

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2016-503585

(P2016-503585A)

(43) 公表日 平成28年2月4日(2016.2.4)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
H01L 51/50 (2006.01)	H05B 33/14	B 3K107
C07D 401/14 (2006.01)	C07D 401/14	CSP 4C063
C07D 403/14 (2006.01)	C07D 403/14	
C09K 11/06 (2006.01)	C09K 11/06	690

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 42 頁)

(21) 出願番号	特願2015-542962 (P2015-542962)	(71) 出願人	509266480
(86) (22) 出願日	平成25年11月21日 (2013.11.21)		ローム・アンド・ハース・エレクトロニク ク・マテリアルズ・コリア・リミテッド
(85) 翻訳文提出日	平成27年6月18日 (2015.6.18)		大韓民国 331-980 チュンチョン ナムード チョナンシー ソブクーク 3
(86) 国際出願番号	PCT/KR2013/010598		コンダン 1-ロ 56
(87) 国際公開番号	W02014/081206	(74) 代理人	110000589
(87) 国際公開日	平成26年5月30日 (2014.5.30)		特許業務法人センダ国際特許事務所
(31) 優先権主張番号	10-2012-0132445	(72) 発明者	チーシク・キム
(32) 優先日	平成24年11月21日 (2012.11.21)		大韓民国 445-752 キョンギード ファソンシー バンソンドン ソルピ ット・マウル・サンヨン・エガ・アパート メント 441-1201
(33) 優先権主張国	韓国 (KR)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 新規有機エレクトロルミネセンス化合物およびそれを含む有機エレクトロルミネセンスデバイス

(57) 【要約】

本発明は、新規有機エレクトロルミネセンス化合物およびそれを含む有機エレクトロルミネセンスデバイスに関する。本発明による有機エレクトロルミネセンス化合物は、従来の材料と比較してより高い発光効率を提供する。加えて、発光ホスト材料として本発明による有機エレクトロルミネセンス化合物を用いるOLEDデバイスは、より低い駆動電圧を有するので、結果としてより高い出力効率および向上した出力消費を生じ、改良された電流効率を提供する。

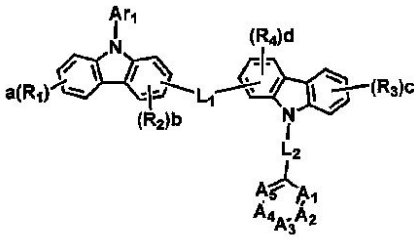
【選択図】なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

次式 1 :

【化 1】



— (1)

(式中、

L_1 は置換もしくは非置換 (C 6 ~ C 3 0) アリーレン基、または置換もしくは非置換 5 ~ 3 0 員ヘテロアリーレン基を表す；

L_2 は単結合、置換もしくは非置換 (C 6 ~ C 3 0) アリーレン基、または置換もしくは非置換 5 ~ 3 0 員ヘテロアリーレン基を表す；

Ar_1 は置換もしくは非置換 (C 6 ~ C 3 0) アリール基、または置換もしくは非置換 5 ~ 3 0 員ヘテロアリール基を表す；

$A_1 \sim A_5$ はそれぞれ独立して、 $Ar_1 \sim Ar_5$ の少なくとも 1 つが N を表すという条件で、C R または N を表す；

R は水素、置換もしくは非置換 (C 1 ~ C 3 0) アルキル基、置換もしくは非置換 (C 6 ~ C 3 0) アリール基、置換もしくは非置換 5 ~ 3 0 員ヘテロアリール基、または置換もしくは非置換 (C 3 ~ C 3 0) シクロアルキル基を表す；

$R_1 \sim R_4$ はそれぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、シアノ基、置換もしくは非置換 (C 1 ~ C 3 0) アルキル基、置換もしくは非置換 (C 6 ~ C 3 0) アリール基、置換もしくは非置換 5 ~ 3 0 員ヘテロアリール基、置換もしくは非置換 (C 3 ~ C 3 0) シクロアルキル基、置換もしくは非置換 (C 1 ~ C 3 0) アルコキシ基、置換もしくは非置換 (C 1 ~ C 3 0) アルキルシリル基、置換もしくは非置換 (C 6 ~ C 3 0) アリールシリル基、置換もしくは非置換 (C 6 ~ C 3 0) アリール (C 1 ~ C 3 0) アルキルシリル基、置換もしくは非置換 (C 1 ~ C 3 0) アルキルアミノ基、置換もしくは非置換 (C 6 ~ C 3 0) アリールアミノ基、または置換もしくは非置換 (C 1 ~ C 3 0) アルキル (C 6 ~ C 3 0) アリールアミノ基を表す；または隣接する置換基 (複数可) と結合して、炭素原子 (複数可) が窒素、酸素および硫黄からなる群から選択される少なくとも 1 つのヘテロ原子で置換されてもよい単環式もしくは多環式、3 ~ 3 0 員、脂環式もしくは芳香族環を形成する；

a および c はそれぞれ独立して、1 ~ 4 の整数を表す；a または c のそれぞれが 2 以上である場合、 R_1 のそれぞれおよび R_3 のそれぞれは同一または異なり得る；

b および d はそれぞれ独立して、1 ~ 3 の整数を表す；b または d のそれぞれが 2 以上である場合、 R_2 のそれぞれおよび R_4 のそれぞれは同一または異なり得る；および

前記ヘテロアリーレン基および前記ヘテロアリール基はそれぞれ独立して、B、N、O、S、P (= O)、Si および P から選択される少なくとも 1 つのヘテロ原子を含む) によって表される有機エレクトロルミネセンス化合物。

【請求項 2】

L_1 、 L_2 、 Ar_1 、R、および $R_1 \sim R_4$ において、前記置換アルキル、前記置換アルコキシ、前記置換アルキルシリル、前記置換アリールシリル基、前記置換アリールアルキルシリル、前記置換アルキルアミノ、前記置換アリールアミノ、前記置換アルキルアリールアミノ、前記置換シクロアルキル、前記置換アリール (エン)、および前記置換ヘテロアリール (エン) の前記置換基はそれぞれ独立して、重水素、ハロゲン、シアノ、カルボキシル、ニトロ、ヒドロキシル、(C 1 ~ C 3 0) アルキル、ハロ (C 1 ~ C 3 0) アルキル、(C 2 ~ C 3 0) アルケニル、(C 2 ~ C 3 0) アルキニル、(C 1 ~ C 3 0)

10

20

30

40

50

アルコキシ、(C₁ ~ C₃₀)アルキルチオ、(C₃ ~ C₃₀)シクロアルキル、(C₃ ~ C₃₀)シクロアルケニル、3 ~ 7員ヘテロシクロアルキル、(C₆ ~ C₃₀)アリーロキシ、(C₆ ~ C₃₀)アリールチオ、非置換であるか(C₆ ~ C₃₀)アリールで置換された5 ~ 30員ヘテロアリール、非置換であるか5 ~ 30員ヘテロアリールで置換された(C₆ ~ C₃₀)アリール、トリ(C₁ ~ C₃₀)アルキルシリル、トリ(C₆ ~ C₃₀)アリールシリル、ジ(C₁ ~ C₃₀)アルキル(C₆ ~ C₃₀)アリールシリル、(C₁ ~ C₃₀)アルキルジ(C₆ ~ C₃₀)アリールシリル、アミノ、モノもしくはジ(C₁ ~ C₃₀)アルキルアミノ、モノもしくはジ(C₆ ~ C₃₀)アリールアミノ、(C₁ ~ C₃₀)アルキル(C₆ ~ C₃₀)アリールアミノ、(C₁ ~ C₃₀)アルキルカルボニル、(C₁ ~ C₃₀)アルコキシカルボニル、(C₆ ~ C₃₀)アリールカルボニル、ジ(C₆ ~ C₃₀)アリールボロニル、ジ(C₁ ~ C₃₀)アルキルボロニル、(C₁ ~ C₃₀)アルキル(C₆ ~ C₃₀)アリールボロニル、(C₆ ~ C₃₀)アリール(C₁ ~ C₃₀)アルキル、および(C₁ ~ C₃₀)アルキル(C₆ ~ C₃₀)アリールからなる群から選択される少なくとも1つである、請求項1記載の有機エレクトロルミネセンス化合物。

10

【請求項3】

L₁は置換もしくは非置換(C₆ ~ C₃₀)アリーレン基を表し；

L₂は単結合、または置換もしくは非置換(C₆ ~ C₃₀)アリーレン基を表し；

Ar₁は置換もしくは非置換(C₆ ~ C₃₀)アリール基を表し；

A₁ ~ A₅はそれぞれ独立して、Ar₁ ~ Ar₅の少なくとも1つがNを表すという条件で、CRまたはNを表し；

20

Rは水素、置換もしくは非置換(C₆ ~ C₃₀)アリール基、または置換もしくは非置換5 ~ 30員ヘテロアリール基を表し；

R₁ ~ R₄はそれぞれ独立して、水素、置換もしくは非置換(C₁ ~ C₃₀)アルキル基、置換もしくは非置換(C₆ ~ C₃₀)アリール基、または置換もしくは非置換ジ(C₆ ~ C₃₀)アリールアミノ基を表し；または隣接する置換基(複数可)と結合して、単環式もしくは多環式、3 ~ 30員、脂環式もしくは芳香族環を形成し；

aおよびcはそれぞれ独立して、1 ~ 2の整数を表し；

bおよびdはそれぞれ独立して、1 ~ 2の整数を表す、請求項1記載の有機エレクトロルミネセンス化合物。

30

【請求項4】

L₁は非置換であるか(C₁ ~ C₆)アルキルで置換された(C₆ ~ C₂₀)アリーレン基を表し；L₂は単結合、または非置換(C₆ ~ C₂₀)アリーレン基を表し；

Ar₁は非置換であるか重水素、ハロゲン、(C₁ ~ C₆)アルキル、もしくはシアノで置換された(C₆ ~ C₂₀)アリール基；または非置換5 ~ 20員ヘテロアリール基を表す；

A₁ ~ A₅はそれぞれ独立して、A₁ ~ A₅の少なくとも1つがNを表すという条件で、CRまたはNを表し；

Rは水素；非置換であるか重水素、(C₁ ~ C₆)アルキル、(C₃ ~ C₂₀)シクロアルキル、(C₆ ~ C₂₀)アリール、5 ~ 20員ヘテロアリール、もしくはトリ(C₁ ~ C₆)アルキルシリルで置換された(C₆ ~ C₂₀)アリール基；または非置換5 ~ 20員ヘテロアリール基を表し；

40

R₁ ~ R₄はそれぞれ独立して、水素、非置換(C₁ ~ C₆)アルキル基、非置換(C₆ ~ C₂₀)アリール基、または非置換ジ(C₆ ~ C₂₀)アリールアミノ基を表し；または隣接する置換基(複数可)と結合して、単環式、3 ~ 20員、芳香族環を形成し；

aおよびcはそれぞれ独立して、1 ~ 2の整数を表し；

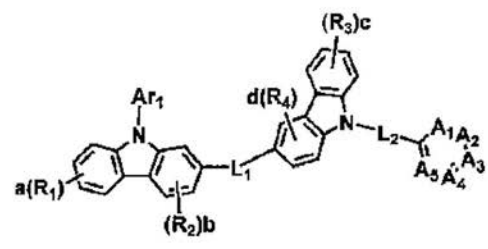
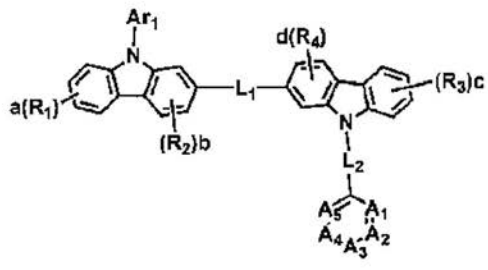
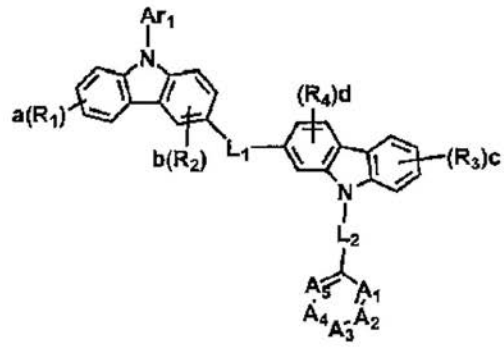
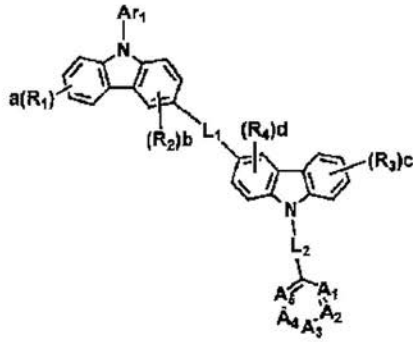
bおよびdはそれぞれ独立して、1 ~ 2の整数を表す、請求項1記載の有機エレクトロルミネセンス化合物。

【請求項5】

式1は、次式(1-1) ~ (1-4)：

50

【化 2】



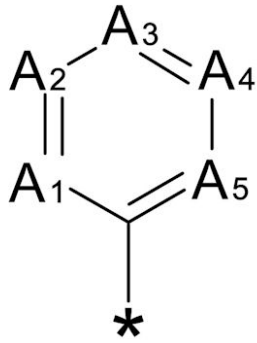
(式中、 L_1 、 L_2 、 Ar_1 、 $A_1 \sim A_5$ 、 $R_1 \sim R_4$ 、 a 、 b 、 c 、および d は請求項 1 で定義される通りである)

