

(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2006-523740

(P2006-523740A)

(43) 公表日 平成18年10月19日(2006.10.19)

(51) Int. Cl.		F I		テーマコード (参考)
<b>CO9K 11/06</b>	<b>(2006.01)</b>	CO9K 11/06	690	3K007
<b>HO1L 51/50</b>	<b>(2006.01)</b>	HO5B 33/14	B	
		CO9K 11/06	660	

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 54 頁)

(21) 出願番号	特願2006-505097 (P2006-505097)	(71) 出願人	504024368
(86) (22) 出願日	平成16年4月13日 (2004.4.13)		メルク・オーエルイーディー・マテリアル ス・ゲーエムペーハー
(85) 翻訳文提出日	平成17年12月19日 (2005.12.19)		ドイツ連邦共和国、65926 フランク フルト・アム・マイン、インダストリーパ ーク・ヘヒスト、ビルディング・エフ・8 21
(86) 国際出願番号	PCT/EP2004/003861	(74) 代理人	100058479
(87) 国際公開番号	W02004/093207		弁理士 鈴江 武彦
(87) 国際公開日	平成16年10月28日 (2004.10.28)	(74) 代理人	100091351
(31) 優先権主張番号	10317556.3		弁理士 河野 哲
(32) 優先日	平成15年4月15日 (2003.4.15)	(74) 代理人	100088683
(33) 優先権主張国	ドイツ (DE)		弁理士 中村 誠
(31) 優先権主張番号	10355358.4	(74) 代理人	100108855
(32) 優先日	平成15年11月25日 (2003.11.25)		弁理士 蔵田 昌俊
(33) 優先権主張国	ドイツ (DE)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 発光可能な、マトリックス材料と有機半導体との混合物、その使用、ならびに前記混合物を含む電子部品

## (57) 【要約】

本発明は少なくとも2種の材料からなる新規の混合物に関し、一方の材料をマトリックス材料として使用し、他方を、発光可能であり、かつ原子番号が20以上の少なくとも1種の元素を含む材料として使用する。また本発明は前記混合物を電界発光素子およびディスプレイのような有機電子部品で使用することにも関する。

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

C = Q の形の構造単位 ( Q は少なくとも 1 つの非結合性電子対を有し、元素 O、S、Se もしくは N を表す ) を含む、少なくとも 1 種のマトリックス材料 A と、

発光可能であり、かつ適切な励起時に発光し、原子番号が 20 以上の少なくとも 1 種の元素を含む化合物である、少なくとも 1 種の発光材料 B とを含む混合物。

## 【請求項 2】

前記マトリックス材料 A がガラス状の層を形成できることを特徴とする請求項 1 記載の混合物。

10

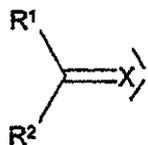
## 【請求項 3】

前記マトリックス材料 A は 70 以上のガラス転移温度  $T_g$  ( 純粋物として測定 ) を持つことを特徴とする請求項 1 または 2 記載の混合物。

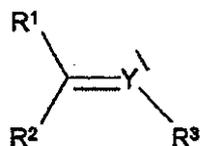
## 【請求項 4】

使用する前記マトリックス材料 A は、化学式 ( 1 )、化学式 ( 2 ) および / または化学式 ( 3 ) の少なくとも 1 種の化合物であることを特徴とする請求項 1 から 3 のいずれか 1 項もしくはそれ以上の項記載の混合物。

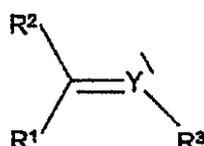
## 【化 1】



化学式 ( 1 )



化学式 ( 2 )



化学式 ( 3 )

20

ここで、記号および添字を以下のように各々定義する：

X は各例で同一または異なるものであり、O、S または Se である；

Y は各例で N である；

$R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$  は各例で同一または異なるものであり、H、CN、または直鎖、分枝鎖、もしくは環式の、アルキル基、アルコキシ基もしくはアルキルアミノ基 ( 1 個から 40 個の炭素原子を有し、1 つまたはそれ以上の非隣接  $CH_2$  基が  $-R^4 C = CR^4 -$ 、 $-C C -$ 、 $C = O$ 、 $C = S$ 、 $C = Se$ 、 $C = NR^4$ 、 $-O -$ 、 $-S -$ 、 $-NR^5$  - または  $-CONR^6$  - で置換されていてもよく、1 個またはそれ以上の水素原子が F、Cl、Br、I で置き換わっていてもよい)、または

30

芳香族系もしくは複素芳香族系 ( 1 個から 40 個の炭素原子を有し、1 個またはそれ以上の水素原子が F、Cl、Br、I で置き換わっていてもよく、1 つまたはそれ以上の非芳香族  $R^1$  基で置換されていてもよく、同一の環もしくは異なる 2 つの環のいずれかにある複数の置換基  $R^1$  および / または  $R^1$ 、 $R^2$  がともに結合し、別の、単環式もしくは多環式の、脂肪族環構造もしくは芳香族環構造をさらに形成してもよい；ただし  $R^1 = R^2 = R^3$  水素) である。；

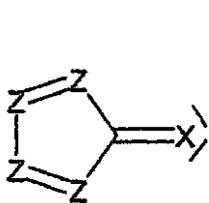
40

$R^4$ 、 $R^5$ 、 $R^6$  は各例で同一または異なるものであり、H、または脂肪族炭化水素基もしくは芳香族炭化水素基 ( 1 個から 20 個の炭素原子を有する ) である。

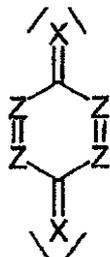
## 【請求項 5】

使用する前記マトリックス材料 A は、化学式 ( 4 ) から ( 9 ) の少なくとも 1 種の化合物であることを特徴とする請求項 1 から 4 のいずれか 1 項もしくはそれ以上の項記載の混合物。

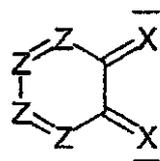
## 【化 2】



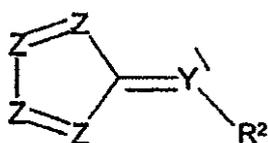
化学式 (4)



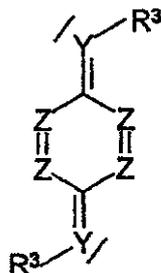
化学式 (6)



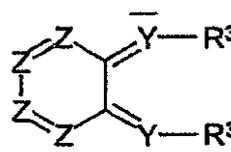
化学式 (8)



化学式 (5)



化学式 (7)



化学式 (8)

10

20

ここで記号 X、Y、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$  および  $R^6$  は請求項 4 のもとで定義したものと各々同様であり、かつ

Z は各例で同一または異なるものであり、C $R^1$  または N である。

## 【請求項 6】

使用する前記マトリックス材料 A は、化学式 (1) から (9) の少なくとも 1 種の化合物であることを特徴とする請求項 4 または請求項 5 記載の混合物。

ここで、使用する記号は：

X は各例で同一または異なるものであり、O または S である、

各例で Y は N である；

各例で Z は C $R^1$  である；

$R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$  は各例で同一または異なるものであり、H、または、直鎖、分枝鎖もしくは環式のアルキル基（1 個から 40 個の炭素原子を有し、ケト官能基もしくはイミン官能基に対して -位には水素原子がなく、1 つまたはそれ以上の非隣接  $CH_2$  基が - $R^4$  C = C $R^4$  -, -C C-, C = O、C = S、C = Se、C = NR $^4$ 、-O-, -S-, -NR $^5$  - または -CONR $^6$  - で置換されているもよく、1 個またはそれ以上の水素原子が F、Cl、Br、I で置換されているもよい）、または

芳香族系もしくは複素芳香族系（1 個から 40 個の炭素原子を有し、1 個またはそれ以上の水素原子が F、Cl、Br、I で置換されているもよく、1 つまたはそれ以上の非芳香族  $R^1$  基で置換されているもよく、同一の環もしくは別々の環のいずれかにある複数の置換基  $R^1$  および / または  $R^1$ 、 $R^2$  がともに結合し、別の、単環式もしくは多環式の、脂肪族環構造もしくは芳香族環構造をさらに形成してもよい）である；

$R^4$ 、 $R^5$ 、 $R^6$  は請求項 4 のもとで説明したものと各々同様である。

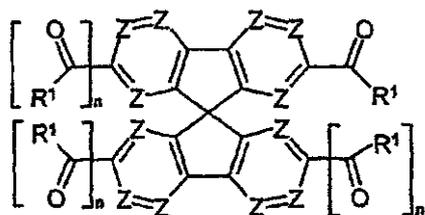
30

40

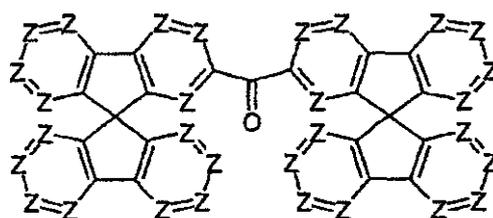
## 【請求項 7】

使用する前記マトリックス材料 A が化学式 (10) から (15) の少なくとも 1 種の化合物を含むことを特徴とする請求項 1 から 3 のいずれか 1 項もしくはそれ以上の項記載の混合物。

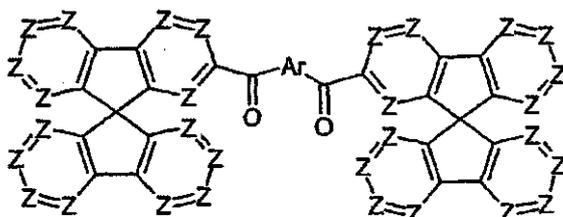
## 【化 3】



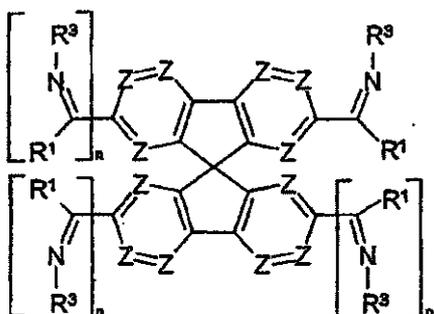
化学式 (10)



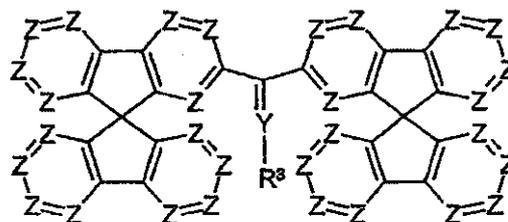
化学式 (11)



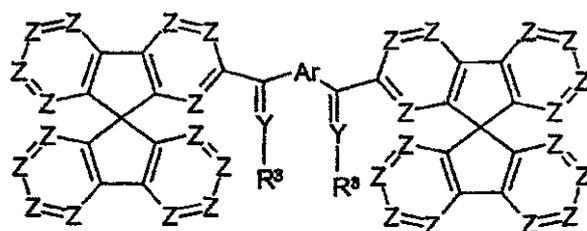
化学式 (12)



化学式 (13)



化学式 (14)



化学式 (15)

ここで Z、Y および R<sup>1</sup> から R<sup>6</sup> は請求項 4 および 5 のもとで定義したものと各々同様であり、かつ他の記号および添字は：

Ar は各例で同一または異なるものであり、芳香族系もしくは複素芳香族系（2 個から 40 個の炭素原子を有し、1 個またはそれ以上の水素原子が F、Cl、Br、I で置換されていてもよく、1 つまたはそれ以上の非芳香族 R<sup>1</sup> 基で置換されていてもよく、同一の環もしくは別々の環のいずれかにある複数の置換基 R<sup>1</sup> がともに結合し、別の、単環式もしくは多環式の、脂肪族環構造もしくは芳香族環構造をさらに形成してもよい）である；

n は各例で同一または異なるものであり、0 または 1 である。

## 【請求項 8】

使用する前記発光体 B は、適切な励起時に発光し、原子番号が 38 以上 84 以下の少な

10

20

30

40

50

くとも1種の原子を含む少なくとも1種の化合物であることを特徴とする請求項1から7のいずれか1項もしくはそれ以上の項記載の混合物。

【請求項9】

使用する前記発光体Bは、適切な励起時に発光し、原子番号が56以上80以下の少なくとも1種の原子を含む少なくとも1種の化合物であることを特徴とする請求項8記載の混合物。

【請求項10】

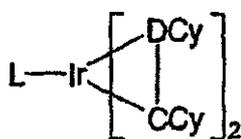
使用する前記発光体Bは、適切な励起時に発光し、モリブデン、タングステン、レニウム、ルテニウム、オスミウム、ロジウム、イリジウム、パラジウム、白金、銀、金またはユーロピウムの群からの少なくとも1種の原子を含む少なくとも1種の化合物であることを特徴とする請求項9記載の混合物。

10

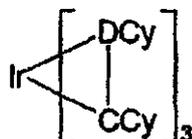
【請求項11】

使用する前記発光体Bは化学式(16)から(19)の少なくとも1種の化合物であることを特徴とする請求項1から10のいずれか1項もしくはそれ以上の項記載の混合物。

【化4】

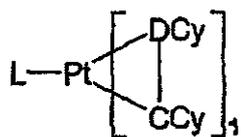


化学式(16)

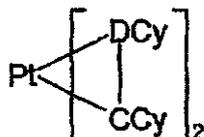


化学式(17)

20



化学式(18)



化学式(19)

30

ここで、使用する記号は：

DCyは各例で同一または異なるものであり、環状基(少なくとも1つのドナー原子[それを介して前記環状基が金属原子と結合する]を含み、さらに1つまたはそれ以上の置換基 $R^9$ を有してもよい；前記DCy基とCCy基は共有結合を介して互いに結合している)である；

CCyは各例で同一または異なるものであり、環状基(炭素原子[それを介して前記環状基が金属と結合している]を含み、さらに1つまたはそれ以上の置換基 $R^9$ を有してもよい)である；

$R^9$ は各例で同一または異なるものであり、H、F、Cl、Br、I、 $NO_2$ 、CN、または直鎖、分枝鎖、もしくは環式の、アルキル基もしくはアルコキシ基(1個から40個の炭素原子を有し、1つまたはそれ以上の非隣接 $CH_2$ 基が $-CR^4 = CR^4 -$ 、 $-C - C -$ 、 $C = O$ 、 $C = S$ 、 $C = Se$ 、 $C = NR^4$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NR^5$ または $-CONR^6$ で置換されていてもよく、1個またはそれ以上の水素原子がFで置き換わっていてもよい)、または芳香族系もしくは複素芳香族系(4個から40個の炭素原子を有し、1つまたはそれ以上の非芳香族 $R^9$ 基で置換されていてもよく；同一の環もしくは異なる2つの環のいずれかにある複数の $R^9$ がともに結合し、別の、単環式もしくは多環式の、脂肪族環構造もしくは芳香族環構造をさらに形成してもよい)である；

40

Lは各例で同一または異なるものであり、二座キレート配位子である；

$R^4$ 、 $R^5$ 、 $R^6$ は各例で同一または異なるものであり、H、または脂肪族もしくは芳香族の炭化水素基(1個から20個の炭素原子を有する)である。

50

## 【請求項 1 2】

前記マトリックス材料は 1 種もしくはそれ以上のポリマーもしくは dendrimer を含むことを特徴とする請求項 1 から 1 1 のいずれか 1 項もしくはそれ以上の項記載の混合物。

## 【請求項 1 3】

前記ポリマーは共役系、半共役系もしくは非共役系であることを特徴とする請求項 1 2 記載の混合物。

## 【請求項 1 4】

前記ポリマーは、ポリフルオレン、ポリ-スピロ-ピフルオレン、ポリ-パラ-フェニレン、ポリカルバゾール、ポリビニルカルバゾール、ポリ-チオフェンの群から、もしくは複数のこれらの単位を有するコポリマーから選択されることを特徴とする請求項 1 2 および / または 1 3 記載の混合物。

10

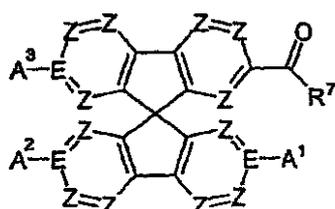
## 【請求項 1 5】

発光体 B とマトリックス材料 A との前記混合物全体に対して、発光体 B を 1 から 9 9 重量 % の間で含むことを特徴とする請求項 1 から 1 4 のいずれか 1 項もしくはそれ以上の項記載の混合物。

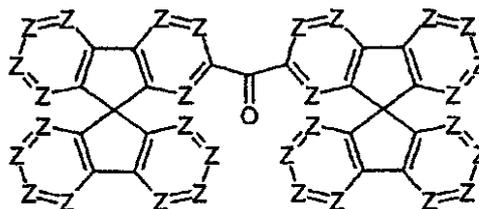
## 【請求項 1 6】

化学式 ( 1 0 a ) から ( 1 5 ) の化合物。

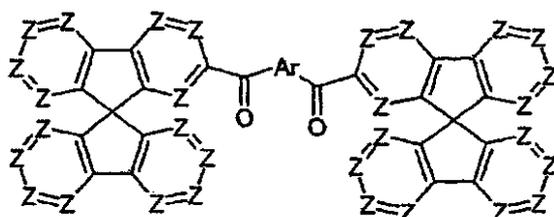
## 【化5】



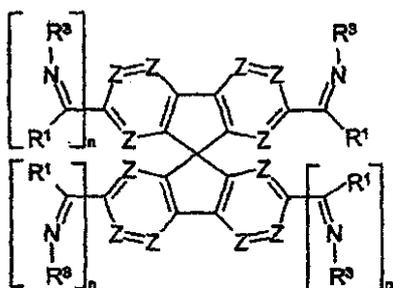
化学式 (10 a)



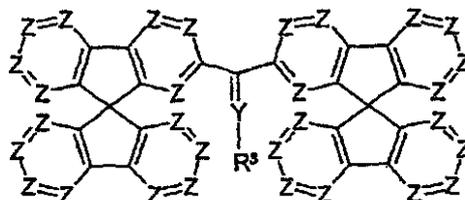
化学式 (11)



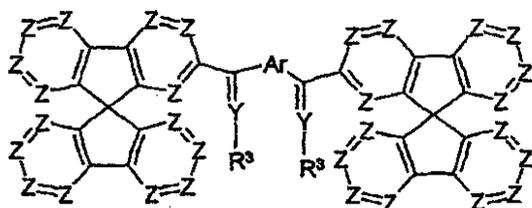
化学式 (12)



化学式 (13)



化学式 (14)



化学式 (15)

ここで記号 Z、Y、Ar および R<sup>1</sup> から R<sup>6</sup> は請求項 4、5 および 7 のもとで定義したものと各々同様であり、かつ使用する他の記号は：

E は各例で同一または異なるものであり、C または N である；

R<sup>7</sup> は各例で同一または異なるものであり、アルキル基、アルコキシ基もしくはアルキルアミノ基（1 個から 40 個の炭素原子を有し、1 つまたはそれ以上の CH<sub>2</sub> 基が -R<sup>4</sup> C = CR<sup>4</sup> -、-C C-、C = O、C = S、C = Se、C = NR<sup>4</sup>、-O-、-S-、-NR<sup>4</sup> - または -CONR<sup>4</sup> - で置換されていてもよく、1 個またはそれ以上の水素原子が F、Cl、Br、I で置換されていてもよく、ただしカルボニル基についての -位に結合している水素原子がない）、または

