

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第6654204号  
(P6654204)

(45) 発行日 令和2年2月26日(2020.2.26)

(24) 登録日 令和2年1月31日(2020.1.31)

(51) Int.Cl.

F I

<b>C O 7 D 307/77</b>	<b>(2006.01)</b>	C O 7 D 307/77	C S P
<b>C O 7 D 307/91</b>	<b>(2006.01)</b>	C O 7 D 307/91	
<b>C O 7 D 409/04</b>	<b>(2006.01)</b>	C O 7 D 409/04	
<b>C O 7 D 405/04</b>	<b>(2006.01)</b>	C O 7 D 405/04	
<b>C O 7 F 7/10</b>	<b>(2006.01)</b>	C O 7 F 7/10	R

請求項の数 8 (全 54 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2017-561706 (P2017-561706)  
 (86) (22) 出願日 平成28年5月18日 (2016.5.18)  
 (65) 公表番号 特表2018-524289 (P2018-524289A)  
 (43) 公表日 平成30年8月30日 (2018.8.30)  
 (86) 国際出願番号 PCT/KR2016/005273  
 (87) 国際公開番号 W02016/190600  
 (87) 国際公開日 平成28年12月1日 (2016.12.1)  
 審査請求日 平成29年11月27日 (2017.11.27)  
 (31) 優先権主張番号 10-2015-0073550  
 (32) 優先日 平成27年5月27日 (2015.5.27)  
 (33) 優先権主張国・地域又は機関 韓国 (KR)

(73) 特許権者 515127979  
 ドク サン ネオルクス カンパニー リ  
 ミテッド  
 大韓民国 31027 チュンチョンナム  
 ード チョナンシ ソブクーク イプジ  
 ャン-ミョン スクゴル-ギル 21-3  
 2  
 (74) 代理人 100079049  
 弁理士 中島 淳  
 (74) 代理人 100084995  
 弁理士 加藤 和詳

最終頁に続く

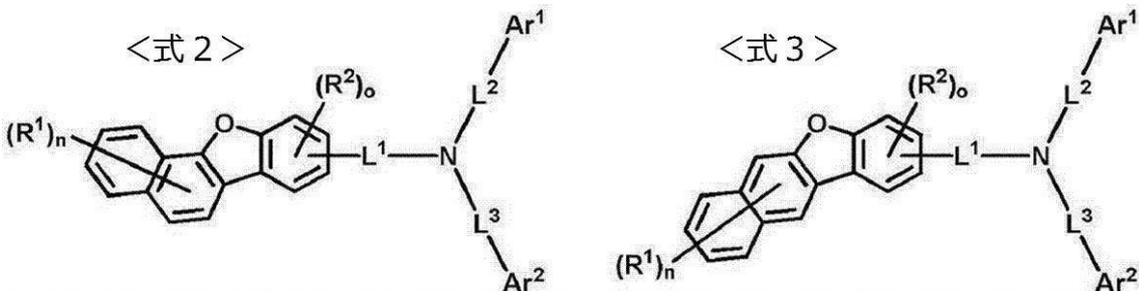
(54) 【発明の名称】 有機電気素子用化合物、これを用いた有機電気素子及びその電子装置

(57) 【特許請求の範囲】

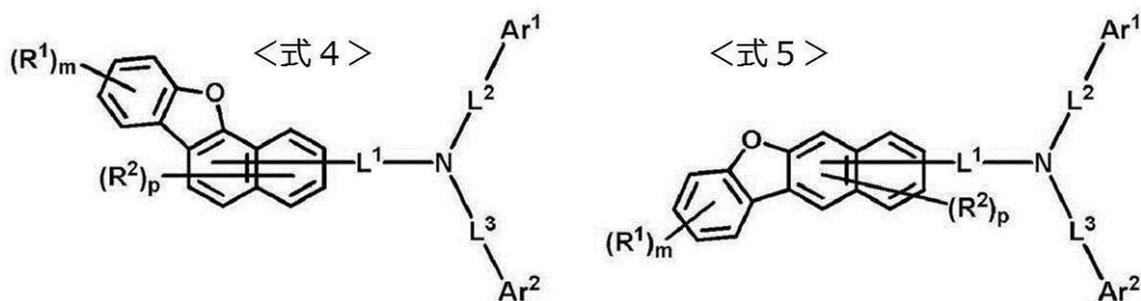
【請求項1】

下記式2～式5のうちいずれか1つによって表される化合物：

【化1】



## 【化2】



10

前記式2～式5において、

$R^1$  は、重水素；三重水素；シアノ基；ニトロ基； $C_6 - C_{60}$ のアリール基；O、N及びSのうち少なくとも1つのヘテロ原子を含む $C_2 - C_{60}$ のヘテロアリール基； $C_3 - C_{60}$ の脂肪族環と $C_6 - C_{60}$ の芳香族環の縮合環基； $C_1 - C_{50}$ のアルキル基； $C_2 - C_{20}$ のアルケニル基； $C_1 - C_{30}$ のアルコキシ基；及び $C_6 - C_{30}$ のアリールオキシ基；からなる群より選ばれ、

$R^2$  は、重水素；三重水素；ハロゲン；シアノ基；ニトロ基； $C_6 - C_{60}$ のアリール基；O、N及びSのうち少なくとも1つのヘテロ原子を含む $C_2 - C_{60}$ のヘテロアリール基； $C_3 - C_{60}$ の脂肪族環と $C_6 - C_{60}$ の芳香族環の縮合環基； $C_1 - C_{50}$ のアルキル基； $C_2 - C_{20}$ のアルケニル基； $C_1 - C_{30}$ のアルコキシ基；及び $C_6 - C_{30}$ のアリールオキシ基；からなる群より選ばれ、

20

$L_1$  は $C_6 - C_{60}$ のアリーレン基であり、

$L^2$  及び $L^3$  は、互いに独立に、単結合、フェニレン又はナフチレンであり、

$Ar^1$  及び $Ar^2$  は、互いに独立に、フェニル、ナフチル、ビフェニル、フェントリル、フルオランテン又はトリフェニレンであり、

前記 $R^1$  がアリール基、ヘテロアリール基、縮合環基、アルキル基、アルケニル基、アルコキシ基又はアリールオキシ基であるときには、これらのそれぞれは、重水素；ハロゲン； $C_1 - C_{20}$ のアルキル基若しくは $C_6 - C_{20}$ のアリール基で置換されたシラン基又は非置換のシラン基；シアノ基； $C_1 - C_{20}$ のアルコキシ基； $C_1 - C_{20}$ のアルキル基； $C_2 - C_{20}$ のアルケニル基； $C_6 - C_{20}$ のアリール基；重水素で置換された $C_6 - C_{20}$ のアリール基； $C_3 - C_{20}$ のシクロアルキル基； $C_7 - C_{20}$ のアリールアルキル基；及び $C_8 - C_{20}$ のアリールアルケニル基；からなる群より選択された1つ以上の置換基で更に置換されていてもよく、

30

前記 $R^2$  がアリール基、ヘテロアリール基、縮合環基、アルキル基、アルケニル基、アルコキシ基又はアリールオキシ基であるときには、これらのそれぞれは、重水素；ハロゲン； $C_1 - C_{20}$ のアルキル基若しくは $C_6 - C_{20}$ のアリール基で置換されたシラン基又は非置換のシラン基；シアノ基；ニトロ基； $C_1 - C_{20}$ のアルコキシ基； $C_1 - C_{20}$ のアルキル基； $C_2 - C_{20}$ のアルケニル基； $C_6 - C_{20}$ のアリール基；重水素で置換された $C_6 - C_{20}$ のアリール基； $C_3 - C_{20}$ のシクロアルキル基； $C_7 - C_{20}$ のアリールアルキル基；及び $C_8 - C_{20}$ のアリールアルケニル基；からなる群より選択された1つ以上の置換基で更に置換されていてもよく、

40

前記 $L^1$  のアリーレン基は、重水素；ハロゲン； $C_1 - C_{20}$ のアルキル基若しくは $C_6 - C_{20}$ のアリール基で置換されたシラン基又は非置換のシラン基；シアノ基；ニトロ基； $C_1 - C_{20}$ のアルコキシ基； $C_1 - C_{20}$ のアルキル基； $C_2 - C_{20}$ のアルケニル基； $C_6 - C_{20}$ のアリール基；重水素で置換された $C_6 - C_{20}$ のアリール基； $C_3 - C_{20}$ のシクロアルキル基； $C_7 - C_{20}$ のアリールアルキル基；及び $C_8 - C_{20}$ のアリールアルケニル基；からなる群より選択された1つ以上の置換基で更に置換されていてもよく、

前記 $L^2$  がフェニレン又はナフチレンであるとき、該フェニレン又はナフチレンは、重水素；ハロゲン； $C_1 - C_{20}$ のアルキル基若しくは $C_6 - C_{20}$ のアリール基で置換さ

50

れたシラン基又は非置換のシラン基；シアノ基；ニトロ基； $C_1 - C_{20}$ のアルコキシ基； $C_1 - C_{20}$ のアルキル基； $C_2 - C_{20}$ のアルケニル基； $C_3 - C_{20}$ のシクロアルキル基； $C_7 - C_{20}$ のアリールアルキル基；及び $C_8 - C_{20}$ のアリールアルケニル基；からなる群より選択された1つ以上の置換基で更に置換されていてもよく、

前記  $L^3$  がフェニレン又はナフチレンであるとき、該フェニレン又はナフチレンは、重水素；ハロゲン； $C_1 - C_{20}$ のアルキル基若しくは $C_6 - C_{20}$ のアリール基で置換されたシラン基又は非置換のシラン基；シアノ基；ニトロ基； $C_1 - C_{20}$ のアルコキシ基； $C_1 - C_{20}$ のアルキル基； $C_2 - C_{20}$ のアルケニル基； $C_3 - C_{20}$ のシクロアルキル基； $C_7 - C_{20}$ のアリールアルキル基；及び $C_8 - C_{20}$ のアリールアルケニル基；からなる群より選択された1つ以上の置換基で更に置換されていてもよく、

10

前記  $Ar^1$  のフェニル、ナフチル、ピフェニル、フェナントリル、フルオランテン又はトリフェニレンは、重水素；ハロゲン； $C_1 - C_{20}$ のアルキル基若しくは $C_6 - C_{20}$ のアリール基で置換されたシラン基又は非置換のシラン基；シアノ基；ニトロ基； $C_1 - C_{20}$ のアルコキシ基； $C_1 - C_{20}$ のアルキル基； $C_2 - C_{20}$ のアルケニル基； $C_3 - C_{20}$ のシクロアルキル基； $C_7 - C_{20}$ のアリールアルキル基；及び $C_8 - C_{20}$ のアリールアルケニル基；からなる群より選択された1つ以上の置換基で更に置換されていてもよく、

前記  $Ar^2$  のフェニル、ナフチル、ピフェニル、フェナントリル、フルオランテン又はトリフェニレンは、重水素；ハロゲン； $C_1 - C_{20}$ のアルキル基若しくは $C_6 - C_{20}$ のアリール基で置換されたシラン基又は非置換のシラン基；シアノ基；ニトロ基； $C_1 - C_{20}$ のアルコキシ基； $C_1 - C_{20}$ のアルキル基； $C_2 - C_{20}$ のアルケニル基； $C_3 - C_{20}$ のシクロアルキル基； $C_7 - C_{20}$ のアリールアルキル基；及び $C_8 - C_{20}$ のアリールアルケニル基；からなる群より選択された1つ以上の置換基で更に置換されていてもよく、

20

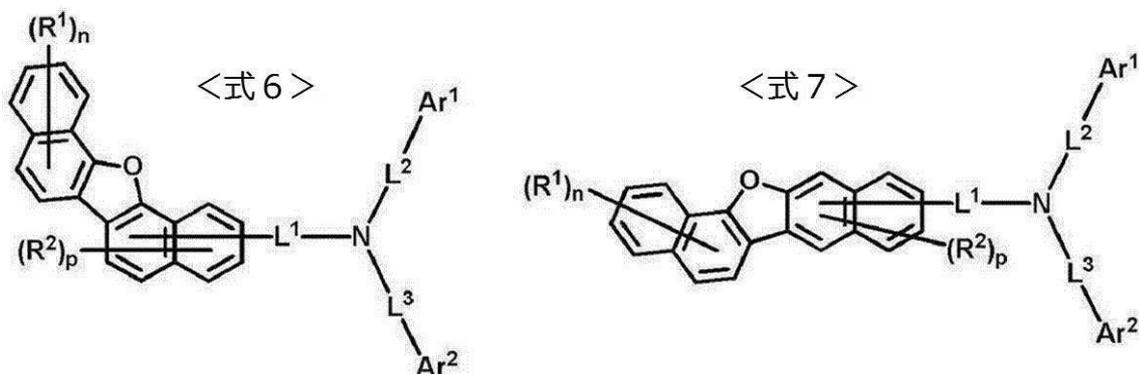
$m$ は0～4の整数であり、 $n$ は0～6の整数であり、 $o$ は0～3の整数であり、 $p$ は0～5の整数であり、 $m$ 又は $n$ が2以上の整数であるときには、複数の $R^1$ は、互いに同一でも異なってもよく、 $o$ 又は $p$ が2以上の整数であるときには、複数の $R^2$ は互いに同一でも異なってもよい。

【請求項2】

下記式6～式9のうちのいずれか1つによって表される化合物：

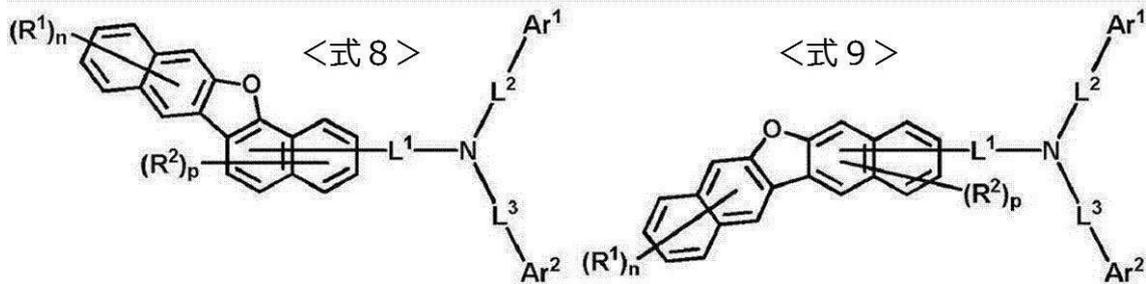
30

【化3】



40

## 【化4】



10

前記式6～式9において、

$R^1$  は、重水素；三重水素；シアノ基；ニトロ基； $C_6 - C_{60}$  のアリール基；O、N及びSのうち少なくとも1つのヘテロ原子を含む $C_2 - C_{60}$  のヘテロアリール基； $C_3 - C_{60}$  の脂肪族環と $C_6 - C_{60}$  の芳香族環の縮合環基； $C_1 - C_{50}$  のアルキル基； $C_2 - C_{20}$  のアルケニル基； $C_1 - C_{30}$  のアルコキシ基；及び $C_6 - C_{30}$  のアリールオキシ基；からなる群より選ばれ、

$R^2$  は、重水素；三重水素；ハロゲン；シアノ基；ニトロ基； $C_6 - C_{60}$  のアリール基；O、N及びSのうち少なくとも1つのヘテロ原子を含む $C_2 - C_{60}$  のヘテロアリール基； $C_3 - C_{60}$  の脂肪族環と $C_6 - C_{60}$  の芳香族環の縮合環基； $C_1 - C_{50}$  のアルキル基； $C_2 - C_{20}$  のアルケニル基； $C_1 - C_{30}$  のアルコキシ基；及び $C_6 - C_{30}$  のアリールオキシ基；からなる群より選ばれ、

20

$L_1$  は $C_6 - C_{60}$  のアリーレン基であり、

$L^2$  及び $L^3$  は、互いに独立に、単結合又は $C_6 - C_{60}$  のアリーレン基であり、

$Ar^1$  及び $Ar^2$  は、互いに独立に、 $C_6 - C_{60}$  のアリール基であり、

前記 $R^1$  がアリール基、ヘテロアリール基、縮合環基、アルキル基、アルケニル基、アルコキシ基又はアリールオキシ基であるときには、これらのそれぞれは、重水素；ハロゲン； $C_1 - C_{20}$  のアルキル基若しくは $C_6 - C_{20}$  のアリール基で置換されたシラン基又は非置換のシラン基；シアノ基； $C_1 - C_{20}$  のアルコキシ基； $C_1 - C_{20}$  のアルキル基； $C_2 - C_{20}$  のアルケニル基； $C_6 - C_{20}$  のアリール基；重水素で置換された $C_6 - C_{20}$  のアリール基； $C_3 - C_{20}$  のシクロアルキル基； $C_7 - C_{20}$  のアリールアルキル基；及び $C_8 - C_{20}$  のアリールアルケニル基；からなる群より選択された1つ以上の置換基で更に置換されていてもよく、

30

前記 $R^2$  がアリール基、ヘテロアリール基、縮合環基、アルキル基、アルケニル基、アルコキシ基又はアリールオキシ基であるときには、これらのそれぞれは、重水素；ハロゲン； $C_1 - C_{20}$  のアルキル基若しくは $C_6 - C_{20}$  のアリール基で置換されたシラン基又は非置換のシラン基；シアノ基；ニトロ基； $C_1 - C_{20}$  のアルコキシ基； $C_1 - C_{20}$  のアルキル基； $C_2 - C_{20}$  のアルケニル基； $C_6 - C_{20}$  のアリール基；重水素で置換された $C_6 - C_{20}$  のアリール基； $C_3 - C_{20}$  のシクロアルキル基； $C_7 - C_{20}$  のアリールアルキル基；及び $C_8 - C_{20}$  のアリールアルケニル基；からなる群より選択された1つ以上の置換基で更に置換されていてもよく、

40

前記 $L^1$  のアリーレン基は、重水素；ハロゲン； $C_1 - C_{20}$  のアルキル基若しくは $C_6 - C_{20}$  のアリール基で置換されたシラン基又は非置換のシラン基；シアノ基；ニトロ基； $C_1 - C_{20}$  のアルコキシ基； $C_1 - C_{20}$  のアルキル基； $C_2 - C_{20}$  のアルケニル基； $C_6 - C_{20}$  のアリール基；重水素で置換された $C_6 - C_{20}$  のアリール基； $C_3 - C_{20}$  のシクロアルキル基； $C_7 - C_{20}$  のアリールアルキル基；及び $C_8 - C_{20}$  のアリールアルケニル基；からなる群より選択された1つ以上の置換基で更に置換されていてもよく、

前記 $L^2$  がアリーレン基であるとき、該アリーレン基は、重水素；ハロゲン； $C_1 - C_{20}$  のアルキル基若しくは $C_6 - C_{20}$  のアリール基で置換されたシラン基又は非置換の

50

シラン基；シアノ基；ニトロ基； $C_1 - C_{20}$ のアルコキシ基； $C_1 - C_{20}$ のアルキル基； $C_2 - C_{20}$ のアルケニル基； $C_3 - C_{20}$ のシクロアルキル基； $C_7 - C_{20}$ のアリールアルキル基；及び $C_8 - C_{20}$ のアリールアルケニル基；からなる群より選択された1つ以上の置換基で更に置換されていてもよく、

前記  $L^3$  がアリーレン基であるとき、該アリーレン基は、重水素；ハロゲン； $C_1 - C_{20}$ のアルキル基若しくは $C_6 - C_{20}$ のアリール基で置換されたシラン基又は非置換のシラン基；シアノ基；ニトロ基； $C_1 - C_{20}$ のアルコキシ基； $C_1 - C_{20}$ のアルキル基； $C_2 - C_{20}$ のアルケニル基； $C_3 - C_{20}$ のシクロアルキル基； $C_7 - C_{20}$ のアリールアルキル基；及び $C_8 - C_{20}$ のアリールアルケニル基；からなる群より選択された1つ以上の置換基で更に置換されていてもよく、

10

前記  $Ar^1$  のアリール基は、重水素；ハロゲン； $C_1 - C_{20}$ のアルキル基若しくは $C_6 - C_{20}$ のアリール基で置換されたシラン基又は非置換のシラン基；シアノ基；ニトロ基； $C_1 - C_{20}$ のアルコキシ基； $C_1 - C_{20}$ のアルキル基； $C_2 - C_{20}$ のアルケニル基；重水素で置換された $C_6 - C_{20}$ のアリール基； $C_3 - C_{20}$ のシクロアルキル基； $C_7 - C_{20}$ のアリールアルキル基；及び $C_8 - C_{20}$ のアリールアルケニル基；からなる群より選択された1つ以上の置換基で更に置換されていてもよく、

前記  $Ar^2$  のアリール基は、重水素；ハロゲン； $C_1 - C_{20}$ のアルキル基若しくは $C_6 - C_{20}$ のアリール基で置換されたシラン基又は非置換のシラン基；シアノ基；ニトロ基； $C_1 - C_{20}$ のアルコキシ基； $C_1 - C_{20}$ のアルキル基； $C_2 - C_{20}$ のアルケニル基；重水素で置換された $C_6 - C_{20}$ のアリール基； $C_3 - C_{20}$ のシクロアルキル基； $C_7 - C_{20}$ のアリールアルキル基；及び $C_8 - C_{20}$ のアリールアルケニル基；からなる群より選択された1つ以上の置換基で更に置換されていてもよく、

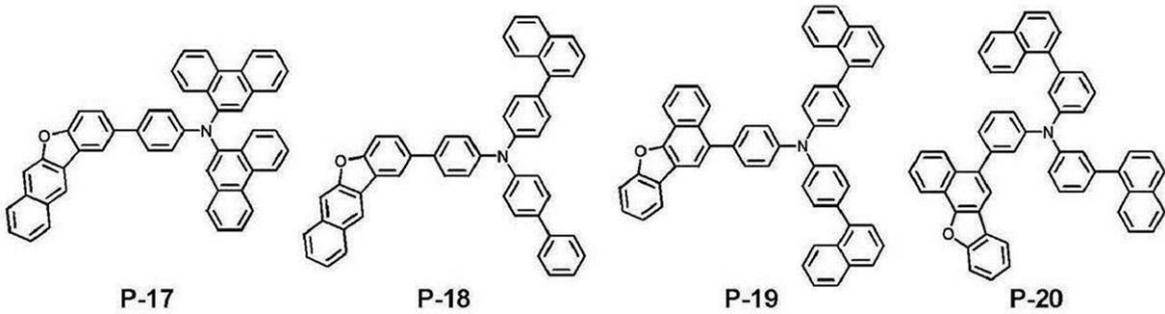
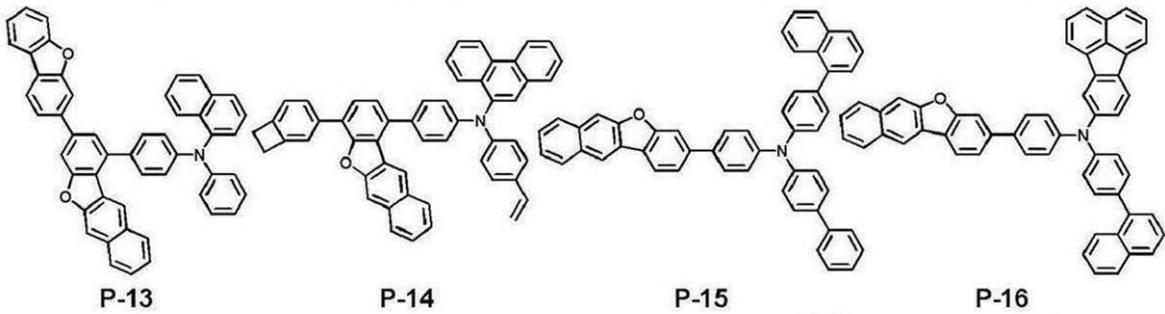
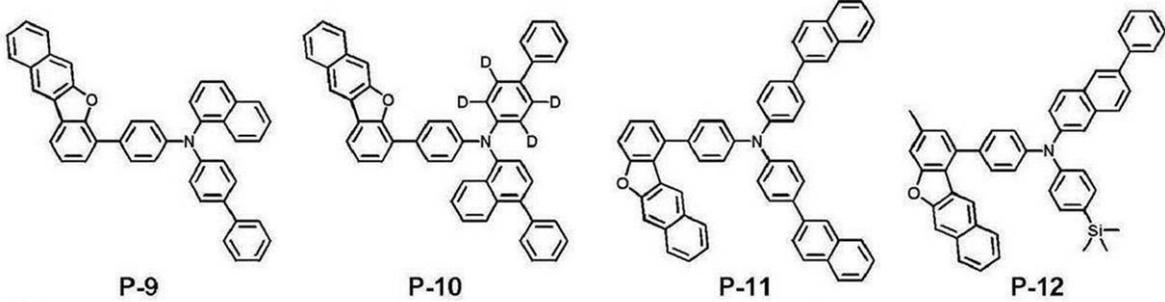
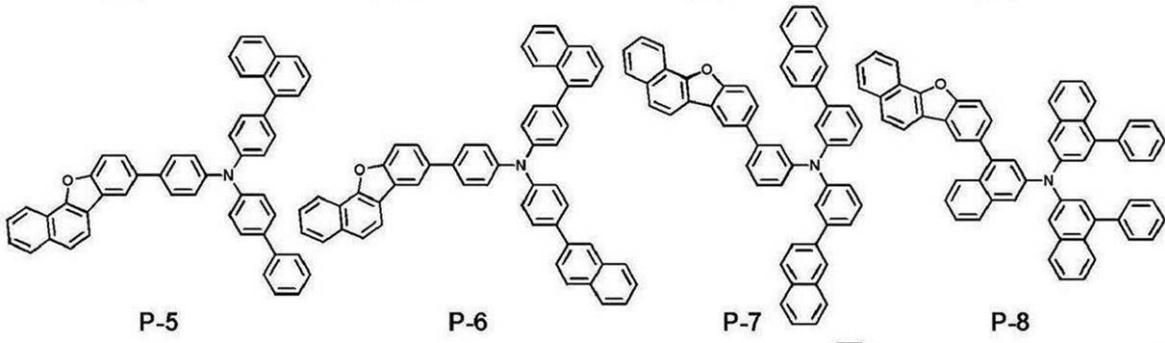
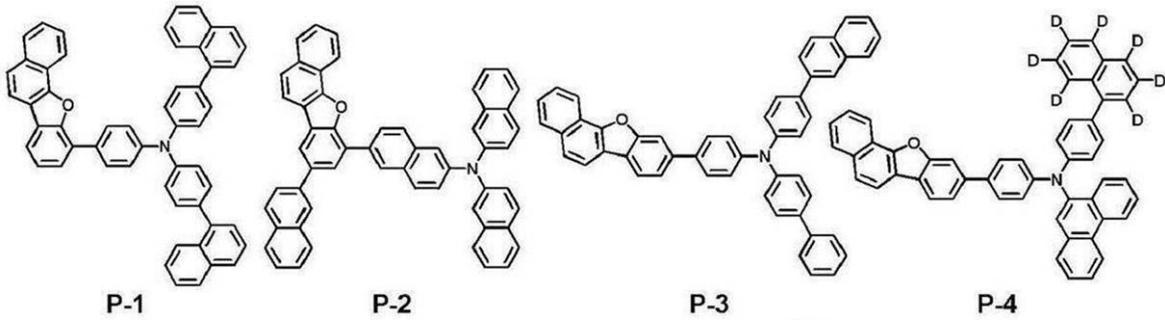
20

