



(19) 대한민국특허청(KR)  
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2021-0043466  
(43) 공개일자 2021년04월21일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)  
C07F 5/02 (2006.01) C09K 11/06 (2006.01)  
H01L 27/32 (2006.01) H01L 51/00 (2006.01)  
H01L 51/50 (2006.01) H05B 33/14 (2006.01)  
(52) CPC특허분류  
C07F 5/027 (2013.01)  
C09K 11/06 (2021.01)  
(21) 출원번호 10-2020-0130011  
(22) 출원일자 2020년10월08일  
심사청구일자 없음  
(30) 우선권주장  
JP-P-2019-187811 2019년10월11일 일본(JP)

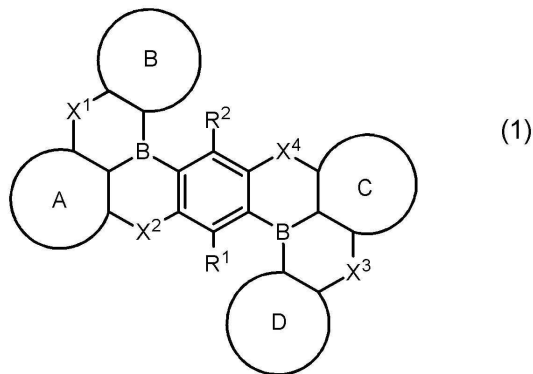
(71) 출원인  
가코우 호징 관세이 가쿠잉  
일본국 효고켄 니시노미야시 우에가하라이치반초  
1-155  
제이엔씨 주식회사  
일본 도쿄도 치요다쿠 오테마치 2초메 2반 1고  
(72) 발명자  
하타케야마 다쿠지  
일본 효고켄 산다시 가쿠엔 2초메 1반치 관세이  
가쿠잉 다이가쿠 리코가쿠부내  
이노우에 다이스케  
일본 지바켄 이치하라시 고이카이간 5-1 제이엔씨  
석유 화학 주식회사 이치하라 겐큐쇼내  
(뒷면에 계속)  
(74) 대리인  
유미특허법인

전체 청구항 수 : 총 20 항

(54) 발명의 명칭 다환 방향족 화합물, 유기 디바이스용 재료, 유기전계 발광소자, 표시 장치 및 조명 장치

(57) 요약

본 발명은 하기 식(1)으로 표시되는 다환 방향족 화합물에 관한 것이다. 본 발명에 의해 유기전계 발광 소자 등의 유기 디바이스를 위한 재료로서 유용한 신규화합물이 제공된다.



식 중, A환 및 C환은 할로겐 등의 치환기를 가지는 아릴환 등이며, B환 및 D환은 아릴환 등이며, 이들 환에서의 적어도 1개의 수소는 치환되어 있어도 되고,  $X^1$ ,  $X^2$ ,  $X^3$  및  $X^4$ 는,  $>O$ ,  $>N-R$  등이며, 상기  $>N-R$ 의 R은, 치환되어 있어도 되는 아릴 등이며, 연결기 또는 단결합에 의해 상기 A환, B환, C환 및/또는 D환과 결합하고 있어도 되고,  $R^1$  및  $R^2$ 는 수소 등이다.

(52) CPC특허분류

*H01L 27/32* (2013.01)

*H01L 51/008* (2013.01)

*H01L 51/5012* (2013.01)

*H05B 33/14* (2013.01)

*C09K 2211/188* (2013.01)

(72) 발명자

곤도 야스히로

일본 지바켄 이치하라시 고이카이간 5-1 제이엔씨

석유 화학 주식회사 이치하라 겐큐쇼내

---

가와스미 료스케

일본 지바켄 이치하라시 고이카이간 5-1 제이엔씨

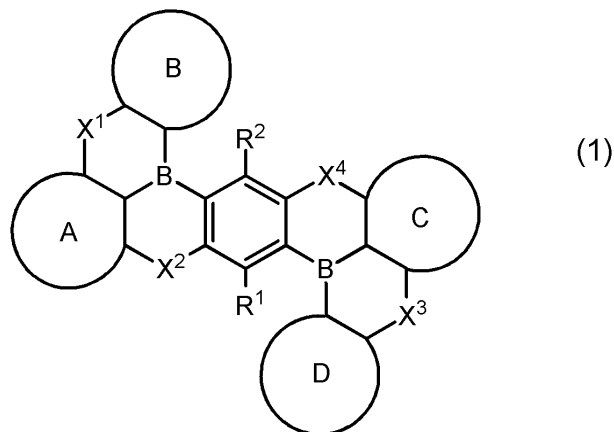
석유 화학 주식회사 이치하라 겐큐쇼내

## 명세서

## 청구범위

### 청구항 1

하기 식(1)으로 표시되는 다환 방향족 화합물:



상기 식(1) 중,

A환 및 C환은 각각 독립적으로, 치환기를 가지는 아릴환 또는 치환기를 가지는 헤테로아릴환이며,

B환 및 D환은 각각 독립적으로, 치환기를 가지고 있어도 되는 아릴환 또는 치환기를 가지고 있어도 되는 헤테로아릴환이며,

$X^1$ ,  $X^2$ ,  $X^3$  및  $X^4$ 는 각각 독립적으로,  $>O$ ,  $>N-R$ ,  $>CR_2$ ,  $>S$  또는  $>Se$ 이며, 상기  $>N-R$ 의 R은, 치환되어 있어도 되는 아릴, 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴, 치환되어 있어도 되는 시클로알킬 또는 치환되어 있어도 되는 알킬이며, 또한, 상기  $>N-R$ 의 R은 연결기 또는 단결합에 의해 상기 A환, B환, C환 및/또는 D환과 결합하고 있어도 되고,

상기  $>CR_2$ 의 R은, 수소, 치환되어 있어도 되는 아릴, 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴, 치환되어 있어도 되는 시클로알킬 또는 치환되어 있어도 되는 알킬이며, 또한, 상기  $>CR_2$ 의 R은 연결기 또는 단결합에 의해 상기 A환, B환, C환 및/또는 D환과 결합하고 있어도 되고,

$R^1$  및  $R^2$ 는 각각 독립적으로, 수소, 탄소수 1~6의 알킬, 탄소수 3~12의 시클로알킬, 탄소수 6~12의 아릴, 탄소수 2~15의 헤테로아릴, 디아릴아미노(단 아릴은 탄소수 6~12의 아릴), 시아노, 또는 할로젠이며,

상기 식(1)으로 표시되는 화합물에서의, 아릴환 및 헤테로아릴환으로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 1개는, 적어도 1개의 시클로알칸으로 축합되어 있어도 되고, 상기 시클로알칸에서의 적어도 1개의 수소는 치환되어 있어도 되고, 상기 시클로알칸에서의 적어도 1개의  $-CH_2-$ 는  $-O-$ 로 치환되어 있어도 되고,

상기 식(1)으로 표시되는 화합물에서의 적어도 1개의 수소는 중수소로 치환되어 있어도 됨.

### 청구항 2

제1항에 있어서,

A환은, 1개의 치환기  $Z^1$ 을 가지는 아릴환 혹은 1개의 치환기  $Z^1$ 을 가지는 헤테로아릴환이거나, 또는 1개의 치환기  $Z^1$ 을 가지는 아릴환 혹은 1개의 치환기  $Z^1$ 을 가지는 헤테로아릴환에서의  $Z^1$ 이 단결합 혹은 연결기에 의해  $Z^1$ 이 결합하는 아릴환 또는 헤테로아릴환에 결합한 구조를 가지고,

C환은, 1개의 치환기  $Z^2$ 을 가지는 아릴환 혹은 1개의 치환기  $Z^2$ 을 가지는 헤테로아릴환이거나, 또는 1개의 치환기  $Z^2$ 을 가지는 아릴환 혹은 1개의 치환기  $Z^2$ 을 가지는 헤테로아릴환에서의  $Z^2$ 가 단결합 혹은 연결기에 의해  $Z^2$ 가

결합하는 아릴환 혹은 헤테로아릴환에 결합한 구조를 가지고,

$Z^1$  및  $Z^2$ 는 각각 독립적으로, 하기 어느 하나의 기이며:

아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 아릴;

아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴;

아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 디아릴아미노(2개의 아릴은, 서로 결합하고 있어도 됨);

아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 디헤테로아릴아미노;

아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 아릴헤테로아릴아미노;

아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 알킬;

아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 시클로알킬;

아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 아릴옥시;

아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴옥시;

아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 아릴티오;

아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴티오;

시아노; 또는

할로겐,

B환 및 D환은 각각 독립적으로, 알킬, 시아노, 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 아릴환 또는 알킬, 시아노, 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴환이며,

A환 및 B환은, B,  $X^1$  및  $X^2$ 로 구성되는 식(1)의 좌측의 축합 2환 구조와 결합을 공유하는 5원환 또는 6원환을 가지고, C환 및 D환은, B,  $X^3$  및  $X^4$ 로 구성되는 식(1)의 우측의 축합 2환 구조와 결합을 공유하는 5원환 또는 6원환을 가지고,

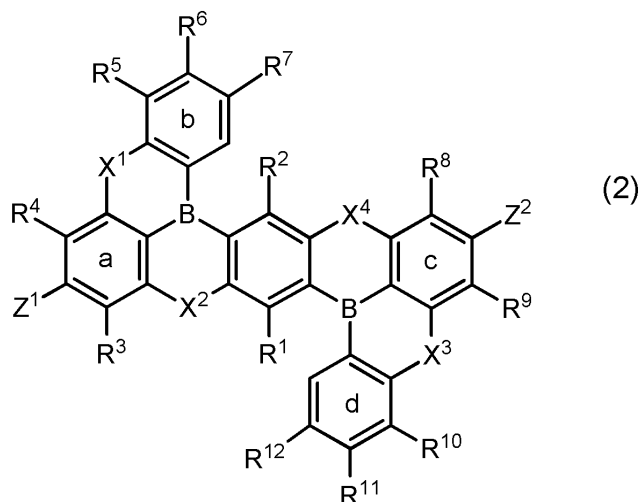
$R^1$  및  $R^2$ 는 각각 독립적으로, 수소, 시아노, 혹은 할로겐인,

다환 방향족 화합물.

### 청구항 3

제1항에 있어서,

하기 식(2)으로 표시되는, 다환 방향족 화합물:



상기 식(2) 중,

$R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$ ,  $R^6$ ,  $R^7$ ,  $R^8$ ,  $R^9$ ,  $R^{10}$ ,  $R^{11}$  및  $R^{12}$ 는 각각 독립적으로, 수소, 또는 치환기군 X로부터 선택되는 치환기이며,  $R^5 \sim R^7$  및  $R^{10} \sim R^{12}$  중 인접하는 기끼리 결합하여 b환 및/또는 d환과 함께 아릴환 또는 헤테로아릴환을 형성하고 있어도 되고,

형성된 환에서의 적어도 1개의 수소는 하기 치환기군 X로부터 선택되는 치환기로 치환되어 있어도 되고;

치환기군 X:

아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬, 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 아릴;

아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬, 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴;

아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬, 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 디아릴아미노(2개의 아릴은, 서로 결합하고 있어도 됨);

아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬, 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 디헤테로아릴아미노;

아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬, 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 아릴헤테로아릴아미노;

아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 알킬;

아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬, 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 시클로알킬;

아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬, 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 알콕시;

아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬, 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 아릴옥시;

아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬, 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴옥시;

아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬, 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 아릴티오;

아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬, 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴티오;

아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬, 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 알킬 치환 실릴;

시아노; 및

할로겐,

$X^1$ ,  $X^2$ ,  $X^3$  및  $X^4$ 는 각각 독립적으로,  $>O$ ,  $>N-R$ ,  $>CR_2$ ,  $>S$  또는  $>Se$ 이며,

상기  $>N-R$  및 상기  $>CR_2$ 의 R은 각각 독립적으로 하기 어느 하나의 기이며:

탄소수 1~6의 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 탄소수 6~12의 아릴;

탄소수 1~6의 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 탄소수 2~15의 헤테로아릴;

탄소수 1~6의 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 탄소수 3~12의 시클로알킬; 또는

시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 탄소수 1~6의 알킬,

상기 >N-R 및 상기 >CR<sub>2</sub>의 R은, 연결기 또는 단결합에 의해 a환, b환, c환 및/또는 d환과 결합하고 있어도 되고,

R<sup>1</sup> 및 R<sup>2</sup>는 각각 독립적으로, 수소, 탄소수 1~6의 알킬, 탄소수 6~12의 아릴, 시아노 또는 할로겐이며,

Z<sup>1</sup> 및 Z<sup>2</sup>는 각각 독립적으로 하기 어느 하나의 기이며:

아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 아릴;

아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴;

아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 디아릴아미노;

아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 디헤테로아릴아미노;

아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 아릴헤테로아릴아미노;

아릴, 헤테로아릴, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 알킬;

아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 시클로알킬;

아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 아릴옥시;

아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴옥시;

아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 아릴티오;

아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴티오;

시아노; 또는

할로겐,

Z<sup>1</sup>은, R<sup>3</sup> 및/또는 R<sup>4</sup>와 결합하여 환을 형성하고 있어도 되고, 이 때, R<sup>3</sup> 및/또는 R<sup>4</sup>는 붕소를 나타내고 있어도 되고, 디아릴아미노의 2개의 아릴이 결합하고 있어도 되고,

Z<sup>2</sup>는, R<sup>8</sup> 및/또는 R<sup>9</sup>와 결합하여 환을 형성하고 있어도 되고, 이 때, R<sup>8</sup> 및/또는 R<sup>9</sup>는 붕소를 나타내고 있어도 되고, 디아릴아미노의 2개의 아릴이 결합하고 있어도 되고,

식(2)으로 표시되는 화합물에서의 적어도 1개의 수소는 중수소로 치환되어 있어도 됨.

#### 청구항 4

제3항에 있어서,

X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup>, X<sup>3</sup> 및 X<sup>4</sup> 중 적어도 1개가 >N-R인, 다환 방향족 화합물.

#### 청구항 5

제3항 또는 제4항에 있어서,

>N-R의 R이, 탄소수 1~6의 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 탄소수 6~10의 아릴, 또는 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 탄소수 1~4의 알킬인, 다환 방향족 화합물.

#### 청구항 6

제3항 내지 제5항 중 어느 한 항에 있어서,  
 $R^1$  및  $R^2$ 가 모두 수소인, 다환 방향족 화합물.

#### 청구항 7

제3항 내지 제6항 중 어느 한 항에 있어서,  
 $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^8$  및  $R^9$ 이 모두 수소인, 다환 방향족 화합물.

#### 청구항 8

제3항 내지 제6항 중 어느 한 항에 있어서,

$X^1$ ,  $X^2$ ,  $X^3$  및  $X^4$ 가 모두 >N-R이며,

>N-R의 R이, 탄소수 1~6의 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 탄소수 6~10의 아릴이며,

$Z^1$  및  $Z^2$ 가, 모두 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 디아릴아미노이며,

$Z^1$ 과  $X^1$  혹은  $X^2$  중의 >N-R의 R이  $R^3$  또는  $R^4$ 인 붕소를 연결기로 하여 a환과 결합하고,

$Z^2$ 와  $X^3$  혹은  $X^4$  중의 >N-R의 R이  $R^8$  또는  $R^9$ 인 붕소를 연결기로 하여 c환과 결합하고 있는, 다환 방향족 화합물.

#### 청구항 9

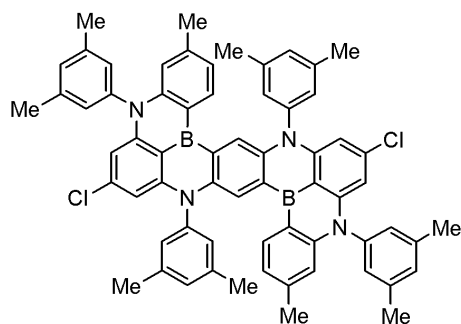
제3항 내지 제8항 중 어느 한 항에 있어서,

$R^5$ ,  $R^6$ ,  $R^7$ ,  $R^{10}$ ,  $R^{11}$  및  $R^{12}$ 가 각각 독립적으로, 수소, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 탄소수 6~10의 아릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 탄소수 3~12의 시클로알킬, 또는 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 탄소수 1~6의 알킬인, 다환 방향족 화합물.

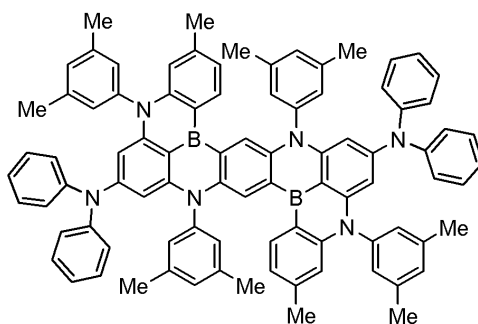
#### 청구항 10

제1항에 있어서,

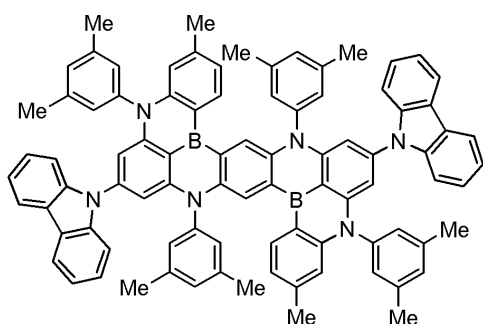
하기 식(1-307), 식(1-313), 식(1-321), 또는 식(1-331)으로 표시되는, 다환 방향족 화합물:



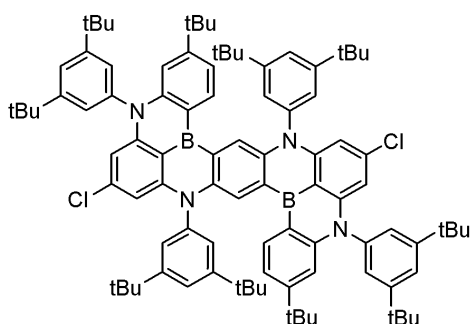
(1-307)



(1-313)



(1-321)



(1-331)

식 중, Me는 메틸, tBu는 tert-부틸임.

#### 청구항 11

제1항 내지 제10항 중 어느 한 항에 기재된 다환 방향족 화합물을 함유하는, 녹색 발광 재료.

#### 청구항 12

제1항 내지 제10항 중 어느 한 항에 기재된 다환 방향족 화합물을 함유하는, 유기 디바이스용 재료.

#### 청구항 13

제12항에 있어서,

상기 유기 디바이스용 재료는, 유기전계 발광소자용 재료, 유기전계 효과 트랜지스터용 재료 또는 유기박막 태양전지용 재료인, 유기 디바이스용 재료.

#### 청구항 14

제1항 내지 제10항 중 어느 한 항에 기재된 다환 방향족 화합물을 함유하는, 유기전계 발광소자의 발광층을 형성하기 위한 발광층용 재료.

#### 청구항 15

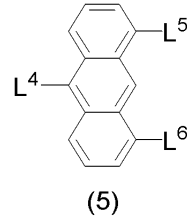
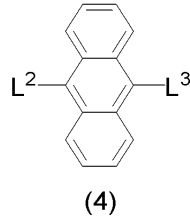
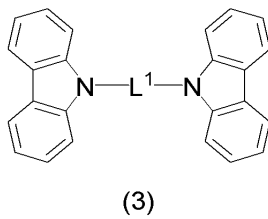
양극 및 음극으로 이루어지는 한 쌍의 전극과, 상기 한 쌍의 전극 사이에 배치되고, 제14항에 기재된 발광층용 재료를 함유하는 발광층을 가지는, 유기전계 발광소자.

#### 청구항 16

제15항에 있어서,

상기 발광층은 하기 식(3)으로 표시되는 화합물, 하기 식(4)으로 표시되는 화합물 및 하기 식(5)으로 표시되는 화합물로 이루어지는 군으로부터 선택되는 1개 이상의 화합물을 더 함유하는, 유기전계 발광소자:





상기 식(3) 중,  $L^1$ 은 탄소수 6~24의 아릴렌이며,

상기 식(4) 중,  $L^2$  및  $L^3$ 는 각각 독립적으로, 탄소수 6~30의 아릴 또는 탄소수 2~30의 헤테로아릴이며,

상기 식(5) 중,  $L^4$ ,  $L^5$  및  $L^6$ 는 각각 독립적으로, 탄소수 6~30의 아릴 또는 탄소수 2~30의 헤테로아릴이며,

상기 각 식으로 표시되는 화합물에서의 적어도 1개의 수소는, 탄소수 1~6의 알킬, 시아노, 할로젠 또는 중수소로 치환되어 있어도 됨.

#### 청구항 17

제15항 또는 제16항에 있어서,

상기 음극과 상기 발광층 사이에 배치되는 전자수송층 및/또는 전자주입층을 가지고, 상기 전자수송층 및 전자주입층 중 적어도 1개는, 보란 유도체, 피리딘 유도체, 플루오란텐 유도체, BO계 유도체, 안트라센 유도체, 벤조플루오렌 유도체, 포스핀옥사이드 유도체, 피리미딘 유도체, 아틸니트릴 유도체, 트리아진 유도체, 벤즈이미다졸 유도체, 페난트롤린 유도체, 퀴놀리놀계 금속 착체, 티아졸 유도체, 벤조티아졸 유도체, 실롤 유도체 및 아졸린 유도체로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 1개를 함유하는, 유기전계 발광소자.

#### 청구항 18

제17항에 있어서,

상기 전자수송층 및/또는 전자주입층이, 알칼리 금속, 알칼리토류 금속, 희토류 금속, 알칼리 금속의 산화물, 알칼리 금속의 할로겐화물, 알칼리토류 금속의 산화물, 알칼리토류 금속의 할로겐화물, 희토류 금속의 산화물, 희토류 금속의 할로겐화물, 알칼리 금속의 유기착체, 알칼리토류 금속의 유기착체 및 희토류 금속의 유기착체로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 1개를 더 함유하는, 유기전계 발광소자.

#### 청구항 19

제15항 내지 제18항 중 어느 한 항에 기재된 유기전계 발광소자를 구비한, 표시 장치.

#### 청구항 20

제15항 내지 제18항 중 어느 한 항에 기재된 유기전계 발광소자를 구비한, 조명 장치.

### 발명의 설명

### 기술 분야

[0001]

본 발명은, 다환 방향족 화합물에 관한 것이다. 본 발명은 또한, 상기 다환 방향족 화합물을 포함하는 녹색 발광 재료에 관한 것이다. 본 발명은 또한 상기 다환 방향족 화합물을 사용한 유기전계 발광소자, 유기전계 효과 트랜지스터 및 유기 박막 태양전지 등의 유기 디바이스, 및 표시 장치 및 조명 장치에 관한 것이다.

### 배경 기술

[0002]

종래, 전계 발광하는 발광 소자를 사용한 표시 장치는, 소전력화나 박형화가 가능하므로, 다양하게 연구되고, 또한 유기재료로 이루어지는 유기전계 발광소자는, 경량화나 대형화가 용이하므로 활발하게 검토되어 왔다. 특히, 광의 3원색의 하나인 녹색 등의 발광 특성을 가지는 유기재료의 개발, 및 정공, 전자 등의 전하수송능(반도체나 초전도체가 될 가능성을 가짐)을 구비한 유기재료의 개발에 대해서는, 고분자 화합물, 저분자 화합물을 막론하고 지금까지 활발하게 연구되어 왔다.

- [0003] 유기전계 발광소자는, 양극 및 음극으로 이루어지는 한 쌍의 전극과, 상기 한 쌍의 전극 사이에 배치되고, 유기 화합물을 포함하는 1층 또는 복수의 층으로 이루어지는 구조를 가진다. 유기 화합물을 포함하는 층에는, 발광층이나, 정공, 전자 등의 전하를 수송 또는 주입하는 전하수송/주입층 등이 있지만, 이들 층에 적합한 각종 유기 재료가 개발되어 있다.
- [0004] 발광층용 재료로서는, 예를 들면, 벤조플루오렌계 화합물 등이 개발되어 있다(특허문헌 1). 또한, 정공수송 재료로서는, 예를 들면, 트리페닐아민계 화합물 등이 개발되어 있다(특허문헌 2). 또한, 전자수송 재료로서는, 예를 들면, 안트라센계 화합물 등이 개발되어 있다(특허문헌 3).
- [0005] 또한, 최근에는 유기 EL 소자나 유기박막 태양전지에 사용하는 재료로서 트리페닐아민 유도체를 개량한 재료도 보고되어 있다(특허문헌 4). 이 재료는 이미 실용화되어 있는 N,N'-디페닐-N,N'-비스(3-메틸페닐)-1,1'-비페닐-4,4'-디아민(TPD)을 참고로 하여, 트리페닐아민을 구성하는 방향족환끼리를 연결함으로써 그 평면성을 높인 것을 특징으로 하는 재료이다. 이 문헌에서는, 예를 들면, NO연결계 화합물(63페이지의 화합물 1)의 전하수송 특성이 평가되어 있지만, NO연결계 화합물 이외의 재료의 제조 방법에 대해서는 기재되어 있지 않으며, 또한, 연결하는 원소가 다르면 화합물 전체의 전자상태가 다르므로, NO연결계 화합물 이외의 재료로부터 얻어지는 특성도 아직 알려져 있지 않다. 이와 같은 화합물의 예는 그 외에도 볼 수 있다(특허문헌 5). 예를 들면, 최저 여기(勵起) 3중항 에너지 준위( $E_{T1}$ )가 큰 공역구조를 가지는 화합물은, 보다 짧은 파장의 인광을 발할 수 있으므로, 청색의 발광층용 재료로서 유익하다. 또한, 발광층을 협지하는 전자수송 재료나 정공수송 재료로서도 T1이 큰 신규 공역구조를 가지는 화합물이 요구되고 있다.
- [0006] 유기 EL 소자의 호스트 재료는, 일반적으로, 벤젠이나 카르바졸 등의 기존의 방향족환을 단결합이나 인 원자나 규소 원자로 복수 연결한 분자다. 이는, 비교적 공역계가 작은 방향족환을 다수 연결함으로써, 호스트 재료에 필요한 큰 HOMO-LUMO갭(박막에서의 밴드갭  $E_g$ )이 담보되기 때문이다. 또한, 인광 재료나 열활성화 지연 형광(TADF) 재료를 사용한 유기 EL 소자의 호스트 재료에는, 높은 최저 여기 3중항 에너지 준위( $E_{T1}$ )도 필요하지만, 분자에 도너 혹은 억셉터성의 방향족환이나 치환기를 연결함으로써, 3중항 여기 상태(T1)의 SOMO1 및 SOMO2를 국재화(局在化)시켜, 양쪽 궤도간의 교환 상호 작용을 작게함으로써, 최저 여기 3중항 에너지 준위( $E_{T1}$ )을 향상시키는 것이 가능하게 된다. 그러나, 공역계가 작은 방향족환은 산화환원 안정성이 충분하지 않으며, 기존의 방향족환을 연결해 나간 분자를 호스트 재료로서 사용한 소자는 수명이 충분하지 않다. 한편, 확장  $\pi$  공역계를 가지는 다환 방향족 화합물은, 일반적으로, 산화환원 안정성은 우수하지만, HOMO-LUMO갭(박막에서의 밴드갭  $E_g$ )이나 최저 여기 3중항 에너지 준위( $E_{T1}$ )가 낮으므로, 호스트 재료에 적합하지 않는 것으로 여겨져 왔다.
- [0007] 또한, 최근에는 붕소 등을 중심원자로 하여 복수의 방향족환을 축합한 화합물도 보고되고 있다(특허문헌 6). 이 문헌에서는 발광층의 도펀트 재료로서 상기 복수의 방향족환을 축합한 화합물을 사용한 유기 EL 소자 평가가 실시되어 있지만, 상기 문헌에는 극히 다수의 화합물이 개시되어 있고, 이들 중에서도 특히 발광 특성 등의 유기 EL 특성이 우수한 화합물을 검토하는 것은 유익하다.
- [0008] 또한, 유기 EL 소자를 구성하는 유기층의 형성 방법으로서, 진공증착법 외에 습식성막법이 사용된다. 습식성막법용의 재료개발에 대해서는, 특히, 정공주입층, 정공수송층 및 발광층을 형성하기 위한 잉크의 개발이 적극적으로 행해지고 있다. 이 중에서, 정공주입층과 정공수송층용의 잉크에 관해서는, 이들 잉크를 사용하여 습식성막법으로 형성된 각 층의 특성은 실용 레벨에 달하고 있다.

## 선행기술문헌

### 특허문헌

- [0009] (특허문헌 0001) 국제공개 제2004/061047호  
(특허문헌 0002) 일본공개특허 제2001-172232호 공보  
(특허문헌 0003) 일본공개특허 제2005-170911호 공보  
(특허문헌 0004) 국제공개 제2012/118164호  
(특허문헌 0005) 국제공개 제2011/107186호

(특허문헌 0006) 국제공개 제2015/102118호

## 발명의 내용

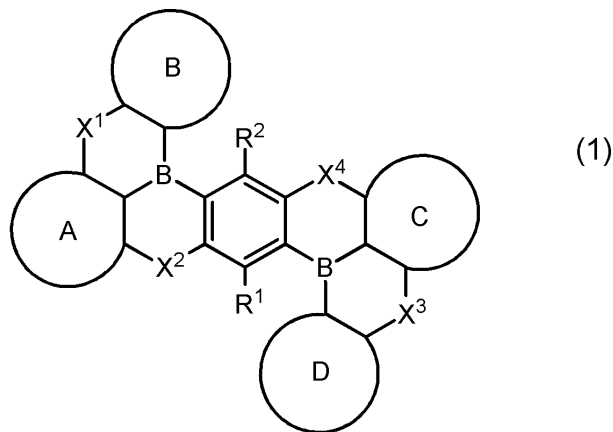
### 해결하려는 과제

[0010] 전술한 바와 같이, 유기 EL 소자에 사용되는 재료로서는 각종 재료가 개발되어 있지만, 발광 특성 등의 유기 EL 특성을 더욱 높이거나, 발광층용 재료 등의 유기 EL 재료의 선택사항을 늘리기 위하여, 종래 구체적으로는 알려져 있지 않은 화합물의 개발이 기대되고 있다.

### 과제의 해결 수단

[0011] 본 발명자들은, 상기 문제점을 해결하기 위해 예의(銳意) 검토한 결과, 붕소 원자와 질소 원자 또는 산소 원자 등으로 복수의 방향족환을 연결한 다환 방향족 화합물 중에서도 특정한 구조를 가지는 화합물을 사용함으로써, 우수한 유기 EL 소자가 얻어지는 것을 발견하고, 본 발명을 완성시켰다. 즉 본 발명은, 하기와 같은 다환 방향족 화합물, 또한 하기와 같은 다환 방향족 화합물을 포함하는 유기 디바이스용 재료 등을 제공한다.

[0012] [1] 하기 식(1)으로 표시되는 다환 방향족 화합물:



[0013]

[0014] 식(1) 중,

[0015] A환 및 C환은, 각각 독립적으로, 치환기를 가지는 아릴환 또는 치환기를 가지는 헤테로아릴환이며,

[0016] B환 및 D환은, 각각 독립적으로, 치환기를 가지고 있어도 되는 아릴환 또는 치환기를 가지고 있어도 되는 헤테로아릴환이며,

[0017]  $X^1$ ,  $X^2$ ,  $X^3$  및  $X^4$ 는, 각각 독립적으로,  $>O$ ,  $>N-R$ ,  $>CR_2$ ,  $>S$  또는  $>Se$ 이며, 상기  $>N-R$ 의 R은, 치환되어 있어도 되는 아릴, 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴, 치환되어도 되는 시클로알킬 또는 치환되어 있어도 되는 알킬이며, 또한 상기  $>N-R$ 의 R은 연결기 또는 단결합에 의해 상기 A환, B환, C환 및/또는 D환과 결합하고 있어도 되고,

[0018] 상기  $>CR_2$ 의 R은, 수소, 치환되어 있어도 되는 아릴, 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴, 치환되어도 되는 시클로알킬 또는 치환되어 있어도 되는 알킬이며, 또한 상기  $>CR_2$ 의 R은 연결기 또는 단결합에 의해 상기 A환, B환, C환 및/또는 D환과 결합하고 있어도 되고,

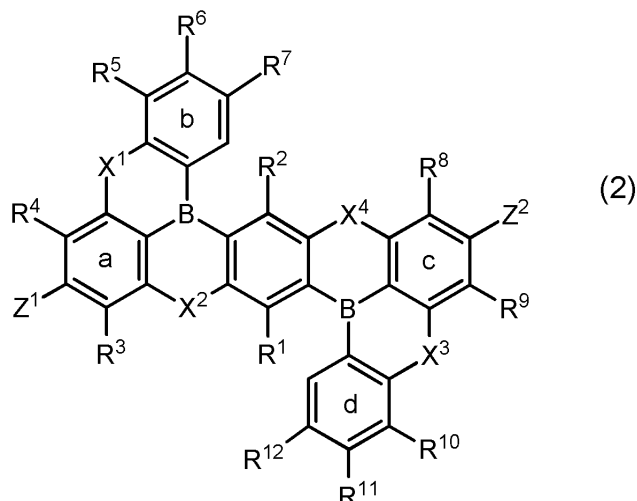
[0019]  $R^1$  및  $R^2$ 는, 각각 독립적으로, 수소, 탄소수 1~6의 알킬, 탄소수 3~12의 시클로알킬, 탄소수 6~12의 아릴, 탄소수 2~15의 헤테로아릴, 디아릴아미노(단 아릴은 탄소수 6~12의 아릴), 시아노, 또는 할로젠이며,

[0020] 식(1)으로 표시되는 화합물에서의, 아릴환 및 헤테로아릴환으로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 1개는, 적어도 1개의 시클로알칸으로 축합되어 있어도 되고, 상기 시클로알칸에서의 적어도 1개의 수소는 치환되어 있어도 되고, 상기 시클로알칸에서의 적어도 1개의  $-CH_2-$ 는  $-O-$ 로 치환되어 있어도 되고,

[0021] 식(1)으로 표시되는 화합물에서의 적어도 1개의 수소는 중수소로 치환되어 있어도 된다.

- [0022] [2] A환은, 1개의 치환기  $Z^1$ 을 가지는 아릴환 혹은 1개의 치환기  $Z^1$ 을 가지는 헤테로아릴환이거나, 또는, 1개의 치환기  $Z^1$ 을 가지는 아릴환 혹은 1개의 치환기  $Z^1$ 을 가지는 헤테로아릴환에서의  $Z^1$ 이 단결합 혹은 연결기에 의해  $Z^1$ 이 결합하는 아릴환 또는 헤테로아릴환에 결합한 구조를 가지고,
- [0023] C환은, 1개의 치환기  $Z^2$ 를 가지는 아릴환 혹은 1개의 치환기  $Z^2$ 를 가지는 헤테로아릴환이거나, 또는, 1개의 치환기  $Z^2$ 를 가지는 아릴환 혹은 1개의 치환기  $Z^2$ 를 가지는 헤테로아릴환에서의  $Z^2$ 가 단결합 혹은 연결기에 의해  $Z^2$ 가 결합하는 아릴환 혹은 헤테로아릴환에 결합한 구조를 가지고,
- [0024]  $Z^1$  및  $Z^2$ 는, 각각 독립적으로, 하기 어느 하나의 기이며:
- [0025] 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로젠으로 치환되어 있어도 되는 아릴;
- [0026] 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로젠으로 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴;
- [0027] 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로젠으로 치환되어 있어도 되는 디아릴아미노(2개의 아릴은, 서로 결합하고 있어도 됨);
- [0028] 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로젠으로 치환되어 있어도 되는 디헤테로아릴아미노;
- [0029] 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로젠으로 치환되어 있어도 되는 아릴헤테로아릴아미노;
- [0030] 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로젠으로 치환되어 있어도 되는 알킬;
- [0031] 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로젠으로 치환되어 있어도 되는 시클로알킬;
- [0032] 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로젠으로 치환되어 있어도 되는 아릴옥시;
- [0033] 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로젠으로 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴옥시;
- [0034] 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로젠으로 치환되어 있어도 되는 아릴티오;
- [0035] 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로젠으로 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴티오;
- [0036] 시아노; 또는
- [0037] 할로젠,
- [0038] B환 및 D환은, 각각 독립적으로, 알킬, 시아노, 혹은 할로젠으로 치환되어 있어도 되는 아릴환 또는 알킬, 시아노, 혹은 할로젠으로 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴환이며,
- [0039] A환 및 B환은, B,  $X^1$  및  $X^2$ 로 구성되는 식(1)좌측의 축합 2환 구조와 결합을 공유하는 5원환 또는 6원환을 가지고, C환 및 D환은 B,  $X^3$  및  $X^4$ 로 구성되는 식(1)우측의 축합 2환 구조와 결합을 공유하는 5원환 또는 6원환을 가지고,
- [0040]  $R^1$  및  $R^2$ 는, 각각 독립적으로, 수소, 시아노, 혹은 할로젠인,
- [0041] [1]에 기재된 다환 방향족 화합물.

[0042] [3] 하기 식(2)으로 표시되는, [1]에 기재된 다환 방향족 화합물;



[0043]

[0044] 식(2) 중,

[0045]  $R^3, R^4, R^5, R^6, R^7, R^8, R^9, R^{10}, R^{11}$  및  $R^{12}$ 는, 각각 독립적으로, 수소, 또는 치환기군 X로부터 선택되는 치환기이며,  $R^5 \sim R^7$  및  $R^{10} \sim R^{12}$  중 인접하는 기끼리 결합하여 b환 및/또는 d환과 함께 아릴환 또는 헤테로아릴환을 형성하고 있어도 되고,

[0046] 형성된 환에서의 적어도 1개의 수소는 하기 치환기군 X로부터 선택되는 치환기로 치환되어 있어도 되고;

[0047] 치환기군 X:

[0048] 아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬, 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 아릴;

[0049] 아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬, 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴;

[0050] 아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬, 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 디아릴아미노(2개의 아릴은, 서로 결합하고 있어도 됨);

[0051] 아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬, 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 디헤테로아릴아미노;

[0052] 아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬, 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 아릴헤테로아릴아미노;

[0053] 아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 알킬;

[0054] 아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬, 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 시클로알킬;

[0055] 아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬, 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 알콕시;

[0056] 아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬, 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 아릴옥시;

[0057] 아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬, 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴옥시;

[0058] 아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬, 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 아릴티오;

[0059] 아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬, 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴티오;

[0060] 아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬, 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 알킬 치환 실릴;

[0061] 시아노; 및

[0062] 할로젠,

[0063]  $X^1, X^2, X^3$  및  $X^4$ 는, 각각 독립적으로,  $>O$ ,  $>N-R$ ,  $>CR_2$ ,  $>S$  또는  $>Se$ 이며,

[0064] 상기  $>N-R$  및 상기  $>CR_2$ 의 R은 각각 독립적으로 하기 어느 하나의 기이며:

- [0065] 탄소수 1~6의 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 탄소수 6~12의 아릴;
- [0066] 탄소수 1~6의 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 탄소수 2~15의 헤테로아릴;
- [0067] 탄소수 1~6의 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 탄소수 3~12의 시클로알킬; 또는
- [0068] 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 탄소수 1~6의 알킬,
- [0069] 상기 >N-R 및 상기 >CR<sub>2</sub>의 R은, 연결기 또는 단결합에 의해 a환, b환, c환 및/또는 d환과 결합하고 있어도 되고,
- [0070] R<sup>1</sup> 및 R<sup>2</sup>는, 각각 독립적으로, 수소, 탄소수 1~6의 알킬, 탄소수 6~12의 아릴, 시아노 또는 할로겐이며,
- [0071] Z<sup>1</sup> 및 Z<sup>2</sup>는, 각각 독립적으로 하기 어느 하나의 기이며:
- [0072] 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 아릴;
- [0073] 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴;
- [0074] 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 디아릴아미노;
- [0075] 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 디헤테로아릴아미노;
- [0076] 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 아릴헤테로아릴아미노;
- [0077] 아릴, 헤테로아릴, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 알킬;
- [0078] 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 시클로알킬;
- [0079] 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 아릴옥시;
- [0080] 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴옥시;
- [0081] 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 아릴티오;
- [0082] 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴티오;
- [0083] 시아노; 또는
- [0084] 할로겐,
- [0085] Z<sup>1</sup>은, R<sup>3</sup> 및/또는 R<sup>4</sup>와 결합하여 환을 형성하고 있어도 되고, 이 때, R<sup>3</sup> 및/또는 R<sup>4</sup>는 붕소를 나타내고 있어도 되고, 디아릴아미노의 2개의 아릴이 결합하고 있어도 되고,
- [0086] Z<sup>2</sup>는, R<sup>8</sup> 및/또는 R<sup>9</sup>과 결합하여 환을 형성하고 있어도 되고, 이 때, R<sup>8</sup> 및/또는 R<sup>9</sup>은 붕소를 나타내고 있어도 되고, 디아릴아미노의 2개의 아릴이 결합하고 있어도 되고,
- [0087] 식(2)으로 표시되는 화합물에서의 적어도 1개의 수소는 중수소로 치환되어 있어도 된다.
- [0088] [4] X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup>, X<sup>3</sup> 및 X<sup>4</sup> 중 적어도 1개가 >N-R인 [3]에 기재된 다환 방향족 화합물.
- [0089] [5] >N-R의 R이, 탄소수 1~6의 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 탄소수 6~10의 아릴, 또는 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 탄소수 1~4의 알킬인 [3] 또는 [4]에 기재된 다환 방향족 화합물.
- [0090] [6] R<sup>1</sup> 및 R<sup>2</sup>가 모두 수소인 [3]~[5] 중 어느 하나에 기재된 다환 방향족 화합물.
- [0091] [7] R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>8</sup>, 및 R<sup>9</sup>이 모두 수소인 [3]~[6] 중 어느 하나에 기재된 다환 방향족 화합물.
- [0092] [8] X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup>, X<sup>3</sup> 및 X<sup>4</sup>가 모두 >N-R이며,
- [0093] >N-R의 R이, 탄소수 1~6의 알킬, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 탄소수 6~10의 아릴이며,



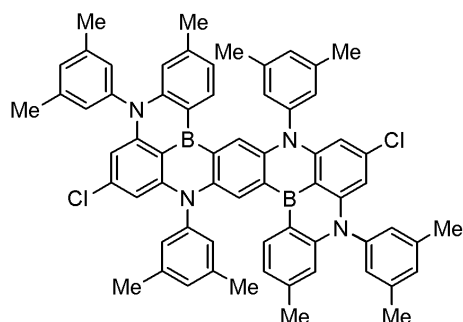
[0094]  $Z^1$  및  $Z^2$ 가, 모두 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 디아릴아미노이며,

[0095]  $Z^1$ 과  $X^1$  혹은  $X^2$  중의  $>N-R$ 의 R이  $R^3$  또는  $R^4$ 인 붕소를 연결기로 하여 a환과 결합하고,

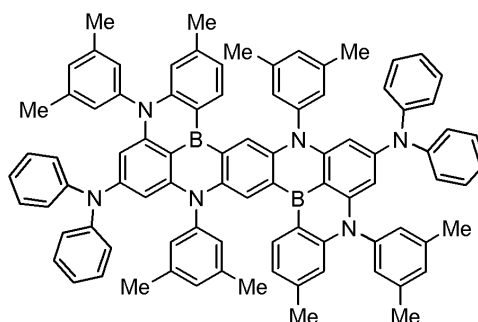
[0096]  $Z^2$ 와  $X^3$  혹은  $X^4$  중의  $>N-R$ 의 R이  $R^8$  또는  $R^9$ 인 붕소를 연결기로 하여 c환과 결합되어 있는 [3]~[6] 중 어느 하나에 기재된 다환 방향족 화합물.