によって表される、請求項 1 記載の有機エレクトロルミネセンス化合物。

【請求項 6】

前記構造、

【化 3】



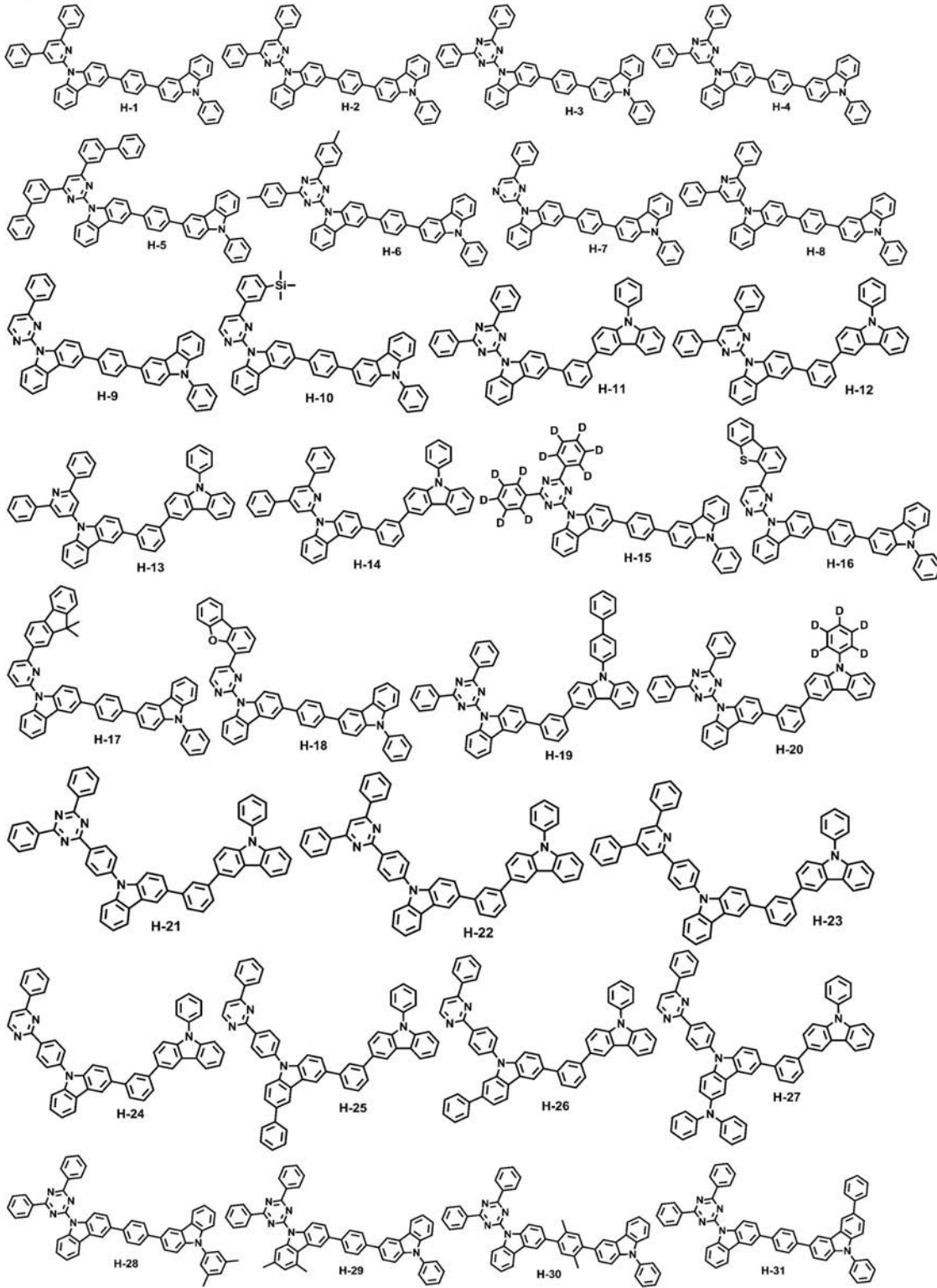
10

は、ピリジン、ピリミジン、トリアジン、ピラジンまたはピリダジンを表す、請求項 1 記載の有機エレクトロルミネセンス化合物。

【請求項 7】

式 1 によって表される前記化合物は、

【化 4】



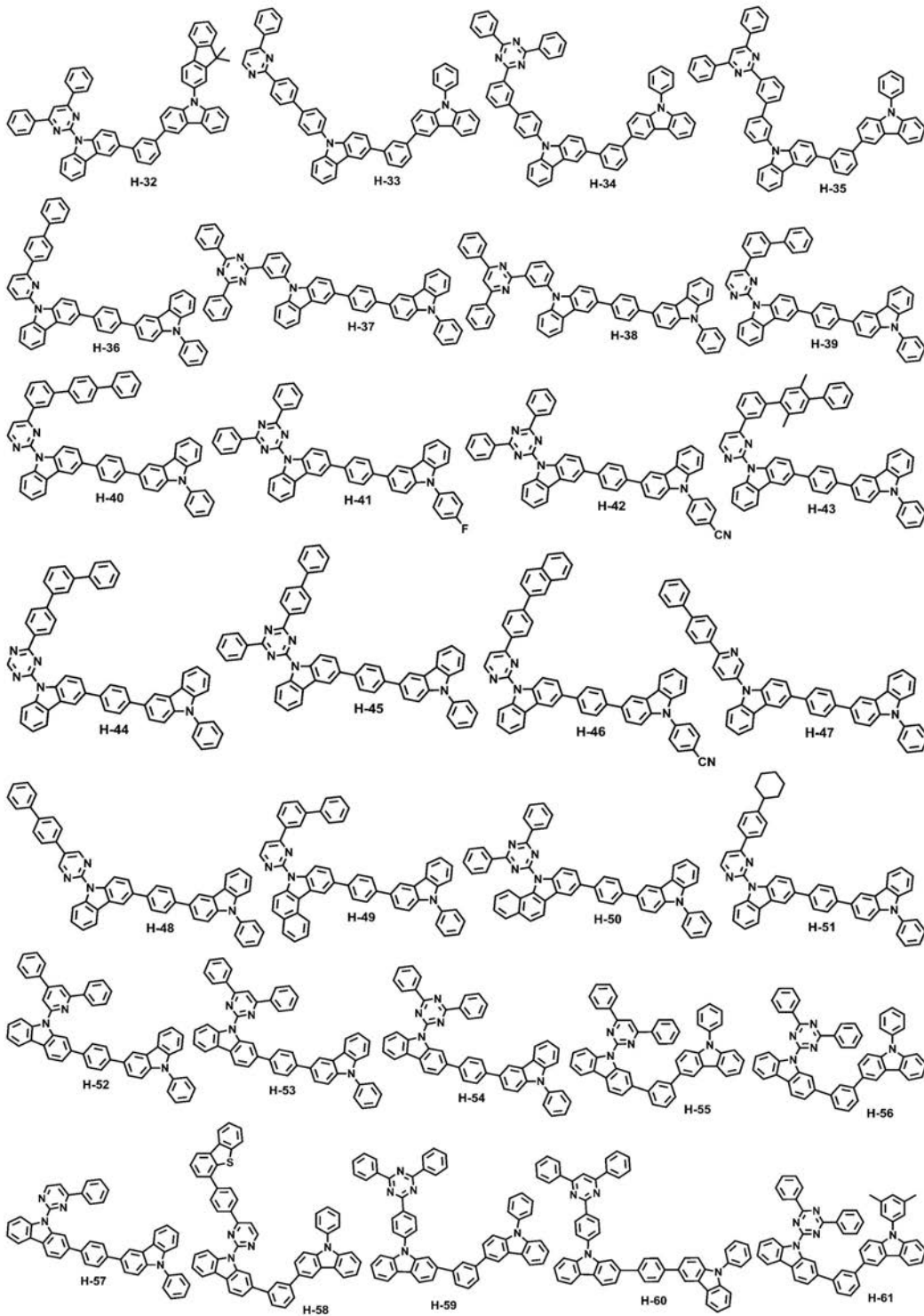
10

20

30

40

【化 5】



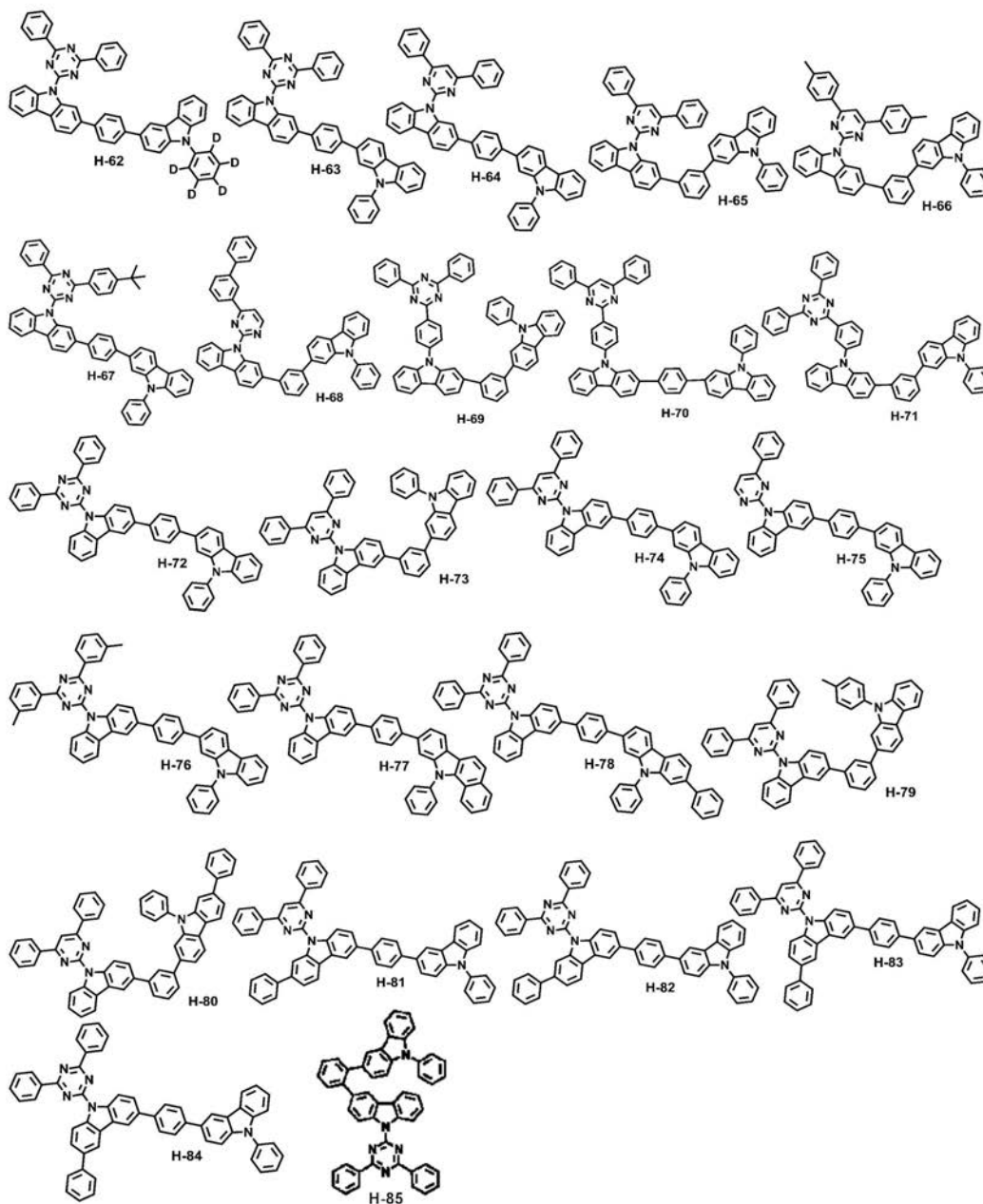
10

20

30

40

【化 6】



10

20

30

からなる群から選択される、請求項 1 記載の有機エレクトロルミネセンス化合物。

【請求項 8】

請求項 1 記載の有機エレクトロルミネセンス化合物を含む有機エレクトロルミネセンスデバイス。

40

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、新規有機エレクトロルミネセンス化合物およびそれを含む有機エレクトロルミネセンスデバイスに関する。

【背景技術】

【0002】

エレクトロルミネセンスデバイス（ELデバイス）は、より広い視野角、より大きなコントラスト比、およびより速い応答時間を提供するという点で利点を有する自己発光デバイスである。有機ELデバイスは、小さい芳香族ジアミン分子およびアルミニウム錯体を、発光層を形成するための材料として使用することによって、イーストマン・コダック（

50

Eastman Kodak) によって最初に開発された [Appl. Phys. Lett. 51, 913, 1987]。

【0003】

有機ELデバイスにおける発光効率を決定する最も重要な因子は発光材料である。現在までのところ、蛍光性材料が発光材料として広く使用されている。しかしながら、エレクトロルミネセント機序を考慮して、リン光性材料は蛍光性材料と比較して理論上発光効率を4倍向上させるため、リン光性発光材料の開発が広く研究されている。それぞれ赤色、緑色、および青色材料として、ビス(2-(2'-ベンゾチエニル)-ピリジナート-N, C3')イリジウム(アセチルアセトネート)((acac)Ir(btpp)₂)、トリス(2-フェニルピリジン)イリジウム(Ir(ppy)₃)およびビス(4,6-ジフルオロフェニルピリジナート-N, C2)ピコリネートイリジウム(Firpic)を含有するイリジウム(III)錯体がリン光性材料として広く知られている。

10

【0004】

発光性材料(ドーパント)は、色純度、発光効率、および安定性を改良するため、発光材料としてホスト材料と組み合わせて使用され得る。発光材料としてホスト材料/ドーパント系を用いる時、ホスト材料はELデバイスの効率および性能に非常に影響を及ぼすので、これらの選択は重要である。

【0005】

現在では、4,4'-N,N'-ジカルバゾール-ピフェニル(CBP)はリン光性物質の最も広く知られているホスト材料である。近年、Pioneer(日本)らは、ホスト材料として、正孔ブロック層材料として知られていたバトクプロイン(BCP)およびアルミニウム(III)ビス(2-メチル-8-キノリネート)(4-フェニルフェノレート)(BA1q)などを用いた高性能有機ELデバイスを開発した。

20

【0006】

これらのリンのホスト材料は良好な発光特性を提供するが、それらは以下の不利益を有する:(1)それらの低いガラス転移温度および不十分な熱安定性のために、真空中での高温蒸着プロセスの間にそれらの劣化が起こる可能性がある。(2)有機ELデバイスの出力効率は[(η /電圧)×電流効率]によって与えられ、出力効率は電圧に反比例する。リン光性ホスト材料を含む有機ELデバイスは、蛍光性材料を含むものより高い電流効率(cd/A)を提供するが、有意に高い駆動電圧が必要である。したがって、出力効率(lm/W)の観点から利点はない。(3)さらに、有機ELデバイスの操作寿命短く、発光効率は、まだ改良される必要がある。

30

【0007】

一方、銅フタロシアニン(CuPc)、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ピフェニル(NPB)、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-(1,1'-ピフェニル)-4,4'-ジアミン(TPD)、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(MTDATA)などが、正孔注入および輸送材料として使用されてきた。

【0008】

しかしながら、これらの材料を使用する有機ELデバイスは、量子効率および操作寿命において問題がある。それは、有機ELデバイスが高電流下で駆動される時、熱ストレスが陽極および正孔注入層の間に起こるからである。熱ストレスは、有意にデバイスの操作寿命を減少させる。さらに、正孔注入層に使用される有機材料は非常に高い正孔移動性を有するので、正孔-電子の電荷バランスが壊され、量子収率(cd/A)が減少するかもしれない。

40

【0009】

国内特許出願公開第2007-194241号および2009-194042号は、有機ELデバイス用化合物として、二つのカルバゾールがアリール、ヘテロアリールまたはフルオレン基を介して結合された化合物を開示する。

【0010】

50

しかしながら、上記文献に開示された化合物を含む有機ELデバイスは、出力効率、発光効率、量子効率、寿命などに関してまだ満足いくものでない。

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0011】

本発明の目的は、従来材料よりも高い発光効率、出力効率、および長い操作寿命を有する有機エレクトロルミネセント化合物；および前記化合物を使用し、高効率および長寿命を有する有機エレクトロルミネセントデバイスを提供することである。

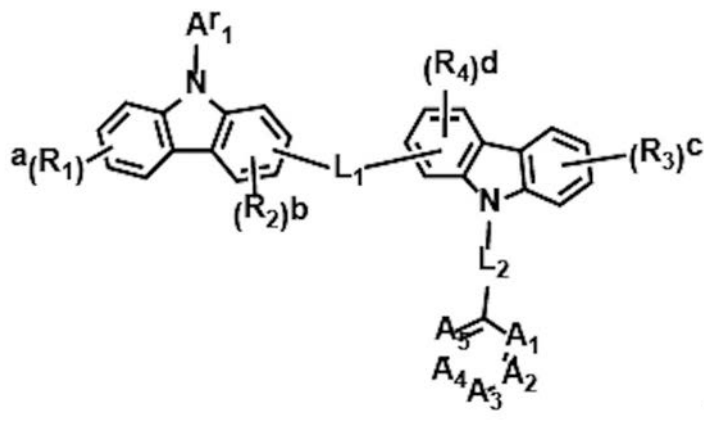
【課題を解決するための手段】

【0012】

本発明者らは上記目的が次式1：

【0013】

【化1】



----- (1)

【0014】

(式中、

L_1 は置換もしくは非置換 (C6 ~ C30) アリーレン基、または置換もしくは非置換 5 ~ 30 員ヘテロアリーレン基を表す；

L_2 は単結合、置換もしくは非置換 (C6 ~ C30) アリーレン基、または置換もしくは非置換 5 ~ 30 員ヘテロアリーレン基を表す；

Ar_1 は置換もしくは非置換 (C6 ~ C30) アリール基、または置換もしくは非置換 5 ~ 30 員ヘテロアリール基を表す；

$A_1 \sim A_5$ はそれぞれ独立して、 $Ar_1 \sim Ar_5$ の少なくとも1つがNを表すという条件で、CRまたはNを表す；

Rは水素、置換もしくは非置換 (C1 ~ C30) アルキル基、置換もしくは非置換 (C6 ~ C30) アリール基、置換もしくは非置換 5 ~ 30 員ヘテロアリール基、または置換もしくは非置換 (C3 ~ C30) シクロアルキル基を表す；

【0015】

$R_1 \sim R_4$ はそれぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、シアノ基、置換もしくは非置換 (C1 ~ C30) アルキル基、置換もしくは非置換 (C6 ~ C30) アリール基、置換もしくは非置換 5 ~ 30 員ヘテロアリール基、置換もしくは非置換 (C3 ~ C30) シクロアルキル基、置換もしくは非置換 (C1 ~ C30) アルコキシ基、置換もしくは非置換 (C1 ~ C30) アルキルシリル基、置換もしくは非置換 (C6 ~ C30) アリールシリル基、置換もしくは非置換 (C6 ~ C30) アリール (C1 ~ C30) アルキルシリル基、置換もしくは非置換 (C1 ~ C30) アルキルアミノ基、置換もしくは非置換 (C6 ~ C30) アリールアミノ基、または置換もしくは非置換 (C1 ~ C30) アルキル (C6 ~ C30) アリールアミノ基を表す；または隣接する置換基 (複数可) と結合して、炭素原子 (複数可) が窒素、酸素および硫黄からなる群から選択される少なくとも1つのヘテロ原子で置換されてもよい単環式もしくは多環式、3 ~ 30 員、脂環式もしくは芳香族

10

20

30

40

50

環を形成する；

【0016】

a および c はそれぞれ独立して、1～4の整数を表す；a または c のそれぞれが2以上である場合、 R_1 のそれぞれおよび R_3 のそれぞれは同一または異なり得る；

b および d はそれぞれ独立して、1～3の整数を表す；b または d のそれぞれが2以上である場合、 R_2 のそれぞれおよび R_4 のそれぞれは同一または異なり得る；および

ヘテロアリーレン基およびヘテロアリアル基はそれぞれ独立して、B、N、O、S、P (=O)、Si および P から選択される少なくとも1つのヘテロ原子を含む)

によって表される、2つのカルバゾールがアリアルまたはヘテロ基を介して結合され、窒素含有芳香族環が1つのカルバゾールの窒素原子に結合された化合物によって達成することができることを見出した。

10

【発明の効果】

【0017】

本発明による有機エレクトロルミネセント化合物は、高い発光効率、出力効率、および長い操作寿命を有する。加えて、本発明による該化合物を使用する有機エレクトロルミネセントデバイスは、優れた電流効率を提供し、より低い操作電圧を有し、結果としてより高い出力効率および向上した出力消費を生じる。

【発明を実施するための形態】

【0018】

以下、本発明を詳細に説明する。しかしながら、以下の記載は本発明を説明することを意図し、本発明の範囲を制限することを決して意味しない。

20

【0019】

本発明は式1の有機エレクトロルミネセント化合物、該化合物を含む有機エレクトロルミネセント材料、および該材料を含む有機エレクトロルミネセントデバイスに関する。

【0020】

上記式1により表される化合物が詳細に説明されるだろう。

【0021】

上記式1中、 L_1 は置換もしくは非置換 ($C_6 \sim C_{30}$) アリーレン基、または置換もしくは非置換5～30員ヘテロアリーレン基を表し、好ましくは置換もしくは非置換 ($C_6 \sim C_{30}$) アリーレン基を表し、より好ましくは非置換であるか ($C_1 \sim C_6$) アルキルで置換された ($C_6 \sim C_{20}$) アリーレン基を表す。

30

【0022】

L_2 は単結合、置換もしくは非置換 ($C_6 \sim C_{30}$) アリーレン基、または置換もしくは非置換5～30員ヘテロアリーレン基を表し、好ましくは単結合、または置換もしくは非置換 ($C_6 \sim C_{30}$) アリーレン基を表し、より好ましくは単結合、または非置換 ($C_6 \sim C_{20}$) アリーレン基を表す。

【0023】

Ar_1 は置換もしくは非置換 ($C_6 \sim C_{30}$) アリアル基、または置換もしくは非置換5～30員ヘテロアリアル基を表し、好ましくは置換もしくは非置換 ($C_6 \sim C_{30}$) アリアル基を表し、より好ましくは、非置換であるか重水素、ハロゲン、($C_1 \sim C_6$) アルキル、もしくはシアノで置換された ($C_6 \sim C_{20}$) アリアル基；または非置換5～20員ヘテロアリアル基を表す。

