

(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2015-517212

(P2015-517212A)

(43) 公表日 平成27年6月18日(2015.6.18)

(51) Int.Cl.		F 1			テーマコード (参考)	
H01L 51/50	(2006.01)	H 05 B	33/22	D	3 K 107	
C07D 209/86	(2006.01)	C 07 D	209/86	C S P	4 C 050	
C07D 491/048	(2006.01)	C 07 D	491/048		4 C 071	
C07D 495/04	(2006.01)	C 07 D	495/04	1 0 3	4 C 204	
		H 05 B	33/14	B		
		審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 43 頁)				
(21) 出願番号	特願2015-504484 (P2015-504484)	(71) 出願人 509266480 ローム・アンド・ハース・エレクトロニク・マテリアルズ・コリア・リミテッド 大韓民国 331-980 チュンチョン ナムード チョナンシ ソブクーク 3 コンダン 1-ロ 56				
(86) (22) 出願日	平成25年4月2日 (2013.4.2)					
(85) 翻訳文提出日	平成26年11月10日 (2014.11.10)					
(86) 國際出願番号	PCT/KR2013/002713					
(87) 國際公開番号	W02013/151297					
(87) 國際公開日	平成25年10月10日 (2013.10.10)	(74) 代理人 110000589 特許業務法人センダ国際特許事務所 (74) 代理人 100093861 弁理士 大賀 真司				
(31) 優先権主張番号	10-2012-0034639					
(32) 優先日	平成24年4月3日 (2012.4.3)					
(33) 優先権主張国	韓国 (KR)	(74) 代理人 100129218 弁理士 百本 宏之				

最終頁に続く

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

(57) 【要約】

本発明は、新規有機エレクトロルミネセンス化合物およびそれを含む有機エレクトロルミネセンス素子に関する。本発明に係る有機エレクトロルミネセンス化合物は、リン光性ホスト材料、ホール輸送材料または混合ホスト材料として使用され得；良好なホール輸送能力を有し；素子の製造において結晶化を防ぎ；層を形成するのに好適であり；素子の電流密度を改良し、それにより素子の駆動電圧を減少させる。

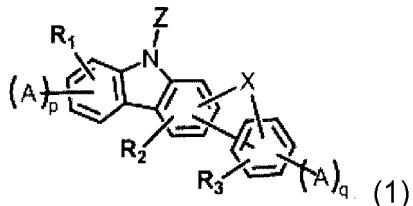
【選択図】なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

以下の式 1 :

【化 1】

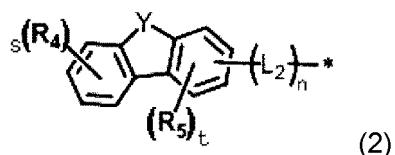


10

(式中、

A は、以下の式 2 :

【化 2】



(2)

20

によって表され、

式 2 は * を介して式 1 の化合物に結合し、

Z は以下の式 3 :

* - (L1)m - Ar1 (3)

によって表され、

式 3 は * を介して式 1 の化合物に結合し；

L1 および L2 は各々独立して、単結合、置換もしくは非置換 5 ~ 30 員ヘテロアリーレン基、または置換もしくは非置換 (C6 - C30) アリーレン基を表し；

X および Y は各々独立して、-O-、-S-、-N(R6) -、-C(R7)(R8) - または -Si(R9)(R10) - を表し；

Ar1 および R1 ~ R5 は各々独立して、水素、重水素、ハロゲン、置換もしくは非置換 (C1 - C30) アルキル基、置換もしくは非置換 (C6 - C30) アリール基、置換もしくは非置換 5 ~ 30 員ヘテロアリール基、-NR11R12、または -SiR13R14R15 を表し；あるいは q が 1 であり、R1 が式 2 の基ではなく、p が 1 であり、R3 が式 2 の基ではないという条件で、隣接する置換基に結合して、炭素原子が、窒素、酸素および硫黄から選択される少なくとも 1 つのヘテロ原子で置換されていてもよい单環または多環、3 ~ 30 員脂環式または芳香環を形成し；

R6 ~ R15 は各々独立して、水素、重水素、ハロゲン、置換もしくは非置換 (C1 - C30) アルキル基、置換もしくは非置換 (C6 - C30) アリール基、または置換もしくは非置換 5 ~ 30 員ヘテロアリール基を表し；あるいは隣接する置換基に結合して、单環または多環、3 ~ 30 員脂環式または芳香環を形成し；

m および n は各々独立して 0 ~ 2 の整数を表し；m が 2 である場合、L1 の各々は同じまたは異なり、n が 2 である場合、L2 の各々は同じまたは異なり；

p および q は各々独立して 0 または 1 の整数を表し；p + q = 1 であり；

s および t は各々独立して 1 または 2 の整数を表し；s が 2 である場合、R4 の各々は同じまたは異なり、t が 2 である場合、R5 の各々は同じまたは異なり；

ヘテロアリール (アリーレン) 基は、B、N、O、S、P (=O)、Si および P から選択される少なくとも 1 つのヘテロ原子を含む)

によって表される有機エレクトロルミネセンス化合物。

【請求項 2】

化合物が、以下の式 4 ~ 9 :

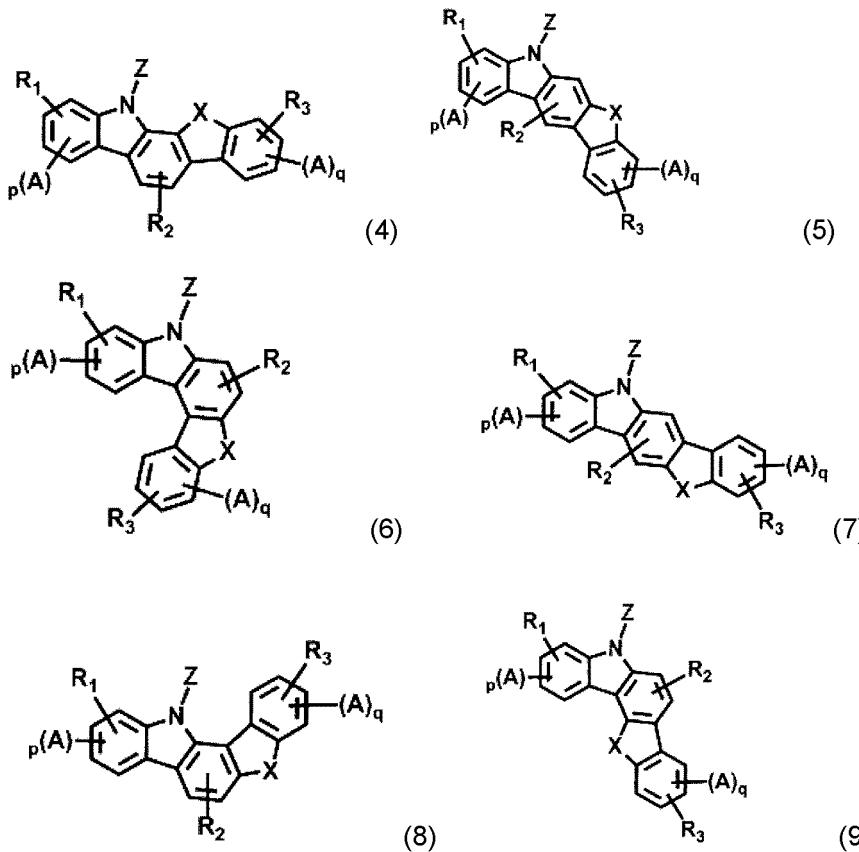
30

40

40

50

【化3】



(式中、

A、Z、X、R₁～R₃、pおよびqは請求項1に定義されている通りである)

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

【請求項3】

L₁、L₂、Ar₁およびR₁～R₁₅における置換アルキル基、置換アリール(アリーレン)基および置換ヘテロアリール(アリーレン)基の置換基は各々独立して、重水素；ハロゲン；シアノ基；カルボキシリル基；ニトロ基；ヒドロキシリル基；(C1-C30)アルキル基；ハロ(C1-C30)アルキル基；(C6-C30)アリール基；5～30員ヘテロアリール基；(C6-C30)アリールで置換された5～30員ヘテロアリール基；5～30員ヘテロアリールで置換された(C6-C30)アリール基；(C3-C30)シクロアルキル基；3～7員ヘテロシクロアルキル基；トリ(C1-C30)アルキルシリル基；トリ(C6-C30)アリールシリル基；ジ(C1-C30)アルキルジ(C6-C30)アリールシリル基；(C2-C30)アルケニル基；(C2-C30)アルキニル基；モノまたはジ(C1-C30)アルキルアミノ基；モノまたはジ(C6-C30)アリールアミノ基；(C1-C30)アルキル(C6-C30)アリールアミノ基；ジ(C6-C30)アリールボロニル基；ジ(C1-C30)アルキルボロニル基；(C1-C30)アルキル(C6-C30)アリールボロニル基；(C6-C30)アリール(C1-C30)アルキル基；および(C1-C30)アルキル(C6-C30)アリール基からなる群から選択される少なくとも1つである、請求項1に記載の有機エレクトロルミネセンス化合物。

【請求項4】

Aが以下の式10：

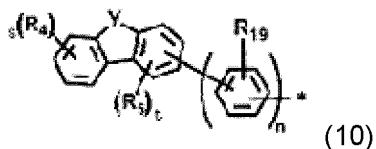
10

20

30

40

【化4】



(10)

(式中、

式10は^{*}を介して式1および4~9の化合物に結合し； Y 、 R_4 、 R_5 、 n 、 s および t は請求項1に定義されている通りであり；

10

R_{19} は、水素、重水素、ハロゲン、置換もしくは非置換(C1-C30)アルキル基、置換もしくは非置換(C6-C30)アリール基、または置換もしくは非置換5~30員ヘテロアリール基を表し；あるいは隣接する置換基に結合して、炭素原子が、窒素、酸素および硫黄から選択される少なくとも1つのヘテロ原子で置換されていてもよい、単環または多環、3~30員脂環式または芳香環を形成し；ヘテロアリール基は、B、N、O、S、P(=O)、SiおよびPから選択される少なくとも1つのヘテロ原子を含む)によって表される、請求項2に記載の有機エレクトロルミネセンス化合物。

10

【請求項5】

X が、-O-、-Sまたは-C(R_7)(R_8)-を表し、 R_7 および R_8 が請求項1に定義されている通りである、請求項2に記載の有機エレクトロルミネセンス化合物。

20

【請求項6】

Y が、-O-、-Sまたは-N(R_6)-を表し、 R_6 が請求項1に定義されている通りである、請求項2に記載の有機エレクトロルミネセンス化合物。

20

【請求項7】

Z が式3によって表され、 A_{r_1} は、置換もしくは非置換(C1-C30)アルキル基、置換もしくは非置換(C6-C30)アリール基、置換もしくは非置換5~30員ヘテロアリール基、-NR₁₁R₁₂または-SiR₁₃R₁₄R₁₅を表し、 R_{11} ~ R_{15} は請求項1に定義されている通りである、請求項2に記載の有機エレクトロルミネセンス化合物。

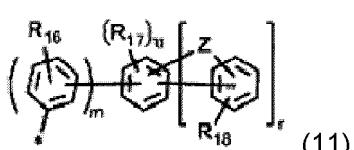
20

【請求項8】

 Z が、以下の式11：

30

【化5】



(11)

(式中、

式11は^{*}を介して式1および4~9の化合物に結合し；

40

Z は、-O-、-S-、-N(R_{20})-、-C(R_{21})(R_{22})-または-Si(R_{23})(R_{24})-を表し；

40

R_{16} ~ R_{18} は各々独立して、水素、重水素、ハロゲン、置換もしくは非置換(C1-C30)アルキル基、置換もしくは非置換(C6-C30)アリール基、置換もしくは非置換5~30員ヘテロアリール基、-NR₂₅R₂₆または-SiR₂₇R₂₈R₂₉を表し；あるいは隣接する置換基に結合して、炭素原子が、窒素、酸素および硫黄から選択される少なくとも1つのヘテロ原子で置換されていてもよい、単環または多環、3~30員脂環式または芳香環を形成し；

40

R_{20} ~ R_{29} は各々独立して、水素、重水素、ハロゲン、置換もしくは非置換(C1-C30)アルキル基、置換もしくは非置換(C6-C30)アリール基、または置換もしくは非置換5~30員ヘテロアリール基を表し；あるいは隣接する置換基に結合して、単環または多環、3~30員脂環式または芳香環を形成し；

50

mは0～2の整数を表し；

rは0または1の整数を表し；

uは1～3の整数を表し；uが2以上である場合、R_{1～7}の各々は同じまたは異なり；

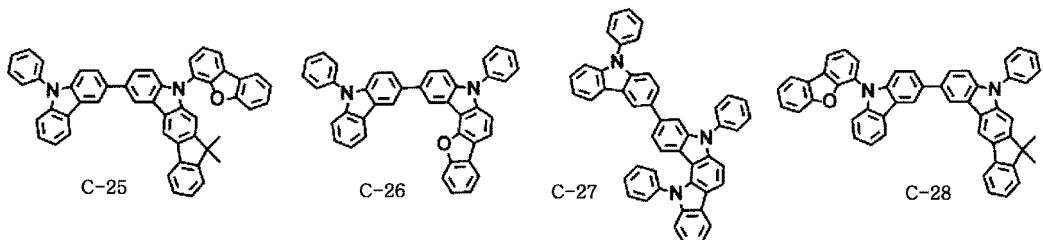
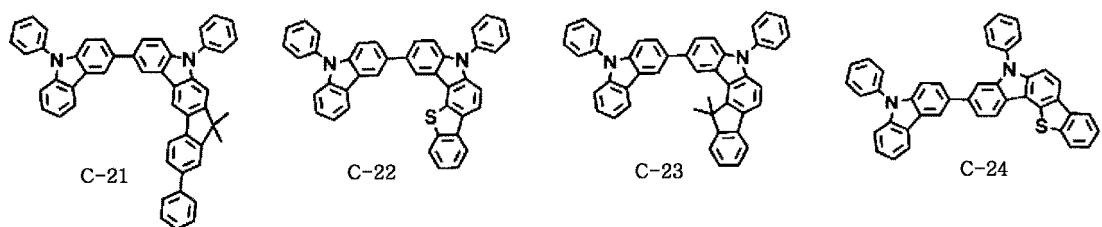
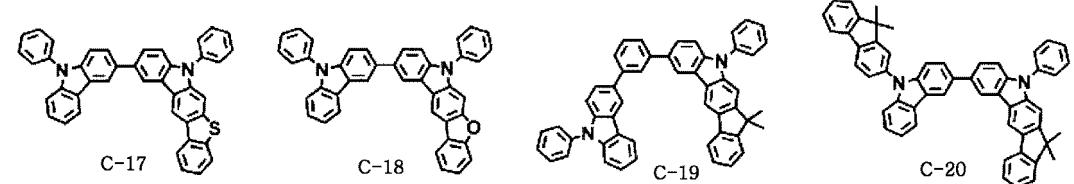
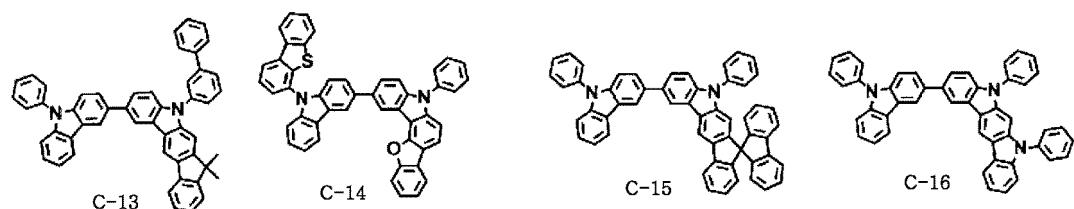
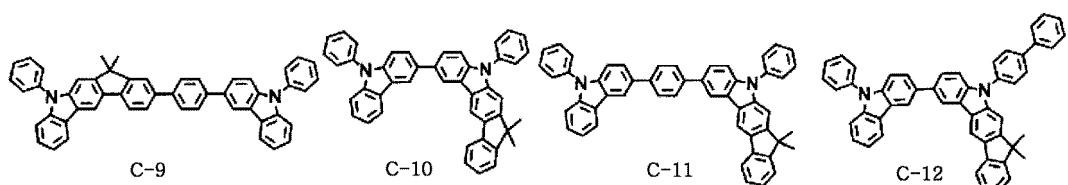
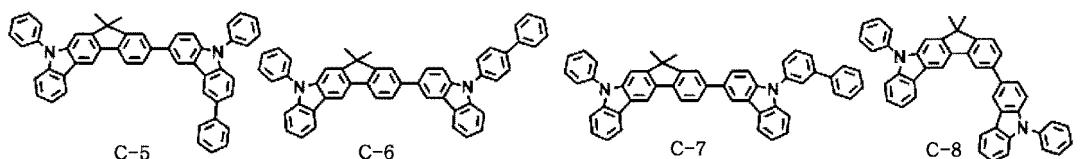
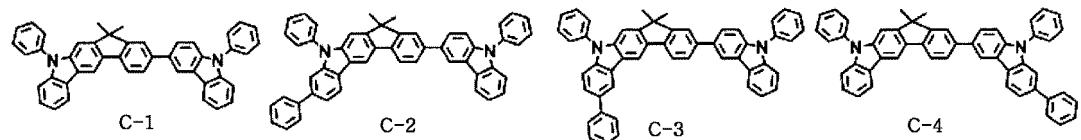
ヘテロアリール基は、B、N、O、S、P(=O)、SiおよびPから選択される少なくとも1つのヘテロ原子を含む)

