

(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2017-503338

(P2017-503338A)

(43) 公表日 平成29年1月26日 (2017.1.26)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
H01L 51/50 (2006.01)	H05B 33/14 B	3K107
C07D 403/14 (2006.01)	C07D 403/14 C S P	4C063
C07D 401/14 (2006.01)	C07D 401/14	4C065
C07D 471/04 (2006.01)	C07D 471/04 114A	
C09K 11/06 (2006.01)	C09K 11/06 660	
審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 61 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号	特願2016-534253 (P2016-534253)	(71) 出願人	509266480
(86) (22) 出願日	平成26年12月18日 (2014.12.18)		ローム・アンド・ハース・エレクトロニッ
(85) 翻訳文提出日	平成28年5月25日 (2016.5.25)		ク・マテリアルズ・コリア・リミテッド
(86) 国際出願番号	PCT/KR2014/012547		大韓民国 331-980 チュンチョン
(87) 国際公開番号	W02015/093878		ナムード チョナンシー ソブクーク 3
(87) 国際公開日	平成27年6月25日 (2015.6.25)		コンダン 1-ロ 56
(31) 優先権主張番号	10-2013-0158371	(74) 代理人	110000589
(32) 優先日	平成25年12月18日 (2013.12.18)		特許業務法人センダ国際特許事務所
(33) 優先権主張国	韓国 (KR)	(72) 発明者	ミージャ・リー
(31) 優先権主張番号	10-2014-0073623		大韓民国 445-739 キョンギード
(32) 優先日	平成26年6月17日 (2014.6.17)		ファソンシー ヨントンロー 26ビョ
(33) 優先権主張国	韓国 (KR)		ンジル 24 305-1503
		最終頁に続く	

(54) 【発明の名称】 有機電界発光化合物、ならびにそれを含む多成分ホスト材料及び有機電界発光デバイス

(57) 【要約】

本開示は、有機電界発光化合物、ならびにそれを含む多成分ホスト材料及び有機電界発光デバイスに関する。本開示による有機電界発光化合物を使用することにより、有機電界発光デバイスは、低い駆動電圧ならびに良好な電流効率及び出力効率に加えて、著しく改善された寿命を有することができる。

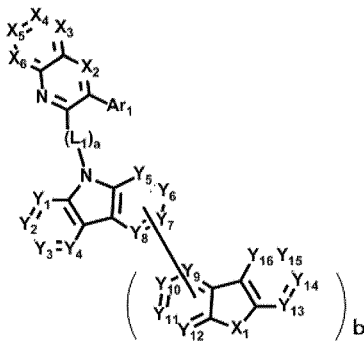
【選択図】 なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

以下の式 1 により表される有機電界発光化合物であって、

【化 1】



10

式中、L₁ は、単結合、置換もしくは非置換の（3～30員）ヘテロアリーレン、または置換もしくは非置換の（C6～C30）アリーレンを表し、

X₁ は、-NR₁-、-CR₂R₃-、-O-、または-S-を表し、

X₂～X₆ は、それぞれ独立して、-CR₄-または-N-を表し、

Ar₁ は、水素、置換もしくは非置換の（C6～C30）アリール、または置換もしくは非置換の（3～30員）ヘテロアリールを表すが、

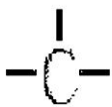
20

ただし、X₂ が-N-であるとき、L₁ は前記置換もしくは非置換の（C6～C30）アリーレンではなく、Ar₁ は水素ではないことを条件とし、

Y₁～Y₄ 及び Y₁₃～Y₁₆ は、それぞれ独立して、-N-または-CR₅-を表し、

Y₅～Y₁₂ は、それぞれ独立して、

【化 2】



30

-N-、または-CR₆-を表し、

R₁～R₃ 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の（C1～C30）アルキル、置換もしくは非置換の（C6～C30）アリール、置換もしくは非置換の（3～30員）ヘテロアリール、置換もしくは非置換の（C3～C30）シクロアルキル、または置換もしくは非置換の（3～7員）ヘテロシクロアルキルを表し、

R₄～R₆ は、それぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、シアノ、置換もしくは非置換の（C1～C30）アルキル、置換もしくは非置換の（C3～C30）シクロアルキル、置換もしくは非置換の（C3～C30）シクロアルケニル、置換もしくは非置換の（3～7員）ヘテロシクロアルキル、置換もしくは非置換の（C6～C30）アリール、置換もしくは非置換の（3～30員）ヘテロアリール、または置換もしくは非置換のジ（C6～C30）アリールアミノを表すか、あるいは、隣接する置換基（複数可）と縮合して、窒素、酸素、及び硫黄から選択される少なくとも1個のヘテロ原子で炭素原子（複数可）が置換され得る、置換もしくは非置換の（3～30員）、単環式もしくは多環式の、脂環式環または芳香族環を形成してもよく、

40

前記ヘテロアリール（エン）及び前記ヘテロシクロアルキルは、それぞれ独立して、B、N、O、S、P（=O）、Si、及びPから選択される少なくとも1個のヘテロ原子を含有し、

a 及び b は、それぞれ独立して、0 または 1 を表す、前記有機電界発光化合物。

【請求項 2】

L₁、Ar₁、及び R₁～R₆ における前記置換アルキル、前記置換シクロアルキル、

50

前記置換シクロアルケニル、前記置換ヘテロシクロアルキル、前記置換アリール（エン）、前記置換ヘテロアリール（エン）、前記置換ジアリールアミノ、及び前記置換された単環式もしくは多環式の脂環式環または芳香族環の前記置換基は、それぞれ独立して、重水素、ハロゲン、シアノ、カルボキシ、ニトロ、ヒドロキシ、（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）アルコキシ、（C 1～C 3 0）アルキルチオ、（C 3～C 3 0）シクロアルキル、（C 3～C 3 0）シクロアルケニル、（3～7員）ヘテロシクロアルキル、（C 6～C 3 0）アリールオキシ、（C 6～C 3 0）アリールチオ、非置換もしくは（C 6～C 3 0）アリールで置換された（3～3 0員）ヘテロアリール、非置換もしくは（3～3 0員）ヘテロアリールで置換された（C 6～C 3 0）アリール、トリ（C 1～C 3 0）アルキルシリル、トリ（C 6～C 3 0）アリールシリル、ジ（C 1～C 3 0）アルキル（C 6～C 3 0）アリールシリル、（C 1～C 3 0）アルキルジ（C 6～C 3 0）アリールシリル、アミノ、モノもしくはジ（C 1～C 3 0）アルキルアミノ、モノもしくはジ（C 6～C 3 0）アリールアミノ、（C 1～C 3 0）アルキル（C 6～C 3 0）アリールアミノ、（C 1～C 3 0）アルキルカルボニル、（C 1～C 3 0）アルコキシカルボニル、（C 6～C 3 0）アリールカルボニル、ジ（C 6～C 3 0）アリールボロニル、ジ（C 1～C 3 0）アルキルボロニル、（C 1～C 3 0）アルキル（C 6～C 3 0）アリールボロニル、（C 6～C 3 0）アリール（C 1～C 3 0）アルキル、及び（C 1～C 3 0）アルキル（C 6～C 3 0）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に記載の前記有機電界発光化合物。

10

20

【請求項3】

L₁は、単結合、置換もしくは非置換の（5～2 1員）ヘテロアリーレン、または置換もしくは非置換の（C 6～C 2 1）アリーレンを表し、

X₁は、-NR₁-、-CR₂R₃-、-O-、または-S-を表し、

X₂～X₆のすべてが-CR₄-を表すか、またはX₂～X₆のうちの1つが-N-を表し、X₂～X₆の残りが-CR₄-を表し、X₂が-N-であるとき、L₁は単結合であり、

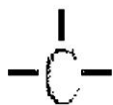
Ar₁は、水素、または置換もしくは非置換の（C 6～C 2 1）アリーレンを表し、Ar₁が水素であるとき、R₄のうちの少なくとも1つは、置換もしくは非置換の（C 6～C 2 1）アリーレンまたは置換もしくは非置換の（5～2 1員）ヘテロアリールであり、

30

Y₁～Y₄及びY_{1 3}～Y_{1 6}は、それぞれ独立して、-CR₅-を表し、

Y₅～Y_{1 2}は、それぞれ独立して、

【化3】



または-CR₆-を表し、

R₁～R₃は、それぞれ独立して、置換もしくは非置換の（C 1～C 2 0）アルキル、置換もしくは非置換の（C 6～C 2 1）アリーレン、置換もしくは非置換の（5～2 1員）ヘテロアリール、置換もしくは非置換の（C 5～C 2 1）シクロアルキル、または置換もしくは非置換の（5～7員）ヘテロシクロアルキルを表し、

40

R₄～R₆は、それぞれ独立して、水素、ハロゲン、シアノ、置換もしくは非置換の（C 1～C 2 0）アルキル、置換もしくは非置換の（C 5～C 2 1）シクロアルキル、置換もしくは非置換の（C 6～C 2 1）アリーレン、置換もしくは非置換の（5～2 1員）ヘテロアリール、または置換もしくは非置換のジ（C 6～C 2 1）アリールアミノを表すか、あるいは、隣接する置換基（複数可）と縮合して、窒素、酸素、及び硫黄から選択される1個または2個のヘテロ原子（複数可）で炭素原子（複数可）が置換され得る、置換もしくは非置換の（5～2 1員）、単環式もしくは多環式の芳香族環を形成してもよく、

前記ヘテロアリール（エン）及び前記ヘテロシクロアルキルは、それぞれ独立して、N

50

、O、及びSから選択される少なくとも1個のヘテロ原子を含有し、

a 及び b は、それぞれ独立して、0 または 1 を表す、請求項 1 に記載の前記有機電界発光化合物。

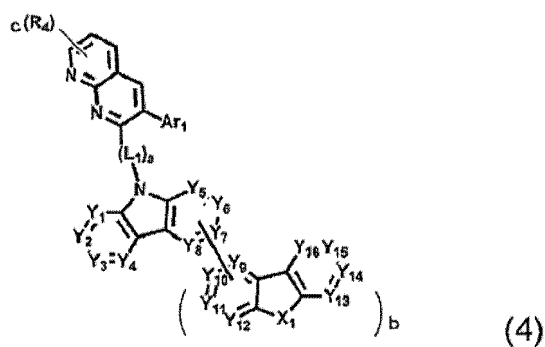
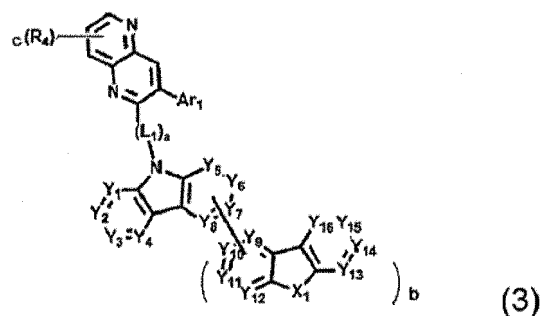
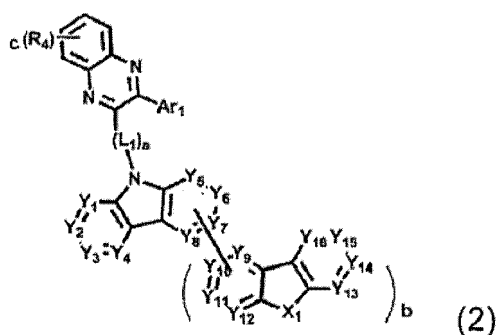
【請求項 4】

Ar₁ は、水素、置換もしくは非置換のフェニル、置換もしくは非置換のナフチル、置換もしくは非置換のビフェニル、置換もしくは非置換のテルフェニル、置換もしくは非置換のアントラセニル、置換もしくは非置換のフェナントレニル、置換もしくは非置換のフェニルナフチル、または置換もしくは非置換のナフチルフェニルを表す、請求項 3 に記載の前記有機電界発光化合物。

【請求項 5】

前記化合物は、以下の式 2～4 のうちのいずれか 1 つにより表され、

【化 4】



式中、X₁、Ar₁、Y₁～Y₁₆、R₄、L₁、a、及び b は、請求項 1 に定義されたとおりであり、c は、1～4 の整数を表し、c が 2 以上の整数であるとき、R₄ のそれぞれは同じかまたは異なる、請求項 1 に記載の前記有機電界発光化合物。

【請求項 6】

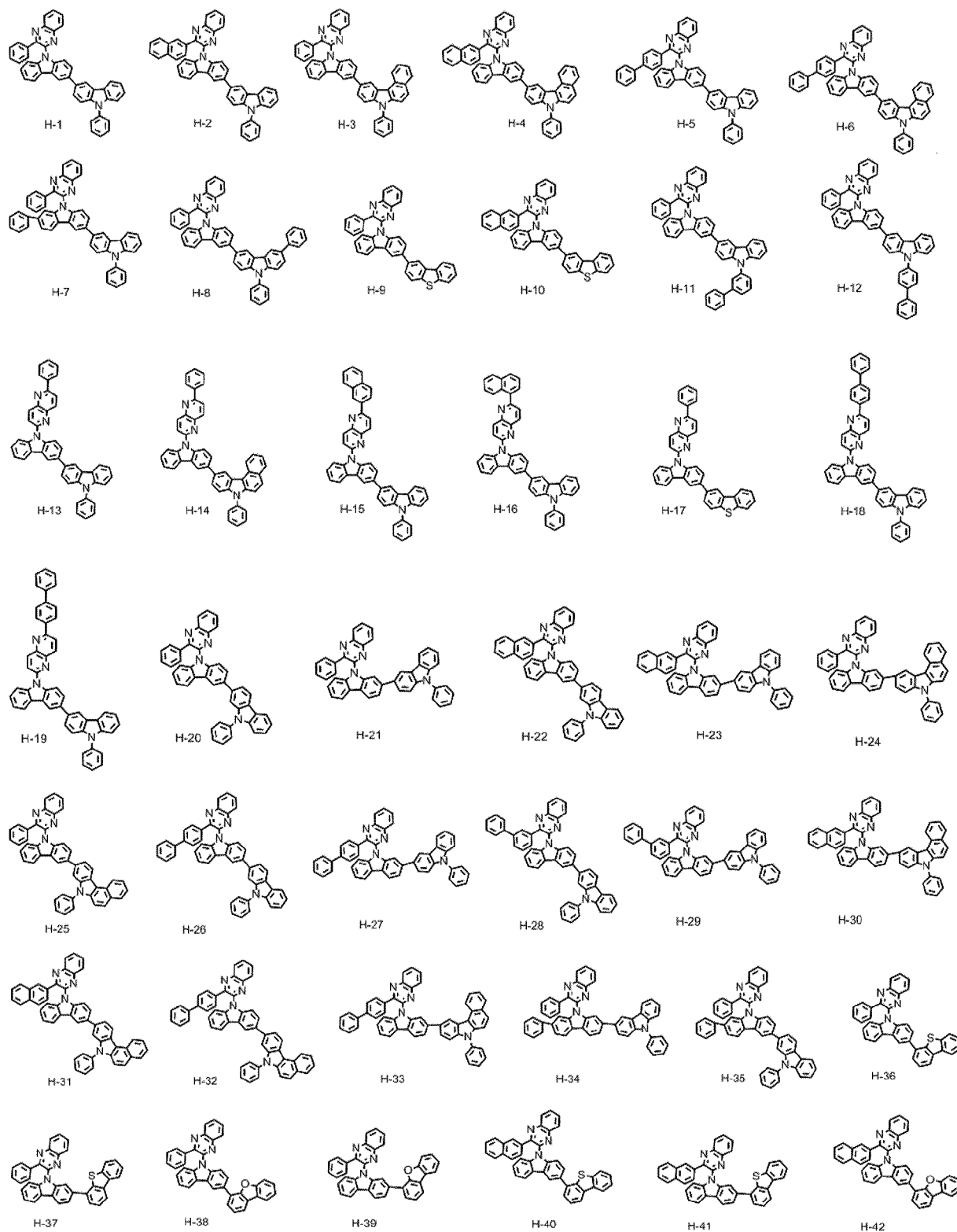
前記化合物は、以下からなる群から選択される、請求項 1 に記載の前記有機電界発光化合物。

10

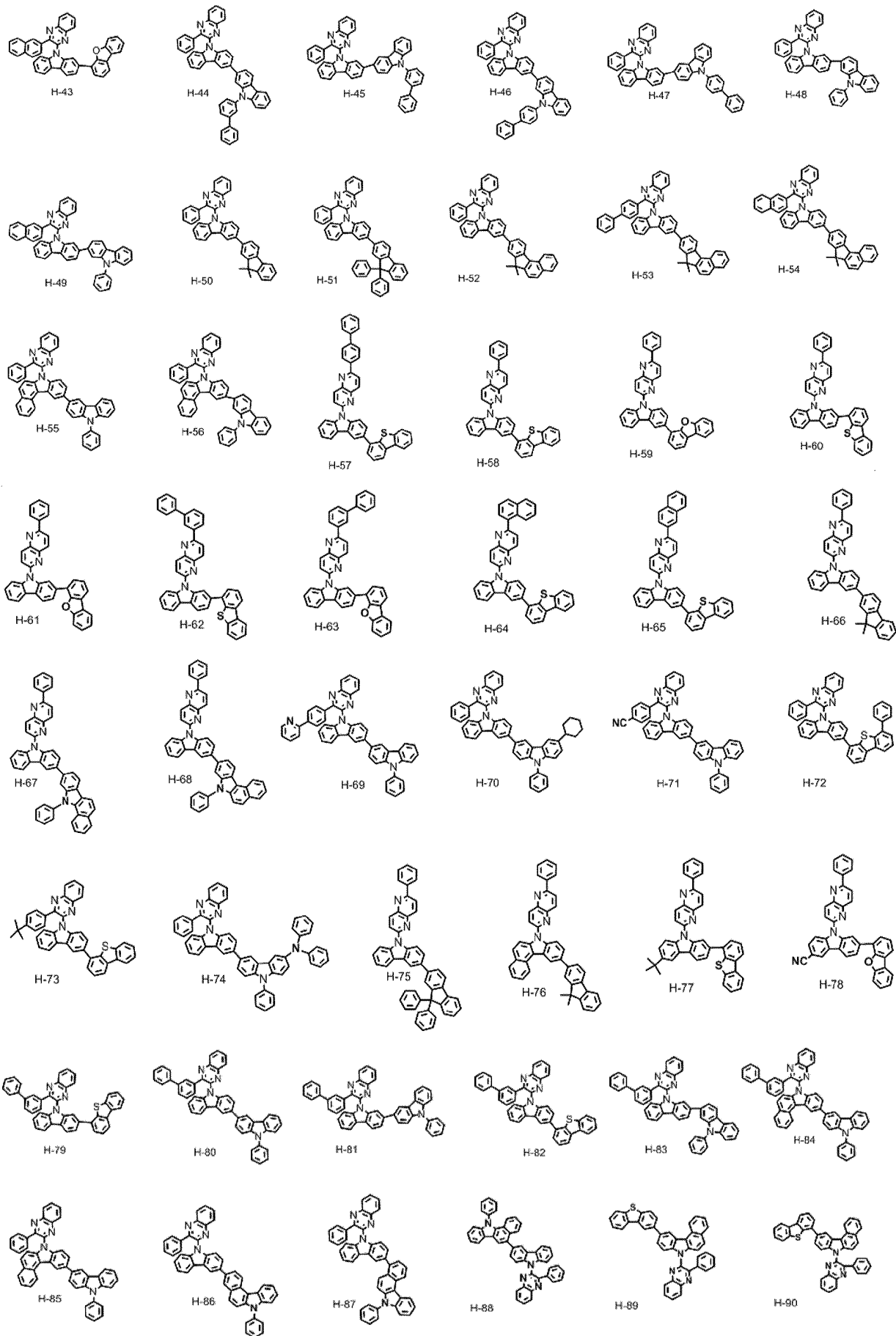
20

30

【化 5 - 1】



【化 5 - 2】



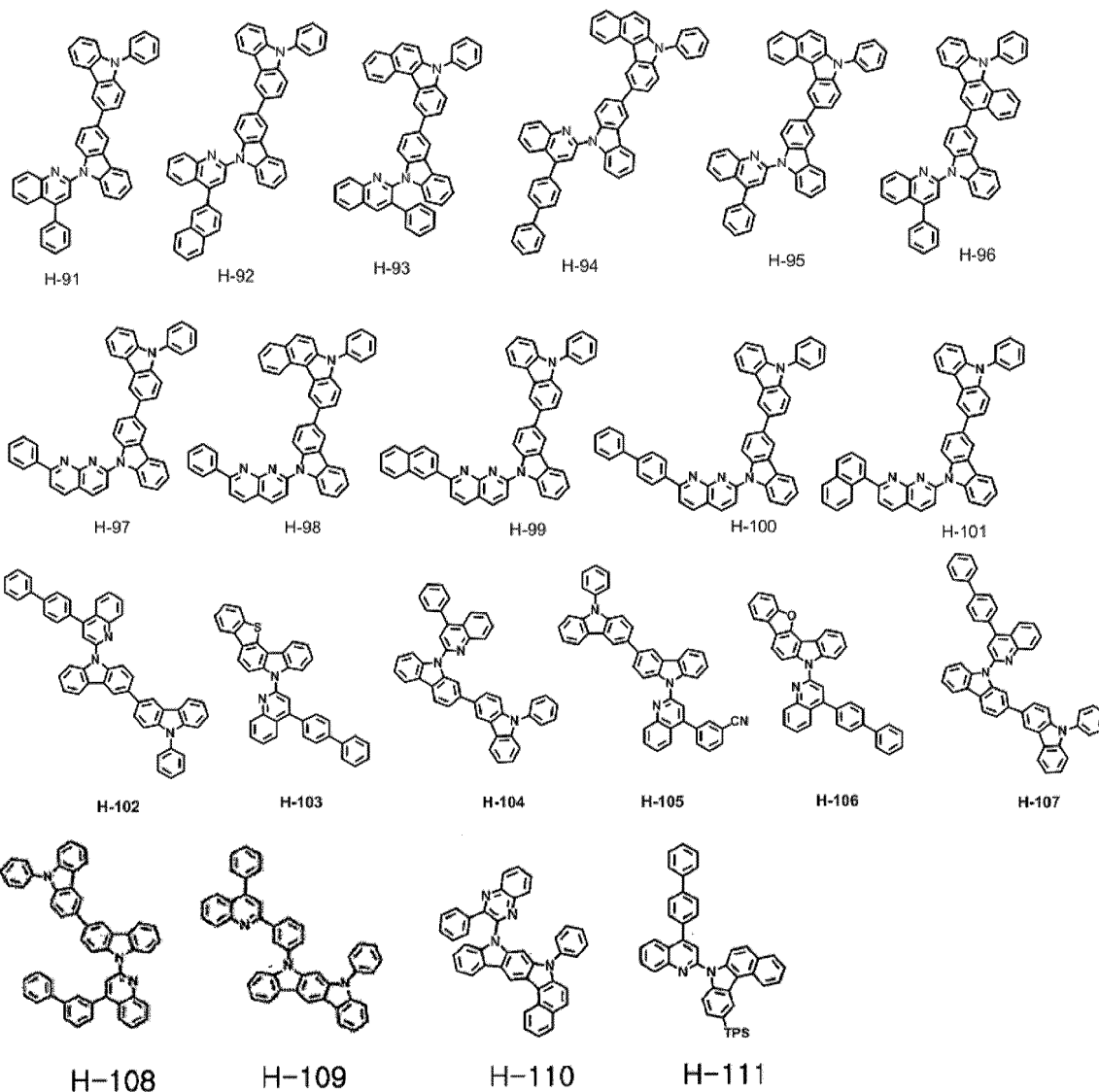
10

20

30

40

【化 5 - 3】



【請求項 7】

請求項 1 に記載の前記化合物を含む、有機電界発光デバイス。

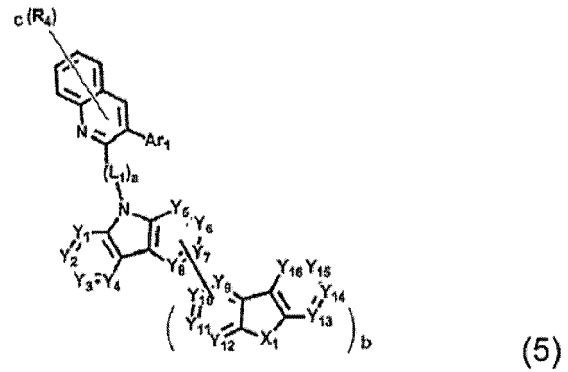
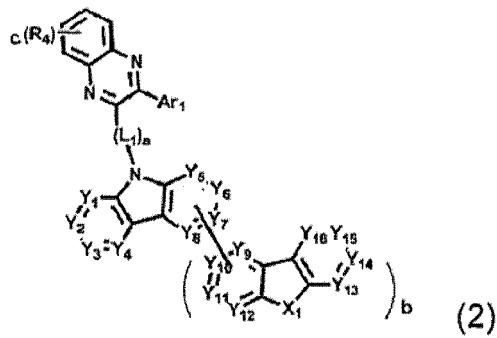
【請求項 8】