[0097] [9]  $R^5$ ,  $R^6$ ,  $R^7$ ,  $R^{10}$ ,  $R^{11}$  및  $R^{12}$ 가, 각각 독립적으로, 수소, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 탄소수 6~10의 아릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 탄소수 3~12의 시클로알킬, 또는 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 탄소수 1~6의 알킬인 [3]~[8] 중 어느 하나에 기재된 다환 방향족 화합물.

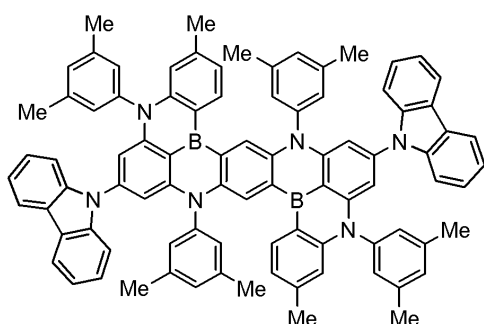
[0098] [10] 하기 식(1-307), 식(1-313), 식(1-321), 또는 식(1-331)으로 표시되는, [1]에 기재된 다환 방향족 화합물:

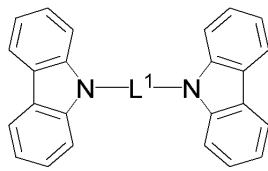


(1-307)

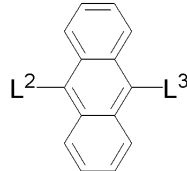


(1-313)

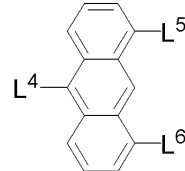




(3)



(4)



(5)

[0107]

[0108]

[0109]

[0110]

[0111]

[0112]

[0113]

[0114]

[0115]

식(3) 중,  $L^1$ 은 탄소수 6~24의 아릴렌이며,

식(4) 중,  $L^2$  및  $L^3$ 는, 각각 독립적으로, 탄소수 6~30의 아릴 또는 탄소수 2~30의 헤테로아릴이며,

식(5) 중,  $L^4$ ,  $L^5$  및  $L^6$ 는, 각각 독립적으로, 탄소수 6~30의 아릴 또는 탄소수 2~30의 헤테로아릴이며,

상기 각 식으로 표시되는 화합물에서의 적어도 1개의 수소는, 탄소수 1~6의 알킬, 시아노, 할로젠 또는 중수소로 치환되어 있어도 된다.

[17] 상기 음극과 상기 발광층 사이에 배치되는 전자수송층 및/또는 전자주입층을 가지고, 상기 전자수송층 및 전자주입층 중 적어도 1개는, 보란 유도체, 피리딘 유도체, 플루오란텐 유도체, BQ계 유도체, 안트라센 유도체, 벤조플루오렌 유도체, 포스핀옥사이드 유도체, 피리미딘 유도체, 아릴니트릴 유도체, 트리아진 유도체, 벤즈이미다졸 유도체, 페난트롤린 유도체, 퀴놀리논계 금속 착체, 티아졸 유도체, 벤조티아졸 유도체, 실롤 유도체 및 아졸린 유도체로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 1개를 함유하는, [15] 또는 [16]에 기재된 유기전계 발광소자.

[18] 상기 전자수송층 및/또는 전자주입층이, 알칼리 금속, 알칼리토류 금속, 희토류 금속, 알칼리 금속의 산화물, 알칼리 금속의 할로겐화물, 알칼리토류 금속의 산화물, 알칼리토류 금속의 할로겐화물, 희토류 금속의 산화물, 희토류 금속의 할로겐화물, 알칼리 금속의 유기착체, 알칼리토류 금속의 유기착체 및 희토류 금속의 유기착체로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 1개를 더 함유하는, [17]에 기재된 유기전계 발광소자.

[19] [15]~[18] 중 어느 하나에 기재된 유기전계 발광소자를 구비한 표시 장치.

[20] [15]~[18] 중 어느 하나에 기재된 유기전계 발광소자를 구비한 조명 장치.

### 발명의 효과

[0116]

본 발명에 의해 신규 다환 방향족 화합물이 제공된다. 본 발명의 화합물에 의해 색순도가 높은 녹색 발광 재료를 제공할 수 있다. 또한, 본 발명의 화합물은 유기전계 발광 소자 등의 유기 디바이스가 재료로서 유용하다.

### 도면의 간단한 설명

[0117]

도 1은 본 실시형태에 따른 유기 EL 소자를 나타내는 개략단면도이다.

도 2는 बैं크를 가지는 기판에 잉크젯법을 사용하여 유기 EL 소자를 제작하는 방법을 설명하는 도면이다.

도 3은 화합물(1-307)의 흡수·형광 스펙트럼이다.

도 4는 화합물(1-313)의 흡수·형광 스펙트럼이다.

도 5는 화합물(1-321)의 흡수·형광 스펙트럼이다.

### 발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0118]

이하에 있어서, 본 발명에 대하여 상세하게 설명한다. 이하에 기재하는 구성요건의 설명은, 대표적인 실시형태나 구체예에 기초하여 행해지는 경우가 있지만, 본 발명은 이러한 실시형태로 한정되는 것은 아니다. 그리고, 본 명세서에 있어서 「~」을 사용하여 표시되는 수치범위는 「~」 전후에 기재되는 수치를 하한값 및 상한값으로서 포함하는 범위를 의미한다. 또한, 본 명세서에 있어서 구조식의 설명에서의 「수소」는 「수소 원자(H)」를 의미한다. 본 명세서에 있어서, 유기전계 발광소자를 유기 EL 소자라고 하는 경우가 있다.

[0119]

본 명세서에 있어서 화학구조나 치환기를 탄소수로 나타내는 경우가 있지만, 화학구조에 치환기가 치환한 경우나, 치환기에 치환기가 더욱 치환한 경우 등에서의 탄소수는, 화학구조나 치환기 각각의 탄소수를 의미하고, 화



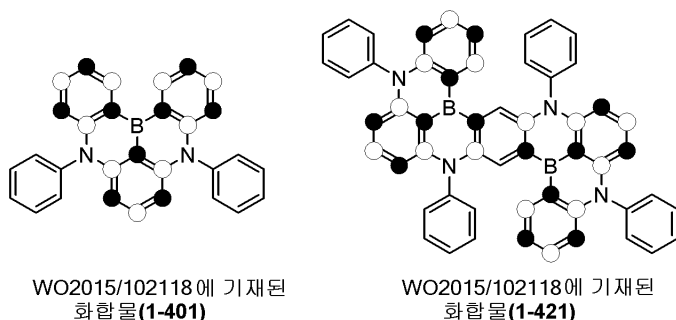
학구조와 치환기의 합계 탄소수나, 치환기와 치환기의 합계 탄소수를 의미하는 것은 아니다. 예를 들면, 「탄소수 X의 치환기 A로 치환된 탄소수 Y의 치환기 B」는, 「탄소수 Y의 치환기 B」에 「탄소수 X의 치환기 A」가 치환하는 것을 의미하고, 탄소수 Y는 치환기 A 및 치환기 B의 합계의 탄소수가 아니다. 또한 예를 들면, 「치환기 A로 치환된 탄소수 Y의 치환기 B」는, 「탄소수 Y의 치환기 B」에 「탄소수 한정(이 없는) 치환기A」가 치환하는 것을 의미하고, 탄소수 Y는 치환기 A 및 치환기 B의 합계의 탄소수가 아니다.

[0120] 1. 식(1)으로 표시되는 다환 방향족 화합물

[0121] 유기 EL 디스플레이사용의 발광 재료로서는, 형광 재료, 인광 재료, 열활성화 지연 형광(TADF) 재료의 3종류가 이용되고 있지만, 형광 재료는, 발광 효율이 낮아, 약 25~62.5 % 정도이다. 한편, 인광 재료와 TADF 재료는, 발광 효율이 100%에 달하는 경우도 있지만, 모두 색순도가 낮은(발광 스펙트럼의 폭이 넓은) 문제가 있다. 디스플레이에서는, 광의 3원색인 적·녹·청색의 발광을 혼합함으로써 다양한 색을 표현하고 있지만, 각각의 색순도가 낮으면, 재현할 수 없는 색이 생기게 되어, 디스플레이의 화질이 크게 저하된다. 이에, 시판 중인 디스플레이에서는, 발광 스펙트럼으로부터 불필요한 색을 광학 필터로 제거함으로써, 색순도를 높이고 나서(스펙트럼 폭을 좁게 하고 나서) 사용하고 있다. 따라서, 원래의 스펙트럼 폭이 넓으면 제거하는 비율이 증가하므로, 발광 효율이 높은 경우라도, 실질적인 효율은 크게 저하된다. 예를 들면, 시판하고 있는 스마트폰의 청색 발광 스펙트럼 반값폭은, 약 20~25 nm 정도이지만, 일반적인 형광 재료의 반값폭은 40~60 nm 정도, 인광 재료는 60~90 nm 정도, TADF 재료는 70~100 nm 정도이다. 형광 재료를 사용한 경우에는 반값폭이 비교적 좁으므로, 불필요한 색을 일부 제거하는 것만으로 충분하지만, 인광 재료나 TADF 재료를 사용한 경우에는 절반 이상 제거할 필요가 있다. 이와 같은 배경으로부터, 발광 효율과 색순도의 양쪽을 겸비한 발광 재료의 개발이 요망되고 있었다.

[0122] 일반적으로 유기 EL 디스플레이사용의 녹색의 발광 재료로서는, 인광 재료가 사용된다. 녹색의 인광 재료는, Ir 등의 중금속 원자를 중앙에 가진 배위 화합물이다. 녹색의 인광 재료의 발광 효율은 100%에 가까우며 매우 고효율이지만, 발광 스펙트럼의 반값폭이 60~90 nm로 매우 폭이 넓은 스펙트럼이며, 유기 EL 디스플레이로 했을 때의 실질적인 효율면에서는 불리하다.

[0123] 이에, 특허문헌 6(국제공개 제2015/102118호)에서는, 유기 EL 재료의 색순도를 비약적으로 향상시키는 새로운 분자 설계를 제안하고 있다. 상기 문헌에 개시된 예를 들면, 화합물(1-401)에서는, 붕소(전자흡인성)과 질소(전자제공성)의 다중 공명 효과를 이용함으로써, 6개의 탄소로 이루어지는 벤젠환 상의 3개의 탄소(흑색원)에 HOMO를, 나머지 3개의 탄소(백색원)에 LUMO를 국재화시키는 것에 성공하고 있다. 이 효율적인 역향간 교차에 의해, 상기 화합물의 발광 효율은 최대 100%에 달한다. 또한, 화합물(1-401)의 붕소와 질소는 HOMO와 LUMO를 국재화시킬뿐만 아니라, 3개의 벤젠환을 축환시킴으로써 견고한 평면 구조를 유지하고, 여기 상태에서의 구조 완화를 억제하는 역할도 담당하고 있고, 결과적으로 흡수 및 발광의 피크 스토크스(St) 시프트가 작고, 색순도가 높은 발광 스펙트럼을 얻는 것에도 성공하고 있다. 그 발광 스펙트럼의 반값폭은 28nm이며, 실용화되어 있는 고색순도의 형광 재료도 능가하는 레벨의 색순도를 나타내고 있다.



[0124]

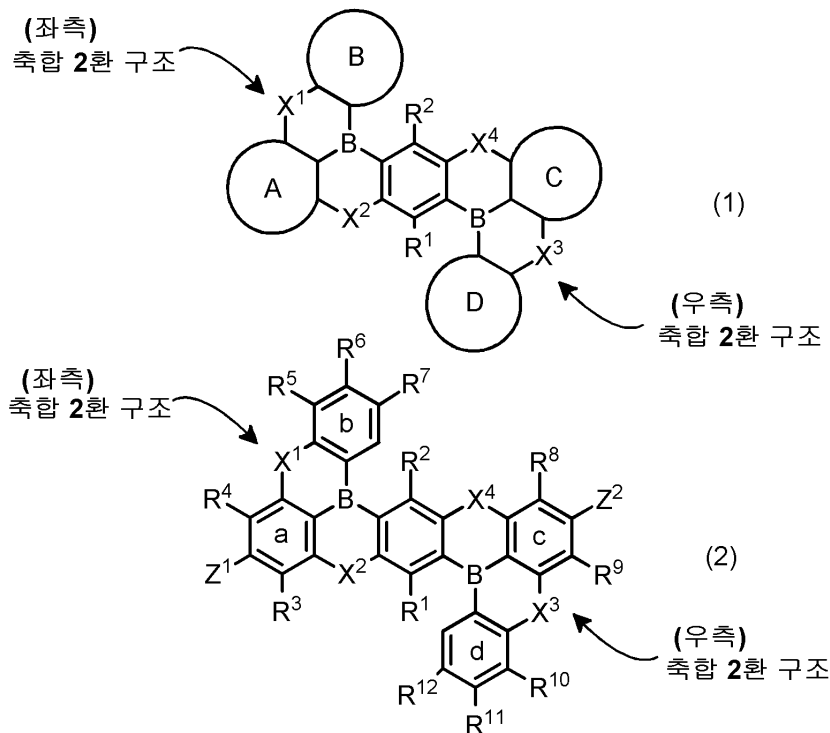
[0125] 한편, 식(1-421)과 같은 2량체 화합물에서는, 높은 평면성으로 인해 분자간 스택킹이 유도되기 때문인지, 발광 소자에서의 효율도 충분히 만족할 수 있을 만큼이 아닌 과제도 생겼다.

[0126] 또한, 특허문헌 6에 있어서는, 발광의 피크 파장은, 개시되어 있는 화합물 모두에 있어서 밝혀져 있는 것은 아니다.

[0127] 이에 본 발명자들은 예의 연구한 결과, 치환기를 도입함으로써, 발광의 피크 파장 조정과, 높은 소자 효율을 실현했다. 구체적으로는, 상기한 2량체 화합물과 동일한 골격에 있어서 특정한 환이 치환기를 가지는 방향환인 식(1)으로 표시되는 다환 방향족 화합물이 색순도가 높은 발광 스펙트럼을 제공하는 것을 발견하였다. 본 발명자

들은 동시에 식(1)으로 표시되는 다환 방향족 화합물이 녹색 발광을 나타내는 것을 발견하였다. 색순도가 높은 발광 스펙트럼은, 치환기의 도입에 의해 분자 전체에서의 동일 평면 상에 존재하는 구조의 비율이 저하되는 것에 의해, 분자간의 스택킹을 저감할 수 있었기 때문에 실현된 것으로 여겨진다. 다만, 본 발명의 다환 방향족 화합물의 효과는, 상기한 원리에 구속되는 것은 아니다.

식(1)으로 표시되는 다환 방향족 화합물은, 바람직하게는, 하기 식(2)으로 표시되는 다환 방향족 화합물이다.



식(1)에서의 A환 및 C환은, 각각 독립적으로, 치환기를 가지는 아릴환 또는 치환기를 가지는 헤테로아릴환이다. 또한, B환 및 D환은, 각각 독립적으로, 치환기를 가지고 있어도 되는 아릴환 또는 치환기를 가지고 있어도 되는 헤테로아릴환이다. A환 및 C환 및 B환 및 D환에서의 치환기는, 치환 또는 무치환의 아릴, 치환 또는 무치환의 헤테로아릴, 치환 또는 무치환의 디아릴아미노(2개의 아릴은 결합하고 있어도 됨), 치환 또는 무치환의 디헤테로아릴아미노, 치환 또는 무치환의 아릴헤테로아릴아미노(아릴과 헤테로아릴을 가지는 아미노), 치환 또는 무치환의 알킬, 치환 또는 무치환의 시클로알킬, 치환 또는 무치환의 알콕시, 치환 또는 무치환의 아릴옥시, 치환 또는 무치환의 헤테로아릴옥시, 치환 또는 무치환의 아릴티오, 치환 또는 무치환의 헤테로아릴티오, 알킬 치환 실릴, 시아노, 또는 할로젠이 바람직하다. 이들 기가 치환기를 가지는 경우의 치환기로서는, 아릴, 헤테로아릴 또는 알킬을 예로 들 수 있다.

또한, A환 및 B환은 「B(붕소)」, 「X<sup>1</sup>」 및 「X<sup>2</sup>」로 구성되는 식(1)의 좌측의 축합 2환 구조와 결합을 공유하는 5원환 또는 6원환을 가지고, C환 및 D환은 「B(붕소)」, 「X<sup>3</sup>」 및 「X<sup>4</sup>」로 구성되는 식(1)의 우측의 축합 2환 구조와 결합을 공유하는 5원환 또는 6원환을 가지는 것이 바람직하다.

여기서, 「축합 2환 구조」는, 식(1)의 좌측 부분에 나타낸, 「B(붕소)」, 「X<sup>1</sup>」 및 「X<sup>2</sup>」를 포함하여 구성되는 2개의 포화 탄화 수소환이 축합한 구조를 의미한다. 또한, 식(1)의 우측 부분의 축합 2환 구조에 대해서도 동일하다. 또한, 「축합 2환 구조와 결합을 공유하는 6원환」은, 예를 들면, 상기 식(2)으로 나타낸 바와 같이 축합 2환 구조에 축합한 a환(벤젠환(6원환))을 의미한다. 또한, 「A환인) 아릴환 또는 헤테로아릴환이 이 6원환을 가지는」이란, 이 6원환만으로 A환이 형성되거나, 또는, 이 6원환을 포함하여 이 6원환에 또 다른 환 등이 축합하여 A환이 형성되는 것을 의미한다. 바꿔 말하면, 여기서 말하는 「6원환을 가지는(A환인) 아릴환 또는 헤테로아릴환」은, A환의 전부 또는 일부를 구성하는 6원환이, 축합 2환 구조에 축합하고 있는 것을 의미한다. 「B환(b환)」, 「C환(c환)」, 「D환(d환)」, 그리고 「5원환」에 대해서도 동일한 설명이 적용된다.

식(1)에서의 A환 및 C환은, 각각 독립적으로, 치환기를 가지는 아릴환 또는 치환기를 가지는 헤테로아릴환이다. 치환기의 수는 아릴환 또는 헤테로아릴환의 종류에 따라 가능한 수이면 되며 특별히 한정되지 않지만, 1개인 것

이 바람직하다. 1개의 치환기는, 그것이 결합하는 환에 재결합하여 환을 더욱 형성하고 있어도 된다. 본 명세서에 있어서는, A환에서의 1개의 치환기를  $Z^1$ , A환에서의 1개의 치환기를  $Z^2$ 라고 하는 경우가 있다.

[0134]

즉, A환은, 1개의 치환기  $Z^1$ 을 가지는 아릴환 또는 1개의 치환기  $Z^1$ 을 가지는 헤테로아릴환이거나, 또는 1개의 치환기  $Z^1$ 을 가지는 아릴환 또는 1개의 치환기  $Z^1$ 을 가지는 헤테로아릴환에서의  $Z^1$ 이 단결합 또는 연결기에 의해  $Z^1$ 이 결합하는 아릴환 또는 헤테로아릴환에 결합한 구조를 가지는 것이 바람직하다. 또한, C환은, 1개의 치환기  $Z^2$ 를 가지는 아릴환 또는 1개의 치환기  $Z^2$ 를 가지는 헤테로아릴환이거나, 또는 1개의 치환기  $Z^2$ 를 가지는 아릴환 또는 1개의 치환기  $Z^2$ 를 가지는 헤테로아릴환에서의  $Z^2$ 가 단결합 또는 연결기에 의해  $Z^2$ 가 결합하는 아릴환 또는 헤테로아릴환에 결합한 구조를 가지는 것이 바람직하다. A환, C환이 모두 어느 하나의 바람직한 태양인 것이 보다 바람직하다. 치환기의 바람직한 결합 위치에 대해서는 후술한다.

[0135]

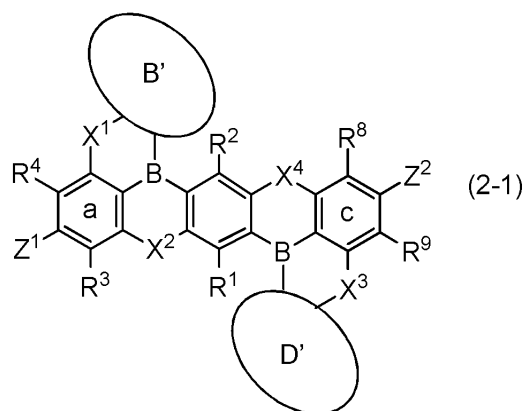
식(1)에서의 A환(또는 B환, C환, D환)은, 식(2)에서의 a환과 그의 치환기  $Z^1$ ,  $R^3$  및  $R^4$ (또는 b환과 그의 치환기  $R^5 \sim R^7$ , c환과 그의 치환기  $Z^2$ ,  $R^8$  및  $R^9$ , d환과 그의 치환기  $R^{10} \sim R^{12}$ )에 대응한다. 즉, 식(2)은, 식(1)의 A~D 환으로서 「6원환을 가지는 A~D 환」이 선택된 식에 대응한다. 그러한 의미에서, 식(2)의 각 환을 소문자 a~d로 표시하였다.

[0136]

식(2)에서의  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$ ,  $R^6$ ,  $R^7$ ,  $R^8$ ,  $R^9$ ,  $R^{10}$ ,  $R^{11}$  및  $R^{12}$ 는, 각각 독립적으로, 수소, 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 디헤테로아릴아미노, 아릴헤테로아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 헤테로아릴옥시, 아릴티오, 헤테로아릴티오, 알킬 치환 실릴, 시아노, 또는 할로겐이다. 이때의 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 디헤테로아릴아미노, 아릴헤테로아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 헤테로아릴옥시, 아릴티오, 헤테로아릴티오 또는 알킬 치환 실릴에서의 적어도 1개의 수소는, 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 시아노, 또는 할로겐으로 치환되어 있어도 된다.

[0137]

식(2)에서는, b환의 치환기  $R^5 \sim R^7$  및/또는 d환의 치환기  $R^{10} \sim R^{12}$  중 인접하는 기끼리 결합하여 b환 및/또는 d환과 함께 아릴환 또는 헤테로아릴환을 형성하고 있어도 되고, 형성된 환에서의 적어도 1개의 수소는 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 디헤테로아릴아미노, 아릴헤테로아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 헤테로아릴옥시, 아릴티오, 헤테로아릴티오, 알킬 치환 실릴, 시아노, 또는 할로겐으로 치환되어 있어도 된다. 이때의 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 디헤테로아릴아미노, 아릴헤테로아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 헤테로아릴옥시, 아릴티오, 헤테로아릴티오에서의 적어도 1개의 수소는 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 시아노, 또는 할로겐으로 치환되어 있어도 된다. 따라서, 식(2)으로 표시되는 화합물은, b환 및 d환에서의 치환기의 상호의 결합 형태에 의해, 하기 식(2-1)에 나타낸 바와 같이, 화합물을 구성하는 환 구조가 변화된다. 식(2-1) 중의 B'환 및 D'환은, 각각 식(1)에서의 B환 및 D환에 대응한다. 또한, 식(2-1) 중의 각 부호의 정의는 식(2)에서의 부호와 동일하다.



[0138]

[0139]

식(2-1) 중의 B'환 및 D'환은, 식(2)에서 설명하면, 치환기  $R^5 \sim R^7$  및  $R^{10} \sim R^{12}$  중 인접하는 기끼리 결합하여, 각각 b환 및 d환과 함께 형성한 아릴환 또는 헤테로아릴환을 나타낸다(b환 또는 d환에 다른 환 구조가 축합하여 생긴 축합환이라고도 할 수 있다). 또한, 식(2-1)로부터 알 수 있는 바와 같이, b환의  $R^7$ 과 d환의  $R^{12}$ 는 「인접하는 기끼리」에는 해당하지 않고, 이들이 결합하지는 않는다. 즉, 「인접하는 기」는 동일 환 상에서 인접하는

기를 의미한다. 그리고,  $Z^1$ 은 연결기 또는 단결합으로 A환(a환)과 결합해도 되고, 또한,  $Z^2$ 는 연결기 또는 단결합으로 C환(c환)과 결합해도 되고, 결합한 경우에는 상기 B'환 및 D'환과 동일하게 환 구조가 변화되게 된다.

[0140] 예를 들면, b환(또는 d환)인 벤젠환에 대하여, 벤젠환, 인단환(디메틸 치환체 등을 포함함), 인돌환, 피롤환, 벤조퓨란환, 벤조티오펜환, 시클로펜탄환, 시클로헥산환이 축합하여 형성되는 B'환(또는 D'환)을 가지는 화합물이며, 형성되어 생긴 축합환 B'(또는 축합환 D')은 각각, 나프탈렌환, 플루오렌환(디메틸 치환체 등을 포함함), 카르바졸환, 인돌환, 디벤조퓨란환, 디벤조티오펜환, 디하이드로인덴환, 테트라하이드로나프탈렌환이 된다.

[0141] 식(1) 및 식(2)에서의  $X^1$ ,  $X^2$ ,  $X^3$  및  $X^4$ 는, 각각 독립적으로, >O, >N-R, >CR<sub>2</sub>, >S 또는 >Se이다. 상기 >N-R의 R은, 치환되어 있어도 되는 아릴, 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴, 치환되어 있어도 되는 시클로알킬 또는 치환되어 있어도 되는 알킬이며, 또한 상기 >N-R의 R은 연결기 또는 단결합에 의해 상기 A환, B환, C환 및/또는 D환과 결합하고 있어도 된다. 상기 >CR<sub>2</sub>의 R은, 수소, 치환되어 있어도 되는 아릴, 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴, 치환되어 있어도 되는 시클로알킬 또는 치환되어 있어도 되는 알킬이며, 또한 상기 >CR<sub>2</sub>의 R은 연결기 또는 단결합에 의해 상기 A환, B환, C환 및/또는 D환과 결합하고 있어도 된다.

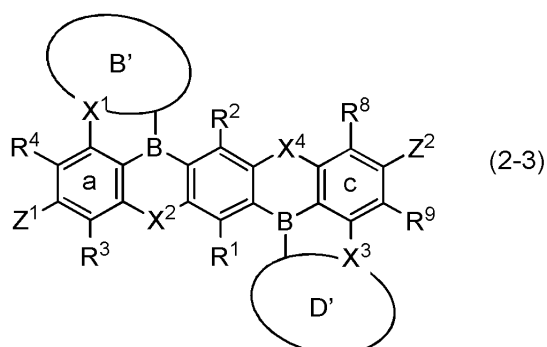
[0142]  $X^1$ ,  $X^2$ ,  $X^3$  및  $X^4$ 는, 각각 독립적으로, >O 또는 >N-R인 것이 바람직하고, 적어도 1개가 >N-R이며, 그 외가 >O인 것이 보다 바람직하고, 모두 >N-R인 것이 더욱 바람직하다.

[0143]  $X^1$ ,  $X^2$ ,  $X^3$  및  $X^4$ 인 >N-R에서의 R은, 치환되어 있어도 되는 아릴 또는 치환되어 있어도 되는 시클로알킬인 것이 바람직하고, 치환되어 있어도 되는 페닐인 것이 보다 바람직하고, 탄소수 1~6의 알킬로 치환되어 있어도 되는 페닐인 것이 더욱 바람직하고, 무치환의 페닐 또는 적어도 하나의 메타 위치 또는 적어도 하나의 오르토 위치가 탄소수 1~4의 알킬로 치환된 페닐인 것이 더 한층 바람직하고, 무치환의 페닐 또는 2개의 메타 위치가 메틸로 치환된 페닐인 것이 특히 바람직하다.

[0144] >N-R의 R 및 >CR<sub>2</sub>의 R이 각각 A환, B환, C환 및/또는 D환과 결합할 때의 연결기로서는, -O-, -S-, -C(-R)<sub>2</sub>-, 또는 후술하는 봉소가 바람직하다. 그리고, 상기 「-C(-R)<sub>2</sub>-」의 R은 수소 또는 알킬이다. 이 알킬로서는 후술하는 알킬의 예를 들 수 있다. 특히 탄소수 1~6, 나아가서는 탄소수 1~4의 알킬(예를 들면, 메틸, 에틸 등)이 바람직하다.

[0145] 여기서, 식(1)에서의 「>N-R의 R은 연결기 또는 단결합에 의해 상기 A환, B환, C환 및/또는 D환과 결합되어 있는」의 규정은, 식(2)에서는 「>N-R의 R은, 연결기 또는 단결합에 의해 상기 a환, b환, c환 및/또는 d환과 결합되어 있는」의 규정에 대응한다.

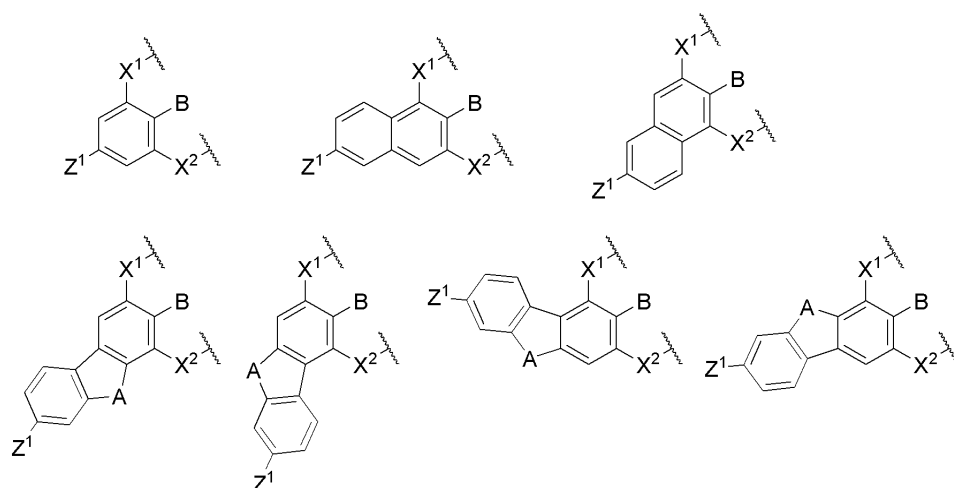
[0146] 이 규정은, 하기 식(2-3)로 표시되는,  $X^1$ 이나  $X^3$ 가 축합환 B' 및 축합환 D'에 받아들여진 환 구조를 가지는 화합물로 표현할 수 있다. 즉, 예를 들면, 식(2)에서의 b환(또는 d환)인 벤젠환에 대하여  $X^1$ (또는  $X^3$ )을 받아들여도 록 하여 다른 환이 축합하여 형성되는 B'환(또는 D'환)을 가지는 화합물이다. 형성되어 생긴 축합환 B'(또는 축합환 D')는, 예를 들면, 카르바졸환, 페녹사진환, 페노티아진환 또는 아크리딘환 등이다. 이들 환은 치환기를 가지고 있어도 된다. 이 때의 치환기로서는, 예를 들면, 탄소수 1~6의 알킬, 탄소수 3~12의 시클로알킬, 탄소수 6~12의 아릴, 탄소수 2~15의 헤테로아릴, 디아릴아미노(단 아릴은 탄소수 6~12의 아릴), 시아노, 또는 할로젠이 있다. 그리고, 식(2-3) 중의 각 부호의 정의는 식(2)에서의 부호와 동일하다.



[0147]

[0148] 식(2-3)에서는  $X^1$ 이나  $X^3$ 가 축합환 B' 및 축합환 D'에 받아들여진 환 구조를 나타냈으나,  $X^2$ 나  $X^4$ 로서의 >N-R의 R도 동일하게 a환이나 c환과 결합할 수 있고, 결합한 경우에는 상기 B'환 및 D'환과 동일하게 환 구조가 변화되게 된다.

[0149] 또한, 식(2)에서의 치환기  $Z^1$  및  $Z^2$ 의 치환 위치는, a환 및 c환에서의 붕소가 결합하는 위치의 파라 위치로 한정되어 있다. 식(1)의 A환 및 C환은 벤젠환으로 한정되지 않고, 다양한 아릴환이나 헤테로아릴환이며, 이들 환으로의 치환기의 치환 위치는 한정되지 않지만, 식(2)과 동일하게 붕소가 결합하는 위치로부터 비교적 떨어진 위치로 치환하는 것이 바람직하고, 가장 떨어진 위치로 치환하는 것이 보다 바람직하다. 예를 들면, A환이 나프탈렌환이나 플루오렌환 등의 경우에 대하여, 치환기( $Z^1$ 으로서 나타냄)의 바람직한 치환 위치를 이하에 예시한다. 각 구조 중의 부호는 식(2)에서의 부호와 동일한 정의이다. 또한, 하기 식에 있어서, A는, >CR<sub>2</sub>, >NR<sub>2</sub>, >O 또는 >S이며, R은 수소, 알킬(바람직하게는 탄소수 1~4의 알킬) 또는 페닐이다.



[0150]

[0151] 식(1) 또는 식(2)에서의 R<sup>1</sup> 및 R<sup>2</sup>는, 각각 독립적으로, 수소, 탄소수 1~6의 알킬, 탄소수 6~12의 아릴, 탄소수 2~15의 헤테로아릴, 디아릴아미노(단 아릴은 탄소수 6~12의 아릴), 시아노, 또는 할로젠이다. R<sup>1</sup> 및 R<sup>2</sup>는, 수소, 메틸, 시아노, 또는 할로젠인 것이 바람직하고, 수소, 시아노, 또는 할로젠인 것이 보다 바람직하고, 수소인 것이 더욱 바람직하다.

[0152] 식(1)의 A환 및 C환에서의 아릴환 또는 헤테로아릴환으로의 치환기로서는, 치환되어 있어도 되는 아릴, 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴, 치환되어 있어도 되는 디아릴아미노(2개의 아릴은, 서로 결합하고 있어도 됨), 치환되어 있어도 되는 디헤테로아릴아미노, 치환되어 있어도 되는 아릴헤테로아릴아미노, 치환되어 있어도 되는 알킬, 치환되어 있어도 되는 시클로알킬, 치환되어 있어도 되는 아릴옥시, 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴옥시, 치환되어 있어도 되는 아릴티오, 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴티오, 시아노, 또는 할로젠이 바람직하다. 식(1)의 A환 및 C환에서의 아릴환 또는 헤테로아릴환으로의 치환기로서는, 하기의 치환기가 더욱 바람직하다.

[0153] 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로젠으로 치환되어 있어도 되는 아릴;

[0154] 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로젠으로 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴;

[0155] 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로젠으로 치환되어 있어도 되는 디아릴아미노(2개의 아릴은, 서로 결합하고 있어도 됨);

[0156] 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로젠으로 치환되어 있어도 되는 디헤테로아릴아미노;

[0157] 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로젠으로 치환되어 있어도 되는 아릴헤테로아릴아미노;



- [0158] 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 알킬;
- [0159] 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 시클로알킬;
- [0160] 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 아릴옥시;
- [0161] 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴옥시;
- [0162] 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 아릴티오;
- [0163] 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴티오;
- [0164] 시아노; 또는
- [0165] 할로겐.
- [0166] 식(2)에서의  $Z^1$  및  $Z^2$ 는, 각각 독립적으로, 하기 어느 하나의 기이다.
- [0167] 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 아릴;
- [0168] 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴;
- [0169] 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 디아릴아미노(2개의 아릴은, 서로 결합하고 있어도 됨);
- [0170] 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 디헤테로아릴아미노;
- [0171] 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 아릴헤테로아릴아미노;
- [0172] 아릴, 헤테로아릴, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 알킬;
- [0173] 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 시클로알킬;
- [0174] 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 아릴옥시;
- [0175] 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴옥시;
- [0176] 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 아릴티오;
- [0177] 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 알킬 치환 실릴, 시아노 혹은 할로겐으로 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴티오;
- [0178] 시아노; 또는
- [0179] 할로겐.
- [0180]  $Z^1$  또는  $Z^2$ 인 디아릴아미노에서의 2개의 아릴은, 서로 결합하고 있어도 된다. 이 때, 디아릴아미노에서의 2개의 아릴은, 예를 들면,  $>SiR_2$ ,  $>CR_2$ (R은 수소, 알킬(바람직하게는 탄소수 1~4의 알킬)을 연결기로 하여 결합하고 있으면 된다.
- [0181] 식(2)에 있어서,  $Z^1$ 은,  $R^3$  및/또는  $R^4$ 와 결합하여 환을 형성하고 있어도 되고, 이 때,  $R^3$  및/또는  $R^4$ 는 붕소를 나타내고 있어도 된다. 또한,  $Z^2$ 는,  $R^8$  및/또는  $R^9$ 과 결합하여 환을 형성하고 있어도 되고, 이 때,  $R^8$  및/또는  $R^9$ 은 붕소를 나타내고 있어도 된다.
- [0182] 식(1) 또는 식(2)의  $Z^1$  및  $Z^2$ 에서의, 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 디헤테로아릴아미노, 아릴헤테로아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 아릴옥시, 헤테로아릴옥시, 아릴티오, 헤테로아릴티오, 시아노, 또는 할로겐, 나아가서

는 이들로의 치환기로서의 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 알킬 치환 실릴, 시아노, 또는 할로겐에 대해서는, 후술하는 「아릴」, 「헤테로아릴」, 「디아릴아미노」, 「디헤테로아릴아미노」, 「아릴헤테로아릴아미노」, 「아릴옥시」, 「헤테로아릴옥시」, 「아릴티오」, 「헤테로아릴티오」, 「알킬」, 「시클로알킬」, 「알콕시」, 「알킬 치환 실릴」, 또는 「할로겐」의 설명을 참조할 수 있다.  $Z^1$  및  $Z^2$ 는, 모두, 디아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 아릴옥시, N-카르바졸릴 등의 헤테로아릴, 또는 할로겐인 것이 바람직하다.  $Z^1$  및  $Z^2$ 는, 동일해도 되고 상이해도 되지만, 합성이 용이한 관점에서 동일한 것이 바람직하다.

[0183] 식(1)의 A환, B환, C환 및 D환인 「아릴환」으로서는, 예를 들면, 탄소수 6~30의 아릴환이 있고, 탄소수 6~16의 아릴환이 바람직하고, 탄소수 6~12의 아릴환이 보다 바람직하고, 탄소수 6~10의 아릴환이 특히 바람직하다. 그리고, 이 「아릴환」은, 식(2)에서 규정된  $R^5 \sim R^7$  및  $R^{10} \sim R^{12}$  중 인접하는 기끼리 결합하여 b환 및/또는 d환과 함께 형성된 아릴환」에 대응하고, 또한 b환(또는 d환)이 이미 탄소수 6의 벤젠환으로 구성되어 있으므로, 여기에 5원환이 축합한 축합환의 합계 탄소수 9가 하환의 탄소수가 된다. 또한,  $Z^1$ 이 연결기 또는 단결합으로 A환(a환)과 결합하여 형성된 아릴환이나,  $Z^2$ 가 연결기 또는 단결합으로 C환(c환)과 결합하여 형성된 아릴환에 대해서도 동일하다.

[0184] 구체적 「아릴환」으로서는, 단환계인 벤젠환, 2환계인 비페닐환, 축합 2환계인 나프탈렌환, 3환계인 터페닐환(m-터페닐, o-터페닐, p-터페닐), 축합 3환계인, 아세나프틸렌환, 플루오렌환, 페날렌환, 페난트렌환, 축합 4환계인 트리페닐렌환, 피렌환, 나프타센환, 축합 5환계인 페릴렌환, 펜타센환 등을 예로 들 수 있다.

[0185] 식(1)의 A환, B환, C환 및 D환인 「헤테로아릴환」으로서는, 예를 들면, 탄소수 2~30의 헤테로아릴환이 있고, 탄소수 2~25의 헤테로아릴환이 바람직하고, 탄소수 2~20의 헤테로아릴환이 보다 바람직하고, 탄소수 2~15의 헤테로아릴환이 더욱 바람직하고, 탄소수 2~10의 헤테로아릴환이 특히 바람직하다. 또한, 「헤테로아릴환」으로서는, 예를 들면, 환 구성 원자로서 탄소 이외에 산소, 유황 및 질소로부터 선택되는 헤테로 원자를 1 내지 5개 함유하는 복소환 등이 있다. 그리고, 이 「헤테로아릴환」은, 식(2)에서 규정된  $R^5 \sim R^7$  및  $R^{10} \sim R^{12}$  중 인접하는 기끼리 결합하여 b환 및/또는 d환과 함께 형성된 헤테로아릴환」에 대응하고, 또한 b환(또는 d환)이 이미 탄소수 6의 벤젠환으로 구성되어 있으므로, 여기에 5원환이 축합한 축합환의 합계 탄소수 6이 하환의 탄소수가 된다. 또한,  $Z^1$ 이 연결기 또는 단결합으로 A환(a환)과 결합하여 형성된 헤테로아릴환이나  $Z^2$ 가 연결기 또는 단결합으로 C환(c환)과 결합하여 형성된 헤테로아릴환에 대해서도 동일하다.

[0186] 구체적 「헤테로아릴환」으로서는, 예를 들면, 피롤환, 옥사졸환, 이소옥사졸환, 티아졸환, 이소티아졸환, 이미다졸환, 옥사디아졸환, 티아디아졸환, 트리아졸환, 테트라졸환, 피라졸환, 피리딘환, 피리미딘환, 피리다진환, 피라진환, 트리아진환, 인돌환, 이소인돌환, 1H-인다졸환, 벤즈이미다졸환, 벤즈옥사졸환, 벤조티아졸환, 1H-벤조트리아졸환, 퀴놀린환, 이소퀴놀린환, 신놀린환, 퀴나졸린환, 퀴녹살린환, 프탈라진환, 나프티리딘환, 퓨린환, 프테리딘환, 카르바졸환, 아크리딘환, 페녹사티인환, 페녹사진환, 페노티아진환, 페나진환, 인돌리진환, 퓨란환, 벤조퓨란환, 이소벤조퓨란환, 디벤조퓨란환, 티오펜환, 벤조티오펜환, 디벤조티오펜환, 퓨라잔환, 티안트렌환 등이 있다.

[0187] 상기 「아릴환」 또는 「헤테로아릴환」에서의 적어도 1개의 수소는, 제1 치환기인, 치환 또는 무치환의 「아릴」, 치환 또는 무치환의 「헤테로아릴」, 치환 또는 무치환의 「디아릴아미노」, 치환 또는 무치환의 「디헤테로아릴아미노」, 치환 또는 무치환의 「아릴헤테로아릴아미노」, 치환 또는 무치환의 「알킬」, 치환 또는 무치환의 「시클로알킬」, 치환 또는 무치환의 「알콕시」, 치환 또는 무치환의 「아릴옥시」, 치환 또는 무치환의 「헤테로아릴옥시」, 치환 또는 무치환의 「아릴티오」, 치환 또는 무치환의 「헤테로아릴티오」, 알킬 치환 실릴, 시아노, 또는 할로겐으로 치환되어 있어도 되고, 특히, A환, C환에서의 「아릴환」 또는 「헤테로아릴환」은 상기한 것 중 어느 하나에 의해 치환되어 있다. 이 제1 치환기로서의 「아릴」, 「헤테로아릴」, 「디아릴아미노」의 아릴, 「디헤테로아릴아미노」의 헤테로아릴, 「아릴헤테로아릴아미노」의 아릴과 헤테로아릴, 「아릴옥시」의 아릴, 「헤테로아릴옥시」의 헤테로아릴, 「아릴티오」의 아릴, 「헤테로아릴티오」의 헤테로아릴로서는 전술한 「아릴환」 또는 「헤테로아릴환」의 1가의 기를 예로 들 수 있다.