によって表される、請求項7に記載の有機エレクトロルミネセンス化合物。

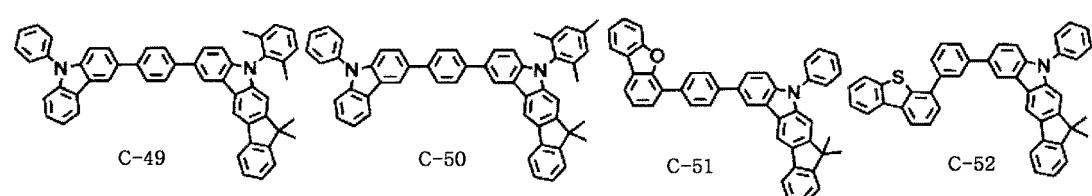
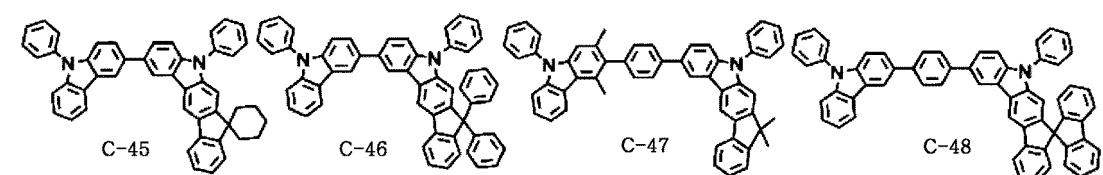
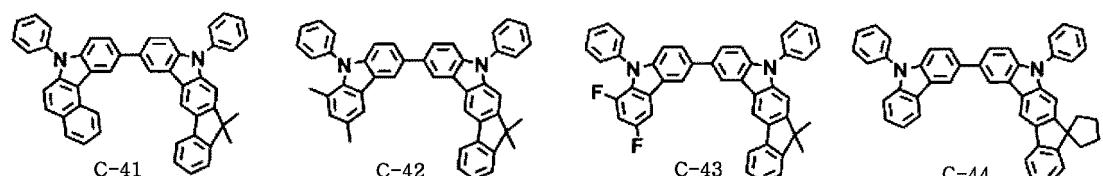
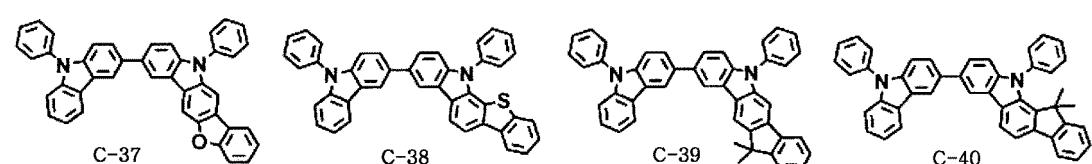
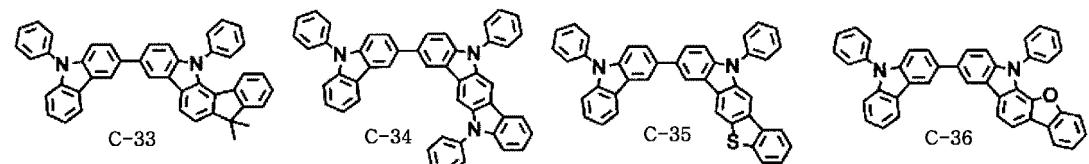
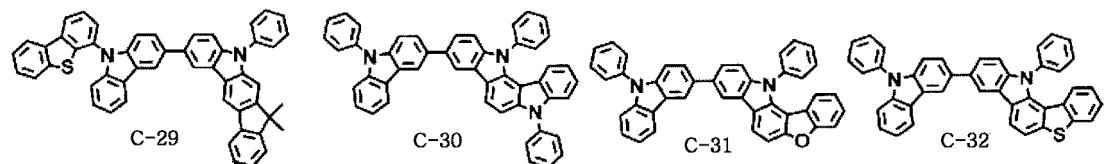
【請求項9】

式1によって表される化合物が、

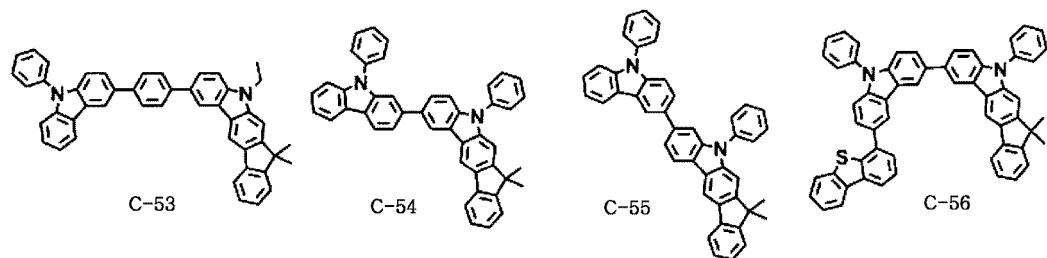
【化 6 - 1】



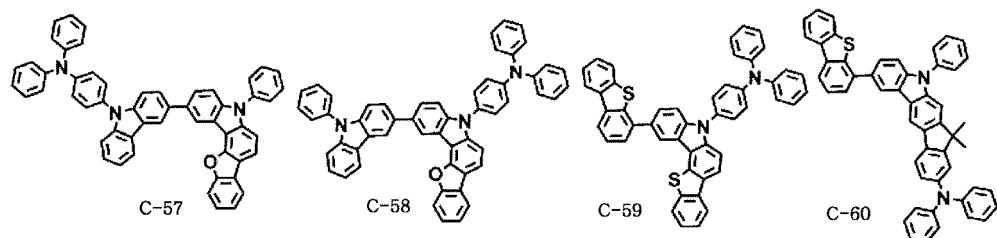
【化 6 - 2】



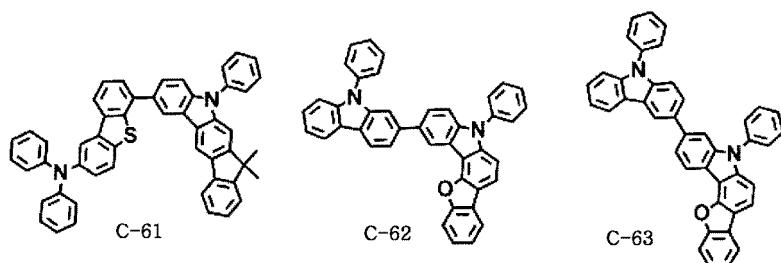
【化 6 - 3】



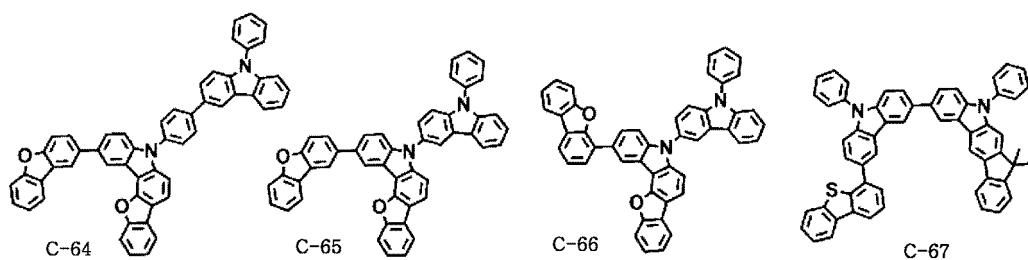
10



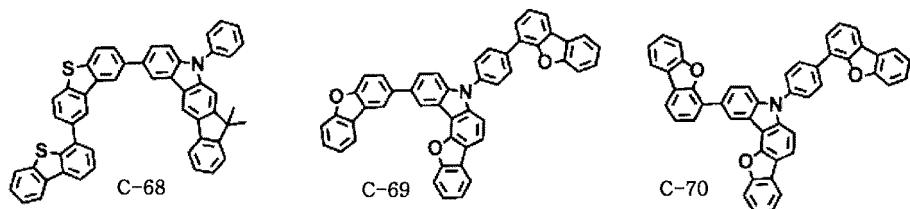
20



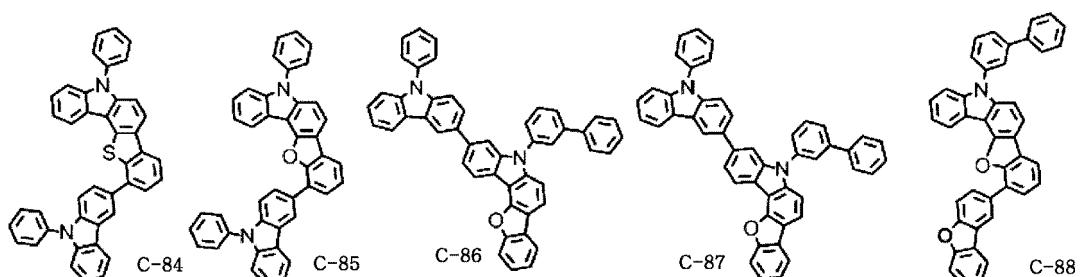
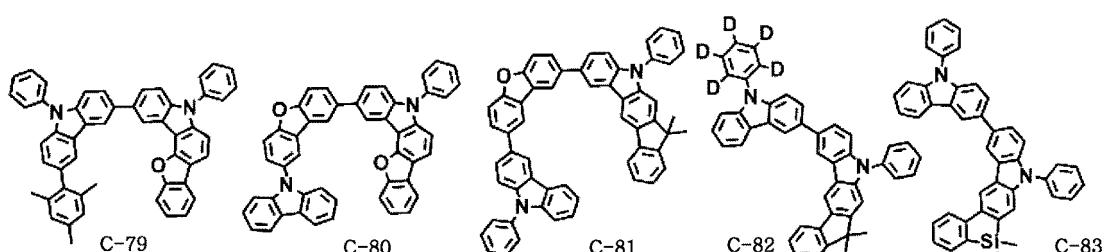
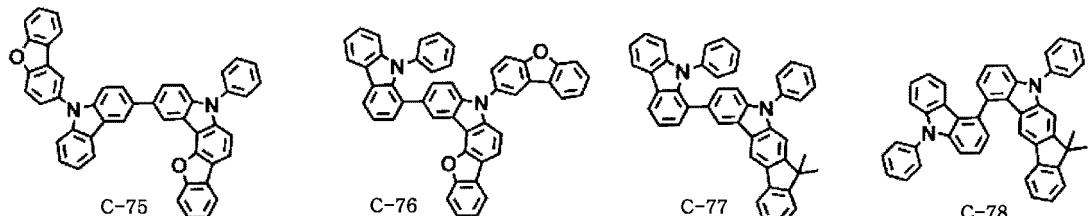
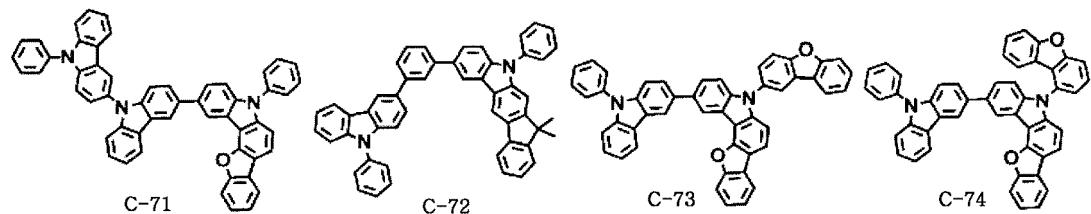
30



40



【化 6 - 4】



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

【請求項 10】

請求項 1 に記載の化合物を含む有機エレクトロルミネセンス素子。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0 0 0 1】

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

【背景技術】

【0 0 0 2】

エレクトロルミネセンス (EL) 素子は、広い視野角、高いコントラスト比およびより速い応答時間を持つ利点を有する、自己発光型素子である。有機 EL 素子は最初に、発光層を形成するための材料として、小さな芳香族ジアミン分子、およびアルミニウム錯体を使用することにより、Eastman Kodak によって開発された。[Appl. Phys. Lett. 51, 913, 1987]

【0 0 0 3】

有機 EL 素子において発光効率を決定する最も重要な要因は発光材料である。現在まで、蛍光材料が発光材料として広く使用されている。しかし、エレクトロルミネセンス機構

10

20

30

40

50

を考慮して、リン光性材料の開発は、蛍光材料と比較して理論的に発光効率を4倍に高める最良の方法のうちの一つである。イリジウム(III)錯体は、赤、緑および青の材料としてそれぞれ、ビス(2-(2'-ベンゾチエニル)-ピリジナト-N,C3')イリジウム(アセチルアセトネート)((acac)Ir(btP)₂)、トリス(2-フェニルピリジン)イリジウム(Irppy)₃)、およびビス(4,6-ジフルオロフェニルピリジネート-N,C2)ピコリネトイリジウム(Firpic)を含む、リン光性材料として広く知られている。

【0004】

発光材料は、色純度、発光効率および安定性を改良するために発光材料(ドーパント)とのホスト材料の組み合わせで使用され得る。発光材料(ドーパント)/ホスト材料のシステムにおいて、ホスト材料は発光素子の効率および能力に大きな影響を与えるので、ホスト材料の選択は重要である。現在まで、4,4'-N,N'-ジカルバゾール-ビフェニル(CBP)は、最も広く知られているリン光性ホスト材料である。さらに、ホスト材料として、ホールプロッキング層に使用された、バトクプロイン(BCP)およびアルミニウム(III)ビス(2-メチル-8-キノリネート)(4-フェニルフェノレート)(BALq)を利用することによってパイオニア(日本)等は高性能な有機EL素子を開発した。

【0005】

これらのリン光性ホスト材料は、良好な発光特性を提供するが、それらは以下の欠点を有する:(1)それらの低いガラス転移温度および不十分な熱安定性により、真空中の高温堆積プロセス中に、それらの分解が発生し得る。(2)有機EL素子の電力効率は、[(V/電圧) × 電流効率]により与えられ、電力効率は、電圧に反比例する。リン光性ホスト材料を含む有機EL素子は、蛍光ホスト材料を含むものよりも、高い電流効率(cd/A)および高い駆動電圧を提供する。このように、従来のリン光性材料を使用したEL素子は、電力効率(1m/W)の点では利点が無い。(3)さらに、有機EL素子の動作寿命および発光効率は満足のいくものではない。

【0006】

一方で、銅フタロシアニン(CuPc)、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(NPB)、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(3-メチルフェニル)- (1,1'-ビフェニル)-4,4'-ジアミン(TPD)、4,4',4'''-トリス(3-メチルフェニルフェニルアミノ)トリフェニルアミン(MTDATA)などが、有機EL素子においてホール注入および輸送材料として使用されている。しかしながら、材料を含む有機EL素子は低い量子効率および短い動作寿命を有する。なぜなら、有機EL素子が高電流で駆動される場合、熱ストレスがアノードとホール注入層との間に生じ、それによって素子の動作寿命が急速に減少するからである。さらに、ホールはホール注入層に使用される有機材料において大いに動くので、ホール-電子荷電平衡が壊れ、量子効率(cd/A)が減少する。

【0007】

国際公開WO2009/148015号は有機EL素子のための化合物を開示しており、カルバゾール、ジベンゾフランおよびジベンゾチオフェンを含むヘテロアリール基が、フルオレン、カルバゾール、ジベンゾフランおよびジベンゾチオフェンを、インデン、インドール、ベンゾフランおよびベンゾチオフェンを含むヘテロアリール基と縮合することによって形成される多環式化合物の骨格において炭素原子に直接結合する。

【0008】

さらに、米国特許出願公開第US2011/0279020A1号は、有機EL素子のための化合物を開示しており、2つのカルバゾールが炭素原子間の単結合により互いに結合している。

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

10

20

30

40

50

しかしながら、公報の化合物を含む有機EL素子は、電力効率、発光効率、量子効率および動作寿命が満足のいくものではない。

【課題を解決するための手段】

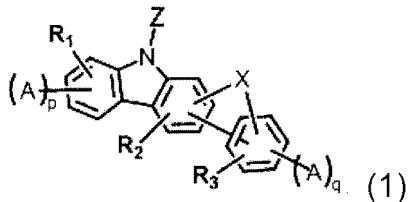
【0010】

本発明の目的は、高い発光効率、長い動作寿命を有し、適切な色調整を有する有機エレクトロルミネセンス化合物ならびに発光層またはホール輸送層において有機エレクトロルミネセンス化合物を含む、高効率および長い寿命を有する有機エレクトロルミネセンス素子を提供することである。

【0011】

本発明者らは、上記の目的は以下の式1：

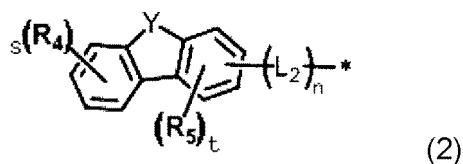
【化1】



(式中、

Aは以下の式2：

【化2】



によって表され、

式2は*を介して式1の化合物に結合し；

Zは以下の式3：

* - (L₁)_m - Ar₁ (3)

によって表され、

式3は*を介して式1の化合物に結合し；

L₁およびL₂は各々独立して、単結合、置換もしくは非置換5～30員ヘテロアリレン基、または置換もしくは非置換(C6-C30)アリーレン基を表し；

XおよびYは各々独立して、-O-、-S-、-N(R₆)-、-C(R₇)(R₈)-もしくは-Si(R₉)(R₁₀)-を表し；

Ar₁およびR₁～R₅は各々独立して、水素、重水素、ハロゲン、置換もしくは非置換(C1-C30)アルキル基、置換もしくは非置換(C6-C30)アリール基、置換もしくは非置換5～30員ヘテロアリール基、-NR₁₁R₁₂、または-SiR₁₃R₁₄R₁₅を表し；あるいはqが1であり、R₁が式2の基ではなく、pが1であり、R₃が式2の基ではないという条件で、隣接する置換基に結合して、炭素原子が、窒素、酸素および硫黄から選択される少なくとも1つのヘテロ原子で置換されていてもよい单環または多環、3～30員脂環式または芳香環を形成し；

R₆～R₁₅は各々独立して、水素、重水素、ハロゲン、置換もしくは非置換(C1-C30)アルキル基、置換もしくは非置換(C6-C30)アリール基、置換もしくは非置換5～30員ヘテロアリール基を表し；あるいは隣接する置換基に結合して、单環または多環、3～30員脂環式または芳香環を形成し；

mおよびnは各々独立して0～2の整数を表し；mが2である場合、L₁の各々は同じまたは異なり、nが2である場合、L₂の各々は同じまたは異なり；

20

30

40

50

p および q は各々独立して 0 または 1 の整数を表し ; p + q = 1 であり ;
 s および t は各々独立して 1 または 2 の整数を表し ; s が 2 である場合、 R₄ の各々は同じまたは異なり、 t が 2 である場合、 R₅ の各々は同じまたは異なり ;
 ヘテロアリール (アリーレン) 基は、 B、 N、 O、 S、 P (= O) 、 S i および P から選択される少なくとも 1 つのヘテロ原子を含む)

によって表される化合物によって達成され得ることを見出した。

【発明の効果】

【0 0 1 2】

本発明に係る有機エレクトロルミネセンス化合物は、それらが、高い発光効率および長い動作寿命を有し、それにより長い駆動寿命を有する有機エレクトロルミネセンス素子を製造できるという利点を有する。さらに、本発明に係る有機エレクトロルミネセンス化合物は、リン光性ホスト材料、ホール輸送材料または混合ホスト材料として使用され得；ホール輸送の優れた能力を有し；素子の製造における結晶化を防ぎ；層を形成するのに好適であり；素子の電流密度を改良し、それにより素子の駆動電圧を減少させる。