陽極、陰極、及び前記陽極と前記陰極との間に配設された有機層を備える有機電界発光デバイスであって、前記有機層は、1つ以上の発光層を含み、少なくとも1つの発光層は、1つ以上のドーパント化合物及び2つ以上のホスト化合物を含み、前記2つ以上のホスト化合物のうちの少なくとも1つは、請求項 1 に記載の式 1 により表される前記有機電界発光化合物である、前記有機電界発光デバイス。

【請求項 9】

前記2つ以上のホスト化合物の第1のホスト化合物は、以下の式 2 及び 5 により表される前記有機電界発光化合物から選択され、

【化 6】



10

式中、 X_1 、 Ar_1 、 $Y_1 \sim Y_{16}$ 、 R_4 、 L_1 、 a 、及び b は、請求項 1 に定義されたとおりであり、 c は、1～5 の整数を表し、 c が 2 以上である場合、 R_4 のそれぞれは同じかまたは異なってもよい、請求項 8 に記載の前記有機電界発光デバイス。

【請求項 10】

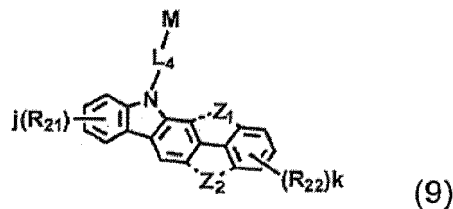
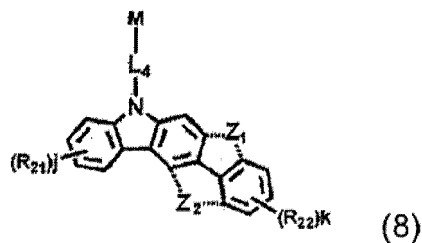
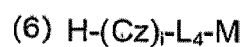
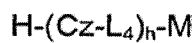
前記 2 つ以上のホスト化合物のうちの少なくとも 2 つは、それぞれ独立して、式 1 により表される前記有機電界発光化合物から選択される、請求項 8 に記載の前記有機電界発光デバイス。

【請求項 11】

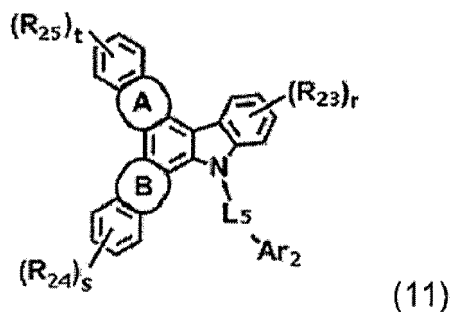
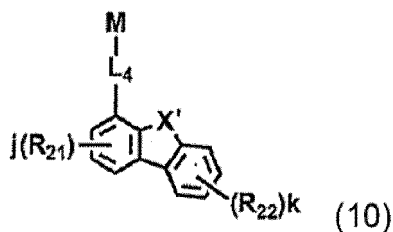
前記 2 つ以上のホスト化合物の第 1 のホスト化合物は、式 1 により表される前記有機電界発光化合物であり、第 2 のホスト化合物は、以下の式 6～11 により表される化合物から選択され、

20

【化 7】



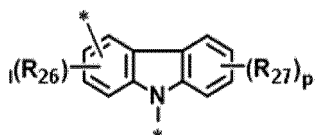
30



40

式中、 Cz は、以下の構造を表し、

【化 8】

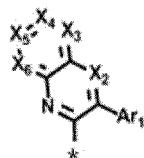


50

L_4 及び L_5 は、それぞれ独立して、単結合、置換もしくは非置換の ($C_6 \sim C_{30}$) アリーレン、または置換もしくは非置換の ($5 \sim 30$ 員) ヘテロアリーレンを表し、

M は、置換もしくは非置換の ($C_6 \sim C_{30}$) アリール、または置換もしくは非置換の ($5 \sim 30$ 員) ヘテロアリールを表すが、ただし、式 6 の h が 1 である場合、または式 7 の i が 1 である場合、 M は

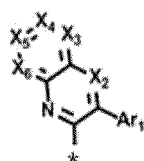
【化 9】



10

ではなく、式 8 及び 9 の M は

【化 10】



(式中、 $X_2 \sim X_6$ 及び Ar_1 は、式 1 に定義されたとおりであり、* は結合部位を表す。) ではないことを条件とし、

20

Z_1 及び Z_2 は、それぞれ独立して、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-N(R_{31})-$ 、または $-C(R_{32})(R_{33})-$ を表すが、ただし、 Z_1 及び Z_2 が同時に存在しないことを条件とし、

X' は、 $-O-$ または $-S-$ を表し、

環 A は、

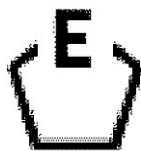
【化 11】



30

を表し、環 B は、

【化 12】



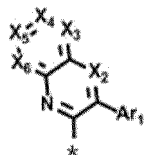
40

を表し、

D 及び E は、それぞれ独立して、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-N(R_{34})-$ 、または $-C(R_{35})(R_{36})-$ を表し、

Ar_2 は、置換もしくは非置換の ($3 \sim 30$ 員) ヘテロアリール、または置換もしくは非置換の ($C_6 \sim C_{30}$) アリールを表すが、ただし、 Ar_2 が

【化 1 3】



(式中、X₂～X₆ 及び A r₁ は、式 1 に定義されたとおりであり、* は結合部位を表す。) ではないことを条件とし、

R₂₁～R₂₇ は、それぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、シアノ、置換もしくは非置換の (C 1～C 3 0) アルキル、置換もしくは非置換の (C 3～C 3 0) シクロアルキル、置換もしくは非置換の (C 6～C 3 0) アリール、置換もしくは非置換の (5～3 0 員) ヘテロアリール、または R₂₈ R₂₉ R₃₀ S iーを表すか、あるいは、隣接する置換基 (複数可) と縮合して、窒素、酸素、及び硫黄から選択される少なくとも 1 個のヘテロ原子で炭素原子 (複数可) が置換され得る、置換もしくは非置換の (C 3～C 3 0)、単環式もしくは多環式の、脂環式環または芳香族環を形成してもよいが、ただし、式 6 の h または式 7 の i が 1 である場合、R₂₆ または R₂₇ は、式 8、9、及び 11 の Z₁、Z₂、D、または E を含有する環を形成せず、式 10 の R₂₂ は、式 8 及び 9 の R₂₁ に結合したインドール環ならびに式 11 の R₂₃ に結合したインドール環を形成しないことを条件とし、

R₂₈～R₃₀ は、それぞれ独立して、置換もしくは非置換の (C 1～C 3 0) アルキル、または置換もしくは非置換の (C 6～C 3 0) アリールを表し、

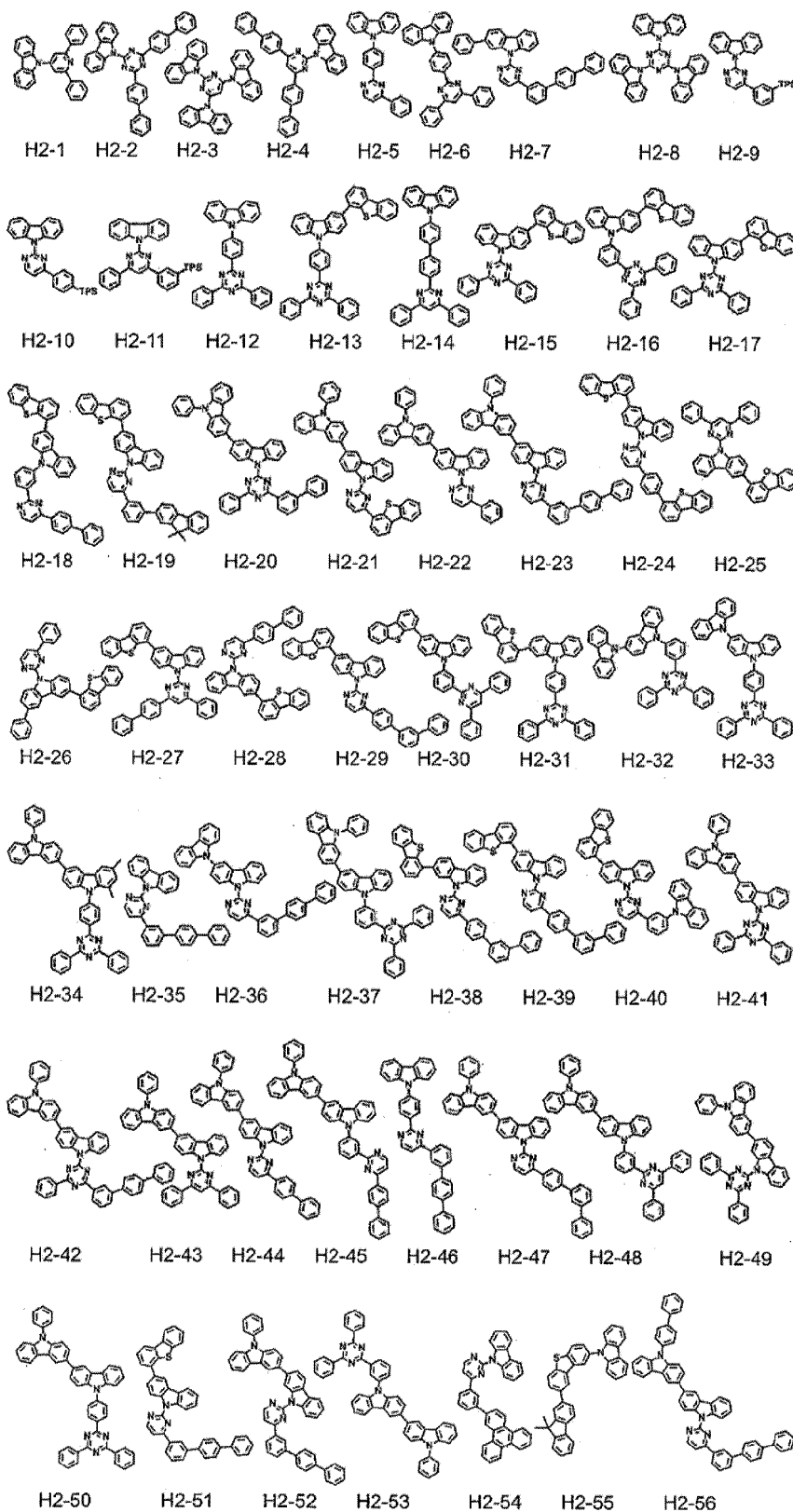
R₃₁～R₃₆ は、それぞれ独立して、水素、置換もしくは非置換の (C 1～C 3 0) アルキル、置換もしくは非置換の (C 6～C 3 0) アリール、または置換もしくは非置換の (5～3 0 員) ヘテロアリールを表し、R₃₂ 及び R₃₃ は同じかまたは異なってもよく、R₃₅ 及び R₃₆ は同じかまたは異なってもよく、前記ヘテロアリール (エン) は、B、N、O、S、P (=O)、S i、及び P から選択される 1 個以上のヘテロ原子を含有し、

h 及び i は、それぞれ独立して、1～3 の整数を表し、j、k、l、及び p は、それぞれ独立して、0～4 の整数を表し、r、s、及び t は、それぞれ独立して、1～4 の整数を表し、h、i、j、k、l、p、r、s、または t 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、R₂₄ のそれぞれ、R₂₅ のそれぞれ、R₂₆ のそれぞれ、または R₂₇ のそれぞれは、同じかまたは異なってもよい、請求項 8 に記載の前記有機電界発光デバイス。

【請求項 1 2】

式 6～11 により表される前記化合物は、以下からなる群から選択される、請求項 11 に記載の前記有機電界発光デバイス。

【化 1 4 - 1】



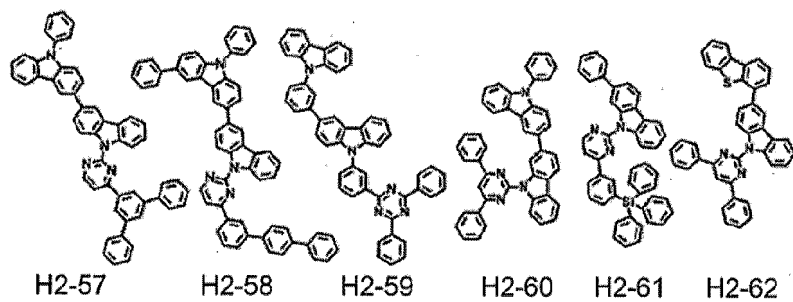
10

20

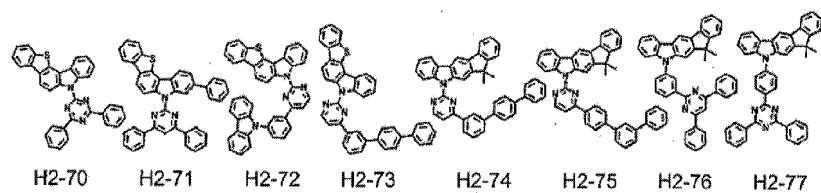
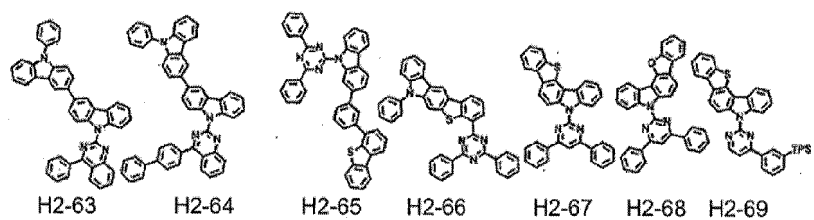
30

40

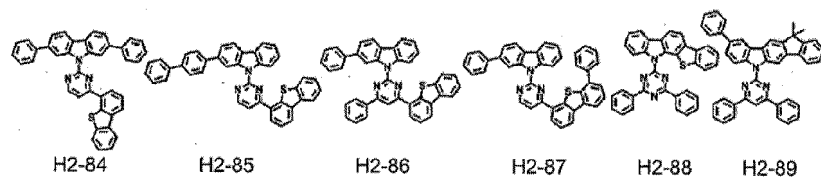
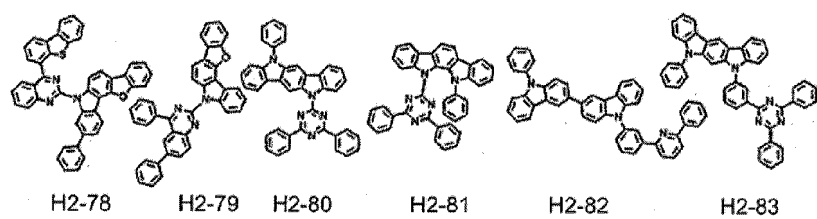
【化 1 4 - 2】



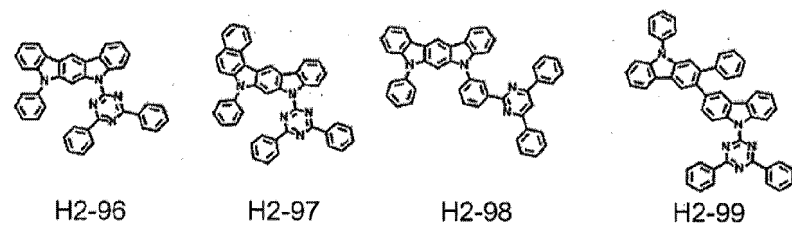
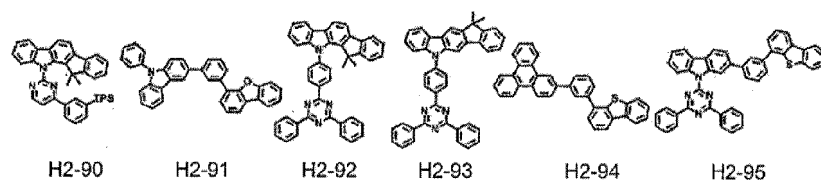
10



20

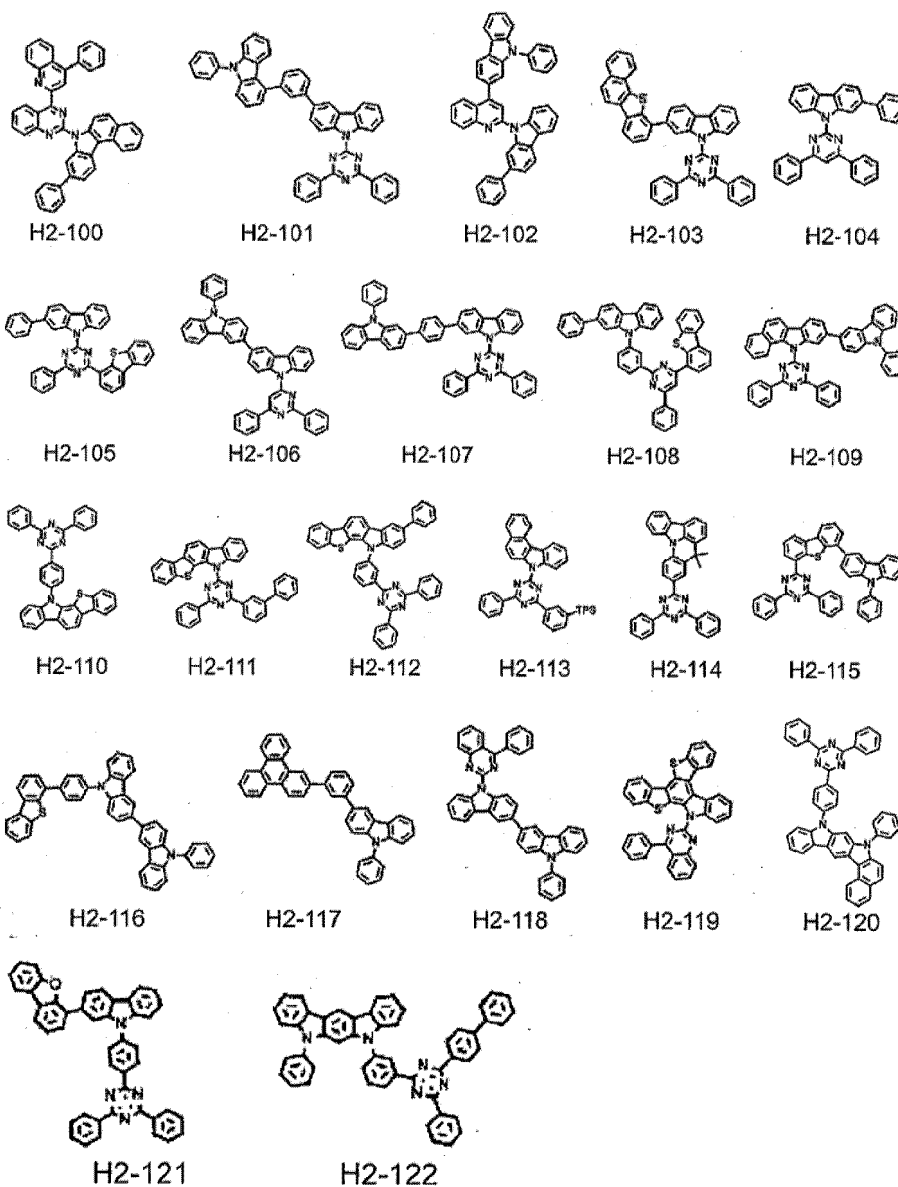


30



40

【化 1 4 - 3】



【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本開示は、有機電界発光化合物、ならびにそれを含む多成分ホスト材料及び有機電界発光デバイスに関する。

【背景技術】

【0002】

電界発光（EL）デバイスは、より広い視野角、より高いコントラスト比、及びより速い反応時間を提供するという利点を有する自発光デバイスである。有機ELデバイスは、芳香族ジアミン小分子及びアルミニウム錯体を材料として使用して発光層を形成することにより、Eastman Kodakによって初めて開発された[Appl. Phys. Lett. 51, 913, 1987]。

【0003】

有機ELデバイス内の発光効率を決定する最も重要な要素は、発光材料である。これま

で、発光材料として蛍光材料が広く使われている。しかしながら、電界発光機構を考慮すると、リン光性材料は蛍光材料と比較して発光効率を理論的に4倍向上させるため、リン光性発光材料が広く研究されている。それぞれ、赤色発光材料、緑色発光材料、及び青色発光材料として、ビス(2-(2'-ベンゾチエニル)-ピリジナト-N, C3')イリジウム(アセチルアセトネート)((acac)Ir(btp)₂)、トリス(2-フェニルピリジン)イリジウム(Ir(ppy)₃)、及びビス(4,6-ジフルオロフェニルピリジナト-N, C2)ピコリネートイリジウム(Firpic)を含む、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。

【0004】

現在、4,4'-N,N'-ジカルバゾール-ビフェニル(CBP)が、リン光性材料のため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、正孔阻止材料として知られたバソクプロイン(BCP)及びアルミニウム(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)(BAIq)などをホスト材料として使用して、高性能有機ELデバイスを開発した。

【0005】

従来の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点を有する。(1)それらの低いガラス遷移温度及び乏しい熱安定性が原因で、真空中の高温蒸着過程にそれらの分解が起こり得る。(2)有機ELデバイスの出力効率は $[(\pi/\text{電圧}) \times \text{電流効率}]$ により与えられ、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、蛍光材料を含むものよりも高い電流効率(c d/A)を提供するが、著しく高い駆動電圧が必要である。したがって、出力効率(l m/W)に関するメリットはない。(3)さらに、有機ELデバイスの動作寿命は短く、発光効率は依然として改善される必要がある。

【0006】

韓国特許出願公開第10-2010-0105501号は、ビスカルバゾールの窒素原子のうちの1個がフェニレンを介してキノキサリンで置換される、有機電界発光デバイスのための化合物を開示する。しかしながら、これは、ビスカルバゾールの窒素原子のうちの1個が直接的にもしくはリンカーを介してナフチリジンで置換される化合物、またはビスカルバゾールの窒素原子のうちの1個が直接的にもしくはヘテロアリーレンを介してキノキサリンで置換される化合物を開示しない。

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

本開示の目的は、長い寿命、低い駆動電圧、ならびに良好な電流効率及び出力効率を示す有機電界発光デバイスを提供することのできる有機電界発光化合物、ならびにそれを含む多成分ホスト材料及び有機電界発光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】

【0008】

本発明者は、上記の目的が、以下の式1により表される有機電界発光化合物によって達成され得ることを見出した。

【0009】

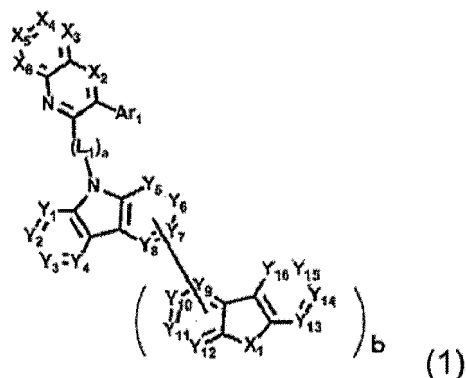
10

20

30

40

【化 1】



10

【0010】

式中、 L_1 は、単結合、置換もしくは非置換の（3～30員）ヘテロアリーレン、または置換もしくは非置換の（C6～C30）アリーレンを表し、

【0011】

X_1 は、 $-NR_1-$ 、 $-CR_2R_3-$ 、 $-O-$ 、または $-S-$ を表し、

【0012】

$X_2 \sim X_6$ は、それぞれ独立して、 $-CR_4-$ または $-N-$ を表し、

【0013】

20

Ar_1 は、水素、置換もしくは非置換の（C6～C30）アリール、または置換もしくは非置換の（3～30員）ヘテロアリールを表すが、

【0014】

ただし、 X_2 が $-N-$ であるとき、 L_1 は置換もしくは非置換の（C6～C30）アリーレンではなく、 Ar_1 は水素ではないことを条件とし、

【0015】

$Y_1 \sim Y_4$ 及び $Y_{13} \sim Y_{16}$ は、それぞれ独立して、 $-N-$ または $-CR_5-$ を表し、

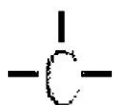
【0016】

$Y_5 \sim Y_{12}$ は、それぞれ独立して、

30

【0017】

【化 2】



【0018】

$-N-$ 、または $-CR_6-$ を表し、

【0019】

$R_1 \sim R_3$ 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の（C1～C30）アルキル、置換もしくは非置換の（C6～C30）アリール、置換もしくは非置換の（3～30員）ヘテロアリール、置換もしくは非置換の（C3～C30）シクロアルキル、または置換もしくは非置換の（3～7員）ヘテロシクロアルキルを表し、

40

【0020】

$R_4 \sim R_6$ は、それぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、シアノ、置換もしくは非置換の（C1～C30）アルキル、置換もしくは非置換の（C3～C30）シクロアルキル、置換もしくは非置換の（C3～C30）シクロアルケニル、置換もしくは非置換の（3～7員）ヘテロシクロアルキル、置換もしくは非置換の（C6～C30）アリール、置換もしくは非置換の（3～30員）ヘテロアリール、または置換もしくは非置換のジ（C6～C30）アリールアミノを表すか、あるいは、隣接する置換基（複数可）と縮合して

