

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第6329954号
(P6329954)

(45) 発行日 平成30年5月23日(2018.5.23)

(24) 登録日 平成30年4月27日(2018.4.27)

(51) Int.Cl.	F 1		
HO 1 L 51/50	(2006.01)	HO 5 B	33/22 D
C07C 211/54	(2006.01)	HO 5 B	33/14 A
C07C 217/92	(2006.01)	C07C	211/54 C S P
C09K 11/06	(2006.01)	C07C	217/92
C07D 213/38	(2006.01)	C09K	11/06 6 9 0

請求項の数 7 (全 36 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2015-537255 (P2015-537255)	(73) 特許権者	514135476 ノヴァレッド ゲーエムベーハー
(86) (22) 出願日	平成25年10月17日 (2013.10.17)		ドイツ連邦共和国, 0 1 3 0 7 ドレスデン, タツツベルク 4 9
(65) 公表番号	特表2016-502749 (P2016-502749A)	(74) 代理人	110000338 特許業務法人HARAKENZO WOLD PATENT & TRADEMARK
(43) 公表日	平成28年1月28日 (2016.1.28)		
(86) 国際出願番号	PCT/EP2013/071742	(72) 発明者	ツエルナー,マイク ドイツ連邦共和国, 0 1 2 1 7 ドレスデン, シンケルシュトラーゼ 8
(87) 国際公開番号	W02014/060526		
(87) 国際公開日	平成26年4月24日 (2014.4.24)	(72) 発明者	ヴィットケ, イエンス ドイツ連邦共和国, 0 1 1 5 9 ドレスデン, シュトレシュトラーゼ 6 8
審査請求日	平成28年9月28日 (2016.9.28)		
(31) 優先権主張番号	12188828.3		
(32) 優先日	平成24年10月17日 (2012.10.17)		
(33) 優先権主張国	欧州特許庁 (EP)		

最終頁に続く

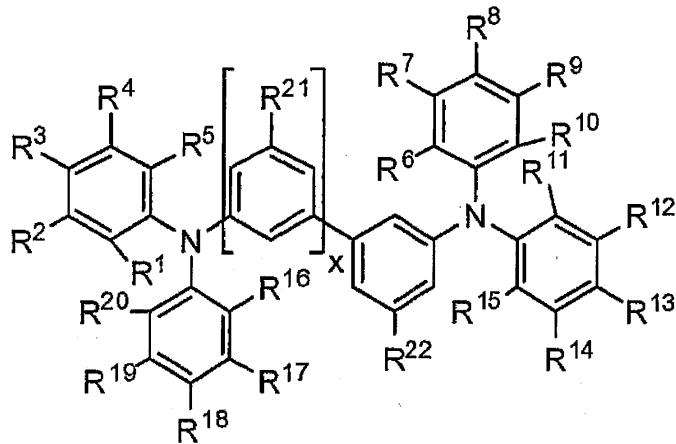
(54) 【発明の名称】 燐光OLEDおよび熐光OLED用正孔輸送材料

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

アノードとカソードとの間に、熐光発光体を含んでいる少なくとも1つの発光層と、一般式(I)によって示される化合物を含んでいる少なくとも1つの正孔輸送層および/または電子プロッキング層とを含んでおり、

【化1】



10

$R^1 \sim R^{20}$ は、水素、C1～C20のアルキルまたはC3～C20のシクロアルキル、C1～C20のアルコキシまたはC3～C20のシクロアルキロキシ、C7～C20のアリールアルキル、C6～C20のアリール、およびC2～C20のヘテロアリールから独立して選択され得、

20

i) $R^1 \sim R^5$ の少なくとも1つ、および $R^{11} \sim R^{15}$ の少なくとも1つが、C6～C20のアリールまたはC2～C20のヘテロアリールであるか、

ii) R^2 および R^1 、同様に R^{12} および R^{11} が、芳香環を形成するか、

iii) R^3 および R^2 、同様に R^{13} および R^{12} が、芳香環を形成し、

$R^6 \sim R^{10}$ の少なくとも2つ、および $R^{16} \sim R^{20}$ の少なくとも2つが、メチルであるか、 $R^6 \sim R^{10}$ の少なくとも1つ、および $R^{16} \sim R^{20}$ の少なくとも1つが、C2～C20のアルキル、C3～C20のシクロアルキル、C1～C20のアルコキシ、C3～C20のシクロアルキロキシ、C7～C20のアリールアルキル、C6～C20のアリール、およびC2～C20のヘテロアリールから選択され、

X は、0であり、 R^{22} は、 $R^1 \sim R^{20}$ と同じ意味を有することを特徴とする有機発光素子。

30

【請求項2】

$R^1 \sim R^5$ の少なくとも1つ、および $R^{11} \sim R^{15}$ の少なくとも1つは、C6～C20のアリールまたはC2～C20のヘテロアリールであり、その他の $R^1 \sim R^5$ 、および他の $R^{11} \sim R^{15}$ は、水素であることを特徴とする請求項1に記載の素子。

【請求項3】

$R^1 \sim R^5$ の少なくとも1つ、および $R^{11} \sim R^{15}$ の少なくとも1つは、フェニルであり、他の $R^1 \sim R^5$ 、および他の $R^{11} \sim R^{15}$ は、水素であることを特徴とする請求項1または2に記載の素子。

【請求項4】

40

$R^6 \sim R^{10}$ の少なくとも2つ、および $R^{16} \sim R^{20}$ の少なくとも2つが、メチルであるか、 $R^6 \sim R^{10}$ の少なくとも1つ、および $R^{16} \sim R^{20}$ の少なくとも1つが、C2～C20のアルキル、C3～C20のシクロアルキル、C1～C20のアルコキシ、C3～C20のシクロアルキロキシ、C7～C20のアリールアルキル、C6～C20のアリール、およびC2～C20のヘテロアリールから選択されることを特徴とする請求項1～3のいずれか1項に記載の素子。

【請求項5】

式(I)の化合物を含んでいる少なくとも1つの層が電気的にドープされていることを特徴とする請求項1～4のいずれか1項に記載の素子。

【請求項6】

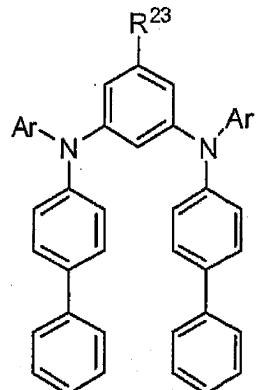
50

式(I)の化合物を含んでいる上記層は、少なくとも1つのドープされた部分と、当該ドープされた部分よりも少なくドープされているか、ドープされていない少なくとも1つの部分とを有していることを特徴とする請求項5に記載の素子。

【請求項7】

式(II)によって示され、

【化2】



10

||

20

R²³は、水素、C1～C20のアルキルまたはC3～C20のシクロアルキル、C1～C10のアルコキシまたはC3～C20のシクロアルキロキシ、C7～C20のアリールアルキル、C6～C20のアリール、およびC2～C20のヘテロアリールであり、Arは、4-tert-ブチルフェニル、3,5-ジメチルフェニル、および2,4,6-トリメチルフェニルから選択されることを特徴とする化合物。

【発明の詳細な説明】

【発明の詳細な説明】

【0001】

30

本発明は、発光有機発光素子、およびそのような発光有機発光素子（特に発光有機発光素子の正孔輸送層および/または電子ブロッキング層）に使用可能な化合物に関する。

【0002】

40

OLEDにおいては、特定の有機材料のエレクトロルミネッセンス（EL）特性が利用される。EL素子においては、電圧の印加によって、適切な荷電粒子が生成される。当該電荷粒子は、再結合すると活性状態を作り出し、この活性状態は発光によって基底状態に戻る。有機発光ダイオードは、効率を向上させるために、発光層に加えて、負および正の荷電粒子の発光層への輸送を担う複数の電荷輸送層も有していることが非常に多い。当該電荷輸送層は、輸送される荷電粒子に応じて、正孔伝導体と電子伝導体とに分類される。これに非常に似ている一連の層は、有機太陽電池等の光電池素子で知られている。複数の層を有する有機半導体素子は、例えば、真空下での蒸着または溶液からの堆積等の公知の方法によって製造することが可能である。

【0003】

つまり、有機発光ダイオードの場合、外部から印加された電圧、その後の活性領域における励起子（電子・正孔の対）の形成および当該励起子の放射再結合の結果、隣接する有機層へ、当該有機層との接点から電荷粒子が注入される（一方から電子が注入され、他方から正孔が注入される）ことにより、光が生成され、放射される。

【0004】

基板に隣接する陽極（アノード）を有する最も一般的なOLED構造が、図1に模式的に示されている。図中の番号1～9は下記の層を表している：

50

1. 基板
2. 基板電極（正孔注入（陽極）、通常透明）
3. 正孔注入層
4. 正孔輸送層（HTL）
5. 発光層（EL）
6. 電子輸送層（ETL）
7. 電子注入層
8. 被覆電極（通常、低仕事関数を有する金属、電子注入（陰極））
9. 封止材（周囲の影響を遮断するためのもの）。

【0005】

10

上記の構成は最も一般的な構成を示しているが、多くの場合はいくつかの層が省略されてもよいし、1つの層が複数の特性を兼ね備えていてもよい。

【0006】

有機半導体材料の重要な特性はその伝導率である。薄層サンプルの伝導率は、例えば、所謂2点法によって測定することができる。この際、薄層に電圧が印加され、当該層を流れる電流が測定される。接点の形状およびサンプルの層の厚みを考慮することにより、測定された抵抗値と伝導率とがそれぞれ得られる。

【0007】

OLEDにおいては、動作電圧（より正確には、全体的な電気抵抗）は、特定の層の抵抗および厚みのみによってではなく、特定の層から隣接する層へ荷電粒子を注入するためのエネルギー障壁によっても与えられる。素子の電力効率（所定の波長または所定の色域における光束の電力変換）は、全体的な抵抗によってもたらされるジュール損、および荷電粒子の光量子への変換効率によって決定される。当該変換効率は、荷電粒子（電子・正孔）バランスと、素子において形成された電子・正孔対（励起子）の放射再結合の量子効率とによって決定される。

20

【0008】

ジュール損を最小化し、荷電粒子のバランスを保ち、かつ、量子効率を最大化することが可能な材料およびOLEDの設計を開発するためのたゆまぬ努力が行われている。ジュール損を最小化することにおいては、顕著な改善が特有の電荷注入層の設計、および電気的にドープされた電荷輸送層の導入をもたらした。特定の電荷注入層および電荷ブロッキング層は、荷電粒子のバランスをも改善することができる。量子効率における最も重要な改善は、燐光発光体の導入をもたらした。当該燐光発光体は、1重項励起子のみならず、通常の環境下において励起子群の中で統計学的に優勢である3重項励起子状態の利用も可能とする。

30

【0009】

先行技術においては、正孔輸送層および/または電子/励起子ブロッキング層を製造するためには用いられる多数の材料が知られている。

【0010】

しかしながら、これまでの材料および設計の開発によってもたらされたOLEDの性能における目覚しい成果にもかかわらず、OLEDの効率は依然としてその理論上の限界よりもはるかに低く、その他多数のOLEDの性能パラメーター（明度および寿命等）もさらに改善し得るものである。

40

【0011】

したがって、本発明の目的は、現在の技術に係る正孔輸送マトリクスおよび電子ブロッキングマトリクスを利用する素子よりも低動作電圧および/または高効率を有する改善された燐光OLEDを提供することである。本発明の他の目的は、先行技術の欠点を克服した正孔輸送層および/または電子/励起子ブロッキング層のためのマトリクス材料として利用可能であり、特に燐光OLEDにおいて利用可能である新規な化合物を提供することである。

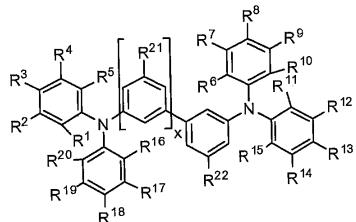
【0012】

50

上記の目的は、アノードとカソードとの間に、燐光発光体を含んでいる少なくとも1つの発光層と、一般式(I)によって示される化合物を含んでいる少なくとも1つの正孔輸送層とを含んでいるOLEDによって達成され、

〔 0 0 1 3 〕

【化 1 】



10

〔 0 0 1 4 〕

$R^1 \sim R^2$ は、水素、C1～C20のアルキルまたはC3～C20のシクロアルキル、C1～C20のアルコキシまたはC3～C20のシクロアルキロキシ、C7～C20のアリールアルキル、C6～C20のアリール、およびC2～C20のヘテロアリールから独立して選択し得、

i) $R^1 \sim R^5$ の少なくとも 1 つ、および $R^{11} \sim R^{15}$ の少なくとも 1 つが、 $C_6 \sim C_{20}$ のアリールまたは $C_2 \sim C_{20}$ のヘテロアリールであるか、