10

【発明を実施するための形態】

【0 0 1 3】

本明細書以下に本発明を詳細に記載する。しかしながら、以下の詳細は本発明を説明することを目的とし、本発明の範囲を限定することを意図するものでは決してない。

【0 0 1 4】

本発明は、上記の式 1 により表される有機エレクトロルミネセンス化合物、有機エレクトロルミネセンス化合物を含む有機エレクトロルミネセンス材料および該材料を含む有機エレクトロルミネセンス素子に関する。

20

【0 0 1 5】

本明細書において、「(C1 - C30)アルキル (アルキレン)」とは、1 ~ 30 個の炭素原子を有する直鎖または分枝アルキル (アルキレン) を意味し、ここで、炭素原子の数は、好ましくは 1 ~ 20 、より好ましくは 1 ~ 10 であり、メチル、エチル、n - プロピル、イソプロピル、n - ブチル、イソブチル、tert - ブチルなどを含む ; 「(C2 - C30)アルケニル」とは、2 ~ 30 個の炭素原子を有する直鎖または分枝アルケニルを意味し、ここで、炭素原子の数は、好ましくは 2 ~ 20 、より好ましくは 2 ~ 10 であり、ビニル、1 - プロペニル、2 - プロペニル、1 - ブテニル、2 - ブテニル、3 - ブテニル、2 - メチルブト - 2 - エニルなどを含む ; 「(C2 - C30)アルキニル」は、2 ~ 30 個の炭素原子を有する直鎖または分枝アルキニルであり、ここで、炭素原子の数は、好ましくは 2 ~ 20 、より好ましくは 2 ~ 10 であり、エチニル、1 - プロピニル、2 - プロピニル、1 - ブチニル、2 - ブチニル、3 - ブチニル、1 - メチルペント - 2 - イニルなどを含む ; 「(C3 - C30)シクロアルキル」は、3 ~ 30 個の炭素原子を有する単環または多環炭化水素であり、ここで、炭素原子の数は、好ましくは 3 ~ 20 、より好ましくは 3 ~ 7 であり、シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどを含む ; 「3員 ~ 7員ヘテロシクロアルキル」は、B、N、O、S、P (= O) 、S i および P 、好ましくは O、S および N 、ならびに 3 ~ 7 個、好ましくは 5 ~ 7 個の環骨格原子から選択される少なくとも 1 つのヘテロ原子を有するシクロアルキルであり、テトラヒドロフラン、ピロリジン、チオラン、テトラヒドロピランなどを含む ; 「(C6 - C30)アリール (アリーレン)」は、6 ~ 30 個の炭素原子を有する芳香族炭化水素から誘導される単環または縮合環であり、ここで、炭素原子の数は、好ましくは 6 ~ 20 、より好ましくは 6 ~ 15 であり、フェニル、ビフェニル、テルフェニル、ナフチル、フルオレニル、フェナントレニル、アントラセニル、インデニル、トリフェニレニル、ピレン、テトラセニル、ペリレニル、クリセニル、ナフタセニル、フルオランセニルなどを含む ; 「5 ~ 30 員ヘテロアリール (ヘテロアリーレン)」は、B、N、O、S、P (= O) 、S i および P 、ならびに 5 ~ 30 個の環骨格原子からなる群から選択される少なくとも 1 個、好ましくは 1 ~ 4 個のヘテロ原子を有するアリール基であり；単環、または少なくとも 1 つのベンゼン環で縮合された縮合環であり；好ましくは 5 ~ 20 、より好まし

30

40

40

50

くは 5 ~ 15 の環骨格原子を有し；部分的に飽和されてもよく；少なくとも 1 つのヘテロアリールまたはアリール基を単結合を介してヘテロアリール基に結合することにより形成されるものであってもよく；フリル、チオフェニル、ピロリル、イミダゾリル、ピラゾリル、チアゾリル、チアジアゾリル、イソチアゾリル、イソオキサゾリル、オキサゾリル、オキサジアゾリル、トリアジニル、テトラジニル、トリアゾリル、テトラゾリル、フラザニル、ピリジル、ピラジニル、ピリミジニル、ピリダジニルなどを含む単環型のヘテロアリール、ならびにベンゾフラニル、ベンゾチオフェニル、イソベンゾフラニル、ジベンゾフラニル、ジベンゾチオフェニル、ベンゾイミダゾリル、ベンゾチアゾリル、ベンゾイソチアゾリル、ベンゾイソオキサゾリル、ベンゾオキサゾリル、イソインドリル、インドリル、インダゾリル、ベンゾチアジアゾリル、キノリル、イソキノリル、シンノリニル、キナゾリニル、キノキサリニル、カルボゾリル、フェノキサジニル、フェナントリジニル、ベンゾジオキソリルなどを含む縮合環型のヘテロアリールを含む。さらに、「ハロゲン」は F、C1、Br および I を含む。

10

【0016】

本明細書において、「置換または非置換」という用語における「置換」とは、特定の官能基における水素原子が別の原子または基、すなわち置換基と置換されることを意味する。

【0017】

式 1 ~ 3 の L_1 、 L_2 、 Ar_1 および $R_1 \sim R_{15}$ 基における置換アルキル基、置換アリール（アリーレン）基、および置換ヘテロアリール（ヘテロアリーレン）基の置換基は各々独立して、重水素；ハロゲン；シアノ基；カルボキシル基；ニトロ基；ヒドロキシル基；(C1 - C30) アルキル基；ハロ(C1 - C30) アルキル基；(C6 - C30) アリール基；5 ~ 30 員ヘテロアリール基；(C6 - C30) アリールで置換された 5 ~ 30 員ヘテロアリール基；5 ~ 30 員ヘテロアリールで置換された(C6 - C30) アリール基；(C3 - C30) シクロアルキル基；3 ~ 7 員ヘテロシクロアルキル基；トリ(C1 - C30) アルキルシリル基；トリ(C6 - C30) アリールシリル基；ジ(C1 - C30) アルキルジ(C6 - C30) アリールシリル基；(C2 - C30) アルケニル基；(C2 - C30) アルキニル基；モノ - またはジ(C1 - C30) アルキルアミノ基；モノ - またはジ(C6 - C30) アリールアミノ基；(C1 - C30) アルキル(C6 - C30) アリールアミノ基；ジ(C6 - C30) アリールボロニル基；ジ(C1 - C30) アルキルボロニル基；(C6 - C30) アリール(C1 - C30) アルキル基；および(C1 - C30) アルキル(C6 - C30) アリール基からなる群から選択される少なくとも 1 つである。

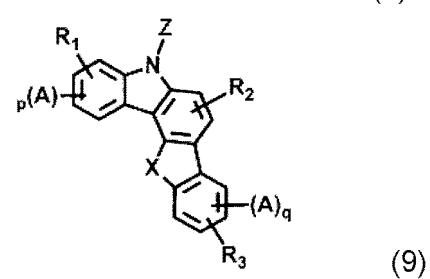
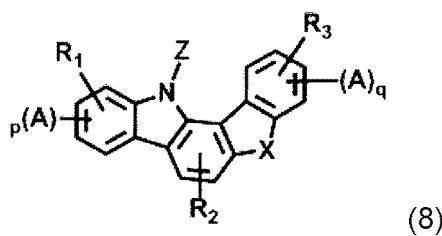
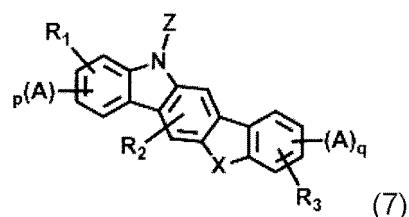
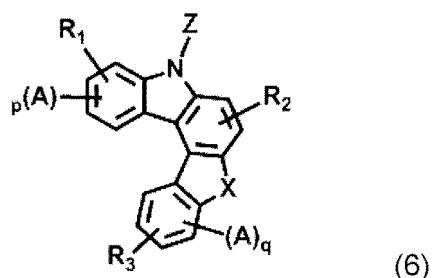
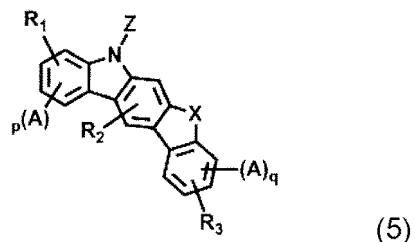
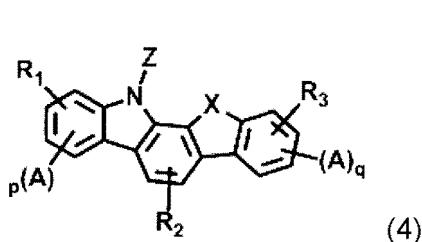
20

【0018】

本発明に係る式 1 の化合物は、以下の式 4 ~ 9 :

30

【化3】



(式中、

A、Z、X、R₁～R₃、pおよびqは式1に定義されている通りである)
からなる群から選択される。

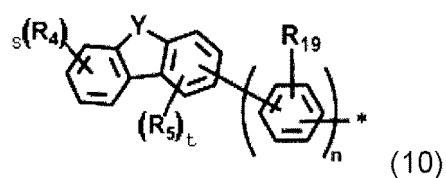
【0019】

上記の式における置換基は以下に具体的に定義されている。

【0020】

Aは好ましくは、以下の式10：

【化4】



(式中、

式10は*を介して式1および4～9の化合物に結合し；

Y、R₄、R₅、n、sおよびtは請求項1に定義されている通りであり；

R₁₉は各々独立して、水素、重水素、ハロゲン、置換もしくは非置換(C1～C30)アルキル基、置換もしくは非置換(C6～C30)アリール基、または置換もしくは非置換5～30員ヘテロアリール基、好ましくは水素または非置換(C1～C30)アルキル基を表し；あるいは隣接する置換基に結合して、炭素原子が、窒素、酸素および硫黄から選択される少なくとも1つのヘテロ原子で置換されていてもよい、単環または多環、3～30員脂環式または芳香環を形成し；

ヘテロアリール基は、B、N、O、S、P(=O)、SiおよびPから選択される少なくとも1つのヘテロ原子を含む)

によって表される。

【0021】

10

20

30

40

50

Xは好ましくは、-O-、-S-、または-C(R₇)(R₈)-を表す。

【0022】

Yは好ましくは、-O-、-S-、または-N(R₆)-；より好ましくは-N(R₆)-を表す。

【0023】

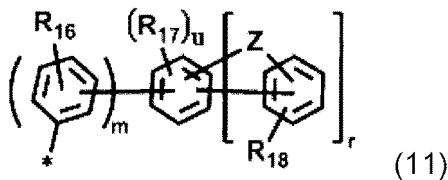
Zは好ましくは式3を表し、式中、Ar₁は、置換もしくは非置換(C1-C30)アルキル基、置換もしくは非置換(C6-C30)アリール基、置換もしくは非置換5~30員ヘテロアリール基、-NR₁₁R₁₂、または-SiR₁₃R₁₄R₁₅を表す。より好ましくは、Zは式3を表し、式中、L₁は、単結合または置換もしくは非置換(C6-C30)アリーレン基を表し、Ar₁は、非置換(C1-C10)アルキル基、非置換もしくは(C1-C10)アルキルで置換された(C6-C20)アリール基、非置換もしくは(C1-C10)アルキルで置換された5~20員ヘテロアリール基、または-NR₁₁R₁₂を表す。

10

【0024】

より好ましくは、Zは以下の式11：

【化5】



20

(式中、

式11は*を介して式1および4~9の化合物に結合し；

Zは、-O-、-S-、-N(R₂₀)-、-C(R₂₁)(R₂₂)-または-Si(R₂₃)(R₂₄)-を表し；

R₁₆~R₁₈は各々独立して、水素、重水素、ハロゲン、置換もしくは非置換(C1-C30)アルキル基、置換もしくは非置換(C6-C30)アリール基、置換もしくは非置換5~30員ヘテロアリール基、-NR₂₅R₂₆、または-SiR₂₇R₂₈R₂₉；好ましくは水素または非置換(C1-C30)アルキル基を表し；あるいは隣接する置換基に結合して、炭素原子が、窒素、酸素および硫黄から選択される少なくとも1つのヘテロ原子で置換されていてもよい、単環もしくは多環、3~30員脂環式もしくは芳香環を形成し；

30

R₂₀~R₂₉は各々独立して、水素、重水素、ハロゲン、置換もしくは非置換(C1-C30)アルキル基、置換もしくは非置換(C6-C30)アリール基、または置換もしくは非置換5~30員ヘテロアリール基；好ましくは水素、非置換(C1-C30)アルキル基、または非置換(C6-C30)アリール基を表し；あるいは隣接する置換基に結合して、単環もしくは多環、3~30員脂環式もしくは芳香環を形成し；

mは0~2、好ましくは0または1の整数を表し；

40

rは0または1、好ましくは0の整数を表し；

uは1~3の整数を表し；uが2以上の整数である場合、R₁₇の各々は同じまたは異なり；

ヘテロアリール基は、B、N、O、S、P(=O)、SiおよびPから選択される少なくとも1つのヘテロ原子を含む)

を表す。

【0025】

好ましくは、R₁~R₅は各々独立して、水素、重水素、ハロゲン、置換もしくは非置換(C1-C30)アルキル基、置換もしくは非置換(C6-C30)アリール基、置換もしくは非置換5~30員ヘテロアリール基、-NR₁₁R₁₂、または-SiR₁₃R₁₄R₁₅を表し；あるいは隣接する置換基に結合して、単環、3~30員芳香族炭化水

50

素環を形成する。より好ましくは、 $R_1 \sim R_5$ は各々独立して、水素；非置換（C1-C10）アルキル基；非置換または（C1-C10）アルキルもしくは（C6-C20）アリール基で置換された（C6-C20）アリール基；非置換または（C1-C10）アルキルもしくは（C6-C20）アリール基で置換された5~20員ヘテロアリール基；または- $NR_{11}R_{12}$ を表し；あるいは隣接する置換基に結合して、単環、3~30員芳香族炭化水素環を形成する。さらにより好ましくは、 $R_1 \sim R_5$ は各々独立して水素を表す。

【0026】

好ましくは、 $R_6 \sim R_{10}$ は各々独立して、置換もしくは非置換（C1-C30）アルキル基、置換もしくは非置換（C6-C30）アリール基、または置換もしくは非置換5~30員ヘテロアリール基を表す。

10

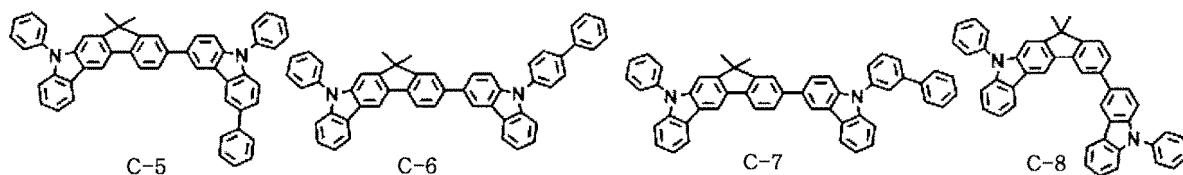
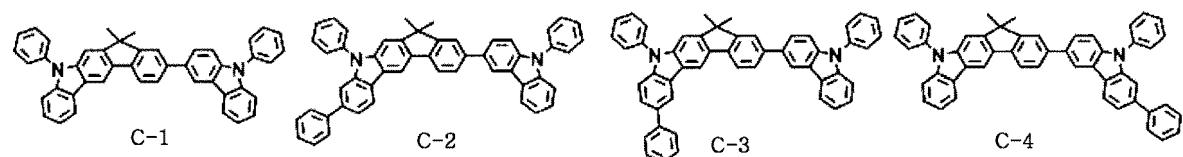
【0027】

好ましくは、 $R_{11} \sim R_{15}$ は各々独立して、水素；非置換（C1-C30）アルキル基；あるいは非置換または（C1-C30）アルキルもしくは（C6-C30）アリールで置換された（C6-C30）アリール基を表す。

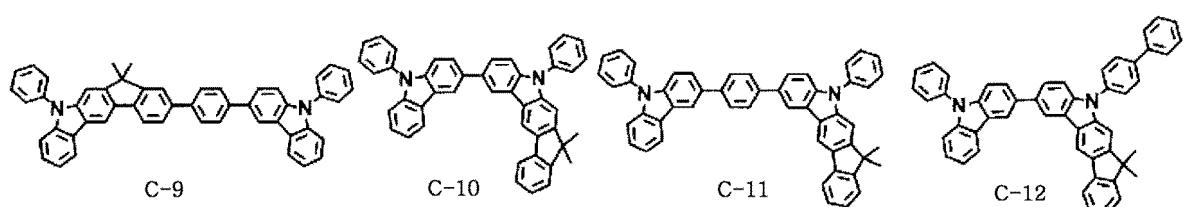
【0028】

本発明の有機エレクトロルミネセンス化合物は以下の化合物を含む：

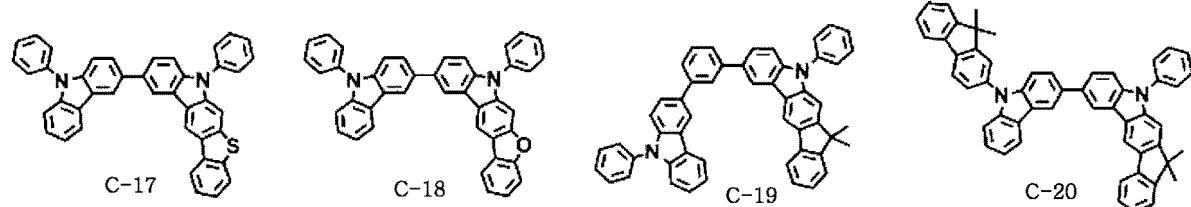
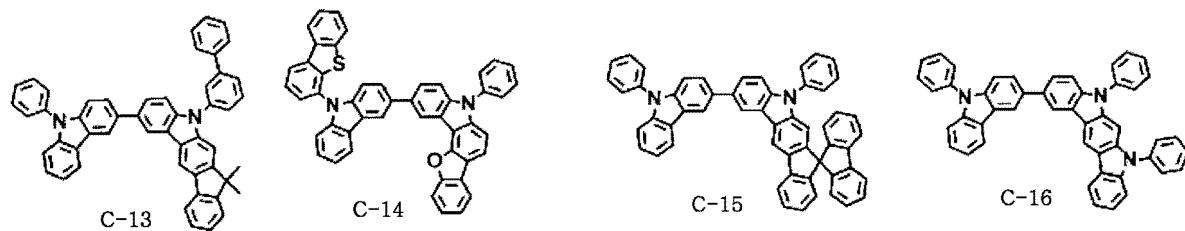
【化 6 - 1】