芳香族基（任意に、ハロゲン、アルキル、トリフルオロメチル、ヒドロキシル、-SH、-S-アルキル、アルコキシ、ニトロ、シアノ、-COOH、-COOアルキル、-NH<sub>2</sub>、-Nアルキル、ベンジルまたはベンゾイルによって任意に置換されていてもよい）、またはより大きな芳香族系（2 個から 40 個の炭素原子を有し、1 個またはそれ以上の水素原子が F、Cl、Br、I で置換されていてもよく、1 つまたはそれ以上の非芳香族 R<sup>1</sup> 基で

10

20

30

40

50

置換されていてもよく、複数の置換基  $R^1$  がともに結合し、別の、単環式もしくは多環式の、脂肪族環構造もしくは芳香族環構造をさらに形成してもよい)である;

各例で  $A^1$  は、 $X = C$  の場合は  $R^8$  もしくは  $CO-R^7$  であり、 $X = N$  の場合は自由電子対である;

各例で  $A^2$  は、 $X = C$  の場合は  $R^8$  もしくは  $CO-R^7$  であり、 $X = N$  の場合は自由電子対である;

各例で  $A^3$  は、 $X = C$  の場合は  $R^8$  もしくは  $CO-R^7$  であり、 $X = N$  の場合は自由電子対である;

$R^8$  は各例で同一または異なるものであり、 $H$ 、 $F$ 、 $Cl$ 、 $Br$ 、 $I$ 、 $CN$ 、 $NO_2$ 、または、直鎖もしくは分枝鎖もしくは環式のアルキル基(1個から40個の炭素原子を有し、1つまたはそれ以上の非隣接  $CH_2$  基が  $-R^4 C = CR^4 -$ 、 $-C \equiv C -$ 、 $C = S$ 、 $C = Se$ 、 $C = NR^4$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NR^4 -$  もしくは  $-CONR^4 -$  で置換されていてもよく、1個またはそれ以上の水素原子が  $F$ 、 $Cl$ 、 $Br$ 、 $I$  で置換されていてもよい)、または芳香族系または複素芳香族系(1個から40個の炭素原子を有し、1個またはそれ以上の水素原子が  $F$ 、 $Cl$ 、 $Br$ 、 $I$  で置換されていてもよく、1つまたはそれ以上の非芳香族  $R^1$  基で置換されていてもよく、同一の環もしくは別々の環のいずれかにある複数の置換基  $R^1$  および/または  $R^1 / R^4$  がともに結合し、別の、単環式もしくは多環式の、脂肪族環構造もしくは芳香族環構造をさらに形成してもよい)である;

ただし化学式(10)については、記載した記号については以下の組合せのみが許容される;

$R_8$  および  $R_4$  は前記定義に従って自由に選択できる;

$R^7$  が  $-$ 水素原子を持たないアルキル基である場合、記号  $Z$ 、 $E$ 、 $A^1$ 、 $A^2$  および  $A^3$  を定義に従い自由に選択できる;

$R^7$  が芳香族基であり、少なくとも1つの  $Z$  が  $N$  である場合、記号  $E$ 、 $A^1$ 、 $A^2$  および  $A^3$  を定義に従い自由に選択できる;

$R^7$  が芳香族基であり、少なくとも1つの  $Z$  が  $CR^1$  基である(ここで  $R^1$  は  $H$  以外である)場合、記号  $E$ 、 $A^1$ 、 $A^2$  および  $A^3$  を定義に従い自由に選択できる;

$R^7$  が芳香族基であり、全ての  $Z$  が  $CH$  であり、かつ少なくとも1つの記号  $E$  が  $N$  である場合、記号  $A^1$ 、 $A^2$  および  $A^3$  を定義に従い自由に選択できる;

$R^7$  が芳香族基であり、全ての  $Z$  が  $CH$  であり、かつ全ての  $E$  が  $C$  である場合、記号  $A^1$ 、 $A^2$  および/または  $A^3$  の少なくとも1つはアルキル基以外の  $R^8$  基でなくてはならず、一方他の2つの基は定義に従い自由に選択できる;

$R^7$  が芳香族基であり、全ての  $Z$  が  $CH$  であり、かつ全ての  $E$  が  $C$  であり、2つの記号  $A^1$  および  $A^2$  を定義に従い自由に選択する(2つの記号の少なくとも1つは  $H$  以外の基である)場合、記号  $A^3$  は  $CO-R^7$  基(ここで  $R^7$  は定義に従い自由に選択できる)である;

$R^7$  がより大きな芳香族系(例えば、フルオレン、スピロビフルオレン、トリアリールアミン等)である場合、記号  $Z$ 、 $E$ 、 $A^1$ 、 $A^2$  および  $A^3$  を定義に従い自由に選択できる。

#### 【請求項17】

請求項1から15のいずれか1項またはそれ以上の項記載の少なくとも1種の混合物および/または請求項16記載の少なくとも1種の化合物を含む電子部品。

#### 【請求項18】

有機発光ダイオード(OLED)、有機集積回路(O-IC)、有機電界効果トランジスタ(O-FET)、有機薄膜トランジスタ(OTFT)、有機太陽電池(O-SC)または有機レーザーダイオード(O-レーザー)であることを特徴とする請求項17記載の電子部品。

#### 【請求項19】

前記電気部品は、少なくとも1層の正孔注入層および/または少なくとも1層の正孔輸送層および/または少なくとも1層の正孔障壁層および/または少なくとも1層の電子輸送層および/または少なくとも1層の電子注入層および/または他の層を有し、かつ発光

10

20

30

40

50

層に請求項 1 から 15 のいずれか 1 項またはそれ以上の項記載の少なくとも 1 種の本発明の混合物を含む有機発光ダイオード (O L E D) であることを特徴とする請求項 17 および / または 18 記載の電気部品。

【請求項 20】

別の正孔障壁層を使用せずに、請求項 1 から 15 のいずれか 1 項またはそれ以上の項記載の混合物が電子輸送層に直接隣接することを特徴とする請求項 19 記載の電子部品。

【請求項 21】

別の正孔障壁層および別の電子輸送層を使用せずに、請求項 1 から 15 のいずれか 1 項またはそれ以上の項記載の混合物が電子輸送層または陰極に直接隣接することを特徴とする請求項 19 記載の電子部品。

10

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、電界発光素子のような有機電子部品における新規の材料ならびに材料混合物に関し、かつそれをベースにしたディスプレイでのそれらの使用に関する。

【背景技術】

【0002】

最も広い意味でエレクトロニクス産業に分類することのできる様々なタイプの一連の用途において、活性成分 (= 機能性材料) としての有機半導体の使用が近年実現しており、もしくは近い将来期待されている。例えば、感光有機材料 (例えば、フタロシアニン) および有機電荷輸送材料 (通常、トリアリールアミン系の正孔輸送体) は、既にここ数年でコピー機において用途がある。可視スペクトル領域での発光が可能な特定の半導体有機化合物の使用は、市場、例えば有機電界発光デバイスにおいてまさに導入され始めている。それらの特有の部品、すなわち有機発光ダイオード (O L E D) は非常に広い範囲の用途を持つ。例えば：

20

1. 単色またはマルチカラーのディスプレイ素子 (例えば、小型電卓、携帯電話ならびに他の携帯用途) の、白色または有彩色のバックライト、
2. 大表面積のディスプレイ (例えば、信号機、掲示板および他の用途)、
3. 全ての色および形態での照明素子、
4. 携帯用途 (例えば、携帯電話、PDA、カムコーダーおよび他の用途) 用の、単色またはフルカラーのパッシブマトリックス型ディスプレイ、
5. 広く多様な用途 (例えば、携帯電話、PDA、ラップトップ、テレビおよび他の用途) 用の、フルカラー、大表面積、高解像度のアクティブマトリックス型ディスプレイが挙げられる。

30

【0003】

これらの用途のいくつかの開発は既に大いに進んでいる ; しかしながら、技術的な改良の必要性が依然として大いに存在する。

【0004】

比較的単純な O L E D を含むデバイスは、有機ディスプレイを有する Pioneer 製のカーラジオ、もしくは Kodak 製のデジタルカメラにより示されるように、既に市場に導入されている。しかし、急を要する改良が必要な、かなりの問題が依然として存在する ;

40

1. 例えば、特に O L E D の作動寿命は依然として低く、それゆえに現在のところ単純な用途の商業的実現のみが可能となっている。

【0005】

2. O L E D の効率は許容範囲内であるものの、特に携帯用途のために、ここでも依然として更なる改良が望まれる。

【0006】

3. O L E D の色度座標、特に赤色は十分であるとはいえない。特に良好な色度座標の高効率との組合せを改良する必要がある。

【0007】

50

4. 通常、エージングプロセスは電圧の上昇を伴う。この影響により電圧駆動の有機電界発光デバイス（例えばディスプレイもしくはディスプレイ素子）は困難または不可能となる。しかし、まさにこの場合に電圧駆動アドレッシングはより複雑で費用が高む。

【0008】

5. 必要な作動電圧は、効率のよい燐光性のOLEDの場合には特にとても高いものであり、それゆえに電力効率を改善するためにさらに低減させる必要がある。これは特に携帯用途にとっては非常に重要なことである。

【0009】

6. 必要な作動電流も同様にここ数年で低減されてきたが、電力効率を改善するために依然としてさらに低減させる必要がある。これは特に携帯用途にとっては特に重要なことである。 10

【0010】

7. 多数の層がOLEDの構成を複雑に、そして技術的に非常に高価なものにする。それゆえに、より少ない層だけを必要とするが、良好な特性、もしくはさらには改良した特性を依然として有する、より単純な層構成を持つOLEDを実現できることが望まれるであろう。

【0011】

上述の1から7に挙げた理由によりOLEDの製造の改良が必要となる。

【0012】

近年浮上したこの方向での進展としては、蛍光の代わりに燐光を呈する有機金属錯体の使用が挙げられる [M.A. Baldo, S. Lamansky, P.E. Burrows, M.E. Thompson, S.R. Forrest, Appl. Phys. Lett. 1999, 75, 4-6]。量子力学的な理由により、有機化合物を使用して、4倍に至る量子効率、エネルギー効率および電力効率が可能である。この新しい進展が確立するか否かは、OLEDにおいてこれらの利点（一重項発光 = 蛍光と比較しての三重項発光 = 燐光）も利用できるという、対応するデバイス構成を見つめられるか否かに強く左右される。ここで実用の際に必須な条件としては特に、携帯用途を可能とするための、高い作動寿命、熱ストレスに対する高い安定性ならびに低い使用電圧および低い作動電圧が挙げられる。 20

【0013】

有機電界発光デバイスの一般的な構造は、例えばUS 4,539,507およびUS 5,151,629、さらにEP 01202358で説明されている。 30

【0014】

典型的に、有機電界発光デバイスは、真空法または様々な印刷法を用いて塗布される多数の層からなる。これらの層は特に：

1. キャリアプレート = 基板（典型的にガラスまたはプラスチックのフィルム）。

【0015】

2. 透明陽極（典型的にインジウム-スズ-オキサイド、ITO）。

【0016】

3. 正孔注入層（Hole Injection Layer = HIL）：例えば、銅-フタロシアニン系（CuPc）、またはポリアニリン（PANI）もしくはポリチオフェン誘導体（PEDOTのような）のような導電性ポリマー系が挙げられる。 40

【0017】

4. 1層またはそれ以上の正孔輸送層（Hole Transport Layer = HTL）：典型的にトリアリールアミン誘導体系である（例えば、第1層として4,4',4''-トリス（N-1-ナフチル-N-フェニルアミノ）トリフェニルアミン（NaphDATA）、および第2正孔輸送層としてN-N'-ジ（ナフサ-1-イル）-N-N'-ジフェニルベンジジン（NPB）が挙げられる）。

【0018】

5. 1層またはそれ以上の発光層（Emission Layer = EML）：この層は層4から8と部分的に一致してもよいが、例えば、蛍光色素（例えば、N,N'-ジフェニルキナクドリン（ 50

Q A ) )、もしくは燐光色素(例えば、トリス(2-フェニルピリジル)イリジウム( $\text{Ir}(\text{PPy})_3$ )またはトリス(2-ベンゾチオフェニルピリジル)イリジウム( $\text{Ir}(\text{BTP})_3$ ))がドーブされた4,4'-ビス(カルバゾール-9-イル)ピフェニル(CBP)のようなマトリックス材料から典型的になる。しかし、発光層は、ポリマー、ポリマーの混合物、ポリマーと低分子量化合物との混合物、または異種の低分子量化合物の混合物からなっているもよい。

【0019】

6. 正孔障壁層(Hole-Blocking Layer = HBL): この層は層7および8と部分的に一致してもよい。典型的にはBCP(2,9-ジメチル-4,7-ジフェニル-1,10-フェナントロリン=バソクプロイン)またはビス(2-メチル-8-キノリノラート)(4-フェニルフェノラート)アルミニウム(III)(BALq)からなる。

【0020】

7. 電子輸送層(Electron Transport Layer = ETL): 通常アルミニウムトリス-8-ヒドロキシキノラート( $\text{AlQ}_3$ )系である。

【0021】

8. 電子注入層(Electron Injection Layer = EIL): この層は層4、5、6および7と部分的に一致してもよく、または陰極のごく一部を特別に処理したもの、もしくは特別に蒸着を施したものである。

【0022】

9. 別の電子注入層(Electron Injection Layer = EIL): 高い誘電率を有する材料(例えば、 $\text{LiF}$ 、 $\text{Li}_2\text{O}$ 、 $\text{BaF}_2$ 、 $\text{MgO}$ 、 $\text{NaF}$ )からなる薄層である。

【0023】

10. 陰極: ここでは、通常、低い仕事関数を有する、金属、金属の組合せもしくは金属合金(例えば、 $\text{Ca}$ 、 $\text{Ba}$ 、 $\text{Cs}$ 、 $\text{Mg}$ 、 $\text{Al}$ 、 $\text{In}$ 、 $\text{Mg/Ag}$ )を使用する。

【0024】

である。

【0025】

このデバイス全体を適切に(用途に応じて)構成し、接続し、かつ最終的には気密封止も行う。これは、このようなデバイスの寿命が水および/または空気の存在下では劇的に短いためである。同じことは、陰極から光が発せられる、逆構造として知られているものにも適用される。これらの反転したOLEDでは、陽極は、5 eV以上のHOMOを有する、例えば $\text{Al/Ni/NiO}_x$ または $\text{Al/Pt/PtO}_x$ 、またはその他の金属/金属酸化物の組合せからなる。陰極は、金属(例えば、 $\text{Ca}$ 、 $\text{Ba}$ 、 $\text{Mg}$ 、 $\text{Al}$ 、 $\text{In}$ など)が非常に薄く、それに伴って透明である点異なるが、項目9および10で説明したものと同様の材料からなる。層厚さは50 nm以下、より良好には30 nm以下、さらに良好には10 nm以下である。他の透明材料(例えば、ITO(インジウム-スズ-オキシド)、IZO(インジウム-亜鉛-オキシド)等)もこの透明陰極に適用できる。

【0026】

上述の構造において、発光層(EML)のマトリックス材料は特別な役割を果たす。マトリックス材料は正孔および/または電子の電荷輸送を可能にするかもしくは改善し、かつ/または電荷キャリア再結合を可能にするかもしくは改善し、かつ、適切な場合には、再結合で発生したエネルギーを発光体に輸送する必要がある。燐光発光体系の電界発光デバイスでは、今まではこの課題をカルバゾール単位を含むマトリックス材料が主に担ってきた。

【0027】

しかし、カルバゾール単位を含むマトリックス材料(例えばしばしば使用される4,4'-ビス(N-カルバゾールイル)ピフェニル(CBP))は実用においていくつかの不都合な点を有する。これらは、とりわけ、これらを用いて製造される素子の短い乃至非常に短い寿命と、低い電力効率をもたらす、しばしば高い作動電圧とに見られる。さらに、エネルギー的な理由で、非常に低い効率をもたらすCBPは青色発光電界発光デバイスには不向

きであることがわかっている。さらに、CBPをマトリックス材料として用いる場合には、正孔障壁層および電子輸送層をさらに使用しなくてはならないために、デバイスの構成は非常に複雑となる。これら追加の層を使用しない場合には、例えばAdachiらが説明しているように(Organic Electronics 2001, 2, 37)、良好な効率が観察されるがきわめて低い輝度においてのみであり、その一方で応用に必要とされるような高い輝度での効率は大きさが一桁以上小さい。従って、高電圧が高輝度達成のために必要とされ、この点で電力効率が非常に低いものとなり、それはパッシブマトリックスの用途に特に不向きなものである。

【発明の開示】

【0028】

驚くべきことに、あるマトリックス材料をある発光体と組合せて使用することにより、特に効率に関して、およびそれと非常に向上した寿命との組合せにおいて、従来技術を上まわる著しい進歩をもたらすことが見出された。さらに、別の正孔障壁層も別の電子輸送および/または電子注入層もどれも使用する必要がないので、OLEDの層構成を著しく単純化することがこれらのマトリックス材料を用いることにより可能となる。これは大きな技術的な利点である。

【0029】

燐光性発光体を含む以下で説明するマトリックス材料をOLEDで使用することは、基礎をなす混合物と同様に新規なものである。発光材料自身として、もしくは蛍光材料と併用する発光層での材料として、同様の材料を単純なデバイスで使用することは、文献(例えば: JP 06192654)において時折参照されて既に記載されている。同様にOLEDでも使用できるスピロピフルオレンのアロイル誘導体の記載(WO 04/013080)があるが、三重項発光、電界燐光発光(electrophosphorescence)またはそれらのためのマトリックス材料に関連するものではない。従って、これを偶然一致した開示と評価することができる。以下に記載するマトリックス材料を燐光性発光体と組合せてOLEDで使用することは新規であるため、以下に記載する本発明の新規性が上記記載によって害されることはない。

【0030】

従って、本発明は、

C = Qの形の構造単位(Qは少なくとも1つの非結合性の電子対を有し、元素O、S、SeまたはNを示す)を含み、さらにガラス状の層を形成する場合がある、少なくとも1種のマトリックス材料Aと、

発光可能であり、かつ適切な励起時に発光し、原子番号が20以上の少なくとも1種の元素を含む化合物である、少なくとも1種の発光材料Bとを含む混合物を提供する。

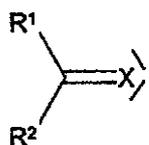
【0031】

本発明の混合物は好ましくは、それに対しての純粋物Aのガラス転移温度T<sub>g</sub>が70以上、好ましくは100以上、より好ましくは130以上である、少なくとも1種のマトリックス材料Aを含むものである。

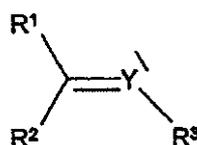
【0032】

上述の混合物に存在するマトリックス材料Aは、化学式(1)、化学式(2)および/または化学式(3)の少なくとも1種の化合物であることが好ましい。

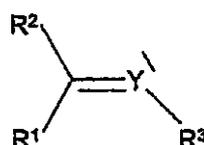
【化6】



化学式(1)



化学式(2)



化学式(3)