い い) R² および R¹ 、 同様に R^{1,2} および R^{1,1} が、芳香環を形成するか、

i i i) R^3 および R^2 、同様に R^1 R^3 および R^1 R^2 が、芳香環を形成し、

$R^{6-} \sim R^{1-0}$ の少なくとも 2 つ、および $R^{1-6} \sim R^{2-0}$ の少なくとも 2 つが、メチルであるか、 $R^{6-} \sim R^{1-0}$ の少なくとも 1 つ、および $R^{1-6} \sim R^{2-0}$ の少なくとも 1 つが、C₂ ~ C₂₀ のアルキル、C₃ ~ C₂₀ のシクロアルキル、C₁ ~ C₂₀ のアルコキシ、C₃ ~ C₂₀ のシクロアルキロキシ、C₇ ~ C₂₀ のアリールアルキル、C₆ ~ C₂₀ のアリール、および C₂ ~ C₂₀ のヘテロアリールから選択され、

x は、0 および 1 から選択される整数であり、 $x = 0$ の場合、 R^{2-2} は、 $R^1 \sim R^{2-0}$ と同じ意味を有し、 $x = 1$ の場合、 R^{2-1} および R^{2-2} は、水素、C1 ~ C10 のアルキル、C3 ~ C10 のシクロアルキル、C1 ~ C10 のアルコキシ、および C3 ~ C10 のシクロアルキロキシから独立して選択される。アルキル置換基またはアルコキシ置換基は、飽和または不飽和であり得、直鎖または分枝であり得る。シクロアルキル置換基またはシクロアルコキシ置換基は、飽和または不飽和であり得、単環式または多環式であり得る。置換基における炭素原子の全体数には、当該置換基内の任意のアルキル置換、分枝、および / または環式構造の発生が含まれている。炭素環、または O、N および S から独立して選択される 3 つ以下のヘテロ原子を含んでいる 5 員複素環を介して、ヘテロアリール置換基が結合していると好都合である。化合物 (I) 中の炭素原子の全体数は、150 以下であることが好ましい。 $R^1 \sim R^5$ 、 $R^6 \sim R^{1-0}$ 、 $R^{1-1} \sim R^{1-5}$ および $R^{1-6} \sim R^{2-0}$ から選択される置換基 (すなわち、構造 (I) において窒素原子に結合しているフェニル環の 1 つに結合している全ての置換基を意味する) の任意の基の炭素原子の全体数は、20 以下であることがより好ましい。 $R^1 \sim R^5$ 、 $R^6 \sim R^{1-0}$ 、 $R^{1-1} \sim R^{1-5}$ および $R^{1-6} \sim R^{2-0}$ から選択される置換基の任意の基の炭素原子の全体数は、12 以下であることが最も好ましい。

20

【 0 0 1 5 】

好ましい実施形態においては、 $R^1 \sim R^5$ の少なくとも 1 つ、および $R^{11} \sim R^{15}$ の少なくとも 1 つは、 $C_6 \sim C_{20}$ のアリールまたは $C_2 \sim C_{20}$ のヘテロアリールであり、他の $R^1 \sim R^5$ 、および $R^{11} \sim R^{15}$ は水素である。より好ましい実施形態においては、 $R^1 \sim R^5$ の少なくとも 1 つ、および $R^{11} \sim R^{15}$ の少なくとも 1 つはフェニルであり、他の $R^1 \sim R^5$ 、および $R^{11} \sim R^{15}$ は水素である。他の好ましい実施形態においては、 $R^6 \sim R^{10}$ の少なくとも 2 つ、および $R^{16} \sim R^{20}$ の少なくとも 2 つはメチルであり、または $R^6 \sim R^{10}$ の少なくとも 1 つ、および $R^{16} \sim R^{20}$ の

40

50

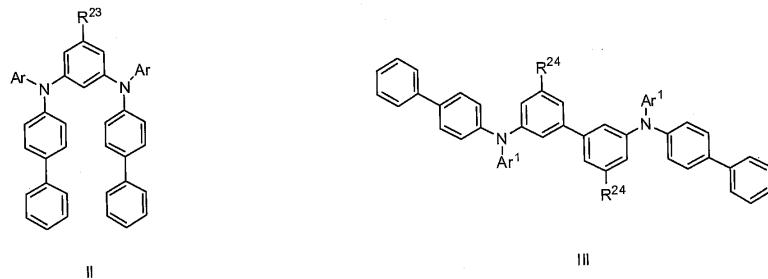
少なくとも1つは、C2～C20のアルキル、C3～C20のシクロアルキル、C1～C20のアルコキシ、C3～C20のシクロアルキロキシ、C7～C20のアリールアルキル、C6～C20のアリール、およびC2～C20のヘテロアリールから選択される。より好ましい実施形態においては、R⁶～R¹⁰の少なくとも2つ、およびR¹⁶～R²⁰の少なくとも2つはメチルであり、またはR⁶～R¹⁰の少なくとも1つ、およびR¹⁶～R²⁰の少なくとも1つは、C2～C20のアルキル、C3～C20のシクロアルキル、C1～C20のアルコキシ、C3～C20のシクロアルキロキシ、C7～C20のアリールアルキル、C6～C20のアリール、およびC2～C20のヘテロアリールから選択され、その他のR⁶～R¹⁰、およびR¹⁶～R²⁰は水素である。さらに好ましい実施形態においては、R³およびR¹³は、フェニルであり、R³およびR¹³を有するフェニル環上の他の置換基は、水素原子である。他の好ましい実施形態においては、R¹～R⁵は、R¹¹～R¹⁵と同じであり、R⁶～R¹⁰は、R¹⁶～R²⁰と同じである。さらに他の好ましい実施形態においては、R⁶～R¹⁰の少なくとも2つ、およびR¹⁶～R²⁰の少なくとも2つは、メチルであるか、またはR⁶～R¹⁰の少なくとも1つ、およびR¹⁶～R²⁰の少なくとも1つは、C2～C12のアルキルおよびC3～C12のシクロアルキルから選択される。R⁸およびR¹⁸は、tert-ブチルであるか、またはR⁷、R⁹、R¹⁷およびR¹⁹は、メチルであることがより好ましい。x=1の場合、R²¹およびR²²は、メチルまたはメトキシから独立して選択されることが好ましい。R²¹とR²²は、同一であることがより好ましい。また、上述した好ましい実施形態の任意の組み合わせの全てが好ましい。

【0016】

一般式(I I)または(I I I)によって示される一般構造(I)の実施形態を含んでいる素子がより好ましく、

【0017】

【化2】



10

20

30

【0018】

ArおよびAr¹は、4-tert-ブチルフェニル、3,5-ジメチルフェニルおよび2,4,6-トリメチルフェニルから選択され、R²³は、以上で定義されたR²²と同じ意味を有し、R²⁴は、水素、C1～C10のアルキル、C3～C10のシクロアルキル、C1～C10のアルコキシおよびC3～C10のシクロアルキロキシである。

【0019】

R²³は、C2～C20のアルキル、C3～C20のシクロアルキル、C1～C20のアルコキシ、C3～C20のシクロアルキロキシ、C7～C20のアリールアルキル、C6～C20のアリールおよびC2～C20のヘテロアリールから選択されることが好ましい。R²³は、メチル、フェニル、3,5-ジメチルフェニルおよび1,1'-ビフェニル-4-イルからなる群から選択されることがより好ましい。R²⁴は、C1～C4のアルキルまたはC1～C4のアルコキシであることが好ましい。R²⁴は、メチルおよびメトキシから選択されることがより好ましい。

【0020】

その他の目的は、以上で定義された一般式(I)の新規な化合物によって達成され、i) R¹～R⁵の少なくとも1つ、およびR¹¹～R¹⁵の少なくとも1つが、C6～C20のアリールまたはC2～C20のヘテロアリールであるか、

40

50

i i) R^2 および R^1 、同様に R^{1-2} および R^{1-1} が、芳香環を形成するか、
i i i) R^3 および R^2 、同様に R^{1-3} および R^{1-2} が、芳香環を形成し、

$R^6 \sim R^{1-0}$ の少なくとも 2 つ、および $R^{1-6} \sim R^{2-0}$ の少なくとも 2 つが、メチルであるか、 $R^6 \sim R^{1-0}$ の少なくとも 1 つ、および $R^{1-6} \sim R^{2-0}$ の少なくとも 1 つが、C 2 ~ C 2 0 のアルキル、C 3 ~ C 2 0 のシクロアルキル、C 1 ~ C 2 0 のアルコキシ、C 3 ~ C 2 0 のシクロアルキロキシ、C 7 ~ C 2 0 のアリールアルキル、C 6 ~ C 2 0 のアリール、および C 2 ~ C 2 0 のヘテロアリールから選択され、

x は、0 および 1 から選択される整数であり、 $x = 0$ の場合、 R^{2-2} は、 $R^{1-} \sim R^{2-0}$ と同じ意味を有し、 $x = 1$ の場合、 R^{2-1} および R^{2-2} は、水素、C 1 ~ C 1 0 のアルキル、C 3 ~ C 1 0 のシクロアルキル、C 1 ~ C 1 0 のアルコキシ、および C 3 ~ C 1 0 のシクロアルキロキシから独立して選択される。 10

【0021】

アルキル置換基またはアルコキシ置換基は、飽和または不飽和であり得、直鎖または分枝であり得る。シクロアルキル置換基またはシクロアルコキシ置換基は、飽和または不飽和であり得、単環式または多環式であり得る。置換基における炭素原子の全体数には、当該置換基内の任意のアルキル置換、分枝、および / または環式構造の発生が含まれている。炭素環、または O、N および S から独立して選択される 3 つ以下のヘテロ原子を含んでいる 5 員複素環を介して、ヘテロアリール置換基が結合していると好都合である。化合物 (I) 中の炭素原子の全体数は、150 以下であることが好ましい。R 1 ~ R 5、R 6 ~ R 1 0、R 1 1 ~ R 1 5 および R 1 6 ~ R 2 0 から選択される置換基 (すなわち、構造 (I) において窒素原子に結合しているフェニル環の 1 つに結合している全ての置換基を意味する) の任意の基の炭素原子の全体数は、20 以下であることがより好ましい。R 1 ~ R 5、R 6 ~ R 1 0、R 1 1 ~ R 1 5 および R 1 6 ~ R 2 0 から選択される置換基の任意の基の炭素原子の全体数は、12 以下であることが最も好ましい。 20

【0022】

本目的は、一般式 (I) の新規な化合物によって達成されることがより好ましく、
i) $R^1 \sim R^5$ の少なくとも 1 つ、および $R^{1-1} \sim R^{1-5}$ の少なくとも 1 つが、C 6 ~ C 2 0 のアリールまたは C 2 ~ C 2 0 のヘテロアリールであるか、

i i) R^2 および R^1 、同様に R^{1-2} および R^{1-1} が、芳香環を形成するか、
i i i) R^3 および R^2 、同様に R^{1-3} および R^{1-2} が、芳香環を形成し、 30

$R^6 \sim R^{1-0}$ の少なくとも 2 つ、および $R^{1-6} \sim R^{2-0}$ の少なくとも 2 つが、メチルであるか、 $R^6 \sim R^{1-0}$ の少なくとも 1 つ、および $R^{1-6} \sim R^{2-0}$ の少なくとも 1 つは、C 2 ~ C 2 0 のアルキル、C 3 ~ C 2 0 のシクロアルキル、C 1 ~ C 2 0 のアルコキシ、C 3 ~ C 2 0 のシクロアルキロキシ、C 7 ~ C 2 0 のアリールアルキル、C 6 ~ C 2 0 のアリール、および C 2 ~ C 2 0 のヘテロアリールから選択され、その他の $R^6 \sim R^{1-0}$ 、およびその他の $R^{1-6} \sim R^{2-0}$ は、H である。

【0023】

本目的は、一般式 (I) の新規な化合物によって達成されることがさらに好ましく、
R 1 ~ R 5 の少なくとも 1 つ、および $R^{1-1} \sim R^{1-5}$ の少なくとも 1 つが、C 6 ~ C 2 0 のアリールまたは C 2 ~ C 2 0 のヘテロアリールであるか、 40

$R^6 \sim R^{1-0}$ の少なくとも 2 つ、および $R^{1-6} \sim R^{2-0}$ の少なくとも 2 つが、メチルであるか、

$R^6 \sim R^{1-0}$ の少なくとも 1 つ、および $R^{1-6} \sim R^{2-0}$ の少なくとも 1 つが、C 2 ~ C 2 0 のアルキル、C 3 ~ C 2 0 のシクロアルキル、C 1 ~ C 2 0 のアルコキシ、C 3 ~ C 2 0 のシクロアルキロキシ、C 7 ~ C 2 0 のアリールアルキル、C 6 ~ C 2 0 のアリール、および C 2 ~ C 2 0 のヘテロアリールから選択され、