$n$  は 0 ~ 6 の整数であり、 $p$  は 0 ~ 5 の整数であり、 $n$  が 2 以上の整数であるときには、複数の  $R^1$  は、互いに同一でも異なってもよく、 $p$  が 2 以上の整数であるときには、複数の  $R^2$  は互いに同一でも異なってもよい。

【請求項 3】

下記化合物のうち1つである化合物。

【化5】



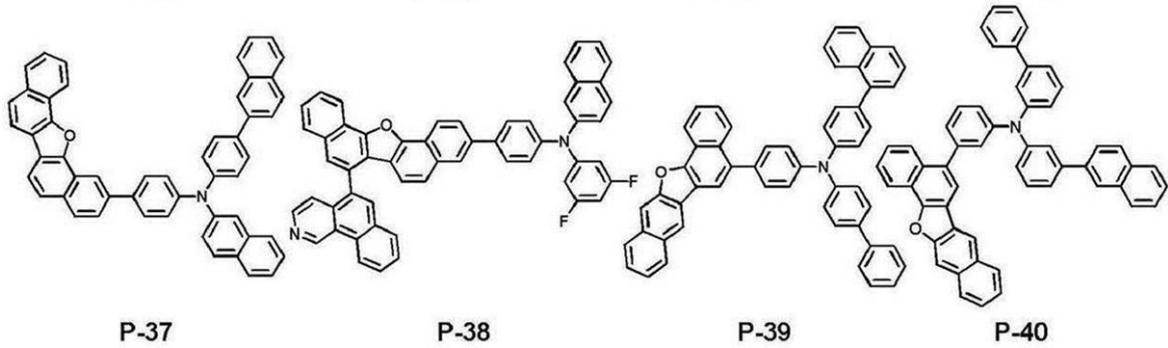
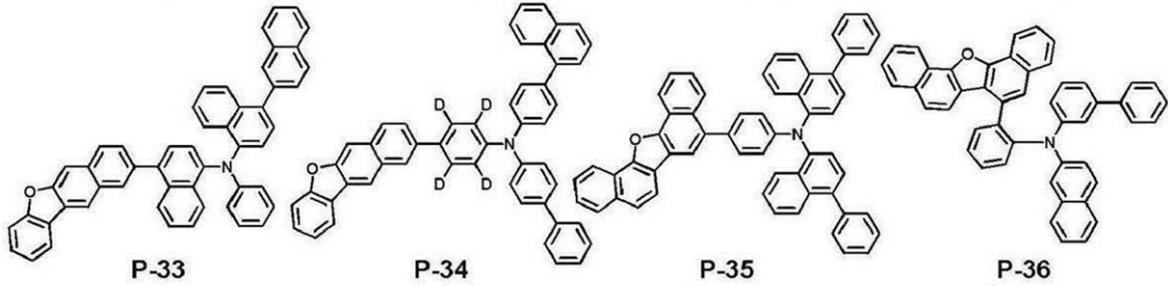
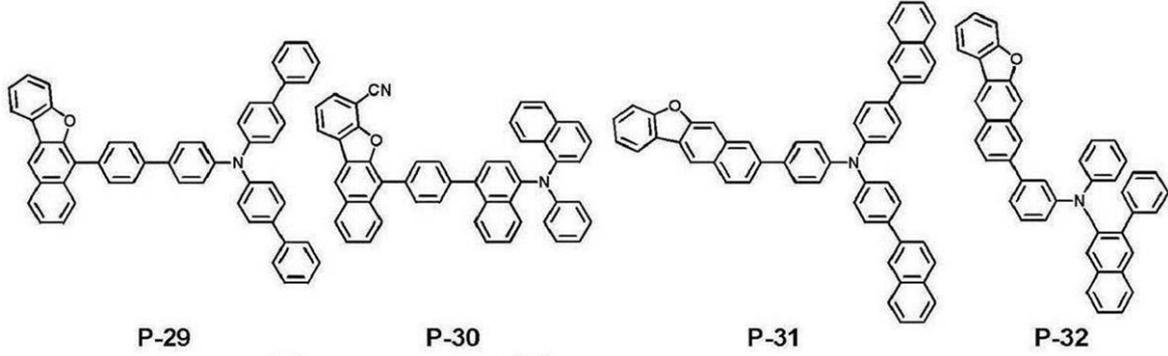
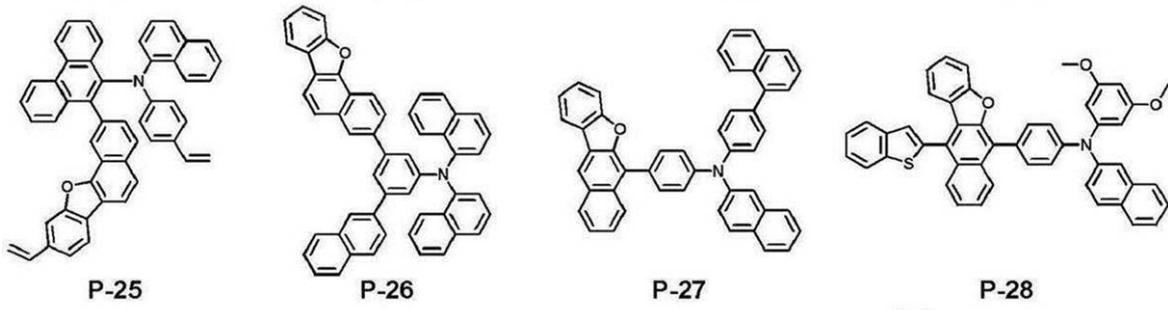
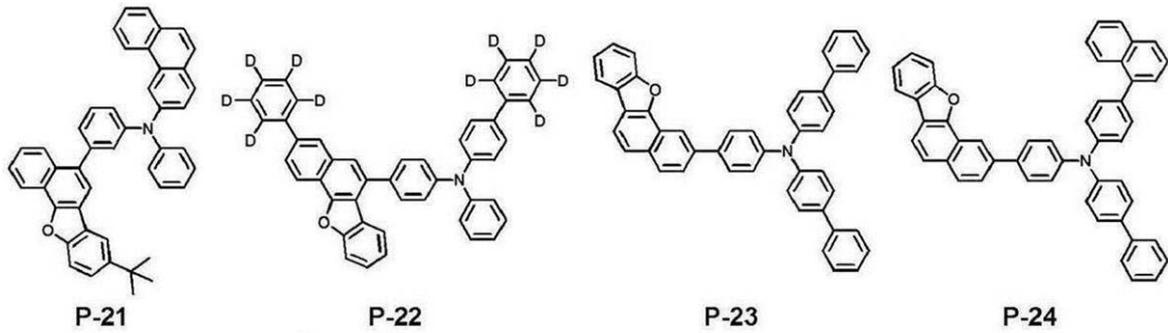
10

20

30

40

## 【化 6】



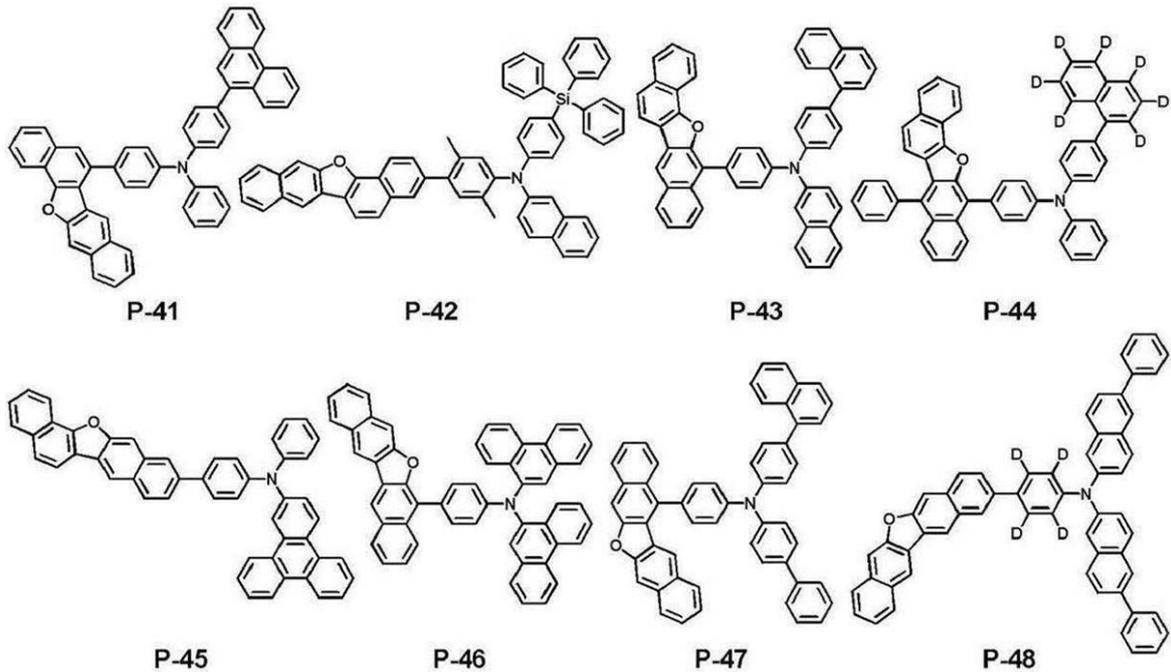
10

20

30

40

## 【化7】



10

20

## 【請求項4】

第1電極、第2電極、及び前記第1電極と第2電極との間に位置する有機物層を含み、前記有機物層は請求項1～3のうちいずれか一項に記載の化合物を含む、有機電子素子。

## 【請求項5】

前記化合物は、前記有機物層の正孔注入層、正孔輸送層、発光補助層、発光層、電子輸送補助層、電子輸送層及び電子注入層のうち少なくとも1つに含まれており、前記化合物は1種単独で又は2種以上の混合で含まれている、請求項4に記載の有機電子素子。

## 【請求項6】

前記有機物層は、スピンドーティング工程、ノズルプリンティング工程、インクジェットプリンティング工程、スロットコーティング工程、ディップコーティング工程又はロールツーロール工程によって形成される、請求項4又は請求項5に記載の有機電子素子。

30

## 【請求項7】

請求項4～6のうちいずれか一項に記載の有機電子素子を含むディスプレイ装置；及び前記ディスプレイ装置を駆動する制御部；を含む電子装置。

## 【請求項8】

前記有機電子素子は、有機電子発光素子、有機太陽電池、有機感光体、有機トランジスタ、及び単色又は白色照明用素子のうち、少なくとも1つである、請求項7に記載の電子装置。

## 【発明の詳細な説明】

40

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は有機電気素子用化合物、これを用いた有機電気素子及びその電子装置に関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

一般に、有機発光現象とは、有機物質を用いて電気エネルギーを光エネルギーに変換させる現象をいう。有機発光現象を利用する有機電子素子は通常、正極と負極及びこの間に有機物層を含む構造を有する。ここで、有機物層は、有機電子素子の効率と安定性を高めるために、それぞれ他の物質で構成された多層の構造からなる場合が多く、例えば、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層及び電子注入層などからなり得る。

50

## 【0003】

有機電子素子において有機物層として用いられる材料は、機能によって発光材料と電荷輸送材料、例えば、正孔注入材料、正孔輸送材料、電子輸送材料、電子注入材料などに分類されることができる。

## 【0004】

現在、携帯用ディスプレイ市場は、大面積ディスプレイへと大きさが增大している傾向にあり、これにより既存の携帯用ディスプレイで要求されていた消費電力よりも更に大きな消費電力が要求されている。従って、バッテリーという制限的な電力供給源を有している携帯用ディスプレイ立場では消費電力が非常に重要な要素となったうえ、効率と寿命の問題も必ず解決しなければならない状況である。

10

## 【0005】

効率と寿命、駆動電圧などは互いに関連性があり、効率が増加すれば、相対的に駆動電圧が低下し、駆動電圧が低下しつつ、駆動時に発生するジュール熱 (Joule heating) による有機物質の結晶化が少なくなり、結果として寿命が長くなる傾向を示す。しかし、前記有機物層を単純に改善することで、効率を最大化させることはできない。なぜなら、各有機物層間のエネルギー準位 (energy level) 及び  $T_1$  値、物質の固有特性 (移動度、界面特性など) などが最適の組み合わせとなったとき、長寿命と高効率を同時に達成できるためである。

## 【0006】

また、最近有機電子発光素子において正孔輸送層における発光の問題及び駆動電圧の問題を解決するためには、必ず正孔輸送層と発光層との間に発光補助層 (多層の正孔輸送層) が存在すべきであり、それぞれの発光層 (R、G、B) による異なる発光補助層の開発が必要な時点である。

20

## 【0007】

一般に、電子輸送層から発光層に電子 (electron) が伝達され、正孔輸送層から発光層に正孔 (hole) が伝達されて発光層内で電子と正孔の再結合 (recombination) がなされ、エキシトン (exciton) を形成するようになる。

## 【0008】

しかし、正孔輸送層に用いられる物質の場合、低い HOMO 値を有すべきであるため、大方低い  $T_1$  値を有し、これにより発光層で生成されたエキシトンが正孔輸送層に移されるようになり、結果的に発光層内の電荷不均衡 (charge unbalance) を齎し、正孔輸送層の界面において発光するようになる。

30

## 【0009】

正孔輸送層の界面で発光される場合、有機電気素子の色純度及び効率が低下し、寿命が短くなるという問題が発生する。従って、正孔輸送層の HOMO エネルギー準位と発光層の HOMO エネルギー準位との間の HOMO 準位を有する物質でなければならず、高い  $T_1$  値を有し、適切な駆動電圧範囲内 (full device の blue 素子駆動電圧範囲内) の正孔移動度 (hole mobility) を有する発光補助層物質の開発が切実に要求される。

## 【0010】

しかし、これは単に発光補助層物質のコアに対する構造的な特性によりなされることができず、発光補助層物質のコア及び sub-置換基の特性、そして発光補助層と正孔輸送層、発光補助層と発光層間の適切な組み合わせがなされたとき、高効率及び長寿命の素子が実現できる。

40

## 【0011】

一方、有機電子素子の寿命短縮原因の1つである正極電極 (ITO) から金属酸化物が有機層に浸透拡散されることを遅延させつつ、素子駆動時に発生するジュール熱に対しても安定した特性、即ち高いガラス転移温度を有する正孔注入層材料に対する開発が必要である。正孔輸送層材料の低いガラス転移温度は素子駆動時、薄膜表面の均一度を低下させる特性があるため、素子の寿命に大きな影響を及ぼすことが報告されている。また、OLED 素子は主に蒸着方法により形成されるが、蒸着時に長く耐えられる材料、即ち耐熱特性

50

が強い材料の開発が必要な状況である。

【0012】

即ち、有機電子素子が有する優れた特徴を十分に発揮するためには、素子内の有機物層をなす物質、例えば、正孔注入物質、正孔輸送物質、発光物質、電子輸送物質、電子注入物質、発光補助層物質などが安定的、且つ効率的な材料によって後押しされることが前提とならなければならない、特に発光補助層と正孔輸送層材料に対する開発が切実に要求されている。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0013】

そこで、本発明は上記事情に鑑みてなされたものであって、その目的は、効率的な電子阻止能力及び正孔輸送能力を有する化合物を提供すると同時に、このような化合物を用いて素子の高い発光効率、低い駆動電圧、高耐熱性、色純度及び寿命を向上させることができる化合物、これを用いた有機電子素子及びその電子装置を提供することにある。

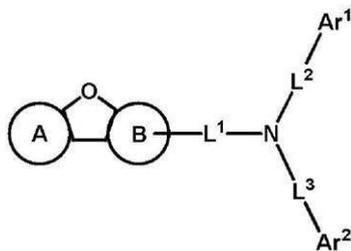
【課題を解決するための手段】

【0014】

一側面において、本発明は下記式で表される化合物を提供する。下記式は3次アミンに芳香族環が追加で縮合された(fused)形態であるジベンゾフランを有する化合物を表す。

【0015】

【化1】



【0016】

他の側面において、本発明は前記式で表される化合物を用いた有機電気素子及びその電子装置を提供する。

【発明の効果】

【0017】

本発明によれば、分子の平面性を高める置換基を導入した特定化合物を有機電気素子の材料として用いることによって、正孔輸送能力及び熱的安定性が向上し、発光層内に電荷均衡をなすのに容易なHOMOエネルギーレベルと高い $T_1$ 値を有するため、有機電気素子の発光効率、耐熱性、寿命などを向上させることができ、駆動電圧を下げることもできるという効果を奏する。

【図面の簡単な説明】

【0018】

【図1】本発明に係る有機電気発光素子の例示図を示す。

【発明を実施するための形態】

【0019】

以下、本発明の実施例を添付の図面を参照して詳細に説明する。

【0020】

各図面の構成要素に参照符号を付すにおいて、同一の構成要素に対しては、たとえ他の図面上に表示されていても、可能な限り同一の符号を有するようになっていることに留意すべきである。また、本発明を説明するにおいて、関連する公知の構成又は機能に関する具体的な説明が本発明の要旨を曖昧にするおそれがあると判断される場合には、その詳細な説明を省略する。

【0021】

本発明の構成要素を説明するにおいて、第1、第2、A、B、(a)、(b)などの用語を用いることができる。このような用語は、その構成要素を他の構成要素と区別するためのものに過ぎず、その用語により該当構成要素の本質や順番又は順序などが限定されるわけではない。ある構成要素が他の構成要素に「連結」、「結合」又は「接続」されると記載されている場合、その構成要素は、その他の構成要素に直接的に連結又は接続することができるが、各構成要素の間に他の構成要素が「連結」、「結合」又は「接続」されることもあることが理解されるべきである。

【0022】

また、層、膜、領域、板などの構成要素が他の構成要素「の上に」又は「上に」あるとする場合、これは他の構成要素の「真上に」ある場合のみならず、その間に他の構成要素がある場合も含むことができると理解されるべきである。反対に、ある構成要素が他の部分の「真上に」あるとする場合は、その間に他の部分がないことを意味すると理解されるべきである。

10

【0023】

本明細書及び添付の請求の範囲で用いられているように、特に言及しない限り、下記用語の意味は、下記と同様である。

【0024】

本明細書で用いられている用語「ハロ」又は「ハロゲン」は、他の説明がない限り、フッ素(F)、ブローム(Br)、塩素(Cl)又はヨード(I)である。

【0025】

本発明で用いられている用語「アルキル」又は「アルキル基」は、他の説明がない限り、1ないし60の炭素数の単一結合を有し、直鎖アルキル基、分岐鎖アルキル基、シクロアルキル(脂環族)基、アルキル-置換されたシクロアルキル基、シクロアルキル-置換されたアルキル基をはじめとする飽和脂肪族作用基のラジカルを意味する。

20

【0026】

本発明で用いられている用語「ハロアルキル基」又は「ハロゲンアルキル基」は、他の説明がない限り、ハロゲンで置換されたアルキル基を意味する。

【0027】

本発明で用いられている用語「アルケニル基」又は「アルキニル基」は、他の説明がない限り、それぞれ2ないし60の炭素数の二重結合又は三重結合を有し、直鎖型又は側鎖型鎖基を含み、これに制限されるものではない。

30

【0028】

本発明で用いられている用語「シクロアルキル」は、他の説明がない限り、3ないし60の炭素数を有する環を形成するアルキルを意味し、これに制限されるものではない。

【0029】

本発明で用いられている用語「アルコキシル基」、「アルコキシ基」、又は「アルキルオキシ基」は、酸素ラジカルが付着されたアルキル基を意味し、他の説明がない限り、1ないし60の炭素数を有し、これに制限されるものではない。

【0030】

本発明で用いられている用語「アリーロキシル基」又は「アリーロキシ基」は、酸素ラジカルが付着されたアリール基を意味し、他の説明がない限り、6ないし60の炭素数を有し、これに制限されるものではない。

40

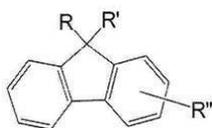
【0031】

本発明で用いられている用語「フルオレニル基」又は「フルオレニレン基」は、他の説明がない限り、それぞれ下記構造においてR、R'及びR"がすべて水素である1価又は2価の作用基を意味し、「置換されたフルオレニル基」又は「置換されたフルオレニレン基」は置換基R、R'、R"のうち、少なくとも1つが水素以外の置換基であることを意味し、RとR'が互いに結合され、これらが結合された炭素と共にスピロ化合物を形成した場合を含む。

【0032】

50

## 【化2】



## 【0033】

本発明で用いられている用語「アリール基」及び「アリーレン基」は、他の説明がない限り、それぞれ6ないし60の炭素数を有し、これに制限されるものではない。本発明でアリール基又はアリーレン基は単環系、環集合体、縮合多環系、スピロ化合物などを含む。

## 【0034】

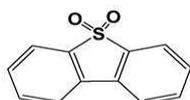
本発明で用いられている用語「ヘテロ環基」は「ヘテロアリール基」又は「ヘテロアリーレン基」のような芳香族環のみならず、非芳香族環も含み、他の説明がない限り、それぞれ1つ以上のヘテロ原子を含む炭素数2ないし60の環を意味するが、これに制限されるものではない。本明細書で用いられている用語「ヘテロ原子」は他の説明がない限り、N、O、S、P又はSiを示し、ヘテロ環基はヘテロ原子を含む単環系、環集合体、縮合多環系、スピロ化合物等を意味する。

## 【0035】

また、「ヘテロ環基」は環を形成する炭素の代わりに $SO_2$ を含む環も含むことができる。例えば、「ヘテロ環基」は下記化合物を含む。

## 【0036】

## 【化3】



## 【0037】

本発明で用いられている用語「環」は単環及び多環を含み、炭化水素環はもとより少なくとも1つのヘテロ原子を含むヘテロ環を含み、芳香族及び非芳香族環を含む。

## 【0038】

本発明で用いられている用語「多環」はビフェニル、ターフェニルなどと同様の環集合体 (ring assemblies)、縮合 (fused) 多環系及びスピロ化合物を含み、芳香族のみならず、非芳香族も含み、炭化水素環はもとより少なくとも1つのヘテロ原子を含むヘテロ環を含む。

## 【0039】

本発明で用いられている用語「環集合体」は2つ又はそれ以上の環系 (単環又は縮合環系) が単結合又は二重結合を通じて互いに直接連結されており、このような環の間の直接連結の数がこの化合物に入っている環系の総数より1つが少ないことを意味する。環集合体は同一又は相違する環系が単結合又は二重結合を通じて互いに直接連結することができる。

## 【0040】

本発明で用いられている用語「縮合多環系」は少なくとも2つの原子の共有する縮合環形態を意味し、2つ以上の炭化水素類の環系が縮合形態及び少なくとも1つのヘテロ原子を含むヘテロ環系が少なくとも1つの縮合形態などを含む。このような縮合多環系は芳香族環、ヘテロ芳香族環、脂肪族環又はこれらの環の組み合わせであり得る。

## 【0041】

本発明で用いられている用語「スピロ化合物」は「スピロ連結 (spiro union)」を有し、スピロ連結は2つの環が専ら1つの原子を共有することで行われる連結を意味する。このとき、2つの環に共有された原子を「スピロ原子」と称し、1つの化合物に入っているスピロ原子の数により、これらをそれぞれ「モノスピロー」、「ジスピロー」、「トリスピロー」化合物と称する。

## 【0042】

10

20

30

40

50

また、接頭辞が連続して命名される場合、先に記載された順に置換基が羅列されることを意味する。例えば、アリアルコキシ基の場合、アリアル基で置換されたアルコキシ基を意味し、アルコキシカルボニル基の場合、アルコキシ基で置換されたカルボニル基を意味し、またアリアルカルボニルアルケニル基の場合、アリアルカルボニル基で置換されたアルケニル基を意味し、ここでアリアルカルボニル基は、アリアル基で置換されたカルボニル基である。

【0043】

また、明示的な説明がない限り、本発明で用いられている用語「置換又は非置換の」における「置換」は重水素、ハロゲン、アミノ基、ニトリル基、ニトロ基、 $C_1-C_{20}$ のアルキル基、 $C_1-C_{20}$ のアルコキシ基、 $C_1-C_{20}$ のアルキルアミン基、 $C_1-C_{20}$ のアルキルチオフェン基、 $C_6-C_{20}$ のアリアルチオフェン基、 $C_2-C_{20}$ のアルケニル基、 $C_2-C_{20}$ のアルキニル基、 $C_3-C_{20}$ のシクロアルキル基、 $C_6-C_{20}$ のアリアル基、重水素で置換された $C_6-C_{20}$ のアリアル基、 $C_8-C_{20}$ のアリアルアルケニル基、シラン基、ホウ素基、ゲルマニウム基、及びO、N、S、Si及びPからなる群より選択された少なくとも1つのヘテロ原子を含む $C_2-C_{20}$ のヘテロ環基からなる群より選択される1つ以上の置換基で置換されることを意味し、これらの置換基に制限されるものではない。

【0044】

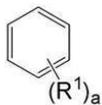
本明細書において各記号及びその置換基の例として示されるアリアル基、アリーレン基、ヘテロ環基などに該当する「基の名称」は「価数を反映させた基の名称」を記載してもよく、「母体化合物の名称」で記載してもよい。例えば、アリアル基の一種である「フェナントレン」の場合、1価の「基」は「フェナントリル」に、2価の基は「フェナントリレン」などのように価数を区分して基の名称を記載することもできるが、価数と関係なく母体化合物の名称である「フェナントレン」と記載することもできる。同様に、ピリミジンの場合にも、価数と関係なく「ピリミジン」と記載するか、1価の場合はピリミジニル、2価の場合にはピリミジニレンなどのように該当価数の「基の名称」で記載することもできる。