40

【0024】

$A_1 \sim A_5$ はそれぞれ独立して、 $Ar_1 \sim Ar_5$ の少なくとも1つがNを表すという条件で、CRまたはNを表す。

【0025】

R は水素、置換もしくは非置換 ($C_1 \sim C_{30}$) アルキル基、置換もしくは非置換 ($C_6 \sim C_{30}$) アリアル基、置換もしくは非置換5～30員ヘテロアリアル基、または置換もしくは非置換 ($C_3 \sim C_{30}$) シクロアルキル基を表し、好ましくは水素、置換もしくは非置換 ($C_6 \sim C_{30}$) アリアル基、または置換もしくは非置換5～30員ヘテロアリ

50

ール基を表し、より好ましくは水素；非置換であるか重水素、(C 1 ~ C 6)アルキル、(C 3 ~ C 20)シクロアルキル、(C 6 ~ C 20)アリール、5 ~ 20員ヘテロアリール、もしくはトリ(C 1 ~ C 6)アルキルシリルで置換された(C 6 ~ C 20)アリール基；または非置換5 ~ 20員ヘテロアリール基を表す。

【0026】

R₁ ~ R₄はそれぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、シアノ基、置換もしくは非置換(C 1 ~ C 30)アルキル基、置換もしくは非置換(C 6 ~ C 30)アリール基、置換もしくは非置換5 ~ 30員ヘテロアリール基、置換もしくは非置換(C 3 ~ C 30)シクロアルキル基、置換もしくは非置換(C 1 ~ C 30)アルコキシ基、置換もしくは非置換(C 1 ~ C 30)アルキルシリル基、置換もしくは非置換(C 6 ~ C 30)アリールシリル基、置換もしくは非置換(C 6 ~ C 30)アリール(C 1 ~ C 30)アルキルシリル基、置換もしくは非置換(C 1 ~ C 30)アルキルアミノ基、置換もしくは非置換(C 6 ~ C 30)アリールアミノ基、または置換もしくは非置換(C 1 ~ C 30)アルキル(C 6 ~ C 30)アリールアミノ基を表し；または隣接する置換基(複数可)と結合して、炭素原子(複数可)が窒素、酸素および硫黄からなる群から選択される少なくとも1つのヘテロ原子で置換されてもよい単環式もしくは多環式、3 ~ 30員、脂環式もしくは芳香族環を形成し、好ましくはそれぞれ独立して、水素、置換もしくは非置換(C 1 ~ C 30)アルキル基、置換もしくは非置換(C 6 ~ C 30)アリール基、または置換もしくは非置換ジ(C 6 ~ C 30)アリールアミノ基を表し；または隣接する置換基(複数可)と結合して、単環式もしくは多環式、3 ~ 30員、脂環式もしくは芳香族環を形成し、より好ましくはそれぞれ独立して、水素、非置換(C 1 ~ C 6)アルキル基、非置換(C 6 ~ C 20)アリール基、または非置換ジ(C 6 ~ C 20)アリールアミノ基を表し；または隣接する置換基(複数可)と結合して、単環式、3 ~ 20員、芳香族環を形成する。

10

20

【0027】

aおよびcはそれぞれ独立して、1 ~ 4の整数、好ましくは1 ~ 2整数を表す；aまたはcのそれぞれが2以上である場合、R₁のそれぞれおよびR₃のそれぞれは同一または異なり得る。

【0028】

bおよびdはそれぞれ独立して、1 ~ 3の整数、好ましくは1 ~ 2の整数を表す；bまたはdのそれぞれが2以上である場合、R₂のそれぞれおよびR₄のそれぞれは同一または異なり得る。

30

【0029】

ヘテロアリーレン基およびヘテロアリール基はそれぞれ独立して、B、N、O、S、P(=O)、SiおよびPから選択される少なくとも1つのヘテロ原子を含む。

【0030】

本発明の一実施形態によると、上記式1中、L₁は置換もしくは非置換(C 6 ~ C 30)アリーレン基を表し；L₂は単結合、または置換もしくは非置換(C 6 ~ C 30)アリーレン基を表し；Ar₁は置換もしくは非置換(C 6 ~ C 30)アリール基を表し；A₁ ~ A₅はそれぞれ独立して、Ar₁ ~ Ar₅の少なくとも1つがNを表すという条件で、CRまたはNを表し；Rは水素、置換もしくは非置換(C 6 ~ C 30)アリール基、または置換もしくは非置換5 ~ 30員ヘテロアリール基を表し；R₁ ~ R₄はそれぞれ独立して、水素、置換もしくは非置換(C 1 ~ C 30)アルキル基、置換もしくは非置換(C 6 ~ C 30)アリール基、または置換もしくは非置換ジ(C 6 ~ C 30)アリールアミノ基を表し；または隣接する置換基(複数可)と結合して、単環式もしくは多環式、3 ~ 30員、脂環式もしくは芳香族環を形成し；aおよびcはそれぞれ独立して、1 ~ 2の整数を表し；bおよびdはそれぞれ独立して、1 ~ 2の整数を表す。

40

【0031】

本発明の別の実施形態によると、上記式1中、L₁は非置換であるか(C 1 ~ C 6)アルキルで置換された(C 6 ~ C 20)アリーレン基を表し；L₂は単結合、または非置換(C 6 ~ C 20)アリーレン基を表し；Ar₁は非置換であるか重水素、ハロゲン、(C

50

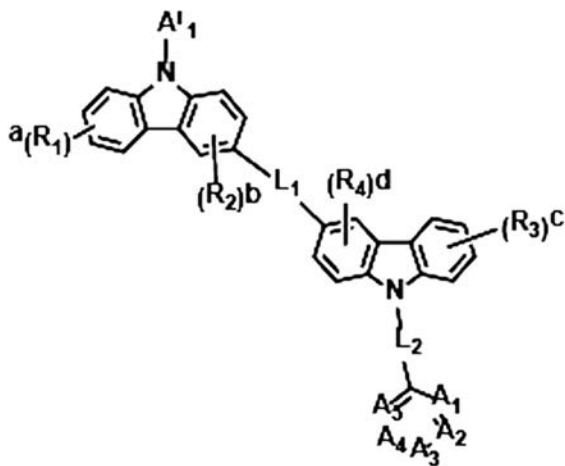
1 ~ C 6) アルキル、もしくはシアノで置換された (C 6 ~ C 2 0) アリール基 ; または非置換 5 ~ 2 0 員ヘテロアリール基を表す ; $A_1 \sim A_5$ はそれぞれ独立して、 $Ar_1 \sim Ar_5$ の少なくとも 1 つが N を表すという条件で、C R または N を表し ; R は水素 ; 非置換であるか重水素、(C 1 ~ C 6) アルキル、(C 3 ~ C 2 0) シクロアルキル、(C 6 ~ C 2 0) アリール、5 ~ 2 0 員ヘテロアリール、もしくはトリ (C 1 ~ C 6) アルキルシリルで置換された (C 6 ~ C 2 0) アリール基 ; または非置換 5 ~ 2 0 員ヘテロアリール基を表し ; $R_1 \sim R_4$ はそれぞれ独立して、水素、非置換 (C 1 ~ C 6) アルキル基、非置換 (C 6 ~ C 2 0) アリール基、または非置換ジ (C 6 ~ C 2 0) アリールアミノ基を表し ; または隣接する置換基 (複数可) と結合して、単環式、3 ~ 2 0 員、芳香族環を形成し ; a および c はそれぞれ独立して、1 ~ 2 の整数を表し ; b および d はそれぞれ独立して、1 ~ 2 の整数を表す。

【 0 0 3 2 】

式 1 は次式 (1 - 1) ~ (1 - 4) により表され得る。

【 0 0 3 3 】

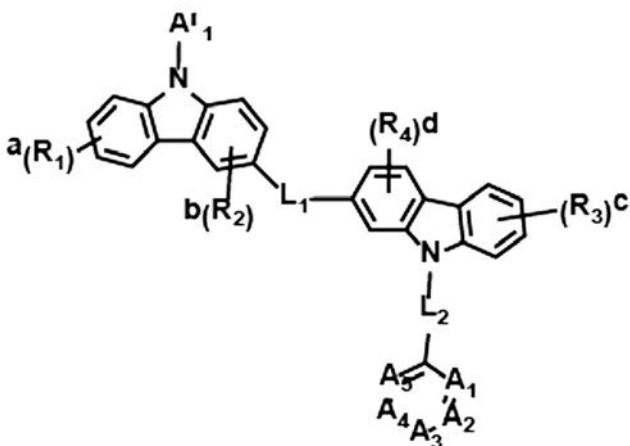
【 化 2 】



----- (1-1)

【 0 0 3 4 】

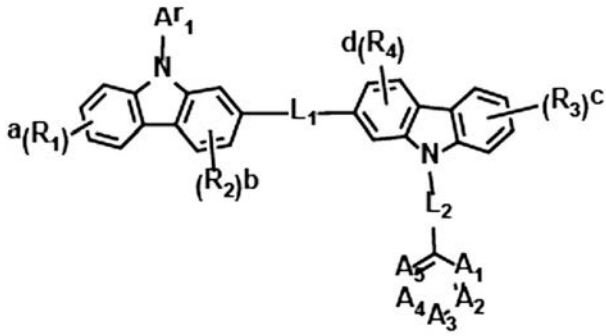
【 化 3 】



----- (1-2)

【 0 0 3 5 】

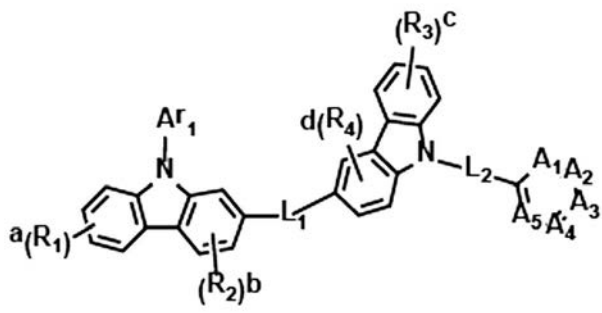
【化4】



10

【0036】

【化5】



20

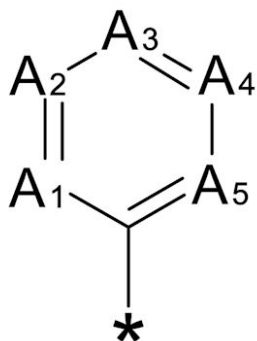
【0037】

式中、 L_1 、 L_2 、 Ar_1 、 $A_1 \sim A_5$ 、 $R_1 \sim R_4$ 、 a 、 b 、 c 、および d は式1で定義される通りである。

【0038】

構造、

【化6】



30

40

【0039】

は、ピリジン、ピリミジン、トリアジン、ピラジンまたはピリダジンを表し得る。

【0040】

本明細書中で、「(C1~C30)アルキル」は、1~30個の炭素原子を有する直線状または分枝アルキルであることを意味し、ここで、炭素原子の数は好ましくは1~10であり、メチル、エチル、*n*-プロピル、イソプロピル、*n*-ブチル、イソブチル、*tert*-ブチルなどが挙げられる；「(C3~C30)シクロアルキル」は、3~30個の炭素原子を有する単環式または多環式炭化水素であり、ここで、炭素原子の数は、好ましくは3~20であり、さらに好ましくは3~7であり、シクロプロピル、シクロブチル、

50

シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げられる；「(C₆~C₃₀)アリアル(エン)」は、6~30個の炭素原子を有する芳香族炭化水素から誘導される単環式または縮合環であり、ここで、炭素原子の数は、好ましくは6~15であり、フェニル、ビフェニル、ターフェニル、ナフチル、フルオレニル、フェナントレニル、アントラセニル、インデニル、トリフェニレニル、ピレニル、テトラセニル、ペリレニル、クリセニル、ナフタセニル、フルオランテニルなどが挙げられる；「5~30員ヘテロアリアル(エン)」は、B、N、O、S、P(=O)、SiおよびPからなる群から選択される少なくとも1個、好ましくは1~4個のヘテロ原子ならびに5~30個の環骨格原子を有するアリアルであり；単環式環、または少なくとも1つのベンゼン環と縮合した縮合環であり；好ましくは5~15個の環骨格原子を有し；部分飽和であってよく；少なくとも1つのヘテロアリアルまたはアリアル基をヘテロアリアル基に単結合(複数可)を介して結合させることによって形成されるものであってよく；フリル、チオフェニル、ピロリル、イミダゾリル、ピラゾリル、チアゾリル、チアジアゾリル、イソチアゾリル、イソキサゾリル、オキサゾリル、オキサジアゾリル、トリアジニル、テトラジニル、トリアゾリル、テトラゾリル、フラザニル、ピリジル、ピラジニル、ピリミジニル、ピリダジニルなどを含む単環式環型ヘテロアリアル、およびベンゾフラニル、ベンゾチオフェニル、イソベンゾフラニル、ジベンゾフラニル、ジベンゾチオフェニル、ベンゾイミダゾリル、ベンゾチアゾリル、ベンゾイソチアゾリル、ベンゾイソキサゾリル、ベンゾキサゾリル、イソインドリル、インドリル、インダゾリル、ベンゾチアジアゾリル、キノリル、イソキノリル、シンノリニル、キナゾリニル、キノキサリニル、カルバゾリル、フェノキサジニル、フェナントリジニル、ベンゾジオキサリルなどを含む縮合環型ヘテロアリアルが挙げられる。さらに、「ハロゲン」は、F、Cl、BrおよびIを包含する。

10

20

【0041】

本明細書中では、「置換または非置換」という表現における「置換」とは、ある官能基中の水素原子が別の原子または基、すなわち置換基で置換されていることを意味する。

【0042】

上記式1中、L₁、L₂、Ar₁、R、およびR₁~R₄において、置換アルキル、置換アルコキシ、置換アルキルシリル、置換アリアルシリル基、置換アリアルアルキルシリル、置換アルキルアミノ、置換アリアルアミノ、置換アルキルアリアルアミノ、置換シクロアルキル、置換アリアル(エン)、および置換ヘテロアリアル(エン)の置換基はそれぞれ独立して、重水素、ハロゲン、シアノ、カルボキシル、ニトロ、ヒドロキシル、(C₁~C₃₀)アルキル、ハロ(C₁~C₃₀)アルキル、(C₂~C₃₀)アルケニル、(C₂~C₃₀)アルキニル、(C₁~C₃₀)アルコキシ、(C₁~C₃₀)アルキルチオ、(C₃~C₃₀)シクロアルキル、(C₃~C₃₀)シクロアルケニル、3~7員ヘテロシクロアルキル、(C₆~C₃₀)アリアルオキシ、(C₆~C₃₀)アリアルチオ、非置換であるか(C₆~C₃₀)アリアルで置換された5~30員ヘテロアリアル、非置換であるか5~30員ヘテロアリアルで置換された(C₆~C₃₀)アリアル、トリ(C₁~C₃₀)アルキルシリル、トリ(C₆~C₃₀)アリアルシリル、ジ(C₁~C₃₀)アルキル(C₆~C₃₀)アリアルシリル、(C₁~C₃₀)アルキルジ(C₆~C₃₀)アリアルシリル、アミノ、モノもしくはジ(C₁~C₃₀)アルキルアミノ、モノもしくはジ(C₆~C₃₀)アリアルアミノ、(C₁~C₃₀)アルキル(C₆~C₃₀)アリアルアミノ、(C₁~C₃₀)アルキルカルボニル、(C₁~C₃₀)アルコキシカルボニル、(C₆~C₃₀)アリアルカルボニル、ジ(C₆~C₃₀)アリアルボロニル、ジ(C₁~C₃₀)アルキルボロニル、(C₁~C₃₀)アルキル(C₆~C₃₀)アリアルボロニル、(C₆~C₃₀)アリアル(C₁~C₃₀)アルキル、および(C₁~C₃₀)アルキル(C₆~C₃₀)アリアルからなる群から選択される少なくとも1つであり、好ましくはそれぞれ独立して、重水素、ハロゲン、シアノ、(C₁~C₃₀)アルキル、(C₃~C₃₀)シクロアルキル、5~30員ヘテロアリアル、(C₆~C₃₀)アリアル、およびトリ(C₁~C₃₀)アルキルシリルからなる群から選択される少なくとも1つである。