その他の $R^1 \sim R^5$ 、 $R^6 \sim R^{1-0}$ 、 $R^{1-1} \sim R^{1-5}$ 、および $R^{1-6} \sim R^{2-0}$ は、H である。

【0024】

本目的は、一般式 (I) の新規な化合物によって達成されることがさらに好ましく 50

R¹ ~ R⁵ の少なくとも 1 つ、および R¹¹ ~ R¹⁵ の少なくとも 1 つが、フェニルであるか、

R⁶ ~ R¹⁰ の少なくとも 2 つ、および R¹⁶ ~ R²⁰ の少なくとも 2 つが、メチルであるか、

R⁶ ~ R¹⁰ の少なくとも 1 つ、および R¹⁶ ~ R²⁰ の少なくとも 1 つが、C₂ ~ C₂₀ のアルキル、C₃ ~ C₂₀ のシクロアルキル、C₁ ~ C₂₀ のアルコキシ、C₃ ~ C₂₀ のシクロアルキロキシ、C₇ ~ C₂₀ のアリールアルキル、C₆ ~ C₂₀ のアリール、および C₂ ~ C₂₀ のヘテロアリールから選択され、

その他の R¹ ~ R⁵、R⁶ ~ R¹⁰、R¹¹ ~ R¹⁵、および R¹⁶ ~ R²⁰ は、H である。 10

【0025】

さらにより好ましくは、以上で定義された一般式 (II) または (III) の新規な化合物によって本目的が達成され、最も好ましくは、当該新規な化合物の上述した好ましい実施形態によって本目的が達成される。

【0026】

式 (I) の化合物を含んでいる少なくとも 1 つの層が電気的にドープされていることが好ましい。

【0027】

式 (I) の化合物を含んでいる上記層は、少なくとも 1 つのドープされた部分と、当該ドープされた部分よりも少なくドープされているか、ドープされていない少なくとも 1 つの部分とを有していることがより好ましい。この実施形態においては、上記の層のドープされた部分よりも少なくドープされているか、ドープされていない部分は、電子プロッキング層として機能する。 20

【0028】

さらに好ましい実施形態においては、層のドープされていない部分は、電子プロッキング層および 3 重項励起子プロッキング層として機能する。

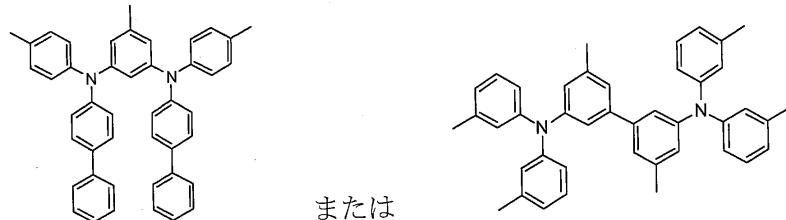
【0029】

〔発明の詳細な説明〕

より優れた OLED を得るための新たな方法を発見しようとする研究においては、驚くべきことに、以下のような長年知られてきた特定の正孔輸送材料が、 30

【0030】

【化3】

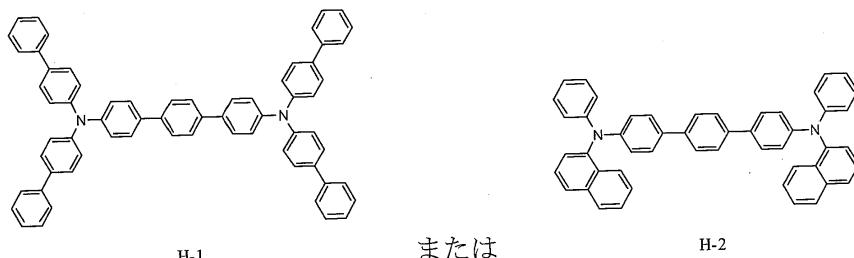


【0031】

熒光発光体を含んでいる OLED において用いられた場合、予期しないほど優れた機能を発揮することが本著者によって発見された。一方、従来の蛍光 OLED における上記の材料の性能は平均的なものにすぎず、以下のような従来の正孔輸送マトリクス材料によってもたらされるレベルに全く達しない。

【0032】

【化 4】



〔 0 0 3 3 〕

さらなる研究によって、実験を行った化合物の構造と改善との関係が明らかとなり、当該改善がより普遍的なものであることが実証された。表1は、以下の実施例において詳細に説明されている手順によって得られた実験結果を示している。実験を行った実験用OLEDにおいては、正孔輸送層はp型ドーパント（基板 / HTL / EBL列において記号pで示されている）でドープされている。表においては、基準値よりも低い電圧を示す化合物に対して、電圧列に負の値が付されている。反対に、電圧列における正の値は、本発明の化合物を含んでいる素子と同一条件下で製造された一連の参照用素子において測定された平均電圧と比較して、本発明の化合物を含んでいる一連の素子にて得られた望ましくない高い平均電圧を示している。効率列においては、本発明の化合物を含んでいる素子の平均効率が、比較素子の平均効率よりも高い場合を正の記号とし、参照例と比較して望ましくない低い効率の場合は負の記号としている。表中の最終列は、効率列の値と電圧列の値との数学的差を示している。得られた値は、全体的な性能を評価するための基準として利用した。3つの列のうちの少なくとも1つの列における正の値は、少なくとも1つの用途において、化合物がEBLまたはHTLまたは両方の層で用いられるという特定の場合に、電圧改善の割合が効率減少の割合以上であるか、反対に効率改善の割合が望ましくない電圧増加以上であるか、あるいは電圧と効率との両方の特性が改善したことを示している。蛍光青色OLEDにおいては、実験を行った全ての化合物について、特別な改善（効率値または電圧値の少なくとも1つにおいて）が一様に見られなかった。その結果、全ての全体的な性能値が強い負の値であった。驚くべきことに、燐光OLEDにおいては、実験を行った置換基の構造的特徴の組み合わせにおいて、明らかに失敗した（全ての用途において全体的に負の性能値をもたらした）のは、少なくとも1つの強力な電子抽出基を有するフェニルとして定義されたR²⁻³置換基のみであった。新規な正孔輸送材料および電子プロッキングマトリクス材料を提供するために得られた知識、特に3重項発光体を含んでいるOLEDにおいて有用な知識を利用した。

【 0 0 3 4 】

【表1】

実験した 化合物	コア置換基	外周 s	発光緑色			Q-電圧 [%]
			基板/HTL/EBL	電圧変化 [%]	効率変化Q [%]	
10	ITO / p-H-1 / H-2		-8	-49	-41	
	ITO / p-H-2 / H-2		-8	-50	-42	
	ITO / p-H-1 / TCTA		0			
	ITO / p-TCTA / TCTA		+38	+5		
	ITO / p-H-1 / MPD-1		-6	-5	1	
	ITO / p-MPD-1 / TCTA		+6	+15	9	
	ITO / p-MPD-1 / MPD-1		-4	+11	15	
	ITO / p-H-1 / MPD-2		-7	-47	-40	
	ITO / p-MPD-2 / TCTA		+1	+7	6	
	ITO / p-MPD-2 / MPD-2		-5	-44	-39	
	ITO / p-H-1 / MPD-3		-4	-46	-42	
20	ITO / p-MPD-3 / TCTA		-1	+6	7	
	ITO / p-MPD-3 / MPD-3		-3	-40	-37	
	ITO / p-H-1 / MPD-4		-6	-4	2	
	ITO / p-MPD-4 / TCTA		+1	+12	11	
	ITO / p-MPD-4 / MPD-4		-5	0	5	
	ITO / p-H-1 / MPD-5		-6	+1	7	
	ITO / p-MPD-5 / TCTA		+5	+13	8	
	ITO / p-MPD-5 / MPD-5		-5	+13	18	
	ITO / p-H-1 / MPD-6		-4	0	4	
	ITO / p-MPD-6 / TCTA		+5	+14	9	
	ITO / p-MPD-6 / MPD-6		-3	+13	16	
30	ITO / p-H-1 / MPD-7		-8	-15	-7	
	ITO / p-MPD-7 / TCTA		+4	+10	6	
	ITO / p-MPD-7 / MPD-7		-5	-4	1	
	ITO / p-H-1 / MPD-8		-7	-9	-2	
	ITO / p-MPD-8 / TCTA		+10	+13	3	
	ITO / p-MPD-8 / MPD-8		+2	+3	1	
	ITO / p-H-1 / MPD-9		-6	-6	0	
	ITO / p-MPD-9 / TCTA		+6	+16	10	
	ITO / p-MPD-9 / MPD-9		-5	+9	14	
	ITO / p-H-1 / MPD-10		+3	+4	1	
	ITO / p-MPD-10 / TCTA		+14	+20	6	
40	ITO / p-MPD-10 / MPD-10		+18	+16	-2	
	ITO / p-H-1 / MPD-11		+8	-7	-15	
	ITO / p-MPD-11 / TCTA		+18	+6	-12	
	ITO / p-MPD-11 / MPD-11		+30	+3	-27	

【0035】

ITO / p-H-1 / MPD-12	-5	-2	3
ITO / p-MPD-12 / TCTA	+16	+14	-2
ITO / p-MPD-12 / MPD-12	+8	+12	4
ITO / p-H-1 / MPD-13	-7	-5	2
ITO / p-MPD-13 / TCTA	-7	-5	2
ITO / p-MPD-13 / MPD-13	-5	+8	13
ITO / p-H-1 / MPD-14	-8	-13	-5
ITO / p-MPD-14 / TCTA	+2	+12	10
ITO / p-MPD-14 / MPD-14	-6	-5	1
ITO / p-H-1 / MPD-15	-7	-16	-9
ITO / p-MPD-15 / TCTA	+1	+9	8
ITO / p-MPD-15 / MPD-15	-4	-9	-5
ITO / p-H-1 / MDAB-1	-4	0	4
ITO / p-MDAB-1 / TCTA	+6	+14	8
ITO / p-MDAB-1 / MDAB-1	-2	+12	14
ITO / p-H-1 / MDAB-2	-5	-1	4
ITO / p-MDAB-2 / TCTA	+8	+14	6
ITO / p-MDAB-2 / MDAB-2	-2	+13	15
ITO / p-H-1 / MDAB-3	-6	-5	1
ITO / p-MDAB-3 / TCTA	+2	+6	4
ITO / p-MDAB-3 / MDAB-3	-4	+4	8
ITO / p-H-1 / MDAB-4	-4	-3	1
ITO / p-MDAB-4 / TCTA	+13	+8	-5
ITO / p-MDAB-4 / MDAB-4	+15	+7	-8
ITO / p-H-1 / MDAB-5	-2	+1	3
ITO / p-MDAB-5 / TCTA	+19	+7	-12
ITO / p-MDAB-5 / MDAB-5	+19	+8	-11

【 0 0 3 6 】

さらに、本発明の化合物は、青色蛍光OLEDにおける正孔輸送マトリクスおよび/または電子ブロッキングマトリクスとして使用された場合も有利であることが発見された。

(0 0 3 7)

〈発光層、電子輸送層、正孔ブロッキング層、電極〉

本発明の燐光発光素子における本発明の正孔輸送層および／または電子プロッキング層以外の部分は、科学文献および特許文献に開示されている種々の材料を用いて種々の構成に製造されてもよい。

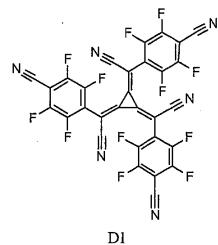
【 0 0 3 8 】

実施例においては、以下の支持材料を使用した：

p型ドーパントとして、

[0 0 3 9]

【化 5】



〔 0 0 4 0 〕

30

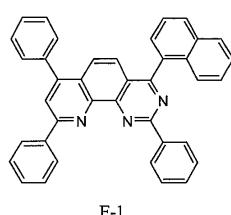
40

50

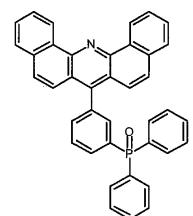
電子輸送マトリクスとして、

【0041】

【化6】



E-1



E2

および

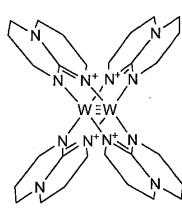
10

【0042】

n型ドーパントとして、

【0043】

【化7】



D2

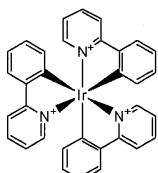
20

【0044】

3重項発光体として、

【0045】

【化8】



Irppy

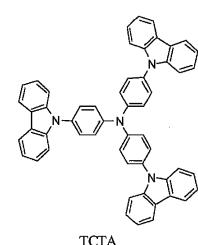
30

【0046】

公知の電子ブロッキングマトリクスとして、

【0047】

【化9】



TCTA

40

【0048】

を使用した。

【0049】

〔図面の説明〕

図1：実験用ボトムエミッショントン型発光OLEDの模式図である。

【0050】

図2：a)は、層1の堆積を示す上面図であり（p型ドープされた本発明の材料（縞状

50

)、p型ドープされた参照例(点状)(左側); b)は、基板を90°回転させた後の層2の上面図であり、本発明の材料が上段(領域A, C)に位置し、参照用材料が下段(領域B, D)に位置している。