[0188] 구체적 「아릴」로서는, 단환계인 페닐, 2환계인 비페닐릴, 축합 2환계인 나프틸(1-나프틸 또는 2-나프틸), 3환계인 터페닐릴(m-터페닐릴, o-터페닐릴 또는 p-터페닐릴), 축합 3환계인, 아세나프틸레닐, 플루오레닐, 페날레닐, 페난트레닐, 축합 4환계인 트리페닐레닐, 피레닐, 나프타세닐, 축합 5환계인 페릴레닐, 펜타세닐 등을 예

로 들 수 있다.

- [0189] 「헤테로아릴」(제1 치환기)로서는, 예를 들면, 탄소수 2~30의 헤테로아릴이 있고, 탄소수 2~25의 헤테로아릴이 바람직하고, 탄소수 2~20의 헤테로아릴이 보다 바람직하고, 탄소수 2~15의 헤테로아릴이 더욱 바람직하고, 탄소수 2~10의 헤테로아릴이 특히 바람직하다. 또한, 「헤테로아릴」로서는, 예를 들면, 환 구성 원자로서 탄소 이외에 산소, 유황 및 질소로부터 선택되는 헤테로 원자를 1 내지 5 개 함유하는 복소환 등이 있다.
- [0190] 구체적인 「헤테로아릴」로서는, 예를 들면, 피롤릴, 옥사졸릴, 이소옥사졸릴, 티아졸릴, 이소티아졸릴, 이미다졸릴, 옥사디아졸릴, 티아디아졸릴, 트리아졸릴, 테트라졸릴, 피라졸릴, 피리디닐, 피리미디닐, 피리다지닐, 피라지닐, 트리아지닐, 인돌릴, 이소인돌릴, 1H-인다졸릴, 벤즈이미다졸릴, 벤즈옥사졸릴, 벤조티아졸릴, 1H-벤조트리아졸릴, 퀴놀리닐, 이소퀴놀리닐, 신놀릴, 퀴나졸리닐, 퀴녹살리닐, 프탈라지닐, 나프티리디닐, 퓨리닐, 프테리디닐, 카르바졸릴, 아크리디닐, 페녹사티이닐, 페녹사지닐, 페노티아지닐, 페나지닐, 인돌리지닐, 퓨라닐, 벤조퓨라닐, 이소벤조퓨라닐, 디벤조퓨라닐, 나프토벤조퓨라닐, 티에닐, 벤조티에닐, 이소벤조티에닐, 디벤조티에닐, 나프토벤조티에닐, 퓨라자닐, 티안트레닐 등이 있다.
- [0191] 또한 제1 치환기로서의 「알킬」로서는, 직쇄 및 분지쇄 중 어느 것이라도 되고, 예를 들면, 탄소수 1~24의 직쇄 알킬 또는 탄소수 3~24의 분지쇄 알킬이 있다. 탄소수 1~18의 알킬(탄소수 3~18의 분지쇄 알킬)이 바람직하고, 탄소수 1~12의 알킬(탄소수 3~12의 분지쇄 알킬)이 보다 바람직하고, 탄소수 1~6의 알킬(탄소수 3~6의 분지쇄 알킬)이 더욱 바람직하고, 탄소수 1~4의 알킬(탄소수 3~4의 분지쇄 알킬)이 특히 바람직하다.
- [0192] 구체적인 알킬로서는, 메틸, 에틸, n-프로필, 이소프로필, n-부틸, 이소부틸, sec-부틸, tert-부틸, n-펜틸, 이소펜틸, 네오펜틸, tert-펜틸, n-헥실, 1-메틸펜틸, 4-메틸-2-펜틸, 3,3-디메틸부틸, 2-에틸부틸, n-헵틸, 1-메틸헥실, n-옥틸, tert-옥틸, 1-메틸헵틸, 2-에틸헥실, 2-프로필헵틸, n-노닐, 2,2-디메틸헵틸, 2,6-디메틸-4-헵틸, 3,5,5-트리메틸헥실, n-데실, n-운데실, 1-메틸데실, n-도데실, n-트리데실, 1-헥실헵틸, n-테트라데실, n-펜타데실, n-헥사데실, n-헵타데실, n-옥타데실, n-에이코실 등을 예로 들 수 있다.
- [0193] 또한, 예를 들면, 1-에틸-1-메틸프로필, 1,1-디에틸프로필, 1,1-디메틸부틸, 1-에틸-1-메틸부틸, 1,1,4-트리메틸펜틸, 1,1,2-트리메틸프로필, 1,1-디메틸옥틸, 1,1-디메틸펜틸, 1,1-디메틸헵틸, 1,1,5-트리메틸헥실, 1-에틸-1-메틸헥실, 1-에틸-1,3-디메틸부틸, 1,1,2,2-테트라메틸프로필, 1-부틸-1-메틸펜틸, 1,1-디에틸부틸, 1-에틸-1-메틸펜틸, 1,1,3-트리메틸부틸, 1-프로필-1-메틸펜틸, 1,1,2-트리메틸프로필, 1-에틸-1,2,2-트리메틸프로필, 1-프로필-1-메틸부틸, 1,1-디메틸헥실 등도 있다.
- [0194] 제1 치환기로서의 「시클로알킬」로서는, 예를 들면, 탄소수 3~12의 시클로알킬이 있다. 바람직한 시클로알킬은, 탄소수 3~10의 시클로알킬이다. 보다 바람직한 시클로알킬은, 탄소수 3~8의 시클로알킬이다. 더욱 바람직한 시클로알킬은, 탄소수 3~6의 시클로알킬이다.
- [0195] 구체적인 시클로알킬로서는, 시클로프로필, 시클로부틸, 시클로펜틸, 시클로헥실, 시클로헵틸, 시클로옥틸, 시클로노닐, 시클로데실, 및 이들의 탄소수 1~5의 알킬(특히 메틸) 치환체나, 노르보르네닐, 비시클로[1.0.1]부틸, 비시클로[1.1.1]펜틸, 비시클로[2.0.1]헵틸, 비시클로[1.2.1]헥실, 비시클로[3.0.1]헥실, 비시클로[2.1.2]헵틸, 비시클로[2.2.2]옥틸, 아다만틸, 디아만틸, 데카하이드로나프탈레닐, 데카하이드로아줄레닐 등을 예로 들 수 있다.
- [0196] 제1 치환기로서의 「알콕시」로서는, 예를 들면, 탄소수 1~24의 직쇄 또는 탄소수 3~24의 분지쇄의 알콕시가 있다. 탄소수 1~18의 알콕시(탄소수 3~18의 분지쇄의 알콕시)가 바람직하고, 탄소수 1~12의 알콕시(탄소수 3~12의 분지쇄의 알콕시)가 보다 바람직하고, 탄소수 1~6의 알콕시(탄소수 3~6의 분지쇄의 알콕시)가 더욱 바람직하고, 탄소수 1~4의 알콕시(탄소수 3~4의 분지쇄의 알콕시)가 특히 바람직하다.
- [0197] 구체적인 알콕시로서는, 메톡시, 에톡시, 프로폭시, 이소프로폭시, 부톡시, 이소부톡시, sec-부톡시, tert-부톡시, 펜틸옥시, 헥실옥시, 헵틸옥시, 옥틸옥시 등을 예로 들 수 있다.
- [0198] 제1 치환기로서의 「알킬 치환 실릴」로서는, 트리알킬실릴이 바람직하다. 치환하는 알킬에 대해서는 전술한 제1 치환기로서의 「알킬」의 설명을 참조할 수 있다. 치환하기에 바람직한 알킬은, 탄소수 1~5의 알킬이며, 구체적으로는 메틸, 에틸, 프로필, i-프로필, 부틸, sec-부틸, tert-부틸, tert-아밀 등을 예로 들 수 있다.
- [0199] 구체적인 트리알킬실릴로서는, 트리메틸실릴, 트리에틸실릴, 트리프로필실릴, 트리i-프로필실릴, 트리부틸실릴, 트리sec-부틸실릴, 트리tert-부틸실릴, 트리tert-아밀실릴, 에틸디메틸실릴, 프로필디메틸실릴, i-프로필디메틸실릴, 부틸디메틸실릴, sec-부틸디메틸실릴, tert-부틸디메틸실릴, tert-아밀디메틸실릴, 메틸디에틸실릴, 프로



필디에틸실릴, i-프로필디에틸실릴, 부틸디에틸실릴, sec-부틸디에틸실릴, tert-부틸디에틸실릴, tert-아밀디에틸실릴, 메틸디프로필실릴, 에틸디프로필실릴, 부틸디프로필실릴, sec-부틸디프로필실릴, tert-부틸디프로필실릴, tert-아밀디프로필실릴, 메틸디i-프로필실릴, 에틸디i-프로필실릴, 부틸디i-프로필실릴, sec-부틸디i-프로필실릴, tert-부틸디i-프로필실릴, tert-아밀디i-프로필실릴 등을 예로 들 수 있다.

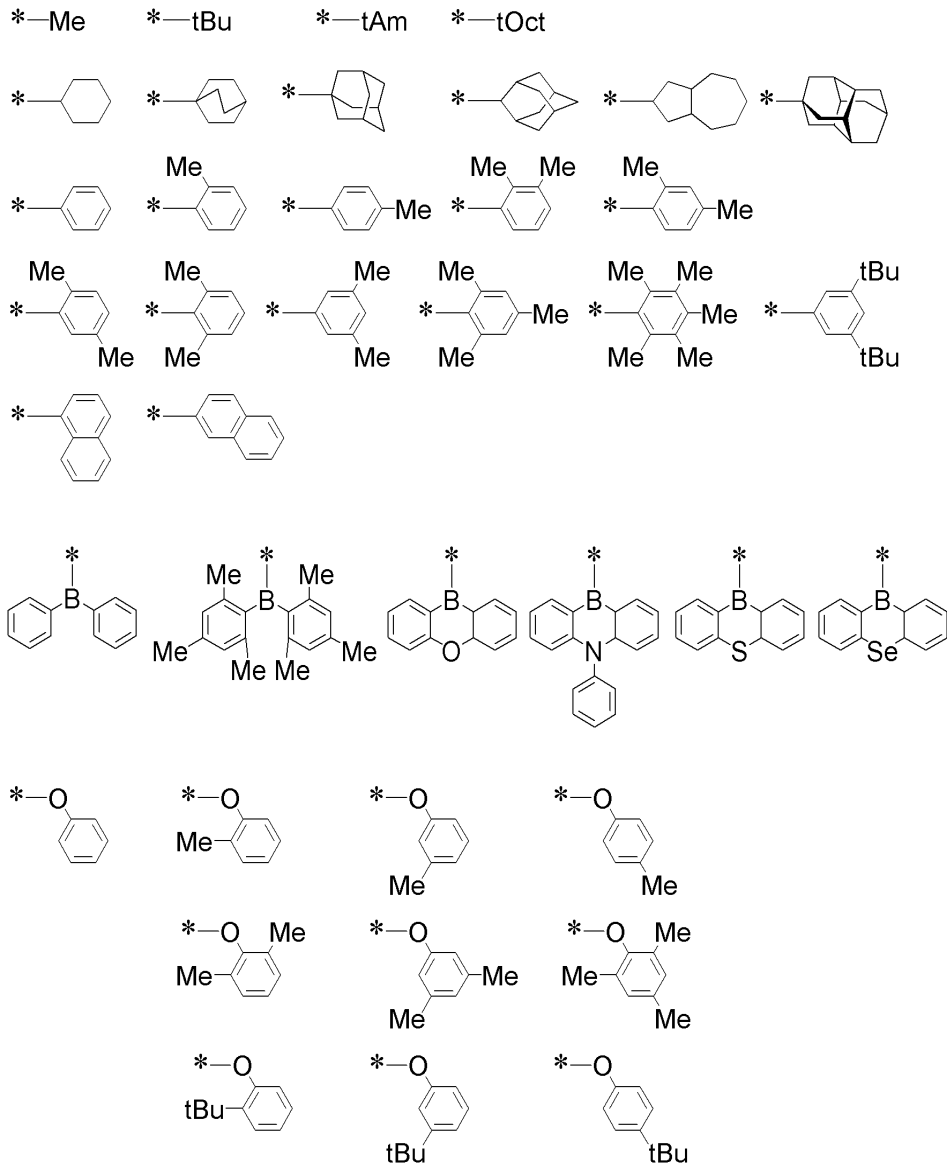
[0200] 제1 치환기로서의 「할로젠」으로서는, 불소(F), 염소(Cl), 브롬(Br), 요오드(I)를 예로 들 수 있다. 바람직하게는 불소, 염소 또는 브롬, 보다 바람직하게는 염소이다.

[0201] 제1 치환기인, 치환 또는 무치환의 「아릴」, 치환 또는 무치환의 「헤테로아릴」, 치환 또는 무치환의 「디아릴아미노」, 치환 또는 무치환의 「디헤테로아릴아미노」, 치환 또는 무치환의 「아릴헤테로아릴아미노」, 치환 또는 무치환의 「알킬」, 치환 또는 무치환의 「시클로알킬」, 치환 또는 무치환의 「알콕시」, 치환 또는 무치환의 「아릴옥시」, 치환 또는 무치환의 「헤테로아릴옥시」, 치환 또는 무치환의 「아릴티오」, 치환 또는 무치환의 「헤테로아릴티오」는, 치환 또는 무치환으로 설명되고 있는 바와 같이, 이들에서의 적어도 1개의 수소가 제2 치환기로 치환되어 있어도 된다. 이 제2 치환기로서는, 예를 들면, 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 시아노, 또는 할로젠이 있고, 이들의 구체예는, 전술한 「아릴환」 혹은 「헤테로아릴환」의 1가의 기, 또한 제1 치환기로서의 「알킬」, 「할로젠」의 설명을 참조할 수 있다. 또한, 제2 치환기로서의 아릴이나 헤테로아릴에는, 이들에서의 적어도 1개의 수소가 페닐 등의 아릴(구체예는 전술한 기), 메틸 등의 알킬(구체예는 전술한 기), 시아노, 또는 할로젠으로 치환된 기도 제2 치환기로서의 아릴이나 헤테로아릴에 포함된다. 그 일례로서는, 제2 치환기가 카르바졸릴기인 경우에는, 9번 위치에서의 적어도 1개의 수소가 페닐 등의 아릴이나 메틸 등의 알킬로 치환된 카르바졸릴기도 제2 치환기로서의 헤테로아릴에 포함된다.

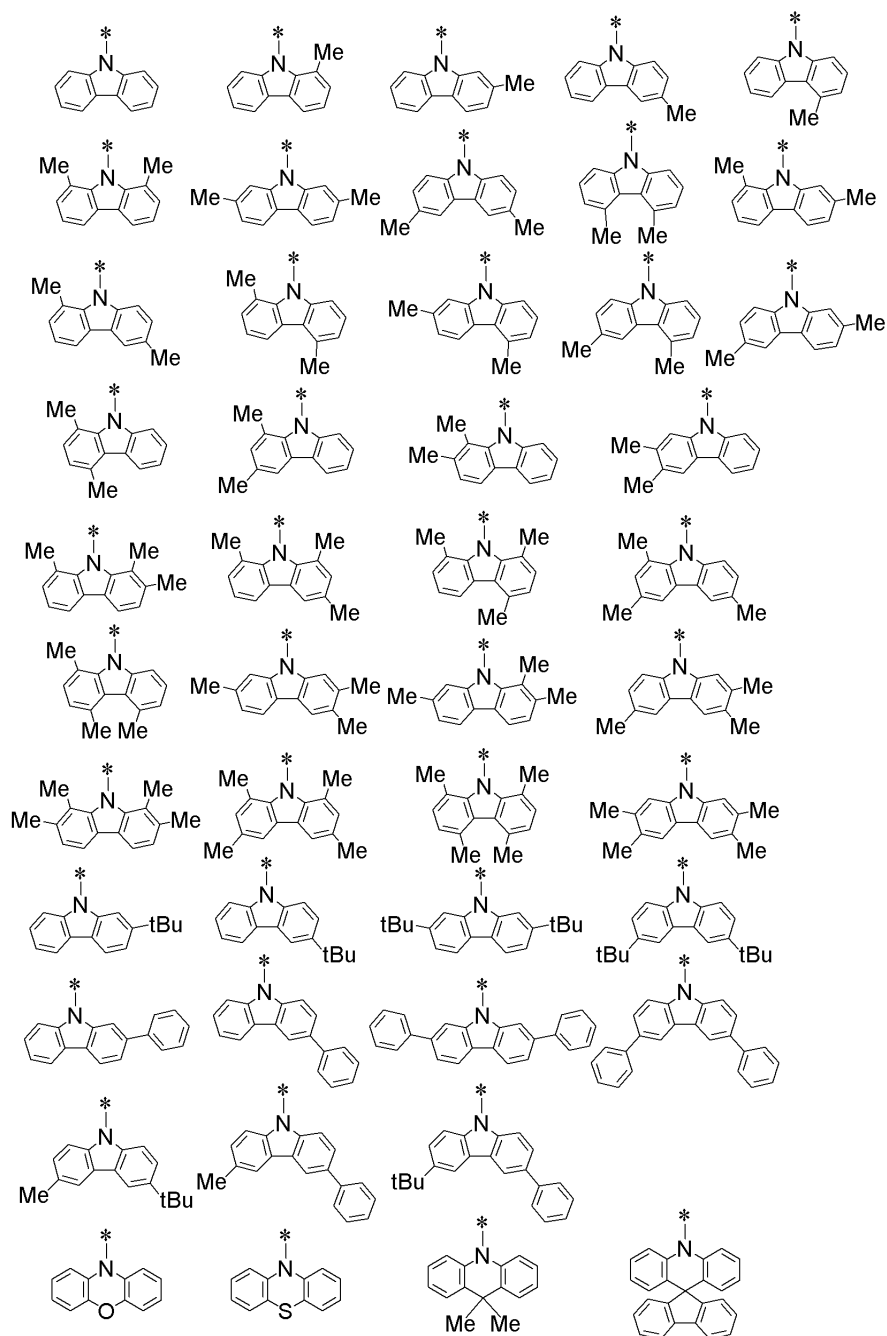
[0202] 식(2)의  $R^3 \sim R^{12}$ 에서의, 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노의 아릴, 디헤테로아릴아미노의 헤테로아릴, 아릴헤테로아릴아미노의 아릴과 헤테로아릴, 아릴옥시의 아릴, 헤테로아릴옥시의 헤테로아릴, 아릴티오의 아릴, 헤테로아릴티오의 헤테로아릴로서는, 식(1)에서 설명한 「아릴환」 또는 「헤테로아릴환」의 1가의 기를 예로 들 수 있다. 또한,  $R^3 \sim R^{12}$ 에서의 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 알킬 치환 실릴, 또는 할로젠으로서는, 전술한 식(1)의 설명에서의 제1 치환기로서의 「알킬」, 「시클로알킬」, 「알콕시」, 「알킬 치환 실릴」, 또는 「할로젠」의 설명을 참조할 수 있다. 또한, 이들의 기로의 치환기로서의 아릴, 헤테로아릴 또는 알킬도 동일하다. 또한,  $R^5 \sim R^7$  및  $R^{10} \sim R^{12}$  중 인접하는 기끼리 결합하여 b환 또는 d환과 함께 아릴환 또는 헤테로아릴환을 형성한 경우의, 이들 환으로의 치환기인 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 디헤테로아릴아미노, 아릴헤테로아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 헤테로아릴옥시, 아릴티오, 헤테로아릴티오, 알킬 치환 실릴, 시아노, 또는 할로젠 및 새로운 치환기인 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 시아노, 또는 할로젠에 대해서도 동일하다.

[0203] 제1 치환기의 구조의 입체장애성, 전자제공성 및 전자흡인성에 의해 발광 파장을 조정할 수 있다. A환, B환, C환 및 D환에서의 아릴환 또는 헤테로아릴환의 치환기( $Z^1$  및  $Z^2$ 를 포함함)의 바람직한 구체예로서는 하기 구조식으로 표시되는 기, 시아노 및 할로젠을 들 수 있다. 보다 바람직하게는, 메틸, tert-부틸, tert-펜틸(tert-아밀), 페닐, o-톨릴, p-톨릴, 2,4-크실릴, 2,5-크실릴, 2,6-크실릴, 2,4,6-메시틸, 디페닐아미노, 디-p-톨릴아미노, 비스(p-(tert-부틸)페닐)아미노, 카르바졸릴, 3,6-디메틸카르바졸릴, 3,6-디-tert-부틸카르바졸릴 및 페녹시이며, 더욱 바람직하게는, 메틸, tert-부틸, 페닐, o-톨릴, 2,6-크실릴, 2,4,6-메시틸, 디페닐아미노, 디-p-톨릴아미노, 비스(p-(tert-부틸)페닐)아미노, 카르바졸릴, 3,6-디메틸카르바졸릴, 3,6-디-tert-부틸카르바졸릴 및 염소이다. 합성의 용이성의 관점에서는, 입체장애가 큰 쪽이 선택적인 합성을 위하여 바람직하고, 구체적으로는, tert-부틸, tert-펜틸(tert-아밀), o-톨릴, p-톨릴, 2,4-크실릴, 2,5-크실릴, 2,6-크실릴, 2,4,6-메시틸, 디-p-톨릴 아미노, 비스(p-(tert-부틸)페닐)아미노, 3,6-디메틸카르바졸릴, 3,6-디-tert-부틸카르바졸릴 및 염소가 바람직하다.

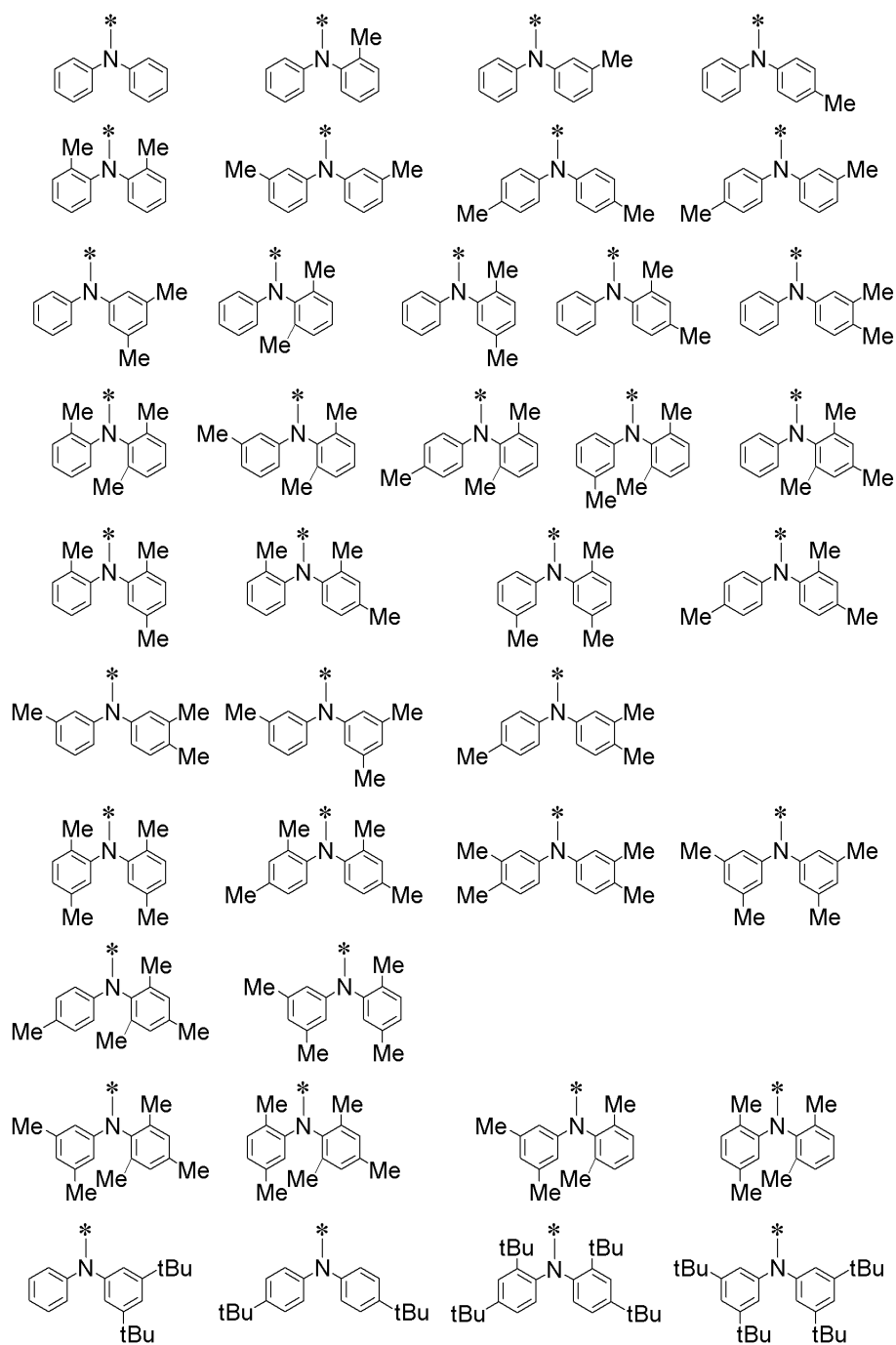
[0204] 하기 구조식에 있어서, 「Me」는 메틸, 「tBu」는 tert-부틸, 「tAm」은 tert-아밀, 「tOct」는 tert-옥틸, \*는 결합 위치를 나타낸다.



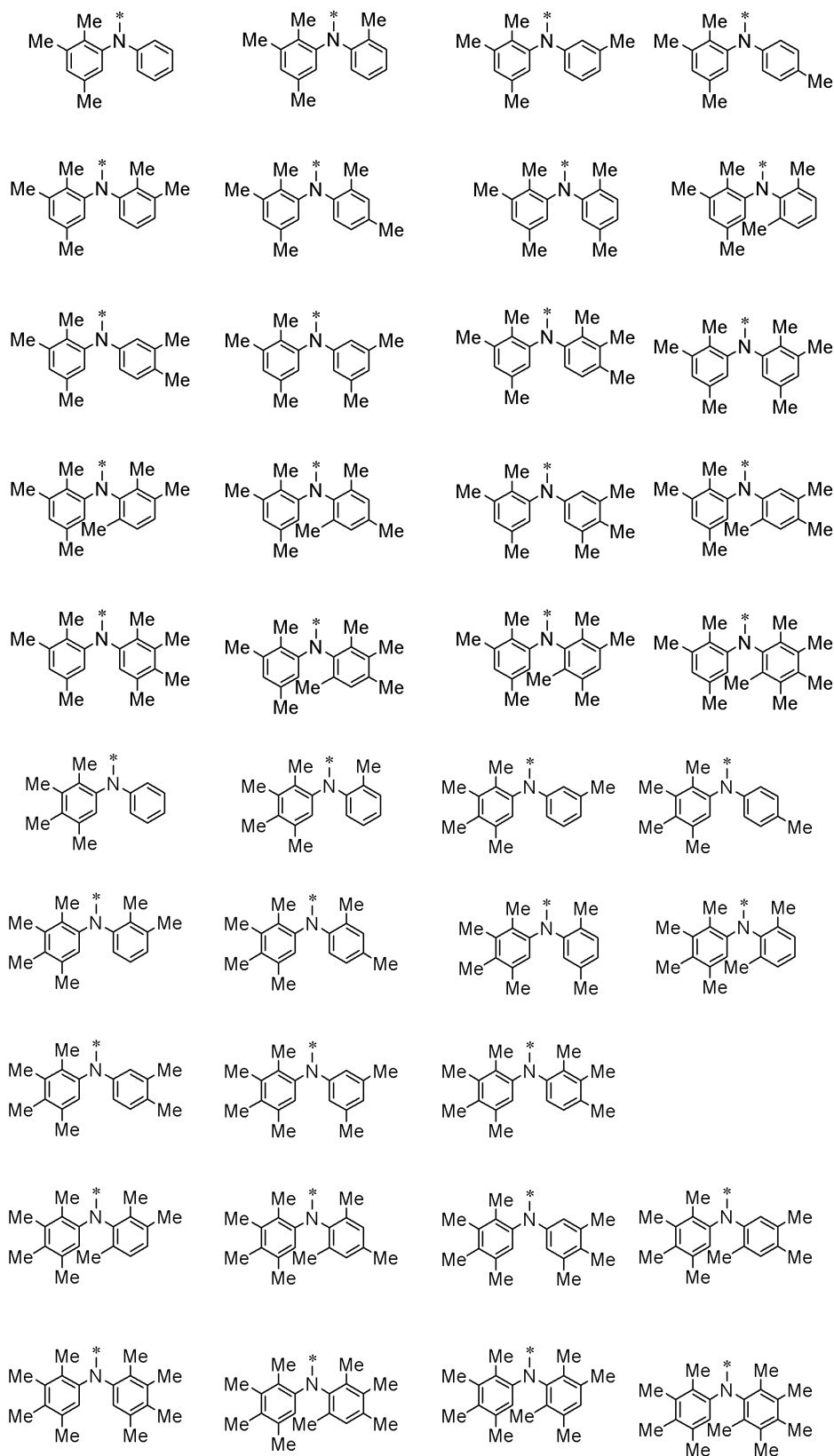
[0205]



[0206]

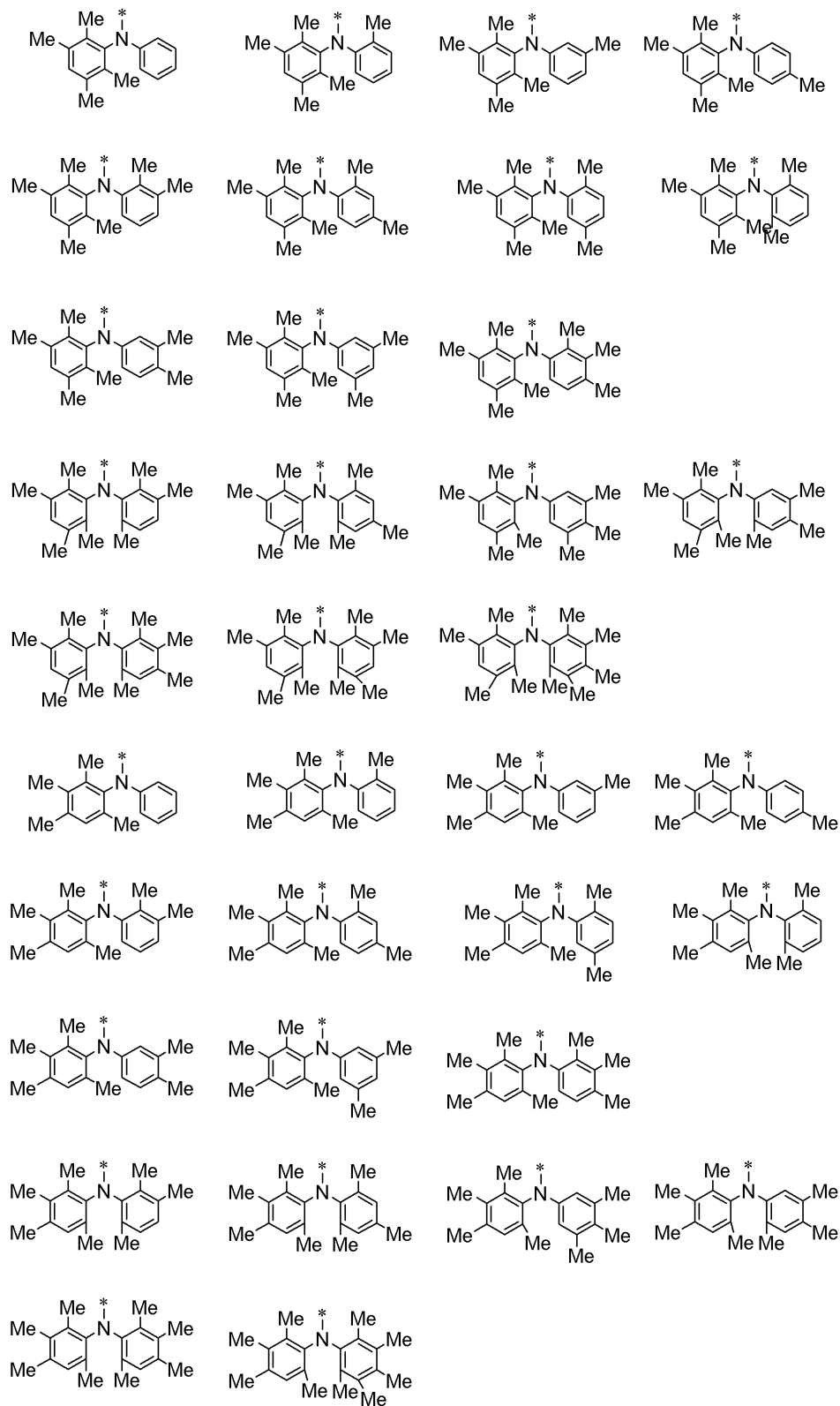


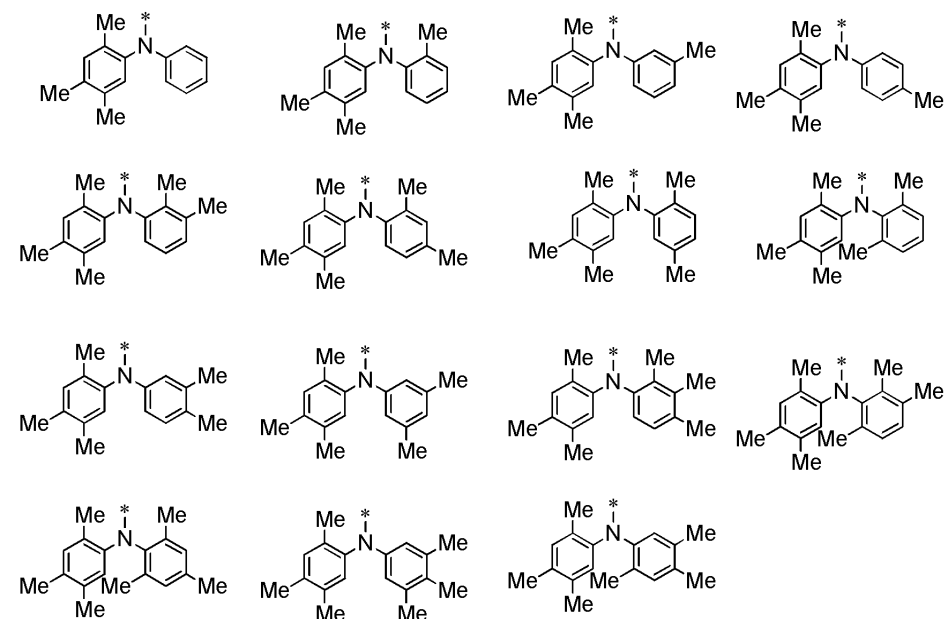
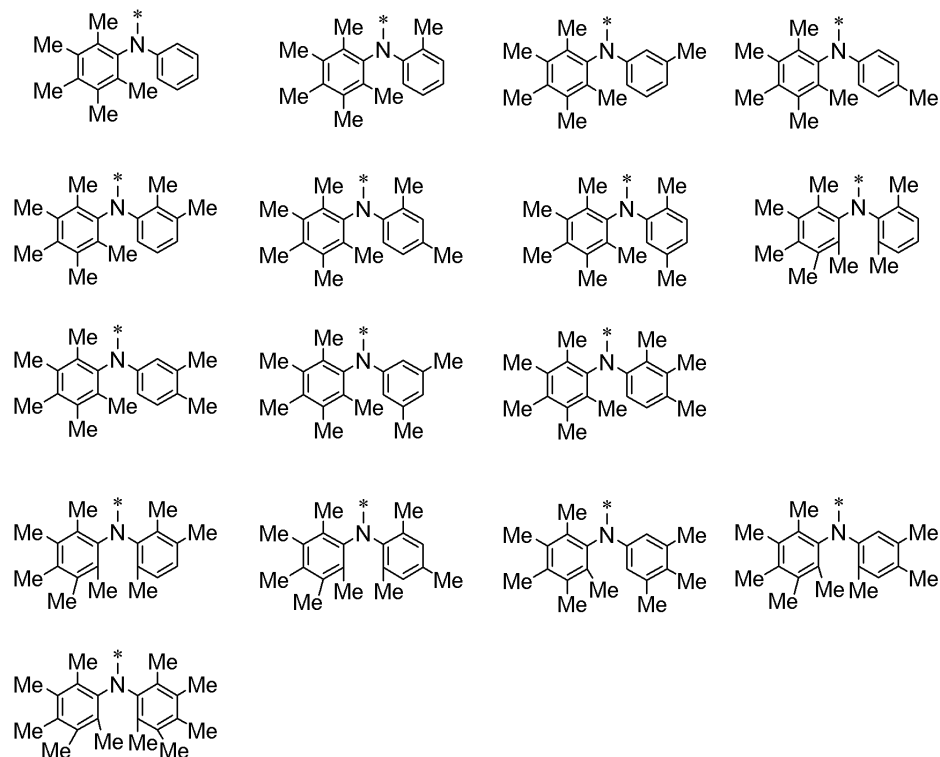
[0207]



[0208]

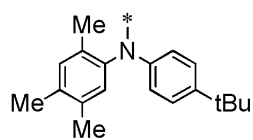
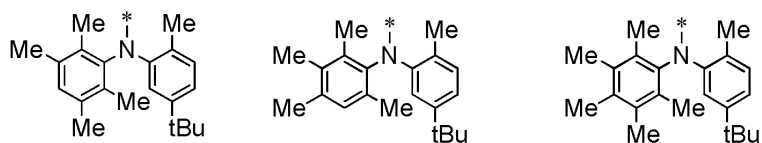
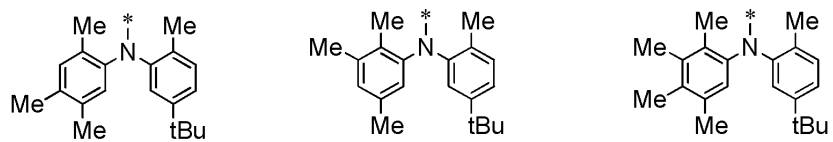
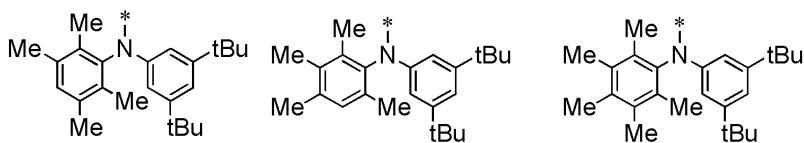
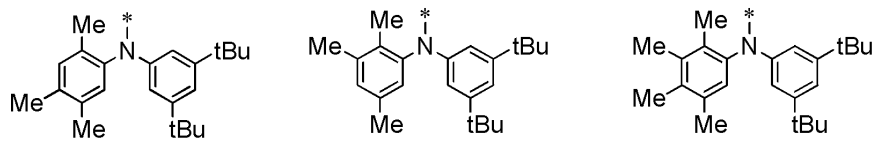
[0209]



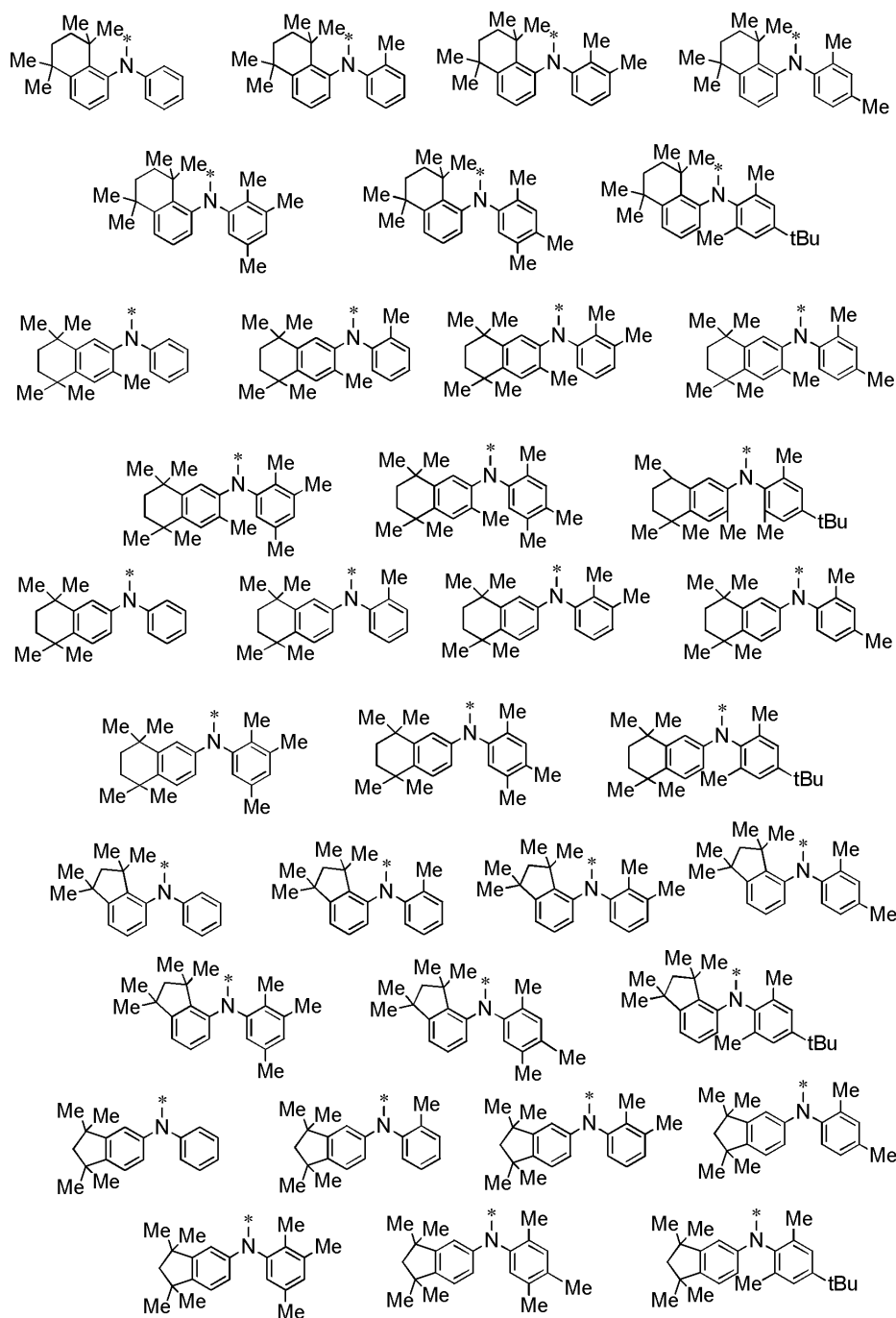


– 32 –





[0216]



[0217]

[0218]

식(1)의 A환 및 C환에서의 아릴환 또는 헤테로아릴환에 있어서는,  $Z^1$  및  $Z^2$ 가 각각 독립적으로 상기한 어느 하나의 바람직한 치환기이며,  $Z^1$  및  $Z^2$  이외의 치환기를 가지고 있지 않은 것이 바람직하다. 예를 들면, 식(2)에서의  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^8$ , 및  $R^9$ 은 모두 수소인 것이 바람직하다.  $Z^1$  및  $Z^2$ 는 동일한 치환기라도 되고 상이한 치환기라도 되지만, 합성이 용이한 관점에서 동일한 것이 바람직하다.

