基、1-ブテニル基、1-ペンテニル基、1、3-ブタジエニルアリール基、スチレニル基、スチリルビニル基などが挙げられるが、これに限定されない。以下、一実施形態による含窒素化合物について説明する。

#### 【0045】

一実施形態による含窒素化合物は、下記化学式1で表される。

#### 【化28】



(化学式1)

#### 【0046】

化学式1において、 $X_1$ 、 $X_2$ 、及び $X_3$ のうち少なくとも2つはNで残りはCR<sub>15</sub>である。 $Y$ 及び $Z$ はそれぞれ独立して水素原子、重水素原子、OR<sub>16</sub>、SR<sub>17</sub>、CR<sub>18</sub>R<sub>19</sub>R<sub>20</sub>、もしくはSiR<sub>21</sub>R<sub>22</sub>R<sub>23</sub>であるか、または互いに結合して環を形成する。化学式1において、R<sub>1</sub>からR<sub>14</sub>はそれぞれ独立して水素原子、重水素原子、OR<sub>24</sub>、SR<sub>25</sub>、(C=O)R<sub>26</sub>、NR<sub>27</sub>R<sub>28</sub>、CR<sub>29</sub>R<sub>30</sub>R<sub>31</sub>、SiR<sub>32</sub>R<sub>33</sub>R<sub>34</sub>、置換もしくは無置換の炭素数1以上20以下のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、もしくは置換もしくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であるか、または隣接する基と互いに結合して環を形成する。また、R<sub>15</sub>からR<sub>34</sub>はそれぞれ独立して水素原子、重水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、置換もしくは無置換のシリル基、置換もしくは無置換の炭素数1以上20以下のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、もしくは置換もしくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であるか、または隣接する基と互いに結合して環を形成する。

#### 【0047】

化学式1において、n及びmはそれぞれ独立して1または2であり、qまたはrはそれぞれ独立して0以上4以下の整数である。

#### 【0048】

化学式1で表される一実施形態の含窒素化合物は、環内に窒素原子を含む環状分子構造を有するものであってもよい。一実施形態の含窒素化合物は、アリールアミノ基及び芳香族環で2つまたは3つの窒素原子を含むアジン基を含む環状分子構造を有する化合物であってもよい。環状の一実施形態の含窒素化合物において、アリールアミノ基の窒素原子とアジン基の間には、複数個の置換または無置換のアリーレン基が配置されてもよい。置換または無置換のアリーレン基は、アリールアミノ基の窒素原子とアジン基を連結する連結基(linker)であってもよい。

#### 【0049】

化学式1で表される一実施形態の含窒素化合物において、アリールアミノ基に当たる

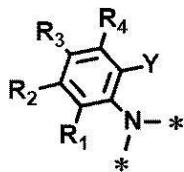
10

20

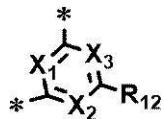
30

40

50



の部分は電子供与部 (electron donor) であり、アジン基に当たる



10

の部分は電子受容部 (electron acceptor) であってもよい。しかしながら、本発明の一実施形態はこれに限定されない。

#### 【0050】

化学式1において、Y及びZはそれぞれ独立して水素原子、重水素原子、OR<sub>16</sub>、SR<sub>17</sub>、CR<sub>18</sub>R<sub>19</sub>R<sub>20</sub>、またはSiR<sub>21</sub>R<sub>22</sub>R<sub>23</sub>であってもよい。例えば、Y及びZは水素原子であってもよい。また、R<sub>16</sub>からR<sub>23</sub>は置換または無置換のフェニル基であってもよい。

#### 【0051】

一方、Y及びZがそれぞれ独立してCR<sub>18</sub>R<sub>19</sub>R<sub>20</sub>、もしくはSiR<sub>21</sub>R<sub>22</sub>R<sub>23</sub>であれば、R<sub>18</sub>、R<sub>19</sub>、R<sub>20</sub>のうち隣り合う2つの置換基は互いに結合して環を形成するか、または、R<sub>21</sub>、R<sub>22</sub>、R<sub>23</sub>のうち隣り合う2つの置換基は互いに結合して環を形成してもよい。また、YとZは互いに結合して環を形成する。例えば、YとZの隣り合う置換基は互いに結合してヘテロ環を形成してもよい。

20

#### 【0052】

化学式1のR<sub>1</sub>からR<sub>14</sub>はそれぞれ独立して水素原子、重水素原子、OR<sub>24</sub>、SR<sub>25</sub>、(C=O)R<sub>26</sub>、NR<sub>27</sub>R<sub>28</sub>、CR<sub>29</sub>R<sub>30</sub>R<sub>31</sub>、SiR<sub>32</sub>R<sub>33</sub>R<sub>34</sub>、置換もしくは無置換の炭素数1以上20以下のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、もしくは置換もしくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であってもよい。例えば、R<sub>1</sub>からR<sub>14</sub>はそれぞれ独立して水素原子、重水素原子、OR<sub>24</sub>、SR<sub>25</sub>、(C=O)R<sub>26</sub>、NR<sub>27</sub>R<sub>28</sub>、CR<sub>29</sub>R<sub>30</sub>R<sub>31</sub>、SiR<sub>32</sub>R<sub>33</sub>R<sub>34</sub>、または置換もしくは無置換のフェニル基であってもよい。

30

#### 【0053】

一方、R<sub>24</sub>からR<sub>34</sub>は隣り合う置換基と結合して環を形成してもよい。例えば、R<sub>24</sub>からR<sub>34</sub>は、それぞれ独立して水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1以上20以下のアルキル基、または置換もしくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基であってもよい。詳しくは、R<sub>24</sub>からR<sub>34</sub>は、それぞれ独立して水素原子、メチル基、またはフェニル基であってもよい。

30

#### 【0054】

一方、化学式1において、R<sub>1</sub>からR<sub>14</sub>は隣り合う置換基を互いに結合して環を形成してもよい。例えば、R<sub>1</sub>からR<sub>14</sub>において隣り合う置換基を互いに結合して置換もしくは無置換のフルオレン、置換もしくは無置換のジベンゾチオフェン、置換もしくは無置換のジベンゾフラン、または置換もしくは無置換のカルバゾールなどを形成してもよい。

40

#### 【0055】

化学式1において、R<sub>12</sub>は置換または無置換のフェニル基であってもよい。例えば、R<sub>12</sub>は無置換のフェニル基であってもよい。また、化学式1において、R<sub>12</sub>は置換または無置換ジベンゾフラニル基であってもよいが、例えば、R<sub>12</sub>は無置換のジベンゾフラニル基であってもよい。

#### 【0056】

50

一方、化学式1において、q及びrはそれぞれ独立して0以上4以下の整数であってもよいが、q及びrが2以上の整数であれば、それぞれ複数のR<sub>13</sub>と複数のR<sub>14</sub>は同じであってもよいし、互いに異なってもよい。

**【0057】**

化学式1において、X<sub>1</sub>からX<sub>3</sub>のうち少なくとも2つはNであってもよい。例えば、X<sub>1</sub>はNで、X<sub>2</sub>及びX<sub>3</sub>のうち少なくとも一つはNであってもよい。詳しくは、X<sub>1</sub>からX<sub>2</sub>がNでX<sub>3</sub>はC R<sub>15</sub>であってもよく、X<sub>1</sub>からX<sub>3</sub>がNでX<sub>2</sub>がC R<sub>15</sub>であってもよく、またはX<sub>1</sub>からX<sub>3</sub>が全てNであってもよい。つまり、化学式1において、X<sub>1</sub>からX<sub>3</sub>を含むヘテロ環はピジミジンまたはトリアジンであってもよい。

**【0058】**

化学式1において、X<sub>1</sub>からX<sub>3</sub>のうち2つがNで残りがC R<sub>15</sub>であれば、R<sub>15</sub>は水素原子、重水素原子、置換もしくは無置換の炭素数1以上20以下のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、または置換もしくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であってもよい。詳しくは、R<sub>15</sub>は水素原子であってもよい。

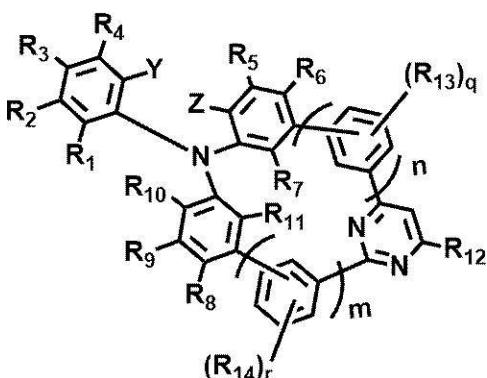
10

**【0059】**

化学式1で表される含窒素化合物は、下記化学式1-1または化学式1-2で表されてもよい。化学式1-1はX<sub>1</sub>およびX<sub>2</sub>がNの場合を、化学式1-2はX<sub>1</sub>からX<sub>3</sub>が全てNの場合を示すものである。

**【化29】**

20

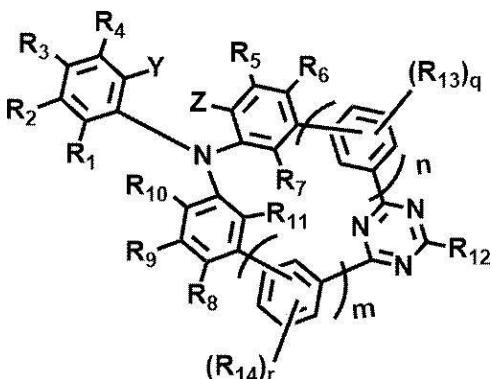


30

(化学式1-1)

**【化30】**

40



(化学式1-2)

**【0060】**

化学式1-1及び化学式1-2において、Y、Z、n、m、R<sub>1</sub>からR<sub>3</sub>、q及びrは、化学式1に関する説明で定義した通りである。

**【0061】**

化学式1で表される一実施形態の含窒素化合物において、n及びmはそれぞれ独立して1

50

または2であってもよい。例えば、n及びmは全て1であるか、またはn及びmのうち少なくとも一つは1で残りは2であってもよく、n及びmが全て2であってもよい。

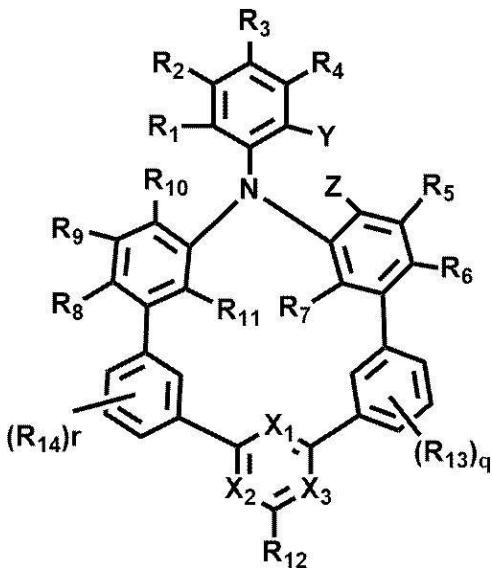
**【0062】**

化学式1において、n及びmが全て1であれば、一実施形態の含窒素化合物は5つの環が連結された環状化合物であってもよい。また、n及びmのうち少なくとも一つは1で残りは2であれば、一実施形態の含窒素化合物は6つの環が連結された環状化合物であってもよく、n及びmが全て2であれば、一実施形態の含窒素化合物は7つの環を有する環状化合物であってもよい。

**【0063】**

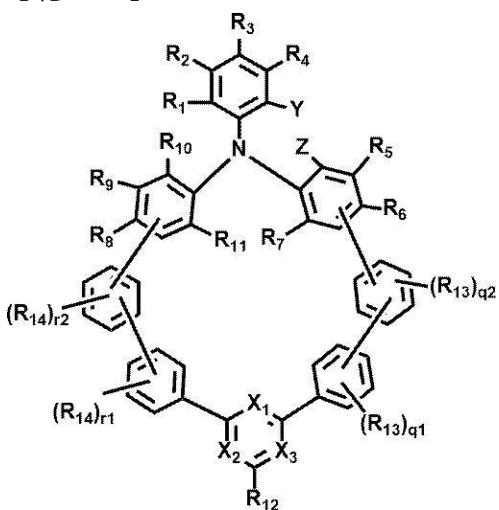
化学式1で表される含窒素化合物は、下記化学式1-3または化学式1-4で表されてもよい。化学式1-3はn及びmが全て1である場合を示し、化学式1-4はn及びmが全て2である場合を示すものである。

**【化31】**



(化学式1-3)

**【化32】**



(化学式1-4)

**【0064】**

化学式1-3及び化学式1-4において、q1、q2、r1、及びr2は、それぞれ独立して0以上4以下の整数である。また、化学式1-3及び化学式1-4において、X1からX3、Y、Z、R1からR34、q及びrは、化学式1に関する説明で定義した通りであ

10

20

30

40

50

る。

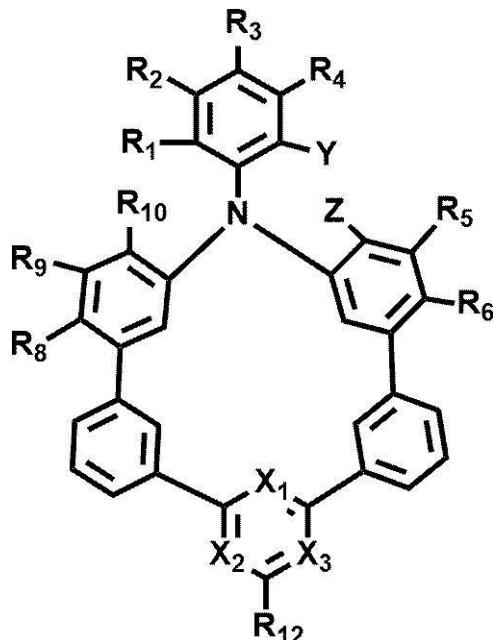
【 0 0 6 5 】

一方、化学式 1 - 3 及び化学式 1 - 4において、q 1、q 2、r 1、及び r 2 がそれぞれ独立して 2 以上の整数であれば、複数の R<sub>13</sub> および複数の R<sub>14</sub> は互いに同じであってもよいし、互いに異なってもよい。

【 0 0 6 6 】

化学式 1 で表される含窒素化合物は、下記化学式 1 - 5 または化学式 1 - 6 で表されてもよい。化学式 1 - 5 は n 及び m が全て 1 である場合を示し、化学式 1 - 6 は n 及び m が全て 2 である場合を示すものである。化学式 1 - 5 は q 及び r が全て 0 である場合を示すものであり、化学式 1 - 6 は q 1、q 2、r 1、及び r 2 が全て 0 である場合を示すものである。また、化学式 1 - 5 及び化学式 1 - 6 は R<sub>7</sub> と R<sub>11</sub> が全て水素原子である場合を示すものである。

【 化 3 3 】



( 化学式 1 - 5 )