【0045】

また、明示的な説明がない限り、本発明で用いられている式は、下記式の指数定義による置換基の定義と同様に適用される。

【0046】

【化4】



【0047】

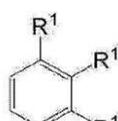
ここで、 $a$ が0の整数であるとき、置換基 $R^1$ は不在であり、 $a$ が1の整数であるとき、1つの置換基 $R^1$ はベンゼン環を形成する炭素のうち、いずれか1つの炭素に結合し、 $a$ が2又は3の整数であるとき、それぞれ下記と同様に結合し、このとき、 $R^1$ は互いに同一又は異なることもあり、 $a$ が4ないし6の整数であるとき、これと類似する方式でベンゼン環の炭素に結合し、一方、ベンゼン環を形成する炭素に結合された水素の表示は省略する。

【0048】

【化5】



(a=2)



(a=3)

10

20

30

40

50

## 【0049】

図1は、本発明の一実施例に係る有機電気素子に対する例示図である。

## 【0050】

図1を参照すれば、本発明の一実施例に係る有機電気素子100は、基板110上に形成された第1電極120、第2電極180及び第1電極120と第2電極180との間に本発明に係る化合物を含む有機物層を備える。このとき、第1電極120はアノード（正極）であり、第2電極180はカソード（負極）であり得、インバート型の場合には、第1電極がカソードであり、第2電極がアノードであり得る。

## 【0051】

有機物層は、第1電極120上に順次、正孔注入層130、正孔輸送層140、発光層150、電子輸送層160及び電子注入層170を含むことができる。このとき、発光層150を除いた残りの層が形成されないこともあり得る。正孔阻止層、電子阻止層、発光補助層151、バッファ層141などを更に含んでもよく、電子輸送層160などが正孔阻止層の機能を行ってもよい。

10

## 【0052】

また、図示していないが、本発明の一実施例に係る有機電気素子は第1電極と第2電極のうち、少なくとも一面のうち前記有機物層と反対の一面に形成された保護層又は光効率改善層（Capping Layer）を更に含むことができる。

## 【0053】

前記有機物層に適用される本発明の一実施例に係る化合物は、正孔注入層130、正孔輸送層140、電子輸送層160、電子輸送補助層、電子注入層170、発光層150のホスト又はドーパン、又は光効率改善層の材料として使用することもできる。一例として、本発明の化合物は発光層150、正孔輸送層140及び/又は発光補助層151の材料として用いてもよく、好ましくは、正孔輸送層140及び/又は発光補助層151の材料として用いてもよい。

20

## 【0054】

一方、同一のコアであっても、ある位置に、ある置換基を結合させるかによってバンドギャップ（band gap）、電気的特性、界面特性などが異なり得るため、コアの選択及びこれに結合されたサブ（sub）-置換体の組み合わせも非常に重要であり、特に各有機物層間のエネルギー準位及び $T_1$ 値、物質の固有特性（移動度、界面特性など）などが最適の組み合わせとなったとき、長寿命と高効率を同時に達成することができる。

30

## 【0055】

前述したように、一般に有機電気発光素子において正孔輸送層での発光問題を解決するためには、正孔輸送層と発光層との間に発光補助層を形成することが好ましく、それぞれの発光層（R、G、B）による互いに異なる発光補助層の開発が必要である。

## 【0056】

一方、発光補助層の場合、正孔輸送層及び発光層（ホスト）との相互関係を把握しなければならないので、類似するコアを用いても使用される有機物層が変わると、その特徴を類推することは非常に難しい。

## 【0057】

従って、本発明では式1で表される化合物を用いて正孔輸送層及び/又は発光補助層を形成することによって各有機物層間のエネルギーレベル及び $T_1$ 値、物質の固有特性（移動度、界面特性など）などを最適化して有機電気素子の寿命及び効率を同時に向上させることができる。

40

## 【0058】

本発明の一実施例に係る有機電気発光素子は、多様な蒸着法（deposition）を用いて製造することができる。PVDやCVDなどの蒸着方法を用いて製造することができるが、例えば、基板上に金属又は伝導性を有する金属酸化物又はこれらの合金を蒸着させて正極120を形成し、その上に正孔注入層130、正孔輸送層140、発光層150、電子輸送層160及び電子注入層170を含む有機物層を形成した後、その上に負極180として

50

使用できる物質を蒸着させることによって製造することができる。また、正孔輸送層 140 と発光層 150 の間に発光補助層 151 が、発光層 150 と電子輸送層 160 の間に電子輸送補助層が追加で更に形成されることができる。

【0059】

また、有機物層は多様な高分子素材を用いて蒸着法ではない溶液工程又は溶剤プロセス (solvent process)、例えば、スピンコーティング工程、ノズルプリンティング工程、インクジェットプリンティング工程、スロットコーティング工程、ディップコーティング工程、ロールツーロール工程、ドクターブレードング工程、スクリーンプリンティング工程、又は熱転写法などの方法によってより少ない数の層で製造することができる。本発明に係る有機物層は、多様な方法で形成することができるので、その形成方法によって本発明の権利範囲が制限されるものではない。

10

【0060】

本発明の一実施例に係る有機電気素子は、用いられる材料によって前面発光型、後面発光型又は両面発光型であり得る。

【0061】

WOLE D (White organic Light Emitting Device) は、高解像度の実現が容易であり、工程性に優れた一方、既存の LCD のカラーフィルタ技術を用いて製造することができるという利点がある。主に、バックライト装置として用いられる白色有機発光素子に対する多様な構造が提案され特許化されている。代表として、R (Red)、G (Green)、B (Blue) 発光部を相互平面的に並列配置 (side-by-side) 方式、R、G、B 発光層が上下に積層される積層 (stacking) 方式があり、青色 (B) 有機発光層による電界発光とこれからの光を利用して無機蛍光体の自発光 (photo-luminescence) を利用する色変換物質 (color conversion material、CCM) 方式などがあるが、本発明はこのような WOLE D にも適用することができる。

20

【0062】

また、本発明の一実施例に係る有機電気素子は、有機電気発光素子、有機太陽電池、有機感光体、有機トランジスタ、単色又は白色照明用素子のうちの 1 つであり得る。

【0063】

本発明の他の実施例は、前述した本発明の有機電気素子を含むディスプレイ装置と、このディスプレイ装置を制御する制御部を含む電子装置を含むことができる。このとき、電子装置は現在又は将来の有無線通信端末であり得、携帯電話などの移動通信端末、PDA、電子辞書、PMP、リモコン、ナビゲーション、ゲーム機、各種テレビ、各種コンピュータなど、あらゆる電子装置を含む。

30

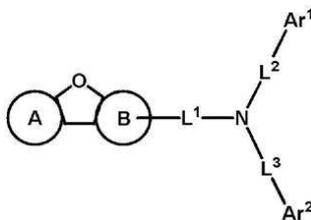
【0064】

以下、本発明の一側面に係る化合物について説明する。  
本発明の一側面に係る化合物は、下記式 1 で表される。

【0065】

<式 1>

【化 6】



40

【0066】

前記式 1 において、各記号は下記と同様に定義することができる。

【0067】

A 環及び B 環は互いに独立に、C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub> のアリール基であり、前記 A 環は少なくとも 1 つの R<sup>1</sup> で置換され得、前記 B 環は少なくとも 1 つの R<sup>2</sup> で置換され得、このとき、A

50

環とB環が同時にC<sub>6</sub>のアリール基である場合は除外され得る。

【0068】

好ましくは、A環及びB環は互いに独立に、C<sub>6</sub>又はC<sub>10</sub>のアリール基であり得、より好ましくは、フェニル又はナフチルであり得るが、同時にフェニルである場合は除外する。

【0069】

R<sup>1</sup>及びR<sup>2</sup>は互いに独立に、重水素；三重水素；ハロゲン；シアノ基；ニトロ基；C<sub>6</sub>-C<sub>60</sub>のアリール基；フルオレニル基；O、N、S、Si及びPのうち、少なくとも1つのヘテロ原子を含むC<sub>2</sub>-C<sub>60</sub>のヘテロ環基；C<sub>3</sub>-C<sub>60</sub>の脂肪族環とC<sub>6</sub>-C<sub>60</sub>の芳香族環の縮合環基；C<sub>1</sub>-C<sub>50</sub>のアルキル基；C<sub>2</sub>-C<sub>20</sub>のアルケニル基；C<sub>2</sub>-C<sub>20</sub>のアルキニル基；C<sub>1</sub>-C<sub>30</sub>のアルコキシ基；及びC<sub>6</sub>-C<sub>30</sub>のアリールオキシ基；からなる群より選択されることができる。

【0070】

前記R<sup>1</sup>及びR<sup>2</sup>がアリール基、フルオレニル基、ヘテロ環基、縮合環基、アルキル基、アルケニル基、アルコキシ基、アリールオキシ基及びアリールオキシ基である場合は、これらのそれぞれは重水素；ハロゲン；C<sub>1</sub>-C<sub>20</sub>のアルキル基又はC<sub>6</sub>-C<sub>20</sub>のアリールで置換又は非置換されたシラン基；シロキサン基；ホウ素基；ゲルマニウム基；シアノ基；ニトロ基；C<sub>1</sub>-C<sub>20</sub>のアルキルチオ基；C<sub>1</sub>-C<sub>20</sub>のアルコキシ基；C<sub>1</sub>-C<sub>20</sub>のアルキル基；C<sub>2</sub>-C<sub>20</sub>のアルケニル基；C<sub>2</sub>-C<sub>20</sub>のアルキニル基；C<sub>6</sub>-C<sub>20</sub>のアリール基；重水素で置換されたC<sub>6</sub>-C<sub>20</sub>のアリール基；フルオレニル基；O、N、S、Si及びPからなる群より選択された少なくとも1つのヘテロ原子を含むC<sub>2</sub>-C<sub>20</sub>のヘテロ環基；C<sub>3</sub>-C<sub>20</sub>のシクロアルキル基；C<sub>7</sub>-C<sub>20</sub>のアリールアルキル基；及びC<sub>8</sub>-C<sub>20</sub>のアリールアルケニル基；からなる群より選択された1つ以上の置換基で更に置換され得る。

【0071】

R<sup>1</sup>及びR<sup>2</sup>がアリール基である場合は、好ましくは、C<sub>6</sub>-C<sub>30</sub>のアリール基、更に好ましくは、C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>のアリール基であることができ；ヘテロ環基である場合には、C<sub>2</sub>-C<sub>30</sub>のヘテロ環基、更に好ましくは、C<sub>2</sub>-C<sub>13</sub>のヘテロ環基であることができ；縮合環基である場合には、好ましくは、C<sub>3</sub>-C<sub>30</sub>の脂肪族環とC<sub>6</sub>-C<sub>30</sub>の芳香族環の縮合環基、更に好ましくは、C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>の脂肪族環とC<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>の芳香族環の縮合環基であることができ；アルキル基である場合には、好ましくは、C<sub>1</sub>-C<sub>10</sub>のアルキル基、更に好ましくは、C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>のアルキル基であることができ；アルケニル基である場合には、好ましくは、C<sub>1</sub>-C<sub>10</sub>のアルケニル基、更に好ましくは、C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>のアルケニル基であることができる。具体的に、R<sup>1</sup>及びR<sup>2</sup>は互いに独立に、シアノ、メチル、tert-ブチル、エテニル、フェニル、ナフチル、ベンゾチエニル (benzothienyl)、ジベンゾフリル、ベンゾイソキノリル又はベンゾシクロブテニルなどであり得、これらのそれぞれは重水素で更に置換され得る。

【0072】

L<sup>1</sup>はC<sub>6</sub>-C<sub>60</sub>のアリーレン基であることができる。

【0073】

前記L<sup>1</sup>のアリーレン基は、重水素；ハロゲン；C<sub>1</sub>-C<sub>20</sub>のアルキル基又はC<sub>6</sub>-C<sub>20</sub>のアリールで置換又は非置換されたシラン基；シロキサン基；ホウ素基；ゲルマニウム基；シアノ基；ニトロ基；C<sub>1</sub>-C<sub>20</sub>のアルキルチオ基；C<sub>1</sub>-C<sub>20</sub>のアルコキシ基；C<sub>1</sub>-C<sub>20</sub>のアルキル基；C<sub>2</sub>-C<sub>20</sub>のアルケニル基；C<sub>2</sub>-C<sub>20</sub>のアルキニル基；C<sub>6</sub>-C<sub>20</sub>のアリール基；重水素で置換されたC<sub>6</sub>-C<sub>20</sub>のアリール基；フルオレニル基；O、N、S、Si及びPからなる群より選択された少なくとも1つのヘテロ原子を含むC<sub>2</sub>-C<sub>20</sub>のヘテロ環基；C<sub>3</sub>-C<sub>20</sub>のシクロアルキル基；C<sub>7</sub>-C<sub>20</sub>のアリールアルキル基；及びC<sub>8</sub>-C<sub>20</sub>のアリールアルケニル基；からなる群より選択された1つ以上の置換基で更に置換され得る。

【0074】

前記L<sup>1</sup>のアリーレン基は、好ましくは、C<sub>6</sub>-C<sub>30</sub>のアリーレン基、更に好ましくは、C<sub>6</sub>-

$C_{16}$ のアリーレン基であることができる。具体的に、 $L^1$ は、フェニレン、ナフチレン、ピフェニレン、フェナントリレン又はこれらの組み合わせなどであり得、これらのそれぞれは重水素で更に置換され得る。

【0075】

$L^2$ 及び $L^3$ は互いに独立に、単結合；又は $C_6-C_{60}$ のアリーレン基；であることができる。

【0076】

前記 $L^2$ 及び $L^3$ のアリーレン基は重水素；ハロゲン； $C_1-C_{20}$ のアルキル基又は $C_6-C_{20}$ のアリールで置換又は非置換されたシラン基；シロキサン基；ホウ素基；ゲルマニウム基；シアノ基；ニトロ基； $C_1-C_{20}$ のアルキルチオ基； $C_1-C_{20}$ のアルコキシ基； $C_1-C_{20}$ のアルキル基； $C_2-C_{20}$ のアルケニル基； $C_2-C_{20}$ のアルキニル基； $C_3-C_{20}$ のシクロアルキル基； $C_7-C_{20}$ のアリールアルキル基；及び $C_8-C_{20}$ のアリールアルケニル基；からなる群より選択された1つ以上の置換基で更に置換され得る。

【0077】

$L^2$ 及び $L^3$ がアリーレン基である場合には、好ましくは、 $C_6-C_{30}$ のアリーレン基、更に好ましくは、 $C_6-C_{10}$ のアリーレン基であることができる。具体的に、 $L^2$ 及び $L^3$ は互いに独立に、単結合、フェニレン又はナフチレンなどであり得、これらのそれぞれは重水素で更に置換され得る。

【0078】

$Ar^1$ 及び $Ar^2$ は互いに独立に、 $C_6-C_{60}$ のアリール基；であることができる。

【0079】

前記 $Ar^1$ 及び $Ar^2$ のアリール基は、重水素；ハロゲン； $C_1-C_{20}$ のアルキル基又は $C_6-C_{20}$ のアリールで置換又は非置換されたシラン基；シロキサン基；ホウ素基；ゲルマニウム基；シアノ基；ニトロ基； $C_1-C_{20}$ のアルキルチオ基； $C_1-C_{20}$ のアルコキシ基； $C_1-C_{20}$ のアルキル基； $C_2-C_{20}$ のアルケニル基； $C_2-C_{20}$ のアルキニル基；重水素で置換された $C_6-C_{20}$ のアリール基；フルオレニル基； $C_3-C_{20}$ のシクロアルキル基； $C_7-C_{20}$ のアリールアルキル基；及び $C_8-C_{20}$ のアリールアルケニル基；からなる群より選択された1つ以上の置換基で更に置換され得、これらの各置換基が隣接する場合、これらは互いに結合して環を形成することができる。

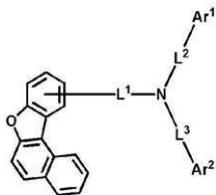
【0080】

前記 $Ar^1$ 及び $Ar^2$ のアリール基は、好ましくは、 $C_6-C_{30}$ のアリール基、更に好ましくは、 $C_6-C_{18}$ のアリール基であることができる。具体的に、 $Ar^1$ 及び $Ar^2$ は互いに独立に、フェニル、ナフチル、ピフェニル、フェナントリル、フルオランテン、トリフェニレンなどであり得、これらのそれぞれは重水素、フルオロ、エテニル、メトキシ、トリフェニルシラン又はトリメチルシランで更に置換され得る。

【0081】

このとき、式1で表される化合物において

【化7】



又は

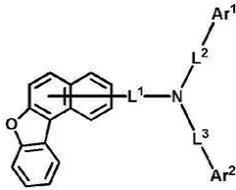
10

20

30

40

## 【化 8】



の式で表される化合物を除外し、 $Ar^1$ 、 $Ar^2$ 及び $L^1$ ないし $L^3$ は、前記式 1 における定義と同様である。

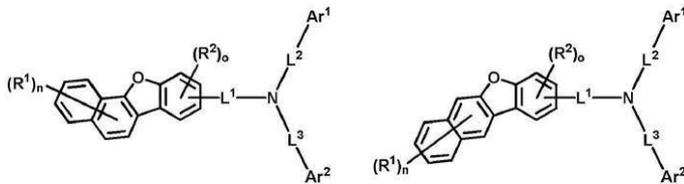
## 【0082】

前記式 1 は、下記式 4 ないし式 9 のうちのいずれか 1 つに表されることができる。

&lt; 式 2 &gt;

&lt; 式 3 &gt;

## 【化 9】

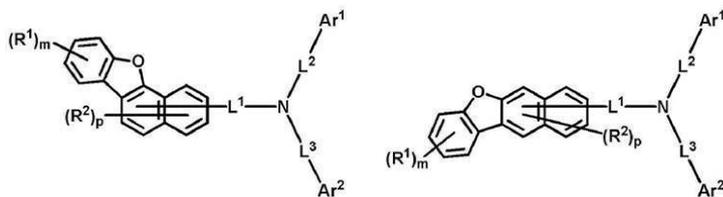


## 【0083】

&lt; 式 4 &gt;

&lt; 式 5 &gt;

## 【化 10】

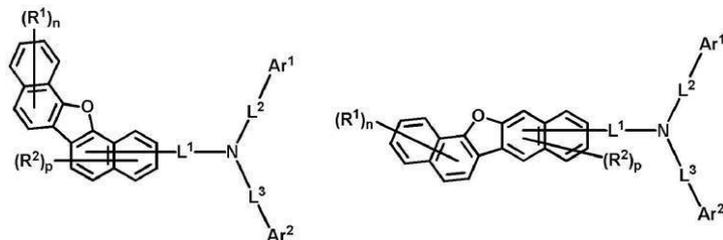


## 【0084】

&lt; 式 6 &gt;

&lt; 式 7 &gt;

## 【化 11】

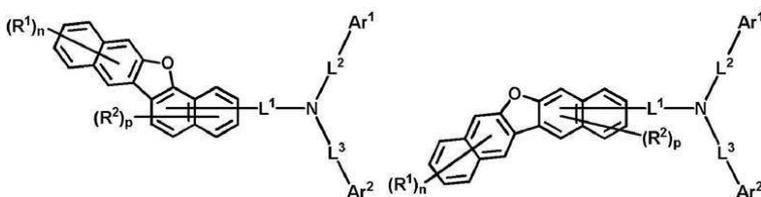


## 【0085】

&lt; 式 8 &gt;

&lt; 式 9 &gt;

## 【化 12】



## 【0086】

前記式 2 ないし 9 において、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $L^1$ ないし $L^3$ 、 $Ar^1$ 及び $Ar^2$ は前記式 1 における定義と同様である。そして、前記 m は 0 ~ 4 の整数であり、n は 0 ~ 6 の整数であり、o は 0 ~ 3 の整数であり、p は 0 ~ 5 の整数であり、m、n、o 及び p が 2 以上の整数で

10

20

30

40

50

ある場合には、複数の  $R^1$  及び  $R^2$  は互いに同一か異なることができる。

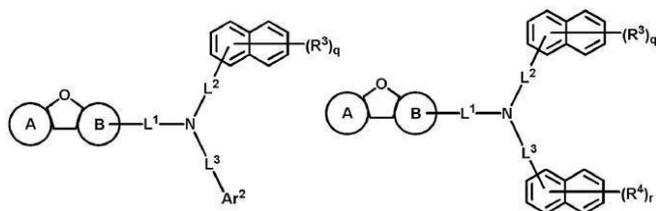
【0087】

また、前記式 1 は、下記式 10 又は式 11 で表されることができる。

<式 10>

<式 11>

【化 13】



10

前記式 10 及び式 11 において、A 環及び B 環は前記式 1 における定義と同様である。

【0088】

前記  $L^1$  は  $C_6-C_{30}$  のアリーレン基；であり、 $L^2$  及び  $L^3$  は互いに、単結合又は  $C_6-C_{30}$  のアリーレン基；であり、 $Ar^2$  は  $C_6-C_{30}$  のアリール基；であることができる。

【0089】

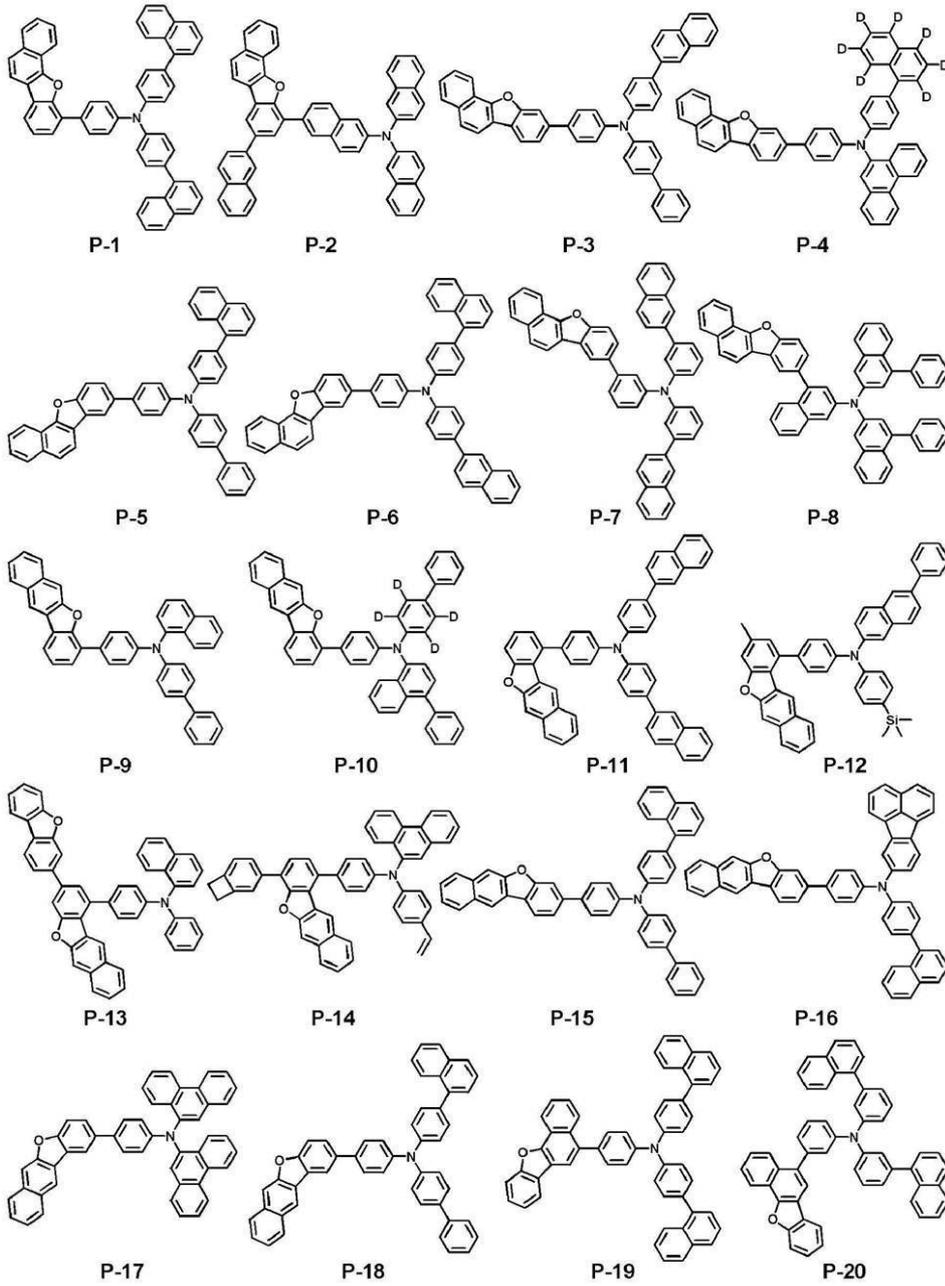
前記  $R^3$  及び  $R^4$  は互いに独立に、重水素；ハロゲン； $C_1-C_{20}$  のアルキル基又は  $C_6-C_{20}$  のアリールで置換又は非置換されたシラン基；シロキサン基；ホウ素基；ゲルマニウム基；シアノ基；ニトロ基； $C_1-C_{20}$  のアルキルチオ基； $C_1-C_{20}$  のアルコキシ基； $C_1-C_{20}$  のアルキル基； $C_2-C_{20}$  のアルケニル基； $C_2-C_{20}$  のアルキニル基；重水素で置換された  $C_6-C_{20}$  のアリール基；フルオレニル基； $C_3-C_{20}$  のシクロアルキル基； $C_7-C_{20}$  のアリールアルキル基；及び  $C_8-C_{20}$  のアリールアルケニル基；からなる群より選択され、 $q$  及び  $r$  は互いに独立に、0 ~ 7 の整数であり、 $q$  及び  $r$  が 2 以上の整数である場合には、複数の  $R^3$  及び  $R^4$  は互いに同一か異なることができる。