[0219]

식(1)의 B환 및 D환에서의 아릴환 또는 헤테로아릴환은 모두 1개의 치환기를 가지고 있거나, 또는 치환기를 가지고 있지 않은 것이 바람직하다. 치환기로서는, 탄소수 1~6의 알킬이 바람직하고, 메틸 또는 tert-부틸이 보다 바람직하다. 예를 들면, 식(2)에서의  $R^5$ ,  $R^7$ ,  $R^{10}$ ,  $R^{12}$ 가 모두 수소이며, 또한,  $R^6$  및  $R^{11}$ 이 각각 독립적으로 메틸 또는 tert-부틸인 것이 바람직하다.

[0220]

식(1)의  $X^1$ ,  $X^2$ ,  $X^3$  및  $X^4$ 에서의  $>N-R$ 의 R은, 아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬 또는 알킬이며, 이들에서의 적어도 1개의 수소는 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 디헤테로아릴아미노, 아릴헤테로아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 헤테로아릴옥시, 아릴티오, 헤테로아릴티오, 알킬 치환 실릴, 시아노, 또는 할로겐으로 치환

되어 있어도 된다. 이들 기나 거기에 치환하는 치환기로서는 상술한 예를 들 수 있다. 특히 탄소수 6~10의 아릴(예를 들면, 페닐, 나프틸 등), 탄소수 2~15의 헤테로아릴(예를 들면, 카르바졸릴 등), 탄소수 1~4의 알킬(예를 들면, 메틸, 에틸 등)이 바람직하다. 이 설명은 식(2)에서의  $X^1$ ,  $X^2$ ,  $X^3$  및  $X^4$ 에서도 동일하다.

[0221] 식(1)의  $X^1$ ,  $X^2$ ,  $X^3$  및  $X^4$ 에서의  $>CR_2$ 의 R은, 수소, 아릴, 헤테로아릴, 시클로알킬 또는 알킬이며, 이들에서의 적어도 1개의 수소는 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 디헤테로아릴아미노, 아릴헤테로아릴아미노, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 헤테로아릴옥시, 아릴티오, 헤테로아릴티오, 알킬 치환 실릴, 시아노, 또는 할로젠으로 치환되어 있어도 된다. 이들 기나 거기에 치환하는 치환기로서는 상술한 예를 들 수 있다. 특히 탄소수 1~4의 알킬(예를 들면, 메틸, 에틸 등)이 바람직하다. 이 설명은 식(2)에서의  $X^1$ ,  $X^2$ ,  $X^3$  및  $X^4$ 에서도 동일하다.

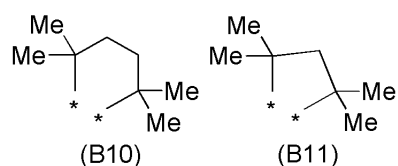
[0222] 식(1) 또는 식(2)의  $R^1$  및  $R^2$ 에서의, 탄소수 1~6의 알킬, 탄소수 6~12의 아릴, 탄소수 2~15의 헤테로아릴 또는 디아릴아미노(단 아릴은 탄소수 6~12의 아릴)의 더욱 상세한 설명에 대해서도, 전술한 「알킬」, 「아릴」, 「헤테로아릴」 또는 「디아릴아미노」의 설명을 참조할 수 있다.

[0223] 식(1)으로 표시되는 화합물에서의 아릴환 및 헤테로아릴환으로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 1개는, 적어도 1개의 시클로알칸으로 축합되어 있어도 되고, 상기 시클로알칸에서의 적어도 1개의 수소는 치환되어 있어도 되고, 상기 시클로알칸에서의 적어도 1개의  $-CH_2-$ 는  $-O-$ 로 치환되어 있어도 된다.

[0224] 「시클로알칸」으로서, 탄소수 3~24의 시클로알칸, 탄소수 3~20의 시클로알칸, 탄소수 3~16의 시클로알칸, 탄소수 3~14의 시클로알칸, 탄소수 5~10의 시클로알칸, 탄소수 5~8의 시클로알칸, 탄소수 5~6의 시클로알칸, 탄소수 5의 시클로알칸 등을 예로 들 수 있다.

[0225] 구체적인 시클로알칸으로서, 시클로프로판, 시클로부탄, 시클로펜탄, 시클로헥산, 시클로헵탄, 시클로옥탄, 시클로노난, 시클로데칸, 노르보르넨, 비시클로[1.0.1]부탄, 비시클로[1.1.1]펜탄, 비시클로[2.0.1]펜탄, 비시클로[1.2.1]헥산, 비시클로[3.0.1]헥산, 비시클로[2.1.2]헵탄, 비시클로[2.2.2]옥탄, 아다만탄, 디아만탄, 데카하이드로나프탈렌 및 데카하이드로아줄렌, 및 이들의 탄소수 1~5의 알킬(특히 메틸) 치환체, 할로젠(특히 불소) 치환체 및 중수소 치환체 등을 예로 들 수 있다.

[0226] 이들 중에서도 시클로알칸의  $\alpha$  위치의 탄소(아릴환 또는 헤테로아릴환에 축합하는 시클로알킬에 있어서, 축합부위의 탄소에 인접하는 위치의 탄소)에서의 적어도 1개의 수소가 치환된 구조가 바람직하고,  $\alpha$  위치의 탄소에서의 2개의 수소가 치환된 구조가 보다 바람직하고, 2개의  $\alpha$  위치의 탄소에서의 합계 4개의 수소가 치환된 구조가 더욱 바람직하다. 이 치환기로서는, 탄소수 1~5의 알킬(특히 메틸) 치환체, 할로젠(특히 불소) 치환체 및 중수소 치환체 등을 예로 들 수 있다. 특히, 아릴환 또는 헤테로아릴환에 있어서 인접하는 탄소 원자에 하기 식(B10) 또는 식(B11)으로 표시되는 부분 구조가 결합한 구조로 되어 있는 것이 바람직하다.



[0227] 식 중, Me는 메틸을 나타내고, \*는 결합 위치를 나타낸다.

[0228] 또한, 식(1) 또는 식(2)으로 표시되는 화합물 중의 수소는, 그 전부 또는 일부가 중수소로 치환되어 있어도 된다. 예를 들면, 식(1)에 있어서는, A환, B환, C환, D환(A~D 환은 아릴환 또는 헤테로아릴환), A~D 환으로의 치환기,  $X^1 \sim X^4$ 인  $>N-R$ 에서의 R(=아릴, 헤테로아릴, 알킬),  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $Z^1$  및  $Z^2$ 에서의 수소가 중수소로 치환될 수 있지만, 이들 중에서도 아릴이나 헤테로아릴에서의 전부 또는 일부의 수소가 중수소로 치환된 태양을 들 수 있다.

[0230] 전술한 바와 같이, 식(1)에서의  $X^1$ ,  $X^2$ ,  $X^3$  및  $X^4$ 로서의  $>N-R$ 의 R 및  $>CR_2$ 의 R은 각각 연결기 또는 단결합에 의해 A환, B환, C환 및/또는 D환과 결합하고 있어도 되지만, 이 때의 연결기가, A환, B환, C환 및/또는 D환 중의 치환기가 아릴환 또는 헤테로아릴환과 결합하는 연결기와 동일해도 된다. 이와 같은 연결기로서는 붕소가 있고, 예를 들면, 식(2)에 있어서 하기와 같은 태양을 들 수 있다.

[0231] (1)  $Z^1$ 이  $X^1$ 으로서의 >N-R의 R과 함께 B(붕소)인  $R^4$ 를 통해 a환과 결합되어 있다.

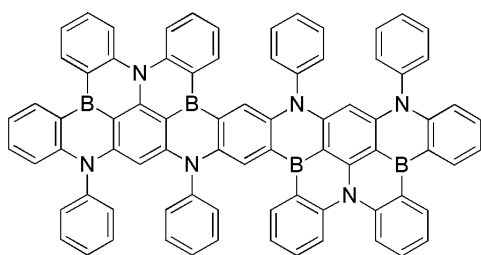
[0232] (2)  $Z^2$ 가  $X^3$ 로서의 >N-R의 R과 함께 B(붕소)인  $R^9$ 를 통해 c환과 결합되어 있다.

[0233] (3)  $Z^1$ 이  $X^2$ 로서의 >N-R의 R과 함께 B(붕소)인  $R^3$ 를 통해 a환과 결합되어 있다.

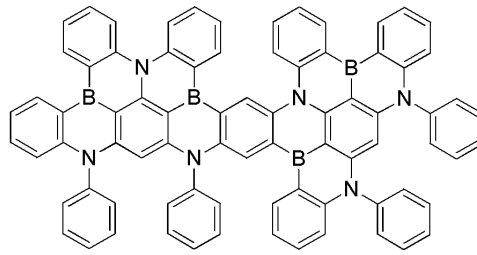
[0234] (4)  $Z^2$ 가  $X^4$ 로서의 >N-R의 R과 함께 B(붕소)인  $R^8$ 를 통해 c환과 결합되어 있다.

[0235] 상기한 (1)~(4) 중 어느 하나를 만족시키는 구조의 예로서는 하기, 식(1-X-1), 식(1-X-2), 식(1-X-3), 식(1-X-4) 중 어느 하나로 표시되는 화합물을 들 수 있다. 식(1-X-1)은 상기 (1) 및 (2)를 만족시키고, 식(1-X-2)은 상기 (1) 및 (4)를 만족시키고, 식(1-X-3)은 상기 (3) 및 (2)를 만족시키고, 식(1-X-4)은 상기 (3) 및 (4)를 만족시킨다.

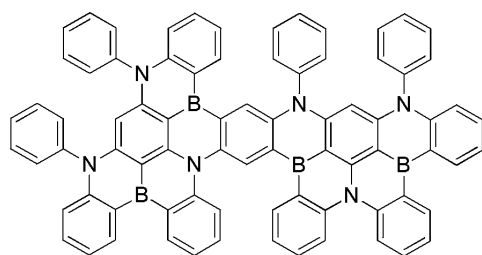
(1-X-1)



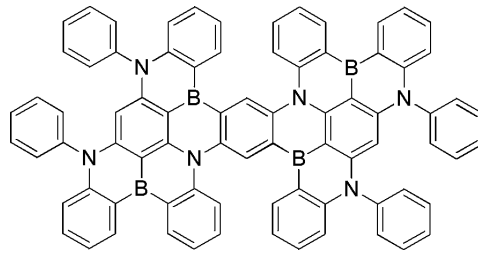
(1-X-2)



(1-X-3)

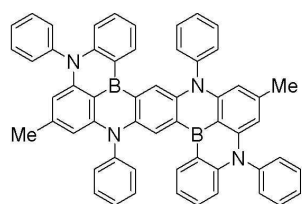


(1-X-4)

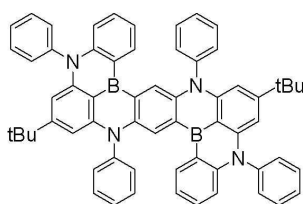


[0236]

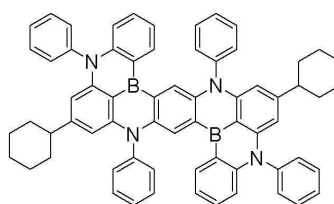
[0237] 식(1)으로 표시되는 다환 방향족 화합물의 다른 구체적인 예로서는, 예를 들면, 하기 식으로 표시되는 화합물이 있다. 그리고, 하기 식 중의 「Me」는 메틸, 「tBu」는 tert-부틸, 「D」는 중수소를 나타낸다.



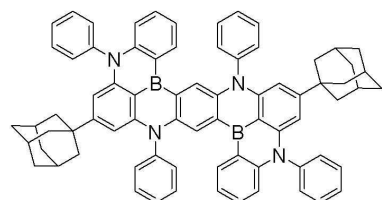
(1-1)



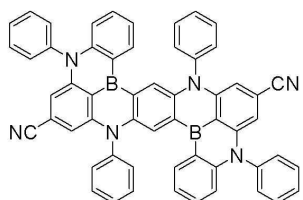
(1-2)



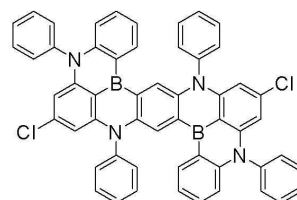
(1-3)



(1-4)

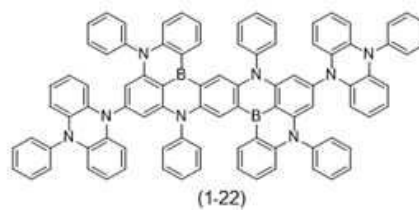
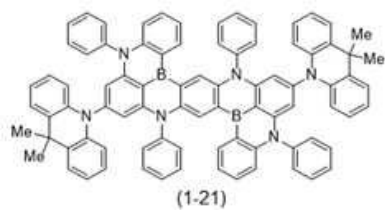
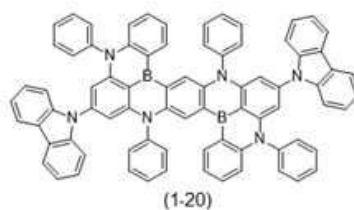
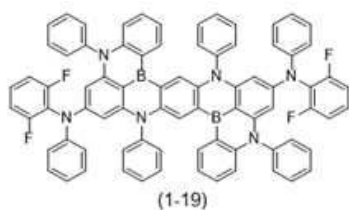
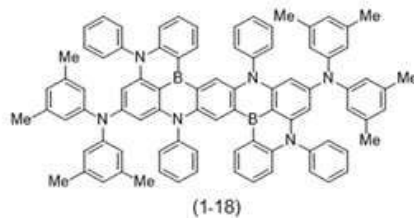
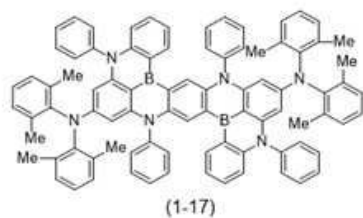
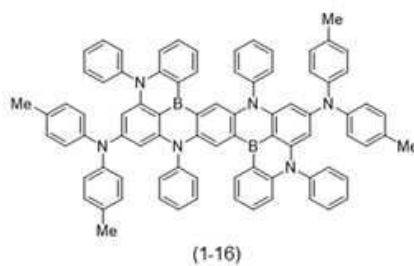
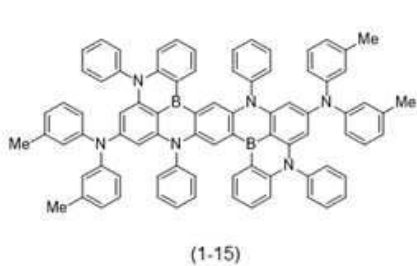
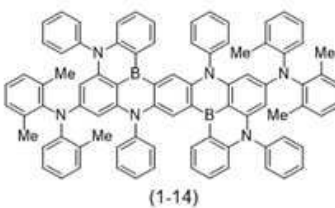
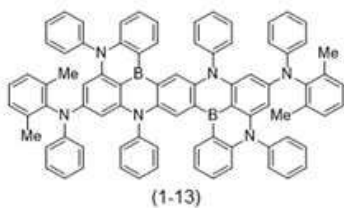
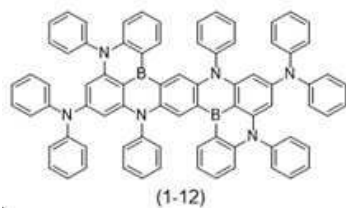
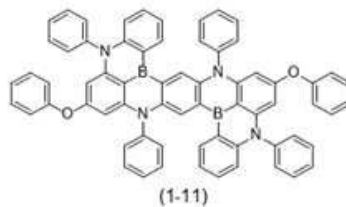
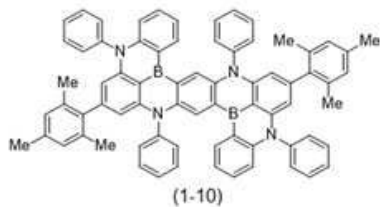
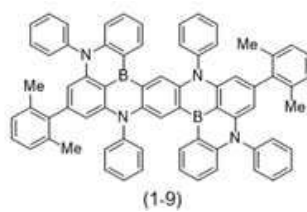
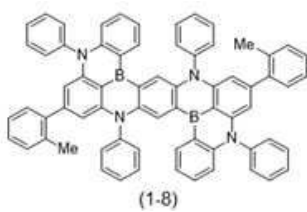
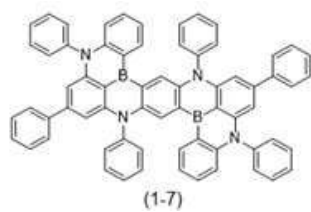


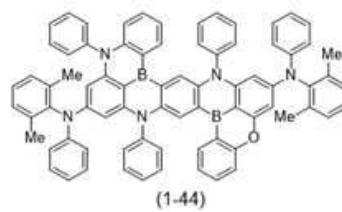
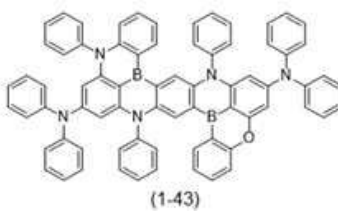
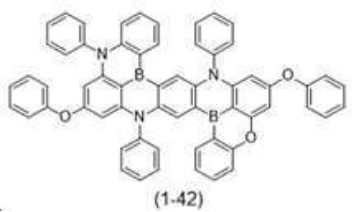
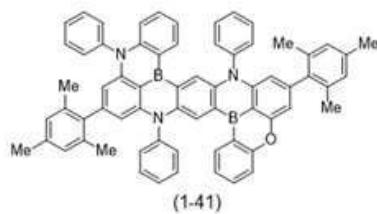
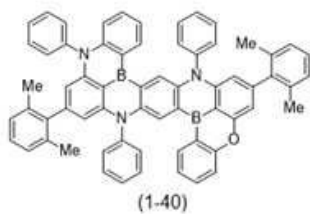
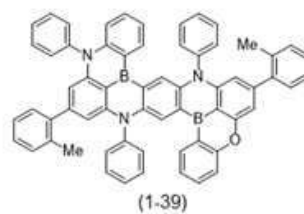
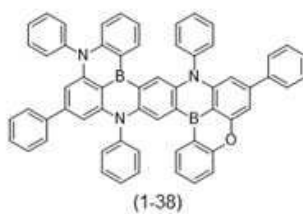
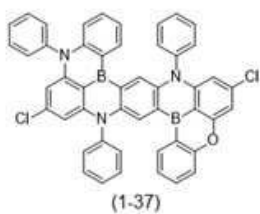
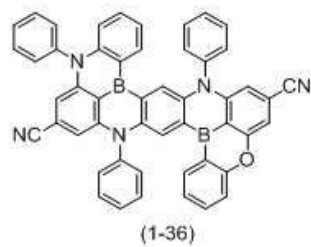
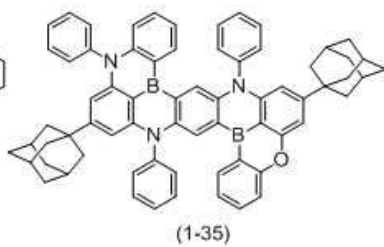
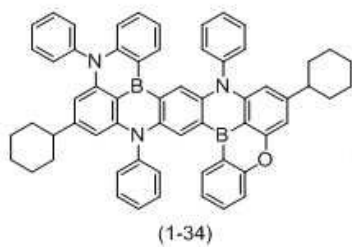
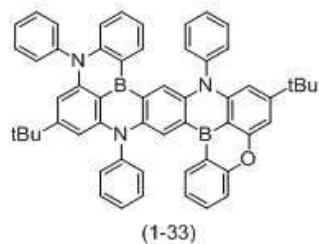
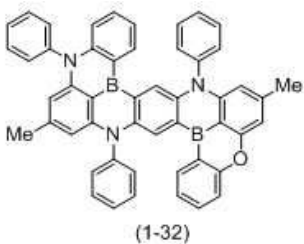
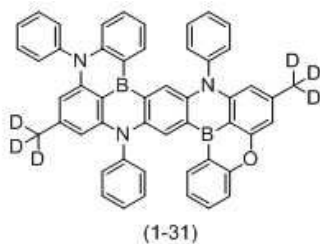
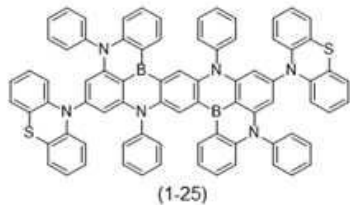
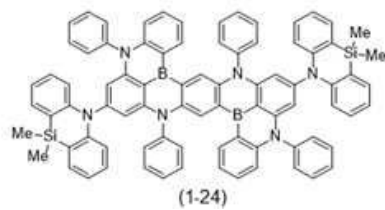
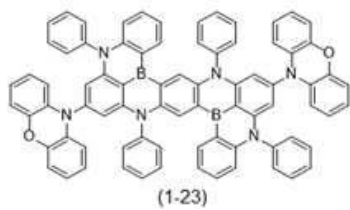
(1-5)



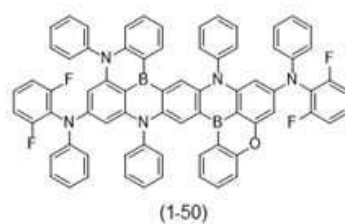
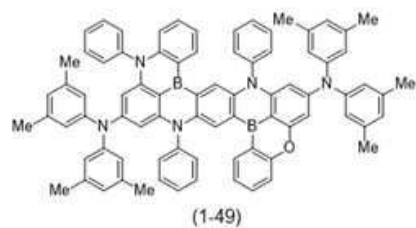
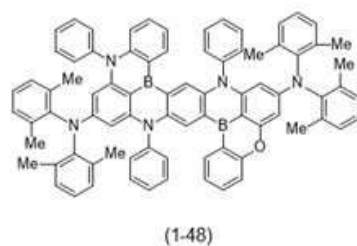
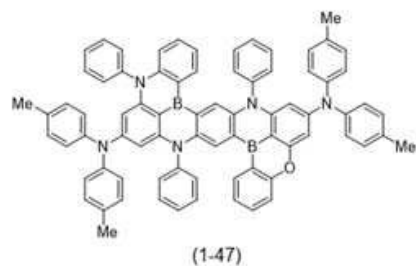
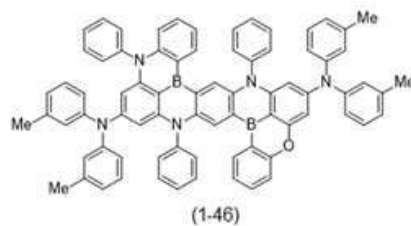
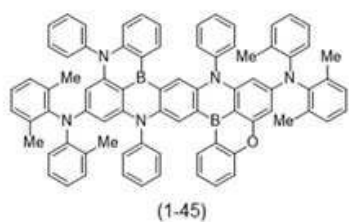
(1-6)

[0238]

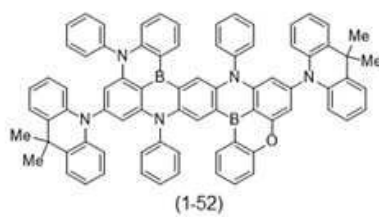
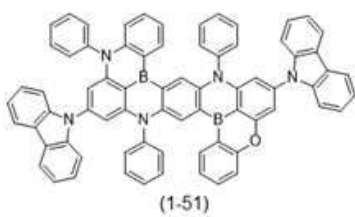




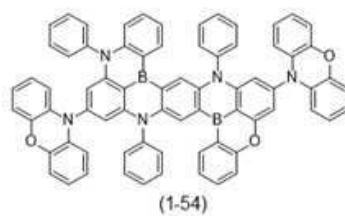
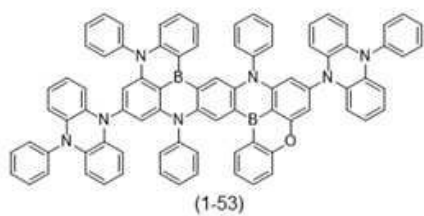




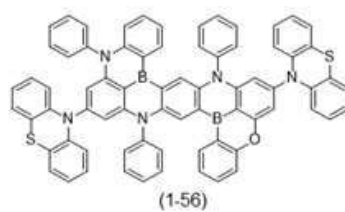
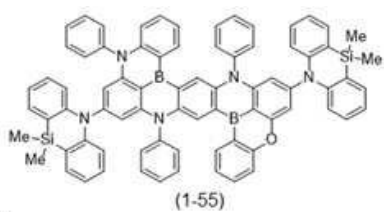
[0250]

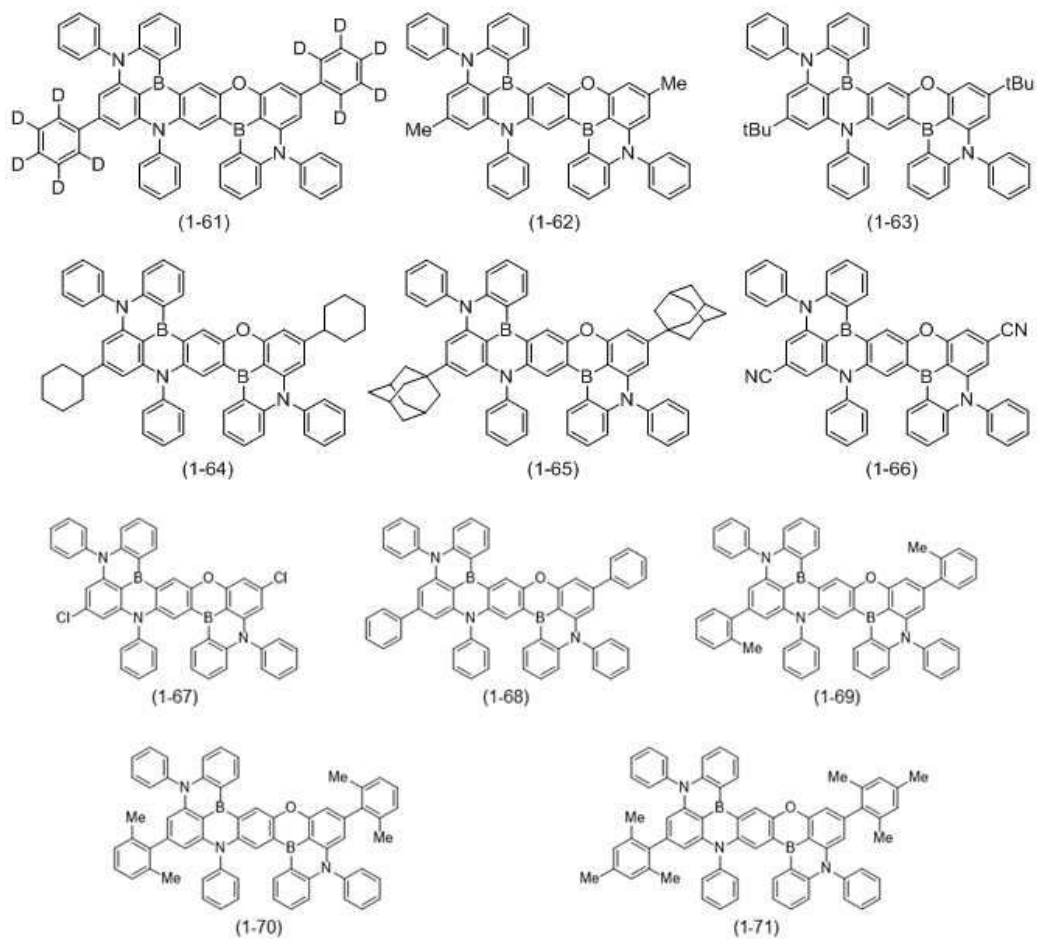


[0251]



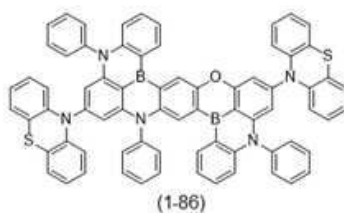
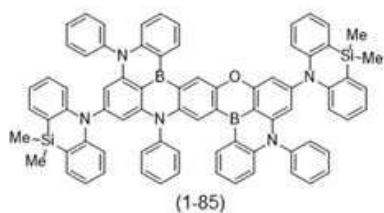
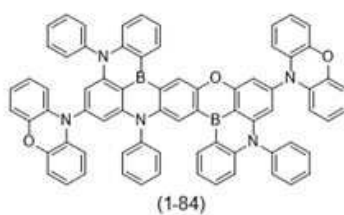
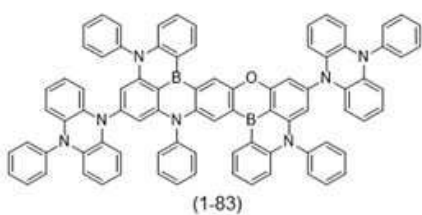
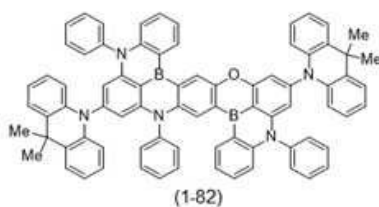
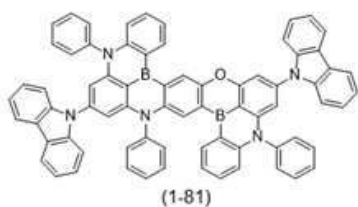
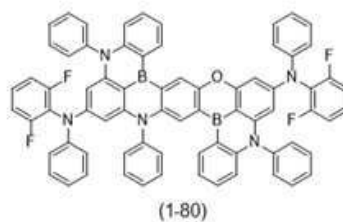
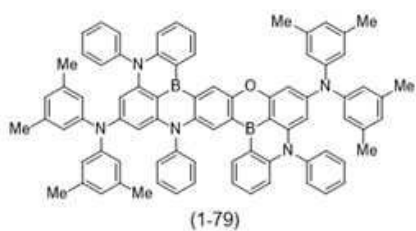
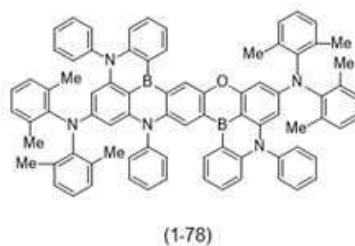
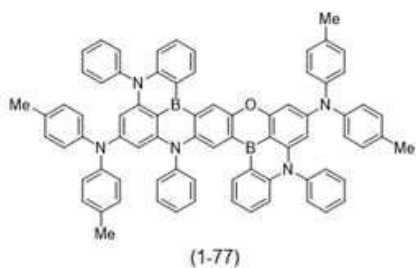
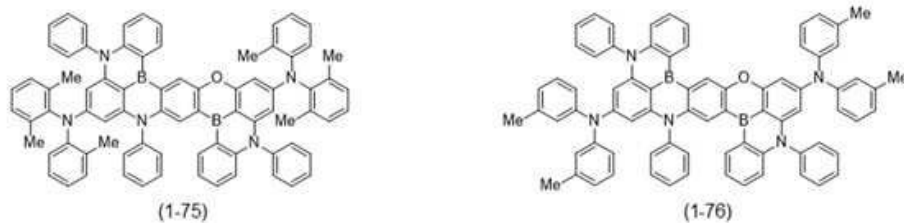
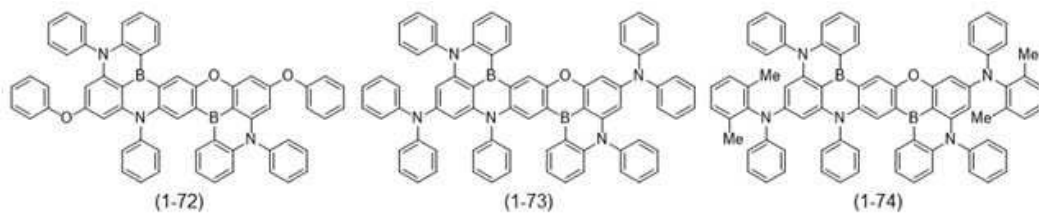
[0252]

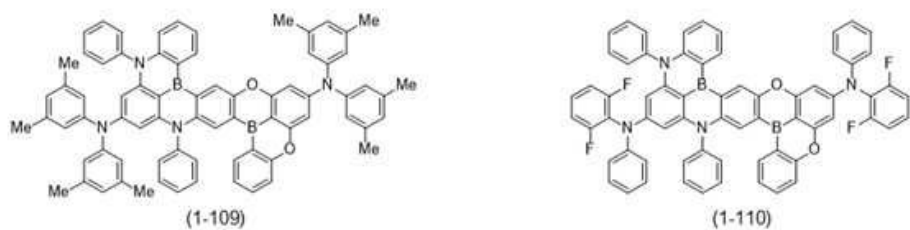
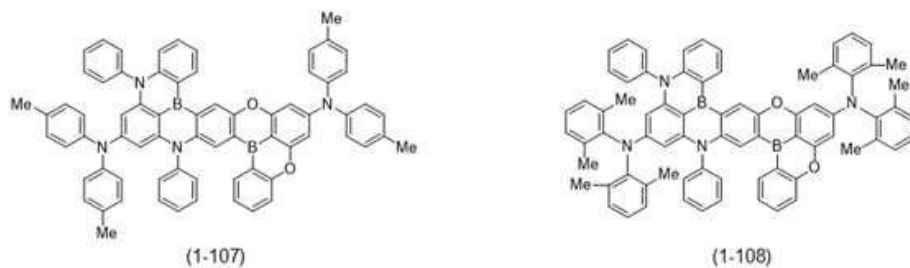
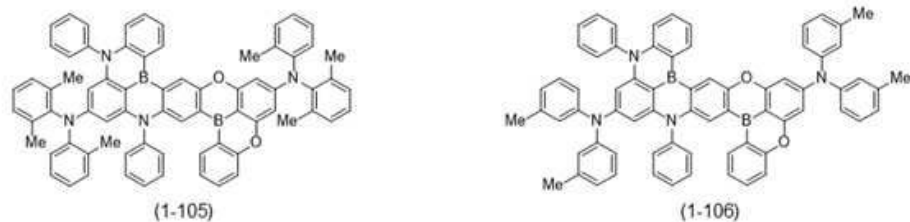
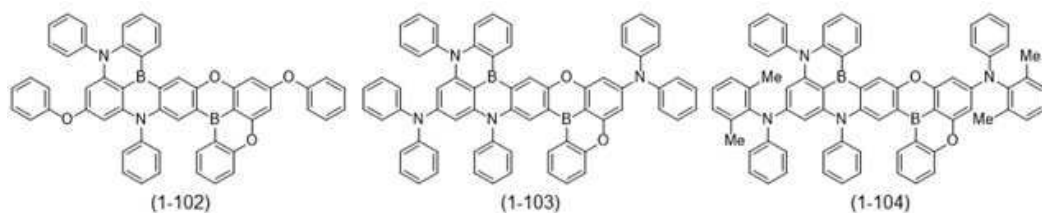
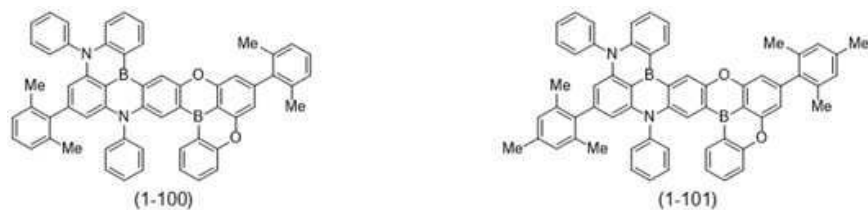
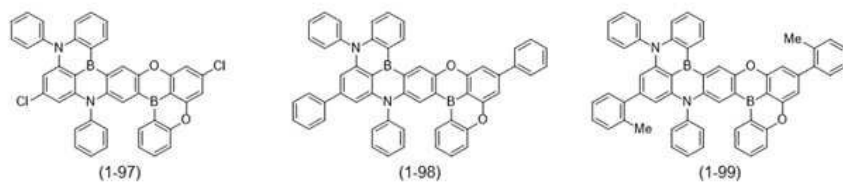
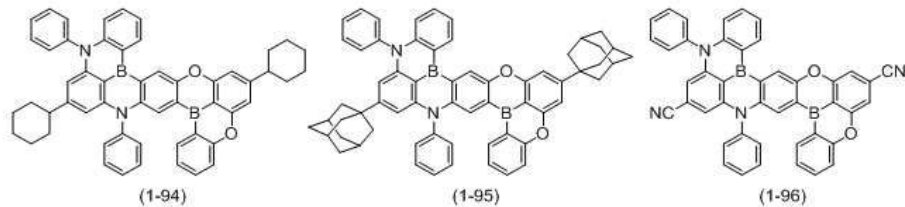
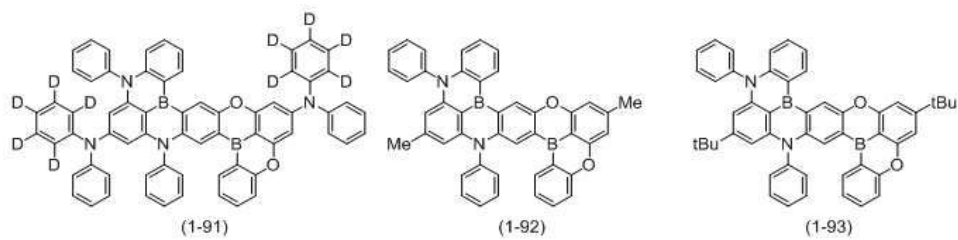


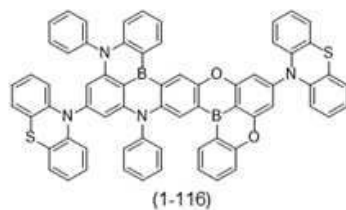
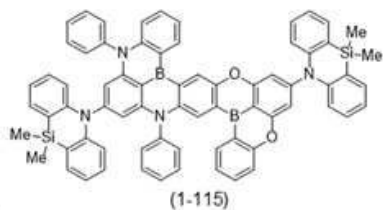
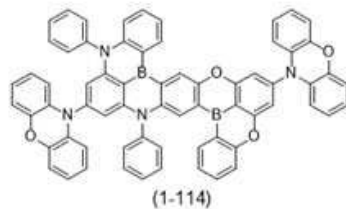
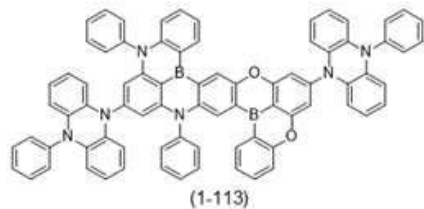
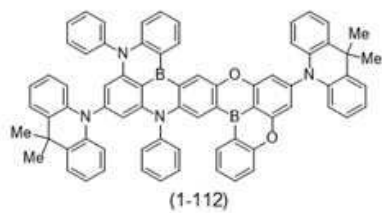
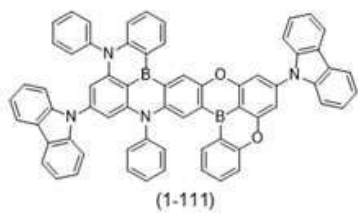


[0253]

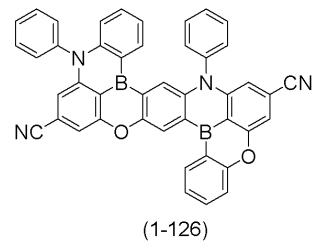
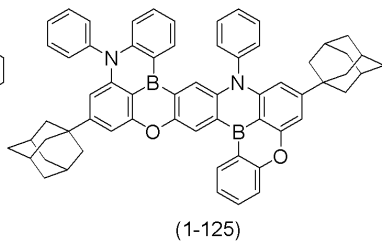
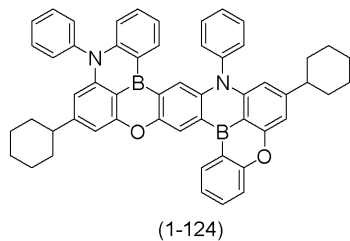
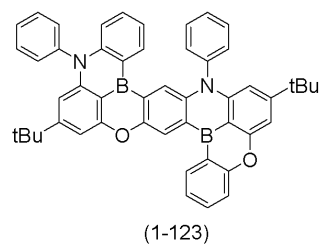
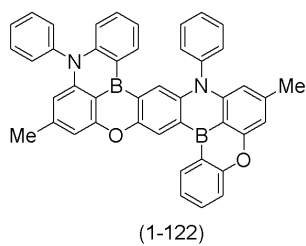
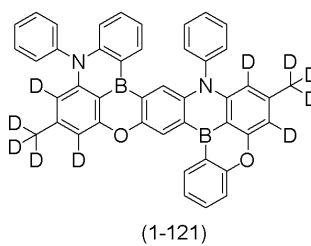




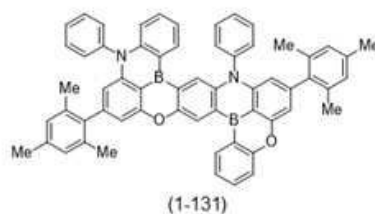
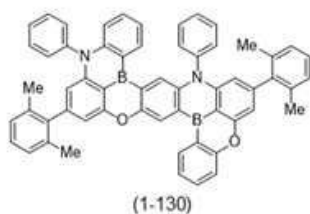
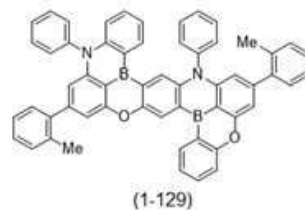
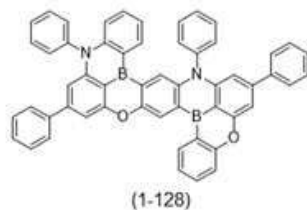
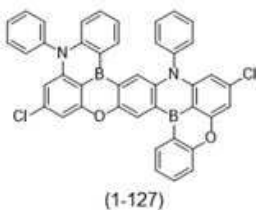