【0051】

図3a～図3g: CD₂Cl₂溶液において測定された、式(I1)を有する実施例の化合物の¹H-NMRスペクトル(500.13MHzにて、5.31ppmを基準とする)であり、図3aはMDAB-1、図3bはMDAB-2、図3cはMDAB-3、図3dはMDAB-4、図3eはMDAB-5、図3fはMDAB-6、図3gはMDAB-7の¹H-NMRスペクトルである。

【0052】

図4a～図4o:図3と同一条件下で測定された、式(I1I)を有する実施例の化合物の¹H-NMRスペクトルであり、図4aはMPD-1、図4bはMPD-2、図4cはMPD-3、図4dはMPD-4、図4eはMPD-5、図4fはMPD-6、図4gはMPD-7、図4hはMPD-8、図4iはMPD-9、図4jはMPD-10、図4kはMPD-11、図4lはMPD-12、図4mはMPD-13、図4nはMPD-14、図4oはMPD-15の¹H-NMRスペクトルである。

【0053】

〔実施例〕

<3,5-ジブロモフェニレンの一般的な処理>

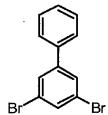
1,3,5-トリブロモベンゼン、ボロン酸およびPd(PPh₃)₄をトルエンとエタノールとの混合物中に溶解して、脱気された2MのNa₂CO₃水溶液を加えた。この混合物を18時間還流し、室温まで冷却した後、水相から有機相を分離した。当該水相をトルエンで3回抽出した。混合した有機相を蒸発乾固させ、残渣は溶離液としてジクロロメタン(DCM)を使用してシリカゲルパッドを介して濾過した。溶媒を蒸発させた後、溶離液としてヘキサン:DCM混合物を使用してシリカゲルによるカラムクロマトグラフィによって粗生成物を精製した。薄層クロマトグラフィ(TLC)においては、上部のメインスポットが所望の生成物と特定され、下部のスポットが副生成物である3,5-ジ置換ブロモベンゼンと特定された。

【0054】

[3,5-ジブロモ-1,1'-ビフェニル]

【0055】

【化10】



【0056】

1,3,5-トリブロモベンゼン: 10.20g (1.2eq, 32.4mmol)

フェニルボロン酸: 3.30g (1.0eq, 27.1mmol)

Pd(PPh₃)₄: 625mg (2mol%, 0.54mmol)

トルエン: 160mL

エタノール: 54mL

2MのNa₂CO₃: 27mL

収率: 5.53g (65%)

GC-MS: m/z = 310 / 312 / 314。

【0057】

[3,5-ジブロモ-3',5'-ジメチル-1,1'-ビフェニル]

【0058】

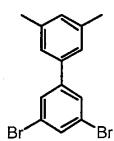
10

20

30

40

【化11】



【0059】

1,3,5-トリブロモベンゼン: 13.00 g (1.2 eq, 41.3 mmol)

3,5-ジメチルフェニルボロン酸: 5.16 g (1.0 eq, 34.4 mmol)

Pd (PPh₃)₄: 795 mg (2 mol %, 0.69 mmol)

トルエン: 160 mL

10

エタノール: 68 mL

2 M の Na₂CO₃: 34 mL

収率: 7.13 g (61%)

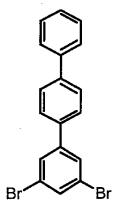
GC-MS: m/z = 338 / 340 / 342。

【0060】

[3,5-ジブロモ-1,1':4',1''-テルフェニル]

【0061】

【化12】



20

【0062】

1,3,5-トリブロモベンゼン: 10.00 g (1.2 eq, 31.77 mmol)

4-ビフェニルボロン酸: 5.24 g (1.0 eq, 26.47 mmol)

Pd (PPh₃)₄: 612 mg (2 mol %, 0.53 mmol)

トルエン: 160 mL

30

エタノール: 52 mL

2 M の Na₂CO₃: 26 mL

収率: 4.95 g (48%)

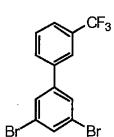
GC-MS: m/z = 386 / 388 / 390。

【0063】

[3,5-ジブロモ-3'-(トリフルオロメチル)-1,1'-ビフェニル]

【0064】

【化13】



40

【0065】

1,3,5-トリブロモベンゼン: 10.00 g (1.2 eq, 31.77 mmol)

3-(トリフルオロメチル)フェニルボロン酸: 5.03 g (1.0 eq, 26.47 mmol)

Pd (PPh₃)₄: 611 mg (2 mol %, 0.53 mmol)

トルエン: 160 mL

エタノール: 52 mL

2 M の Na₂CO₃: 26 mL

収率: 5.57 g (56%)

50

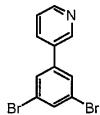
G C - M S : m / z = 3 7 8 / 3 8 0 / 3 8 2。

【 0 0 6 6 】

[3 - (3 , 5 - ジブロモフェニル) ピリジン]

【 0 0 6 7 】

【 化 1 4 】



【 0 0 6 8 】

10

1 , 3 , 5 - トリブロモベンゼン : 1 0 . 0 0 g (1 . 2 e q , 3 1 . 7 7 m m o l)

3 - (4 , 4 , 5 , 5 - テトラメチル - 1 , 3 , 2 - ジオキサボロラン - 2 - イル) ピリジン : 5 . 4 3 g (1 . 0 e q , 2 6 . 4 7 m m o l)

P d (P P h ₃) ₄ : 6 1 2 m g (2 m o l % , 0 . 5 3 m m o l)

トルエン : 1 6 0 m L

エタノール : 5 2 m L

2 M の N a ₂ C O ₃ : 2 6 m L

収率 : 4 . 0 0 g (4 8 %)

G C - M S : m / z = 3 1 1 / 3 1 3 / 3 1 5。

【 0 0 6 9 】

20

< ビフェニル系コアの一般的な処理 >

ジブロモ化合物をエーテル中に溶解し、アルミニウム箔によってフラスコを光から遮断した。溶液を - 8 0 まで冷却し、3 0 分以内にブチルリチウムを加えた。ブチルリチウムの添加後、溶液を - 8 0 で 9 0 分間保持した。激しく攪拌しながら塩化銅 (I I) を一度に加えた。溶液を室温まで温め、一晩中攪拌した。T L C は、出発材料が消失し、そして混合物中の唯一の成分として新たな生成物が形成されたことを示した。混合物を 1 0 % の N H ₄ O H 水で 3 回、塩水で 1 回、水で 1 回洗浄した。有機相を M g S O ₄ で乾燥させて、D C M / ヘキサンを 1 : 1 の割合で使用してシリカゲルパッドを介して濾過した。溶液を蒸発させた後、沸騰したメタノールで粗組成物を 1 5 分間洗浄し、その後濾過して乾燥させた。

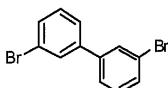
30

【 0 0 7 0 】

[3 , 3 ' - ジブロモ - 1 , 1 ' - ビフェニル]

【 0 0 7 1 】

【 化 1 5 】



【 0 0 7 2 】

3 , 5 - ジブロモベンゼン : 5 8 . 9 8 g (1 . 0 e q , 2 5 0 m m o l)

n - ブチルリチウム (ヘキサン中に 2 . 5 M) : 1 0 0 m L (1 . 0 e q , 2 5 0 m m o l)

40

塩化銅 (I I) : 3 6 . 9 7 g (1 . 1 e q , 2 7 5 m m o l)

ジエチルエーテル : 8 0 0 m L

収率 : 2 2 . 0 6 g (5 6 %)

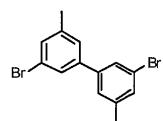
G C - M S : m / z = 3 1 0 / 3 1 2 / 3 1 4。

【 0 0 7 3 】

[3 , 3 ' - ジブロモ - 5 , 5 ' - ジメチル - 1 , 1 ' - ビフェニル]

【 0 0 7 4 】

【化16】



【0075】

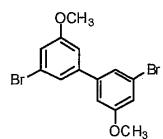
3,5-ジブロモトルエン: 62.48 g (1.0 eq, 250 mmol) 10
 n-ブチルリチウム(ヘキサン中に2.5M): 100 mL (1.0 eq, 250 mmol)
 塩化銅(II): 36.97 g (1.1 eq, 275 mmol)
 ジエチルエーテル: 800 mL
 収率: 22.1 g (52%)
 GC-MS: m/z = 338 / 340 / 342。

【0076】

[3,3'-ジブロモ-5,5'-ジメトキシ-1,1'-ビフェニル]

【0077】

【化17】



20

【0078】

3,5-ジブロモアニソール: 16.40 g (1.0 eq, 61.7 mmol)
 n-ブチルリチウム(ヘキサン中に2.5M): 27 mL (1.0 eq, 67.8 mmol)
 塩化銅(II): 9.12 g (1.1 eq, 67.8 mmol)
 ジエチルエーテル: 200 mL
 収率: 9.7 g (85%)
 GC-MS: m/z = 370 / 372 / 374。

【0079】

30

<第2級アミンの一般的な処理>

不活性雰囲気下において、ブロモアリール成分、酢酸パラジウム(II)、炭酸セシウムおよび2,2'-ビス(ジフェニルホスフィノ)-1,1'-ビナフチル(BINAP)をフラスコ内にて混合し、1,4-ジオキサン中に溶解した。第1級アリールアミン成分を加えた後、混合物を加熱して還流させ、18~48時間攪拌した。TLCは、反応が完了したことを示した。当該混合物を室温まで冷却し、シリカゲルパッドを介して濾過した。DCMを用いて洗浄し、溶液を蒸発させた後、粗生成物をカラムクロマトグラフィ(SiO₂、ヘキサン:DCM混合物)によって精製した。混合した分画は蒸発乾固され、得られた固体は所望の生成物を得るためにヘキサンから再結晶化された。

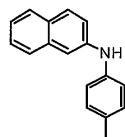
【0080】

40

[N-(p-トリル)ナフタレン-2-アミン]

【0081】

【化18】



【0082】

2-ブロモナフタレン: 15 g (1.0 eq, 72.44 mmol)
 p-トルイジン: 11.6 g (1.5 eq, 108.6 mmol)

50

酢酸パラジウム(II) : 488 mg (3.0 mol %, 2.17 mmol)

BINAP : 2.0 g (4.5 mol %, 3.26 mmol)

炭酸セシウム : 47.20 g (2.0 eq, 144.9 mmol)

ジオキサン : 150 mL

収率 : 11.4 g (67%)

GC-MS : m/z = 233。

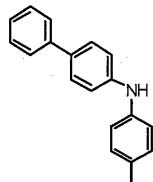
【0083】

[N-(4-(メチル)フェニル)-[1,1'-ビフェニル]-4-アミン]

【0084】

【化19】

10



【0085】

4-ブロモビフェニル : 20.0 g (1.0 eq, 85.8 mmol)

4-トルイジン : 9.65 g (1.05 eq, 90.1 mmol)

酢酸パラジウム(II) : 578 mg (3.0 mol %, 2.6 mmol)

20

BINAP : 2.40 g (4.5 mol %, 3.9 mmol)

炭酸セシウム : 39.14 g (1.4 eq, 120.1 mmol)

ジオキサン : 200 mL

収率 : 19.20 g (86%)

EI-MS : m/z = 259。

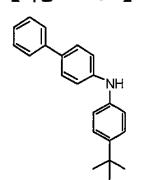
【0086】

[N-(4-(tert-ブチル)フェニル)-[1,1'-ビフェニル]-4-アミン]

【0087】

【化20】

30



【0088】

4-ブロモビフェニル : 20 g (1.0 eq, 85.8 mmol)

4-(tert-ブチル)アニリン : 15.36 g (1.2 eq, 102.9 mmol)

酢酸パラジウム(II) : 578 mg (3.0 mol %, 2.57 mmol)

BINAP : 2.4 g (4.5 mol %, 3.86 mmol)

炭酸セシウム : 55.90 g (2.0 eq, 171.6 mmol)

40

ジオキサン : 220 mL

収率 : 13.9 g (54%)

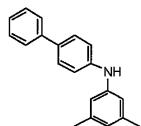
GC-MS : m/z = 301。

【0089】

[N-(3,5-ジメチルフェニル)-[1,1'-ビフェニル]-4-アミン]