50

、窒素、酸素、及び硫黄から選択される少なくとも1個のヘテロ原子で炭素原子（複数可）が置換され得る、置換もしくは非置換の（3～30員）、単環式もしくは多環式の、脂環式環または芳香族環を形成してもよく、

【0021】

ヘテロアリール（エン）及びヘテロシクロアルキルは、それぞれ独立して、B、N、O、S、P（=O）、Si、及びPから選択される少なくとも1個のヘテロ原子を含有し、

【0022】

a及びbは、それぞれ独立して、0または1を表す。

【発明の効果】

【0023】

本開示の有機電界発光化合物及び多成分ホスト材料は、低い駆動電圧、良好な電流効率及び出力効率、ならびに著しく改善された寿命を有する有機電界発光デバイスを提供することができる。

【発明を実施するための形態】

【0024】

以降、本開示が詳細に記載される。しかしながら、以下の記載は本発明の説明を目的とするものであり、決して本発明の範囲の制限を目的とするものではない。

【0025】

本開示は、上記の式1の有機電界発光化合物、それを含む有機電界発光材料、及び本化合物を含む有機電界発光デバイスを提供する。

【0026】

式1の有機電界発光化合物の詳細は次のとおりである。

【0027】

本明細書において、「アルキル」は、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-ブチルなどを含む。「アルケニル」は、ビニル、1-プロペニル、2-プロペニル、1-ブテニル、2-ブテニル、3-ブテニル、2-メチルブト-2-エニルなどを含む。「アルキニル」は、エチニル、1-プロピニル、2-プロピニル、1-ブチニル、2-ブチニル、3-ブチニル、1-メチルペント-2-イニルなどを含む。「シクロアルキル」は、シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどを含む。「（3～7員）ヘテロシクロアルキル」は、B、N、O、S、P（=O）、Si、及びP、好ましくはO、S、及びNから選択される少なくとも1個のヘテロ原子を含む、3～7員の環骨格原子を有するシクロアルキルを示し、テトラヒドロフラン、ピロリジン、チオラン、テトラヒドロピランなどを含む。さらに、「アリール（エン）」は、芳香族炭化水素から誘導される単環式環または縮合環を示し、2つの環が1個の原子を介して結合しているスピロ化合物であり得、フェニル、ビフェニル、テルフェニル、ナフチル、ビナフチル、フェニルナフチル、ナフチルフェニル、フルオレニル、フェニルフルオレニル、ベンゾフルオレニル、ジベンゾフルオレニル、フェナントレニル、フェ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фтаセニル、フルオランテニル、スピロビフルオレニルなどを含む。「（3～30員）ヘテロアリール（エン）」は、B、N、O、S、P（=O）、Si、及び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個のヘテロ原子を含む、3～30員の環骨格原子を有するアリール基を示し、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得、部分的に飽和していてもよく、単結合（複数可）を介して少なくとも1つのヘテロアリール基またはアリール基をヘテロアリール基に連結させることによって形成されるものであり得、例えばフリル、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、イソオキサゾリル、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、ピリダジニルなどの単環式環型ヘテロアリール、及び、例えばベンゾフラニル、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

10

20

30

40

50

ニル、ナフトフラニル、ナフトチオフェニル、ベンゾナフトフラニル、ベンゾナフトチオフェニル、ベンズイミダゾリル、ベンゾチアゾリル、ベンゾイソチアゾリル、ベンゾイソオキサゾリル、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、ジヒドロアクリジニルなどの縮合環型ヘテロアリールを含む。さらに、「ハロゲン」は、F、Cl、Br、及びIを含む。

【0028】

本明細書において、「置換もしくは非置換の」という表現における「置換」とは、ある特定の官能基内の水素原子が、別の原子または基、すなわち置換基で置換されることを意味する。 L_1 、 Ar_1 、 $R_1 \sim R_6$ 、 $R_{21} \sim R_{27}$ 、 $R_{31} \sim R_{33}$ 、 $R_{100} \sim R_{109}$ 、 $R_{111} \sim R_{127}$ 、 L_4 、及びMにおける置換アルキル、置換シクロアルキル、置換シクロアルケニル、置換ヘテロシクロアルキル、置換アリール（エン）、置換ヘテロアリール（エン）、置換ジアリールアミノ、置換アルコキシ、及び置換された単環式もしくは多環式の脂環式環または芳香族環の置換基は、それぞれ独立して、重水素、ハロゲン、シアノ、カルボキシ、ニトロ、ヒドロキシ、(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)アリールオキシ、(C6～C30)アリールチオ、非置換または(C6～C30)アリールで置換された(3～30員)ヘテロアリール、非置換または(3～30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、及び(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つであり、好ましくは、それぞれ独立して、シアノ、ハロゲン、(C1～C10)アルキル、(C3～C12)シクロアルキル、(C5～C18)アリール、(5～18員)ヘテロアリール、ジ(C6～C12)アリールアミノ、及び(C1～C10)アルキル(C5～C18)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。

【0029】

L_1 は、単結合、置換もしくは非置換の(3～30員)ヘテロアリーレン、または置換もしくは非置換の(C6～C30)アリーレンを表す。好ましくは、 L_1 は、単結合、置換もしくは非置換の(5～21員)ヘテロアリーレン、または置換もしくは非置換の(C6～C21)アリーレンを表し得る。具体的には、 L_1 は、単結合を表し得る。

【0030】

X_1 は、 $-NR_1-$ 、 $-CR_2R_3-$ 、 $-O-$ 、または $-S-$ を表す。具体的には、 X_1 は、 $-NR_1-$ を表し得る。

【0031】

$X_2 \sim X_6$ は、それぞれ独立して、 $-CR_4-$ または $-N-$ を表す。好ましくは、 $X_2 \sim X_6$ のすべてが $-CR_4-$ を表してもよく、または、 $X_2 \sim X_6$ のうちの1つが $-N-$ を表してもよく、 $X_2 \sim X_6$ の残りが $-CR_4-$ を表してもよい。 X_2 が $-N-$ を表すとき、 L_1 は置換もしくは非置換の(C6～C30)アリーレンではなく、 Ar_1 は水素ではない。具体的には、 X_2 が $-N-$ を表すとき、 L_1 は、単結合を表し得る。

【0032】

10

20

30

40

50

$A r_1$ は、水素、置換もしくは非置換の ($C 6 \sim C 30$) アリール、または置換もしくは非置換の ($3 \sim 30$ 員) ヘテロアリールを表す。 $A r_1$ は、好ましくは水素、または置換もしくは非置換の ($C 6 \sim C 21$) アリール、より好ましくは水素、あるいは非置換または ($C 1 \sim C 10$) アルキル、シアノ、($C 6 \sim C 13$) アリール、もしくは ($5 \sim 13$ 員) ヘテロアリールで置換された ($C 6 \sim C 18$) アリールを表し得る。具体的には、 $A r_1$ は、水素、置換もしくは非置換のフェニル、置換もしくは非置換のナフチル、置換もしくは非置換のビフェニル、置換もしくは非置換のテルフェニル、置換もしくは非置換のアントラセニル、置換もしくは非置換のフェナントレニル、置換もしくは非置換のフェニルナフチル、または置換もしくは非置換のナフチルフェニルを表し得る。より具体的には、 $A r_1$ は、水素、あるいは、非置換または ($C 1 \sim C 4$) アルキル、シアノ、もしくはピリジルで置換されたフェニル、ビフェニル、ナフチル、テルフェニル、アントラセニル、フェナントレニル、フェニルナフチル、またはナフチルフェニルを表し得る。好ましくは、 $A r_1$ が水素を表すとき、 $X_2 \sim X_6$ のうちの少なくとも1つは、 $-C R_4-$ を表し得、式中、 R_4 は、置換もしくは非置換の ($C 6 \sim C 30$) アリール、または置換もしくは非置換の ($3 \sim 30$ 員) ヘテロアリールを表す。より好ましくは、 $A r_1$ が水素を表すとき、 $X_2 \sim X_6$ のうちの少なくとも1つは、 $-C R_4-$ を表し得、式中、 R_4 は、置換もしくは非置換の ($C 6 \sim C 21$) アリール、または置換もしくは非置換の ($5 \sim 21$ 員) ヘテロアリールを表し、さらにより好ましくは、 $X_2 \sim X_6$ のうちの1つは、 $-C R_4-$ を表し得、式中、 R_4 は、置換もしくは非置換の ($C 6 \sim C 18$) アリールを表す。

10

【0033】

20

$Y_1 \sim Y_4$ 及び $Y_{13} \sim Y_{16}$ は、それぞれ独立して、 $-N-$ または $-C R_5-$ 、好ましくは $-C R_5-$ を表す。具体的には、 $Y_1 \sim Y_4$ は $-C H-$ を表してもよく、または、 $Y_1 \sim Y_4$ のうちの1つが $-C R_5-$ (式中、 R_5 は水素ではない) を表してもよく、 $Y_1 \sim Y_4$ の残りが $-C H-$ を表してもよく、または、 $Y_1 \sim Y_4$ のうちの2つが $-C H-$ を表してもよく、 $Y_1 \sim Y_4$ の残りが $-C R_5-$ (式中、 R_5 は水素ではない) を表してもよい。具体的には、 $Y_{13} \sim Y_{16}$ は $-C H-$ を表してもよく、または、 $Y_{13} \sim Y_{16}$ のうちの1つが $-C R_5-$ (式中、 R_5 は水素ではない) を表してもよく、 $Y_{13} \sim Y_{16}$ の残りが $-C H-$ を表してもよく、または、 $Y_{13} \sim Y_{16}$ のうちの2つが $-C H-$ を表してもよく、 $Y_{13} \sim Y_{16}$ の残りが $-C R_5-$ (式中、 R_5 は水素ではない) を表してもよい。

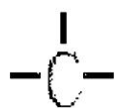
30

【0034】

$Y_5 \sim Y_{12}$ は、それぞれ独立して、

【0035】

【化3】



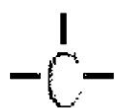
【0036】

$-N-$ 、または $-C R_6-$ を表す。好ましくは、 $Y_5 \sim Y_{12}$ は、それぞれ独立して

40

【0037】

【化4】



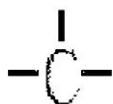
【0038】

または $-C R_6-$ を表す。具体的には、 $Y_5 \sim Y_8$ のうちの1つが

【0039】

50

【化 5】

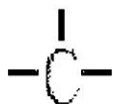


【0040】

を表してもよく、 $Y_5 \sim Y_8$ の残りが $-CH-$ を表してもよい。具体的には、 $Y_9 \sim Y_{12}$ のうちの1つが

【0041】

【化 6】

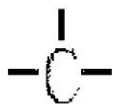


【0042】

を表してもよく、 $Y_9 \sim Y_{12}$ の残りが $-CH-$ を表してもよく、または、 $Y_9 \sim Y_{12}$ のうちの1つが

【0043】

【化 7】



【0044】

を表してもよく、 $Y_9 \sim Y_{12}$ のうちの2つが $-CR_6-$ （式中、 R_6 は水素ではない）を表してもよく、残りが $-CH-$ を表してもよい。

【0045】

$R_1 \sim R_3$ 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の（ $C1 \sim C30$ ）アルキル、置換もしくは非置換の（ $C6 \sim C30$ ）アリール、置換もしくは非置換の（3～30員）ヘテロアリール、置換もしくは非置換の（ $C3 \sim C30$ ）シクロアルキル、または置換もしくは非置換の（3～7員）ヘテロシクロアルキルを表す。 $R_1 \sim R_3$ は、それぞれ独立して、好ましくは置換もしくは非置換の（ $C1 \sim C20$ ）アルキル、置換もしくは非置換の（ $C6 \sim C21$ ）アリール、置換もしくは非置換の（5～21員）ヘテロアリール、置換もしくは非置換の（ $C5 \sim C21$ ）シクロアルキル、または置換もしくは非置換の（5～7員）ヘテロシクロアルキル、より好ましくは置換もしくは非置換の（ $C1 \sim C10$ ）アルキル、または置換もしくは非置換の（ $C6 \sim C18$ ）アリール、さらにより好ましくは非置換（ $C1 \sim C10$ ）アルキルまたは非置換（ $C6 \sim C18$ ）アリールを表し得る。好ましくは、 R_2 及び R_3 は同じである。具体的には、 R_1 は、フェニル、ビフェニル、またはナフチルを表してもよく、 R_2 は、（ $C1 \sim C4$ ）アルキルまたはフェニルを表してもよく、 R_3 は、（ $C1 \sim C4$ ）アルキルまたはフェニルを表してもよい。

【0046】

$R_4 \sim R_6$ は、それぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、シアノ、置換もしくは非置換の（ $C1 \sim C30$ ）アルキル、置換もしくは非置換の（ $C3 \sim C30$ ）シクロアルキル、置換もしくは非置換の（ $C3 \sim C30$ ）シクロアルケニル、置換もしくは非置換の（3～7員）ヘテロシクロアルキル、置換もしくは非置換の（ $C6 \sim C30$ ）アリール、置換もしくは非置換の（3～30員）ヘテロアリール、または置換もしくは非置換のジ（ $C6 \sim C30$ ）アリールアミノを表すか、あるいは、隣接する置換基（複数可）と縮合して、窒素、酸素、及び硫黄から選択される少なくとも1個のヘテロ原子で炭素原子（複数可）が置換され得る、置換もしくは非置換の（3～30員）、単環式もしくは多環式の、脂

10

20

30

40

50

環式環または芳香族環を形成してもよい。 $R_4 \sim R_6$ は、それぞれ独立して、好ましくは、水素、ハロゲン、シアノ、置換もしくは非置換の(C1～C20)アルキル、置換もしくは非置換の(C5～C21)シクロアルキル、置換もしくは非置換の(C6～C21)アリール、置換もしくは非置換の(5～21員)ヘテロアリール、または置換もしくは非置換のジ(C6～C21)アリールアミノを表すか、あるいは、隣接する置換基(複数可)と縮合して、窒素、酸素、及び硫黄から選択される1個または2個のヘテロ原子で炭素原子(複数可)が置換され得る、置換もしくは非置換の(5～21員)、単環式もしくは多環式の芳香族環を形成してもよい。より好ましくは、 R_4 は、水素、または置換もしくは非置換の(C6～C18)アリールを表す。具体的には、 R_4 は、水素、置換もしくは非置換のフェニル、置換もしくは非置換のナフチル、置換もしくは非置換のビフェニル、置換もしくは非置換のテルフェニル、置換もしくは非置換のアントラセニル、置換もしくは非置換のフェナントレニル、置換もしくは非置換のフェニルナフチル、または置換もしくは非置換のナフチルフェニルを表し得る。より好ましくは、 R_5 及び R_6 は、水素、シアノ、置換もしくは非置換の(C1～C10)アルキル、置換もしくは非置換の(C5～C18)シクロアルキル、置換もしくは非置換の(C6～C18)アリール、または置換もしくは非置換のジ(C6～C18)アリールアミノを表すか、あるいは、隣接する置換基(複数可)と縮合して、窒素、酸素、及び硫黄から選択されるヘテロ原子(複数可)で炭素原子(複数可)が置換され得る、置換もしくは非置換の(5～18員)、単環式もしくは多環式の芳香族環を形成してもよい。具体的には、 R_5 及び R_6 は、それぞれ独立して、水素、シアノ、(C1～C4)アルキル、フェニル、シクロヘキシル、ジ(フェニル)アミノを表してもよく、あるいは、隣接する置換基(複数可)と縮合して、置換もしくは非置換のベンゼン環、置換もしくは非置換のチオフェン環、置換もしくは非置換のフラン環、置換もしくは非置換のインドール環、置換もしくは非置換のインデン環、置換もしくは非置換のナフタレン環、置換もしくは非置換のベンゾチオフェン環、置換もしくは非置換のベンゾフラン環、または置換もしくは非置換のベンズインドール環を形成してもよい。

10

20

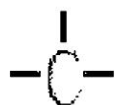
【0047】

本開示の一実施形態によると、 L_1 は、単結合、置換もしくは非置換の(5～21員)ヘテロアリーレン、または置換もしくは非置換の(C6～C21)アリーレンを表し、 X_1 は、 $-NR_1-$ 、 $-CR_2R_3-$ 、 $-O-$ 、または $-S-$ を表し、 $X_2 \sim X_6$ のすべてが $-CR_4-$ を表すか、または、 $X_2 \sim X_6$ のうちの1つが $-N-$ を表し、 $X_2 \sim X_6$ の残りが $-CR_4-$ を表し、 X_2 が $-N-$ であるとき、 L_1 は単結合であり、 Ar_1 は、水素または置換もしくは非置換の(C6～C21)アリールを表し、 Ar_1 が水素であるとき、 R_4 のうちの少なくとも1つは、置換もしくは非置換の(C6～C21)アリールまたは置換もしくは非置換の(5～21員)ヘテロアリールであり、 $Y_1 \sim Y_4$ 及び $Y_{13} \sim Y_{16}$ は、それぞれ独立して、 $-CR_5-$ を表し、 $Y_5 \sim Y_{12}$ は、それぞれ独立して、

30

【0048】

【化8】



40

【0049】

または $-CR_6-$ を表し、 $R_1 \sim R_3$ は、それぞれ独立して、置換もしくは非置換の(C1～C20)アルキル、置換もしくは非置換の(C6～C21)アリール、置換もしくは非置換の(5～21員)ヘテロアリール、置換もしくは非置換の(C5～C21)シクロアルキル、または置換もしくは非置換の(5～7員)ヘテロシクロアルキルを表し、 $R_4 \sim R_6$ は、それぞれ独立して、水素、ハロゲン、シアノ、置換もしくは非置換の(C1～C20)アルキル、置換もしくは非置換の(C5～C21)シクロアルキル、置換もし

50

くは非置換の（C 6～C 2 1）アリール、置換もしくは非置換の（5～2 1員）ヘテロアリール、または置換もしくは非置換のジ（C 6～C 2 1）アリールアミノを表すか、あるいは、隣接する置換基（複数可）と縮合して、窒素、酸素、及び硫黄から選択される1個または2個のヘテロ原子（複数可）で炭素原子（複数可）が置換され得る、置換もしくは非置換の（5～2 1員）、単環式もしくは多環式の芳香族環を形成してもよく、ヘテロアリール（エン）及びヘテロシクロアルキルは、それぞれ独立して、N、O、及びSから選択される少なくとも1個のヘテロ原子を含有し、a及びbは、それぞれ独立して、0または1を表す。

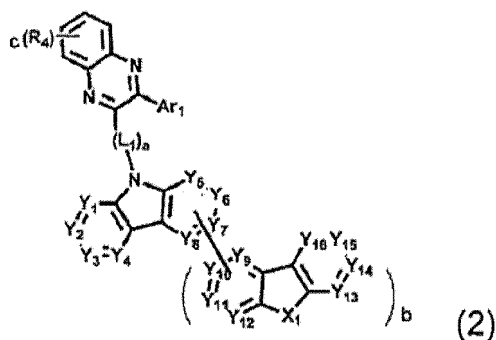
【0050】

本開示の別の実施形態によると、式1の化合物は、以下の式2により表され得、

10

【0051】

【化9】



20

【0052】

式中、 X_1 、 Ar_1 、 $Y_1 \sim Y_{16}$ 、 R_4 、 L_1 、a、及びbは、上記の式1に定義されたとおりであり、cは、1～4の整数を表し、cが2以上であるとき、 R_4 のそれぞれは同じかまたは異なってもよい。好ましくは、式2中、 L_1 は、単結合を表し、 Ar_1 は、置換もしくは非置換の（C 6～C 2 1）アリール、または置換もしくは非置換の（5～2 1員）ヘテロアリールを表し、 R_4 は、水素を表す。

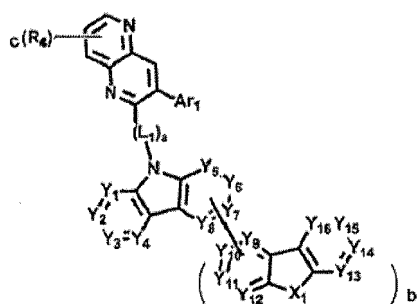
【0053】

本開示の別の実施形態によると、式1の化合物は、以下の式3～5のうちのいずれか1つにより表され得、

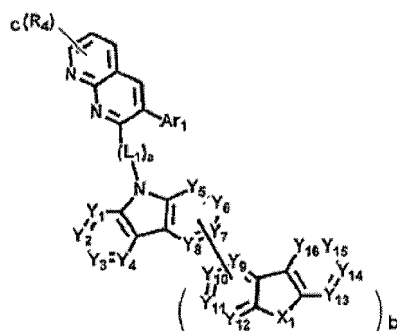
30

【0054】

【化 10】

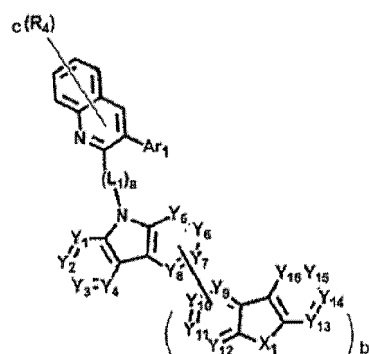


(3)



(4)

10



(5)

20

【0055】

式中、 X_1 、 Ar_1 、 $Y_1 \sim Y_{16}$ 、 L_1 、 R_4 、 a 、及び b は、式1に定義されたとおりであり、 c は、1～5の整数を表し、 c が2以上であるとき、 R_4 のそれぞれは同じかまたは異なってもよい。式3～5中、好ましくは、 Ar_1 が水素であるとき、 R_4 のうちの少なくとも1つは、置換もしくは非置換の(C6～C21)アリール、または置換もしくは非置換の(5～21員)ヘテロアリールを表す。より好ましくは、 Ar_1 は、水素を表し、 R_4 のうちの1つが、置換もしくは非置換の(C6～C18)アリールを表し、 R_4 の残りが、水素を表す。