10

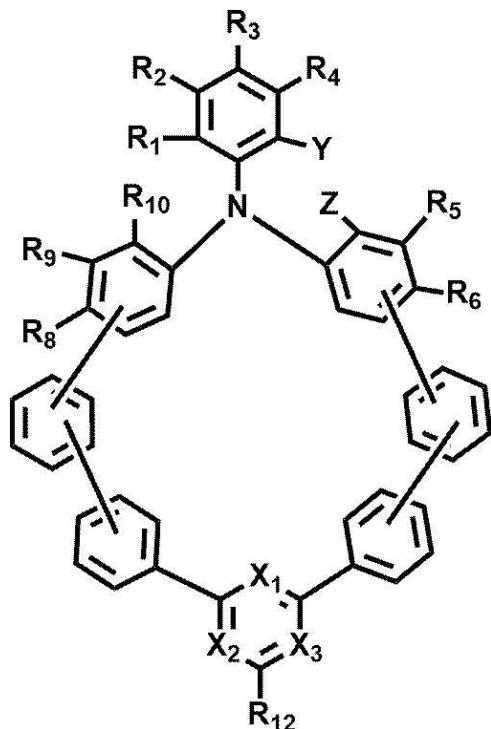
20

30

40

50

## 【化 3 4】



10

20

( 化学式 1 - 6 )

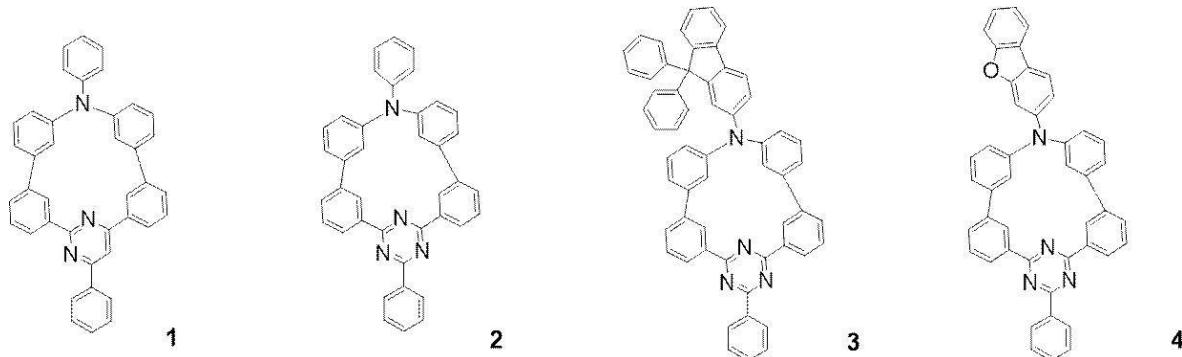
## 【 0 0 6 7 】

化学式 1 - 5 及び化学式 1 - 6 において、 $X_1$  から  $X_3$ 、 $Y$ 、 $Z$ 、 $R_1$  から  $R_6$ 、 $R_8$ 、 $R_9$ 、 $R_{10}$ 、及び  $R_{12}$  は、化学式 1 に関する説明で定義した通りである。

## 【 0 0 6 8 】

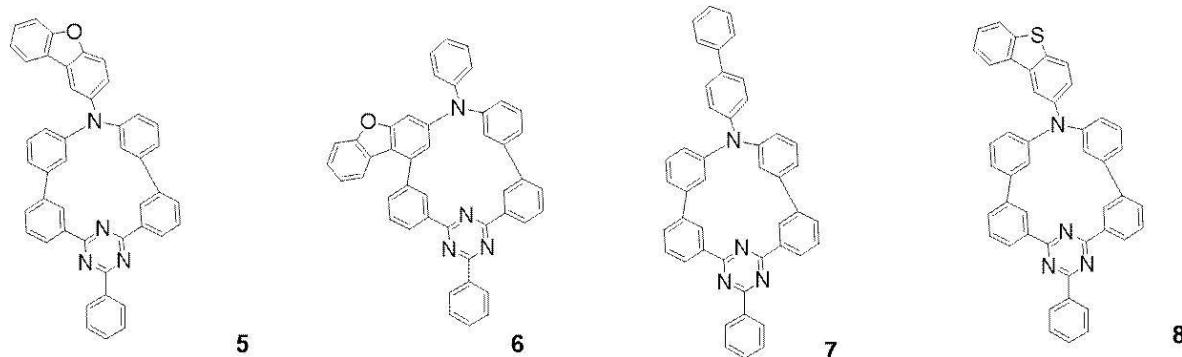
化学式 1 で表される一実施形態の含窒素化合物は、下記第 1 化合物群 ( 1 ~ 3 8 ) に示した化合物のうちいずれか一つで表されるものあってもよい。

## 【化 3 5】



30

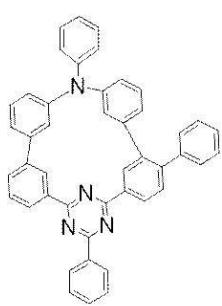
## 【化 3 6】



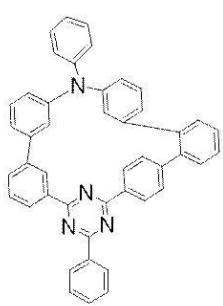
40

50

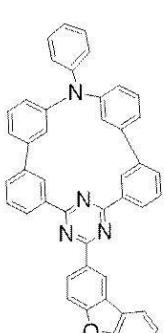
## 【化 3 7】



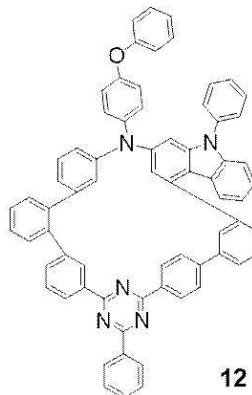
9



10

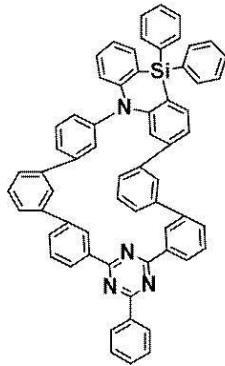


11

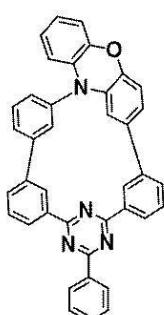


10

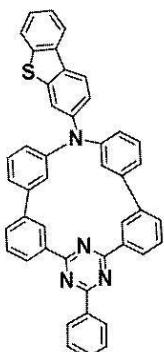
## 【化 3 8】



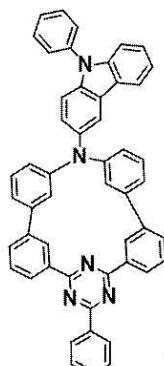
13



14

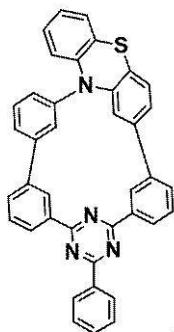


15

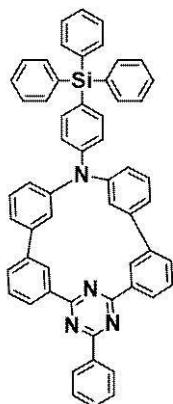


20

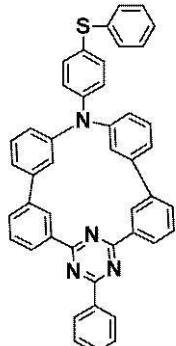
## 【化 3 9】



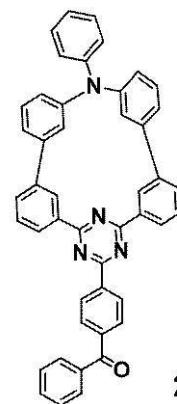
17



18



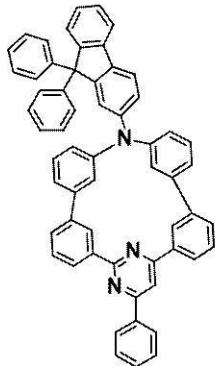
19



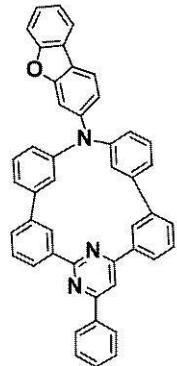
20

30

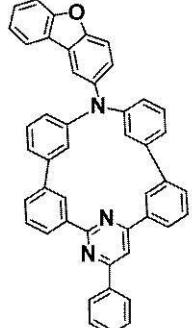
## 【化 4 0】



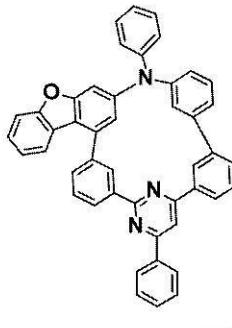
21



22



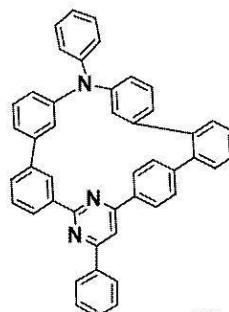
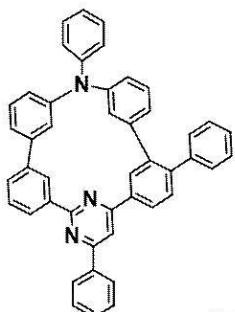
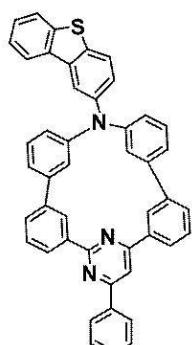
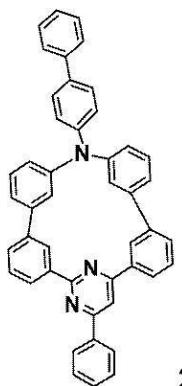
23



24

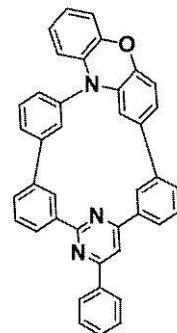
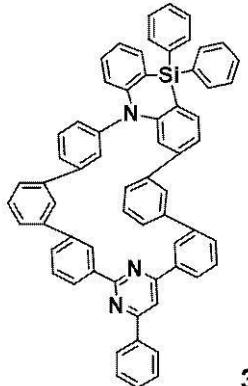
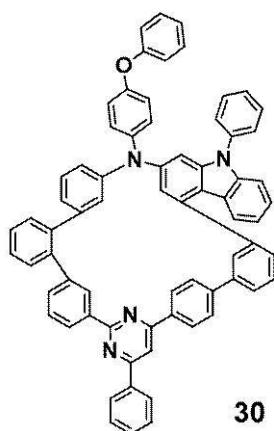
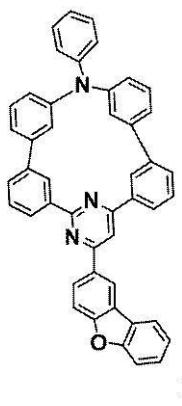
40

## 【化 4 1】



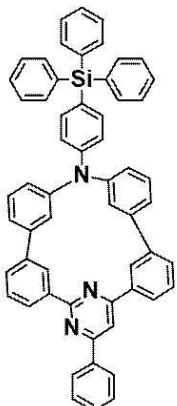
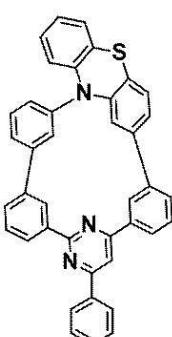
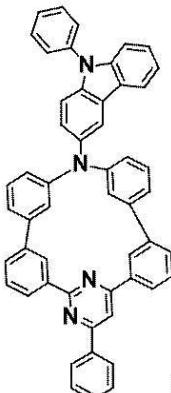
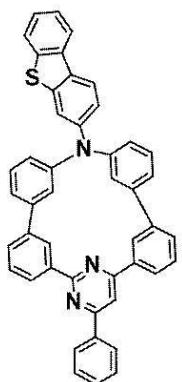
10

## 【化 4 2】



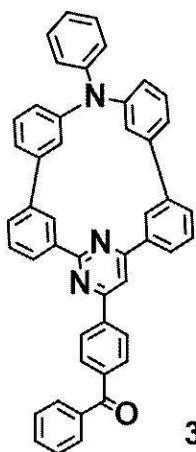
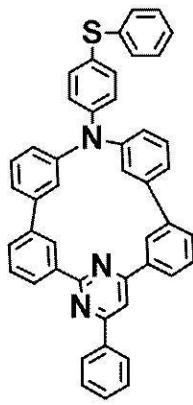
20

## 【化 4 3】



30

## 【化 4 4】



40

50

(第1化合物群)

【0069】

一実施形態の含窒素化合物は、複数個の芳香族環が互いに連結されて含まれた環状の分子構造を有することで、優秀な耐熱性と耐化学性を有することができる。また、一実施形態の含窒素化合物は、環状の分子構造に電子供与性基であるアリールアミノ基と電子受容性基であるアジン基を含むことで、最低励起一重項エネルギー準位  $S_1$  と最低励起三重項エネルギー準位  $T_1$  との差が小さい発光材料を実現することができる。

【0070】

一実施形態の含窒素化合物は、最低励起一重項エネルギー準位  $S_1$  と最低励起三重項エネルギー準位  $T_1$  の差 ( $E_{ST}$ ) が  $0.2\text{ eV}$  以下であってもよい。一実施形態の含窒素化合物は、遅延蛍光発光材料として使用されてもよい。詳しくは、一実施形態の含窒素化合物は小さい  $E_{ST}$  値を有することで、熱活性化遅延蛍光発光 (TADF) 材料として使用されてもよい。

10

【0071】

上述した一実施形態の含窒素化合物は、有機EL素子に使用されて、有機EL素子の発光効率を改善することができる。一実施形態の含窒素化合物は、有機EL素子の向かい合う電極の間に配置される発光層の材料として使用されて、有機EL素子の発光効率を改善することができる。詳しくは、一実施形態の含窒素化合物は、熱活性化遅延蛍光ドーパントとして発光層に含まれて、有機EL素子の発光効率をより改善することができる。特に、青色光を発光する発光層に使用されて、青色光の発光効率をより改善することができる。

20

【0072】

以下では、本発明の一実施形態による有機EL素子について説明する。以下では上述した本発明の一実施形態による含窒素化合物については詳しく説明しないが、説明されていない部分は上述した本発明の一実施形態による含窒素化合物の説明に従う。

【0073】

図1から図3は、本発明の一実施形態による有機EL素子を概略的に示す断面図である。図1から図3を参照すると、本発明の一実施形態による有機EL素子10は、順番に積層された第1電極EL1、正孔輸送領域HTR、発光層EML、電子輸送領域ETR、及び第2電極EL2を含む。

30

【0074】

第1電極EL1及び第2電極EL2は互いに対向して配置され、第1電極EL1と第2電極EL2の間には複数の有機層が配置される。複数の有機層は正孔輸送領域HTR、発光層EML、及び電子輸送領域ETRを更に含む。一実施形態の有機EL素子10は、発光層EMLに上述した一実施形態の含窒素化合物を含む。

【0075】

図1と比較して、図2における一実施形態の有機EL素子10は、正孔輸送領域HTRが正孔注入層HIL及び正孔輸送層HTLを含み、電子輸送領域ETRが電子注入層EIL及び電子輸送層ETLを含む。また、図1と比較して、図3における一実施形態の有機EL素子10は、正孔輸送領域HTRが正孔注入層HIL、正孔輸送層HTL、及び電子阻止層EBLを含み、電子輸送領域ETRが電子注入層EIL、電子輸送層ETL、及び正孔阻止層HBLを含む。