【0033】

10

20

30

40

50

ここで、記号および添字を以下のように各々定義する：

Xは各例で同一または異なるものであり、O、SまたはSeである；

Yは各例でNである；

$R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ は各例で同一または異なるものであり、H、CN、または直鎖、分岐鎖、もしくは環式の、アルキル基、アルコキシ基もしくはアルキルアミノ基（1個から40個の炭素原子を有し、1つまたはそれ以上の非隣接 $CH_2$ 基が、 $-R^4C=CR^4-$ 、 $-CC-$ 、 $C=O$ 、 $C=S$ 、 $C=Se$ 、 $C=NR^4$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NR^5-$ または $-CONR^6-$ で置換されていてもよく、1個またはそれ以上の水素原子がF、Cl、Br、Iで置き換わっていてもよい）、または

芳香族系もしくは複素芳香族系（1個から40個の炭素原子を有し、1個またはそれ以上の水素原子がF、Cl、Br、Iで置き換わっていてもよく、1つまたはそれ以上の非芳香族 $R^1$ 基で置換されていてもよく、同一の環もしくは異なる2つの環のいずれかにある複数の置換基 $R^1$ および/または $R^1$ 、 $R^2$ がともに結合し、別の、単環式もしくは多環式の、脂肪族環構造もしくは芳香族環構造をさらに形成してもよい；ただし $R^1 = R^2 = R^3$  水素）である。；

$R^4$ 、 $R^5$ 、 $R^6$ は各例で同一または異なるものであり、H、または脂肪族炭化水素基もしくは芳香族炭化水素基（1個から20個の炭素原子を有する）である。

#### 【0034】

本発明の文脈では、芳香族系または複素芳香族系は、必ずしも芳香族基もしくは複素芳香族基だけしか含まないわけではなく、複数の芳香族基もしくは複素芳香族基が、例えば $sp^3$ -混成のC、O、N等の、短い非芳香族単位（10atom%未満、好ましくは5atom%未満）で中断されている場合もある系を意味すると理解されるであろう。従って、例えば、芳香族系は9,9'-スピロピフルオレン、9,9'-ジアリールフルオレン、トリアリールアミン、ジフェニルエーテル等のような系も意味すると理解されるべきである。

#### 【0035】

たとえこれが上の定義から明白だとしても、 $R^1$ 基もしくは $R^2$ 基が、置換もしくは非置換の、ビニル基もしくは対応する誘導体でもよい、すなわち、化学式(1)の化合物は、 $-$ 不飽和カルボニル化合物でもよく、または化学式(2)もしくは化学式(3)の化合物は、 $-$ 不飽和カルボニルイミンでもよい、ということを再度ここで指摘する。

#### 【0036】

化学式(1)から(3)の特に適切な化合物は、平面構造を持たない化合物であるということがわかっている。C=Qの形の構造単位上で、適切な置換基が全体の構造を二次元から外すことを確実にできる。置換基 $R^1$ 、 $R^2$ および/または $R^3$ の少なくとも1つが、少なくとも1つの $sp^3$ -混成である炭素原子、珪素原子、ゲルマニウム原子および/または窒素原子を含み、それにより略四面体結合配置、もしくは窒素の場合にはピラミッド型の結合配置を有する場合には特にそうである。

#### 【0037】

二次元から著しく外れるためには、少なくとも1つの $sp^3$ -混成原子が、二級原子、三級原子または四級原子である場合が好ましく、より好ましくは三級原子または四級原子であり、炭素原子、珪素原子もしくはゲルマニウム原子である場合には四級原子が最も好ましい。

#### 【0038】

二級原子、三級原子または四級原子は、水素以外の、二つ、三つまたは四つの置換基を有する原子をそれぞれ意味すると理解される。

#### 【0039】

さらに、 $R^1$ 基から $R^3$ 基の少なくとも1つに、9,9'-スピロピフルオレン誘導体（2-位および/または2,7-位および/または2,2'-位および/または2,2',7-位および/または2,2',7,7'-位を介して芳香族に結合していることが好ましい）、9,9'-二置換フルオレン誘導体（2-位および/または2,7-位を介して芳香族に結合してい

ることが好ましい)、6,6-および/または1,2,1,2-二置換型または四置換型インデノフルオレン誘導体、トリプチセン誘導体(9-位および/または10-位を介して芳香族に結合していることが好ましい)、ジヒドロフェナントレン誘導体(2-位および/または2,7-位および/または3-および/または3,6-位を介して芳香族に結合していることが好ましい)、またはヘキサアールベンゼン誘導体(p-位を介して芳香族に結合していることが好ましい)を含む化合物が好ましい。

【0040】

9,9'-スピロピフルオレン誘導体を $R^1$ 基から $R^3$ 基の少なくとも1つを含む化合物が特に好ましい。

【0041】

また、置換もしくは非置換の2-ピフェニル、または置換もしくは非置換の2-ピフェニルエーテルを、 $R^1$ 基から $R^3$ 基の少なくとも1つを含む化合物が好ましい。

【0042】

さらに、 dendroliマー構造を有する化合物が好ましい。また、1,3,5-三置換ベンゼンケトン、および例えば、N. Nakamuraら、J. Amer. Chem. Soc. 1992, 114, 1484、またはK. Matsudaら、J. Amer. Chem. Soc. 1995, 117, 5550に従って得られる、対応するオリゴケトンも好ましい。

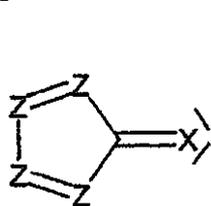
【0043】

誤解を避けるために、構造単位 $C=Q$ を有するマトリックス材料Aは、もちろん、環内で部分的に $C=N$ 二重結合を含む芳香族系(例えばピリミジン、ピラジン等)を意味しないことをここで強調する。

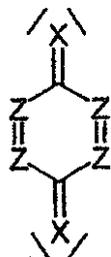
【0044】

同様に、マトリックス材料Aとして、化学式(4)から(9)の少なくとも1種の化合物を含む混合物が好ましい。

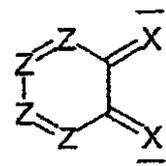
【化7】



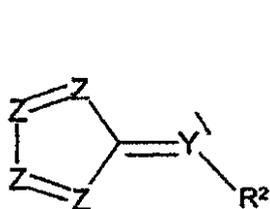
化学式(4)



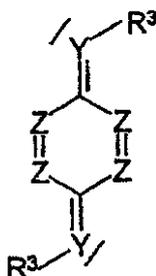
化学式(6)



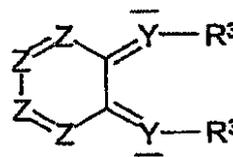
化学式(8)



化学式(5)



化学式(7)



化学式(8)

【0045】

ここで記号X、Y、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ および $R^6$ は化学式(1)から(3)のもとで定義したものと各々同様であり、かつZは各例で同一または異なるものであり、CR<sup>1</sup>またはNである。

【0046】

10

20

30

40

50

化学式(1)から(9)によって以上で説明した、少なくとも1種のマトリックス材料Aを含む有機混合物が特に好ましい。ここで

各例でXはOまたはSである；

各例でYはNである；

各例でZは $CR^1$ である；

$R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ は各例で同一または異なるものであり、H、または、直鎖、分枝鎖もしくは環式のアルキル基(1個から40個の炭素原子を有し、ケト官能基もしくはイミン官能基に対して $\alpha$ -位には水素原子がないことが好ましく、1つまたはそれ以上の非隣接 $CH_2$ 基が $-R^4$ 、 $C=CR^4$ 、 $-C=C-$ 、 $C=O$ 、 $C=S$ 、 $C=Se$ 、 $C=NR^4$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NR^5$ または $-CONR^6$ で置換されていてもよく、1個またはそれ以上の水素原子がF、Cl、Br、Iで置換されていてもよい)、または

芳香族系もしくは複素芳香族系(1個から40個の炭素原子を有し、1個またはそれ以上の水素原子がF、Cl、Br、Iで置換されていてもよく、1つまたはそれ以上の非芳香族 $R^1$ 基で置換されていてもよく、同一の環もしくは別々の環のいずれかにある複数の置換基 $R^1$ および/または $R^1$ 、 $R^2$ がともに結合し、別の、単環式もしくは多環式の、脂肪族環構造もしくは芳香族環構造をさらに形成してもよい)である；

$R^4$ 、 $R^5$ 、 $R^6$ は化学式(1)から(3)のもとで説明したものと各々同様である。

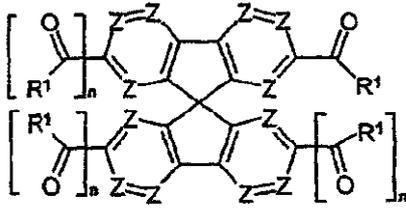
#### 【0047】

同様に、マトリックス材料Aとして、化学式(10)から(15)の少なくとも1種の化合物を含む混合物が好ましい。

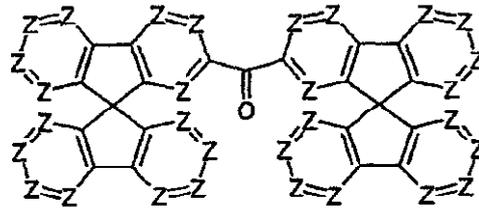
10

20

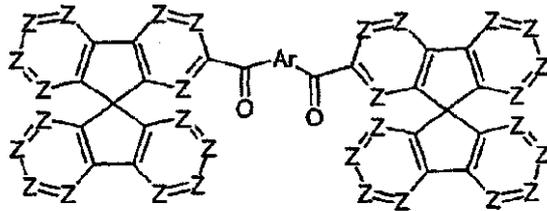
## 【化 8】



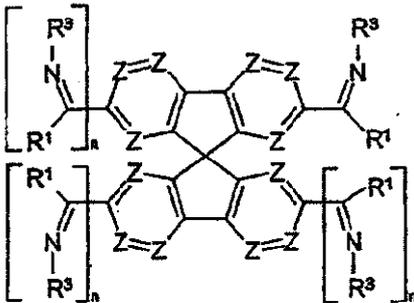
化学式 (10)



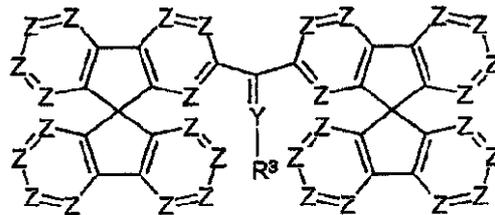
化学式 (11)



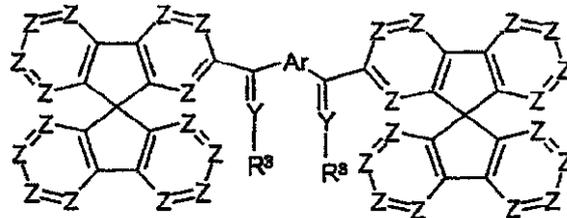
化学式 (12)



化学式 (13)



化学式 (14)



化学式 (15)

## 【0048】

ここでZ、YおよびR<sup>1</sup>からR<sup>6</sup>は化学式(1)から(9)のもとで定義したものと各々同様であり、かつ他の記号および添字は：

Arは各例で同一または異なるものであり、芳香族系もしくは複素芳香族系(2個から40個の炭素原子、好ましくは4個から30個の炭素原子を有し、1個またはそれ以上の酸素原子がF、Cl、Br、Iで置換されていてもよく、1つまたはそれ以上の非芳香族R<sup>1</sup>基で置換されていてもよく、同一の環もしくは別々の環のいずれかにある複数の置換基R<sup>1</sup>がともに結合し、別の、単環式もしくは多環式の、脂肪族環構造もしくは芳香族環構造をさらに形成してもよい)である；

nは各例で同一または異なるものであり、0または1である。

## 【0049】

化学式(10)から(15)のこれらの材料が好ましい理由は特にそれらの高いガラス

10

20

30

40

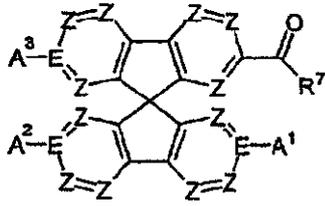
50

転移温度にある。置換パターンに応じて、これらは典型的に70以上、通常100以上である。

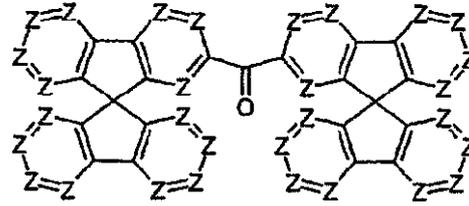
【0050】

本発明は同様に化学式(10a)から(15)の新規の化合物を提供する。

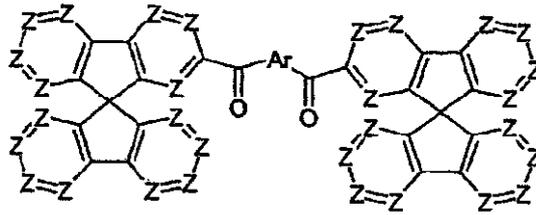
【化9】



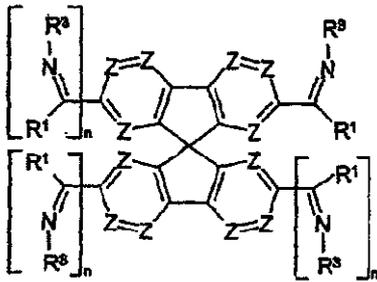
化学式(10a)



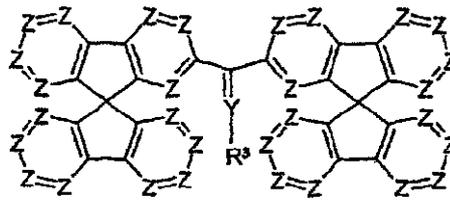
化学式(11)



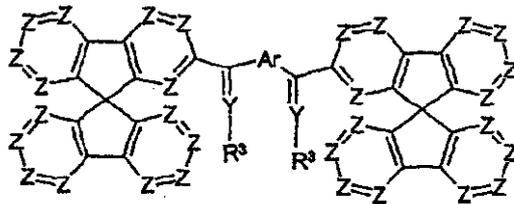
化学式(12)



化学式(13)



化学式(14)



化学式(15)

【0051】

ここで記号Z、Y、ArおよびR<sup>1</sup>からR<sup>6</sup>は上で定義したものと各々同様であり、かつ使用する他の記号は：

Eは各例で同一または異なるものであり、CまたはNである；

R<sup>7</sup>は各例で同一または異なるものであり、アルキル基、アルコシキ基もしくはアルキルアミノ基(1個から40個の炭素原子を有し、1つまたはそれ以上のCH<sub>2</sub>基が、-R<sup>4</sup> C=CR<sup>4</sup> -、-C C-、C=O、C=S、C=Se、C=NR<sup>4</sup>、-O-、-S-、-NR<sup>4</sup> -または-CONR<sup>4</sup> -で置換されていてもよく、1個またはそれ以上の水素原子がF、Cl、Br、Iで置換されていてもよい；ただし、カルボニル基に対して -位に結合している水素原子がない)、または

芳香族基(任意に、ハロゲン、アルキル、トリフルオロメチル、ヒドロキシル、-SH、-

10

20

30

40

50

S-アルキル、アルコキシ、ニトロ、シアノ、-COOH、-COOアルキル、-NH<sub>2</sub>、-Nアルキル、ベンジルまたはベンゾイルによって任意に置換されていてもよい)、またはより大きな芳香族系(2個から40個の炭素原子、好ましくは4個から30個の炭素原子を有し、例えば、9,9'-スピロピフルオレン、フルオレン、トリアリールアミン等であり、1個またはそれ以上の水素原子がF、Cl、Br、Iで置換されていてもよく、1つまたはそれ以上の非芳香族R<sup>1</sup>基で置換されていてもよく、複数の置換基R<sup>1</sup>がともに結合し、別の、単環式もしくは多環式の、脂肪族環構造もしくは芳香族環構造をさらに形成してもよい)である;

各例でA<sup>1</sup>は、X=Cの場合はR<sup>8</sup>もしくはCO-R<sup>7</sup>であり、X=Nの場合は自由電子対である;

10

各例でA<sup>2</sup>は、X=Cの場合はR<sup>8</sup>もしくはCO-R<sup>7</sup>であり、X=Nの場合は自由電子対である;

各例でA<sup>3</sup>は、X=Cの場合はR<sup>8</sup>もしくはCO-R<sup>7</sup>であり、X=Nの場合は自由電子対である;

R<sup>8</sup>は各例で同一または異なるものであり、H、F、Cl、Br、I、CN、NO<sub>2</sub>、または、直鎖もしくは分枝鎖もしくは環式のアルキル基(1個から40個の炭素原子を有し、1つまたはそれ以上の非隣接CH<sub>2</sub>基が-R<sup>4</sup>C=CR<sup>4</sup>-、-C=C-、C=S、C=Se、C=NR<sup>4</sup>、-O-、-S-、-NR<sup>4</sup>-もしくは-CONR<sup>4</sup>-で置換されていてもよく、1個またはそれ以上の水素原子がF、Cl、Br、Iで置換されていてもよい)、または芳香族系または複素芳香族系(1個から40個の炭素原子を有し、1個またはそれ以上の水素原子がF、Cl、Br、Iで置換されていてもよく、1つまたはそれ以上の非芳香族R<sup>1</sup>基で置換されていてもよく、同一の環もしくは別々の環のいずれかにある複数の置換基R<sup>1</sup>および/またはR<sup>1</sup>/R<sup>4</sup>がともに結合し、別の、単環式もしくは多環式の、脂肪族環構造もしくは芳香族環構造をさらに形成してもよい)である;

20

ただし化学式(10)については、記載した記号配下の組合せのみが許容され; R<sub>8</sub>およびR<sub>4</sub>は前記定義に従って自由に選択できる;

R<sup>7</sup>が-水素原子を持たないアルキル基である場合、記号Z、E、A<sup>1</sup>、A<sup>2</sup>およびA<sup>3</sup>を定義に従い自由に選択できる;

R<sup>7</sup>が芳香族基であり、少なくとも1つのZがNである場合、記号E、A<sup>1</sup>、A<sup>2</sup>およびA<sup>3</sup>を定義に従い自由に選択できる;

30

R<sup>7</sup>が芳香族基であり、少なくとも1つのZがCR<sup>1</sup>基である(ここでR<sup>1</sup>はH以外である)場合、記号E、A<sup>1</sup>、A<sup>2</sup>およびA<sup>3</sup>を定義に従い自由に選択できる;

R<sup>7</sup>が芳香族基であり、全てのZがCHであり、かつ少なくとも1つの記号EがNである場合、記号A<sup>1</sup>、A<sup>2</sup>およびA<sup>3</sup>を定義に従い自由に選択できる;

R<sup>7</sup>が芳香族基であり、全てのZがCHであり、かつ全てのEがCである場合、記号A<sup>1</sup>、A<sup>2</sup>および/またはA<sup>3</sup>の少なくとも1つはアルキル基以外のR<sup>8</sup>基でなくてはならず、一方他の2つの基は定義に従い自由に選択できる;

R<sup>7</sup>が芳香族基であり、全てのZがCHであり、かつ全てのEがCであり、2つの記号A<sup>1</sup>およびA<sup>2</sup>を定義に従い自由に選択する(2つの記号の少なくとも1つはH以外の基である)場合、記号A<sup>3</sup>はCO-R<sup>7</sup>基(ここでR<sup>7</sup>は定義に従い自由に選択できる)である;

40

R<sup>7</sup>がより大きな芳香族系(例えば、フルオレン、スピロピフルオレン、トリアリールアミン等)である場合、記号Z、E、A<sup>1</sup>、A<sup>2</sup>およびA<sup>3</sup>を定義に従い自由に選択できる。