30

40

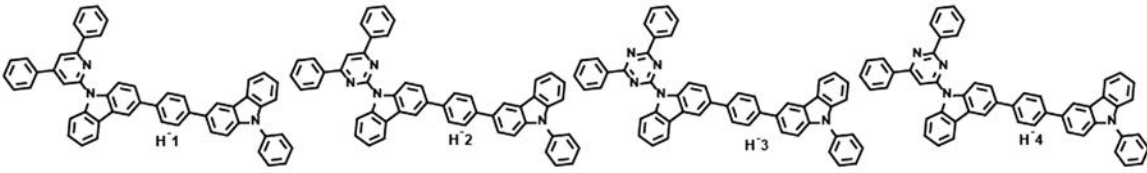
50

【 0 0 4 3 】

本発明の代表的な化合物は、以下の化合物を含む：

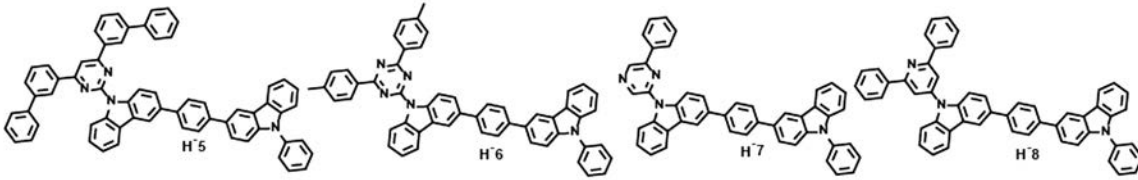
【 0 0 4 4 】

【 化 7 】



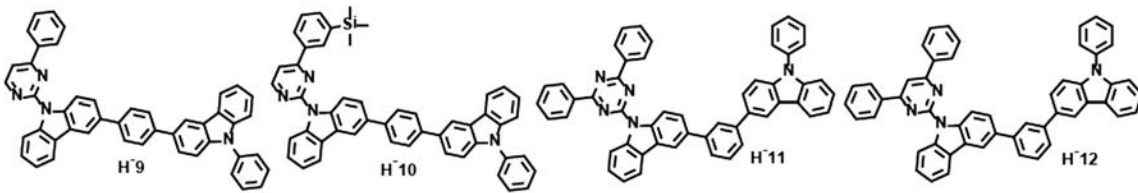
【 0 0 4 5 】

【 化 8 】



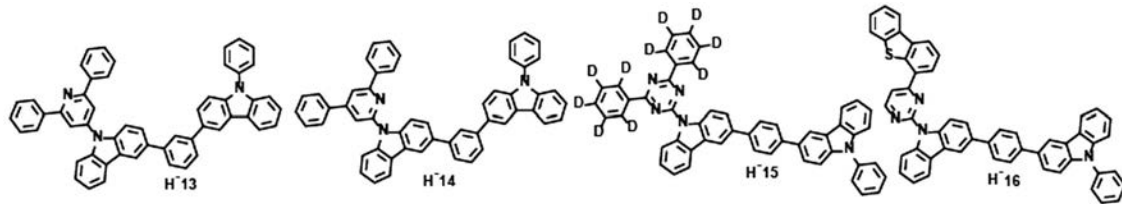
【 0 0 4 6 】

【 化 9 】



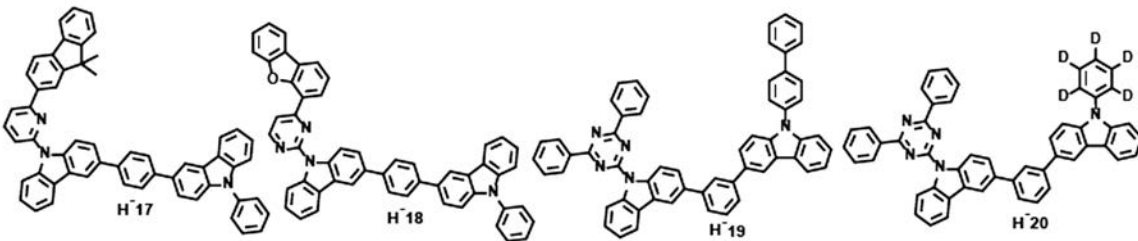
【 0 0 4 7 】

【 化 1 0 】



【 0 0 4 8 】

【 化 1 1 】



【 0 0 4 9 】

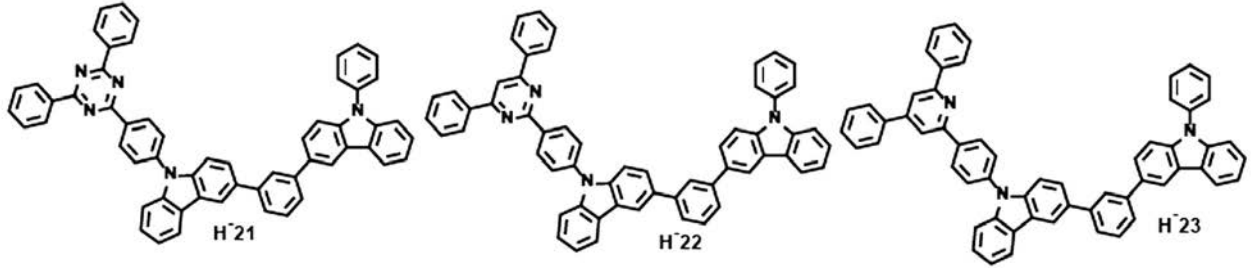
10

20

30

40

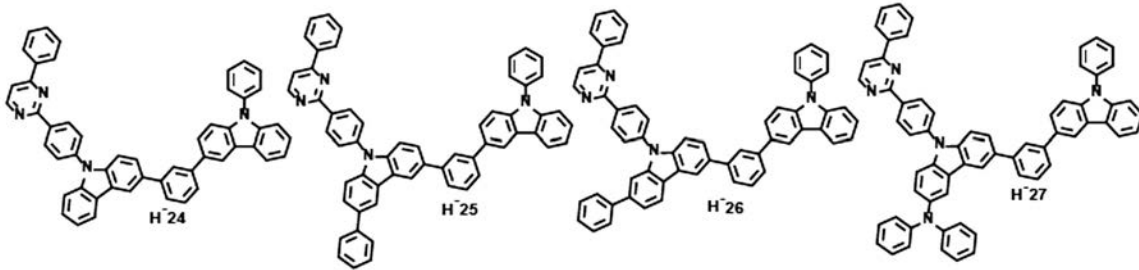
【化 1 2】



10

【 0 0 5 0】

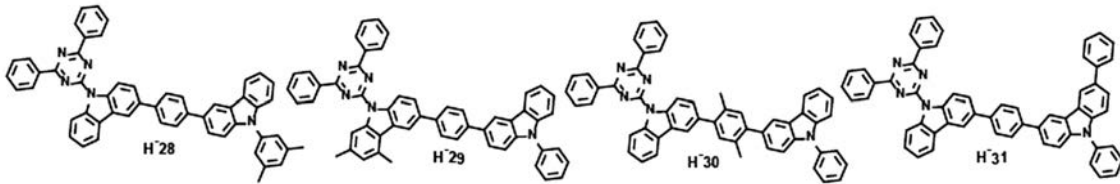
【化 1 3】



20

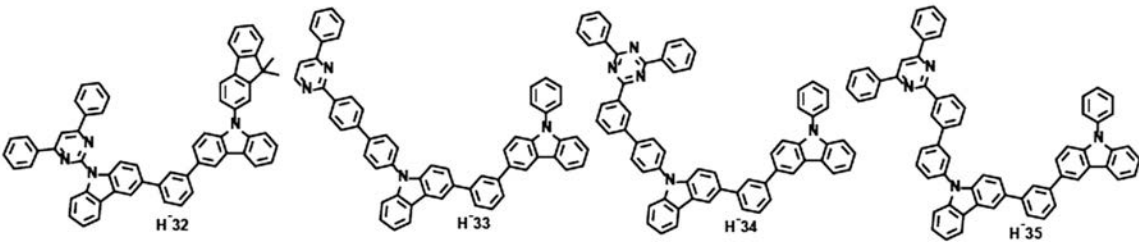
【 0 0 5 1】

【化 1 4】



【 0 0 5 2】

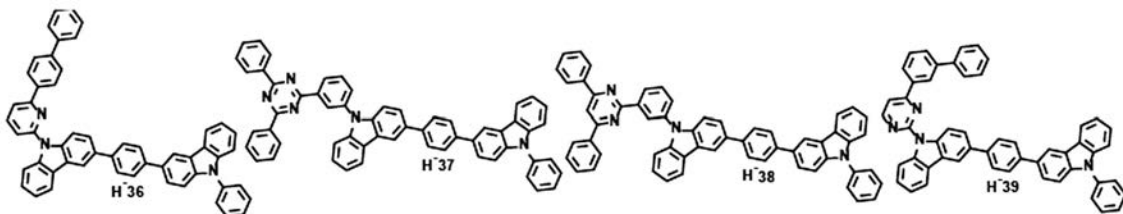
【化 1 5】



30

【 0 0 5 3】

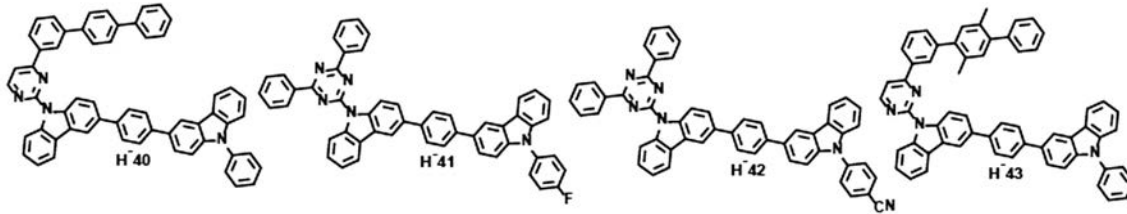
【化 1 6】



40

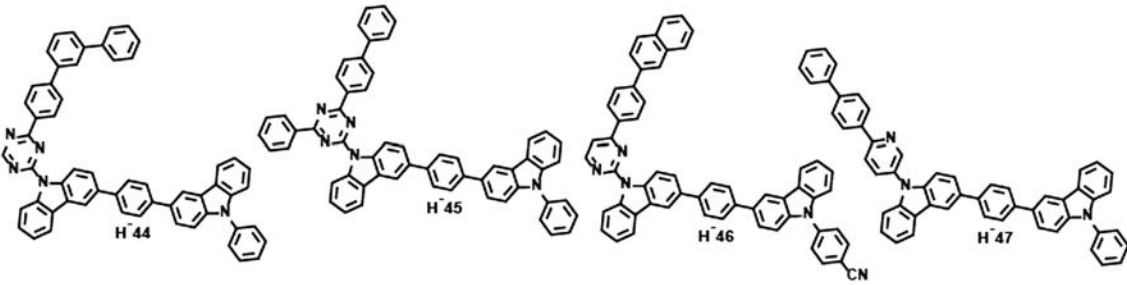
【 0 0 5 4】

【化 1 7】



【 0 0 5 5】

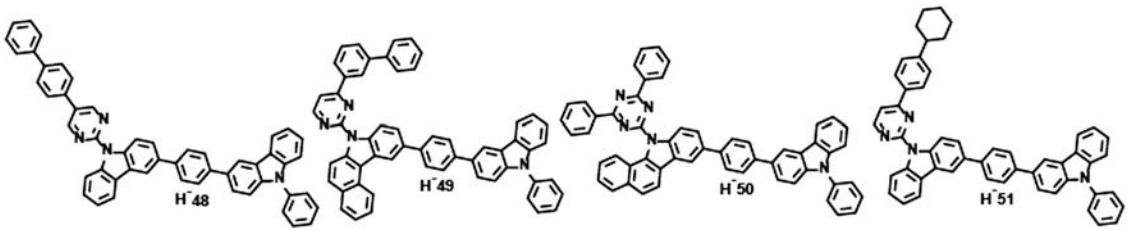
【化 1 8】



10

【 0 0 5 6】

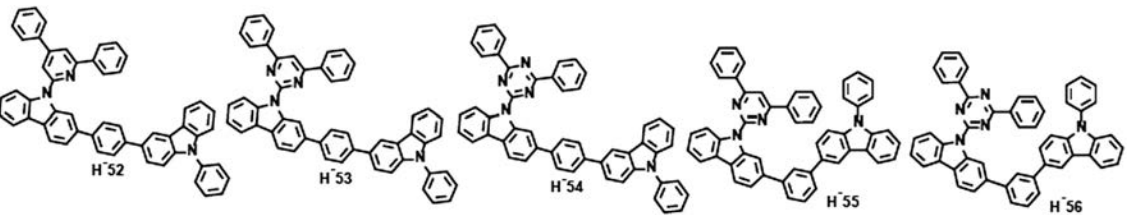
【化 1 9】



20

【 0 0 5 7】

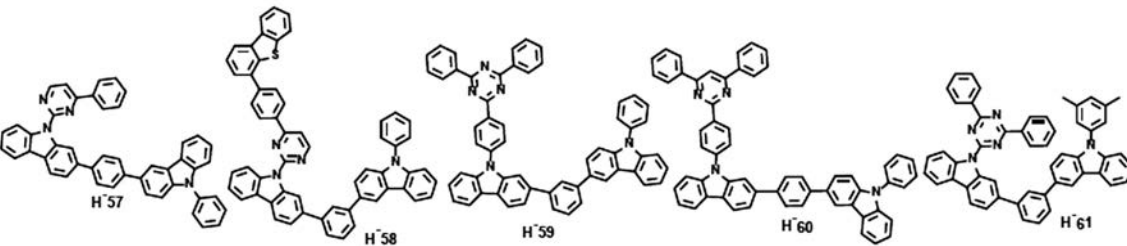
【化 2 0】



30

【 0 0 5 8】

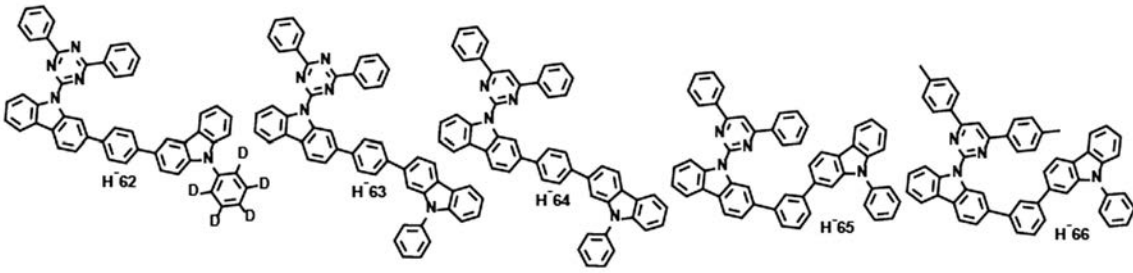
【化 2 1】



40

【 0 0 5 9】

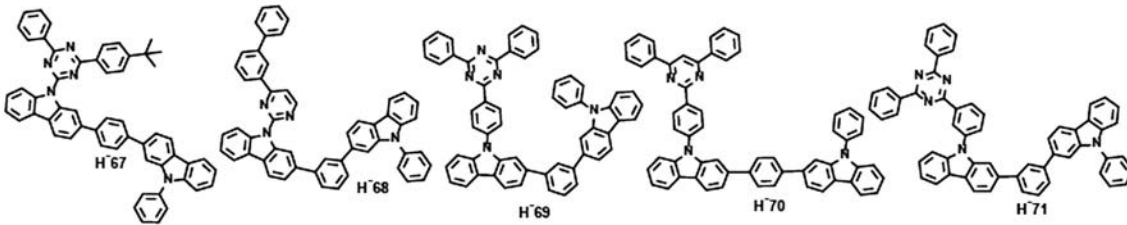
【化 2 2】



【 0 0 6 0】

10

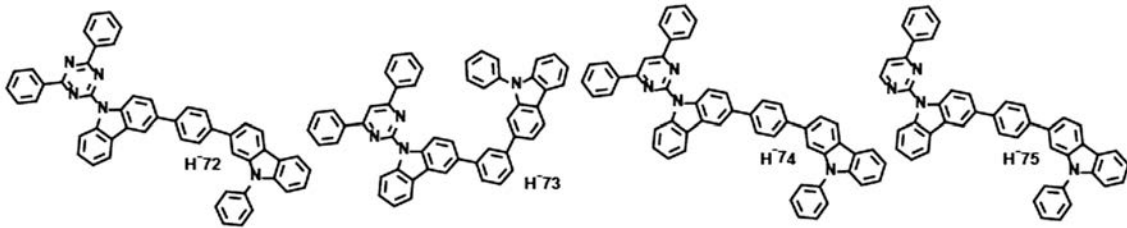
【化 2 3】



【 0 0 6 1】

20

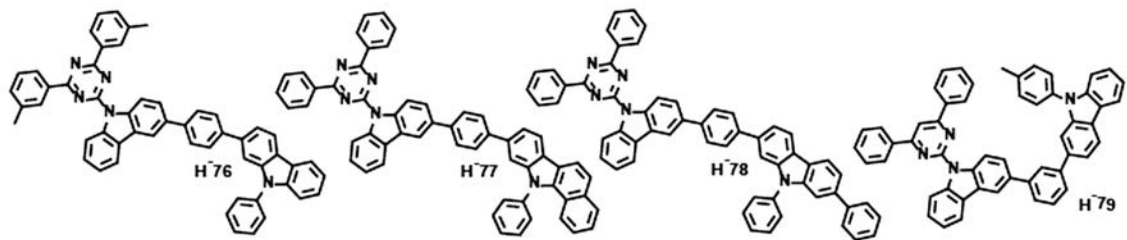
【化 2 4】



【 0 0 6 2】

30

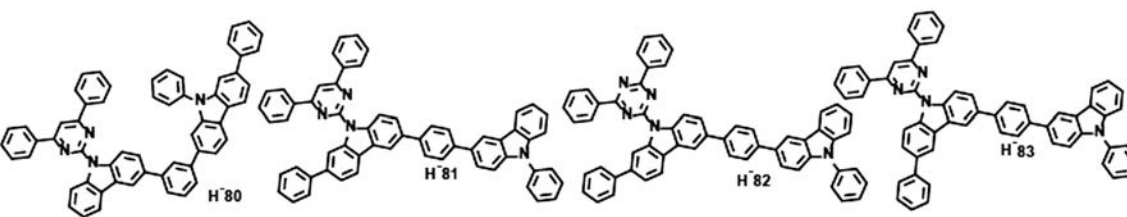
【化 2 5】



【 0 0 6 3】

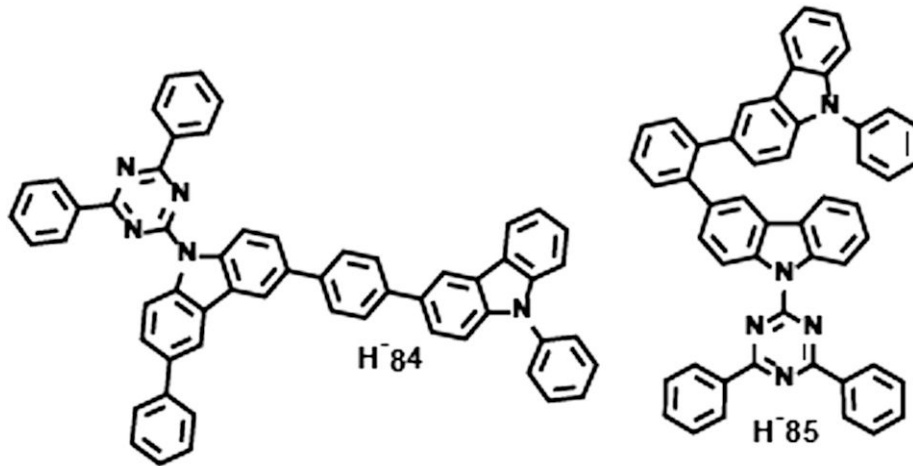
40

【化 2 6】



【 0 0 6 4】

【化 27】



10

【0065】

本発明の化合物は、当業者に既知の合成方法により調製され得る。例えば、それらは以下の反応スキーム 1 にしたがって調製され得る。

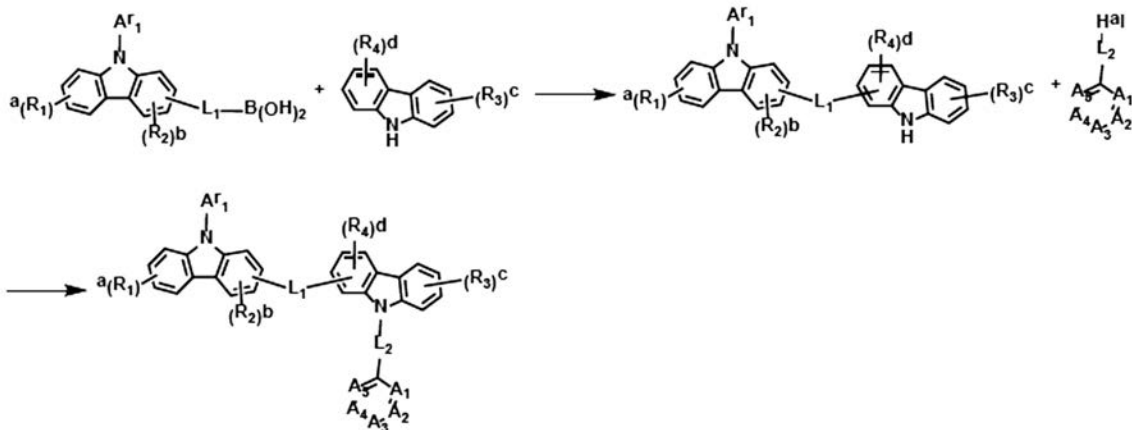
【0066】

[反応スキーム 1]