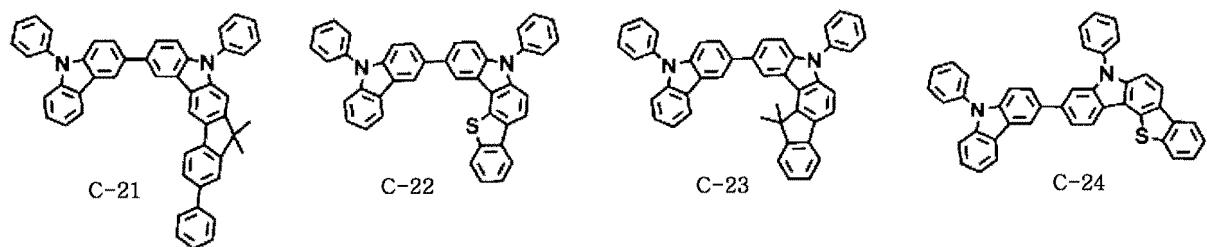
10



20

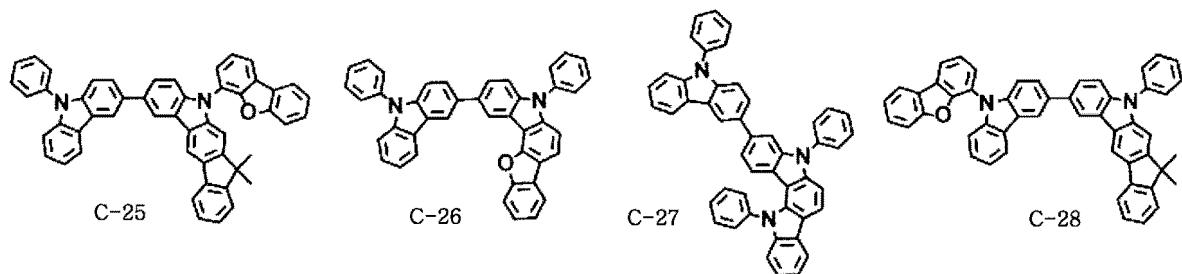


30

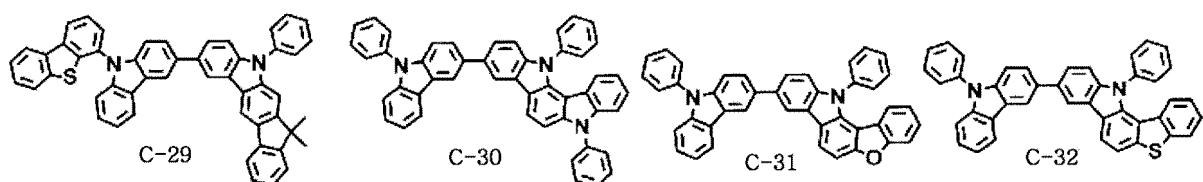


40

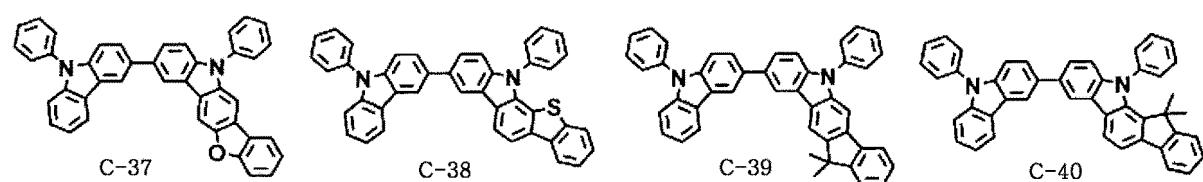
【化 6 - 2】



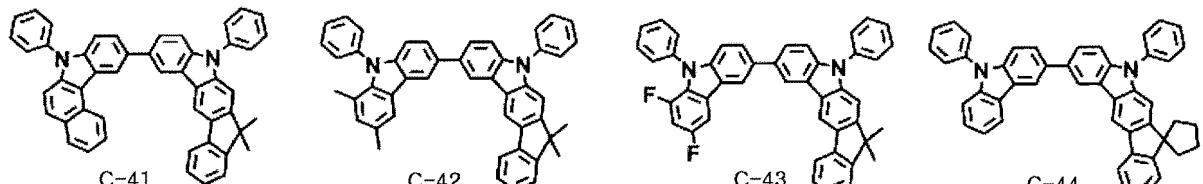
10



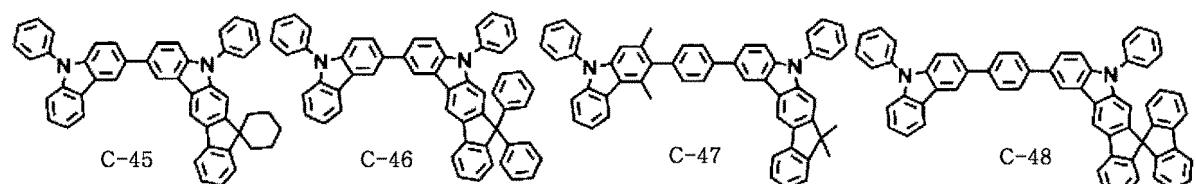
20



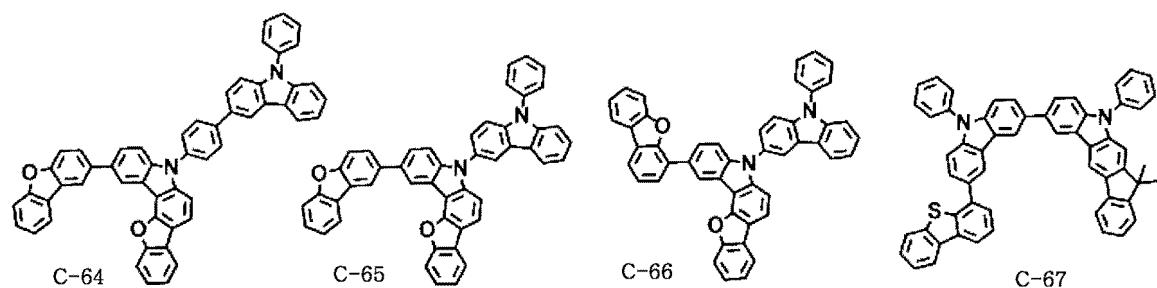
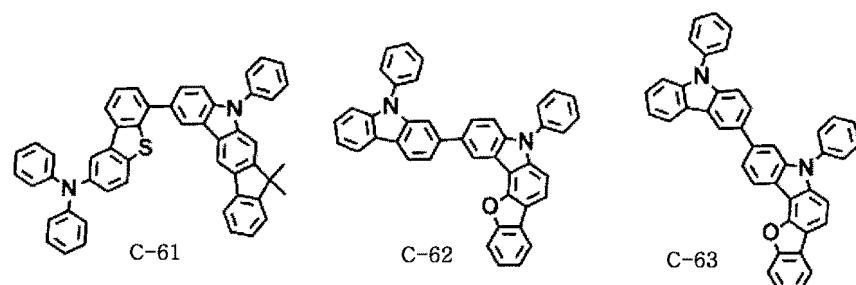
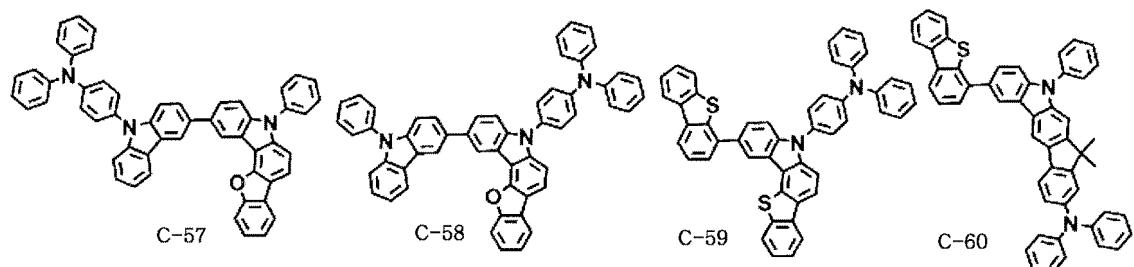
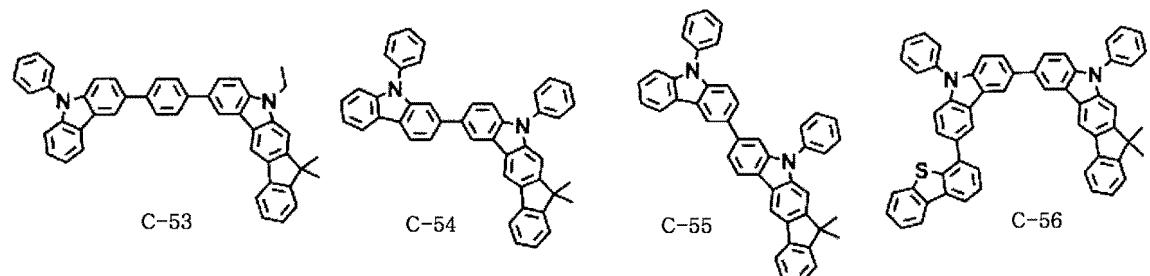
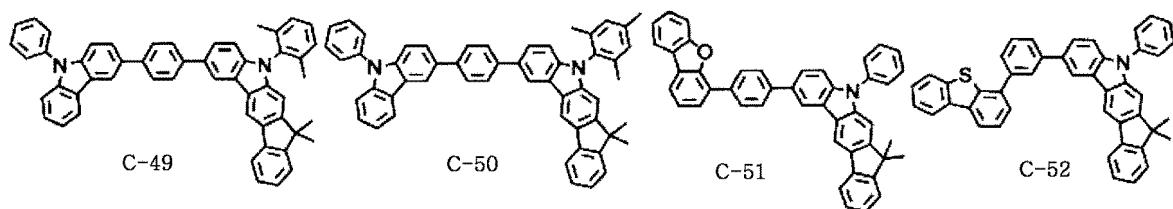
30



40



【化 6 - 3】



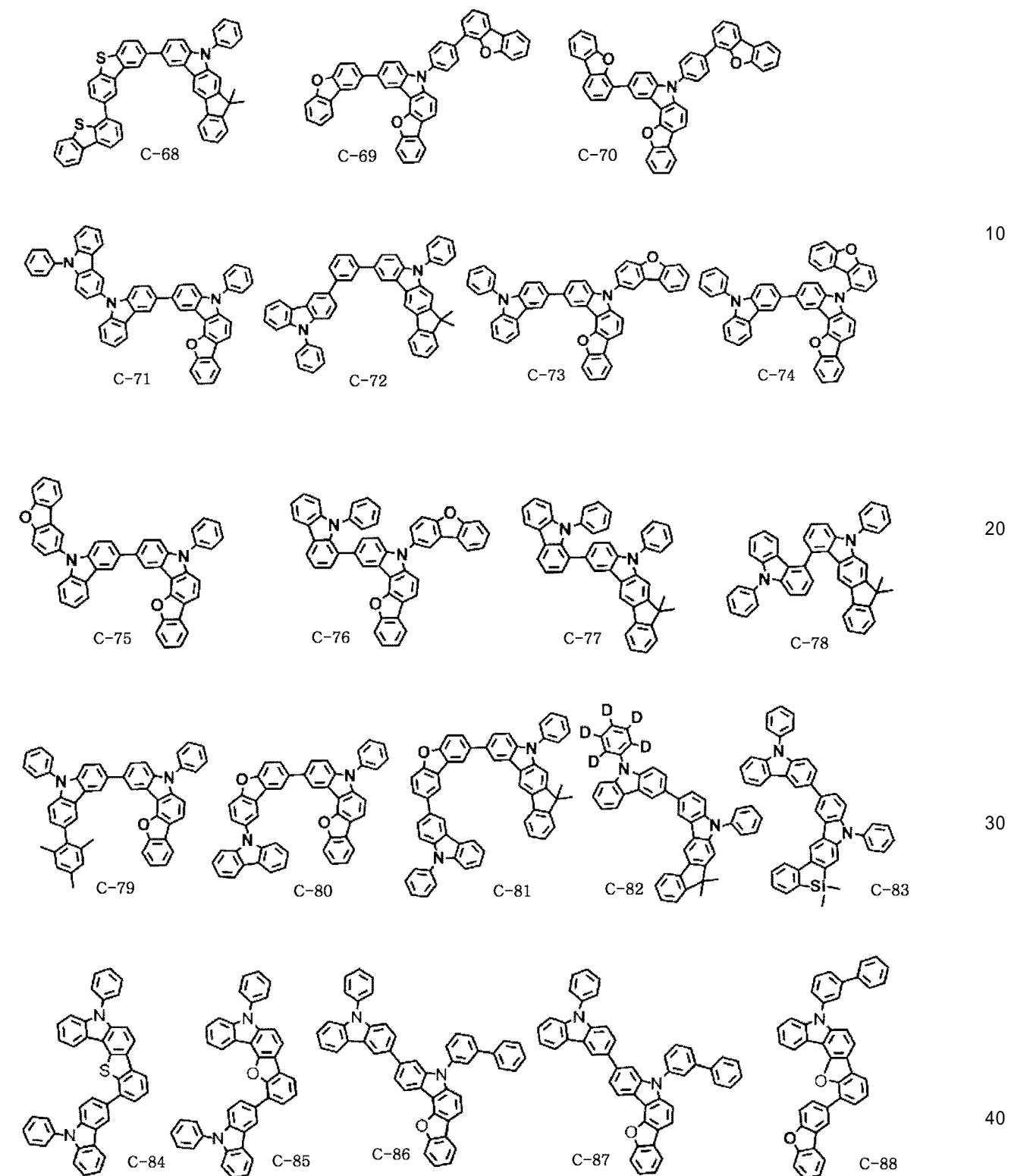
10

20

30

40

【化 6 - 4】



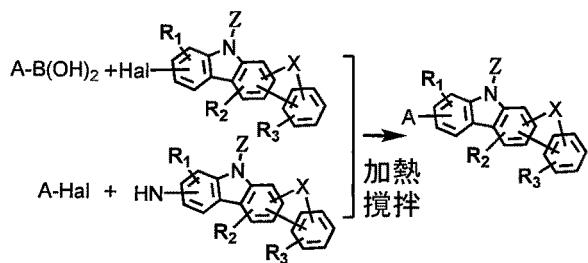
【0029】

本発明に係る有機エレクトロルミネセンス化合物は、当該分野において公知の方法、例えば以下の反応スキーム 1 および 2 に従って調製され得る。

【0030】

【反応スキーム 1】

【化7】

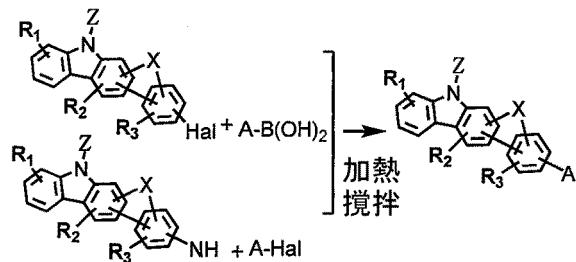


【0031】

10

[反応スキーム2]

【化8】



20

式中、A、Z、XおよびR₁～R₃は上記の式1に定義されている通りであり、Halはハロゲンを表す。

【0032】

本発明はさらに、式1の有機エレクトロルミネセンス化合物を含む有機エレクトロルミネセンス材料および該材料を含む有機エレクトロルミネセンス素子を提供する。材料は、本発明のみに係る有機エレクトロルミネセンス化合物から構成され得るか、またはさらに有機エレクトロルミネセンス材料に一般に使用されている従来の材料を含んでもよい。有機エレクトロルミネセンス素子は、第1の電極、第2の電極および第1の電極と第2の電極との間の少なくとも1つの有機層を含んでもよく、有機層は本発明に係る式1の少なくとも1つの化合物を含む。

30

【0033】

第1の電極および第2の電極の1つはアノードであってもよく、他方はカソードであってもよい。有機層はさらに、発光層と、ホール注入層、ホール輸送層、電子輸送層、電子注入層、中間層およびホール遮断層からなる群から選択される少なくとも1つの層とを含む。

【0034】

本発明の式1の有機エレクトロルミネセンス化合物は、発光層およびホール輸送層の少なくとも1つに含まれ得る。ホール輸送層に使用される場合、本発明の式1の有機エレクトロルミネセンス化合物は、ホール輸送材料として含まれ得る。発光層に使用される場合、本発明の式1の有機エレクトロルミネセンス化合物はホスト材料として含まれ得る。好ましくは、発光層は少なくとも1つのドーパントを含んでもよい。必要な場合、本発明の式1の有機エレクトロルミネセンス化合物に加えて他の化合物がさらに、第2のホスト材料として含まれてもよい。