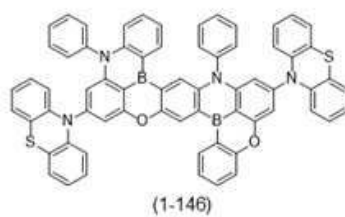
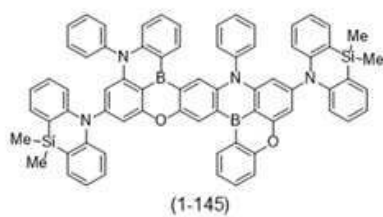
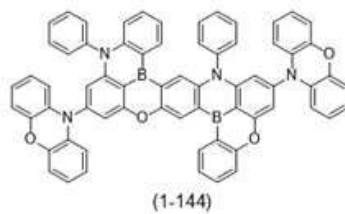
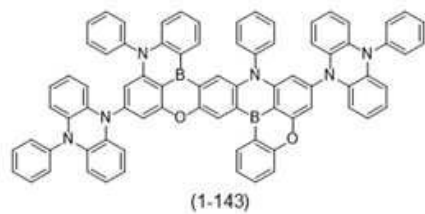
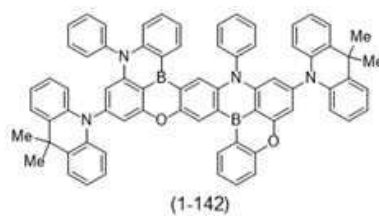
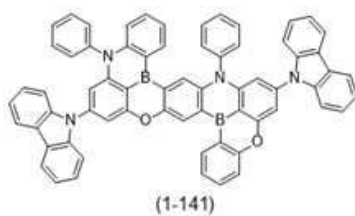
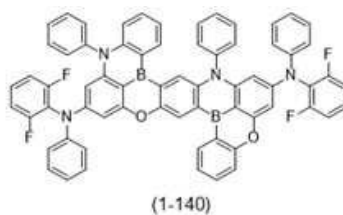
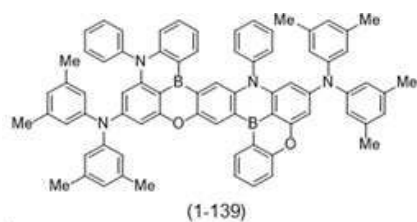
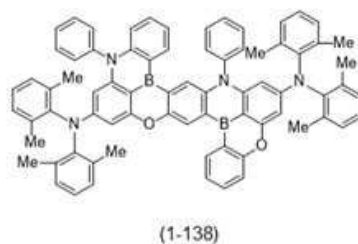
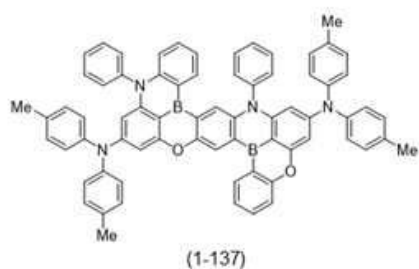
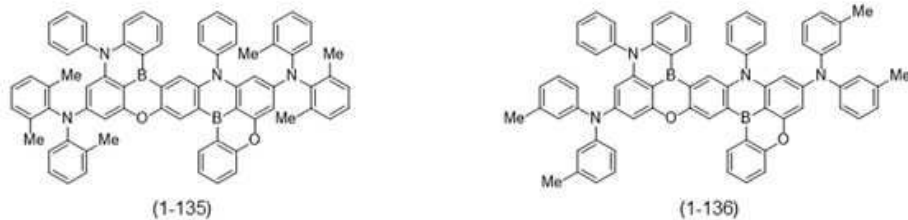
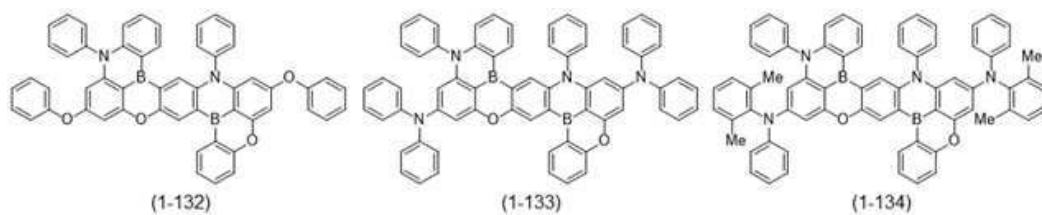
[0260]

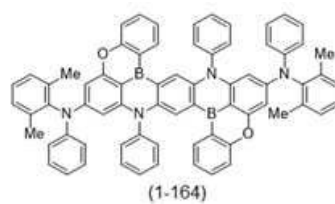
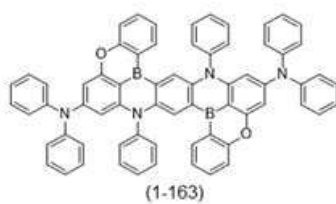
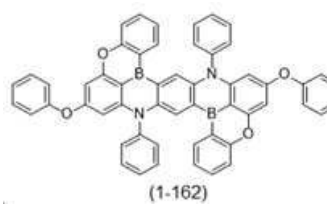
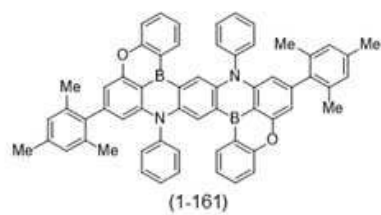
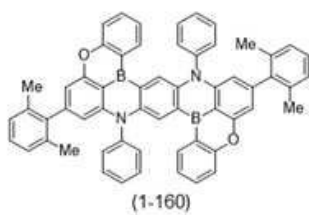
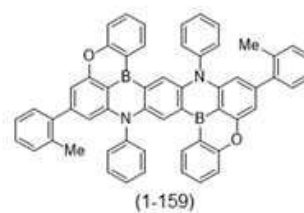
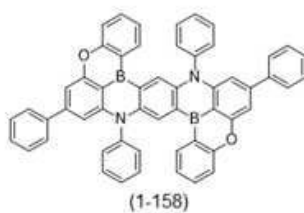
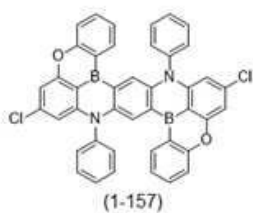
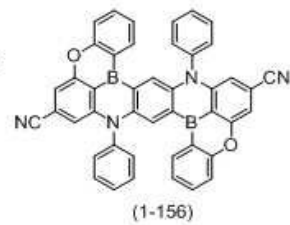
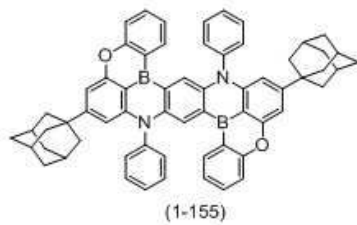
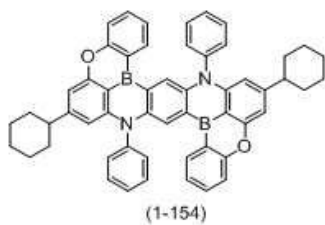
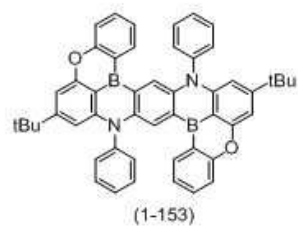
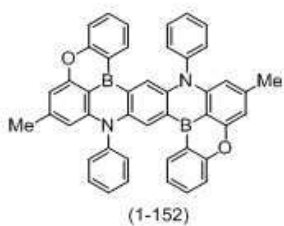
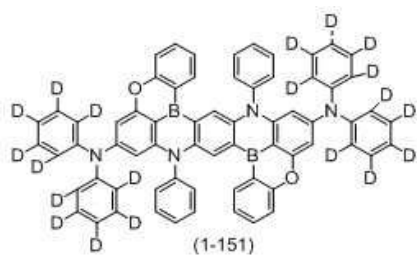


[0261]



[0262]

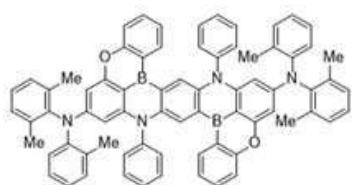




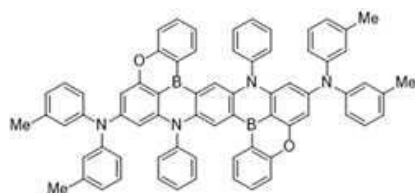
[0266]

[0267]

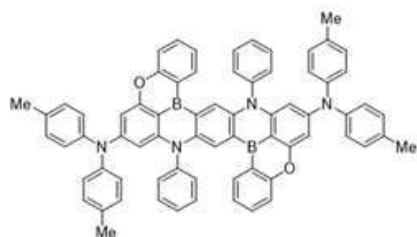




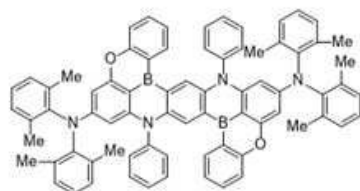
(1-165)



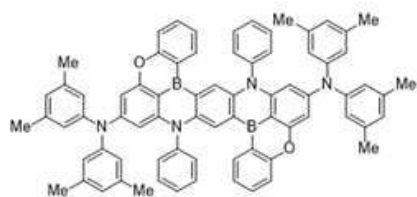
(1-166)



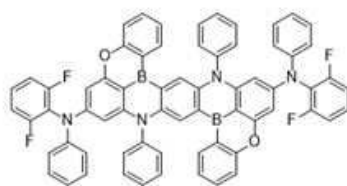
(1-167)



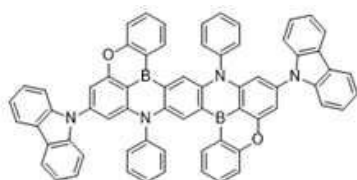
(1-168)



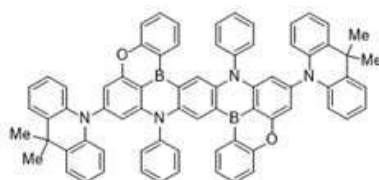
(1-169)



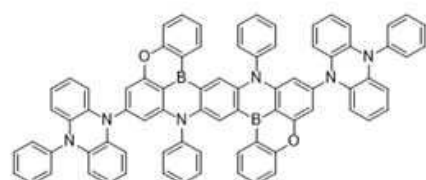
(1-170)



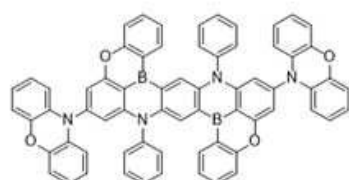
(1-171)



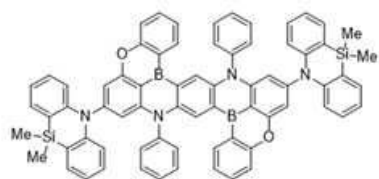
(1-172)



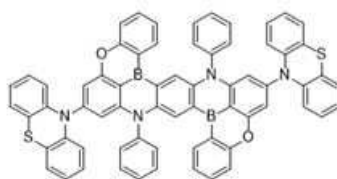
(1-173)



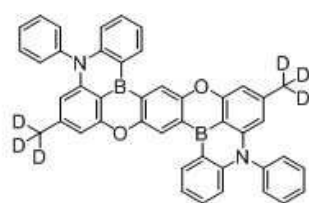
(1-174)



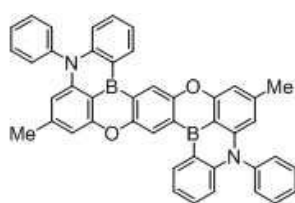
(1-175)



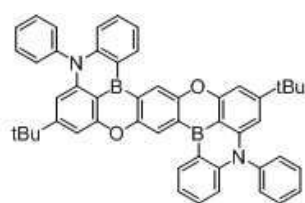
(1-176)



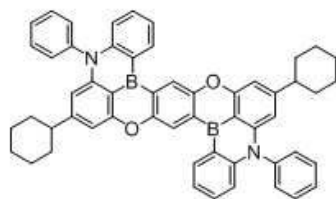
(1-181)



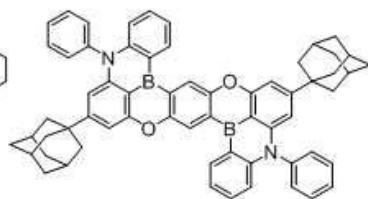
(1-182)



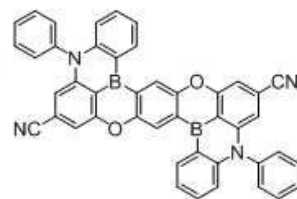
(1-183)



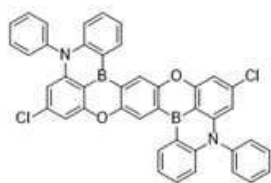
(1-184)



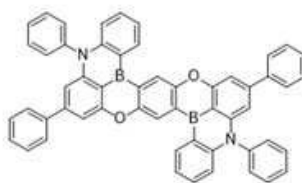
(1-185)



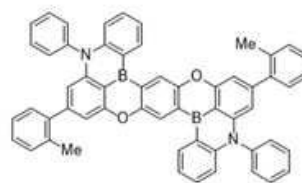
(1-186)



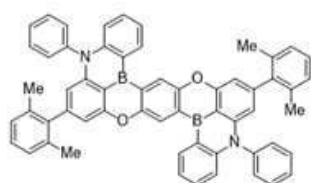
(1-187)



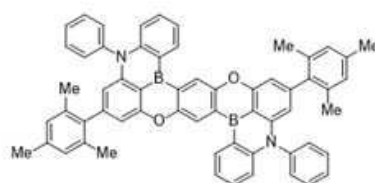
(1-188)



(1-189)

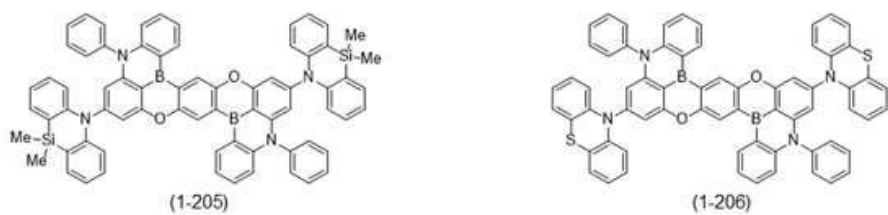
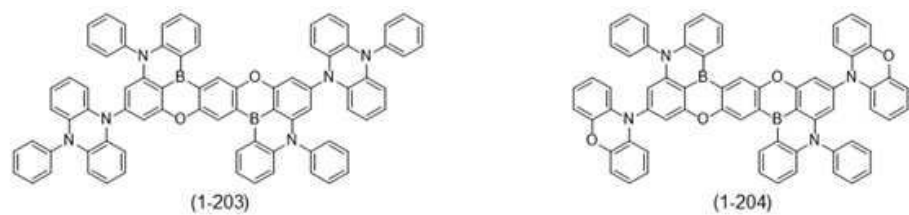
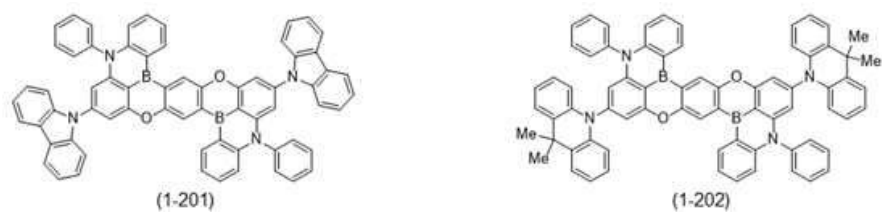
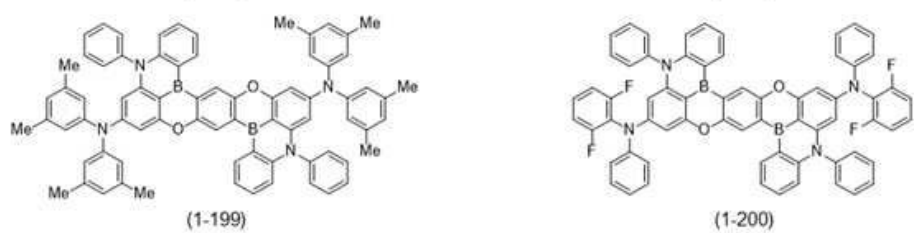
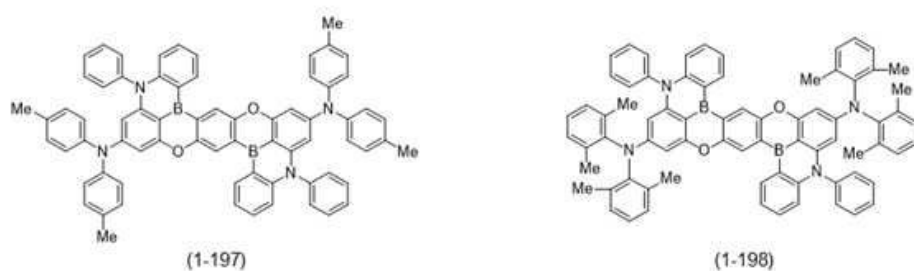
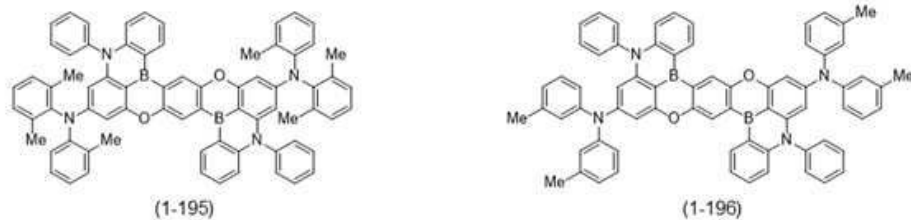
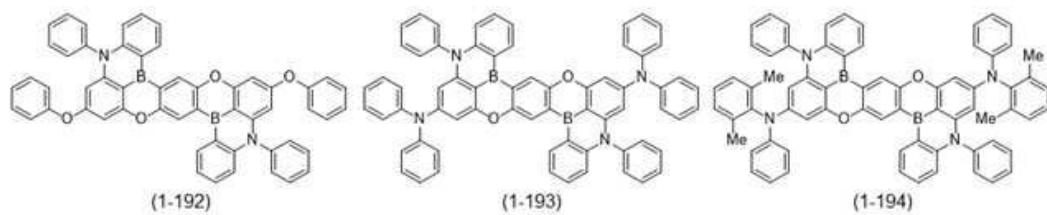


(1-190)

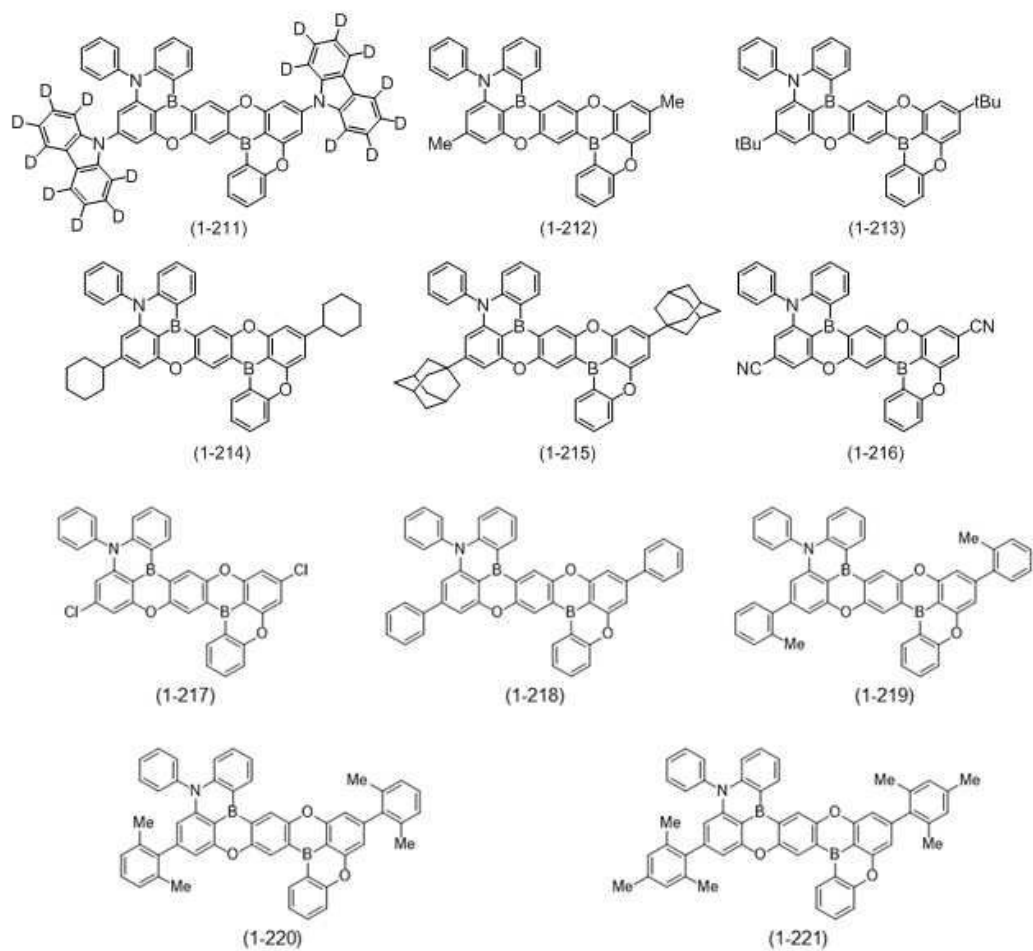


(1-191)

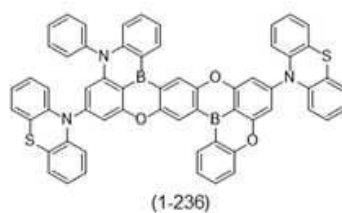
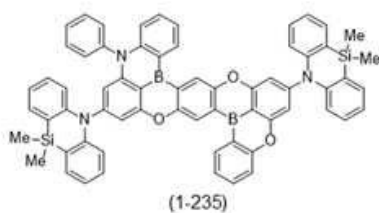
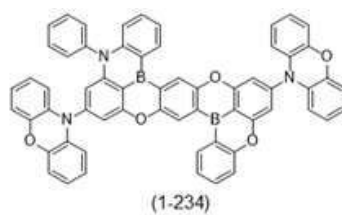
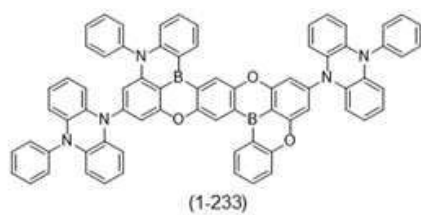
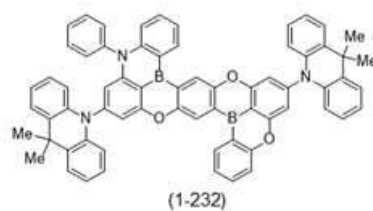
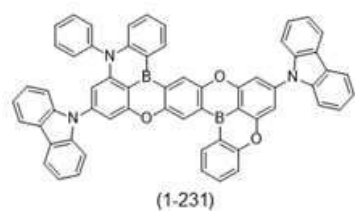
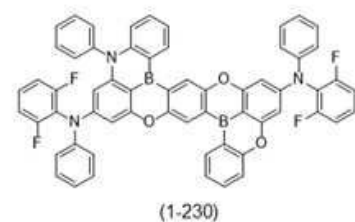
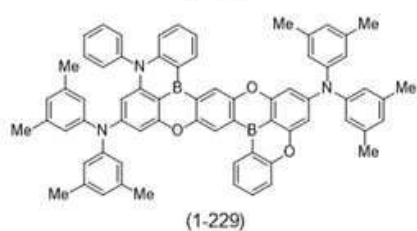
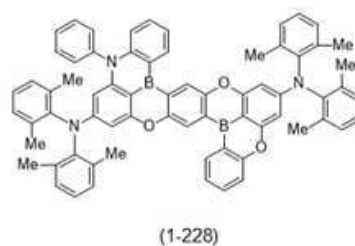
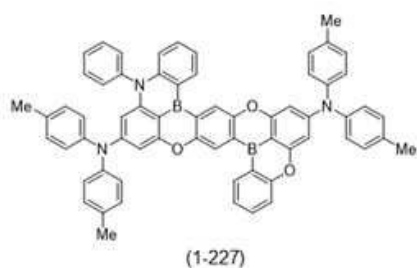
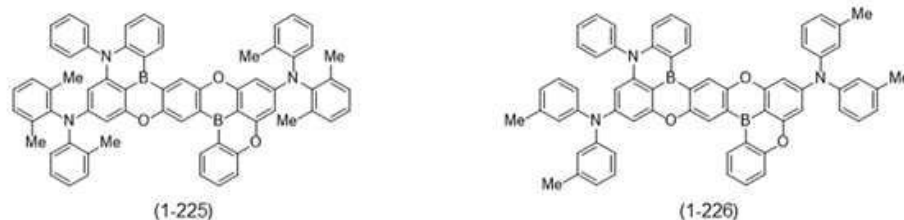
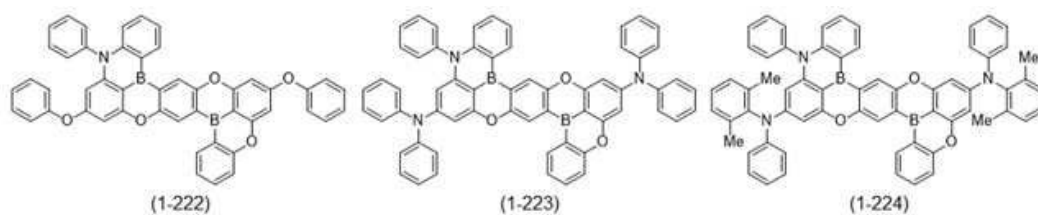
[0271]

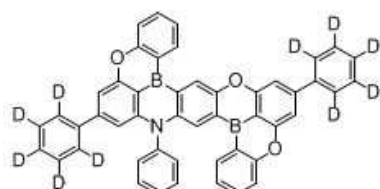




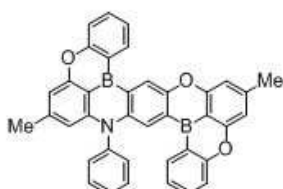


[0275]

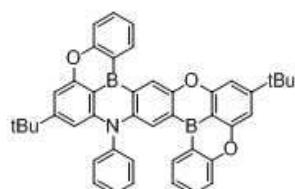




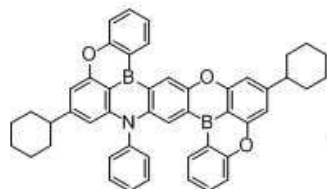
(1-241)



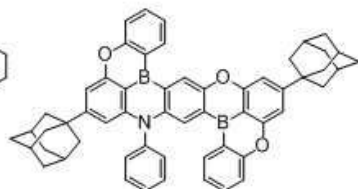
(1-242)



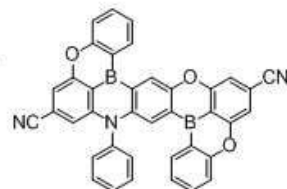
(1-243)



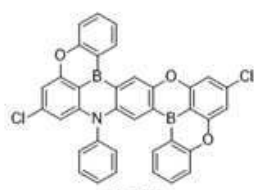
(1-244)



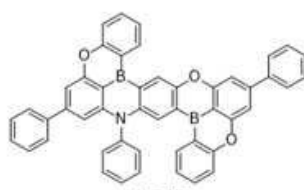
(1-245)



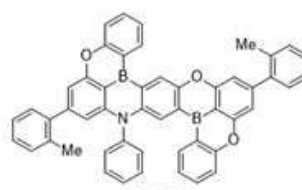
(1-246)



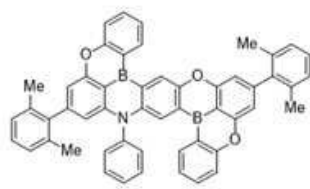
(1-247)



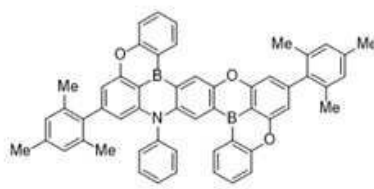
(1-248)



(1-249)

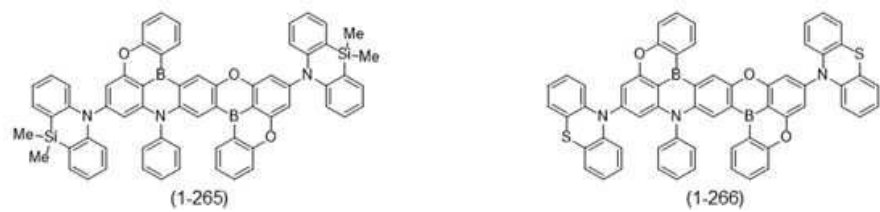
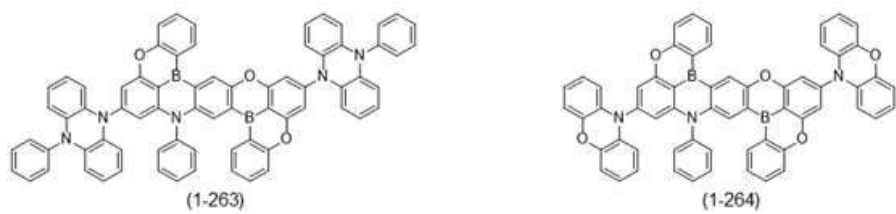
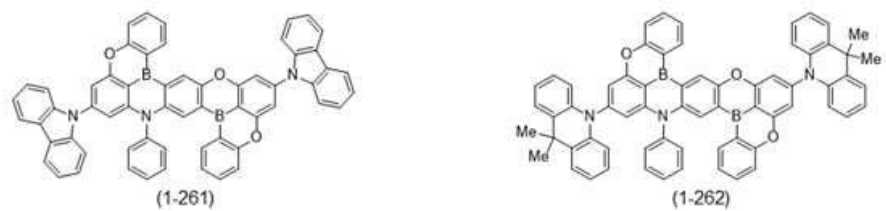
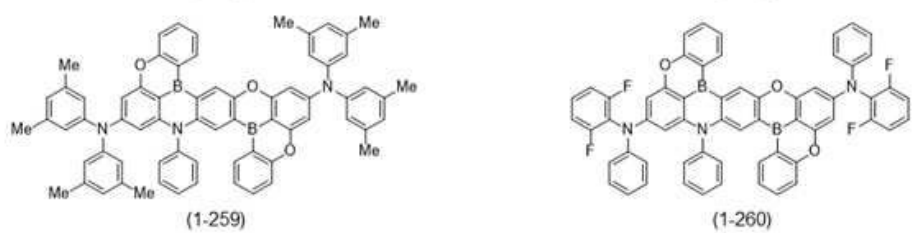
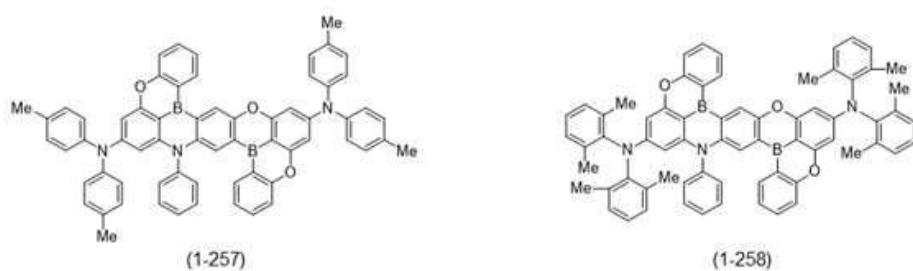
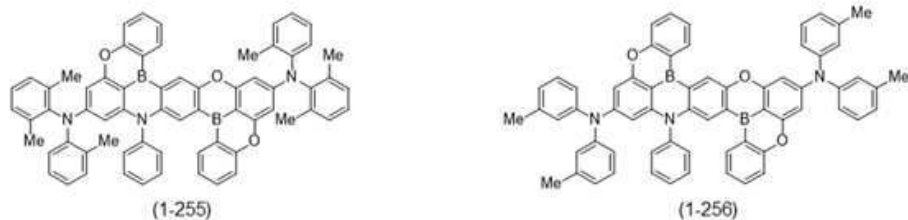
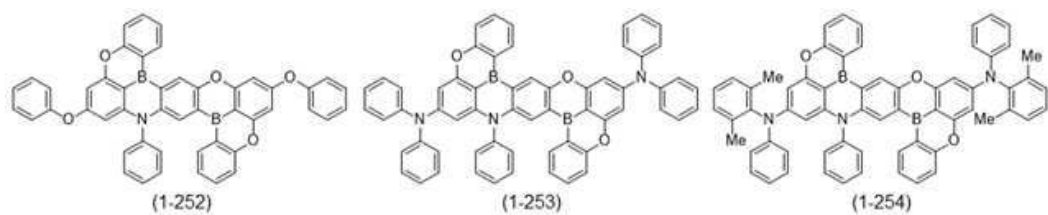


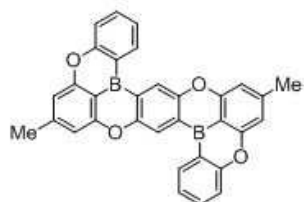
(1-250)



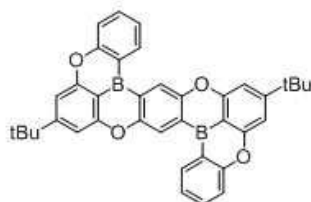
(1-251)

[0279]

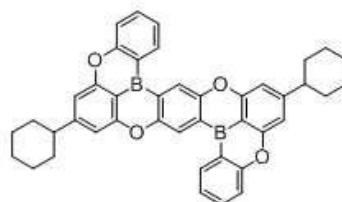




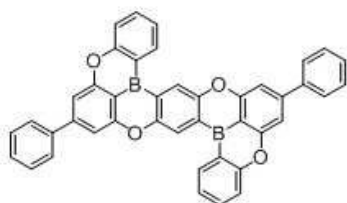
(1-271)



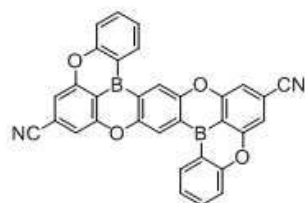
(1-272)



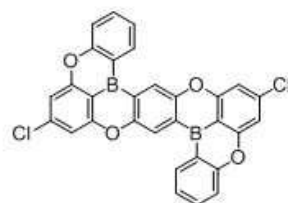
(1-273)



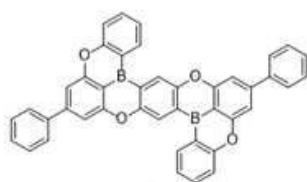
(1-274)



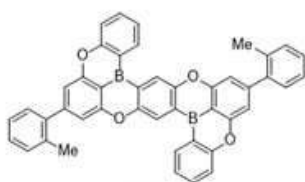
(1-275)



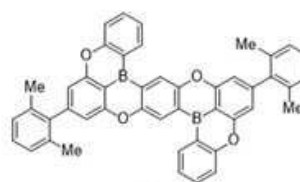
(1-276)



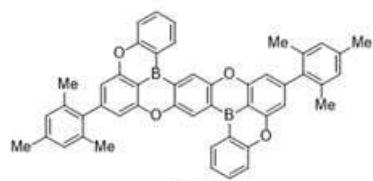
(1-277)



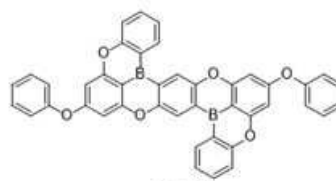
(1-278)



(1-279)



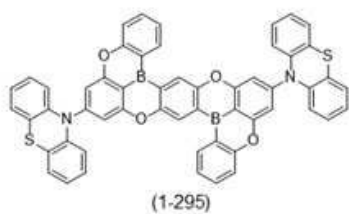
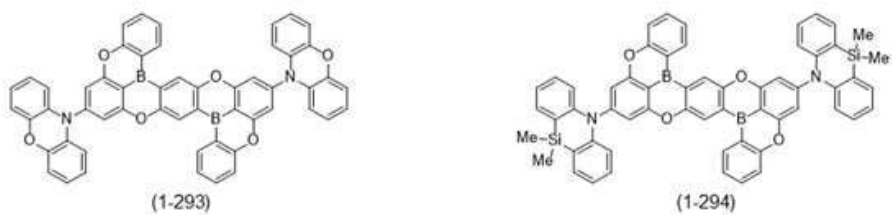
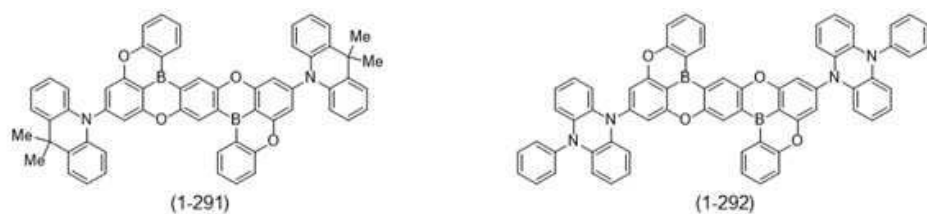
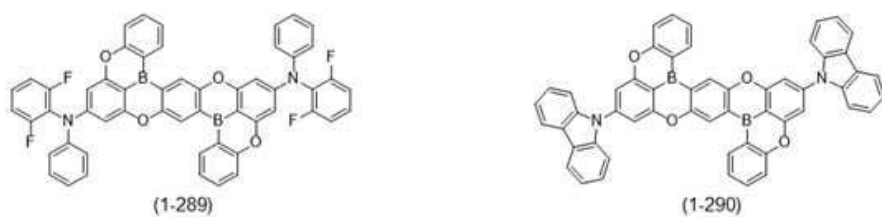
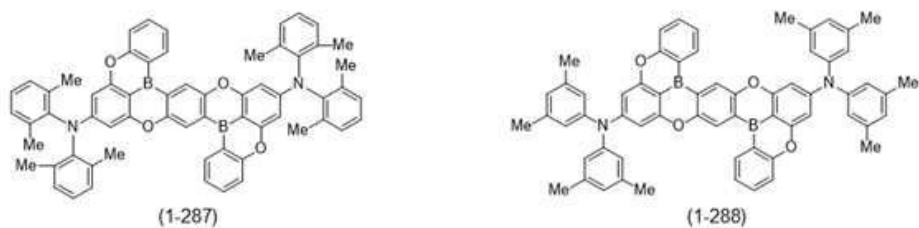
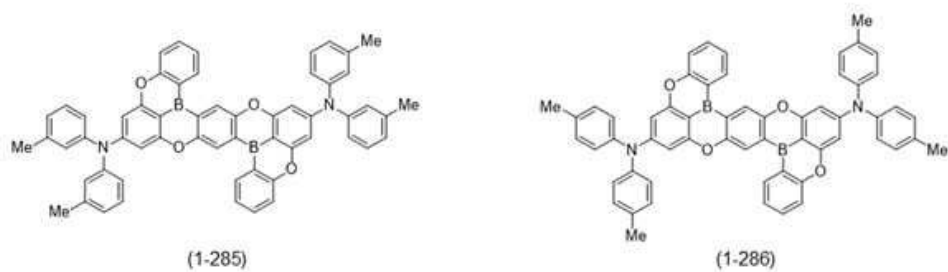
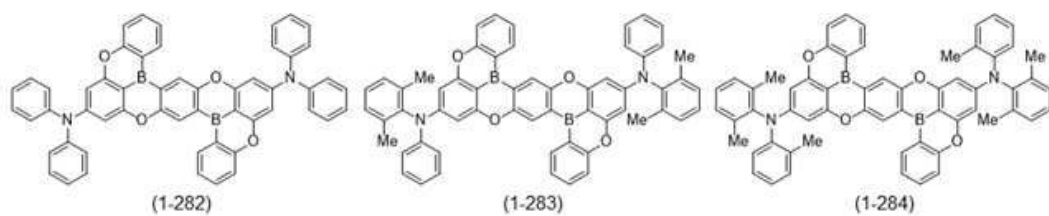
(1-280)



(1-281)

[0284]

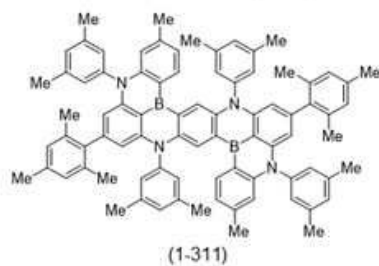
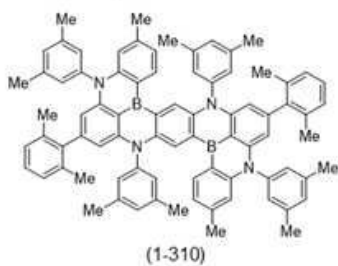
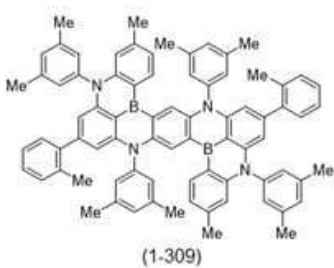
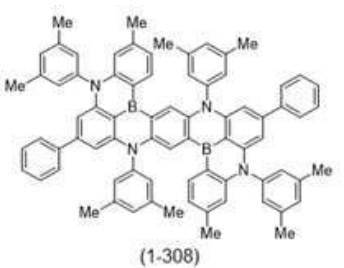
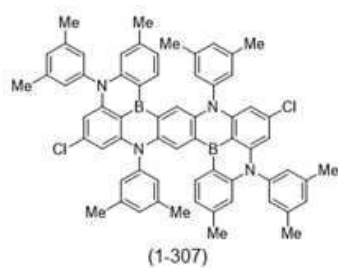
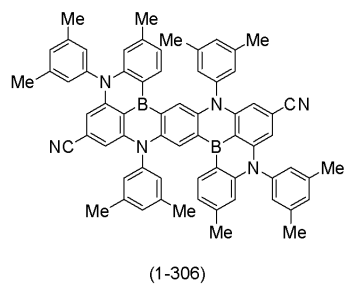
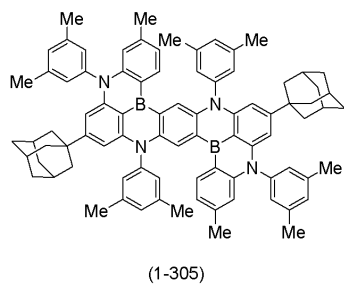
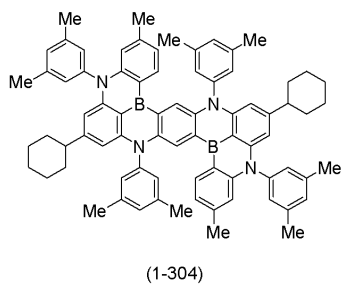
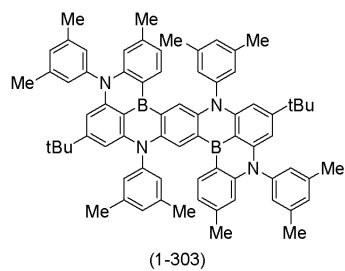
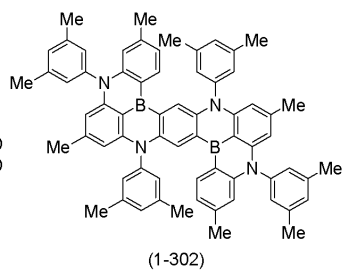
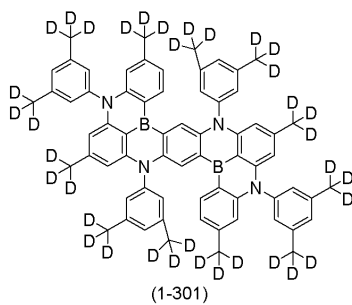
[0285]

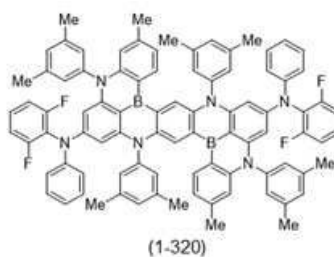
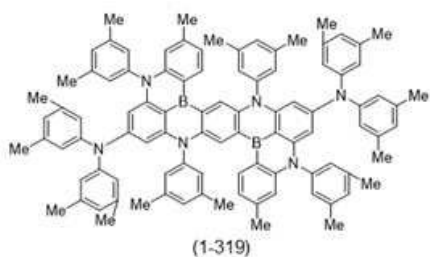
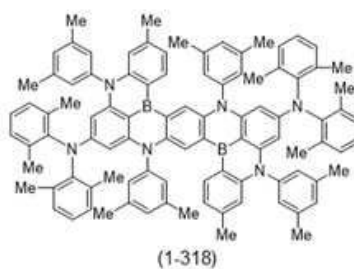
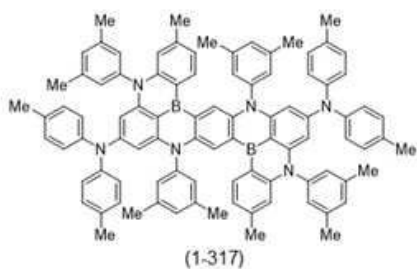
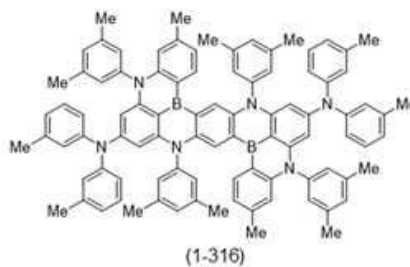
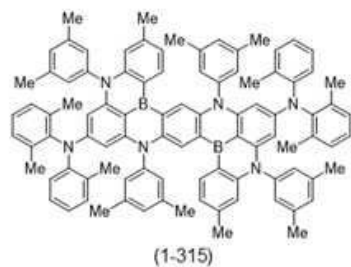
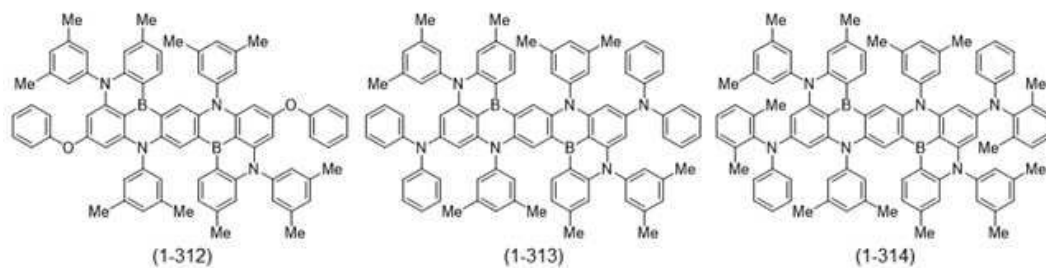