40

【0076】

第1電極EL1は導電性を有する。第1電極層EL1は金属合金または導電性化合物から構成される。第1電極層EL1はアノード(anode)である。

【0077】

第1電極EL1は、透過型電極、半透過型電極、または反射型電極である。第1電極EL1が透過型電極である場合、第1電極EL1は、透明金属酸化物、例えば、ITO(indium tin oxide)、IZO(indium zinc oxide)、ZnO(zinc oxide)、ITZO(indium tin zinc oxide)などから構成される。第1電極EL1が半透過型電極または反射型電極である場合、第1

50

電極 E L 1 は、 A g 、 M g 、 C u 、 A l 、 P t 、 P d 、 A u 、 N i 、 N d 、 I r 、 C r 、 L i 、 C a 、 L i F / C a 、 L i F / A l 、 M o 、 T i 、 またはこれらの化合物や混合物（例えば、 A g と M g の合金）を含む。また、例示された物質で形成された反射膜や、半透過膜、及び I T O 、 I Z O 、 Z n O 、 I T Z O などで形成された透明導電膜を含む複数の層構造であってもよい。例えば、第 1 電極 E L 1 は I T O / A g / I T O の複数の層を含むものであってもよい。

#### 【 0 0 7 8 】

正孔輸送領域 H T R は第 1 電極 E L 1 の上に提供される。正孔輸送領域 H T R は、正孔注入層 H I L 、正孔輸送層 H T L 、正孔バッファ層及び電子阻止層 E B L のうち少なくとも一つを含む。  
10

正孔輸送領域 H T R は、単一物質で形成された单一層、複数の互いに異なる物質で形成された单一層、または複数の互いに異なる物質で形成された複数の層を有する多層構造を有する。

#### 【 0 0 7 9 】

例えば、正孔輸送領域 H T R は正孔注入層 H I L または正孔輸送層 H T L の单一層の構造を有してもよく、正孔注入物質と正孔輸送物質で形成された单一構造を有してもよい。また、正孔輸送領域 H T R は、複数の互いに異なる物質で形成された单一層の構造を有するか、第 1 電極 E L 1 から順番に積層された正孔注入層 H I L / 正孔輸送層 H T L 、正孔注入層 H I L / 正孔輸送層 H T L / 正孔バッファ層、正孔注入層 H I L / 正孔バッファ層、正孔輸送層 H T L / 正孔バッファ層、または正孔注入層 H I L / 正孔輸送層 H T L / 電子阻止層 E B L の構造を有してもよいが、本実施形態はこれに限定されない。  
20

#### 【 0 0 8 0 】

正孔輸送領域 H T R は、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、L B 法 ( L a n g m u i r - B l o d g e t t ) 、インクジェットプリント法、レーザプリント法、レーザ熱転写法 ( L a s e r I n d u c e d T h e r m a l I m a g i n g 、 L I T I ) などのような多様な方法を利用して形成することができる。

#### 【 0 0 8 1 】

一実施形態の有機 E L 素子 1 0 の正孔注入層 H I L は、公知の正孔注入材料を含む。例えば、正孔注入層 H I L は、トリフェニルアミン含有ポリエーテルケトン ( T P A P E K ) 、 4 - イソプロピル - 4 ' - メチルジフェニルヨードニウムテトラキス ( ペンタフルオロフェニル ) ボラート ( P P B I ) 、 N , N ' - ジフェニル - N , N ' - ビス - [ 4 - ( フェニル - m - トリル - アミノ ) - フェニル ] - ビフェニル - 4 , 4 ' - ジアミン ( D N T P D ) 、銅フタロシアニンなどのフタロシアニン化合物、 4 , 4 , ' 4 " - トリス ( 3 - メチルフェニルフェニルアミノ ) トリフェニルアミン ( m - M T D A T A ) 、 N , N ' - ジ ( 1 - ナフチル ) - N , N ' - ジフェニルベンジジン ( N P B ) 、 N , N ' - ビス ( 1 - ナフチル ) N , N ' - ジフェニル - 4 , 4 ' - ジアミン ( - N P D ) 、 4 , 4 ' , 4 " - トリス { N , N ディフェニルアミノ } トリフェニルアミン ( T D A T A ) 、 4 , 4 ' , 4 " - トリス ( N , N - 2 - ナフチルフェニルアミノ ) トリフェニルアミン ( 2 - T N A T A ) 、ポリアニリン / ドデシルベンゼンスルホン酸 ( P A N I / D B S A ) 、ポリ ( 3 , 4 - エチレンジオキシチオフェン ) / ポリ ( 4 - スチレンスルホナート ) ( P E D O T / P S S ) 、ポリアニリン / カンファースルホン酸 ( P A N I / C S A ) 、ポリアニリン / ポリ ( 4 - スチレンスルホナート ) ( P A N I / P S S ) 、またはジピラジノ [ 2 , 3 - f : 2 ' , 3 ' - h ] キノキサリン - 2 、 3 、 6 、 7 、 1 0 、 1 1 - ヘキサカルボニトリル ( H A T - C N ) などを含んでもよい。しかし、本実施形態はこれに限定されない。  
30  
40

#### 【 0 0 8 2 】

一実施形態の有機 E L 素子 1 0 の正孔輸送層 H T L は、公知の正孔輸送材料を含む。例えば、正孔輸送層 H T L は、 1 , 1 - ビス [ ( ジ - 4 - トリルアミノ ) フェニル ] シクロヘキサン ( T A P C ) 、 N - フェニルカルバゾール、ポリビニルカルバゾールなどのカルバゾール系誘導体、 N , N ' - ビス ( 3 - メチルフェニル ) - N , N ' - ジフェニル - [ 1 , 1 - ピフェニル ] - 4 , 4 ' - ジアミン ( T P D ) 、 4 , 4 ' , 4 " - トリス ( N - カルバゾ  
50

リル)トリフェニルアミン( T C T A )、またはN,N'-ジ(1-ナフチル)-N,N'-ジフェニルベンジジン( N P B )、N,N'-ビス(1-ナフチル)-N,N'-ジフェニル-4,4'-ジアミン( - N P D )などを含んでもよい。しかし、実施例はこれに限定されない。

#### 【 0 0 8 3 】

電子阻止層E B Lは、当該技術分野で知られている一般的な材料を含む。電子阻止層E B Lは、例えば、N-フェニルカルバゾール、ポリビニルカルバゾールなどのカルバゾール系誘導体、フルオレン系誘導体、N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-N,N'-ジフェニル-[1,1-ビフェニル]-4,4'-ジアミン( T P D )、4,4',4"-トリス( N-カルバゾリル)トリフェニルアミン( T C T A )などのようなトリフェニルアミン系誘導体、N,N'-ジ(ナフタレン-1-イル)-N,N'-ジフェニル-ベンジジン( N P D )、4,4'-シクロヘキシリデンビス[ N,N'-ビス(4-メチルフェニル)ベンゼンアミン]( T A P C )、4,4'-ビス[ N,N'-(3-トリル)アミノ]-3,3'-ジメチルビフェニル( H M T P D )、または1,3-ビス(カルバゾール-9-イル)ベンゼン( m C P )などを含んでもよい。また、電子阻止層E B Lは本発明の一実施形態による含窒素化合物を含んでもよい。

#### 【 0 0 8 4 】

正孔輸送領域H T Rの厚さは、約10nmから約1000nm、例えば約10nmから約500nmであってもよい。正孔注入層H I Lの厚さは、例えば約3nmから約100nmであり、正孔輸送層H T Lの厚さは、約3nmから約100nmであってもよい。例えば、電子阻止層E B Lの厚さは、例えば約1nmから約100nmであってもよい。正孔輸送領域H T R、正孔注入層H I L、正孔輸送層H T L、及び電子阻止層E B Lの厚さが上述したような範囲を満たす場合、実質的な駆動電圧の上昇なしに満足できる程度の正孔輸送特性が得られる。

#### 【 0 0 8 5 】

正孔輸送領域H T Rは、上述した物質以外に導電性を向上するために電荷生成物質を更に含んでもよい。電荷発生物質は、正孔輸送領域H T R内に均一または不均一に分散されていてもよい。電荷発生物質は、例えば、p-ドーパントである。p-ドーパントは、キノン誘導体、金属酸化物、及びシアノ基含有化合物のうちいずれか一つであってもよいが、これに限定されない。例えば、p-ドーパントの非制限的な例としては、T C N Q(テトラシアノキノジメタン)及びF 4-T C N Q(2,3,5,6-テトラフルオロ-テトラシアノキノジメタン)などのようなキノン誘導体、タンゲステン酸化物及びモリブデン酸化物のような金属酸化物などが挙げられるが、これに限定されない。

#### 【 0 0 8 6 】

上述したように、正孔輸送領域H T Rは、正孔輸送層H T L及び正孔注入層H I L以外に、正孔バッファ層及び電子阻止層E B Lのうち少なくとも一つを更に含んでもよい。正孔バッファ層は、発光層E M Lから放出される光の波長による共振距離を補償して光放出効率を増加させることができる。正孔バッファ層に含まれる物質としては、正孔輸送領域H T Rに含まれ得る物質を使用してもよい。

#### 【 0 0 8 7 】

一方、正孔輸送領域H T Rは電子阻止層E B Lを更に含み、電子阻止層E B Lは正孔輸送層H T Lと発光層E M Lの間に配置されてもよい。電子阻止層E B Lは、電子輸送領域E T Rから正孔輸送領域H T Rへの電子の注入を防止する役割をする。

#### 【 0 0 8 8 】

発光層E M Lは正孔輸送領域H T Rの上に提供される。発光層E M Lの厚さは、例えば、約10nmから約30nmであってもよい。発光層E M Lは、単一物質で形成された単一層、複数の互いに異なる物質で形成された単一層、または複数の互いに異なる物質で形成された複数の層を有する多層構造を有する。

#### 【 0 0 8 9 】

発光層E M Lは、赤色光、緑色光、青色光、白色光、黄色光、シアン光のうち一つを発光

10

20

30

40

50

するものであってもよい。発光層 EML は、蛍光発光物質またはりん光発光物質を含んでよい。

**【0090】**

一実施形態の有機EL素子10において、発光層EMLは蛍光発光層であってもよい。一実施形態の有機EL素子10において、発光層EMLは青色光を放出する蛍光発光層であってもよい。例えば、発光層EMLから放出された光のうち一部は熱活性化遅延蛍光発光によるものであってもよい。詳しくは、一実施形態の有機EL素子10の発光層EMLは熱活性化遅延蛍光を発光する発光成分を含むものであってもよく、一実施形態の有機EL素子10の発光層EMLは熱活性化遅延蛍光を発光する青色光発光層であってもよい。

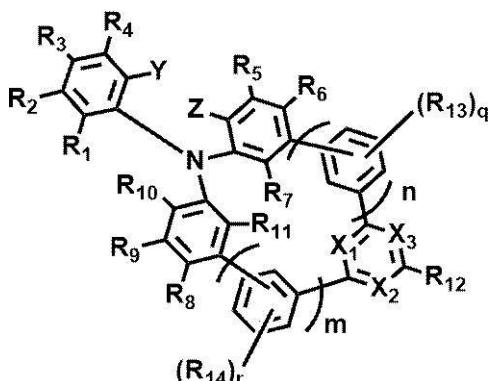
**【0091】**

一方、一実施形態の有機EL素子10において、発光層EMLはホスト及びドーパントを含むものであってもよい。ドーパントは、一実施形態の含窒素化合物を含むものであってもよい。この際、発光層EMLは、例えば10nm以上60nm以下の厚さを有してもよい。

**【0092】**

一実施形態の有機EL素子10において、発光層EMLは上述した一実施形態の含窒素化合物を含むものであってもよい。一実施形態の有機EL素子は、下記化学式1で表される含窒素化合物を発光層EMLに含んで蛍光発光するものであってもよい。

**【化45】**



10

20

(化学式1)

**【0093】**

化学式1において、 $X_1$ 、 $X_2$ 、及び $X_3$ のうち少なくとも2つはNで残りはCR<sub>15</sub>である。 $Y$ 及び $Z$ はそれぞれ独立して水素原子、重水素原子、OR<sub>16</sub>、SR<sub>17</sub>、CR<sub>18</sub>R<sub>19</sub>R<sub>20</sub>、もしくはSiR<sub>21</sub>R<sub>22</sub>R<sub>23</sub>であるか、または互いに結合して環を形成する。化学式1において、R<sub>1</sub>からR<sub>14</sub>はそれぞれ独立して水素原子、重水素原子、OR<sub>24</sub>、SR<sub>25</sub>、(C=O)R<sub>26</sub>、NR<sub>27</sub>R<sub>28</sub>、CR<sub>29</sub>R<sub>30</sub>R<sub>31</sub>、SiR<sub>32</sub>R<sub>33</sub>R<sub>34</sub>、置換もしくは無置換の炭素数1以上20以下のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、もしくは置換もしくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であるか、または隣接する基と互いに結合して環を形成する。また、R<sub>15</sub>からR<sub>34</sub>はそれぞれ独立して水素原子、重水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、置換もしくは無置換のシリル基、置換もしくは無置換の炭素数1以上20以下のアルキル基、置換もしくは無置換の環形成炭素数6以上30以下のアリール基、もしくは置換もしくは無置換の環形成炭素数2以上30以下のヘテロアリール基であるか、または隣接する基と互いに結合して環を形成する。

30

40

**【0094】**

化学式1において、n及びmはそれぞれ独立して1または2であり、qまたはrはそれぞれ独立して0以上4以下の整数である。

**【0095】**

一実施形態の有機EL素子10に使用された化学式1で表される含窒素化合物に関する説

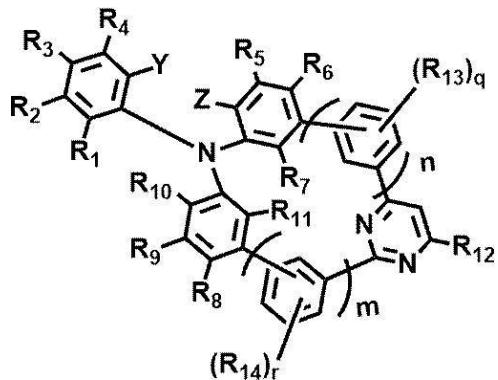
50

明において、 $X_1$ から $X_3$ 、Y、Z、 $R_1$ から $R_{34}$ 、n、m、q及びrについては上述した一実施形態の含窒素化合物に関する説明と同じ内容が適用されてもよい。

**【0096】**

また、一実施形態の有機EL素子10において、発光層EMLは下記化学式1-1または化学式1-2で表される含窒素化合物を含むものであってもよい。

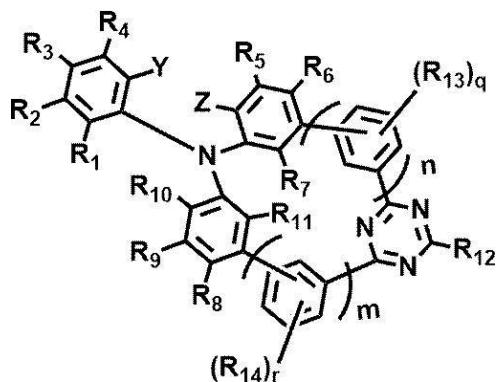
**【化46】**



10

(化学式1-1)

**【化47】**



20

(化学式1-2)