40

【0035】

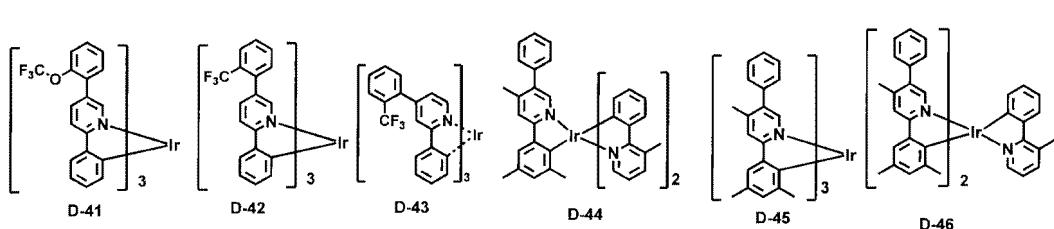
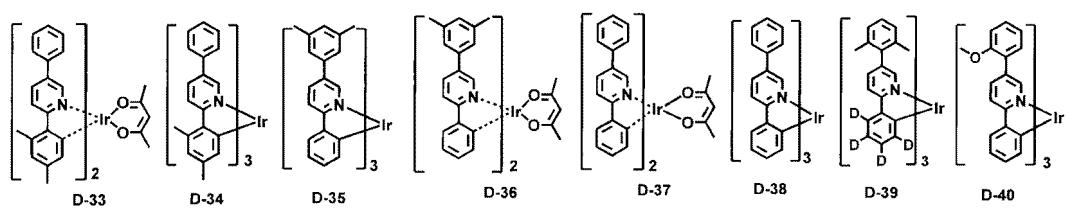
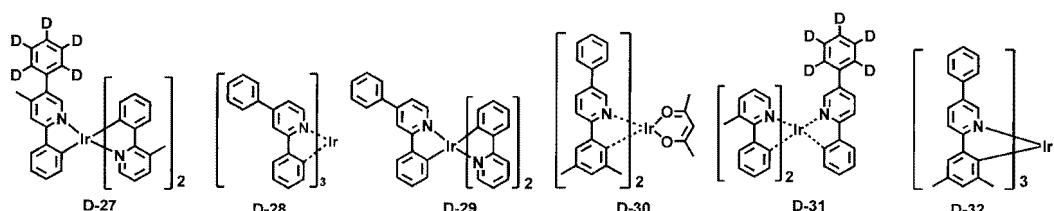
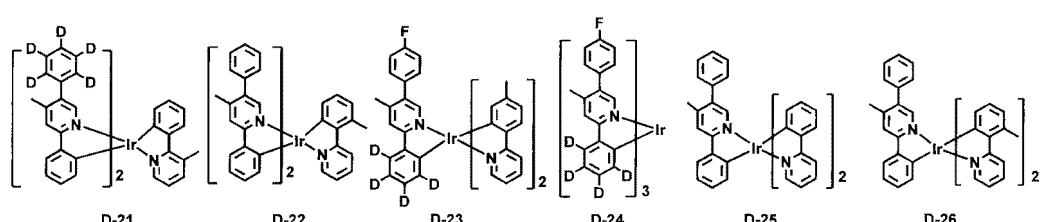
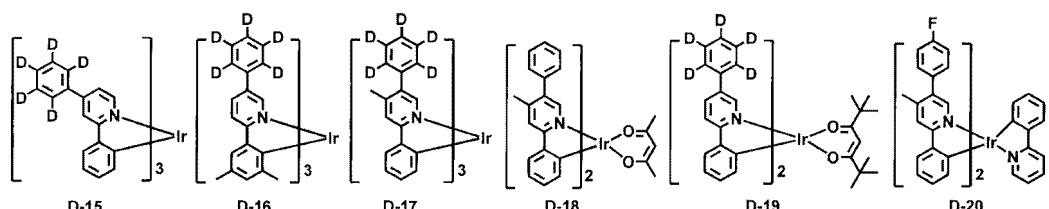
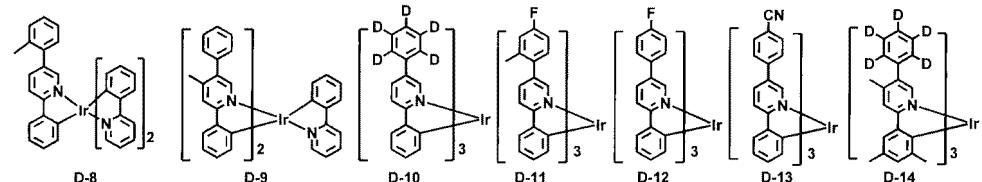
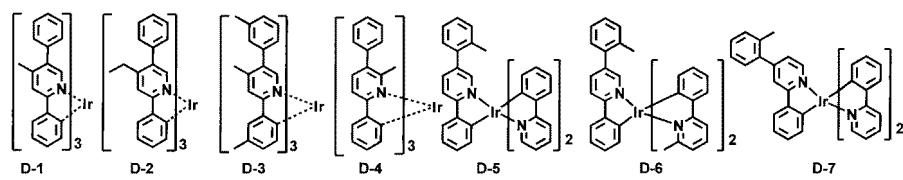
ドーパントは好ましくは1つ以上のリン光性ドーパントである。本発明の有機エレクトロルミネセンス素子に適用されるリン光性ドーパント材料は、特に限定されないが、好ましくは、イリジウム(Ir)、オスミウム(Os)、銅(Cu)および白金(Plt)の錯体化合物、より好ましくはイリジウム(Ir)、オスミウム(Os)、銅(Cu)および白金(Plt)のオルトメタル化錯体化合物、さらにより好ましくはオルトメタル化イリジウム錯体化合物から選択され得る。

50

【 0 0 3 6 】

リン光性ドーパントは特に以下を含む：

【 化 9 - 1 】



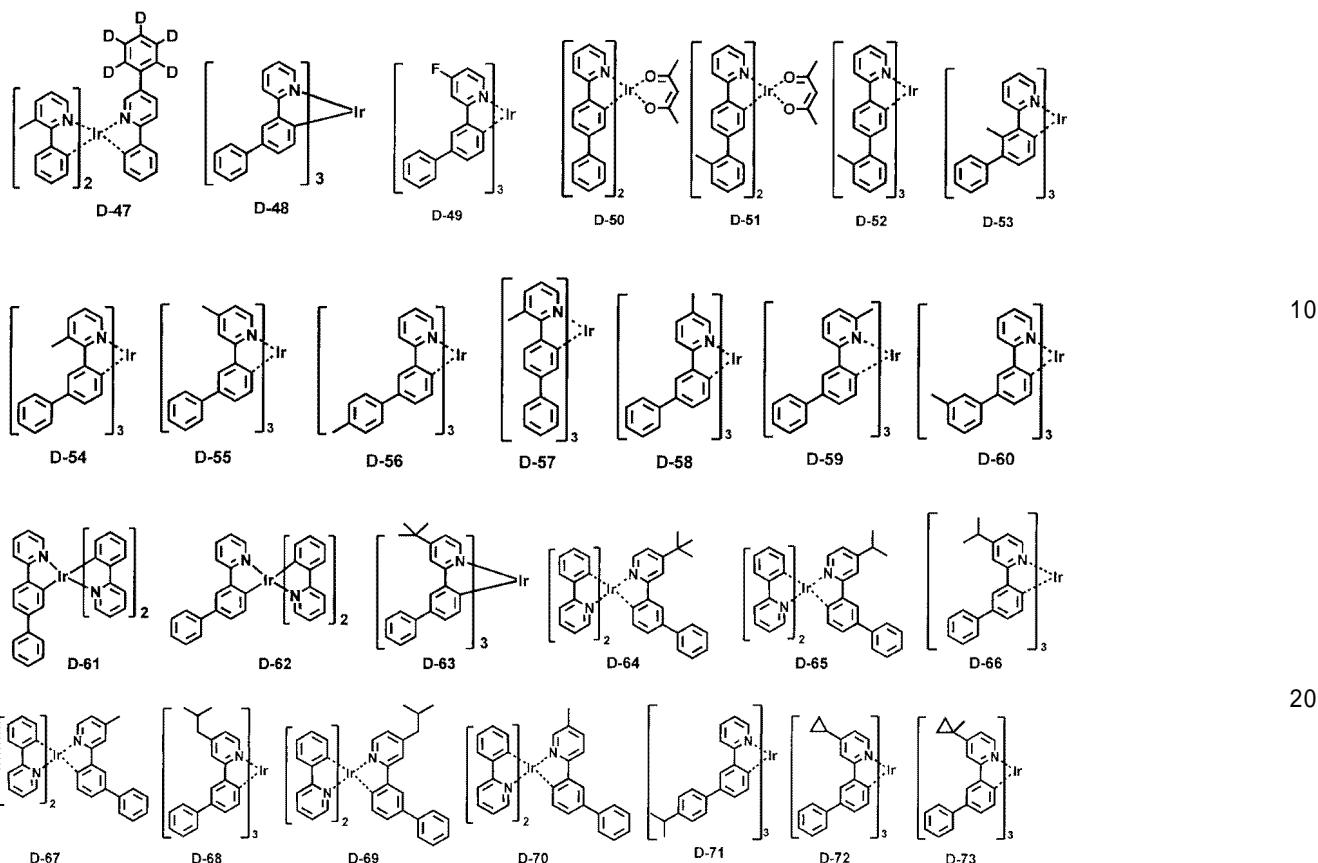
10

20

30

40

【化9-2】

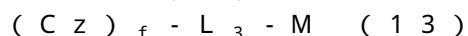


【0037】

本発明はさらに、有機エレクトロルミネセンス素子のための材料を提供する。材料は第1のホスト材料および第2のホスト材料を含み、第1のホスト材料は本発明の有機エレクトロルミネセンス化合物を含み得る。第1のホスト材料および第2のホスト材料は重量比が1:99から99:1の範囲であり得る。

【0038】

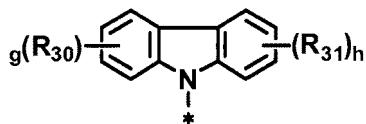
第2のホスト材料は公知のリン光性ホストのいずれか、好ましくは以下の式12および13から選択されるリン光性ホストであってもよい：



式中、

C_z は以下の構造：

【化10】



を表し、

R_{30} および R_{31} は各々独立して、水素、重水素、ハロゲン、置換もしくは非置換($C_1 - C_{30}$)アルキル基、置換もしくは非置換($C_6 - C_{30}$)アリール基、置換もしくは非置換5~30員ヘテロアリール基、または $R_{32} R_{33} R_{34}$ Si-を表し； $R_{32} \sim R_{34}$ は各々独立して、置換もしくは非置換($C_1 - C_{30}$)アルキル基、置換もしくは非置換($C_6 - C_{30}$)アリール基を表し； R_{30} の各々または R_{31} の各々は同じまたは異なり； L_3 は、化学結合、置換もしくは非置換($C_6 - C_{30}$)アリーレン基、または置換もしくは非置換5もしくは30員ヘテロアリーレン基を表し； M は、置換もし

10

20

30

40

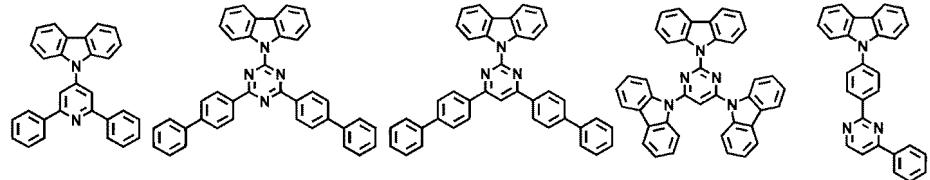
50

くは非置換（C6-C30）アリール基、または置換もしくは非置換5もしくは30員ヘテロアリール基を表し；e～hは各々独立して0～4の整数を表す。

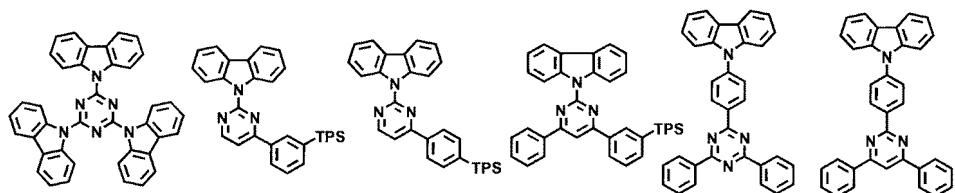
【0039】

特に、第2のホスト材料は以下を含む（TPSはトリフェニルシラン基を意味する）：

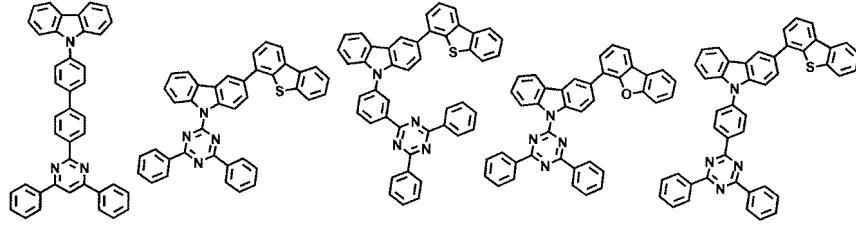
【化11-1】



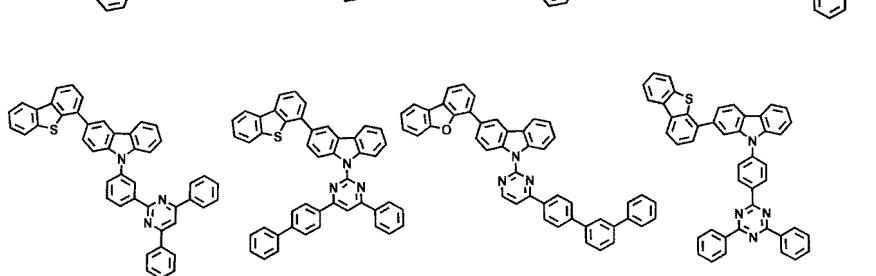
10



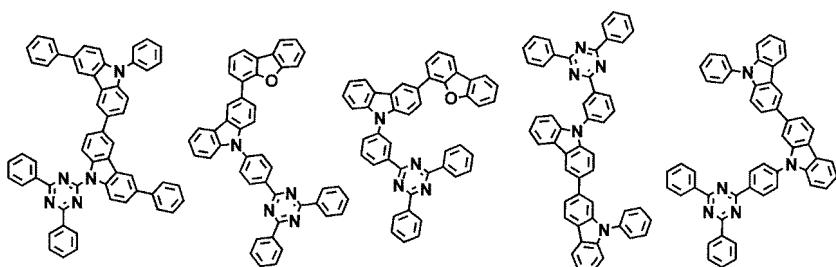
20



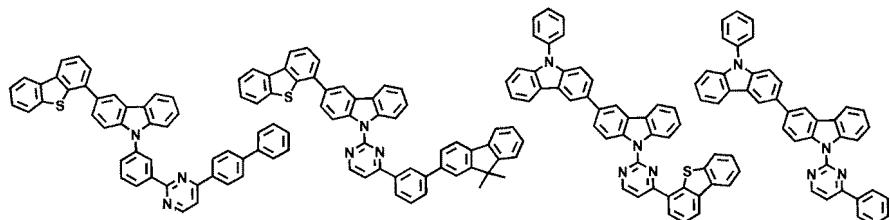
30



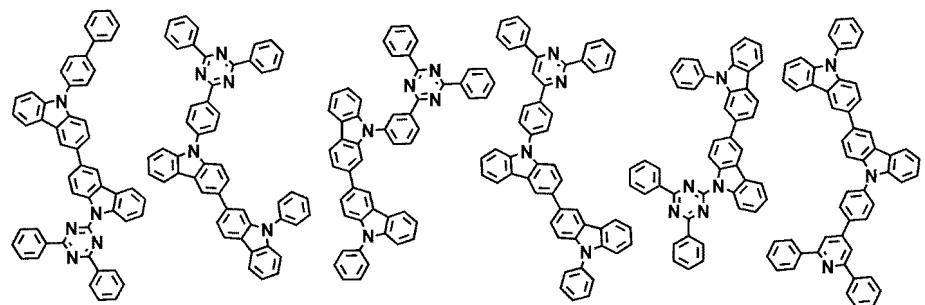
40



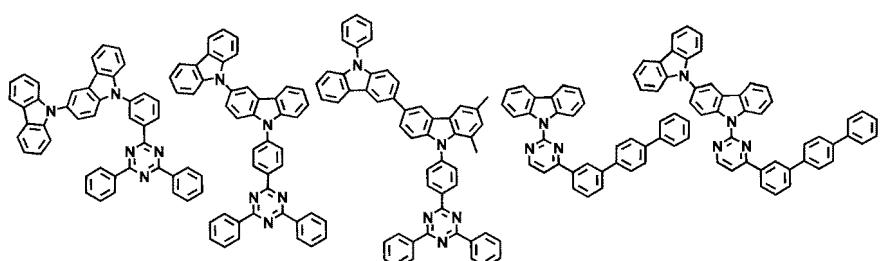
【化 1 1 - 2 】



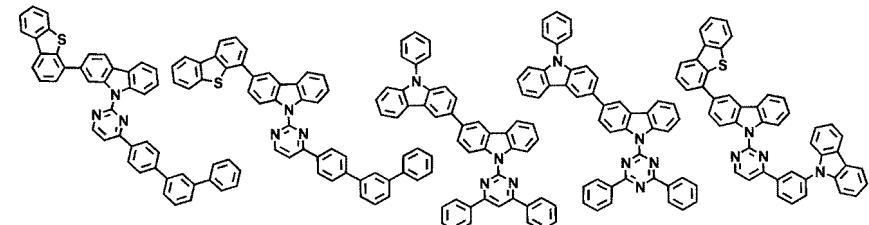
10



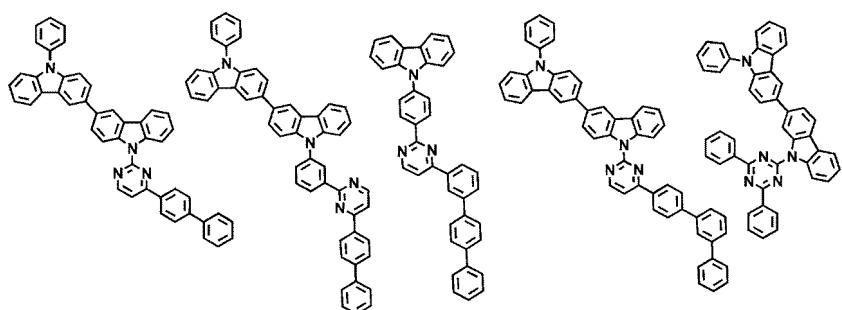
20



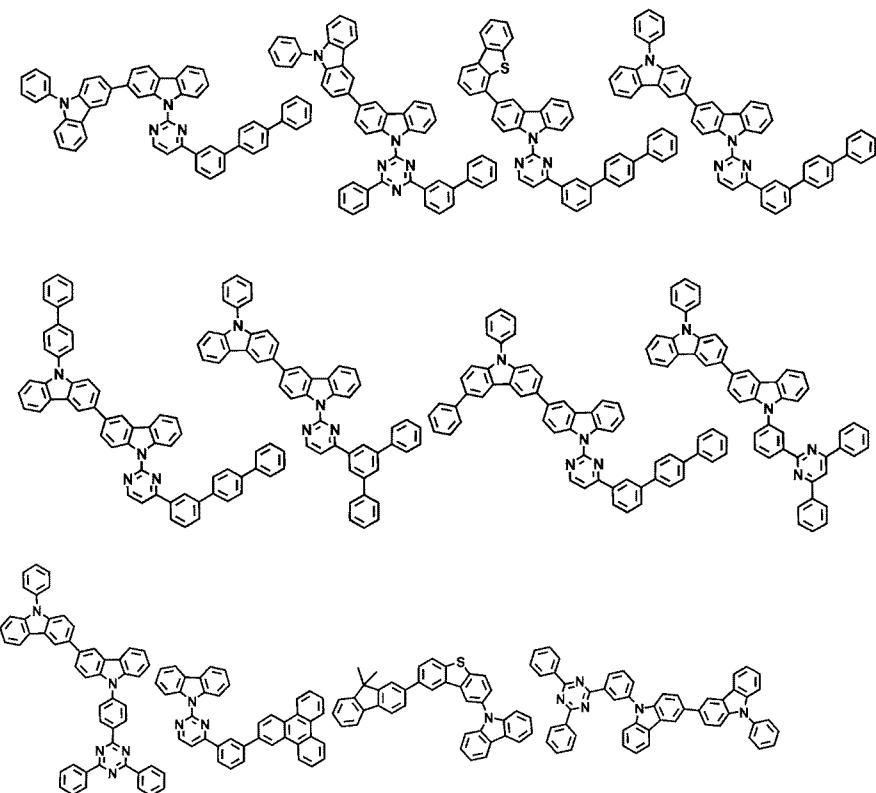
30



40



【化 1 1 - 3 】



10

20

30

40

50

【 0 0 4 0 】

本発明の有機エレクトロルミネセンス素子は、第1の電極、第2の電極および第1の電極と第2の電極との間の少なくとも1つの有機層を含んでもよく、有機層は発光層を含み、発光層は本発明の有機エレクトロルミネセンス材料およびリン光性ドーパントを含み、有機エレクトロルミネセンス材料は好ましくは、発光層においてホスト材料として使用される。