[0286]

[0287]



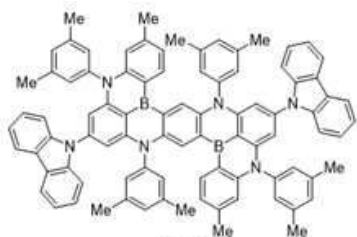




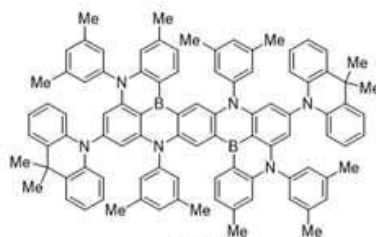
[0290]

[0291]

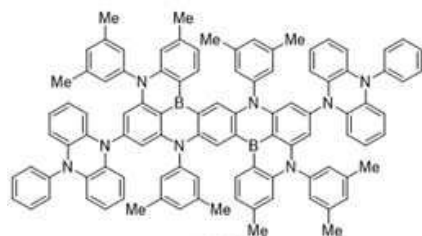




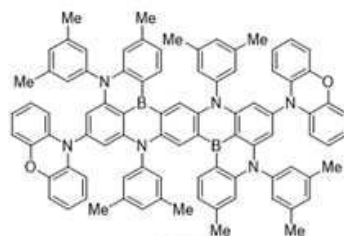
(1-321)



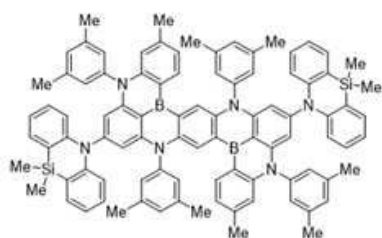
(1-322)



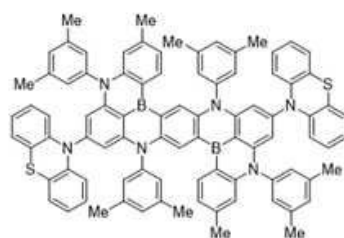
(1-323)



(1-324)

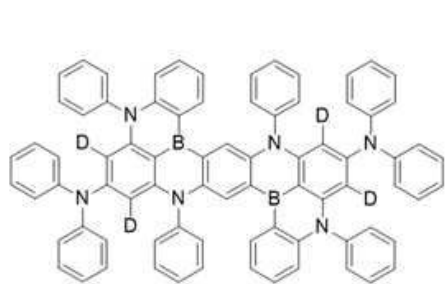


(1-325)

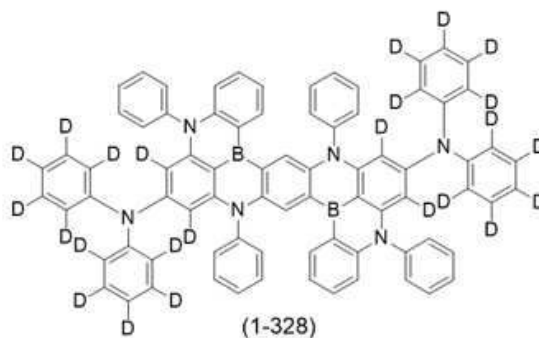


(1-326)

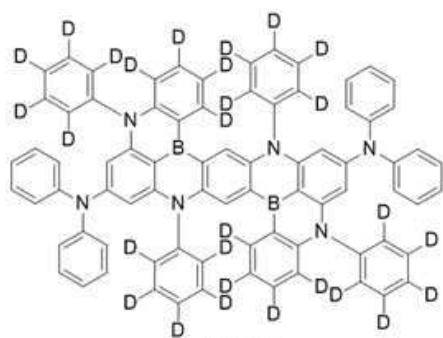
[0292]



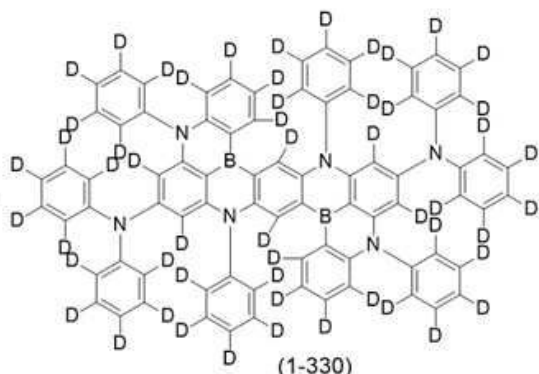
(1-327)



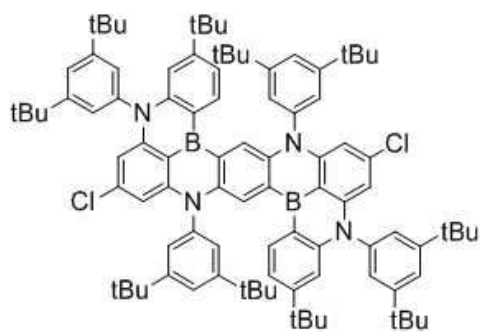
(1-328)



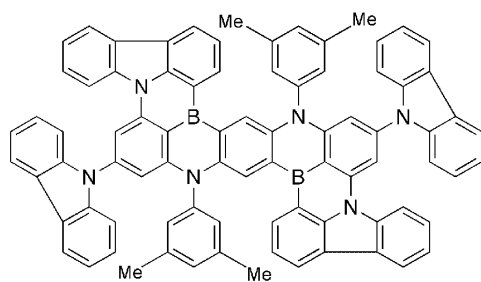
(1-329)



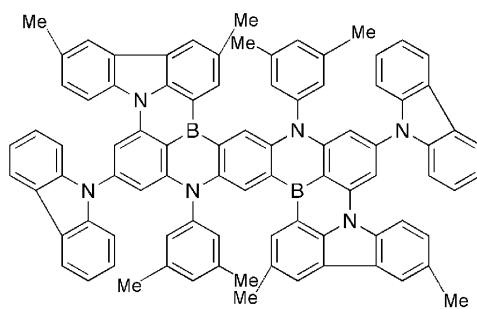
(1-330)



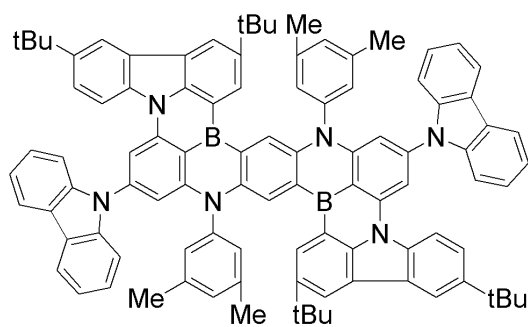
[0293]



(1-332)



(1-333)



(1-334)

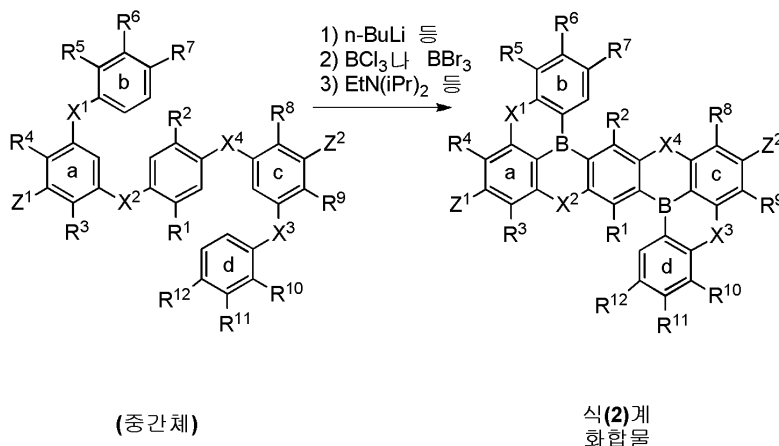
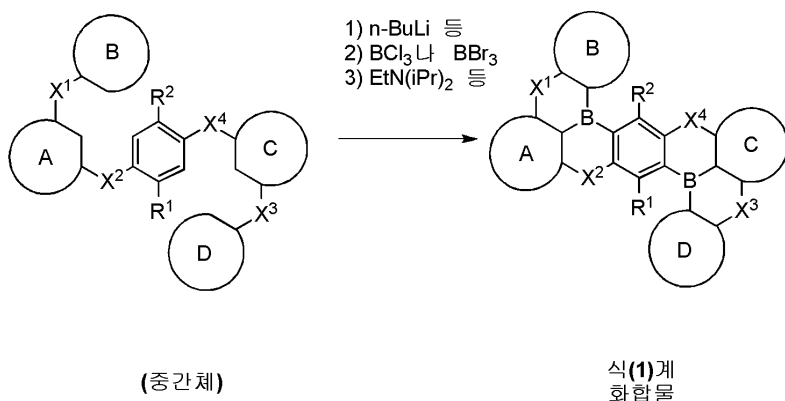
[0294]

[0295] 2. 다환 방향족 화합물의 제조 방법

[0296] 식(1), 바람직하게는 식(2)으로 표시되는 다환 방향족 화합물은, 기본적으로는, 각각의 환 구조끼리 결합시킴으로써 중간체를 제조하고(제1 반응), 그 후에, 각각의 환 구조를 붕소 원자로 결합시킴으로써 최종 생성물을 제조할 수 있다(제2 반응). 제1 반응에서는, 예를 들면, 구핵치환 반응, 울만(Ullmann) 반응과 같은 일반적인 에테르화 반응이나, 부흐발트-하트위그(Buchwald-Hartwig) 반응과 같은 일반적인 아미노화 반응 등을 이용할 수 있다. 또한, 제2 반응에서는, 탠덤 헤테로 폴리텔 크라프트 반응(연속적인 방향족 친전자치환 반응, 이하 동일)을 이용할 수 있다. 그리고, 이하의 각 스킴(scheme)에서의 구조식 중의 부호는, 식(1) 또는 식(2)의 이들과 같은 정의다.

[0297] 제2 반응은, 하기 스킴(1)에 나타낸 바와 같이, 각각의 환 구조를 결합하는 붕소 원자를 도입하는 반응이다. 먼저,  $X^1$ 과  $X^2$  사이 및  $X^3$ 와  $X^4$  사이의 수소 원자를 *n*-부틸리튬, *sec*-부틸리튬 또는 *tert*-부틸리튬 등으로 오르토 메탈화한다. 다음으로, 3염화 붕소나 3브롬화 붕소 등을 가하여, 리튬-붕소의 금속 교환을 행한 후, N,N-디이소프로필에틸아민 등의 브린스테드 염기를 가함으로써, 탠덤 보라 프리텔 크라프트 반응시켜, 목적물을 얻을 수 있다. 제2 반응에 있어서는 반응을 촉진시키기 위하여 3염화 알루미늄 등의 루이스산을 가해도 된다.

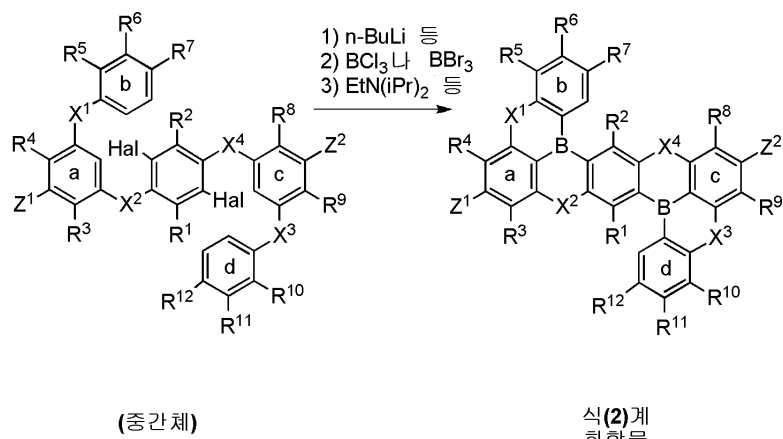
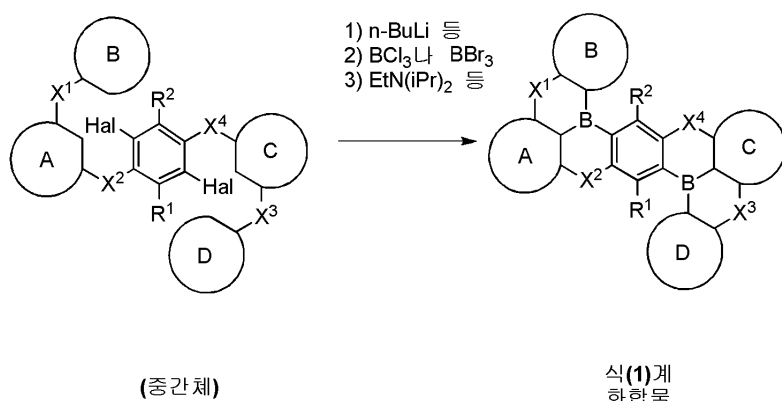
스킴(1)



[0298]

[0299] 스킴(1)에 있어서는, 오르토메탈화에 의해 원하는 위치에 리튬을 도입하였지만, 하기 스킴(2)과 같이 리튬을 도입하고자 하는 위치에 미리 할로젠 원자(Hal)를 도입하여, 할로젠-메탈 교환에 의해서도 원하는 위치에 리튬을 도입할 수 있다. 이 방법에 의하면, 치환기의 영향으로 오르토메탈화를 할 수 없는 케이스라도 목적물을 합성할 수 있어 유용하다.

스킴(2)



[0300]

[0301]

전술한 합성법을 적절하게 선택하고, 사용하는 원료도 적절하게 선택함으로써, 원하는 위치에 치환기를 가지며,  $X^1$ ,  $X^2$ ,  $X^3$  및  $X^4$ 가, 각각 독립적으로,  $>O$ ,  $>N-R$ ,  $>CR_2$ ,  $>S$  또는  $>Se$ 인 다환 방향족 화합물을 합성할 수 있다.

[0302]

그리고, 중간체에서의 예를 들면 아미노의 회전에 의해 탠덤 보라 프리델 크라프트 반응이 일어나는 개소(箇所)가 상이한 경우가 있으므로, 부생물이 생성될 가능성도 있다. 이와 같은 경우에는, 크로마토그래피나 재결정 등에 의해, 이들 혼합물로부터 원하는 다환 방향족 화합물을 분리할 수 있다.

[0303]

상기 스킴에서 사용하는 오르토메탈화 시약으로서, 예를 들면, 메틸리튬, n-부틸리튬, sec-부틸리튬, tert-부틸리튬 등의 알킬리튬, 리튬디이소프로필아미드, 리튬테트라메틸피페리드, 리튬헥사메틸디실라지드, 칼륨헥사메틸디실라지드 등의 유기 알칼리 화합물이 있다.

[0304]

상기 스킴에서 사용하는 메탈-붕소의 금속 교환 시약으로서, 붕소의 3불화물, 3염화물, 3브롬화물, 3요오드화물 등의 붕소할로겐화물,  $CIPN(NEt_2)_2$  등의 붕소의 아미노화 할로겐화물, 붕소의 알콕시화물, 붕소의 아릴옥시화물 등을 예로 들 수 있다.

[0305]

상기 스킴에서 사용하는 브뢴스테드 염기로서, N,N-디이소프로필에틸아민, 트리에틸아민, 2,2,6,6-테트라메틸피페리딘, 1,2,2,6,6-펜타메틸피페리딘, N,N-디메틸아닐린, N,N-디메틸톨루이딘, 2,6-루티딘, 테트라페닐붕산 나트륨, 테트라페닐붕산 칼륨, 트리페닐보란, 테트라페닐실란,  $Ar_4BNa$ ,  $Ar_4BK$ ,  $Ar_3B$ ,  $Ar_4Si$  (그리고, Ar은 페닐 등의 아릴) 등을 예로 들 수 있다.

[0306]

상기 스킴에서 사용하는 루이스산으로서,  $AlCl_3$ ,  $AlBr_3$ ,  $AlF_3$ ,  $BF_3 \cdot OEt_2$ ,  $BCl_3$ ,  $BBr_3$ ,  $GaCl_3$ ,  $GaBr_3$ ,  $InCl_3$ ,  $InBr_3$ ,  $In(OTf)_3$ ,  $SnCl_4$ ,  $SnBr_4$ ,  $AgOTf$ ,  $ScCl_3$ ,  $Sc(OTf)_3$ ,  $ZnCl_2$ ,  $ZnBr_2$ ,  $Zn(OTf)_2$ ,  $MgCl_2$ ,  $MgBr_2$ ,  $Mg(OTf)_2$ ,  $LiOTf$ ,  $NaOTf$ ,  $KOTf$ ,  $Me_3SiOTf$ ,  $Cu(OTf)_2$ ,  $CuCl_2$ ,  $YCl_3$ ,  $Y(OTf)_3$ ,  $TiCl_4$ ,  $TiBr_4$ ,  $ZrCl_4$ ,  $ZrBr_4$ ,  $FeCl_3$ ,  $FeBr_3$ ,  $CoCl_3$ ,  $CoBr_3$  등을 예로 들 수 있다.

- [0307] 상기 스킴에서는, 탠덤 헤테로 플리델 크라프트 반응의 촉진을 위하여 브린스테드 염기 또는 루이스산을 사용해도 된다. 다만, 붕소의 3불화물, 3염화물, 3브롬화물, 3요오드화물 등의 붕소 할로겐화물을 사용한 경우에는, 방향족 친전자 치환 반응의 진행과 함께, 불화수소, 염화수소, 브롬화수소, 요오드화수소와 같은 산이 생성되므로, 산을 포착하는 브린스테드 염기의 사용이 효과적이다. 한편, 붕소의 아미노화 할로겐화물, 붕소의 알콕시화물을 사용한 경우에는, 방향족 친전자 치환 반응의 진행과 함께, 아민, 알코올이 생성되므로, 대부분의 경우, 브린스테드 염기를 사용할 필요는 없지만, 아미노나 알콕시의 탈리능이 낮으므로, 그 탈리를 촉진하는 루이스산의 사용이 효과적이다.
- [0308] 시아노 또는 할로젠을 구조 중에 가지는, 식(1)으로 표시되는 다환 방향족 화합물은 원하는 개소가 시아노화, 할로겐화, 중수소화된 원료를 사용함으로써, 상기과 동일하게 합성할 수 있다. 또한, 적어도 일부의 수소 원자가 중수소로 치환되어 있는 화합물은 원하는 개소가 중수소화된 원료를 사용함으로써, 상기과 동일하게 합성할 수 있다.
- [0309] 3. 유기 디바이스
- [0310] 본 발명에 따른 다환 방향족 화합물은, 유기 디바이스용 재료로서 사용할 수 있다. 유기 디바이스로서는, 예를 들면, 유기전계 발광소자, 유기전계 효과 트랜지스터 또는 유기박막 태양전지 등이 있다.
- [0311] 3-1. 유기전계 발광소자
- [0312] 본 발명에 따른 다환 방향족 화합물은, 예를 들면, 유기전계 발광소자의 재료로서 사용할 수 있다. 이하에, 본 실시형태에 따른 유기 EL 소자에 대하여 도면에 기초하여 상세하게 설명한다. 도 1은, 본 실시형태에 따른 유기 EL 소자를 나타내는 개략단면도이다.
- [0313] <유기전계 발광소자의 구조>
- [0314] 도 1에 나타난 유기전계 발광소자(100)는, 기판(101)과, 기판(101) 상에 설치된 양극(102)과, 양극(102) 위에 설치된 정공주입층(103)과, 정공주입층(103) 위에 설치된 정공수송층(104)과, 정공수송층(104) 위에 설치된 발광층(105)과, 발광층(105) 위에 설치된 전자수송층(106)과, 전자수송층(106) 위에 설치된 전자주입층(107)과, 전자주입층(107) 위에 설치된 음극(108)을 가진다.
- [0315] 그리고, 유기전계 발광소자(100)는, 제작 순서를 반대로 하여, 예를 들면, 기판(101)과, 기판(101) 상에 설치된 음극(108)과, 음극(108) 위에 설치된 전자주입층(107)과, 전자주입층(107) 위에 설치된 전자수송층(106)과, 전자수송층(106) 위에 설치된 발광층(105)과, 발광층(105) 위에 설치된 정공수송층(104)과, 정공수송층(104) 위에 설치된 정공주입층(103)과, 정공주입층(103) 위에 설치된 양극(102)을 가지는 구성으로 해도 된다.
- [0316] 상기한 각 층이 모두가 없으면 안되는 것은 아니며, 최소 구성단위를 양극(102)과 발광층(105)과 음극(108)으로 이루어지는 구성으로 하고, 정공주입층(103), 정공수송층(104), 전자수송층(106), 전자주입층(107)은 임의로 설치되는 층이다. 또한, 상기한 각 층은, 각각 단일층으로 되어도 되고, 복수층으로 되어도 된다.
- [0317] 유기전계 발광소자를 구성하는 층의 태양으로서, 전술한 「기판/양극/정공주입층/정공수송층/발광층/전자수송층/전자주입층/음극」의 구성 태양 이외에, 「기판/양극/정공수송층/발광층/전자수송층/전자주입층/음극」, 「기판/양극/정공주입층/발광층/전자수송층/전자주입층/음극」, 「기판/양극/정공주입층/정공수송층/발광층/전자수송층/음극」, 「기판/양극/정공주입층/정공수송층/발광층/전자수송층/음극」, 「기판/양극/정공수송층/발광층/전자주입층/음극」, 「기판/양극/정공수송층/발광층/전자주입층/음극」, 「기판/양극/정공수송층/발광층/전자주입층/음극」, 「기판/양극/정공수송층/발광층/전자주입층/음극」, 「기판/양극/정공수송층/발광층/전자주입층/음극」, 「기판/양극/정공수송층/발광층/전자주입층/음극」의 구성 태양이라도 된다.
- [0318] 유기전계 발광소자에서의 기판>
- [0319] 기판(101)은, 유기전계 발광소자(100)의 지지체이며, 통상, 석영, 유리, 금속, 플라스틱 등이 사용된다. 기판(101)은, 목적에 따라 판형, 필름형, 또는 시트형으로 형성되고, 예를 들면, 유리판, 금속판, 금속박, 플라스틱 필름, 플라스틱 시트 등이 사용된다. 그 중에서도, 유리판, 및 폴리에스테르, 폴리메타크릴레이트, 폴리카보네이트, 폴리술폰 등의 투명한 합성 수지체의 판이 바람직하다. 유리 기판이면, 소다라임 유리나 무알칼리 유리 등이 사용되고, 또한 두께도 기계적 강도를 유지하기에 충분한 두께이면 되므로, 예를 들면, 0.2mm 이상이면 된다. 두께의 상한값으로서는, 예를 들면, 2mm 이하, 바람직하게는 1mm 이하이다. 유리의 재질에 대해서는, 유리

로부터의 용출 이온이 적은 것이 좋으므로 무알칼리 유리가 바람직하지만, SiO<sub>2</sub> 등의 배리어코팅을 실시한 소다 임 유리도 시판되고 있으므로 이것을 사용할 수 있다. 또한, 기관(101)에는, 가스 배리어성을 높이기 위하여, 적어도 한쪽 면에 치밀한 실리콘 산화막 등의 가스 배리어막을 형성해도 되고, 특히 가스 배리어성이 낮은 합성 수지제의 판, 필름 또는 시트를 기관(101)으로서 사용하는 경우에는 가스 배리어막을 형성하는 것이 바람직하다.

[0320] <유기전계 발광소자에서의 양극>

[0321] 양극(102)은, 발광층(105)에 정공을 주입하는 역할을 한다. 그리고, 양극(102)과 발광층(105) 사이에 정공주입층(103) 및/또는 정공수송층(104)이 설치되어 있는 경우에는, 이들을 통하여 발광층(105)에 정공을 주입하게 된다.

[0322] 양극(102)을 형성하는 재료로서는, 무기 화합물 및 유기 화합물을 예로 들 수 있다. 무기 화합물로서는, 예를 들면, 금속(알루미늄, 금, 은, 니켈, 팔라듐, 크롬 등), 금속 산화물(인듐의 산화물, 주석의 산화물, 인듐-주석 산화물(ITO), 인듐-아연 산화물(IZO) 등), 할로젠화 금속(요오드화 구리 등), 황화 구리, 카본블랙, ITO 유리나 네사 글래스(NESA glass) 등이 있다. 유기 화합물로서는, 예를 들면, 폴리(3-메틸티오펜) 등의 폴리티오펜, 폴리피롤, 폴리아닐린 등의 도전성 폴리머 등이 있다. 그 외, 유기전계 발광소자의 양극으로서 사용되고 있는 물질 중에서 적절하게 선택하여 사용할 수 있다.

[0323] 투명 전극의 저항은, 발광 소자의 발광에 충분한 전류를 공급할 수 있으면 되므로, 한정되지 않지만, 발광 소자의 소비 전력의 관점에서는 저저항인 것이 바람직하다. 예를 들면, 300Ω/□ 이하의 ITO 기관이면 소자 전극으로서 기능하지만, 현재로는 10Ω/□ 정도의 기관의 공급도 가능하게 되어 있으므로, 예를 들면, 100~50 Ω/□ 바람직하게는 50~5 Ω/□의 저저항품을 사용하는 것이 특히 바람직하다. ITO의 두께는 저항값에 맞추어서 임의로 선택할 수 있지만, 통상 50~300 nm 사이에서 사용되는 경우가 많다.

[0324] <유기전계 발광소자에서의 정공주입층, 정공수송층>

[0325] 정공주입층(103)은, 양극(102)으로부터 이동해 오는 정공을, 효율적으로 발광층(105) 내 또는 정공수송층(104) 내에 주입하는 역할을 한다. 정공수송층(104)은, 양극(102)으로부터 주입된 정공 또는 양극(102)으로부터 정공주입층(103)을 통하여 주입된 정공을, 효율적으로 발광층(105)에 수송하는 역할을 한다. 정공주입층(103) 및 정공수송층(104)은, 각각, 정공 주입·수송 재료의 1종 또는 2종 이상을 적층, 혼합하거나, 정공 주입·수송 재료와 고분자 결합체의 혼합물에 의해 형성된다. 또한, 정공 주입·수송 재료에 염화철(III)과 같은 무기염을 첨가하여 층을 형성해도 된다.

[0326] 정공 주입·수송성 물질로서는 전계가 인가된 전극 사이에 있어서 양극으로부터의 정공을 효율적으로 주입·수송하는 것이 필요하며, 정공주입 효율이 높고, 주입된 정공을 효율적으로 수송하는 것이 바람직하다. 이를 위해서는 이온화 포텐셜이 작고, 또한 정공이동도가 크고, 나아가서는 안정성이 우수하고, 트랩이 되는 불순물이 제조 시 및 사용 시에 쉽게 생기지 않는 물질인 것이 바람직하다.

[0327] 정공주입층(103) 및 정공수송층(104)을 형성하는 재료로서는, 광도전 재료에 있어서, 정공의 전하수송 재료로서 종래부터 관용되고 있는 화합물, p형 반도체, 유기전계 발광소자의 정공주입층 및 정공수송층에 사용되고 있는 공지의 화합물 중에서 임의의 화합물을 선택하여 사용할 수 있다.

[0328] 이들의 구체예는, 카르바졸 유도체(N-페닐카르바졸, 폴리비닐카르바졸 등), 비스(N-아릴카르바졸) 또는 비스(N-알킬카르바졸) 등의 비스카르바졸 유도체, 트리아릴아민 유도체(방향족 제3급 아미노를 주쇄 또는 측쇄에 가지는 폴리머, 1,1'-비스(4-디-p-톨릴아미노페닐)시클로헥산, N,N'-디페닐-N,N'-디(3-메틸페닐)-4,4'-디아미노비페닐, N,N'-디페닐-N,N'-디나프틸-4,4'-디아미노비페닐, N,N'-디페닐-N,N'-디(3-메틸페닐)-4,4'-디페닐-1,1'-디아민, N,N'-디나프틸-N,N'-디페닐-4,4'-디페닐-1,1'-디아민, N<sup>4</sup>,N<sup>4'</sup>-디페닐-N<sup>4</sup>,N<sup>4'</sup>-비스(9-페닐-9H-카르바졸-3-일)-[1,1'-비페닐]-4,4'-디아민, N<sup>4</sup>,N<sup>4</sup>,N<sup>4'</sup>,N<sup>4'</sup>-테트라[1,1'-비페닐]-4-일)-[1,1'-비페닐]-4,4'-디아민, 4,4',4''-트리스(3-메틸페닐(페닐)아미노)트리페닐아민 등의 트리페닐아민 유도체, 스타버스트아민 유도체 등), 스틸벤 유도체, 프탈로시아닌 유도체(무금속, 구리 프탈로시아닌 등), 피라졸린 유도체, 히드라존계 화합물, 벤조퓨란 유도체나티오펜 유도체, 옥사디아졸 유도체, 퀴놀라린 유도체(예를 들면, 1,4,5,8,9,12-헥사아자트리페닐렌-2,3,6,7,10,11-헥사카르보니트릴 등), 포르피린 유도체 등의 복소환 화합물, 폴리실란 등이다. 폴리머계에서는 상기 단량체를 측쇄에 가지는 폴리카보네이트나 스티렌 유도체, 폴리비닐카르바졸 및 폴리실란 등이 바람직하지만, 발광 소자의 제작에 필요한 박막을 형성하고, 양극으로부터

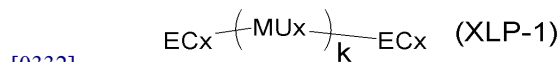


정공을 주입할 수 있고, 또한 정공을 수송할 수 있는 화합물이라면 특별히 한정되지 않는다.

[0329] 또한, 유기반도체의 도전성은, 그 도핑에 의해, 강한 영향을 받는 것도 알려져 있다. 이와 같은 유기반도체 매트릭스 물질은, 전자제공성이 양호한 화합물, 또는, 전자수용성이 양호한 화합물로 구성되어 있다. 전자제공 물질의 도핑을 위해서, 테트라시아노퀴논디메탄(TCNQ) 또는 2,3,5,6-테트라플루오로테트라시아노-1,4-벤조퀴논디메탄(F4TCNQ) 등의 강한 전자수용체가 알려져 있다(예를 들면, 문헌 「M.Pfeiffer, A.Beyer, T.Fritz, K.Leo, Appl.Phys.Lett., 73(22), 3202-3204(1998)」 및 문헌 「J.Blochitz, M.Pfeiffer, T.Fritz, K.Leo, Appl.Phys.Lett., 73(6), 729-731(1998)」을 참조). 이들은, 전자제공형 베이스 물질(정공수송 물질)에서의 전자이동 프로세스에 의해, 소위 정공을 생성한다. 정공의 수 및 이동도에 의해, 베이스 물질의 전도성이, 매우 크게 변화된다. 정공수송 특성을 가지는 매트릭스 물질로서는, 예를 들면, 벤지딘 유도체(TPD 등) 또는 스타버스트아민 유도체(TDATA 등) 또는 특정한 금속 프탈로시아닌(특히, 아연 프탈로시아닌(ZnPc) 등)이 알려져 있다(일본공개특허 제2005-167175호 공보). 또한, 정공 주입·수송성 재료로서는, 실시예에서 나타내는 PEDOT/PSS로서 알려져 있는 도전성 폴리머를 사용할 수도 있다.

[0330] 가교성 고분자재료: 식(XLP-1)으로 표시되는 화합물

[0331] 정공주입층, 정공수송층은 식(XLP-1)으로 표시되는 화합물을 포함하는 것도 바람직하다. 그리고, 식(XLP-1)으로 표시되는 화합물은 유기전계 발광소자에서의 다른 유기층에 포함되어 있어도 된다. 특히, 유기층을 유기층 형성용 조성물의 습식성막법에 의해 성막하는 경우에 있어서, 유기층 형성용 조성물은 식(XLP-1)으로 표시되는 화합물을 포함하는 것이 바람직하다.



[0333] 식(XLP-1)에 있어서,

[0334] MUx는 각각 독립적으로 상기 MU 또는 가교성 치환기(PG)를 가지는 방향족 화합물 중 어느 2개의 수소를 제거하고 얻어지는 2가의 기이며, ECx는 각각 독립적으로 상기 EC 또는 가교성 치환기(PG)를 가지는 방향족 화합물 중 어느 하나의 수소를 제거하고 얻어지는 1가의 기이며, 다만, 가교성 치환기(PG)를 가지는 1가 및 2가의 방향족 화합물 함유량은, 분자 중 0.1~80 wt%이며, k는 2~50000의 정수이다.

[0335] 보다 구체적으로는,

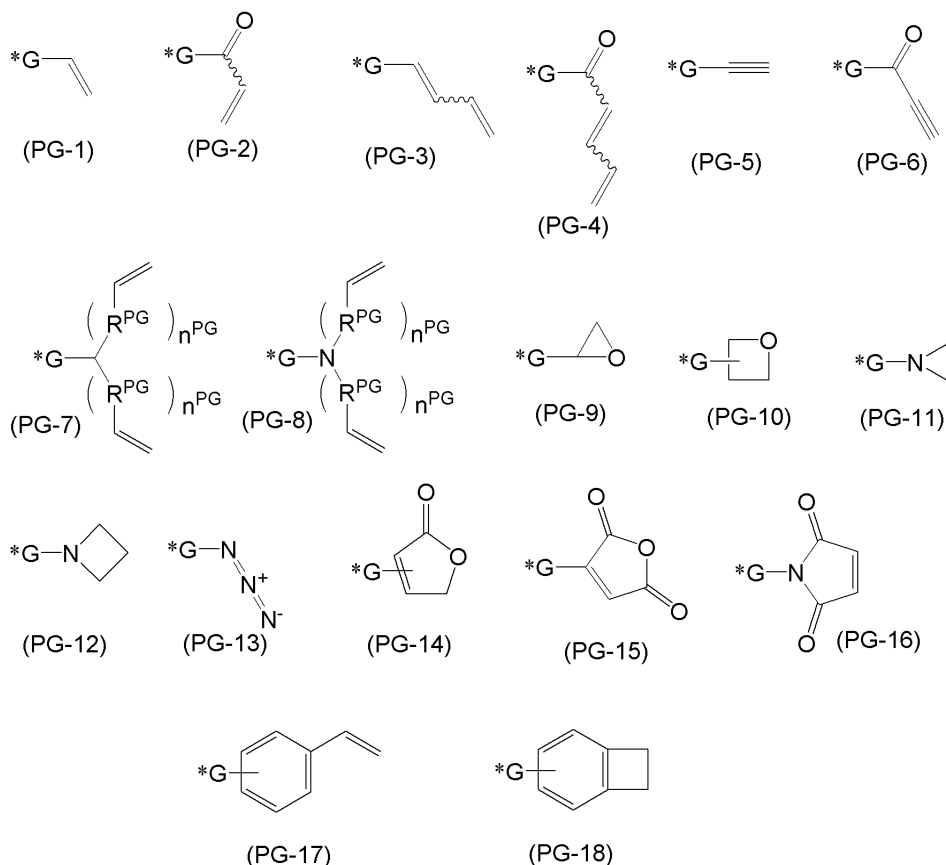
[0336] MUx에서의 가교성 치환기(PG)를 가지는 방향족 화합물 중 어느 2개의 수소를 제거하고 얻어지는 2가의 기는, 각각 독립적으로, 아릴렌, 헤테로아릴렌, 디아릴렌아릴아미노, 디아릴렌아릴보릴, 옥사보린-디일, 또는 아자보린-디일 등이며, 이들 2가의 기에서의 적어도 1개의 수소는 가교성 치환기(PG)로 치환되어 있고, 이들 2가의 기에서의 적어도 1개의 수소는 또한, 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬 및시클로알킬으로 이루어지는 군으로부터 선택되는 1개 이상의 치환기로 치환되어 있어도 된다. MUx에 가교성 치환기(PG)가 2개 이상 존재하는 경우에는, 이들은 동일해도 되고 상이해도 되지만, 동일한 것이 바람직하다.

[0337] ECx에서의 가교성 치환기(PG)를 가지는 방향족 화합물 중 어느 하나의 수소를 제외하고 얻어지는 1가의 기는, 각각 독립적으로, 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 디헤테로아릴아미노, 아릴헤테로아릴아미노 또는 아릴옥시이며, 이들의 1가의 기에서의 적어도 1개의 수소는 가교성 치환기(PG)로 치환되어 있고, 이들의 1가의 기에서의 적어도 1개의 수소는 또한, 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 알킬 및시클로알킬으로 이루어지는 군으로부터 선택되는 1개 이상의 치환기로 치환되어 있어도 된다. ECx에 가교성 치환기(PG)가 2개 이상 존재할 경우에는, 이들은 동일해도 되고 상이해도 되며, 동일한 것이 바람직하다.

[0338] 가교성 치환기(PG)를 가지는 방향족 화합물 중 어느 2개의 수소를 제거하고 얻어지는 2가의 기 및 방향족 화합물 중 어느 하나의 수소를 제거하고 얻어지는 1가의 기의 함유량은, 분자 중 0.1~80 wt%이며, 0.5~50 wt%가 바람직하고, 1~20 wt%가 보다 바람직하다.

[0339] k는 2~50000의 정수이며, 20~50000의 정수인 것이 바람직하고, 100~50000의 정수인 것이 보다 바람직하다. k개의 MUx가 2종 이상의 2가의 기로 이루어지는 경우, 이들 기는, 랜덤으로 결합하고 있어도 되고, 동종의 2가의 기가 블록이 되어 있어도 되지만, 후자가 바람직하다.

[0340] 가교성 치환기(PG)로서는, 예를 들면, 하기 식(PG-1)~식(PG-18)으로 표시되는 1가의 가교성 부분 구조가 2가의 부분 구조 중 L과 결합한 1가의 기가 있다.



[0341]

[0342]

상기 식(PG-1)~식(PG-18) 중,  $R^{PG}$ 는, 메틸렌, 산소 원자 또는 유황 원자를 나타내고,  $n^{PG}$ 는, 0~5의 정수를 나타내고,  $R^{PG}$ 가 복수 존재하는 경우, 이들은 동일해도 되고 상이해도 되고,  $n^{PG}$ 가 복수 존재하는 경우, 이들은 동일해도 되고 상이해도 되고,  $*G$ 는 결합 위치(L와의 결합 위치)를 나타내고, 식으로 표시되는 가교기는 모두 치환기를 가지고 있어도 된다.

[0343]

가교성 치환기(PG)에서의 상기 한 2가의 부분 구조 중 L로서는, 단결합,  $-O-$ ,  $>C=O$ ,  $-O-C(=O)-$ , 탄소수 1~12의 알킬렌, 탄소수 1~12의 옥시알킬렌 및 탄소수 1~12의 폴리옥시알킬렌을 예로 들 수 있다. 가교성 치환기(PG)로서는, 식(PG-1), 식(PG-2), 식(PG-3), 식(PG-9), 식(PG-10) 또는 식(PG-18)이 바람직하고, 식(PG-1), 식(PG-3) 또는 식(PG-18)이 보다 바람직하다.

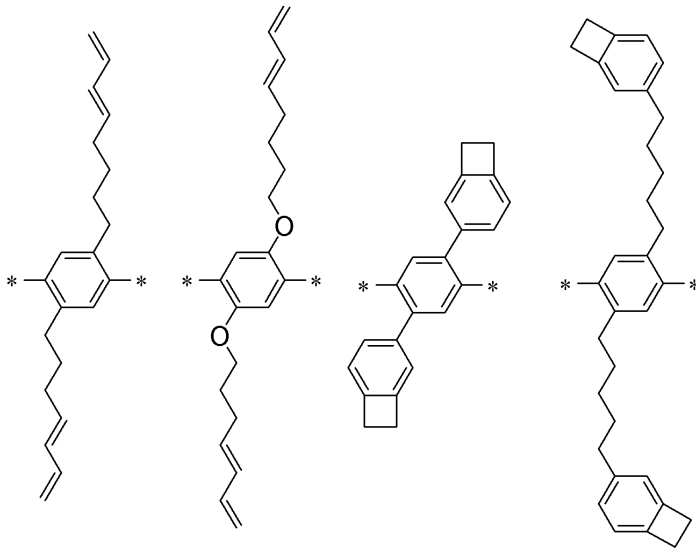
[0344]

식(XLP-1) 중에 복수의 가교성 치환기(PG)가 존재하는 경우에는, 이들은 동일해도 되고 상이해도 된다.

[0345]

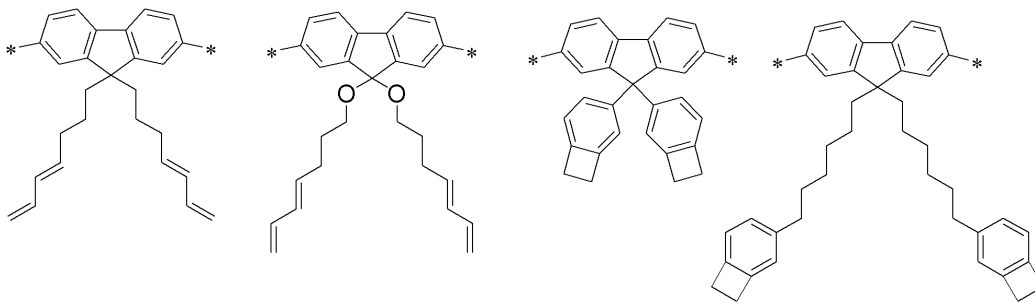
가교성 치환기(PG)를 가지는 방향족 화합물 중 어느 2개의 수소를 제거하고 얻어지는 2가의 기로서는, 예를 들면, 하기 2가의 기가 있다.