【0090】

【化21】



【0091】

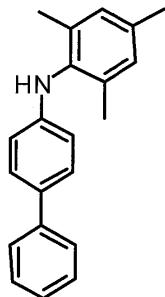
4 - ブロモビフェニル : 30.00 g (1.0 eq, 128.70 mmol)
 3,5 - ジメチルアニリン : 16.38 g (1.05 eq, 135.10 mmol)
 酢酸パラジウム (II) : 867 mg (3.0 mol %, 3.86 mmol)
 BINA P : 3.60 g (4.5 mol %, 5.79 mmol) 10
 炭酸セシウム : 58.70 g (1.4 eq, 180.00 mmol)
 ジオキサン : 300 mL
 収率 : 21.34 g (60%)
 GC - MS : m/z = 273。

【0092】

[N - メチル - [1,1' - ビフェニル] - 4 - アミン]

【0093】

【化22】



20

【0094】

4 - ブロモビフェニル : 20.00 g (1.0 eq, 85.8 mmol)
 メチルアミン : 12.18 g (1.05 eq, 90.1 mmol)
 酢酸パラジウム (II) : 578 mg (3.0 mol %, 2.57 mmol) 30
 BINA P : 2.40 g (4.5 mol %, 3.86 mmol)
 炭酸セシウム : 39.13 g (1.4 eq, 120.1 mmol)
 ジオキサン : 200 mL
 収率 : 12.53 g (51%)
 GC - MS : m/z = 287。

【0095】

<3,5 - ジアミノフェニレン類の第3級アミンの通常手順>

不活性雰囲気下において、第2級アミン、ジブロモ化合物、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム、トリ-tert - ブチルホスフィンおよびカリウム-tert - ブトキシドをフラスコ内にて混合し、トルエン中に溶解した。この混合物を80で80分間攪拌し、その後室温まで冷却した。TLCは、出発材料が完全に消失したことを示した。混合物をシリカゲルパッドを介して濾過し、DCM / ヘキサンが1:2の割合である混合物で洗浄し、蒸発乾固した。沸騰したメタノール中にて粗生成物を攪拌した。室温まで冷却した後、混合物を濾過して生成物を生成した。TLCが、不純物が残っていることを示した場合にはカラムクロマトグラフィを利用した。最後に、全ての第3級アミンは、高真空状態(10⁻⁶ mbar)下において、勾配昇華によって精製された。 40

【0096】

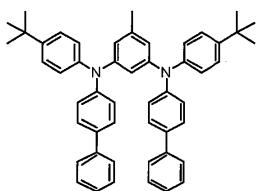
[N1, N3 - ジ([1,1' - ビフェニル] - 4 - イル) - N1, N3 - ビス(4 - (tert - ブチル)フェニル) - 5 - メチルベンゼン - 1,3 - ジアミン (MPD - 1)]

【0097】

40

50

【化23】



【0098】

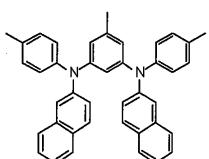
3,5-ジブロモトルエン: 2.8 g (1.0 eq, 11.2 mmol) 10
 N-(4-(tert-ブチル)フェニル)-[1,1'-ビフェニル]-4-アミン: 7.1 g (2.1 eq, 23.6 mmol)
 ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム: 129 mg (2 mol %, 0.22 mmol)
 トリ-tert-ブチルホスフィン: 68 mg (3 mol %, 0.34 mmol)
 カリウム-tert-ブトキシド: 3.77 g (3.0 eq, 33.6 mmol)
 トルエン: 220 mL
 収率: 7.03 g (91%)
 HPLC-MS: m/z = 691 [M + H⁺]。

【0099】

[5-メチル-N1,N3-ジ(ナフタレン-2-イル)-N1,N3-ジ-p-トリルベンゼン-1,3-ジアミン(MPD-2)(比較例)] 20

【0100】

【化24】



【0101】

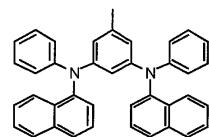
3,5-ジブロモトルエン: 2.0 g (1.0 eq, 8.0 mmol) 30
 N-(p-トリル)ナフタレン-2-アミン: 3.92 g (2.1 eq, 16.8 mmol)
 ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム: 92 mg (2.0 mol %, 0.16 mmol)
 トリ-tert-ブチルホスフィン: 49 mg (3 mol %, 0.24 mmol)
 カリウム-tert-ブトキシド: 2.69 g (3.0 eq, 24 mmol)
 トルエン: 130 mL
 収率: 3.95 g (70%)
 HPLC-MS: m/z = 555 [M + H⁺]。

【0102】

[5-メチル-N1,N3-ジ(ナフタレン-1-イル)-N1,N3-ジフェニルベンゼン-1,3-ジアミン(MPD-3)(比較例)] 40

【0103】

【化25】



【0104】

3,5-ジブロモトルエン: 5.0 g (1.0 eq, 20.0 mmol) 50

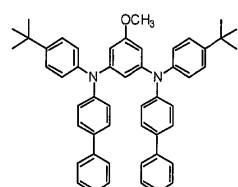
N - フェニルナフタレン - 1 - アミン : 9.21 g (2.1 eq , 42.0 mmol)
 ビス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム : 230 mg (2 mol % , 0.40 mmol)
 トリ - tert - ブチルホスフィン : 121 mg (3 mol % , 0.60 mmol)
 カリウム - tert - ブトキシド : 6.73 g (3.0 eq , 60.0 mmol)
 トルエン : 150 mL
 収率 : 9.31 g (88 %)
 HPLC - MS : m/z = 527 [M + H⁺] 。

【0105】

[N1 , N3 - ジ ([1 , 1' - ピフェニル] - 4 - イル) - N1 , N3 - ビス (4 - (tert - ブチル) フェニル) - 5 - メトキシベンゼン - 1 , 3 - ジアミン (MPD - 4)] 10

【0106】

【化26】



20

【0107】

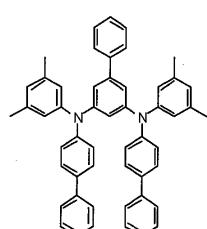
3 , 5 - ジブロモアニソール : 2.00 g (1.0 eq , 7.50 mmol)
 N - (4 - (tert - ブチル) フェニル) - [1 , 1' - ピフェニル] - 4 - アミン : 4.76 g (2.1 eq , 15.8 mmol)
 ビス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム : 86 mg (2.0 mol % , 0.15 mmol)
 トリ - tert - ブチルホスフィン : 46 mg (3 mol % , 0.23 mmol)
 カリウム - tert - ブトキシド : 2.52 g (3.0 eq , 22.5 mmol)
 トルエン : 130 mL
 収率 : 5.08 g (96 %) 30
 HPLC - MS : m/z = 707 [M + H⁺] 。

【0108】

[N3 , N5 - ジ ([1 , 1' - ピフェニル] - 4 - イル) - N3 , N5 - ビス (3 , 5 - ジメチルフェニル) - [1 , 1' - ピフェニル] - 3 , 5 - ジアミン (MPD - 5)]

【0109】

【化27】



40

【0110】

3 , 5 - ジブロモ - 1 , 1' - ピフェニル : 1.9 g (1.0 eq , 6.1 mmol)
 N - (3 , 5 - ジメチルフェニル) - [1 , 1' - ピフェニル] - 4 - アミン : 3.5 g (2.1 eq , 12.8 mmol)
 ビス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム : 70 mg (2 mol % , 0.12 mmol) 50

トリ-tert-ブチルホスフィン: 37 mg (3 mol %, 0.18 mmol)

カリウム-tert-ブトキシド: 2.05 g (3.0 eq, 18.3 mmol)

トルエン: 150 mL

収率: 2.94 g (69%)

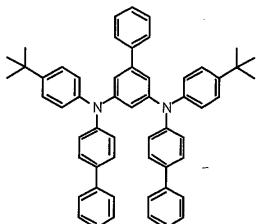
HPLC-MS: m/z = 719 [M + Na⁺].

【0111】

[N3, N5-ジ([1,1'-ビフェニル]-4-イル)-N3, N5-ビス(4-(tert-ブチル)フェニル)-[1,1'-ビフェニル]-3,5-ジアミン(MPD-6)]

【0112】

【化28】



【0113】

3,5-ジブロモ-1,1'-ビフェニル: 1.80 g (1.0 eq, 5.8 mmol)

)

N-(4-(tert-ブチル)フェニル)-[1,1'-ビフェニル]-4-アミン: 3.65 g (2.1 eq, 12.1 mmol)

ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム: 66 mg (2 mol %, 0.12 mmol)

トリ-tert-ブチルホスフィン: 35 mg (3 mol %, 0.17 mmol)

カリウム-tert-ブトキシド: 1.94 g (3.0 eq, 17.3 mmol)

トルエン: 150 mL

収率: 4.17 g (96%)

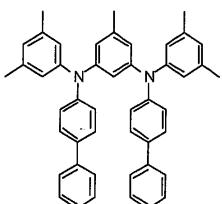
HPLC-MS: m/z = 775 [M + Na⁺].

【0114】

[N1, N3-ジ([1,1'-ビフェニル]-4-イル)-N1, N3-ビス(3,5-ジメチルフェニル)-5-メチルベンゼン-1,3-ジアミン(MPD-7)]

【0115】

【化29】



【0116】

3,5-ジブロモトルエン: 1.52 g (1.0 eq, 6.1 mmol)

N-(3,5-ジメチルフェニル)-[1,1'-ビフェニル]-4-アミン: 3.50 g (2.1 eq, 12.8 mmol)

ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム: 70 mg (2 mol %, 0.12 mmol)

トリ-tert-ブチルホスフィン: 37 mg (3 mol %, 0.18 mmol)

カリウム-tert-ブトキシド: 2.05 g (3.0 eq, 18.3 mmol)

トルエン: 150 mL

10

30

40

50

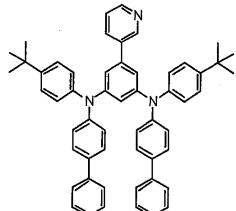
H P L C - M S : m / z = 8 0 3 [M + N a⁺] 。

【 0 1 2 3 】

[N 1 , N 3 - ジ ([1 , 1 ' - ビフェニル] - 4 - イル) - N 1 , N 3 - ビス (4 - (tert - ブチル) フェニル) - 5 - (ピリジン - 3 - イル) ベンゼン - 1 , 3 - ジアミン (M P D - 1 0)]

【 0 1 2 4 】

【 化 3 2 】



10

【 0 1 2 5 】

3 - (3 , 5 - ジブロモフェニル) ピリジン : 1 . 5 0 g (1 . 0 e q , 4 . 8 m m o l)

N - (4 - (tert - ブチル) フェニル) - [1 , 1 ' - ビフェニル] - 4 - アミン : 3 . 0 g (2 . 1 e q , 1 0 . 1 m m o l)

ビス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム : 5 5 m g (2 m o l % , 0 . 1 0 m m o l)

20

トリ - tert - ブチルホスフィン : 2 9 m g (3 m o l % , 0 . 1 4 m m o l)

カリウム - tert - プトキシド : 1 . 6 2 g (3 . 0 e q , 1 4 . 4 m m o l)

トルエン : 1 2 0 m L

収率 : 2 . 4 0 g (6 6 %)

H P L C - M S : m / z = 7 5 4 [M + H⁺] 。

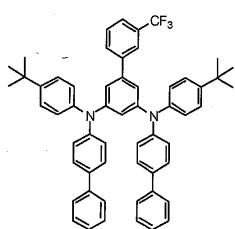
【 0 1 2 6 】

[N 3 , N 5 - ジ ([1 , 1 ' - ビフェニル] - 4 - イル) - N 3 , N 5 - ビス (4 - (tert - ブチル) フェニル) - 3 ' - (トリフルオロメチル) - [1 , 1 ' - ビフェニル] - 3 , 5 - ジアミン (M P D - 1 1)]

【 0 1 2 7 】

30

【 化 3 3 】



【 0 1 2 8 】

3 , 5 - ジブロモ - 3 ' - (トリフルオロメチル) - 1 , 1 ' - ビフェニル : 1 . 8 2 g (1 . 0 e q , 4 . 8 m m o l)

40

N - (4 - (tert - ブチル) フェニル) - [1 , 1 ' - ビフェニル] - 4 - アミン : 3 . 0 g (2 . 1 e q , 1 0 . 1 m m o l)

ビス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム : 5 5 m g (2 m o l % , 0 . 1 0 m m o l)

トリ - tert - ブチルホスフィン : 2 9 m g (3 m o l % , 0 . 1 4 m m o l)

カリウム - tert - プトキシド : 1 . 6 2 g (3 . 0 e q , 1 4 . 4 m m o l)

トルエン : 1 2 0 m L

収率 : 3 . 2 9 g (8 4 %)

H P L C - M S : m / z = 8 4 3 [M + N a⁺] 。

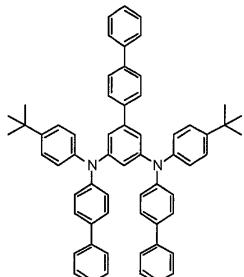
【 0 1 2 9 】

50

[N 3 , N 5 - ジ ([1 , 1 ' - ビフェニル] - 4 - イル) - N 3 , N 5 - ビス (4 - (tert - プチル) フェニル) - [1 , 1 ' : 4 ' , 1 '' - テルフェニル] - 3 , 5 - ジアミン (M P D - 1 2)]