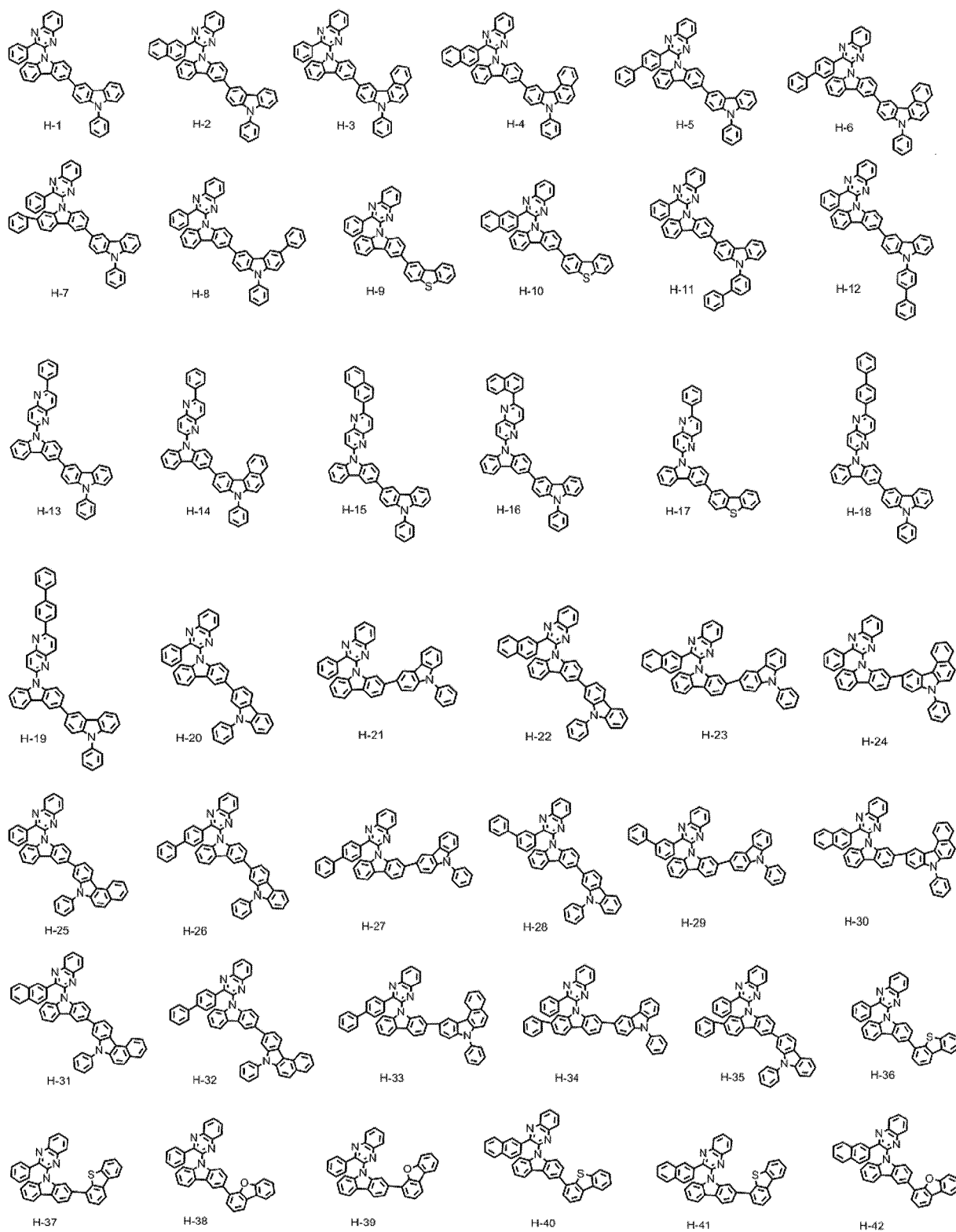
30

【0056】

より具体的には、本開示の有機電界発光化合物は、以下を含むが、これらに限定されない。

【0057】

【化 1 1 - 1】



10

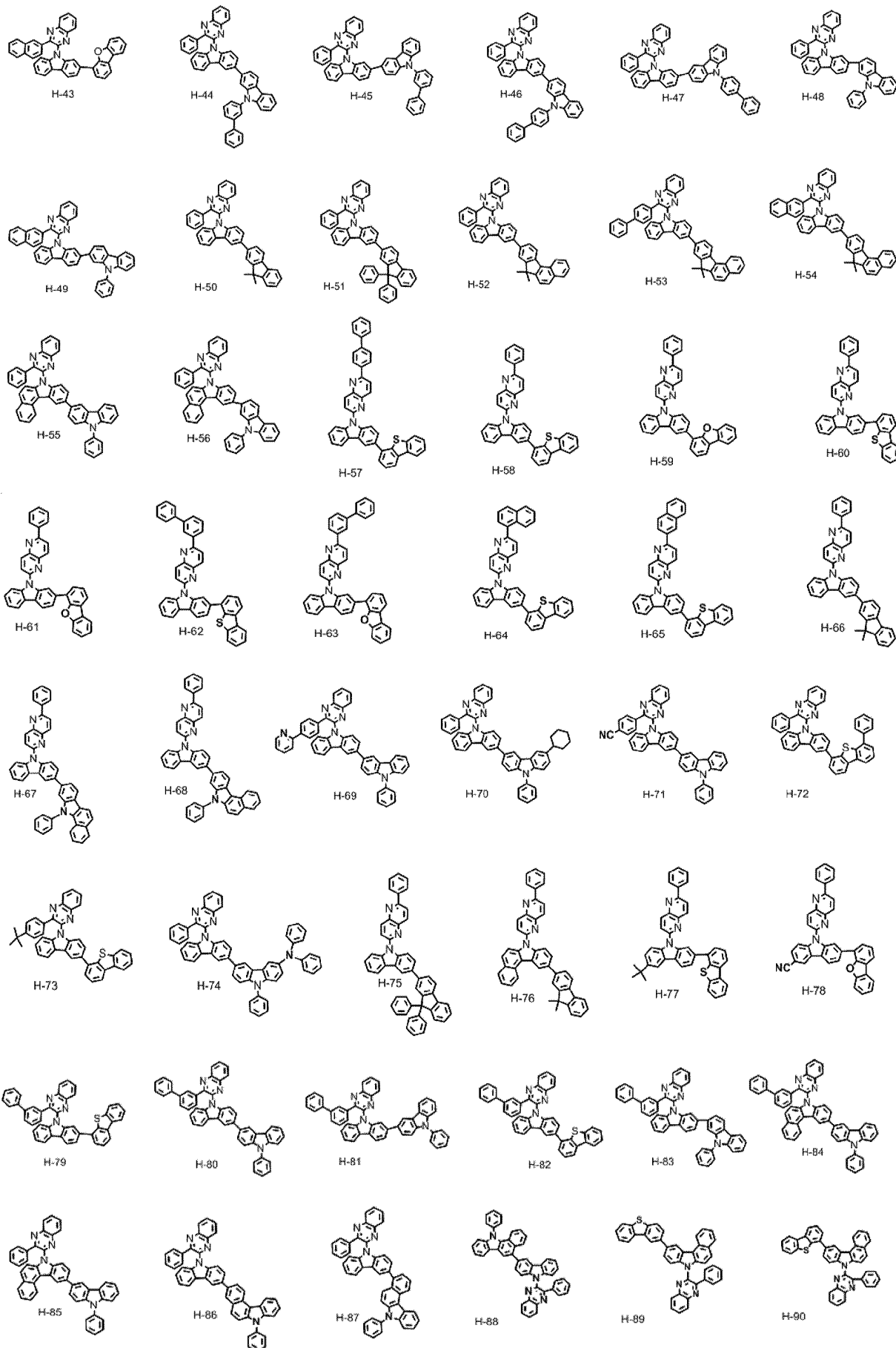
20

30

40

【0058】

【化 1 1 - 2】



10

20

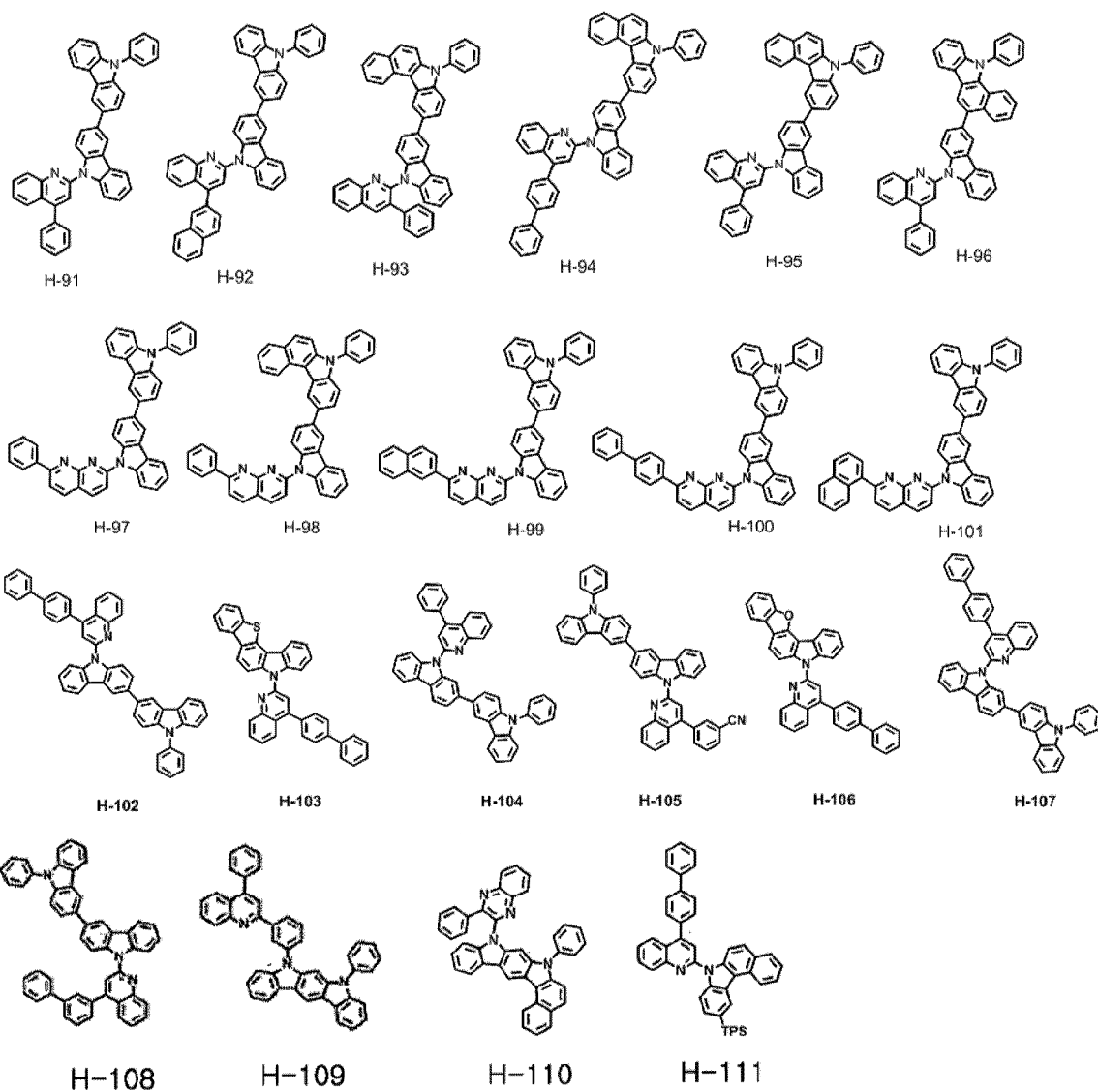
30

40

【0059】

50

【化 1 1 - 3】



10

20

30

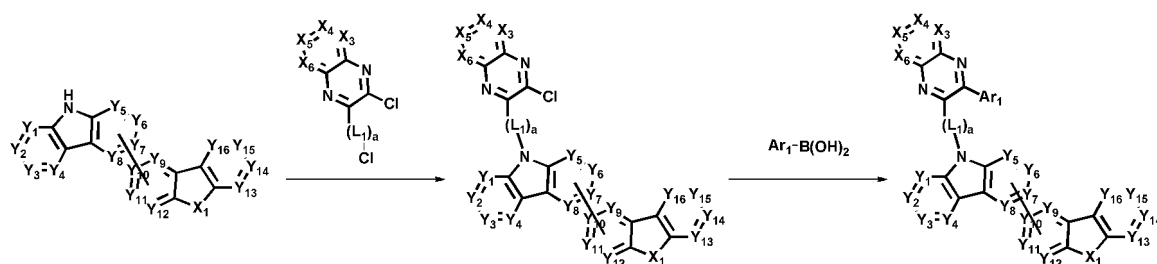
【0060】

本開示の式1の有機電界発光化合物は、当業者に既知の合成方法によって調製され得る。例えば、それは、以下の反応スキーム1～4のうちのいずれか1つに従って調製され得る。

【0061】

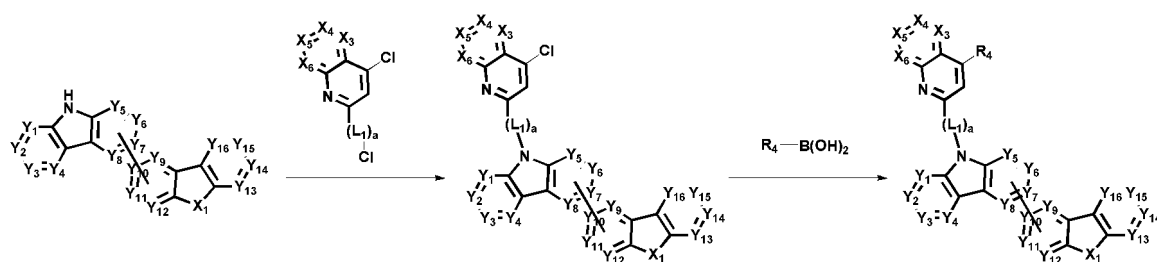
【化 1 2】

[反応スキーム 1]



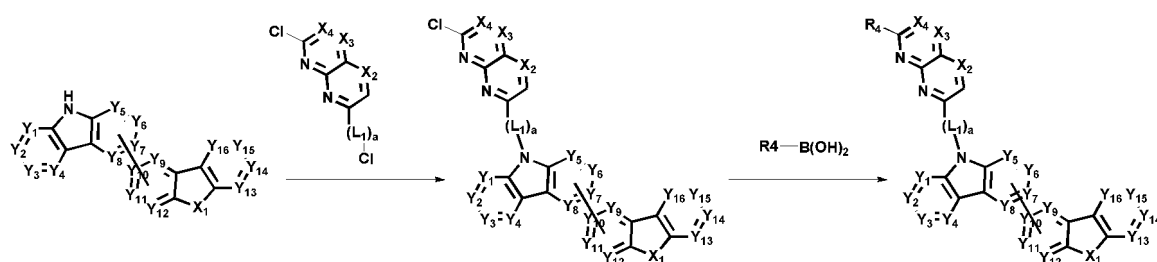
10

[反応スキーム 2]

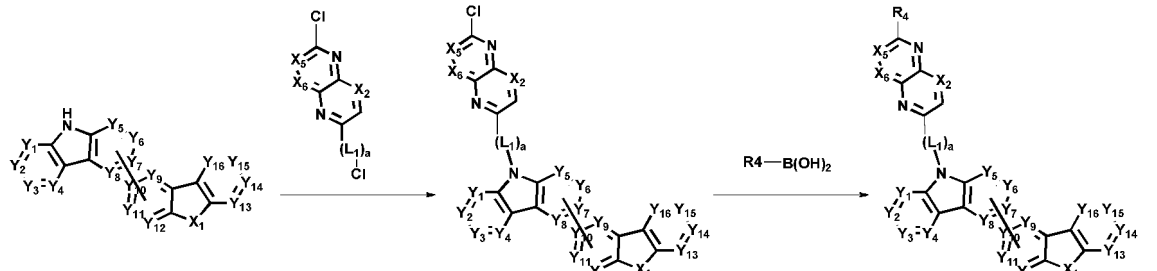


20

[反応スキーム 3]



[反応スキーム 4]



30

【0062】

さらに、本開示は、式 1 の有機電界発光化合物を含む有機電界発光材料、及び該材料を含む有機電界発光デバイスを提供する。

40

【0063】

該材料は、式 1 の有機電界発光化合物から選択される 1 つ以上の化合物を含むことができる。該材料は、有機電界発光材料のために含まれている従来の化合物（複数可）をさらに含むことができる。

【0064】

本開示の有機電界発光デバイスは、第 1 の電極、第 2 の電極、及び第 1 の電極と第 2 の電極との間に配設された少なくとも 1 つの有機層を備えることができ、有機層は、少なくとも 1 つの式 1 の化合物を含むことができる。

【0065】

第 1 及び第 2 の電極の一方は陽極であり得、他方は陰極であり得る。有機層は発光層を

50

含むことができ、正孔注入層、正孔輸送層、電子輸送層、電子注入層、中間層、正孔阻止層、電子緩衝層、及び電子阻止層から選択される、少なくとも1つの層をさらに含むことができる。

【0066】

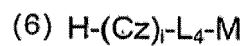
本開示の有機電界発光化合物は、発光層内に含まれてもよい。発光層内で使用されるとき、本開示の有機電界発光化合物は、ホスト材料として含まれ得る。発光層は、少なくとも1つのドーパントをさらに含むことができる。必要な場合、発光層は、本開示の式1の有機電界発光化合物から選択される2つ以上の化合物を含んでもよく、または、本開示の式1の有機電界発光化合物以外の第2のホスト材料をさらに含んでもよい。

【0067】

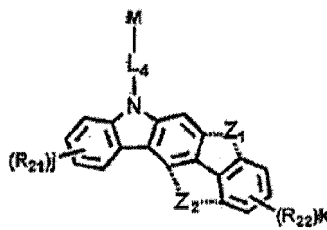
当該技術分野において既知のリン光性ホスト材料が、第2のホスト材料として使用され得る。駆動電圧、寿命、及び発光効率を考慮すると、以下の式6～11の化合物からなる群から選択される化合物が、第2のホスト材料として好ましい。

【0068】

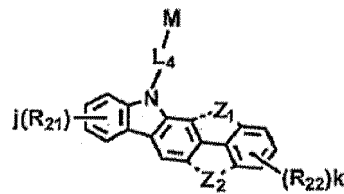
【化13】



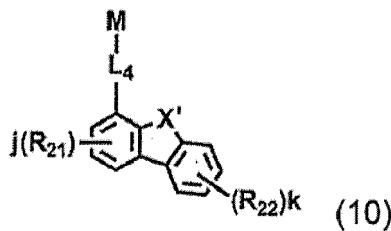
(7)



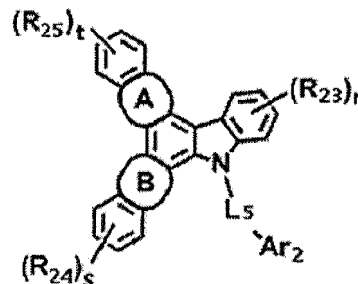
(8)



(9)



(10)



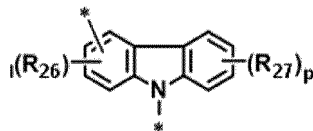
(11)

【0069】

式中、Czは、以下の構造を表し、

【0070】

【化14】



【0071】

L_4 及び L_5 は、それぞれ独立して、単結合、置換もしくは非置換の(C6～C30)アリーレン、または置換もしくは非置換の(5～30員)ヘテロアリーレンを表し、

【0072】

Mは、置換もしくは非置換の(C6～C30)アリアル、または置換もしくは非置換の(5～30員)ヘテロアリアルを表すが、ただし、式6のhが1であるとき、または式7のiが1であるとき、Mは

【0073】

10

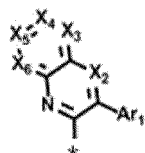
20

30

40

50

【化 1 5】



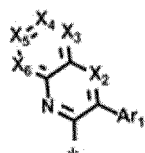
【0 0 7 4】

ではなく、式 8 及び 9 の M は

【0 0 7 5】

【化 1 6】

10



【0 0 7 6】

(式中、 $X_2 \sim X_6$ 及び Ar_1 は、式 1 に定義されたとおりであり、* は結合部位を表す。) ではないことを条件とし、

【0 0 7 7】

Z_1 及び Z_2 は、それぞれ独立して、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-N(R_{31})-$ 、または $-C(R_{32})(R_{33})-$ を表すが、ただし、 Z_1 及び Z_2 が同時に存在しないことを条件とし、

20

【0 0 7 8】

 X' は、 $-O-$ または $-S-$ を表し、

【0 0 7 9】

環 A は、

【0 0 8 0】

【化 1 7】



30

【0 0 8 1】

を表し、環 B は、

【0 0 8 2】

【化 1 8】



40

【0 0 8 3】

を表し、

【0 0 8 4】

D 及び E は、それぞれ独立して、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-N(R_{34})-$ 、または $-C(R_{35})(R_{36})-$ を表し、

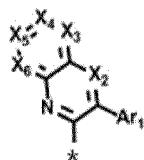
【0 0 8 5】

 Ar_2 は、置換もしくは非置換の (3 ~ 30 員) ヘテロアリール、またはサブ

【0 0 8 6】

50

【化 19】



【0087】

(式中、 $X_2 \sim X_6$ 及び Ar_1 は、式 1 に定義されたとおりであり、* は結合部位を表す。) ではないことを条件とし、

【0088】

$R_{21} \sim R_{27}$ は、それぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、シアノ、置換もしくは非置換の (C1～C30) アルキル、置換もしくは非置換の (C3～C30) シクロアルキル、置換もしくは非置換の (C6～C30) アリール、置換もしくは非置換の (5～30 員) ヘテロアリール、または $R_{28} R_{29} R_{30} Si$ を表すか、あるいは、隣接する置換基 (複数可) と縮合して、窒素、酸素、及び硫黄から選択される少なくとも 1 個のヘテロ原子で炭素原子 (複数可) が置換され得る、置換もしくは非置換の (C3～C30)、単環式もしくは多環式の、脂環式環または芳香族環を形成してもよいが、ただし、式 6 の h または式 7 の i が 1 であるとき、 R_{26} または R_{27} は、式 8、9、及び 11 の Z_1 、 Z_2 、 D 、または E を含有する環を形成せず、式 10 の R_{22} は、式 8 及び 9 の R_{21} に結合したインドール環ならびに式 11 の R_{23} に結合したインドール環を形成しないことを条件とし、

【0089】

$R_{28} \sim R_{30}$ は、それぞれ独立して、置換もしくは非置換の (C1～C30) アルキル、または置換もしくは非置換の (C6～C30) アリールを表し、

【0090】

$R_{31} \sim R_{36}$ は、それぞれ独立して、水素、置換もしくは非置換の (C1～C30) アルキル、置換もしくは非置換の (C6～C30) アリール、または置換もしくは非置換の (5～30 員) ヘテロアリールを表し、 R_{32} 及び R_{33} は、同じかまたは異なってもよく、 R_{35} 及び R_{36} は、同じかまたは異なってもよく、

【0091】

ヘテロアリール (エン) は、 B 、 N 、 O 、 S 、 $P (=O)$ 、 Si 、及び P から選択される 1 個以上のヘテロ原子を含有し、

【0092】

h 及び i は、それぞれ独立して、1～3 の整数を表し、 j 、 k 、 l 、及び p は、それぞれ独立して、0～4 の整数を表し、 r 、 s 、及び t は、それぞれ独立して、1～4 の整数を表し、 h 、 i 、 j 、 k 、 l 、 p 、 r 、 s 、または t が 2 以上の整数であるとき、(C z —L $_4$) のそれぞれ、(C z) のそれぞれ、 R_{21} のそれぞれ、 R_{22} のそれぞれ、 R_{23} のそれぞれ、 R_{24} のそれぞれ、 R_{25} のそれぞれ、 R_{26} のそれぞれ、または R_{27} のそれぞれは、同じかまたは異なってもよい。

【0093】

好ましくは、式 6～10 中、 M は、置換もしくは非置換の窒素含有 (6～20 員) ヘテロアリールを表し得る。好ましくは、 M の置換基は、(C1～C20) アルキル、非置換または (C1～C10) アルキル、トリ (C6～C13) アリールシリル、もしくは (6～13 員) ヘテロアリールで置換された (C6～C24) アリール、非置換または (C1～C10) アルキル、トリ (C6～C13) アリールシリル、もしくは (C6～C24) アリールで置換された (6～20 員) ヘテロアリール、あるいはトリ (C6～C20) アリールシリルであり得る。具体的には、 M は、置換もしくは非置換のピリジル、置換もしくは非置換のピリミジニル、置換もしくは非置換のトリアジニル、置換もしくは非置換のピラジニル、置換もしくは非置換のキナゾリニル、または置換もしくは非置換のフェナントロリニルを表し得る。

【0094】

式6ならびに7の R_{26} 及び R_{27} のうちの少なくとも1つ、または式8～10の R_{21} 及び R_{22} のうちの少なくとも1つは、置換もしくは非置換のカルbazリル、置換もしくは非置換のベンゾカルbazリル、置換もしくは非置換のジベンゾチオフェニル、置換もしくは非置換のナフトベンゾチオフェニル、置換もしくは非置換のジベンゾフラニル、置換もしくは非置換のナフトベンゾフラニル、置換もしくは非置換のカルbazリルで置換された(C6～C18)アリール、置換もしくは非置換のベンゾカルbazリルで置換された(C6～C18)アリール、置換もしくは非置換のジベンゾチオフェニルで置換された(C6～C18)アリール、置換もしくは非置換のナフトベンゾチオフェニルで置換された(C6～C18)アリール、置換もしくは非置換のジベンゾフラニルで置換された(C6～C18)アリール、または置換もしくは非置換のナフトベンゾフラニルで置換された(C6～C18)アリールであり得る。Mがアリールであるとき、 R_{26} 及び R_{27} のうちの少なくとも1つ、または R_{21} 及び R_{22} のうちの少なくとも1つは、置換もしくは非置換の窒素含有(6～20員)ヘテロアリールを表してもよく、あるいは、置換基として、置換もしくは非置換の窒素含有(6～20員)ヘテロアリールを有してもよい。具体的には、置換もしくは非置換の窒素含有ヘテロアリールは、置換もしくは非置換のピリジル、置換もしくは非置換のピリミジニル、置換もしくは非置換のトリアジニル、置換もしくは非置換のピラジニル、置換もしくは非置換のキナゾリニル、または置換もしくは非置換のフェナントロリニルを表し得る。

10

【0095】

D及びEは、それぞれ独立して、好ましくは-O-、-S-、及び-N(R_{34})-から選択され得るが、ただし、X及びYの両方が同時に-N(R_{34})-でないことを条件とする。本開示の一実施形態によると、X及びYは、それぞれ独立して、-O-及び-S-から選択され得る。本開示の別の実施形態によると、X及びYは、それぞれ独立して、-O-及び-S-から選択され得、X及びYのうちの少なくとも1つは-S-であり得る。 R_{34} は、好ましくは、置換もしくは非置換の(C6～C30)アリール、具体的には、置換もしくは非置換のフェニル、置換もしくは非置換のナフチル、または置換もしくは非置換のビフェニルを表し得る。

20

【0096】

Ar_2 は、好ましくは、置換もしくは非置換の(6～20員)ヘテロアリール、または置換もしくは非置換の(C6～C20)アリール、より好ましくは置換もしくは非置換の窒素含有(6～20員)ヘテロアリールを表し得る。具体的には、 Ar_2 は、置換もしくは非置換のトリアジニル、置換もしくは非置換のピリミジニル、置換もしくは非置換のピリジル、置換もしくは非置換のピラジニル、置換もしくは非置換のキナゾリニル、または置換もしくは非置換のフェナントロリニルを表し得る。