**【0097】**

化学式1-1及び化学式1-2において、Y、Z、n、m、 $R_1$ から $R_{34}$ 、q及びrは、化学式1に関する説明で定義した通りである。

**【0098】**

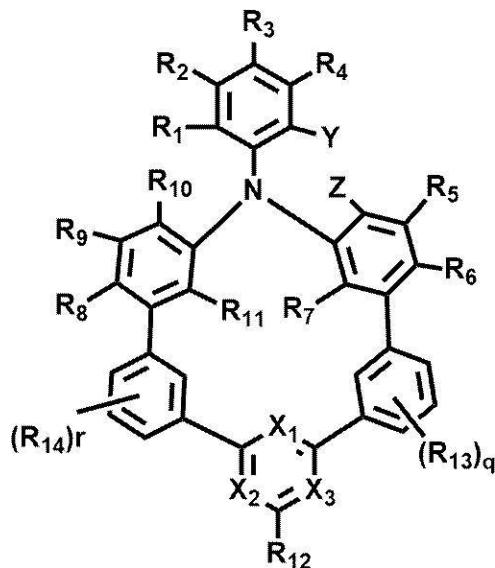
また、一実施形態の有機EL素子10において、発光層EMLは下記化学式1-3または化学式1-6で表されるいずれか一つで表される含窒素化合物を含むものであってもよい。

30

40

50

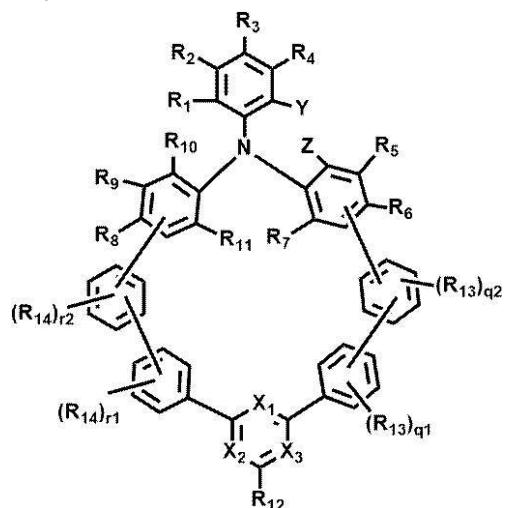
【化 4 8】



10

( 化学式 1 - 3 )

【化 4 9】



20

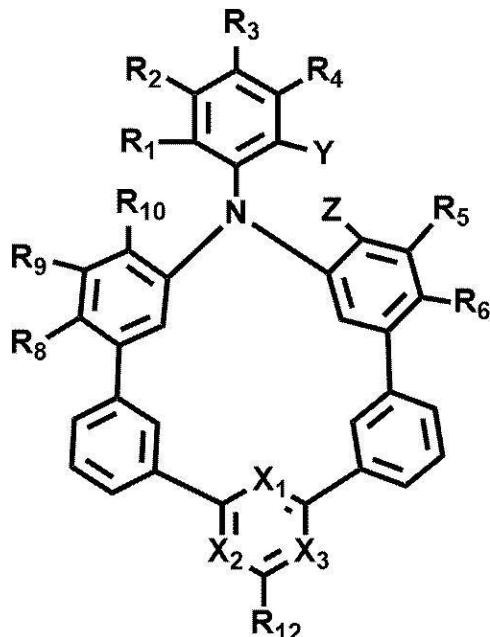
30

( 化学式 1 - 4 )

40

50

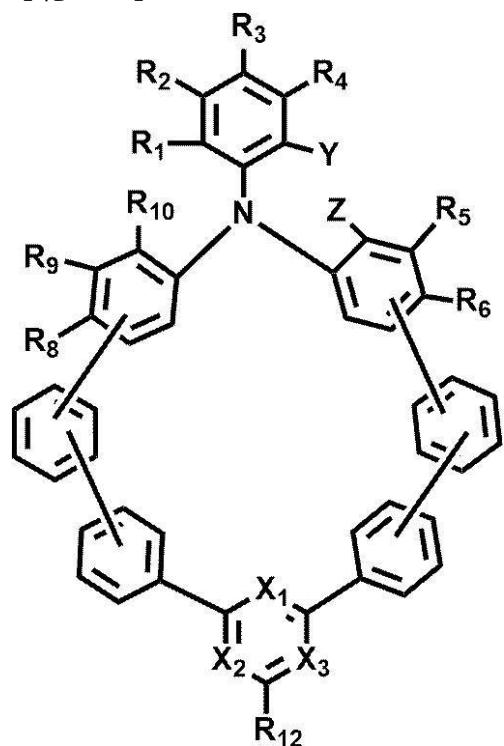
【化 5 0】



10

( 化学式 1 - 5 )

【化 5 1】



20

30

( 化学式 1 - 6 )

【 0 0 9 9 】

化学式 1 - 3 及び化学式 1 - 4 において、 $q_1$ 、 $q_2$ 、 $r_1$ 、及び  $r_2$  は、それぞれ独立して 0 以上 4 以下の整数である。また、化学式 1 - 3 から化学式 1 - 6 において、 $X_1$  から  $X_3$ 、 $Y$ 、 $Z$ 、 $R_1$  から  $R_{34}$ 、 $q$  及び  $r$  は、化学式 1 に関する説明と同じ内容が適用されてもよい。

【 0 1 0 0 】

一実施形態の有機 E L 素子 1 0 は、化学式 1 で表される含窒素化合物を発光層 E M L に含んで遅延蛍光発光するものであってもよい。例えば、一実施形態の有機 E L 素子 1 0 は、化学式 1 で表される一実施形態の含窒素化合物を発光層 E M L に含んで熱活性化遅延蛍光

40

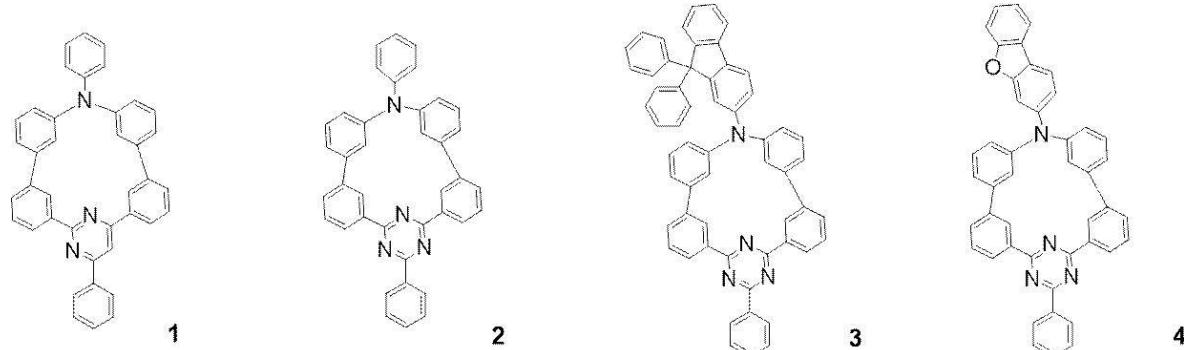
50

発光するものであってもよい。一実施形態の有機EL素子10の発光層EMLは、化学式1で表される含窒素化合物を熱活性化遅延蛍光発光用ドーパント物質として含むものであってもよい。

#### 【0101】

一実施形態の有機EL素子10は、下記第1化合物群(1~38)に示された化合物のうち少なくとも一つを発光層EMLに含むものであってもよい。例えば、一実施形態の有機EL素子10は、下記第1化合物群に示された化合物のうち少なくとも一つを発光層EMLのドーパント材料として含んでもよい。下記第1化合物群に示された化合物のうち少なくとも一つの含窒素化合物は、熱活性化遅延蛍光ドーパント材料として一実施形態の有機EL素子10の発光層EMLに含まれてもよい。

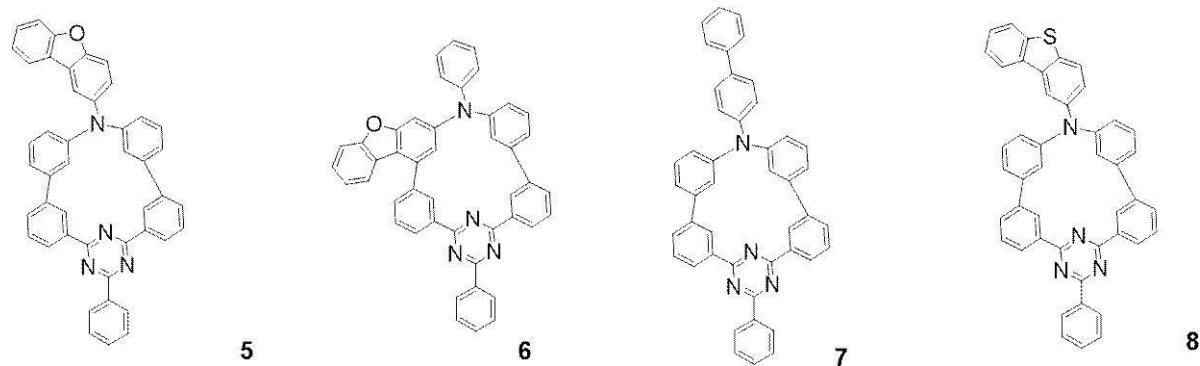
#### 【化52】



10

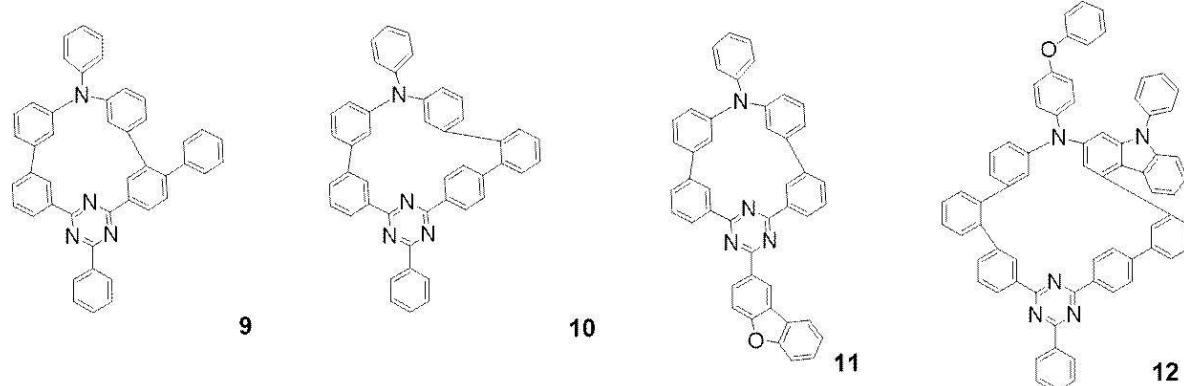
20

#### 【化53】



30

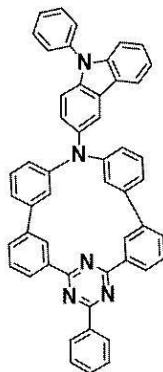
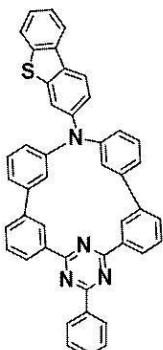
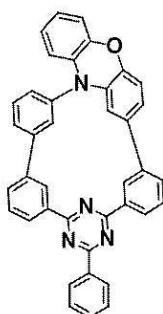
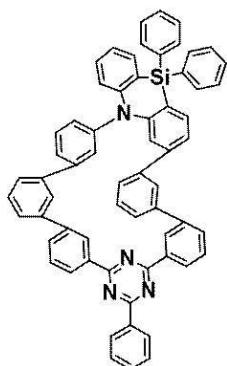
#### 【化54】



40

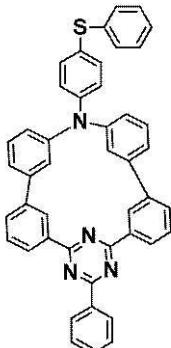
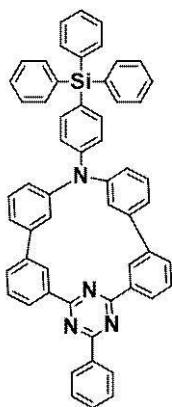
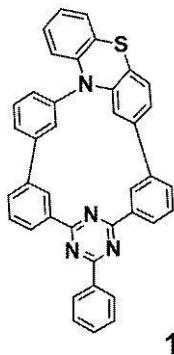
50

## 【化 5 5】



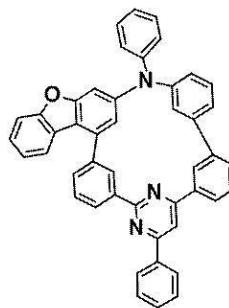
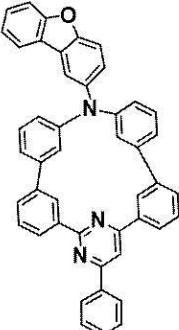
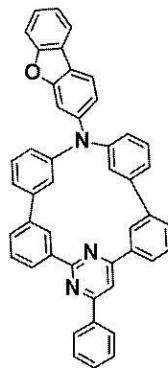
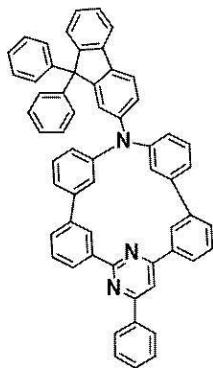
10

## 【化 5 6】



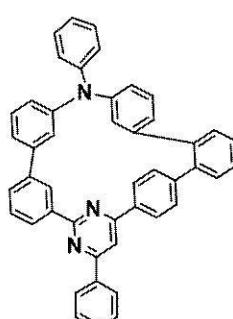
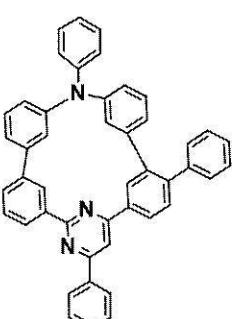
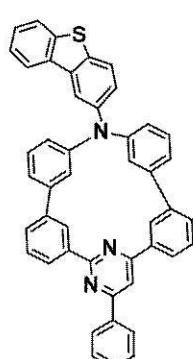
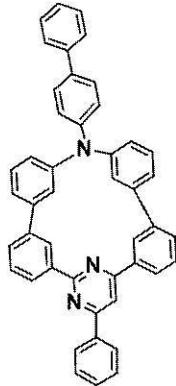
20

