

(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2008-511161

(P2008-511161A)

(43) 公表日 平成20年4月10日(2008.4.10)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
H01L 51/50 (2006.01)	H05B 33/22 D	3K107
C09K 11/06 (2006.01)	H05B 33/14 B	
	H05B 33/22 B	
	C09K 11/06 645	

審査請求 有 予備審査請求 未請求 (全 94 頁)

(21) 出願番号	特願2007-529729 (P2007-529729)	(71) 出願人	502202007
(86) (22) 出願日	平成17年9月23日 (2005. 9. 23)		エルジー・ケム・リミテッド
(85) 翻訳文提出日	平成19年2月21日 (2007. 2. 21)		大韓民国、ソウル、ヨンドウンポ・ク、ヨ
(86) 国際出願番号	PCT/KR2005/003178		イド・ドン、20
(87) 国際公開番号	W02006/080645	(74) 代理人	100075812
(87) 国際公開日	平成18年8月3日 (2006. 8. 3)		弁理士 吉武 賢次
(31) 優先権主張番号	10-2004-0077214	(74) 代理人	100091487
(32) 優先日	平成16年9月24日 (2004. 9. 24)		弁理士 中村 行孝
(33) 優先権主張国	韓国 (KR)	(74) 代理人	100094640
			弁理士 紺野 昭男
		(74) 代理人	100107342
			弁理士 横田 修孝
		(74) 代理人	100109841
			弁理士 堅田 健史

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 新しい有機発光素子材料およびこれを用いた有機発光素子 (9)

(57) 【要約】

本発明は、第1電極、発光層、1層以上の有機物層および第2電極を積層した形態を含む有機発光素子であって、前記有機物層中の1層以上が下記化学式1の化合物、または、この化合物に熱硬化性または光硬化性の官能基が導入された化合物を含む有機発光素子を提供する。

【特許請求の範囲】

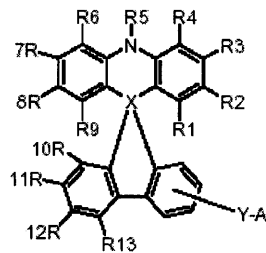
【請求項 1】

第 1 電極と、発光層と、1 層以上の有機物層と、および第 2 電極とを備えてなる有機発光素子であって、

前記有機物層中の 1 層以上が下記化学式 1 の化合物、または該化合物に熱硬化性または光硬化性の官能基が導入された化合物を含んでなる、有機発光素子。

【化 1】

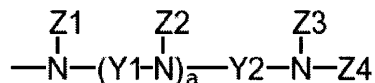
[化学式 1]



[前記化学式 1 において、
X は C または Si であり、

A は

【化 2】



であり、

a は 0 または 1 以上の整数であり、

Y は結合や 2 価の芳香族炭化水素；ニトロ、ニトリル、ハロゲン、アルキル基、アルコキシ基およびアミノ基からなる群より選択される 1 つ以上の置換基で置換された 2 価の芳香族炭化水素；2 価の複素環基；またはニトロ、ニトリル、ハロゲン、アルキル基、アルコキシ基およびアミノ基からなる群より選択される 1 つ以上の置換基で置換された 2 価の複素環基であり、

Y 1 および Y 2 は、各々独立的に 2 価の芳香族炭化水素；ニトロ、ニトリル、ハロゲン、アルキル基、アルコキシ基およびアミノ基からなる群より選択される 1 つ以上の置換基によって置換された 2 価の芳香族炭化水素；2 価のヘテロ環基；またはニトロ、ニトリル、ハロゲン、アルキル基、アルコキシ基およびアミノ基からなる群より選択される 1 つ以上の置換基によって置換された 2 価のヘテロ環基であり、

Z 1 ~ Z 4 は、各々独立的に、水素；炭素数 1 - 20 の脂肪族炭化水素；芳香族炭化水素；ニトロ、ニトリル、ハロゲン、アルキル基、アルコキシ基、アミノ基、芳香族炭化水素および複素環基からなる群より選択される 1 つ以上の置換基によって置換された芳香族炭化水素；芳香族炭化水素によって置換されたシリコン基；複素環基；ニトロ、ニトリル、ハロゲン、アルキル基、アルコキシ基、アミノ基、芳香族炭化水素および複素環基からなる群より選択される 1 つ以上の置換基によって置換された複素環基；炭素数 1 - 20 の炭化水素または炭素数 6 - 20 の芳香族炭化水素で置換されたチオフェン基；または芳香族炭化水素で置換されたホウ素基であり、

R 1 ~ R 4 および R 6 ~ R 13 は、各々独立的に水素、置換または非置換されたアルキル基、置換または非置換されたアルコキシ基、置換または非置換されたアルケニル基、置換または非置換されたアリール基、置換または非置換されたアリールアミン基、置換または非置換された複素環基、アミノ基、ニトリル基、ニトロ基、ハロゲン基、アミド基、エステル基からなる群より選択され、ここで、これらは互いに隣接する基と脂肪族または

10

20

30

40

50

ヘテロの縮合環を形成することができ、

R 5 は、水素、置換または非置換されたアルキル基、置換または非置換されたシクロアルキル基、置換または非置換されたアルケニル基、置換または非置換されたアリール基、または置換または非置換された複素環基からなる群より選択され、

ここで、R 5 がアリール基または複素環基である場合、アリールまたは複素環基のオルト (ortho) の位置の炭素と R 4 または R 6 は、O、S、NR、PR、C=O、CRR' および SiRR' からなる群より選択される基と共に縮合環を形成することができ、ここで R および R' は各々独立的に水素、置換または非置換されたアルキル基、置換または非置換されたアルコキシ基、置換または非置換されたアルケニル基、置換または非置換されたアリール基、置換または非置換されたアリールアミン基、置換または非置換された複素環基、ニトリル基、アミド基およびエステル基からなる群より選択され、ここで、R と R' は縮合環を形成してスピロ化合物を形成することができるものである。]

10

【請求項 2】

前記化学式 1 中、

R 5 がアリール基または複素環基である、請求項 1 に記載の有機発光素子。

【請求項 3】

前記化学式 1 中、

R 5 がアリール基または複素環基であり、前記アリールまたは複素環基のオルト (ortho) 位置の炭素と R 4 または R 6 は O、S、NR、PR、C=O、CRR' および SiRR' (ここで、R および R' は化学式 1 で定義した通りである) からなる群より選択される基と共に縮合環を形成するものである、請求項 2 に記載の有機発光素子。

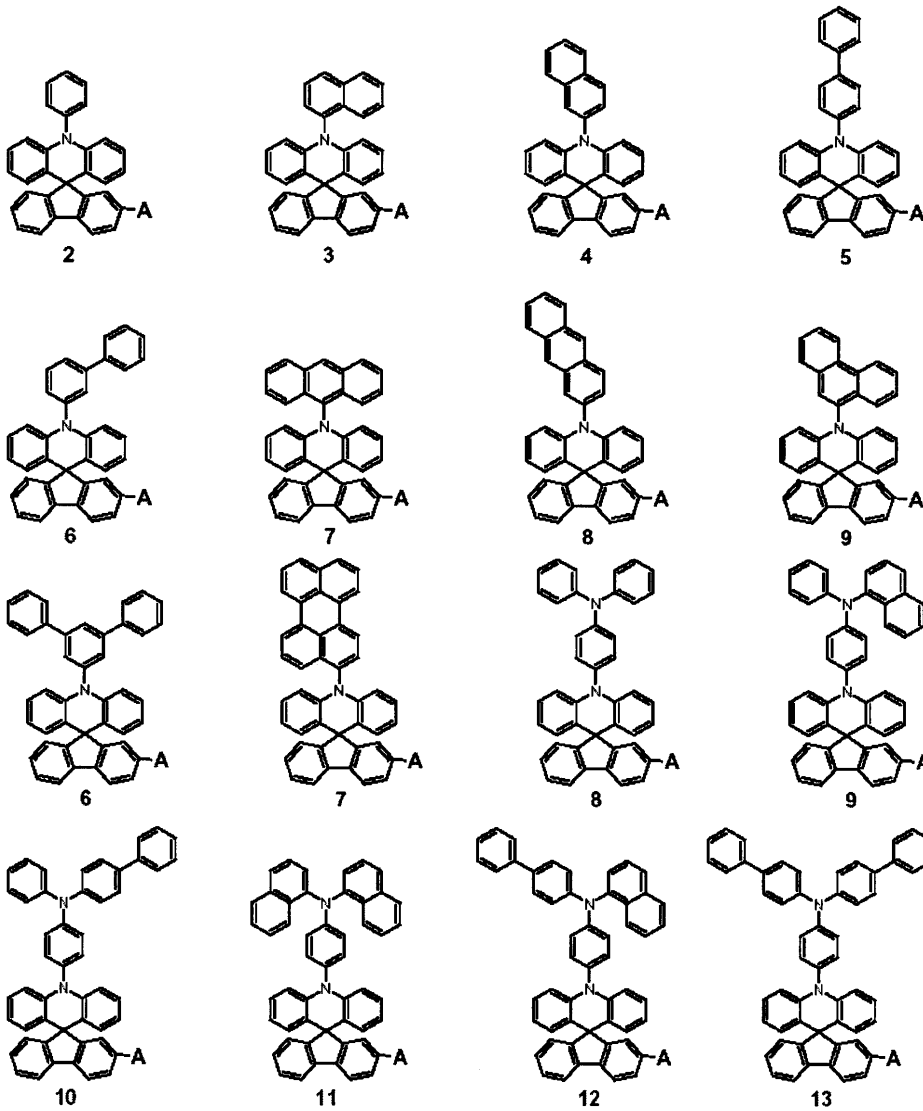
20

【請求項 4】

前記化学式 1 の化合物が、下記化学式 2 ~ 化学式 119 中のいずれか 1 つの化合物である、請求項 1 に記載の有機発光素子。

【化 3】

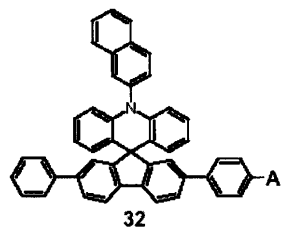
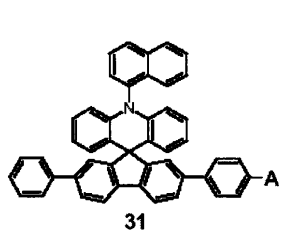
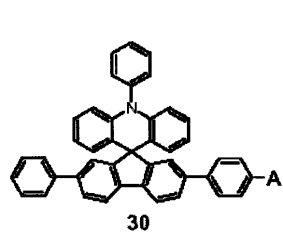
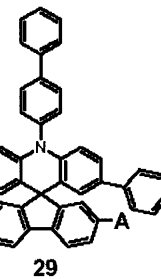
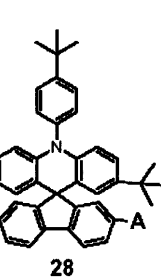
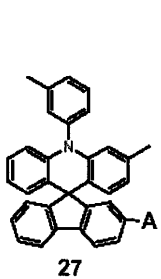
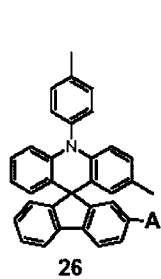
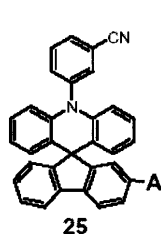
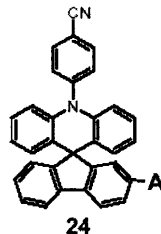
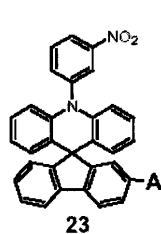
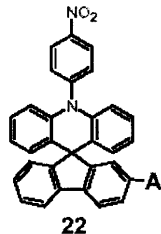
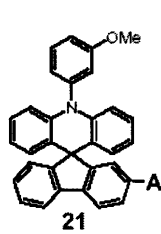
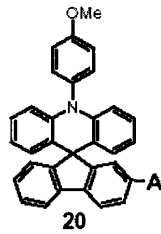
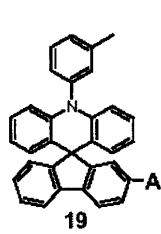
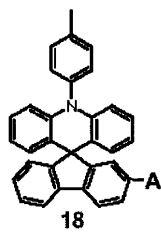
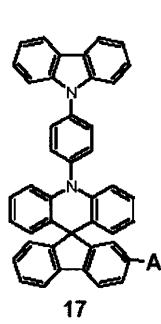
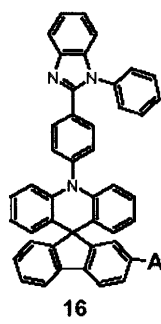
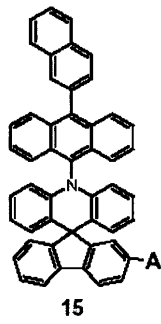
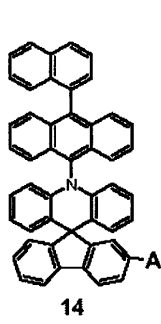
[化学式 2 ~ 化学式 1 1 9]



10

20

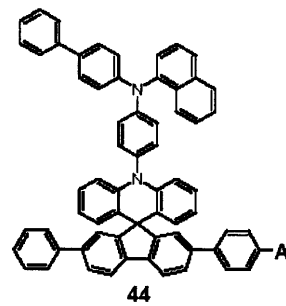
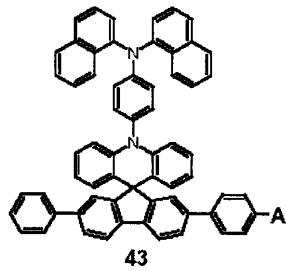
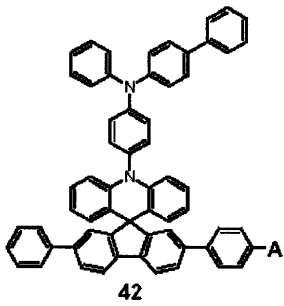
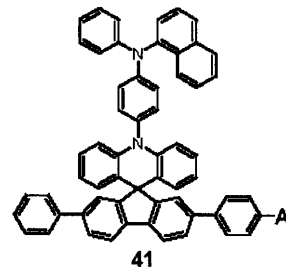
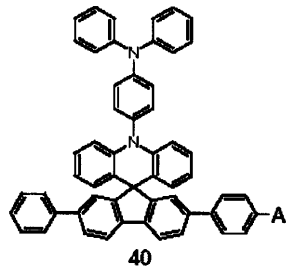
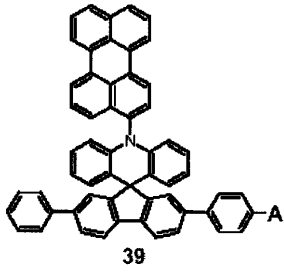
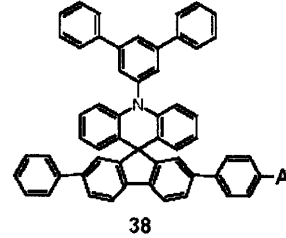
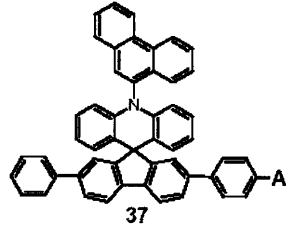
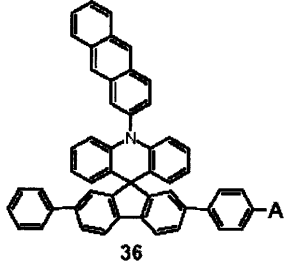
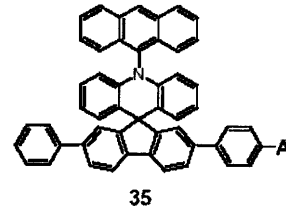
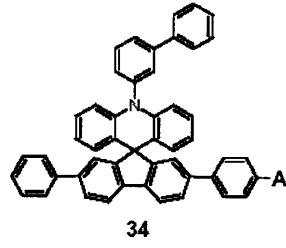
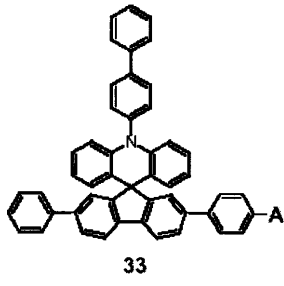
30



10

20

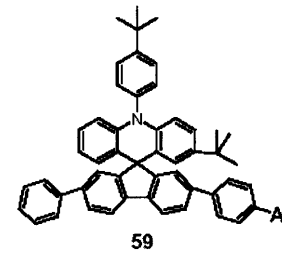
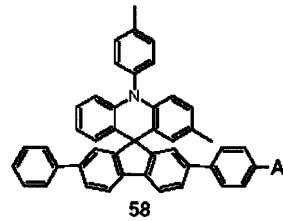
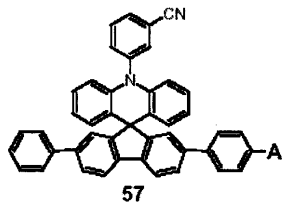
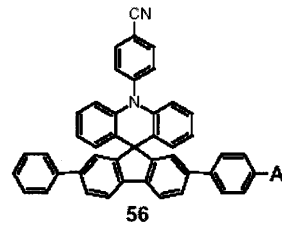
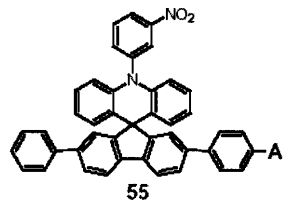
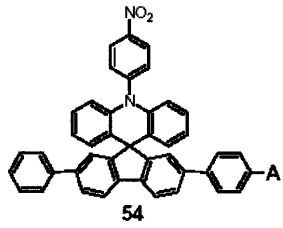
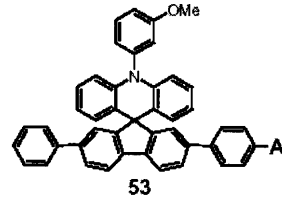
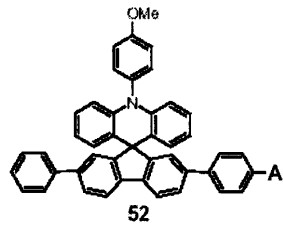
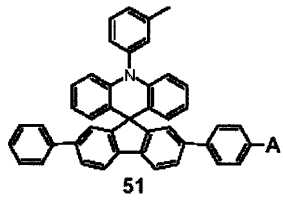
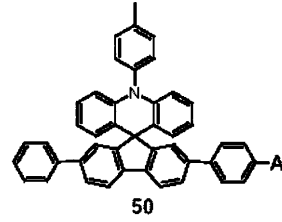
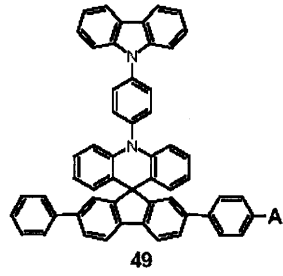
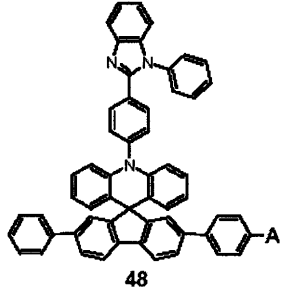
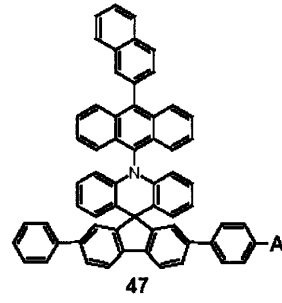
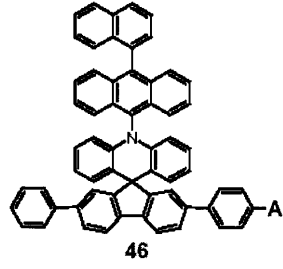
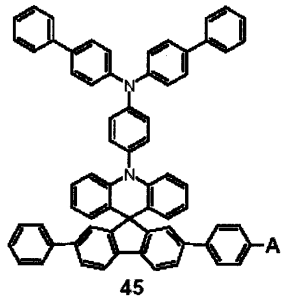
30



10

20

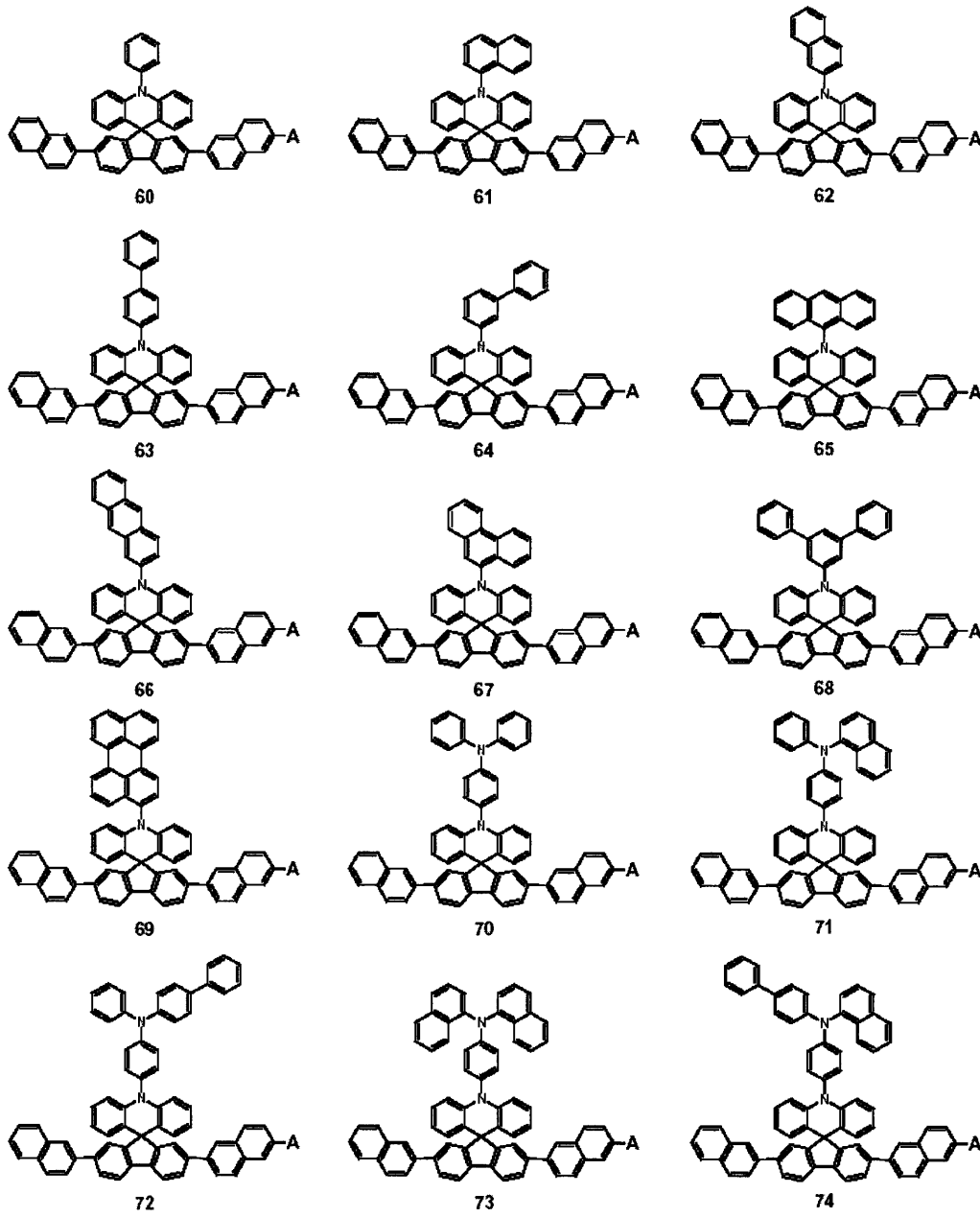
30



10

20

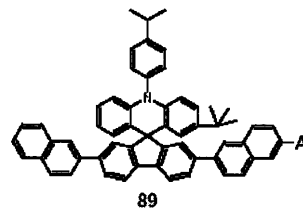
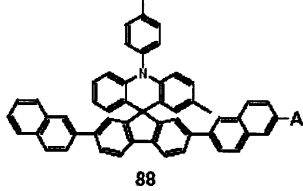
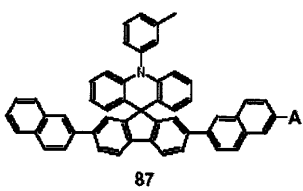
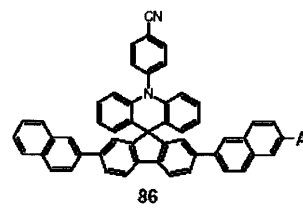
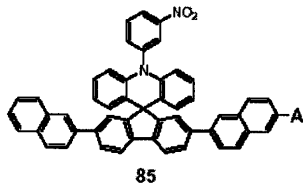
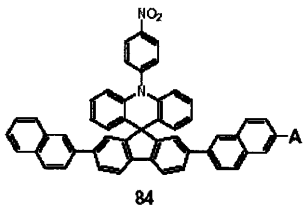
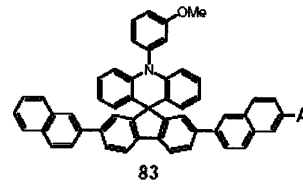
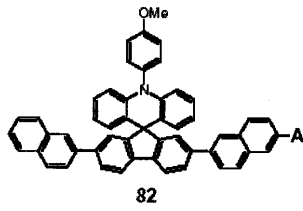
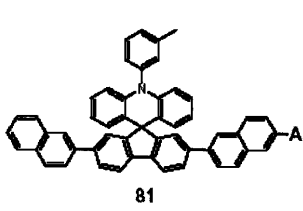
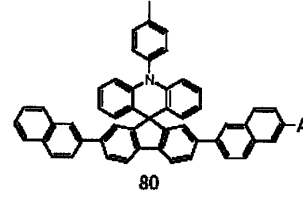
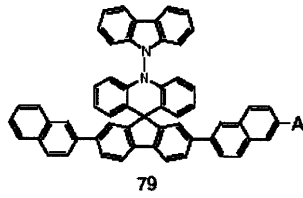
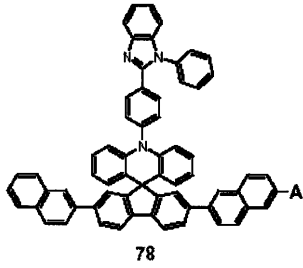
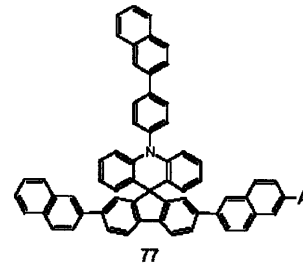
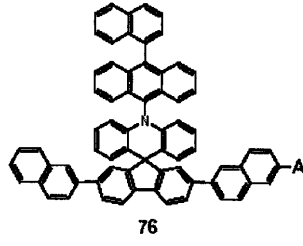
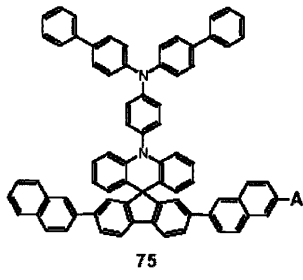
30



10

20

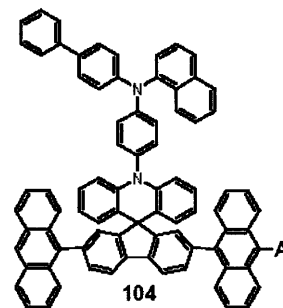
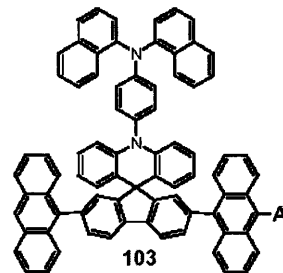
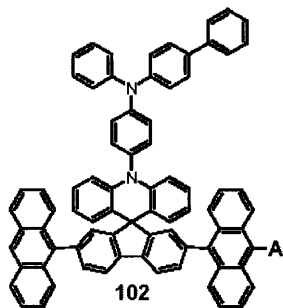
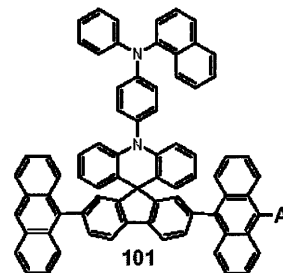
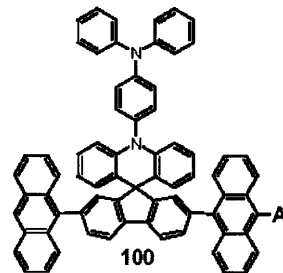
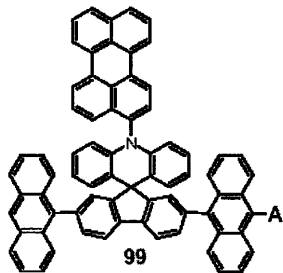
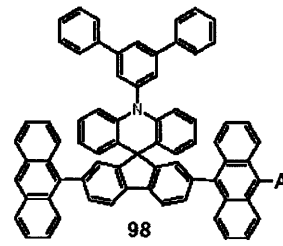
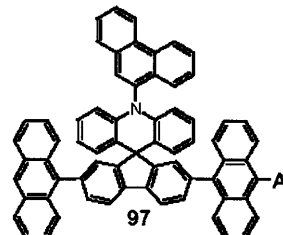
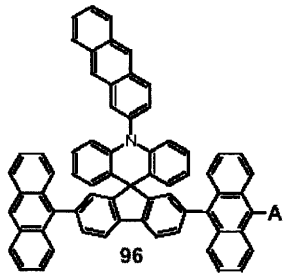
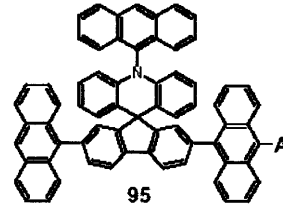
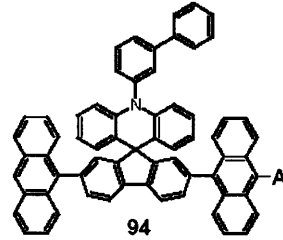
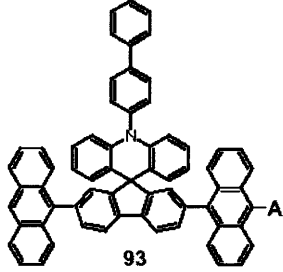
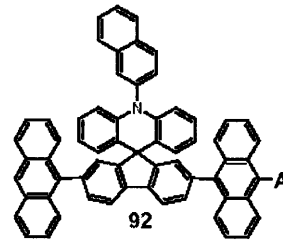
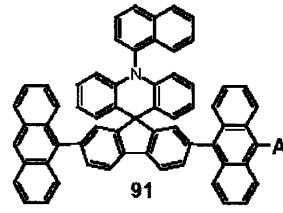
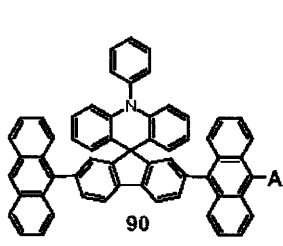
30



10

20

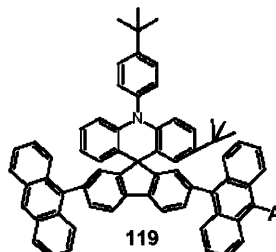
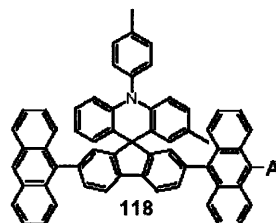
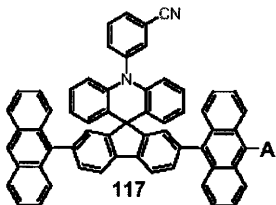
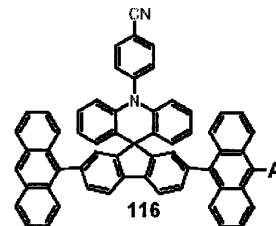
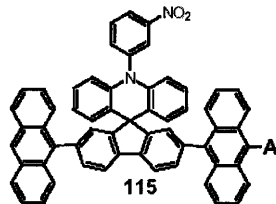
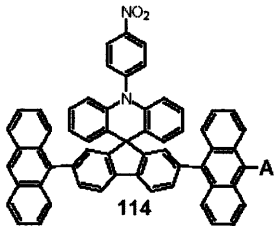
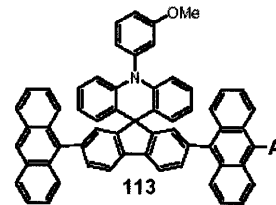
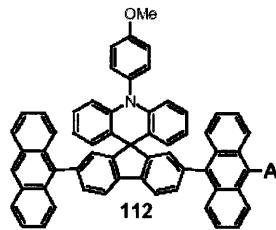
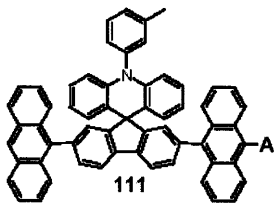
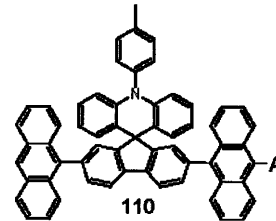
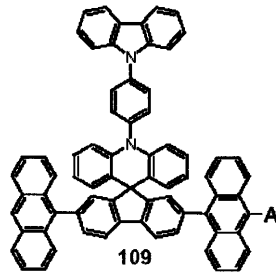
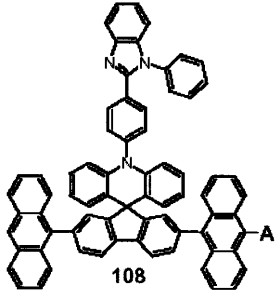
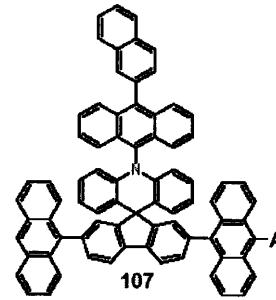
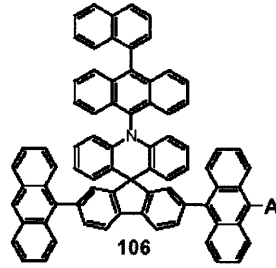
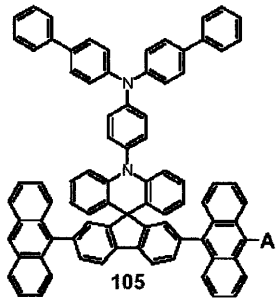
30



10

20

30



[上記化学式において、Aは請求項1で定義された通りである。]