【0130】

【化34】



10

【0131】

3 , 5 - ジブロモ - 1 , 1 ' : 4 ' , 1 '' - テルフェニル : 1 . 8 6 g (1 . 0 e q , 4 . 8 m m o l)

N - (4 - (tert - プチル) フェニル) - [1 , 1 ' - ビフェニル] - 4 - アミン : 3 . 0 3 g (2 . 1 e q , 1 0 . 1 m m o l)

ビス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム : 5 5 m g (2 m o l % , 0 . 1 0 m m o l)

20

トリ - tert - プチルホスフィン : 2 9 m g (3 m o l % , 0 . 1 4 m m o l)

カリウム - tert - プトキシド : 1 . 6 2 g (3 . 0 e q , 1 4 . 4 m m o l)

トルエン : 1 2 0 m L

収率 : 3 . 2 0 g (8 0 %)

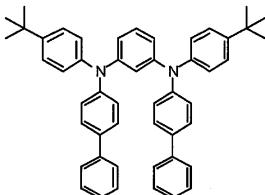
H P L C - M S : m / z = 8 5 1 [M + N a ⁺] 。

【0132】

[N 1 , N 3 - ジ ([1 , 1 ' - ビフェニル] - 4 - イル) - N 1 , N 3 - ビス (4 - (tert - プチル) フェニル) ベンゼン - 1 , 3 - ジアミン (M P D - 1 3)]

【0133】

【化35】



30

【0134】

3 , 5 - ジブロモベンゼン : 2 . 5 g (1 . 0 e q , 1 0 . 6 m m o l)

N - (4 - (tert - プチル) フェニル) - [1 , 1 ' - ビフェニル] - 4 - アミン : 6 . 7 0 g (2 . 1 e q , 2 2 . 2 6 m m o l)

40

ビス (ジベンジリデンアセトン) パラジウム : 1 2 1 m g (2 m o l % , 0 . 2 1 m m o l)

トリ - tert - プチルホスフィン : 6 4 m g (3 m o l % , 0 . 3 2 m m o l)

カリウム - tert - プトキシド : 3 . 5 7 g (3 . 0 e q , 3 1 . 8 m m o l)

トルエン : 1 8 0 m L

収率 : 6 . 7 0 g (9 4 %)

E S I - M S : m / z = 6 7 7 [M + H ⁺] 。

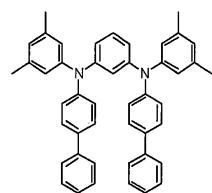
【0135】

[N 1 , N 3 - ジ ([1 , 1 ' - ビフェニル] - 4 - イル) - N 1 , N 3 - ビス (3 , 5 - ジメチルフェニル) ベンゼン - 1 , 3 - ジアミン (M P D - 1 4)]

50

【0136】

【化36】



【0137】

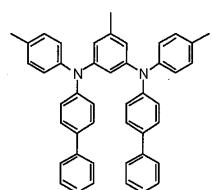
3,5-ジプロモベンゼン: 2.5 g (1.0 eq, 10.6 mmol) 10
 N-(3,5-ジメチルフェニル)-[1,1'-ビフェニル]-4-アミン: 6.0
 8 g (2.1 eq, 22.26 mmol)
 ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム: 122 mg (2 mol %, 0.21 mm
 o l)
 トリ-tert-ブチルホスフィン: 64 mg (3 mol %, 0.32 mmol)
 カリウム-tert-ブトキシド: 3.57 g (3.0 eq, 31.8 mmol)
 トルエン: 180 mL
 収率: 5.42 g (82%)
 ESI-MS: m/z = 621 [M + H⁺]。

【0138】

[N1, N3-ジ([1,1'-ビフェニル]-4-イル)-5-メチル-N1, N3-ジ-p-トリルベンゼン-1,3-ジアミン (MPD-15)] 20

【0139】

【化37】



【0140】

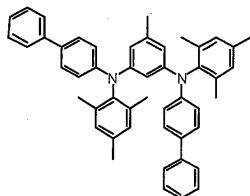
3,5-ジプロモトルエン: 2.5 g (1.0 eq, 10.0 mmol)
 N-(4-(メチル)フェニル)-[1,1'-ビフェニル]-4-アミン: 5.45
 g (2.1 eq, 21.00 mmol)
 ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム: 115 mg (2 mol %, 0.20 mm
 o l)
 トリ-tert-ブチルホスフィン: 61 mg (3 mol %, 0.30 mmol)
 カリウム-tert-ブトキシド: 3.37 g (3.0 eq, 30.0 mmol)
 トルエン: 180 mL
 収率: 4.95 g (81%) 40
 ESI-MS: m/z = 607 [M + H⁺]。

【0141】

[N1, N3-ジ([1,1'-ビフェニル]-4-イル)-N1, N3-ジメチル-5-メチルベンゼン-1,3-ジアミン (MPD-16)]

【0142】

【化38】



【0143】

3,5-ジブロモトルエン：16.60 g (1.0 eq, 66.4 mmol) 10
 N-メチル-[1,1'-ビフェニル]-4-アミン：40.1 g (2.1 eq, 139.5 mmol)
 ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム：764 mg (2 mol %, 1.3 mmol)
 トリ-tert-ブチルホスフィン：404 mg (3 mol %, 2.00 mmol)
 カリウム-tert-ブトキシド：22.36 g (3.0 eq, 199.3 mmol)
 トルエン：400 mL
 収率：22.3 g (51%)
 HPLC-MS: m/z = 663 [M + H⁺]。

【0144】

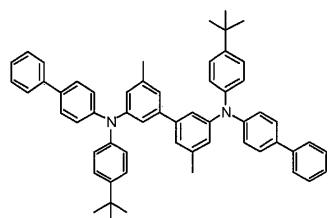
<3,3'-ジアミノビフェニレン類の第3級アミンの一般的な処理> 20
 ブロモ化合物、第2級アミン、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム、トリ-tert-ブチルホスフィンおよびカリウム-tert-ブトキシドをフラスコ内にて混合し、トルエン中に溶解した。TLCが、出発材料が完全に消失したことを示すまで、混合物を80で攪拌した。混合物を、シリカゲルパッドを介して濾過し、DCMで洗浄し、蒸発乾固した。沸騰したメタノールで粗製固体を洗浄し、その後濾過した。最終的に所望の生成物を得るために、この手順を熱ヘキサンおよび熱アセトンを用いて繰り返した。

【0145】

[N3,N3'-ジ([1,1'-ビフェニル]-4-イル)-N3,N3'-ビス(4-(tert-ブチル)フェニル)-5,5'-ジメチル-[1,1'-ビフェニル]-3,3'-ジアミン(MDAB-1)] 30

【0146】

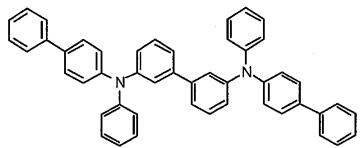
【化39】



【0147】

3,3'-ジブロモ-5,5'-ジメチル-1,1'-ビフェニル：2.00 g (1.0 eq, 5.88 mmol) 40
 N-(4-(tert-ブチル)フェニル)-[1,1'-ビフェニル]-4-アミン：3.90 g (2.1 eq, 12.9 mmol)
 ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム：68 mg (2.0 mol %, 0.12 mmol)
 トリ-tert-ブチルホスフィン：36 mg (3.0 mol %, 0.18 mmol)
 カリウム-tert-ブトキシド：1.98 g (3.0 eq, 17.6 mmol)
 トルエン：150 mL
 収率：2.27 g (49%)
 HPLC-MS: m/z = 781 [M + H⁺]。 50

【化42】



【0156】

3,3'-ジブロモ-1,1'-ビフェニル: 3.39 g (1.0 eq, 10.88 mmol)

N-(3,5-ジメチルフェニル)-[1,1'-ビフェニル]-4-アミン: 5.60 g (2.1 eq, 22.84 mmol)

ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム: 125 mg (2.0 mol %, 0.22 mmol)

トリ-tert-ブチルホスフィン: 66 mg (3.0 mol %, 0.33 mmol)

カリウム-tert-ブトキシド: 3.66 g (3.0 eq, 32.6 mmol)

トルエン: 190 mL

収率: 6.8 g (97%)

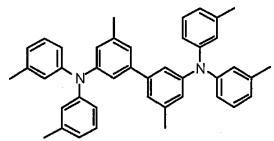
E I - M S : m/z = 640。

【0157】

[5,5'-ジメチル-N3,N3,N3',N3'-テトラ-m-トリル- [1,1'-ビフェニル]-3,3'-ジアミン (MDB-5)]

【0158】

【化43】



【0159】

3,3'-ジブロモ-5,5'-ジメチル-1,1'-ビフェニル: 2.50 g (1.0 eq, 7.35 mmol)

3,3'-ジメチルジフェニルアミン: 3.05 g (2.1 eq, 15.44 mmol)

ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム: 85 mg (2.0 mol %, 0.15 mmol)

トリ-tert-ブチルホスフィン: 45 mg (3.0 mol %, 0.22 mmol)

カリウム-tert-ブトキシド: 2.50 g (3.0 eq, 22.05 mmol)

トルエン: 180 mL

収率: 2.8 g (66%)

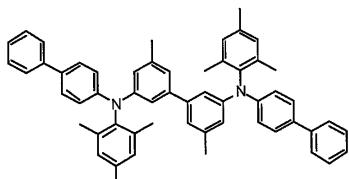
E I - M S : m/z = 572。

【0160】

[N3,N3'-ジ([1,1'-ビフェニル]-4-イル)-N3,N3'-ジメチル-5,5'-ジメチル- [1,1'-ビフェニル]-3,3'-ジアミン (MDB-6)]

【0161】

【化44】



【0162】

3,5-ジブロモ-3',5'-ジメチル-1,1'-ビフェニル: 20.00 g (1.0 eq, 58.8 mmol)

N-メチル-[1,1'-ビフェニル]-4-アミン: 35.50 g (2.1 eq, 123.5 mmol)

ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム: 676 mg (2 mol %, 1.20 mmol)

トリ-tert-ブチルホスフィン: 364 mg (3 mol %, 1.80 mmol)

カリウム-tert-ブトキシド: 19.80 g (3.0 eq, 176.4 mmol)

トルエン: 700 mL

10

収率: 27.1 g (61%)

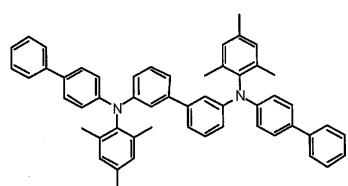
HPLC-MS: m/z = 753 [M + H⁺].

【0163】

[N3,N3'-ジ([1,1'-ビフェニル]-4-イル)-N3,N3'-ジメチル-[1,1'-ビフェニル]-3,3'-ジアミン(MDAB-7)]

【0164】

【化45】



20

【0165】

3,5-ジブロモ-1,1'-ビフェニル: 5.17 g (1.0 eq, 16.59 mmol)

N-メチル-[1,1'-ビフェニル]-4-アミン: 10.00 g (2.1 eq, 34.79 mmol)

ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム: 190 mg (2 mol %, 0.33 mmol)

トリ-tert-ブチルホスフィン: 100 mg (3 mol %, 0.50 mmol)

30

カリウム-tert-ブトキシド: 5.58 g (3.0 eq, 49.77 mmol)

トルエン: 230 mL

収率: 8.7 g (72%)

EI-MS: m/z = 724.