【 0 0 4 1 】

本発明に係る有機エレクトロルミネセンス素子はさらに、式1により表される有機エレクトロルミネセンス化合物に加えて、有機層中にアリールアミン系の化合物およびスチリルアリールアミン系の化合物からなる群から選択される少なくとも1つの化合物を含んでもよい。

【 0 0 4 2 】

本発明に係る有機エレクトロルミネセンス素子において、有機層はさらに、式1により表される有機エレクトロルミネセンス化合物に加えて、1族金属、2族金属、第4周期の遷移金属、第5周期の遷移金属、ランタニドおよび周期表のd-遷移元素の有機金属、または前記金属を含む少なくとも1つの錯体化合物からなる群から選択される少なくとも1つの金属を含んでもよい。

【 0 0 4 3 】

さらに、本発明の有機エレクトロルミネセンス素子は、本発明に係る有機エレクトロルミネセンス化合物以外に、青色エレクトロルミネセンス化合物、赤色エレクトロルミネセンス化合物または緑色エレクトロルミネセンス化合物を含む少なくとも1つの発光層をさらに含むことにより、白色光を発光でき；さらに、必要に応じて、黄色または橙色の発光層を含んでもよい。

【 0 0 4 4 】

好ましくは、本発明に係る有機エレクトロルミネセンス素子において、カルコゲニド層、金属ハロゲン化物層および金属酸化物層から選択される少なくとも1つの層（本明細書以下、「表面層」）が、1つまたは両方の電極の内面に配置されてもよい。特に、ケイ素

またはアルミニウムのカルコゲニド(酸化物を含む)層が、エレクトロルミネセンス媒体層のアノード面に配置され、金属ハロゲン化物層または金属酸化物層が、エレクトロルミネセンス媒体層のカソード面に配置されることが好ましい。このような表面層は有機エレクトロルミネセンス素子のための作動安定性を提供する。好ましくは、前記カルコゲニドは、 SiO_x (1 \leq X \leq 2)、 AlO_x (1 \leq X \leq 1.5)、 SiON 、 SiAlON などを含み、前記金属ハロゲン化物は、 LiF 、 MgF_2 、 CaF_2 、希土類金属フッ化物などを含み、前記金属酸化物は、 Cs_2O 、 Li_2O 、 MgO 、 SrO 、 BaO 、 CaO などを含む。

【0045】

好ましくは、本発明に係る有機エレクトロルミネセンス素子において、電子輸送化合物および還元ドーパントの混合領域、あるいはホール輸送化合物および酸化ドーパントの混合領域は、一対の電極の少なくとも1つの表面に配置されてもよい。この場合、電子輸送化合物はアニオンに還元されるので、それは、混合領域からエレクトロルミネセンス媒体まで電子を注入し、輸送することが容易になる。さらに、ホール輸送化合物はカチオンに酸化されるので、それは、混合領域からエレクトロルミネセンス媒体までホールを注入し、輸送することが容易になる。好ましくは、酸化ドーパントは種々のルイス酸およびアクセプター化合物を含み、還元ドーパントはアルカリ金属、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属、希土類金属、およびそれらの混合物を含む。還元ドーパント層は、2つ以上のエレクトロルミネセンス層を有し、白色光を発光するエレクトロルミネセンス素子を作製するために電荷発生層として利用されてもよい。

10

20

30

【0046】

本発明に係る有機エレクトロルミネセンス素子を構成する各層を形成するために、真空蒸発、スパッタリング、プラズマ、イオンプレーティング法などの乾燥フィルム形成法、またはスピンドーティング、ディップコーティング、フローコーティング法などの湿潤フィルム形成法が使用されてもよい。

【0047】

湿潤フィルム形成法を使用する場合、薄いフィルムが、エタノール、クロロホルム、テトラヒドロフラン、ジオキサンなどの適切な溶媒中で各層を構成する材料を溶解または分散することによって形成される。溶媒は、層を形成する際にあらゆる問題を生じずに、各層を構成する材料が溶媒中に溶解または分散する限り、特に制限されない。

【0048】

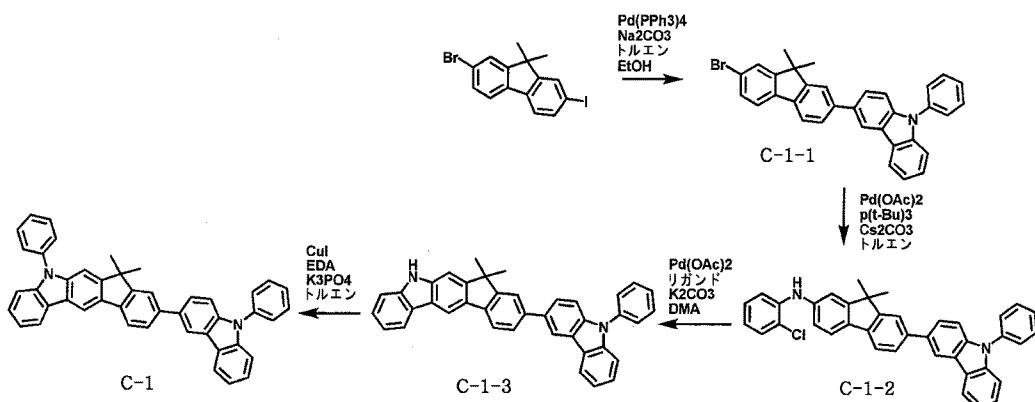
本明細書以下に、本発明の有機エレクトロルミネセンス化合物、その化合物の調製方法、およびその化合物を含む素子の発光特性を、以下の実施例を参照して詳細に説明する。

【実施例】

【0049】

実施例1：化合物C-1の調製

【化12】



【0050】

40

50

化合物 C - 1 - 1 の調製

2 - ブロモ - 7 - ヨード - 9 , 9 - ジメチル - 9 H - フルオレン (25.0 g, 62.6 mmol)、9 - フェニル - 9 H - カルバゾール - 3 - イルボロン酸 (16.3 g, 56.9 mmol)、テトラキス (トリフェニルホスフィン) パラジウム (0) [Pd (Ph₃)₄] (3.6 g, 3.1 mmol) および Na₂CO₃ (19.9 g, 216.0 mmol) をフラスコに加えた後、トルエン (400.0 ml)、エタノール (EtOH) (100.0 ml) および蒸留水 (100.0 ml) を加えることによって反応混合物を溶解し、反応混合物を 120 にて 3 時間攪拌した。反応後、蒸留水をゆっくり加えることによって反応を完了し、有機層を酢酸エチレン (EA) で抽出した。得られた有機層を MgSO₄ で乾燥させて残存水分を除去し、カラムクロマトグラフィーにより分離して化合物 C - 1 - 1 (27.5 g, 53.5 mmol)、収率 : 84%) を得た。

10

【 0051 】

化合物 C - 1 - 2 の調製

化合物 C - 1 - 1 (27.5 g, 53.5 mmol)、2 - クロロアニリン (11.2 ml, 106.9 mmol)、酢酸パラジウム (480.0 mg, 2.13 mmol)、P(t-Bu)₃ (トリ - t - ブチルホスフィン) (1.0 ml, 6.2 mmol) およびカリウム - tert - ブトキシド (15.0 g, 133.6 mmol) をフラスコに加え、トルエン (148.0 ml) を加えることによって反応混合物を溶解した後、反応混合物を 120 にて 24 時間還流した。反応が完了した後、有機層を EA で抽出した。得られた有機層を MgSO₄ で乾燥させて残存水分を除去し、カラムクロマトグラフィーにより分離して化合物 C - 1 - 2 (14.5 g, 25.8 mmol)、収率 : 48%) を得た。

20

【 0052 】

化合物 C - 1 - 3 の調製

化合物 C - 1 - 2 (14.5 g, 25.8 mmol)、酢酸パラジウム (290.0 mg, 1.29 mmol)、トリ - t - ブチルホスホニウムテトラフルオロボレート (0.75 g, 2.58 mmol) および K₂CO₃ (10.7 g, 77.5 mmol) をフラスコに加え、ジメチルアセトアミド (DMA) (143.0 ml) を加えることによって反応混合物を溶解した後、反応混合物を 180 にて 24 時間還流した。反応が完了した後、有機層を EA で抽出した。得られた有機層を MgSO₄ で乾燥させて残存水分を除去し、カラムクロマトグラフィーにより分離して化合物 C - 1 - 3 (10.9 g, 20.7 mmol)、収率 : 66%) を得た。

30

【 0053 】

化合物 C - 1 の調製

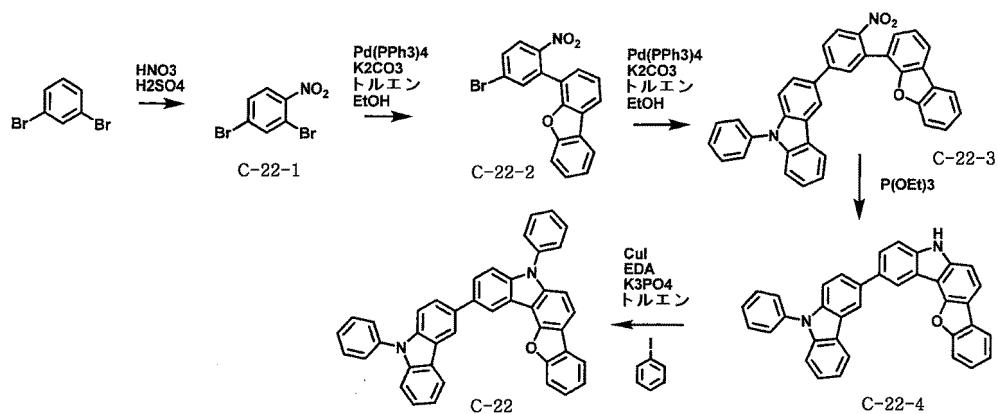
化合物 C - 1 - 3 (9.9 g, 18.8 mmol)、ヨードベンゼン (3.2 ml, 28.3 mmol)、CuI (1.8 g, 9.4 mmol)、エチレンジアミン (1.26 ml, 18.8 mmol) および K₃PO₄ (12.2 g, 56.6 mmol) をフラスコに加え、トルエン (100.0 ml) を加えることによって反応混合物を溶解した後、反応混合物を 120 にて 24 時間還流した。反応が完了した後、有機層を EA で抽出した。得られた有機層を MgSO₄ で乾燥させて残存水分を除去し、カラムクロマトグラフィーにより分離して化合物 C - 1 (6.2 g, 10.3 mmol)、収率 : 55%) を得た。

40

【 0054 】

実施例 2 : 化合物 C - 2 2 の調製

【化13】



10

【0055】

化合物C-22-1の調製

1,3-ジブロモベンゼンおよび硫酸(250.0m1)をフラスコに加え、反応混合物を0の内部温度に冷却した。硝酸(28.6m1)をフラスコにゆっくり加え、反応混合物を30分間攪拌した。反応が完了した後、反応混合物を氷水に加え、得られた固体を濾過し、水でリノスした。固体をNaOHでリノスして中性の固体を生成した。固体をカラムクロマトグラフィーにより分離して化合物C-22-1(60.0g、213.5mmol、収率:50%)を得た。

【0056】

化合物C-22-2の調製

化合物C-22-1(60.0g、213.5mmol)、ジベンゾ[b,d]チオフェン-4-イルボロン酸(40.6g、177.9mmol)、Pd(PPh₃)₄(8.2g、7.1mmol)およびNa₂CO₃(56.6g、534.0mmol)をフラスコに加え、トルエン(520.0m1)、EtOH(260.0m1)および蒸留水(260.0m1)を加えることによって反応混合物を溶解した後、反応混合物を120にて3時間攪拌した。反応後、蒸留水をゆっくり加えることによって反応を完了し、有機層をEAで抽出した。得られた有機層をMgSO₄で乾燥させて残存水分を除去し、カラムクロマトグラフィーにより分離して化合物C-22-2(42.0g、109.0mmol、収率:51%)を得た。

【0057】

化合物C-22-3の調製

化合物C-22-2(10.5g、29.8mmol)、9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イルボロン酸(10.3g、35.8mmol)、Pd(PPh₃)₄(1.4g、1.2mmol)およびK₂CO₃(12.3g、89.4mmol)をフラスコに加え、トルエン(100.0m1)、EtOH(45.0m1)および蒸留水(45.0m1)を加えることによって反応混合物を溶解した後、反応混合物を120にて3時間攪拌した。反応後、蒸留水をゆっくり加えることによって反応を完了し、有機層をEAで抽出した。得られた有機層をMgSO₄で乾燥させて残存水分を除去し、カラムクロマトグラフィーにより分離して化合物C-22-3(8.5g、16.5mmol、収率:55%)を得た。

【0058】

化合物C-22-4の調製

化合物C-22-3(42.0g、109.0mmol)をフラスコに加え、トリエチルホスファイト(250.0m1)および1,2-ジクロロベンゼン(200.0m1)を加えることによって反応混合物を溶解した後、反応混合物を150にて24時間攪拌した。反応が完了した後、残存溶媒を蒸留装置によって除去し、得られた有機層をカラムクロマトグラフィーにより分離して化合物C-22-4(10.5g、29.8mmol、

30

40

50

、収率：27%を得た。

【0059】

化合物C-22の調製

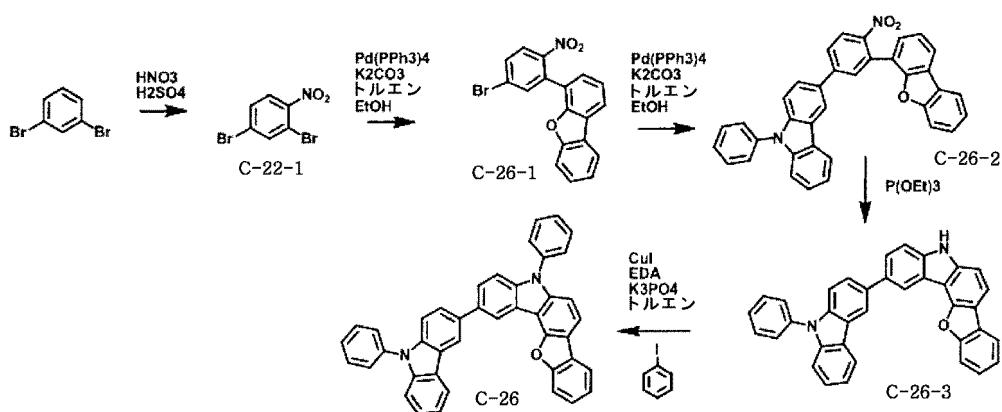
化合物C-22-4(8.5g、16.5mmol)、ヨードベンゼン(3.7ml、33.0mmol)、CuI(1.6g、8.2mmol)、エチレンジアミン(1.1ml、16.5mmol)およびK₃PO₄(10.5g、49.5mmol)をフラスコに加え、トルエン(100.0ml)を加えることによって反応混合物を溶解した後、反応混合物を120にて24時間還流した。反応が完了した後、有機層をEAで抽出した。得られた有機層をMgSO₄で乾燥させて残存水分を除去し、カラムクロマトグラフィーにより分離して化合物C-22(4.5g、7.6mmol、収率：46%)を得た。

10

【0060】

実施例3：化合物C-26の調製

【化14】



20

【0061】

化合物C-26-1の調製

化合物C-22-1(60.0g、213.5mmol)、ジベンゾ[b,d]フラン-4-イルボロン酸(37.7g、177.9mmol)、Pd(PPh₃)₄(10.2g、8.8mmol)およびNa₂CO₃(56.6g、534.0mmol)をフラスコに加え、トルエン(520.0ml)、EtOH(260.0ml)および蒸留水(260.0ml)を加えることによって反応混合物を溶解した後、反応混合物を120にて3時間攪拌した。反応後、蒸留水をゆっくり加えることによって反応を完了し、有機層をEAで抽出した。得られた有機層をMgSO₄で乾燥させて残存水分を除去し、カラムクロマトグラフィーにより分離して化合物C-26-1(42.0g、114.0mmol、収率：54%)を得た。

30

【0062】

化合物C-26-2の調製

化合物C-26-1(10.0g、29.7mmol)、9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イルボロン酸(10.2g、35.7mmol)、Pd(PPh₃)₄(1.4g、1.2mmol)およびK₂CO₃(12.3g、89.4mmol)をフラスコに加え、トルエン(100.0ml)、EtOH(45.0ml)および蒸留水(45.0ml)を加えることによって反応混合物を溶解した後、反応混合物を120にて3時間攪拌した。反応後、蒸留水をゆっくり加えることによって反応を完了し、有機層をEAで抽出した。得られた有機層をMgSO₄で乾燥させて残存水分を除去し、カラムクロマトグラフィーにより分離して化合物C-26-2(8.0g、16.0mmol、収率：54%)を得た。

40

【0063】

化合物C-26-3の調製

50

化合物C-26-2(42.0g、114.0mmol)をフラスコに加え、トリエチルホスファイト(250.0ml)および1,2-ジクロロベンゼン(200.0ml)を加えることによって反応混合物を溶解した後、反応混合物を150にて24時間攪拌した。反応が完了した後、残存溶媒を蒸留装置によって除去し、得られた有機層をカラムクロマトグラフィーにより分離して化合物C-26-3(10.5g、29.7mmol)、収率:26%を得た。