【請求項5】

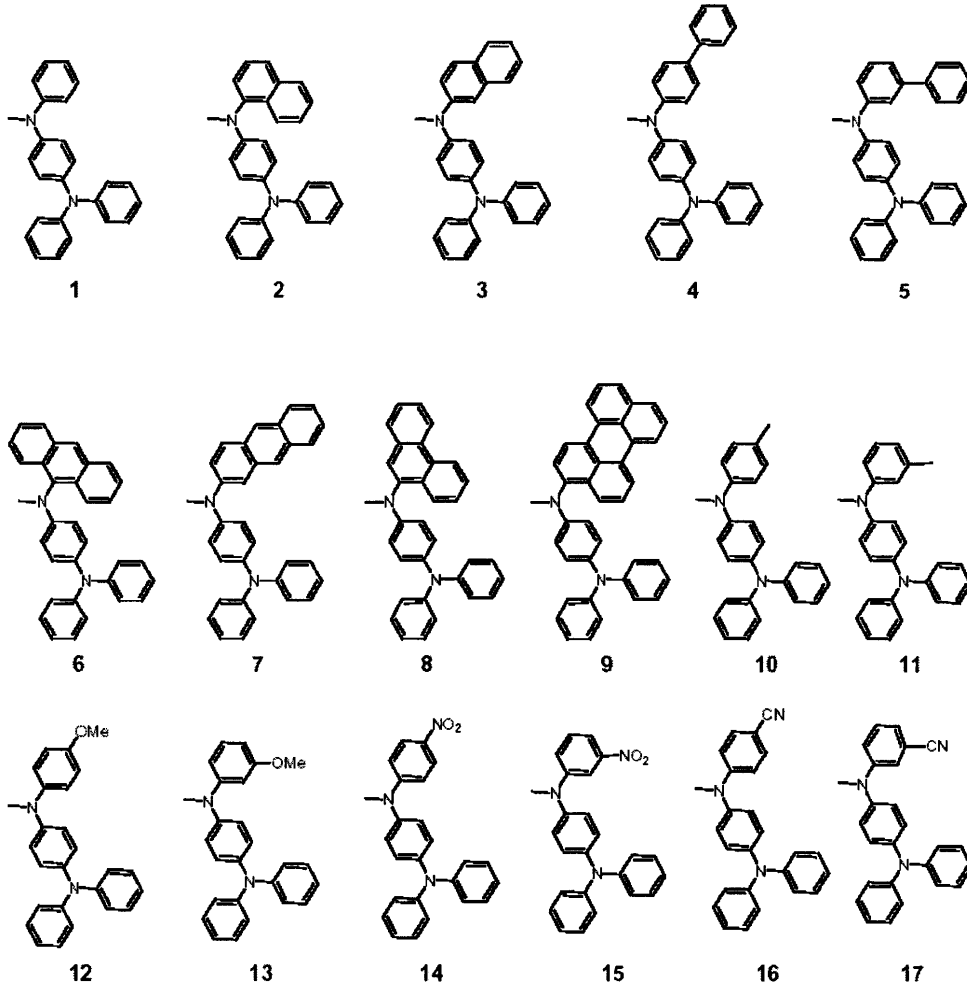
Aが独立的に下記の基のうちの1つである、請求項4に記載の有機発光素子。

10

20

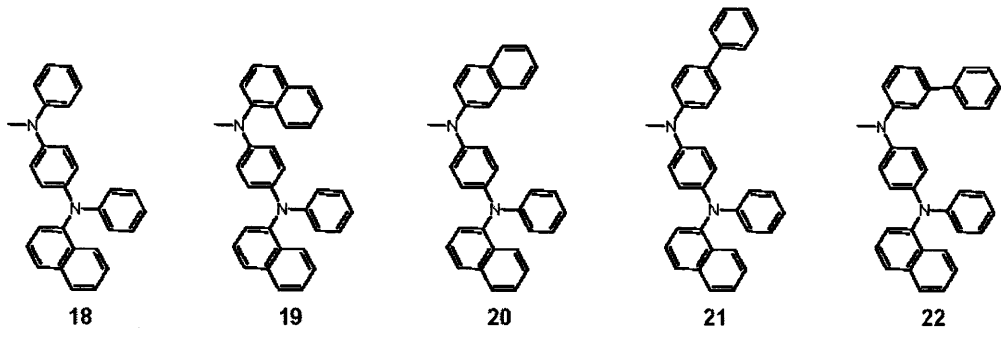
30

【化 4】

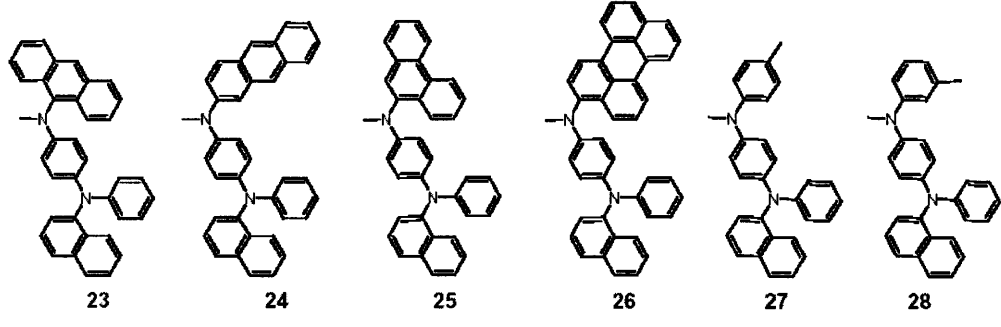


10

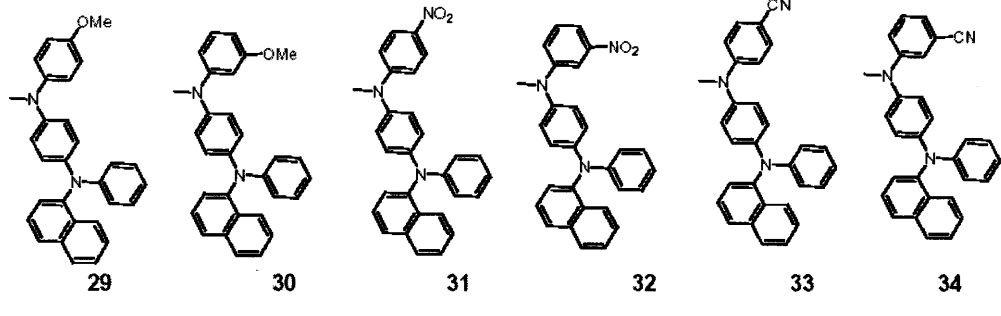
20



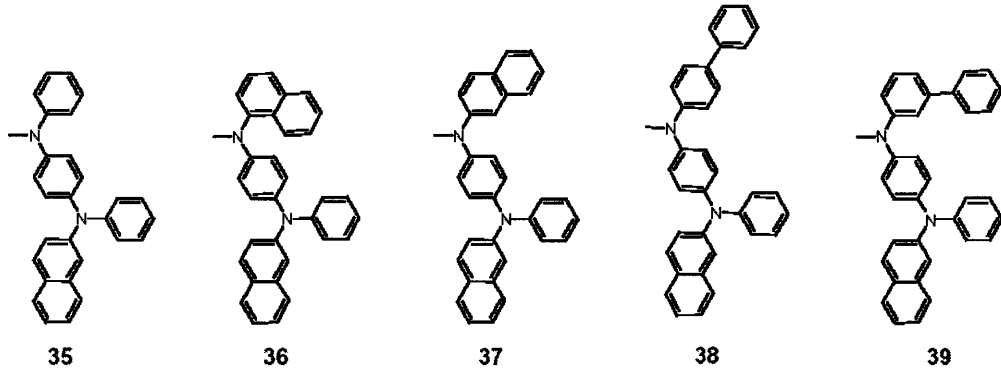
10

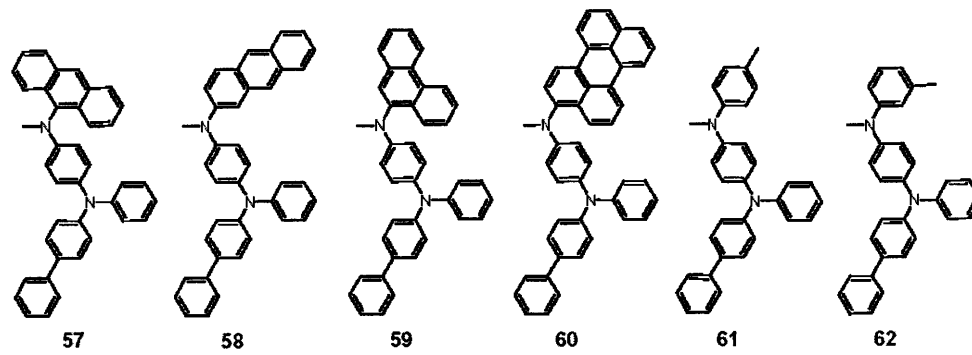
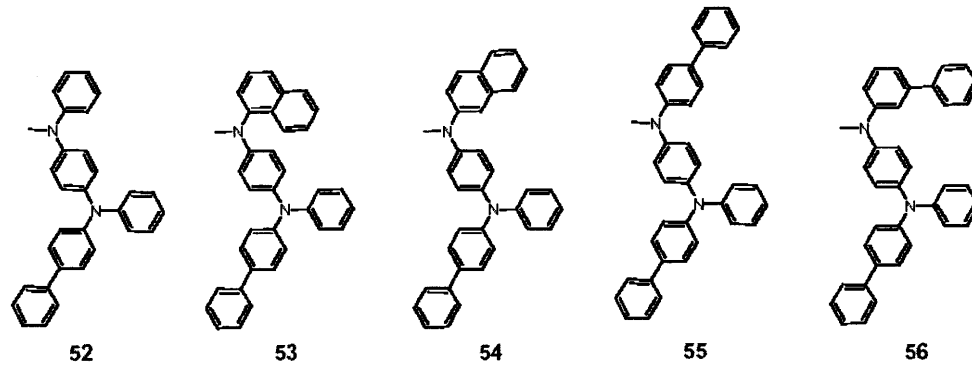
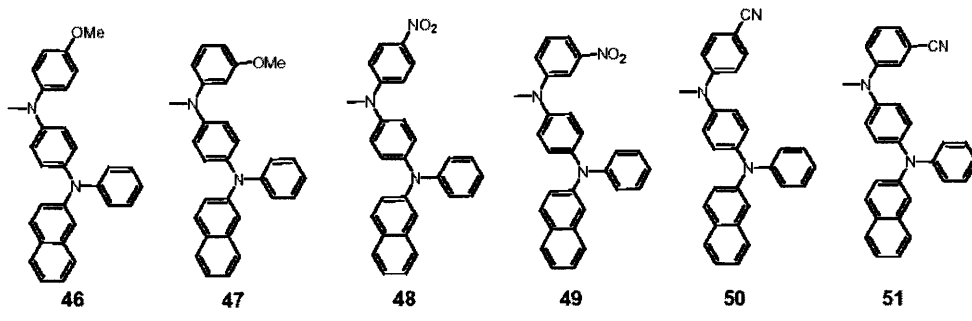
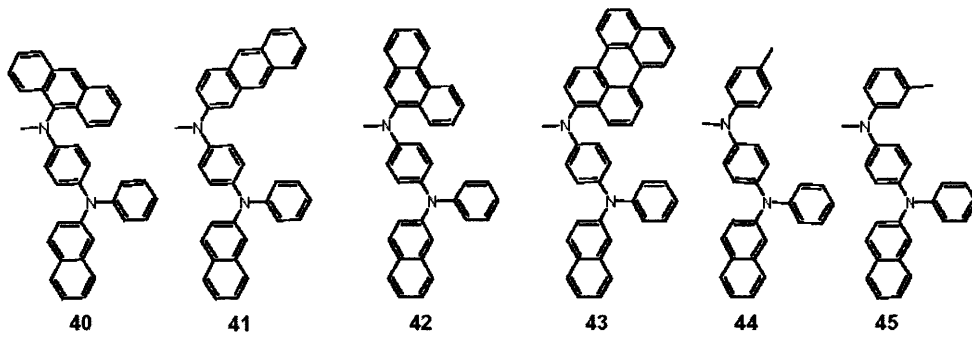


20



30

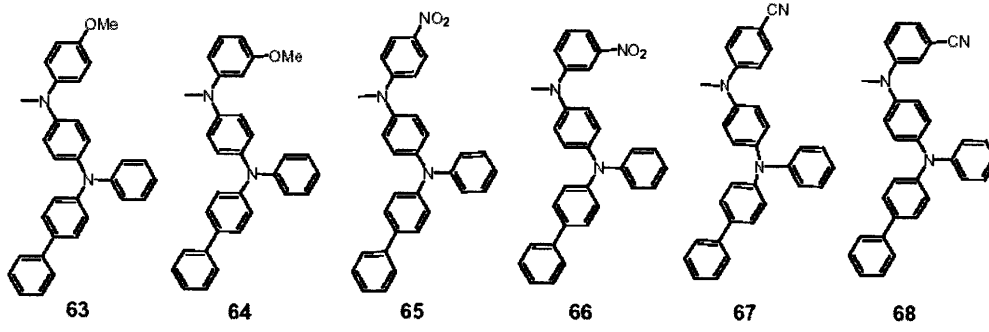




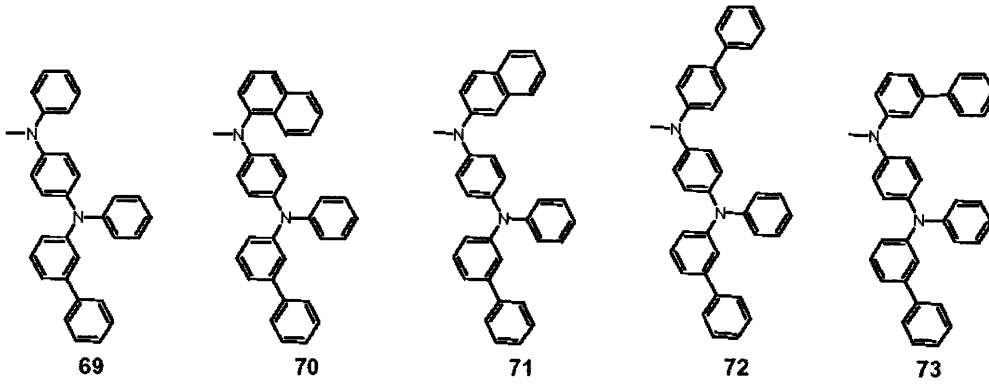
10

20

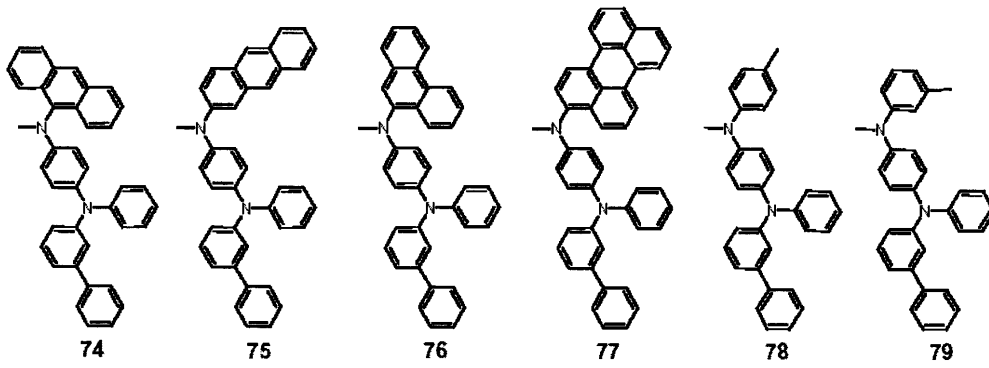
30



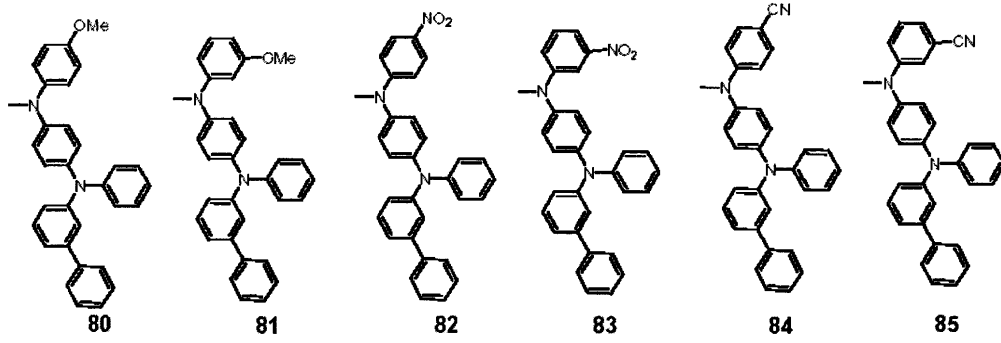
10



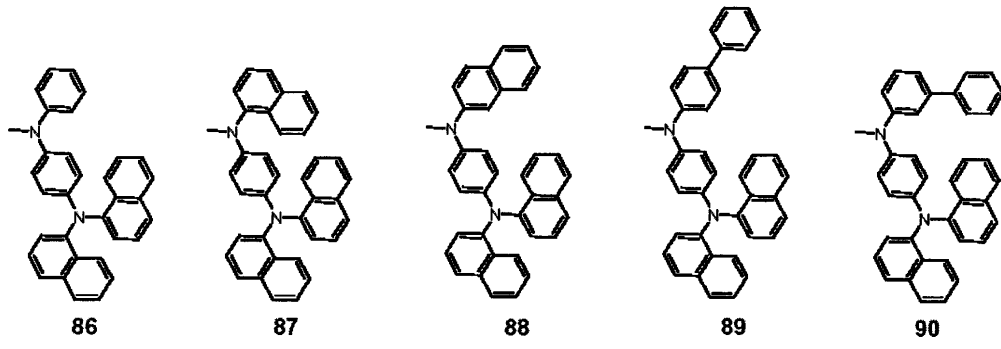
20



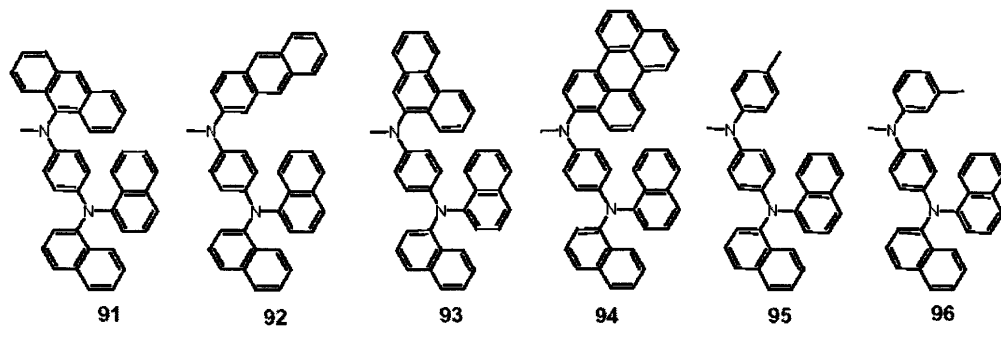
30



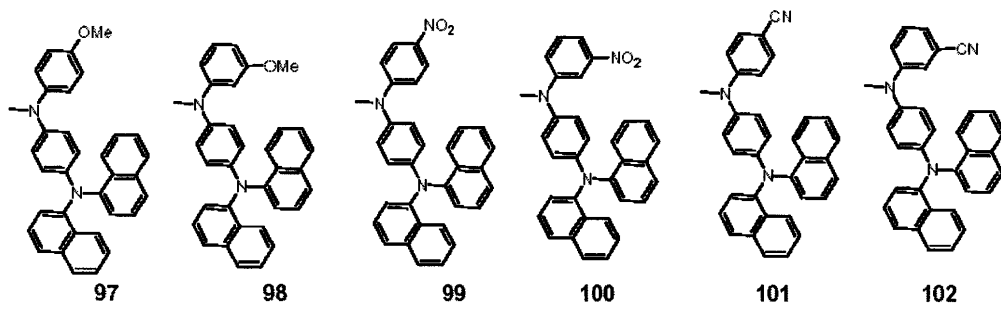
10

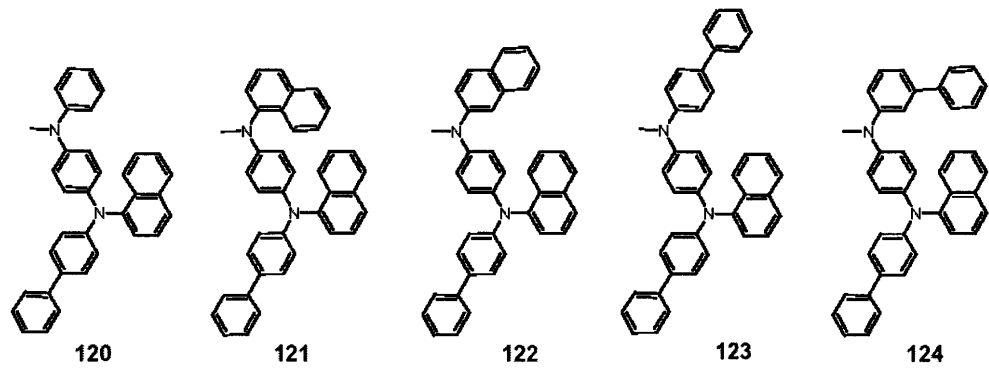
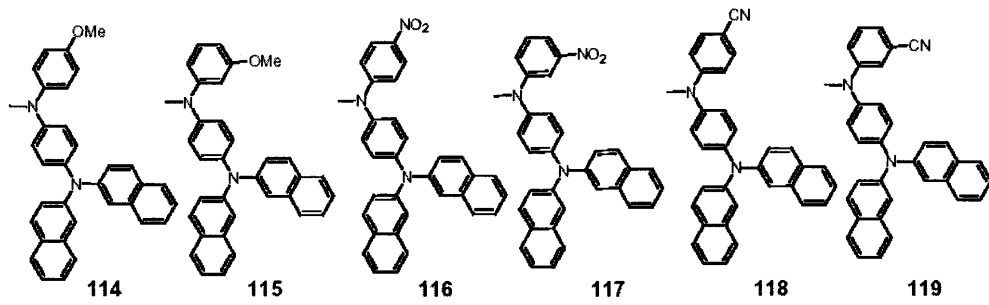
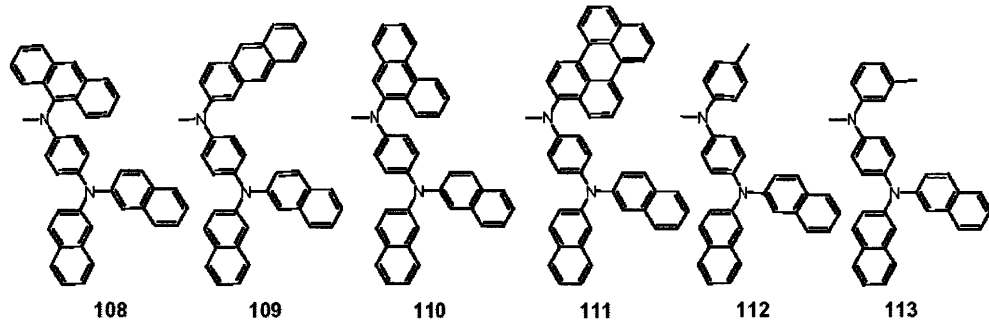
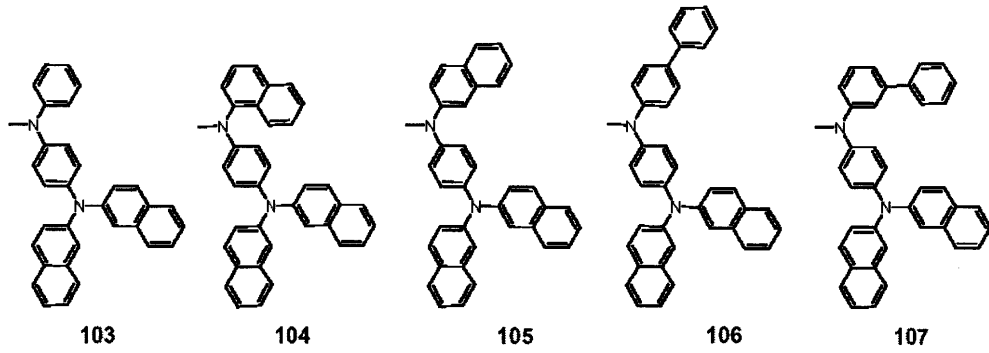


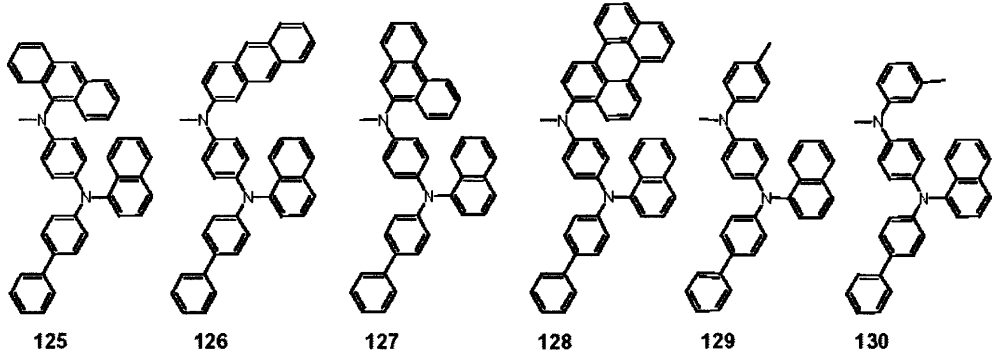
20



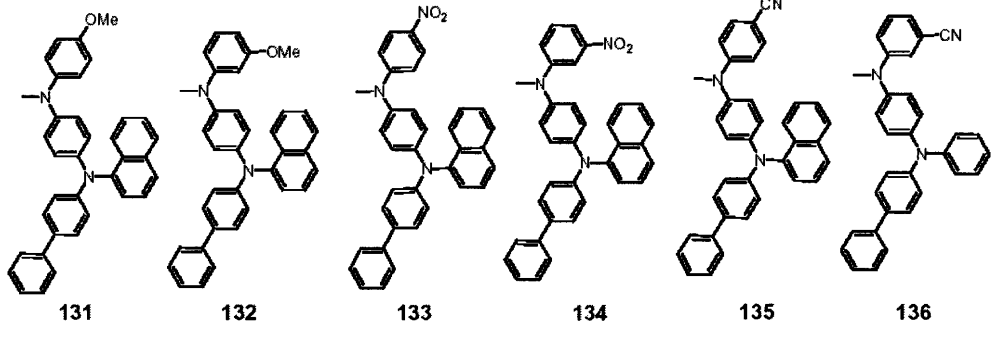
30



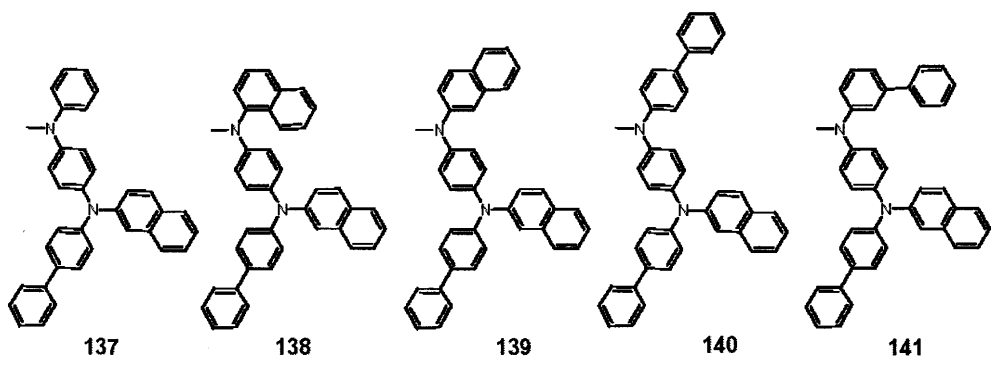




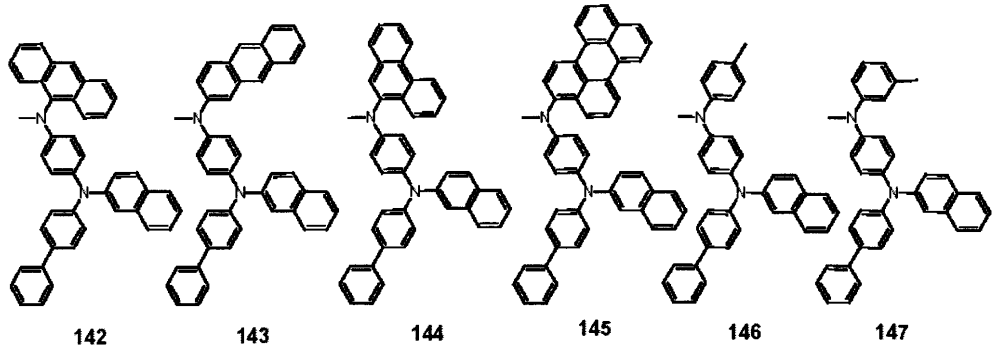
10

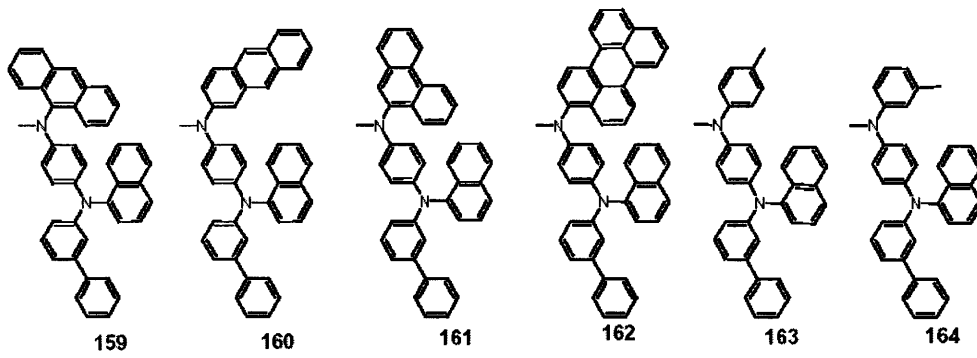
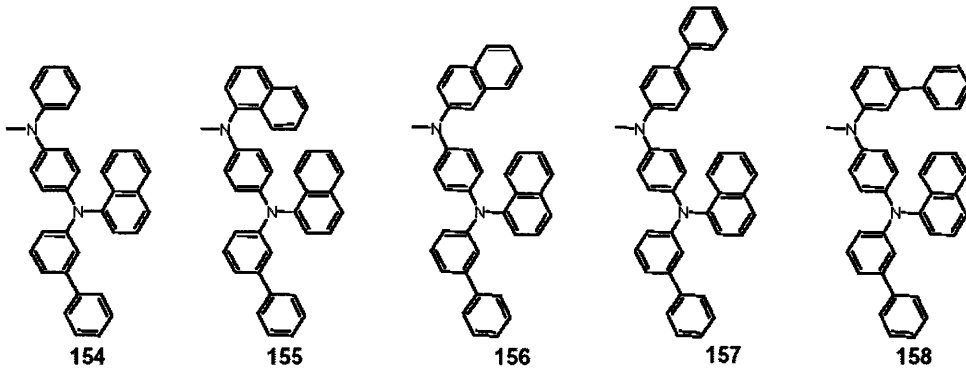
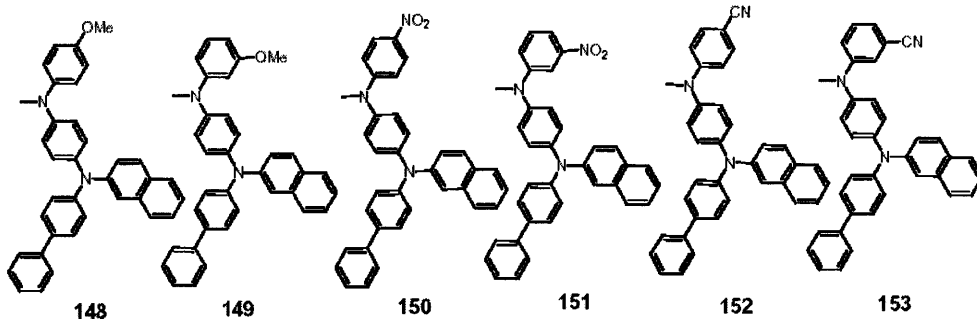


20



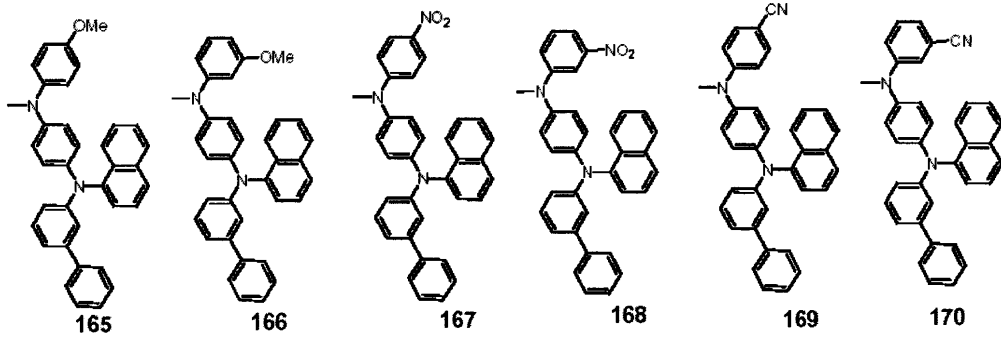
30



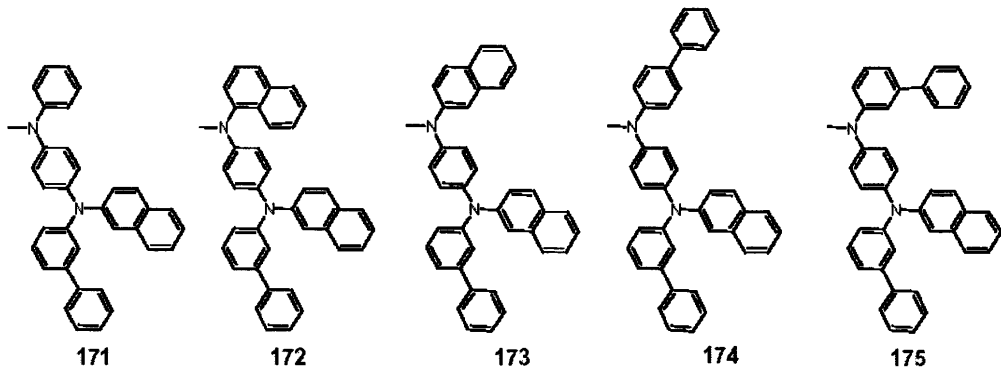


10

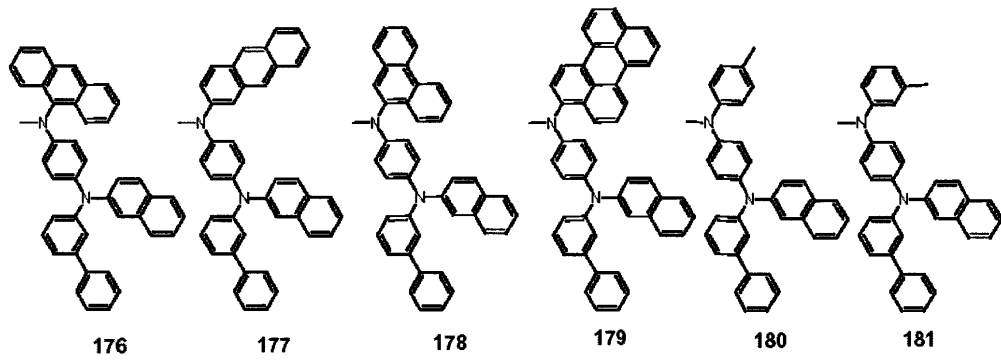
20



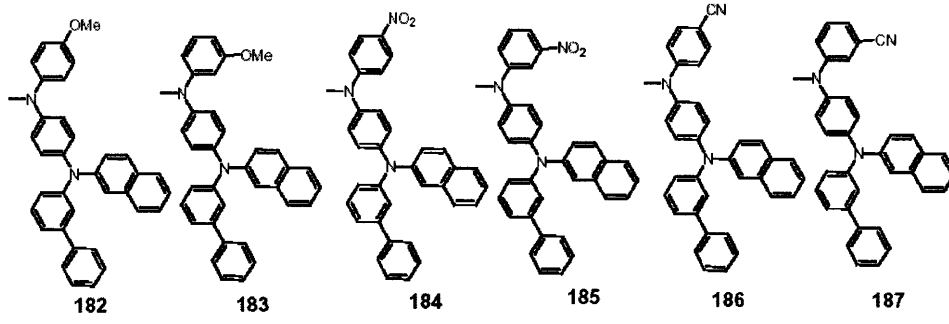
10



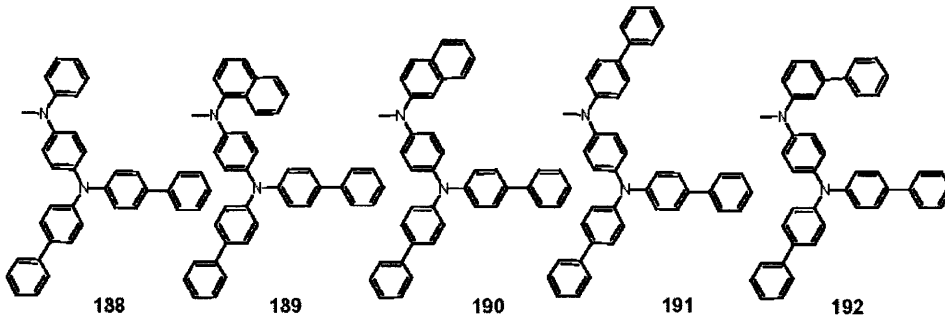
20



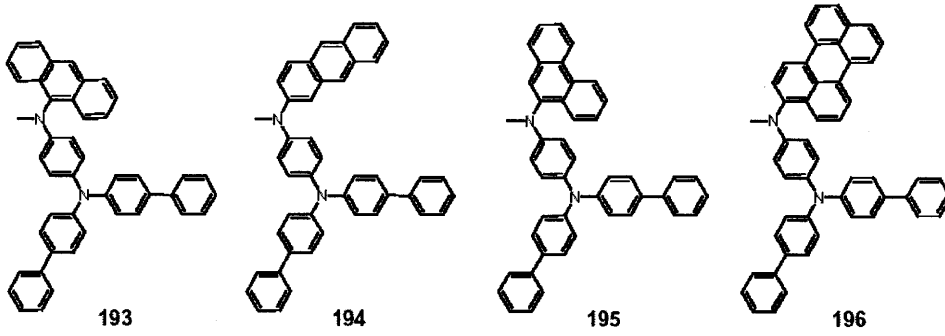
30



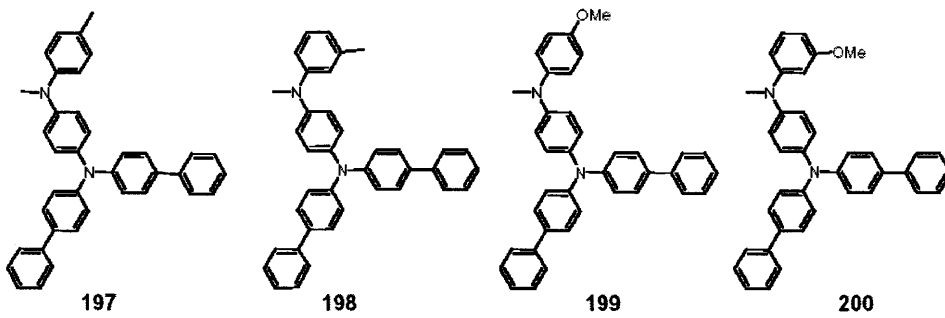
10

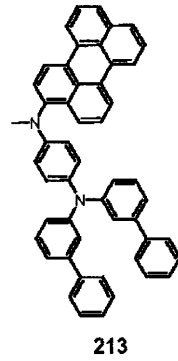
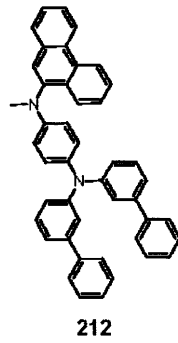
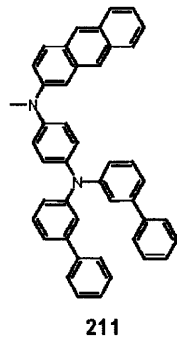
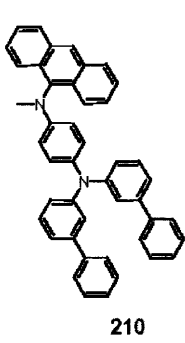
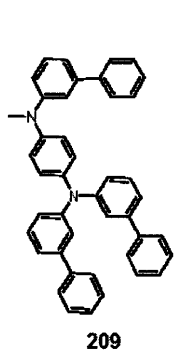
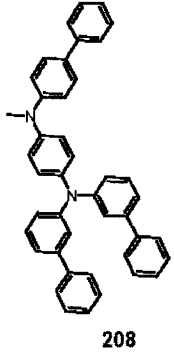
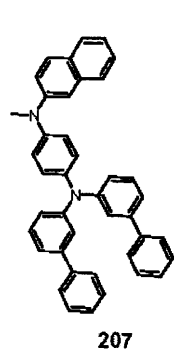
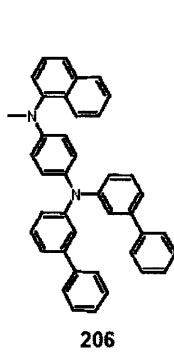
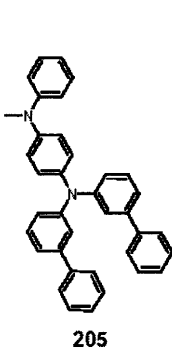
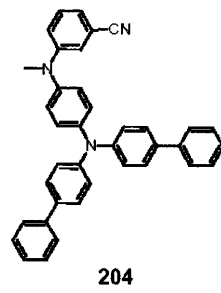
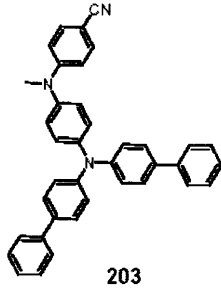
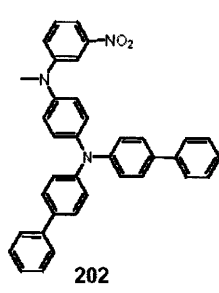
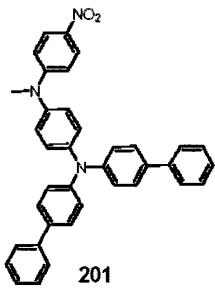