20

【0090】

前記式 1 ないし式 11 は、下記化合物のうち1つであり得る。

【化 1 4】



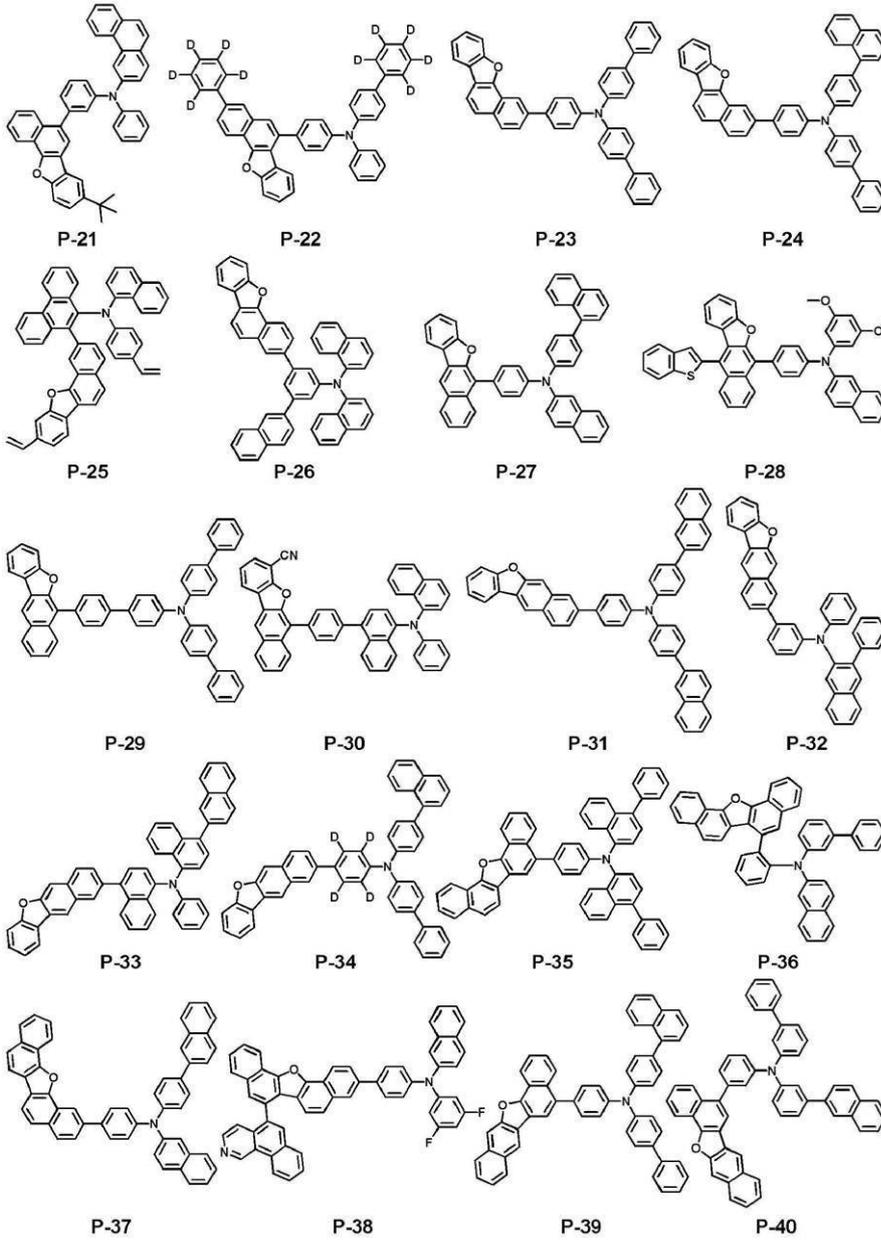
10

20

30

【 0 0 9 1 】

【化 1 5】



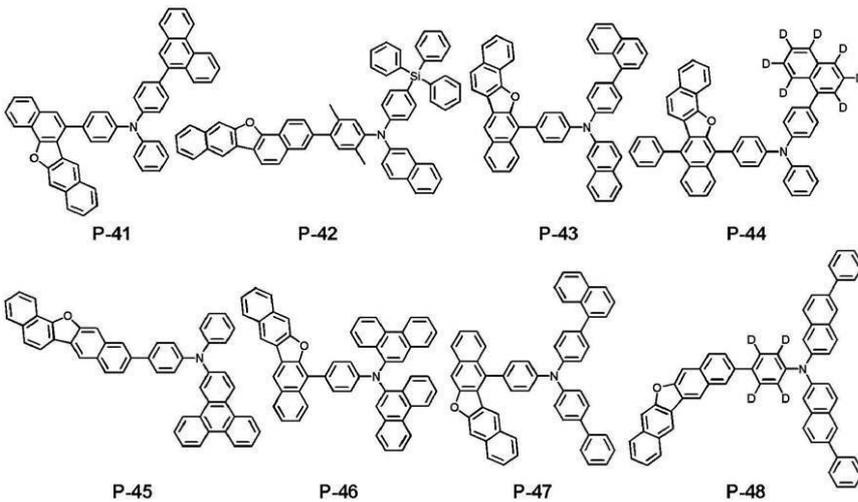
10

20

30

【 0 0 9 2 】

【化 1 6】



40

【 0 0 9 3 】

他の実施形態として、本発明は、 1 電極；第 2 電極；及び前記第 1 電極と第 2 電極との間

50

に形成された有機物層；を含む有機電子素子を提供し、このとき、前記有機物層は正孔注入層、正孔輸送層、発光補助層、発光層、電子輸送補助層、電子輸送層及び電子注入層のうち少なくとも1つであり、これらの有機物層は、前記化合物のうち少なくとも1つを含むことができる。即ち、有機物層は、前記式1で表される化合物1種の単独の化合物又は2種以上の混合物で形成することができる。好ましくは、前記式1で表される単独の化合物又は2種以上の化合物を含む混合物は正孔輸送層及び/又は発光補助層に含まれるか、これらの層を形成することができる。

【0094】

以下、本発明に係る式1で表される化合物の合成例及び有機電気素子の製造例に対して実施例を挙げて具体的に説明するが、本発明が下記実施例に限定されるものではない。

10

【0095】

【実施例】

【0096】

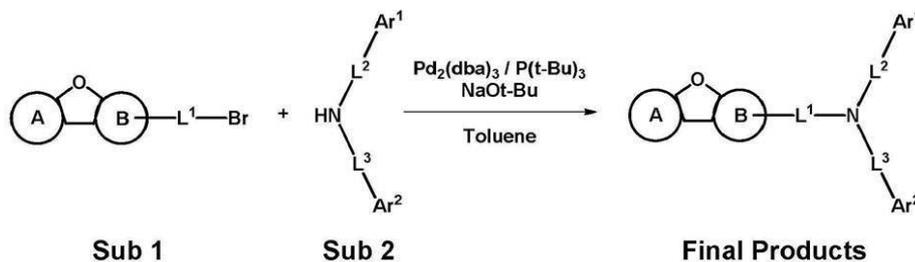
【合成例】

本発明に係る式1で表される化合物 (final products) は、下記反応式1のようにSub 1とSub 2を反応させて製造されるが、これに限定されるものではない。

【0097】

<反応式1>

【化17】



20

【0098】

A環、B環、L<sup>1</sup>~L<sup>3</sup>、Ar<sup>1</sup>及びAr<sup>2</sup>は、前記式1における定義と同様である。

【0099】

I. Sub 1の合成

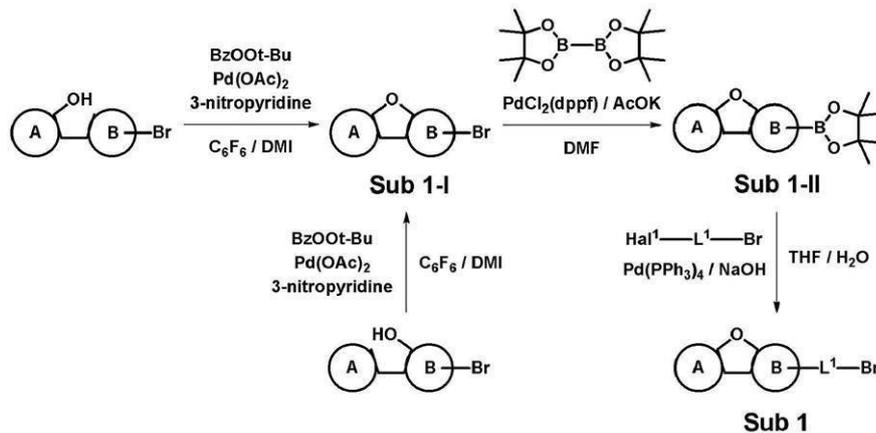
30

反応式1のSub 1は、下記反応式2の反応経路により合成することができるが、これに限定されるものではない。

【0100】

<反応式2>Hal<sup>1</sup>はBr又はI

【化18】



40

【0101】

Sub 1に属する化合物の合成例は、以下の通りである。

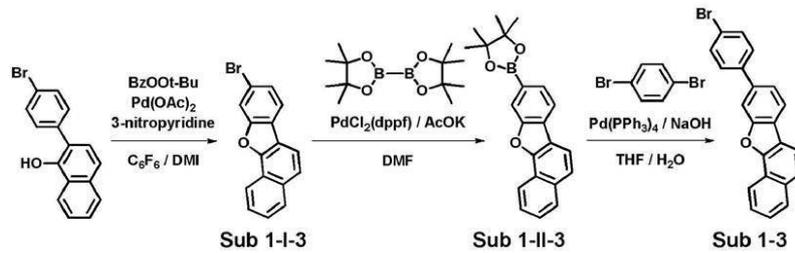
【0102】

50

## 1. Sub 1-3の合成例

&lt;反応式 3&gt;

【化 19】



10

【0103】

(1) Sub 1-I-3の合成

出発物質である2-(4-bromophenyl)naphthalen-1-ol(29.89g、99.91mmol)を丸底フラスコにPd(OAc)<sub>2</sub>(2.24g、9.99mmol)、3-nitropyridine(1.24g、9.99mmol)と共に入れてC<sub>6</sub>F<sub>6</sub>(150ml)、DMI(100ml)で溶かした後、tert-butyl peroxybenzoate(38.81g、199.83mmol)を添加し、90で攪拌した。反応が終了すれば、CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>と水で抽出した後、有機層をMgSO<sub>4</sub>で乾燥させ、濃縮した後、生成された化合物をsilicagel column及び再結晶して生成物12.77g(収率:43%)を得た。

【0104】

(2) Sub 1-II-3の合成

前記合成で得られたSub 1-I-3(12.77g、42.97mmol)を丸底フラスコにDMF(215ml)で溶かした後、Bis(pinacolato)diboron(12.00g、47.27mmol)、Pd(dppf)Cl<sub>2</sub>(1.05g、1.29mmol)、KOAc(12.65g、128.92mmol)を添加し、90で攪拌した。反応が終了すれば、蒸留を介してDMFを除去し、CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>と水で抽出した。有機層をMgSO<sub>4</sub>で乾燥させ、濃縮した後、生成された化合物をsilicagel column及び再結晶して生成物12.43g(収率:84%)を得た。

20

【0105】

(3) Sub 1-3の合成

前記合成で得られたSub 1-II-3(12.43g、36.11mmol)を丸底フラスコにTHF(120ml)で溶かした後、1,4-dibromobenzene(9.37g、39.72mmol)、Pd(PPh<sub>3</sub>)<sub>4</sub>(1.25g、1.08mmol)、NaOH(4.33g、108.34mmol)、水(60ml)を添加し、80で攪拌した。反応が終了すれば、CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>と水で抽出した後、有機層をMgSO<sub>4</sub>で乾燥させ、濃縮した後、生成された化合物をsilicagel column及び再結晶して生成物10.51g(収率:78%)を得た。

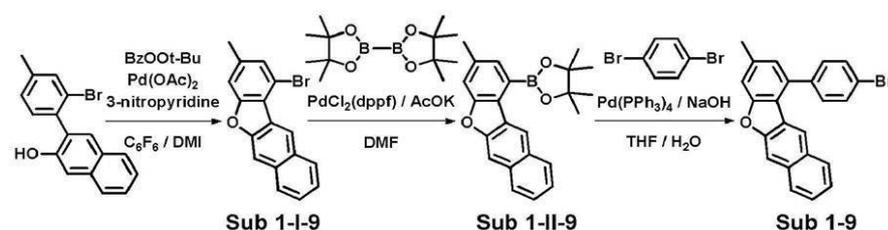
30

【0106】

## 2. Sub 1-9の合成例

&lt;反応式 4&gt;

【化 20】



【0107】

(1) Sub 1-I-9の合成

出発物質である3-(2-bromo-4-methylphenyl)naphthalen-2-ol(56.24g、179

50

.57 mmol) に  $\text{Pd}(\text{OAc})_2$  (4.03 g、17.96 mmol)、3-nitropyridine (2.23 g、17.96 mmol)、tert-butyl peroxybenzoate (69.76 g、359.14 mmol)、 $\text{C}_6\text{F}_6$  (270 ml)、DMI (180 ml) を添加し、前記 Sub 1-I-3 の合成法を使用して生成物 22.91 g (収率：41%) を得た。

【0108】

(2) Sub 1-II-9 の合成

前記合成で得られた Sub 1-I-9 (22.91 g、73.63 mmol) に Bis(pinacolato)diboron (20.57 g、80.99 mmol)、 $\text{Pd}(\text{dppf})\text{Cl}_2$  (1.80、2.21 mmol)、KOAc (21.68 g、220.88 mmol)、DMF (370 ml) を添加し、前記 Sub 1-II-3 の合成法を使用して生成物 19.52 g (収率：74%) を得た。

10

【0109】

(3) Sub 1-9 の合成

前記合成で得られた Sub 1-II-9 (19.52 g、54.49 mmol) に 1,4-dibromobenzene (14.14 g、59.94 mmol)、 $\text{Pd}(\text{PPh}_3)_4$  (1.89 g、1.63 mmol)、NaOH (6.54 g、163.47 mmol)、THF (190 ml)、水 (95 ml) を添加し、前記 Sub 1-3 の合成法を使用して生成物 13.72 g (収率：65%) を得た。

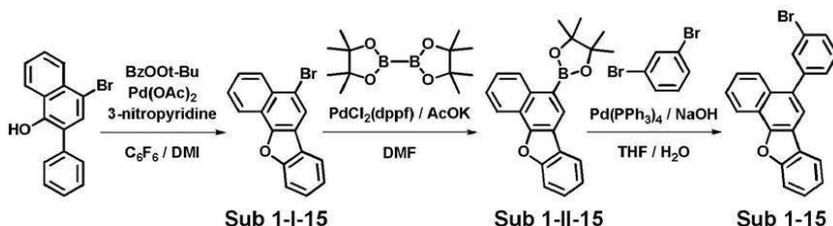
【0110】

3. Sub 1-15 の合成例

<反応式5>

20

【化21】



【0111】

(1) Sub 1-I-15 の合成

出発物質である 4-bromo-2-phenylnaphthalen-1-ol (53.89 g、180.14 mmol) に  $\text{Pd}(\text{OAc})_2$  (4.04 g、18.01 mmol)、3-nitropyridine (2.24 g、18.01 mmol)、tert-butyl peroxybenzoate (69.98 g、360.28 mmol)、 $\text{C}_6\text{F}_6$  (270 ml)、DMI (180 ml) を添加し、前記 Sub 1-I-3 の合成法を使用して生成物 24.09 g (収率：45%) を得た。

30

【0112】

(2) Sub 1-II-15 の合成

前記合成で得られた Sub 1-I-15 (24.09 g、81.07 mmol) に Bis(pinacolato)diboron (22.65 g、89.18 mmol)、 $\text{Pd}(\text{dppf})\text{Cl}_2$  (1.99 g、2.43 mmol)、KOAc (23.87 g、243.21 mmol)、DMF (400 ml) を添加し、前記 Sub 1-II-3 の合成法を使用して生成物 18.98 g (収率：68%) を得た。

40

【0113】

(3) Sub 1-15 の合成

前記合成で得られた Sub 1-II-15 (18.98 g、55.14 mmol) に 1,3-dibromobenzene (14.31 g、60.65 mmol)、 $\text{Pd}(\text{PPh}_3)_4$  (1.91 g、1.65 mmol)、NaOH (6.62 g、165.42 mmol)、THF (190 ml)、水 (95 ml) を添加し、前記 Sub 1-3 の合成法を使用して生成物 12.76 g (収率：62%) を得た。

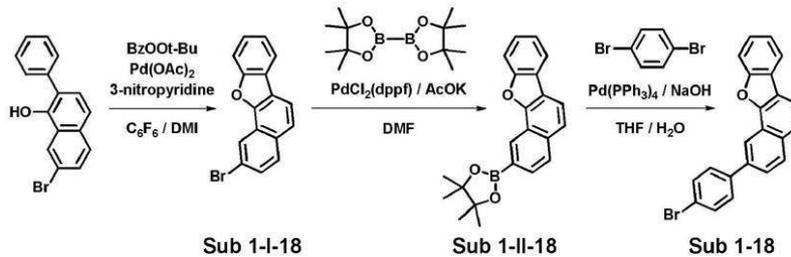
【0114】

4. Sub 1-18 の合成例

50

## &lt;反応式 6&gt;

## 【化 2 2】



## 【 0 1 1 5 】

## ( 1 ) S u b 1 - I - 1 8 の合成

出発物質である 7-bromo-2-phenylnaphthalen-1-ol ( 3 5 . 9 3 g 、 1 2 0 . 1 0 m m o l ) に Pd(OAc)<sub>2</sub> ( 2 . 7 0 g 、 1 2 . 0 1 m m o l ) 、 3-nitropyridine ( 1 . 4 9 g 、 1 2 . 0 1 m m o l ) 、 tert-butyl peroxybenzoate ( 4 6 . 6 6 g 、 2 4 0 . 2 1 m m o l ) 、 C<sub>6</sub>F<sub>6</sub> ( 1 8 0 m l ) 、 D M I ( 1 2 0 m l ) を添加し、前記 S u b 1 - I - 3 の合成法を使用して生成物 1 6 . 4 2 g ( 収率 : 4 6 % ) を得た。

## 【 0 1 1 6 】

## ( 2 ) S u b 1 - I I - 1 8 の合成

前記合成で得られた S u b 1 - I - 1 8 ( 1 6 . 4 2 g 、 5 5 . 2 6 m m o l ) に Bis(pinacolato)diboron ( 1 5 . 4 4 g 、 6 0 . 7 8 m m o l ) 、 Pd(dppf)Cl<sub>2</sub> ( 1 . 3 5 g 、 1 . 6 6 m m o l ) 、 KOAc ( 1 6 . 2 7 g 、 1 6 5 . 7 7 m m o l ) 、 D M F ( 2 7 5 m l ) を添加し、前記 S u b 1 - I I - 3 の合成法を使用して生成物 1 5 . 2 2 g ( 収率 : 8 0 % ) を得た。

## 【 0 1 1 7 】

## ( 3 ) S u b 1 - 1 8 の合成

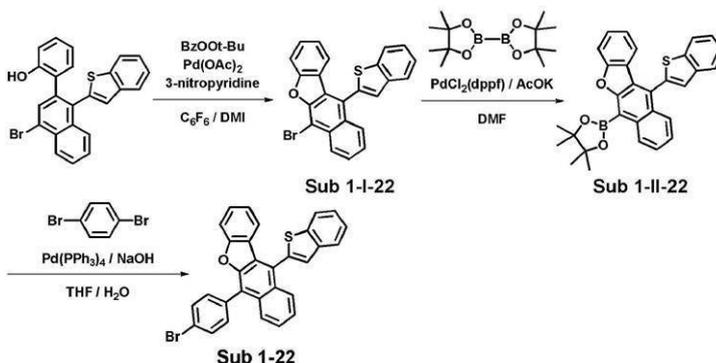
前記合成で得られた S u b 1 - I I - 1 8 ( 1 5 . 2 2 g 、 4 4 . 2 2 m m o l ) に 1,4-dibromobenzene ( 1 1 . 4 7 g 、 4 8 . 6 4 m m o l ) 、 Pd(PPh<sub>3</sub>)<sub>4</sub> ( 1 . 5 3 g 、 1 . 3 3 m m o l ) 、 NaOH ( 5 . 3 1 g 、 1 3 2 . 6 5 m m o l ) 、 T H F ( 1 6 0 m l ) 、 水 ( 8 0 m l ) を添加し、前記 S u b 1 - 3 の合成法を使用して生成物 1 1 . 0 6 g ( 収率 : 6 7 % ) を得た。

## 【 0 1 1 8 】

## 5 . S u b 1 - 2 2 の合成例

## &lt;反応式 7&gt;

## 【化 2 3】



## 【 0 1 1 9 】

## ( 1 ) S u b 1 - I - 2 2 の合成

出発物質である 2-(1-(benzo[b]thiophen-2-yl)-4-bromonaphthalen-2-yl)phenol ( 6 8 . 8 5 g 、 1 5 9 . 6 2 m m o l ) に Pd(OAc)<sub>2</sub> ( 3 . 5 8 g 、 1 5 . 9 6 m m o l ) 、 3-nitropyridine ( 1 . 9 8 g 、 1 5 . 9 6 m m o l ) 、 tert-butyl peroxybenzoate ( 6 2 . 0 1 g 、 3 1 9 . 2 4 m m o l ) 、 C<sub>6</sub>F<sub>6</sub> ( 2 4 0 m l ) 、 D M I ( 1 6 0 m l ) を添

10

20

30

40

50

加し、前記 S u b 1 - I - 3 の合成法を使用して生成物 2 6 . 0 4 g ( 収率 : 3 8 % ) を得た。

【 0 1 2 0 】

( 2 ) S u b 1 - I I - 2 2 の合成

前記合成で得られた S u b 1 - I - 2 2 ( 2 6 . 0 4 g 、 6 0 . 6 5 m m o l ) に Bis(pinacolato)diboron ( 1 6 . 9 4 g 、 6 6 . 7 2 m m o l ) 、 Pd(dppf)Cl<sub>2</sub> ( 1 . 4 9 g 、 1 . 8 2 m m o l ) 、 KOAc ( 1 7 . 8 6 g 、 1 8 1 . 9 6 m m o l ) 、 DMF ( 3 0 0 m l ) を添加し、前記 S u b 1 - I I - 3 の合成法を使用して生成物 2 1 . 9 6 g ( 収率 : 7 6 % ) を得た。

【 0 1 2 1 】

( 3 ) S u b 1 - 2 2 の合成

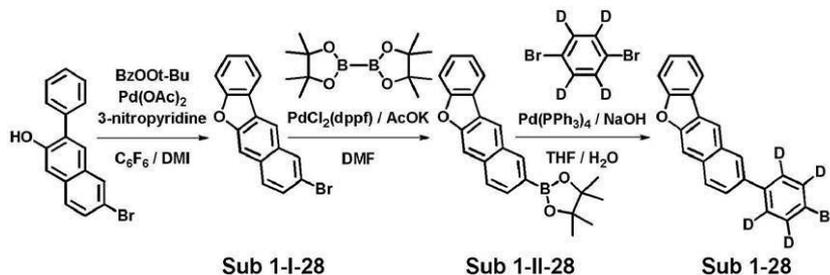
前記合成で得られた S u b 1 - I I - 2 2 ( 2 1 . 9 6 g 、 4 6 . 1 0 m m o l ) に 1 , 4 - d i b r o m o b e n z e n e ( 1 1 . 9 6 g 、 5 0 . 7 1 m m o l ) 、 Pd(PPh<sub>3</sub>)<sub>4</sub> ( 1 . 6 0 g 、 1 . 3 8 m m o l ) 、 NaOH ( 5 . 5 3 g 、 1 3 8 . 2 9 m m o l ) 、 THF ( 1 6 0 m l ) 、 水 ( 8 0 m l ) を添加し、前記 S u b 1 - 3 の合成法を使用して生成物 1 7 . 0 1 g ( 収率 : 7 3 % ) を得た。

【 0 1 2 2 】

6 . S u b 1 - 2 8 の合成例

<反応式 8 >

【 化 2 4 】



【 0 1 2 3 】

( 1 ) S u b 1 - I - 2 8 の合成

出発物質である 6 - b r o m o - 3 - p h e n y l n a p h t h a l e n - 2 - o l ( 4 1 . 9 8 g 、 1 4 0 . 3 3 m m o l ) に Pd(OAc)<sub>2</sub> ( 3 . 1 5 g 、 1 4 . 0 3 m m o l ) 、 3 - n i t r o p y r i d i n e ( 1 . 7 4 g 、 1 4 . 0 3 m m o l ) 、 tert-butyl peroxybenzoate ( 5 4 . 5 1 g 、 2 8 0 . 6 5 m m o l ) 、 C<sub>6</sub>F<sub>6</sub> ( 2 1 0 m l ) 、 D M I ( 1 4 0 m l ) を添加し、前記 S u b 1 - I - 3 の合成法を使用して生成物 2 0 . 0 2 g ( 収率 : 4 8 % ) を得た。

【 0 1 2 4 】

( 2 ) S u b 1 - I I - 2 8 の合成

前記合成で得られた S u b 1 - I - 2 8 ( 2 0 . 0 2 g 、 6 7 . 3 7 m m o l ) に Bis(pinacolato)diboron ( 1 8 . 8 2 g 、 7 4 . 1 1 m m o l ) 、 Pd(dppf)Cl<sub>2</sub> ( 1 . 6 5 g 、 2 . 0 2 m m o l ) 、 KOAc ( 1 9 . 8 4 g 、 2 0 2 . 1 2 m m o l ) 、 DMF ( 3 4 0 m l ) を添加し、前記 S u b 1 - I I - 3 の合成法を使用して生成物 1 9 . 2 5 g ( 収率 : 8 3 % ) を得た。

【 0 1 2 5 】

( 3 ) S u b 1 - 2 8 の合成

前記合成で得られた S u b 1 - I I - 2 8 ( 1 9 . 2 5 g 、 5 5 . 9 3 m m o l ) に 1 , 4 - d i b r o m o b e n z e n e - d 4 ( 1 4 . 7 6 g 、 6 1 . 5 2 m m o l ) 、 Pd(PPh<sub>3</sub>)<sub>4</sub> ( 1 . 9 4 g 、 1 . 6 8 m m o l ) 、 NaOH ( 6 . 7 1 g 、 1 6 7 . 7 8 m m o l ) 、 THF ( 2 0 0 m l ) 、 水 ( 1 0 0 m l ) を添加し、前記 S u b 1 - 3 の合成法を使用して生成物 1 2 . 4 5 g ( 収率 : 5 9 % ) を得た。