## 【化 5 7】



30

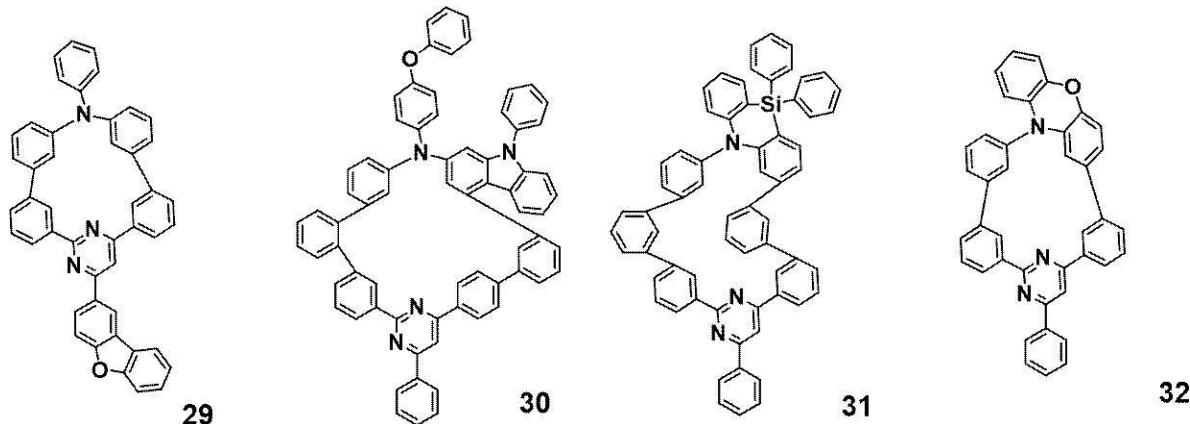
## 【化 5 8】



40

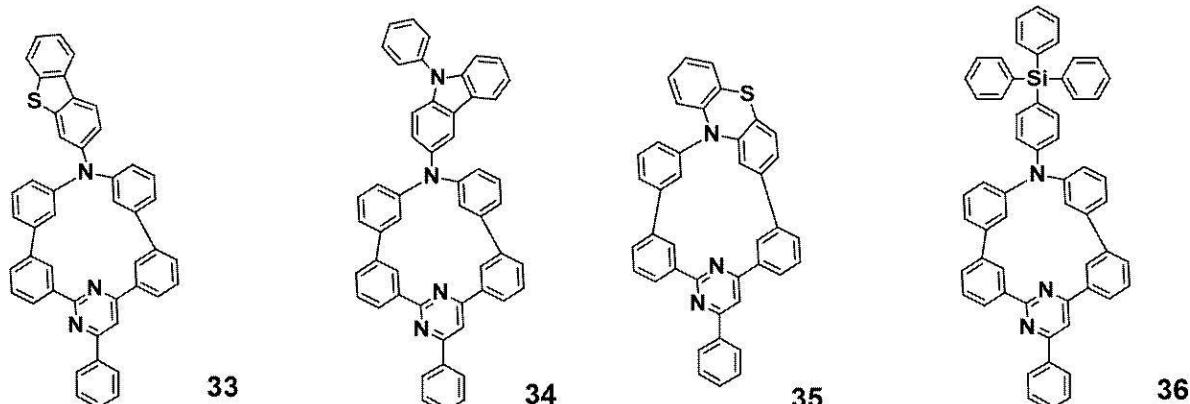
50

## 【化 5 9】



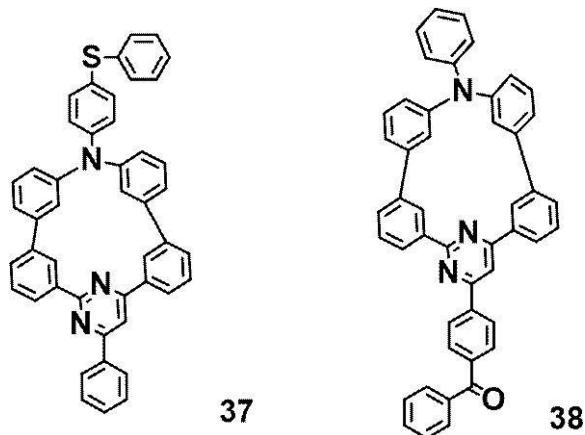
10

## 【化 6 0】



20

## 【化 6 1】



30

## (第1化合物群)

40

## 【0102】

一方、一実施形態の有機EL素子において、発光層EMLは一実施形態の含窒素化合物を熱活性化遅延蛍光ドーパントして含み、それと共に熱活性化遅延蛍光ホスト材料を更に含んでもよい。例えば、一実施形態において、発光層EMLはホスト材料として、DPEPO(ビス[2-(ジフェニルホスフィノ)フェニル]エーテルオキシド)、CBP(4,4'-ビス(カルバゾール-9-イル)ビフェニル)、mCP(1,3-ビス(カルバゾール-9-イル)ベンゼン)、PPF(2,8-ビス(ジフェニルホスホリル)ジベンゾ[b,d]フラン)、TCTa(4,4',4'''-トリス(カルバゾール-9-イル)トリフェニルアミン)、TPBi(1,3,5-トリス(N-フェニルベンズイミダゾール-2-イル)ベンゼン)、mCBP(3,3'-ビス(N-カルバゾリル)1,1'-ビフェニ

50

ル)、及びT 2 T (2, 4, 6-トリス(ビフェニル-3-イル)-1, 3, 5-トリアジン)のうち少なくとも一つを含んでもよい。また、一実施形態の有機EL素子において、発光層EMLは公知のホスト材料として、Alq<sub>3</sub>(トリス(8-ヒドロキシキノリノ)アルミニウム)、PVK(ポリ(n-ビニルカルバゾール)、ADN(9, 10-ジ(ナフタレン-2-イル)アントラセン)、TBADN(3-テルト-ブチル-9, 10-ジ(ナフト-2-イル)アントラセン)、DSA(ジスチリルアリーレン)、CDBP(4, 4'-ビス(9-カルバゾリル)-2, 2'-ジメチル-ビフェニル)、MADN(2-メチル-9, 10-ビス(ナフタレン-2-イル)アントラセン)、CP1(ヘキサフェニルシクロトリホスファゼン)、UGH2(1, 4-ビス(トリフェニルシリル)ベンゼン)、DPSiO<sub>3</sub>(ヘキサフェニルシクロトリシロキサン)、DPSiO<sub>4</sub>(オクタフェニルシクロテトラシロキサン)などを更に含んでもよい。

#### 【0103】

一実施形態において、発光層EMLは上述した一実施形態の含窒素化合物以外に公知の遅延蛍光ドーパントを更に含むものであってもよい。例えば、一実施形態の有機EL素子10の発光層EMLは、ドーパントとして、ACRSA(10-フェニル-10H, 10'H-スピロ[アクリジン-9, 9'-アントラセン]-10'-オン)、4CzPN(3, 4, 5, 6-テトラ-9H-カルバゾール-9-イル-1, 2-ベンゼンジカルボニトリル)、4CzIPN(2, 4, 5, 6-テトラ-9H-カルバゾール-9-イル-イソフタロニトリル)、DMAC-DPS(ビス[4-9, 9-ジメチル-9, 10-ジヒドロアクリジン]フェニル)スルホン)、及びPSZ-TRZ(2-フェノキサジン-4, 6-ジフェニル-1, 3, 5-トリアジン)のうち少なくとも一つを更に含んでもよい。また、発光層MELは、公知のドーパント材料として、スチリル誘導体(例えば、1, 4-ビス[2-(3-N-エチルカルバゾリル)ビニル]ベンゼン(BCzVB)、4-(ジ-p-トリルアミノ)-4'-(ジ-p-トリルアミノ)スチリル)スチルベン(DPABV)、N-(4-((E)-2-(6-((E)-4-(ジフェニルアミノ)スチリル)ナフタレン-2-イル)ビニル)フェニル)-N-フェニルベンゼンアミン(N-BDAVBi)、ペリレン及びその誘導体(例えば、2, 5, 8, 11-テトラ-t-ブチルペリレン(TBP))、ピレン及びその誘導体(例えば、1, 1-ジピレン、1, 4-ジピレニルベンゼン、1, 4-ビス(N, N-ジフェニルアミノ)ピレン)などの2, 5, 8, 11-テトラ-t-ブチルペリレン(TBP))などを更に含んでもよい。

#### 【0104】

一方、一実施形態の有機EL素子10の発光層EMLは青色光を放出するものであってもよい。発光層EMLは、450nm以上490nm以下の波長領域の光を放出するものであってもよい。

#### 【0105】

一実施形態の有機EL素子10において、電子輸送領域ETRは発光層EMLの上に提供される。電子輸送領域ETRは、正孔阻止層HBL、電子輸送層ETL及び電子注入層EILのうち少なくとも一つを含むが、これに限定されない。

#### 【0106】

電子輸送領域ETRは、单一物質で形成された単一層、複数の互いに異なる物質で形成された単一層、または複数の互いに異なる物質で形成された複数の層を有する多層構造を有する。

#### 【0107】

例えば、電子輸送領域ETRは電子注入層EILまたは電子輸送層ETLの単一層の構造を有してもよく、電子注入物質と電子輸送物質で形成された単一構造を有してもよい。また、電子輸送領域ETRは、複数の互いに異なる物質からなる単一層の構造を有するか、発光層EMLから順番に積層された電子輸送層ETL/電子注入層EIL、正孔阻止層HBL/電子輸送層ETL/電子注入層EILの構造を有してもよいが、これに限定されない。電子輸送領域ETRの厚さは、例えば、約10nmから約150nmであってもよい。

10

20

30

40

50

## 【0108】

電子輸送領域 ETR は、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB 法、インクジェットプリント法、レーザプリント法、レーザ熱転写法などのような多様な方法を利用して形成される。

## 【0109】

電子輸送領域 ETR が電子輸送層 ETL を含む場合、例えば、電子輸送領域 ETR は、A<sub>1q3</sub> (トリス (8-ヒドロキシキノリナト) アルミニウム)、1,3,5-トリ [ (3-ピリジル)-フェン-3-イル] ベンゼン、2,4,6-トリス (3'- (ピリジン-3-イル) ピフェニル-3-イル) - 1,3,5-トリアジン、2- (4- (N-フェニルベンゾイミダゾリル-1-イルフェニル) - 9,10-ジナフチルアントラセン、TPB<sub>i</sub> (1,3,5-トリ (1-フェニル-1H-ベンゾ [d] イミダゾール-2-イル) ベンゼン)、BCP (2,9-ジメチル-4,7-ジフェニル-1,10-フェナントロリン)、TAZ (3-(4-ビフェニルイル)-4-フェニル-5-テルト-ブチルフェニル-1,2,4-トリアゾール)、NTAZ (4- (ナフタレン-1-イル) - 3,5-ジフェニル-4H-1,2,4-トリアゾール)、tBu-PBD (2- (4-ビフェニルイル) - 5- (4-テルト-ブチルフェニル) - 1,3,4-オキサジアゾール)、BALq (ビス (2-メチル-8-キノリノラト-N1,08) - (1,1'-ビフェニル-4-オラト) アルミニウム)、Bebq<sub>2</sub> (ベリリウムビス (ベンゾキノリン-10-オラト))、ADN (9,10-ジ (ナフタレン-2-イル) アントラセン)、及びこれらの混合物を含むが、実施例はこれに限定されない。10 20

## 【0110】

電子輸送領域 ETR が電子輸送層 ETL を含む場合、電子輸送層 ETL の厚さは、約 10 nm から約 100 nm であり、例えば約 15 nm から約 50 nm であってもよい。電子輸送層 HTL の厚さが上述したような範囲を満たす場合、実質的な駆動電圧の上昇なしに満足できる程度の電子輸送特性が得られる。

## 【0111】

電子輸送領域 ETR が電子注入層 EIL を含む場合、電子輸送領域 ETR は、例えば、LiF、LiQ (リチウムキノラート)、Li<sub>2</sub>O、BaO、NaCl、CsF、Yb のようなランタノイド族金属、またはRbCl、RbI、KI のようなハロゲン化金属などが使用されてもよいが、実施形態はこれに限定されない。電子注入層 EIL はまた、電子輸送物質と絶縁性の有機金属塩 (organometal salt) が混合された物質を含んでもよい。有機金属塩は、エネルギー・バンドギャップ (energy band gap) が約 4 eV 以上の物質であってもよい。詳しくは、例えば、有機金属塩は、酢酸金属塩 (metal acetate)、安息香酸金属塩 (metal benzoate)、アセト酢酸金属塩 (metal acetoacetate)、アセチルアセト酢酸金属塩 (metal acetylacetone)、またはステアリン酸金属塩 (stearyl) を含む。30

## 【0112】

電子輸送領域 ETR が電子注入層 EIL を含む場合、電子注入層 EIL の厚さは、約 0.1 nm から約 10 nm、約 0.3 nm から約 9 nm であってもよい。電子注入層 EIL の厚さが上述したような範囲を満たす場合、実質的な駆動電圧の上昇なしに満足できる程度の電子注入特性が得られる。

## 【0113】

電子輸送領域 ETR は、上述したように、正孔阻止層 HBL を含む。正孔阻止層 HBL は、例えば、BCP (2,9-ジメチル-4,7-ジフェニル-1,10-フェナントロリン)、及びBphen (4,7-ジフェニル-1,10-フェナントロリン) のうち少なくとも一つを含んでもよいが、これに限定されない。

## 【0114】

第 2 電極層 EL2 は電子輸送領域 ETR の上に提供される。第 2 電極 EL2 は導電性を有

する。第2電極層EL2は金属合金または導電性化合物からなる。第2電極層EL2はカソード(cathode)である。第2電極層EL2は、透過型電極、半透過型電極、または反射型電極である。第2電極層EL2が透過型電極であれば、第2電極層EL2は透明金属酸化物、例えば、ITO、IZO、ZnO、ITZOなどからなる。

#### 【0115】

第2電極層EL2が半透過型電極または反射型電極である場合、第2電極層EL2は、Ag、Mg、Cu、Al、Pt、Pd、Au、Ni、Nd、Ir、Cr、Li、Ca、LiF/Ca、LiF/Al、Mo、Ti、またはこれらの化合物や混合物(例えば、AgとMgの合金)を含むことができる。また、例示された物質で形成された反射膜や半透過膜、及びITO、IZO、ZnO、ITZOなどで形成された透明導電膜を含む複数の層構造であってもよい。

10

#### 【0116】

図示しないが、第2電極EL2は補助電極と接続されてもよい。第2電極EL2が補助電極と接続されると、第2電極EL2の抵抗を減少させることができる。

#### 【0117】

有機EL素子10において、第1電極EL1と第2電極EL2にそれぞれ電圧が印加されることで、第1電極EL1から注入された正孔(hole)は正孔輸送領域HTRを経て発光層EMLに移動し、第2電極EL2から注入された電子は電子輸送領域ETRを経て発光層EMLに移動する。電子と正孔は発光層EMLで再結合して励起子(exciton)を生成し、励起子が励起状態から基底状態に落ちながら発光する。

20

#### 【0118】

有機EL素子10が前面発光型である場合、第1電極EL1は反射型電極であって、第2電極EL2は透過型電極または半透過型電極であってもよい。有機EL素子10が背面発光型である場合、第1電極EL1は透過型電極または半透過型電極であって、第2電極EL2は反射型電極であってもよい。

#### 【0119】

一実施形態の有機EL素子は、発光層に上述した一実施形態の含窒素化合物を含むことで、発光効率を改善することができる。詳しくは、一実施形態の有機EL素子は、一実施形態の含窒素化合物を発光層のドーパント物質として含み、発光層が熱活性化遅延蛍光発光成分の光を放出するようにすることで、発光効率を改善することができる。

30

#### 【実施例】

#### 【0120】

以下では実施例及び比較例を参照し、本発明の一実施例による含窒素化合物及び含窒素化合物を含む有機EL素子について詳しく説明する。また、下記実施例は、本発明の理解を助けるための一例示に過ぎず、本発明の範囲はこれに限定されない。