20



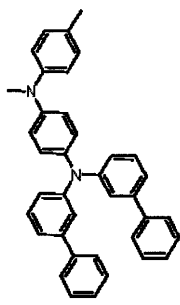
30



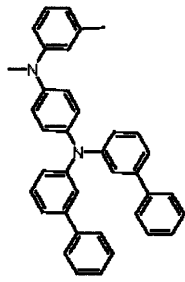


10

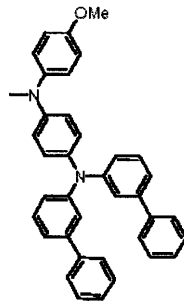
20



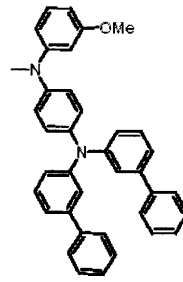
214



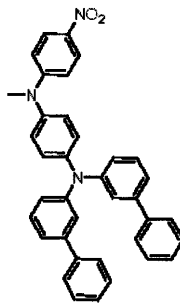
215



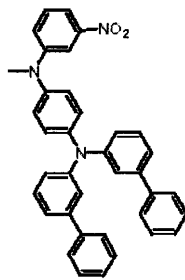
216



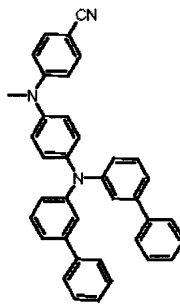
217



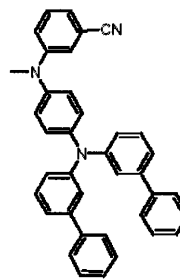
218



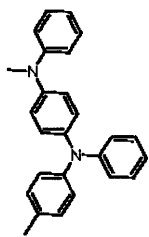
219



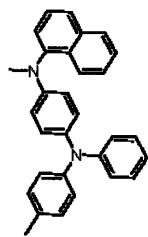
220



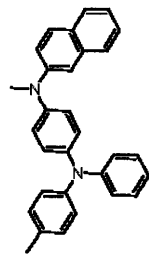
221



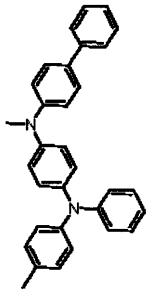
222



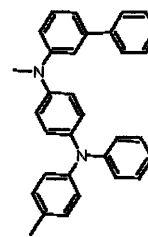
223



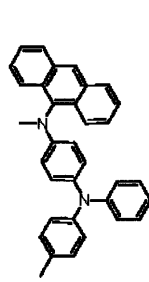
224



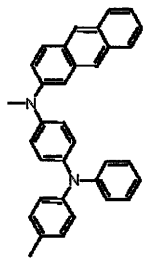
225



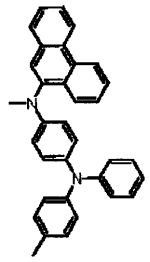
226



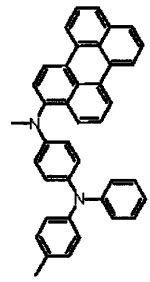
227



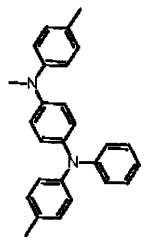
228



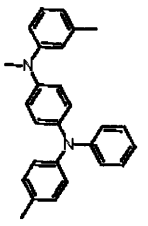
229



230



231

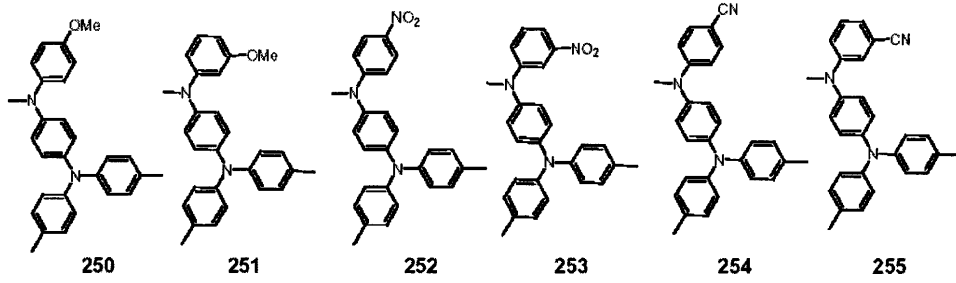
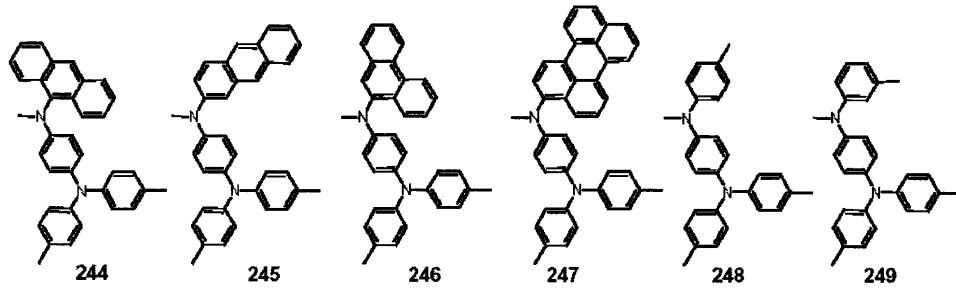
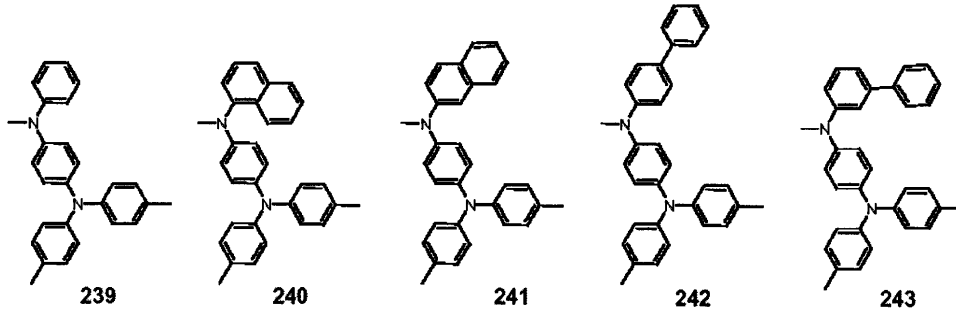
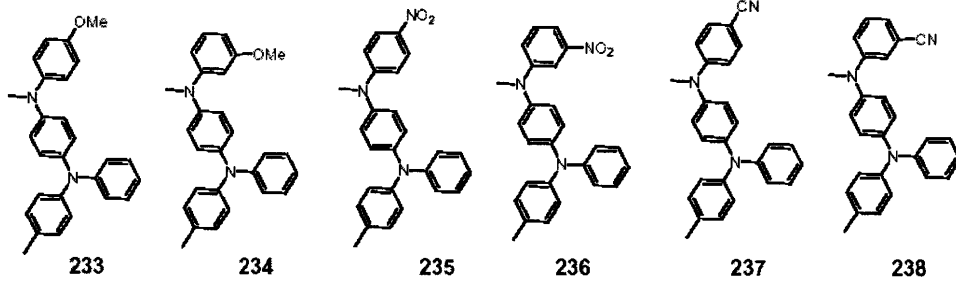


232

10

20

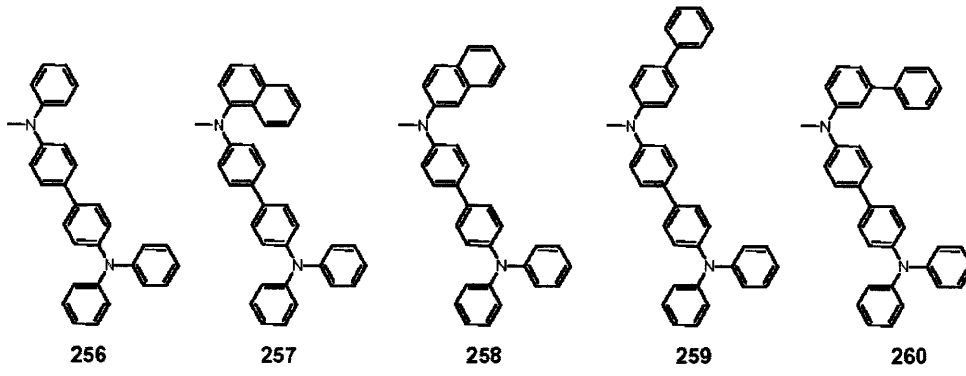
30



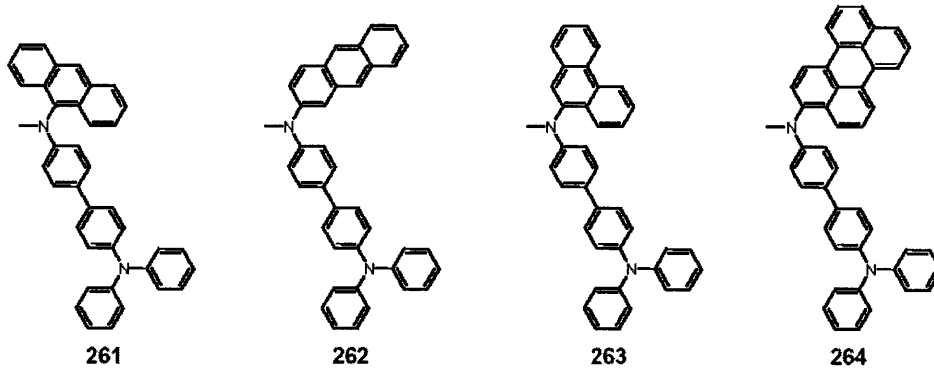
10

20

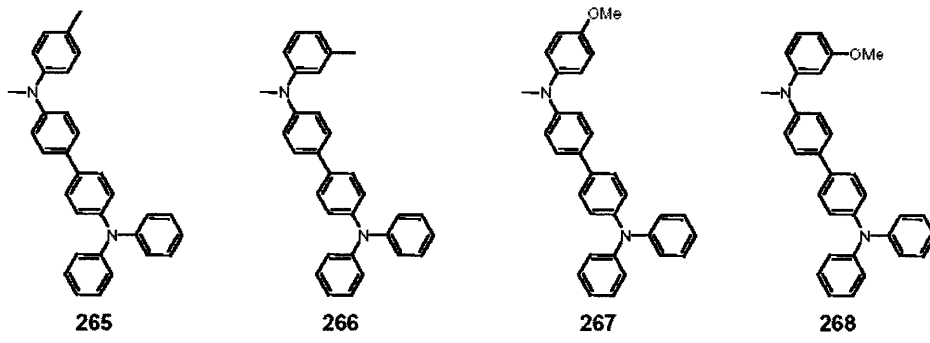
30



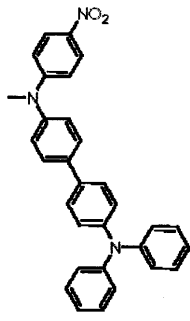
10



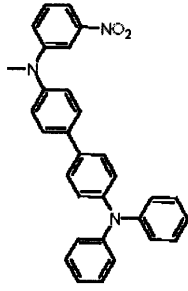
20



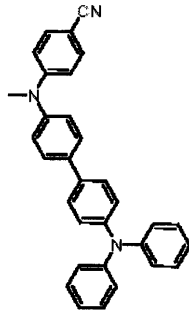
30



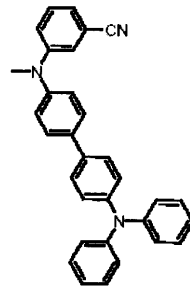
269



270

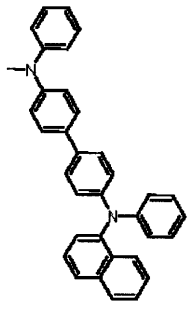


271

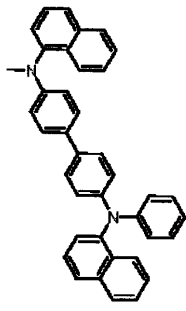


272

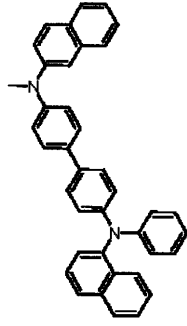
10



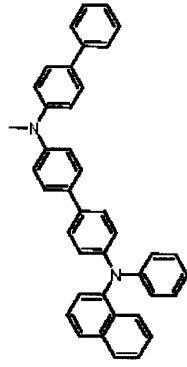
273



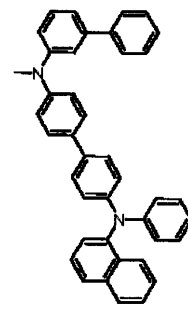
274



275

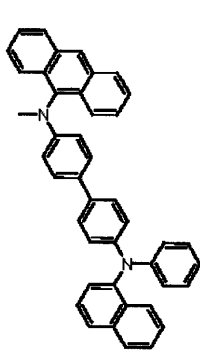


276

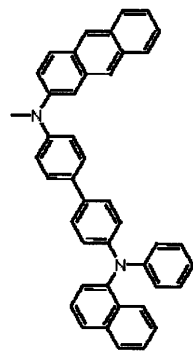


277

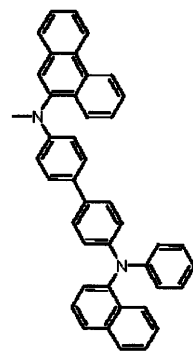
20



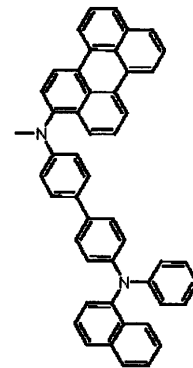
278



279

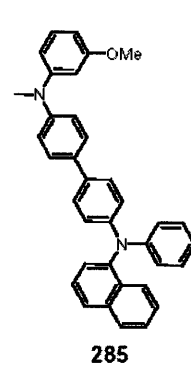
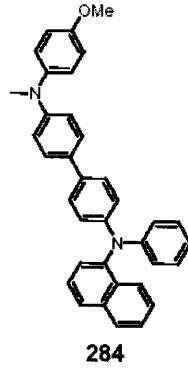
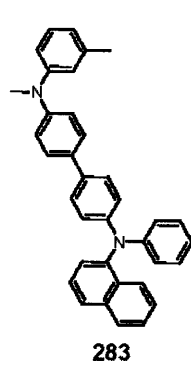
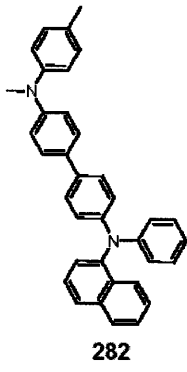


280

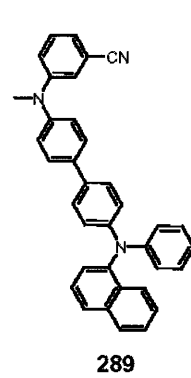
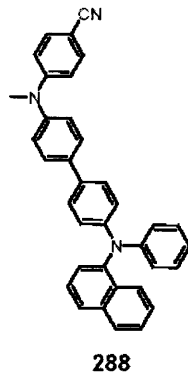
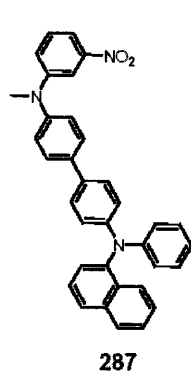
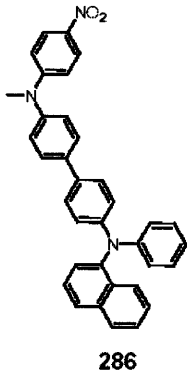


281

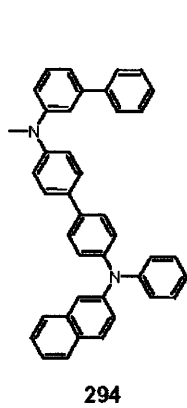
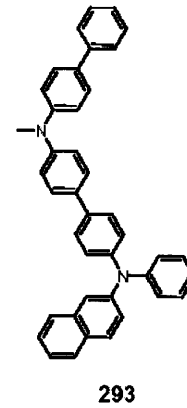
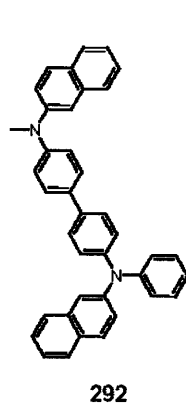
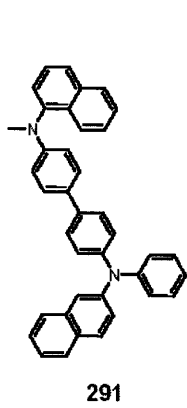
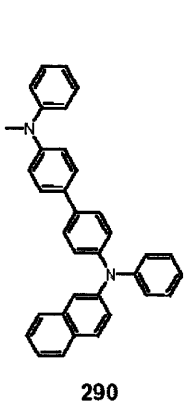
30



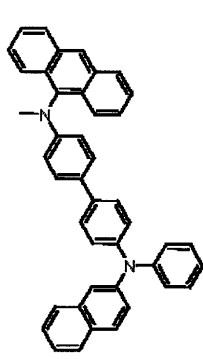
10



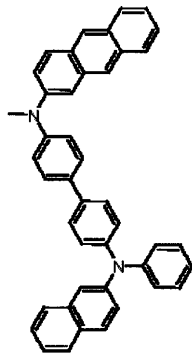
20



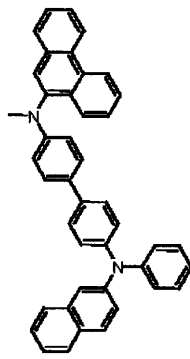
30



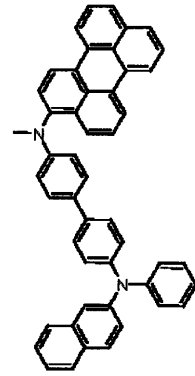
295



296

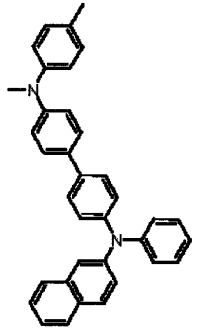


297

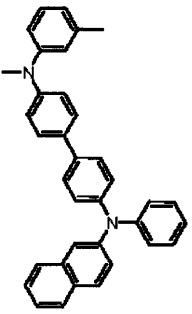


298

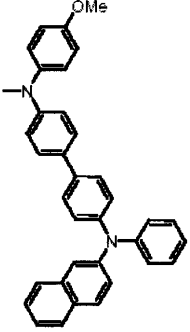
10



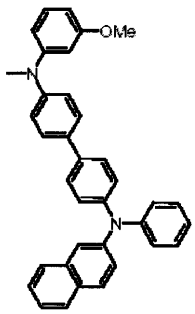
299



300

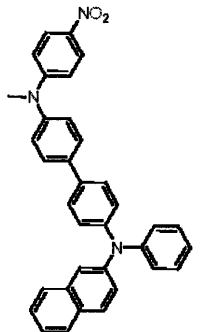


301

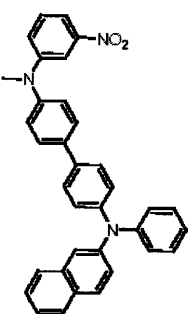


302

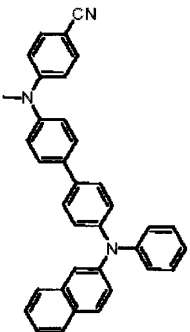
20



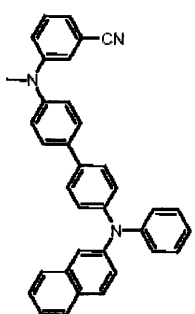
303



304

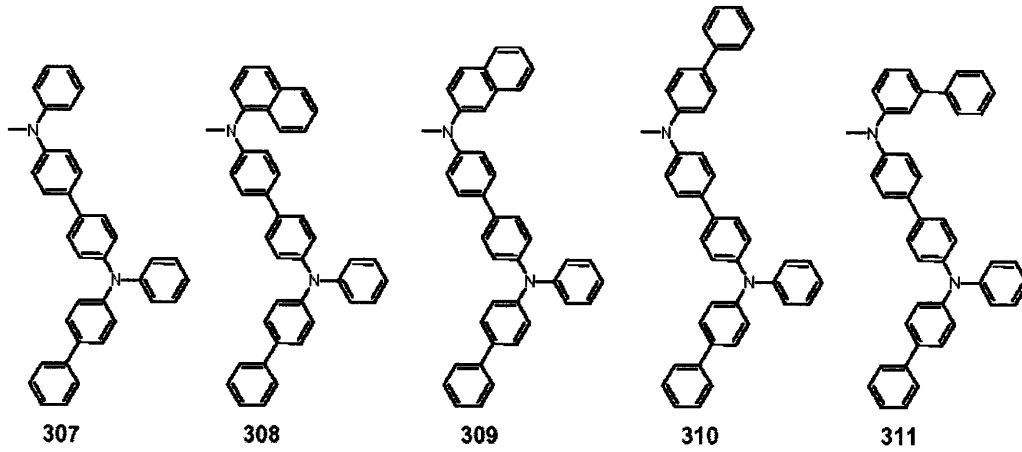


305

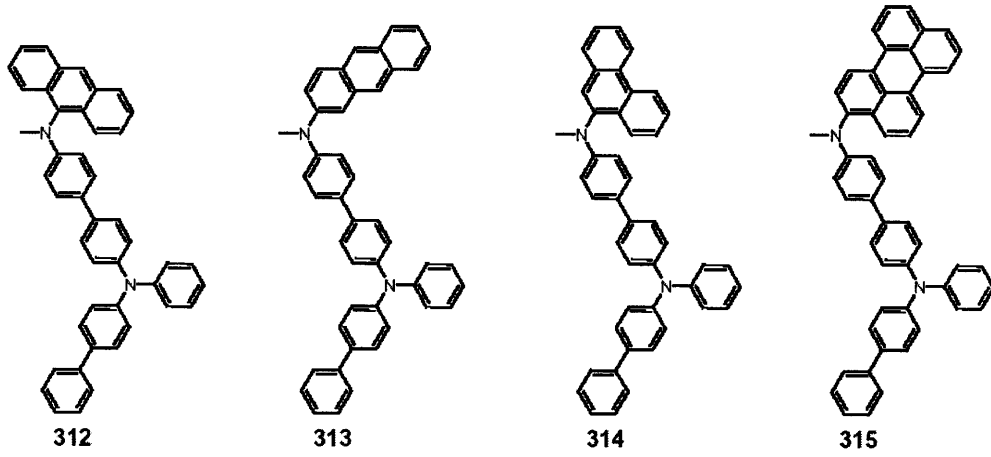


306

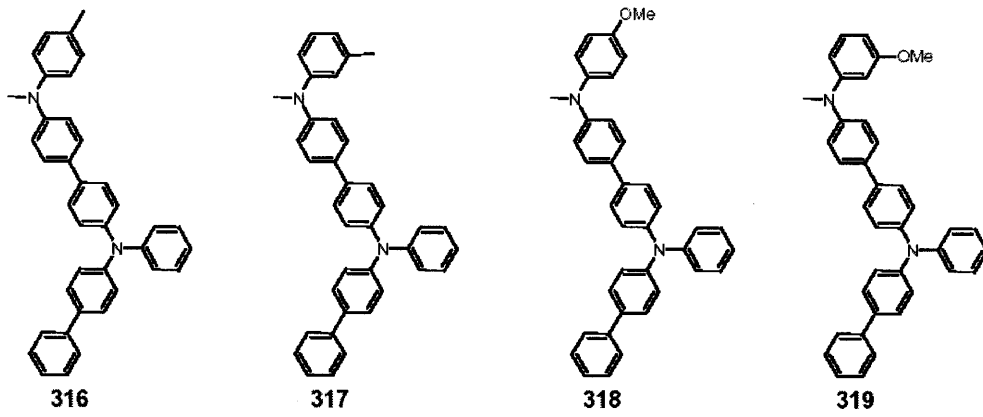
30



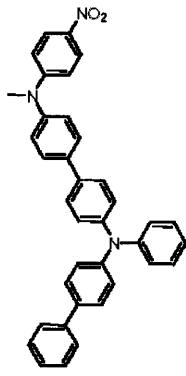
10



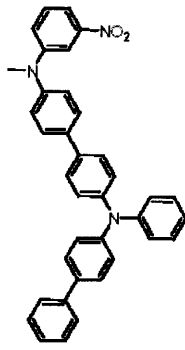
20



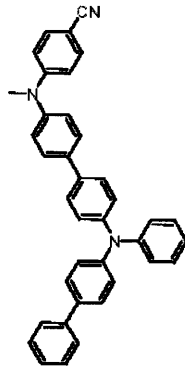
30



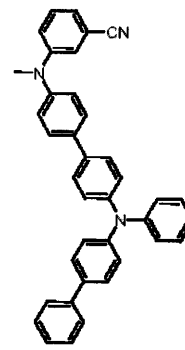
320



321

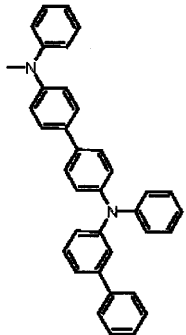


322

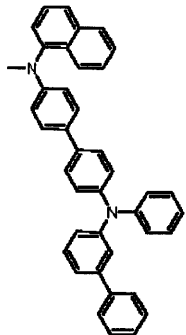


323

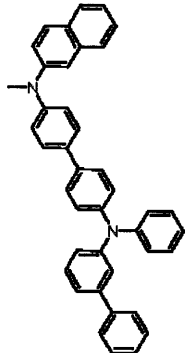
10



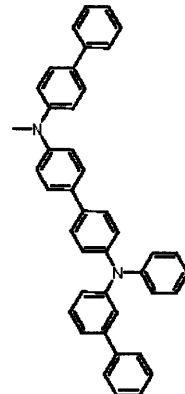
324



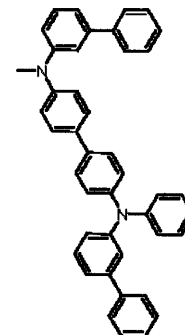
325



326

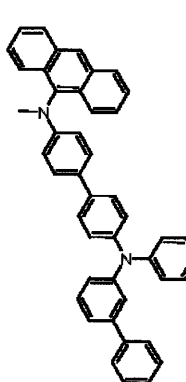


327

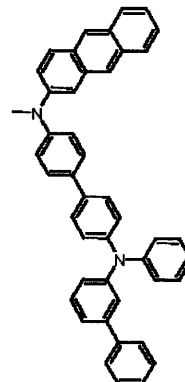


328

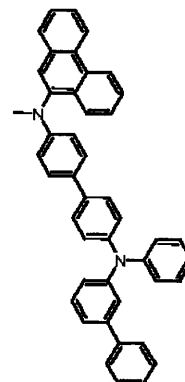
20



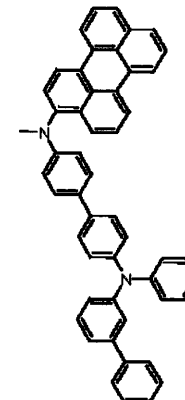
329



330

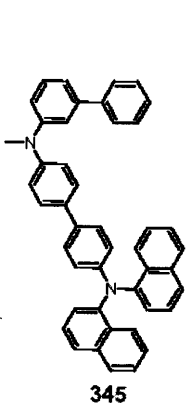
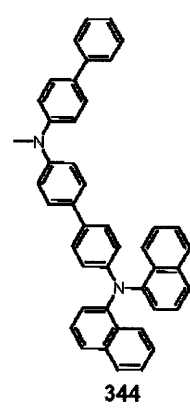
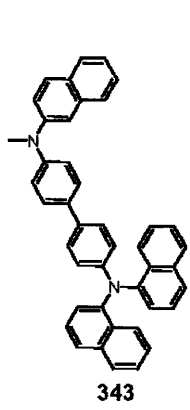
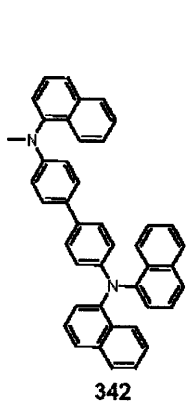
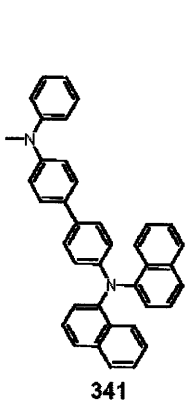
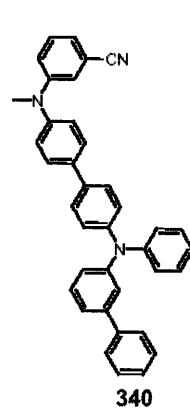
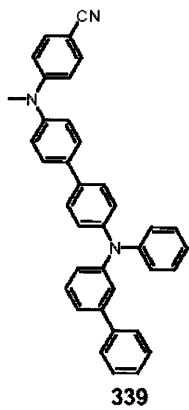
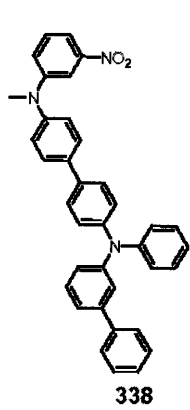
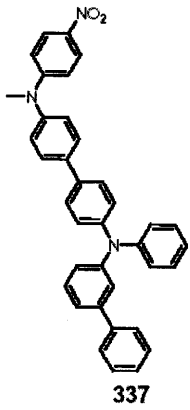
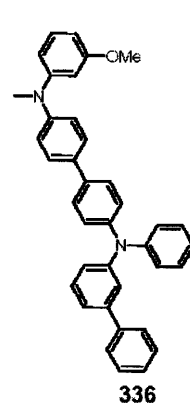
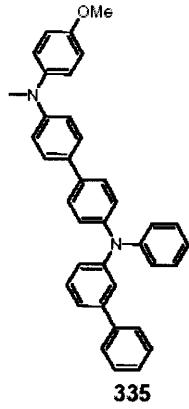
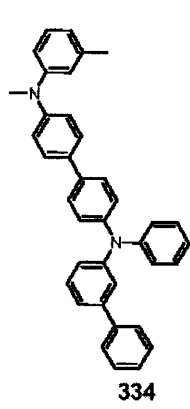
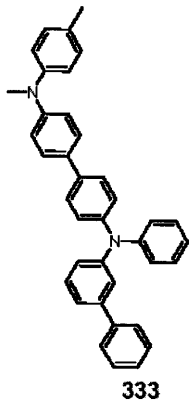


331



332

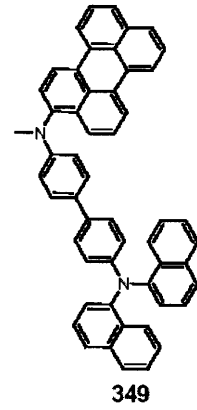
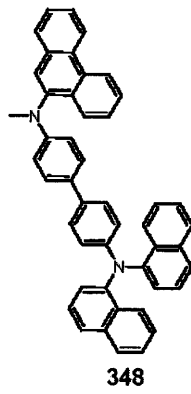
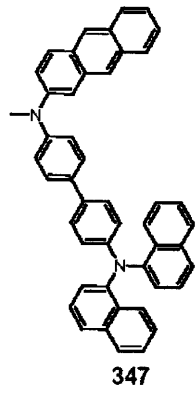
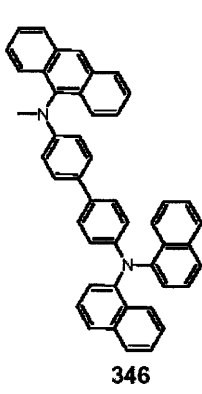
30



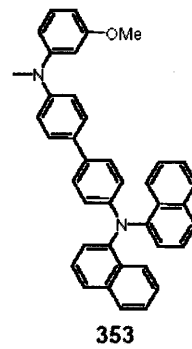
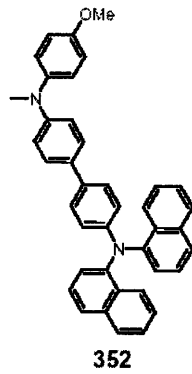
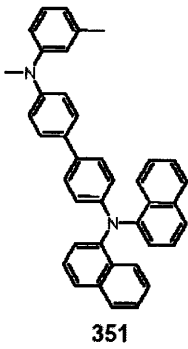
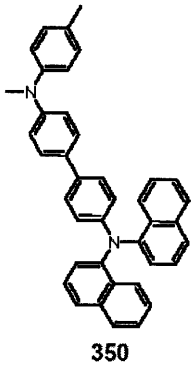
10

20

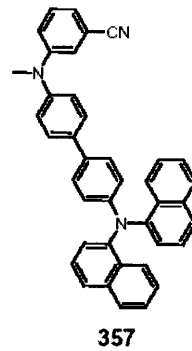
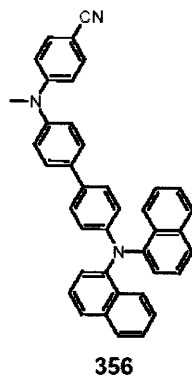
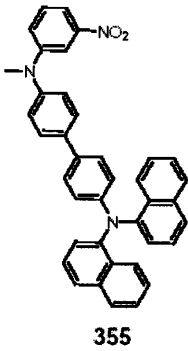
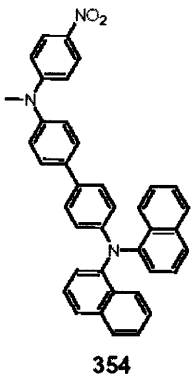
30



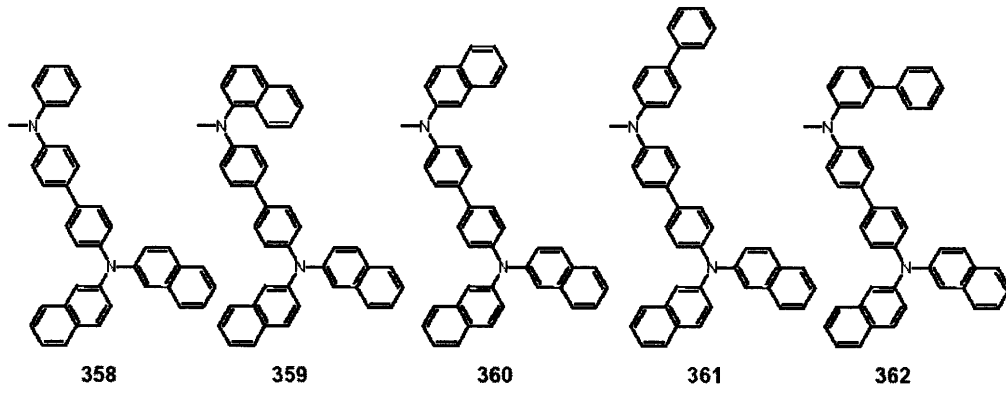
10



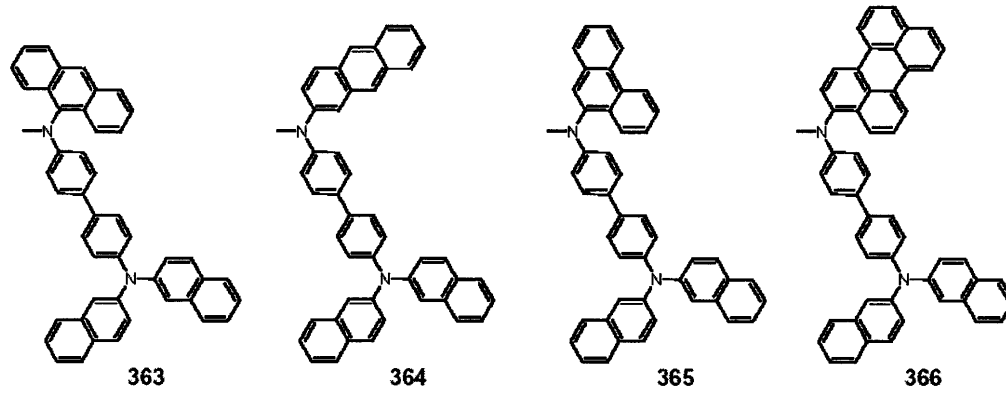
20



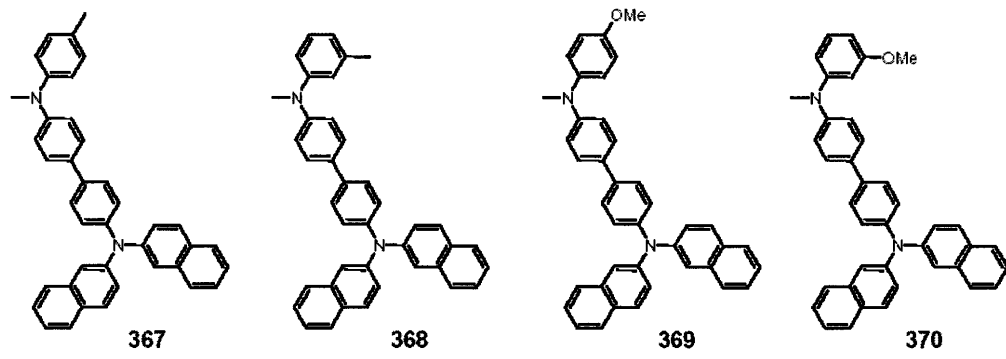
30



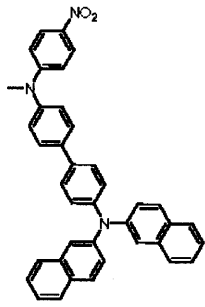
10



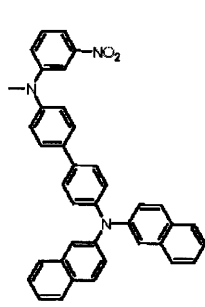
20



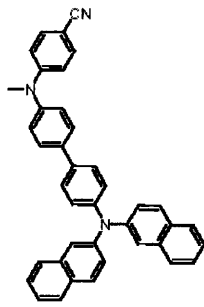
30



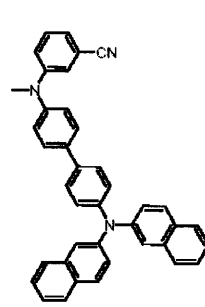
371



372

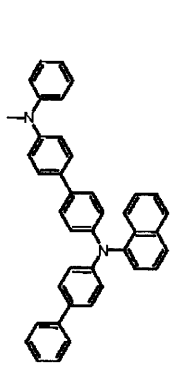


373

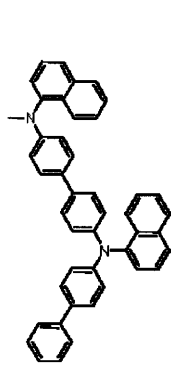


374

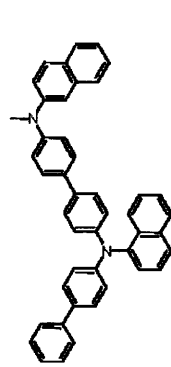
10



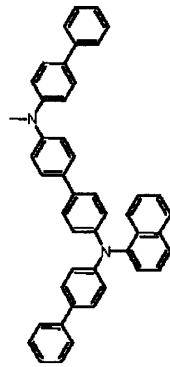
375



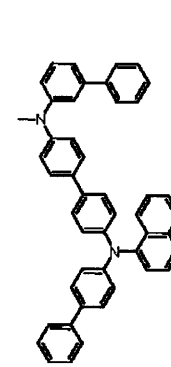
376



377

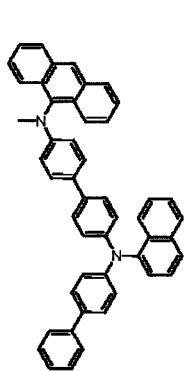


378

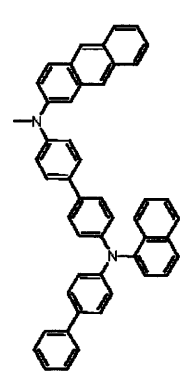


379

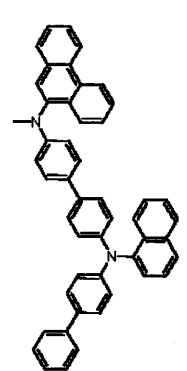
20



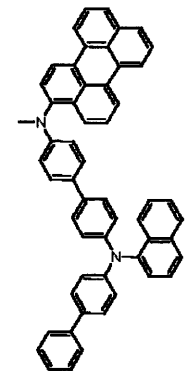
380



381

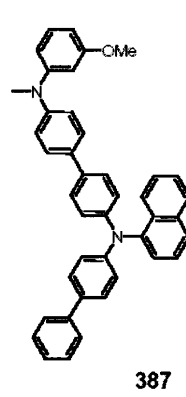
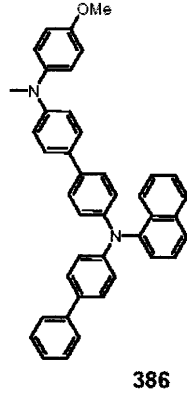
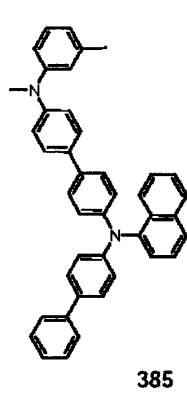
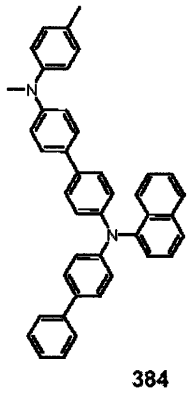