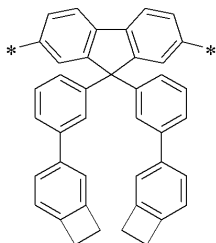


(Mux-1-1) (Mux-1-2) (Mux-1-3) (Mux-1-4)

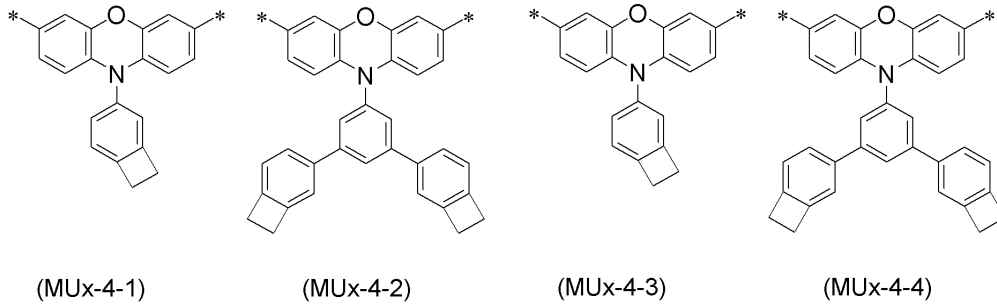
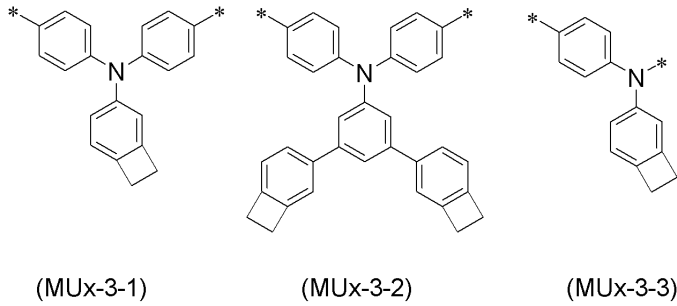
[0346]



(Mux-2-1) (Mux-2-2) (Mux-2-3) (Mux-2-4)



[0347]



#### <유기전계 발광소자에서의 발광층>

발광층(105)은, 전계가 인가된 전극 사이에 있어서, 양극(102)으로부터 주입된 정공과, 음극(108)으로부터 주입된 전자를 재결합시킴으로써 발광하는 층이다. 발광층(105)을 형성하는 재료로서는, 정공과 전자의 재결합에 의해 여기되어 발광하는 화합물(발광성 화합물)이면 되고, 안정한 박막 형상을 형성할 수 있고, 또한, 고체 상태에서 강한 발광(형광) 효율을 나타내는 화합물인 것이 바람직하다. 본 발명에서는, 발광층용의 재료로서, 상기 식(1)으로 표시되는 다환 방향족 화합물을 사용하는 것이 바람직하다.

발광층은 단일층이라도 되고 복수층으로 이루어져도 어느 쪽이라도 되고, 각각 발광층용 재료(호스트 재료, 도펀트 재료)에 의해 형성된다. 호스트 재료와 도펀트 재료는, 각각 1종류라도, 복수의 조합이라도, 어느 것이어도 된다. 도펀트 재료는 호스트 재료의 전체적으로 포함되어 있어도, 부분적으로 포함되어 있어도, 어느 것이어도 된다. 도핑 방법으로서, 호스트 재료와의 공증착법에 의해 형성할 수 있지만, 호스트 재료와 미리 혼합하고 나서 동시에 증착하거나, 유기용매와 함께 호스트 재료와 미리 혼합하고 나서 습식성막법에 의해 성막해드 된다.

호스트 재료의 사용량은 호스트 재료의 종류에 따라 상이하며, 그 호스트 재료의 특성에 맞추어서 정하면 된다. 호스트 재료의 사용량의 기준은, 바람직하게는 발광층용 재료 전체의 50~99.999 질량%이며, 보다 바람직하게는 80~99.95 질량%이며, 더욱 바람직하게는 90~99.9 질량%이다.

도펀트 재료의 사용량은 도펀트 재료의 종류에 따라 상이하며, 그 도펀트 재료의 특성에 맞추어서 정하면 된다. 도펀트의 사용량의 기준은, 바람직하게는 발광층용 재료 전체의 0.001~50 질량%이며, 보다 바람직하게는 0.05~20 질량%이며, 더욱 바람직하게는 0.1~10 질량%이다. 상기한 범위이면, 예를 들면, 농도 소광 현상을 방지할 수 있는 점에서 바람직하다.

한편, 열활성화 지연 형광도펀트 재료를 사용한 유기전계 발광 소자에 있어서는, 도펀트 재료의 사용량은 저농도인 것이 농도 소광 현상을 방지할 수 있는 점에서 바람직하지만, 도펀트 재료의 사용량이 고농도인 것이 열활성화 지연 형광 기구(機構)의 효율의 점에서는 바람직하다. 나아가서는, 열활성화 지연 형광 어시스팅 도펀트 재료를 사용한 유기전계 발광 소자에 있어서는, 어시스팅 도펀트 재료의 열활성화 지연 형광 기구의 효율의 점에서는, 어시스팅 도펀트 재료의 사용량에 비교하여 도펀트 재료(에미팅 도펀트)의 사용량이 저농도인 것이 바람직하다.

어시스팅 도펀트 재료가 사용되는 경우에서의, 호스트 재료, 어시스팅 도펀트 재료 및 도펀트 재료의 사용량의 기준은, 각각, 발광층용 재료 전체의 40~99.999 질량%, 59~1 질량% 및 20~0.001 질량%이며, 바람직하게는, 각각, 60~99.99 질량%, 39~5 질량% 및 10~0.01 질량%이며, 보다 바람직하게는, 70~99.95 질량%, 29~10 질량% 및 5~0.05 질량%이다. 본 발명에 따른 화합물 및 그 고분자 화합물은 어시스팅 도펀트 재료로서도 사용할

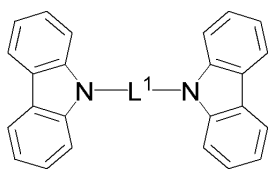
수도 있다.

[0356] [호스트 재료]

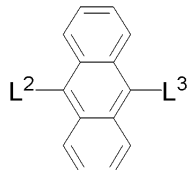
[0357] 호스트 재료로서는, 이전부터 발광체로서 알려져 있던 안트라센이나 피렌 등의 축합환 유도체, 비스스티릴안트라센 유도체나 디스티릴벤젠 유도체 등의 비스스티릴 유도체, 테트라페닐부타디엔 유도체, 시클로펜타디엔 유도체, 플루오렌 유도체, 벤조플루오렌 유도체 등을 예로 들 수 있다.

[0358] 호스트 재료의 T1 에너지는, 발광층 내에서의 TADF의 발생을 저해하지 않고 촉진시키는 관점에서, 발광층 내에 있어서 가장 높은 T1 에너지를 가지는 도펀트 또는 어시스트 도펀트의 T1 에너지에 비교하여 높은 것이 바람직하고, 구체적으로는, 호스트의 T1 에너지는, 0.01eV 이상이 바람직하고, 0.03eV 이상이 보다 바람직하고, 0.1eV 이상이 더욱 바람직하다. 또한, 호스트 재료에 TADF 활성인 화합물을 사용할 수도 있다.

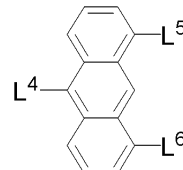
[0359] 호스트 재료로서는, 예를 들면, 하기 식(3), 하기 식(4) 또는 하기 식(5)으로 표시되는 화합물이 있다.



(3)



(4)



(5)

[0360]

[0361] 식(3) 중,  $L^1$ 은 탄소수 6~24의 아릴렌이며, 탄소수 6~16의 아릴렌이 바람직하고, 탄소수 6~12의 아릴렌이 보다 바람직하고, 탄소수 6~10의 아릴렌이 특히 바람직하고, 구체적으로는, 벤젠환, 비페닐환, 나프탈렌환, 테페닐환, 아세나프틸렌환, 플루오렌환, 페날렌환, 페난트렌환, 트리페닐렌환, 피렌환, 나프타센환, 페틸렌환 및 펜타센환 등의 2가의 기를 예로 들 수 있다.

[0362] 식(4) 중,  $L^2$  및  $L^3$ 는, 각각 독립적으로, 탄소수 6~30의 아릴 또는 탄소수 2~30의 헤테로아릴이다. 아릴로서는, 탄소수 6~24의 아릴이 바람직하고, 탄소수 6~16의 아릴이 보다 바람직하고, 탄소수 6~12의 아릴이 더욱 바람직하고, 탄소수 6~10의 아릴이 특히 바람직하고, 구체적으로는, 벤젠환, 비페닐환, 나프탈렌환, 테페닐환, 아세나프틸렌환, 플루오렌환, 페날렌환, 페난트렌환, 트리페닐렌환, 피렌환, 나프타센환, 페틸렌환 및 펜타센환 등의 1가의 기를 예로 들 수 있다. 헤테로아릴로서는, 탄소수 2~25의 헤테로아릴이 바람직하고, 탄소수 2~20의 헤테로아릴이 보다 바람직하고, 탄소수 2~15의 헤테로아릴이 더욱 바람직하고, 탄소수 2~10의 헤테로아릴이 특히 바람직하고, 구체적으로는, 피롤환, 옥사졸환, 이소옥사졸환, 티아졸환, 이소티아졸환, 이미다졸환, 옥사디아졸환, 티아디아졸환, 트리아졸환, 테트라졸환, 피라졸환, 피리딘환, 피리미딘환, 피리다진환, 피라진환, 트리아진환, 인돌환, 이소인돌환, 1H-인다졸환, 벤즈이미다졸환, 벤즈옥사졸환, 벤조티아졸환, 1H-벤조트리아졸환, 퀴놀린환, 이소퀴놀린환, 신놀린환, 퀴나졸린환, 퀴녹살린환, 프탈라진환, 나프티리딘환, 퓨린환, 프테리딘환, 카르바졸환, 아크리딘환, 페녹사티인환, 페녹사진환, 페노티아진환, 페나진환, 인돌리진환, 퓨란환, 벤조퓨란환, 이소벤조퓨란환, 디벤조퓨란환, 티오펜환, 벤조티오펜환, 디벤조티오펜환, 퓨라잔환, 및 티안트렌환 등의 1가의 기를 예로 들 수 있다.

[0363] 식(5) 중,  $L^4$ ,  $L^5$  및  $L^6$ 는, 각각 독립적으로, 탄소수 6~30의 아릴 또는 탄소수 2~30의 헤테로아릴이다. 아릴로서는, 탄소수 6~24의 아릴이 바람직하고, 탄소수 6~16의 아릴이 보다 바람직하고, 탄소수 6~12의 아릴이 더욱 바람직하고, 탄소수 6~10의 아릴이 특히 바람직하고, 구체적으로는, 벤젠환, 비페닐환, 나프탈렌환, 테페닐환, 아세나프틸렌환, 플루오렌환, 페날렌환, 페난트렌환, 트리페닐렌환, 피렌환, 나프타센환, 페틸렌환 및 펜타센환 등의 1가의 기를 예로 들 수 있다. 헤테로아릴로서는, 탄소수 2~25의 헤테로아릴이 바람직하고, 탄소수 2~20의 헤테로아릴이 보다 바람직하고, 탄소수 2~15의 헤테로아릴이 더욱 바람직하고, 탄소수 2~10의 헤테로아릴이 특히 바람직하고, 구체적으로는, 피롤환, 옥사졸환, 이소옥사졸환, 티아졸환, 이소티아졸환, 이미다졸환, 옥사디아졸환, 티아디아졸환, 트리아졸환, 테트라졸환, 피라졸환, 피리딘환, 피리미딘환, 피리다진환, 피라진환, 트리아진환, 인돌환, 이소인돌환, 1H-인다졸환, 벤즈이미다졸환, 벤즈옥사졸환, 벤조티아졸환, 1H-벤조트리아졸환, 퀴놀린환, 이소퀴놀린환, 신놀린환, 퀴나졸린환, 퀴녹살린환, 프탈라진환, 나프티리딘환, 퓨린환, 프테리딘환, 카르바졸환, 아크리딘환, 페녹사티인환, 페녹사진환, 페노티아진환, 페나진환, 인돌리진환, 퓨란환, 벤조퓨란환, 이소벤조퓨란환, 디벤조퓨란환, 티오펜환, 벤조티오펜환, 디벤조티오펜환, 퓨

라잔환, 및 티안트렌환 등의 1가의 기를 예로 들 수 있다.

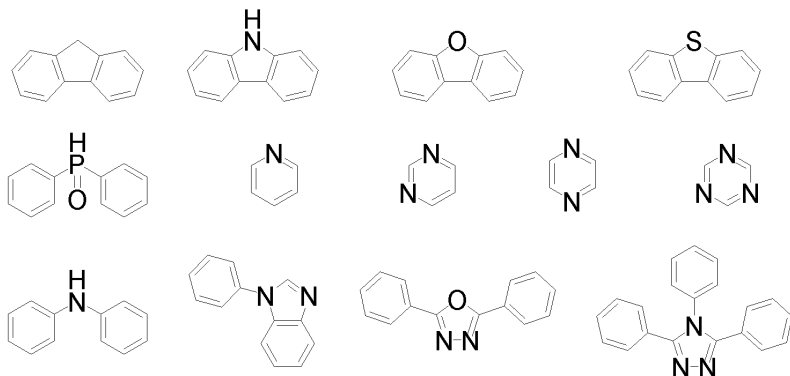
[0364]

식(3), 식(4) 또는 식(5)으로 표시되는 화합물에서의 적어도 1개의 수소는, 탄소수 1~6의 알킬, 시아노, 할로겐 또는 중수소로 치환되어 있어도 된다.

[0365]

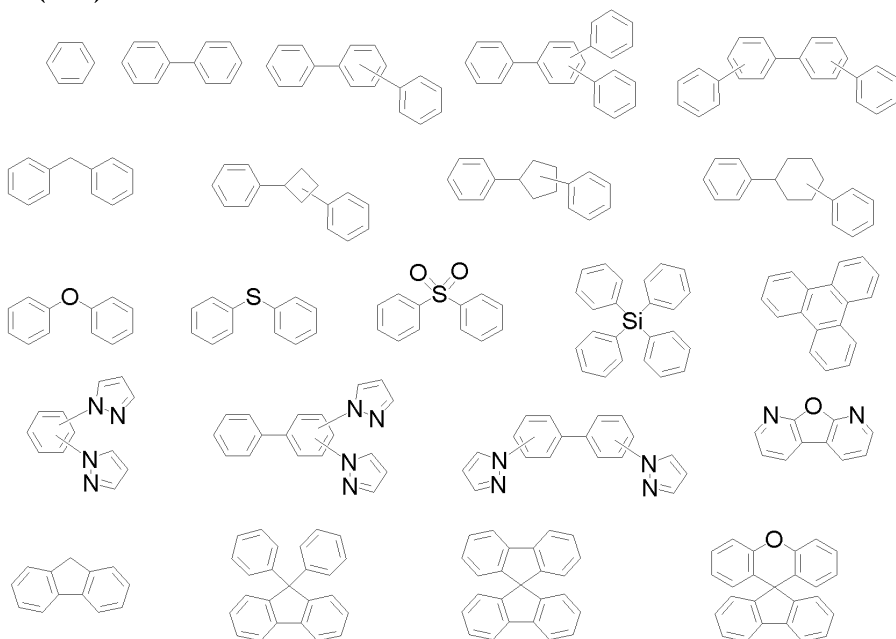
호스트 화합물로서는, 하기 식으로 표시되는 부분 구조(H-A)군으로부터 선택되는 적어도 1개의 구조를 가지는 화합물을 사용하는 것이 바람직하다. 이 화합물은 식(3), 식(4) 또는 식(5)으로 표시되는 화합물이라도 되고, 그 외의 화합물이라도 된다. 부분 구조(H-A)군 중의 각 구조에서의 적어도 1개의 수소 원자는, 부분 구조(H-A)군 또는 부분 구조(H-B)군 중의 어느 하나의 구조로 치환되어 있어도 되고, 이들 구조에서의 적어도 1개의 수소는, 중수소, 할로겐, 시아노, 탄소수 1~4의 알킬(예를 들면, 메틸이나 tert-부틸), 트리메틸실릴 또는 페닐로 치환되어 있어도 된다.

(H-A)



[0366]

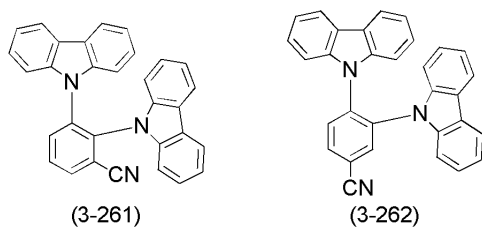
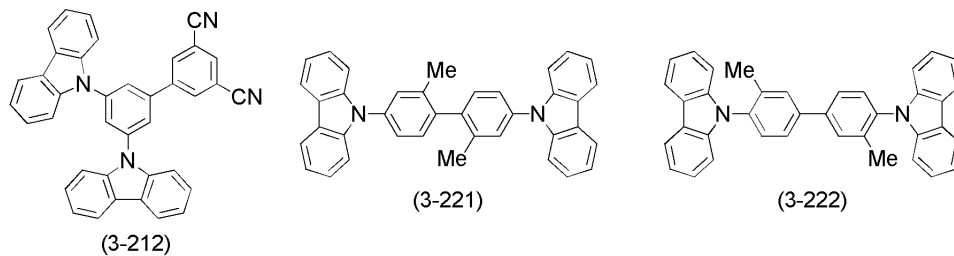
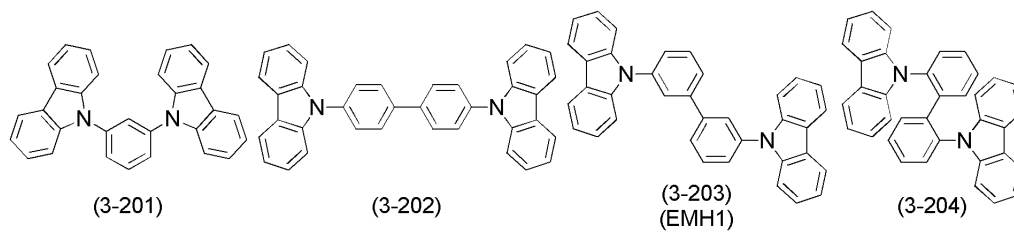
(H-B)



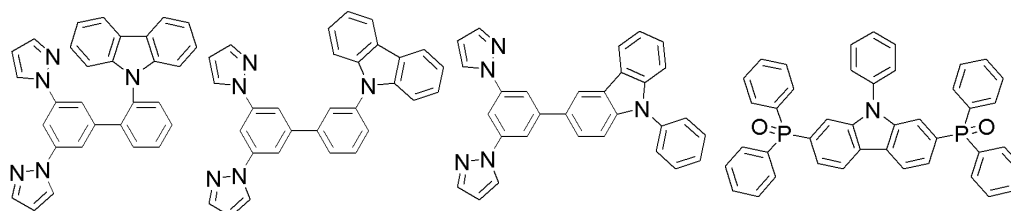
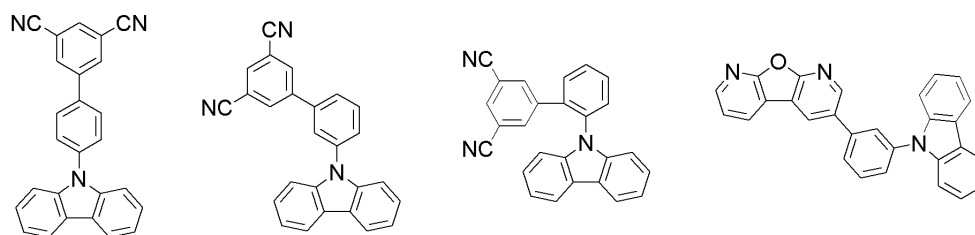
[0367]

[0368]

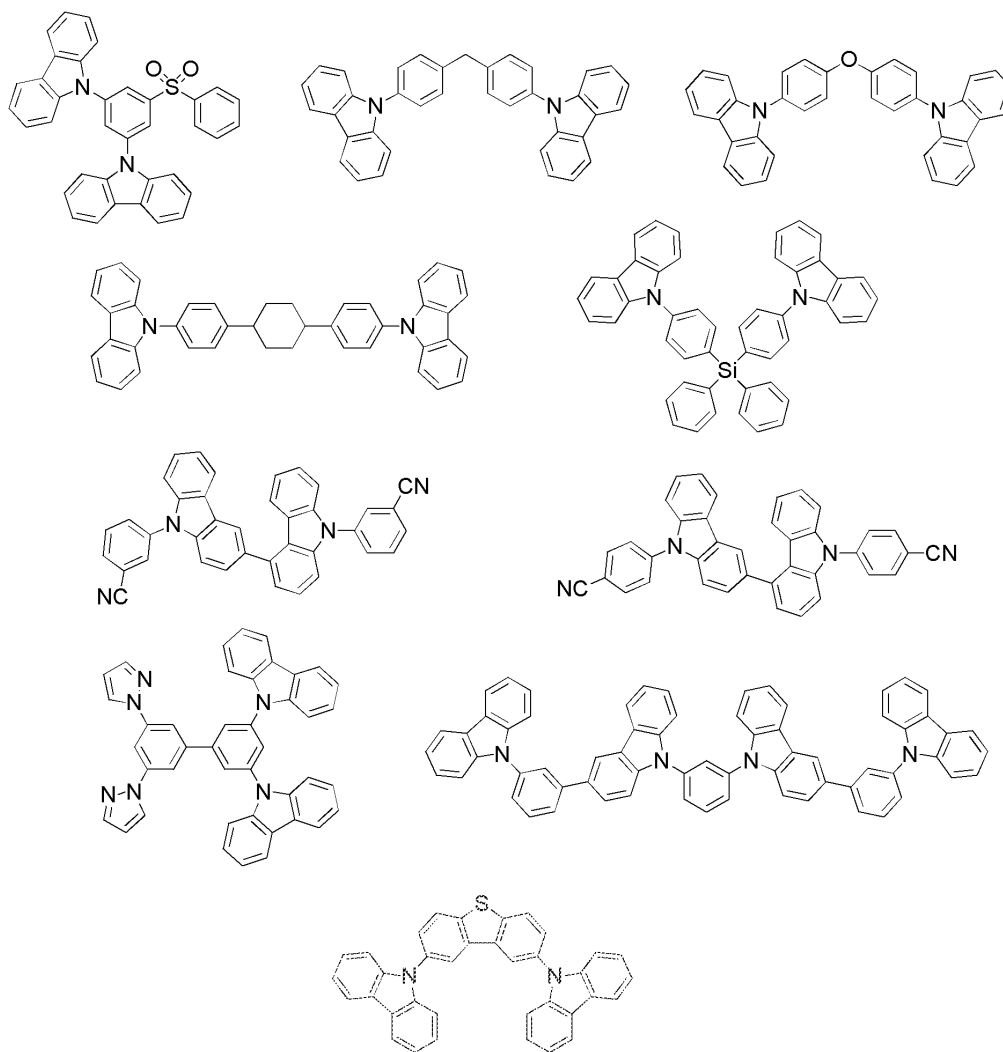
호스트 화합물로서는, 바람직하게는 이하에 열거한 어느 하나의 구조식으로 표시되는 화합물이며, 이들 중에서도, 보다 바람직하게는 상기 부분 구조(H-A)군으로부터 선택되는 구조를 1~3 개, 및 상기 부분 구조(H-B)군으로부터 선택되는 구조를 1개 가지는 화합물이며, 더욱 바람직하게는 상기 부분 구조(H-A)군으로서 카르바졸을 가지는 화합물이며, 특히 바람직하게는 하기 식(3-201), 식(3-202), 식(3-203), 식(3-204), 식(3-212), 식(3-221), 식(3-222), 식(3-261) 또는 식(3-262)으로 표시되는 화합물이다. 그리고, 이하에 열거한 구조식에 있어서는, 적어도 1개의 수소는, 할로겐, 시아노, 탄소수 1~4의 알킬(예를 들면, 메틸이나 tert-부틸), 페닐 또는 나프틸 등으로 치환되어 있어도 된다. 그리고, 하기 식 중, Me는 메틸을 나타낸다.



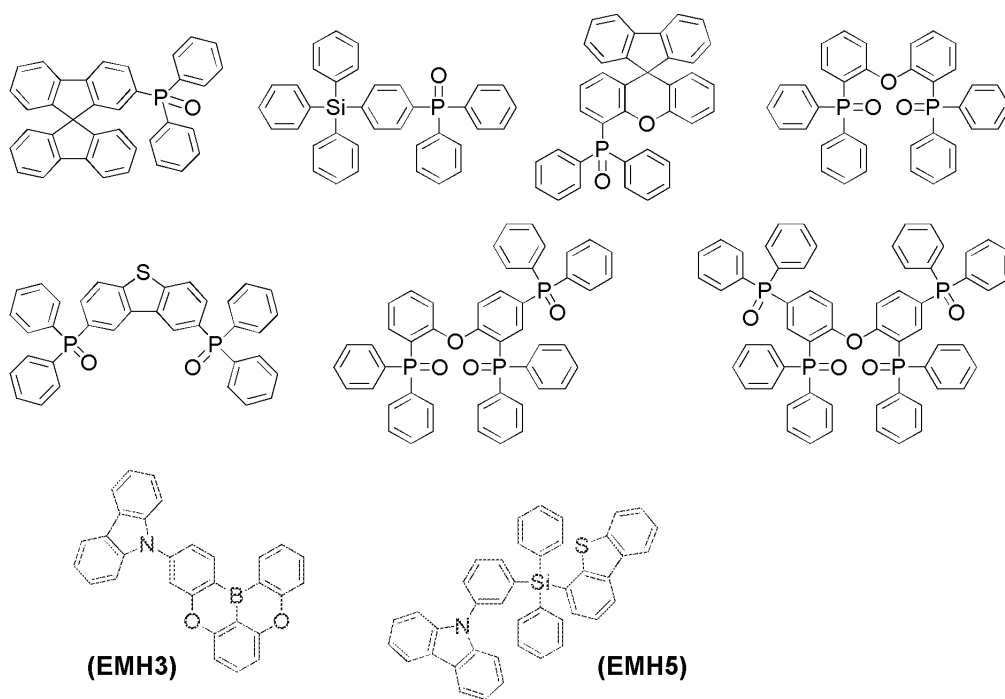
[0369]



[0370]

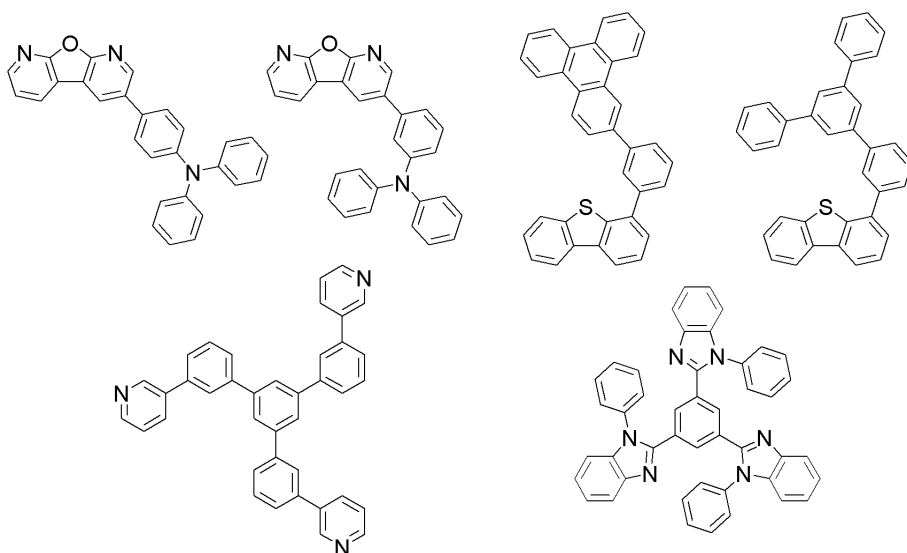


(EMH4)



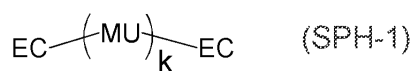
(EMH3)

(EMH5)



[0373]

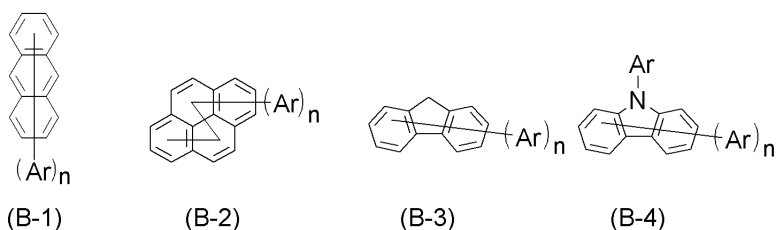
[0374] 호스트 재료로서는, 이하의 고분자 호스트 재료를 사용할 수도 있다.



[0375]

[0376] 식(SPH-1)에 있어서, MU는, 각각 독립적으로, 식(B-1)~식(B-4)으로 표시되는 화합물의 2가의 기로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 1개이며, MU 중의 2개의 수소가 EC 또는 MU로 치환되고, EC는, 각각 독립적으로, 수소, 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 디헤테로아릴아미노, 아릴헤테로아릴아미노 또는 아릴옥시이며, 이들에서의 적어도 1개의 수소는 또한 아릴, 헤테로아릴 또는 디아릴아미노로 치환되어 있어도 되고, k는 2~50000의 정수이다. k는 100~40000의 정수인 것이 바람직하고, 500~25000의 정수인 것이 보다 바람직하다.

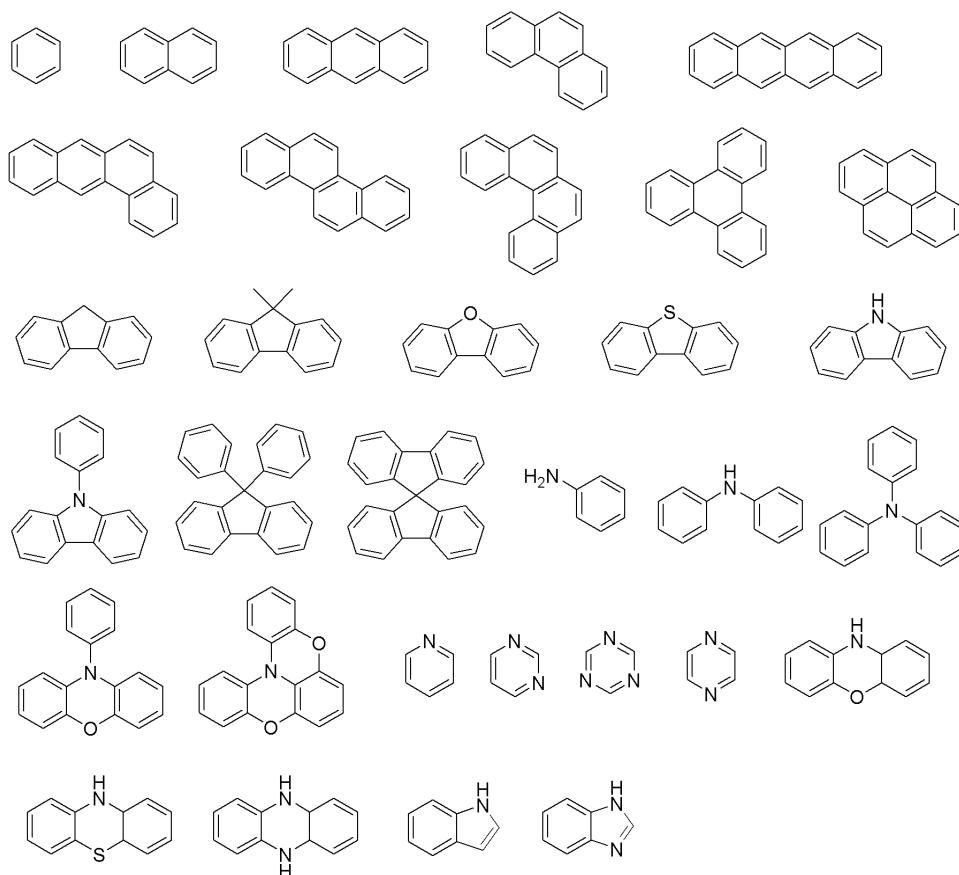
[0377] 여기서, 식(B-1)~식(B-4)으로 표시되는 화합물은 하기 화합물이다.



[0378]

[0379] 식(B-1)~식(B-4)에 있어서, Ar은, 각각 독립적으로, 수소, 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 디헤테로아릴아미노, 아릴헤테로아릴아미노 또는 아릴옥시이며, 이들에서의 적어도 1개의 수소는 또한 아릴, 헤테로아릴 또는 디아릴아미노로 치환되어 있어도 되고, Ar 중 인접하는 기끼리 결합하여, 각각 안트라센환, 피렌환, 플루오렌환 또는 카르바졸환의 모골격과 함께, 아릴환 또는 헤테로아릴환을 형성하고 있어도 되고, 형성된 환에서의 적어도 1개의 수소는, 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 디헤테로아릴아미노, 아릴헤테로아릴아미노 또는 아릴옥시로 치환되어 있어도 된다. 각 기의 구체적인 설명은, 전술한 식(1)이나 식(2)의 다환 방향족 화합물에서의 설명을 인용할 수 있다. 각 식 중의 n은 1~6의 정수, 바람직하게는 1~4의 정수, 보다 바람직하게는 1~2의 정수, 특히 바람직하게는 1이다.

[0380] 식(B-1)~식(B-4)에 있어서, 「Ar」의 구체적인 것으로서는, 예를 들면, 이하의 구조식의 1가의 기, 또는, 하기 구조의 조합의 기를 예시할 수 있다.



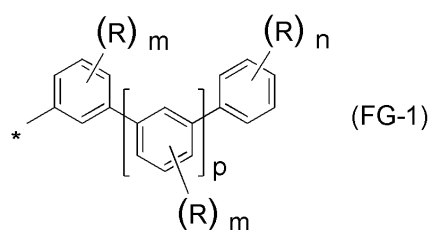
[0381]

[0382]

식(B-1)~식(B-4)으로 표시되는 화합물에서의 적어도 1개의 수소는, 후술하는 식(FG-1)으로 표시되는 기, 후술하는 식(FG-2)으로 표시되는 기, 또는 탄소수 1~24의 알킬, 할로젠 또는 중수소로 치환되어 있어도 되고, 또한 상기 알킬에서의 임의의  $-CH_2-$ 는  $-O-$  또는  $-Si(CH_3)_2-$ 로 치환되어 있어도 되고, 상기 알킬에서의 상기 식(B-1)~식(B-4)으로 표시되는 화합물에 직결하고 있는  $-CH_2-$ 를 제외하고 임의의  $-CH_2-$ 는 탄소수 6~24의 아릴렌으로 치환되어 있어도 되고, 상기 알킬에서의 임의의 수소는 불소로 치환되어 있어도 된다.

[0383]

식(SPH-1) 중의 EC에서의 적어도 1개의 수소는, 하기 식(FG-1)으로 표시되는 기, 하기 식(FG-2)으로 표시되는 기, 탄소수 1~24의 알킬, 할로젠 또는 중수소로 치환되어 있어도 되고, 또한 상기 알킬에서의 임의의  $-CH_2-$ 는  $-O-$  또는  $-Si(CH_3)_2-$ 로 치환되어 있어도 되고, 상기 알킬에서의 식(B-6) 중의 EC에 직결하고 있는  $-CH_2-$ 를 제외하고 임의의  $-CH_2-$ 는 탄소수 6~24의 아릴렌으로 치환되어 있어도 되고, 상기 알킬에서의 임의의 수소는 불소로 치환되어 있어도 된다.



[0384]

[0385]

(식(FG-1)에 있어서,

[0386]

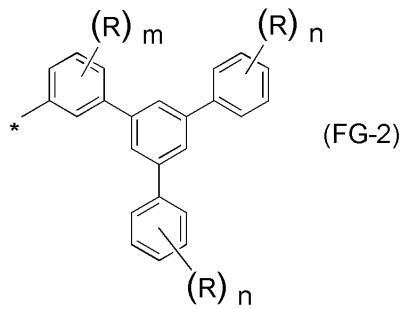
R은, 각각 독립적으로, 불소, 트리메틸실릴, 트리플루오로메틸, 탄소수 1~24의 알킬 또는 탄소수 3~24의 시클로알킬이며, 상기 알킬에서의 임의의  $-CH_2-$ 는  $-O-$ 로 치환되어 있어도 되고, 상기 알킬에서의 페닐 또는 페닐렌에 직결하고 있는  $-CH_2-$ 를 제외하고 임의의  $-CH_2-$ 는 탄소수 6~24의 아릴렌으로 치환되어 있어도 되고, 상기 시클로알킬에서의 적어도 1개의 수소는 탄소수 1~24의 알킬 또는 탄소수 6~12의 아릴로 치환되어 있어도 되고,

[0387]

인접하는 2개의 R이 알킬 또는 시클로알킬일 때, 이들은 결합하여 환을 형성하고 있어도 되고,



[0388] m은 각각 독립적으로 0~4의 정수이며, n은 0~5의 정수이며, p는 1~5의 정수이며, \*는 결합 위치를 나타낸다.)



[0389]

[0390]

(식(FG-2)에 있어서,

[0391]

R은, 각각 독립적으로, 불소, 트리메틸실릴, 트리플루오로메틸, 탄소수 1~24의 알킬, 탄소수 3~24의 시클로알킬 또는 탄소수 6~12의 아릴이며, 상기 알킬에서의 임의의 -CH<sub>2</sub>-는 -O-로 치환되어 있어도 되고, 상기 알킬에서의 페닐 또는 페닐렌에 직결하고 있는 -CH<sub>2</sub>-를 제외하고 임의의 -CH<sub>2</sub>-는 탄소수 6~24의 아릴렌으로 치환되어 있어도 되고, 상기 시클로알킬에서의 적어도 1개의 수소는 탄소수 1~24의 알킬 또는 탄소수 6~12의 아릴로 치환되어 있어도 되고, 상기 아릴에서의 적어도 1개의 수소는 탄소수 1~24의 알킬로 치환되어 있어도 되고,

[0392]

인접하는 2개의 R이 알킬 또는 시클로알킬일 때, 이들은 결합하여 환을 형성하고 있어도 되고,

[0393]

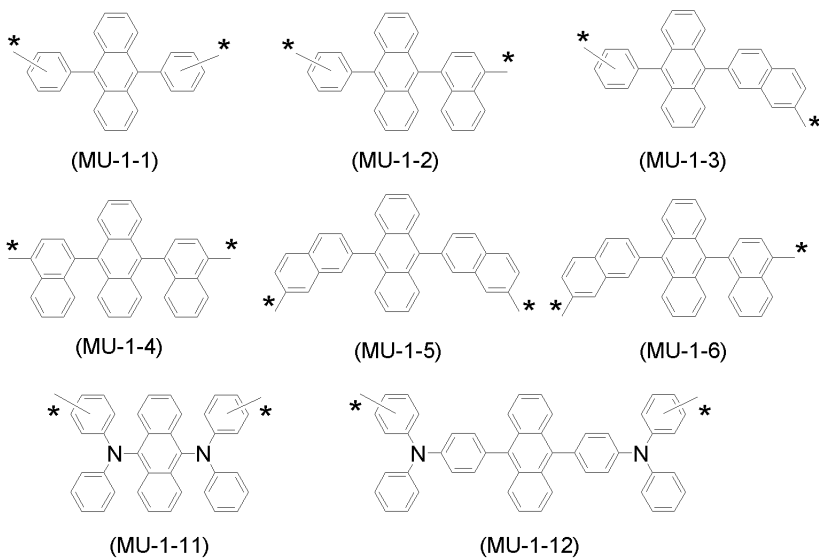
m은 0~4의 정수이며, n은 각각 독립적으로 0~5의 정수이며, \*는 결합 위치를 나타낸다.)

[0394]

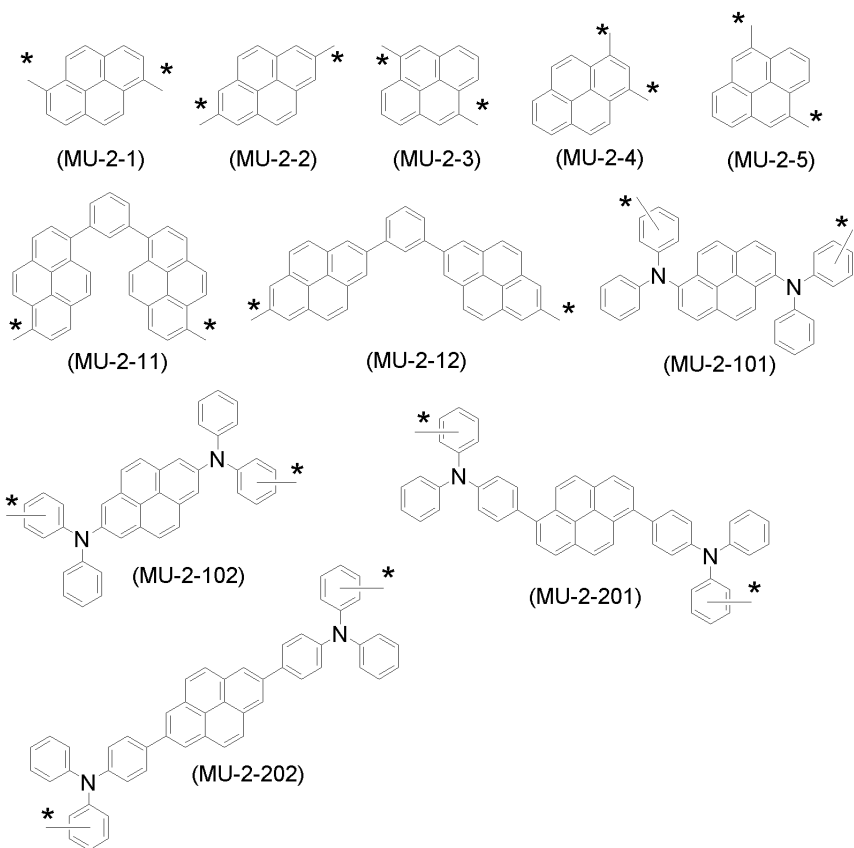
MU로서는, 예를 들면, 하기 식(MU-1-1)~식(MU-1-12), 하기 식(MU-2-1)~식(MU-2-202), 하기 식(MU-3-1)~식(MU-3-201) 및 하기 식(MU-4-1)~식(MU-4-122)으로 표시되는 2가의 기가 있다. 또한, EC로서는, 예를 들면, 하기 식(EC-1)~식(EC-29)으로 표시되는 기가 있다. 이들에 있어서, MU는 \*에 있어서 MU 또는 EC와 결합하고, EC는 \*에 있어서 MU와 결합한다.

[0395]

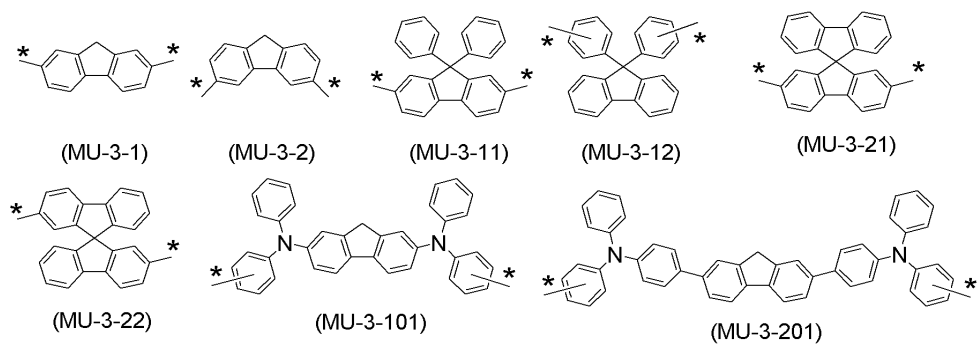
또한, 식(SPH-1)으로 표시되는 화합물은, 전하수송의 관점에서, 분자 내에 식(B-5-X1)으로 표시되는 2가의 기를 적어도 1개를 가지는 것이 바람직하고, 식(B-5-X1)으로 표시되는 2가의 기를 식(SPH-1)으로 표시되는 화합물의 분자량에 대하여 10% 이상 가지는 것이 보다 바람직하다. 여기서, 식(B-5-X1)으로 표시되는 2가의 기는 \*에 있어서 MU 또는 EC와 결합한다.