【 0 1 2 6 】

7 . S u b 1 - 3 0 の合成例

10

20

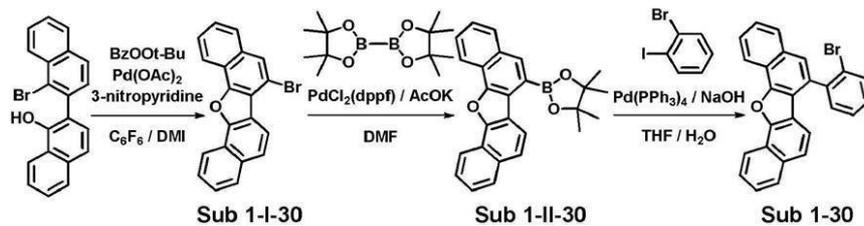
30

40

50

## &lt;反応式 9&gt;

## 【化 2 5】



## 【 0 1 2 7 】

## (1) Sub 1-I-30 の合成

出発物質である 1'-bromo-[2,2'-binaphthalen]-1-ol (97.74 g、279.88 mmol) に Pd(OAc)<sub>2</sub> (6.28 g、27.99 mmol)、3-nitropyridine (3.47 g、27.99 mmol)、tert-butyl peroxybenzoate (108.72 g、559.76 mmol)、C<sub>6</sub>F<sub>6</sub> (420 ml)、DMI (280 ml) を添加し、前記 Sub 1-I-3 の合成法を使用して生成物 34.01 g (収率：35%) を得た。

## 【 0 1 2 8 】

## (2) Sub 1-II-30 の合成

前記合成で得られた Sub 1-I-30 (34.01 g、97.96 mmol) に Bis(pinacolato)diboron (27.36 g、107.75 mmol)、Pd(dppf)Cl<sub>2</sub> (2.40 g、2.94 mmol)、KOAc (28.84 g、293.87 mmol)、DMF (490 ml) を添加し、前記 Sub 1-II-3 の合成法を使用して生成物 24.33 g (収率：63%) を得た。

## 【 0 1 2 9 】

## (3) Sub 1-30 の合成

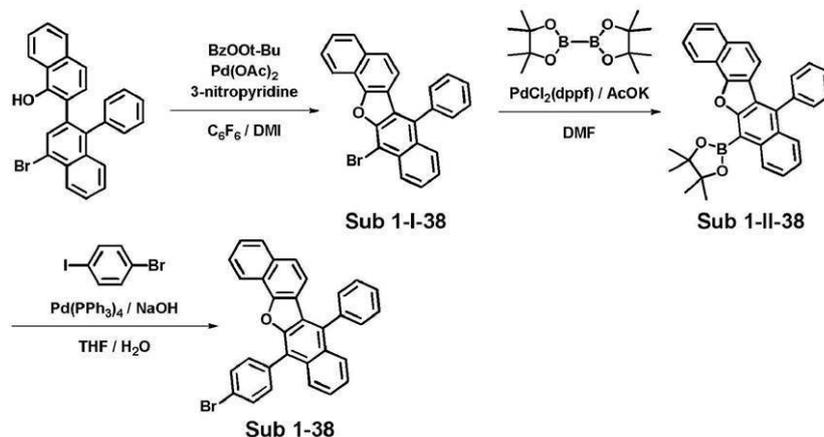
前記合成で得られた Sub 1-II-30 (24.33 g、61.71 mmol) に 1-bromo-2-iodobenzene (19.20 g、67.88 mmol)、Pd(PPh<sub>3</sub>)<sub>4</sub> (2.14 g、1.85 mmol)、NaOH (7.41 g、185.13 mmol)、THF (220 ml)、水 (110 ml) を添加し、前記 Sub 1-3 の合成法を使用して生成物 15.67 g (収率：60%) を得た。

## 【 0 1 3 0 】

## 8. Sub 1-38 の合成例

## &lt;反応式 10&gt;

## 【化 2 6】



## 【 0 1 3 1 】

## (1) Sub 1-I-38 の合成

出発物質である 4'-bromo-1-phenyl-[2,2'-binaphthalen]-1-ol (68.05 g、160.00 mmol) に Pd(OAc)<sub>2</sub> (3.59 g、16.00 mmol)、3-nitropyridine (1.99 g、16.00 mmol)、tert-butyl peroxybenzoate (62.15 g、31

10

20

30

40

50

9.99 mmol)、 $C_6F_6$  (240 ml)、DMI (160 ml) を添加し、前記 Sub 1-I-3 の合成法を使用して生成物 21.67 g (収率: 32%) を得た。

【0132】

(2) Sub 1-II-38 の合成

前記合成で得られた Sub 1-I-38 (21.67 g、51.19 mmol) に Bis(pinacolato)diboron (14.30 g、56.31 mmol)、 $Pd(dppf)Cl_2$  (1.25 g、1.54 mmol)、KOAc (15.07 g、153.58 mmol)、DMF (255 ml) を添加し、前記 Sub 1-II-3 の合成法を使用して生成物 18.06 g (収率: 75%) を得た。

【0133】

(3) Sub 1-38 の合成

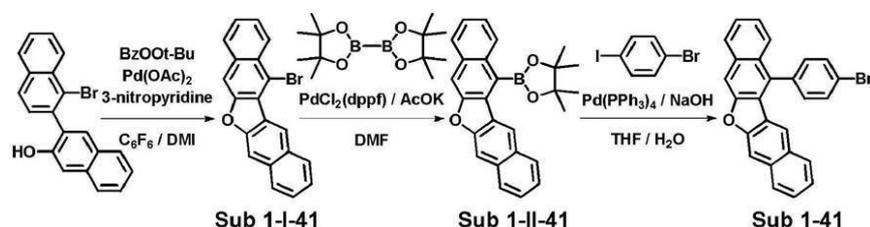
前記合成で得られた Sub 1-II-38 (18.06 g、38.40 mmol) に 1-bromo-4-iodobenzene (11.95 g、42.23 mmol)、 $Pd(PPh_3)_4$  (1.33 g、1.15 mmol)、NaOH (4.61 g、115.19 mmol)、THF (140 ml)、水 (70 ml) を添加し、前記 Sub 1-3 の合成法を使用して生成物 13.81 g (収率: 72%) を得た。

【0134】

9. Sub 1-41 の合成例

<反応式 11>

【化 27】



【0135】

(1) Sub 1-I-41 の合成

出発物質である 1'-bromo-[2,2'-binaphthalen]-3-ol (62.91 g、180.14 mmol) に  $Pd(OAc)_2$  (4.04 g、18.01 mmol)、3-nitropyridine (2.24 g、18.01 mmol)、tert-butyl peroxybenzoate (69.98 g、360.29 mmol)、 $C_6F_6$  (270 ml)、DMI (180 ml) を添加し、前記 Sub 1-I-3 の合成法を使用して生成物 23.14 g (収率: 37%) を得た。

【0136】

(2) Sub 1-II-41 の合成

前記合成で得られた Sub 1-I-41 (23.14 g、66.65 mmol) に Bis(pinacolato)diboron (18.62 g、73.31 mmol)、 $Pd(dppf)Cl_2$  (1.63 g、2.00 mmol)、KOAc (19.62 g、199.94 mmol)、DMF (330 ml) を添加し、前記 Sub 1-II-3 の合成法を使用して生成物 16.03 g (収率: 61%) を得た。

【0137】

(3) Sub 1-41 の合成

前記合成で得られた Sub 1-II-41 (16.03 g、40.66 mmol) に 1-bromo-4-iodobenzene (12.65 g、44.72 mmol)、 $Pd(PPh_3)_4$  (1.41 g、1.22 mmol)、NaOH (4.88 g、121.97 mmol)、THF (140 ml)、水 (70 ml) を添加し、前記 Sub 1-3 の合成法を使用して生成物 11.01 g (収率: 64%) を得た。

【0138】

一方、Sub 1 に属する化合物は、下記のような化合物であることができるが、これに限定されるものではなく、表 1 は、Sub 1 に属する化合物の FD-MS の値を示したものである。

10

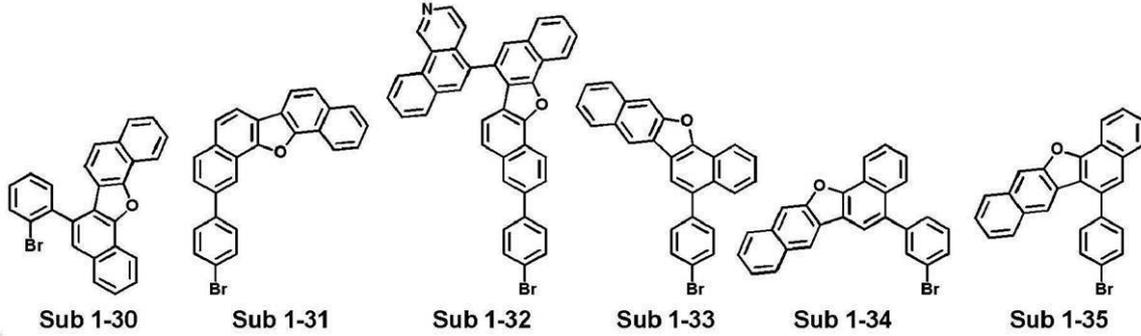
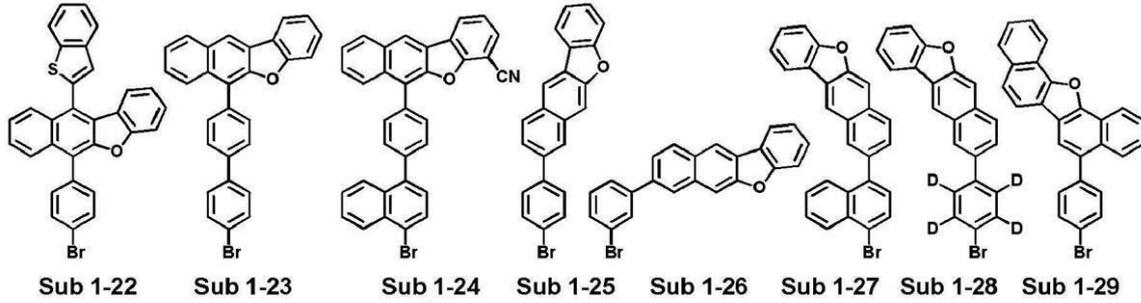
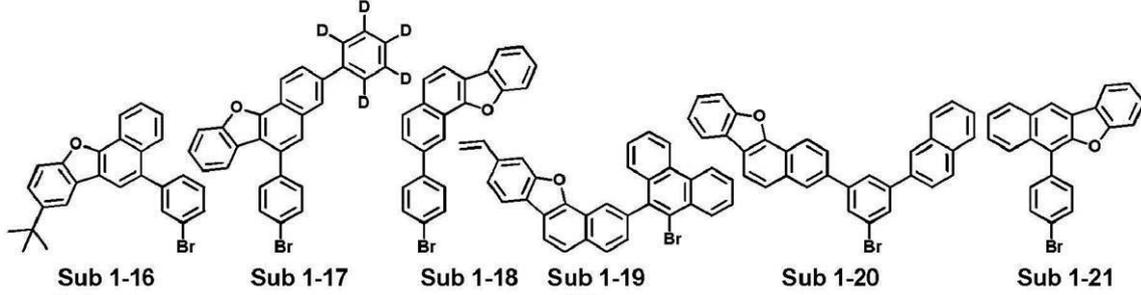
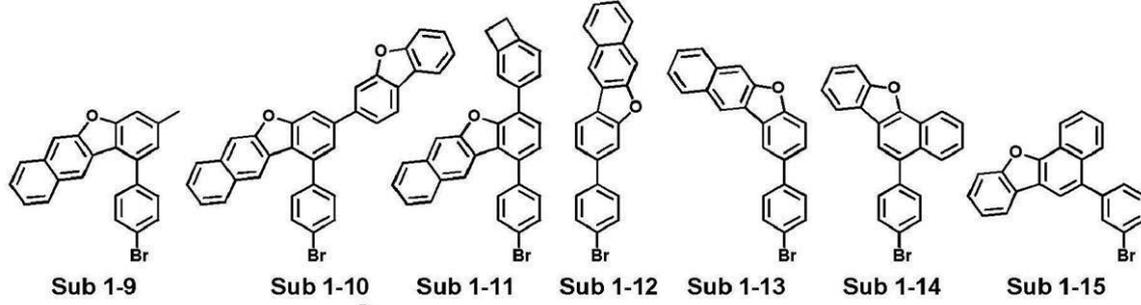
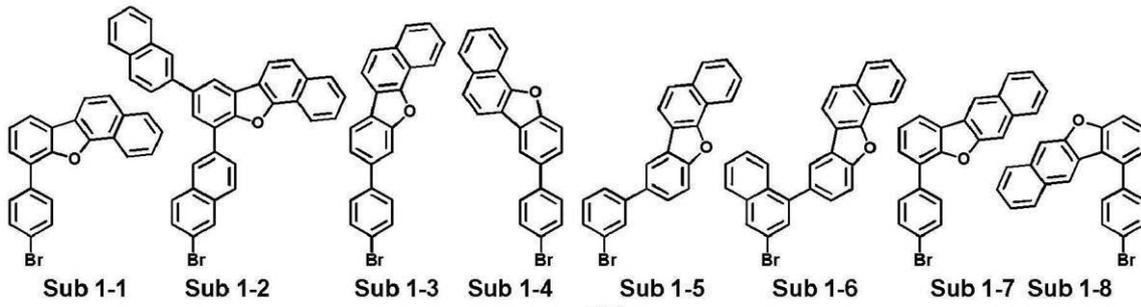
20

30

40

50

【化 2 8】



【 0 1 3 9 】

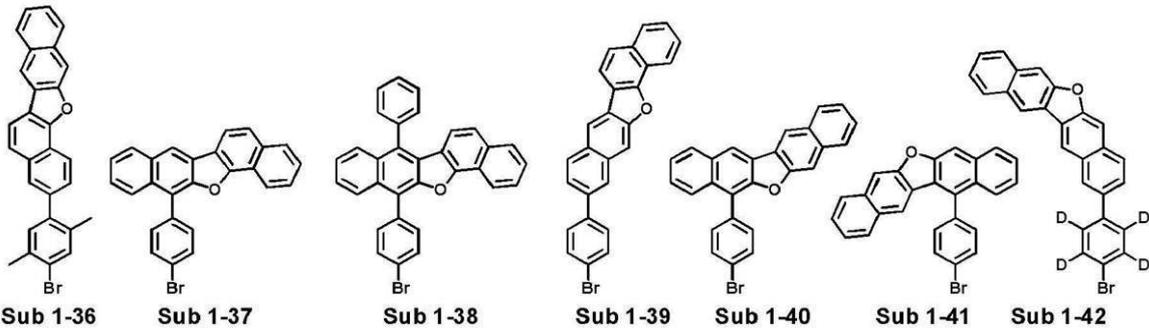
10

20

30

40

## 【化 2 9】



10

## 【 0 1 4 0 】

## [表 1]

## 【表 1】

化合物	FD-MS	化合物	FD-MS
Sub 1-1	m/z-372. 01 (C <sub>22</sub> H <sub>13</sub> Br0-373. 24)	Sub 1-2	m/z-548. 08 (C <sub>36</sub> H <sub>21</sub> Br0-549. 46)
Sub 1-3	m/z-372. 01 (C <sub>22</sub> H <sub>13</sub> Br0-373. 24)	Sub 1-4	m/z-372. 01 (C <sub>22</sub> H <sub>13</sub> Br0-373. 24)
Sub 1-5	m/z-372. 01 (C <sub>22</sub> H <sub>13</sub> Br0-373. 24)	Sub 1-6	m/z-422. 03 (C <sub>26</sub> H <sub>15</sub> Br0-423. 30)
Sub 1-7	m/z-372. 01 (C <sub>22</sub> H <sub>13</sub> Br0-373. 24)	Sub 1-8	m/z-372. 01 (C <sub>22</sub> H <sub>13</sub> Br0-373. 24)
Sub 1-9	m/z-386. 03 (C <sub>23</sub> H <sub>15</sub> Br0-387. 27)	Sub 1-10	m/z-538. 06 (C <sub>34</sub> H <sub>19</sub> BrO <sub>2</sub> -539. 42)
Sub 1-11	m/z-474. 06 (C <sub>30</sub> H <sub>19</sub> Br0-475. 38)	Sub 1-12	m/z-372. 01 (C <sub>22</sub> H <sub>13</sub> Br0-373. 24)
Sub 1-13	m/z-372. 01 (C <sub>22</sub> H <sub>13</sub> Br0-373. 24)	Sub 1-14	m/z-372. 01 (C <sub>22</sub> H <sub>13</sub> Br0-373. 24)
Sub 1-15	m/z-372. 01 (C <sub>22</sub> H <sub>13</sub> Br0-373. 24)	Sub 1-16	m/z-428. 08 (C <sub>26</sub> H <sub>21</sub> Br0-429. 35)
Sub 1-17	m/z-453. 08 (C <sub>26</sub> H <sub>12</sub> D <sub>5</sub> Br0-454. 37)	Sub 1-18	m/z-372. 01 (C <sub>22</sub> H <sub>13</sub> Br0-373. 24)
Sub 1-19	m/z-498. 06 (C <sub>32</sub> H <sub>19</sub> Br0-499. 40)	Sub 1-20	m/z-498. 06 (C <sub>32</sub> H <sub>19</sub> Br0-499. 40)
Sub 1-21	m/z-372. 01 (C <sub>22</sub> H <sub>13</sub> Br0-373. 24)	Sub 1-22	m/z-504. 02 (C <sub>30</sub> H <sub>17</sub> BrOS-505. 42)
Sub 1-23	m/z-448. 05 (C <sub>28</sub> H <sub>17</sub> Br0-449. 34)	Sub 1-24	m/z-523. 06 (C <sub>33</sub> H <sub>18</sub> BrNO-524. 41)
Sub 1-25	m/z-372. 01 (C <sub>22</sub> H <sub>13</sub> Br0-373. 24)	Sub 1-26	m/z-372. 01 (C <sub>22</sub> H <sub>13</sub> Br0-373. 24)
Sub 1-27	m/z-422. 03 (C <sub>26</sub> H <sub>15</sub> Br0-423. 30)	Sub 1-28	m/z-376. 04 (C <sub>22</sub> H <sub>9</sub> D <sub>4</sub> Br0-377. 27)
Sub 1-29	m/z-422. 03 (C <sub>26</sub> H <sub>15</sub> Br0-423. 30)	Sub 1-30	m/z-422. 03 (C <sub>26</sub> H <sub>15</sub> Br0-423. 30)
Sub 1-31	m/z-422. 03 (C <sub>26</sub> H <sub>15</sub> Br0-423. 30)	Sub 1-32	m/z-599. 09 (C <sub>30</sub> H <sub>22</sub> BrNO-600. 50)
Sub 1-33	m/z-422. 03 (C <sub>26</sub> H <sub>15</sub> Br0-423. 30)	Sub 1-34	m/z-422. 03 (C <sub>26</sub> H <sub>15</sub> Br0-423. 30)
Sub 1-35	m/z-422. 03 (C <sub>26</sub> H <sub>15</sub> Br0-423. 30)	Sub 1-36	m/z-450. 06 (C <sub>28</sub> H <sub>19</sub> Br0-451. 35)
Sub 1-37	m/z-422. 03 (C <sub>26</sub> H <sub>15</sub> Br0-423. 30)	Sub 1-38	m/z-498. 06 (C <sub>32</sub> H <sub>19</sub> Br0-499. 40)
Sub 1-39	m/z-422. 03 (C <sub>26</sub> H <sub>15</sub> Br0-423. 30)	Sub 1-40	m/z-422. 03 (C <sub>26</sub> H <sub>15</sub> Br0-423. 30)
Sub 1-41	m/z-422. 03 (C <sub>26</sub> H <sub>15</sub> Br0-423. 30)	Sub 1-42	m/z-426. 06 (C <sub>26</sub> H <sub>11</sub> D <sub>4</sub> Br0-427. 33)

20

30

40

## 【 0 1 4 1 】

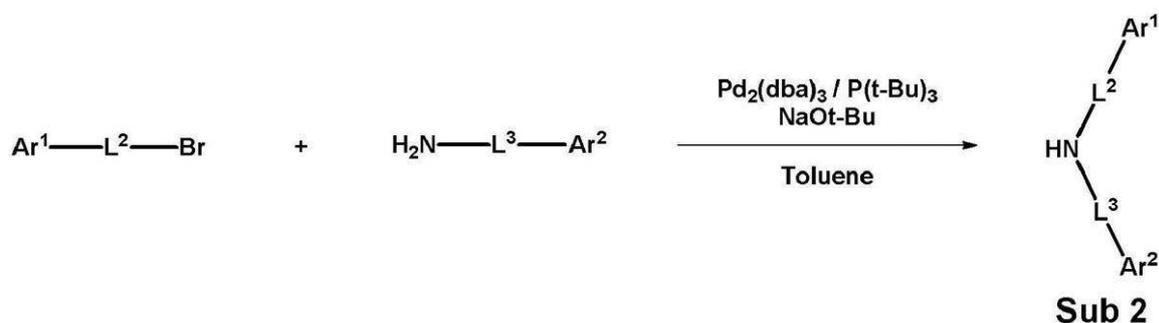
## II. Sub 2 の合成

前記反応式1のSub 2は、下記反応式12の反応経路により合成することができるが、これに限定されるものではない。

## 【 0 1 4 2 】

<反応式12>

## 【化30】



10

## 【0143】

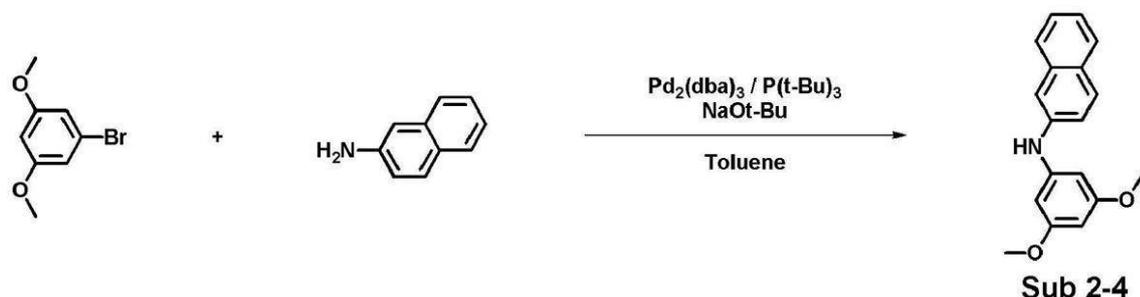
Sub 2に属する化合物の合成例は、以下の通りである。

## 【0144】

1. Sub 2-4の合成例

<反応式13>

## 【化31】



20

## 【0145】

出発物質である 1-bromo-3,5-dimethoxybenzene (9.62 g、44.32 mmol) を丸底フラスコに toluene (310 ml) で溶かした後、naphthalen-2-amine (6.98 g、48.75 mmol)、Pd<sub>2</sub>(dba)<sub>3</sub> (1.22 g、1.33 mmol)、50% P(t-Bu)<sub>3</sub> (1.7 ml、3.55 mmol)、NaOt-Bu (12.78 g、132.96 mmol) を添加し、80 で攪拌した。反応が終了すれば、CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub> と水で抽出した後、有機層を MgSO<sub>4</sub> で乾燥させ、濃縮した後、生成された化合物を silica gel column 及び再結晶して生成物 8.42 g (収率：68%) を得た。

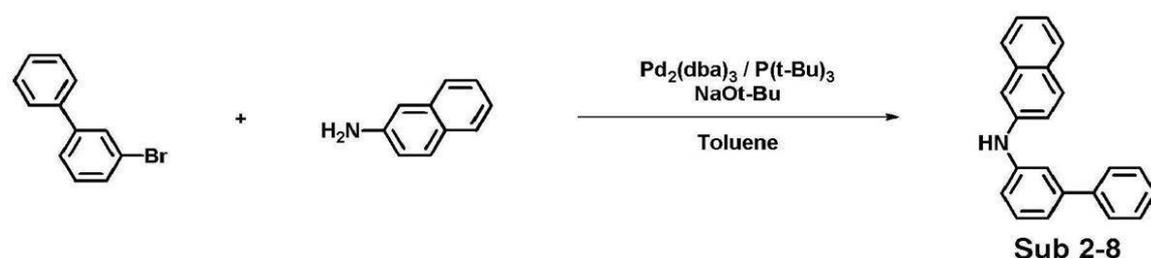
30

## 【0146】

2. Sub 2-8の合成例

<反応式14>

## 【化32】



40

## 【0147】

前記合成で得られた 3-bromo-1,1'-biphenyl (10.99 g、47.15 mmol) に naphthalen-2-amine (7.43 g、51.86 mmol)、Pd<sub>2</sub>(dba)<sub>3</sub> (1.30 g、1.41 mmol)、50% P(t-Bu)<sub>3</sub> (1.8 ml、3.77 mmol)、NaOt-Bu (13.59 g、141.44 mmol)、toluene (330 ml) を添加し、前記 Sub 2-4 の合成法を使用して生成物 11.14 g (収率：80%) を得た。

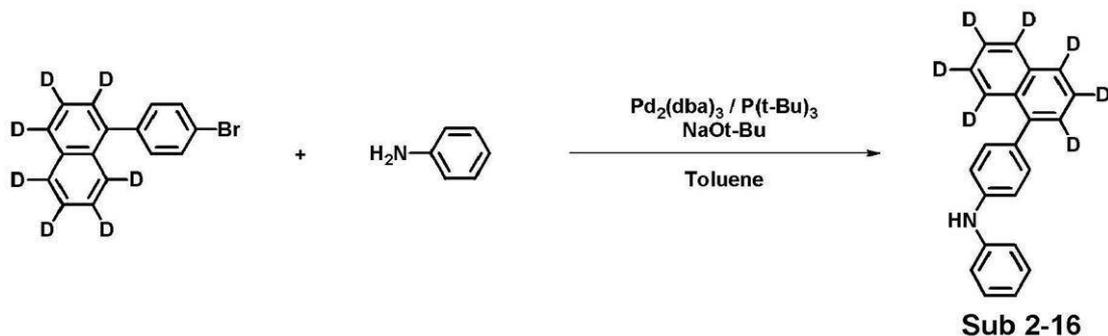
## 【0148】

50

## 3. Sub 2-16 の合成例

&lt;反応式 15&gt;