382

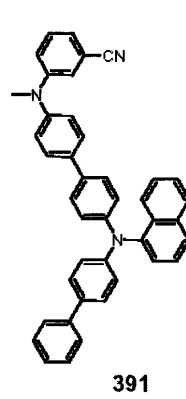
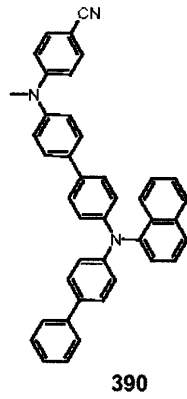
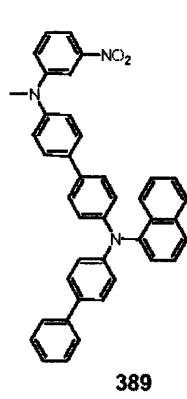
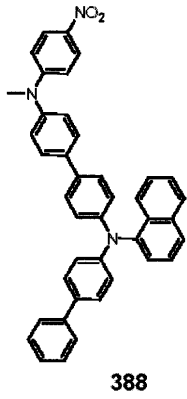


383

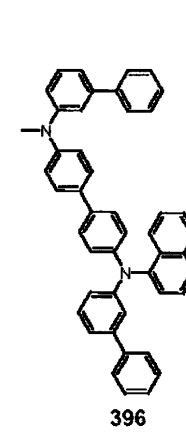
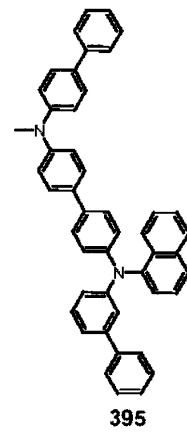
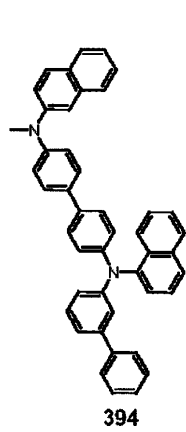
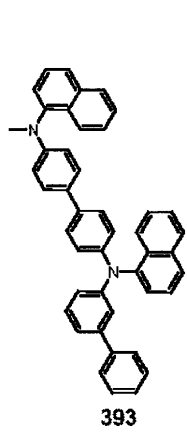
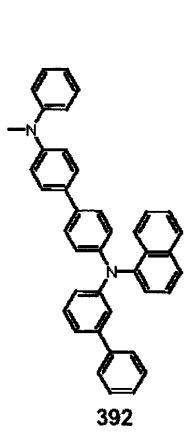
30



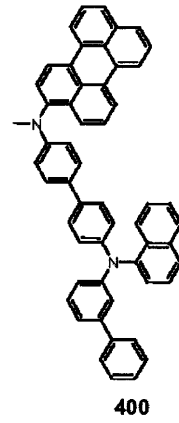
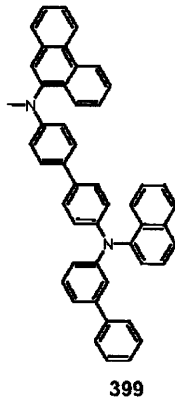
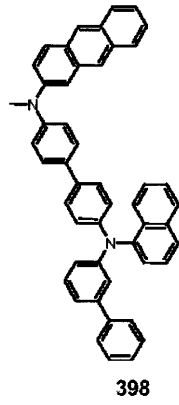
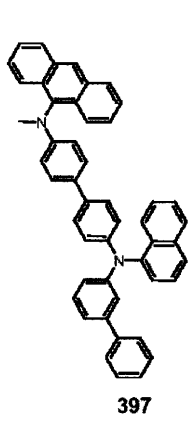
10



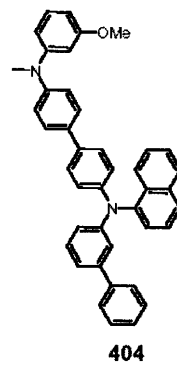
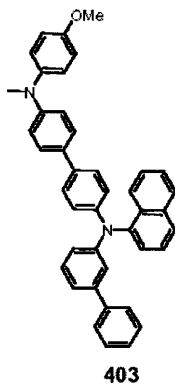
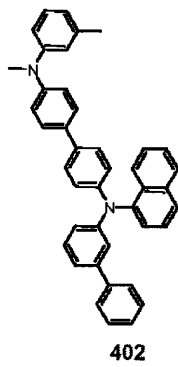
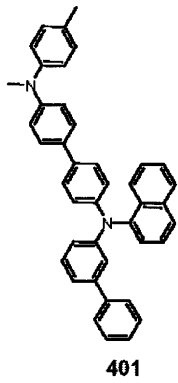
20



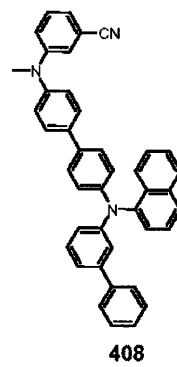
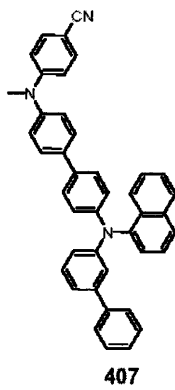
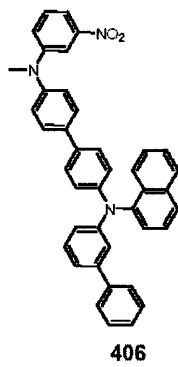
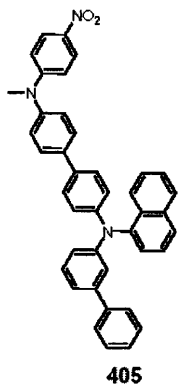
30



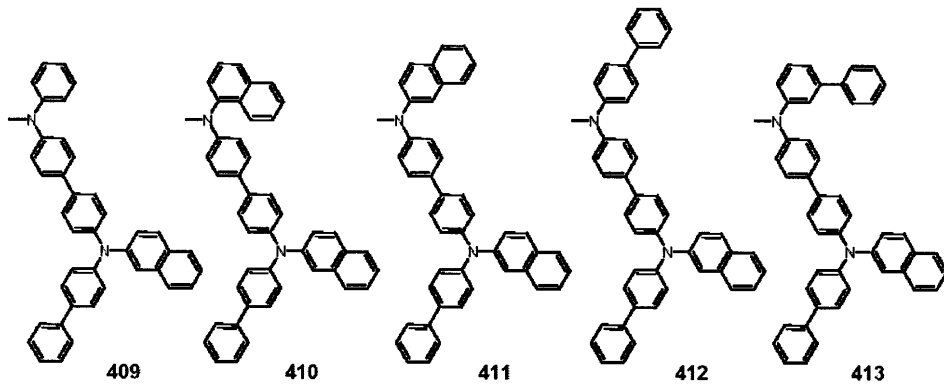
10



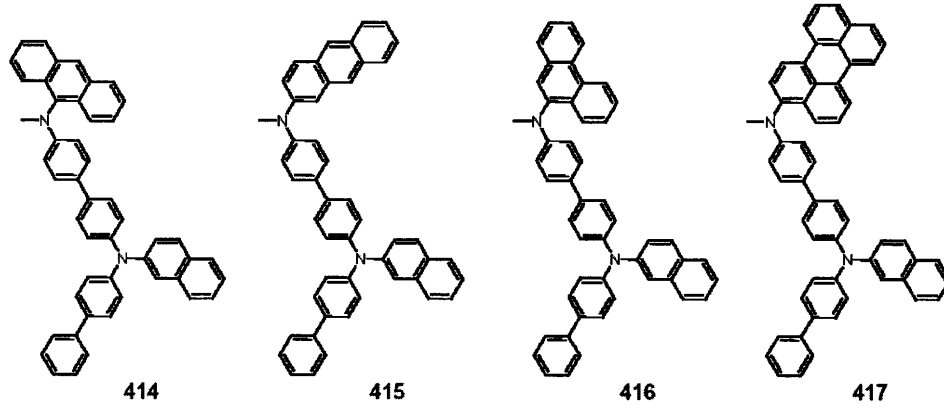
20



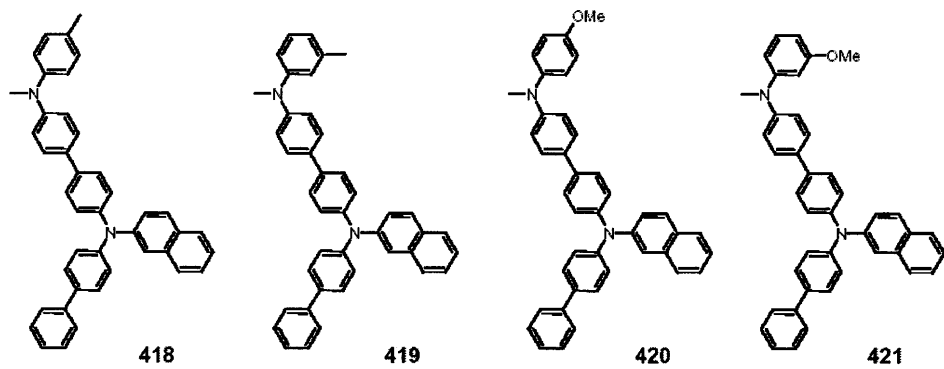
30



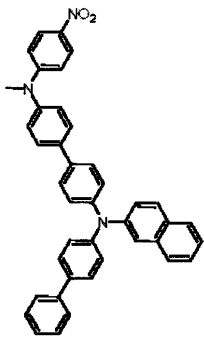
10



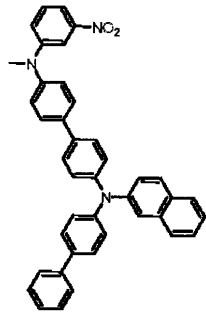
20



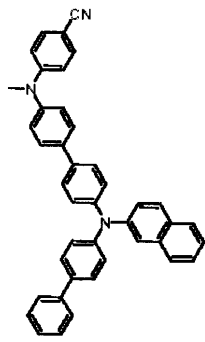
30



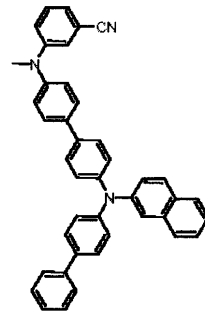
422



423

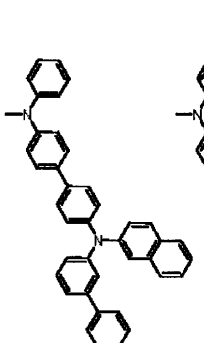


424

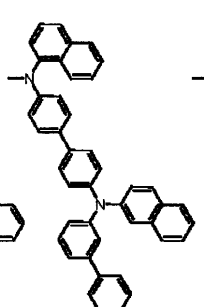


425

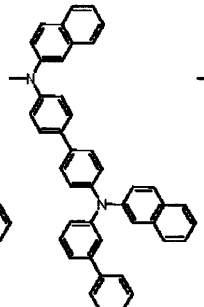
10



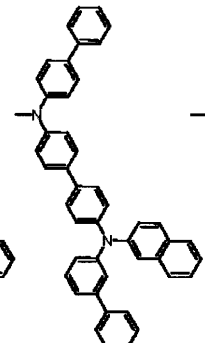
426



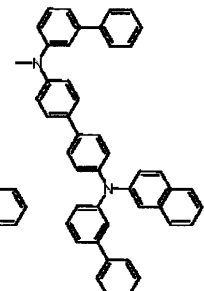
427



428

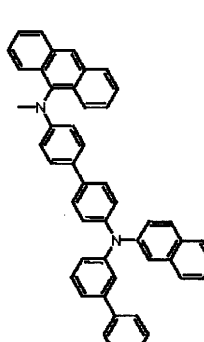


429

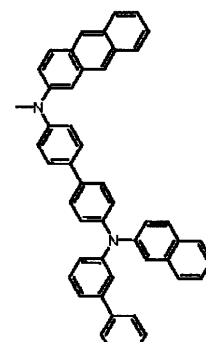


430

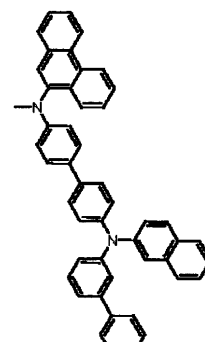
20



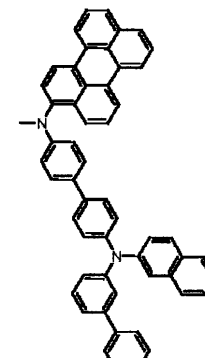
431



432

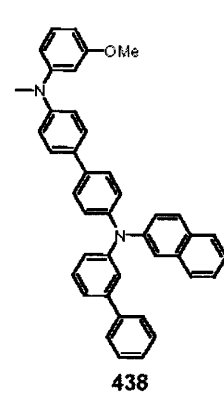
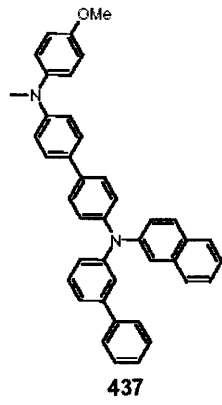
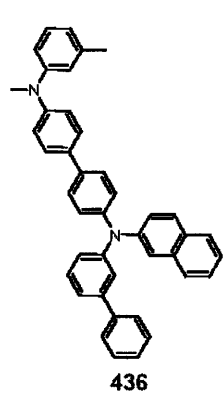
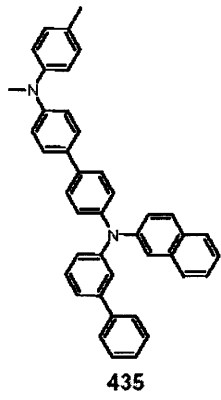


433

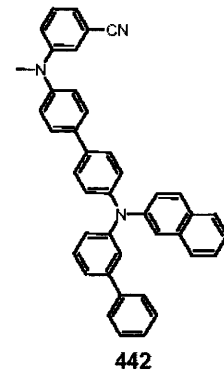
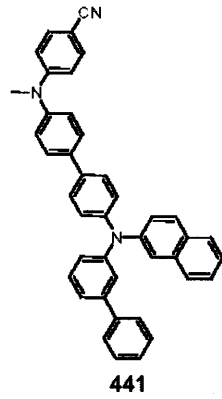
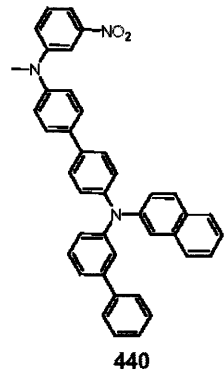
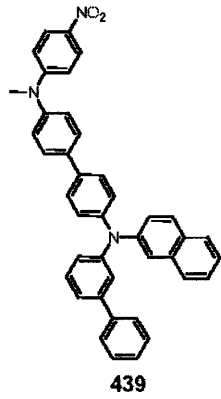


434

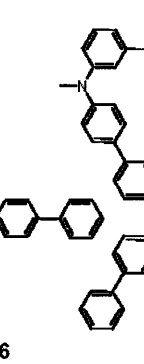
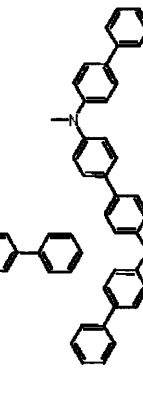
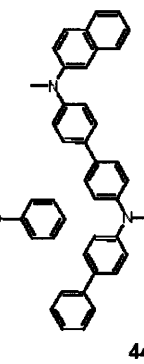
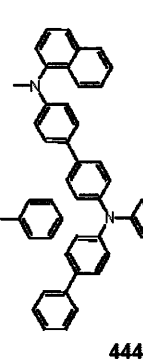
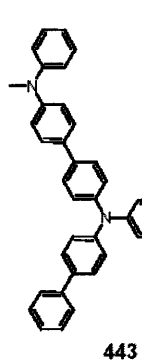
30



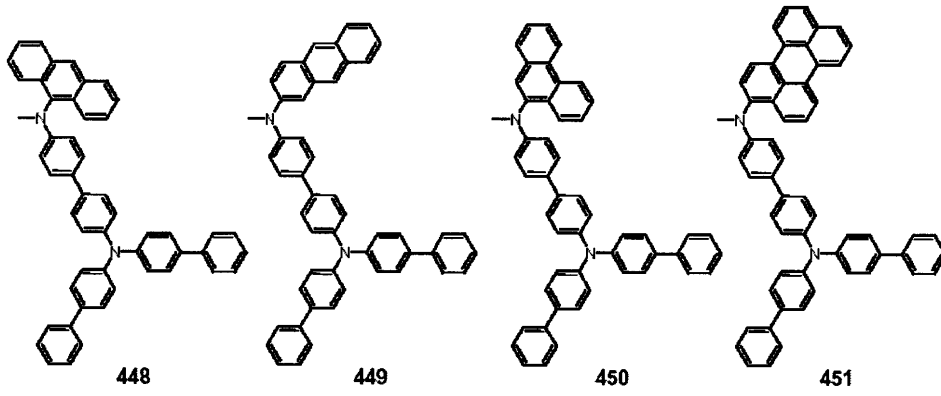
10



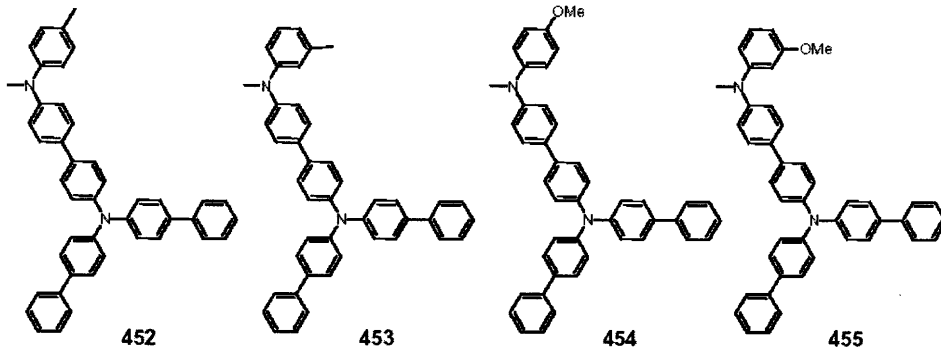
20



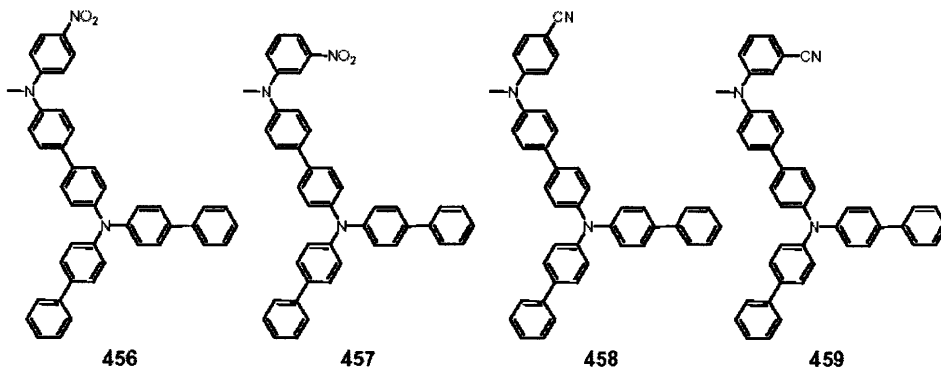
30



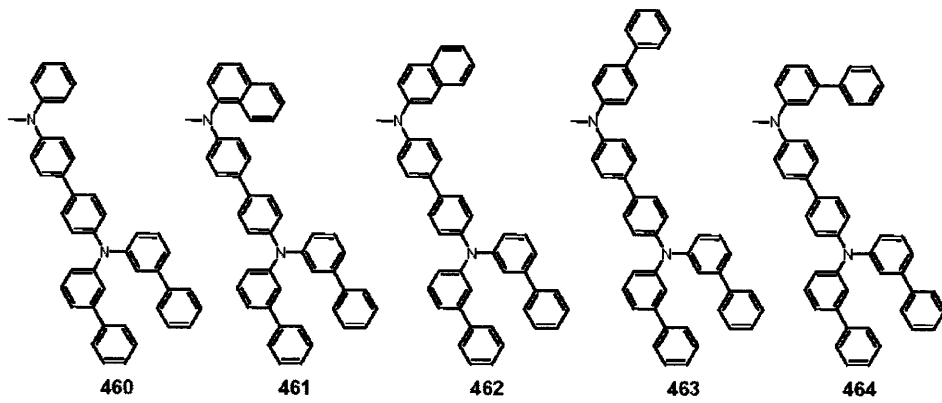
10



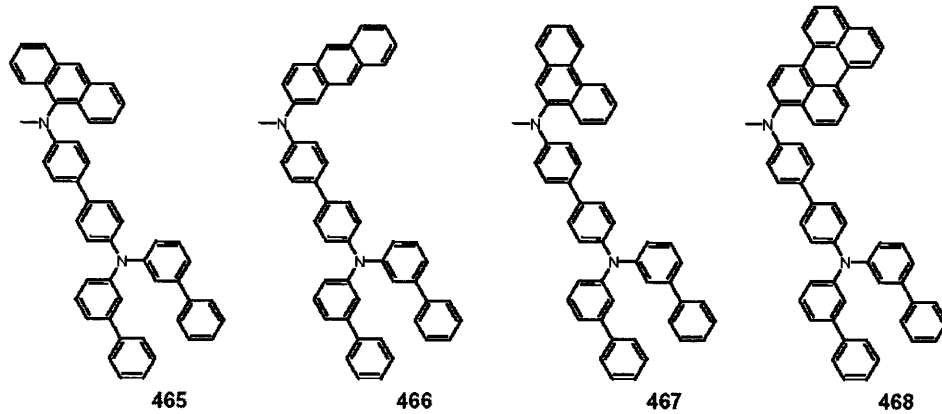
20



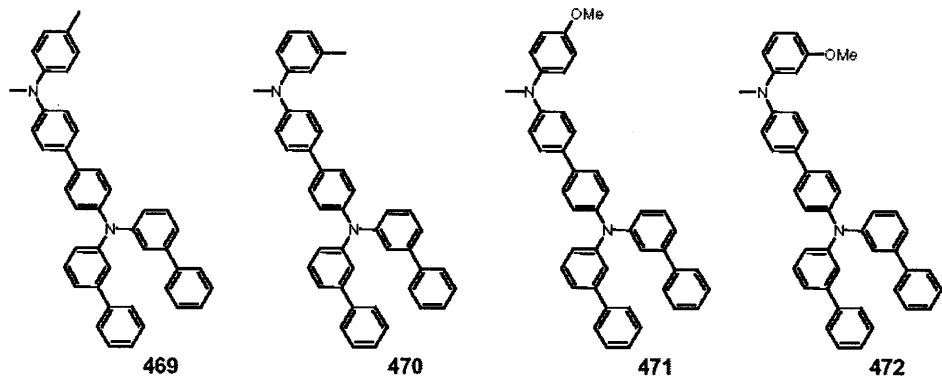
30



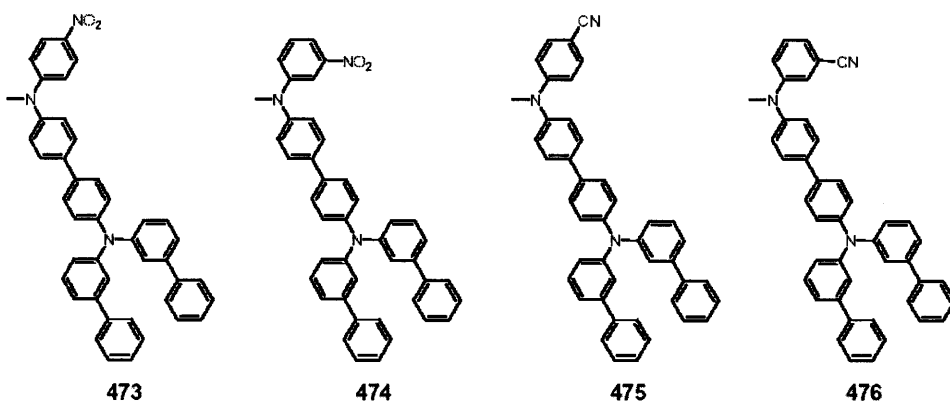
10



20



30



40

【請求項 6】

前記有機物層が正孔輸送層を含んでなり、該正孔輸送層が前記化学式 1 の化合物、またはこの化合物に熱硬化性または光硬化性の官能基が導入された化合物を含んでなる、請求項 1 に記載の有機発光素子。

【請求項 7】

前記有機物層が正孔注入層を含んでなり、該正孔注入層が前記化学式 1 の化合物、また

50

はこの化合物に熱硬化性または光硬化性の官能基が導入された化合物を含んでなる、請求項 1 に記載の有機発光素子。

【請求項 8】

前記有機物層が正孔注入と正孔輸送の両方を兼ね備える層を含んでなり、該層が前記化学式 1 の化合物、またはこの化合物に熱硬化性または光硬化性の官能基が導入された化合物を含んでなる、請求項 1 に記載の有機発光素子。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、有機発光素子の寿命、効率、電気化学的安定性および熱的安定性を大きく向上させることができる新規化合物が有機化合物層に含まれている有機発光素子に関するものである。

10

【背景技術】

【0002】

有機発光現象は、特定有機分子の内部プロセスによって、電流が可視光に転換される例の 1 つである。有機発光現象の原理は次の通りである。陽極と陰極の間に有機物層を位置させた時、二つの電極の間に電圧をかけるようになれば、陰極と陽極から各々電子と正孔とが有機物層に注入される。有機物層に注入された電子と正孔とは再結合してエキシトンを形成し、このエキシトンが再び基底状態に落ちながら光が出るようになる。このような原理を用いる有機発光素子は、一般的に陰極と陽極およびその間に位置する有機物層、例えば正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層を含む有機物層で構成することができる。

20

【0003】

有機発光素子で用いられる物質としては、純粋有機物質または有機物質と金属とが錯体をなす錯化合物が大部分を占めており、用途により正孔注入物質、正孔輸送物質、発光物質、電子輸送物質、電子注入物質などに区分することができる。ここで、正孔注入物質や正孔輸送物質としては、p - タイプの性質を有する有機物質、すなわち容易に酸化がなされ、酸化時に電気化学的に安定した状態を有する有機物が主に用いられている。一方、電子注入物質や電子輸送物質としては、n - タイプの性質を有する有機物質、すなわち容易に還元がなされ、還元時に電気化学的に安定した状態を有する有機物が主に用いられている。発光層物質としては、p - タイプの性質と n - タイプの性質を同時に有する物質、すなわち酸化と還元状態でどちらにも安定した形態を有する物質が望ましく、エキシトンが形成された時に、これを光に転換する発光効率の高い物質が好ましい。

30

【0004】

上記にて言及した以外に、有機発光素子で用いられる物質は次のような性質をさらに有することが好ましい。

【0005】

第 1 に、有機発光素子で用いられる物質は、熱的安定性に優れていることが好ましい。有機発光素子内では電荷の移動によるジュール熱が発生するためである。現在、正孔輸送層物質として主に用いられる NPB は、ガラス遷移温度が 100 以下の値を有するため、高い電流を必要とする有機発光素子では用いることが難しいという問題がある。

40

【0006】

第 2 に、低電圧駆動可能な高効率の有機発光素子を得るためには、有機発光素子内に注入された正孔または電子が円滑に発光層に伝えられると同時に、注入された正孔と電子とが発光層の外に抜け出さないようにしなければならない。このため、有機発光素子に用いられる物質は、適切なバンドギャップと HOMO または LUMO エネルギー準位を有しなければならない。現在、溶液塗布法によって製造される有機発光素子において、正孔輸送物質として用いられる PEDOT : PSS の場合、発光層物質として用いられる有機物の LUMO エネルギー準位に比べて LUMO エネルギー準位が低いため、高効率で、かつ長寿命の有機発光素子の製造に困難がある。

50

【0007】

その他にも、有機発光素子で用いられる物質は、化学的安定性、電荷移動度、電極や隣接した層との界面特性などに優れている必要がある。すなわち、有機発光素子で用いられる物質は、水分や酸素による物質の変形が少ない必要がある。また、適切な正孔または電子移動度を有することによって有機発光素子の発光層で正孔と電子の密度が均衡をなすようにしてエキシトン形成を極大化できる必要がある。そして、素子の安定性のために金属または金属酸化物を含む電極との界面を良くできる必要がある。

【0008】

したがって、当技術分野では前記のような要件を備えた有機物を含む有機発光素子の開発が求められている。

10

【技術的課題】

【0009】

ここで、本発明者らは、有機発光素子で使用可能な物質として要求される条件、例えば適切なエネルギー準位、電気化学的安定性および熱的安定性などを満足させることができ、置換基により有機発光素子で要求される多様な役割をすることができる化学構造を有するフルオレン誘導体を含む有機発光素子を提供することを目的とする。

【技術的解決方法】

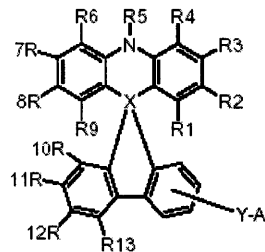
【0010】

本発明は、第1電極、発光層、1層以上の有機物層および第2電極を積層した形態で含む有機発光素子であって、前記有機物層中の1層以上が下記化学式1の化合物、または、この化合物に熱硬化性または光硬化性の官能基が導入された化合物を含む有機発光素子を提供する。

20

【化1】

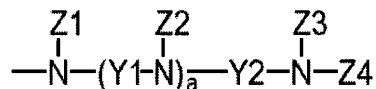
[化学式1]



30

前記化学式1において、
XはCまたはSiであり、
Aは

【化2】



40

であり、

aは0または1以上の整数であり、

Yは結合や2価の芳香族炭化水素；ニトロ、ニトリル、ハロゲン、アルキル基、アルコキシ基およびアミノ基からなる群より選択される1つ以上の置換基で置換された2価の芳香族炭化水素；2価の複素環基；またはニトロ、ニトリル、ハロゲン、アルキル基、アルコキシ基およびアミノ基からなる群より選択される1つ以上の置換基で置換された2価の複素環基であり、

Y1およびY2は、各々独立的に2価の芳香族炭化水素；ニトロ、ニトリル、ハロゲン、アルキル基、アルコキシ基およびアミノ基からなる群より選択される1つ以上の置換基

50

によって置換された2価の芳香族炭化水素；2価のヘテロ環基；またはニトロ、ニトリル、ハロゲン、アルキル基、アルコキシ基およびアミノ基からなる群より選択される1つ以上の置換基によって置換された2価のヘテロ環基であり、

Z 1 ~ Z 4 は、各々独立的に、水素；炭素数 1 - 20 の脂肪族炭化水素；芳香族炭化水素；ニトロ、ニトリル、ハロゲン、アルキル基、アルコキシ基、アミノ基、芳香族炭化水素および複素環基からなる群より選択される1つ以上の置換基によって置換された芳香族炭化水素；芳香族炭化水素によって置換されたシリコン基；複素環基；ニトロ、ニトリル、ハロゲン、アルキル基、アルコキシ基、アミノ基、芳香族炭化水素および複素環基からなる群より選択される1つ以上の置換基によって置換された複素環基；炭素数 1 - 20 の炭化水素または炭素数 6 - 20 の芳香族炭化水素で置換されたチオフェン基；または芳香族炭化水素で置換されたハウ素基であり、

R 1 ~ R 4 および R 6 ~ R 13 は、各々独立的に水素、置換または非置換されたアルキル基、置換または非置換されたアルコキシ基、置換または非置換されたアルケニル基、置換または非置換されたアリール基、置換または非置換されたアリールアミン基、置換または非置換された複素環基、アミノ基、ニトリル基、ニトロ基、ハロゲン基、アミド基、エステル基からなる群より選択され、ここで、これらは互いに隣接する基と脂肪族またはヘテロの縮合環を形成することができ、

R 5 は、水素、置換または非置換されたアルキル基、置換または非置換されたシクロアルキル基、置換または非置換されたアルケニル基、置換または非置換されたアリール基、または置換または非置換された複素環基からなる群より選択され、

ここで、R 5 がアリール基または複素環基である場合、アリールまたは複素環基のオルト(ortho)の位置の炭素と R 4 または R 6 は、O、S、NR、PR、C=O、CR R' および Si R R' からなる群より選択される基と共に縮合環を形成することができ、ここで R および R' は各々独立的に水素、置換または非置換されたアルキル基、置換または非置換されたアルコキシ基、置換または非置換されたアルケニル基、置換または非置換されたアリール基、置換または非置換されたアリールアミン基、置換または非置換された複素環基、ニトリル基、アミド基およびエステル基からなる群より選択され、ここで、R と R' は縮合環を形成してスピロ化合物を形成することができる。

【0011】

上記の化学式 1 の置換基を詳細に説明すれば次の通りである。

【0012】

前記化学式 1 の置換基である Z 1 および Z 2 において、前記芳香族化合物の例としては、フェニル、ピフェニル、テルフェニルなどの単環式芳香族環およびナフチル、アントラセニル、ピレニル、ペリレニルなどの多環式芳香族環などを挙げることができる。前記ヘテロ芳香族化合物の例としては、チオフェン、フラン、ピロル、イミダゾール、チアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、チアジアゾール、トリアゾール、ピリジル、ピリダジン、ピラジン、キノリン、イソキノリンなどがある。

【0013】

前記炭素数 1 ~ 20 の脂肪族炭化水素は、直鎖脂肪族炭化水素と分枝鎖脂肪族炭化水素、飽和脂肪族炭化水素と不飽和脂肪族炭化水素をすべて含み、これらの例としては、メチル基、エチル基、n-プロピル基、iso-プロピル基、n-ブチル基、sec-ブチル基、iso-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基などのアルキル基；スチリルのような二重結合を有するアルケニル基；およびアセチレン基のような三重結合を有するアルキニル基がある。

【0014】

前記化学式 1 の R 1 ~ R 13 中のアルキル基、アルコキシ基、アルケニル基は、炭素数は特に限定されないが、1 - 20 であることが好ましい。

【0015】

化合物中に含まれているアルキル基の長さは、化合物の共役長さには影響を及ぼさないで、但し付随的に化合物の有機発光素子への適用方法、例えば真空蒸着法または溶液塗布

10

20

30

40

50

法の適用に影響を及ぼすことができる。

【0016】

前記化学式1のR₁～R₁₃中のアリール基の例としては、フェニル基、ビフェニル基、テルフェニル基、スチルベンなどの単環式芳香族およびナフチル基、アントラセニル基、フェナトレン基、ピレニル基、ペリレニル基などの多環式芳香族環などがあるが、これらだけに限定されるものではない。

【0017】

前記化学式1のR₁～R₁₃中のアリールアミン基の例としては、ジフェニルアミン基、ジナフチルアミン基、ジビフェニルアミン基、フェニルナフチルアミン基、フェニルジフェニルアミン基、ジトリルアミン基、フェニルトリルアミン基、カルバゾール基、トリフェニルアミン基などがあるが、これらだけに限定されるものではない。

前記化学式1のR₁～R₁₃中の複素環基の例としては、チオフェン基、フラン基、ピロル基、イミダゾール基、チアゾール基、オキサゾール基、オキサジアゾール基、トリアゾール基、ピリジル基、ピラダジン基、キノリニル基、イソキノリン基、アクリジン基などがあるが、これらだけに限定されるものではない。

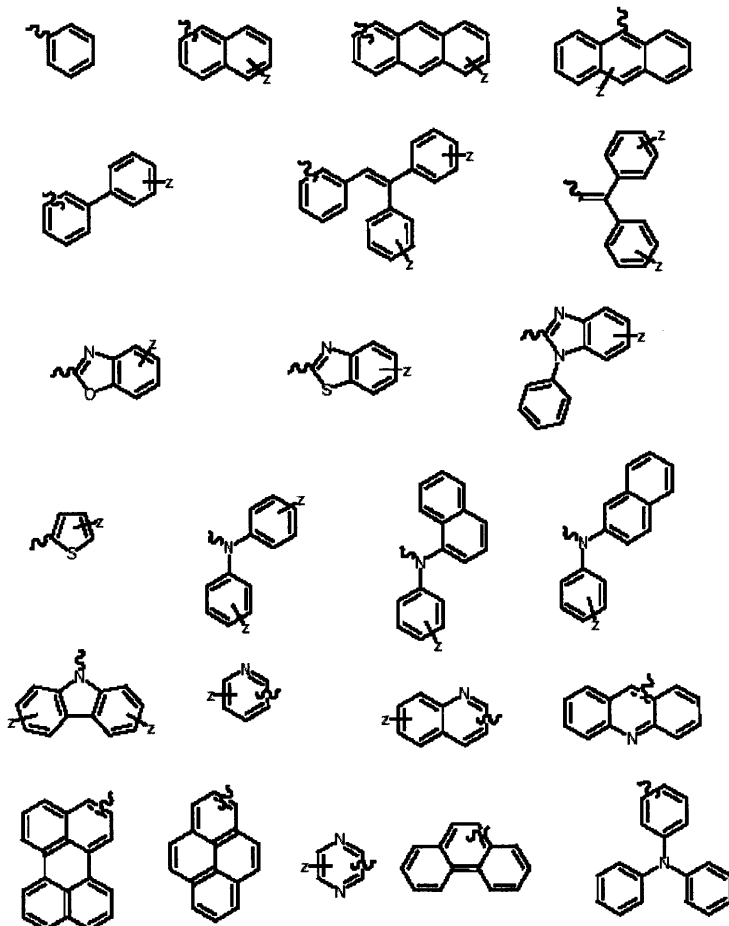
【0019】

前記化学式1のR₁～R₁₃中、ハロゲン基、シアノ、ニトロなどがある。

【0020】

前記例の他に、前記化学式1のR₁～R₁₃中のアルケニル基、アリール基、アリールアミン基、複素環基の具体的な例としては、下記化学式で示した例があるが、これらだけに限定されるものではない。