#### 【0052】

明確にするために、化学式(10a)の化合物に対して、記号R<sup>7</sup>、Z、E、A<sup>1</sup>、A<sup>2</sup>およびA<sup>3</sup>の許容される組合せを表1に列挙する。

【表 1】

R <sup>7</sup>	Z	E	A <sup>1</sup>	A <sup>2</sup>	A <sup>3</sup>
α 水素を持たないアルキル基	定義に従うどれか	定義に従うどれか	定義に従うどれか	定義に従うどれか	定義に従うどれか
芳香族基	少なくとも1つの Z = N	定義に従うどれか	定義に従うどれか	定義に従うどれか	定義に従うどれか
芳香族基	少なくとも1つの Z = CR <sup>1</sup> , ここで少なくとも1つの R <sup>1</sup> はHでない	定義に従うどれか	定義に従うどれか	定義に従うどれか	定義に従うどれか
芳香族基	全ての Z = CH	少なくとも1つの E = N	定義に従うどれか	定義に従うどれか	定義に従うどれか
芳香族基	全ての Z = CH	全ての E = C	R <sup>9</sup> がアルキル基ではない	定義に従うどれか	定義に従うどれか
芳香族基	全ての Z = CH	全ての E = C	定義に従うどれか	R <sup>9</sup> がアルキル基ではない	定義に従うどれか
芳香族基	全ての Z = CH	全ての E = C	定義に従うどれか	定義に従うどれか	定義に従うどれか
芳香族基	全ての Z = CH	全ての E = C	Hではない定義に従うどれか	定義に従うどれか	CO-R <sup>7</sup> (R <sup>7</sup> は定義に従う)
芳香族基	全ての Z = CH	全ての E = C	定義に従うどれか	Hではない定義に従うどれか	CO-R <sup>7</sup> (R <sup>7</sup> は定義に従う)
より大きな芳香族系 (例えば、フルオレン、スピロピフルオレン、スピロピフルオレン...)	定義に従うどれか	定義に従うどれか	定義に従うどれか	定義に従うどれか	定義に従うどれか

表 1 : 化学式 (10a) の化合物についての、記号 R<sup>7</sup>, Z, E, A<sup>1</sup>, A<sup>2</sup> および A<sup>3</sup> の可能な組合せ

10

20

30

40

## 【0053】

少なくとも1つの R<sup>7</sup> 基がより大きな芳香族系 (例えば、フルオレン、スピロピフルオレン、アリアルアミン等) である化合物が好ましい。

50

## 【0054】

さらに、少なくとも1つのR<sup>7</sup>基が上で定義した -水素原子を有さないアルキル基である化合物が好ましい。

## 【0055】

さらに、記号A、Bおよび/またはDの少なくとも1つが芳香族系または複素芳香族系である化合物が好ましい。

## 【0056】

さらに、1つ以上のスピロビフルオレン単位を含む化合物が好ましい。

## 【0057】

さらに、記号ZまたはEの少なくとも1つがNである化合物が好ましい。

10

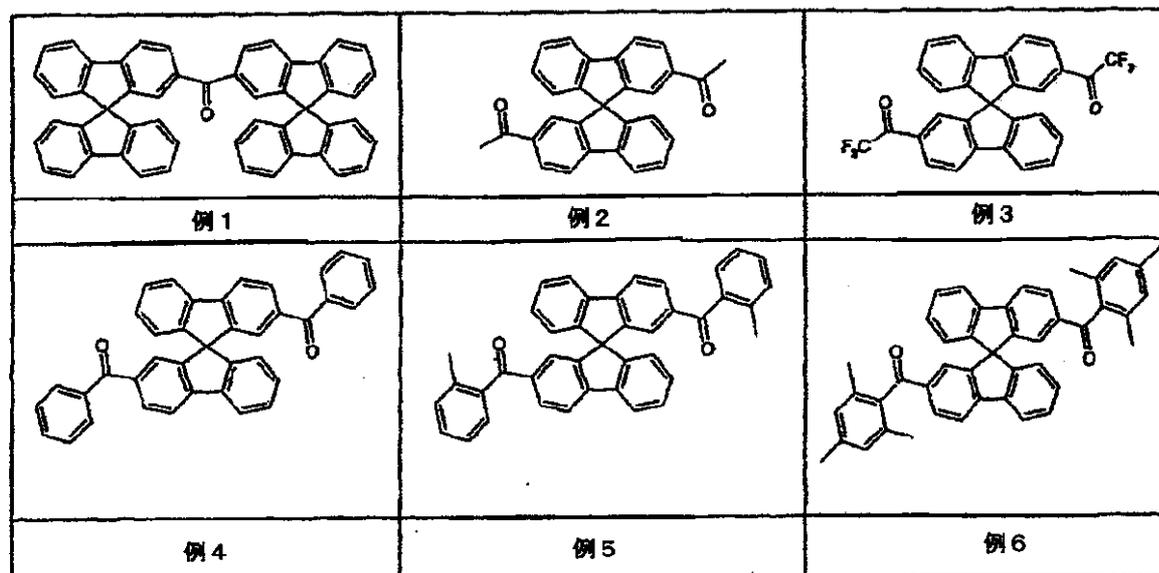
## 【0058】

さらに、1つ以上のケト官能基を含む化合物(すなわち、ジケトンまたはオリゴケトン)が好ましい。

## 【0059】

本発明を以下のマトリックス材料Aの例により詳細に説明するが、それら限定することは何ら意図しない。当業者は、何ら発明力を用いずとも、説明および提示した例から、他のマトリックス材料を調製でき、かつ本発明の混合物でそれらを使用することができる。

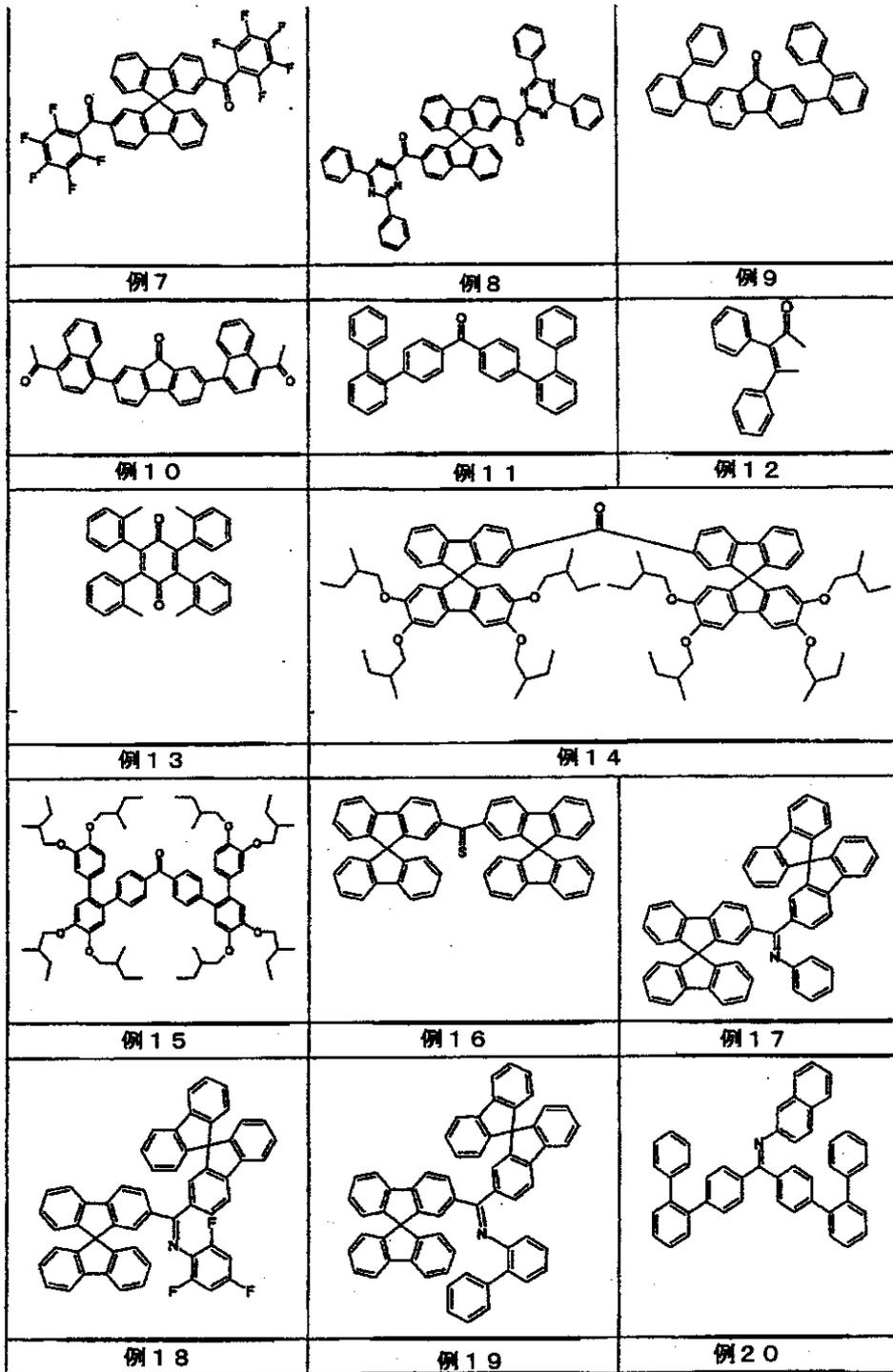
## 【化10】



20

30

【化 1 1】



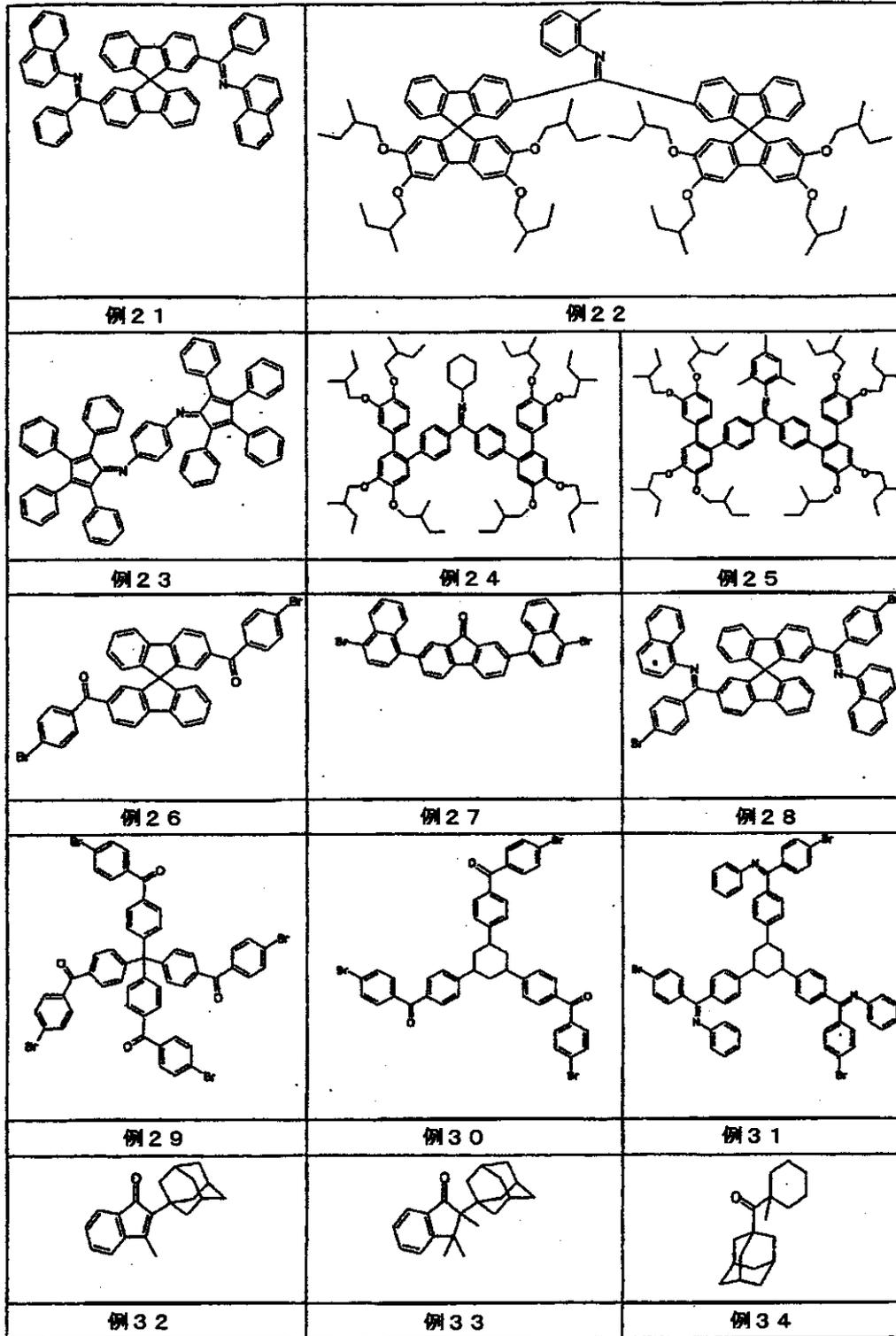
10

20

30

40

【化 1 2】



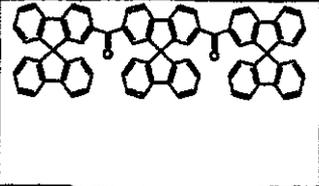
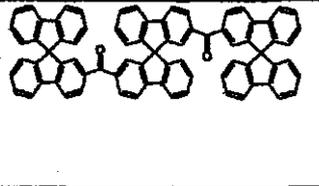
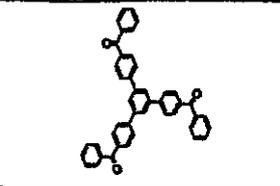
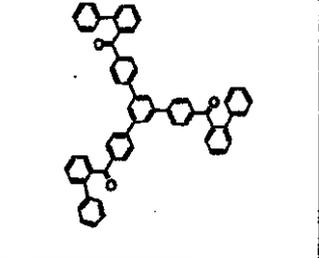
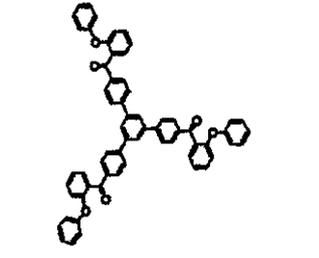
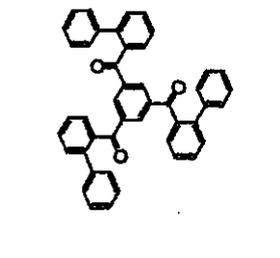
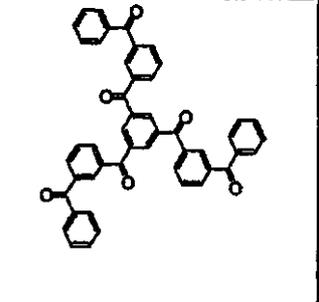
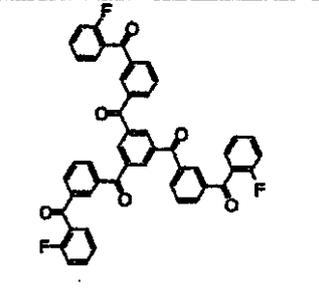
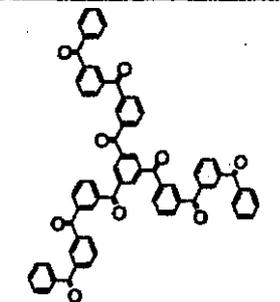
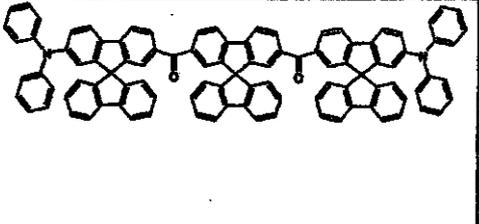
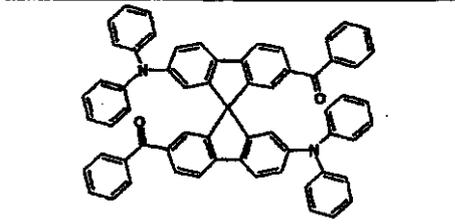
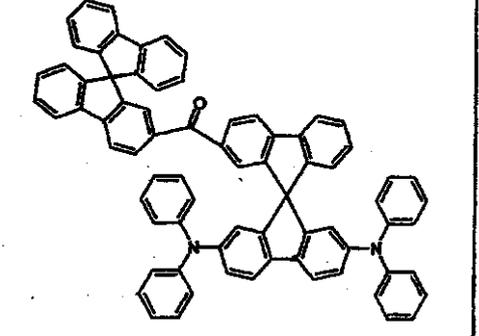
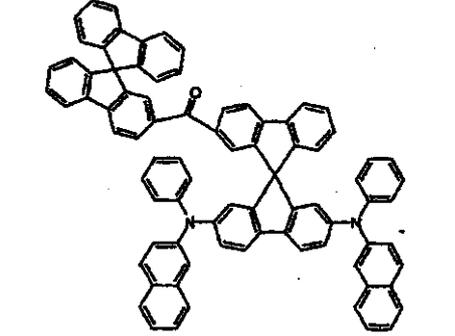
10

20

30

40

【化 1 3】

		
例 35	例 36	例 37
		
例 38	例 39	例 40
		
例 41	例 42	例 43
		
例 44	例 45	
		
例 46	例 47	

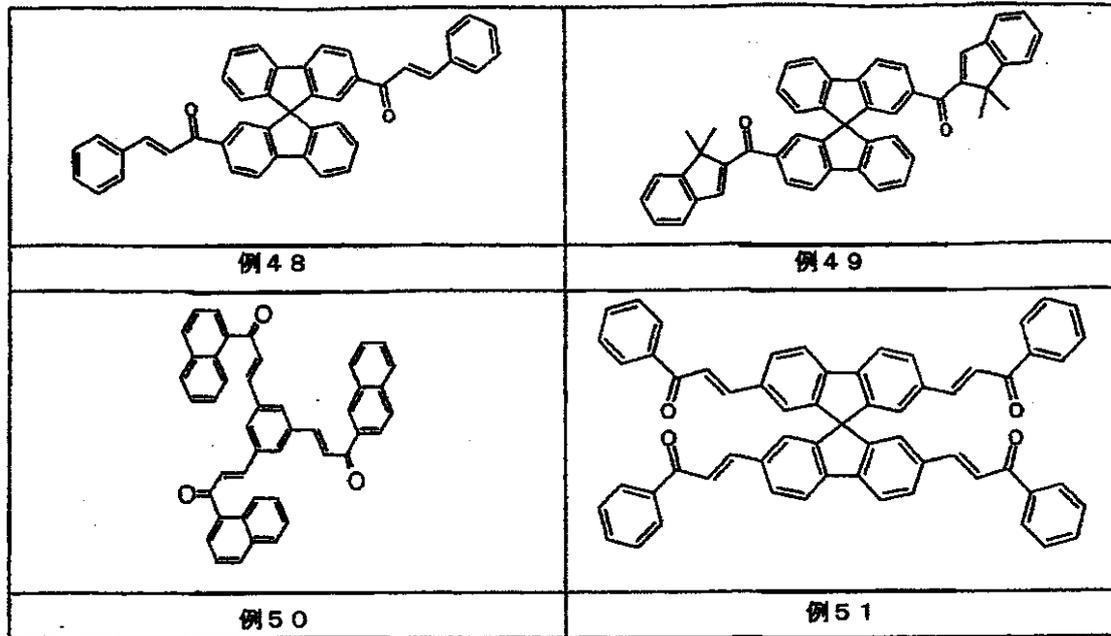
10

20

30

40

## 【化 1 4】



10

20

## 【 0 0 6 0】

上記のマトリックス材料 A は、例えば例 2 6、例 2 7 および例 2 8 記載のものは例えば対応する共役系ポリマー、半共役系 (semiconjugated) ポリマーもしくは非共役系ポリマーを得るためのモノマーとして、および例えば例 2 9、例 3 0 および例 3 1 記載の dendrimer の核としても用途があるであろう。対応する重合をハロゲン官能基を介して行うことが好ましい。