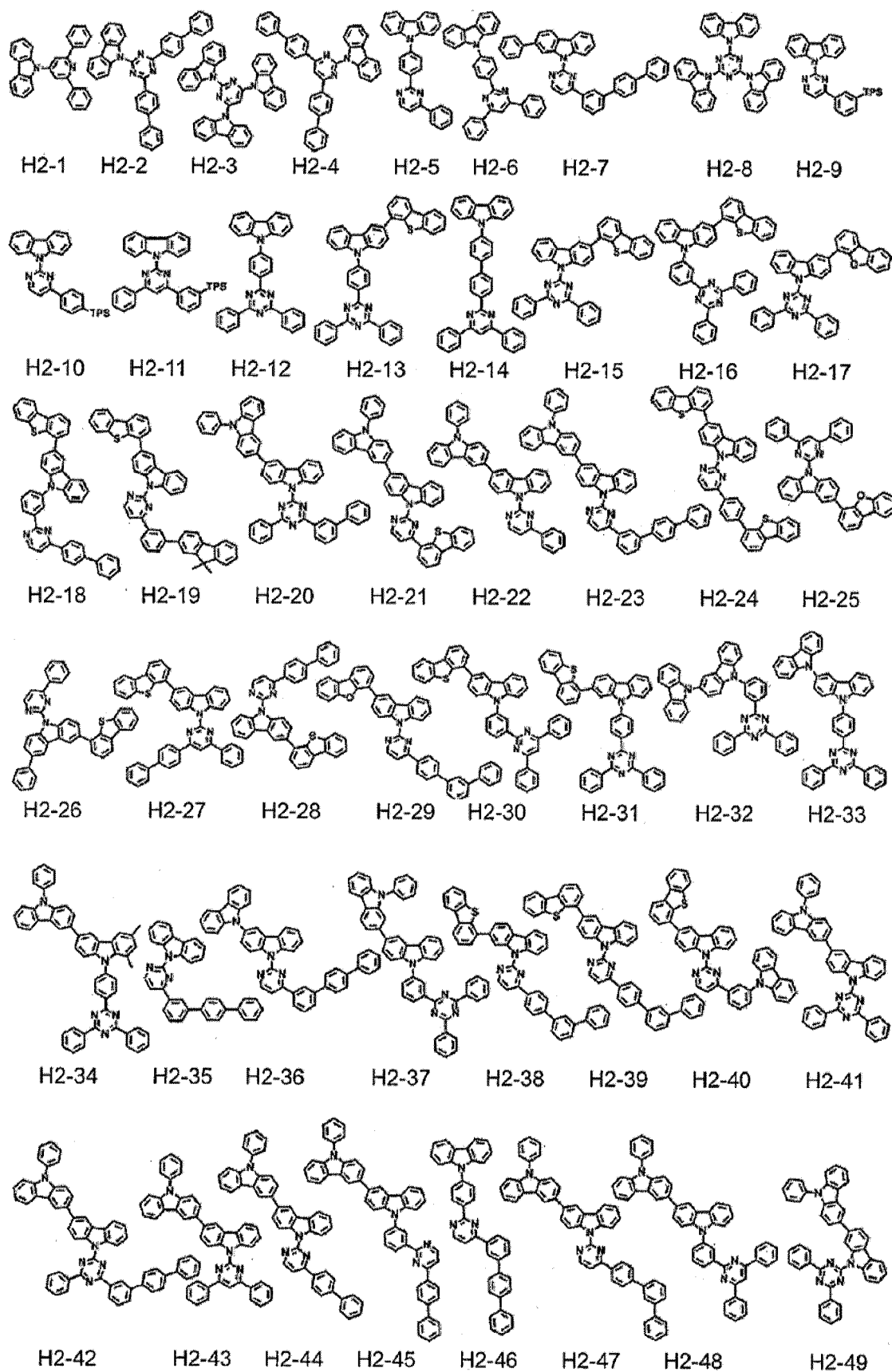
30

【0097】

具体的には、第2のホスト材料の好ましい例は、以下を含むが、これらに限定されない。

【0098】

【化 20 - 1】



10

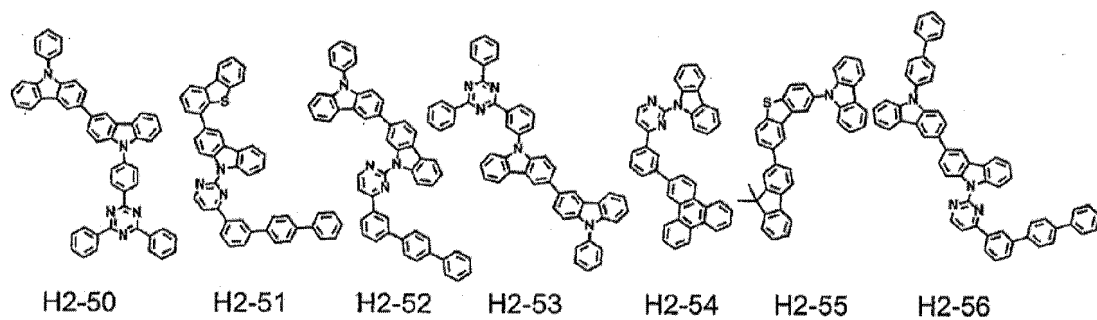
20

30

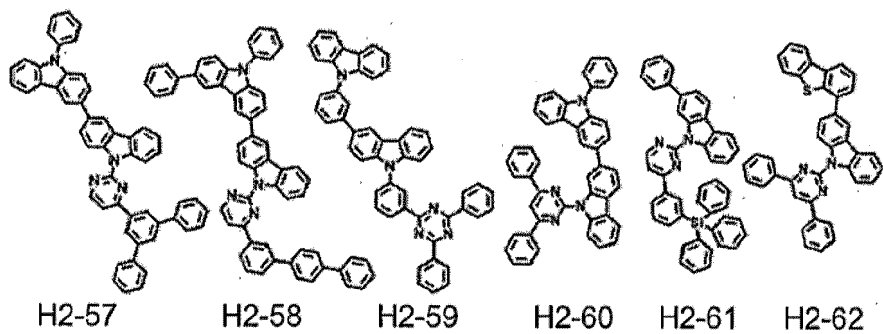
40

【0099】

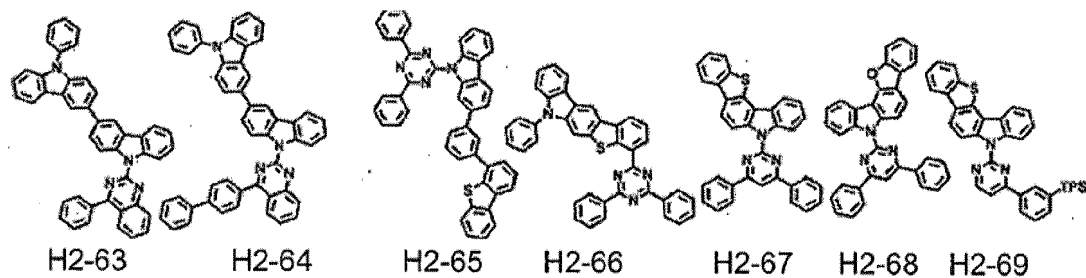
【化 20 - 2】



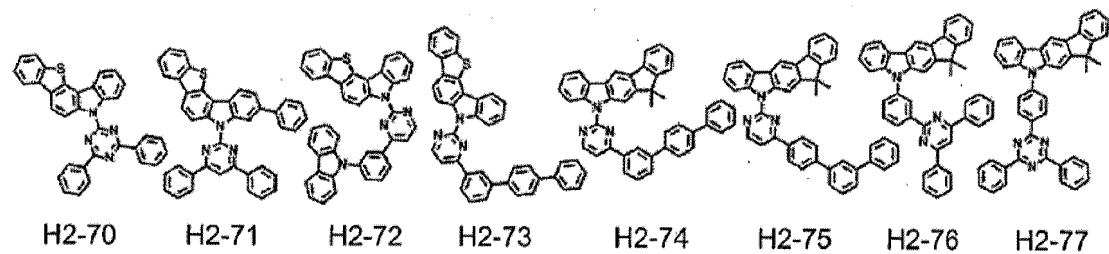
10



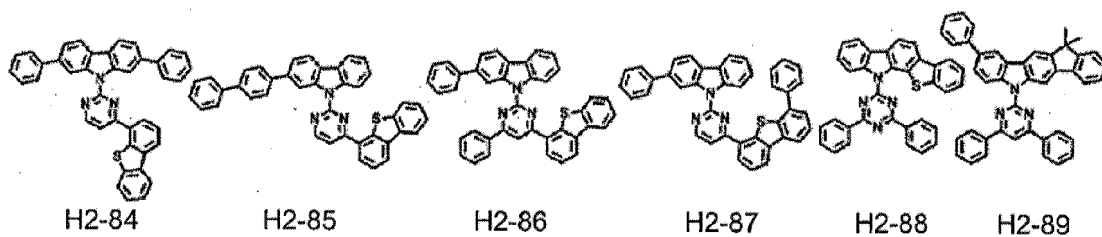
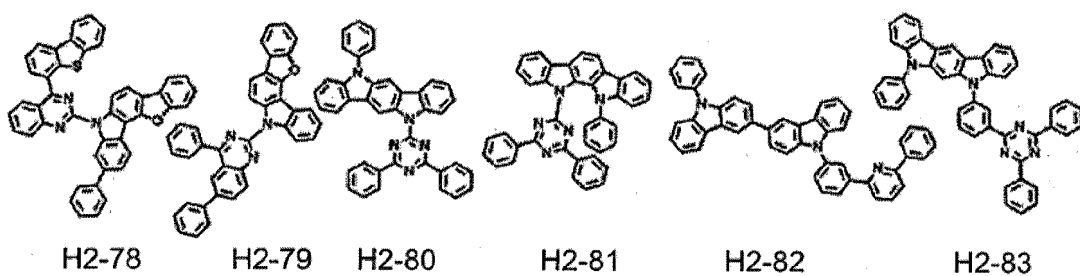
20



30

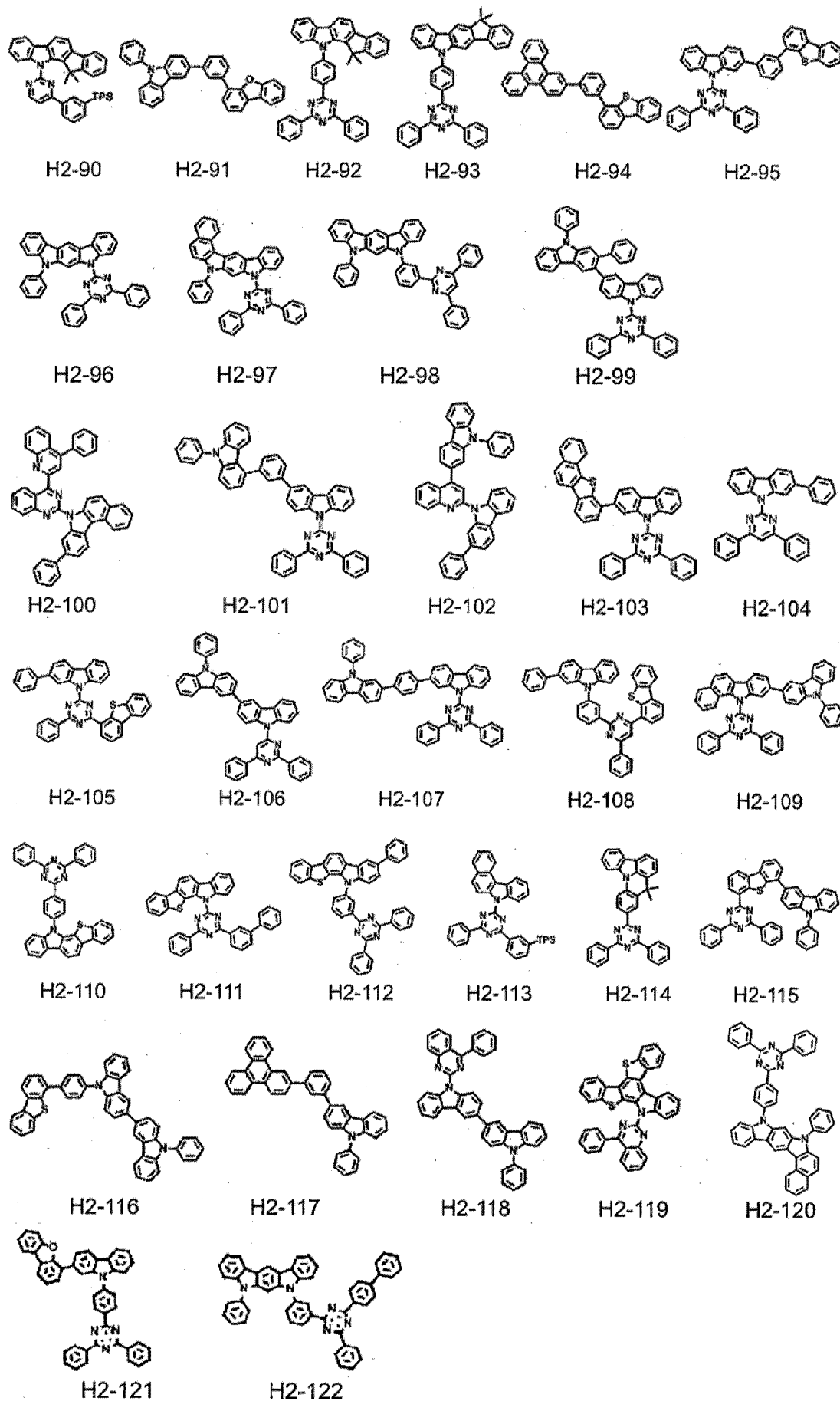


40



【0100】

【化 20 - 3】



10

20

30

40

【0101】

50

[式中、TPSは、トリフェニルシリルを表す。]

【0102】

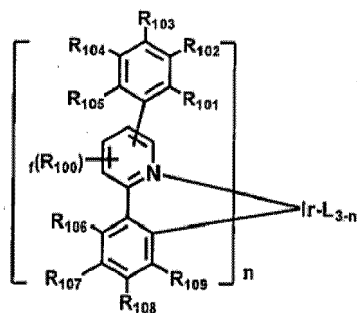
ドーパントは、好ましくは少なくとも1つのリン光性ドーパントである。本開示の有機電界発光デバイスのためのリン光性ドーパント材料は、限定されないが、好ましくは、イリジウム(Ir)、オスミウム(Os)、銅(Cu)、または白金(Pt)のメタル化錯体化合物から選択され得、より好ましくは、イリジウム(Ir)、オスミウム(Os)、銅(Cu)、または白金(Pt)のオルトメタル化錯体化合物、さらにより好ましくはオルトメタル化イリジウム錯体化合物から選択され得る。

【0103】

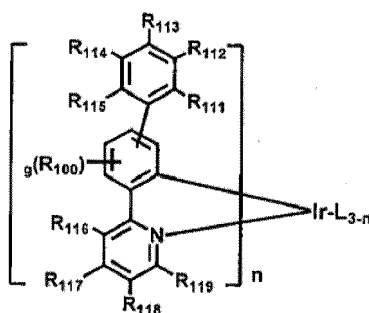
本開示の有機電界発光デバイス内に含まれるドーパントは、以下の式12～14により表される化合物からなる群から選択され得る。

【0104】

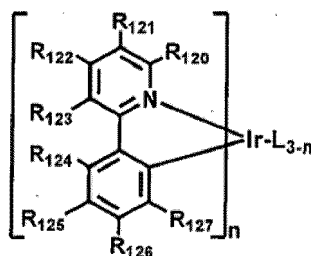
【化21】



(12)



(13)



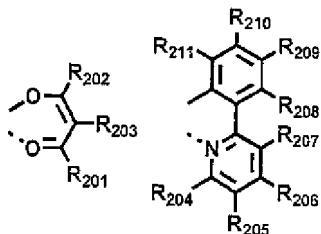
(14)

【0105】

式中、Lは、以下の構造から選択され、

【0106】

【化22】



【0107】

R₁₀₀は、水素、置換もしくは非置換の(C₁～C₃₀)アルキル、または置換もしくは非置換の(C₃～C₃₀)シクロアルキルを表し、R₁₀₁～R₁₀₉、及びR₁₁₁～R₁₂₃は、それぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、非置換もしくはハロゲンで置換された(C₁～C₃₀)アルキル、置換もしくは非置換の(C₃～C₃₀)シクロアルキル、シアノ、置換もしくは非置換の(C₆～C₃₀)アリール、または置換もしくは非置換の(C₁～C₃₀)アルコキシを表し、R₁₀₆～R₁₀₉は、隣接する置換基(複数可)と連結して、置換もしくは非置換の縮合環、例えば、置換もしくは非置換のフ

10

20

30

40

50

ルオレン、置換もしくは非置換のジベンゾチオフェン、または置換もしくは非置換のジベンゾフランを形成してもよく、 $R_{120} \sim R_{123}$ は、隣接する置換基（複数可）と連結して、置換もしくは非置換の縮合環、例えば、置換もしくは非置換のキノリンを形成してもよく、 $R_{124} \sim R_{127}$ 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の（C1～C30）アルキル、または置換もしくは非置換の（C6～C30）アリールを表し、 $R_{124} \sim R_{127}$ のうちのいずれか1つがアリールであるとき、それは、隣接する置換基（複数可）と連結して、置換もしくは非置換の縮合環、例えば、置換もしくは非置換のフルオレン、置換もしくは非置換のジベンゾチオフェン、または置換もしくは非置換のジベンゾフランを形成してもよく、 $R_{201} \sim R_{211}$ は、それぞれ独立して、水素、重水素、ハロゲン、非置換もしくはハロゲンで置換された（C1～C30）アルキル、置換もしくは非置換の（C3～C30）シクロアルキル、または置換もしくは非置換の（C6～C30）アリールを表し、 $R_{208} \sim R_{211}$ は、隣接する置換基（複数可）と連結して、置換もしくは非置換の縮合環、例えば、置換もしくは非置換のフルオレン、置換もしくは非置換のジベンゾチオフェン、または置換もしくは非置換のジベンゾフランを形成してもよく、 f 及び g は、それぞれ独立して、1～3の整数を表し、 f または g が2以上の整数であるとき、 R_{100} のそれぞれは同じかまたは異なってもよく、 n は、1～3の整数を表す。