【化3】



前記化学式において、Zは水素、炭素数1～20の脂肪族炭化水素、アルコキシ基、アリールアミン基、アリール基、複素環基、ニトリル基、アセチレン基などによって形成さ

れた群より選択される基である。前記 Z 中のアリールアミン基、アリール基、複素環基の具体的な例としては、前述した R 1 ~ R 1 3 の置換基に記載した例がある。

【 0 0 2 1 】

本発明の 1 つの好ましい実施様態において、前記化学式 1 中の R 5 がアリール基または複素環基である。

【 0 0 2 2 】

本発明のまた 1 つの好ましい実施様態において、前記化学式 1 中の R 5 がアリール基または複素環基であり、前記アリールまたは複素環基のオルト (o r t h o) 位置の炭素と R 4 または R 6 は O、S、N R、P R、C = O、C R R ' および S i R R ' (ここで、R および R ' は化学式 1 で定義した通りである) からなる群より選択される基と共に縮合環を形成することができる。

10

【 0 0 2 3 】

本発明のまた一つの好ましい実施様態において、前記化学式 1 中 R 5 がアリール基または複素環基であり、前記アリールまたは複素環基のオルト (o r t h o) 位置の炭素と R 4 および前記アリールまたは複素環基のオルト (o r t h o) 位置の炭素と R 6 は、O、S、N R、P R、C = O、C R R ' および S i R R ' (ここで、R および R ' は化学式 1 で定義した通りである) からなる群より選択される基と共に縮合環を形成することができる。

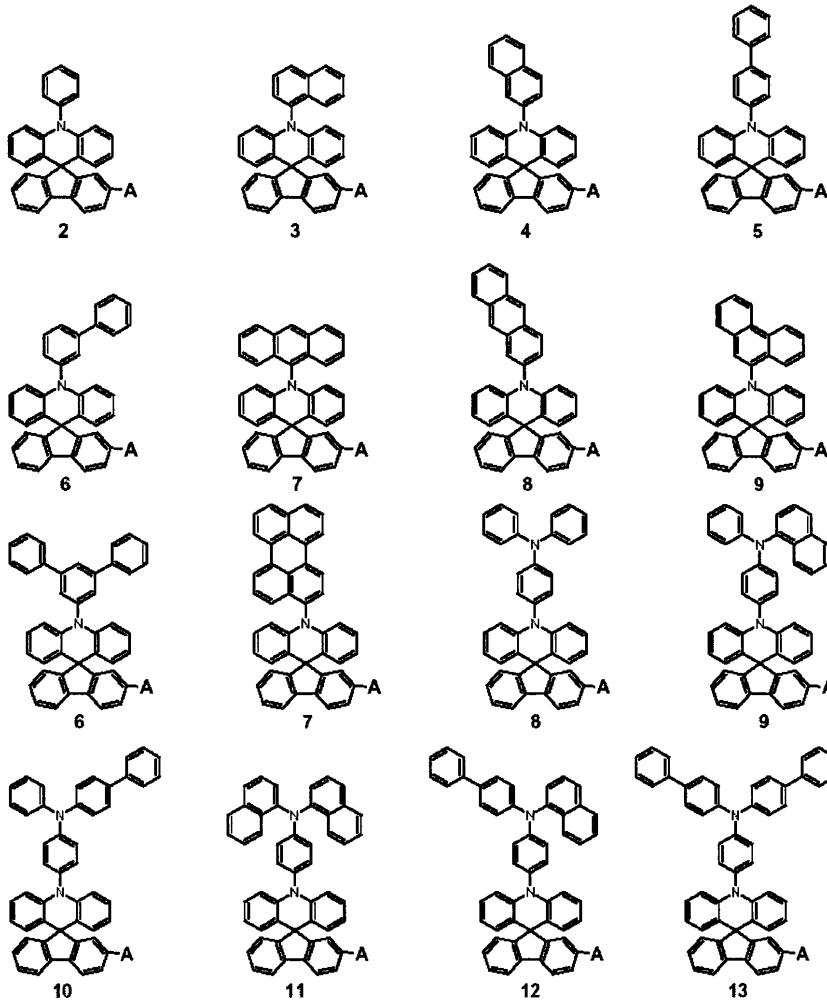
【 0 0 2 4 】

本発明の好ましい実施態様において、前記化学式 1 の化合物の例として下記化学式 2 ~ 化学式 1 1 9 の化合物がある。しかし、下記化学式の化合物は本発明の理解を助けるためのものであって、これらによって本発明の範囲が限定されるものではない。

20

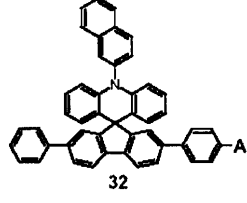
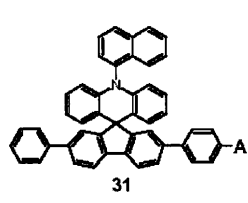
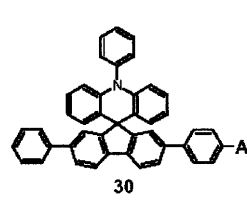
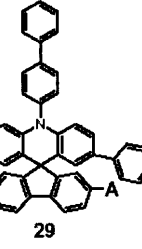
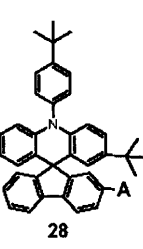
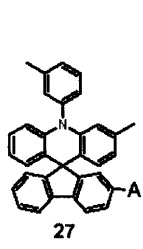
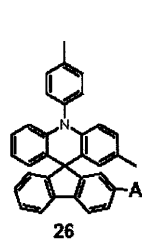
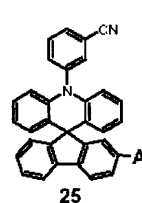
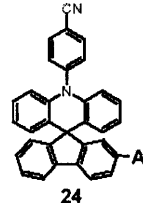
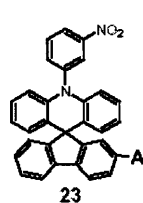
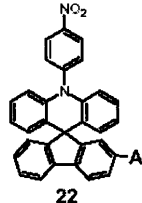
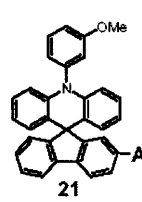
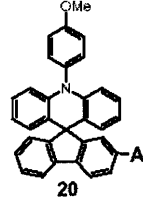
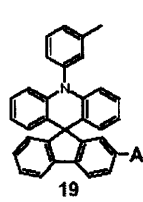
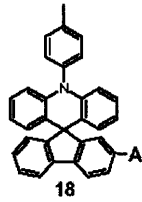
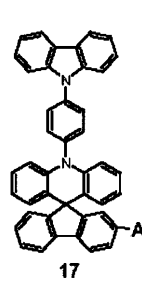
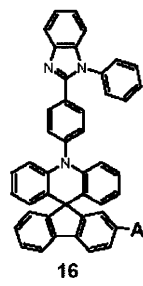
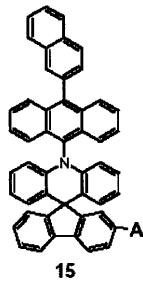
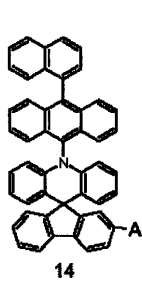
【化 4】

[化学式 2 ~ 化学式 1 1 9]



10

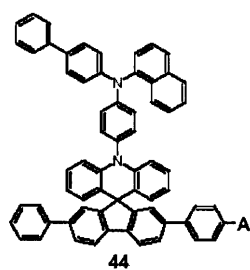
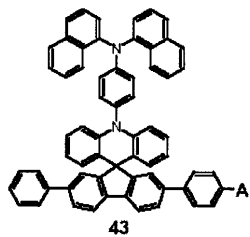
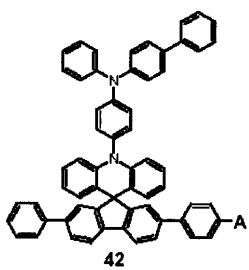
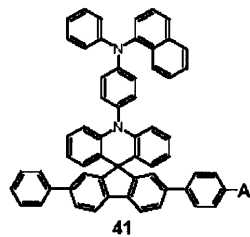
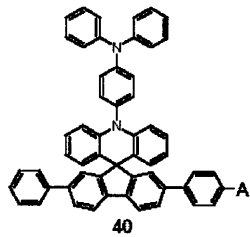
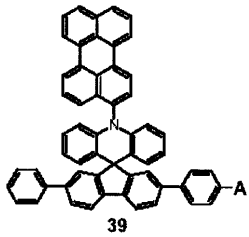
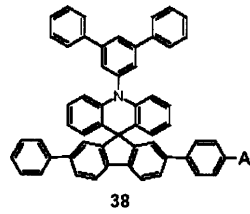
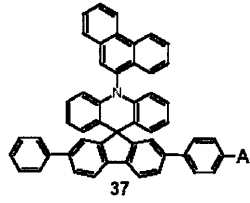
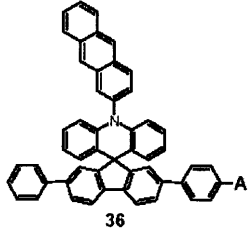
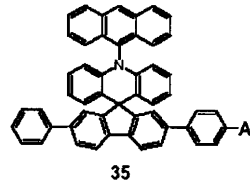
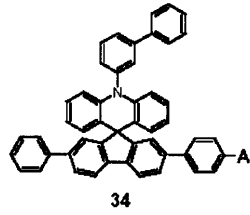
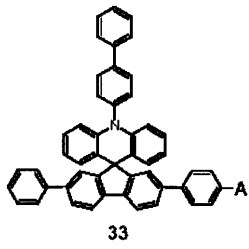
20



10

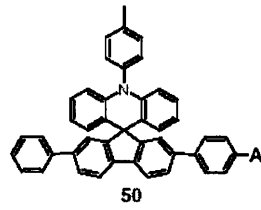
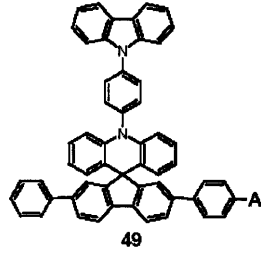
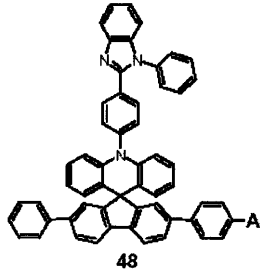
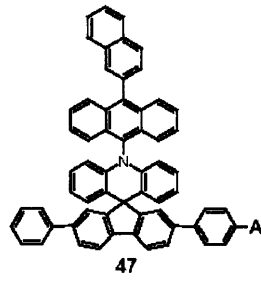
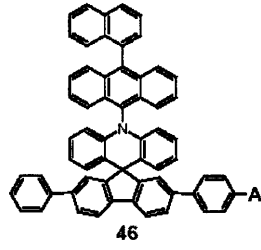
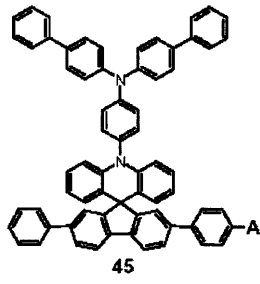
20

30

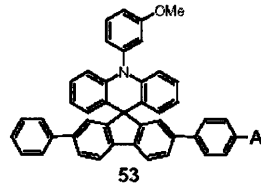
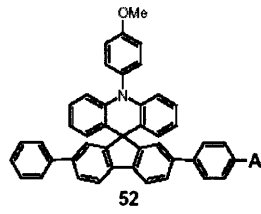
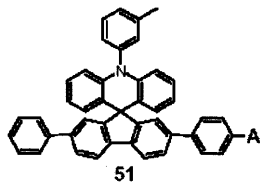


10

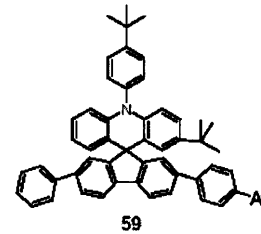
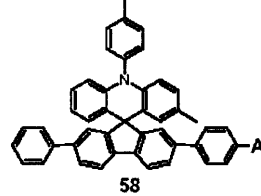
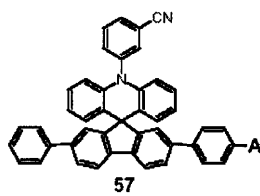
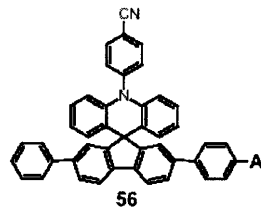
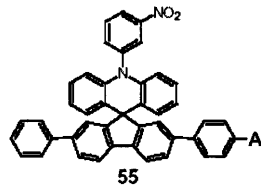
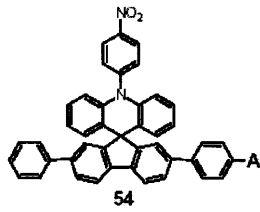
20



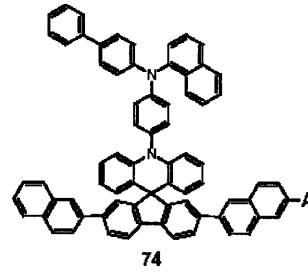
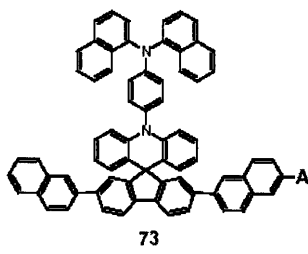
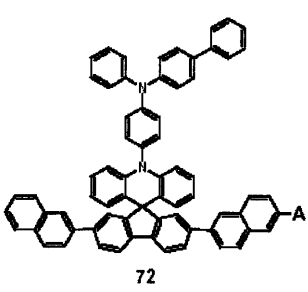
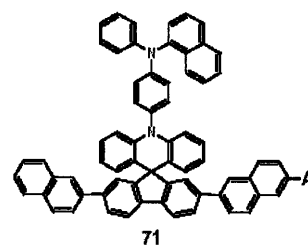
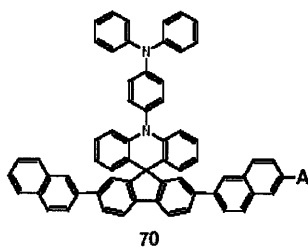
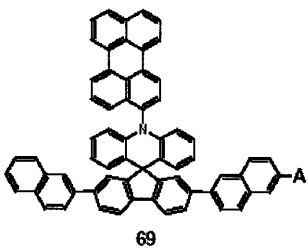
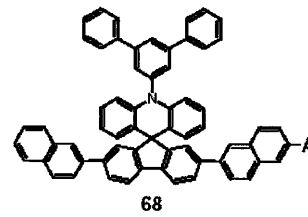
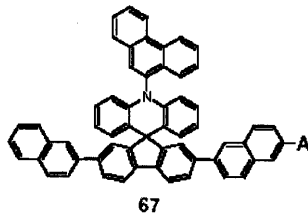
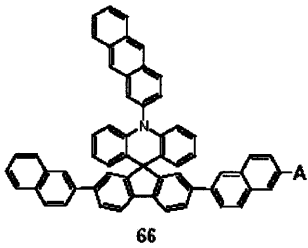
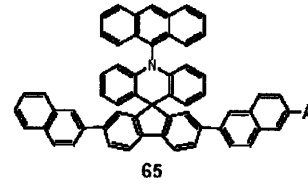
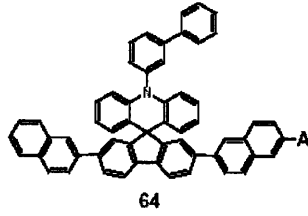
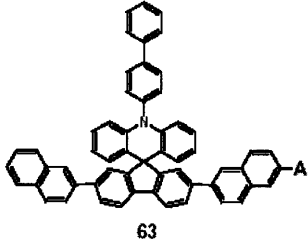
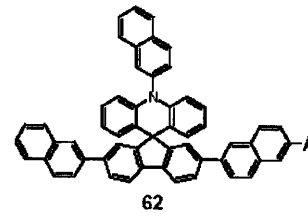
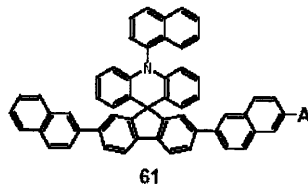
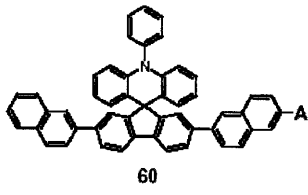
10



20



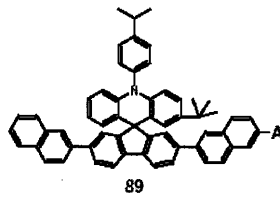
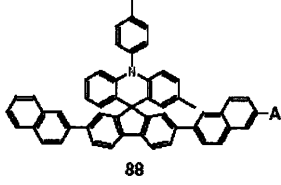
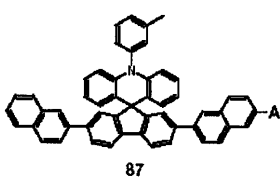
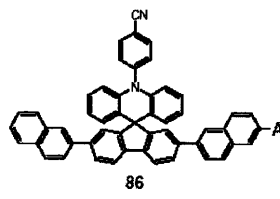
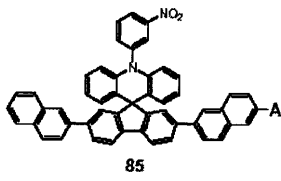
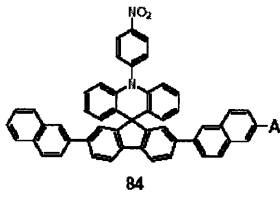
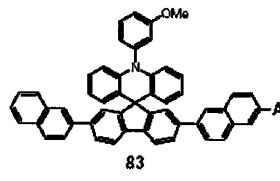
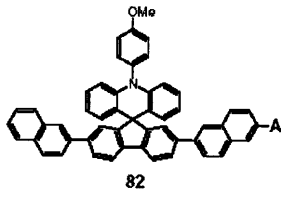
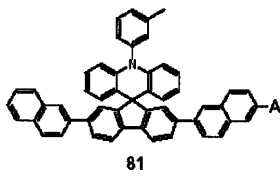
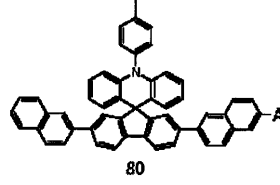
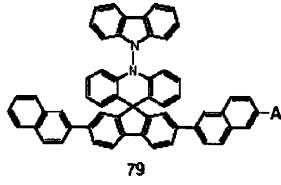
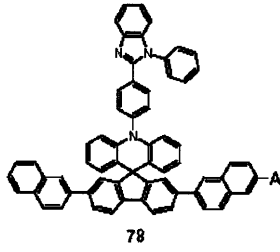
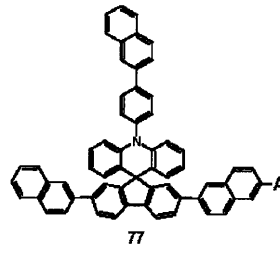
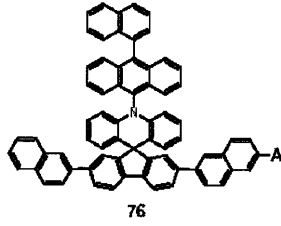
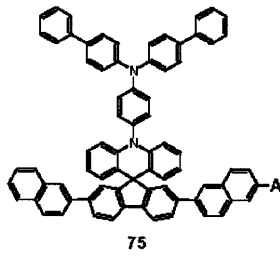
30



10

20

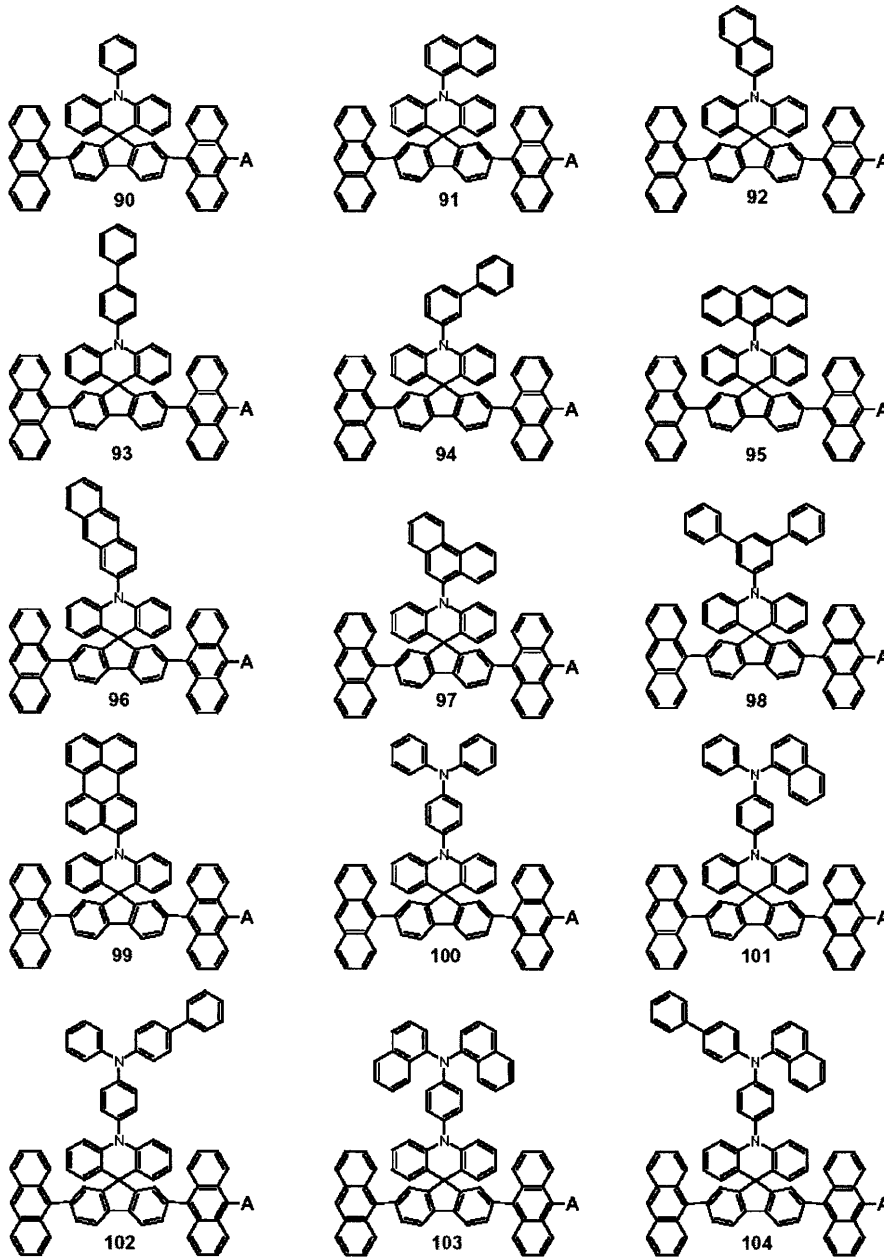
30



10

20

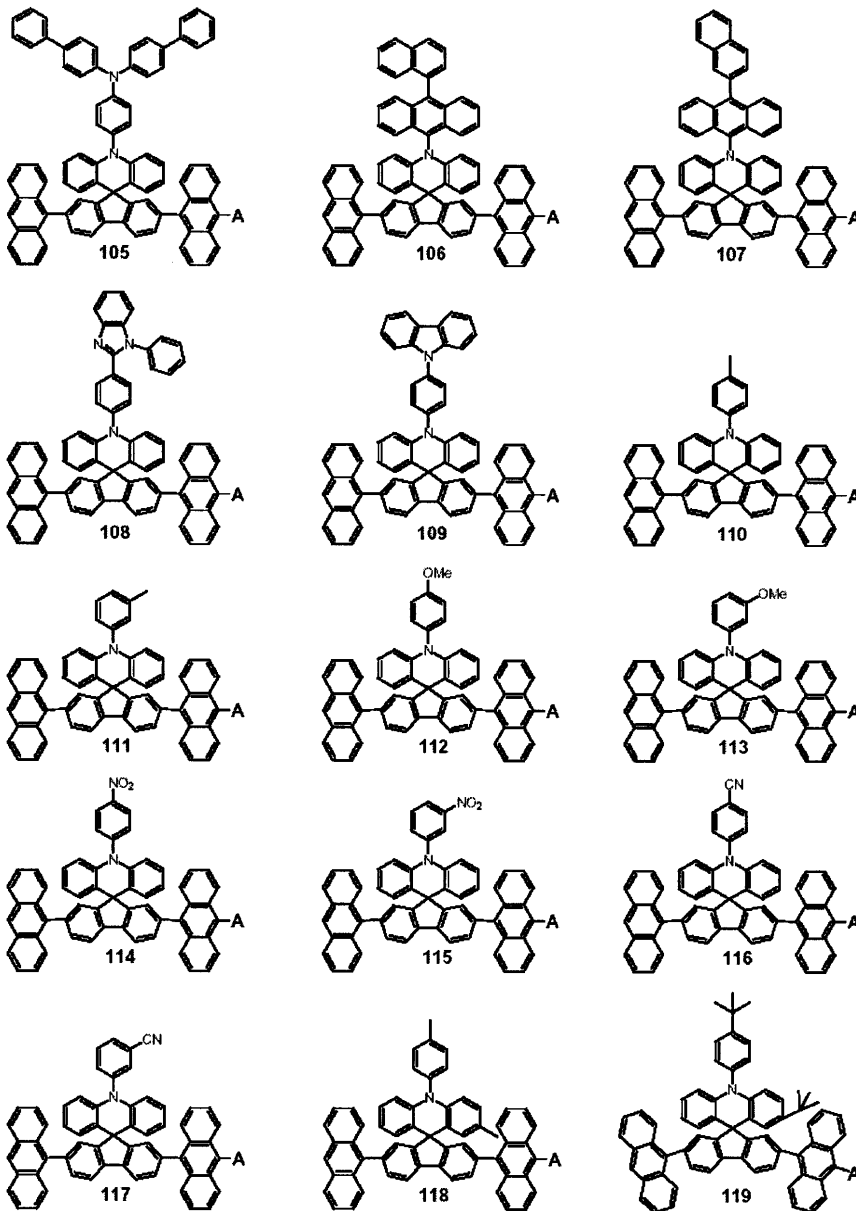
30



10

20

30



10

20

30

前記化学式において、Aは化学式1で定義された通りである。

【0025】

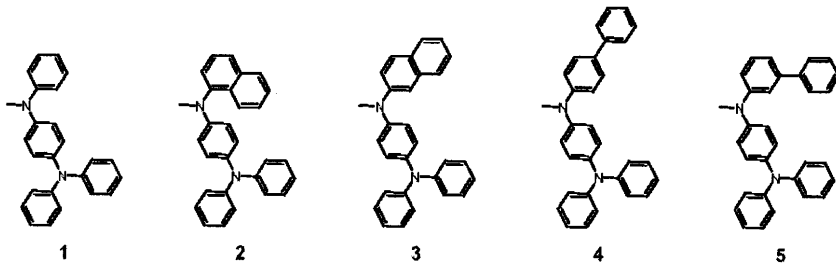
前記Aの好ましい例は、下記の通りであるが、これに限定されるものではない。

【0026】

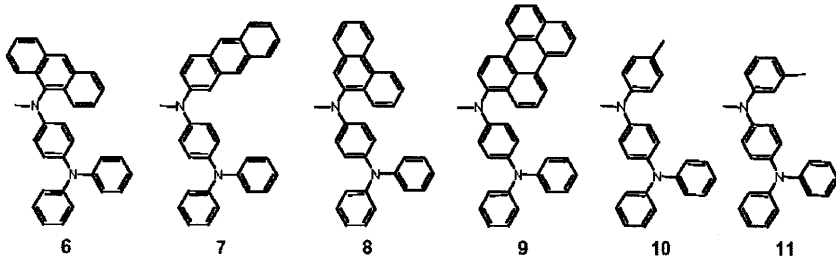
前記化学式2～化学式119と、下記の置換基Aの組合によって様々な種類の誘導体化合物を形成することができる。例えば、化学式2と置換基1とが用いられる場合、化合物を2-1と称する。

【化 5】

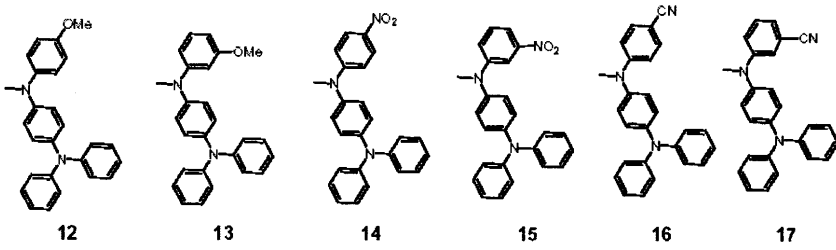
[A基]

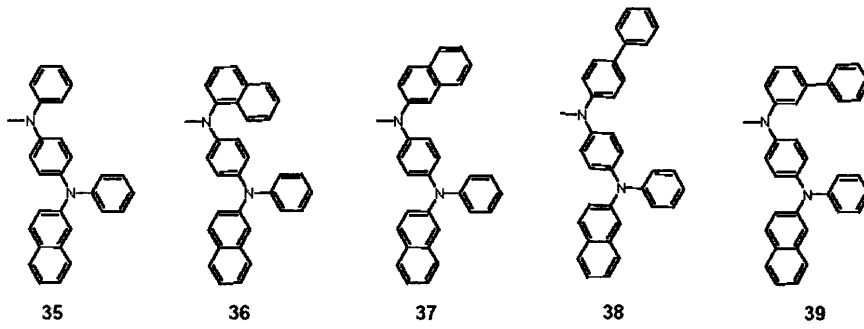
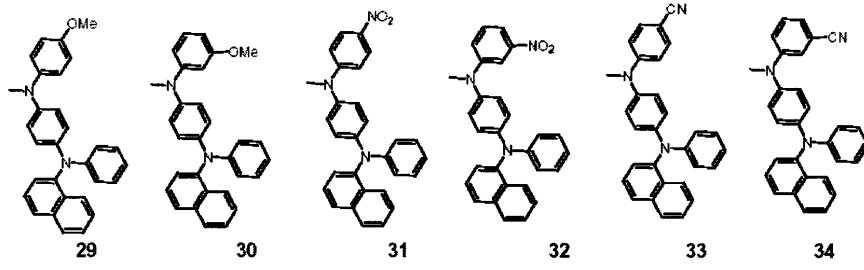
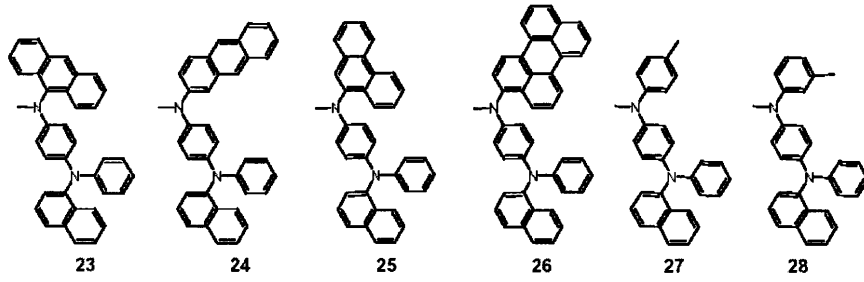
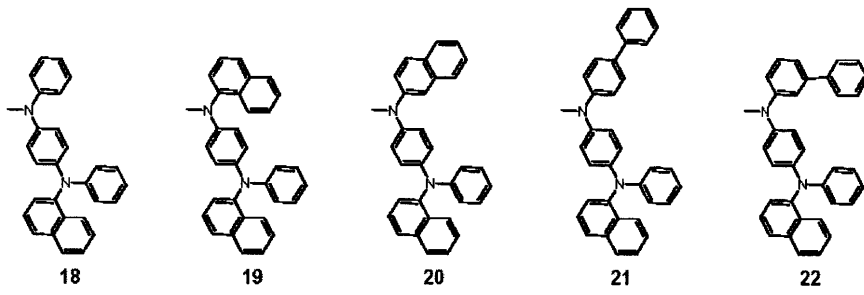


10



20

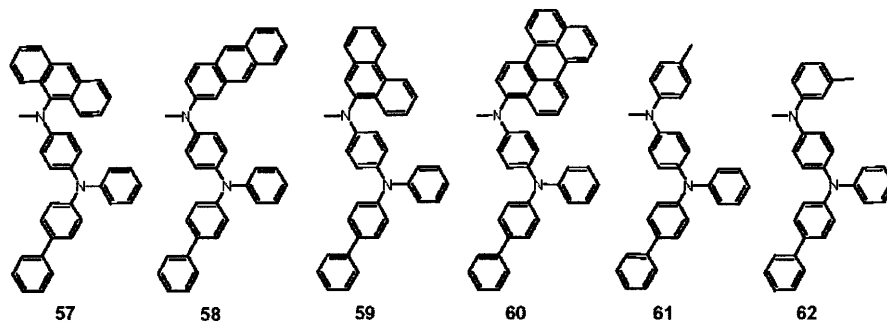
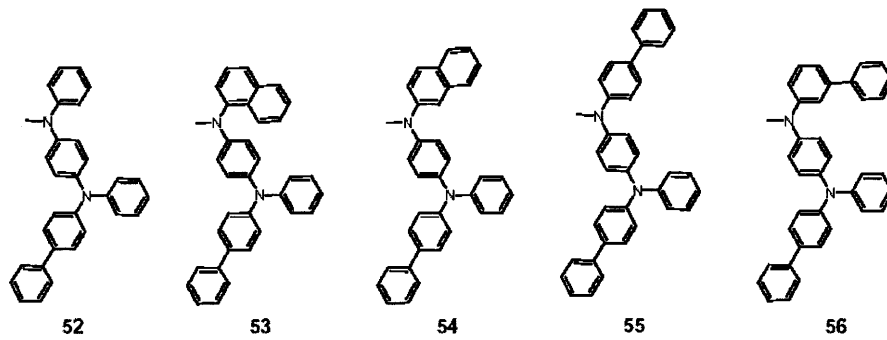
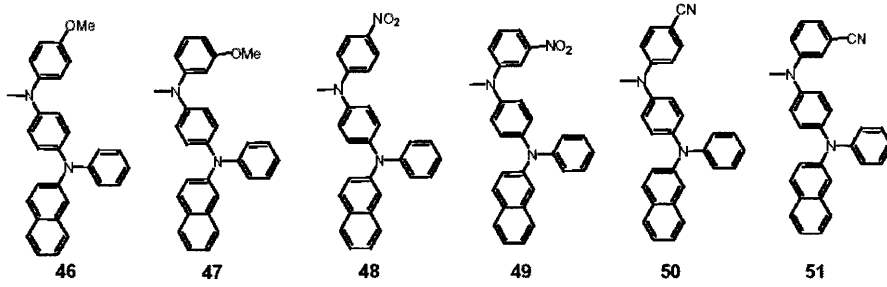
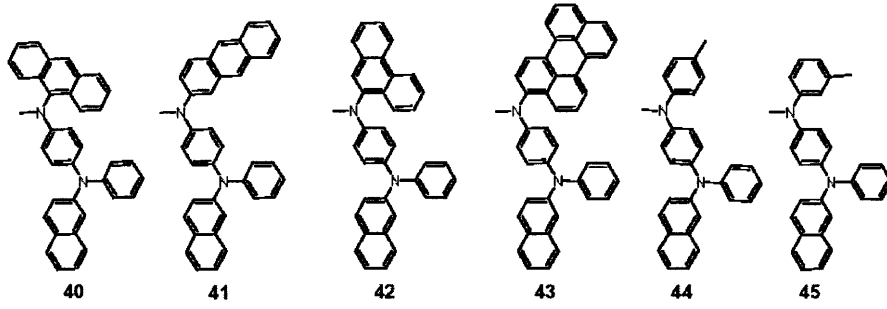




10

20

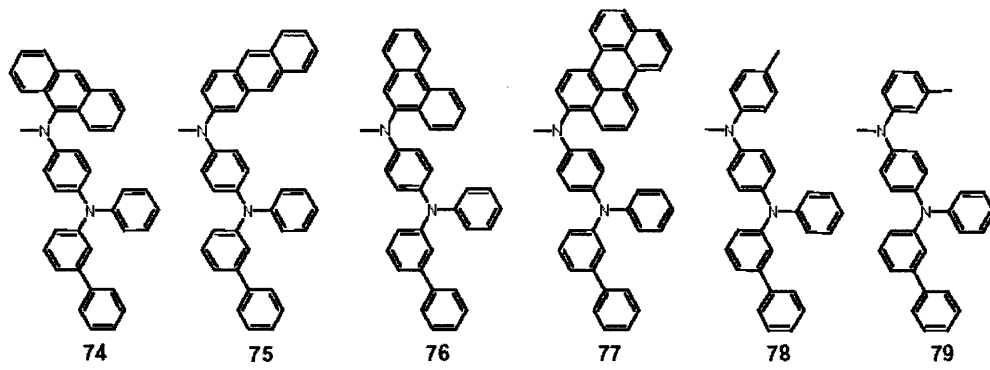
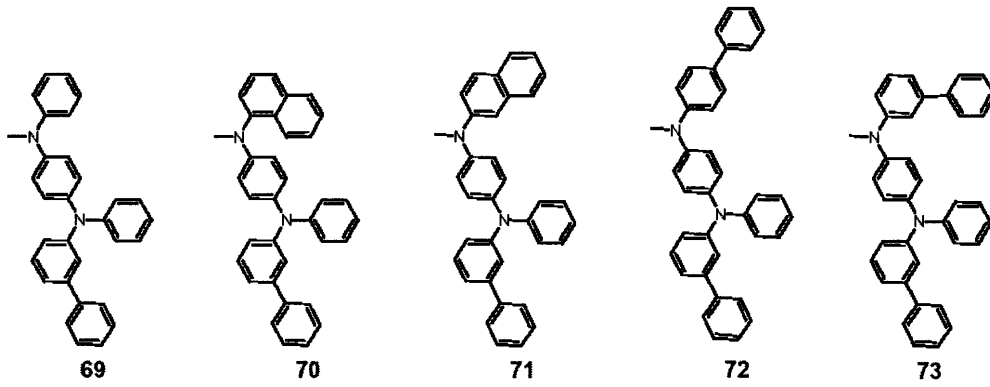
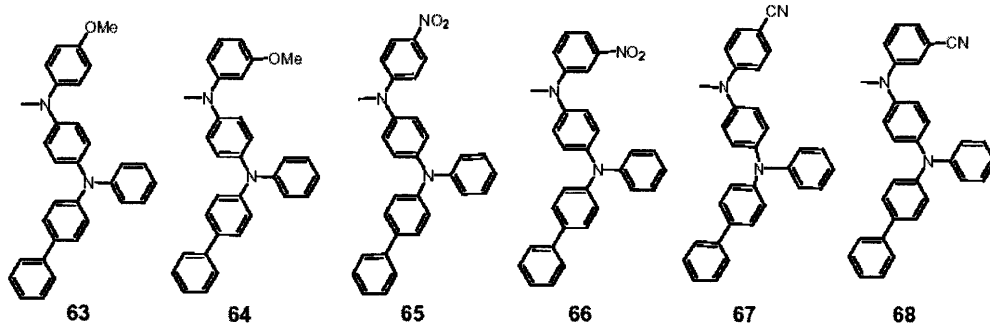
30