【0064】

化合物C-26の調製

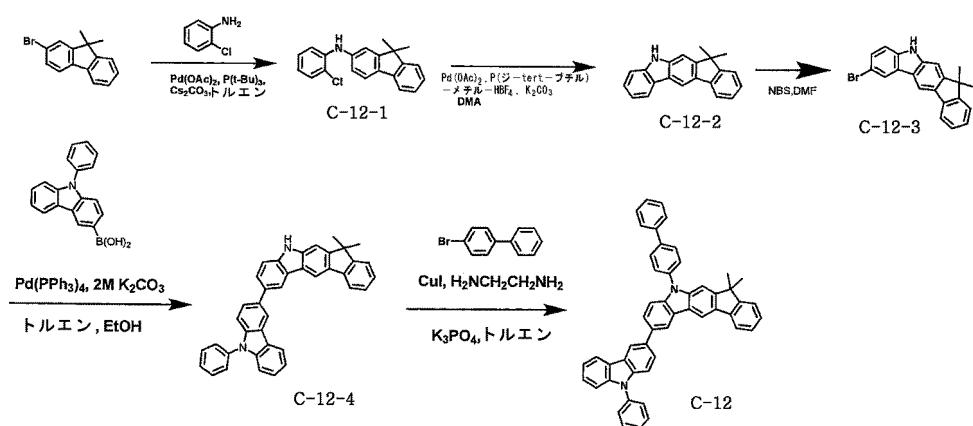
化合物C-26-3(8.0g、16.0mmol)、ヨードベンゼン(3.6ml、32.0mmol)、CuI(1.5g、8.0mmol)、エチレンジアミン(1.1ml、16.0mmol)およびK₃PO₄(10.2g、48.1mmol)をフラスコに加え、トルエン(100.0ml)を加えることによって反応混合物を溶解した後、反応混合物を120にて24時間還流した。反応が完了した後、有機層をEAで抽出し、MgSO₄で乾燥させて残存水分を除去した。得られた有機層をカラムクロマトグラフィーにより分離して化合物C-26(4.5g、7.8mmol)、収率:49%を得た。

10

【0065】

実施例4：化合物C-12の調製

【化15】



20

30

【0066】

化合物C-12-1の調製

トルエン(600.0ml)を2-ブロモ-9,9-ジメチルフルオレン(56.0g、0.20mol)、2-クロロアニリン(31.0g、0.24mol)、酢酸パラジウム(1.5g、0.001mol)、P(t-Bu)₃(4.0ml、0.021mol)およびCs₂CO₃(143.0g、0.439mol)に加えた。混合物を120にて12時間攪拌した。反応が完了した後、混合物を蒸留水でリノスし、有機層をEAで抽出した。得られた有機層をMgSO₄で乾燥させた後、ロータリエバボレータを使用して残存溶媒を除去した。得られた有機層をカラムクロマトグラフィーにより精製して化合物C-12-1(65.0g、収率:92%)を得た。

40

【0067】

化合物C-12-2の調製

DMA(1000.0ml)を化合物C-12-1(65.0g、0.20mol)、酢酸パラジウム(2.3g、0.01mol)、ジ-tert-ブチル(メチル)ホスホニウムテトラフルオロボレート(5.9g、0.02mol)およびNa₂CO₃(64.0g、0.60mol)に加えた。混合物を190にて16時間攪拌した。反応が完了した後、混合物を蒸留水でリノスし、有機層をEAで抽出した。得られた有機層をMgSO₄で乾燥させた後、残存溶媒をロータリエバボレータを使用することによって除去した。得られた有機層をカラムクロマトグラフィーにより精製して化合物C-12-2(3

50

1.0 g、収率：54%を得た。

【0068】

化合物C-12-3の調製

化合物C-12-2(10.0 g、0.035 mol)およびジメチルホルムアミド(DMF)(500.0 ml)を二口丸底フラスコ(2 L)に加え、反応混合物を0にて10分間攪拌した。N-プロモスクシンイミド(NBS)(6.0 g、0.03 mol)をDMF(350.0 ml)に加えた後、溶液をフラスコにゆっくり加え、混合物を0にて6時間攪拌した。反応が完了した後、蒸留水を加えることによって混合物を中和し、有機層をEAで抽出した。得られた有機層をMgSO₄で乾燥させた後、残存溶媒をロータリエバボレータを使用することによって除去した。得られた有機層を、展開溶媒としてEAを用いたカラムクロマトグラフィーにより精製して化合物C-12-3(10.0 g、収率：78%)を得た。

10

【0069】

化合物C-12-4の調製

化合物C-12-3(11.2 g、31.0 mmol)、9-フェニルカルバゾール-3-ボロン酸(11.0 g、35.7 mmol)、Pd(PPh₃)₄(1.8 g、1.6 mmol)、K₂CO₃(11.0 g、78.0 mmol)、トルエン(120.0 ml)、エタノール(40.0 ml)および蒸留水(40.0 ml)を丸底フラスコ(500 ml)に加えた。反応混合物を120にて12時間攪拌した。反応が完了した後、混合物を蒸留水でリノスし、有機層をEAで抽出した。得られた有機層をMgSO₄で乾燥させた後、残存溶媒をロータリエバボレータを使用することによって除去した。得られた有機層をカラムクロマトグラフィーにより精製して化合物C-12-4(13.6 g、収率：84%)を得た。

20

【0070】

化合物C-12の調製

化合物C-12-4(6.0 g、11.4 mmol)、4-ブロモビフェニル(2.9 g、12.5 mmol)、CuI(1.0 g、5.7 mmol)、エチレンジアミン(1.5 ml、23.0 mmol)、K₃PO₄(6.0 g、29.0 mmol)およびトルエン(60.0 ml)を丸底フラスコ(250 ml)に加えた後、反応混合物を120に加熱し、12時間攪拌した。反応が完了した後、混合物を蒸留水でリノスし、有機層をEAで抽出した。得られた有機層をMgSO₄で乾燥させた後、残存溶媒をロータリエバボレータを使用することによって除去した。得られた有機層をカラムクロマトグラフィーにより精製して化合物C-12(5.0 g、収率：65%)を得た。

30

【0071】

実施例5：化合物C-10の調製

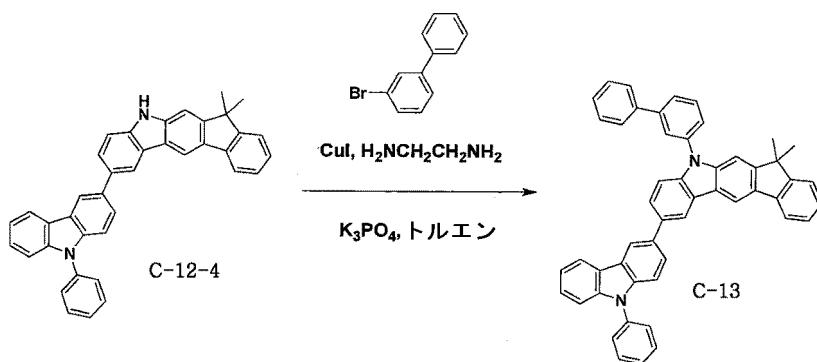
化合物C-12-4(8.8 g、16.7 mmol)、ヨードベンゼン(2.8 ml、25.1 mmol)、CuI(1.6 g、8.3 mmol)、エチレンジアミン(1.1 ml、16.7 mmol)およびK₃PO₄(11.0 g、50.3 mmol)をフラスコに加え、トルエン(100.0 ml)を加えることによって反応混合物を溶解した後、反応混合物を120にて24時間攪拌した。反応が完了した後、有機層をEAで抽出し、MgSO₄で乾燥させて残存水分を除去した。得られた有機層をカラムクロマトグラフィーにより分離して化合物C-10(6.0 g、9.9 mmol、収率：60%)を得た。

40

【0072】

実施例6：化合物C-13の調製

【化16】



10

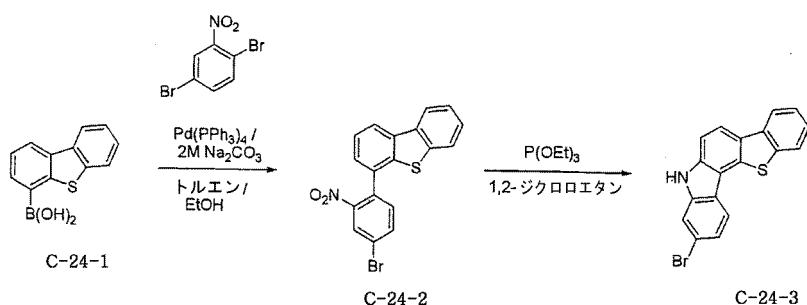
化合物 C - 12 - 4 (7.0 g、13.3 mmol)、3 - ブロモビフェニル (3.1 g、13.3 mmol)、CuI (1.3 g、6.7 mmol)、エチレンジアミン (2.0 ml、26.6 mmol)、 K_3PO_4 (7.0 g、33.0 mmol) およびトルエン (70.0 ml) を丸底フラスコ (250 ml) に加えた後、反応混合物を 120 に加熱し、12 時間攪拌した。反応が完了した後、混合物を蒸留水でリーンし、有機層を EA で抽出した。得られた有機層を $MgSO_4$ で乾燥させた後、残存溶媒をロータリエバボレータを使用することによって除去した。得られた有機層をカラムクロマトグラフィーにより精製して化合物 C - 13 (6.4 g、収率：71%) を得た。

【0073】

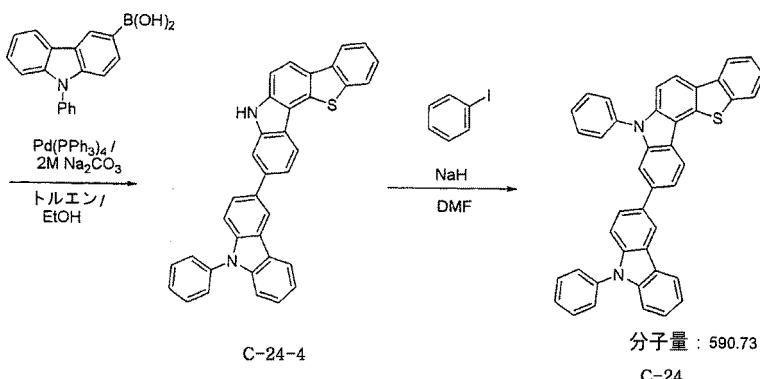
20

実施例 7：化合物 C - 24 の調製

【化17】



30



40

【0074】

化合物 C - 24 - 2 の調製

化合物 C - 24 - 1 (29.0 g、128.0 mmol)、 $Pd(PPh_3)_4$ (4.9 g、4.3 mmol)、 Na_2CO_3 (28.0 g、267.0 mmol)、トルエン (450.0 ml)、エタノール (150.0 ml) および蒸留水 (150.0 ml) を丸底フラスコ (2 L) に加え、反応混合物を 120 にて 1.5 時間攪拌した。反応混合物を EA / 蒸留水で抽出し、得られた有機層を $MgSO_4$ で乾燥させて残存水分を除去し

50

、減圧下で蒸留した。粗生成物を、展開溶媒として塩化メチレン（MC）およびヘキサンを用いたカラムクロマトグラフィーにより精製して、黄色の固体（34.0 g、収率：70%）として化合物C-24-2を得た。

【0075】

化合物C-24-3の調製

化合物C-24-2（34.0 g、88.5 mmol）、P(OEt)₃（250.0 m1）および1,2-ジクロロベンゼン（250.0 m1）を丸底フラスコ（2 L）に加え、反応混合物を150°にて3.5時間攪拌した。反応混合物を蒸留により分離し、EA/蒸留水で抽出した。得られた有機層をMgSO₄で乾燥させて残存水分を除去し、減圧下で蒸留した。粗生成物を、展開溶媒としてMCおよびヘキサンを用いたカラムクロマトグラフィーにより精製して、白色固体（14.6 g、収率：47%）として化合物C-24-3を得た。

10

【0076】

化合物C-24-4の調製

化合物C-24-3（6.0 g、17.0 mmol）、9-フェニル-9H-カルバゾール-3-イルボロン酸（6.4 g、22.0 mmol）、Pd(PPh₃)₄（984.0 mg、0.85 mmol）、K₂CO₃（5.9 g、43.0 mmol）、トルエン（80.0 m1）、エタノール（20.0 m1）および蒸留水（20.0 m1）を丸底フラスコ（500 m1）に加え、反応混合物を120°にて4時間攪拌した。反応混合物をEA/蒸留水で抽出した。得られた有機層をMgSO₄で乾燥させて残存水分を除去し、減圧下で蒸留した。粗生成物をクロロホルムを用いてシリカ上で濾過して、白色固体（5.0 g、収率：57%）として化合物C-24-4を得た。

20

【0077】

化合物C-24の調製

化合物C-24-4（4.4 g、8.5 mmol）、ヨードベンゼン（4.36 g、21.4 mmol）、CuI（814.0 mg、4.3 mmol）、K₃PO₄（5.4 g、25.6 mmol）、エチレンジアミン（1.2 m1、17.0 mmol）およびトルエン（45.0 m1）を丸底フラスコ（250 m1）に加え、反応混合物を120°にて6時間攪拌した。反応混合物をEA/蒸留水で抽出した。得られた有機層をMgSO₄で乾燥させて残存水分を除去し、減圧下で蒸留した。粗生成物を、展開溶媒としてMCおよびヘキサンを用いたカラムクロマトグラフィーにより精製し、DMFで再結晶して、白色固体（1.0 g、収率：20%）として化合物C-24を得た。

30

【0078】

実施例8：化合物C-11の調製

3-(4-ブロモフェニル)-9-フェニル-9H-カルバゾール（3.2 g、8.0 mmol）、7,7-ジメチル-5-フェニル-5,7-ジヒドロインデノ[2,1-b]カルバゾール-2-イルボロン酸（3.9 g、11.0 mmol）、Pd(PPh₃)₄（464.0 mg、0.40 mmol）、K₂CO₃（3.3 g、243.0 mmol）、トルエン（24.0 m1）、エタノール（12.0 m1）および蒸留水（12.0 m1）を丸底フラスコ（500 m1）に加え、反応混合物を120°にて4時間攪拌した。反応混合物をEA/蒸留水で抽出した。得られた有機層をMgSO₄で乾燥させて残存水分を除去し、減圧下で蒸留した。粗生成物をクロロホルムを用いてシリカ上で濾過して化合物C-11を白色固体（2.2 g、収率：41%）として得た。

40

【0079】

実施例1～8において調製した本発明の化合物の物理特性を以下の表1に提供する：

【0080】

【表1】

表1

化合物番号	収率 (%)	MS/EIMS		UV(nm)	PL(nm)	mp(°C)
		実測値	計算値			
C-1	55%	599.61	600.75	344nm	387nm	265
C-10	60%	599.74	600.75	342nm	406nm	176
C-11	41%	676.32	676.84	394nm	322nm	270
C-12	65%	676.65	676.84	322nm	409nm	319
C-13	70%	676.92	676.84	308nm	407nm	194
C-22	46%	589.97	590.73	334nm	389nm	226
C-24	20%	589.51	590.73	308nm	393nm	229
C-26	48%	573.95	574.67	356nm	386nm	203

【0081】

素子実施例1：本発明に係る有機エレクトロルミネセンス化合物を使用したOLED素子の製造

本発明に係る有機エレクトロルミネセンス化合物を使用してOLED素子を製造した。有機発光ダイオード(OLED)素子(Samsung Corning, Republic of Korea)のためのガラス基板上の透明電極インジウムスズ酸化物(ITO)薄膜(15 / sq)を、トリクロロエチレン、アセトン、エタノールおよび蒸留水で連続して超音波洗浄に供し、次いでイソプロパノール中に保存した。次いで、ITO基板を真空蒸着装置の基板ホルダに取り付けた。 N^1 , N^1 - ([1, 1 ' - ビフェニル] - 4, 4 ' - ジイル) ビス(N^1 - (ナフタレン - 1 - イル) - N^4 , N^4 - ジフェニルベンゼン - 1, 4 - ジアミン) を前記真空蒸着装置のセルに導入し、次いで前記装置のチャンバ内の圧力を 10^{-6} torrに制御した。その後、上記の導入した材料を蒸発させるために電流をセルに印加し、それにより、ITO基板上に60nmの厚さを有するホール注入層を形成した。次いで、本発明に係る化合物C-1を真空蒸着装置の別のセルに導入し、電流をセルに印加することにより蒸発させ、それによりホール注入層上に20nmの厚さを有するホール輸送層を形成させた。その後、9 - (3 - (4, 6 - ジフェニル - 1, 3, 5 - トリアジン - 2 - イル) フェニル) - 9 ' - フェニル - 9H, 9H ' - 3, 3 ' - ビカルバゾールをホストとして真空蒸着装置の1つのセル内に導入し、トリス(4 - メチル - 2, 5 - ジフェニルピリジン)イリジウム(D-5)をドーパントとして別のセル内に導入した。2つの材料を異なる速度で蒸発させ、ホストおよびドーパントの全重量に基づいて、15重量%のドーパントのドーピング量で蒸着させて、ホール輸送層上に30nmの厚さを有する発光層を形成させた。次いで、2 - (4 - (9, 10 - ジ(ナフタレン - 2 - イル)アントラセン - 2 - イル) フェニル) - 1 - フェニル - 1H - ベンゾ[d]イミダゾールを1つのセル内に導入し、リチウムキノレート(Liq)を別のセル内に導入した。2つの材料を同じ速度で蒸発させ、それぞれ50重量%のドーピング量で蒸着させて発光層上に30nmの厚さを有する電子輸送層を形成させた。次いで、電子輸送層上に2nmの厚さを有する電子注入層としてリチウムキノレートを蒸着させた後、150nmの厚さを有するAlカソードを電子注入層上の別の真空蒸着装置により蒸着させた。このように、OLED素子を製造した。OLED素子を製造するために使用した全ての材料を、使用前に 10^{-6} torrにて真空昇華により精製した。

【0082】

製造したOLED素子は、5050cd/m²の輝度および12.5mA/cm²の電流密度を有する緑色の発光を示した。

【0083】

素子実施例2：本発明に係る有機エレクトロルミネセンス化合物を使用したOLED素子

10

20

30

40

50

子の製造

OLED素子を、ホール輸送層として化合物C-10、ホストとして9-フェニル-10-(4-フェニルナフタレン-1-イル)アントラセンおよびドーパントとして(E)-9,9-ジメチル-7-(4-(ナフタレン-2-イル(フェニル)アミノ)スチリル)-N,N-ジフェニル-9H-フルオレン-2-アミンを使用することを除いて、素子実施例1と同じ方法で製造した。