10

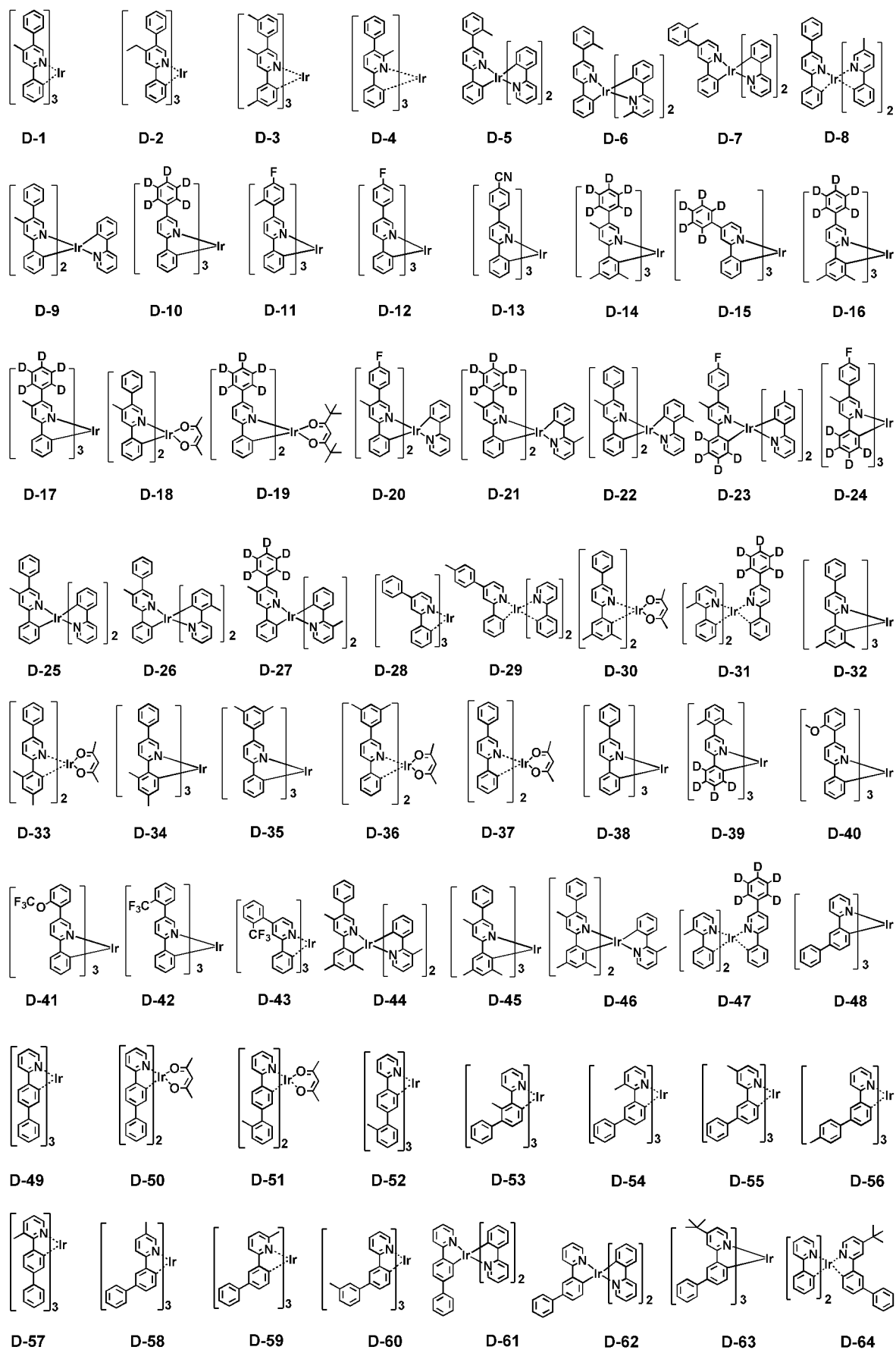
【0108】

具体的には、ドーパント材料は、以下を含む。

【0109】

20

【化 2 3 - 1】



10

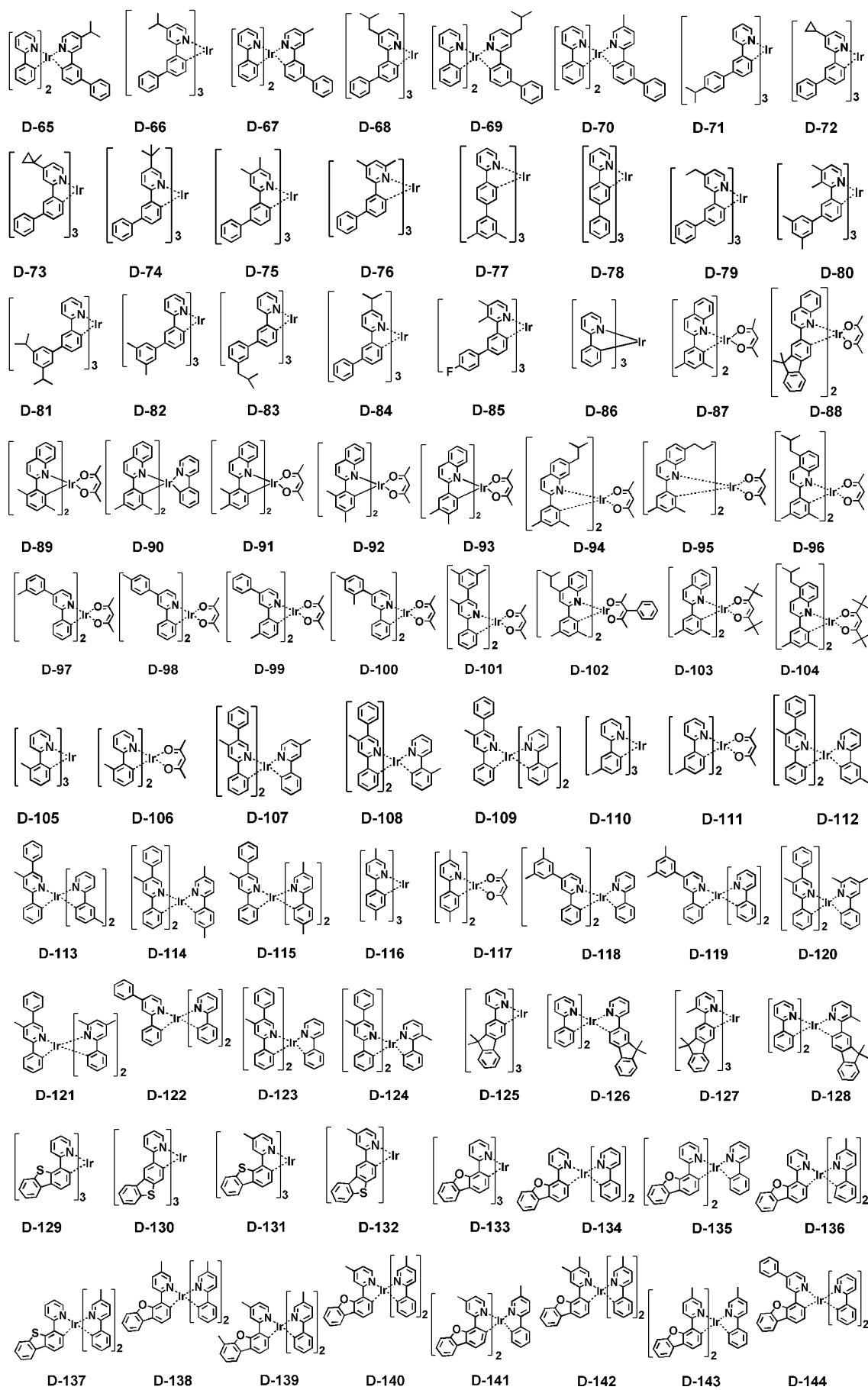
20

30

40

【 0 1 1 0 】

【化 2 3 - 2】



10

20

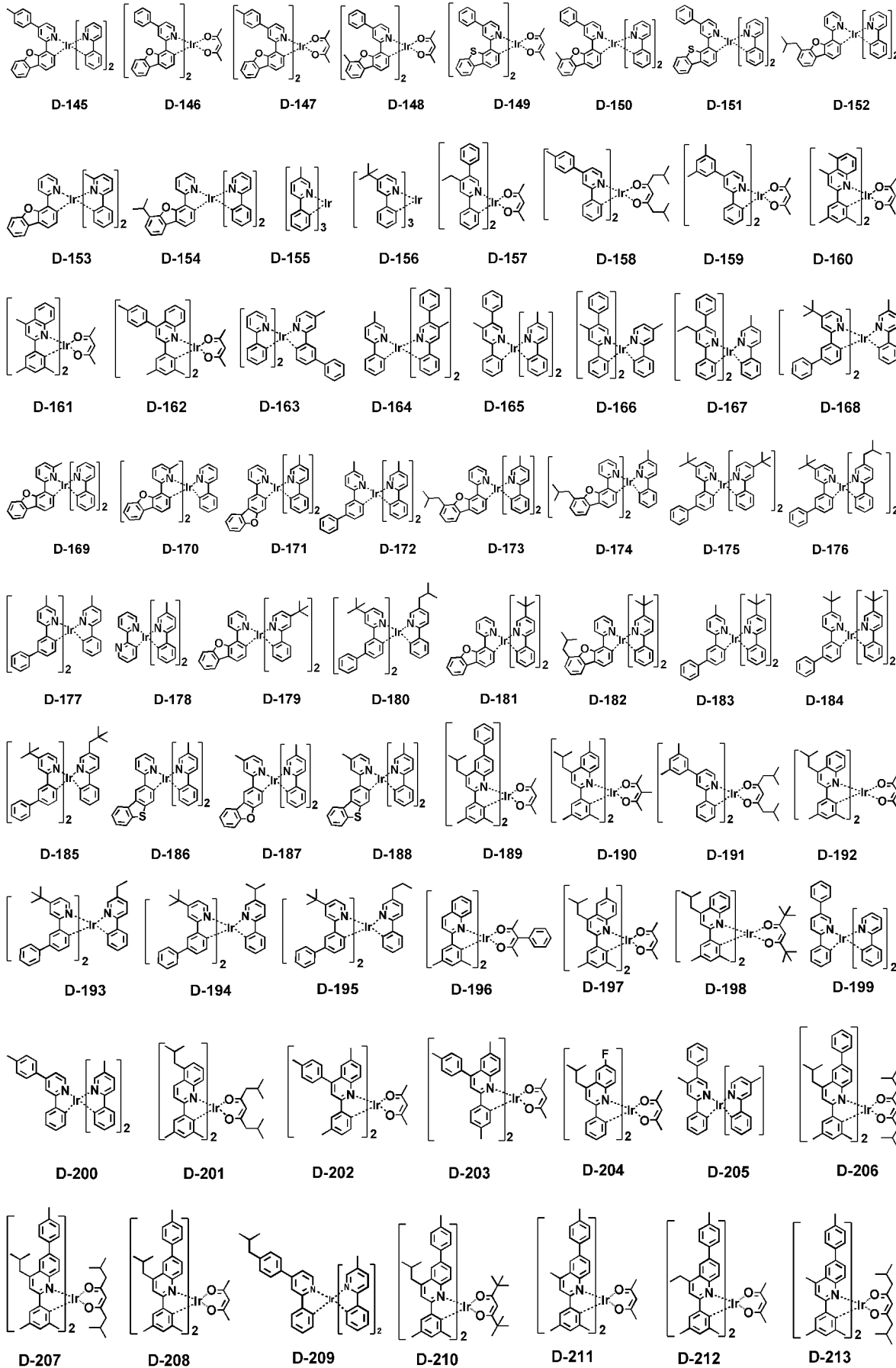
30

40

【 0 1 1 1 】

50

【化 2 3 - 3】



【 0 1 1 2】

本開示の別の態様によると、有機電界発光デバイスを調製するための材料が提供される

10

20

30

40

50

。該材料は、有機電界発光デバイスの発光層または電子輸送層を調製するための材料であり得る。有機電界発光デバイスの発光層を調製するための材料内に本開示の化合物が含まれるとき、本開示の化合物は、ホスト材料として含まれ得る。本開示の化合物がホスト材料として含まれるとき、該材料は、本開示の式 1 の有機電界発光化合物から選択される 2 つ以上の化合物を含んでもよく、または、本開示の式 1 の有機電界発光化合物（第 1 のホスト材料）に加えて、第 2 のホスト材料、例えば、式 6 ～ 11 により表される化合物から選択される材料を含んでもよい。第 1 のホスト材料と第 2 のホスト材料との重量比は、1 : 99 ～ 99 : 1 の範囲内、駆動電圧、寿命、及び発光効率を考慮すると、好ましくは 30 : 70 ～ 70 : 30 の範囲内である。有機電界発光デバイスの電子輸送層を調製するための材料内に本開示の化合物が含まれるとき、本開示の化合物は、電子輸送材料として含まれ得る。該材料は、組成物または混合物であり得る。該材料は、有機電界発光材料のために含まれている従来の化合物（複数可）をさらに含むことができる。

10

【0113】

本開示の別の態様によると、第 1 の電極、第 2 の電極、及び第 1 の電極と第 2 の電極との間に配設された少なくとも 1 つの有機層を備える有機電界発光デバイスであって、有機層は、有機電界発光デバイスを調製するための本開示の材料を含む、有機電界発光デバイスが提供される。

【0114】

本開示の別の態様によると、陽極、陰極、及び陽極と陰極との間に配設された有機層を備える有機電界発光デバイスであって、有機層は、1 つ以上の発光層を含み、少なくとも 1 つの発光層は、1 つ以上のドーパント化合物及び 2 つ以上のホスト化合物を含み、2 つ以上のホスト化合物のうちの少なくとも 1 つは、式 1 により表される、有機電界発光デバイスが提供される。

20

【0115】

本開示の一実施形態によると、有機電界発光デバイスにおいて、2 つ以上のホスト化合物の第 1 のホスト化合物は、式 2 及び 5 により表される化合物から選択され得る。

【0116】

本開示の別の実施形態によると、有機電界発光デバイスにおいて、2 つ以上のホスト化合物のうちの少なくとも 2 つは、それぞれ独立して、式 1 により表される化合物から選択され得る。

30

【0117】

本開示の別の実施形態によると、有機電界発光デバイスにおいて、2 つ以上のホスト化合物の第 1 のホスト化合物は、式 1 により表され得、第 2 のホスト化合物は、式 6 ～ 11 により表される化合物から選択され得る。

【0118】

本開示の別の実施形態によると、有機電界発光デバイスにおいて、1 つ以上のドーパント化合物は、式 12 ～ 14 により表される化合物から選択され得る。

【0119】

本開示の有機電界発光デバイスは、有機層内に式 1 の化合物を含む。本開示の有機電界発光デバイスは、アリールアミン系化合物及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むことができる。

40

【0120】

本開示の有機電界発光デバイスにおいて、有機層は、式 1 の化合物に加えて、周期表の第 1 族の金属、第 2 族の金属、第 4 周期の遷移金属、第 5 周期の遷移金属、ランタノイド及び d 遷移元素の有機金属、または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むことができる。

【0121】

さらに、本開示の有機電界発光デバイスは、本開示の化合物の他に、当該技術分野において既知の青色電界発光化合物、赤色電界発光化合物、または緑色電界発光化合物を含む、少なくとも 1 つの発光層をさらに含むことによって、白色光を発することができる。必

50

要な場合、それは、橙色発光層または黄色発光層をさらに含んでもよい。

【0122】

本開示の有機電界発光デバイスにおいて、好ましくは、少なくとも1つの層（以降、「表面層」）が、カルコゲニド層、金属ハロゲン化物層、及び金属酸化物層から選択される、一方または両方の電極（複数可）の内面（複数可）上に配置され得る。具体的には、シリコンまたはアルミニウムのカルコゲニド（酸化物を含む）層が、好ましくは電界発光媒質層の陽極表面上に配置され、金属ハロゲン化物層または金属酸化物層が、好ましくは電界発光媒質層の陰極表面上に配置される。このような表面層は、有機電界発光デバイスの操作安定性をもたらす。好ましくは、カルコゲニドは、 SiO_X ($1 \leq X \leq 2$)、 AlO_X ($1 \leq X \leq 1.5$)、 SiON 、 SiAlON などを含み、金属ハロゲン化物は、 LiF 、 MgF_2 、 CaF_2 、希土類金属フッ化物などを含み、金属酸化物は、 Cs_2O 、 Li_2O 、 MgO 、 SrO 、 BaO 、 CaO などを含む。

10

【0123】

本開示の有機電界発光デバイスにおいて、電子輸送化合物と還元的ドーパントとの混合領域、または正孔輸送化合物と酸化的ドーパントとの混合領域が、一对の電極の少なくとも1つの表面上に配置され得る。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、電子を注入して混合領域から電界発光媒質へと輸送することがより容易になる。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、正孔を注入して混合領域から電界発光媒質へと輸送することがより容易になる。好ましくは、酸化的ドーパントは、様々なルイス酸及び受容体化合物を含み、還元的ドーパントは、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、及びこれらの混合物を含む。2つ以上の発光層を有し、かつ白色光を発する電界発光デバイスを調製するために、還元的ドーパント層を電荷生成層として用いることができる。

20

【0124】

本開示の有機電界発光デバイスの各層を形成するために、真空蒸発法、スパッタリング法、プラズマ法、及びイオンめっき法などの乾式フィルム形成法、またはインクジェット印刷法、ノズル印刷法、スロットコーティング法、スピニング法、ディップコーティング法、及びフローコーティング法などの湿式フィルム形成法が使用され得る。

【0125】

湿式フィルム形成法を使用する際、例えばエタノール、クロロホルム、テトラヒドロフラン、ジオキサンなどの任意の好適な溶媒中に、各層を形成する材料を溶解または拡散させることによって、薄いフィルムが形成され得る。溶媒は、各層を形成する材料が溶解または拡散され得、かつフィルム形成能力に問題のない任意の溶媒であってもよい。

30

【0126】

本開示の有機電界発光デバイスにおいて、発光層のための2つ以上のホスト化合物は、同時蒸発または混合蒸発され得る。本明細書において、同時蒸発は、2つ以上の材料の各々をそれぞれの坩堝セル内に導入し、かつ蒸発させる材料の各々のセルに電流を印加することによって、2つ以上の材料が混合物として堆積する過程を示す。本明細書において、混合蒸発は、堆積前に2つ以上の材料を1つの坩堝セル内で混合し、かつ蒸発させる混合物のセルに電流を印加することによって、2つ以上の材料が混合物として堆積する過程を示す。

40

【0127】

本開示の有機電界発光デバイスを使用することにより、ディスプレイシステムまたは照明システムを生産することができる。

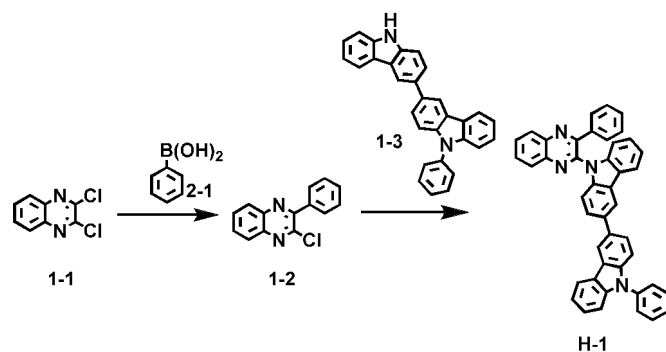
【0128】

以降、以下の実施例を参照して、本開示の有機電界発光化合物、本化合物の調製方法、及び本デバイスの発光特性を詳細に説明する。

【実施例】

【0129】

【化 2 4】



10

【0130】

化合物 1-2 の調製

【0131】

化合物 1-1 (20 g、100.5 ミリモル)、化合物 2-1 (19 g、150 ミリモル)、パラジウム(0)テトラキス(トリフェニルホスフィン) $[Pd(PPh_3)_4]$ (5.7 g、5.0 ミリモル)、及び Na_2CO_3 (31 g、300 ミリモル)を、トルエン(500 mL)、エタノール(250 mL)、及び精製水 250 mL に添加した後、混合物を 120 °C で 15 時間撹拌した。反応完了後、混合物を静置させて水層を除去し、次いで有機層を濃縮した。カラムクロマトグラフィにより混合物を精製して、化合物 1-2 (20 g、83 %)を得た。

20

【0132】

化合物 H-1 の調製

【0133】

ジメチルホルムアミド(DMF)中に、化合物 1-2 (20 g、83 ミリモル)、化合物 1-3 (50 g、99 ミリモル)、及び NaH (4 g、166 ミリモル)を溶解させた後、混合物を 15 時間撹拌した。反応完了後、固形物を濾過し、カラムクロマトグラフィにより精製して、化合物 H-1 (50 g、82 %)を得た。

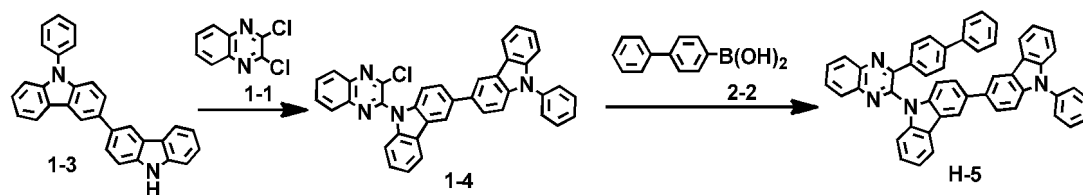
【0134】

[実施例 2]

30

【0135】

【化 2 5】



【0136】

化合物 1-4 の調製

40

【0137】

ジメチルホルムアミド(370 mL)中に化合物 1-3 (30 g、73.44 ミリモル)を溶解させた後、混合物に水素化ナトリウム(4.4 g、110.16 ミリモル)を緩徐に添加し、次いで混合物を 30 分間撹拌した。混合物に化合物 1-1 (17.5 g、88.13 ミリモル)を添加し、次いで混合物を 4 時間撹拌した。この混合物を蒸留水(500 mL)に緩徐に添加した後、混合物を 30 分間撹拌した。得られた固形物を、カラムクロマトグラフィ及び再結晶化により精製して、化合物 1-4 (30 g、71 %)を得た。

。

【0138】

化合物 H-5 の調製

50

【0139】

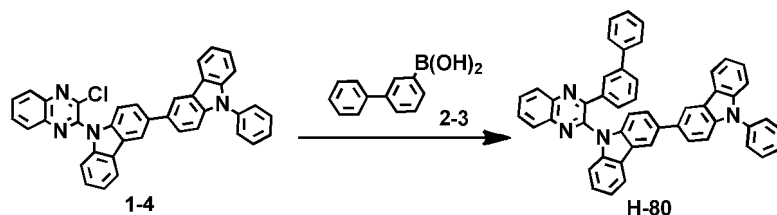
化合物1-4 (10 g、17.51ミリモル)、化合物2-2 (4.2 g、21.01ミリモル)、パラジウム(0)テトラキス(トリフェニルホスフィン) $[\text{Pd}(\text{PPh}_3)_4]$ (0.6 g、0.53ミリモル)、炭酸ナトリウム (4.6 g、43.78ミリモル)、トルエン (90 mL)、及びエタノール (22 mL) を反応槽内に導入した後、混合物に蒸留水 (22 mL) を添加した。混合物を120℃で4時間攪拌した。反応完了後、混合物を蒸留水で洗浄し、酢酸エチルで抽出した。得られた有機層を硫酸マグネシウムで乾燥させ、回転蒸発器によってそこから溶媒を除去した。生成物をカラムクロマトグラフィにより精製して、化合物H-5 (5.5 g、46%) を得た。

【0140】

[実施例3]

【0141】

【化26】



【0142】

化合物H-80の調製

【0143】

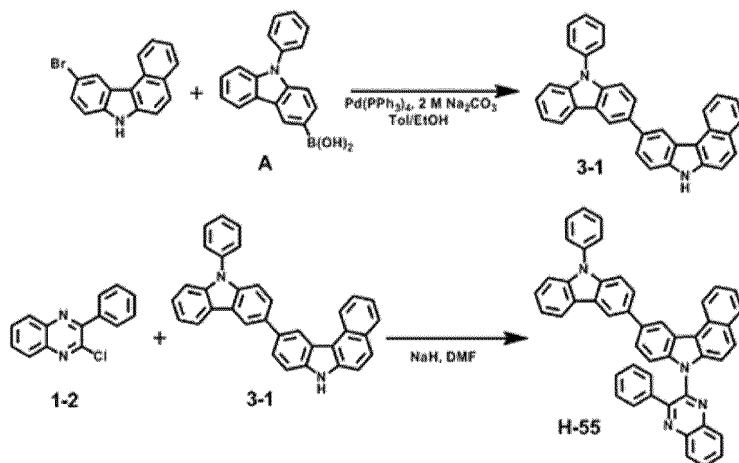
化合物1-4 (10 g、17.51ミリモル)、化合物2-3 (4.2 g、21.01ミリモル)、パラジウム(0)テトラキス(トリフェニルホスフィン) $[\text{Pd}(\text{PPh}_3)_4]$ (0.6 g、0.53ミリモル)、炭酸ナトリウム (4.6 g、43.78ミリモル)、トルエン (90 mL)、及びエタノール (22 mL) を反応槽内に導入した後、混合物に蒸留水 (22 mL) を添加し、次いで混合物を120℃で4時間攪拌した。反応完了後、混合物を蒸留水で洗浄し、酢酸エチルで抽出した。得られた有機層を硫酸マグネシウムで乾燥させ、回転蒸発器によってそこから溶媒を除去した。生成物をカラムクロマトグラフィにより精製して、化合物H-80 (7.7 g、64%) を得た。

【0144】

[実施例4]

【0145】

【化27】



【0146】

化合物3-1の調製

10

20

30

40

50

【0147】

トルエン（220 mL）及びエタノール（110 mL）中に化合物10-ブロモ-7H-ベンゾ[c]カルバゾール（15.5 g、41.64ミリモル）、化合物A（13.1 g、45.80ミリモル）、Pd(PPh₃)₄（2.4 g、2.08ミリモル）、及び2M Na₂CO₃（110 mL）を溶解させた後、混合物を120℃で5時間還流した。反応完了後、混合物を酢酸エチルで抽出し、そこから残った水分を硫酸マグネシウムで除去し、次いで混合物を乾燥させた。生成物をカラムクロマトグラフィにより精製して、化合物3-1（15.4 g、収率：81%）を得た。

【0148】

化合物H-55の調製

10

【0149】

DMF（110 mL）中に化合物1-2（6.3 g、26.17ミリモル）及び化合物3-1（10 g、21.81ミリモル）を溶解させた後、混合物にNaH（0.5 g、14.54ミリモル、鉱油中60%）を添加した。混合物を室温で12時間攪拌し、それにメタノール及び蒸留水を添加した。得られた固形物を減圧下で濾過し、次いでカラムクロマトグラフィにより精製して、化合物H-55（2.5 g、収率：18%）を得た。

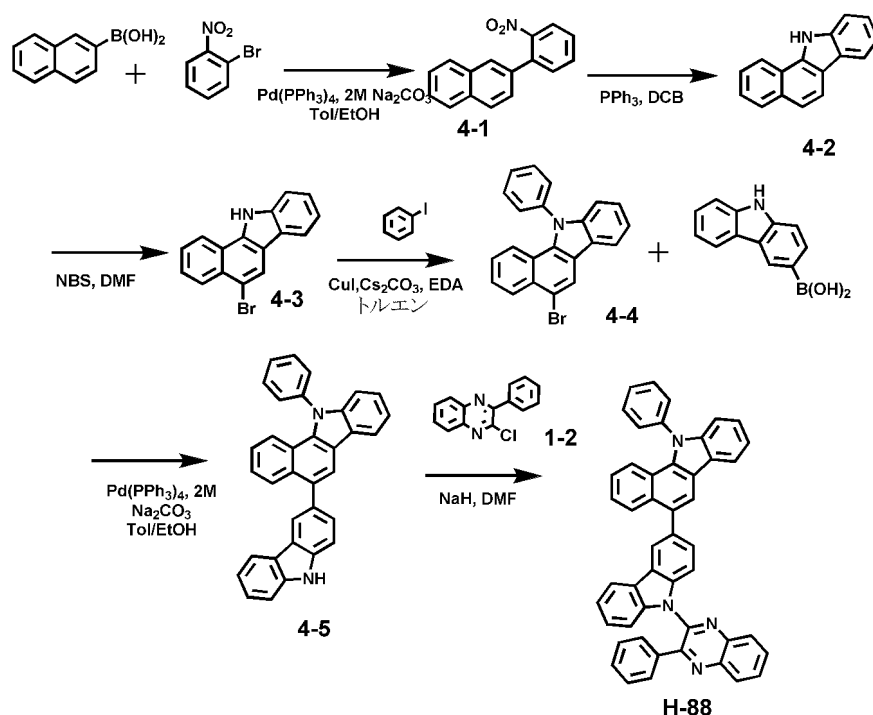
【0150】

〔実施例5〕

【0151】

20

【化28】



30

【0152】

化合物4-1の調製

【0153】

フラスコのトルエン（850 mL）及びエタノール（425 mL）中に、ナフタレン-2-イルボロン酸（30 g、174.35ミリモル）、2-ブロモニトロベンゼン（42 g、209.22ミリモル）、Pd(PPh₃)₄（10 g、8.71ミリモル）、及び2M Na₂CO₃（425 mL）を溶解させた後、混合物を120℃で5時間還流した。反応完了後、混合物を酢酸エチルで抽出し、得られた有機層から残った水分を硫酸マグネシウムで除去し、次いで有機層を乾燥させた。生成物をカラムクロマトグラフィにより精製して、化合物4-1（40 g、収率：93%）を得た。

50

【0154】

化合物4-2の調製

【0155】

ジクロロベンゼン (DCB) (1000 mL) 中に、化合物4-1 (40 g、160.34ミリモル) 及び PPh_3 (105.1 g、400.86ミリモル) を溶解させた後、混合物を150℃で6時間還流した。反応完了後、混合物を蒸留し、メタノールで倍散した。結果として、化合物4-2 (24 g、収率：50%) を得た。

【0156】

化合物4-3の調製

【0157】

DMF (570 mL) 中に化合物1-2 (24 g、110.46ミリモル) を溶解させた後、それにN-ブロモサクシニミド (NBS) (17 g、99.42ミリモル) を0℃で添加した。混合物を5時間攪拌し、次いでそれに蒸留水を添加した。得られた固形物を減圧下で濾過し、メタノールに添加し、攪拌し、次いで減圧下で濾過した。この固形物を酢酸エチル及びメタノールに添加した後、混合物を攪拌し、減圧下で濾過して、化合物4-3 (23 g、収率：73%) を得た。

【0158】

化合物4-4の調製

【0159】

トルエン (400 mL) 中に化合物4-3 (23.4 g、79.01ミリモル)、ヨードベンゼン (18 mL、158.02ミリモル)、 CuI (7.5 g、39.50ミリモル)、エチレンジアミン (EDA) (2.6 mL、39.50ミリモル)、及び Cs_2CO_3 (77 g、237.03ミリモル) を溶解させた後、混合物を120℃で5時間還流した。反応完了後、混合物を酢酸エチルで抽出し、得られた有機層から残った水分を硫酸マグネシウムで除去し、次いで有機層を乾燥させた。生成物をカラムクロマトグラフィにより精製して、化合物4-4 (21.5 g、収率：74%) を得た。