## 【 0 0 6 1】

例えば、これらを重合して、とりわけ、溶解性のポリフルオレン (例えば EP 842208 もしくは WO 00/22026 記載)、ポリスピロピフルオレン (例えば EP 707020 もしくは EP 894107 記載)、ポリ-パラ-フェニレン (例えば WO 92/18552 記載)、ポリカルバゾ-ルもしくはポリチオフェン (例えば EP 1028136 記載) にすることができる。

30

## 【 0 0 6 2】

化学式 (1) ないし (15) の 1 つまたはそれ以上の構造単位を含む、上記の共役系、半共役系もしくは非共役系の、ポリマーもしくは dendrimer を、有機電界発光デバイスのマトリックス材料として使用してもよい。

## 【 0 0 6 3】

さらに、本発明のマトリックス材料 A を、例えば上述の反応型によってさらに官能基付与してもよく、それにより拡大したマトリックス材料 A に変換してもよい。ここで、例は Suzuki によるアリールポロニック酸、または HARTWIG-BUCHWALD によるアミンを用いる官能基付与を含む。

40

## 【 0 0 6 4】

機能性材料としての用途を見出すために、本発明のマトリックス材料 A、またはマトリックス材料 A を含むそれらの混合物もしくはポリマーもしくは dendrimer を、適切であれば発光体 B と共に、当業者に周知である一般的に知られている方法、例えば真空蒸着、もしくはキャリアガス流での蒸着、もしくはスピンコートによって溶液から、または様々な印刷操作 (例えば、インクジェット印刷、オフセット印刷、L I T I 印刷等) によってフィルム の形で基板に塗布する。

## 【 0 0 6 5】

印刷操作の使用は、製造の拡張性に関する効果、ならびに使用するブレンド層での混合比の調節に関する効果を有することができる。

50

## 【0066】

上記のマトリックス材料は燐光性発光体と組合せて用いられる。これらの混合物は、発光体Bとして、少なくとも1種の化合物(適切な励起時に発光し、また原子番号が20以上、好ましくは38以上84以下、より好ましくは56以上80以下の少なくとも1つの原子を含むことを特徴とする)が存在することを特徴とする。

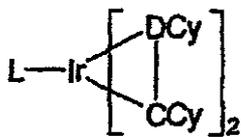
## 【0067】

上記混合物で使用する燐光性発光体は、モリブデン、タングステン、レニウム、ルテニウム、オスミウム、ロジウム、イリジウム、パラジウム、白金、銀、金またはユーロピウムを含む化合物であることが好ましい。

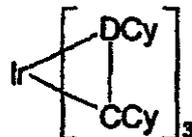
## 【0068】

特に好ましい混合物は、発光体Bとして、化学式(16)から(19)の少なくとも1つの化合物を含む。

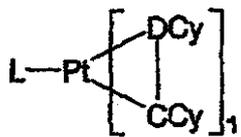
## 【化15】



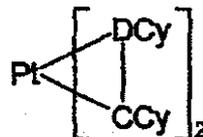
化学式(16)



化学式(17)



化学式(18)



化学式(19)

## 【0069】

ここで、使用する記号は：

DCyは各例で同一または異なるものであり、環状基(少なくとも1つのドナー原子、好ましくは窒素または磷[それを介して環状基が金属原子と結合する]を含み、さらに1つまたはそれ以上の置換基R<sup>9</sup>を有してもよい；DCy基とCCy基は共有結合を介して互いに結合している)である；

CCyは各例で同一または異なるものであり、環状基(炭素原子[それを介して環状基が金属と結合する]を含み、1つまたはそれ以上の置換基R<sup>9</sup>をさらに有してもよい)である；

R<sup>9</sup>は各例で同一または異なるものであり、H、F、Cl、Br、I、NO<sub>2</sub>、CN、または直鎖、分枝鎖、もしくは環式の、アルキル基もしくはアルコキシ基(1個から40個の炭素原子を有し、1つまたはそれ以上の非隣接CH<sub>2</sub>基が-CR<sup>4</sup>=CR<sup>4</sup>-、-C-C-、C=O、C=S、C=Se、C=NR<sup>4</sup>、-O-、-S-、-NR<sup>5</sup>-または-CONR<sup>6</sup>-で置換されていてもよく、1個またはそれ以上の水素原子がFで置き換わっていてもよい)、または芳香族系もしくは複素芳香族系(4個から40個の炭素原子を有し、1つまたはそれ以上の非芳香族R<sup>9</sup>基で置換されていてもよく、同一の環もしくは異なる2つの環のいずれかにある複数のR<sup>9</sup>がともに結合し、別の、単環式もしくは多環式の、脂肪族環構造もしくは芳香族環構造をさらに形成してもよい)である；

Lは各例で同一または異なるものであり、二座キレート配位子、好ましくはジケトナート配位子である；

R<sup>4</sup>、R<sup>5</sup>、R<sup>6</sup>は各例で同一または異なるものであり、H、または脂肪族もしくは芳香

10

20

30

40

50

族の炭化水素基（１個から２０個の炭素原子を有する）である。

【００７０】

上記の発光体の例を、例えば、特許出願WO 00/70655、WO 01/41512、WO 02/02714、WO 02/15645、EP 1191613、EP 1191612、EP 1191614、WO 03/099959、WO 03/084972、WO 03/040160、WO 02/081488、WO 02/068435およびDE 10238903.9から選択することができる；よって、これらを引例による応用の一部とみなす。

【００７１】

本発明の混合物は、発光体Bとマトリックス材料Aとの混合物全体に対して、発光体Bを１から９９重量%の間、好ましくは３から９５重量%の間、より好ましくは５から５０重量%の間、特に７から２０重量%の間で含む。

10

【００７２】

本発明はさらに、マトリックス材料Aと発光材料Bとの本発明の混合物を含む電子部品、特に有機電界発光デバイス（OLED）、有機太陽電池（OSC）、有機電界効果トランジスタ（OFET）または有機レーザーダイオード（O-レーザー）を提供する。少なくとも１種のマトリックス材料Aと少なくとも１種の発光可能な発光材料Bとの本発明の混合物を含む発光層（EML）を有する有機電界発光デバイスが特に好ましい。

【００７３】

発光層（EML）に少なくとも１種の本発明の混合物を含み、マトリックス材料Aの純粋物のガラス転移温度Tgが70以上である有機電界発光デバイスが特に好ましい。

【００７４】

陰極、陽極および発光層以外に、この有機電界発光デバイスは他の層（例えば、正孔注入層、正孔輸送層、正孔障壁層、電子輸送層および/または電子注入層）を含んでもよい。しかし、これらの層の各々が必ずしも存在する必要があるわけではないということがここで指摘されるべきである。

20

【００７５】

例えば、別の正孔障壁層も別の電子輸送層も含まないOLEDは電界発光において非常に良好な結果、特に同様に著しく低い電圧、および高電力効率をもたらす。カルバゾール含有マトリックス材料を有するが、正孔障壁層および電子輸送層は有さない対応するOLEDは、特に高輝度では非常に低い電力効率を示すため、これは特に驚くべきことである（Adachiら、Organic Electronics 2001, 2, 37を参照のこと）。従って、本発明は、正孔障壁層を使用せずに電子輸送層に直接隣接する、または正孔障壁層および電子輸送層を使用せずに電子注入層もしくは陰極に直接隣接する本発明の混合物を含む有機電界発光デバイスをさらに提供する。

30

【００７６】

別の正孔注入層を何ら含むことなく、陽極の直上の１層またはそれ以上の正孔輸送層（トリアリールアミン層）を含むOLEDも電界発光において非常に良好な結果を同様に示すことも見出された。従って、この構成も本発明の主題の一部を形成する。

【００７７】

本発明の有機電界発光デバイスは、マトリックス材料としてCBPを含む従来技術のOLEDよりも、より高い効率、著しく長い寿命を示し、かつ、特に正孔障壁層も電子輸送層も使用しなくとも、著しく低い作動電圧およびより高い電力効率を示す。正孔障壁および電子輸送層を省略することはOLEDの構造をさらに著しく簡略化し、かなりの技術的効果を構成する。

40

【００７８】

マトリックス材料Aと発光材料Bとの本発明の混合物の好ましい実施形態を本発明の電子部品、特に有機電界発光デバイス（OLED）、有機太陽電池（OSC）、有機電界効果トランジスタ（OFET）または有機レーザーダイオード（O-レーザー）にも適用する。不必要な繰り返しを避けるために、その他の列挙は省略する。

【００７９】

本願の本文および以下の実施例では、目的は単に有機発光ダイオード、およびそれに対

50

応するディスプレイだけである。記載の制限に関わらず、当業者は何ら別段の発明力を駆使せずとも、対応する本発明の層を本発明の混合物から製造し、かつOLED類似または関連する用途に使用することができる。

## 【0080】

## 実施例

## 1. マトリックス材料Aの合成:

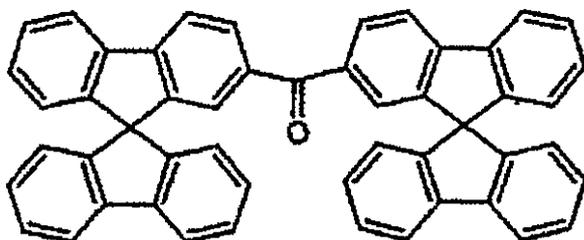
以下の合成は、別段に述べた場合を除き、保護ガス雰囲気下、乾燥溶媒中で行った。反応物[シアン化銅(I)、塩化アセチル、N-メチルピロリジノン(NMP)]をALDRICHから購入した。2-ブロモ-9,9'-スピロピフルオレン、2,7-ジブロモ-9,9'-スピロピフルオレン(J. Peiら、J. Org. Chem. 2002, 67(14), 4924-4936)および9,9'-スピロピフルオレン-2,2'-ジカルボニル塩化物(V.A. Monteroら、Tetrahedron Lett. 1991, 32(39), 5309-5312)を文献の方法で調製した。

10

## 【0081】

## 実施例1:ビス(9,9'-スピロピフルオレン-2-イル)ケトン

## 【化16】



20

## 【0082】

## A: 2-シアノ-9,9'-スピロピフルオレン

2-ブロモ-9,9'-スピロピフルオレン 158.1 g (0.4 mol) とシアン化銅(I) 89.6 g (1 mol) との NMP 1100 ml 懸濁液を 160 °C まで 16 時間加熱した。30 °C まで冷却した後、その混合物を飽和アンモニア溶液 1000 ml と混合させ、さらに 30 分攪拌した。析出物を吸引濾過により分離し、飽和アンモニア溶液 300 ml で 3 回、水 300 ml で 3 回洗浄し、減圧乾燥した。固体をジクロロメタン 1000 ml に溶かした後、溶液を硫酸ナトリウムで乾燥し、シリカゲルを通して濾過し、乾ききるまで濃縮した。このようにして得られた粗生成物をジオキサン:エタノール(400 ml : 750 ml) から一度再結晶した。減圧下 80 °C で結晶を乾燥させた後、81.0 g (237 mmol)、理論値の 59.3% に相当、を得た。

30

## 【0083】

$^1\text{H NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ): [ppm] = 7.92-7.85 (m, 4 H), 7.66-7.65 (m, 1 H), 7.44-7.39 (m, 3 H), 7.22-7.19 (m, 1 H), 7.15-7.11 (m, 2 H), 6.99-6.98 (M, 1 H), 6.79-6.78 (m, 1 H), 6.69-6.67 (m, 2 H)。

## 【0084】

## B: ビス(9,9'-スピロピフルオレン-2-イル)ケトン

2-ブロモ-9,9'-スピロピフルオレン 98.8 g (250 mmol) と 1,2-ジクロロエタン 6 ml との THF 1000 ml 溶液と、マグネシウム 7.1 g (290 mmol) から、沸騰した状態に対応する Grignard 試薬を調製した。THF 300 ml とトルエン 1000 ml との混合物中の 2-シアノ-9,9'-スピロピフルオレン 85.4 g (250 mmol) の溶液を 0 - 5 °C でこの Grignard 試薬に 15 分以上かけて滴下した。次に、混合物を還流しながら 6 時間加熱した。冷却後、10 N の HCl 35 ml と水 400 ml とエタノール 600 ml との混合物をゆっくりと滴下した。室温で 16 時間攪拌した後、固体を吸引濾過により分離し、エタノール 200 ml で 3 回洗浄した。固体を NMP (5 ml / g) から 4 回再結晶し、続いて高真空下で昇華させた ( $T = 385$  °C、 $p = 5 \times 10^{-5}$  mbar)。HPLC による 99.9% 以上の純度での収量は 52.1 g (79 mmol) である。

40

50

であった。これは理論値の 31.6% に相当する。

【0085】

$T_g = 165$ 、 $T_m = 385$ 。

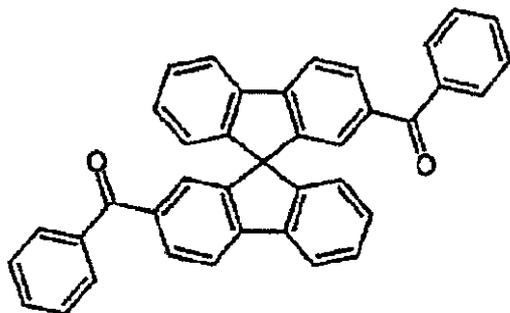
【0086】

$^1\text{H NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ): [ppm] = 7.87-7.85 (m, 2H), 7.83-7.81 (m, 4H), 7.78-7.86 (m, 2H), 7.60-7.58 (m, 2H), 7.39-7.34 (m, 6H), 7.18-7.17 (m, 2H), 7.16-7.13 (m, 2H), 7.10-7.07 (m, 4H), 6.34-6.32 (m, 2H), 6.70-6.69 (m, 4H)。

【0087】

実施例 2 : 2,2'-ビス(ベンゾイル)スピロ-9,9'-ビフルオレン

【化17】



10

20

【0088】

無水塩化アルミニウム 160.0 g (1.2 mol) の 1,2-ジクロロエタン 600 ml 懸濁液を十分に攪拌しながら滴下することにより塩化ベンゾイル 132 ml (1.1 mol) と混合させた。スピロ-9,9'-ビフルオレン 158.2 g (0.5 mol) の 1,2-ジクロロエタン 600 ml 溶液をこの混合物に温度が 25 を超えないような速度で滴下した。全て添加した後、混合物を室温でさらに 1 時間加熱した。続いて、この反応混合物を、能率よく攪拌した氷 1000 g と 2 N 塩酸 260 ml との混合物に注いだ。有機相を取り出し、水 500 ml で 2 回洗浄した。有機相を体積が約 200 ml になるまで濃縮し、エタノール 500 ml を添加した後、形成した細かい結晶性の析出物を吸引濾過により分離し、エタノールで洗浄した。固体をトルエンから繰り返し再結晶し、続いて高真空下で昇華させた ( $T = 290$ 、 $p = 5 \times 10^{-5}$  mbar)。HPLC による 99.9 以上の HPLC 純度での収量は 191.5 g (365 mmol) であった。これは理論値の 73.0% に相当する。

30

【0089】

$T_g = 99$ 、 $T_m = 281$ 。

【0090】

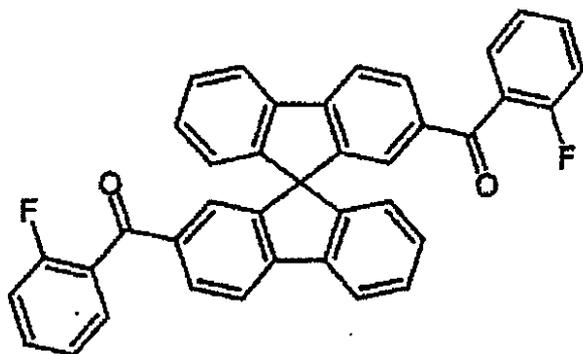
$^1\text{H NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ): [ppm] = 7.90 (m, 4H), 7.78 (m, 2H), 7.67 (m, 4H), 7.51 (m, 2H), 7.43-7.37 (m, 6H), 7.31 (m, 2H), 7.20 (m, 2H), 6.78 (m, 2H)。

【0091】

実施例 3 : 2,2'-ビス(2-フルオロベンゾイル)スピロ-9,9'-ビフルオレン

40

## 【化 1 8】



10

## 【0092】

実施例 2 と同様の手順。2-フルオロベンゾイル塩化物 174.4 g (1.1 mol) を使用。固体をブタノンおよびトルエンから繰り返し再結晶し、高真空下で昇華させた ( $T = 250$ 、 $p = 5 \times 10^{-5}$  mbar)。HPLC による 99.9 以上の純度での収量は 192.8 g (344 mmol) であった。これは理論値の 68.8% に相当する。

## 【0093】

$T_g = 96$ 、 $T_m = 228$ 。

## 【0094】

$^1\text{H NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ): [ppm] = 7.90 (m, 4H), 7.77 (m, 2H), 7.48-7.40 (m, 6H), 7.37 (m, 2H), 7.21-7.18 (m, 4H), 7.09 (m, 2H), 6.77 (M, 2H)。

20

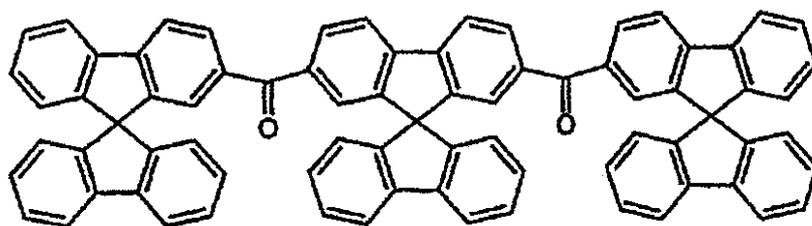
## 【0095】

$^{19}\text{F}$  ( $^1\text{H}$ ) NMR ( $\text{CDCl}_3$ ): [ppm] = -111.7 (s)。

## 【0096】

実施例 4 : 2,7-ビス(2-スピロ-9,9'-ビフルオレニルカルボニル)スピロ-9,9'-ビフルオレン

## 【化 1 9】



30

## 【0097】

実施例 1 B と同様の手順。2,7-ジブロモスピロ-9,9'-ビフルオレン 59.3 g (125 mmol) を使用。 $T = 410$  で昇華。収量 77.1 g (77 mmol)、理論値の 61.6% に相当。