【0166】

<OLEDの製造および実験>

新規な材料の性能実験をボトムエミッション型発光有機発光ダイオード(OLED)にて行った。ダイオードを、有機材料(活性層)および金属(電極)の熱蒸着を用いて真空で処理した。複数の素子(活性マトリクスおよび電極)を構成するためにシャドーマスク技術を利用した。6.70 mm²の活性領域をそれぞれが有している4つのOLEDを1つの基板上に製造した。16個の同じ酸化インジウムスズ(ITO)基板を、垂直軸の周りを回転可能なテーブル上に4×4の配列で設置して同時に処理した。16個の基板の各々は、シャッタを用いて異なる一組の有機層で覆うことが可能である。ITO基板は清浄にされた後、4×4の配列で熱蒸着ユニットに設置された。参照用p型ドープ層(例えば、D1でドープされたH-1; モル比(97:3))を、最終的なフィルムの厚さが30 nmになるように、基板の半分に蒸着した。基板の残りの半分には、研究された本発明の材料と、上記と同じp型ドーパント(同じモル比(97:3)かつ同じ厚さ)とを共蒸着した。基板を90°回転させた後、第2(電子プロッキング)層を第1層上に蒸着した。ここで、基板の半分は、10 nmの参照用化合物(TCTA等)に覆われており、残りの半分は、第1層において用いられた材料と同じ本発明の材料に覆われている(図1参照)

40

50

。したがって、参照用素子（図1の領域D）は、本発明の材料を含んでいる素子と常に一緒に処理された。この処理によって、日々生じ得る蒸着率、真空の品質またはその他の器具の性能パラメータにおける変化と関係なく、新規な材料の性能を参照例と比較して評価することが可能となる。各領域は、同様に製造されたOLEDを16個含み、当該16個のOLEDのそれぞれについて性能パラメータが評価されたため、得られた実験結果の統計的評価は、表1で示されている測定平均値の統計的有意性を明白に示した。

【0167】

次に燐光緑色発光層（Merck_TMM004：Irrypy（モル比9：1））を、20nmの厚さで蒸着した後、正孔ブロッキング層として、10nmのMerck_TMM004を蒸着し、D2でドープされた50nmのE-1層を蒸着した（マトリクス対ドーパントのモル比は9：1）。100nmのアルミニウム層の真空蒸着によってカソードを形成した。

【0168】

ボトムエミッショント型青色蛍光OLEDをITO基板上に形成し、同様に実験を行った。ただし、20nmの厚さの発光層として、Sun Fine Chem（SFC、韓国）ホストABH113、および青色発光体NUBD370を、97：3の重量比で共蒸着した後、60重量%のE2および40重量%のリチウム8-ヒドロキシキノリン塩（LiQ）からなる36nmの厚さの電子輸送層を蒸着する点が異なる。電子輸送層上に100nmのアルミニウムカソードを蒸着した。

【0169】

同じ正孔輸送層および/または電子ブロッキング層中にH-2を含んでいる素子と比較して、本発明の化合物を含んでいる素子は、表1で明示されているように、全体的な性能値Qに関して改善が見られた（3～22%の範囲）。

【0170】

以上の説明および請求項に開示された構成は、単独でまたは任意に組み合わせて、多様な形態で本発明を実現するための要素であってもよい。

【図面の簡単な説明】

【0171】

【図1】実験用ボトムエミッショント型燐光OLEDの模式図である。

【図2】a)は、層1の堆積を示す上面図であり（p型ドープされた本発明の材料（縞状）、p型ドープされた参照例（点状））（左側）；b)は、基板を90°回転させた後の層2の上面図であり、本発明の材料が上段（領域A、C）に位置し、参照用材料が下段（領域B、D）に位置している。

【図3a】CD₂C₁₂溶液において測定された、式（II）を有する実施例の化合物の¹H-NMRスペクトル（500.13MHzにて、5.31ppmを基準とする）であり、MDAB-1の¹H-NMRスペクトルである。

【図3b】CD₂C₁₂溶液において測定された、式（II）を有する実施例の化合物の¹H-NMRスペクトル（500.13MHzにて、5.31ppmを基準とする）であり、MDAB-2の¹H-NMRスペクトルである。

【図3c】CD₂C₁₂溶液において測定された、式（II）を有する実施例の化合物の¹H-NMRスペクトル（500.13MHzにて、5.31ppmを基準とする）であり、MDAB-3の¹H-NMRスペクトルである。

【図3d】CD₂C₁₂溶液において測定された、式（II）を有する実施例の化合物の¹H-NMRスペクトル（500.13MHzにて、5.31ppmを基準とする）であり、MDAB-4の¹H-NMRスペクトルである。

【図3e】CD₂C₁₂溶液において測定された、式（II）を有する実施例の化合物の¹H-NMRスペクトル（500.13MHzにて、5.31ppmを基準とする）であり、MDAB-5の¹H-NMRスペクトルである。

【図3f】CD₂C₁₂溶液において測定された、式（II）を有する実施例の化合物の¹H-NMRスペクトル（500.13MHzにて、5.31ppmを基準とする）であ

10

20

30

40

50

り、MDAB-6の¹H-NMRスペクトルである。

【図3g】CD₂Cl₂溶液において測定された、式(II)を有する実施例の化合物の¹H-NMRスペクトル(500.13MHzにて、5.31ppmを基準とする)であり、MDAB-7の¹H-NMRスペクトルである。

【図4a】図3と同一条件下で測定された、式(III)を有する実施例の化合物の¹H-NMRスペクトルであり、MPD-1の¹H-NMRスペクトルである。

【図4b】図3と同一条件下で測定された、式(III)を有する実施例の化合物の¹H-NMRスペクトルであり、MPD-2の¹H-NMRスペクトルである。

【図4c】図3と同一条件下で測定された、式(III)を有する実施例の化合物の¹H-NMRスペクトルであり、MPD-3の¹H-NMRスペクトルである。 10

【図4d】図3と同一条件下で測定された、式(III)を有する実施例の化合物の¹H-NMRスペクトルであり、MPD-4の¹H-NMRスペクトルである。

【図4e】図3と同一条件下で測定された、式(III)を有する実施例の化合物の¹H-NMRスペクトルであり、MPD-5の¹H-NMRスペクトルである。

【図4f】図3と同一条件下で測定された、式(III)を有する実施例の化合物の¹H-NMRスペクトルであり、MPD-6の¹H-NMRスペクトルである。

【図4g】図3と同一条件下で測定された、式(III)を有する実施例の化合物の¹H-NMRスペクトルであり、MPD-7の¹H-NMRスペクトルである。

【図4h】図3と同一条件下で測定された、式(III)を有する実施例の化合物の¹H-NMRスペクトルであり、MPD-8の¹H-NMRスペクトルである。 20

【図4i】図3と同一条件下で測定された、式(III)を有する実施例の化合物の¹H-NMRスペクトルであり、MPD-9の¹H-NMRスペクトルである。

【図4j】図3と同一条件下で測定された、式(III)を有する実施例の化合物の¹H-NMRスペクトルであり、MPD-10の¹H-NMRスペクトルである。

【図4k】図3と同一条件下で測定された、式(III)を有する実施例の化合物の¹H-NMRスペクトルであり、MPD-11の¹H-NMRスペクトルである。

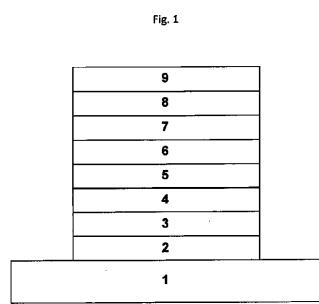
【図4l】図3と同一条件下で測定された、式(III)を有する実施例の化合物の¹H-NMRスペクトルであり、MPD-12の¹H-NMRスペクトルである。

【図4m】図3と同一条件下で測定された、式(III)を有する実施例の化合物の¹H-NMRスペクトルであり、MPD-13の¹H-NMRスペクトルである。 30

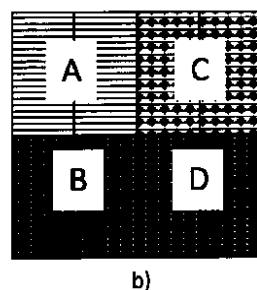
【図4n】図3と同一条件下で測定された、式(III)を有する実施例の化合物の¹H-NMRスペクトルであり、MPD-14の¹H-NMRスペクトルである。

【図4o】図3と同一条件下で測定された、式(III)を有する実施例の化合物の¹H-NMRスペクトルであり、MPD-15の¹H-NMRスペクトルである。

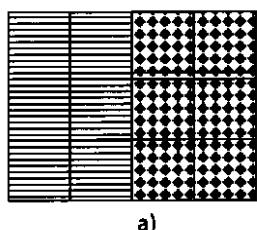
【図1】



【図2 b)】

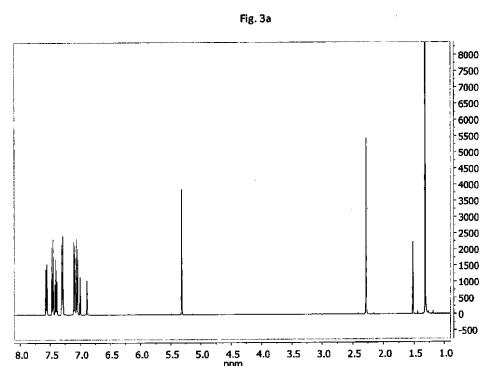


【図2 a)】

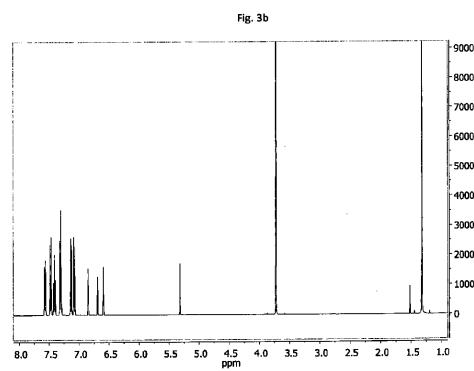


a)