【0160】

化合物4-5の調製

【0161】

トルエン (300 mL) 及びエタノール (150 mL) 中に、化合物4-4 (21.5 g、57.75ミリモル)、(9H-カルバゾール-3-イル) ボロン酸 (15 g、69.31ミリモル)、 $\text{Pd}(\text{PPh}_3)_4$ (3.4 g、2.88ミリモル)、及び2M Na_2CO_3 (150 mL) を溶解させた後、混合物を120℃で5時間還流した。反応完了後、混合物を酢酸エチルで抽出し、得られた有機層から残った水分を硫酸マグネシウムで除去し、次いで有機層を乾燥させた。生成物をカラムクロマトグラフィにより精製して、化合物4-5 (4.2 g、収率：17%) を得た。

【0162】

化合物H-88の調製

【0163】

反応槽内に、化合物1-2 (2.6 g、10.99ミリモル)、化合物4-5 (4.2 g、9.16ミリモル)、 K_2CO_3 (1.2 g、9.16ミリモル)、4-ジメチルアミノピリジン (DMA P) (0.6 g、4.58ミリモル)、及びジメチルアセトアミド (DMA) (50 mL) を導入した後、混合物を還流下で4時間攪拌した。混合物を室温に冷却し、次いでそれに蒸留水を添加した。混合物を塩化メチレン (MC) で抽出し、硫酸マグネシウムで乾燥させ、減圧下で蒸留し、カラムクロマトグラフィにより精製して、化合物H-88 (1.7 g、28%) を得た。

【0164】

[実施例6]

【0165】

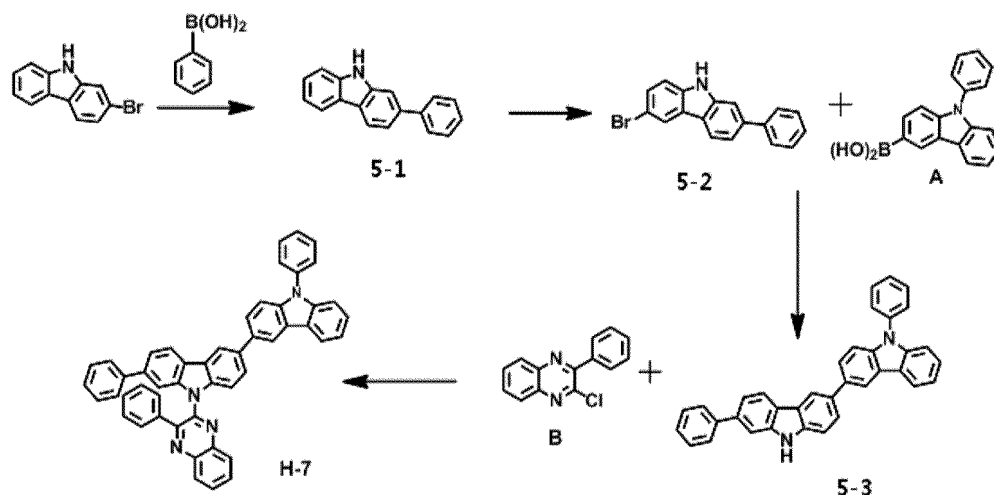
10

20

30

40

【化 2 9】



10

【0166】

化合物 5-1 の調製

【0167】

フラスコ内のトルエン (500 mL) 及びエタノール (250 mL) 中に、2-ブロモカルバゾール (30 g、121.90 ミリモル)、フェニルボロン酸 (18 g、146.28 ミリモル)、 $\text{Pd(PPh}_3)_4$ (7 g、6.09 ミリモル)、及び 2M Na_2CO_3 (250 mL) を溶解させた後、混合物を 120 °C で 5 時間還流した。反応完了後、混合物を酢酸エチルで抽出し、そこから残った水分を硫酸マグネシウムで除去し、次いで有機層を乾燥させた。生成物をカラムクロマトグラフィにより精製して、化合物 5-1 (15 g、収率：52%) を得た。

20

【0168】

化合物 5-2 の調製

【0169】

フラスコ内の DMF (200 mL) 中に化合物 5-1 (14.4 g、59.19 ミリモル) を溶解させた後、それに NBS (11 g、59.19 ミリモル) を 0 °C で添加した。混合物を 12 時間攪拌し、次いでそれに蒸留水を添加した。得られた固形物を減圧下で濾過し、メタノールに添加し、攪拌し、次いで減圧下で濾過した。この固形物を酢酸エチル及びメタノールに添加した。混合物を攪拌し、減圧下で濾過した。結果として、化合物 5-2 (15.8 g、収率：83%) を得た。

30

【0170】

化合物 5-3 の調製

【0171】

フラスコ内のトルエン (300 mL) 及びエタノール (150 mL) 中に、化合物 5-2 (15.8 g、49.04 ミリモル)、化合物 A (15.5 g、53.94 ミリモル)、 $\text{Pd(PPh}_3)_4$ (3 g、2.452 ミリモル)、及び 2M Na_2CO_3 (150 mL) を溶解させた後、混合物を 120 °C で 5 時間還流した。反応完了後、混合物を酢酸エチルで抽出し、得られた有機層から残った水分を硫酸マグネシウムで除去し、次いで有機層を乾燥させた。生成物をカラムクロマトグラフィにより精製して、化合物 5-3 (4 g、収率：17%) を得た。

40

【0172】

化合物 H-7 の調製

【0173】

フラスコ内の DMF (40 mL) 中に、化合物 5-3 (4 g、8.254 ミリモル)、化合物 B (2.4 g、9.905 ミリモル)、 K_2CO_3 (1.15 g、8.254 ミリモル)、及び DMA P (0.5 g、4.127 ミリモル) を溶解させた後、混合物を 22

50

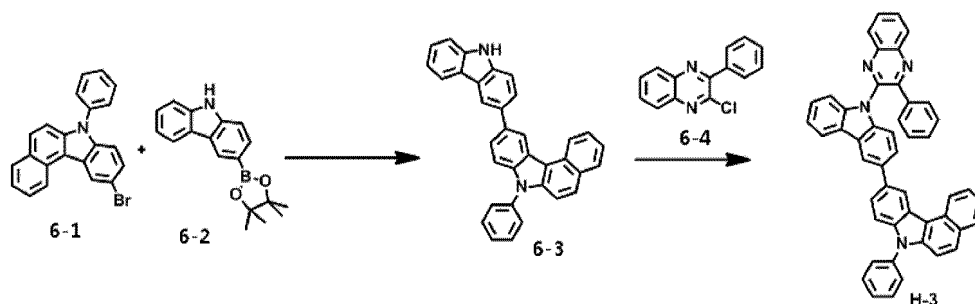
0℃で5時間還流した。反応完了後、混合物を酢酸エチルで抽出し、得られた有機層から残った水分を硫酸マグネシウムで除去し、次いで有機層を乾燥させた。生成物をカラムクロマトグラフィにより精製して、化合物H-7（2.8g、収率：50%）を得た。

【0174】

[実施例7]

【0175】

【化30】



10

【0176】

化合物6-3の調製

【0177】

フラスコ内のトルエン（340mL）及びエタノール（100mL）中に、化合物6-1（25.4g、68.22ミリモル）、化合物6-2（20g、68.22ミリモル）、Pd(PPh₃)₄（4g、3.41ミリモル）、及び2M K₂CO₃（100mL）を溶解させた後、混合物を120℃で3時間還流した。反応完了後、混合物を酢酸エチルで抽出し、得られた有機層から残った水分を硫酸マグネシウムで除去し、次いで有機層を乾燥させた。生成物をカラムクロマトグラフィにより精製して、化合物6-3（8g、収率：25%）を得た。

20

【0178】

化合物H-3の調製

【0179】

フラスコ内のDMF（230mL）中に、化合物6-3（11g、23.99ミリモル）、化合物6-4（9g、35.98ミリモル）、及びNaH（鉱油中60%）（2.8g、71.97ミリモル）を溶解させた後、混合物を室温で5時間攪拌した。反応完了後、混合物を酢酸エチルで抽出し、得られた有機層から残った水分を硫酸マグネシウムで除去し、次いで有機層を乾燥させた。生成物をカラムクロマトグラフィにより精製して、化合物H-3（4g、収率：25%）を得た。

30

【0180】

[表]

	MW	UV	PL	融点
H-3	662.78	296nm	517nm	234℃

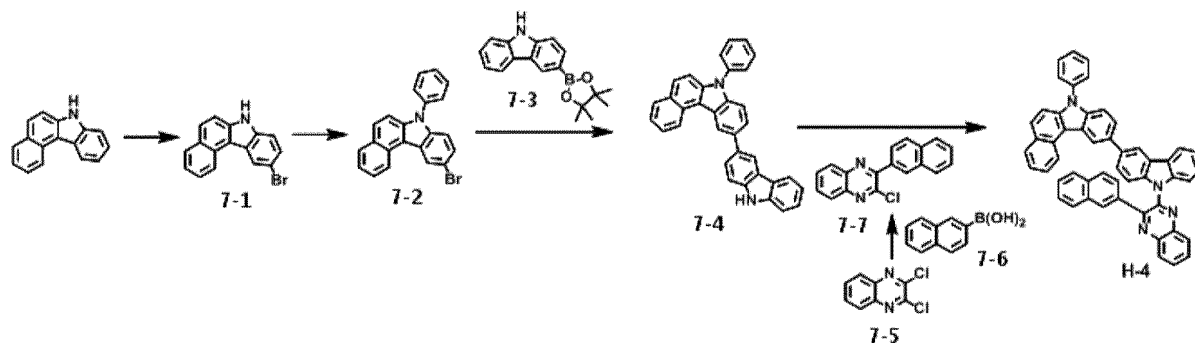
40

【0181】

[実施例8]

【0182】

【化 3 1】



10

【0183】

化合物 7-1 の調製

【0184】

フラスコ内の DMF (500 mL) 中に、7H-ベンゾ [c] カルバゾール (50 g、230.12 ミリモル) 及び N-ブロモサクシニミド (41 g、230.12 ミリモル) を溶解させた後、混合物を室温で 5 時間攪拌した。反応完了後、混合物を酢酸エチルで抽出し、得られた有機層から残った水分を硫酸マグネシウムで除去し、次いで有機層を乾燥させた。生成物をカラムクロマトグラフィにより精製して、化合物 7-1 (50 g、収率：73%) を得た。

20

【0185】

化合物 7-2 の調製

【0186】

フラスコ内のトルエン (500 mL) 中に、10-ブロモ-7H-ベンゾ [c] カルバゾール (化合物 7-1) (15 g、61.00 ミリモル)、ヨードベンゼン (14 mL、123.00 ミリモル)、CuI (6.0 g、30.00 ミリモル)、EDA (4 mL、61.00 ミリモル)、及び K_3PO_4 (40 g、183.00 ミリモル) を溶解させた後、混合物を 120℃ で 5 時間還流した。反応完了後、混合物を酢酸エチルで抽出し、得られた有機層から残った水分を硫酸マグネシウムで除去し、次いで有機層を乾燥させた。生成物をカラムクロマトグラフィにより精製して、化合物 7-2 (13 g、収率：73%) を得た。

30

【0187】

化合物 7-4 の調製

【0188】

トルエン (100 mL)、エタノール (50 mL)、及び H_2O (50 mL) 中に、化合物 10-ブロモ-7-フェニル-7H-ベンゾ [c] カルバゾール (化合物 7-2) (10 g、34.10 ミリモル) 及び化合物 7-3 (10 g、40.92 ミリモル) を溶解させた後、混合物を 120℃ で 5 時間還流した。反応完了後、混合物を酢酸エチルで抽出し、得られた有機層から残った水分を硫酸マグネシウムで除去し、次いで有機層を乾燥させた。生成物をカラムクロマトグラフィにより精製して、化合物 7-4 (9 g、収率：57%) を得た。

40

【0189】

化合物 7-7 の調製

【0190】

トルエン (100 mL)、エタノール (50 mL)、 H_2O (50 mL) 中に、化合物 2,3-ジクロロキノキサリン (化合物 7-5) (28 g、140.67 ミリモル) 及び化合物 7-6 (24 g、140.67 ミリモル) を溶解させた後、混合物を 120℃ で 5 時間還流した。反応完了後、混合物を酢酸エチルで抽出し、得られた有機層から残った水分を硫酸マグネシウムで除去し、次いで有機層を乾燥させた。生成物をカラムクロマトグラフィにより精製して、化合物 7-7 (30 g、収率：73%) を得た。

50

【0191】

化合物H-4の調製

【0192】

反応槽内に、化合物10-(9H-カルバゾール-3-イル)-7-フェニル-7H-ベンゾ[c]カルバゾール(化合物7-4)(9.1g、19.80ミリモル)、化合物7-7(9g、29.7ミリモル)、 K_2CO_3 (5.5g、39.6ミリモル)、DMAP(1.2g、9.9ミリモル)、及びDMF(100mL)を導入した後、混合物を還流下で1時間攪拌し、室温に冷却し、次いでそれに蒸留水を添加した。混合物を塩化メチレンで抽出し、硫酸マグネシウムで乾燥させ、減圧下で蒸留し、カラムクロマトグラフィにより精製して、化合物H-4(5g、収率：35%)を得た。

10

【0193】

[表]

	MW	UV	PL	融点
H-4	712.84	334nm	516nm	298.0°C

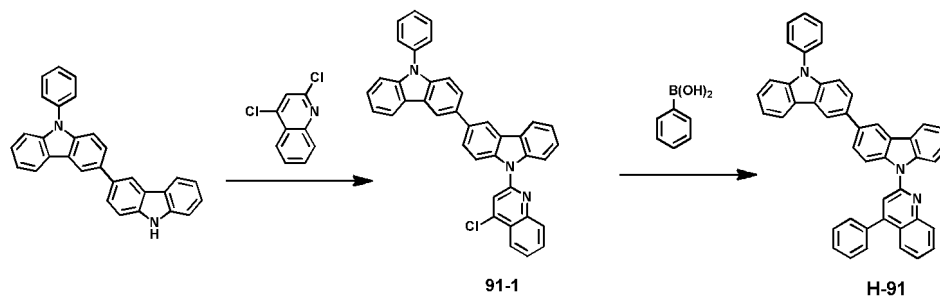
【0194】

[実施例9]

【0195】

【化32】

20



【0196】

化合物91-1の調製

【0197】

フラスコ内のo-DCB 550mL中に、9-フェニル-9H, 9'-H-3, 3'-ビカルバゾール(33.8g、82.7ミリモル)、2,4-ジクロロキノリン(17.2g、86.9ミリモル)、 CuI (31.5g、165.4ミリモル)、及びトランス-1,2-ジアミノシクロヘキサン(6mL、49.63ミリモル)を溶解させた後、混合物を還流下で、200°Cで6時間攪拌した。反応完了後、混合物を塩化メチレンで抽出し、 $MgSO_4$ で乾燥させ、カラムクロマトグラフィにかけ、次いで分離材料にメタノールを添加した。得られた固形物を減圧下で濾過して、化合物91-1(32.5g、収率：69%)を得た。

40

【0198】

化合物H-91の調製

【0199】

トルエン(560mL)、エタノール(35mL)、及び H_2O (70mL)中に、化合物91-1[9-(4-クロロキノリン-2-イル)-9'-フェニル-9H, 9'-H-3, 3'-ビカルバゾール](32g、56.13ミリモル)、フェニル硼酸(13.7g、112.3ミリモル)、 $Pd(PPh_3)_4$ (6.5g、5.7ミリモル)、及び K_2CO_3 (19.4g、140.33ミリモル)を溶解させた後、混合物を120°Cで12時間還流した。反応完了後、混合物を塩化メチレンで抽出し、 $MgSO_4$ で乾燥させ、カラムクロマトグラフィにかけ、次いで分離材料にヘキサンを添加した。得られた

50

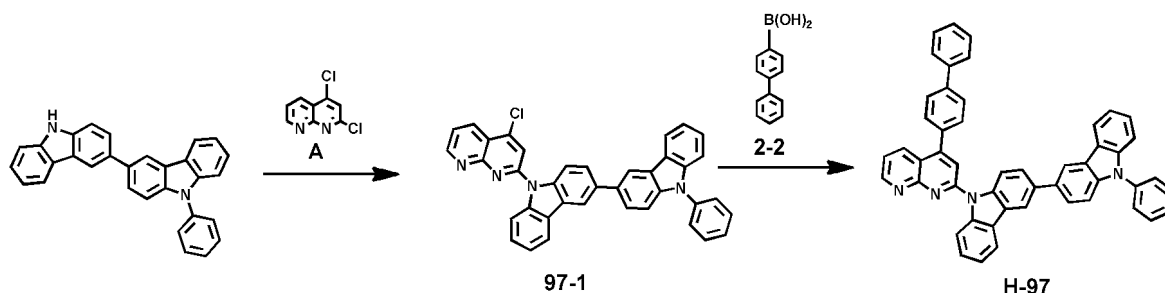
固形物を減圧下で濾過して、化合物H-91 (23 g、収率：67%)を得た。

【0200】

[実施例10]

【0201】

【化33】



【0202】

化合物97-1の調製

【0203】

フラスコ内のDMF (50 mL) 中に、化合物9-フェニル-9H, 9'-H-3, 3'-ビカルバゾール (20.5 g、50.24ミリモル) 及び化合物A (12 g、60.29ミリモル) を溶解させた後、それにNaH (2.6 g、62.31ミリモル、鉱油中60%) を添加した。混合物を室温で12時間攪拌し、それにメタノール及び蒸留水を添加した。生成された固形物を減圧下で濾過し、カラムクロマトグラフィにより精製して、化合物97-1 (10 g、収率：35%) を得た。

20

【0204】

化合物H-97の調製

【0205】

フラスコ内のトルエン (200 mL) 中に、化合物97-1 (10 g、17.51ミリモル)、化合物2-2 (4.5 g、22.76ミリモル)、Pd₂dba₃ (0.96 g、1.05ミリモル)、S-phos (0.6 g、1.40ミリモル)、及びK₃PO₄ (12 g、52.53ミリモル) を溶解させた後、混合物を120℃で5時間還流した。反応完了後、混合物を酢酸エチルで抽出し、得られた有機層から残った水分を硫酸マグネシウムで除去し、次いで有機層を乾燥させた。生成物をカラムクロマトグラフィにより精製して、化合物H-97 (3 g、収率：25%) を得た。

30

【0206】

[デバイス実施例1] 本開示の化合物を使用するOLED

【0207】

次のとおり、本開示の化合物を使用してOLEDを生成した。有機発光ダイオード (OLED) 用のガラス基材 (Geomatec) 上の透明電極酸化インジウムスズ (ITO) の薄いフィルム (15 Ω/sq) を、連続してトリクロロエチレン、アセトン、エタノール、及び蒸留水での超音波洗浄にかけ、次いでイソプロパノール中に保管した。次いで、真空蒸着装置の基材ホルダ上にITO基材を載置した。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)を該真空蒸着装置のセル内に導入し、次いで該装置のチャンバ内の圧力を10⁻⁶ トルに制御した。その後、セルに電流を印加して上記の導入された材料を蒸発させ、それにより、60 nmの厚さを有する正孔注入層をITO基材上に形成した。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該真空蒸着装置の別のセル内に導入し、セルに電流を印加することによって蒸発させ、それにより、20 nmの厚さを有する正孔輸送層を正孔注入層上に形成した。その後、真空蒸着装置の1つのセル内にホストとして化合物H-1を導入し、別のセル内にドーパントとして化合物D-88を導入した。ホスト

40

50

及びドーパントの総量に基づいて4重量%のドーブ量でドーパントが堆積して、30 nmの厚さを有する発光層を正孔輸送層上に形成するように、2つの材料を異なる速度で蒸発させた。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-1H-ベンゾ[d]イミダゾールを1つのセル内に導入し、リチウムキノレートを別のセル内に導入した。2つの材料が50重量%のドーブ量でそれぞれ堆積して、30 nmの厚さを有する電子輸送層を発光層上に形成するように、それらを同じ速度で蒸発させた。電子輸送層上に2 nmの厚さを有する電子注入層としてリチウムキノレートを堆積させた後、別の真空蒸着装置により、電子注入層上に150 nmの厚さを有するAl陰極を堆積させた。その結果、OLEDが生成された。OLEDの生成に使用した全材料が、 10^{-6} トルでの真空昇華によって精製されたものであった。生成されたOLEDは、 $1,050 \text{ cd/m}^2$ の輝度、及び4.1 Vの駆動電圧で 11.1 mA/cm^2 の電流密度を有する赤色発光を示した。5,000ニトで輝度が90%まで低減するのに要した最小時間は90時間であった。

【0208】

〔デバイス実施例2～8〕本開示の化合物を使用するOLED

【0209】

以下の表2に示されるホスト及びドーパントを発光材料として使用したことを除いて、デバイス実施例1と同じ様式でOLEDを生成した。生成されたOLEDの駆動電圧(V)、電流密度(mA/cm^2)、輝度(cd/m^2)、色、及び5000ニトで輝度が90%まで低減するのに要した最小時間(寿命)を、以下の表2に示す。

【0210】

〔比較実施例1及び2〕従来の発光材料を使用するOLED

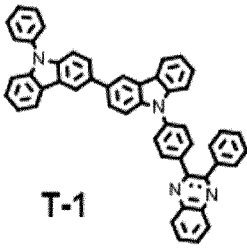
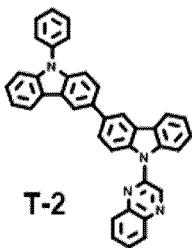
【0211】

以下の表1に示される化合物T-1またはT-2をホストとして使用し、以下の表2に示されるドーパントを使用したことを除いて、デバイス実施例1と同じ様式でOLEDを生成した。生成されたOLEDの駆動電圧(V)、電流密度(mA/cm^2)、輝度(cd/m^2)、色、及び5000ニトで輝度が90%まで低減するのに要した最小時間(寿命)を、以下の表2に示す。

【0212】

【表1】

表1

比較実施例1の化合物	比較実施例2の化合物
 T-1	 T-2

【0213】

【表 2】

表2

デバイス 実施例番号	ホスト	ドーパント	電圧 (V)	電流密度 (mA/cm ²)	輝度 (cd/m ²) ／色	5000ニトで輝度 が90%まで低減 するのに要した 最小時間
1	H-1	D-88	4.1	11.1	1050／赤色	90時間
2	H-2	D-88	4.1	11.8	1020／赤色	100時間
3	H-3	D-87	4.0	6.4	1100／赤色	120時間
4	H-5	D-88	4.1	12.2	1150／赤色	100時間
5	H-80	D-87	3.9	6.7	1120／赤色	80時間
6	H-88	D-88	3.7	12.9	1200／赤色	100時間
7	H-55	D-87	3.8	7.1	1100／赤色	120時間
8	H-4	D-88	4.3	11.4	1050／赤色	95時間
比較実施例 1	T-1	D-87	3.5	6.8	1000／赤色	20時間
比較実施例 2	T-2	D-88	4.4	11.8	1000／赤色	40時間

10

20

【0214】

表2に示されるように、本開示の有機電界発光化合物を使用する有機電界発光デバイスは、良好な駆動電圧ならびに良好な電流効率及び出力効率を維持しながら、従来の化合物を使用するものよりも最大600%まで良好に著しく改善された寿命を示す。

【0215】

〔デバイス実施例9〕本開示の第1のホスト化合物及び第2のホスト化合物が同時蒸発されたOLED

30

【0216】

次のとおり、本開示の化合物を使用してOLEDを生成した。有機発光ダイオード（OLED）用のガラス基材（Geomatic）上の透明電極酸化インジウムスズ（ITO）の薄いフィルム（10Ω/sq）を、連続してトリクロロエチレン、アセトン、エタノール、及び蒸留水での超音波洗浄にかけ、次いでイソプロパノール中に保管した。次いで、真空蒸着装置の基材ホルダ上にITO基材を載置した。N⁴，N⁴′-ジフェニル-N⁴，N⁴′-ビス（9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル）-[1，1′-ビフェニル]-4，4′-ジアミン（化合物HI-1）を真空蒸着装置のセル内に導入し、次いで装置のチャンバ内の圧力を10⁻⁶トルに制御した。その後、セルに電流を印加して上記の導入された材料を蒸発させ、それにより、80nmの厚さを有する第1の正孔注入層をITO基材上に形成した。1，4，5，8，9，12-ヘキサアザトリフェニレン-ヘキサカルボニトリル（化合物HI-2）を真空蒸着装置の別のセル内に導入し、次いでセルに電流を印加して上記の導入された材料を蒸発させ、それにより、5nmの厚さを有する第2の正孔注入層を第1の正孔注入層上に形成した。N-（[1，1′-ビフェニル]-4-イル）-9，9-ジメチル-N-（4-（9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル）フェニル）-9H-フルオレン-2-アミン（化合物HT-1）を真空蒸着装置のセル内に導入し、次いでセルに電流を印加して上記の導入された材料を蒸発させ、それにより、10nmの厚さを有する第1の正孔輸送層を第2の正孔注入層上に形成した。その後、N，N-ジ（[1，1′-ビフェニル]-4-イル）-4′-（9H-カルバゾール-9-イル）-[1，1′-ビフェニル]-4-アミン（化合物HT-3）を真空蒸