【化 3 3】



10

【0149】

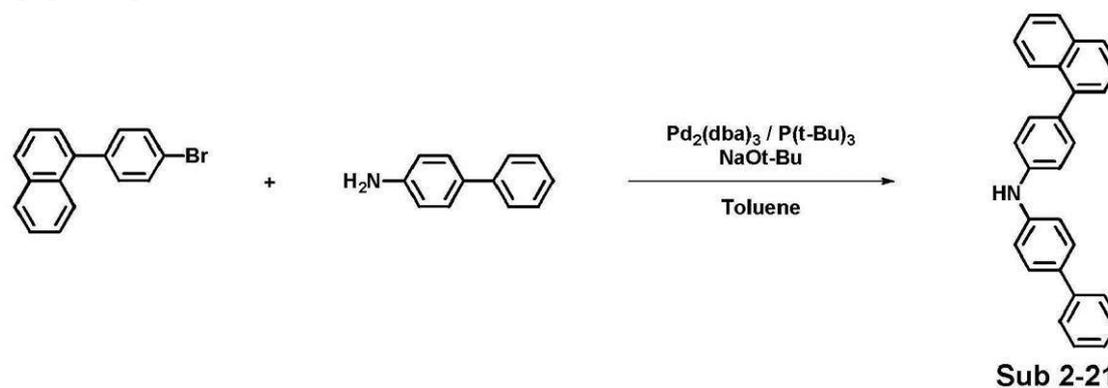
前記合成で得られたnaphthalene-1,2,3,4,5,6,7-d7,8-(4-bromophenyl) (10.75 g、37.04 mmol) にaniline (3.79 g、40.75 mmol)、Pd<sub>2</sub>(dba)<sub>3</sub> (1.02 g、1.11 mmol)、50% P(t-Bu)<sub>3</sub> (1.4 ml、2.96 mmol)、NaOt-Bu (10.68 g、111.13 mmol)、toluene (260 ml) を添加し、前記Sub 2-4の合成法を使用して生成物8.18 g (収率：73%) を得た。

【0150】

## 4. Sub 2-21 の合成例

&lt;反応式 16&gt;

【化 3 4】



20

30

【0151】

前記合成で得られた1-(4-bromophenyl)naphthalene (20.23 g、71.44 mmol) に[1,1'-biphenyl]-4-amine (13.30 g、78.59 mmol)、Pd<sub>2</sub>(dba)<sub>3</sub> (1.96 g、2.14 mmol)、50% P(t-Bu)<sub>3</sub> (2.8 ml、5.72 mmol)、NaOt-Bu (20.60 g、214.33 mmol)、toluene (500 ml) を添加し、前記Sub 2-4の合成法を使用して生成物22.29 g (収率：84%) を得た。

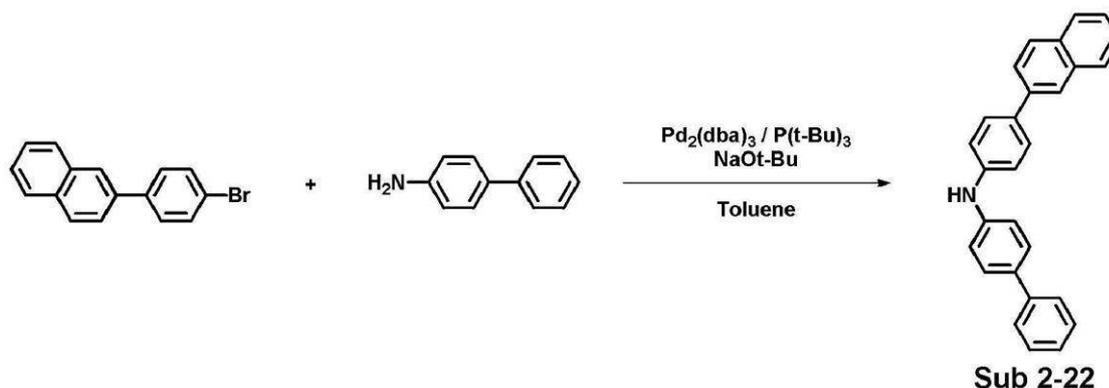
【0152】

## 5. Sub 2-22 の合成例

&lt;反応式 17&gt;

40

## 【化35】



10

## 【0153】

前記合成で得られた 2-(4-bromophenyl)naphthalene (10.08 g、35.60 mmol) に [1,1'-biphenyl]-4-amine (6.63 g、39.16 mmol)、 $\text{Pd}_2(\text{dba})_3$  (0.98 g、1.07 mmol)、50%  $\text{P}(\text{t-Bu})_3$  (1.4 ml、2.85 mmol)、 $\text{NaOt-Bu}$  (10.26 g、106.79 mmol)、toluene (250 ml) を添加し、前記 Sub 2-4 の合成法を使用して生成物 10.71 g (収率：81%) を得た。

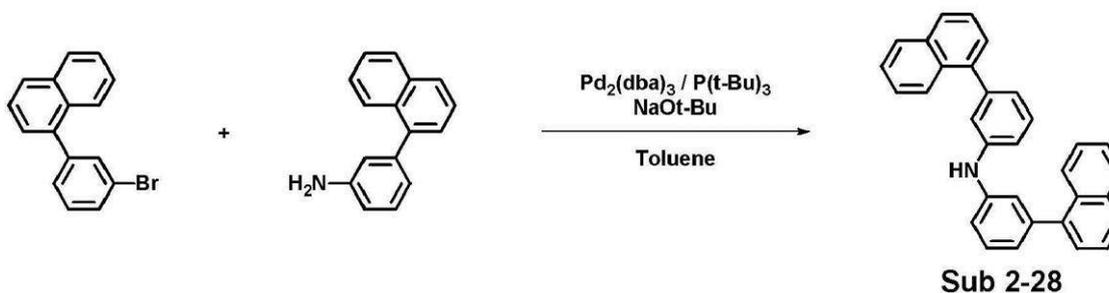
## 【0154】

6. Sub 2-28 の合成例

20

<反応式 18>

## 【化36】



30

## 【0155】

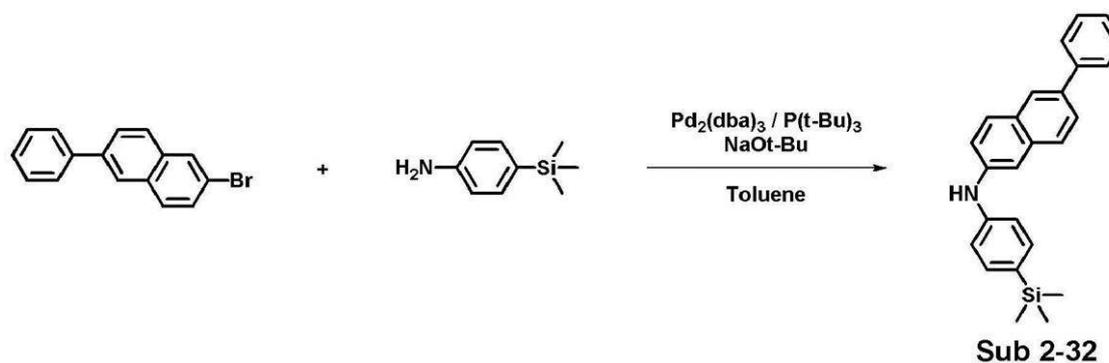
前記合成で得られた 1-(3-bromophenyl)naphthalene (11.32 g、39.98 mmol) に 3-(naphthalen-1-yl)aniline (9.64 g、43.98 mmol)、 $\text{Pd}_2(\text{dba})_3$  (1.10 g、1.20 mmol)、50%  $\text{P}(\text{t-Bu})_3$  (1.6 ml、3.20 mmol)、 $\text{NaOt-Bu}$  (11.53 g、119.93 mmol)、toluene (280 ml) を添加し、前記 Sub 2-4 の合成法を使用して生成物 12.64 g (収率：75%) を得た。

## 【0156】

7. Sub 2-32 の合成例

<反応式 19>

## 【化37】



40

50

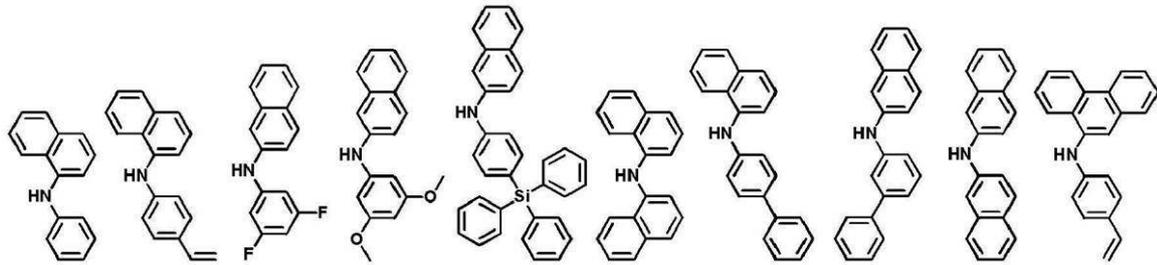
## 【 0 1 5 7 】

前記合成で得られた 2-bromo-6-phenylnaphthalene ( 1 2 . 5 3 g 、 4 4 . 2 5 m m o l ) に 4-(trimethylsilyl) aniline ( 8 . 0 5 g 、 4 8 . 6 8 m m o l ) 、  $\text{Pd}_2(\text{dba})_3$  ( 1 . 2 2 g 、 1 . 3 3 m m o l ) 、 5 0 %  $\text{P}(\text{t-Bu})_3$  ( 1 . 7 m l 、 3 . 5 4 m m o l ) 、  $\text{NaOt-Bu}$  ( 1 2 . 7 6 g 、 1 3 2 . 7 5 m m o l ) 、 toluene ( 3 1 0 m l ) を添加し、前記 S u b 2 - 4 の合成法を使用して生成物 1 1 . 3 9 g ( 収率 : 7 0 % ) を得た。

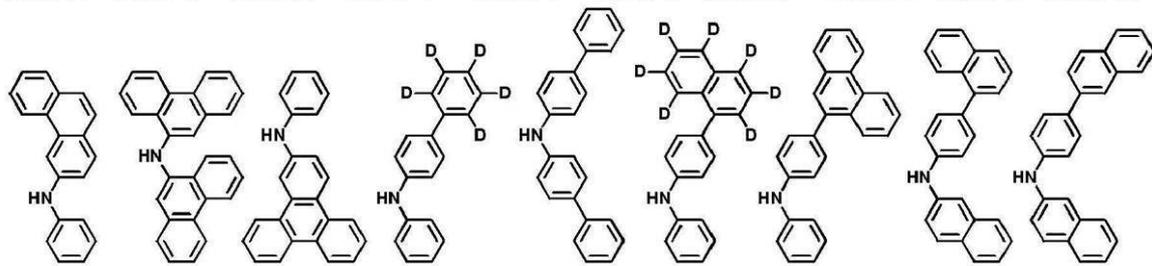
## 【 0 1 5 8 】

一方、S u b 2 に属する化合物は、下記のような化合物であることができるが、これに限定されるものではなく、表 2 は、S u b 2 に属する化合物の F D - M S の値を示したものである。

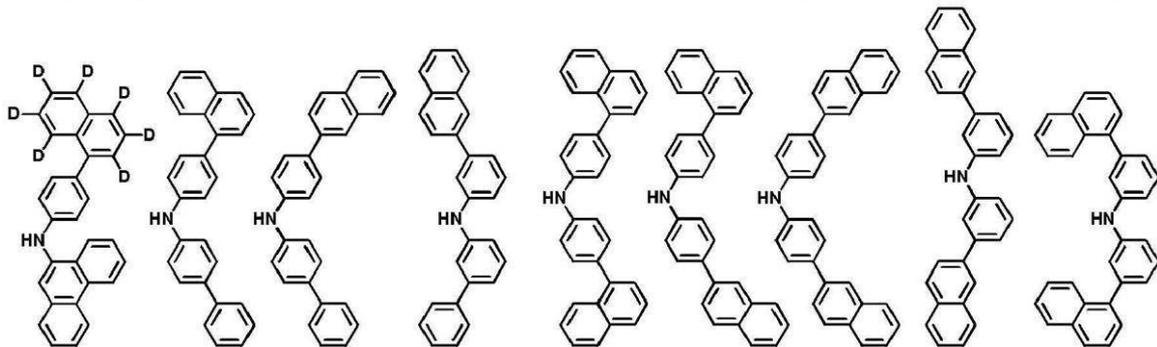
## 【 化 3 8 】



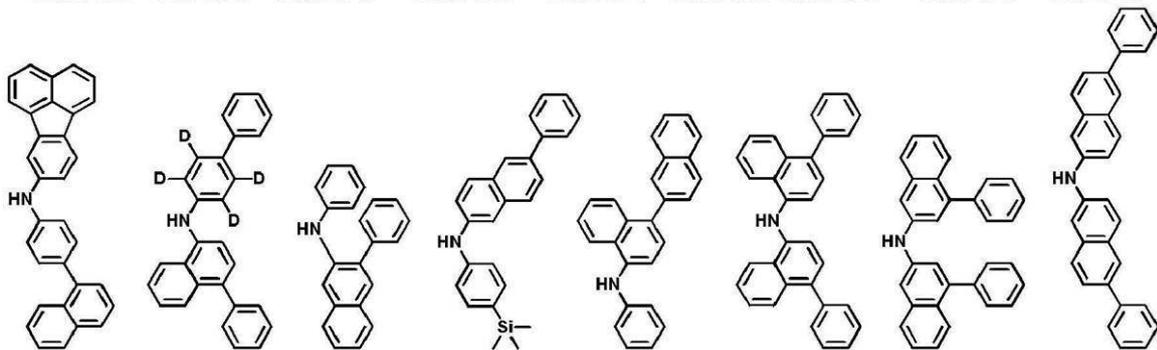
Sub 2-1 Sub 2-2 Sub 2-3 Sub 2-4 Sub 2-5 Sub 2-6 Sub 2-7 Sub 2-8 Sub 2-9 Sub 2-10



Sub 2-11 Sub 2-12 Sub 2-13 Sub 2-14 Sub 2-15 Sub 2-16 Sub 2-17 Sub 2-18 Sub 2-19



Sub 2-20 Sub 2-21 Sub 2-22 Sub 2-23 Sub 2-24 Sub 2-25 Sub 2-26 Sub 2-27 Sub 2-28



Sub 2-29 Sub 2-30 Sub 2-31 Sub 2-32 Sub 2-33 Sub 2-34 Sub 2-35 Sub 2-36

## 【 0 1 5 9 】

[表2]

10

20

30

40

50

【表 2】

化合物	FD-MS	化合物	FD-MS
Sub 2-1	m/z=219. 10 (C <sub>16</sub> H <sub>13</sub> N=219. 28)	Sub 2-2	m/z=245. 12 (C <sub>18</sub> H <sub>15</sub> N=245. 32)
Sub 2-3	m/z=255. 09 (C <sub>16</sub> H <sub>11</sub> F <sub>2</sub> N=255. 26)	Sub 2-4	m/z=279. 13 (C <sub>18</sub> H <sub>17</sub> NO <sub>2</sub> =279. 33)
Sub 2-5	m/z=477. 19 (C <sub>34</sub> H <sub>27</sub> NSi=477. 67)	Sub 2-6	m/z=269. 12 (C <sub>20</sub> H <sub>15</sub> N=269. 34)
Sub 2-7	m/z 295. 14 (C <sub>22</sub> H <sub>17</sub> N 295. 38)	Sub 2-8	m/z 295. 14 (C <sub>22</sub> H <sub>17</sub> N 295. 38)
Sub 2-9	m/z=269. 12 (C <sub>20</sub> H <sub>15</sub> N=269. 34)	Sub 2-10	m/z=295. 14 (C <sub>22</sub> H <sub>17</sub> N=295. 38)
Sub 2-11	m/z=269. 12 (C <sub>20</sub> H <sub>15</sub> N=269. 34)	Sub 2-12	m/z=369. 15 (C <sub>28</sub> H <sub>19</sub> N=369. 46)
Sub 2-13	m/z=319. 14 (C <sub>24</sub> H <sub>17</sub> N=319. 40)	Sub 2-14	m/z=250. 15 (C <sub>18</sub> H <sub>10</sub> D <sub>5</sub> N=250. 35)
Sub 2 15	m/z=321. 15 (C <sub>24</sub> H <sub>19</sub> N=321. 41)	Sub 2 16	m/z=302. 18 (C <sub>22</sub> H <sub>10</sub> D <sub>7</sub> N=302. 42)
Sub 2 17	m/z=345. 15 (C <sub>26</sub> H <sub>19</sub> N=345. 44)	Sub 2 18	m/z=345. 15 (C <sub>26</sub> H <sub>19</sub> N=345. 44)
Sub 2-19	m/z 345. 15 (C <sub>26</sub> H <sub>19</sub> N 345. 44)	Sub 2-20	m/z 402. 21 (C <sub>30</sub> H <sub>14</sub> D <sub>7</sub> N 402. 54)
Sub 2-21	m/z 371. 17 (C <sub>28</sub> H <sub>21</sub> N 371. 47)	Sub 2-22	m/z 371. 17 (C <sub>28</sub> H <sub>21</sub> N 371. 47)
Sub 2-23	m/z=371. 17 (C <sub>28</sub> H <sub>21</sub> N=371. 47)	Sub 2-24	m/z=421. 18 (C <sub>32</sub> H <sub>23</sub> N=421. 53)
Sub 2-25	m/z=421. 18 (C <sub>32</sub> H <sub>23</sub> N=421. 53)	Sub 2-26	m/z=421. 18 (C <sub>32</sub> H <sub>23</sub> N=421. 53)
Sub 2-27	m/z=421. 18 (C <sub>32</sub> H <sub>23</sub> N=421. 53)	Sub 2-28	m/z=421. 18 (C <sub>32</sub> H <sub>23</sub> N=421. 53)
Sub 2-29	m/z 419. 17 (C <sub>32</sub> H <sub>21</sub> N 419. 52)	Sub 2-30	m/z 375. 19 (C <sub>28</sub> H <sub>17</sub> D <sub>4</sub> N 375. 50)
Sub 2-31	m/z 295. 14 (C <sub>22</sub> H <sub>17</sub> N 295. 38)	Sub 2-32	m/z 367. 18 (C <sub>28</sub> H <sub>28</sub> NSi 367. 56)
Sub 2-33	m/z=345. 15 (C <sub>26</sub> H <sub>19</sub> N=345. 44)	Sub 2-34	m/z=421. 18 (C <sub>32</sub> H <sub>23</sub> N=421. 53)
Sub 2-35	m/z=421. 18 (C <sub>32</sub> H <sub>23</sub> N=421. 53)	Sub 2-36	m/z=421. 18 (C <sub>32</sub> H <sub>23</sub> N=421. 53)

10

20

## 【 0 1 6 0 】

## III. 最終生成物 ( Final Product ) の合成

Sub 1 ( 1 当量 ) を丸底フラスコに toluene に溶かした後、Sub 2 ( 1 当量 )、Pd<sub>2</sub>(dba)<sub>3</sub> ( 0 . 0 3 当量 )、P ( t - Bu )<sub>3</sub> ( 0 . 0 8 当量 )、NaOt - Bu ( 3 当量 ) を添加し、100 で攪拌した。反応が終了すれば、CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>と水で抽出した後、有機層をMgSO<sub>4</sub>で乾燥させ、濃縮した後、生成された化合物をsilicagel column及び再結晶して最終生成物 ( Final Product ) を得た。

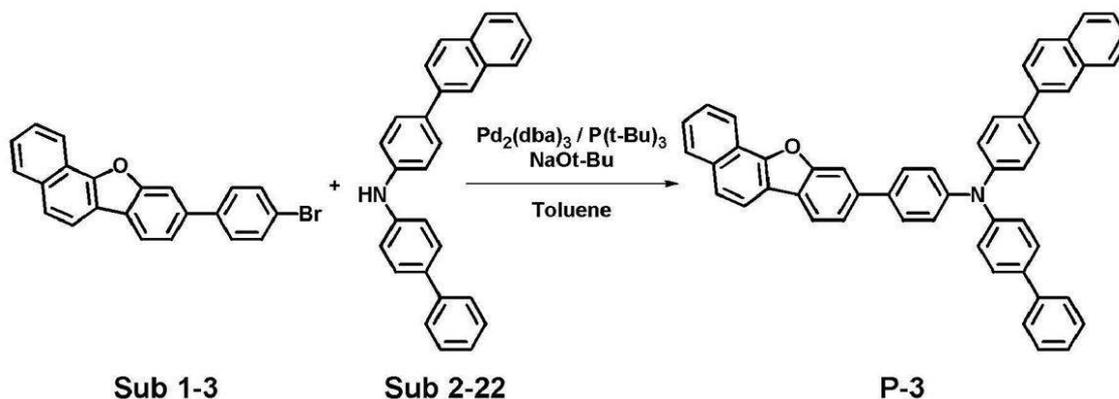
30

## 【 0 1 6 1 】

## 1. P - 3 の合成例

&lt;反応式 2 0 &gt;

## 【 化 3 9 】



40

## 【 0 1 6 2 】

50

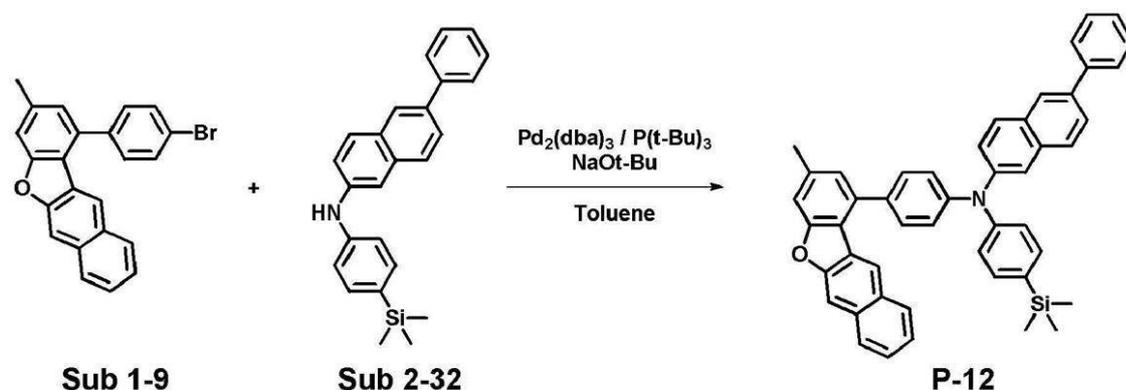
前記合成で得られた S u b 1 - 3 ( 5.11g、13.69m m o l ) を丸底フラスコに toluene ( 140 m l ) に溶かした後、Sub2-22 ( 5.09g、13.69m m o l )、 $\text{Pd}_2(\text{dba})_3$  ( 0.38g、0.41m m o l )、50% $\text{P}(\text{t-Bu})_3$  ( 0.5ml、1.10m m o l )、 $\text{NaOt-Bu}$  ( 3.95g、41.07m m o l ) を添加し、100 で攪拌した。反応が終了すれば、 $\text{CH}_2\text{Cl}_2$  と水で抽出した後、有機層を  $\text{MgSO}_4$  で乾燥させ、濃縮した後、生成された化合物を s i l i c a g e l c o l u m n 及び再結晶して生成物7.82g ( 収率：86% ) を得た。

【 0 1 6 3 】

2.P-12の合成例

<反応式21>

【化 4 0】



10

20

【 0 1 6 4 】

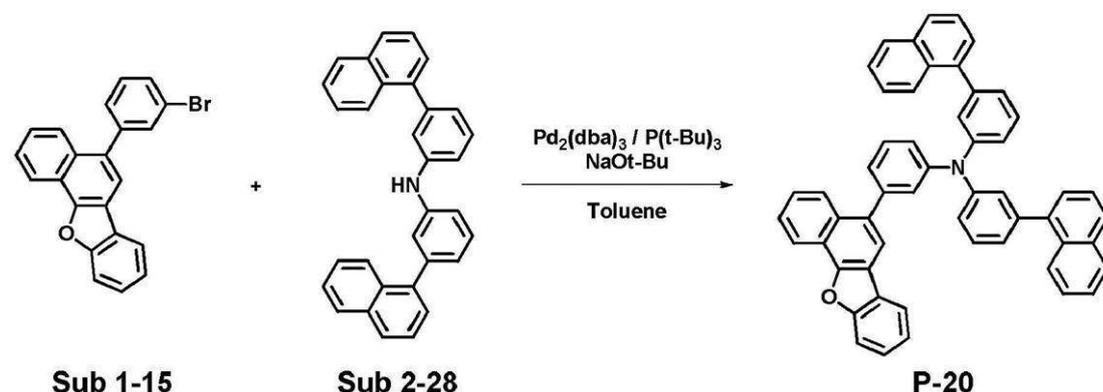
前記合成で得られた S u b 1 - 9 ( 5.85g、15.11m m o l ) にSub2-32 ( 5.55g、15.11m m o l )、 $\text{Pd}_2(\text{dba})_3$  ( 0.41g、0.45m m o l )、50% $\text{P}(\text{t-Bu})_3$  ( 0.6ml、1.21m m o l )、 $\text{NaOt-Bu}$  ( 4.36g、45.32m m o l )、toluene ( 150m l ) を添加し、前記P- 3 の合成法を使用して生成物7.63 g ( 収率：75% ) を得た。

【 0 1 6 5 】

3 .P-20の合成例

<反応式22>

【化 4 1】



30

40

【 0 1 6 6 】

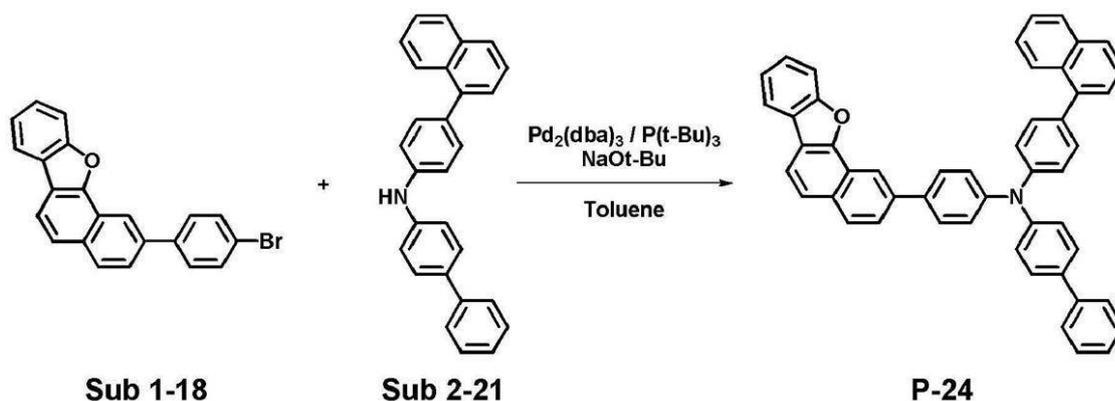
前記合成で得られた S u b 1 - 15 ( 5.24g、14.04m m o l ) にSub2-28 ( 5.92g、14.04m m o l )、 $\text{Pd}_2(\text{dba})_3$  ( 0.39g、0.42m m o l )、50% $\text{P}(\text{t-Bu})_3$  ( 0.5ml、1.12m m o l )、 $\text{NaOt-Bu}$  ( 4.05g、42.12m m o l )、toluene ( 140m l ) を添加し、前記P- 3 の合成法を使用して生成物7.32 g ( 収率：73% ) を得た。