40

## 【0098】

$T_g = 209$ 、 $T_m = 401$ 。

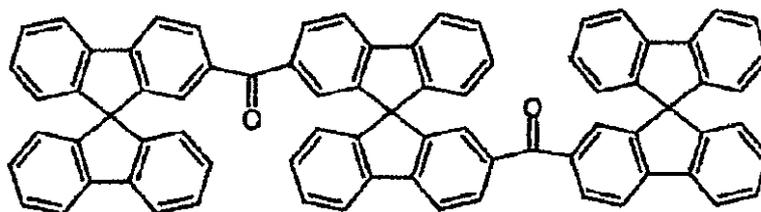
## 【0099】

$^1\text{H NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ): [ppm] = 7.87-7.75 (m, 12H), 7.61-7.56 (m, 4H), 7.40-7.34 (m, 8H), 7.18-7.14 (m, 6H), 7.11-7.07 (m, 6H), 6.74-6.67 (m, 8H)。

## 【0100】

実施例 5 : 2,2'-ビス(2-スピロ-9,9'-ビフルオレニルカルボニル)スピロ-9,9'-ビフルオレン

## 【化 2 0】



## 【0101】

10

A : 9,9'-スピロビフルオレン-2,2'-ジカルボキサミド

アンモニア溶液(エタノール中、2N)220mlを十分に攪拌しながら、ジオキサソラン200mlに溶解した9,9'-スピロビフルオレン-2,2'-ジカルボニル塩化物44.1g(100mmol)に滴下することで混合した。発熱反応が落ち着いた後に、この混合物をさらに2時間攪拌し、析出した固体を濾過によって分離し、水100mlとEtOH100mlとの混合物で一度、エタノール200mlで一度洗浄し、減圧下で乾燥させた。<sup>1</sup>H NMRによる99.0%以上の純度での収量は37.4g(93mmol)であった。これは理論値の93.0%に相当する。

## 【0102】

<sup>1</sup>H NMR (DMSO-d<sub>6</sub>): [ppm] = 8.13-8.10 (m, 4H), 8.01-7.99 (m, 2H), 7.89 (br. s, 2H, NH<sub>2</sub>), 7.47-7.44 (m, 2H), 7.23 (br. s, 2H, NH<sub>2</sub>), 7.22-7.18 (m, 2H), 7.14 (s, 2H), 6.66-6.64 (m, 2H)。 20

## 【0103】

B : 2,2'-ビシアノスピロ-9,9'-ビフルオレン

-10℃まで冷却した、9,9'-スピロビフルオレン-2,2'-ジカルボキサミド36.2g(90mmol)のDMF800ml懸濁液を塩化チオニル52.5ml(720mmol)と温度が-5℃を超えないような速度で滴下することにより混合した。反応混合物を-10℃でさらに3時間攪拌し、その後氷2kgと水500mlとの混合物に注いだ。水解物を毎回ジクロロメタン500ml用いて2回抽出した。混合した有機相を水500mlおよび飽和塩化ナトリウム溶液で洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥させた。有機相の濃縮後に得られた油分は、エタノールを300ml添加した後に白色針状晶で晶析した。<sup>1</sup>H NMRによる99.0%以上の純度での収量は29.4g(80mmol)であった。これは理論値の89.3%に相当する。 30

## 【0104】

<sup>1</sup>H NMR (CDCl<sub>2</sub>CDCl<sub>2</sub>): [ppm] = 7.95 (d, 2H), 7.92 (d, 2H), 7.71 (dd, 2H), 7.47 (ddd, 2H), 7.24 (ddd, 2H), 6.96 (d, 2H), 6.75 (d, 2H)。

## 【0105】

C : 2,2'-ビス(2-スピロ-9,9'-ビフルオレニルカルボニル)スピロ-9,9'-ビフルオレン

実施例1Bと同様の手順。2-ブロモ-9,9'-スピロビフルオレン59.3g(150mmol)および2,2'-ジシアノスピロ-9,9'-ビフルオレン27.5g(75mmol)を使用。T = 440℃で昇華。収量41.2g(41mmol)、理論値の54.8%に相当。 40

## 【0106】

T<sub>g</sub> = 213℃、T<sub>m</sub> = 430℃。

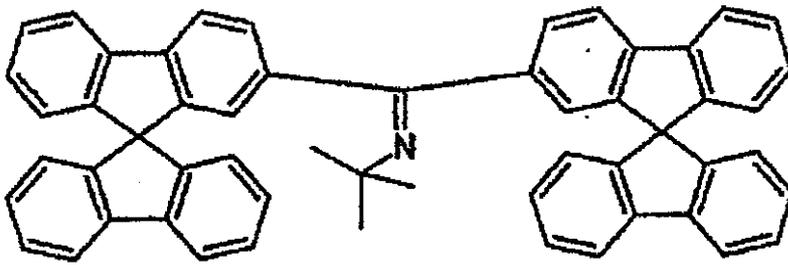
## 【0107】

<sup>1</sup>H NMR (CDCl<sub>3</sub>): [ppm] = 7.89-7.86 (m, 4H), 7.82-7.78 (m, 8H), 7.60 (br. m, 4H), 7.41-7.34 (m, 8H), 7.18-7.14 (m, 8H), 7.12-7.08 (4H), 6.75-6.70 (m, 8H)。

## 【0108】

実施例6 : ビス(9,9'-スピロビフルオレン-2-イル)-N-tert-ブチルイミン 50

## 【化 2 1】



10

## 【0109】

四塩化チタンの2 Mトルエン溶液200 ml (200 mmol)を、0℃まで冷却した、ビス(9,9'-スピロビフルオレン-2-イル)ケトン(調製については実施例1参照)65.8 g (100 mmol)の、tert-ブチルアミン105.0 ml (1 mol)とトルエン1500 mlとの混合物での懸濁液に30分以上かけて滴下することで添加した。続いて、冷却槽を取り外し、反応混合物を室温まで到達した後にさらに3時間攪拌し、その後還流しながら60時間加熱した。冷却後、ジメチルエーテル1500 mlを添加し、混合物を室温でさらに12時間攪拌した。この懸濁液をシリカゲルを通して濾過し、濾液を乾ききるまで濃縮し、クロロホルム2000 mlに溶解させ、再度シリカゲルを通して濾過した。クロロホルム除去後に残留した固体をジオキサン/エタノール(1:2 v/v、10 ml/g)から4回再結晶し、続いて高真空下で昇華させた( $T = 375$ 、 $p = 5 \times 10^{-5}$  mbar)。HPLCによる99.9%以上の純度での収量は47.8 g (67 mmol)であった。これは理論値の67.0%に相当する。

20

## 【0110】

$T_g = 187$ 、 $T_m = 369$ 。

## 【0111】

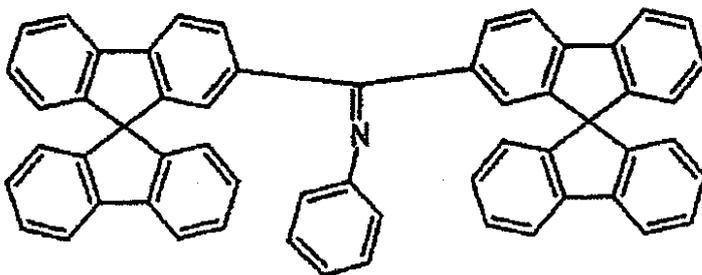
$^1\text{H NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ): [ppm] = 7.89-7.72 (m, 7H), 7.62 (d, 1H), 7.37-7.26 (m, 7H), 7.11-7.01 (m, 7H), 6.98 (s, 1H), 6.71 (d, 1H), 6.64-6.59 (m, 5H), 6.44 (s, 1H), 0.83 (s, 9H)。

30

## 【0112】

実施例7:ビス(9,9'-スピロビフルオレン-2-イル)-N-フェニルイミン

## 【化 2 2】



40

## 【0113】

実施例6と同様の手順。アニリン45.6 ml (500 mmol)を使用。 $T = 370$ で昇華。収量53.7 g (73 mmol)、理論値の73.2%に相当。

## 【0114】

$T_g = 159$ 、 $T_m = 339$ 。

## 【0115】

$^1\text{H NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ): [ppm] = 7.82-7.74 (m, 6H), 7.70 (d, 1H), 7.65 (d, 1H), 7.44 (s, 1H), 7.38-7.29 (m, 7H), 7.12-7.02 (m, 7H), 6.83 (t, 2H), 6.72-6.64 (m, 5H),

50

6.52 (d, 2H), 6.38 (s, 1H), 6.30 (d, 2H)。

【0116】

2. 本発明の混合物を含む有機電界発光デバイスの製造

OLEDを以下で概要を述べる通常の方法で製造した。もちろん、個々の場合での特別な状況に応じてこれを適応させる(例えば、最適な効率および色彩を得るための層厚さの変化)必要がある。

【0117】

本発明の電界発光デバイスを、例えば以下のように製造してもよい：

1. ITO-被覆基板：使用する基板は好ましくは、最小水準のイオン不純物を含むか、もしくはそれを含まないITO-被覆ガラスである(例えば、Merck-BalzersもしくはAkkai製のフラットガラスが挙げられる)。しかし、他のITO-被覆透明基板(例えば、フレキシブルプラスチックフィルムもしくはラミネートが挙げられる)を使用することも可能である。ITOは最大限の導電性と高透明性とを兼ね備える必要がある。50から200nmの間のITO層の厚さが特に適切なものであるということがわかっている。ITO被覆は最大の平坦性、好ましくは2nm以下の粗さを有する必要がある。基板を最初に4%のDekonexの脱イオン水溶液で前洗浄する。その後、ITO-被覆基板を、オゾンを用いて10分間処理するか、もしくは酸素プラズマを用いて数分間処理するか、またはエキシマランプを短時間照射するかのいずれかを行った。

【0118】

2. 正孔注入層(Hole Injection Layer = HIL)：使用するHILはポリマーもしくは低分子量材料のいずれかである。特に適切なポリマーは、ポリアニリン(PANI)もしくはポリチオフェン(PEDOT)およびそれらの誘導体である。それらは通常1から5%の水性分散液であり、それらを20から200nmの間、好ましくは40から150nmの間の層厚さの薄い層としてITO基板にスピンコート、インクジェット印刷または他の被覆処理によって塗布する。その後、PEDOT-被覆もしくはPANI-被覆をしたITO基板を乾燥させた。乾燥を行うために、いくつかの方法が考えられる。通常、フィルムを110から200の間、好ましくは150から180度の間の乾燥オープン内で1分間から10分間乾燥させる。しかし、より新しい乾燥方法、例えばIR(赤外)光の照射も非常に良好な結果をもたらす。照射時間は一般的にほんの数秒である。使用する低分子量材料は好ましくは銅-フタロシアニン(CuPc)の5から30nmの間の薄い層である。通常、CuPcを蒸着により真空昇華装置で塗布する。全てのHILは非常に効率よく正孔を注入しなくてはならないだけでなく、非常にしっかりとITOおよびガラスに付着することも必要である；これは、CuPcに、ならびにPEDOTおよびPANIの両方についてのそうである。可視領域での特に低い吸収、ならびにそれによる高い透明性をPEDOTおよびPANIが呈し、これはHILのその他の必要な特性である。

【0119】

3. 1層またはそれ以上の正孔輸送層(Hole Transport Layer = HTL)：多くのOLEDにおいて、1層またはそれ以上のHTLは良好な効率および高い安定性に対する必要条件である。非常に良好な結果が2つの層の組合せ(例えば第1HTLとしてはMTDATA(4,4',4''-トリス(N-3-メチルフェニル-N-フェニルアミノ)トリフェニルアミン)もしくはNaphDATA(4,4',4''-トリス(N-1-ナフチル-N-フェニルアミノ)トリフェニルアミン)のようなトリアリールアミン、および第2HTLとしてはNPB(N,N'-ジ(ナフチル-1-イル)-N,N'-ジフェニルベンジジン)もしくはスピロ-TAD(テトラキス(2,2',7,7'-ジフェニルアミノ)スピロ-9,9'-ビフルオレン)からなるもの)により達成される。MTDATAもしくはNaphDATAは多くのOLEDで約20-40%の効率の増加をもたらす；ガラス転移温度 $T_g$ がより高いために、MTDATA( $T_g = 100$ )よりもNaphDATA( $T_g = 130$ )が好ましい。第2層としては、NPB( $T_g = 95$ )よりもスピロ-TAD( $T_g = 130$ )が、 $T_g$ がより高いために、好ましい。MTDATAおよびNaphDATAは、5から100nmの間、好ましくは10から60nmの間、より好ましくは15か

ら40 nmの間の層厚さを有する。厚さが厚いものほど、同様の輝度を達成させるためには、いくぶん高い電圧が必要となる；同時に、不具合の数が減少する。スピロ-TADおよびNPBは5から150 nmの間、好ましくは10から100 nmの間、より好ましくは20から60 nmの間の層厚さを有する。NPBおよび多くの他のトリアリールアミンの層厚さが増加するに従って、同等の輝度を達成させるために必要な電圧がより高くなる。しかし、スピロ-TADの層厚さは特徴的な電流-電圧電界発光ラインに対してわずかしが影響を及ぼさない、すなわち特定の輝度を達成させるために必要な電圧はスピロ-TAD層の厚さにはほんのわずかしが依存しない。低分子量トリアリールアミンの代わりに、高分子量トリアリールアミンを使用することもできる。これらは通常0.1から30%の溶液であり、これらを20から500 nmの間、好ましくは40から150 nmの間の層厚さの薄い層として、ITO基板もしくはHIL（例えばPEDOT層またはPANI層）にスピンコート、インクジェット印刷または他の被覆方法によって塗布する。

#### 【0120】

4. 発光層 (Emission Layer = EML) : この層は層3および/または層5と部分的に一致してもよい。それは、例えば、低分子量マトリクス材料および低分子量ゲスト材料と、燐光体ドーパントとからなる（例えば、マトリクス材料としてCBPまたは上記のマトリクス材料Aの1種と、ならびにドーパントとしてIr(ppy)<sub>3</sub>とからなる）。良好な結果は、CBPもしくは上記マトリクス材料Aの1種におけるIr(ppy)<sub>3</sub>の濃度が5-30%であり、EML層の厚さが10から100 nmの間、好ましくは10から50 nmの間である場合に達成される。低分子量発光化合物の代わりに、高分子量発光化合物（ポリマー）を使用することもでき、その場合にはホスト-ゲスト系の一方または両方の成分は分子量が高くてもよい。

#### 【0121】

5. 電子輸送および正孔障壁層 (Hole Blocking Layer = HBL) : 有効なHBL材料は特にBCP(2,9-ジメチル-4,7-ジフェニル-1,10-フェナントロリン=バソクプロイン)もしくはBALqであることがわかっている。低分子量HBLの代わりに高分子量HBLを使用することも可能である。しかし、このような正孔障壁層を持たずしても、本発明の混合物を含むOLEDは依然として非常に良好な結果を呈するということがわかっている。それゆえに、正孔障壁層を以下に記す全ての例で使用したというわけではない。

#### 【0122】

6. 電子輸送層 (Electron Transport Layer = ETL) : 金属ヒドロキシキノラートはETL材料として非常に適切である；特にアルミニウムトリス-8-ヒドロキシキノラート(AlQ<sub>3</sub>)が最も安定した電子伝導体の1つであるということがわかっている。低分子量ETLの代わりに高分子量ETLを使用することも可能である。しかし、このような正孔障壁層を持たずしても、本発明の混合物を含むOLEDは依然として良好な結果、特に低電圧および高い電力効率を呈するということがわかっている。それゆえに、電子輸送層を以下に記載する全ての例で使用したというわけではない。

#### 【0123】

7. 電子注入層 (Electron Injection Layer = EIL) : 0.2から8 nmの間、好ましくは0.5から5 nmの間の層厚さを有し、高い誘電率を有する金属、特に無機フッ化物および無機酸化物（例えば、LiF、Li<sub>2</sub>O、BaF<sub>2</sub>、MgO、NaF）からなる薄い層がEILとして特に良好であることがわかっている。特にAlと組合せることで、この追加の層が電子注入における著しい改善をもたらす、それにより寿命、量子収率および電力効率に関しての改善された結果をもたらす。

#### 【0124】

8. 陰極 : ここでは通常、低い仕事関数を有する、金属、金属の組合せ、もしくは金属合金を使用する。例えば、Ca、Ba、Cs、K、Na、Mg、Al、In、Mg/Agが挙げられる。

#### 【0125】

9. a) 低分子量化合物の薄い層 (2. - 8. ) の調製 : HIL、HTL、EML、H

10

20

30

40

50

B L、E T L、E I Lおよび陰極の全ての低分子量材料を真空昇華装置において $10^{-5}$  m b a r以下、好ましくは $10^{-6}$  m b a r以下、より好ましくは $10^{-7}$  m b a r以下の圧力で蒸着により塗布する。蒸着速度は0.01から10 nm/sの間、好ましくは0.1から1 nm/sの間であってもよい。O P V D（有機物理蒸着）またはL I T I（光誘起熱イメージング）のような、より最近の方法も他の印刷技術として同様に低分子量材料の被覆に適切である。所望の混合比を特に効率よく決定することができるので、ドーブ層に対してO P V Dは大いに利用可能である。同様に、ドーパントの濃度を連続的に変化させることもできる。従って、電界発光デバイスでの改善のための必要条件としてはO P V Dが最適である。上述のように、本発明のデバイスの調製を特別な印刷方法（述べたL I T Iのような）で行うこともできる。これは製造のスケール性と使用するブレンド層の混合比の決定との両方に関して効果を有する。もっとも、この目的のために、その後実際に実際の基板に転写されるだけの適切な層（L I T Iに関して転写層）を調製することが必要である。

10

## 【0126】

b) 高分子量化合物（ポリマー）の薄い層（2. - 6.）の製造：これらは通常0.1から30%の溶液もしくは分散液であり、これらを10から500 nmの間、好ましくは10から80 nmの間の層厚さの薄い層として、I T O基板もしくはその下の層にスピコート、インクジェット印刷、L I T Iまたは他の被覆処理および印刷技術によって塗布する。

## 【0127】

10. 封入：E I Lおよび陰極を含む有機相の有効な封入は有機電界発光デバイスにとって不可欠である。有機ディスプレイがガラス基板上に形成される場合には、いくつかの選択肢がある。1つの選択肢は構造全体を第2ガラスもしくは金属板に接着させることである。2成分もしくはUV硬化型のエポキシ接着剤が特に適していることがわかっている。電界発光デバイスを完全に、もしくはエッジでのみ接着してもよい。有機ディスプレイをエッジでのみ接着する場合、ゲッターとして知られているものを添加することにより、耐久性をさらに向上させることができる。このゲッターは、侵入した水および水蒸気と結合する吸湿性材料、特に金属酸化物（例えば、B a O、C a O等）からなる。ゲッター材料（例えば、C a、B a等）を用いてさらに酸素結合を行う。フレキシブルな基板の場合、水および酸素に対する高い拡散隔壁に特に注意を払うべきである。ここで、特に、交互の薄いプラスチックと無機層（例えば、S i O<sub>x</sub>またはS i N<sub>x</sub>）によって構成されるラミネートが有用であるということがわかっている。

20

30

## 【0128】

## 3. デバイス例

ここで、様々なO L E Dの結果を比較する。使用する材料、ドーブの程度およびそれらの層厚さのような基本的構成は、比較をよりよくするため、これら実施例の実験で同一であった。発光層のホスト材料のみを変化させ、様々な三重項発光体を用いて実施例を行った。