#### 【0121】

##### 1. 含窒素化合物の合成

まず、本実施例による含窒素化合物の合成方法について、化合物1、化合物2、化合物3、化合物4、及び化合物11の合成方法を例示して具体的に説明する。また、以下で説明する含窒素化合物の合成法は一実施例であって、本発明の実施形態による含窒素化合物の合成法は下記実施例に限らない。

40

#### 【0122】

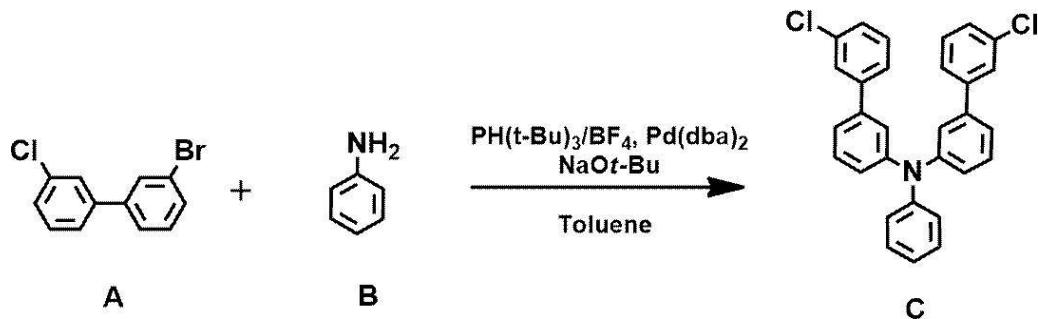
##### (化合物1の合成)

一実施例による含窒素化合物1は、例えば、下記反応式1-1から反応式1-3のステップによって合成される。

#### 【0123】

50

## 【化62】



10

(反応式1-1)

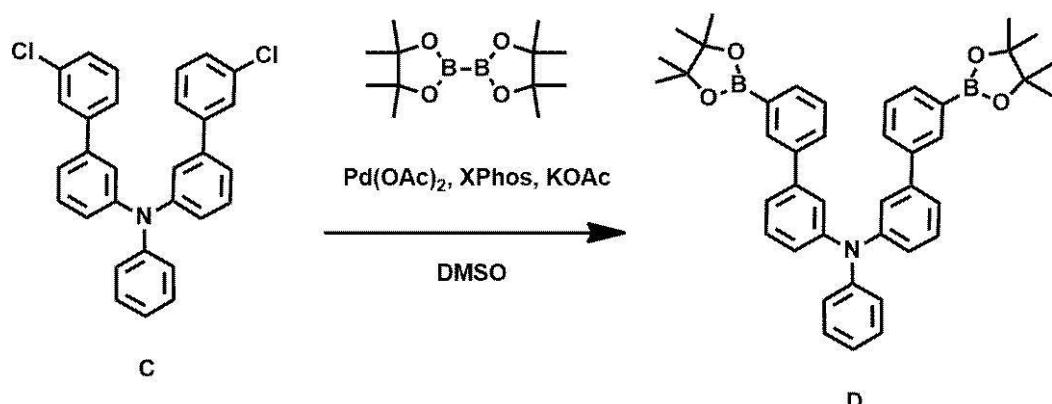
## 【0124】

上記反応式1-1の工程によって化合物Cを合成した。反応式1-1を参照すると、アルゴン(Ar)雰囲気下、500mLの三口フラスコに、化合物A 6.3g、化合物B 1.1g、Pd(dba)<sub>2</sub> 0.27g、PH(t-Bu)<sub>3</sub>/BF<sub>4</sub> 0.14g、NaOt-Bu 2.3gを追加し、200mLのトルエン(toluen)溶媒の中で15時間加熱還流した。空冷後、水を加えて有機層を分取し、溶媒を流去した。得られた粗生成物をシリカゲルクロマトグラフィ(silicagel chromatography)、トルエン/ヘキサン混合溶媒使用で精製した後、ヘキサンで再結晶を行い、白色固体の目的物4.6g(収率83%)を得た。FAB-MSで測定された目的物の分子量は466であった。これから、目的物が化合物Cであることを確認した。

20

## 【0125】

## 【化63】



30

(反応式1-2)

## 【0126】

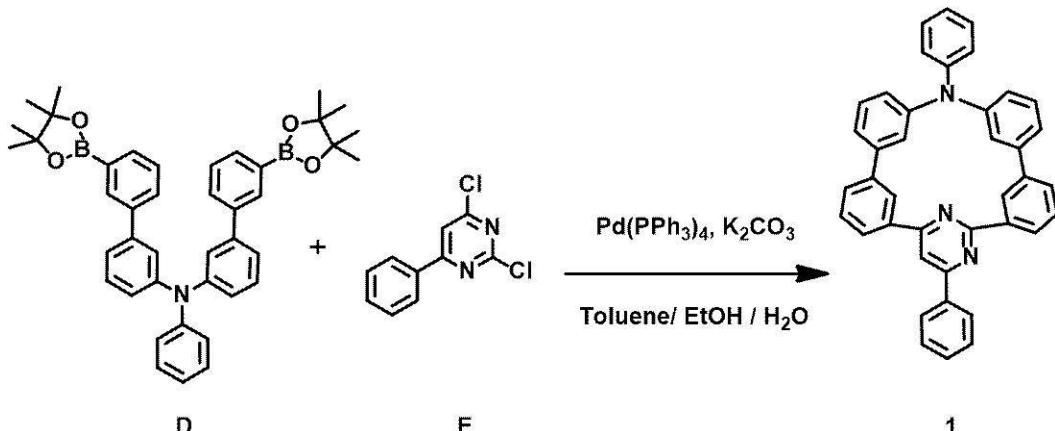
次に、反応式1-2の工程によって化合物Cから化合物Dを合成した。アルゴン雰囲気下、300mLの三口フラスコに、化合物C 3.0g、化合物ビス(ピナコラート)ジボロン 5.0g、Pd(OAc)<sub>2</sub> 0.15g、XPhos 0.32g、KOAc 2.6gを追加し、60mLのDMSO溶媒の中で15時間加熱還流した。空冷後、水を加えて有機層を分取し、溶媒を流去した。得られた粗生成物をシリカゲルクロマトグラフィ(トルエン使用)で精製した後、ヘキサンで再結晶を行い、白色固体の目的物4.0g(収率87%)を得た。FAB-MSで測定された目的物の分子量は689であり、これから目的物が化合物Dであることを確認した。

40

## 【0127】

50

## 【化64】



10

(反応式1-3)

## 【0128】

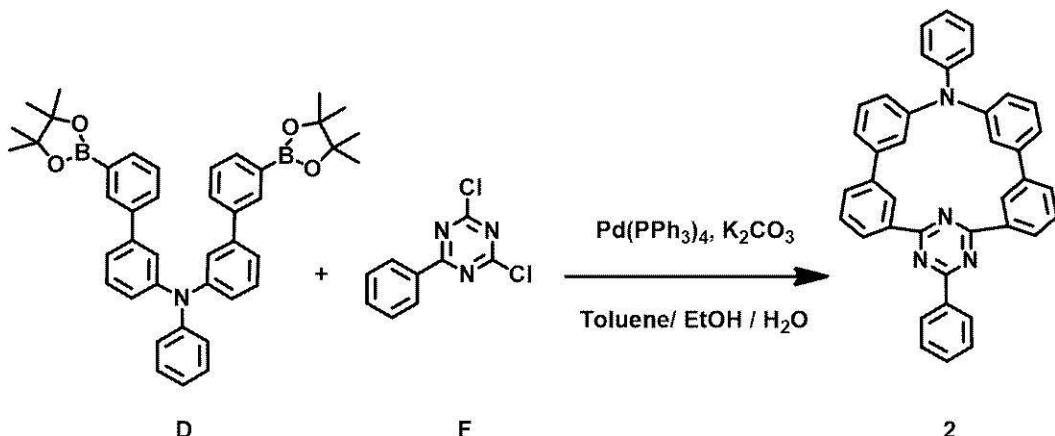
次に、反応式1-3の工程によって含窒素化合物1を合成した。アルゴン雰囲気下、300mLの三口フラスコに、化合物D 1.4g、化合物E 0.5g、 $\text{Pd}(\text{PPh}_3)_4$  0.26g、 $\text{K}_2\text{CO}_3$  0.92gを追加し、100mLのトルエン、5mLのエタノール、10mLの蒸留水混合溶媒の中で15時間加熱還流した。空冷後、水を加えて有機層を分取し、溶媒を流去した。得られた粗生成物をシリカゲルクロマトグラフィ（トルエン/ヘキサン使用）で精製した後、ヘキサンで再結晶を行い、白色固体の目的物0.61g（収率50%）を得た。FAB-MSで測定された目的物の分子量は550であった。これから、目的物が含窒素化合物1であることを確認した。

20

## 【0129】

(化合物2の合成)

## 【化65】



30

(反応式2)

## 【0130】

一実施例による含窒素化合物2は、例えば、上記反応式2によって合成される。含窒素化合物2の合成方法において、化合物Eに代わって化合物Fを使用したことを除いては、含窒素化合物1の合成方法と同じ方法によって目的生成物である含窒素化合物2 0.63g（収率73%）を得た。FAB-MS測定で測定された目的物の分子量は551であった。これから、目的物が含窒素化合物2であることを確認した。

40

## 【0131】

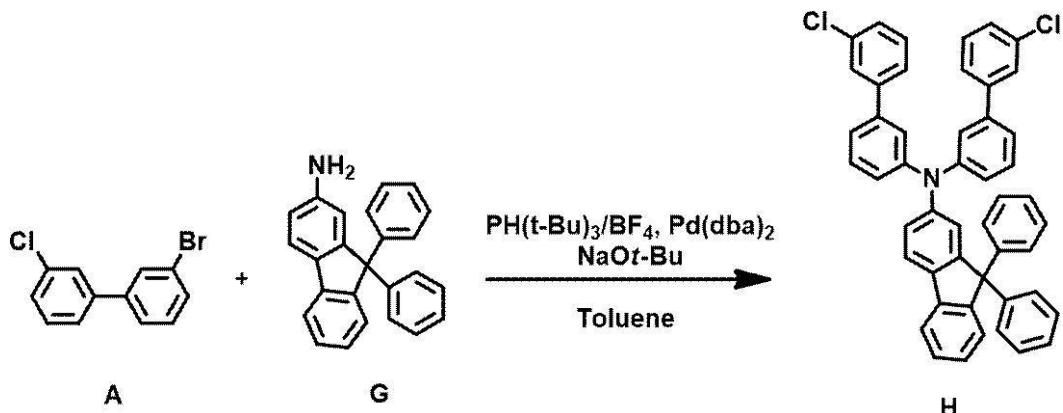
(化合物3の合成)

一実施例による含窒素化合物3は、例えば、下記反応式3-1から反応式3-3のステップによって合成される。

## 【0132】

50

## 【化66】



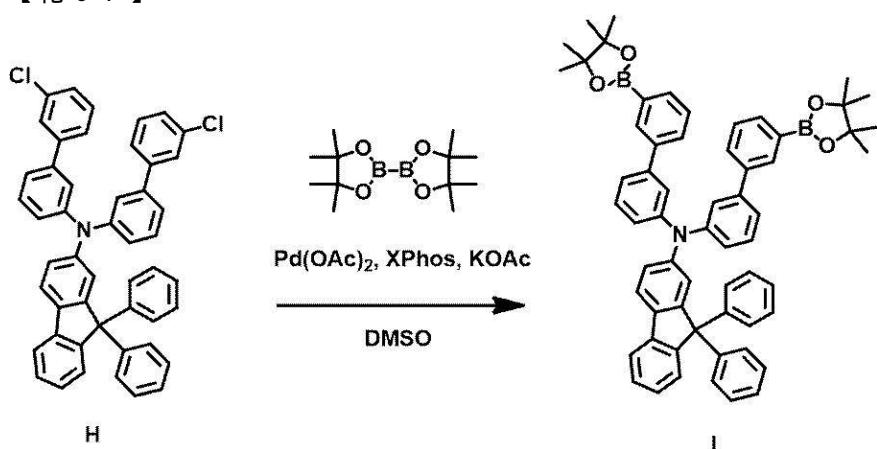
(反応式3-1)

## 【0133】

上記反応式3-1の工程によって化合物Hを合成した。化合物Hの合成方法において、化合物Bに代わって化合物Gを使用したことを除いては、反応式1-1の化合物Cの合成方法と同じ方法によって目的生成物である化合物H 6.4 g (収率78%)を得た。FAB-MSで測定された化合物Hの分子量は707であった。

## 【0134】

## 【化67】



(反応式3-2)

## 【0135】

次に、反応式3-2の工程によって化合物Hから化合物Iを合成した。化合物Iの合成方法において、化合物Cに代わって化合物Hを使用したことを除いては、反応式1-2の化合物Dの合成方法と同じ方法によって目的生成物である化合物I 3.4 g (収率91%)を得た。FAB-MSで測定された化合物Iの分子量は890であり、これから目的物が化合物Iであることを確認した。

## 【0136】

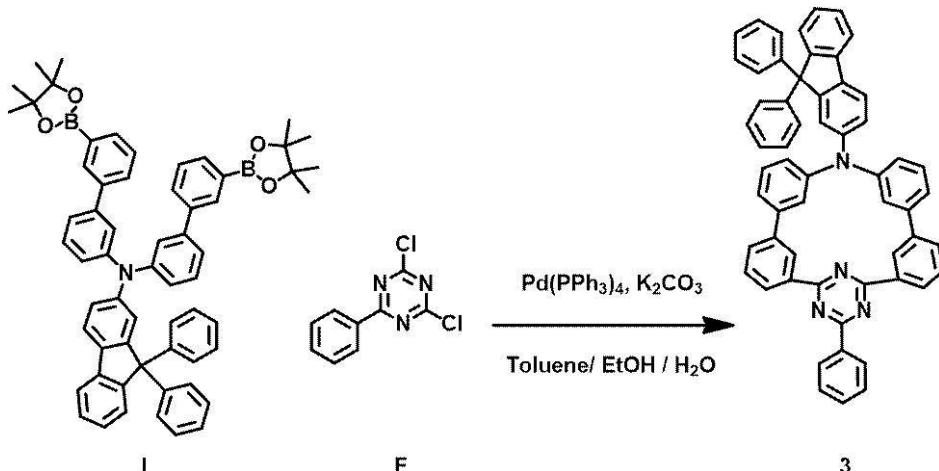
40

50

40

50

## 【化68】



(反応式3-3)

## 【0137】

次に、反応式3-3の工程によって含窒素化合物3を合成した。含窒素化合物3の合成方法において、化合物Dに代わって化合物Iを使用したことを除いては、反応式1-3の含窒素化合物1の合成方法と同じ方法によって目的生成物である含窒素化合物3 0.74 g（収率43%）を得た。FAB-MSで測定された含窒素化合物3の分子量は778であり、これから目的物が含窒素化合物3であることを確認した。