【 0 1 6 7 】

4 .P-24の合成例

<反応式23>

## 【化42】



10

## 【0168】

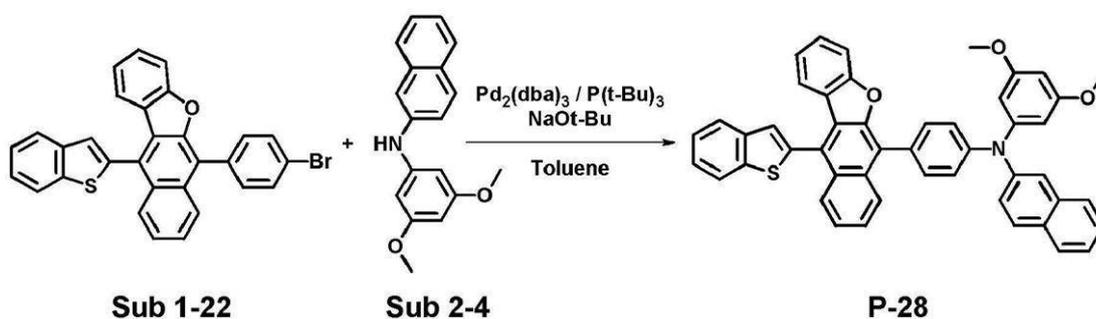
前記合成で得られた Sub 1-18 (4.86g、13.02mmol) に Sub 2-21 (4.84g、13.02mmol)、 $\text{Pd}_2(\text{dba})_3$  (0.36g、0.39mmol)、50% $\text{P}(\text{t-Bu})_3$  (0.5ml、1.04mmol)、 $\text{NaOt-Bu}$  (3.75g、39.06mmol)、toluene (130ml) を添加し、前記P-3の合成法を使用して生成物7.61g (収率: 88%) を得た。

## 【0169】

5. P-28の合成例

<反応式24>

## 【化43】



30

## 【0170】

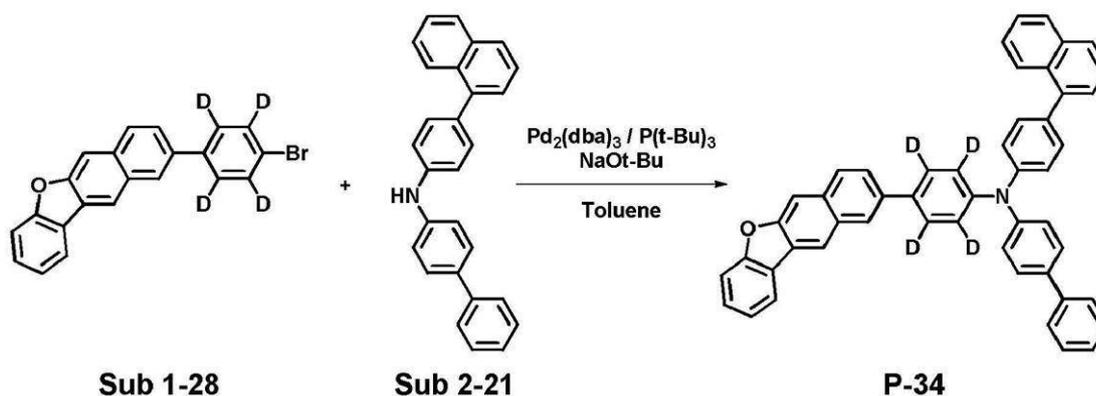
前記合成で得られた Sub 1-22 (7.64g、15.12mmol) に Sub 2-4 (4.22g、15.12mmol)、 $\text{Pd}_2(\text{dba})_3$  (0.42g、0.45mmol)、50% $\text{P}(\text{t-Bu})_3$  (0.6ml、1.21mmol)、 $\text{NaOt-Bu}$  (4.36g、45.35mmol)、toluene (150ml) を添加し、前記P-3の合成法を使用して生成物7.45g (収率: 70%) を得た。

## 【0171】

6. P-34の合成例

<反応式25>

## 【化44】



40

50

## 【0172】

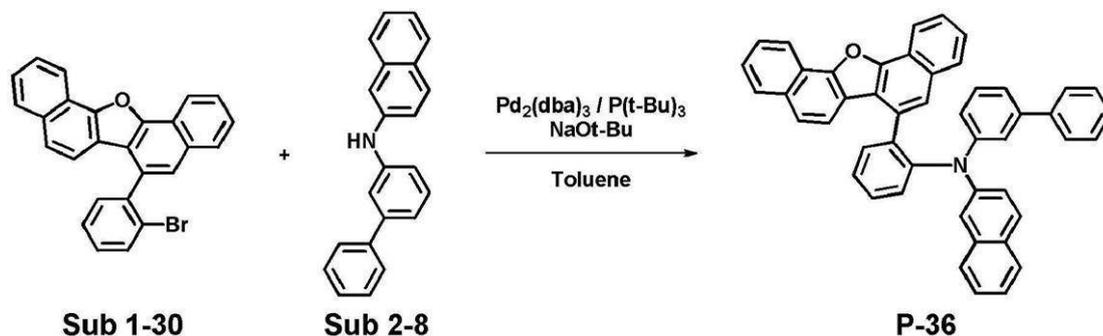
前記合成で得られたSub1-28 (5.27g、13.97mmol) にSub2-21 (5.19g、13.97mmol)、 $\text{Pd}_2(\text{dba})_3$  (0.38g、0.42mmol)、50% $\text{P}(\text{t-Bu})_3$  (0.5ml、1.12mmol)、 $\text{NaOt-Bu}$  (4.03g、41.91mmol)、toluene (140ml) を添加し、前記P-3の合成法を使用して生成物7.18g (収率：77%) を得た。

## 【0173】

7.P-36の合成例

<反応式26>

## 【化45】



10

## 【0174】

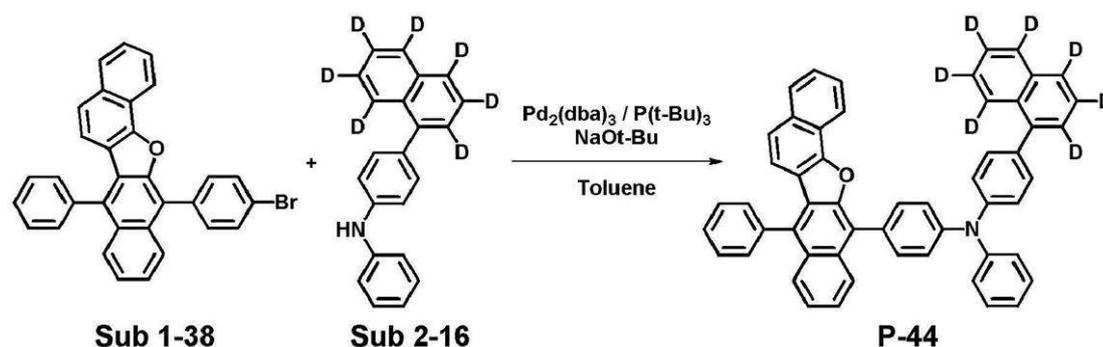
前記合成で得られたSub1-30 (8.06g、19.04mmol) にSub2-8 (5.62g、19.04mmol)、 $\text{Pd}_2(\text{dba})_3$  (0.52g、0.57mmol)、50% $\text{P}(\text{t-Bu})_3$  (0.7ml、1.52mmol)、 $\text{NaOt-Bu}$  (5.49g、57.12mmol)、toluene (190ml) を添加し、前記P-3の合成法を使用して生成物7.77g (収率：64%) を得た。

## 【0175】

8.P-44の合成例

<反応式27>

## 【化46】



30

## 【0176】

前記合成で得られたSub1-38 (6.52g、13.06mmol) にSub2-16 (3.95g、13.06mmol)、 $\text{Pd}_2(\text{dba})_3$  (0.36g、0.39mmol)、50% $\text{P}(\text{t-Bu})_3$  (0.5ml、1.04mmol)、 $\text{NaOt-Bu}$  (3.76g、39.17mmol)、toluene (130ml) を添加し、前記P-3の合成法を使用して生成物7.72g (収率：82%) を得た。

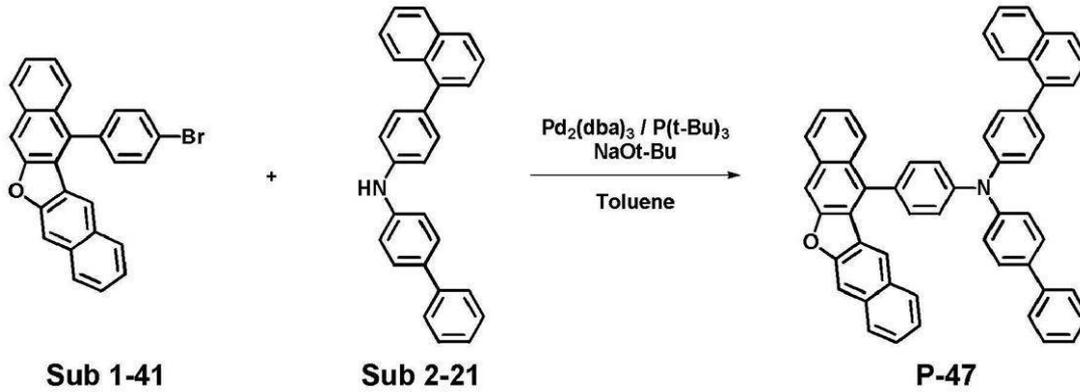
## 【0177】

9.P-47の合成例

<反応式28>

40

## 【化 4 7】



10

## 【 0 1 7 8】

前記合成で得られた S u b 1 -41 ( 5.13g、12.12m m o l ) にSub2-21 ( 4.50g、12.12m m o l )、 $\text{Pd}_2(\text{dba})_3$  ( 0.33g、0.36m m o l )、50% $\text{P}(\text{t-Bu})_3$  ( 0.5ml、0.97m m o l )、 $\text{NaOt-Bu}$  ( 3.49g、36.36m m o l )、toluene ( 120m l ) を添加し、前記P- 3 の合成法を使用して生成物7.35 g ( 収率：85% ) を得た。

## 【 0 1 7 9】

一方、前記のような合成例により製造された本発明の化合物P-1~P-48の F D - M S 値は、下記表 3 の通りである。

20

## 【 0 1 8 0】

[表 3]

【表3】

化合物	FD-MS	化合物	FD-MS
P-1	m/z=713.27 (C <sub>54</sub> H <sub>35</sub> N=713.86)	P-2	m/z=737.27 (C <sub>56</sub> H <sub>35</sub> N=737.88)
P-3	m/z=663.26 (C <sub>50</sub> H <sub>33</sub> N=663.80)	P-4	m/z=694.30 (C <sub>52</sub> H <sub>26</sub> D <sub>7</sub> N=694.87)
P-5	m/z=663.26 (C <sub>50</sub> H <sub>33</sub> N=663.80)	P-6	m/z=713.27 (C <sub>54</sub> H <sub>35</sub> N=713.86)
P-7	m/z=713.27 (C <sub>54</sub> H <sub>35</sub> N=713.86)	P-8	m/z=763.29 (C <sub>58</sub> H <sub>37</sub> N=763.92)
P-9	m/z=587.22 (C <sub>44</sub> H <sub>29</sub> N=587.71)	P-10	m/z=667.28 (C <sub>50</sub> H <sub>29</sub> D <sub>4</sub> N=667.83)
P-11	m/z 713.27 (C <sub>54</sub> H <sub>35</sub> N 713.86)	P-12	m/z 673.28 (C <sub>48</sub> H <sub>39</sub> NOSi 673.91)
P-13	m/z 677.24 (C <sub>50</sub> H <sub>31</sub> N <sub>2</sub> 677.79)	P-14	m/z 689.27 (C <sub>52</sub> H <sub>35</sub> N 689.84)
P-15	m/z=663.26 (C <sub>50</sub> H <sub>33</sub> N=663.80)	P-16	m/z=711.26 (C <sub>54</sub> H <sub>33</sub> N=711.85)
P-17	m/z=661.24 (C <sub>50</sub> H <sub>31</sub> N=661.79)	P-18	m/z=663.26 (C <sub>50</sub> H <sub>33</sub> N=663.80)
P-19	m/z=713.27 (C <sub>54</sub> H <sub>35</sub> N=713.86)	P-20	m/z=713.27 (C <sub>54</sub> H <sub>35</sub> N=713.86)
P-21	m/z=617.27 (C <sub>46</sub> H <sub>35</sub> N=617.78)	P-22	m/z=623.30 (C <sub>46</sub> H <sub>21</sub> D <sub>10</sub> N=623.81)
P-23	m/z=613.24 (C <sub>46</sub> H <sub>31</sub> N=613.74)	P-24	m/z=663.26 (C <sub>50</sub> H <sub>33</sub> N=663.80)
P-25	m/z=663.26 (C <sub>50</sub> H <sub>33</sub> N=663.80)	P-26	m/z=687.26 (C <sub>52</sub> H <sub>33</sub> N=687.82)
P-27	m/z=637.24 (C <sub>48</sub> H <sub>31</sub> N=637.77)	P-28	m/z=703.22 (C <sub>48</sub> H <sub>33</sub> N <sub>3</sub> S=703.85)
P-29	m/z=689.27 (C <sub>52</sub> H <sub>35</sub> N=689.84)	P-30	m/z=662.24 (C <sub>49</sub> H <sub>30</sub> N <sub>2</sub> O=662.78)
P-31	m/z=713.27 (C <sub>54</sub> H <sub>35</sub> N=713.86)	P-32	m/z=587.22 (C <sub>44</sub> H <sub>29</sub> N=587.71)
P-33	m/z=687.26 (C <sub>52</sub> H <sub>33</sub> N=687.82)	P-34	m/z=667.28 (C <sub>50</sub> H <sub>29</sub> D <sub>4</sub> N=667.83)
P-35	m/z=763.29 (C <sub>58</sub> H <sub>37</sub> N=763.92)	P-36	m/z=637.24 (C <sub>48</sub> H <sub>31</sub> N=637.77)
P-37	m/z=687.26 (C <sub>52</sub> H <sub>33</sub> N=687.82)	P-38	m/z=774.25 (C <sub>55</sub> H <sub>32</sub> F <sub>2</sub> N <sub>2</sub> O=774.85)
P-39	m/z=713.27 (C <sub>54</sub> H <sub>35</sub> N=713.86)	P-40	m/z=713.27 (C <sub>54</sub> H <sub>35</sub> N=713.86)
P-41	m/z=687.26 (C <sub>52</sub> H <sub>33</sub> N=687.82)	P-42	m/z=847.33 (C <sub>62</sub> H <sub>45</sub> NOSi=848.11)
P-43	m/z=687.26 (C <sub>52</sub> H <sub>33</sub> N=687.82)	P-44	m/z=720.32 (C <sub>54</sub> H <sub>26</sub> D <sub>7</sub> N=720.90)
P-45	m/z 661.24 (C <sub>50</sub> H <sub>31</sub> N 661.79)	P-46	m/z 711.26 (C <sub>54</sub> H <sub>33</sub> N 711.85)
P-47	m/z 713.27 (C <sub>54</sub> H <sub>35</sub> N 713.86)	P-48	m/z 767.31 (C <sub>58</sub> H <sub>33</sub> D <sub>4</sub> N 767.95)

## 【0181】

一方、前記においては式1で表される本発明の例示的な合成例を説明したが、これらは全てBuchwald-Hartwig cross coupling反応、Pd(II)-catalyzed oxidative cyclization反応、(Org.Lett.2011、13、5504)、Miyaura boration反応及びSuzuki cross-coupling反応などに基づくものであり、具体的な合成例に明示された置換基以外に式1において定義された他の置換基(A環、B環、L<sup>1</sup>ないしL<sup>3</sup>、Ar<sup>1</sup>、Ar<sup>2</sup>などの置換基)が結合されても前記反応が進行されるということを、当業者であれば容易に理解されるべきである。

## 【0182】

例えば、反応式1において、Sub1とSub2→Final Products反応及び反応式12において、出発物質→Sub2反応は、全てBuchwald-Hartwig cross coupling反応に基づくものであり、反応式2において出発物質→Sub1-I反応はPd(II)-catalyzed oxidative cyclization反応に基づくものであり、反応式2においてSub1-I→Sub1-II反応はMiyaura boration反応に基づくものである。続いて、反応式2においてSub1-II→Sub1反応はSuzuki cross-coupling反応に基づくものである。これらに具体的に明示されない置換基が結合されても前記反応が進むべきである。

10

20

30

40

50

## 【0183】

## 有機電子素子の製造評価

## [実施例 I-1] グリーン有機電子発光素子 (正孔輸送層)

本発明の化合物を正孔輸送層物質に用いて通常の方法によって有機電子発光素子を製作した。まず、ガラス基板に形成されたITO層 (正極) 上に4,4',4''-Tris[2-naphthyl(phenyl)amino]triphenylamine (以下、「2-TNATA」と略す) を60nmの厚さで真空蒸着して正孔輸送層を形成した後、前記正孔注入層上に本発明の化合物P-1を60nmの厚さで真空蒸着して正孔輸送層を形成した。次いで、前記正孔注入層上に4,4'-N,N'-dicarbazole-biphenyl (以下、「CBP」と略す) をホスト物質として、tris(2-phenylpyridine)-iridium (以下、「Ir(ppy)<sub>3</sub>」) と略す) をドーパントとして90:10の重量比でドーピングして30nmの厚さで真空蒸着して発光層を形成した。

10

## 【0184】

次に、前記発光層上に((1,1'-ビスフェニル)-4-オレート)ビス(2-メチル-8-キノリンオレート)アルミニウム (以下「BALq」と略す) を10nmの厚さで真空蒸着して正孔阻止層を形成し、前記正孔阻止層上にトリス(8-キノリノール)アルミニウム (以下「Alq<sub>3</sub>」) と略す) を40nmの厚さで真空蒸着して電子輸送層を形成した。その後、ハロゲン化アルカリ金属であるLiFを0.2nmの厚さで蒸着して電子注入層を形成し、次いでAlを150nmの厚さで蒸着して負極を形成することで、有機電子発光素子を製造した。

20

## 【0185】

## [実施例 I-2] ないし [実施例 I-300] グリーン有機電子発光素子 (正孔輸送層)

正孔輸送層物質として本発明の化合物P-1の代わりに、下記表4に記載された本発明の化合物P-3ないしP-48を用いた点を除いては、実施例 I-1と同様の方法で有機電子発光素子を作製した。

## 【0186】

## [比較例 1] ないし [比較例 I-8]

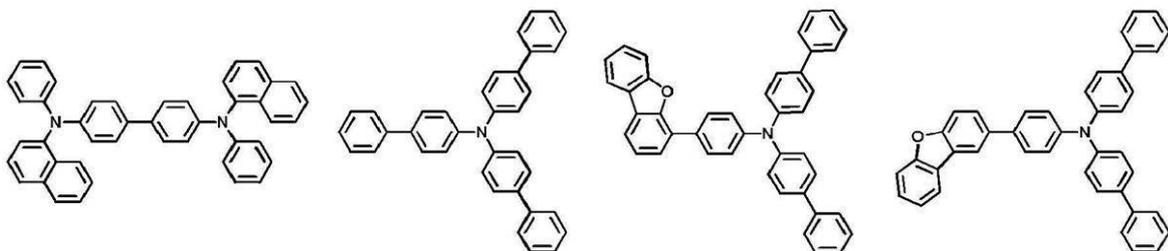
正孔輸送層物質として本発明の化合物P-1の代わりに、下記比較化合物1ないし比較化合物8を用いた点を除いては、前記実施例 I-1と同様の方法で有機電子発光素子を作製した。

30

## 【0187】

<比較化合物1> <比較化合物2> <比較化合物3><比較化合物4>

## 【化48】

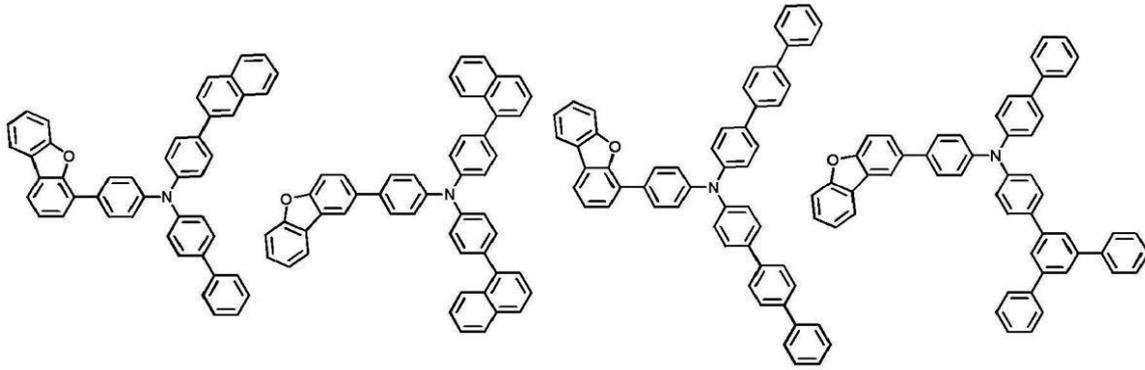


40

## 【0188】

<比較化合物5><比較化合物6><比較化合物7><比較化合物8>

## 【化49】



10

## 【0189】

本発明の実施例 I - 1 ないし実施例 I - 34、比較例 I - 1 ないし比較例 I - 8 により製造された有機電子発光素子に順バイアス直流電圧を加えてフォトリサーチ (photoresearch) 社の PR - 650 で電気発光 (EL) 特性を測定し、 $5000 \text{ cd/m}^2$  の基準輝度でマックサイエンス社で製造された寿命測定装置によって T95 寿命を測定し、その測定結果は下記表 4 の通りである。

## 【0190】

[表4]

【表4】

	化合物	驱动电压 (v)	电流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	亮度 (cd/m <sup>2</sup> )	效率 (cd/A)	寿命 T(95)	CIE	
							x	y
比较例(I-1)	比较化合物1	6.0	21.5	5000	23.3	57.2	0.32	0.61
比较例(I-2)	比较化合物2	5.9	19.9	5000	25.1	69.6	0.32	0.62
比较例(I-3)	比较化合物3	5.9	17.6	5000	28.4	76.5	0.33	0.62
比较例(I-4)	比较化合物4	5.8	17.8	5000	28.1	76.5	0.33	0.62
比较例(I-5)	比较化合物5	5.8	15.4	5000	32.4	84.2	0.33	0.61
比较例(I-6)	比较化合物6	5.8	15.5	5000	32.3	82.3	0.33	0.62
比较例(I-7)	比较化合物7	5.9	18.5	5000	27.1	72.0	0.33	0.61
比较例(I-8)	比较化合物8	5.9	18.4	5000	27.2	72.6	0.33	0.61
实施例(I-1)	化合物(P-1)	5.5	13.1	5000	38.1	139.1	0.33	0.61
实施例(I-2)	化合物(P-3)	5.6	12.8	5000	39.1	141.9	0.33	0.62
实施例(I-3)	化合物(P-4)	5.5	13.3	5000	37.5	137.4	0.33	0.62
实施例(I-4)	化合物(P-5)	5.5	12.5	5000	39.9	147.3	0.33	0.61
实施例(I-5)	化合物(P-6)	5.6	13.1	5000	38.3	140.9	0.33	0.61
实施例(I-6)	化合物(P-7)	5.5	13.2	5000	38.0	140.3	0.33	0.61
实施例(I-7)	化合物(P-9)	5.6	13.7	5000	36.5	133.2	0.33	0.61
实施例(I-8)	化合物(P-10)	5.7	13.7	5000	36.5	135.5	0.33	0.62
实施例(I-9)	化合物(P-11)	5.6	13.6	5000	36.7	135.4	0.33	0.61
实施例(I-10)	化合物(P-13)	5.6	13.9	5000	36.1	137.0	0.33	0.62
实施例(I-11)	化合物(P-15)	5.6	13.2	5000	37.8	139.9	0.33	0.61
实施例(I-12)	化合物(P-16)	5.6	13.7	5000	36.6	134.0	0.33	0.61
实施例(I-13)	化合物(P-17)	5.6	13.6	5000	36.7	135.8	0.33	0.61
实施例(I-14)	化合物(P-18)	5.6	13.1	5000	38.3	136.6	0.33	0.61
实施例(I-15)	化合物(P-19)	5.7	14.2	5000	35.2	132.7	0.33	0.61
实施例(I-16)	化合物(P-20)	5.6	14.1	5000	35.4	128.4	0.33	0.62
实施例(I-17)	化合物(P-21)	5.7	14.5	5000	34.4	128.2	0.33	0.62
实施例(I-18)	化合物(P-22)	5.6	14.2	5000	35.2	132.0	0.33	0.62
实施例(I-19)	化合物(P-23)	5.7	14.1	5000	35.4	129.9	0.33	0.61
实施例(I-20)	化合物(P-24)	5.7	13.7	5000	36.4	132.5	0.33	0.61
实施例(I-21)	化合物(P-26)	5.6	14.3	5000	35.0	131.7	0.33	0.62
实施例(I-22)	化合物(P-27)	5.7	14.1	5000	35.6	130.3	0.33	0.62
实施例(I-23)	化合物(P-29)	5.7	14.0	5000	35.7	129.1	0.33	0.62
实施例(I-24)	化合物(P-31)	5.7	14.2	5000	35.2	130.9	0.33	0.61
实施例(I-25)	化合物(P-34)	5.7	14.0	5000	35.8	130.3	0.33	0.61
实施例(I-26)	化合物(P-35)	5.6	14.7	5000	34.1	125.1	0.33	0.62

10

20

30

40

【0191】

[表4の続き]

【表 4 - 2】

実施例(I 27)	化合物(P 36)	5.7	14.9	5000	33.5	127.1	0.33	0.61
実施例(I-28)	化合物(P-37)	5.6	14.6	5000	34.2	127.4	0.33	0.62
実施例(I 29)	化合物(P 39)	5.7	14.5	5000	34.5	132.3	0.33	0.62
実施例(I-30)	化合物(P-43)	5.7	14.7	5000	34.1	127.6	0.33	0.62
実施例(I-31)	化合物(P-44)	5.7	14.8	5000	33.7	128.5	0.33	0.62
実施例(I-32)	化合物(P-46)	5.7	15.0	5000	33.4	126.5	0.33	0.62
実施例(I-33)	化合物(P-47)	5.7	14.3	5000	34.9	128.8	0.33	0.62
実施例(I-34)	化合物(P-48)	5.7	15.2	5000	32.8	125.3	0.33	0.62