## 【0129】

第1の例は従来技術による比較用の基準であり、発光層はホスト材料C B Pとゲスト材料I r ( P P y )<sub>3</sub> ( W O 02/060910に従って合成) からなる。さらに、ホスト材料ビス(9,9'-スピロピフルオレン-2-イル)ケトンとゲスト材料I r ( P P y )<sub>3</sub> とからなる発光層を有するO L E Dを説明する。第2の例は、赤色発光体I r ( B T P )<sub>3</sub> ( W O 02/060910に従って合成) を用いた、C B Pとビス(9,9'-スピロピフルオレン-2-イル)ケトンとの間の他の比較(例1参照)を示す。第3の例は2種のO L E Dを説明し、一方はビス(9,9'-スピロピフルオレン-2-イル)ケトンを伴う深い赤色の発光体I r ( p i g )<sub>3</sub> であり、他方はビス(9,9'-スピロピフルオレン-2-イル)ケトンを伴う赤色の発光体I r ( F M e p i g )<sub>3</sub> である。

40

## 【0130】

上述の一般的な方法と同様に、以下の構成を有する緑色発光および赤色発光のO L E D

50

を得た：

P E D O T 60 nm (水からスピンコートした；H.C. Starckから購入したP E D O T；ポリ[3,4-エチレンジオキシ-2,5-チオフェン])

N a p h D A T A 20 nm (蒸着で塗布した；SynTecから購入したN a p h D A T A；4,4',4''-トリス(N-1-ナフチル-N-フェニルアミノ)-トリフェニルアミン)

S - T A D 20 nm (蒸着で塗布した；W0 99/12888に従って調製したS - T A D；2,2',7,7'-テトラキス(ピフェニルアミノ)スピロ-ピフルオレン)

発光層：

C B P 20 nm (蒸着で塗布した；ALDRICHから購入したCBPであり、さらに精製し、最終的に2回以上昇華させた；4,4'-ビス(N-カルバゾルイル)ピフェニル)(比較基準)

または：

ビス(9,9'-スピロピフルオレン-2-イル)ケトン 20 nm (蒸着で塗布した；実施例1に従って合成および精製した)、各場合で10%三重項発光体がドーブされている

I r ( P P y )<sub>3</sub> (蒸着で塗布した)

または：

I r ( B T P )<sub>3</sub> (蒸着で塗布した)

または：

I r ( p i g )<sub>3</sub> (蒸着で塗布した)

または：

I r ( F M e p i g )<sub>3</sub> (蒸着で塗布した)

バソクプロイン(B C P) 10 nm (蒸着で塗布した；ABCRから購入したB C P、入手したまま使用した；2,9-ジメチル-4,7-ジフェニル-1,10-フェナントロリン)；全ての例で使用したわけではない

A l Q<sub>3</sub> 10 nm (蒸着で塗布した；SynTecから購入したA l Q<sub>3</sub>；トリス(キノリノラート)アルミニウム(III))、全ての例で使用したわけではない

B a - A l 陰極として、3 nmのB a、その上に150 nmのA l。

【0131】

最適化がまだなされていないこれらのO L E Dを標準的な方法で特性評価を行った；この目的のために、電界発光スペクトル、電流-電圧-輝度特性曲線(I U L特性曲線)から計算した輝度の関数としての効率(C d / Aで測定)、および寿命を測定した。

【0132】

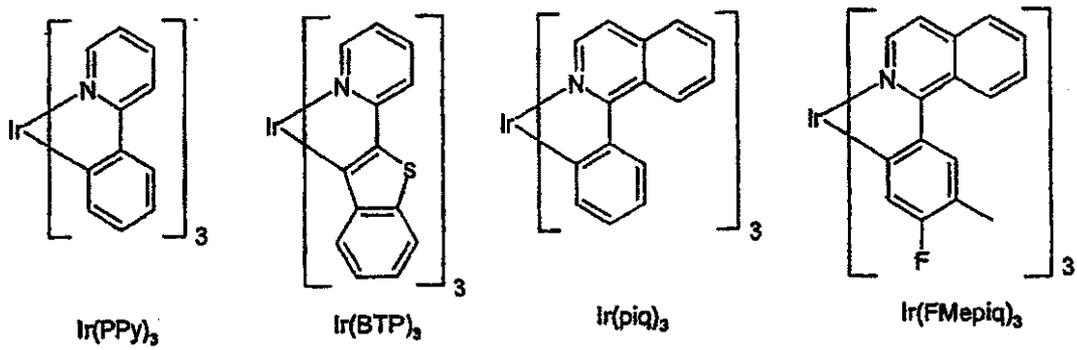
概要として、使用する三重項発光体および使用するホスト材料を以下に示した：

10

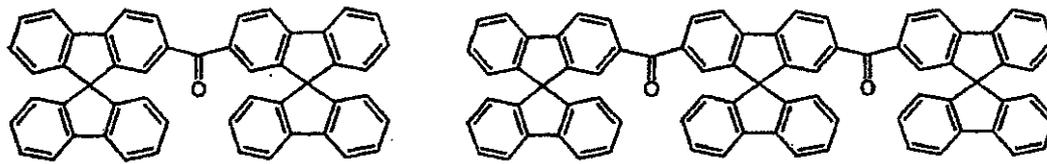
20

30

## 【化 2 3】



10

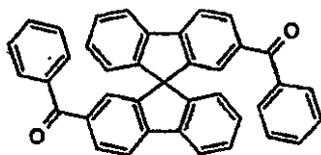


ビス(9,9'-スピロビフルオレン-2-イル)ケトン

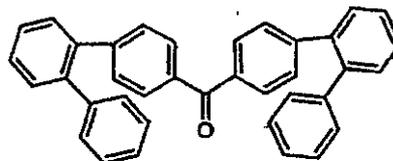
マトリックス材料 M2

マトリックス材料 M1

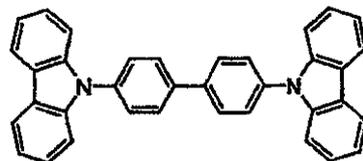
20



マトリックス材料 M3



マトリックス材料 M4



CBP

(比較マトリックス材料)

30

## 【0133】

使用例1:  $\text{Ir}(\text{ppy})_3$ 

電界発光スペクトル:

OLED (ホスト材料としてCBPを有する比較基準のOLEDと、ホスト材料としてビス(9,9'-スピロビフルオレン-2-イル)ケトンを有するOLEDとの両方)は  $\text{Ir}(\text{ppy})_3$  ドーパント由来の緑色発光を呈する。

40

## 【0134】

輝度の関数としての効率

CBPホスト材料を用いて製造したOLEDに対して、約  $25 \text{ cd/A}$  の最大効率が典型的に得られ、かつ  $100 \text{ cd/m}^2$  の基準照度密度には、 $4.8 \text{ V}$  が必要となる。対照的に、ビス(9,9'-スピロビフルオレン-2-イル)ケトンのホスト材料を用いて製造したOLEDは  $30 \text{ cd/A}$  以上の最大効率を呈し、同時に  $100 \text{ cd/m}^2$  の基準照度密度に必要な電圧は  $4.6 \text{ V}$  まで落ちる。効率は、正孔障壁層(HBL)も電子輸送層(E

50

TL)も使用せず、ドーピングされた発光層(EML)が陰極まで伸びる場合に特にかなり高い。35 cd/A以上の最大効率が得られると、同時に100 cd/m<sup>2</sup>の基準照度密度に必要な電圧は3V以下まで落ちる。特に電力効率は、ホスト材料としてビス(9,9'-スピロピフルオレン-2-イル)ケトンを使用すること( )により、ホスト材料としてCBPを使用する場合(黒の菱形)と比べて、20%から100%増加する(図1)。正孔障壁層(HBL)も電子輸送層(ELT)もどちらも使用せず、発光層(EML)のドーピングが陰極まで及ぶ場合には、50 lm/Wに至る特にかなり高い電力が得られる( )。

#### 【0135】

寿命の比較:

ホスト材料としてCBPとビス(9,9'-スピロピフルオレン-2-イル)ケトンを用いた2つの寿命曲線(図2)(使用した両者は共に正孔障壁層と電子輸送層とを有する)をよりよい比較のために同じ図に示した。この図はcd/m<sup>2</sup>で測定した照度密度の時間に対するプロファイルを示す。寿命とは、典型的には最初の照度密度の単に50%になった後の時間のことを言う。

#### 【0136】

ホスト材料としてCBPを用いると、1400 cd/m<sup>2</sup>の初期輝度で約150時間の寿命が得られる。これは加速測定(accelerated measurement)に相当する。というのは、この初期輝度は典型的なアクティブマトリクス駆動ディスプレイ用途に必要とされる輝度(250 cd/m<sup>2</sup>)よりも著しく上回るためである。ビス(9,9'-スピロピフルオレン-2-イル)ケトンに対しては、同様の初期輝度で、約2000時間の寿命が達成された。これは約1300%寿命が増加したことに相当する;正孔障壁層(HBL)も電子輸送層(ELT)も使用しないもそうである。

#### 【0137】

これらの測定した寿命から、続いて250 cd/m<sup>2</sup>の初期輝度での寿命を計算できる。CBPのホスト材料の場合、単に4700時間の寿命しか得られず、これはディスプレイ用途に必要とされる10000時間を著しく下回る。対照的に、ビス(9,9'-スピロピフルオレン-2-イル)ケトンを用いると、60000時間を上回る寿命が達成され、これは最低限必要な量を著しく上回る。

#### 【0138】

使用例2: Ir(BTP)<sub>3</sub>

同様の実験を赤色の三重項発光体Ir(BTP)<sub>3</sub>を用いて行った。

#### 【0139】

電界発光スペクトル:

OLED(ホスト材料としてCBPを有する比較標準OLEDと、ホスト材料としてビス(9,9'-スピロピフルオレン-2-イル)ケトンを用いたOLEDとの両方)はIr(BTP)<sub>3</sub>に由来する赤色発光を呈する。2つのスペクトルを図3に示す。

#### 【0140】

輝度の関数としての効率:

CBPのホスト材料を用いて製造したOLEDに対して、典型的に最大効率は約8 cd/Aであり、100 cd/m<sup>2</sup>の基準照度密度には、6.2Vが必要である。対照的に、ホスト材料ビス(9,9'-スピロピフルオレン-2-イル)ケトンを用いて製造したOLEDは11 cd/Aを上回る最大効率を呈し、同時に100 cd/m<sup>2</sup>の基準照度密度に必要な電圧は5.2Vまで落ちる(図4)。

#### 【0141】

寿命の比較:

よりよい比較のために、2つの寿命曲線(図5)を同じ図に示した。この図はcd/m<sup>2</sup>の単位で測定した照度密度の時間に対するプロファイルを示す。

#### 【0142】

ホスト材料としてCBPを用いると、約53時間の寿命がほぼ1300 cd/m<sup>2</sup>の初

10

20

30

40

50

期輝度で得られる（この例においても、測定は加速測定に相当する）。ビス（9,9'-スピロピフルオレン-2-イル）ケトンを用いると、約275時間の寿命が同じ初期輝度で得られ、これは約500%の寿命の増加に相当する。

#### 【0143】

これらの測定した寿命から、 $250 \text{ cd/m}^2$ の初期輝度での寿命を計算できる。CBPの宿主材料の場合、単に1600時間の寿命しか得られず、これはディスプレイ用途に必要とされる10000時間を著しく下回る。対照的に、ビス（9,9'-スピロピフルオレン-2-イル）ケトンを用いると、8200時間以上の寿命が達成され、これは最低限必要な量とほぼ等しい数値である。

#### 【0144】

使用例3：Ir(pig)<sub>3</sub> およびIr(FMepig)<sub>3</sub>

同様に、ビス（9,9'-スピロピフルオレン-2-イル）ケトンと共に深い赤色の三重項発光体Ir(pig)<sub>3</sub>を用いる実験、ならびにビス（9,9'-スピロピフルオレン-2-イル）ケトンと共に赤色の三重項発光体Ir(FMepig)<sub>3</sub>を用いる実験を行うことができた。

#### 【0145】

電界発光スペクトル：

これらのOLEDは深い赤色発光と赤色発光を呈する。これらはドーパントIr(pig)<sub>3</sub> ( ) およびIr(FMepig)<sub>3</sub> (黒の菱形)に由来する。2つのスペクトルを図6に示す。スペクトルから、ビス（9,9'-スピロピフルオレン-2-イル）ケトン中のIr(pig)<sub>3</sub> ( ) について見積もったCIE色度座標は $x = 0.69$ ;  $y = 0.31$ であり、ビス（9,9'-スピロピフルオレン-2-イル）ケトン中のIr(FMepig)<sub>3</sub> (黒の菱形)について見積もったものは $x = 0.66$ ;  $y = 0.34$ であった。

#### 【0146】

輝度の関数としての効率：

ビス（9,9'-スピロピフルオレン-2-イル）ケトン中のIr(pig)<sub>3</sub> ( ) とビス（9,9'-スピロピフルオレン-2-イル）ケトン中のIr(pig)<sub>3</sub> との両方共が、最大 $8 \text{ cd/A}$  (CIE色度座標 $x = 0.69$ ,  $y = 0.31$ のIr(pig)<sub>3</sub> ( ) について) および最大 $14 \text{ cd/A}$  (CIE色度座標 $x = 0.66$ ,  $y = 0.34$ のIr(FMepig)<sub>3</sub> (黒の菱形)について) という非常に高い効率を呈する(図7)。両方の場合で、 $100 \text{ cd/m}^2$ に必要な電圧は6V以下に下がった。

#### 【0147】

寿命：

図8はビス（9,9'-スピロピフルオレン-2-イル）ケトンを有するIr(pig)<sub>3</sub>の、 $10 \text{ mA/cm}^2$ の一定電流、初期輝度約 $800 \text{ cd/m}^2$ での寿命、ならびに $5 \text{ mA/cm}^2$ の一定電流、初期輝度約 $400 \text{ cd/m}^2$ での寿命を示す。この場合、初期輝度約 $800 \text{ cd/m}^2$ では1680時間後に約10%輝度が減衰し、ならびに初期輝度約 $400 \text{ cd/m}^2$ では1680時間後に約5%輝度が減衰した。初期輝度約 $800 \text{ cd/m}^2$ では約500時間の寿命、ならびに初期輝度約 $400 \text{ cd/m}^2$ では約20000時間の寿命が推定される。200  $\text{cd/m}^2$ の初期輝度では、80000の寿命が見積もられる。ビス（9,9'-スピロピフルオレン-2-イル）ケトン中のIr(FMepig)<sub>3</sub>はそれに匹敵する寿命を示す。

#### 【0148】

他のデバイス例を以下の表2に列挙し、発光はそれぞれのケースで同様の発光体から由来する。

10

20

30

40

【表 2】

実験	EML	HBL	ETL	最大効率 (cd/A)	最大電力効率 (lm/W)	100 cd/m <sup>2</sup> で の電圧 (V)	10 mA/cm <sup>2</sup> で の寿命(時間)
実施例 1)に対する比較例	CBP: 20% Ir(ppy) <sub>3</sub> (20 nm)	BCP (10 nm)	AlQ <sub>3</sub> (10 nm)	25	12	4.8	150
実施例 1a)	M1: 20% Ir(ppy) <sub>3</sub> (20 nm)	BCP (10 nm)	AlQ <sub>3</sub> (10 nm)	30	25	4.6	400
実施例 1b)	M1: 20% Ir(ppy) <sub>3</sub> (60 nm)	-	-	35	50	3.0	370
実施例 1c)	M3: 20% Ir(ppy) <sub>3</sub> (20 nm)	BCP (10 nm)	AlQ <sub>3</sub> (10 nm)	28	20	4.5	250
実施例 1d)	M4: 20% Ir(ppy) <sub>3</sub> (20 nm)	BCP (10 nm)	AlQ <sub>3</sub> (10 nm)	39	22	4.9	220
実施例 1e)	M4: 20% Ir(ppy) <sub>3</sub> (20 nm)	-	-	42	32	4.5	200
実施例 2)に対する比較例	CBP: 20% Ir(BTP) <sub>3</sub> (20 nm)	BCP (10 nm)	AlQ <sub>3</sub> (10 nm)	8	5	6.2	53
実施例 2a)	M1: 20% Ir(BTP) <sub>3</sub> (20 nm)	BCP (10 nm)	AlQ <sub>3</sub> (10 nm)	11	8	5.2	275
実施例 2b)	M1: 20% Ir(BTP) <sub>3</sub> (20 nm)	-	-	11	10	4.1	250

【表 3】

実施例 3)に対する比較	CBP: 20%Ir(piq) <sub>s</sub> (30 nm)	BCP (10 nm)	AlQ <sub>3</sub> (10 nm)	7	4	6.4	5000 (推定)
実施例 3a)	M1: 20% Ir(piq) <sub>s</sub> (30 nm)	BCP (10 nm)	AlQ <sub>3</sub> (10 nm)	8	6	5.8	20 000 (推定)
実施例 3b)	M1: 20% Ir(piq) <sub>s</sub> (30 nm)	-	-	7	8	3.2	15 000 (推定)
実施例 3c)	M2: 20% Ir(piq) <sub>s</sub> (30 nm)	BCP (10 nm)	AlQ <sub>3</sub> (10 nm)	7	5	6.1	20 000 (推定)
実施例 4a)	M1: 20% Ir(FMepiq) <sub>s</sub> (30 nm)	BCP (10 nm)	AlQ <sub>3</sub> (10 nm)	14	9	5.9	80 000 (古い: 公証)
実施例 4b)	M1: 20% Ir(FMepiq) <sub>s</sub> (30 nm)	-	-	15	12	4	80 000
実施例 4c) 比較例	CBP: 20% Ir(FMepiq) <sub>s</sub> (30 nm)	BCP (10 nm)	AlQ <sub>3</sub> (10 nm)	10	6	7	10 000

10

20

30

40

【図面の簡単な説明】

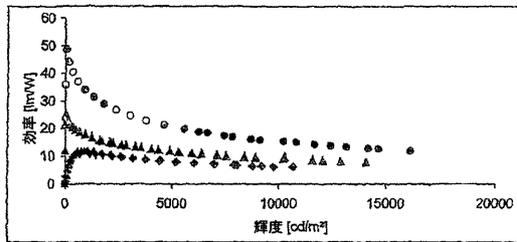
【0149】

【図1】記載なし。

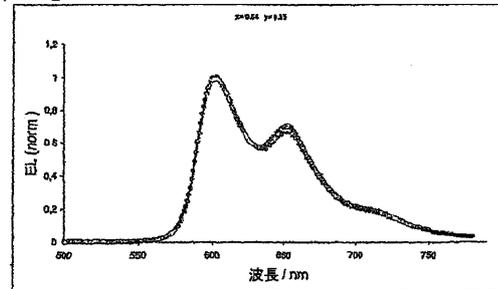
50

- 【図2】記載なし。
- 【図3】記載なし。
- 【図4】記載なし。
- 【図5】記載なし。
- 【図6】記載なし。
- 【図7】記載なし。
- 【図8】記載なし。