20

【0067】

【化 28】



30

【0068】

式中、 L_1 、 L_2 、 Ar_1 、 $A_1 \sim A_5$ 、 $R_1 \sim R_4$ 、および $a \sim d$ は上記式 1 で定義される通りであり、 Hal はハロゲンを表す。

【0069】

本発明の別の実施形態では式 1 の有機エレクトロルミネセント化合物を含む有機エレクトロルミネセント材料、および該材料を含む有機エレクトロルミネセントデバイスを提供する。

40

【0070】

前記有機エレクトロルミネセントデバイスは、第 1 電極；第 2 電極；および前記第 1 および第 2 電極間の少なくとも 1 つの有機層を含む。前記有機層は、本発明による少なくとも 1 つの式 1 の化合物を含む。

【0071】

第 1 および第 2 電極の 1 つは陽極で、もう一方は陰極である。有機層は発光層、および正孔注入層、正孔輸送層、電子輸送層、電子注入層、中間層、および正孔ブロック層からなる群から選択される少なくとも 1 つの層を含む。

50

【 0 0 7 2 】

式 1 により表される化合物は、発光層に含まれ得る。発光層に使用された場合、式 1 により表される化合物はホスト材料として含まれ得る。好ましくは、発光層は少なくとも 1 つのドーパントをさらに含むことができ、もし必要ならば、式 1 により表される化合物以外の化合物が第 2 のホスト材料として付加的に含まれ得る。

【 0 0 7 3 】

第 2 のホスト材料はあらゆる既知のりん光性ドーパントからなり得る。特に、下記式 2 ~ 6 の化合物からなる群から選択されるりん光性ドーパントは、発光効率の観点から好ましい。

【 0 0 7 4 】

【 化 2 9 】

10



【 0 0 7 5 】

【 化 3 0 】

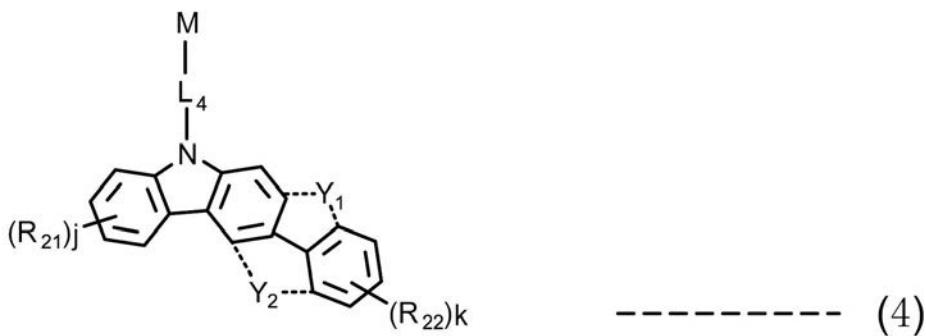
20



【 0 0 7 6 】

【 化 3 1 】

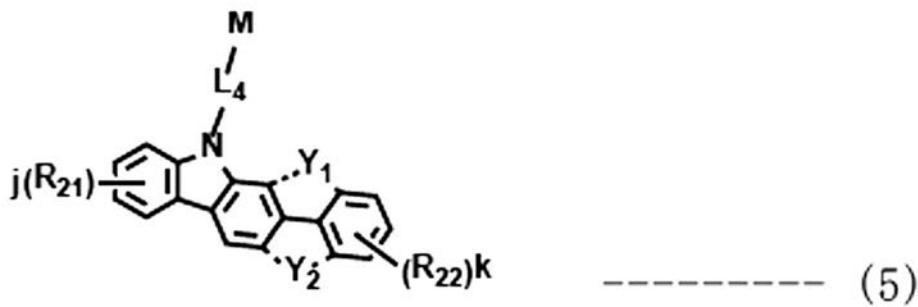
30



40

【 0 0 7 7 】

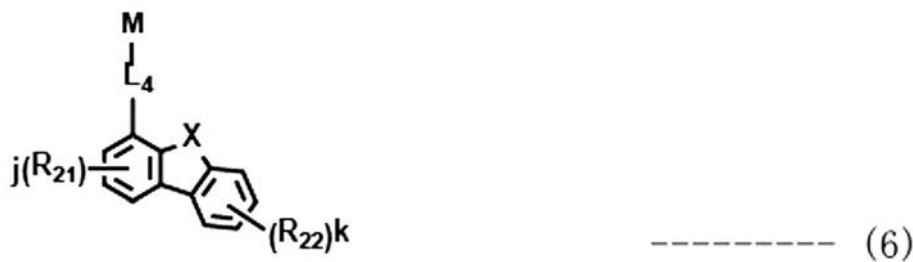
【化32】



10

【0078】

【化33】



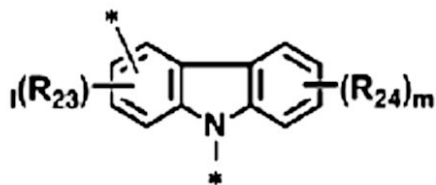
20

【0079】

式中、C_zは以下の構造を表す；

【0080】

【化34】



30

【0081】

XはOまたはSを表す；

R₂₁ ~ R₂₄はそれぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、置換もしくは非置換(C₁ ~ C₃₀)アルキル、置換もしくは非置換(C₆ ~ C₃₀)アリール、置換もしくは非置換5 ~ 30員ヘテロアリール、またはR₂₅R₂₆R₂₇Si-を表す；R₂₅ ~ R₂₇はそれぞれ独立して、置換もしくは非置換(C₁ ~ C₃₀)アルキル、または置換もしくは非置換(C₆ ~ C₃₀)アリールを表す；L₄は単結合、置換もしくは非置換(C₆ ~ C₃₀)アリーレン、または置換もしくは非置換5 ~ 30員ヘテロアリーレンを表す；Mは置換もしくは非置換(C₆ ~ C₃₀)アリール、または置換もしくは非置換5 ~ 30員ヘテロアリールを表す；Y₁およびY₂はそれぞれ独立して、Y₁およびY₂が同時に存在しないという条件で、-O-、-S-、-N(R₃₁)-または-C(R₃₂)(R₃₃)-を表す；R₃₁ ~ R₃₃はそれぞれ独立して、置換もしくは非置換(C₁ ~ C₃₀)アルキル、置換もしくは非置換(C₆ ~ C₃₀)アリール、または置換もしくは非置換5 ~ 30員ヘテロアリールを表し、R₃₂およびR₃₃は同一または異なり得る；hおよびiはそれぞれ独立して、1 ~ 3の整数を表す；j、k、l、およびmはそれぞれ独立して、0 ~ 4の整数を表す；h、i、j、k、l、またはmが2以上の整数である場合、(C_z-L₄)のそれぞれ、(C_z)のそれぞれ、R₂₁のそれぞれ、R₂₂のそれぞれ、R₂₃のそれぞれまたはR₂₄のそれぞれは、同一または異なり得る。