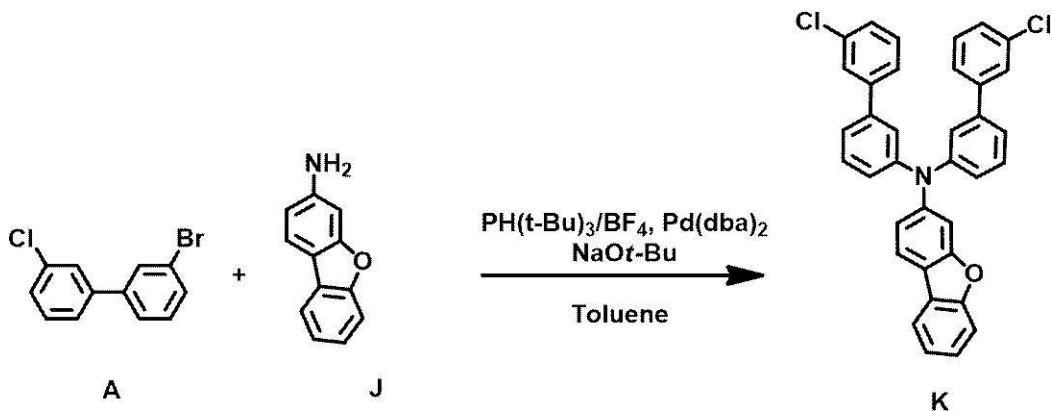
## 【0138】

(化合物4の合成)

一実施例による含窒素化合物4は、例えば、下記反応式4-1から反応式4-3のステップによって合成される。

## 【0139】

## 【化69】



(反応式4-1)

## 【0140】

反応式4-1の工程によって化合物Kを合成した。化合物Kの合成方法において、化合物Bに代わって化合物Jを使用したことを除いては、反応式1-1の化合物Cの合成方法と同じ方法によって目的生成物である化合物K 6.2g（収率95%）を得た。FAB-MSで測定された化合物Kの分子量は557であった。

## 【0141】

10

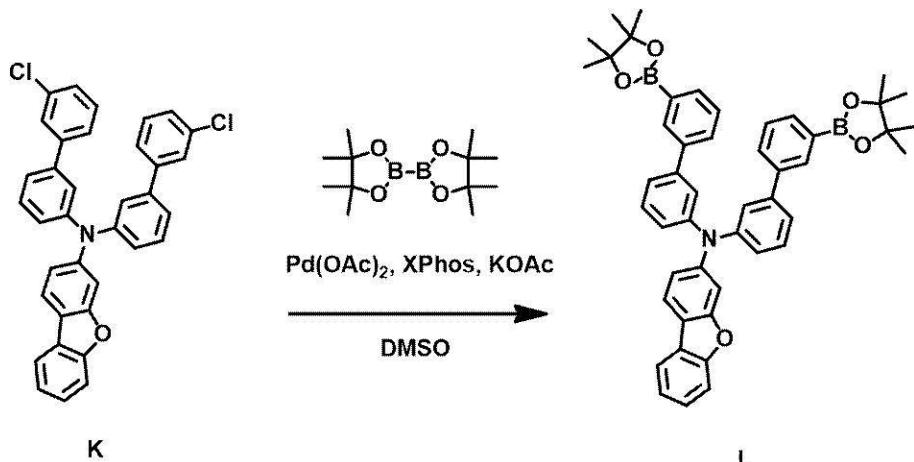
20

30

40

50

## 【化70】



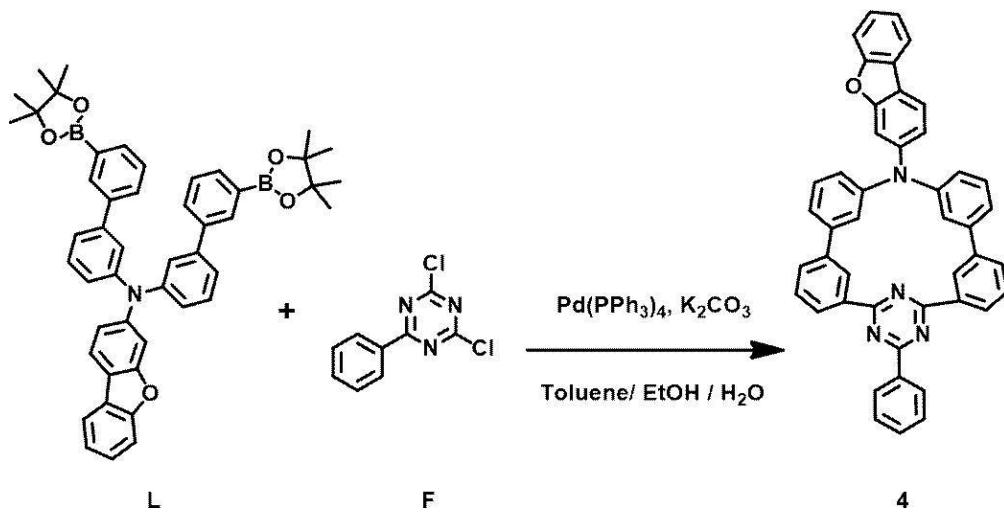
(反応式4-2)

## 【0142】

次に、反応式4-2の工程によって化合物Kから化合物Lを合成した。化合物Lの合成方法において、化合物Cに代わって化合物Kを使用したことを除いては、反応式1-2の化合物Dの合成方法と同じ方法によって目的生成物である化合物K 3.7 g (収率93%)を得た。FAB-MSで測定された化合物Lの分子量は740であり、これから目的物が化合物Lであることを確認した。

## 【0143】

## 【化71】



(反応式4-3)

## 【0144】

次に、反応式4-3の工程によって含窒素化合物4を合成した。含窒素化合物4の合成方法において、化合物Dに代わって化合物Lを使用し、化合物Eに代わって化合物Fを使用したことを除いては、反応式1-3の含窒素化合物1の合成方法と同じ方法によって目的生成物である含窒素化合物4 0.51 g (収率36%)を得た。FAB-MSで測定された含窒素化合物4の分子量は641であり、これから目的物が含窒素化合物4であることを確認した。

## 【0145】

(化合物11の合成)

10

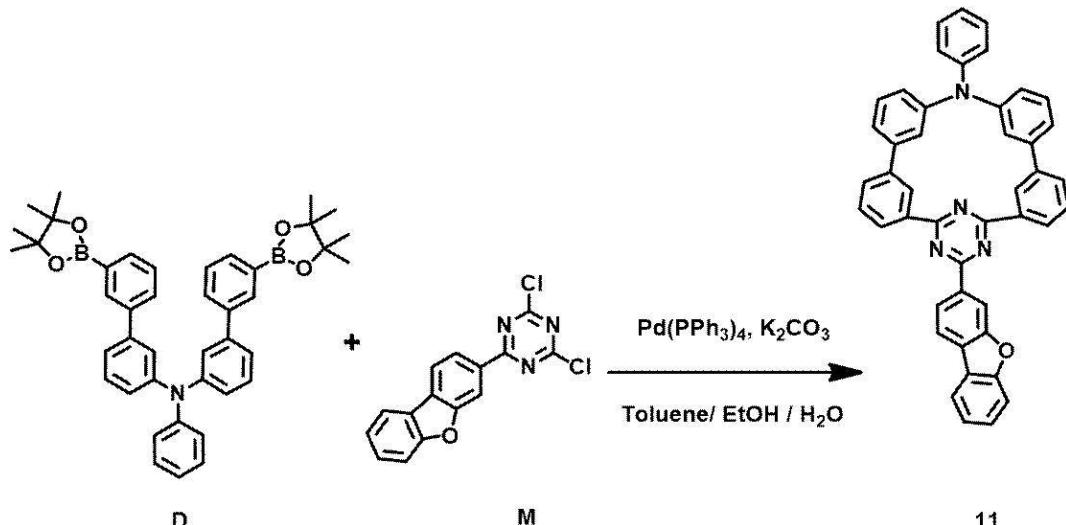
20

30

40

50

【化 7 2】



( 反応式 5 )

〔 0 1 4 6 〕

一実施例による含窒素化合物 1-1 は、上記反応式 5 によって合成される。含窒素化合物 1-1 の合成方法において、化合物 E に代わって化合物 M を使用したことを除いては、反応式 1-3 の含窒素化合物 1 の合成方法と同じ方法によって目的生成物である含窒素化合物 1-1 0.42 g ( 収率 41% ) を得た。FAB-MS で測定された目的物の分子量は 641 であり、これから目的物が含窒素化合物 1-1 であることを確認した。

[ 0 1 4 7 ]

## 2. 含窒素化合物のエネルギー準位の計算

一実施例の含窒素化合物と比較例の化合物に対する最低励起一重項エネルギー準位 (S 1 エネルギー準位) と最低励起三重項エネルギー準位 (T 1 エネルギー準位) を、非経験的分子軌道法で計算して示した。

[ 0 1 4 8 ]

エネルギー準位の計算に使用された実施例の含窒素化合物と比較例の化合物を、実施例化合物1から実施例化合物13および比較例化合物X-1から比較例化合物X-4として示す。表1は実施例および比較例の化合物に対するS1エネルギー準位、T1エネルギー準位、及び  $E_{ST}$  ( S1エネルギー準位とT1エネルギー準位の差、S1-T1 ) を示すものである。表1に示したエネルギー準位は、Gaussian社製のGaussian 09を使用して汎関数B3LYP、基底関数6-31G(d)を利用して計算した。

[ 0 1 4 9 ]

10

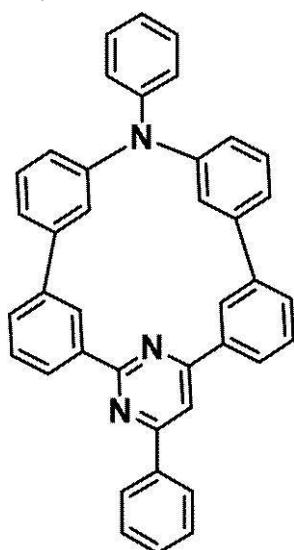
20

30

40

50

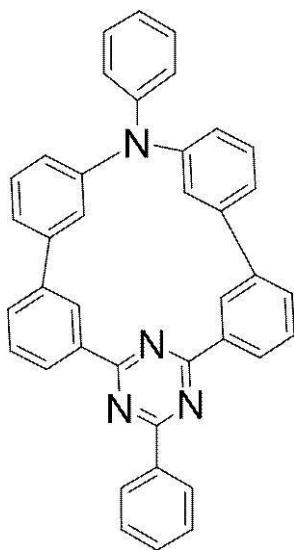
【化 7 3】



10

(実施例化合物 1)

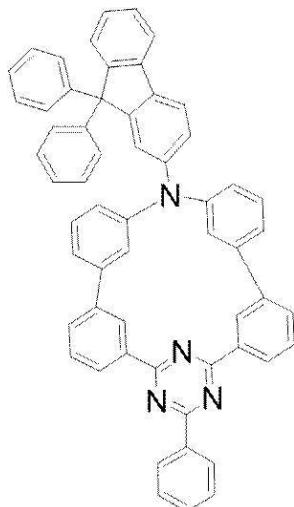
【化 7 4】



20

(実施例化合物 2)

【化 7 5】



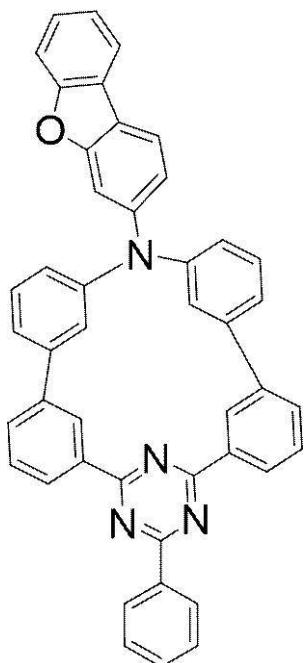
30

40

(実施例化合物 3)

50

【化 7 6】

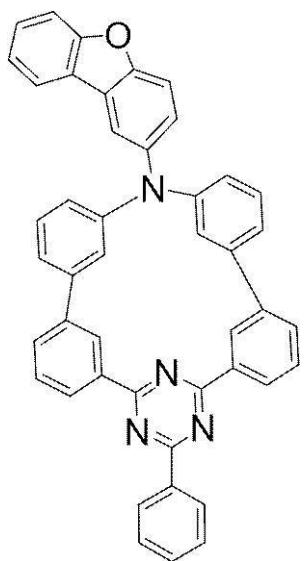


10

(実施例化合物 4 )

20

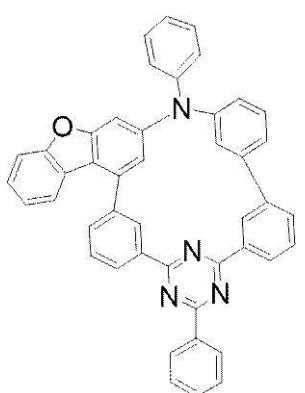
【化 7 7】



30

(実施例化合物 5 )

【化 7 8】

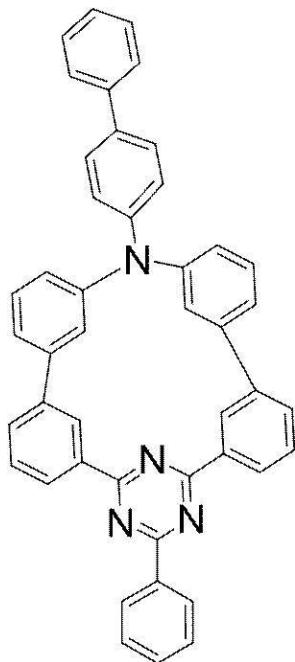


40

(実施例化合物 6 )

50

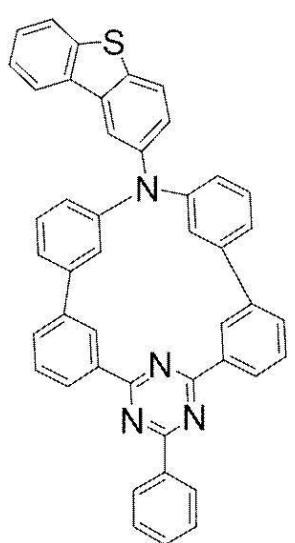
【化 7 9】



10

(実施例化合物 7 )

【化 8 0】



20

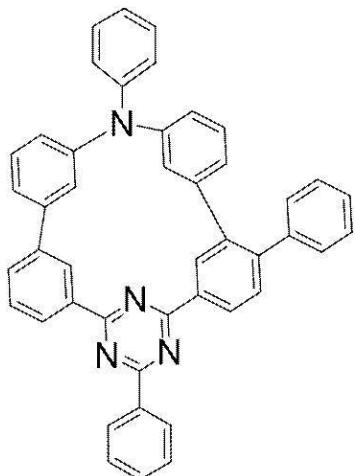
30

(実施例化合物 8 )

40

50

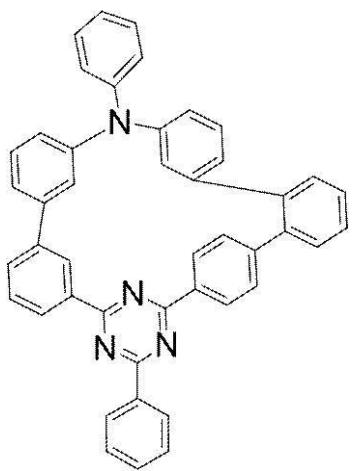
【化 8 1】



10

(実施例化合物 9)