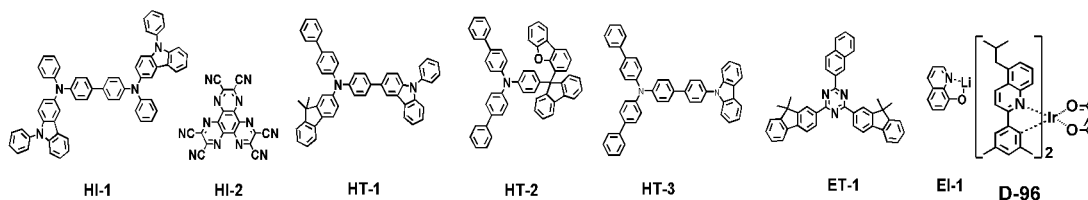
40

50

着装置の別のセル内に導入し、次いでセルに電流を印加して上記の導入された材料を蒸発させ、それにより、60 nmの厚さを有する第2の正孔輸送層を第1の正孔輸送層上に形成した。ホスト材料として、化合物H-1及び化合物H2-116を、真空蒸着装置の2つのセル内にそれぞれ導入した。化合物D-96をドーパントとして別のセル内に導入した。ホスト及びドーパントの総量に基づいて3重量%のドーパントが堆積して、40 nmの厚さを有する発光層を正孔輸送層上に形成するように、同じ速度で2つのホスト材料を蒸発させる一方で、ホスト材料とは異なる速度でドーパントを蒸発させた。次いで、2,4-ビス(9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル)-6-(ナフタレン-2-イル)-1,3,5-トリアジン(化合物ET-1)を1つのセル内に導入し、リチウムキノレート(化合物EI-1)を別のセル内に導入した。1:1の速度で2つの材料を蒸発させて、30 nmの厚さを有する電子輸送層を発光層上に形成した。電子輸送層上に2 nmの厚さを有する電子注入層としてリチウムキノレート(化合物EI-1)を堆積させた後、別の真空蒸着装置により、電子注入層上に80 nmの厚さを有するA1陰極を堆積させた。5,000ニトで輝度が80%まで低減するのに要した最小時間は195時間であった。

【0217】

【化34】



【0218】

[デバイス実施例10～16] 本開示の多成分ホスト材料を使用するOLED

【0219】

発光層を調製するために以下の表3に示される化合物を第1のホスト及び第2のホストとして使用したことを除いて、デバイス実施例9と同じ様式でOLEDを生成した。生成されたOLEDの5000ニトで輝度が80%まで低減するのに要した最小時間を、以下の表3に示す。

【0220】

[比較実施例3～4] 第1のホスト化合物のみをホストとして使用するOLED

【0221】

以下の表3に示される第1のホスト化合物のみを発光層のためのホストとして使用したことを除いて、デバイス実施例9と同じ様式でOLEDを生成した。生成されたOLEDの5000ニトで輝度が80%まで低減するのに要した最小時間を、以下の表3に示す。

【0222】

【表 3】

表3

デバイス実施例 番号	ホスト	ドーパント	5000ニトで輝度が80%まで低減する のに要した最小時間
9	H-1:H2-116	D-96	195時間
10	H-3:H2-94	D-96	490時間
11	H-3:H2-117	D-96	517時間
12	H-3:H2-116	D-96	378時間
13	H-3:H2-118	D-96	480時間
14	H-3:H-110	D-96	1,422時間
15	H-3:H2-119	D-96	1,080時間
16	H-3:H2-120	D-96	1,250時間
比較実施例3	H-1	D-96	168時間
比較実施例4	H-3	D-96	295時間

【0223】

上記のように、本開示の有機電界発光化合物を唯一のホストとして使用する有機電界発光デバイスは優れた寿命を示すが、本開示の有機電界発光化合物を含む多成分ホスト材料は、寿命がより改善された有機電界発光デバイスを提供することができる。

【0224】

〔デバイス実施例17-1～17-5、18-1～18-6〕本開示による第1のホスト化合物及び第2のホスト化合物が同時蒸発されたOLED

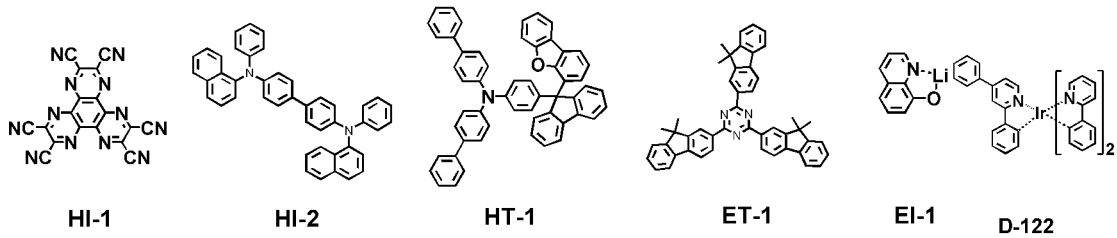
【0225】

次のとおり、本開示の化合物を使用してOLEDを生成した。有機発光ダイオード（OLED）用のガラス基材（Geomatec）上の透明電極酸化インジウムスズ（ITO）の薄いフィルム（ $10\Omega/\text{sq}$ ）を、連続してトリクロロエチレン、アセトン、エタノール、及び蒸留水での超音波洗浄にかけ、次いでイソプロパノール中に保管した。次いで、真空蒸着装置の基材ホルダ上にITO基材を載置した。1,4,5,8,9,12-ヘキサアザトリフェニレン-ヘキサカルボニトリル（化合物HI-1）を真空蒸着装置のセル内に導入し、次いで装置のチャンバ内の圧力を 10^{-6} トルに制御した。その後、セルに電流を印加して上記の導入された材料を蒸発させ、それにより、5nmの厚さを有する第1の正孔注入層をITO基材上に形成した。次いで、N,N'-ビス（ナフタレン-1-イル）-N,N'-ビス（フェニル）ベンジジン（化合物HI-2）を真空蒸着装置の別のセル内に導入し、セルに電流を印加することによって蒸発させ、それにより、95nmの厚さを有する第2の正孔注入層を第1の正孔注入層上に形成した。N-（[1,1'-ビフェニル]-4-イル）-9,9-ジメチル-N-（4-（9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イル）フェニル）-9H-フルオレン-2-アミン（化合物HT-1）を真空蒸着装置の1つのセル内に導入し、セルに電流を印加することによって蒸発させ、それにより、20nmの厚さを有する正孔輸送層を第2の正孔輸送層上に形成した。ホスト材料として、以下の表4に示される2つの化合物を、真空蒸着装置の2つのセル内にそれぞれ導入した。化合物D-122をドーパントとして別のセル内に導入した。ホスト及びドーパントの総量に基づいて12重量%のドーパントでドーパントが堆積して、30nmの厚さを有する発光層を正孔輸送層上に形成するように、1:1の同じ速度で2つのホスト材料を蒸発させる一方で、ホスト材料とは異なる速度でドーパントを蒸発させた。次いで、2,4,6-トリス（9,9-ジメチル-9H-フルオレン-2-イル）-1,3,5-トリアジン（化合物ET-1）を別のセル内に導入し、蒸発させて、35nmの厚さ

を有する電子輸送層として発光層上に堆積させた。電子輸送層上に 2 nm の厚さを有する電子注入層としてリチウムキノレート（化合物 EI-1）を堆積させた後、別の真空蒸着装置により、電子注入層上に 80 nm の厚さを有する Al 陰極を堆積させた。

【0226】

【化35】



10

【0227】

〔デバイス比較実施例 5-1～5-3〕従来の化合物を使用する OLED

【0228】

以下の表 4 及び 5 に示される従来の化合物を第 1 のホスト化合物及び第 2 のホスト化合物として使用したことを除いて、デバイス実施例 17-1 と同じ様式で OLED を生成した。

【0229】

デバイス実施例 17-1～17-5、デバイス実施例 18-1～18-6、及びデバイス比較実施例 5-1～5-3 で生成された OLED の駆動電圧、発光効率、CIE 色座標、ならびに 10,000 ニット及び定電流で輝度が 100% から 95% まで低減するのに要した最小時間を、以下の表 4 に示す。

【0230】

20

【表 4】

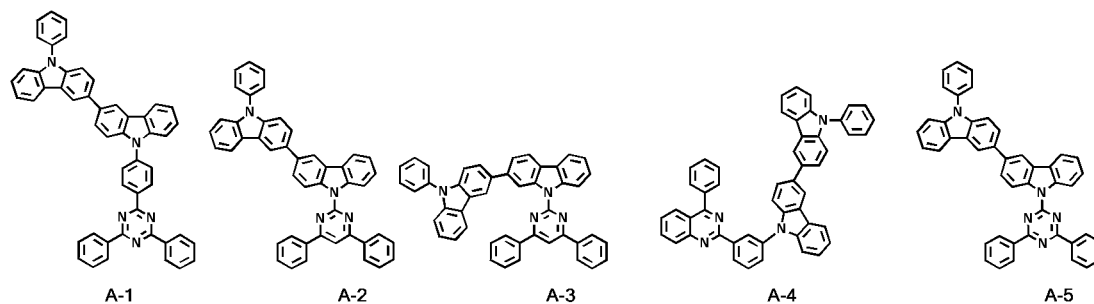
表4

デバイス 実施例 番号	ホスト	ドープメント	電圧 [V]	電流 効率 [cd/A]	色座標 (x、y)	10,000ニトで輝度 が95%まで低減する のに要した最小時間
17-1	H-91:H2-110	D-122	3.7	74.6	0.430、 0.557	328時間
17-2	H-102:H2-110	D-122	4	70	0.429、 0.558	206時間
17-3	H-103:H2-110	D-122	3.6	—	0.429、 0.557	97時間
17-4	H-105:H2-110	D-122	4	74.4	0.429、 0.558	126時間
17-5	H-104:H2-110	D-122	3.6	—	0.429、 0.558	157時間
18-1	H-91:H2-31	D-122	3.7	73.6	0.426、 0.560	165時間
18-2	H-91:H2-111	D-122	3.6	72.2	0.419、 0.570	172時間
18-3	H-91:H2-112	D-122	3.5	—	0.420、 0.569	87時間
18-4	H-91:H2-113	D-122	3.9	—	0.428、 0.559	105時間
18-5	H-91:H2-115	D-122	3.8	72.9	0.428、 0.558	138時間
18-6	H-91:H2-114	D-122	3.9	75.1	0.425、 0.561	111時間
比較 実施例 5-1	A-5:A-1	D-122	3.8	73.9	0.429、 0.558	83時間
比較 実施例 5-2	A-2:A-3	D-122	3.8	70.8	0.425、 0.561	42時間
比較 実施例 5-3	A-4:A-5	D-122	3.7	72.4	0.428、 0.558	66時間

【表 5】

表 5

デバイス実施例 19、ならびに比較実施例 5-1 及び 5-2 に用いた化合物



【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/KR2014/012547
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER <i>H01L 51/00 (2006.01) H01L 27/32 (2006.01) C07D 209/82 (2006.01) C07D 401/02 (2006.01) C07D 401/04 (2006.01)</i> <i>C07D 401/14 (2006.01) C07D 403/02 (2006.01) C07D 403/04 (2006.01) C07D 403/14 (2006.01) C07D 405/10 (2006.01)</i> <i>C07D 409/14 (2006.01) C09K 11/06 (2006.01)</i>		
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)		
Inventor and Applicant search:		
Patentscope & Google: LEE, Mi-Ja; LEE, Kyung-Joo; LEE, Su-Hyun; ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALS KOREA LTD. STN Registry and CAPlus: Substructure search based on compounds of formula (1)		
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	
☒ Further documents are listed in the continuation of Box C ☒ 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	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention	
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"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	
"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)	"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	
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	"&" document member of the same patent family	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		
Date of the actual completion of the international search 27 April 2015	Date of mailing of the international search report 27 April 2015	
Name and mailing address of the ISA/AU AUSTRALIAN PATENT OFFICE PO BOX 200, WODEN ACT 2606, AUSTRALIA Email address: pct@ipaustralia.gov.au	Authorised officer Pina Potenza AUSTRALIAN PATENT OFFICE (ISO 9001 Quality Certified Service) Telephone No. 0399359614	

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No.
C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		PCT/KR2014/012547
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2011/019156 A1 (ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALS KOREA LTD.) 17 February 2011 Abstract; Chemical Formula 1, Claim 1 for generic definition; Claim 5 compounds 26-27 on page 29, compounds 60-62 on page 30; Claims 6 and 7	1-12
X	WO 2012/121561 A1 (ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALS KOREA LTD.) 13 September 2012 Abstract; Paragraphs [45]-[61]; Claim 1 for generic definition; Claim 5 compounds C-1, C-10, C-24, C-25, C-26, C-66, C-68 and C-72; Claim 6	1-4, 7-12
X	WO 2012/134124 A1 (ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALS KOREA LTD.) 04 October 2012 see Abstract; Paragraphs [72]-[92]; Claim 1 for generic definition; Claim 5 compounds C-40, C-78, C-80, C-81 and C-83; Claim 6	1-4, 6-10
X	WO 2012/036482 A1 (ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALS KOREA LTD.) 22 March 2012 Abstract; pages 12-22; compounds 47-48, page 14; compounds 69, 71, 73, page 16; compounds 139, 142-144, page 21; Claim 1 for generic definition; Claims 4 and 6-7	1-4, 7-11
X	US 2011/0062429 A1 (KAI et al) 17 March 2011 Abstract; compounds (5)-(6), (11)-(14), (23)-(24), (26)-(27), (31)-(32) and (36)-(37); Claims 3-6	1-5, 7-10
X	WO 2010/107244 A2 (DOW ADVANCED DISPLAY MATERIALS, LTD.) 23 September 2010 Abstract; compounds associated with CAS Registry Numbers RN 1246309-55-6, RN 1246309-70-5, RN 1246310-04-2; Claims 1-6	1-5, 7-10
X	WO 2011/010840 A1 (ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALS KOREA LTD.) 27 January 2011 Abstract; Claim 1 for generic definition; Claim 5 compounds 30 and 33; Claims 6-7	1-5, 7-10
X	US 8564190 B2 (SEO et al) 22 October 2013 Abstract; column 18, compound Cz1PQIII; Claim 1	1-5, 7-10
X	US 8247575 B2 (NOMURA et al) 21 August 2012 Abstract; compounds (35)-(66)	1-5
X	KR 2013-0102673 A (ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALS KOREA LTD.) 23 September 2013 page 5, compound C-25	1-4, 6-7
P,X	WO 2014/088290 A1 (ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALS KOREA LTD.) 12 June 2014 Abstract; Examples and compounds C-1 to C-68	1-12
P,X	KR 2014-0108778 A (SFC LTD.) 15 September 2014 Abstract; pages 5-13, compounds 1-163	1-12
Form PCT/ISA/210 (fifth sheet) (July 2009)		

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No.	
Information on patent family members		PCT/KR2014/012547	
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
WO 2011/019156 A1	17 February 2011	CN 102918134 A	06 Feb 2013
		CN 104193732 A	10 Dec 2014
		KR 20110015836 A	17 Feb 2011
		KR 101431644 B1	21 Aug 2014
		TW 201120186 A	16 Jun 2011
		US 2012235123 A1	20 Sep 2012
WO 2012/121561 A1	13 September 2012	CN 103502243 A	08 Jan 2014
		EP 2683712 A1	15 Jan 2014
		JP 2014513064 A	29 May 2014
		KR 20120102374 A	18 Sep 2012
		KR 101427611 B1	11 Aug 2014
		TW 201238962 A	01 Oct 2012
		US 2014107338 A1	17 Apr 2014
WO 2012/134124 A1	04 October 2012	CN 103534251 A	22 Jan 2014
		EP 2678335 A1	01 Jan 2014
		JP 2014515738 A	03 Jul 2014
		KR 20120109744 A	09 Oct 2012
		TW 201245406 A	16 Nov 2012
		US 2014114069 A1	24 Apr 2014
WO 2012/036482 A1	22 March 2012	CN 103221406 A	24 Jul 2013
		EP 2616462 A1	24 Jul 2013
		JP 2013539750 A	28 Oct 2013
		KR 20120030009 A	27 Mar 2012
		TW 201224110 A	16 Jun 2012
US 2011/0062429 A1	17 March 2011	US 8795848 B2	05 Aug 2014
		CN 102017220 A	13 Apr 2011
		CN 102017220 B	07 Nov 2012
		EP 2284920 A1	16 Feb 2011
		JP 4819181 B2	24 Nov 2011
		KR 20110010750 A	07 Feb 2011
		TW 201006908 A	16 Feb 2010
		TW I452114 B	11 Sep 2014
		WO 2009136595 A1	12 Nov 2009
WO 2010/107244 A2	23 September 2010	CN 102482571 A	30 May 2012
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		International application No.	
Information on patent family members		PCT/KR2014/012547	
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
		CN 103524510 A	22 Jan 2014
		CN 103555322 A	05 Feb 2014
		CN 103641830 A	19 Mar 2014
		CN 103641831 A	19 Mar 2014
		CN 103641832 A	19 Mar 2014
		JP 2012520872 A	10 Sep 2012
		KR 20100105099 A	29 Sep 2010
		TW 201105768 A	16 Feb 2011
WO 2011/010840 A1	27 January 2011	KR 20110008723 A	27 Jan 2011
		TW 201111472 A	01 Apr 2011
US 8564190 B2	22 October 2013	US 8564190 B2	22 Oct 2013
		EP 2366753 A1	21 Sep 2011
		JP 2011204673 A	13 Oct 2011
		KR 20110099645 A	08 Sep 2011
US 8247575 B2	21 August 2012	US 8247575 B2	21 Aug 2012
		CN 101838262 A	22 Sep 2010
		CN 101838262 B	23 Jul 2014
		JP 2010241801 A	28 Oct 2010
		JP 5607959 B2	15 Oct 2014
		JP 2015024997 A	05 Feb 2015
		KR 20100105501 A	29 Sep 2010
		TW 201105659 A	16 Feb 2011
		US 2012302751 A1	29 Nov 2012
		US 8530658 B2	10 Sep 2013
		US 2010237773 A1	23 Sep 2010
		KR 2013-0102673 A	23 September 2013
WO 2014/088290 A1	12 June 2014	KR 20140071944 A	12 Jun 2014
		TW 201439078 A	16 Oct 2014
KR 2014-0108778 A	15 September 2014		
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)			

フロントページの続き

(51)Int.Cl.

F I

テーマコード (参考)

C 0 9 K 11/06 6 9 0

(81)指定国 AP(BW,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ,NA,RW,SD,SL,ST,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,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 ドゥーヒョン・ムン

大韓民国 445-768 キョンギード ファソンーシ ピョンジョム 3ーロ 117 90
6-1304

(72)発明者 ヒーリョン・カン

大韓民国 151-815 ソウル クァナクーク インハン 12ナージル 31

(72)発明者 ヒュンジュ・カン

大韓民国 423-766 キョンギード クワンミョンーシ ハアンーロ 198 205-1
001

(72)発明者 チーシク・キム

大韓民国 445-752 キョンギード ファソンーシ ドンタンバンソクーロ 71 441
-1201

(72)発明者 ナン・キュン・キム

大韓民国 448-527 キョンギード ヨンギンーシ スジーク ポエウンーダエロ 219
302-1801

(72)発明者 ヨン・ジュン・チョ

大韓民国 463-400 キョンギード ソンナムーシ ブンダンーク パンギョーロ 393
204-701

(72)発明者 ヒュクジュ・ウォン

大韓民国 135-877 ソウル カンナムーク ハクドンーロ 68ージル 29 105-
2003

(72)発明者 キュンジュ・リー

大韓民国 121-773 ソウル マポーク サエチャンーロ 8ージル 72 210-10
01

(72)発明者 ビトナリ・キム

大韓民国 431-774 キョンギード アンヤンーシ ドンアンーク ドンアンーロ 101
102-2401

(72)発明者 ヨージン・ドー

大韓民国 427-731 キョンギード ワチョンーシ ビョリヤンーロ 85 408-20
4

(72)発明者 スーヒョン・リー

大韓民国 440-200 キョンギード スウォンーシ ジャンガンーク スイルーロ 205
105-1102

Fターム(参考) 3K107 AA01 BB01 BB02 CC03 CC12 CC21 DD53 DD59 DD66 DD68

DD69

4C063 AA03 BB02 CC14 CC31 CC34 DD08 EE10

4C065 AA04 BB09 CC01 DD02 EE02 HH02 JJ08 KK01 LL01 PP09

专利名称(译)	有机电致发光化合物，以及含有它们的多组分主体材料和有机电致发光器件		
公开(公告)号	JP2017503338A	公开(公告)日	2017-01-26
申请号	JP2016534253	申请日	2014-12-18
[标]申请(专利权)人(译)	罗门哈斯电子材料有限公司		
申请(专利权)人(译)	罗门哈斯电子材料有限公司韩国		
[标]发明人	ミジャリー ドウヒョンムン ヒーリョンカン ヒュンジュカン チシクキム ナンキュンキム ヨンジュンチョ ヒュクジュウォン キュンジュリー ビトナリキム ヨージンドー スヒュンリー		
发明人	ミ-ジャ-リー ドウ-ヒョン-ムン ヒー-リョン-カン ヒュン-ジュ-カン チ-シク-キム ナン-キュン-キム ヨン-ジュン-チョ ヒュク-ジュ-ウォン キュン-ジュ-リー ビトナリ-キム ヨー-ジン-ドー ス-ヒュン-リー		
IPC分类号	H01L51/50 C07D403/14 C07D401/14 C07D471/04 C09K11/06		
CPC分类号	C09K11/06 C09K2211/1044 H01L51/0072 H01L51/50 H05B33/14		
FI分类号	H05B33/14.B C07D403/14.CSP C07D401/14 C07D471/04.114.A C09K11/06.660 C09K11/06.690		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/BB02 3K107/CC03 3K107/CC12 3K107/CC21 3K107/DD53 3K107/DD59 3K107/DD66 3K107/DD68 3K107/DD69 4C063/AA03 4C063/BB02 4C063/CC14 4C063/CC31 4C063/CC34 4C063/DD08 4C063/EE10 4C065/AA04 4C065/BB09 4C065/CC01 4C065/DD02 4C065/EE02 4C065/HH02 4C065/JJ08 4C065/KK01 4C065/LL01 4C065/PP09		
优先权	1020130158371 2013-12-18 KR 1020140073623 2014-06-17 KR		
其他公开文献	JP6683609B2		
外部链接	Espacenet		
摘要(译)			

本公开涉及有机电致发光化合物，以及多组分主体材料和包含其的有机电致发光器件。通过使用根据本公开的有机电致发光化合物，有机电致发光器件除了具有低驱动电压以及良好的电流效率和功率效率之外，还可以具有显著改善的寿命。[选择图]无

(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2017-503338	
				(P2017-503338A)	
				平成29年1月26日 (2017. 1. 26)	
				(43) 公表日	
(51) Int. Cl.		F I		テーマコード (参考)	
H 0 1 L 51/50 (2006.01)		H 0 5 B 33/14		B 3 K 1 0 7	
C O 7 D 403/14 (2006.01)		C O 7 D 403/14		C S P 4 C O 6 3	
C O 7 D 401/14 (2006.01)		C O 7 D 401/14		4 C O 6 5	
C O 7 D 471/04 (2006.01)		C O 7 D 471/04		1 1 4 A	
C O 9 K 11/06 (2006.01)		C O 9 K 11/06		6 6 0	
		審査請求 未請求 予備審査請求 未請求		(全 61 頁) 最終頁に続く	
(21) 出願番号		特願2016-534253 (P2016-534253)		(71) 出願人	
(86) (22) 出願日		平成26年12月18日 (2014. 12. 18)		ローム・アンド・ハース・エレクトロニク・マテリアルズ・コリア・リミテッド	
(85) 翻訳文提出日		平成28年5月25日 (2016. 5. 25)		大韓民国 3 3 1 - 9 8 0	
(86) 国際出願番号		PCT/KR2014/012547		チュンチョンナムド チョナンシ ソブクーク 3	
(87) 国際公開番号		W02015/093878		コンダン 1 - ロ 5 6	
(87) 国際公開日		平成27年6月25日 (2015. 6. 25)		(74) 代理人	
(31) 優先権主張番号		10-2013-0158371		110000589	
(32) 優先日		平成25年12月18日 (2013. 12. 18)		特許業務法人センタ国際特許事務所	
(33) 優先権主張国		韓国 (KR)		(72) 発明者	
(31) 優先権主張番号		10-2014-0073623		ミージャ・リー	
(32) 優先日		平成26年6月17日 (2014. 6. 17)		大韓民国 4 4 5 - 7 3 9	
(33) 優先権主張国		韓国 (KR)		キョンギード ファソンシ ヨントンロー 2 6 ビョ ンシル 2 4 3 0 5 - 1 5 0 3	
				最終頁に続く	
(54) 【発明の名称】 有機電界発光化合物、ならびにそれを含む多成分ホスト材料及び有機電界発光デバイス					