40

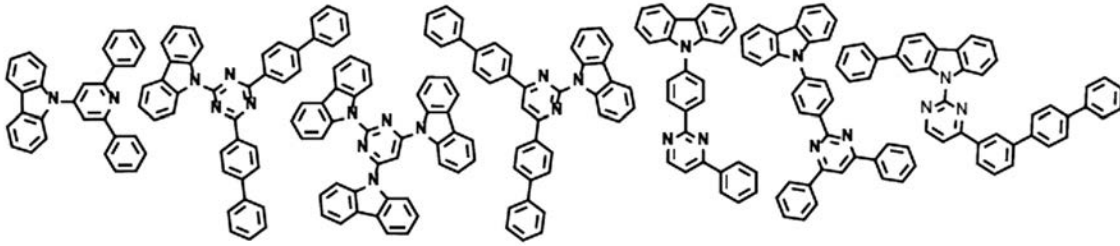
【0082】

50

特に、第2のホスト材料の好ましい例は以下の通りである。

【0083】

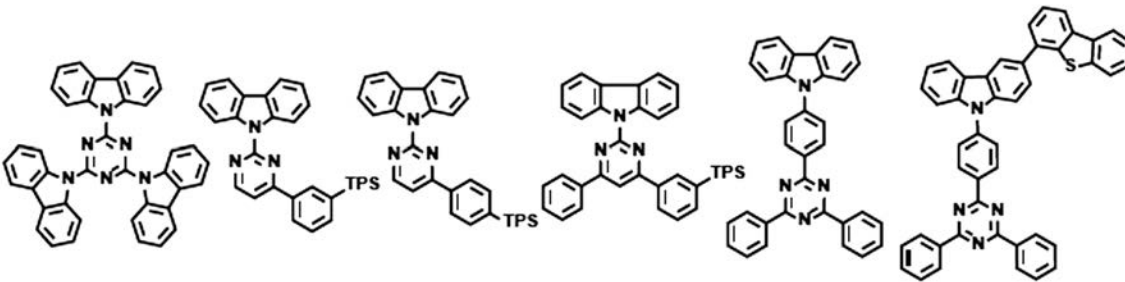
【化35】



10

【0084】

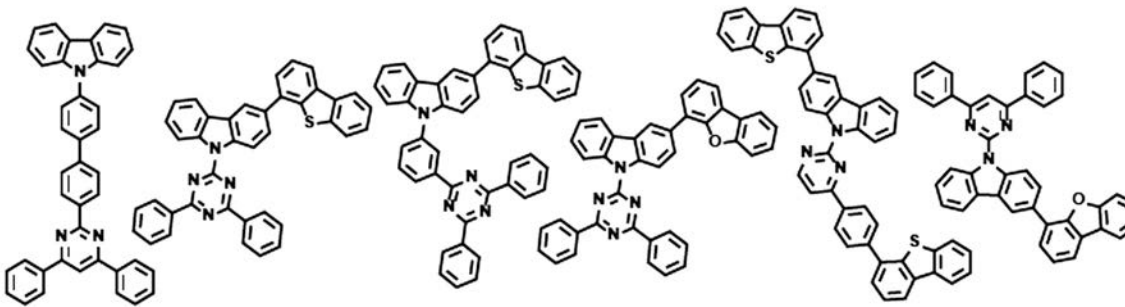
【化36】



20

【0085】

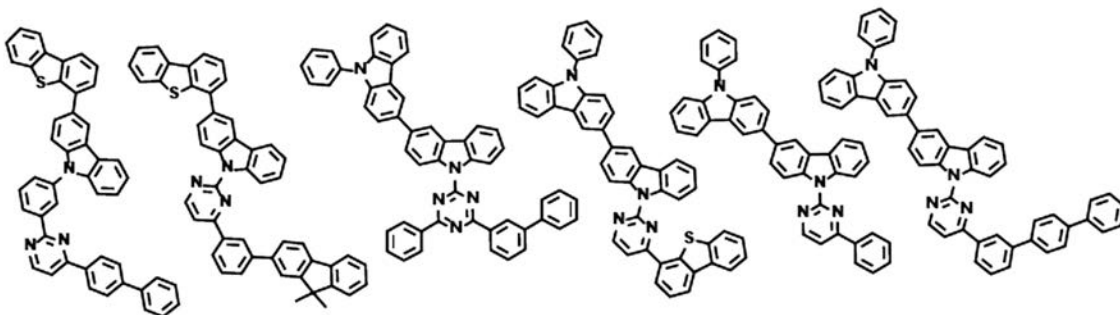
【化37】



30

【0086】

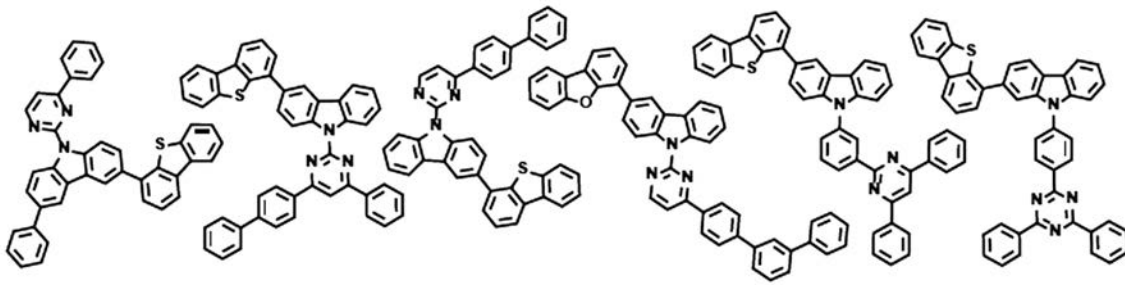
【化38】



40

【0087】

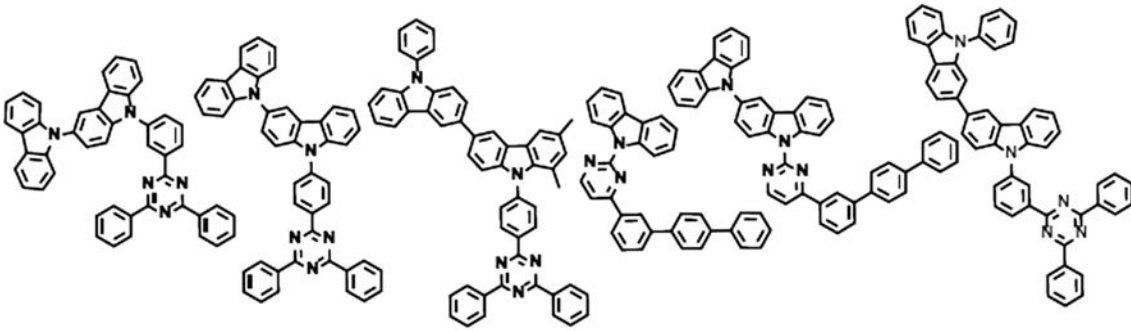
【化 3 9】



10

【 0 0 8 8】

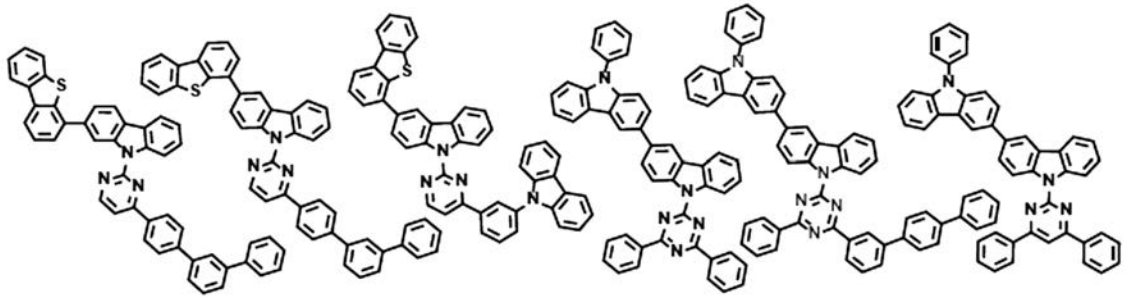
【化 4 0】



20

【 0 0 8 9】

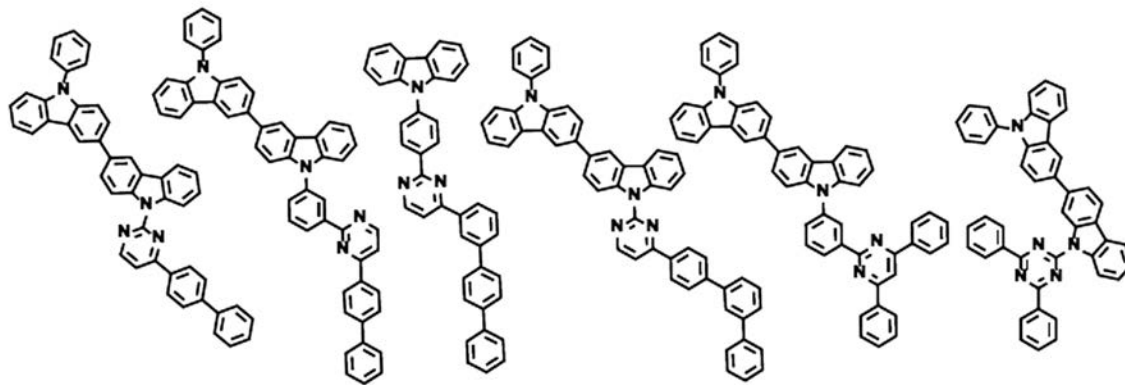
【化 4 1】



30

【 0 0 9 0】

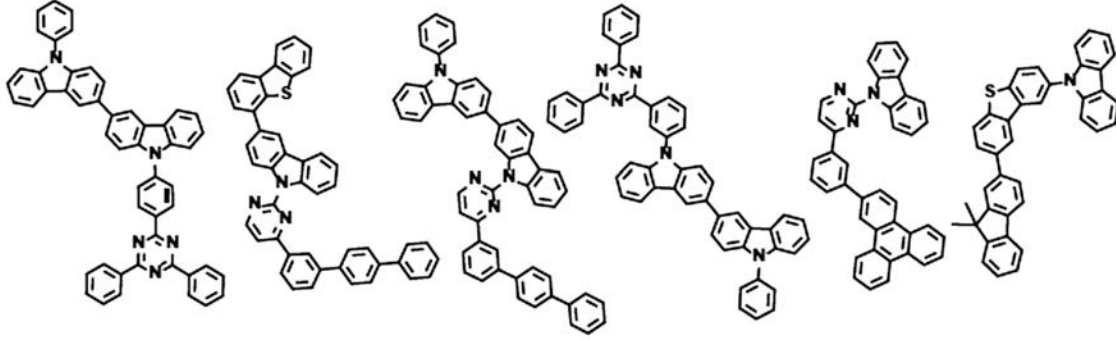
【化 4 2】



40

【 0 0 9 1】

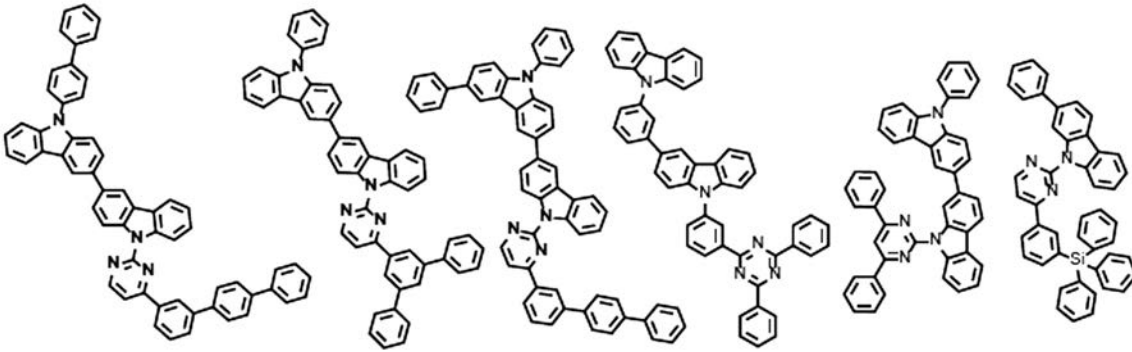
【化 4 3】



10

【 0 0 9 2】

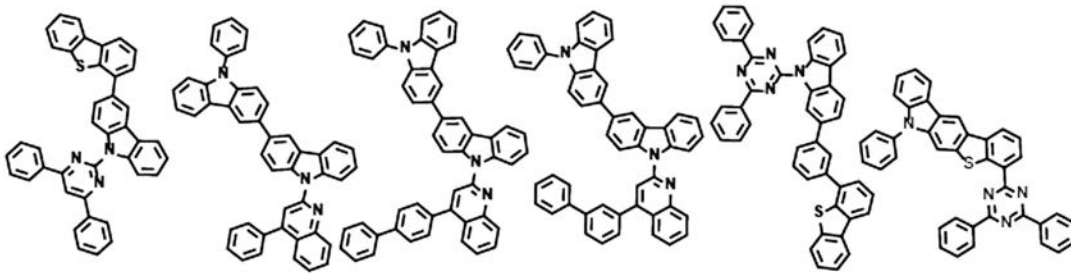
【化 4 4】



20

【 0 0 9 3】

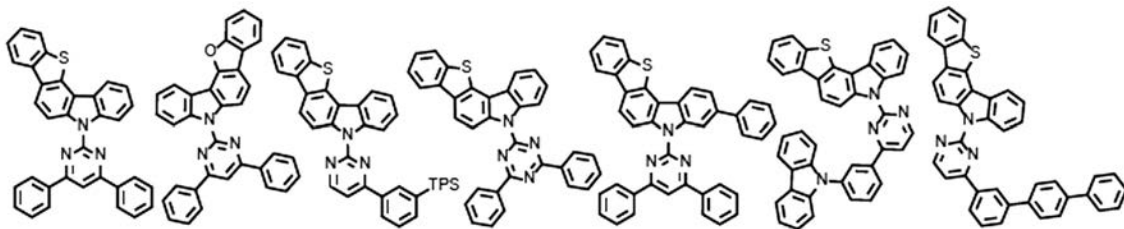
【化 4 5】



30

【 0 0 9 4】

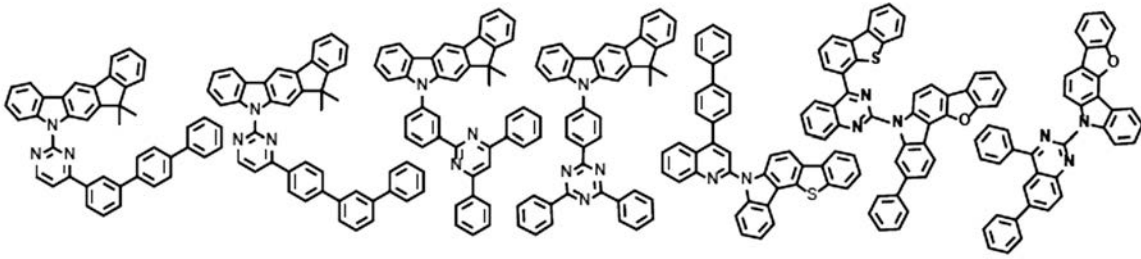
【化 4 6】



40

【 0 0 9 5】

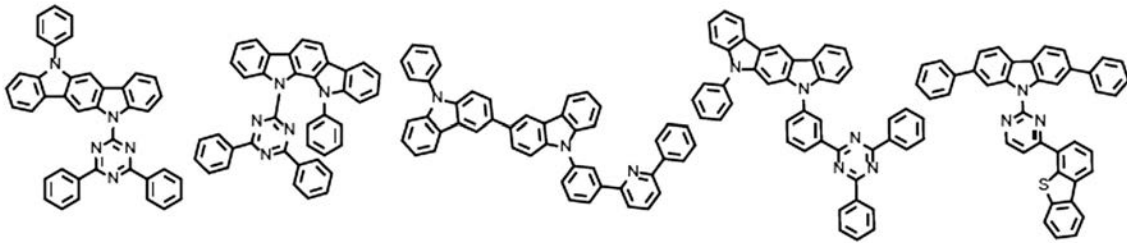
【化 4 7】



【 0 0 9 6】

10

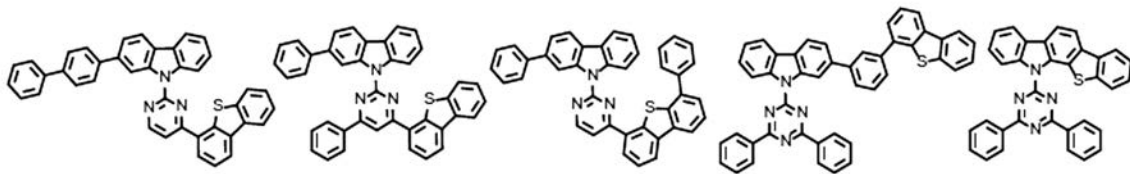
【化 4 8】



【 0 0 9 7】

20

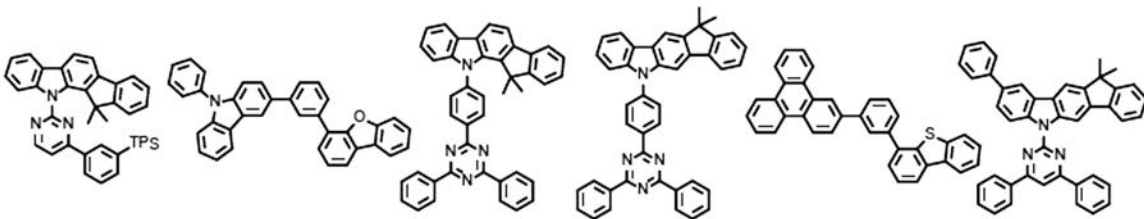
【化 4 9】



【 0 0 9 8】

30

【化 5 0】



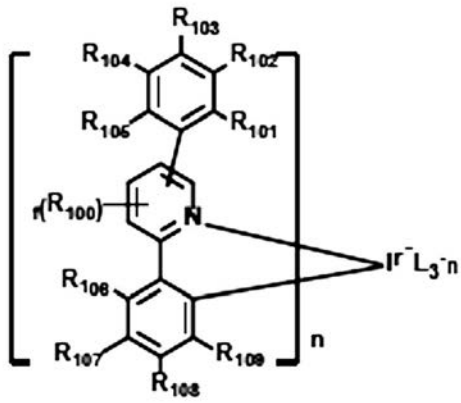
【 0 0 9 9】

本発明による有機エレクトロルミネセントデバイスに含まれるドーパントは下記式 7 ~ 9 の化合物からなる群から選択され得る。

【 0 1 0 0】

40

【化 5 1】

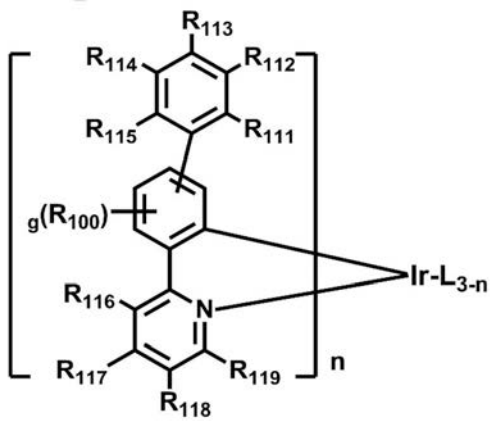


----- (7)

10

【 0 1 0 1】

【化 5 2】

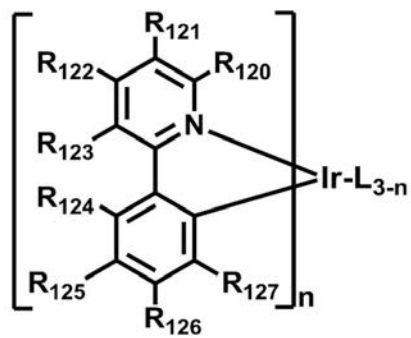


----- (8)

20

【 0 1 0 2】

【化 5 3】



----- (9)

30

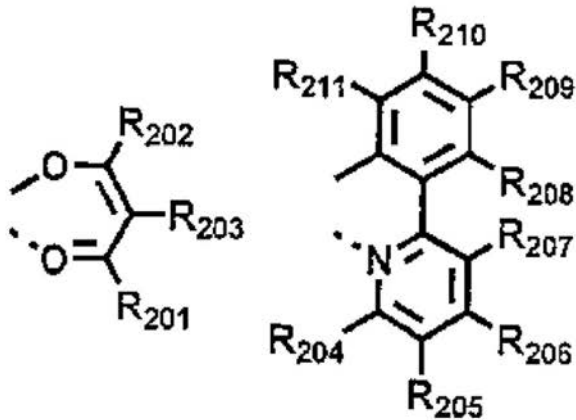
【 0 1 0 3】

式中、Lは次の構造から選択される。

【 0 1 0 4】

40

【化54】



10

【0105】

R_{100} は水素、置換もしくは非置換 ($C1 \sim C30$) アルキル、または置換もしくは非置換 ($C3 \sim C30$) シクロアルキルを表す；

【0106】

$R_{100} \sim R_{109}$ および $R_{111} \sim R_{123}$ はそれぞれ独立して、水素；重水素；ハロゲン；非置換であるかハロゲン（複数可）で置換された ($C1 \sim C30$) アルキル；置換もしくは非置換 ($C3 \sim C30$) シクロアルキル；シアノ；または置換もしくは非置換 ($C1 \sim C30$) アルコキシを表し； $R_{120} \sim R_{123}$ の隣接する置換基は、互いに結合して縮合環、例えばキノリンを形成し得る；

20

【0107】

$R_{124} \sim R_{127}$ はそれぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、置換もしくは非置換 ($C1 \sim C30$) アルキル、または置換もしくは非置換 ($C6 \sim C30$) アリールを表し； $R_{124} \sim R_{127}$ がアリール基である場合、隣接する置換基は、互いに結合して縮合環、例えばフルオレンを形成し得る；

【0108】

$R_{201} \sim R_{211}$ はそれぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、非置換であるかハロゲン（複数可）で置換された ($C1 \sim C30$) アルキル、または置換もしくは非置換 ($C3 \sim C30$) シクロアルキルを表す；

30

【0109】

f および g はそれぞれ独立して、 $1 \sim 3$ の整数を表す； f または g が 2 以上の整数である場合、 R_{100} のそれぞれは、同一または異なり得る；および