【図1】

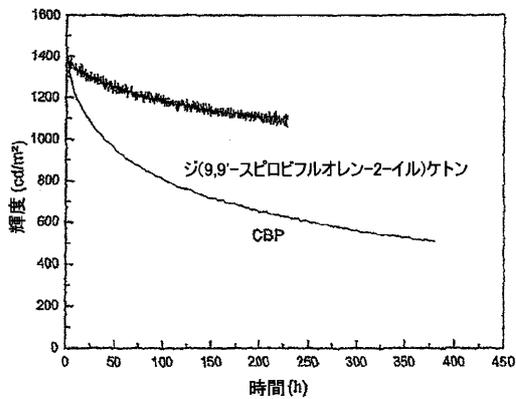


【図3】

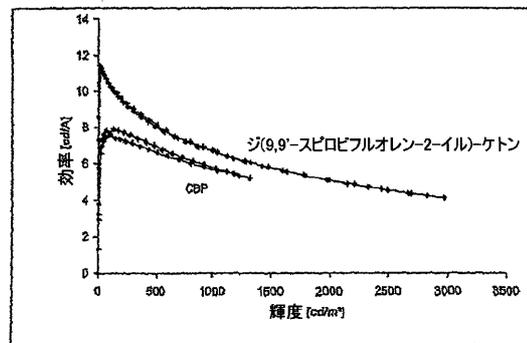


白抜きのみ:CBP; 実線:ビス(9,9'-スピロビフルオレン-2-イル)-ケトン

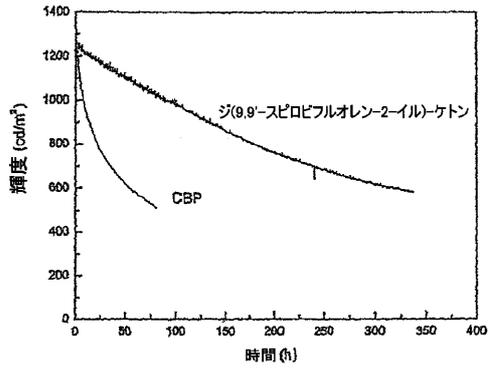
【図2】



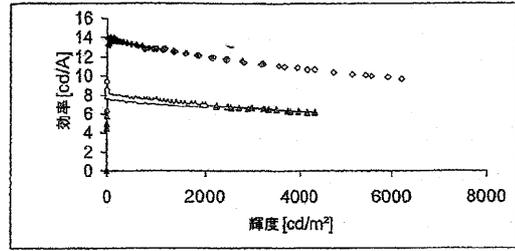
【図4】



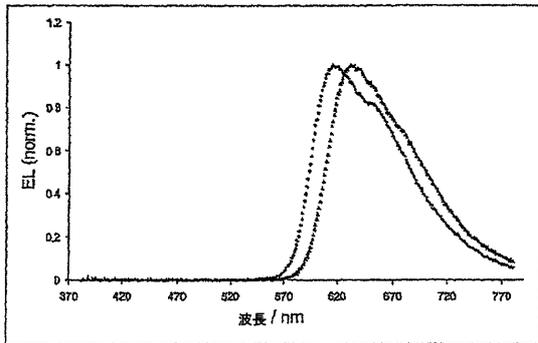
【 図 5 】



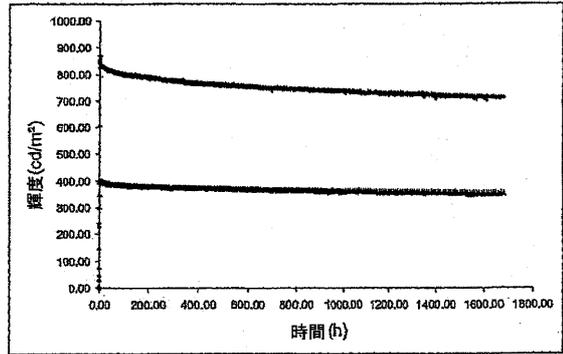
【 図 7 】



【 図 6 】



【 図 8 】



## 【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International Application No PCT/EP2004/003861
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 C09K11/06 H01L51/30 H05B33/14 C07C49/76		
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) IPC 7 H01L C07C H05B		
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 practical, search terms used) EPO-Internal, CHEM ABS Data, PAJ, WPI Data		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 2001/053462 A1 (MISHIMA MASAYUKI) 20 December 2001 (2001-12-20)  paragraphs [0007] - [0009]; claims 1,5,8 -----	1,3-6, 8-10, 12-15, 17-21
X	WO 02/077060 A (COVION ORGANIC SEMICONDUCTORS ; PARHAM AMIR (DE); BECKER HEINRICH (DE)) 3 October 2002 (2002-10-03) claims 1,27,31 -----	1-4, 8-15, 17-21
X	WO 03/074628 A (MAXTED NEIL ; MOSLEY ALAN (GB); CDT OXFORD LTD (GB); LOOK KAI (GB); MA) 12 September 2003 (2003-09-12) claims 1,9,15,23 ----- -/-	1-4, 8-15,17
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C. <input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in 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 document 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  12 October 2004		Date of mailing of the international search report  18 02 05
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5513 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel: (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer  Pollio, M

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/EP2004/003861

**Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)**

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1.  Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
  
2.  Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
  
3.  Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

**Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)**

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

**See Supplemental Box**

1.  As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2.  As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3.  As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
  
4.  No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

**1-6, 8-15, 17-21**

**Remark on Protest**

- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.  
 No protest accompanied the payment of additional search fees.

### INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/EP2004/003861

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 00/70655 A (UNIV PRINCETON ; UNIV SOUTHERN CALIFORNIA (US)) 23 November 2000 (2000-11-23) claims -----	1-21

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/EP2004/003861

The International Searching Authority has determined that this international application contains multiple (groups of) inventions, as follows:

## 1. Claims [1-6], [8-15], [17-21]

Mixtures containing at least one matrix material A, which contains a structural element of formula 6 in which X is 0 (claim 5) and at least one emission material B capable of emission. Electronic component containing the mixtures.

## 2. Claims [1-6], [8-15], [17-21]

Mixtures containing at least one matrix material A, which contains a structural element of formula 4 in which X is 0 (claim 5) and at least one emission material B capable of emission. Electronic component containing the mixtures.

## 3. Claims [1-6], [8-15], [17-21]

Mixtures containing at least one matrix material A, which contains a structural element of formula 8 in which X is 0 (claim 5) and at least one emission material B capable of emission. Electronic component containing the mixtures.

## 4. Claims [1-21]

Mixtures containing at least one matrix material A, which contains a structural element of formulae 10, 11 or 12 (claim 7) and at least one emission material B capable of emission. Compounds as per formulae 10a to 15 (claim 16). Electronic component containing the mixtures.

## 5. Claims [1-6], [8-15], [17-21]

Mixtures containing at least one matrix material A, which contains a structural element of the formula C=S and at least one emission material B capable of emission. Electronic component containing the mixtures.

## 6. Claims [1-4], [6], [8-15], [17-21]

Mixtures containing at least one matrix material A, which contains a structural element of the formula C=Se and at least one emission material B capable of emission. Electronic component containing the mixtures.

## 7. Claims [1-21]

Mixtures containing at least one matrix material A, which contains a structural element of the formula C=N and at least one emission material capable B of emission. Compounds as per formulae 13 to 15 (claim 16). Electronic component containing the mixtures.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP2004/003861

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 2001053462 A1	20-12-2001	JP 2001319780 A	16-11-2001
WO 02077060 A	03-10-2002	DE 50200971 D1 WO 02077060 A1 EP 1381639 A1 JP 2004536896 T US 2004135131 A1	14-10-2004 03-10-2002 21-01-2004 09-12-2004 15-07-2004
WO 03074628 A	12-09-2003	AU 2003210004 A1 EP 1481036 A1 WO 03074628 A1	16-09-2003 01-12-2004 12-09-2003
WO 0070655 A	23-11-2000	AU 5004700 A BR 0010424 A EP 1449238 A2 JP 2003526876 T TW 500787 B WO 0070655 A2 US 2003017361 A1 US 2004262576 A1 US 2002034656 A1	05-12-2000 13-02-2002 25-08-2004 09-09-2003 01-09-2002 23-11-2000 23-01-2003 30-12-2004 21-03-2002

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT		Internationales Aktenzeichen PCT/EP2004/003861
A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES IPK 7 C09K11/06 H01L51/30 H05B33/14 C07C49/76		
Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK		
B. RECHERCHIERTE GEBIETE		
Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) IPK 7 H01L C07C H05B		
Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen		
Während der Internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe) EPO-Internal, CHEM ABS Data, PAJ, WPI Data		
C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US 2001/053462 A1 (MISHIMA MASAYUKI) 20. Dezember 2001 (2001-12-20)  Absätze [0007] - [0009]; Ansprüche 1,5,8	1,3-6, 8-10, 12-15, 17-21
X	WO 02/077060 A (COVION ORGANIC SEMICONDUCTORS ; PARHAM AMIR (DE); BECKER HEINRICH (DE)) 3. Oktober 2002 (2002-10-03) Ansprüche 1,27,31	1-4, 8-15, 17-21
X	WO 03/074628 A (MAXTED NEIL ; MOSLEY ALAN (GB); CDT OXFORD LTD (GB); LOOK KAI (GB); MA) 12. September 2003 (2003-09-12) Ansprüche 1,9,15,23	1-4, 8-15,17
	----- -/--	
<input checked="" type="checkbox"/>	Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen	<input checked="" type="checkbox"/> Siehe Anhang Patentfamilie
* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :		
"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist		
"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist		
"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)		
"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht		
"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist		
"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist		
"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden		
"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist		
"Z" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist		
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche		Absendedatum des internationalen Recherchenberichts
12. Oktober 2004		10. 02. 05
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 851 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Bevollmächtigter Beauftragter  Pollio, M

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen  
PCT/EP2004/003861

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	WO 00/70655 A (UNIV PRINCETON ; UNIV SOUTHERN CALIFORNIA (US)) 23. November 2000 (2000-11-23) Ansprüche -----	1-21

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen  
PCT/EP2004/003861

Feld II Bemerkungen zu den Ansprüchen, die sich als nicht recherchierbar erwiesen haben (Fortsetzung von Punkt 2 auf Blatt 1)

Gemäß Artikel 17(2)a) wurde aus folgenden Gründen für bestimmte Ansprüche kein Recherchenbericht erstellt:

1.  Ansprüche Nr. weil sie sich auf Gegenstände beziehen, zu deren Recherche die Behörde nicht verpflichtet ist, nämlich
2.  Ansprüche Nr. weil sie sich auf Teile der Internationalen Anmeldung beziehen, die den vorgeschriebenen Anforderungen so wenig entsprechen, daß eine sinnvolle internationale Recherche nicht durchgeführt werden kann, nämlich
3.  Ansprüche Nr. weil es sich dabei um abhängige Ansprüche handelt, die nicht entsprechend Satz 2 und 3 der Regel 6.4 a) abgefaßt sind.

Feld III Bemerkungen bei mangelnder Einheitlichkeit der Erfindung (Fortsetzung von Punkt 3 auf Blatt 1)

Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, daß diese internationale Anmeldung mehrere Erfindungen enthält:

siehe Zusatzblatt

1.  Da der Anmelder alle erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht auf alle recherchierbaren Ansprüche.
2.  Da für alle recherchierbaren Ansprüche die Recherche ohne einen Arbeitsaufwand durchgeführt werden konnte, der eine zusätzliche Recherchegebühr gerechtfertigt hätte, hat die Behörde nicht zur Zahlung einer solchen Gebühr aufgefordert.
3.  Da der Anmelder nur einige der erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht nur auf die Ansprüche, für die Gebühren entrichtet worden sind, nämlich auf die Ansprüche Nr.
4.  Der Anmelder hat die erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren nicht rechtzeitig entrichtet. Der internationale Recherchenbericht beschränkt sich daher auf die in den Ansprüchen zuerst erwähnte Erfindung; diese ist in folgenden Ansprüchen erfaßt:  
1-6, 8-15, 17-21

Bemerkungen hinsichtlich eines Widerspruchs

 Die zusätzlichen Gebühren wurden vom Anmelder unter Widerspruch gezahlt. Die Zahlung zusätzlicher Recherchegebühren erfolgte ohne Widerspruch.

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

PCT/ EP2004/ 003861

Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, dass diese internationale Anmeldung mehrere (Gruppen von) Erfindungen enthält, nämlich:

## 1. Ansprüche: [1-6], [8-15], [17-21]

Mischungen enthaltend mindestens ein Matrixmaterial A, welches eine Struktureinheit der Formel 6 mit  $X=0$  (Anspruch 5) enthält und mindestens ein zur Emission befähigtes Emissionsmaterial B. Elektronisches Bauteil enthaltend die Mischungen.

---

## 2. Ansprüche: [1-6], [8-15], [17-21]

Mischungen enthaltend mindestens ein Matrixmaterial A, welches eine Struktureinheit der Formel 4 mit  $X=0$  (Anspruch 5) enthält und mindestens ein zur Emission befähigtes Emissionsmaterial B. Elektronisches Bauteil enthaltend die Mischungen.

---

## 3. Ansprüche: [1-6], [8-15], [17-21]

Mischungen enthaltend mindestens ein Matrixmaterial A, welches eine Struktureinheit der Formel 8 mit  $X=0$  (Anspruch 5) enthält und mindestens ein zur Emission befähigtes Emissionsmaterial B. Elektronisches Bauteil enthaltend die Mischungen.

---

## 4. Ansprüche: [1-21]

Mischungen enthaltend mindestens ein Matrixmaterial A, welches eine Struktureinheit der Formel 10 oder 11 oder 12 (Anspruch 7) enthält und mindestens ein zur Emission befähigtes Emissionsmaterial B. Verbindungen gemäss Formel 10a bis 15 (Anspruch 16). Elektronisches Bauteil enthaltend die Mischungen.

---

## 5. Ansprüche: [1-6], [8-15], [17-21]

Mischungen enthaltend mindestens ein Matrixmaterial A, welches eine Struktureinheit der Form C=S enthält und mindestens ein zur Emission befähigtes Emissionsmaterial B. Elektronisches Bauteil enthaltend die Mischungen.

---

## 6. Ansprüche: [1-4], [6], [8-15], [17-21]

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

PCT/ EP2004/ 003861

Mischungen enthaltend mindestens ein Matrixmaterial A, welches eine Struktureinheit der Form C=Se enthält und mindestens ein zur Emission befähigtes Emissionsmaterial B. Elektronisches Bauteil enthaltend die Mischungen.

## 7. Ansprüche: [1-21]

Mischungen enthaltend mindestens ein Matrixmaterial A, welches eine Struktureinheit der Form C=N enthält und mindestens ein zur Emission befähigtes Emissionsmaterial B. Verbindungen gemäss Formel 13 bis 15 (Anspruch 16). Elektronisches Bauteil enthaltend die Mischungen.

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2004/003861

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 2001053462 A1	20-12-2001	JP 2001319780 A	16-11-2001
WO 02077060 A	03-10-2002	DE 50200971 D1	14-10-2004
		WO 02077060 A1	03-10-2002
		EP 1381639 A1	21-01-2004
		JP 2004536896 T	09-12-2004
		US 2004135131 A1	15-07-2004
WO 03074628 A	12-09-2003	AU 2003210004 A1	16-09-2003
		EP 1481036 A1	01-12-2004
		WO 03074628 A1	12-09-2003
WO 0070655 A	23-11-2000	AU 5004700 A	05-12-2000
		BR 0010424 A	13-02-2002
		EP 1449238 A2	25-08-2004
		JP 2003526876 T	09-09-2003
		TW 500787 B	01-09-2002
		WO 0070655 A2	23-11-2000
		US 2003017361 A1	23-01-2003
		US 2004262576 A1	30-12-2004
		US 2002034656 A1	21-03-2002

## フロントページの続き

(81) 指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, 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, IT, LU, 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, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW

(74) 代理人 100075672

弁理士 峰 隆司

(74) 代理人 100109830

弁理士 福原 淑弘

(74) 代理人 100095441

弁理士 白根 俊郎

(74) 代理人 100084618

弁理士 村松 貞男

(74) 代理人 100103034

弁理士 野河 信久

(74) 代理人 100092196

弁理士 橋本 良郎

(74) 代理人 100100952

弁理士 風間 鉄也

(72) 発明者 ゲルハルト、アンヤ

ドイツ連邦共和国、9 7 2 0 9 ファイトシェヒハイム、フンボルトシュトラッセ 2 9

(72) 発明者 フェストベーパー、ホルスト

ドイツ連邦共和国、3 4 8 3 0 ギルセルベルク - ピンターシャイト、デンクマルシュトラッセ 6

(72) 発明者 シュテッセル、フィリップ

ドイツ連邦共和国、6 5 9 2 9 フランクフルト、ホルテンズィーン - リンク 1 7

(72) 発明者 ホイン、スザンヌ

ドイツ連邦共和国、6 5 8 1 2 バート・ゾーデン、アム・カールスバウム 2 3

(72) 発明者 シュプライツァー、フベルト

ドイツ連邦共和国、6 8 5 1 9 ビエルンハイム、ブルノ - タウト - シュトラッセ 2 0

F ターム(参考) 3K007 AB06 AB11 DB03

专利名称(译)	发光基质材料和有机半导体的混合物，其用途，以及包含所述混合物的电子元件		
公开(公告)号	<a href="#">JP2006523740A</a>	公开(公告)日	2006-10-19
申请号	JP2006505097	申请日	2004-04-13
[标]申请(专利权)人(译)	默克豪迪ε不真实材料的Em-基于硬		
申请(专利权)人(译)	默克豪迪ε扫描材料有限公司		
[标]发明人	ゲルハルトアンヤ フェストペーパーホルスト シュテッセルフィリップ ホインズザンヌ シュプライツァーフベルト		
发明人	ゲルハルト、アンヤ フェストペーパー、ホルスト シュテッセル、フィリップ ホイン、スザンヌ シュプライツァー、フベルト		
IPC分类号	C09K11/06 H01L51/50 C07C49/223 C07C49/417 C07C49/67 C07C49/675 C07C49/697 C07C49/784 C07C49/792 C07C49/796 C07C49/798 C07C49/813 C07C49/84 C07C50/02 C07C251/24 C07C325/02 C07D251/20 H01L51/00 H01L51/30 H05B33/14		
CPC分类号	H01L51/0052 C07C49/223 C07C49/417 C07C49/67 C07C49/675 C07C49/697 C07C49/784 C07C49 /792 C07C49/796 C07C49/798 C07C49/813 C07C49/84 C07C50/02 C07C251/24 C07C325/02 C07C2603/18 C07C2603/95 C07D251/20 C09B67/0033 C09B67/0034 C09K11/06 C09K2211/1011 C09K2211/1014 H01L51/0037 H01L51/0058 H01L51/0059 H01L51/006 H01L51/0067 H01L51/0081 H01L51/0085 H01L51/5012 H01L2251/308 H05B33/14 Y02E10/549		
FI分类号	C09K11/06.690 H05B33/14.B C09K11/06.660		
F-TERM分类号	3K007/AB06 3K007/AB11 3K007/DB03		
代理人(译)	河野 哲 中村 诚		
优先权	10317556 2003-04-15 DE 10355358 2003-11-25 DE		
其他公开文献	JP5318347B2		
外部链接	<a href="#">Espacenet</a>		

#### 摘要(译)

本发明涉及一种至少两种材料的新型混合物，其中一种材料用作基质材料，另一种材料用作可发光的材料并含有至少一种原子序数为20或更多的元素。到。本发明还涉及所述混合物在有机电子元件如电致发光器件和显示器中的用途。