10

20

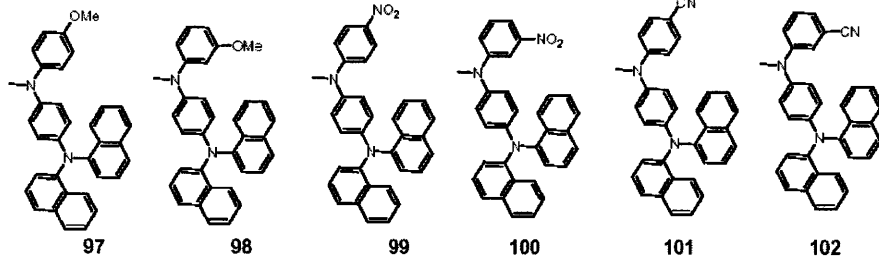
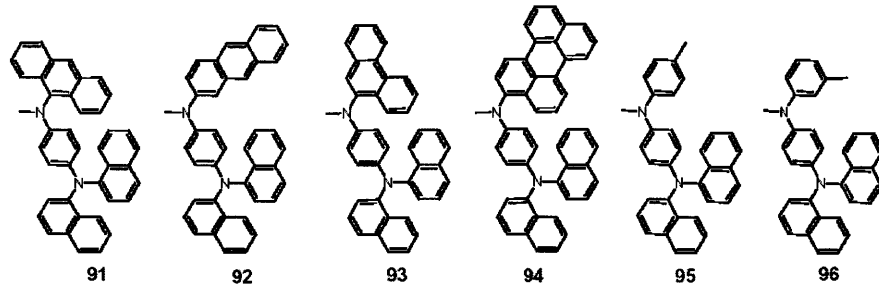
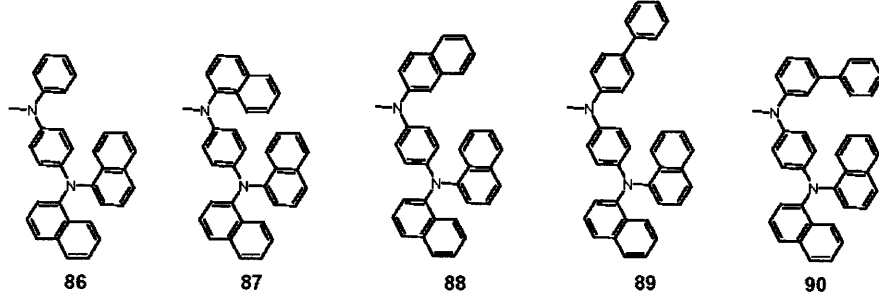
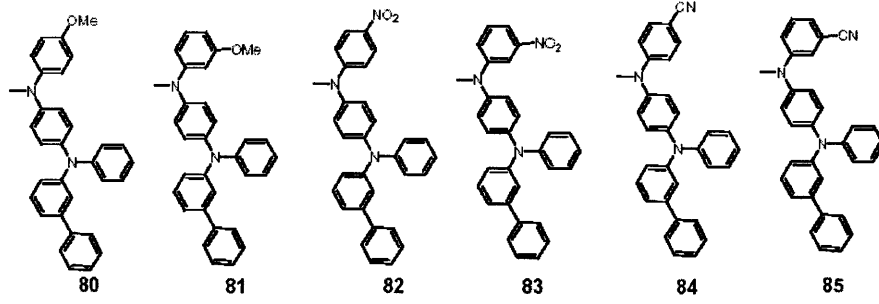
30



10

20

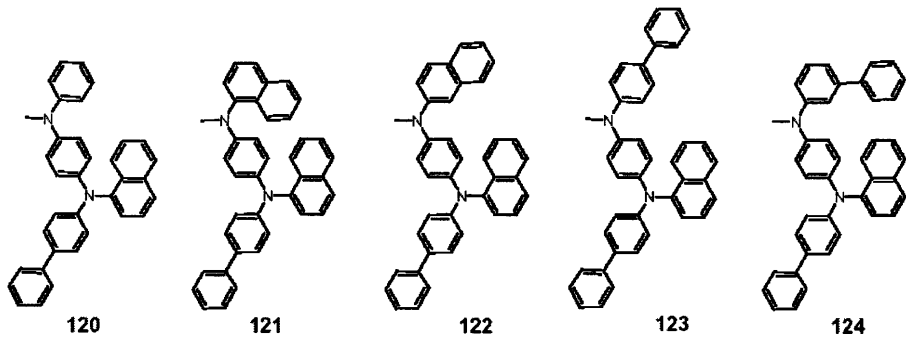
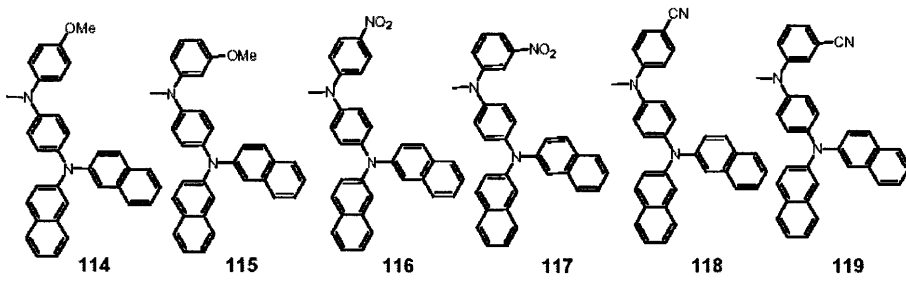
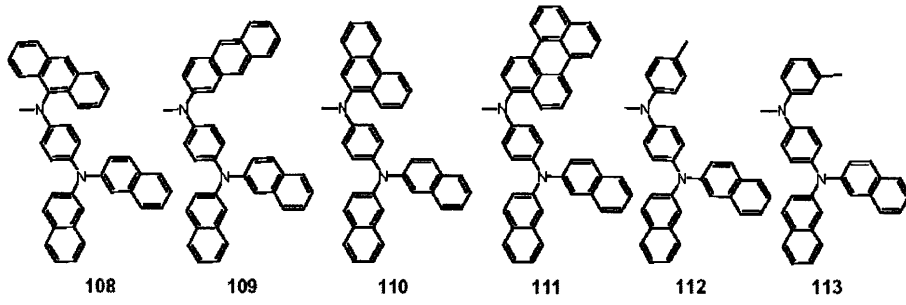
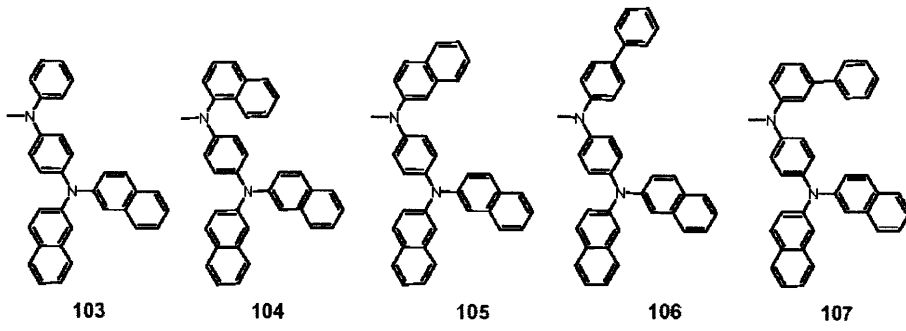
30



10

20

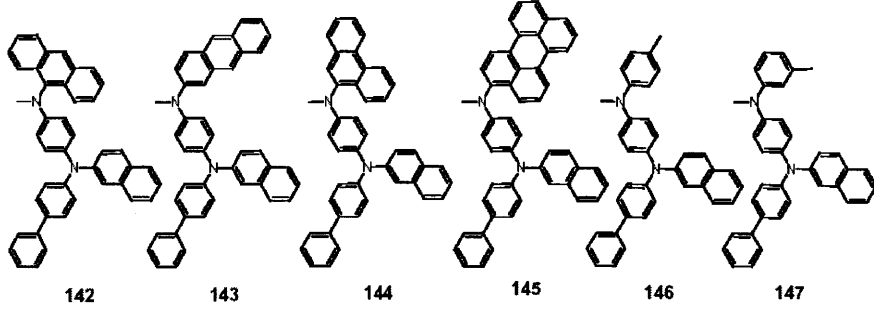
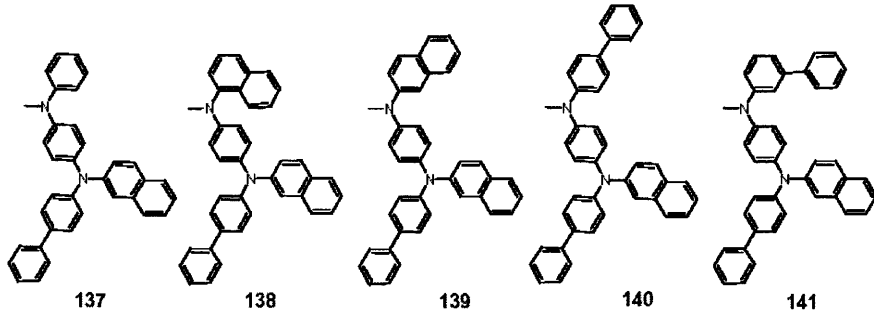
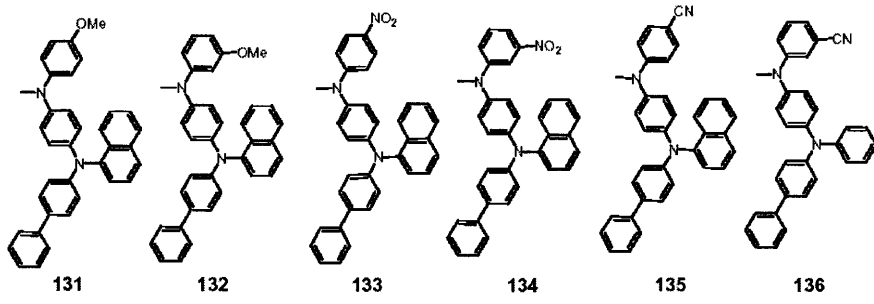
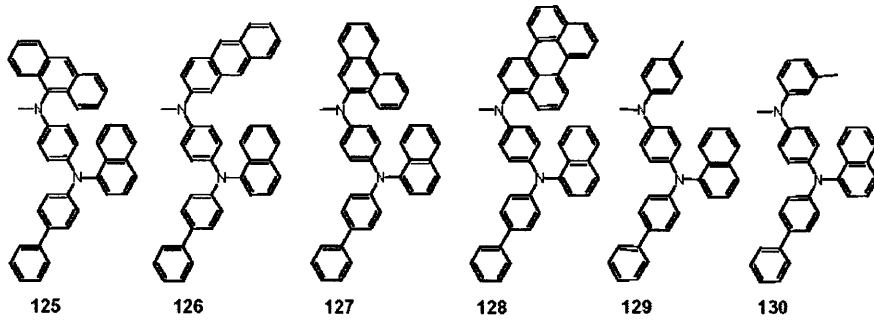
30



10

20

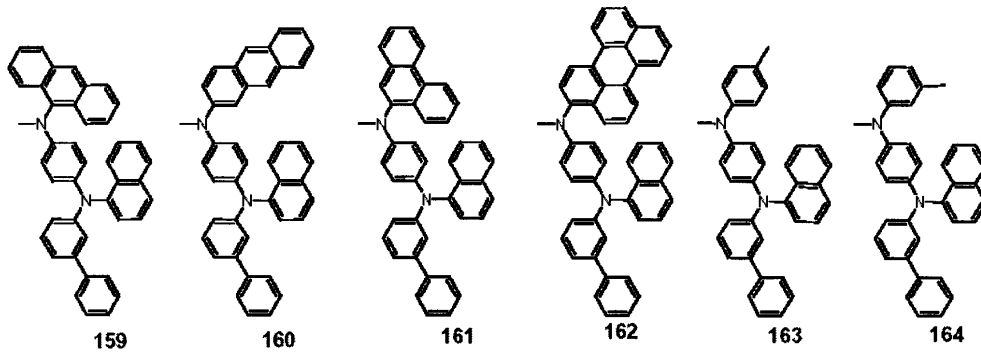
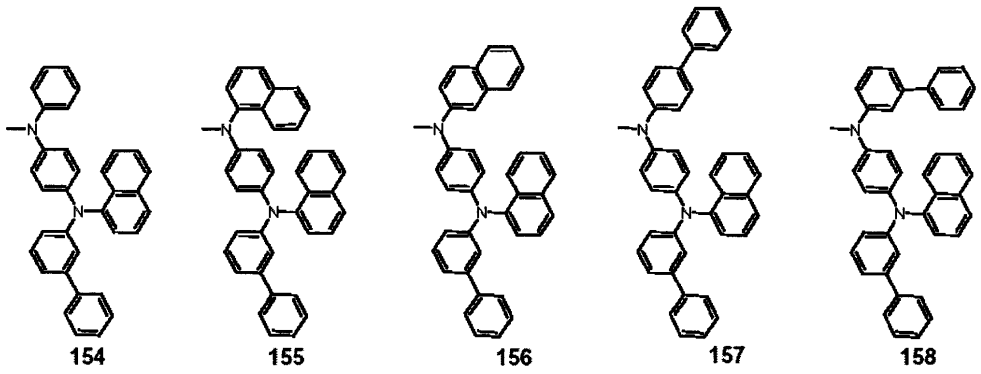
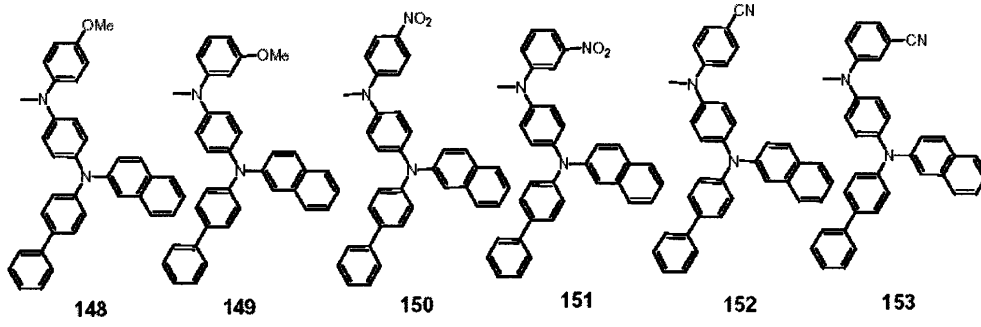
30



10

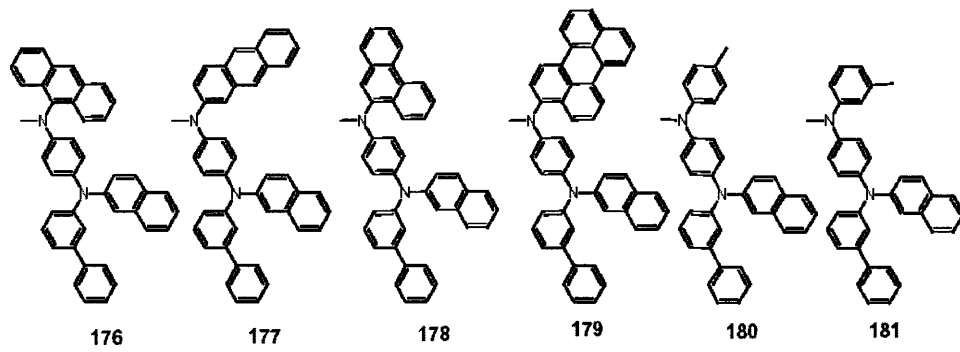
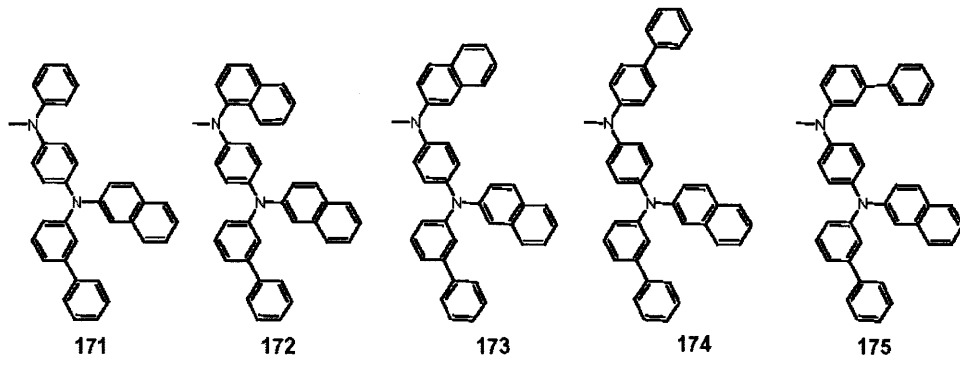
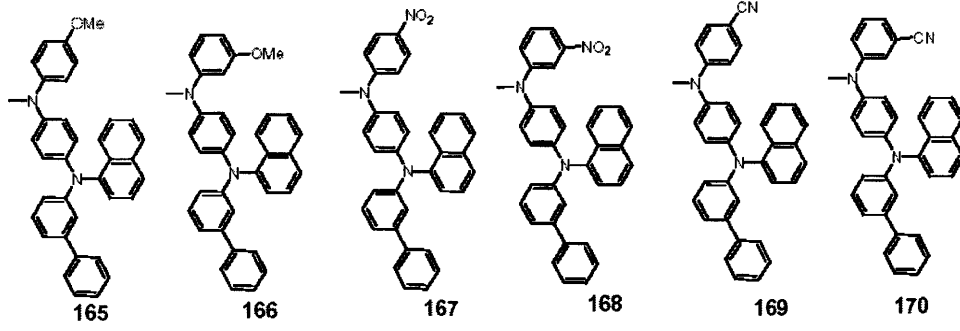
20

30



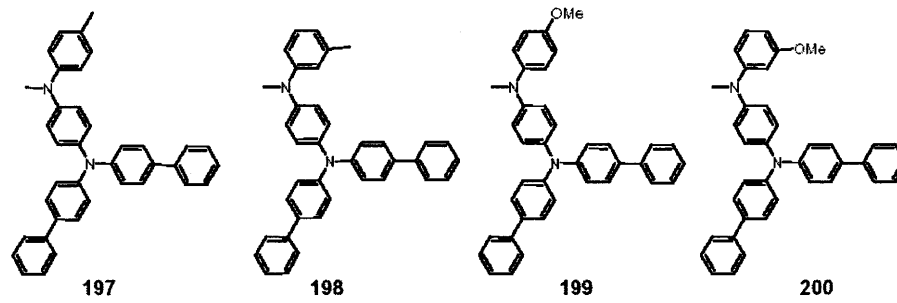
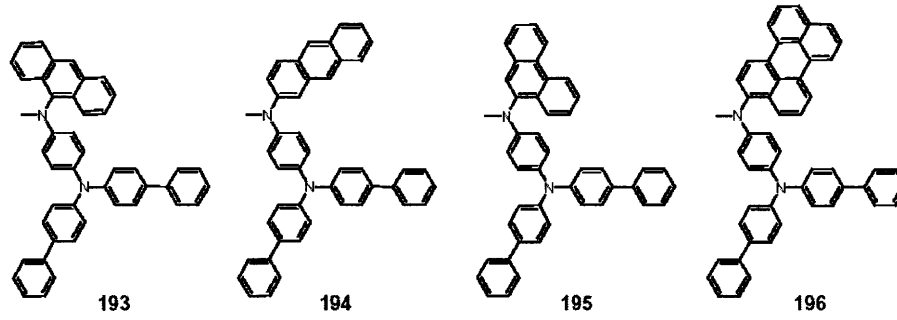
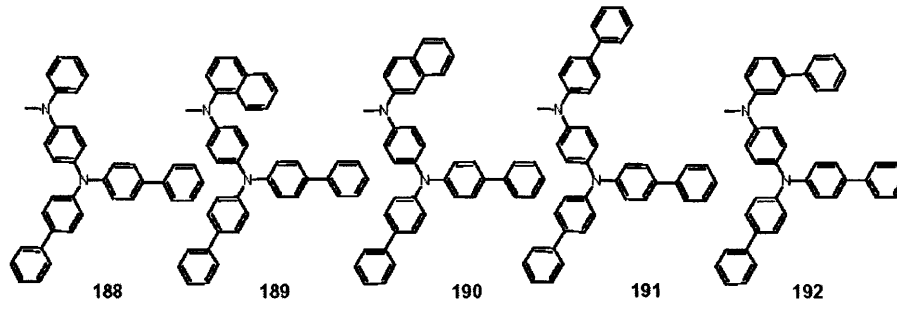
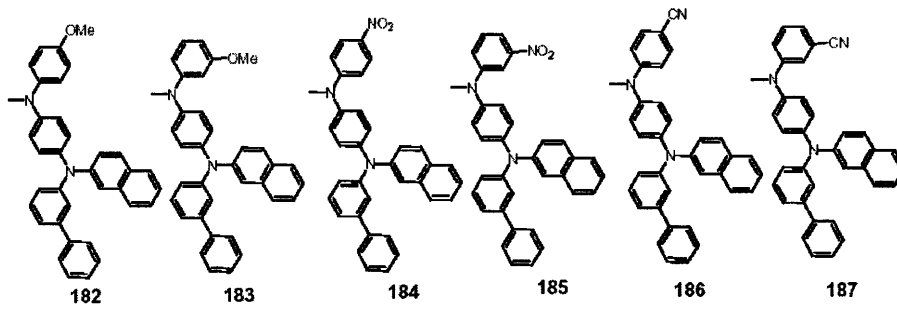
10

20



10

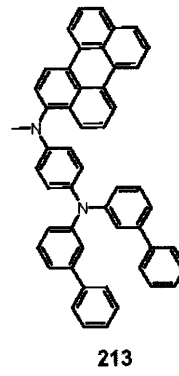
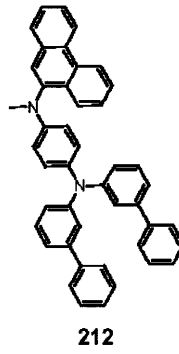
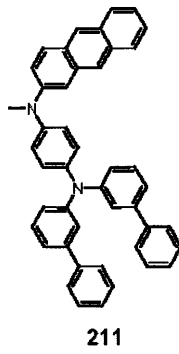
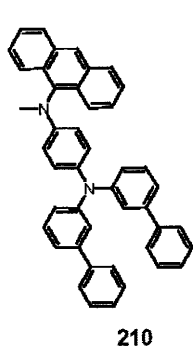
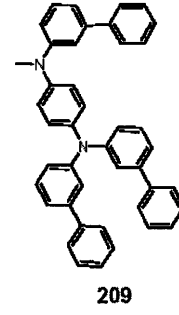
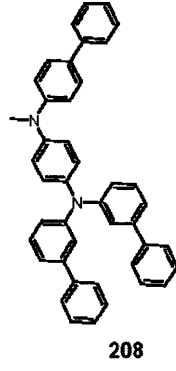
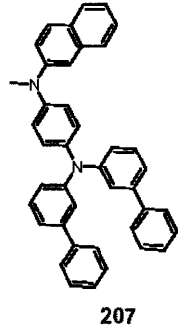
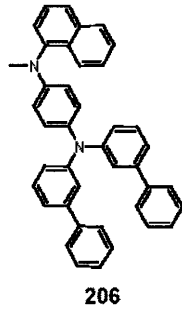
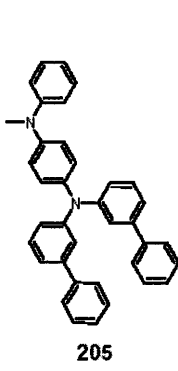
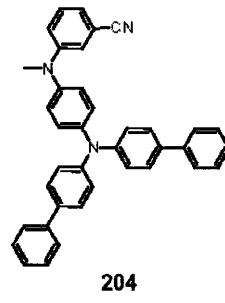
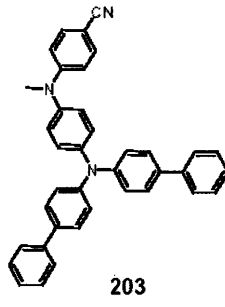
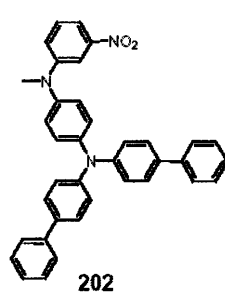
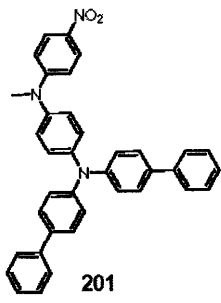
20



10

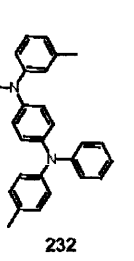
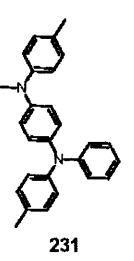
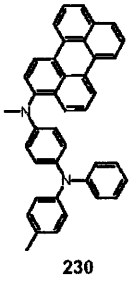
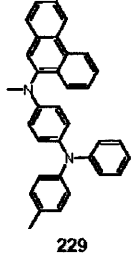
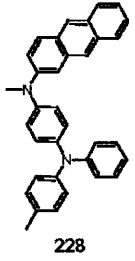
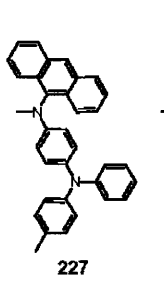
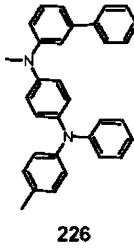
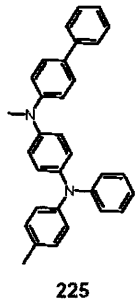
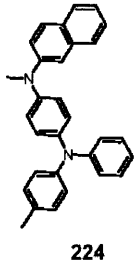
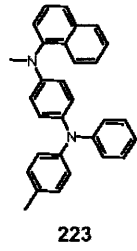
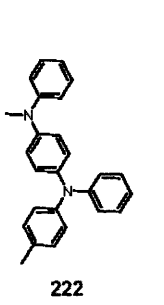
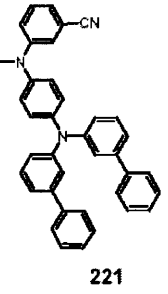
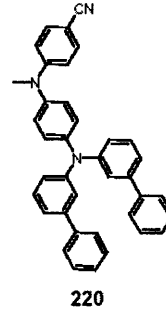
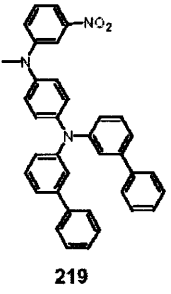
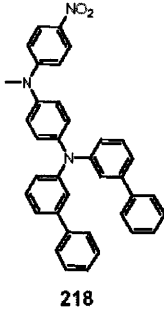
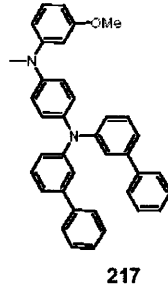
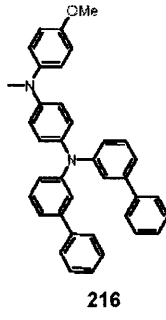
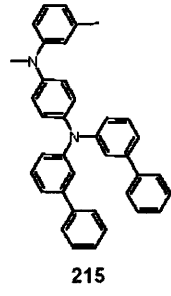
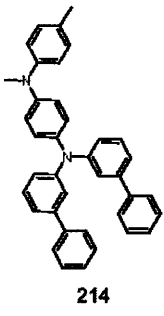
20

30



10

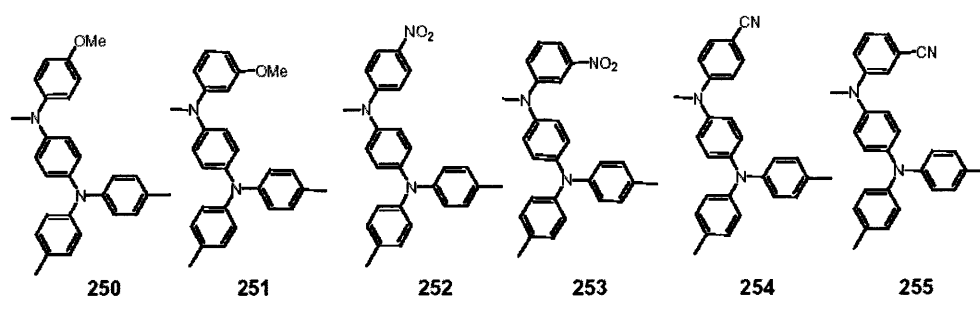
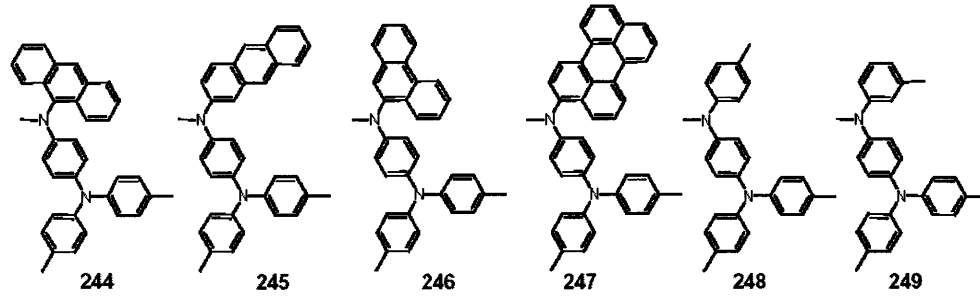
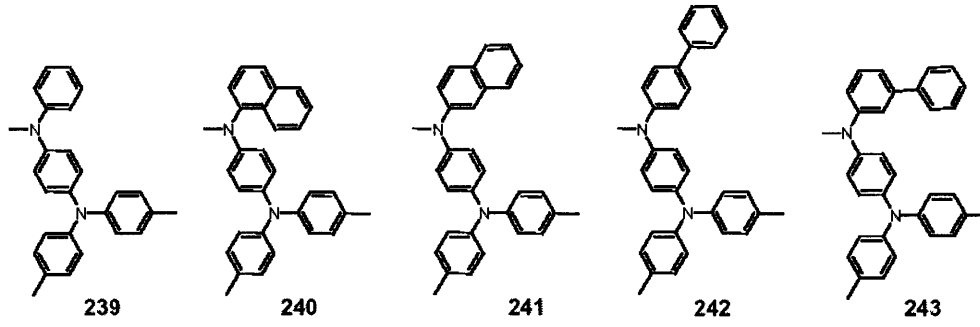
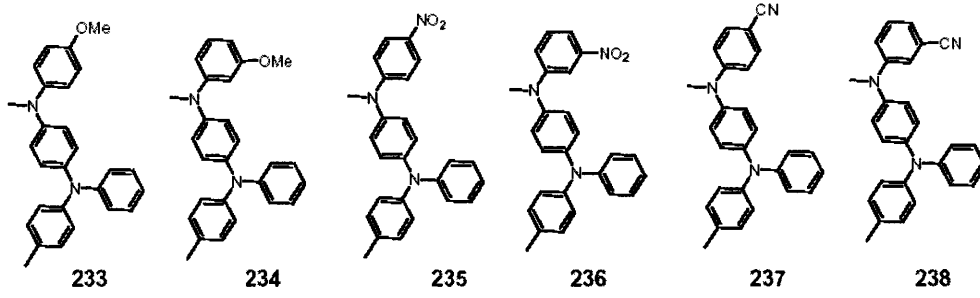
20



10

20

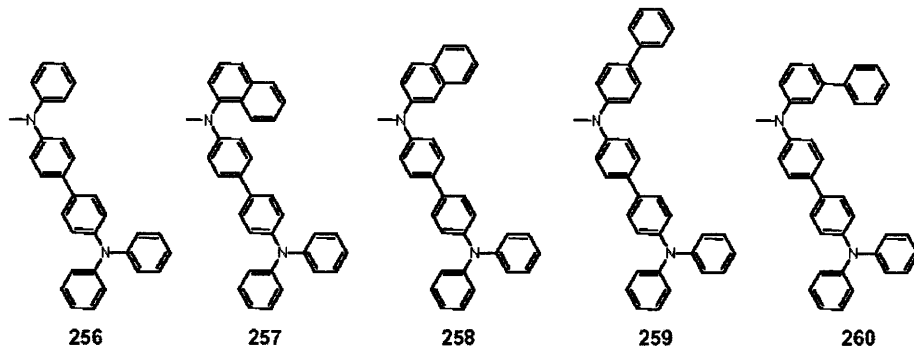
30



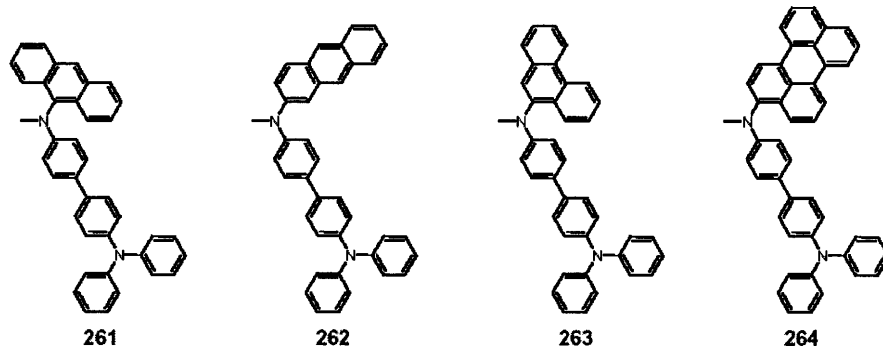
10

20

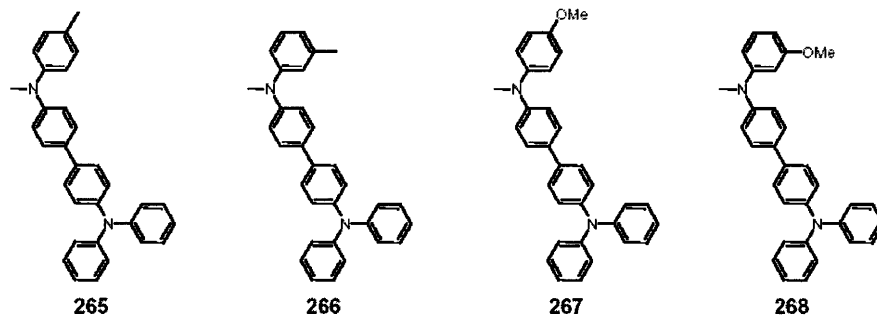
30

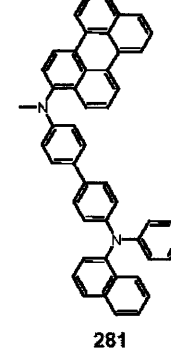
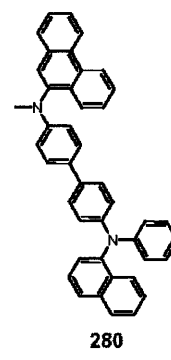
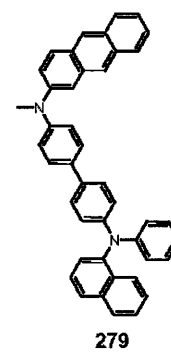
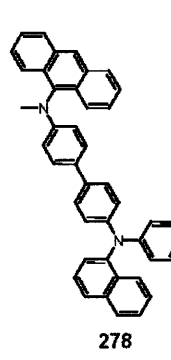
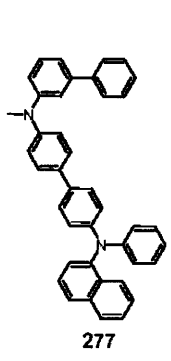
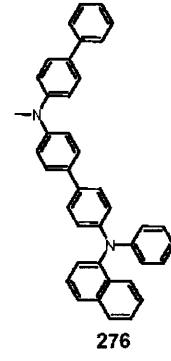
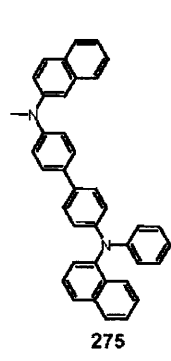
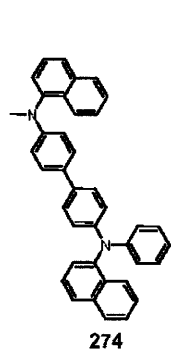
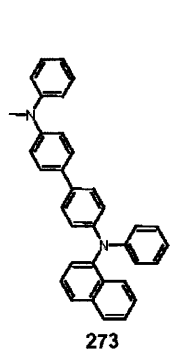
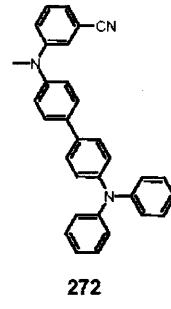
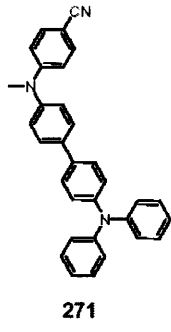
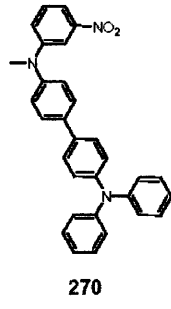
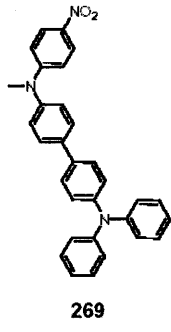


10



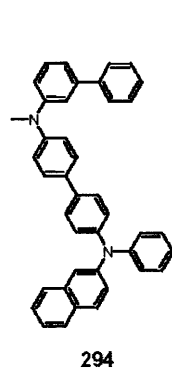
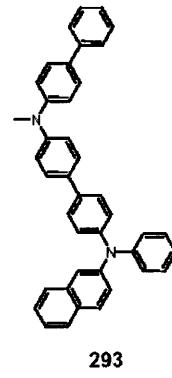
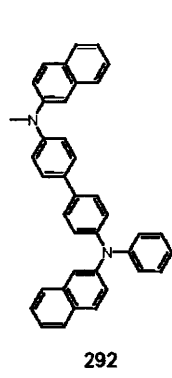
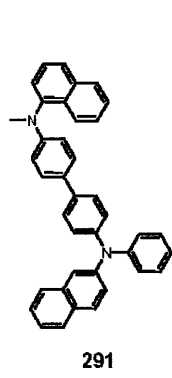
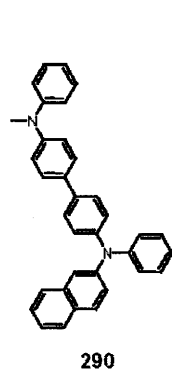
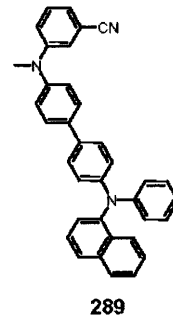
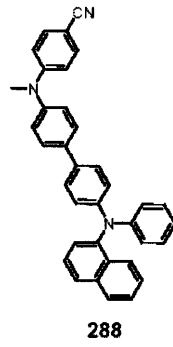
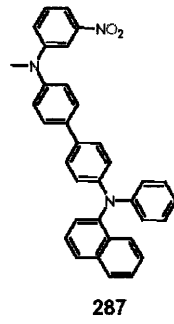
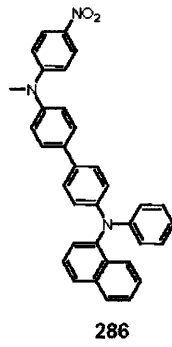
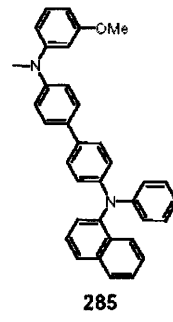
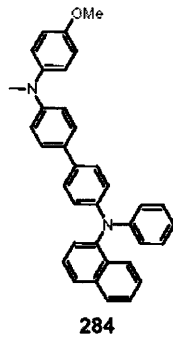
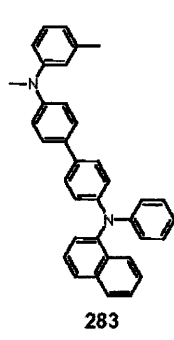
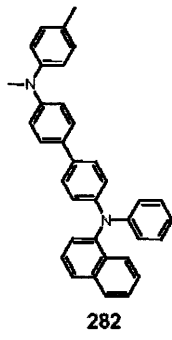
20