【0110】

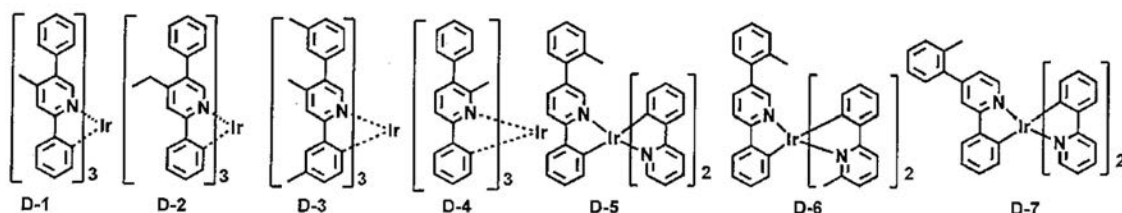
n は $1 \sim 3$ の整数である。

【0111】

特に、ドーパント材料は次を含む：

【0112】

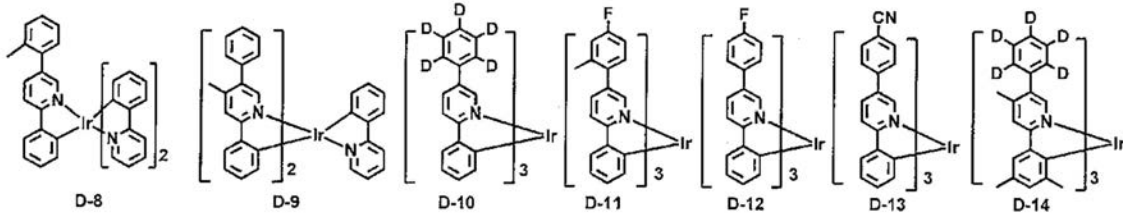
【化55】



40

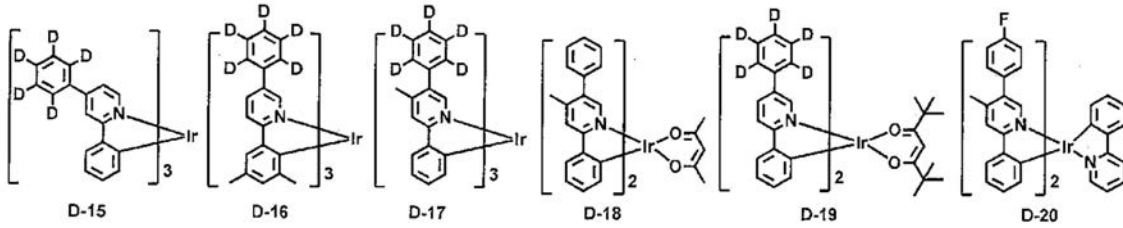
【0113】

【化56】



【0114】

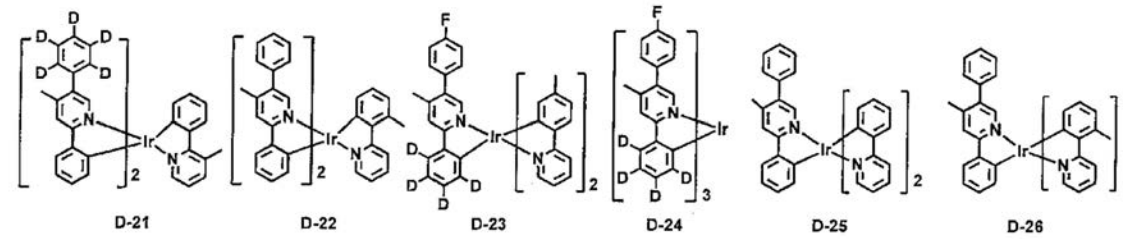
【化57】



10

【0115】

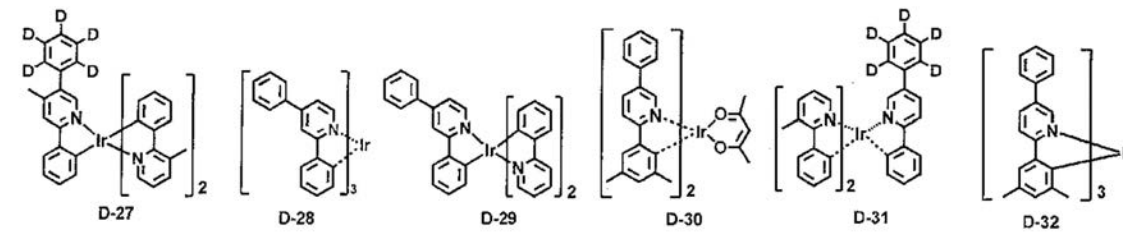
【化58】



20

【0116】

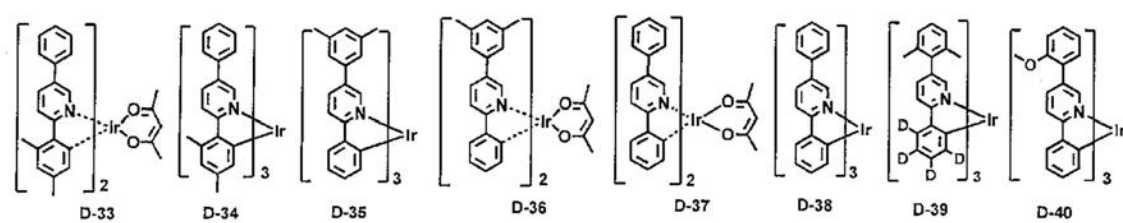
【化59】



30

【0117】

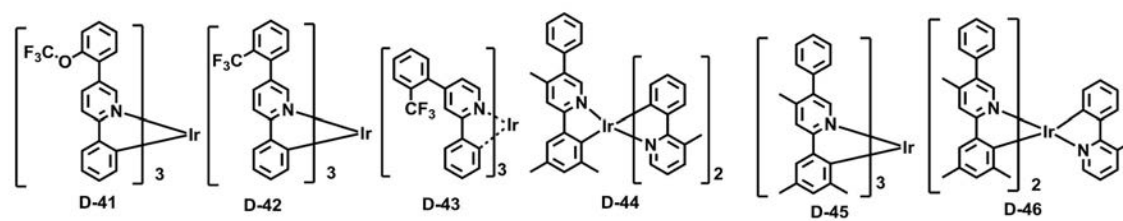
【化60】



40

【0118】

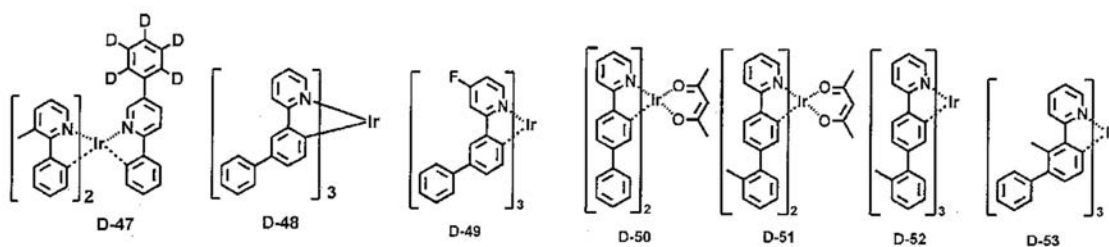
【化61】



50

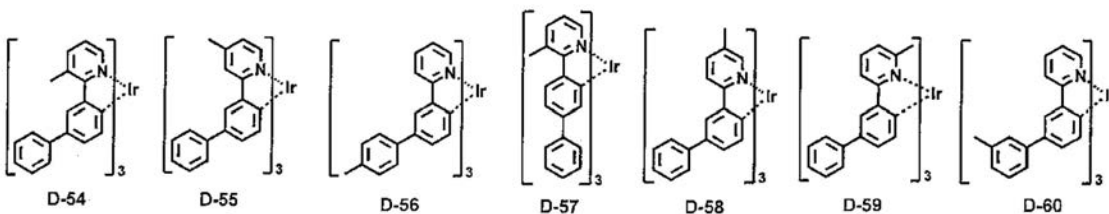
【 0 1 1 9 】

【 化 6 2 】



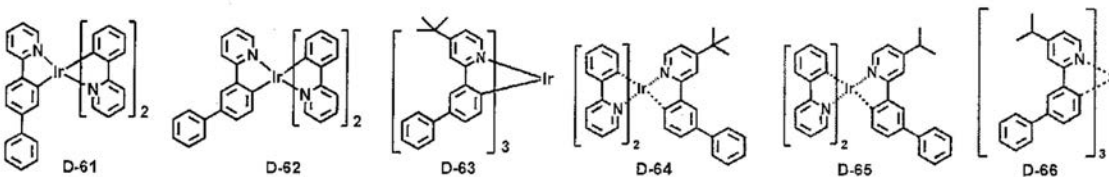
【 0 1 2 0 】

【 化 6 3 】



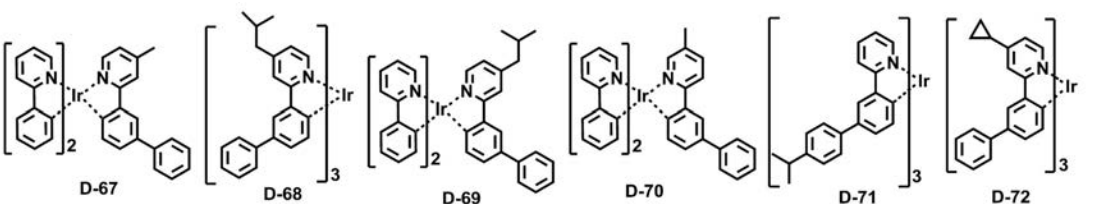
【 0 1 2 1 】

【 化 6 4 】



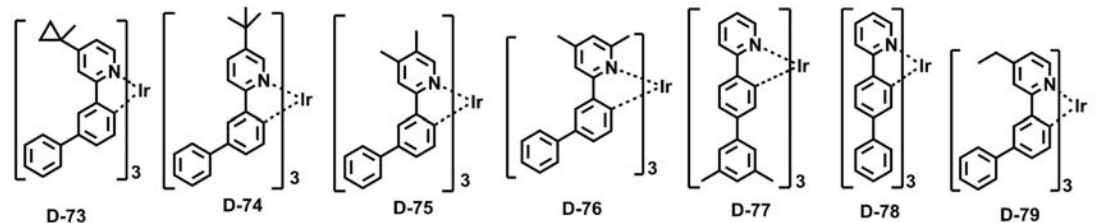
【 0 1 2 2 】

【 化 6 5 】



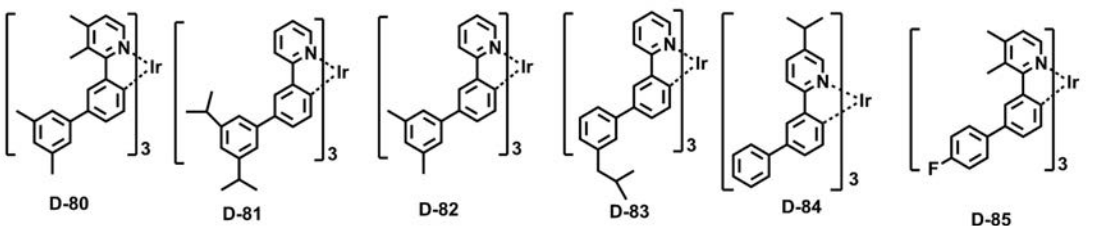
【 0 1 2 3 】

【 化 6 6 】



【 0 1 2 4 】

【 化 6 7 】



【 0 1 2 5 】

10

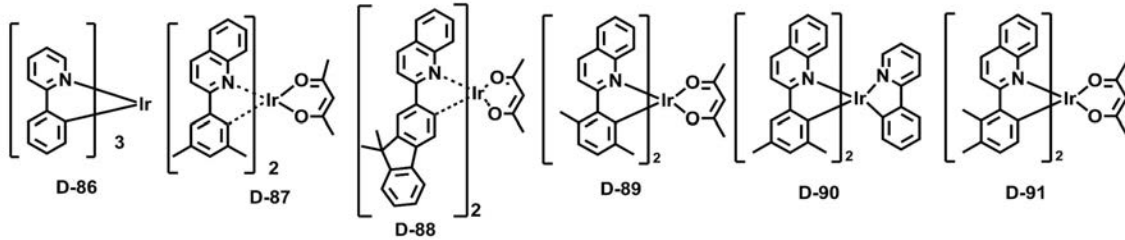
20

30

40

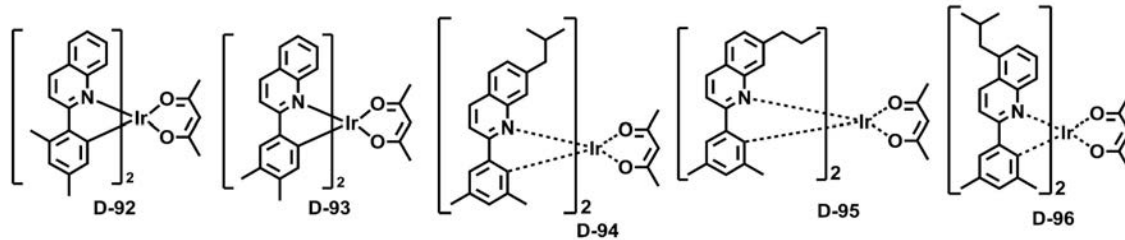
50

【化68】



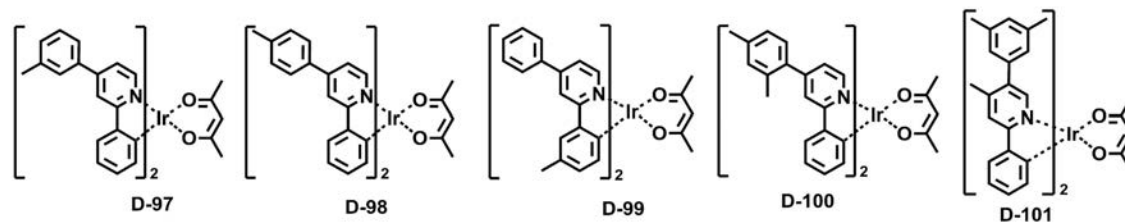
【0126】

【化69】



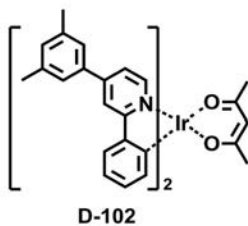
【0127】

【化70】



【0128】

【化71】



【0129】

本発明の別の実施形態では、有機エレクトロルミネセントデバイスに使用される材料が提供される。該材料は、ホスト材料として本発明による化合物を含む。本発明による化合物がホスト材料として含まれる時、前記材料は、第2のホスト材料を付加的に含んでもよく、ここで第2のホスト材料に対する第1のホスト材料比は1：99～99：1の範囲であり得る。

【0130】

加えて、本発明による有機エレクトロルミネセントデバイスは、第1電極；第2電極；および前記第1および第2電極間の少なくとも1つの有機層を含む。前記有機層は、本発明による有機エレクトロルミネセントデバイスに使用される材料を含む。

【0131】

本発明による有機エレクトロルミネセントデバイスは、式1により表される化合物に加えて、アリールアミン系化合物およびスチリルアリールアミン系化合物からなる群から選択される少なくとも1つの化合物をさらに含んでもよい。

【0132】

本発明による有機エレクトロルミネセントデバイスにおいて、有機層は、周期表の1族

10

20

30

40

50

の金属、2族の金属、第4周期の遷移金属、第5周期の遷移金属、ランタニドおよびd遷移元素の有機金属、または前記金属を含む少なくとも1つの錯体化合物からなる群から選択される少なくとも1つの金属をさらに含んでもよい。有機層は発光層および電荷発生層をさらに含んでもよい。

【0133】

加えて、本発明による有機エレクトロルミネセントデバイスは、本発明による化合物に加えて、当該分野で既知の青色エレクトロルミネセント化合物、赤色エレクトロルミネセント化合物または緑色エレクトロルミネセント化合物を含む少なくとも1つの発光層をさらに含むことによって白色発光し得る。また、必要ならば、黄色または橙色発光層をデバイス中に含めることができる。

10

【0134】

本発明によると、少なくとも1つの層（以下、「表面層」）が一方または両方の電極（複数可）の内面（複数可）上に好ましくは配置される；カルコゲニド層、金属ハロゲン化合物層および金属酸化物層から選択される。特に、ケイ素またはアルミニウムのカルコゲニド（酸化物を含む）層がエレクトロルミネセント媒体層のアノード表面上に好ましくは配置され、および金属ハロゲン化合物層または金属酸化物層がエレクトロルミネセント媒体層のカソード表面上に好ましくは配置される。そのような表面層は、有機エレクトロルミネセントデバイスについて操作安定性を提供する。好ましくは、前記カルコゲニドは、 SiO_x （ $1 < x < 2$ ）、 AlO_x （ $1 < x < 1.5$ ）、 $SiON$ 、 $SiAlON$ などを含み；前記金属ハロゲン化合物は、 LiF 、 MgF_2 、 CaF_2 、希土類金属フッ化物などを含み；および前記金属酸化物は Cs_2O 、 Li_2O 、 MgO 、 SrO 、 BaO 、 CaO などを含む。

20

【0135】

本発明による有機エレクトロルミネセントデバイスにおいて、電子輸送化合物と還元性ドーパントとの混合領域、または正孔輸送化合物と酸化性ドーパントとの混合領域が1対の電極の少なくとも1つの表面上に好ましくは配置される。この場合、電子輸送化合物はアニオンに還元され、したがって混合領域からエレクトロルミネセント媒体への電子の注入および輸送が容易である。さらに、正孔輸送化合物はカチオンに酸化され、したがって混合領域からエレクトロルミネセント媒体への正孔の注入および輸送がさらに容易になる。好ましくは、酸化性ドーパントは様々なルイス酸およびアクセプタ化合物を含み；還元性ドーパントは、アルカリ金属、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属、希土類金属、およびそれらの混合物を含む。還元性ドーパント層を電荷発生層として用いて、2以上のエレクトロルミネセント層を有し、そして白色発光するエレクトロルミネセントデバイスを調製することができる。

30

【0136】

本発明による有機エレクトロルミネセントデバイスの各層を形成するために、真空蒸発、スパッタリング、プラズマ、およびイオンめっき法などの乾式フィルム形成法、またはスピンコーティング、ディップコーティング、フローコーティングなどの湿式フィルム形成法を使用することができる。

40

【0137】

湿式フィルム形成法を使用する場合、各層を形成する材料を、例えばエタノール、クロロホルム、テトラヒドロフラン、ジオキサンなどの何れの好適な溶媒中に溶解または拡散させることによって薄膜が形成され得る。溶媒は、各層を形成する材料が溶解または拡散することができ、層の形成能に問題が無い、いかなる溶媒であり得る。

【0138】

以下、有機エレクトロルミネセント化合物、該化合物の調製法、およびデバイスの発光特性を、下記実施例を参照して詳細に説明する。

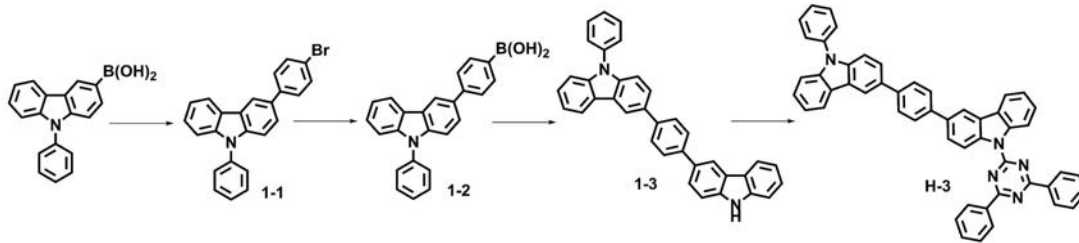
【0139】

実施例1：化合物H-3の調製

【0140】

50

【化72】



【0141】

化合物1-1の調製

9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル-ボロン酸(30g、104mmol)、1-ブロモ-4-ヨードベンゼン(22.7g、80mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム[Pd(PPh₃)₄](2.8g、2.4mmol)、Na₂CO₃(22g、200mmol)、トルエン400mL、エタノール(EtOH)100mL、およびH₂O100mLをフラスコに添加した後、混合物を還流下5時間撹拌した。反応が完了した後、混合物をジクロロメタン(DCM)およびH₂Oで抽出し、DCM層をMgSO₄で乾燥し、ろ過した。得られた固体をカラムで分離して化合物1-1(17.9g、45%)を得た。

10

【0142】

化合物1-2の調製

化合物1-1(17.9g、44.8mmol)をテトラヒドロフラン(THF)200mLに溶解した後、混合物を-78℃まで冷却し、2.5Mのn-ブチルリチウム(23mL、58.3mmol)を混合物にゆっくりと添加し、混合物を1時間撹拌した。次に、イソプロピルボレート(15.5mL、67.2mmol)を混合物に添加し、混合物をゆっくりと熱し、室温で17時間撹拌した。反応が完了した後、混合物を酢酸エチル(EA)およびH₂Oで抽出し、EA層をMgSO₄で乾燥し、濃縮して化合物1-2(5.02g、31%)を得た。

20

【0143】

化合物1-3の調製

化合物1-3(5g、13.7mmol)、3-プロモカルバゾール(3.72g、15.1mmol)、Pd(PPh₃)₄(791mg、0.7mmol)、K₂CO₃(3.8g、27.4mmol)、トルエン80mL、EtOH30mL、およびH₂O30mLをフラスコに添加した後、混合物を還流下5時間撹拌した。反応が完了した後、混合物をDCMおよびH₂Oで抽出し、DCM層をMgSO₄で乾燥し、ろ過した。得られた固体をカラムで分離して化合物1-3(3.4g、53%)を得た。

30

【0144】

化合物H-3の調製

化合物1-3(3.4g、7mmol)、2-クロロ-4,6-ジフェニル-1,3,5-トリアジン(2.2g、8.4mmol)、ジメチルアミノピリジン(DMAP)(427mg、3.5mmol)、K₂CO₃(2.4g、17.5mmol)、およびジメチルホルムアミド(DMF)80mLをフラスコに添加した後、混合物を還流下3時間撹拌した。反応が完了した後、メタノール(MeOH)を混合物に添加して固体を生成し、固体をろ過した。次に、得られた固体をカラムで分離して化合物H-3(2.7g、53%)を得た。