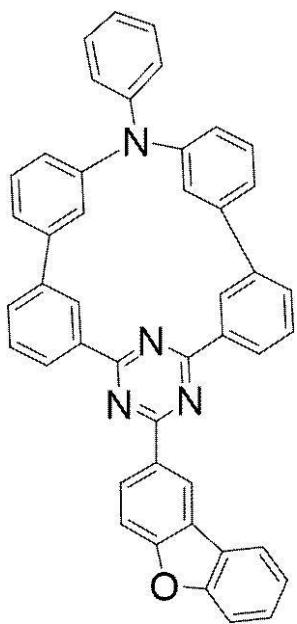
【化 8 2】



20

(実施例化合物 10)

【化 8 3】



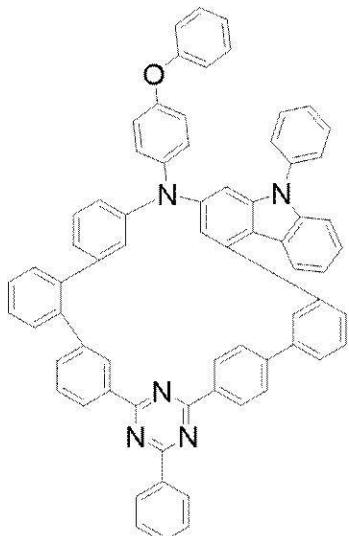
30

40

(実施例化合物 11)

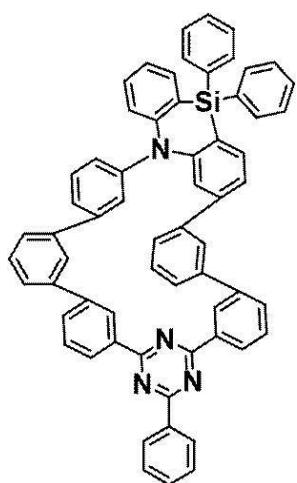
50

【化 8 4】



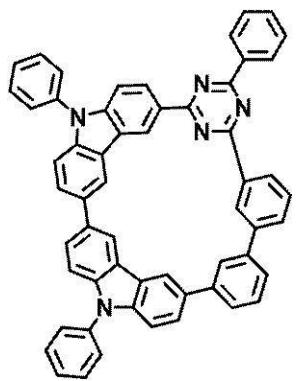
(実施例化合物 1-2)

【化 8 5】



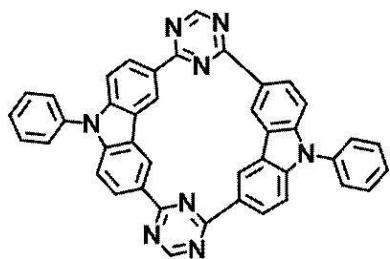
(実施例化合物 1-3)

【化 8 6】



(比較例化合物 X-1)

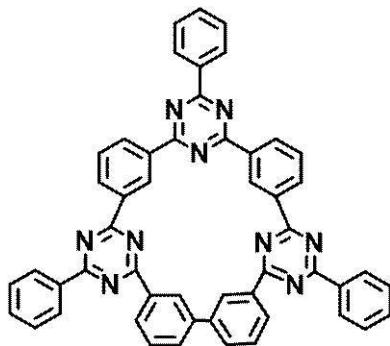
【化 8 7】



(比較例化合物 X - 2 )

10

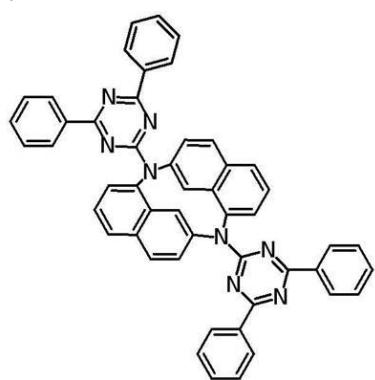
【化 8 8】



20

(比較例化合物 X - 3 )

【化 8 9】



30

(比較例化合物 X - 4 )

【0150】

40

50

【表1】

| 化合物       | S 1 エネルギー準位 | T 1 エネルギー準位 | $\Delta E_{ST}$ |
|-----------|-------------|-------------|-----------------|
| 実施例化合物1   | 2. 96       | 2. 90       | 0. 06           |
| 実施例化合物2   | 2. 86       | 2. 79       | 0. 07           |
| 実施例化合物3   | 2. 81       | 2. 75       | 0. 06           |
| 実施例化合物4   | 2. 86       | 2. 79       | 0. 07           |
| 実施例化合物5   | 2. 85       | 2. 78       | 0. 07           |
| 実施例化合物6   | 2. 78       | 2. 63       | 0. 15           |
| 実施例化合物7   | 2. 84       | 2. 78       | 0. 06           |
| 実施例化合物8   | 2. 85       | 2. 78       | 0. 07           |
| 実施例化合物9   | 2. 76       | 2. 70       | 0. 06           |
| 実施例化合物10  | 2. 83       | 2. 75       | 0. 06           |
| 実施例化合物11  | 2. 85       | 2. 78       | 0. 07           |
| 実施例化合物12  | 2. 52       | 2. 50       | 0. 02           |
| 実施例化合物13  | 2. 98       | 2. 98       | 0. 00           |
| 比較例化合物X-1 | 3. 06       | 2. 76       | 0. 30           |
| 比較例化合物X-2 | 3. 18       | 2. 78       | 0. 40           |
| 比較例化合物X-3 | 3. 88       | 2. 97       | 0. 91           |
| 比較例化合物X-4 | 2. 71       | 2. 16       | 0. 55           |

## 【0151】

表1を参照すると、実施例の含窒素化合物は比較例の化合物に比べ小さい  $E_{ST}$  値を有することが分かる。実施例の含窒素化合物1から含窒素化合物13の場合、 $E_{ST}$  が0.2 eV以下の値を示すことが分かる。これに対し、比較例の化合物X-1から化合物X-4では全て  $E_{ST}$  が0.2 eVより大きい値を示しており、実施例の含窒素化合物と差が見られた。

## 【0152】

よって、実施例の含窒素化合物の場合、比較例の化合物とは異なる環状構造を有することで、比較例の化合物に比べ効果的にHOMOとLUMO準位が分離されており、小さい  $E_{ST}$  値を示すことが分かる。

## 【0153】

## 3. 含窒素化合物を含む有機EL素子の製作及び評価

## (有機EL素子の製作)

一実施例の含窒素化合物を発光層に含み、発光層は遅延蛍光発光成分を含む一実施例の有機EL素子を下記方法で製造した。例えば、一実施例の有機EL素子の発光層は、一実施例の含窒素化合物を蛍光ドーパントとして含むことを例示的に説明する。

## 【0154】

上述した実施例化合物1、化合物2、化合物3、化合物4、及び化合物11に示す含窒素化合物を発光層の材料として使用して実施例1から実施例5の有機EL素子を製作し、上述した比較例化合物X-1から比較例化合物X-4を発光層材料として使用して、比較例1から比較例4の有機EL素子を製作した。

## 【0155】

ガラス基板の上に厚さ150 nmのITOをパターニングした後、超純水で洗浄し、UV

10

20

30

40

50

オゾン処理を10分間実施した。次に、10nmの厚さでHAT-CNを蒸着し、-NPDを厚さ80nmで蒸着し、mCPを5nmの厚さで蒸着して、正孔輸送領域を形成した。

#### 【0156】

次に、発光層を形成する際、実施例の含窒素化合物または比較例の化合物とDPEPOを18:82の割合で共蒸着し、厚さ20nmの層を形成した。つまり、共蒸着して形成された発光層は実施例1から実施例5ではそれぞれDPEPOと化合物1、化合物2、化合物3、化合物4、及び化合物11を混合して蒸着し、比較例1から比較例4ではDPEPOと比較例化合物X-1、X-2、X-3及びX-4を混合して蒸着した。

#### 【0157】

発光層を形成した後、DPEPOを利用して10nm厚さの層を形成した。次に、発光層の上にTPBiで厚さ30nmの層を形成し、LiFで厚さ0.5nmの層を形成して、電子輸送領域を形成した。次に、アルミニウム(Al)で厚さ100nmの第2電極を形成した。

10

#### 【0158】

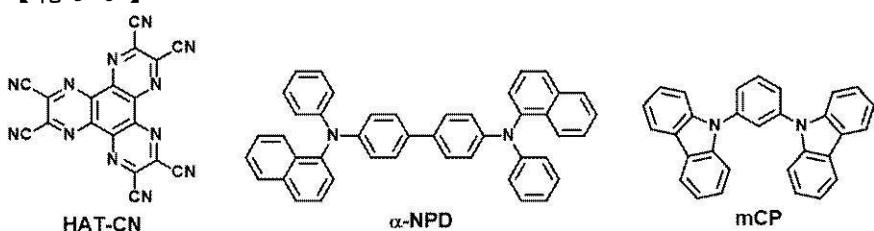
実施例において、正孔輸送領域、発光層、電子輸送領域、及び第2電極は、真空蒸着装置を利用して形成した。

#### 【0159】

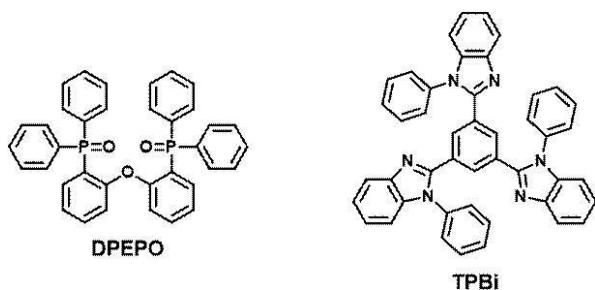
上述した有機EL素子の製作に使用された材料は、下記化学式で表される。

20

#### 【化90】



#### 【化91】



30

#### 【0160】

##### (有機EL素子の特性評価)

表2では、実施例1から実施例5、及び比較例1から比較例4の有機EL素子に対する評価結果を示した。表2において、 $\lambda_{max}$ は有機EL素子から放出される光の最大発光波長を示すものであり、 $e_{ext}$ は外部発光効率を示すものである。実施例及び比較例の有機EL素子の発光特性は、浜松ホトニクス社のC9920-11輝度配光特性測定装置を利用して測定した。

40

#### 【0161】

50

【表2】

| 素子作成例 | ドーパント物質   | $\lambda_{\text{max}}$ (nm) | $\eta_{\text{ext}}$ (%) |
|-------|-----------|-----------------------------|-------------------------|
| 実施例1  | 実施例化合物1   | 456                         | 8.3                     |
| 実施例2  | 実施例化合物2   | 479                         | 10.6                    |
| 実施例3  | 実施例化合物3   | 483                         | 11.5                    |
| 実施例4  | 実施例化合物4   | 482                         | 12.6                    |
| 実施例5  | 実施例化合物11  | 486                         | 10.3                    |
| 比較例1  | 比較例化合物X-1 | 482                         | 2.5                     |
| 比較例2  | 比較例化合物X-2 | 476                         | 2.2                     |
| 比較例3  | 比較例化合物X-3 | 412                         | 1.6                     |
| 比較例4  | 比較例化合物X-4 | 435                         | 3.7                     |

## 【0162】

表2の結果を参照すると、本発明の一実施例の含窒素化合物を発光層材料として使用した実施例の有機EL素子の場合、青色発光領域で高い外部量子効率を示すことが分かる。つまり、実施例1から実施例5の場合、最大発光波長が450 nmから490 nmの範囲で現れることから、実施例1から実施例5の有機EL素子は青色光を発光することが分かる。

## 【0163】

また、実施例1から実施例5の場合、比較例1から比較例4に比べ高い外部量子効率を示すことが分かる。これは上述した表1における評価結果のように、実施例の含窒素化合物の場合、適切な環状の分子構造を有することで小さい  $E_{ST}$  値を有することができ、このため実施例化合物を発光層に含む一実施例の有機EL素子の場合、熱活性化遅延蛍光発光を実現して外部量子効率を改善することができる。それに対し、比較例の場合、発光層に使用された比較例の化合物は熱活性化遅延蛍光を実現することができるほどの小さい  $E_{ST}$  値を有することができず、最終的に外部量子効率が低く示されることが分かる。

## 【0164】

つまり、一実施例の含窒素化合物は、発光層に使用されることで、有機EL素子の発光効率を改善することができる。

## 【0165】

一実施例の含窒素化合物は、窒素原子を含む環状分子構造を有することで、熱的または化学的に安定した特性を示す。また、一実施例の含窒素化合物は、環状分子構造内にアリールアミン部とアジン部（トリアジンまたはピリミジン）を有することで、分子内でHOMOとLUMOが効果的に分離されて小さい  $E_{ST}$  値を有し、遅延蛍光発光材料として使用することができる。

## 【0166】

一実施例の有機EL素子は、発光層に一実施例の含窒素化合物を含むことで熱活性化遅延蛍光発光を実現し、発光効率を改善することができる。

## 【0167】

これまで本発明の好ましい実施例を参照して説明したが、当該技術分野における熟練した当業者または当該技術分野における通常の知識を有する者であれば、後述する特許請求の範囲に記載された本発明の思想及び技術領域から逸脱しない範囲内で本発明を多様に修正及び変更し得ることを理解できるはずである。

## 【0168】

よって、本発明の技術的範囲は明細書の詳細な説明に記載されている内容に限定されず、特許請求の範囲によって決められるべきである。

**【符号の説明】****【0169】**

E O : 有機 E L 素子  
E L 2 : 第 2 電極  
E M L : 発光層

E L 1 : 第 1 電極  
H T R : 正孔輸送領域  
E T R : 電子輸送領域

10

20

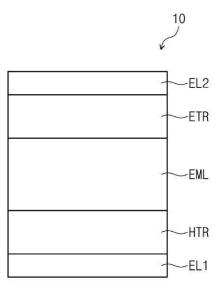
30

40

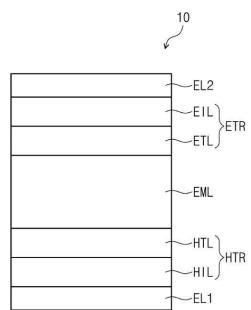
50

【図面】

【図1】

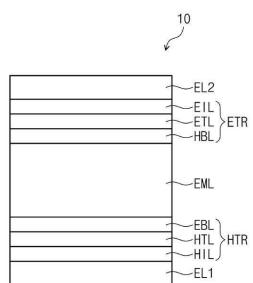


【図2】



10

【図3】



20

30

40

50

---

フロントページの続き

## (51)国際特許分類

|                              | F I                |       |
|------------------------------|--------------------|-------|
| C 0 7 F      7/10 (2006.01)  | C 0 7 D    513/18  |       |
| C 0 9 K      11/06 (2006.01) | C 0 7 F      7/10  | S     |
| H 1 0 K      50/10 (2023.01) | C 0 9 K      11/06 | 6 4 0 |
|                              | C 0 9 K      11/06 | 6 5 0 |
|                              | C 0 9 K      11/06 | 6 5 5 |
|                              | C 0 9 K      11/06 | 6 6 0 |
|                              | C 0 9 K      11/06 | 6 9 0 |
|                              | H 0 5 B      33/14 | B     |

審判長 木村 敏康

審判官 濑良 聰機

審判官 小石 真弓

(56)参考文献 特開2012-146807号公報(JP, A)

(58)調査した分野 (Int.Cl., DB名)

C 0 7 D , C 0 9 K 1 1 , H 0 5 B 3 3

R E G I S T R Y   S T N

C A P L U S   S T N