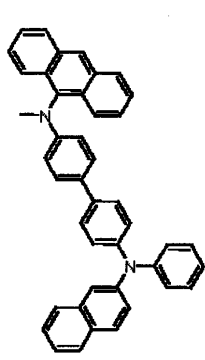
10

20

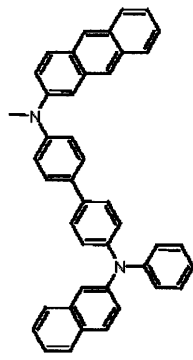


10

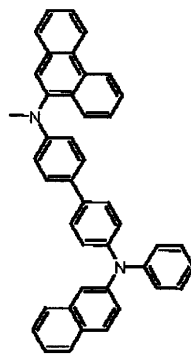
20



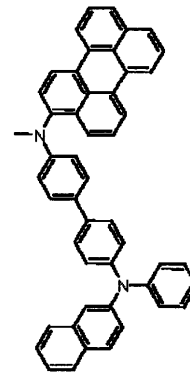
295



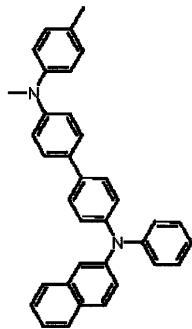
296



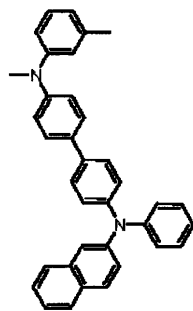
297



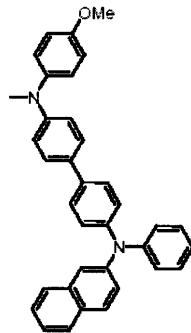
298



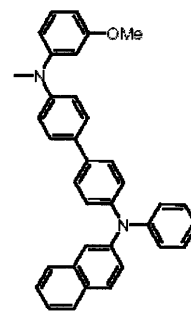
299



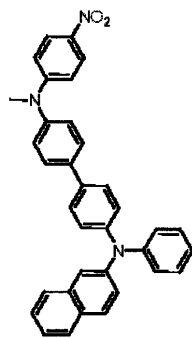
300



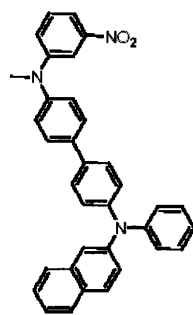
301



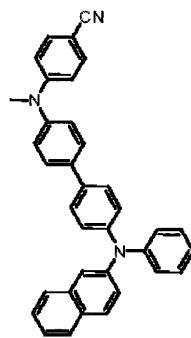
302



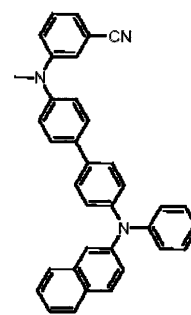
303



304



305

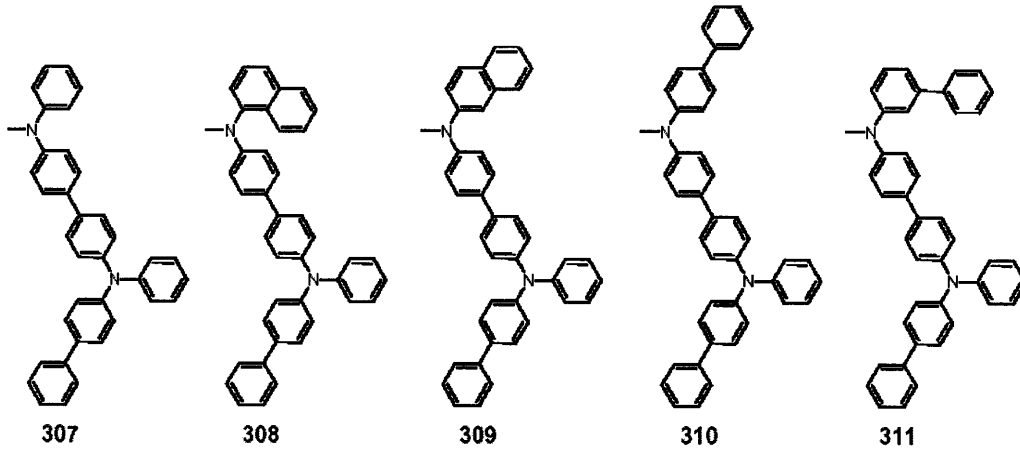


306

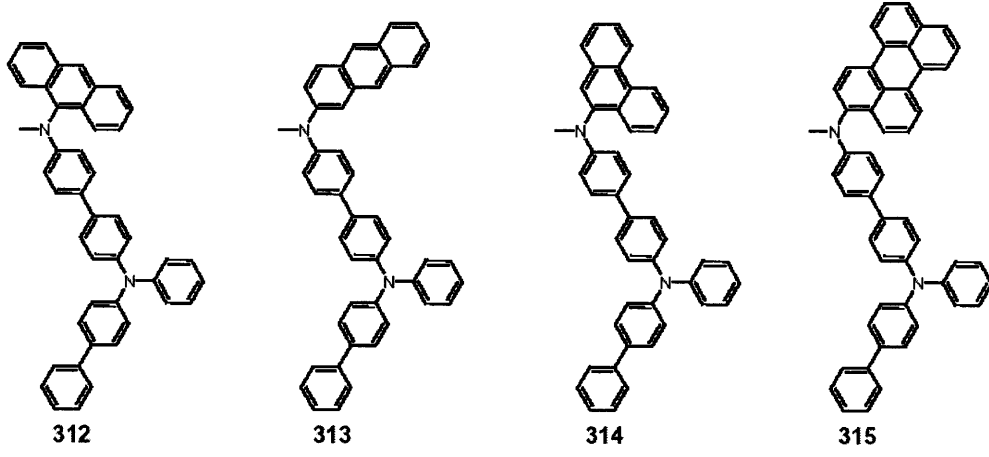
10

20

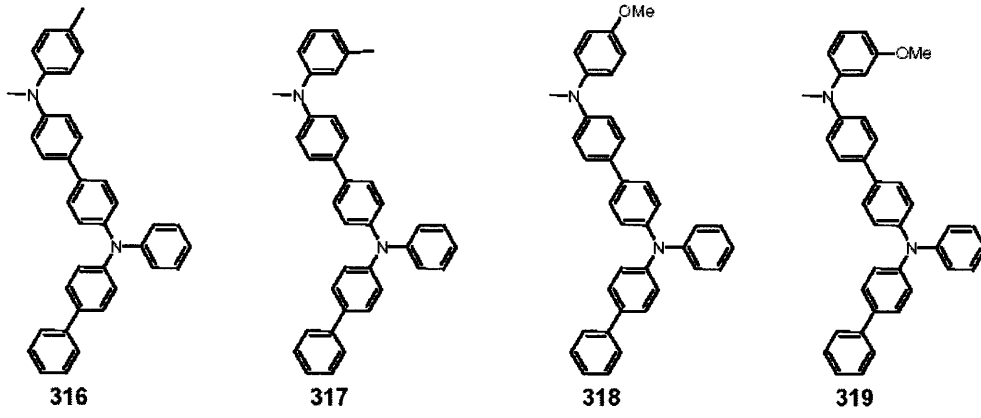
30



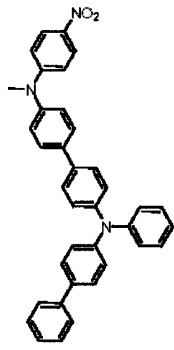
10



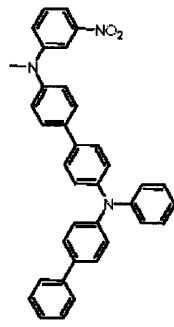
20



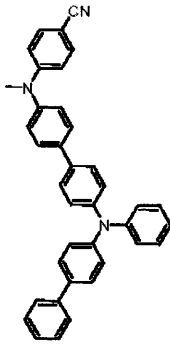
30



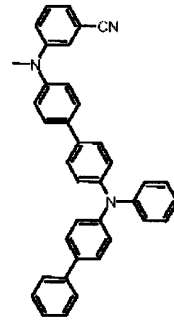
320



321

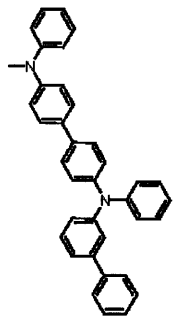


322

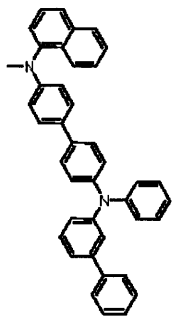


323

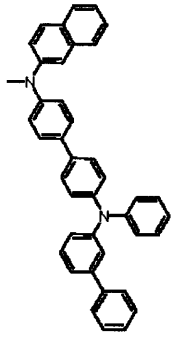
10



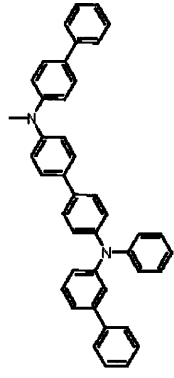
324



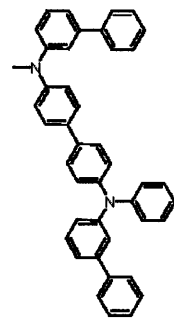
325



326

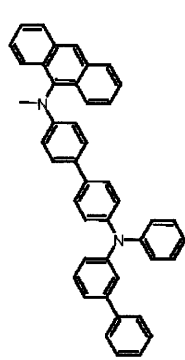


327

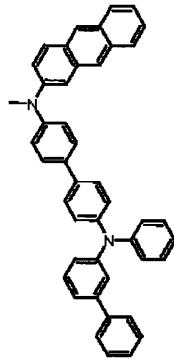


328

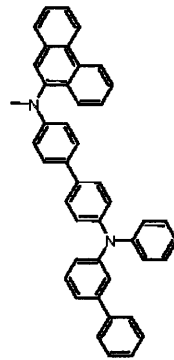
20



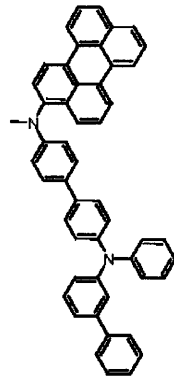
329



330

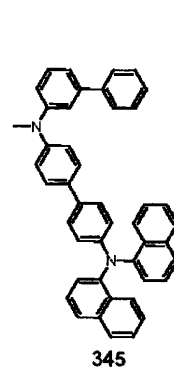
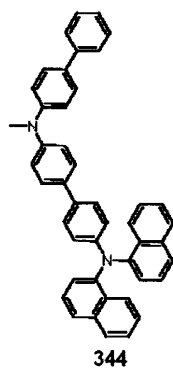
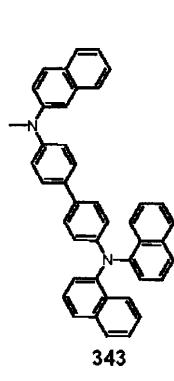
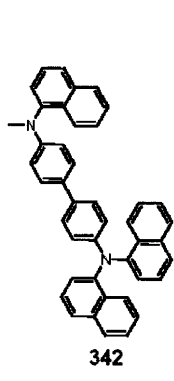
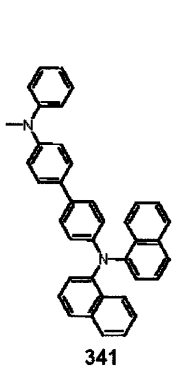
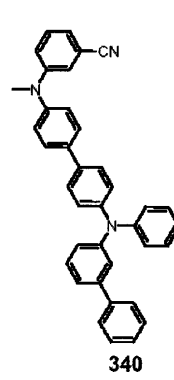
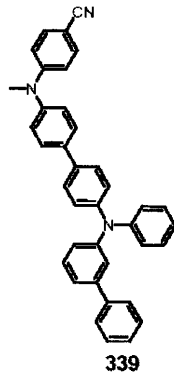
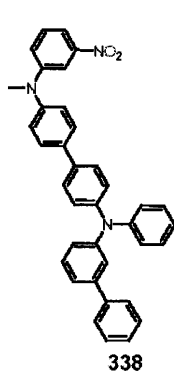
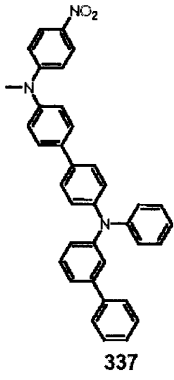
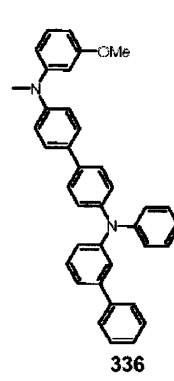
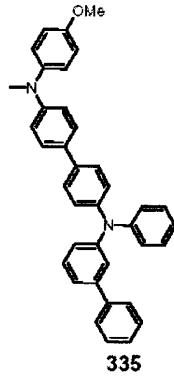
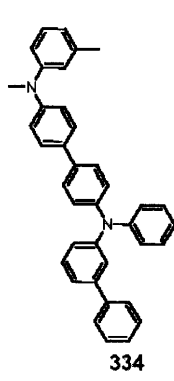
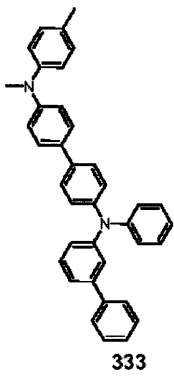


331



332

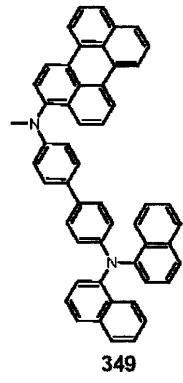
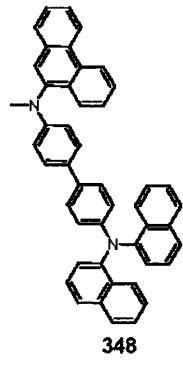
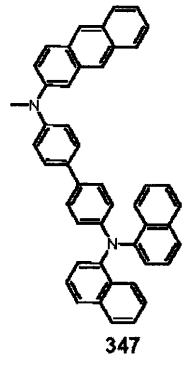
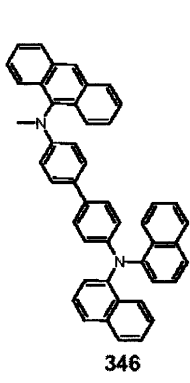
30



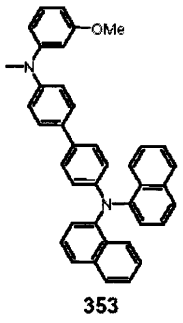
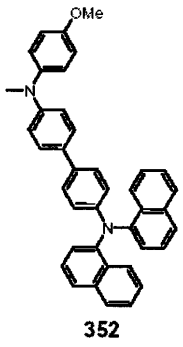
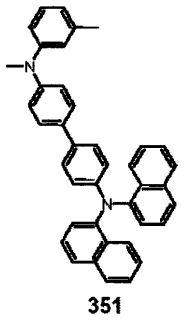
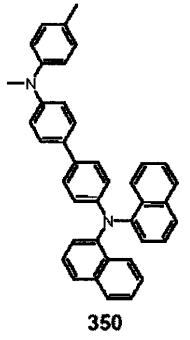
10

20

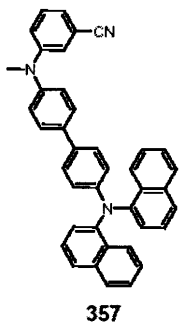
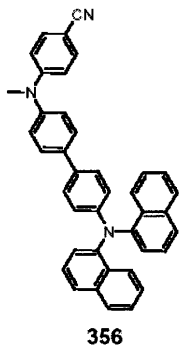
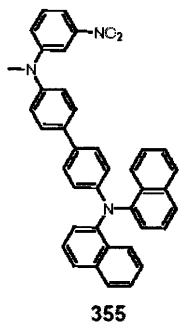
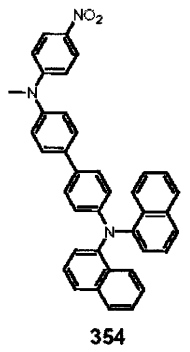
30



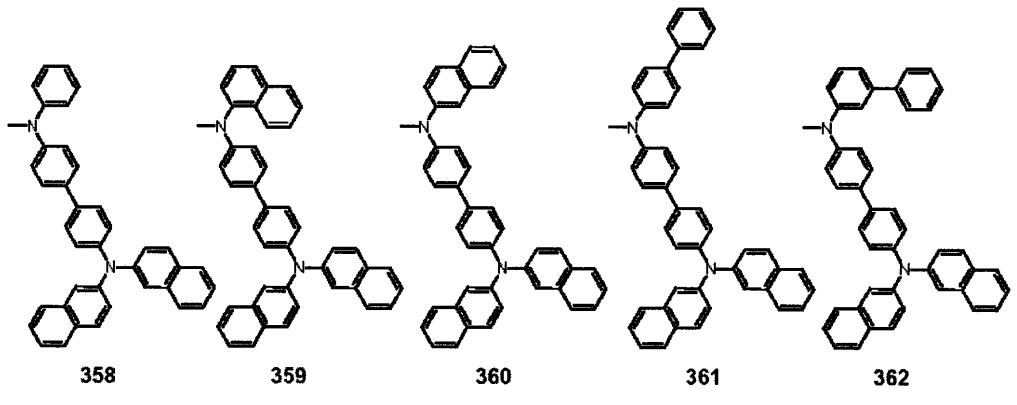
10



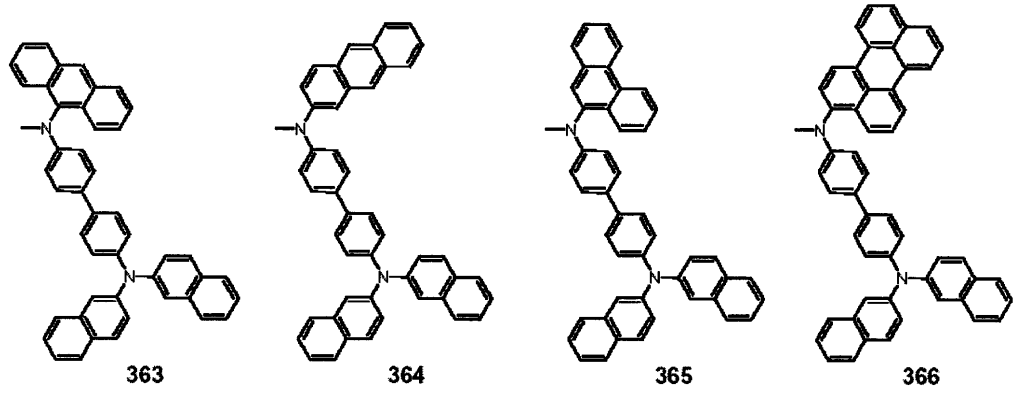
20



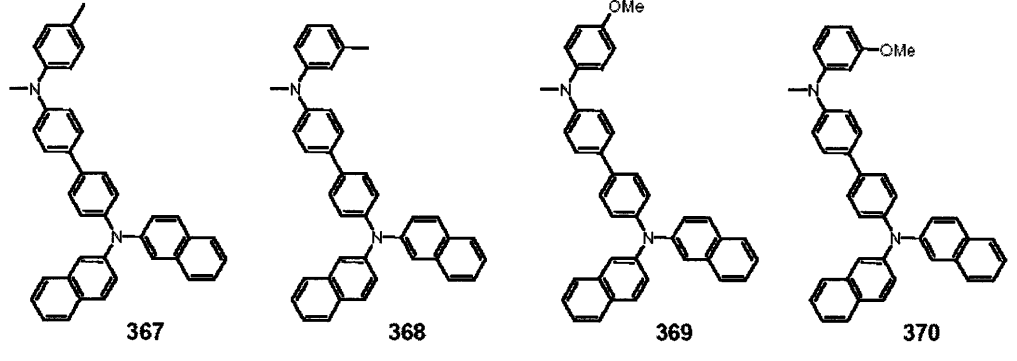
30



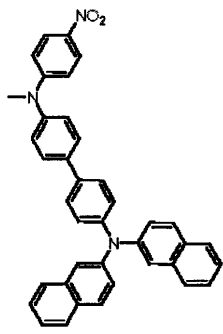
10



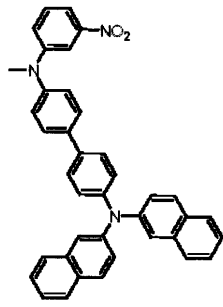
20



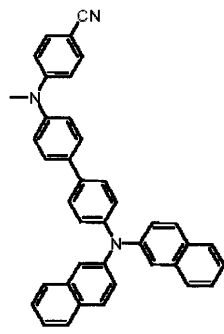
30



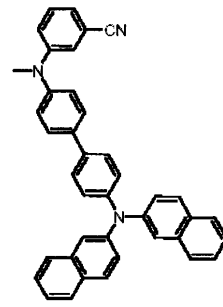
371



372

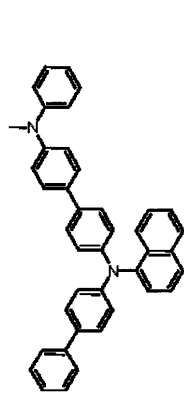


373

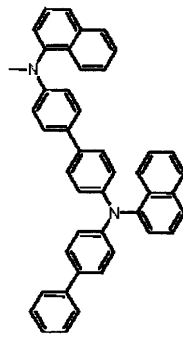


374

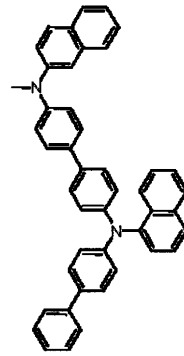
10



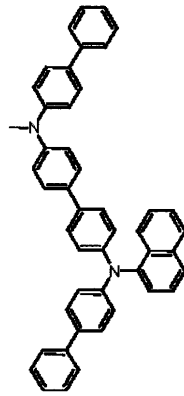
375



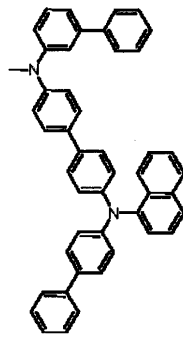
376



377

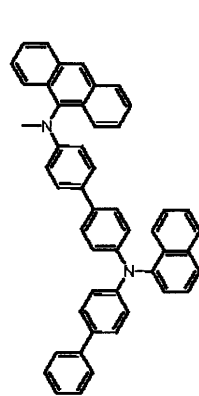


378

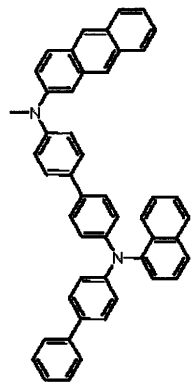


379

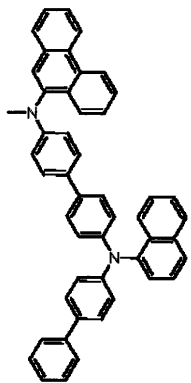
20



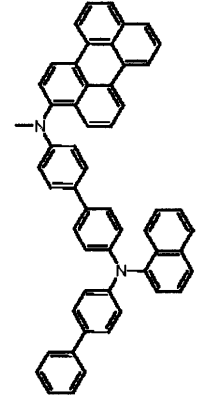
380



381

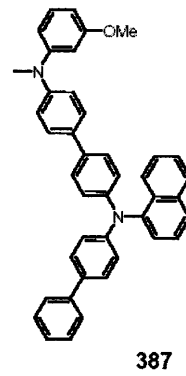
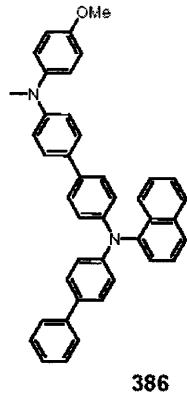
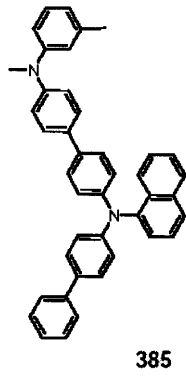
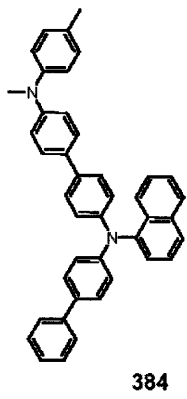


382

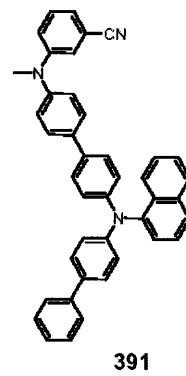
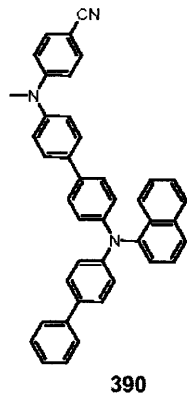
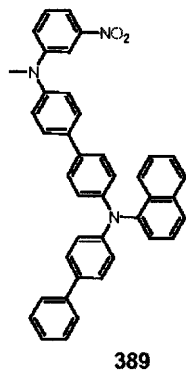
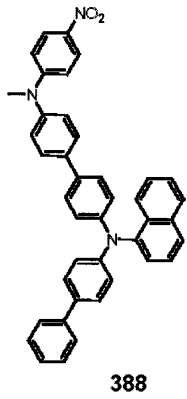


383

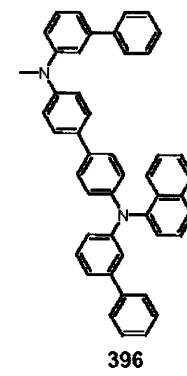
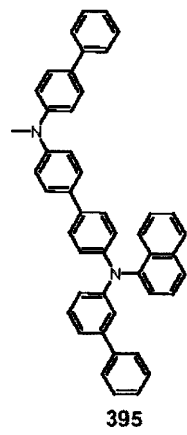
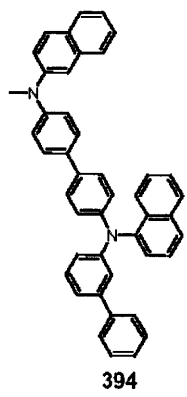
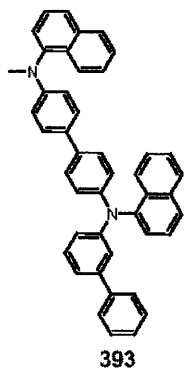
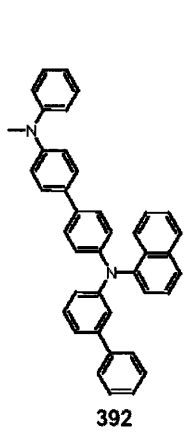
30



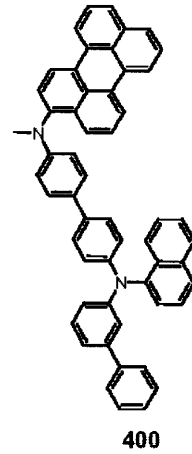
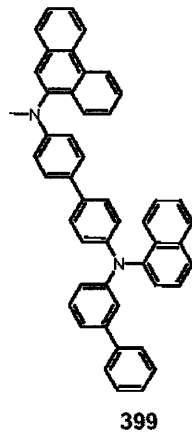
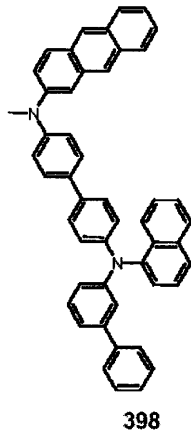
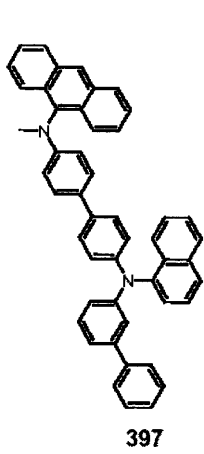
10



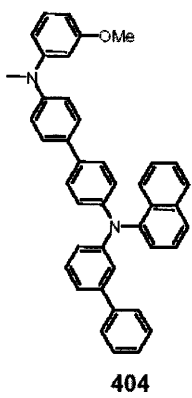
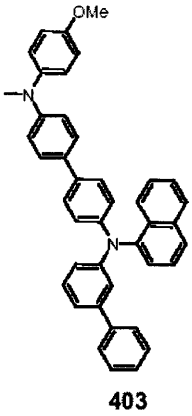
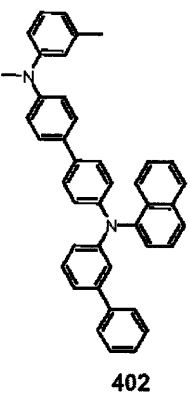
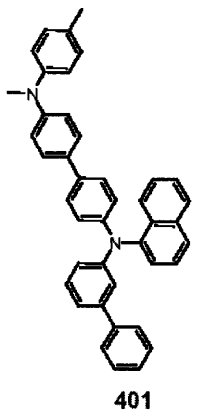
20



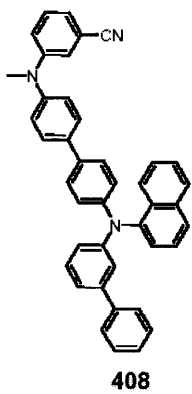
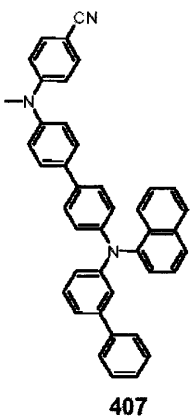
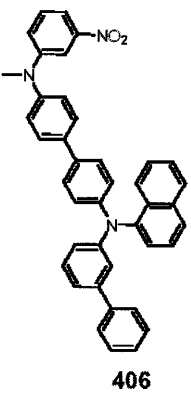
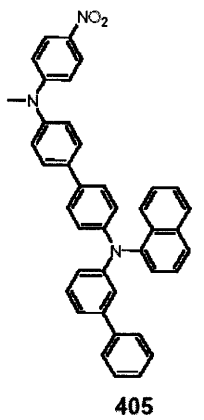
30



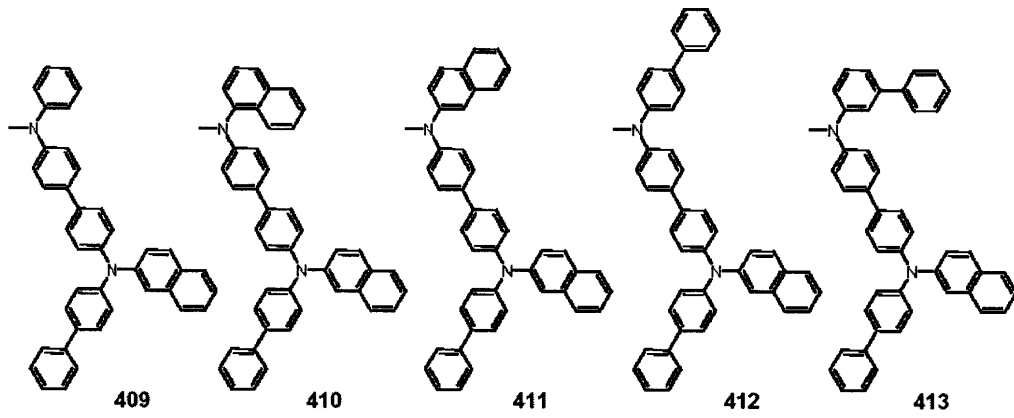
10



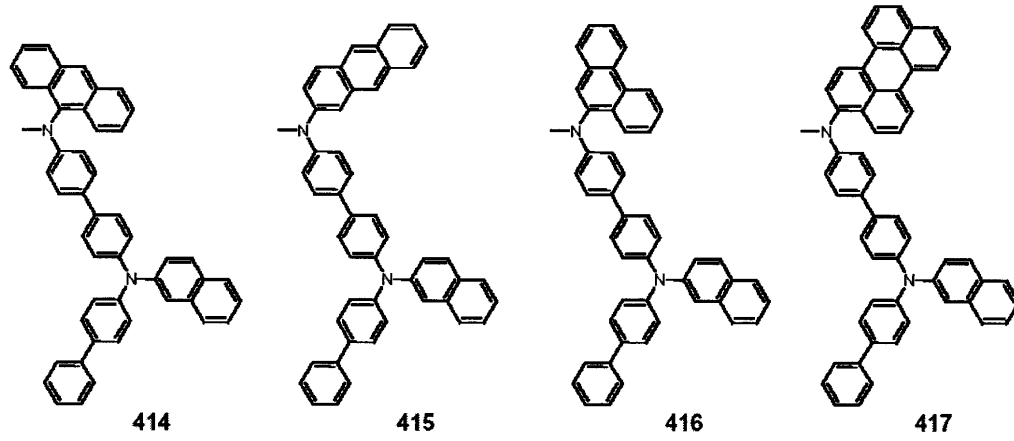
20



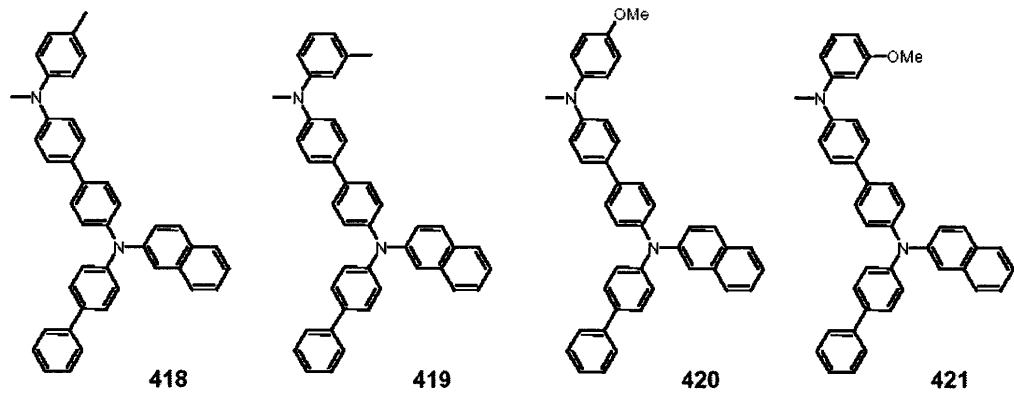
30



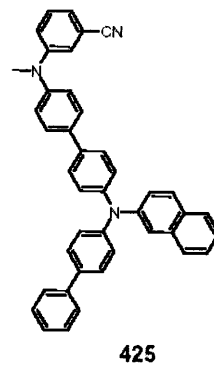
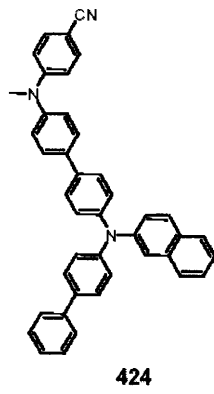
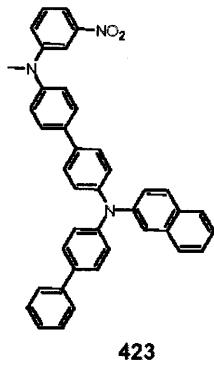
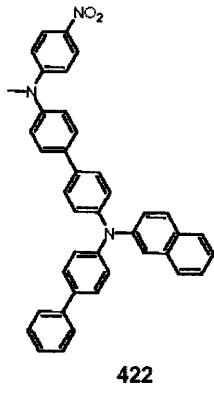
10



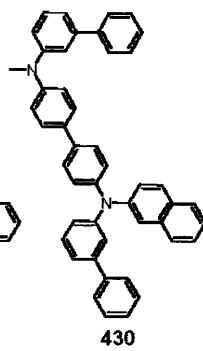
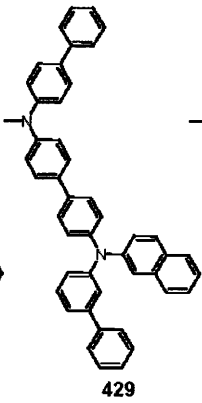
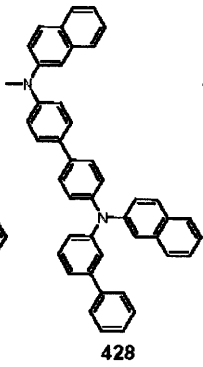
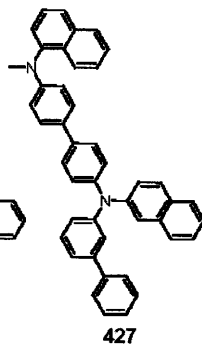
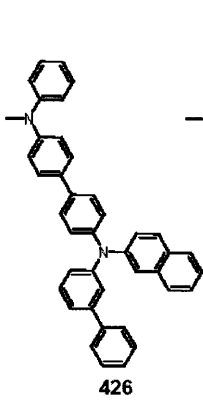
20



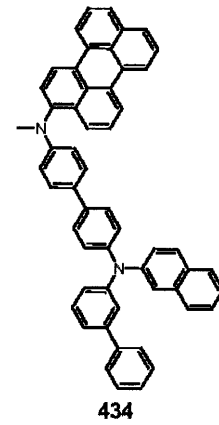
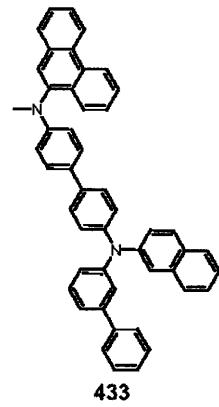
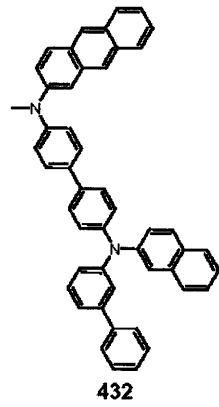
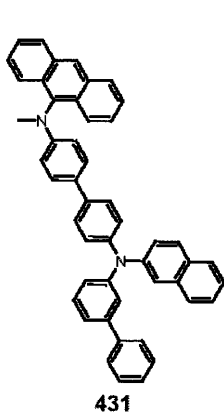
30