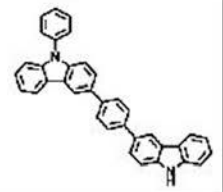
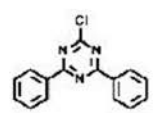
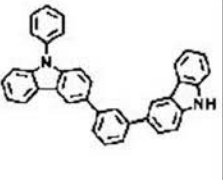
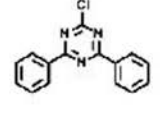
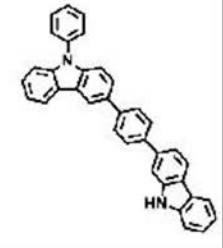
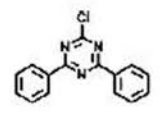
40

【0145】

実施例1で調製された化合物、および実施例1と同じ方法により調製され得る化合物の詳細なデータは、下記表1に示される。

【0146】

【表 1】

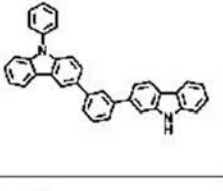
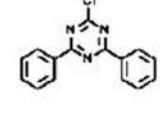
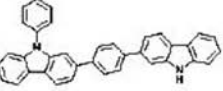
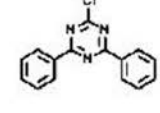
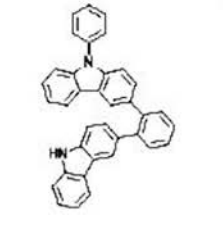
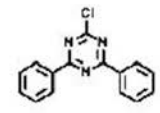
化合物番号	中間体 1	中間体2	収率 (%)	PL スペクトル (nm)	UV スペクトル (nm)	融点 (° C)	質量
H-3			53	487 (トルエン中)	334 (トルエン中)	296	716
H-11			26	510 (ジクロロメタン中)	260 (ジクロロメタン中)	203	716
H-54			57	500 (ジクロロメタン中)	346 (ジクロロメタン中)	295	716

10

20

【 0 1 4 7 】

【表 2】

化合物番号	中間体 1	中間体2	収率 (%)	PL スペクトル (nm)	UV スペクトル (nm)	融点 (° C)	質量
H-56			67	461 (トルエン中)	336 (トルエン中)	239	716
H-63			43	464 (トルエン中)	332 (トルエン中)	300	716
H-85			54	481 (トルエン中)	294 (トルエン中)	251	716

30

40

【 0 1 4 8 】

50

デバイス実施例 1：本発明による有機エレクトロルミネセント化合物を使用する O L E D デバイスの製造

本発明による化合物を使用して O L E D デバイスを製造した。有機発光ダイオード (O L E D) デバイス (Samsung Corning、大韓民国) 用のガラス基板上的の透明電極インジウムスズ酸化物 (I T O) 薄膜 ($15 \text{ } / \text{sq}$) を、トリクロロエチレン、アセトン、エタノールおよび蒸留水を連続して用いた超音波洗浄に供し、次いでイソプロパノール中で保管した。次いで、I T O 基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに取り付けた。N¹, N^{1'} - ([1, 1' - ビフェニル] - 4, 4' - ジイル) ビス (N¹ - (ナフタレン - 1 - イル) - N⁴, N⁴ - ジフェニルベンゼン - 1, 4 - ジアミン) を前記真空蒸着装置のセルに導入し、次いで前記装置のチャンパー中の圧力を 10^{-6} torr に制御した。その後、セルに電流をかけて、上記導入物質を蒸発させ、それによって、I T O 基板上に 60 nm の厚さを有する正孔注入層を形成した。次いで、N, N' - ジ (4 - ビフェニル) - N, N' - ジ (4 - ビフェニル) - 4, 4' - ジアミノビフェニルを前記真空蒸着装置の別のセルに導入し、セルに電流をかけることによって蒸発させ、それによって正孔注入層上に 20 nm の厚さを有する正孔輸送層を形成した。その後、ホスト材料として化合物 H - 3 を真空蒸着装置の 1 つのセル中に導入し、ドーパントとして化合物 D - 1 を別のセル中に導入した。2 つの材料を異なる速度で蒸発させ、ホストおよびドーパントの総量に基づいて 15 重量 % のドーピング量で堆積させて、正孔輸送層上に 30 nm の厚さを有する発光層を形成した。次いで、2 - (4 - (9, 10 - ジ (ナフタレン - 2 - イル) アントラセン - 2 - イル) フェニル) - 1 - フェニル - 1 H - ベンゾ [d] イミダゾールを 1 つのセルに導入し、リチウムキノレートを別のセルに導入した。2 つの材料を同じ速度で蒸発させ、それぞれ 50 重量 % のドーピング量で堆積させて、30 nm の厚さを有する電子輸送層を発光層上に形成した。次いで、リチウムキノレートを、2 nm の厚さを有する電子注入層として電子輸送層上に堆積させた後、150 nm の厚さを有する A l カソードを別の真空蒸着装置によって電子注入層上に堆積させた。このように、O L E D デバイスを製造した。O L E D デバイスを製造するために使用したすべての材料は、使用前に 10^{-6} torr での真空昇華によって精製した。

10

20

30

40

50

【 0 1 4 9 】

製造された O L E D デバイスは、2.6 V の駆動電圧で $930 \text{ cd} / \text{m}^2$ の輝度および $2.28 \text{ mA} / \text{cm}^2$ の電流密度、および $49.31 \text{ m} / \text{W}$ の出力効率を有する緑色発光を示した。

【 0 1 5 0 】

デバイス実施例 2：本発明による有機エレクトロルミネセント化合物を使用する O L E D デバイスの製造

発光材料のホストとして化合物 H - 3、およびドーパントとして化合物 D - 102 を用いる以外は、デバイス実施例 1 と同じ方法で O L E D デバイスを製造した。

【 0 1 5 1 】

製造された O L E D デバイスは、2.7 V の駆動電圧で $2420 \text{ cd} / \text{m}^2$ の輝度および $5.76 \text{ mA} / \text{cm}^2$ の電流密度、および $48.91 \text{ m} / \text{W}$ の出力効率を有する緑色発光を示した。

【 0 1 5 2 】

デバイス実施例 3：本発明による有機エレクトロルミネセント化合物を使用する O L E D デバイスの製造

発光材料のホストとして化合物 H - 56、およびドーパントとして化合物 D - 1 を用いる以外は、デバイス実施例 1 と同じ方法で O L E D デバイスを製造した。

【 0 1 5 3 】

製造された O L E D デバイスは、2.7 V の駆動電圧で $1110 \text{ cd} / \text{m}^2$ の輝度および $3.34 \text{ mA} / \text{cm}^2$ の電流密度、および $38.71 \text{ m} / \text{W}$ の出力効率を有する緑色発光を示した。

【 0 1 5 4 】

デバイス実施例 4 : 本発明による有機エレクトロルミネセント化合物を使用する O L E D デバイスの製造

発光材料のホストとして化合物 H - 1 1、およびドーパントとして化合物 D - 1 を用いる以外は、デバイス実施例 1 と同じ方法で O L E D デバイスを製造した。

【 0 1 5 5 】

製造された O L E D デバイスは、2 . 6 V の駆動電圧で $770 \text{ cd} / \text{m}^2$ の輝度および $2.56 \text{ mA} / \text{cm}^2$ の電流密度、および $36.31 \text{ m} / \text{W}$ の出力効率を有する緑色発光を示した。

【 0 1 5 6 】

デバイス実施例 5 : 本発明による有機エレクトロルミネセント化合物を使用する O L E D デバイスの製造

発光材料のホストとして化合物 H - 6 3、およびドーパントとして化合物 D - 1 を用いる以外は、デバイス実施例 1 と同じ方法で O L E D デバイスを製造した。

【 0 1 5 7 】

製造された O L E D デバイスは、3 . 0 V の駆動電圧で $1970 \text{ cd} / \text{m}^2$ の輝度および $5.38 \text{ mA} / \text{cm}^2$ の電流密度、および $38.31 \text{ m} / \text{W}$ の出力効率を有する緑色発光を示した。

【 0 1 5 8 】

デバイス実施例 6 : 本発明による有機エレクトロルミネセント化合物を使用する O L E D デバイスの製造

発光材料のホストとして化合物 H - 8 5、およびドーパントとして化合物 D - 1 を用いる以外は、デバイス実施例 1 と同じ方法で O L E D デバイスを製造した。

【 0 1 5 9 】

製造された O L E D デバイスは、2 . 6 V の駆動電圧で $1240 \text{ cd} / \text{m}^2$ の輝度および $2.86 \text{ mA} / \text{cm}^2$ の電流密度、および $52.41 \text{ m} / \text{W}$ の出力効率を有する緑色発光を示した。

【 0 1 6 0 】

比較例 1 : 従来 of 発光材料を使用する O L E D デバイスの製造

ホストとして 4 - 4 ' - N , N ' - ジカルバゾール - ビフェニル、およびドーパントとして化合物 D - 8 6 を用いて正孔輸送層上に 30 nm の厚さを有する発光層を堆積し ; およびアルミニウム (I I I) ビス (2 - メチル - 8 - キノリナート) 4 - フェニルフェノレートを堆積して 10 nm の厚さを有する正孔ブロック層を形成する以外は、デバイス実施例 1 と同じ方法で O L E D デバイスを製造した。

【 0 1 6 1 】

製造された O L E D デバイスは、5 . 8 V の駆動電圧で $3000 \text{ cd} / \text{m}^2$ の輝度および $8.57 \text{ mA} / \text{cm}^2$ の電流密度、および $18.961 \text{ m} / \text{W}$ の出力効率を有する緑色発光を示した。

【 0 1 6 2 】

比較例 2 : 従来 of 発光材料を使用する O L E D デバイスの製造

ホストとして 4 - 4 ' - ビス (9 - フェニル - 9 H - カルバゾール - 3 - イル) ビフェニル、およびドーパントとして化合物 D - 8 6 を用いて正孔輸送層上に 30 nm の厚さを有する発光層を堆積する以外は、デバイス実施例 1 と同じ方法で O L E D デバイスを製造した。

【 0 1 6 3 】

製造された O L E D デバイスは、5 . 9 V の駆動電圧で $1320 \text{ cd} / \text{m}^2$ の輝度および $11.66 \text{ mA} / \text{cm}^2$ の電流密度、および $6.031 \text{ m} / \text{W}$ の出力効率を有する緑色発光を示した。

【 0 1 6 4 】

本発明による有機エレクトロルミネセント化合物は従来 of 材料と比較して、より高い発光効率を提供する。加えて、発光ホスト材料として本発明による有機エレクトロルミネセ

10

20

30

40

50

ンス化合物を用いるOLEDデバイスは、より低い駆動電圧を有するので、結果としてより高い出力効率、および向上した出力消費を生じ、改良された電流効率を提供する。

【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/KR2013/010598
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER C07D 401/14 (2006.01) C09K 11/06 (2006.01) C07D 403/14 (2006.01) C07D 409/14 (2006.01) C07D 405/14 (2006.01) H01L 27/32 (2006.01) H01L 51/54 (2006.01)		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
CAS Registry, CAplus: structure search based on formula I		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Documents are listed in the continuation of Box C		
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "I" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 5 March 2014		Date of mailing of the international search report 05 March 2014
Name and mailing address of the ISA/AU AUSTRALIAN PATENT OFFICE PO BOX 200, WODEN ACT 2606, AUSTRALIA Email address: pct@ipaustralia.gov.au Facsimile No.: +61 2 6283 7999		Authorised officer Sarah Smith AUSTRALIAN PATENT OFFICE (ISO 9001 Quality Certified Service) Telephone No. 0262832713

INTERNATIONAL SEARCH REPORT C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		International application No. PCT/KR2013/010598
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2010-040830 A (KONICA MINOLTA HOLDINGS INC) 18 February 2010 See Abstract; compound HB-16, page 137; compound HB-15, page 137; pages 3-4, formula 8; page 115, formula 8-3	1-8
X	WO 2011/105161 A1 (NIPPON STEEL CHEMICAL CO., LTD.) 01 September 2011 See Abstract; compounds A-8, A-11, A-13, A-14, A-15, A-16, A-17	1-4, 6, 8
X	WO 2012/099038 A1 (KONICA MINOLTA HOLDINGS, INC.) 26 July 2012 See Abstract; general formula, page 3; compound 48, page 29	1-3, 5, 6, 8
X	WO 2012/051666 A1 (COMMONWEALTH SCIENTIFIC AND INDUSTRIAL RESEARCH ORGANISATION) 26 April 2012 See Abstract; Formula 1, page 3; compound 4, page 7	1, 2, 5, 6, 8
X	JP 2009-051788 A (TOYO INK MFG CO LTD) 12 March 2009 See Abstract; compound 24, page 13	1, 2, 5, 6, 8
X	KR 10-1072817 B1 (DUKSAN HIGH METAL CO., LTD.) 14 October 2011 See Abstract; Chemical Formula 6	1, 2, 5, 6, 8
P,X	CN 103232843 A (YANTAI VALIANT FINE CHEMICALS CO., LTD.) 07 August 2013 See Abstract; pages 10-11	1, 2, 4-6, 8
P,X	WO 2013/168688 A1 (KONICA MINOLTA, INC.) 14 November 2013 See Abstract; compound H23, page 51; compounds H40 and H43, pages 54-55; Chemical Formula 2, page 6	1-8
P,X	US 2013/0264548 A1 (MIZUKI et al.) 10 October 2013 See Abstract; pages 62-64	1-8
P,X	US 2013/0214258 A1 (MIZUKI et al.) 22 August 2013 See claims 1, 11; compounds H1-H4, page 75; pages 10-45, 76	1-8
P,X	WO 2013/105206 A1 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) 18 July 2013 See Abstract, title; page 15; formula 1, page 3	1-6, 8
P,X	WO 2013/100539 A1 (CHEIL INDUSTRIES INC.) 04 July 2013 See Abstract; Examples; paragraphs [111], [113]	1, 2, 5, 6, 8
P,X	WO 2013/100538 A1 (CHEIL INDUSTRIES INC.) 04 July 2013 See Abstract; pages 5-6; CAS Registry Numbers 1446009-17-1, 1446009-15-9, 1446009-16-0, 1446009-18-2, 1446009-19-3, 1446009-20-6	1, 2, 5, 6, 8
P,X	WO 2013/089424 A1 (CHEIL INDUSTRIES INC.) 20 June 2013 See Abstract; page 3; compounds D-18 and D-21, pages 13-14	1-6, 8
Form PCT/ISA/210 (fifth sheet) (July 2009)		

INTERNATIONAL SEARCH REPORT Information on patent family members		International application No. PCT/KR2013/010598	
This Annex lists known patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned international search report. The Australian Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.			
Patent Document/s Cited in Search Report		Patent Family Member/s	
Publication Number	Publication Date	Publication Number	Publication Date
JP 2010-040830 A	18 Feb 2010	JP 5338184 B2	13 Nov 2013
WO 2011/105161 A1	01 Sep 2011	None	
WO 2012/099038 A1	26 Jul 2012	None	
WO 2012/051666 A1	26 Apr 2012	CN 103370808 A	23 Oct 2013
		EP 2630140 A1	28 Aug 2013
		EP 2630682 A1	28 Aug 2013
		JP 2013540363 A	31 Oct 2013
		KR 20130135247 A	10 Dec 2013
		KR 20130136465 A	12 Dec 2013
		US 2012261650 A1	18 Oct 2012
		US 2013264554 A1	10 Oct 2013
		WO 2012051666 A1	26 Apr 2012
		WO 2012051667 A1	26 Apr 2012
JP 2009-051788 A	12 Mar 2009	None	
KR 10-1072817 B1	14 Oct 2011	None	
CN 103232843 A	07 Aug 2013	None	
WO 2013/168688 A1	14 Nov 2013	None	
US 2013/0264548 A1	10 Oct 2013	US 2013264548 A1	10 Oct 2013
		WO 2013129491 A1	06 Sep 2013
US 2013/0214258 A1	22 Aug 2013	US 2013214258 A1	22 Aug 2013
		WO 2013115340 A1	08 Aug 2013
WO 2013/105206 A1	18 Jul 2013	None	
WO 2013/100539 A1	04 Jul 2013	WO 2013100539 A1	04 Jul 2013
WO 2013/100538 A1	04 Jul 2013	WO 2013100538 A1	04 Jul 2013
WO 2013/089424 A1	20 Jun 2013	WO 2013089424 A1	20 Jun 2013
End of Annex			
Due to data integration issues this family listing may not include 10 digit Australian applications filed since May 2001. Form PCT/ISA/210 (Family Annex)(July 2009)			

INTERNATIONAL SEARCH REPORT Information on patent family members		International application No. PCT/KR2013/010598	
This Annex lists known patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned international search report. The Australian Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.			
Patent Document/s Cited in Search Report		Patent Family Member/s	
Publication Number	Publication Date	Publication Number	Publication Date

Due to data integration issues this family listing may not include 10 digit Australian applications filed since May 2001.
Form PCT/ISA/210 (Family Annex)(July 2009)

フロントページの続き

(81)指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), EP(AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ

(72)発明者 ソン・ウー・リー
大韓民国 447-310 キョンギ-ド オサン-シ ガルゴット-ドン ケイシーシー・スウィチェン 104-108

(72)発明者 ヨン・ワン・キム
大韓民国 445-170 キョンギ-ド ファソン-シ ソク-ドン リッチアン・オフィステル 32-3707

(72)発明者 キュン・ジュ・リー
大韓民国 121-773 ソウル マポ-ク トファ-ドン ヒュンダイ・ホームタウン 210-1001

(72)発明者 キョン・ジン・パク
大韓民国 462-838 キョンギ-ド ソンナム-シ チュンウォン-ク ハデウォン-ドン 124-13 ドンヒュン・ヴィラ エイ202

(72)発明者 ヒュク・ジュ・ウォン
大韓民国 135-877 ソウル カンナム-ク サムスン-ドン ヒルステイト 105-2003

(72)発明者 ボン・オク・キム
大韓民国 135-877 ソウル カンナム-ク サムスン-ドン 50 ヒルステイト 208-401

Fターム(参考) 3K107 AA01 BB01 CC03 CC04 CC12 CC24 DD53 DD59 DD68
4C063 AA03 BB01 BB02 BB06 CC12 CC29 CC43 CC76 CC94 DD08
DD29 EE10