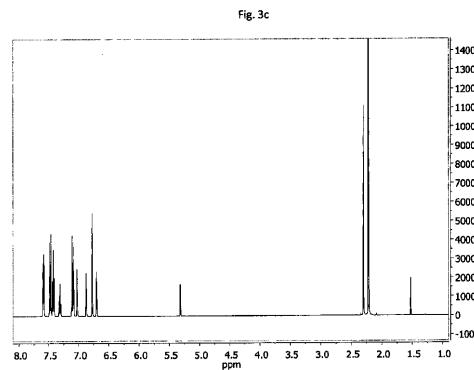
【図3 a】



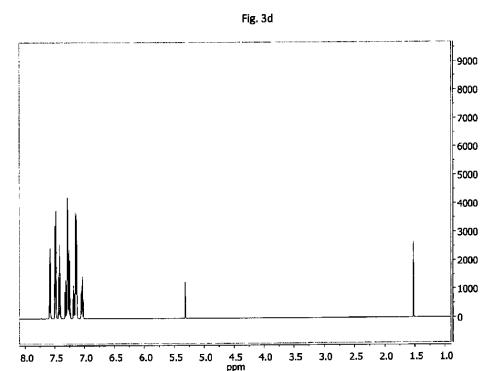
【図3 b】



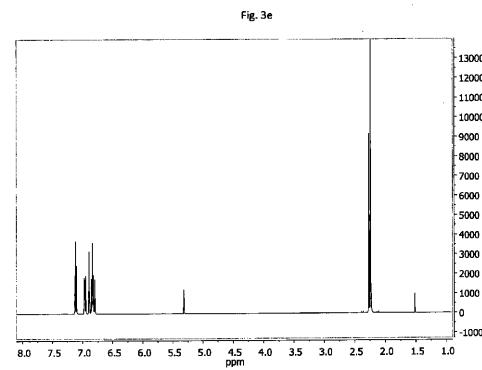
【図3 c】



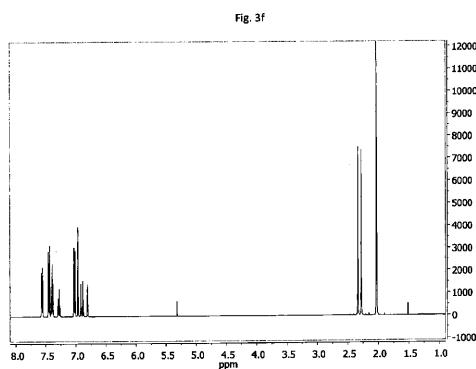
【図3 d】



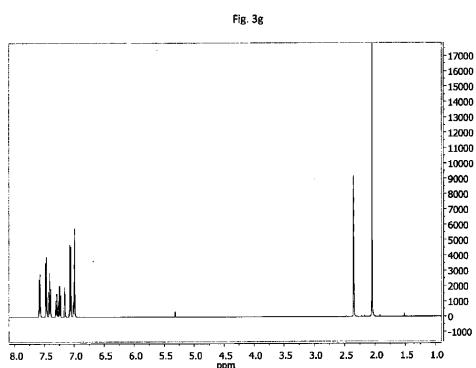
【図3 e】



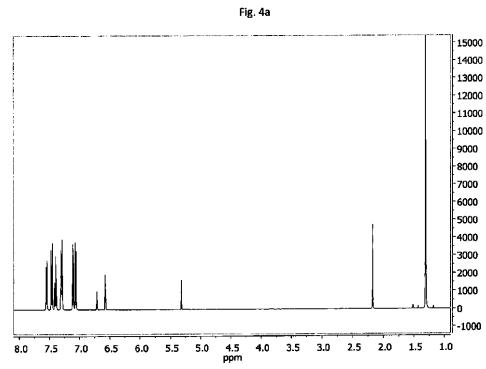
【図3 f】



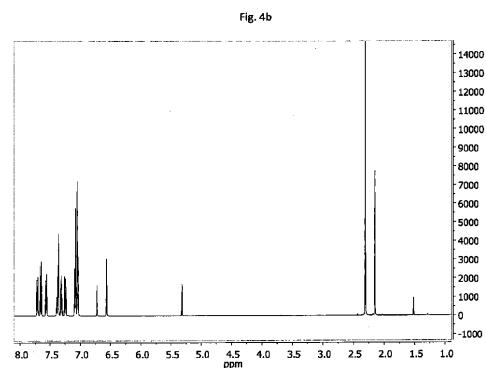
【図3 g】



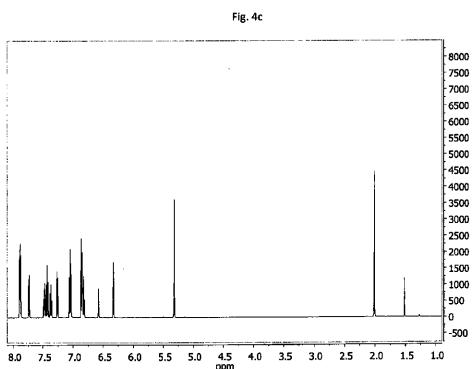
【図4 a】



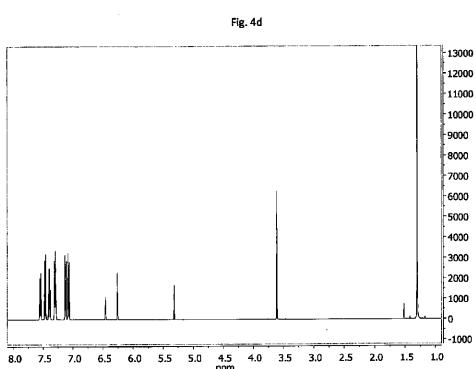
【図4 b】



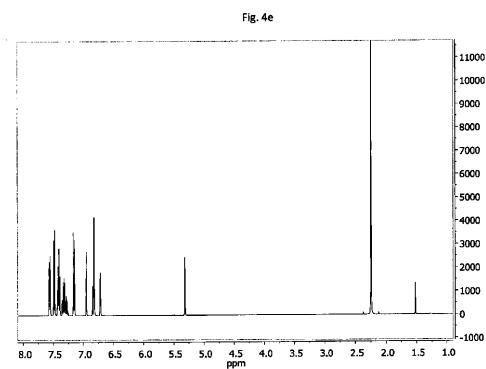
【図4 c】



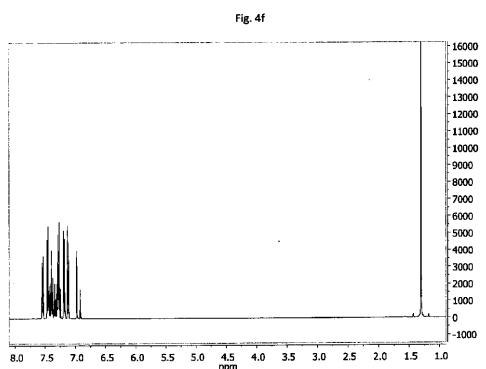
【図4 d】



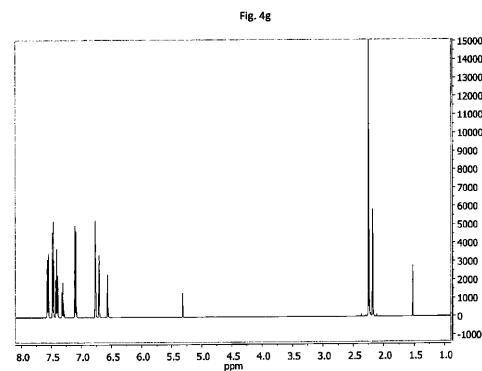
【図4 e】



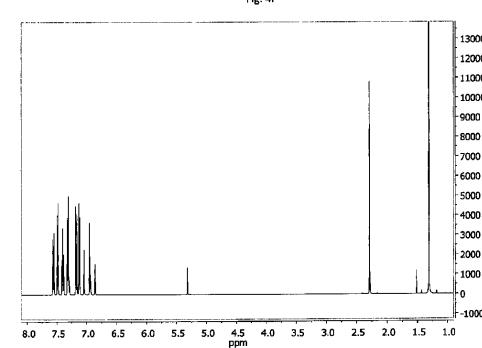
【図4 f】



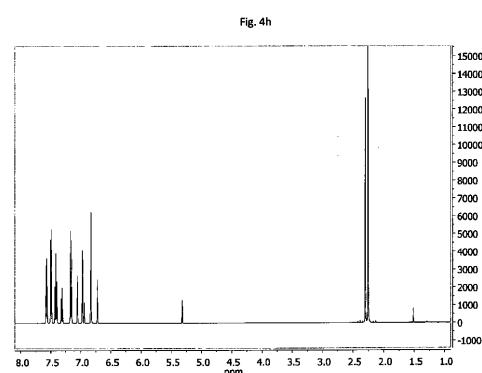
【図4g】



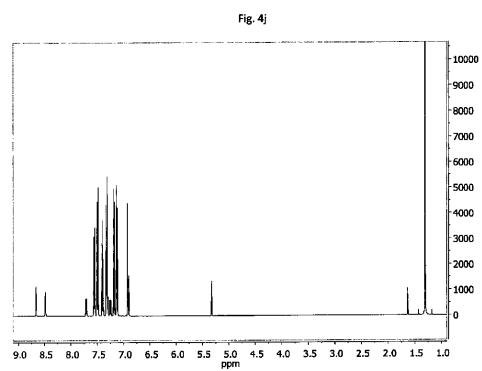
【図4i】



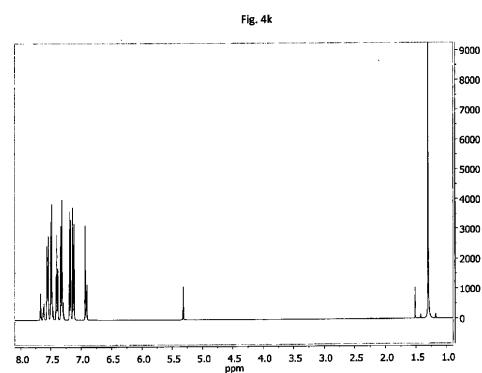
【図4h】



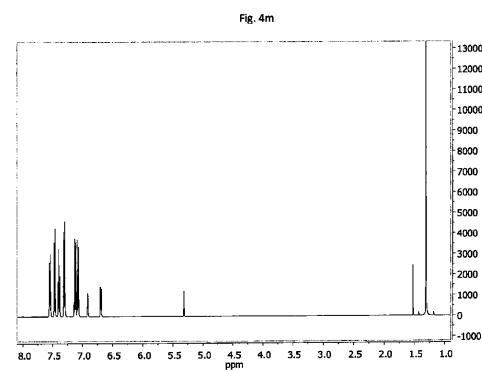
【図4j】



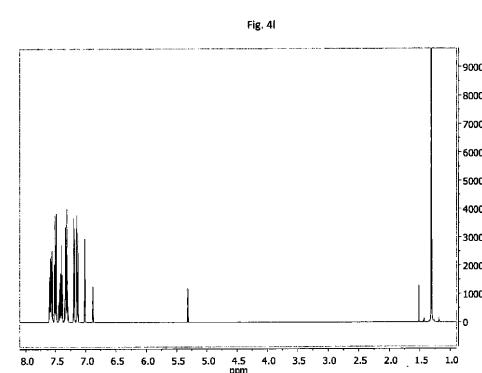
【図4k】



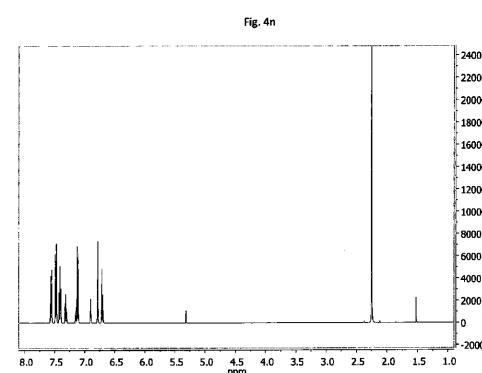
【図4m】



【図4l】

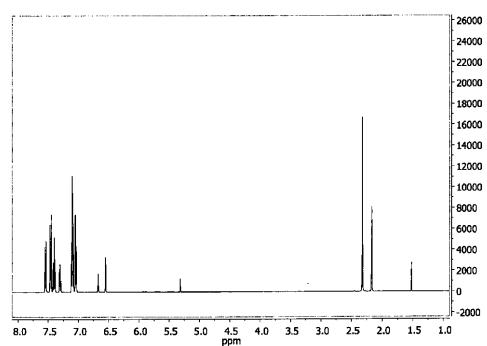


【図4n】



【図4o】

Fig. 4o



フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I
C 07D 213/38

(72)発明者 ブクハルト,マルティーン
ドイツ連邦共和国, 01099 ドレスデン, ローテンブルガー シュトラーセ 42

審査官 中村 博之

(56)参考文献 特開2002-241352 (JP, A)
特開平05-105647 (JP, A)
特開平08-278642 (JP, A)
特開平07-324058 (JP, A)
特開2006-106677 (JP, A)
特開2001-281893 (JP, A)
特表2008-509565 (JP, A)
特開2006-156635 (JP, A)
特開2005-071983 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
H 01 L 51/50
C A p l u s / R E G I S T R Y (S T N)

专利名称(译)	用于磷光OLED的磷光OLED和空穴传输材料		
公开(公告)号	JP6329954B2	公开(公告)日	2018-05-23
申请号	JP2015537255	申请日	2013-10-17
[标]申请(专利权)人(译)	诺瓦莱德公开股份有限公司		
申请(专利权)人(译)	诺瓦红有限公司		
当前申请(专利权)人(译)	诺瓦红有限公司		
[标]发明人	ツエルナーマイク ヴットケイエンス ブクハルトマルティーン		
发明人	ツエルナー,マイク ヴットケ,イエンス ブクハルト,マルティーン		
IPC分类号	H01L51/50 C07C211/54 C07C217/92 C09K11/06 C07D213/38		
CPC分类号	C07C211/54 C07C211/56 C07D209/82 C07D213/38 C07D471/04 H01L51/0059 H01L51/0085 H01L51/5016 H01L51/5024 H01L2251/308 C07C217/94 H01L51/0061 H01L51/0067 H01L51/5056 H01L51/5096 H01L51/5206 H01L51/5221		
FI分类号	H05B33/22.D H05B33/14.A C07C211/54.CSP C07C217/92 C09K11/06.690 C07D213/38		
审查员(译)	中村浩之		
优先权	2012188828 2012-10-17 EP		
其他公开文献	JP2016502749A		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

本发明涉及包含空穴传输层或空穴传输层的磷光有机发光二极管(OLED)和包含N,N,N'-四芳基-亚苯基-3,5-二胺的电子阻挡层,二胺或N,N,N',N'-四芳基-1,1'-联苯-3,3'-二胺基质化合物和新的N,N,N',N'-四芳基取代的间亚芳基二胺化合物作为磷光OLED中的空穴传输和电子阻挡层基质。

(19)日本国特許庁(JP)	(12)特許公報(B2)	(11)特許番号 特許第6329954号 (P6329954)
(45)発行日 平成30年5月23日(2018.5.23)		(24)登録日 平成30年4月27日(2018.4.27)
(51)Int.Cl. H01L 51/50 (2006.01) F I C07C 21/54 (2006.01) H05B 33/22 D C07C 21/72 (2006.01) H05B 33/14 A C09K 11/06 (2006.01) C07C 211/54 C S P C07D 213/38 (2006.01) C07C 217/92 C09K 11/06 690 請求項の数 7 (全 36 頁) 最終頁に続く		
(60)出願番号 特願2015-537255 (P2015-537255)	(73)特許権者 514135476 ノヴァレッド ゲーエムベーハー	
(60) (22)出願日 平成25年10月17日(2013.10.17)	ドイツ連邦共和国, 01307 ドレスデン, タツツベルク 49	
(65)公表番号 特表2016-502749 (P2016-502749A)		
(43)公表日 平成28年1月28日(2016.1.28)		
(66)国際出願番号 PCT/EP2013/071742	(74)代理人 110000336 特許業務法人HARAKENZO WORLD PATENT & TRADEMA R K	
(67)国際公開番号 WO2014/060526		
(87)国際公開日 平成26年4月24日(2014.4.24)		
審査請求日 平成28年9月28日(2016.9.28)		
(31)優先権主張番号 12188828.3	(72)発明者 ツエルナー,マイク	
(32)優先日 平成24年10月17日(2012.10.17)	ドイツ連邦共和国, 01217 ドレスデン, シンケルシュトラーゼ 8	
(33)優先権主張国 欧州特許庁 (EP)	(72)発明者 ヴットケ,イエンス	
	ドイツ連邦共和国, 01159 ドレスデン, シュトレショトトラーゼ 68	
		最終頁に続く

(64)【発明の名称】磷光OLEDおよび磷光OLED用正孔輸送材料