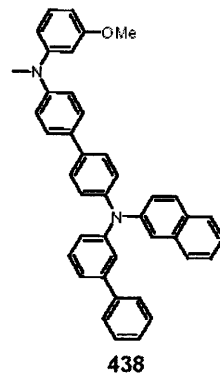
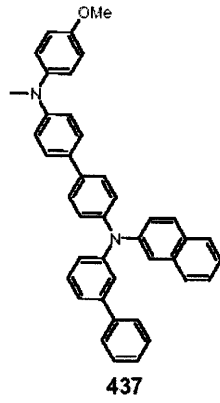
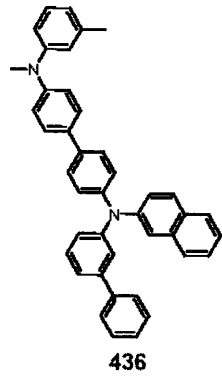
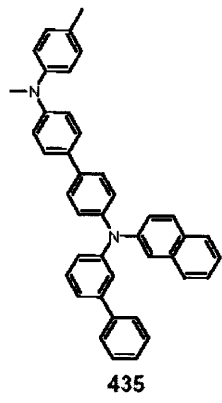
10



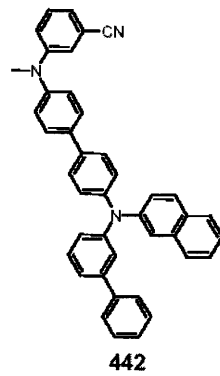
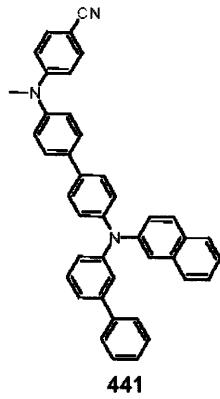
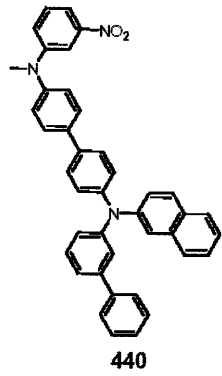
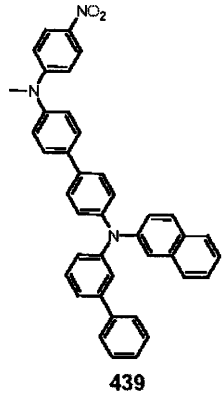
20



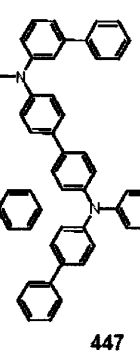
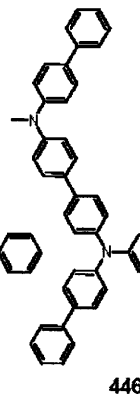
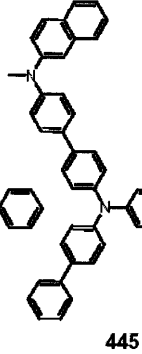
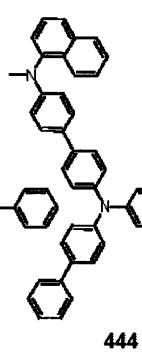
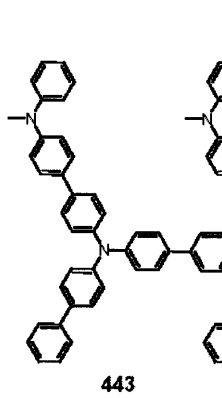
30



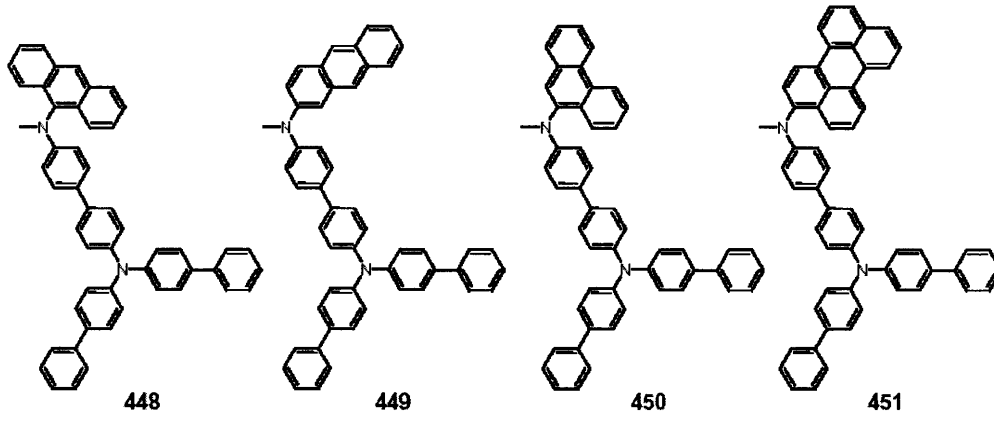
10



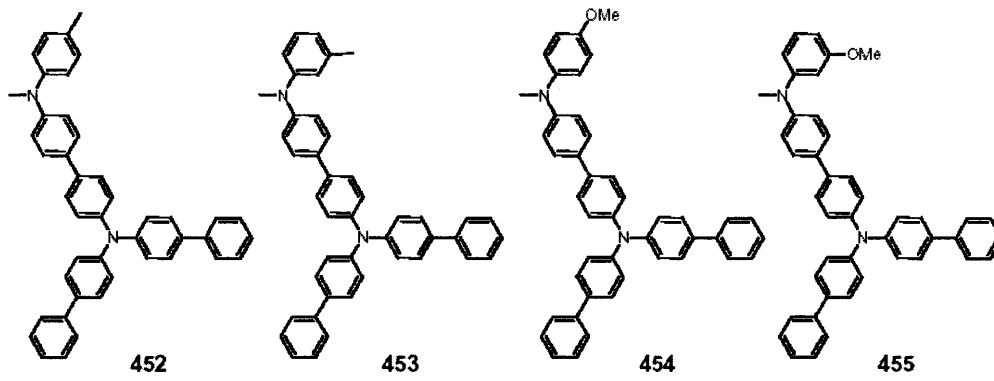
20



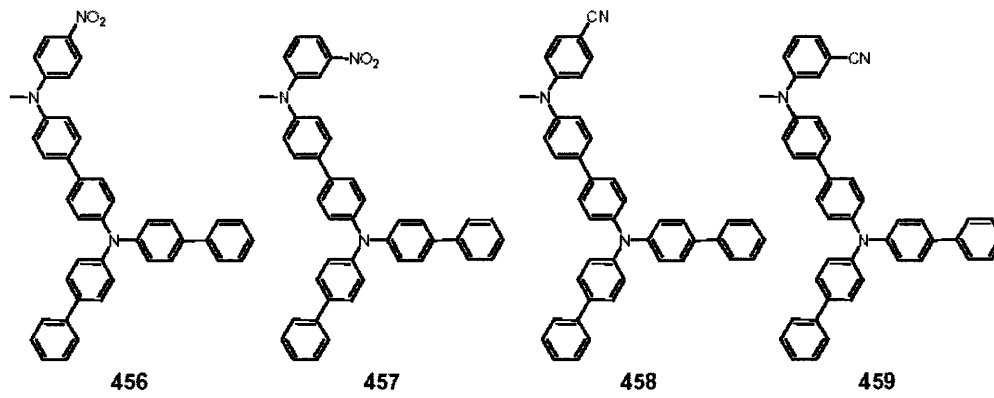
30



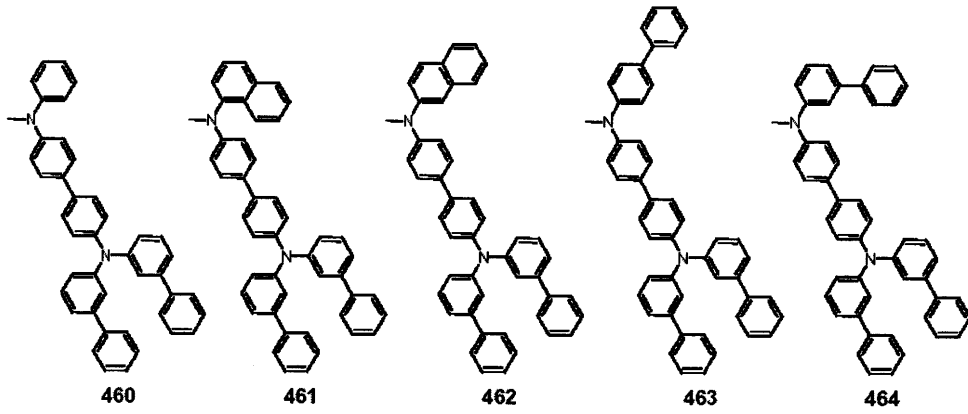
10



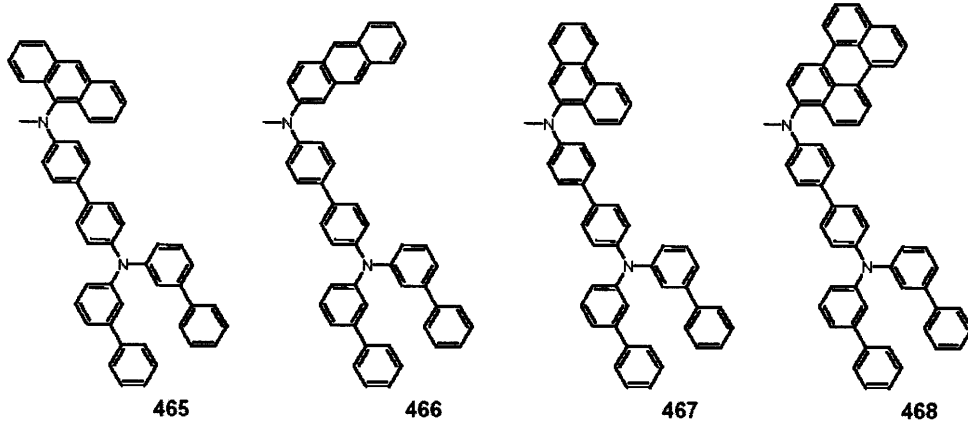
20



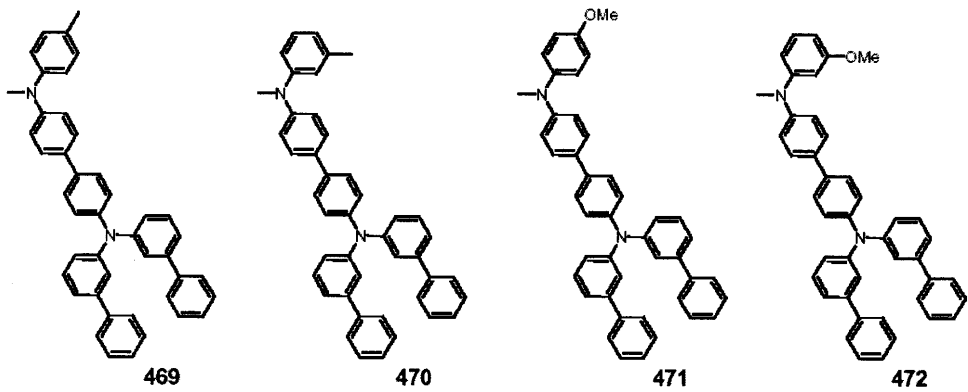
30



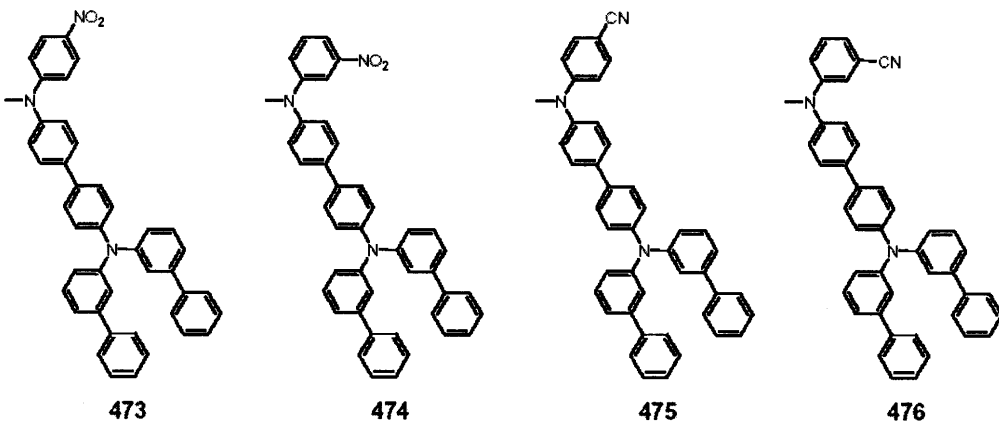
10



20



30



40

【 0 0 2 7 】

以下、本発明について詳細に説明する。

【 0 0 2 8 】

前記化学式 1 の化合物は、前記化学式 1 に表示されたコア構造、すなわちアクリジン基

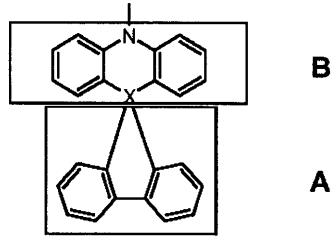
50

とカルバゾール基とが融合した構造にフルオレン基がスピロ構造で結びついたコア構造に多様な置換体を導入することによって、有機発光素子で用いられる有機物層として用いるのに適する特性を有することができる。具体的に説明すれば次の通りである。

【0029】

前記化学式1の化合物のコアの立体構造は、下記のようにAとBの部分に分けて説明することができる。

【化6】



10

【0030】

前記化学式1の化合物のコアは、Xを中心に空間的に平面Aと平面Bとが直角をなす立体構造を有し、ここでXを中心としてAとB部分の間の共役は生じない。また、B平面で窒素原子1つが3つのアリール基の間に位置することによって、B平面内に共役を制限する役割をする。

20

【0031】

化合物の共役の長さエネルギーバンドギャップとは密接な関係がある。具体的に、化合物の共役の長さが長いほどエネルギーバンドギャップが小さくなる。前述した通り、前記化学式1の化合物のコアは制限された共役を含んでいるため、これはエネルギーバンドギャップが大きい性質を有する。

【0032】

本発明では、上記の通りにエネルギーバンドギャップが大きいコア構造のR1～R13およびZ1～Z2の位置に多様な置換基を導入することによって、多様なエネルギーバンドギャップを有する化合物を合成することができる。通常、エネルギーバンドギャップが大きいコア構造に置換基を導入してエネルギーバンドギャップを調節することは容易であるが、コア構造がエネルギーバンドギャップが小さい場合には置換基を導入してエネルギーバンドギャップを大きく調節することが難しい。また、本発明では前記のような構造のコア構造のR1～R13およびZ1～Z2に多様な置換基を導入することによって、化合物のHOMOおよびLUMOエネルギー準位も調節することができる。

30

【0033】

また、前記のような構造のコア構造に多様な置換基を導入することによって、導入された置換基の固有特性を有する化合物を合成することができる。例えば、有機発光素子の製造時に用いられる正孔注入層物質、正孔輸送層物質、発光層物質、電子輸送層物質に主に用いられる置換基を前記コア構造に導入することによって、各有機物層で要求する条件を充足させる物質を合成することができる。特に、前記化学式1の化合物は、コア構造にアリールアミン構造を含んでいるため、有機発光素子において正孔注入および/または正孔輸送物質としての適切なエネルギー準位を有することができる。本発明では、前記化学式1の化合物中の置換基により適切なエネルギー準位を有する化合物を選択して有機発光素子に用いることによって、駆動電圧が低く光効率の高い素子を実現することができる。

40

【0034】

また、前記コア構造に多様な置換基を非対称(Aをコア構造の一側にのみ固定)として導入することによって、エネルギーバンドギャップを細かく調節することができ、一方有機物間における界面での特性を向上するようにし、物質の用途を多様に行うことができる。

【0035】

50

また、置換基 A に含まれた窒素数を 2 つ (Y 1 および Y 2、および Z 1 ~ Z 4 がヘテロ芳香族アミン化合物である場合、これら構造に含まれた窒素数は含まない) 以上に变化させ、HOMO、LUMO エネルギー準位およびエネルギーバンドギャップを細かく調節可能で、一方で有機物間における界面での特性を向上するようにして、物質の用途を多様化することができる。

【0036】

また、前記化学式 1 の化合物は、スピロ結合による空間的構造に多様な置換基を導入して有機物の三次元構造を調節することによって、有機物内の - 相互作用を最小化する構造を有するようにして、エキシマ (e x c i m e r) の形成を抑制することもできる。

【0037】

一方、前記化学式 1 の化合物はガラス遷移温度 (T g) が高く、熱的安定性に優れている。例えば、化学式 3 - 256 の化合物は、ガラス遷移温度が 167 であって、既に一般的に用いられる NPB (T g : 96) に比べて顕著に高いことが分かる。このような熱的安定性の増加は、素子に駆動安定性を提供する重要な要因となる。

【0038】

また、前記化学式 1 の化合物は、有機発光素子の製造時の真空蒸着法だけでなく、溶液塗布法によって有機物層として形成することができる。ここで、溶液塗布法というのは、スピニング、ディップコーティング、インクジェットプリンティング、スクリーンプリンティング、スプレー法、ロールコーティングなどを意味するが、これらだけに限定されるものではない。

【0039】

例えば、化学式 1 の化合物は、素子の製造工程中に用いられる溶媒、例えば、キシレン、ジクロロエタン、あるいは NMP などのような極性溶媒などに対する溶解度に非常に優れているだけでなく、溶液を用いた方法で薄膜形成が非常に良くできる特性を有するため、素子の製造時の溶液塗布法を用いることができる。

【0040】

本発明のスピロ構造の化合物は、リチオ化 (l i t h i a t i o n) されたアール基とケト基とを反応させて得た 3 次アルコールを酸触媒下にて加熱すれば、水が蒸発しながら六角形の環構造を形成する方法を用いて製造することができる。このような製造方法は当技術分野でよく知られている方法であって、当業者は前記製造方法の条件を変更して前記化学式 1 の化合物を製造することができる。具体的な製造方法は後述する製造例に記載した。

【0041】

本発明の有機発光素子では、前記化学式 1 の化合物の代りに前記化学式 1 の化合物に熱硬化性または光硬化性の官能基を導入した化合物を用いることもできる。このような化合物は、前述した化学式 1 の化合物の基本物性を維持すると同時に、素子の製作の際、溶液塗布法により薄膜に形成した後に硬化させる方法によって有機物層として形成することができる。

【0042】

上記の通りに有機発光素子の製作の際、有機物に硬化性の官能基を導入し、溶液塗布法により前記有機物の薄膜を形成した後に硬化する方法によって有機物層を形成する方法は、米国特許公開 2003 - 0044518 号およびヨーロッパ特許公開 1146574 A2 号などに記載されている。

【0043】

前記文献には熱硬化または光硬化可能なビニル基あるいはアクリル基を有する物質を用いて、前記のような方法によって有機物層を形成して有機発光素子を製作する場合、溶液塗布法によって多層構造を有する有機発光素子を作ることができるだけでなく、低電圧、高輝度の有機発光素子を作ることができると記載されている。このような作用原理は、本発明の化合物にも適用することができる。

【0044】

10

20

30

40

50

本発明において、前記熱硬化性または光硬化性の官能基は、ビニル基またはアクリル基などであり得る。

【0045】

本発明の有機発光素子は、有機物層中の1層以上が本発明の化合物、すなわち前記化学式1の化合物を含むことを除いては当技術分野で知られている材料と方法によって製造することができる。

【0046】

本発明の有機発光素子の有機物層は、単層構造としてなされることもできるが、2層以上の有機物層が積層された多層構造としてなされることもできる。例えば、本発明の有機発光素子は有機物層であって、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層などを含む構造を有することができる。しかし、有機発光素子の構造は、ここに限定されず、さらに少ない数の有機物層を含むことができる。

10

【0047】

そして、本発明の有機発光素子は、例えば基板上に第1電極、有機物層および第2電極を順次積層させることによって製造することができる。この時、スパッタリング法や電子ビーム増発法(e-beam evaporation)のようなPVD(Physical Vapor Deposition)方法などを用いることができるが、これら方法にだけに限定されるものではない。

【0048】

前記化学式1の化合物の製造方法およびこれらを用いた有機発光素子の製造は、以下の製造例および実施例で具体的に説明する。しかし、下記製造例および実施例は、本発明を例示するためのものであり、本発明の範囲がこれらによって限定されるものではない。

20

【発明の実施のための形態】

【0049】

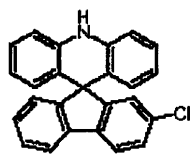
前記化学式1として代表される有機化合物の合成方法とこれを用いた有機電気発光素子の製造は、以下の実施例および比較例によってより具体的に説明される。しかし、これらの実施例は本発明を例示するためのものであって、本発明の範囲がこれらだけに限定されるものではない。

【0050】

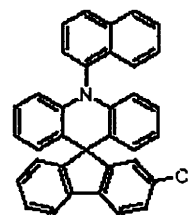
前記化学式1に示される化合物の合成のために、下記化学式a~bの化合物を出発物質として用いることができる。

30

【化7】



[化学式 a]



[化学式 b]

40

【0051】

<製造例1> 化学式aとして示される出発物質の製造

1) ジフェニルアミン10g(59mmol)とプロモメチルメチルエテル8.04ml(88.6mmol)をテトラヒドロフラン100mlに溶解させた後、トリエチルアミン12.4ml(88.6mmol)を添加した。窒素気流下で5時間攪拌した後、蒸留水を入れて有機層を抽出した。抽出した有機層は、ノルマルヘキサン/テトラヒドロフラン=15:1でコラム分離した後、真空乾燥して3次アミン12g(収率90%)を得た。

【0052】

2) 前記1)で合成されたアミン化合物(12.0g、56.3mmol)を精製され

50

たTHF 100 mlに溶かした後、78 °Cで冷却した後、n-BuLi (2.5 Mヘキサン溶液、22.5 ml、56.3 mmol)をゆっくり添加した。同一温度で30分間攪拌した後、化合物2-クロロ-9-フルオレノン (12.1 g、56.3 mmol)を加えた。同一温度で40分間攪拌した後、常温に温度を上げて3時間さらに攪拌した。塩化アンモニウム水溶液で反応を終了した後にエチルエーテルで抽出した。有機物層から無水硫酸マグネシウムで水を除去した後に有機溶媒も除去した。得られた固体をエタノールに分散させて一日の間攪拌した後に濾過し真空乾燥して、中間物質を100 mlのアセト酸に分散させた後、濃い硫酸10滴を加えて、4時間の間還流した。得られた固体を濾過してエタノールで洗った後、真空乾燥して、20 g (97%収率)のアミンを得た。MS: $[M+H]^+ = 366$ 。

10

【0053】

<製造例2> 化学式bとして示される出発物質の製造

化学式a (8.23 g、22.5 mmol)とヨードナフタレン (11.4 g、45 mmol)、炭酸カリウム (6.22 g、45 mmol)、ヨウ化銅 (214 mg、1.13 mmol)およびキシレン (250 mL)を窒素の雰囲気下で一晩中加熱した。常温に冷却した後、生成物をエチルアセテートで抽出し、無水硫酸マグネシウムによって水分を除去した後に減圧下において溶媒を除去した。ヘキサン溶媒を用いてシリカゲルコラムを通過させ、化合物を得た後に溶媒を減圧下において除去し、真空乾燥させて化学式bの化合物 (5.2 g、47%収率)を得た。M: $[M+H]^+ = 493$ 。

20

【0054】

<実施例1> 化学式3-256として示される化合物の製造

1) 化学式3-256として示される化合物を製造するためのアリアルアミン合成 (4-(N,N-ジフェニルアミノ)-ピフェニル-N-フェニルアミン): 4-クロロピフェニル-N,N-ジフェニルアミン 4.00 g (11.2 mmol)とアニリン 1.13 ml (12.4 mmol)をトルエン 100 mlに溶解させ、tert-ブトキシドナトリウム 2.70 g (28.1 mmol)、ビスベンジリデンアセトンパラジウム(0) 0.13 g (0.23 mmol)、50 wt%トリ-tert-ブチルホスフィントルエン溶液 0.17 ml (0.34 mmol)を添加した後、5時間の間窒素気流下で還流した。反応溶液に蒸留水を入れて反応を終了させ、有機層を抽出した。ノルマルヘキサン/テトラヒドロフラン = 10/1溶媒でコラム分離した後、石油エーテルに攪拌した後、真空乾燥してアリアルアミン連結基 (3.8 g、収率 81%)を得た。MS: $[M+H]^+ = 413$ 。

30

【0055】

2) 化学式b 4.369 g (8.88 mmol)と4-(N,N-ジフェニルアミノ)-ピフェニル-N-フェニルアミン 4.414 g (10.7 mmol)をトルエン 120 mlに溶解させ、tert-ブトキシドナトリウム 2.90 g (30.2 mmol)、ビスベンジリデンアセトンパラジウム(0) 0.12 g (0.21 mmol)、50 wt%トリ-tert-ブチルホスフィントルエン溶液 0.16 ml (0.32 mmol)を添加した後、2時間の間窒素気流下で還流した。反応溶液に蒸留水を入れて反応を終了させ、有機層を抽出した。ノルマルヘキサン/テトラヒドロフラン = 9/1溶媒でコラム分離した後、石油エーテルに攪拌した後、真空乾燥して化学式3-256 (5.2 g、収率 65%)を得た。MS: $[M+H]^+ = 869$ 。

40

【0056】

<実施例2> 化学式3-259として示される化合物の製造

1) 化学式3-259として示される化合物を製造するためのアリアルアミン合成 (4-(N,N-ジフェニルアミノ)-ピフェニル-N-ピフェニルアミン): 4-クロロピフェニル-N,N-ジフェニルアミン 8.80 g (24.7 mmol)と4-アミノピフェニル 6.28 g (37.1 mmol)をトルエン 200 mlに溶解させ、tert-ブトキシドナトリウム 5.94 g (61.8 mmol)、ビスベンジリデンアセトンパラジウム(0) 0.43 g (0.74 mmol)、50 wt%トリ-tert-ブチルホス

50

フィントルエン溶液 0.61 ml (1.24 mmol) を添加した後、5 時間の間窒素気流下で還流した。反応溶液に蒸留水を入れて反応を終了させ、有機層を抽出した。ノルマルヘキサン/テトラヒドロフラン = 10/1 溶媒でコラム分離した後、石油エーテルに攪拌した後、真空乾燥してアリアルアミン連結基 (7.0 g、収率 58%) を得た。MS: [M+H]⁺ = 489。

【0057】

2) 化学式 b 4.37 g (8.88 mmol) と 4-(N、N-ジフェニルアミノ)-ピフェニル-N-ピフェニルアミン 5.23 g (10.7 mmol) をトルエン 120 ml に溶解させ、tert-ブトキシドナトリウム 2.90 g (30.2 mmol)、ビスジベンジリデンアセトンパラジウム(0) 0.12 g (0.21 mmol)、50 wt %トリ-tert-ブチルホスフィントルエン溶液 0.16 ml (0.32 mmol) を添加した後、2 時間の間窒素気流下で還流した。反応溶液に蒸留水を入れて反応を終了させ、有機層を抽出した。ノルマルヘキサン/テトラヒドロフラン = 9/1 溶媒でコラム分離した後、石油エーテルに攪拌した後、真空乾燥して化学式 3-259 (5.4 g、収率 64%) を得た。MS: [M+H]⁺ = 943。

10

【0058】

<実施例 3> 化学式 3-276 として示される化合物の製造

1) 化学式 3-276 として示される化合物を製造するためのアリアルアミン合成 (4-(N-フェニル-N-ナフチルアミノ)-ピフェニル-N-ピフェニルアミン): 4-クロロピフェニル-N-フェニル-N-ナフチルアミン 4.08 g (10.1 mmol) と 4-アミノピフェニル 2.55 g (15.1 mmol) をトルエン 100 ml に溶解させ、tert-ブトキシドナトリウム 2.90 g (30.2 mmol)、ビスジベンジリデンアセトンパラジウム(0) 0.17 g (0.30 mmol)、50 wt %トリ-tert-ブチルホスフィントルエン溶液 0.26 ml (0.53 mmol) を添加した後、7 時間の間窒素気流下で還流した。反応溶液に蒸留水を入れて反応を終了させ、有機層を抽出した。ノルマルヘキサン/テトラヒドロフラン = 10/1 溶媒でコラム分離した後、石油エーテルに攪拌した後、真空乾燥してアリアルアミン連結基 (3.8 g、収率 70%) を得た。MS: [M+H]⁺ = 539。

20

【0059】

2) 化学式 b 4.369 g (8.88 mmol) と 4-(N-フェニル-N-ナフチルアミノ)-ピフェニル-N-ピフェニルアミン 5.76 g (10.7 mmol) をトルエン 120 ml に溶解させ、tert-ブトキシドナトリウム 2.90 g (30.2 mmol)、ビスジベンジリデンアセトンパラジウム(0) 0.12 g (0.21 mmol)、50 wt %トリ-tert-ブチルホスフィントルエン溶液 0.16 ml (0.32 mmol) を添加した後、2 時間の間窒素気流下で還流した。反応溶液に蒸留水を入れて反応を終了させ、有機層を抽出した。ノルマルヘキサン/テトラヒドロフラン = 9/1 溶媒でコラム分離した後、石油エーテルに攪拌した後、真空乾燥して化学式 3-276 (4.9 g、収率 56%) を得た。MS: [M+H]⁺ = 995。

30

【0060】

<実施例 4> 有機発光素子の製造

ITO (indium tin oxide) が 1000 の厚さで薄膜コーティングされたガラス基板 (corning 7059 glass) を洗剤を溶かした蒸留水に入れて超音波で洗浄した。この時、洗剤としてはフィッシャー社 (Fischer Co.) 製のものを用い、蒸留水としてはミリポア (Millipore Co.) 製のフィルタで 2 回こした蒸留水を用いた。ITO を 30 分間洗浄した後、蒸留水で 2 回繰り返して超音波洗浄を 10 分間進行した。蒸留水洗浄が終わった後、イソプロピルアルコール、アセトン、メタノールなどの溶剤で超音波洗浄して乾燥させた後、プラズマ洗浄機に移送させた。また、酸素プラズマを用いて、前記基板を 5 分間乾式洗浄した後、真空蒸着機に基板を移送させた。

40

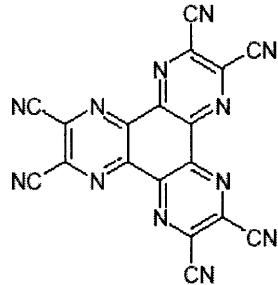
【0061】

50

上記のように準備されたITO透明電極の上に下記化学式の化合物であるヘキサニトリルヘキサアザトリフェニレン(hexanitriple hexaazatriphenylene:以下、HATという)を500 の厚さで熱真空蒸着してITO導電層およびN型有機物を有する陽極を形成した。

【化8】

[HAT]



10

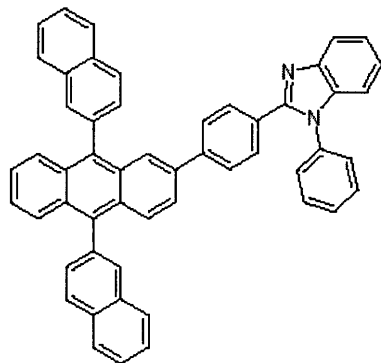
【0062】

前記層上に前記化学式3-256の化合物(400)を真空蒸着して正孔輸送層を形成させた。前記正孔輸送層上にAlq3を300 の厚さで真空蒸着して発光層を形成させた。前記発光層上に下記化学式の電子輸送層物質を200 の厚さで蒸着して電子輸送層を形成した。

20

【化9】

[電子輸送層物質]



30

【0063】

前記電子輸送層上に順次的に12 厚さのフッ化リチウム(LiF)と2000 厚さのアルミニウムを蒸着して陰極を形成した。

【0064】

前記の過程で有機物の蒸着速度は0.3~0.8 /secで維持した。また、陰極のフッ化リチウムは0.3 /sec、アルミニウムは1.5~2.5 /secの蒸着速度を維持した。蒸着時の真空度は $1\sim 3\times 10^{-7}$ に維持した。

40

【0065】

製造された素子は順方向電流密度 100 mA/cm^2 で4.54Vの電界を示し、 1.891 m/W の光効率を示すスペクトルが観察された。このように素子が前記駆動電圧で作動して発光するという事は正孔注入層と発光層との間に層を形成した前記化学式3-256の化合物が正孔輸送の役割をしているということを示す。

【0066】

<実施例5>有機発光素子の製造

前記実施例4で正孔輸送層として用いた化合物3-256の物質を3-259の化合物に置換したことを除いては同一の素子を製作した。

50

【0067】

製造された素子は順方向電流密度 100 mA/cm^2 で 4.52 V の電界を示し、 1.911 m/W の光効率を示すスペクトルが観察された。このように素子が前記駆動電圧で作動して発光するということは前記基板上に形成した薄膜と正孔輸送層との間に層を形成した前記化学式 3 - 259 の化合物が正孔輸送の役割をしていることを示す。

【0068】

< 実施例 6 > 有機発光素子の製造

前記実施例 4 で正孔輸送層として用いた化合物 3 - 276 の物質を 3 - 276 の化合物に置換したことを除いては同一の素子を製作した。

【0069】

製造された素子は順方向電流密度 100 mA/cm^2 で 4.31 V の電界を示し、 1.961 m/W の光効率を示すスペクトルが観察された。このように素子が前記駆動電圧で作動して発光するということは前記基板上に形成した薄膜と正孔輸送層との間に層を形成した前記化学式 3 - 276 の化合物が正孔輸送の役割をしていることを示す。

【産業上の利用可能性】

【0070】

本発明の化合物は、有機発光素子において、有機物層物質、特に正孔注入物質および/または正孔輸送物質として用いることができ、この化合物を有機発光素子に用いる場合、素子の駆動電圧を低くし、光効率を向上させ、化合物の熱的安定性によって素子の寿命特性を向上させることができる。

【図面の簡単な説明】

【0071】

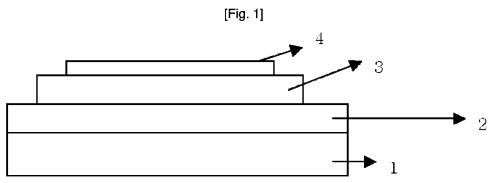
【図 1】図 1 は、基板 1、陽極 2、発光層 3、陰極 4 からなる有機発光素子の例を示したものである。

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

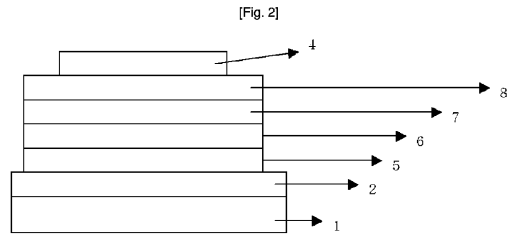
10

20



【 図 1 】



【 図 2 】



【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/KR2005/003178
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
<i>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) IPC8: C09K 11/06, C07D209/86, H05B 33/14, H05B33/20, C08F130/08, H05B33/12		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched KR, JP: classes as above		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) JPA, NPS, ESPACENET, USPTO, STN		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO9309074 1993.05.13 Dow Chemical Co., see the whole document	1
A	Chemische Berichte (1984), 117 (8), 2703-13 Tritschler, et al., see the whole document	1
A	US06613454 2003/09/02 TDK Corporation see the whole document	1-8
P, A	US2004/0219386 2004.11.04 Canon Kabushiki Kaisha see the whole document	1-8
A	US06630254 2003/10/07 National Research Council of Canada see the whole document	1-8
A	US06605373 2003/08/12 Dow Global Technologies Inc see the whole document	1-8
A	EP01310539 2003/05/14 Sumitomo Chemical Company, Limited see the whole document	1-8
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input 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 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 "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 "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 03 JANUARY 2006 (03.01.2006)		Date of mailing of the international search report 05 JANUARY 2006 (05.01.2006)
Name and mailing address of the ISA/KR  Korean Intellectual Property Office 920 Dunsan-dong, Seo-gu, Daejeon 302-701, Republic of Korea Facsimile No. 82-42-472-7140		Authorized officer SHIN, JU CHEOL  Telephone No. 82-42-481-8156

フロントページの続き

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

(72) 発明者 チョ、ウク、ドン

大韓民国テジョン、メトロポリタン、シティ、ユソン グ、ジョンミン ドン、464-1、エキ
スポ、アパート、107-1006、15/3

(72) 発明者 キム、ジ、ユン

大韓民国テジョン、メトロポリタン、シティ、ユソン グ、ドリヨン ドン、381-42、エル
ジー、ケミストリー、アパート、7-403

(72) 発明者 ジョン、ピュン、スン

大韓民国ソウル特別市、グワナク グ、シリム、5-ドン、テヨン、アパート、1006

(72) 発明者 ジョン、サン、ヨン

大韓民国ソウル特別市、グワンジン グ、グンジャ ドン、125-187

(72) 発明者 ヨン、ソク、ヒー

大韓民国テジョン、メトロポリタン、シティ、ユソン グ、ソンガン ドン、ソンガン、グリーン
、アパート、302-904

(72) 発明者 ムン、ジェ、ミン

大韓民国テジョン、メトロポリタン、シティ、ユソン グ、ドリヨン ドン、エルジー、ケミスト
リー、ドミトリー、3-507

Fターム(参考) 3K107 AA01 BB01 CC22 CC24 DD59 DD60 DD71 DD74 DD78 DD79

专利名称(译)	新型有机发光器件材料及使用其的有机发光器件 (9)		
公开(公告)号	JP2008511161A	公开(公告)日	2008-04-10
申请号	JP2007529729	申请日	2005-09-23
[标]申请(专利权)人(译)	乐金化学股份有限公司		
申请(专利权)人(译)	Eruji化学有限公司		
[标]发明人	チョウクドン キムジユン ジョンビュンスン ジョンサンヨン ヨンソクヒー ムンジェミン		
发明人	チョ、ウク、ドン キム、ジ、ユン ジョン、ビュン、スン ジョン、サン、ヨン ヨン、ソク、ヒー ムン、ジェ、ミン		
IPC分类号	H01L51/50 C09K11/06		
CPC分类号	C09K11/06 C07D221/20 C09K2211/1011 C09K2211/1029 H01L51/0039 H01L51/006 H01L51/5048 H01L51/5088 H05B33/14 Y10S428/917		
FI分类号	H05B33/22.D H05B33/14.B H05B33/22.B C09K11/06.645		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC22 3K107/CC24 3K107/DD59 3K107/DD60 3K107/DD71 3K107/DD74 3K107/DD78 3K107/DD79		
代理人(译)	耀希达凯贤治 中村KoTakashi		
优先权	1020040077214 2004-09-24 KR		
其他公开文献	JP4786659B2		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

本发明是一种有机发光器件，包括第一电极，发光层，一个或多个有机层和堆叠形式的第二电极，其中有机层中的一个或多个层是下列化学式1的化合物，或者提供一种有机发光器件，其包含其中将热固性或光固化官能团引入该化合物的化合物。