【0084】

製造したOLED素子は、2050cd/m²の輝度および28.5mA/cm²の電流密度を有する青色の発光を示した。

【0085】

素子実施例3：本発明に係る有機エレクトロルミネセンス化合物を使用したOLED素子の製造

OLED素子を、ホール輸送層として化合物C-11を使用することを除いて、素子実施例1と同じ方法で製造した。

【0086】

製造したOLED素子は、4000cd/m²の輝度および7.4mA/cm²の電流密度を有する緑色の発光を示した。

【0087】

素子実施例4：本発明に係る有機エレクトロルミネセンス化合物を使用したOLED素子の製造

OLED素子を、ホール輸送層として化合物C-12を使用することを除いて、素子実施例1と同じ方法で製造した。

【0088】

製造したOLED素子は、7000cd/m²の輝度および13.5mA/cm²の電流密度を有する緑色の発光を示した。

【0089】

素子実施例5：本発明に係る有機エレクトロルミネセンス化合物を使用したOLED素子の製造

OLED素子を、ホール輸送層として化合物C-22を使用することを除いて、素子実施例1と同じ方法で製造した。

【0090】

製造したOLED素子は、3000cd/m²の輝度および41.1mA/cm²の電流密度を有する青色の発光を示した。

【0091】

素子実施例6：本発明に係る有機エレクトロルミネセンス化合物を使用したOLED素子の製造

OLED素子を、ホール輸送層として化合物C-26を使用することを除いて、素子実施例1と同じ方法で製造した。

【0092】

製造したOLED素子は、2000cd/m²の輝度および3.7mA/cm²の電流密度を有する緑色の発光を示した。

【0093】

素子実施例7：本発明に係る有機エレクトロルミネセンス化合物を使用したOLED素子の製造

OLED素子を、ホール輸送層として化合物C-24を使用することを除いて、素子実施例1と同じ方法で製造した。

【0094】

製造したOLED素子は、2000cd/m²の輝度および5.5mA/cm²の電流密度を有する緑色の発光を示した。

【0095】

10

20

30

40

50

素子実施例 8：本発明に係る有機エレクトロルミネセンス化合物を使用したOLED素子の製造

OLED素子を、ホール輸送層として化合物C-13を使用することを除いて、素子実施例1と同じ方法で製造した。

【0096】

製造したOLED素子は、5520cd/m²の輝度および10.5mA/cm²の電流密度を有する緑色の発光を示した。

【0097】

比較例1：従来のエレクトロルミネセンス化合物を使用したOLED素子の製造

OLED素子を、20nmの厚さを有するホール輸送層を、N,N'-ジ(4-ビフェニル)-N,N'-ジ(4-ビフェニル)-4,4'-ジアミノビフェニルを使用することによって蒸着させ、30nmの厚さを有する発光層を、ホストとして4,4'-N,N'-ジカルバゾール-ビフェニルおよびドーパントとしてトリス(2-フェニルピリジン)イリジウム(D-4)を使用することによってホール輸送層上に蒸着させ、10nmの厚さを有するホール遮断層を、ビス(2-メチル-8-キノリナト)(4-フェニルフェノラト)アルミニウム(III)を使用することによって蒸着させたことを除いて、素子実施例1と同じ方法で製造した。

【0098】

製造したOLED素子は、4080cd/m²の輝度および12.0mA/cm²の電流密度を有する緑色の発光を示した。

【0099】

比較例2：従来のエレクトロルミネセンス化合物を使用したOLED素子の製造

OLED素子を、20nmの厚さを有するホール輸送層を、N,N'-ジ(4-ビフェニル)-N,N'-ジ(4-ビフェニル)-4,4'-ジアミノビフェニルを使用することによって蒸着させ、30nmの厚さを有する発光層を、ホストとして9-フェニル-10-(4-フェニルナフタレン-1-イル)アントラセンおよびドーパントとして(E)-9,9-ジメチル-7-(4-(ナフタレン-2-イル)(フェニル)アミノ)スチリル)-N,N-ジフェニル-9H-フルオレン-2-アミンを使用することによってホール輸送層上に蒸着させたことを除いて、素子実施例1と同じ方法で製造した。

【0100】

製造したOLED素子は、1010cd/m²の輝度および16.8mA/cm²の電流密度を有する青色の発光を示した。

【0101】

本発明の有機エレクトロルミネセンス化合物は従来の材料より優れた発光特性を有する。

10

20

30

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/KR2013/002713						
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER <p>C09K 11/06 (2006.01) C07D 403/04 (2006.01) C07D 403/10 (2006.01) C07D 405/10 (2006.01) C07D 405/14 (2006.01) C07D 409/04 (2006.01) C07D 409/10 (2006.01) C07D 409/14 (2006.01) C07D 411/04 (2006.01) C07D 413/04 (2006.01) C07D 413/14 (2006.01) C07D 417/04 (2006.01) C07F 7/10 (2006.01) H01L 27/32 (2006.01) H01L 51/54 (2006.01) H05B 33/14 (2006.01)</p>								
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC								
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)								
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched								
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) STN: Chemical Abstracts Registry and CAplus - structure search based on compounds of Formula (1).								
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT <table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <tr> <td style="width: 15%;">Category*</td> <td style="width: 75%;">Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages</td> <td style="width: 10%;">Relevant to claim No.</td> </tr> <tr> <td></td> <td>Documents are listed in the continuation of Box C</td> <td></td> </tr> </table>			Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.		Documents are listed in the continuation of Box C	
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.						
	Documents are listed in the continuation of Box C							
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex								
<table style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <tr> <td style="width: 15%; vertical-align: top;"> "Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed </td> <td style="width: 15%; vertical-align: top;"> "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 </td> <td style="width: 70%; vertical-align: top;"> </td> </tr> </table>			"Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	"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				
"Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	"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 26 July 2013		Date of mailing of the international search report 26 July 2013						
Name and mailing address of the ISA/AU AUSTRALIAN PATENT OFFICE PO BOX 200, WODEN ACT 2606, AUSTRALIA Email address: pct@ipaustralia.gov.au Facsimile No.: +61 2 6283 7999		Authorised officer Tina Bryant AUSTRALIAN PATENT OFFICE (ISO 9001 Quality Certified Service) Telephone No. 0262837992						

INTERNATIONAL SEARCH REPORT C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		International application No. PCT/KR2013/002713
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2012-028548 A (KONICA MINOLTA HOLDINGS INC.) 09 February 2012 Pages 15, 16, 22, 25, 28, 30, 31, 36 and 41 Compounds 32, 40, 71, 75, 91, 107, 110, 122, 128, 155 and 180, Claims 1, 5-7.	1-8, 10
X	WO 2012/015274 A2 (ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALS KOREA LTD.) 02 February 2012 Page 19 Compounds 60 and 61, Claims 7-10.	1-7, 10
X	WO 2012/014500 A1 (HODOGAYA CHEMICAL CO., LTD) 02 February 2012 Pages 26, 32-36, 39-41, 53, 54, 68-78 Compounds 5, 22-32, 38-41, 43, 70, 71, 80, 91 and 102-123, Claim 12.	1-10
X	WO 2011/149283 A2 (DUK SAN HIGH METAL CO., LTD.) 01 December 2011 Page 10 Compounds 3-34 and 3-35, Claim 4, Abstract.	1, 2, 4, 5, 7, 8, 10
X	WO 2011/136520 A1 (ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALS KOREA LTD.) 03 November 2011 Pages 6-8 Compounds 1-19, Page 8 Paragraph [40], Claims 1, 5-9.	1-10
X	US 2012/0068170 A1 (PFLUMM et al.) 22 March 2012 Page 1 Paragraph [0001], page 42 first-third compounds in second column, page 47 first compound in first column, page 52 last compound in second column, page 53 first and second compounds in first column, page 109 Compound H7, Examples 33, 40 and 42, Claims 17, 21-24, 28 and 29.	1-10
X	WO 2010/114263 A2 (DOW ADVANCED DISPLAY MATERIALS, LTD.) 07 October 2010 Page 17 Compound 199, Claim 3.	1-3, 7, 8, 10
X	US 2008/0124455 A1 (SHIN et al.) 29 May 2008 Page 7 Compound of Formula 16, Claim 14.	1, 2, 4, 5, 7, 8, 10
E	WO 2013/081315 A1 (DUK SAN HIGH METAL CO., LTD.) 06 June 2013 Pages 18-19 Compounds 1-88, 1-99, 1-124 and 1-135, page 73 Compound 2-(9-(4,6-diphenylpyrimidin-2-yl)-9H-carbazol-3-yl)-5-phenyl-1H-benzo[4,5]thieno[3,2-c]carbazole, page 74 Compound 11-(9-(4,6-diphenyl-1,3,5-triazin-2-yl)-9H-carbazol-3-yl)-8-phenyl-8H-benzo[4,5]thieno[2,3-c]carbazole, Claims 5 and 6.	1-8, 10
E	WO 2013/081416 A1 (ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALS KOREA LTD.) 06 June 2013 Pages 8-10 Compounds C-14, C-19, C-36, C-37, C-73, C-89 and C-98, Claims 4 and 5.	1-8, 10
E	WO 2013/073896 A1 (ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALS KOREA LTD.) 23 May 2013 Pages 9-10 Compounds C-10, C-26, C-30, C-39, C-45, C-52 and C-53, Claims 5 and 6.	1-8, 10
E	US 2013/0113367 A1 (JUNG et al.) 09 May 2013 Page 1 Paragraph [0008], Page 21 Compound 67, Claim 18.	1, 2, 4, 5, 7, 10
E	WO 2013/056776 A1 (MERCK PATENT GMBH) 25 April 2013 Page 28 Compounds 125 and 127, page 52 Compounds B17 and B19, page 66 Compound B1C1, Claims 14 and 15.	1, 2, 4-8, 10
	WO 2013/041176 A1 (MERCK PATENT GMBH) 28 March 2013	

INTERNATIONAL SEARCH REPORT C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		International application No. PCT/KR2013/002713
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P,X	Pages 20-25 Compounds 42-49, 51, 53-55, 57-59, 61-65, 68, 73, 75, 83, 86, 101, 110; page 42 Compounds B28 and B29; page 43 Compound B30; page 51 compound B1C, Claims 16-18.	1-8, 10
P,X	WO 2012/136295 A1 (MERCK PATENT GMBH) 11 October 2012 Page 22 Table fifth row 1st and 2nd compounds, page 22 Table sixth row 2nd compound, page 23 Table 3rd row 3rd compound, page 23 Table 4th row 1st and 3rd compounds, page 23 Table sixth row 1st compound, page 42 Compound Cbz2, page 43 Compounds IC4 and Cbz3, Claim 1.	1-10
P,X	KR 10-2012-078301 A (CHEIL INDUSTRIES INC.) 10 July 2012 Pages 12, 13 and 17-19 Compounds B-3, B-4, B-14, B-15, D-1, D-2, D-4 – D-8, E-1 – E-6, Claims 9 and 11.	1-8, 10
P,X	WO 2012/069121 A1 (MERCK PATENT GMBH) 31 May 2012 Pages 18, 20, 49, 50 Compounds 33, 70 and 71, Example 6 Compound 21 and Example 7 Compounds 23 and 24, Claim 14.	1-8, 10
P,X	WO 2012/067425 A1 (ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALSKOREA LTD.) 24 May 2012 Pages 7-18 Compounds 1-111, Claims 5 and 6.	1-8, 10
P,X	US 2012/0097932 A1 (KIM et al.) 26 April 2012 Pages 12, 13, 16-19 Compounds 7, 10, 13, 14, 16, 37, 38, 43, 45, 47, 48 and 54-57, Claims 11-20.	1-8, 10
P,X	WO 2012/050371 A1 (ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALS KOREA LTD.) 19 April 2012 Page 30 last compound in 5th row, page 31 all compound 1st row, page 31 first compound 2nd row, page 31 middle and last compounds 4th row, page 31 all compounds 5th row, page 32 middle and last compounds 2nd row, page 32 all compounds in the 3rd, 4th and 5th row, page 33 all compounds on page, page 34 all compounds in the 1st, 2nd, 3rd and 4th row, page 34 first and middle compounds in 5th row, Claims 8-10.	1-8, 10
Form PCT/ISA/210 (fifth sheet) (July 2009)		

INTERNATIONAL SEARCH REPORT Information on patent family members			International application No. PCT/KR2013/002713
This Annex lists known patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned international search report. The Australian Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.			
Patent Document/s Cited in Search Report		Patent Family Member/s	
Publication Number	Publication Date	Publication Number	Publication Date
JP 2012-028548 A	09 Feb 2012	None	
WO 2012/015274 A2	02 Feb 2012	EP 2599851 A2	05 Jun 2013
		KR 20120012431 A	09 Feb 2012
		TW 201300501 A	01 Jan 2013
		WO 2012015274 A2	02 Feb 2012
WO 2012/014500 A1	02 Feb 2012	EP 2599773 A1	05 Jun 2013
		TW 201226392 A	01 Jul 2012
		US 2013126856 A1	23 May 2013
		WO 2012014500 A1	02 Feb 2012
WO 2011/149283 A2	01 Dec 2011	None	
WO 2011/136520 A1	03 Nov 2011	None	
US 2012/0068170 A1	22 Mar 2012	None	
WO 2010/114263 A2	07 Oct 2010	None	
US 2008/0124455 A1	29 May 2008	None	
WO 2013/081315 A1	06 Jun 2013	None	
WO 2013/081416 A1	06 Jun 2013	None	
WO 2013/073896 A1	23 May 2013	WO 2013073896 A1	23 May 2013
US 2013/0113367 A1	09 May 2013	KR 20130049275 A	14 May 2013
		US 2013113367 A1	09 May 2013
WO 2013/056776 A1	25 Apr 2013	None	
WO 2013/041176 A1	28 Mar 2013	None	
WO 2012/136295 A1	11 Oct 2012	None	
KR 10-2012-078301 A	10 Jul 2012	None	
WO 2012/069121 A1	31 May 2012	None	
WO 2012/067425 A1	24 May 2012	TW 201229202 A	16 Jul 2012

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

INTERNATIONAL SEARCH REPORT Information on patent family members		International application No. PCT/KR2013/002713	
This Annex lists known patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned international search report. The Australian Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.			
Patent Document/s Cited in Search Report		Patent Family Member/s	
Publication Number	Publication Date	Publication Number	Publication Date
US 2012/0097932 A1		WO 2012067425 A1	24 May 2012
WO 2012/050371 A1		US 2012097932 A1	26 Apr 2012
WO 2012/050371 A1		TW 201221619 A	01 Jun 2012
		WO 2012050371 A1	19 Apr 2012
End of Annex			
Due to data integration issues this family listing may not include 10 digit Australian applications filed since May 2001. Form PCT/ISA/210 (Family Annex)(July 2009)			

フロントページの続き

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

(72)発明者 テ - ジナ・リー

大韓民国 ソウル 130-758 トンデムング - ク タブシンニ 2 - ドン 109-903
ドンガ アパートメント

(72)発明者 ジョン - ウン・ヤン

大韓民国 キョンギ - ド 442-782 スウォン - シ パルダル - ク ファソ・2 - ドン 4
03-1203 ジュゴン・アパートメント

(72)発明者 ヒ - チョン・アン

大韓民国 キョンギ - ド 443-400 スウォン - シ ヨントン - ク マンポ - ドン 355
- 1 シンヘウン・ビラ 105

(72)発明者 ヒョ - ジュン・リー

大韓民国 キョンギ - ド 445-853 ファソン - シ ソク - ドン イエダン・マウル 11
7-1301 ウミリン・ジェイル・パンギョンチャ・アパートメント

(72)発明者 ヨン - ジル・キム

大韓民国 キョンギ - ド 440-320 スウォン - シ チャンアン - ク ユルチョン - ドン
ジェイル・オフィステル 304

(72)発明者 ジョン - ソク・ク

大韓民国 キョンギ - ド 443-390 スウォン - シ ヨントン - ク シン - ドン 384-
8 105-401

(72)発明者 ヨン - ジュン・チョ

大韓民国 キョンギ - ド 463-892 ソンナム - シ ブンダン - ク サンピョン - ドン ボ
ットダルマウル・2 - タンジ 204-701 イージー・ザ・ワン・アパートメント

(72)発明者 ヒョク - ジュ・クウォン

大韓民国 ソウル 135-877 カンナム - ク サムソン - ドン ヒルステイト 105-2
003

(72)発明者 キョン - ジュ・リー

大韓民国 ソウル 121-773 マポ - ク トファ - ドン ヒュンダイ・ホームタウン 21
0-1001

(72)発明者 ボン - オク・キム

大韓民国 ソウル 135-877 カンナム - ク サムスン - ドン 50 ヒルステイト 20
8-401

F ターム(参考) 3K107 AA01 CC03 CC04 CC21 DD59 DD68 DD71 DD78

4C050 AA01 AA08 BB04 CC16 DD10 EE01 FF10 GG01 HH04

4C071 AA01 AA08 BB01 BB07 CC01 CC21 DD40 EE13 FF03 GG01

JJ05 LL05

4C204 BB05 CB25 DB01 EB01 FB08 GB03

专利名称(译)	新型有机电致发光化合物和含有它们的有机电致发光器件		
公开(公告)号	JP2015517212A	公开(公告)日	2015-06-18
申请号	JP2015504484	申请日	2013-04-02
[标]申请(专利权)人(译)	罗门哈斯电子材料有限公司		
申请(专利权)人(译)	罗门哈斯电子材料有限公司韩国		
[标]发明人	テジナリー ジョンウンヤン ヒチョンアン ヒョジュンリー ヨンジルキム ジョンソクク ヨンジュンチョ ヒョクジュクウォン キョンジュリー ボンオクキム		
发明人	テ-ジナ-リー ジョン-ウン-ヤン ヒ-チョン-アン ヒョ-ジュン-リー ヨン-ジル-キム ジョン-ソク-ク ヨン-ジュン-チョ ヒョク-ジュ-クウォン キョン-ジュ-リー ボン-オク-キム		
IPC分类号	H01L51/50 C07D209/86 C07D491/048 C07D495/04		
CPC分类号	H01L51/0072 C07D209/94 C07D209/96 C07D405/10 C07D405/14 C07D409/04 C07D409/10 C07D409/14 C07D487/04 C07D491/048 C07D495/04 C07F7/0812 C09B57/00 C09K11/06 H01L51/0071 H01L51/5012		
FI分类号	H05B33/22.D C07D209/86.CSP C07D491/048 C07D495/04.103 H05B33/14.B		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/CC03 3K107/CC04 3K107/CC21 3K107/DD59 3K107/DD68 3K107/DD71 3K107/DD78 4C050/AA01 4C050/AA08 4C050/BB04 4C050/CC16 4C050/DD10 4C050/EE01 4C050/FF10 4C050/GG01 4C050/HH04 4C071/AA01 4C071/AA08 4C071/BB01 4C071/BB07 4C071/CC01 4C071/CC21 4C071/DD40 4C071/EE13 4C071/FF03 4C071/GG01 4C071/JJ05 4C071/LL05 4C204/BB05 4C204/CB25 4C204/DB01 4C204/EB01 4C204/FB08 4C204/GB03		
优先权	1020120034639 2012-04-03 KR		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

本发明涉及新型有机电致发光化合物和包含该化合物的有机电致发光器件。根据本发明的有机电致发光化合物可以用作磷光主体材料，空穴传输材料或混合主体材料；具有良好的空穴传输能力；在器件的制造中防止结晶；形成层。为了提高器件的电流密度，从而降低器件的驱动电压。[选择图]无