10

## 【0192】

前記表 4 の結果から分かるように、本発明の化合物を正孔輸送層の材料として用いた有機電気発光素子は低い駆動電圧、高い発光効率及び長い寿命を表すことが確認できる。

## 【0193】

特に、一般に広く用いられる N P B 及び 3 次アミンにアシル基が全て置換された比較化合物 2 を用いた比較例 I - 1、比較例 I - 2 よりは 3 次アミンにジベンゾフランが置換された比較化合物 3 ないし比較化合物 8 を用いた比較例 I - 3 ないし比較例 I - 8 が発光効率の面で更に高い結果を表し、比較例 I - 3 ないし比較例 I - 8 よりは 3 次アミンに芳香族環が追加で縮合された形態のジベンゾフランを有する本発明の化合物を用いた実施例 I - 1 ないし実施例 I - 3 4 が更に低い駆動電圧を有すると同時に、高い発光効率及び顕著に改善された寿命を表した。

20

## 【0194】

前記のような結果は、本発明の化合物が比較化合物 1 ないし比較化合物 8 よりも分子の平面性を高める置換基が更に多く導入されているためであると判断される。

## 【0195】

分子の平面性を高める置換基を導入することは、分子間パイ-パイスタッキング (stacking) を高めることによって分子間のパイ-パイ軌道の重なり (orbital overlap) が増加するようになり、これにより、パイオービタルの孤立電子対 (lone pair electron) が分子間輸送 (transfer) を容易にすることによって正孔輸送能力 (hole transfer ability) の向上に繋がる。従って、正孔輸送能力 (hole transfer ability) が優れていることにより、ITO と HTL 界面に劣化が減少して素子の寿命が向上し、発光層に正孔の移動が容易になり、正孔と電子の発光層内の電荷均衡 (charge balance) が取られ、発光効率及び寿命を向上させるものと判断される。

30

## 【0196】

このような結果は、比較化合物 3 ないし比較化合物 8 の比較を通じても確認できるが、比較化合物 7 及び比較化合物 8 は分子の平面性を低下させる置換基が導入されて 3 次アミンにジベンゾフランが同一に置換されているにも拘らず、比較化合物 3 ないし比較化合物 6 に比べて発光層内の電荷均衡が減少し、発光効率が更に減少することが確認できる。

40

## 【0197】

3 次アミンに芳香族環が追加で縮合された形態であるジベンゾフランを有する本発明の化合物の場合は、分子の平面性が更に増加されると同時に、パッキング密度 (Packing density) が高くなり、比較的低い駆動電圧と素子駆動時に発生するジュール熱が減少し、高い熱的安定性により比較化合物 3 ないし比較化合物 8 よりも寿命が顕著に増加することが確認できる。

## 【0198】

前述した特性 (高い正孔伝達能力及び高い熱的安定性) を総合してみると、分子の平面性を高める置換基を導入したか否かによって電気的特性及び界面特性などが大きく変化するということが分かり、これは素子の性能向上に主要因子として作用することが確認でき

50

る。

【0199】

また、正孔輸送層の場合は、発光層（ホスト）との相互関係を把握しなければならないため、類似するコアを用いても本発明の化合物が用いられた正孔輸送層で現れる特徴を類推することは通常の技術者であっても非常に難しいだろう。

【0200】

[実施例11-1]グリーン有機電子発光素子（発光補助層）

本発明の化合物を発光補助層物質として用いて通常の方法によって有機電子発光素子を製作した。まず、ガラス基板に形成されたITO層（正極）上に2-TNATAを60nmの厚さで真空蒸着して正孔輸送層を形成した後、前記正孔注入層上に比較化合物1を60nmの厚さで真空蒸着して正孔輸送層を形成した。次いで、前記正孔注入層上に本発明の化合物P-1を20nmの厚さで真空蒸着して正孔輸送層を形成した後、前記発光補助層上にCBPをホストとして、Ir(ppy)<sub>3</sub>をドーパントとして90:10の重量比でドーピングして30nmの厚さで真空蒸着して発光層を形成した。次に、前記発光層上にBA1qを10nmの厚さで真空蒸着して正孔阻止層を形成し、前記正孔阻止層上にAlq<sub>3</sub>を40nmの厚さで真空蒸着して電子輸送層を形成した。その後、ハロゲン化アルカリ金属であるLiFを0.2nmの厚さで蒸着して電子注入層を形成し、次いでAlを150nmの厚さで蒸着して負極を形成することで、有機電子発光素子を製造した。

10

【0201】

[実施例11-2]ないし[実施例11-28]グリーン有機電子発光素子（発光補助層）

発光補助層物質として本発明の化合物P-1の代わりに、下記表5に記載された本発明の化合物P-3ないしP-48を用いた点を除いては、実施例11-1と同様の方法で有機電子発光素子を作製した。

20

【0202】

[比較例11-1]

発光補助層を形成しない点を除いては、前記実施例11-1と同様の方法で有機電子発光素子を作製した。

【0203】

[比較例11-2]ないし[比較例11-7]グリーン有機電子発光素子（発光補助層）

発光補助層物質として本発明の化合物P-1の代わりに、前記比較化合物3ないし比較化合物8を用いた点を除いては、前記実施例11-1と同様の方法で有機電子発光素子を作製した。

30

【0204】

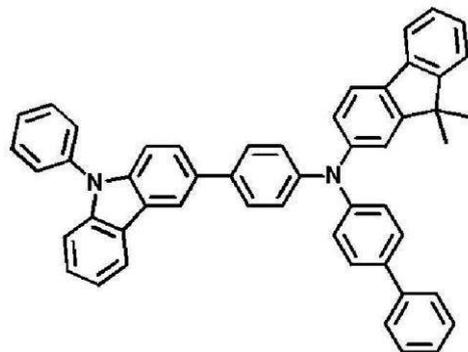
[実施例11-29]グリーン有機電子発光素子（発光補助層）

正孔輸送物質として比較化合物1の代わりに、比較化合物9を用いた点を除いては、実施例11-1と同様の方法で有機電子発光素子を作製した。

【0205】

<比較化合物9>

【化50】



40

【0206】

[実施例11-30]ないし[実施例11-46]グリーン有機電子発光素子（発光補助層）

50

発光補助層物質として本発明の化合物P-1の代わりに、下記表6に記載された本発明の化合物P-3ないしP-48を用いた点を除いては、実施例II-29と同様の方法で有機電子発光素子を作製した。

【0207】

[比較例II-8]

発光補助層を形成しない点を除いては、前記実施例II-29と同様の方法で有機電子発光素子を作製した。

【0208】

[比較例II-9]ないし[比較例II-14]グリーン有機電子発光素子(発光補助層)

発光補助層物質として本発明の化合物P-1の代わりに、前記比較化合物3ないし比較化合物8を用いた点を除いては、前記実施例II-29と同様の方法で有機電子発光素子を作製した。

10

【0209】

本発明の実施例II-1ないし実施例II-46、比較例II-1ないし比較例II-14により製造された有機電子発光素子に順バイアス直流電圧を加えてフォトリサーチ(photorsearch)社のPR-650で電気発光(EL)特性を測定し、5000cd/m<sup>2</sup>の基準輝度でマックサイエンス社で製造された寿命測定装置によってT95寿命を測定し、その測定結果は下記表5及び表6の通りである。

【0210】

[表5]

【表5】

	空穴輸送層 化合物	发光輔助層 化合物	驱动电压 (v)	电流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	亮度 (cd/m <sup>2</sup> )	效率 (cd/A)	寿命 T(95)
比较例(II-1)	比较化合物 1	-	6.0	21.5	5000	23.3	57.2
比较例(II-2)	比较化合物 1	比较化合物 3	6.4	13.7	5000	36.5	105.9
比较例(II-3)	比较化合物 1	比较化合物 4	6.4	13.7	5000	36.6	101.4
比较例(II-4)	比较化合物 1	比较化合物 5	6.3	12.5	5000	40.0	116.8
比较例(II-5)	比较化合物 1	比较化合物 6	6.3	12.6	5000	39.8	116.5
比较例(II-6)	比较化合物 1	比较化合物 7	6.4	14.3	5000	35.0	96.5
比较例(II-7)	比较化合物 1	比较化合物 8	6.4	14.2	5000	35.2	96.3
实施例(II-1)	比较化合物 1	化合物(P-1)	6.2	11.0	5000	45.4	155.8
实施例(II-2)	比较化合物 1	化合物(P-3)	6.1	10.8	5000	46.1	155.6
实施例(II-3)	比较化合物 1	化合物(P-4)	6.1	11.0	5000	45.7	153.4
实施例(II-4)	比较化合物 1	化合物(P-5)	6.1	10.5	5000	47.4	160.1
实施例(II-5)	比较化合物 1	化合物(P-6)	6.1	11.0	5000	45.6	157.4
实施例(II-6)	比较化合物 1	化合物(P-7)	6.2	10.9	5000	45.7	154.0
实施例(II-7)	比较化合物 1	化合物(P-9)	6.2	11.3	5000	44.2	149.8
实施例(II-8)	比较化合物 1	化合物(P-10)	6.2	11.4	5000	44.0	146.7
实施例(II-9)	比较化合物 1	化合物(P-11)	6.2	11.3	5000	44.3	151.2
实施例(II-10)	比较化合物 1	化合物(P-15)	6.1	11.2	5000	44.5	151.0
实施例(II-11)	比较化合物 1	化合物(P-16)	6.2	11.5	5000	43.6	148.3
实施例(II-12)	比较化合物 1	化合物(P-18)	6.2	11.0	5000	45.4	153.7
实施例(II-13)	比较化合物 1	化合物(P-19)	6.3	11.3	5000	44.1	147.5
实施例(II-14)	比较化合物 1	化合物(P-20)	6.3	11.5	5000	43.5	149.1
实施例(II-15)	比较化合物 1	化合物(P-22)	6.2	11.5	5000	43.3	148.5
实施例(II-16)	比较化合物 1	化合物(P-23)	6.2	11.6	5000	43.1	150.3
实施例(II-17)	比较化合物 1	化合物(P-24)	6.3	11.4	5000	44.0	151.3
实施例(II-18)	比较化合物 1	化合物(P-27)	6.3	11.6	5000	43.2	152.6
实施例(II-19)	比较化合物 1	化合物(P-29)	6.2	11.5	5000	43.4	148.2
实施例(II-20)	比较化合物 1	化合物(P-34)	6.2	11.3	5000	44.2	149.4
实施例(II-21)	比较化合物 1	化合物(P-36)	6.3	11.8	5000	42.5	142.2
实施例(II-22)	比较化合物 1	化合物(P-39)	6.2	11.7	5000	42.8	152.5
实施例(II-23)	比较化合物 1	化合物(P-40)	6.3	11.8	5000	42.5	143.5
实施例(II-24)	比较化合物 1	化合物(P-41)	6.3	11.7	5000	42.7	142.6
实施例(II-25)	比较化合物 1	化合物(P-43)	6.3	11.8	5000	42.3	143.1
实施例(II-26)	比较化合物 1	化合物(P-44)	6.3	11.9	5000	42.0	144.0

[表5の続き]

【表 5 - 2】

実施例(II 27)	比较化合物 1	化合物(P 47)	6.3	11.6	5000	43.0	152.4
実施例(II-28)	比较化合物 1	化合物(P-48)	6.3	11.8	5000	42.3	146.1

【 0 2 1 1 】

[表6]

【表 6】

	空穴輸送層 化合物	发光補助層 化合物	驱动电压 (v)	电流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	亮度 (cd/m <sup>2</sup> )	效率 (cd/A)	寿命 T(95)
比较例(II-8)	比较化合物 9	-	5.0	14.3	5000	35.0	97.3
比较例(II-9)	比较化合物 9	比较化合物 3	5.4	13.0	5000	38.5	119.7
比较例(II-10)	比较化合物 9	比较化合物 4	5.3	12.9	5000	38.6	120.1
比较例(II 11)	比较化合物 9	比较化合物 5	5.3	11.9	5000	42.0	129.3
比较例(II-12)	比较化合物 9	比较化合物 6	5.3	12.0	5000	41.7	131.4
比较例(II 13)	比较化合物 9	比较化合物 7	5.4	13.5	5000	37.0	115.5
比较例(II-14)	比较化合物 9	比较化合物 8	5.4	13.5	5000	37.1	115.2
実施例(II-29)	比较化合物 9	化合物(P-1)	5.2	10.3	5000	48.7	169.6
実施例(II-30)	比较化合物 9	化合物(P-3)	5.1	10.1	5000	49.4	170.9
実施例(II-31)	比较化合物 9	化合物(P-4)	5.1	10.4	5000	48.2	168.1
実施例(II 32)	比较化合物 9	化合物(P 5)	5.1	9.9	5000	50.4	175.5
実施例(II-33)	比较化合物 9	化合物(P-6)	5.1	10.3	5000	48.5	171.5
実施例(II-34)	比较化合物 9	化合物(P-7)	5.1	10.4	5000	48.1	164.2
実施例(II-35)	比较化合物 9	化合物(P-11)	5.2	10.7	5000	46.8	167.8
実施例(II-36)	比较化合物 9	化合物(P-15)	5.1	10.4	5000	48.0	167.8
実施例(II 37)	比较化合物 9	化合物(P 18)	5.2	10.3	5000	48.5	167.0
実施例(II-38)	比较化合物 9	化合物(P-19)	5.2	10.7	5000	46.8	164.1
実施例(II-39)	比较化合物 9	化合物(P-20)	5.2	10.7	5000	46.9	162.1
実施例(II-40)	比较化合物 9	化合物(P-24)	5.3	10.7	5000	46.7	166.0
実施例(II-41)	比较化合物 9	化合物(P-27)	5.2	10.8	5000	46.4	167.2
実施例(II 42)	比较化合物 9	化合物(P 34)	5.2	10.7	5000	46.7	162.6
実施例(II-43)	比较化合物 9	化合物(P-39)	5.3	10.7	5000	46.6	166.4
実施例(II-44)	比较化合物 9	化合物(P-44)	5.2	10.8	5000	46.5	163.1
実施例(II-45)	比较化合物 9	化合物(P-47)	5.2	10.8	5000	46.4	166.6
実施例(II-46)	比较化合物 9	化合物(P-48)	5.3	10.8	5000	46.5	162.1

【 0 2 1 2 】

[実施例III-1]ブルー有機電子発光素子(発光補助層)

本発明の化合物を発光補助層物質として用いて通常の方法によって有機電子発光素子を製作した。まず、ガラス基板に形成されたITO層(正極)上に2-TNATAを60nmの厚さで真空蒸着して正孔輸送層を形成した後、前記正孔注入層上に比較化合物9を60nmの厚さで真空蒸着して正孔輸送層を形成した。次いで、前記正孔注入層上に本発明の化合物P-1を20nmの厚さで真空蒸着して正孔輸送層を形成した後、前記発光補助層上

10

20

30

40

50

に9,10-Di(2-naphthyl)anthracene(以下、「ADN」と略す)を宿主として、BD-052X(Idemitsu Kosan製造)をドーパントとして96:4の重量比でドーピングして30nmの厚さで真空蒸着して発光層を形成した。次に、前記発光層上にBALqを10nmの厚さで真空蒸着して正孔阻止層を形成し、前記正孔阻止層上にAlq<sub>3</sub>を40nmの厚さで真空蒸着して電子輸送層を形成した。その後、ハロゲン化アルカリ金属であるLiFを0.2nmの厚さで蒸着して電子注入層を形成し、次いでAlを150nmの厚さで蒸着して負極を形成することで、有機電子発光素子を製造した。

【0213】

[実施例III-2]ないし[実施例II-12]ブルー有機電子発光素子(発光補助層)  
発光補助層物質として本発明の化合物P-1の代わりに、下記表7記載された本発明の化合物P-3ないしP-34いた点を除いては、実施例III-1と同様の方法で有機電子発光素子を作製した。

10

【0214】

[比較例III-1]  
発光補助層を形成しない点を除いては、前記実施例III-1と同様の方法で有機電子発光素子を作製した。

【0215】

[比較例III-2]ないし[比較例III-7]ブルー有機電子発光素子(発光補助層)  
発光補助層物質として本発明の化合物P-1の代わりに、前記比較化合物3ないし比較化合物8を用いた点を除いては、前記実施例III-1と同様の方法で有機電子発光素子を作製した。

20

【0216】

本発明の実施例III-1ないし実施例III-12、比較例III-1ないし比較例III-7より製造された有機電子発光素子に順バイアス直流電圧を加えてフォトリサーチ(photoresarch)社のPR-650で電気発光(EL)特性を測定し、500cd/m<sup>2</sup>の基準輝度でマックサイエンス社で製造された寿命測定装置によってT95寿命を測定し、その測定結果は下記表7の通りである。

【0217】

[表7]

【表 7】

	空穴輸送層化合物	発光補助層化合物	駆動電圧 (v)	電流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )	亮度 (cd/m <sup>2</sup> )	効率 (cd/A)	寿命 T(95)
比較例(III-1)	比較化合物 9	-	4.2	12.2	500	4.1	95.8
比較例(III-2)	比較化合物 9	比較化合物 3	4.5	7.7	500	6.5	111.9
比較例(III-3)	比較化合物 9	比較化合物 4	4.4	7.6	500	6.6	109.1
比較例(III-4)	比較化合物 9	比較化合物 5	4.4	7.4	500	6.8	118.4
比較例(III-5)	比較化合物 9	比較化合物 6	4.3	7.2	500	6.9	120.7
比較例(III-6)	比較化合物 9	比較化合物 7	4.6	8.3	500	6.0	98.4
比較例(III-7)	比較化合物 9	比較化合物 8	4.6	8.1	500	6.2	103.2
実施例(III-1)	比較化合物 9	化合物(P-1)	4.3	6.7	500	7.5	166.5
実施例(III-2)	比較化合物 9	化合物(P-3)	4.3	6.6	500	7.6	170.7
実施例(III-3)	比較化合物 9	化合物(P-4)	4.3	6.7	500	7.4	162.7
実施例(III-4)	比較化合物 9	化合物(P-5)	4.3	6.6	500	7.6	175.7
実施例(III-5)	比較化合物 9	化合物(P-6)	4.3	6.7	500	7.5	168.5
実施例(III-6)	比較化合物 9	化合物(P-7)	4.3	6.7	500	7.5	162.2
実施例(III-7)	比較化合物 9	化合物(P-11)	4.3	6.8	500	7.4	155.6
実施例(III-8)	比較化合物 9	化合物(P-15)	4.4	6.7	500	7.4	159.8
実施例(III-9)	比較化合物 9	化合物(P-18)	4.3	6.7	500	7.5	164.3
実施例(III-10)	比較化合物 9	化合物(P-19)	4.4	6.8	500	7.4	159.3
実施例(III-11)	比較化合物 9	化合物(P-20)	4.4	6.8	500	7.4	154.8
実施例(III-12)	比較化合物 9	化合物(P-34)	4.4	6.8	500	7.3	155.3

## 【0218】

前記表 5 ないし表 7 の結果から分かるように、本発明の化合物を発光補助層の材として用いた有機電気発光素子は比較例 II-1 ないし比較例 III-7 の有機電気発光素子に比べて発光効率が向上し、寿命が顕著に改善された。

## 【0219】

このような結果は発光補助層を形成しない素子よりも比較化合物 3 ないし比較化合物 8 及び本発明の化合物を発光補助層として用いた素子が発光効率及び寿命が向上したことが確認でき、その中でも本発明の化合物が発光効率と寿命の面において遥かに高い結果を表すことが確認できる。

## 【0220】

3 次アミンに芳香族環が追加で縮合された形態であるジベンゾフランを有すること（分子の平面性を高める置換基の導入）は正孔輸送層だけでなく、発光補助層（緑色燐光、青色蛍光）でも素子の性能向上に主要因子として作用することが確認でき、発光補助層の材料として用いた本発明の化合物は深い HOMO エネルギーレベル及び高い T<sub>1</sub> 値を有し、発光層内の電荷均衡を維持させ、効果的な電子ブロッキングとしての役割を果たすようになり、これにより、発光効率と寿命が向上することが確認できる。

## 【0221】

なお、前述した素子製作の評価結果では、本発明の化合物を正孔輸送層及び発光補助層のうち 1 つの層にのみ適用した素子特性を説明したが、本発明の化合物を正孔輸送層と発光補助層の両方に適用して使用されることができる。

## 【0222】

以上の説明は、本発明を例示的に説明したものに過ぎず、本発明の属する技術分野にお

10

20

30

40

50

る通常の知識を有する者であれば、本発明の本質的な特性から逸脱しない範囲で多様な変形が可能である。従って、本明細書に開示された実施形態は、本発明を限定するためのものではなく、説明するためのものであり、このような実施形態によって本発明の思想と範囲が限定されるものではない。本発明の保護範囲は、下記の請求範囲によって解釈されるべきであり、それと同等な範囲内にあるあらゆる技術は、本発明の権利範囲に含むものとして解釈されるべきである。

【符号の説明】

【 0 2 2 3 】

1 0 0 : 有機電子素子

1 1 0 : 基板

1 2 0 : 第 1 電極

1 3 0 : 正孔注入層

1 4 0 : 正孔輸送層

1 4 1 : バッファ層

1 5 0 : 発光層

1 5 1 : 発光補助層

1 6 0 : 電子輸送層

1 7 0 : 電子注入層

1 8 0 : 第 2 電極

【関連出願の相互参照】

【 0 2 2 4 】

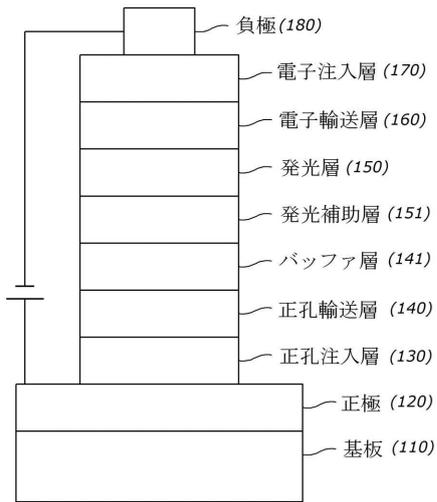
本特許出願は、2015年5月27日に韓国に出願した特許出願番号第10-2015-0073550号に対して米国特許法 1 1 9 ( a ) 条 ( 3 5 U . S . C § 1 1 9 ( a ) ) によって優先権を主張し、そのあらゆる内容は参考文献として本特許出願に併合される。なお、本特許出願は米国以外に国に対しても上記のような理由で優先権を主張すれば、その全内容は参考文献として本特許出願に組み込まれる。

10

20

【図 1】

100



## フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I		
H 0 1 L	51/50	(2006.01)	H 0 5 B	33/14 B
H 0 1 L	21/28	(2006.01)	H 0 5 B	33/22 B
H 0 1 L	29/41	(2006.01)	H 0 5 B	33/22 D
B 0 5 D	1/18	(2006.01)	H 0 1 L	21/28 3 0 1 B
B 0 5 D	1/28	(2006.01)	H 0 1 L	29/44 Z
B 0 5 D	1/26	(2006.01)	B 0 5 D	1/18
B 0 5 D	1/40	(2006.01)	B 0 5 D	1/28
B 0 5 D	7/00	(2006.01)	B 0 5 D	1/26 Z
B 0 5 D	7/24	(2006.01)	B 0 5 D	1/40 A
			B 0 5 D	7/00 H
			B 0 5 D	7/24 3 0 2 Z

- (72)発明者 パク、 ジョン チョル  
大韓民国 1 6 5 4 3 キョンギ-ド スウォン-シ ヨントン-ク ヒョウオン-ロ 3 6 3  
メタン 3-ドン メタン ウィーブ ハヌルチェ アパート 1 0 5 - 1 8 0 4
- (72)発明者 チョイ、 ヨン ヘ  
大韓民国 3 1 0 4 4 チュンチョンナム-ド チョナン-シ ソブク-ク ソンゴ-エブ チョ  
ンフン 3-ギル 1 7 シンビテル 9 - 4 0 5
- (72)発明者 イ、 ムン ジェ  
大韓民国 3 1 2 0 4 チュンチョンナム-ド チョナン-シ トンナム-ク トンジョン 3 -  
ロ 6 8 1 1 2 - 1 0 4 (シンバン-ドン シンバンハンソンフィル ハウス アパート)
- (72)発明者 ムン、 ソン ユン  
大韓民国 3 1 0 4 4 チュンチョンナム-ド チョナン-シ ソブク-ク ソンゴ-エブ チョ  
ンフン 3-ギル 1 9 - 1 シンビテル 1 1 - 2 0 4
- (72)発明者 キム、 キ ウォン  
大韓民国 1 6 7 0 8 キョンギ-ド スウォン-シ ヨントン-ク ヨントン-ロ 4 9 8 1  
2 9 - 1 8 0 1 (ヨントン-ドン ファンゴル タウン ジュゴン 1-ダンジ アパート)
- (72)発明者 パク、 ナムジン  
大韓民国 3 1 0 4 4 チュンチョンナム-ド チョナン-シ ソブク-ク ソンゴ-エブ チョ  
ンフン 3-ギル 1 9 - 1 シンビテル 1 2 - 4 0 5
- (72)発明者 イ、 ジョン ウク  
大韓民国 5 4 0 4 4 チョルラプク-ド クンサン-シ ソダン-ギル 1 1 1 0 4 - 3 0 5  
(グアム-ドン ヒュンダイ アパート)

審査官 前田 憲彦

- (56)参考文献 国際公開第2011/021520(WO, A1)  
国際公開第2009/145016(WO, A1)  
国際公開第2011/059099(WO, A1)  
米国特許出願公開第2014/0034915(US, A1)  
米国特許出願公開第2012/0043531(US, A1)  
国際公開第2014/104144(WO, A1)  
特表2012-503027(JP, A)  
韓国公開特許第10-2015-0016896(KR, A)  
国際公開第2014/142472(WO, A1)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C07D 307/00  
C07D 405/00  
C07D 409/00  
C07F 7/00  
H01L 21/00  
H01L 29/00  
H01L 51/00  
B05D 1/00  
B05D 7/00  
CAplus/REGISTRY(STN)