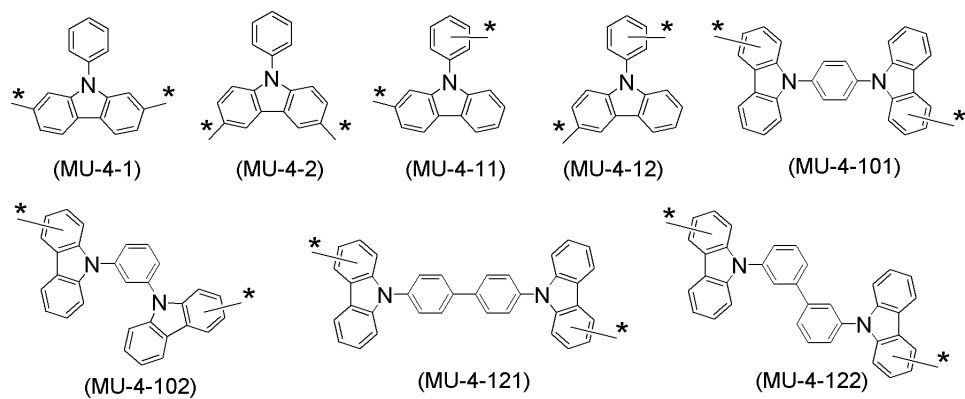
[0396]



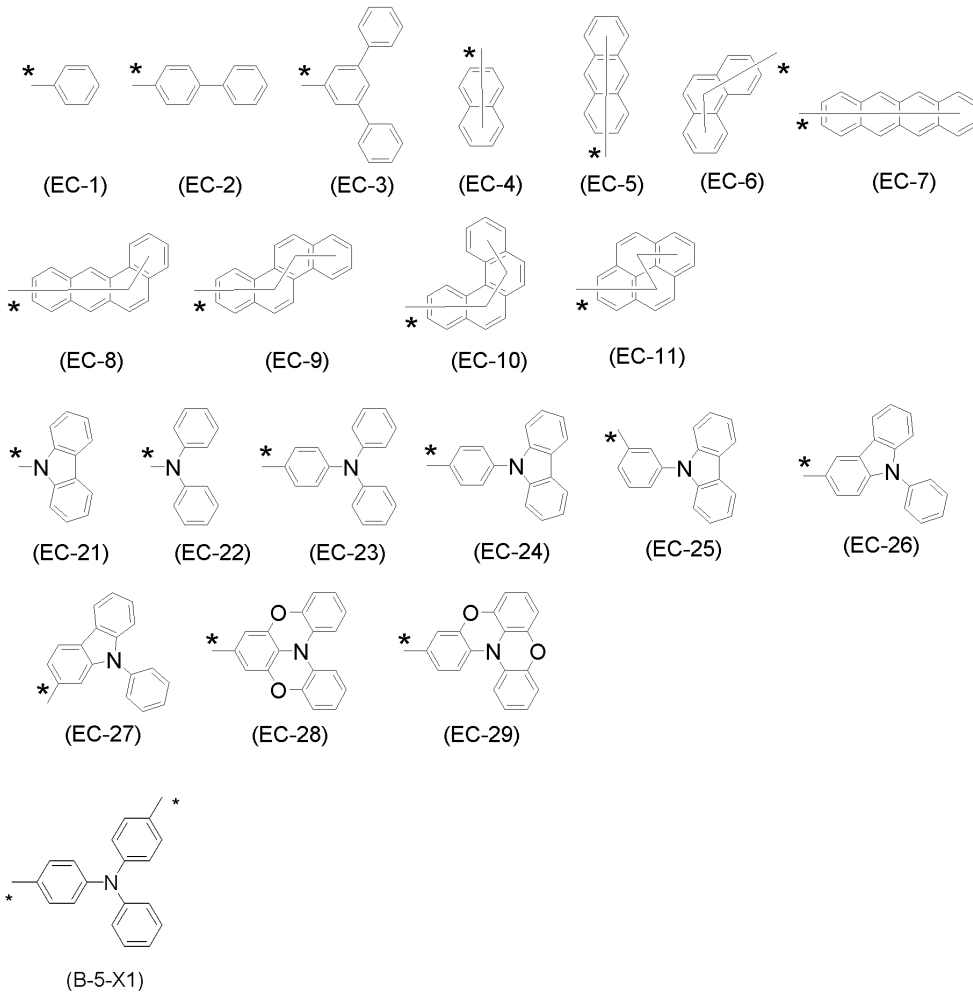
[0397]



[0398]



[0399]



[0400]

[0401]

[0402]

식(SPH-1)으로 표시되는 화합물은, 용해성 및 도포 성막성의 관점에서, 분자 중의 MU 총수(n)의 10~100 %의 MU가 탄소수 1~24의 알킬을 가지는 것이 바람직하고, 분자 중의 MU 총수(n)의 30~100 %의 MU가 탄소수 1~18의 알킬(탄소수 3~18의 분지쇄 알킬)을 가지는 것이 보다 바람직하고, 분자 내의 MU 총수(n)의 50~100 %의 MU가 탄소수 1~12의 알킬(탄소수 3~12의 분지쇄 알킬)을 가지는 것이 더욱 바람직하다. 한편, 면내 배향성 및 전하 수송의 관점에서는, 분자 중의 MU 총수(n)의 10~100 %의 MU가 탄소수 7~24의 알킬을 가지는 것이 바람직하고, 분자 중의 MU 총수(n)의 30~100 %의 MU가 탄소수 7~24의 알킬(탄소수 7~24의 분지쇄 알킬)을 가지는 것이 보다 바람직하다.

[0403]

[TADF 재료(어시스팅 도펀트)]

[0404]

발광층에는, TADF 재료가 포함되어 있는 것도 바람직하다.

[0405]

본 명세서에 있어서, TADF 재료는 「열활성형 지연 형광체」인 재료를 의미한다. 「열활성형 지연 형광체」에서는, 여기 1중항 상태와 여기 3중항 상태의 에너지 차를 작게 함으로써, 통상은 천이 확률이 낮은 여기 3중항 상태에서부터 여기 1중항 상태로의 역에너지 이동을 고효율로 생기게 하여, 1중항으로부터의 발광(열활성형 지연 형광, TADF)이 발현된다. 통상의 형광 발광에서는 전류 여기에 의해 생긴 75%의 3중항 여기자는 열실활 경로를 지나므로, 형광으로서 도출할 수 없다. 한편, TADF에서는 모든 여기자를 형광 발광에 이용할 수 있고, 고효율의 유기 EL 소자가 실현된다.

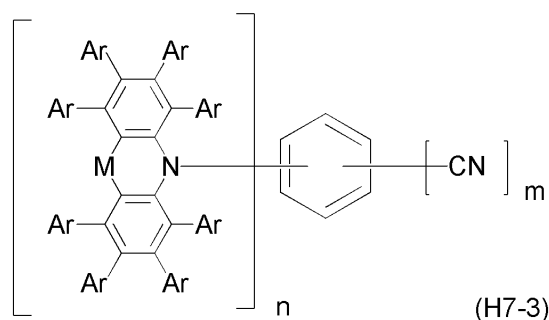
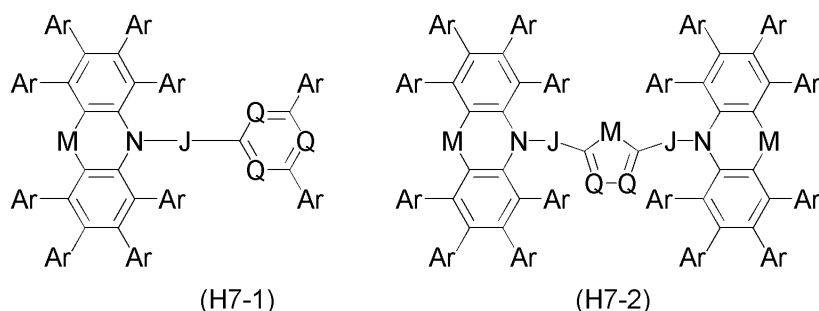
[0406]

TADF 재료는, 도너로 불리우는 전자제공성의 치환기와 엑셉터로 불리우는 전자수용성의 치환기를 사용하여 분자 내의 HOMO와 LUMO를 국재화시켜, 효율적인 역항간 교차(reverse intersystem crossing)가 일어나게 디자인된, 도너-엑셉터형 TADF 화합물(D-A형 TADF 화합물)인 것이 바람직하다.

[0407]

여기서, 본 명세서에 있어서 「전자제공성의 치환기」(도너)는, TADF 화합물분자 중에서 HOMO 궤도가 국재하는 치환기 및 부분 구조를 의미하고, 「전자수용성의 치환기」(엑셉터)는, TADF 화합물 분자 중에서 LUMO 궤도가 국재하는 치환기 및 부분 구조를 의미하는 것으로 한다.

- [0408] 일반적으로, 도너나 엑셉터를 사용한 TADF 화합물은, 구조에 기인하여 스핀 궤도 결합(SOC: Spin Orbit Coupling)이 크고, 동시에, HOMO와 LUMO의 교환 상호 작용이 작고  $\Delta E_{\text{SIT}}$ 이 작으므로, 매우 빠른 역항간 교차 속도가 얻어진다. 한편, 도너나 엑셉터를 사용한 TADF 화합물은, 여기 상태에서의 구조 완화가 커지고(어떤 분자에 있어서는, 기저 상태와 여기 상태에서는 안정 구조가 상이하므로, 외부 자극에 의해 기저 상태에서부터 여기 상태로의 변환이 일어나면, 그 후, 여기 상태에서의 안정 구조에 구조가 변화된다), 폭이 넓은 발광 스펙트럼을 제공하므로, 발광 재료로서 사용하면 색순도를 저하시킬 가능성이 있다.
- [0409] 그러나, 본 발명의 다환 방향족 화합물을 동시에 사용함으로써, 본 발명의 다환 방향족 화합물은 에미팅 도펀트로서, TADF 재료는, 어시스팅 도펀트로서 기능하고, 높은 색순도를 제공할 수 있다. TADF 재료는, 그 발광 스펙트럼이 본 발명의 다환 방향족 화합물의 흡수 스펙트럼과 적어도 일부 중첩되는 화합물이면 된다. 본 발명의 다환 방향족 화합물과 TADF 재료는 모두 동일한 층에 포함되어 있어도 되고, 인접하는 층에 포함되어 있어도 된다.
- [0410] 이와 같은 목적으로 사용할 수 있는 TADF 재료로서는, 예를 들면, 하기 식(H7)으로 표시되는 화합물, 또는 하기 식(H7)을 부분 구조로서 가지는 화합물이 있다.
- [0411] **ED—Ln—EA (H7)**
- [0412] 식(H7)에 있어서, ED는 전자제공성 기이며, Ln은 연결기이며, EA는 전자수용성 기이며, 식(H7)으로 표시되는 화합물의 최저 여기 1중항 에너지 준위( $E_{\text{S1}}$ )과 최저 여기 3중항 에너지 준위( $E_{\text{T1}}$ )의 에너지 차( $\Delta E_{\text{SIT}}$ )은 0.2eV 이하이다(Hiroki Uoyama, Kenichi Goushi, Katsuyuki Shizu, Hiroko Nomura, Chihaya Adachi, Nature, 492, 234-238(2012)). 에너지 차( $\Delta E_{\text{SIT}}$ )은, 바람직하게는 0.15eV 이하이며, 보다 바람직하게는 0.10eV 이하이며, 더 욱 바람직하게는 0.08eV 이하이다.
- [0413] TADF 재료에 사용되는 전자제공성 기(도너성의 구조) 및 전자수용성 기(엑셉터성의 구조)로서는, 예를 들면, Chemistry of Materials, 2017, 29, 1946-1963에 기재된 구조를 사용할 수 있다. ED로서는, 예를 들면,  $\text{sp}^3$  질소를 함유하는 관능기가 있고, 보다 구체적으로는, 카르바졸, 디메틸카르바졸, 디-tert-부틸카르바졸, 디메톡시카르바졸, 테트라메틸카르바졸, 벤조플루오로카르바졸, 벤조티에노카르바졸, 페닐디하이드로인돌로카르바졸, 페닐비카르바졸, 비카르바졸, 터카르바졸, 디페닐카르바졸릴아민, 테트라페닐카르바졸릴디아민, 페녹사진, 디하이드로페나진, 페노티아진, 디메틸디하이드로아크리딘, 디페닐아민, 비스(4-(tert-부틸)페닐)아민, N'-(4-(디페닐아미노)페닐)-N,N'-디페닐벤젠-1,4-디아민, 디메틸테트라페닐디하이드로아크리딘디아민, 테트라메틸-디하이드로-인테노아크리딘 및 디페닐-디하이드로디벤조아자살린 등으로부터 유도되는 기가 있다. 또한, EA로서는, 예를 들면,  $\text{sp}^2$  질소 함유 방향족환, CN 치환 방향족환, 케톤을 가지는 환 및 시아노, 보다 구체적으로는, 설폰닐디벤젠, 벤조페논, 페닐렌비스(페닐메탄논), 벤조니트릴, 이소니코티노니트릴, 프탈로니트릴, 이소프탈로니트릴, 파라프탈로니트릴, 트리아졸, 옥사졸, 티아디아졸, 벤조티아졸, 벤조비스(티아졸), 벤즈옥사졸, 벤조비스(옥사졸), 퀴놀린, 벤즈이미다졸, 디벤조퀴놀살린, 헵타아자페날렌, 티옥산톤디옥시드, 디메틸안트라세논, 안트라센디온, 피리딘, 시클로헵타피리딘, 벤젠트리카르보니트릴, 플루오렌디카르보니트릴, 피라진디카르보니트릴, 피리딘디카르보니트릴, 디벤조퀴놀살린디카르보니트릴, 피리미딘, 페닐피리미딘, 메틸피리미딘, 트리아진, 트리페닐트리아진, 비스(페닐술폰닐)벤젠, 디메틸티옥산텐디옥시드, 티안스렌테트라옥시드 및 트리스(디메틸페닐)보란 등으로부터 유도되는 기가 있다. Ln으로서는, 예를 들면, 단결합 및 아릴렌이 있고, 보다 구체적으로는, 페닐렌, 비페닐렌, 나프틸렌 등이 있다. 또한, 어느 구조에 있어서는 수소가 알킬, 시클로알킬 및 아릴로 치환되어도 된다. 특히, 부분 구조로서, 카르바졸, 페녹사진, 아크리딘, 트리아진, 피리미딘, 피라진, 티옥산텐, 벤조니트릴, 프탈로니트릴, 이소프탈로니트릴, 디페닐술폰, 트리아졸, 옥사디아졸, 티아디아졸 및 벤조페논으로부터 선택되는 적어도 하나를 가지는 화합물인 것이 바람직하다.
- [0414] 식(H7)에 있어서, 연결기의 Ln은 도너성의 부분 구조와 엑셉터성의 부분 구조를 나누는 스페이서 구조로서 기능한다.
- [0415] 식(H7)으로 표시되는 화합물은, 보다 구체적으로는, 식(H7-1), 식(H7-2) 및 식(H7-3) 중 어느 하나로 표시되는 화합물이면 된다.



식(H7-1), 식(H7-2) 및 식(H7-3) 중,

M은, 각각 독립적으로, 단결합, -O-, >N-Ar 또는 >C(-Ar)<sub>2</sub>이며, 형성하는 부분 구조의 HOMO의 깊이 및 최저 여기 1중항 에너지 준위 및 최저 여기 3중항 에너지 준위의 높이의 관점에서, 바람직하게는, 단결합, -O- 또는 >N-Ar이며,

J는, 식(H7)에서의 Ln에 대응하는 연결기이며, 각각 독립적으로, 탄소수 6~18의 아릴렌이며, 도너성의 부분 구조와 억셉터성의 부분 구조로부터 스며나오는 공역의 크기의 관점에서, 탄소수 6~12의 아릴렌이 바람직하고, 보다 구체적으로는, 페닐렌, 메틸페닐렌 및 디메틸페닐렌을 예로 들 수 있고,

Q는, 각각 독립적으로, =C(-H)- 또는 =N-이며, 형성하는 부분 구조의 LUMO의 알기 및 최저 여기 1중항 에너지 준위 및 최저 여기 3중항 에너지 준위의 높이의 관점에서, 바람직하게는, =N-이며,

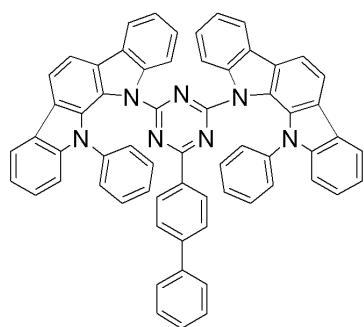
Ar은, 각각 독립적으로, 수소, 탄소수 6~24의 아릴, 탄소수 2~24의 헤테로아릴, 탄소수 1~12의 알킬 또는 탄소수 3~18의 시클로알킬이며, 형성하는 부분 구조의 HOMO의 깊이 및 최저 여기 1중항 에너지 준위 및 최저 여기 3중항 에너지 준위의 높이의 관점에서, 바람직하게는, 수소, 탄소수 6~12의 아릴, 탄소수 2~14의 헤테로아릴, 탄소수 1~4의 알킬 또는 탄소수 6~10의 시클로알킬이며, 보다 바람직하게는, 수소, 페닐, 톨릴, 크실릴, 메시틸, 비페닐, 피리디, 비피리디, 트리아질, 카르바줄릴, 디메틸카르바줄릴, 디-tert-부틸카르바줄릴, 벤즈이미다졸 또는 페닐벤조이미다졸이며, 더욱 바람직하게는, 수소, 페닐 또는 카르바줄릴이며,

m은, 1 또는 2이며,

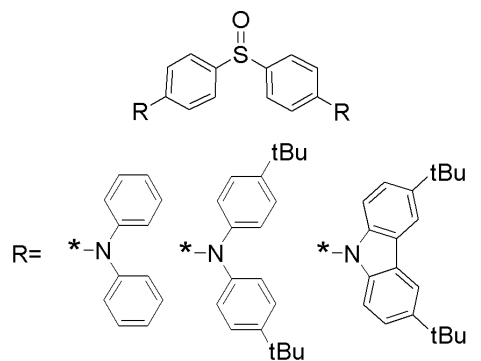
n은, 2~(6-m)의 정수이며, 입체 장애의 관점에서, 바람직하게는, 4~(6-m)의 정수이다.

또한, 상기 각 식으로 표시되는 화합물에서의 적어도 1개의 수소는, 할로겐 또는 중수소로 치환되어 있어도 된다.

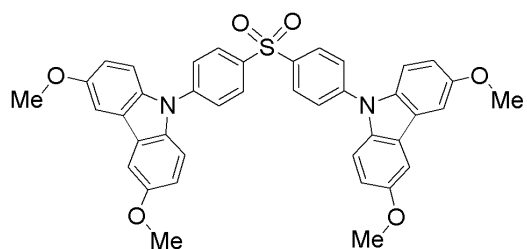
식(H7)으로 표시되는 화합물로서는, 예를 들면, 하기 구조식으로 표시되는 화합물이 있다. 그리고, 구조식 중의 \*는 결합 위치, 「Me」는 메틸, 「tBu」는 tert-부틸을 나타낸다.



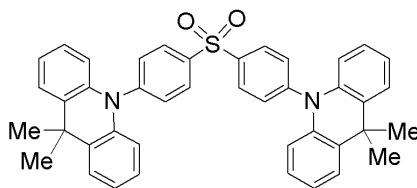
PIC-TRZ



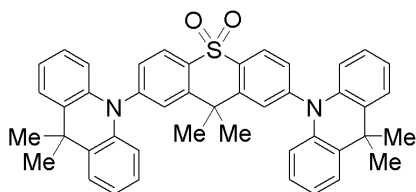
DTC-DPS



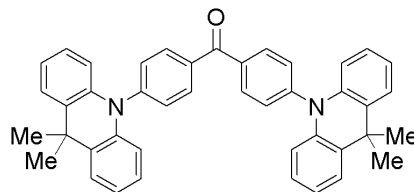
DMOC-DPS



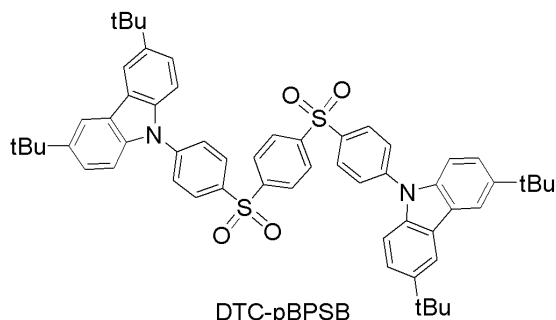
DMAC-DPS



DMTDAc

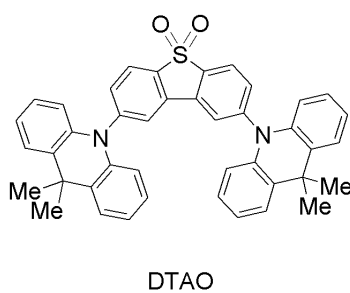
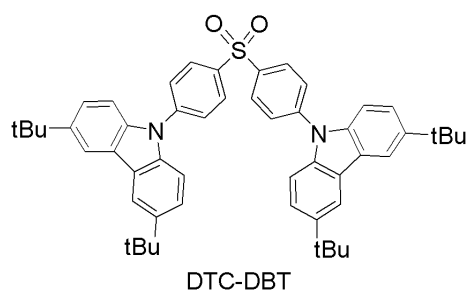
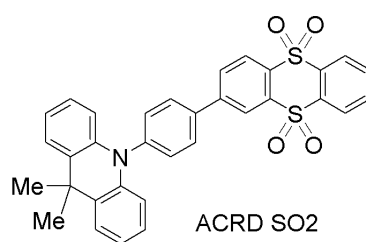
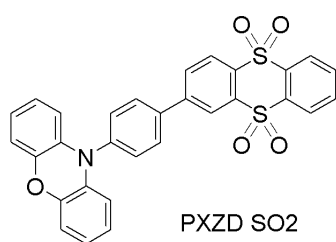
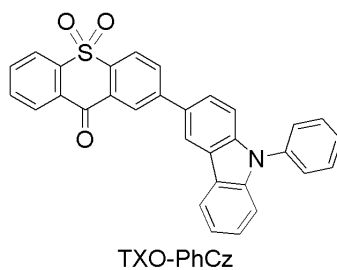
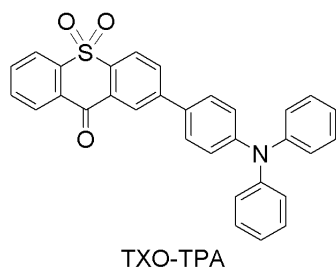
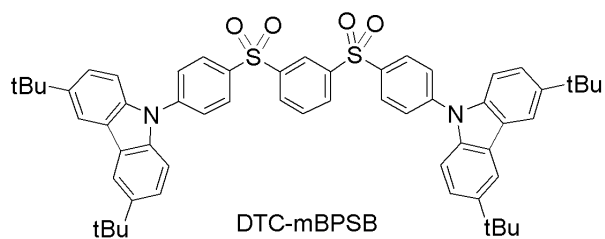


DMAC-BP



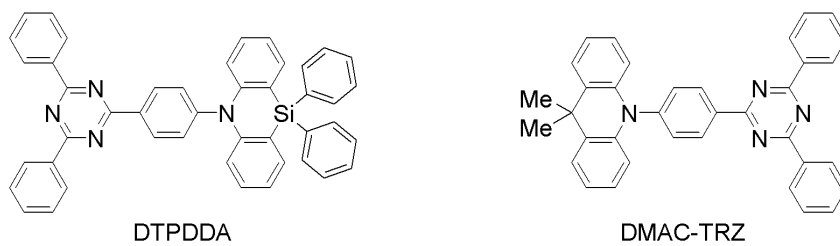
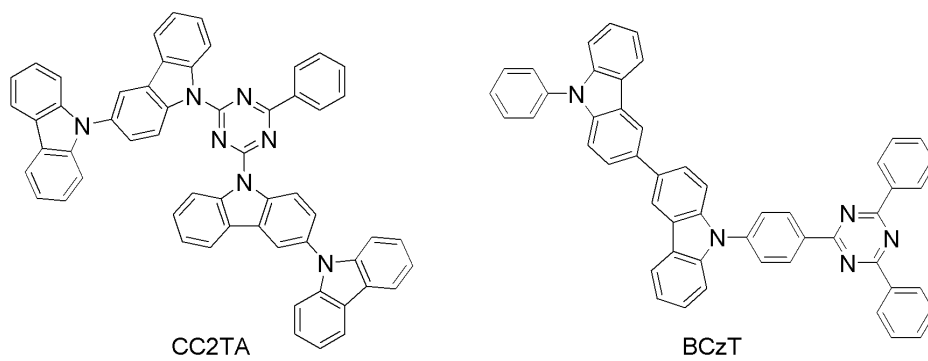
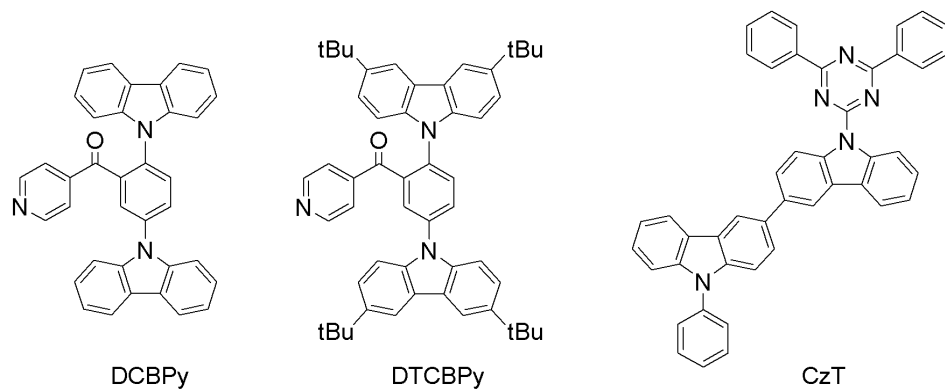
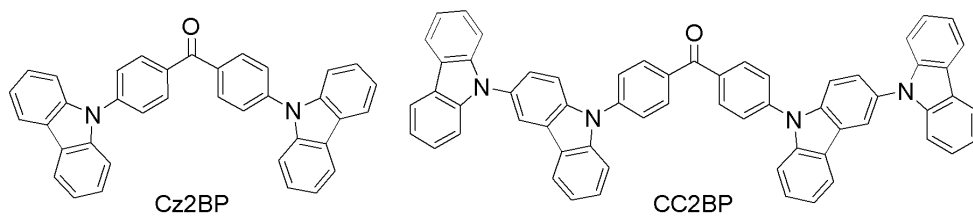
DTC-pBPSB

[0426]

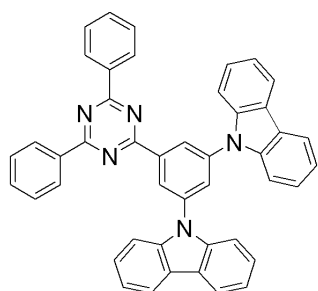


[0427]

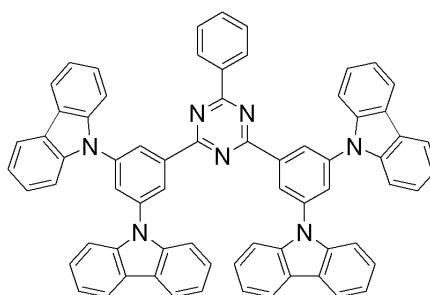




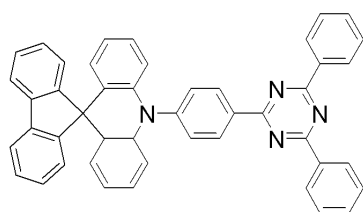
[0428]



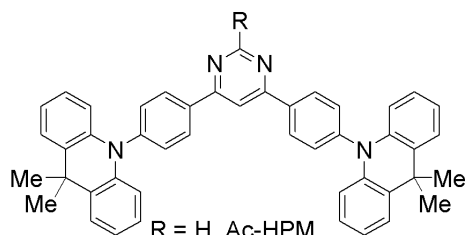
DCzTrz



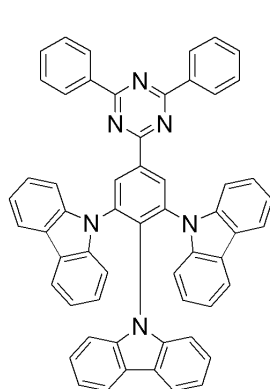
DDCzTrz



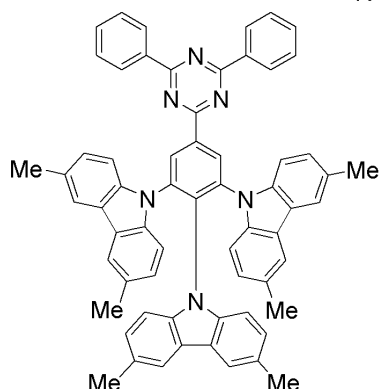
spiroAC-TRZ



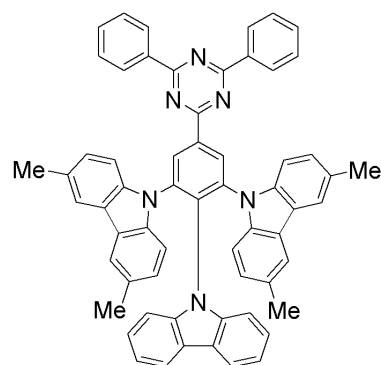
R = H, Ac-HPM  
R = Ph, Ac-PPM  
R = Me Ac-MPM



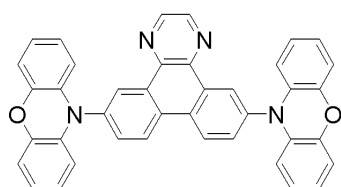
TCzTrz



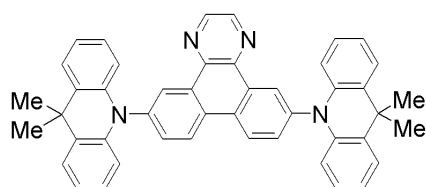
TmCzTrz



DCzmCzTrz

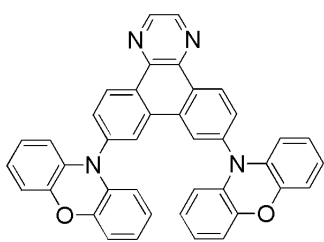


ATP-PXZ

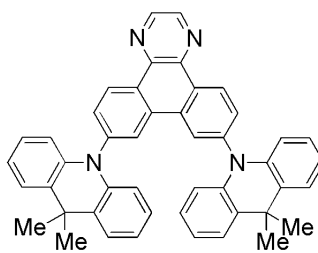


ATP-ACR

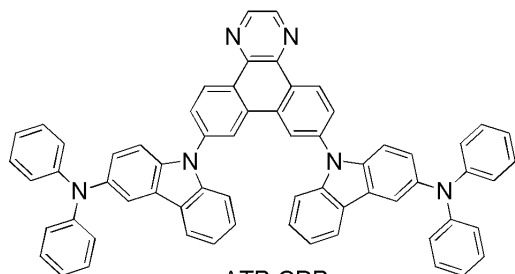
[0429]



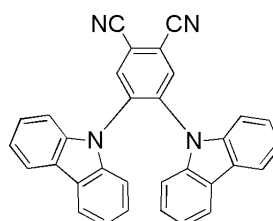
*m*-ATP-PXZ



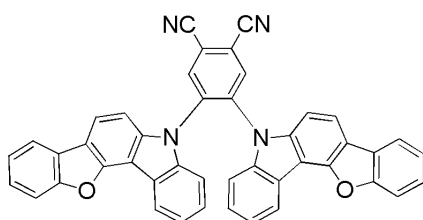
*m*-ATP-ACR



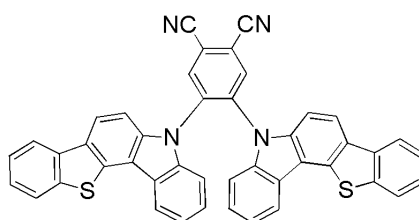
*m*-ATP-CDP



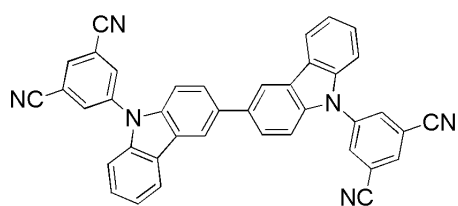
2CzPN



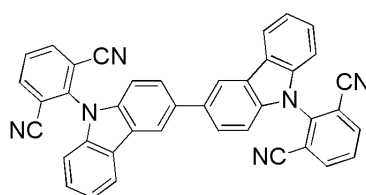
BFCz-2CN



BTCz-2CN

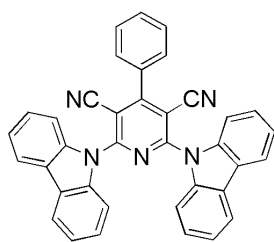


35IPNDCz

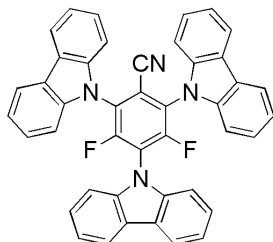


26IPNDCz

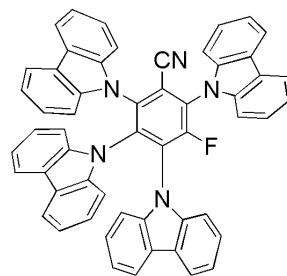
[0430]



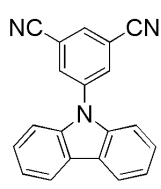
CPC



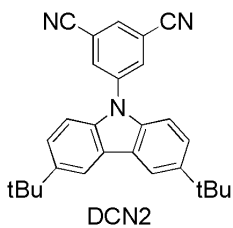
3CzFCN



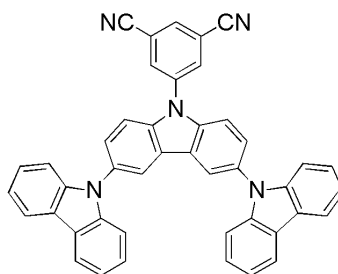
4CzFCN



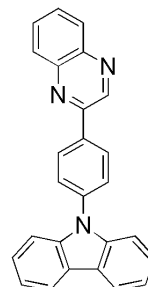
DCN1



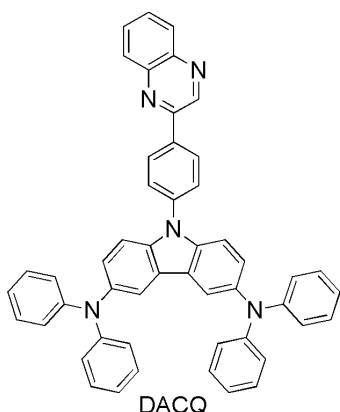
DCN2



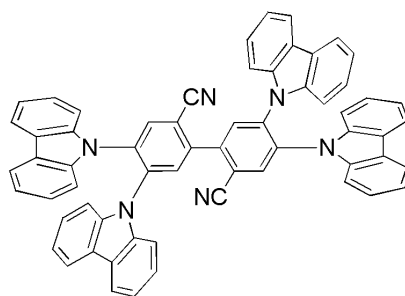
DCN3



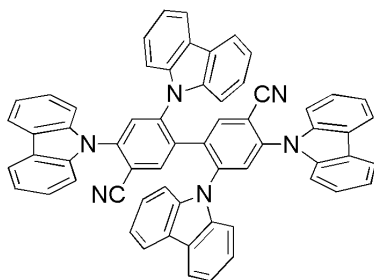
CZQ



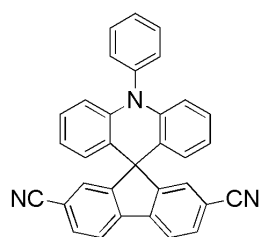
DACQ



CNBPCz

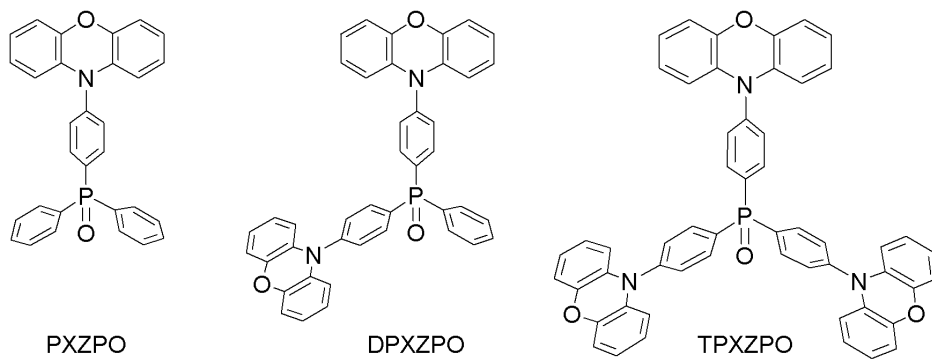
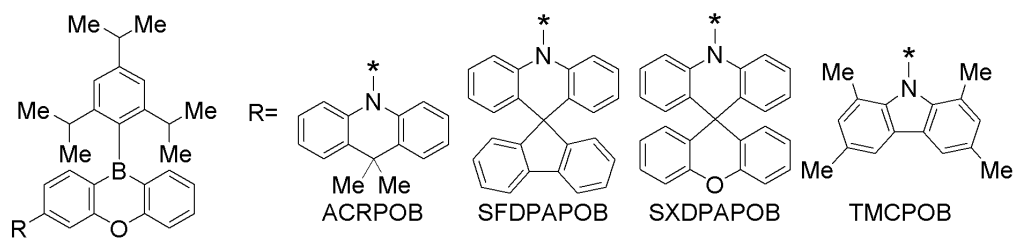
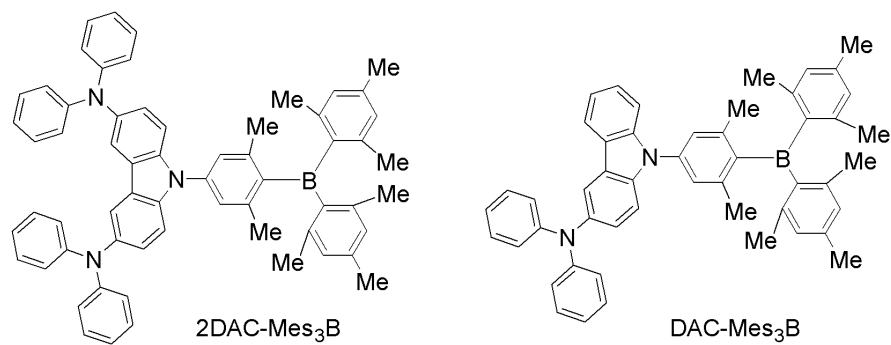
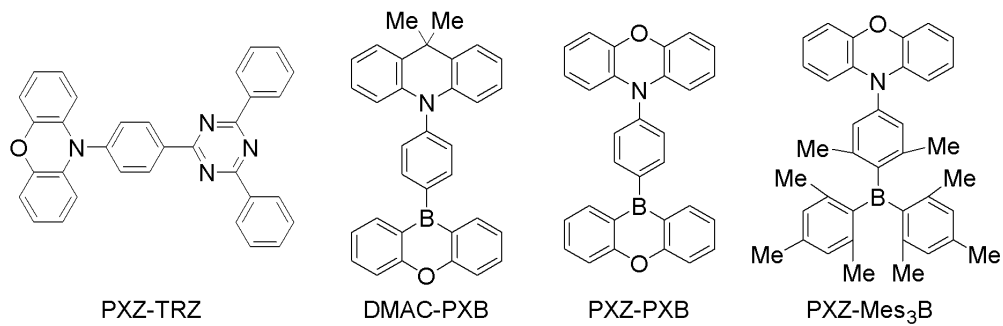


CzBPCN

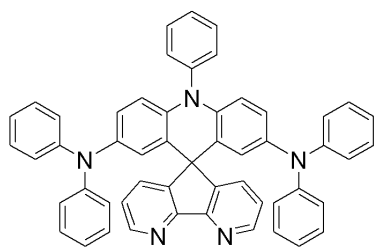


ACRFLCN

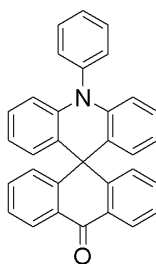
[0431]



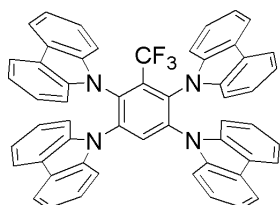
[0432]



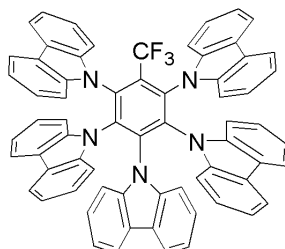
DPAA-AF



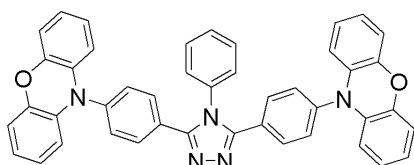
ACRSA



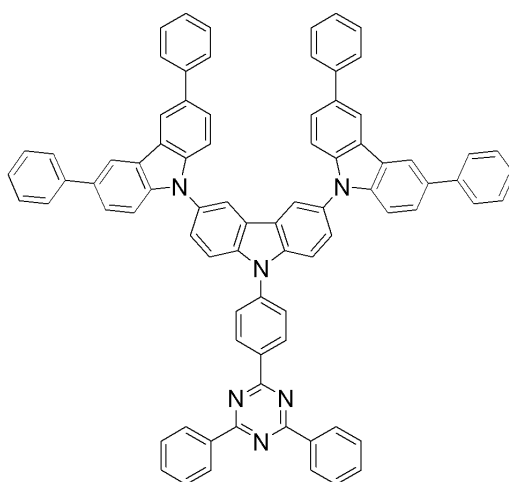
4CzCF<sub>3</sub>Ph



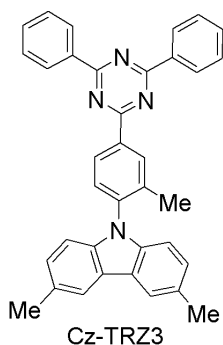
5CzCF<sub>3</sub>Ph



2PXZ-TAZ  
(AD5)

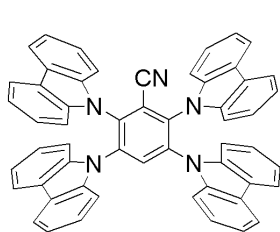


BDPCC-TPTA

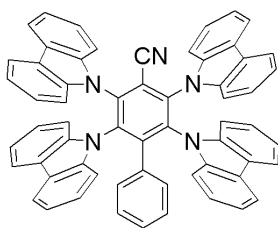


Cz-TRZ3

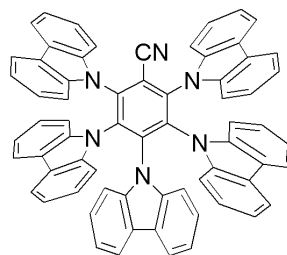
[0433]



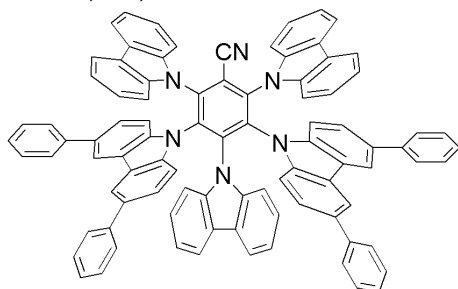
4CzBN  
(AD4)



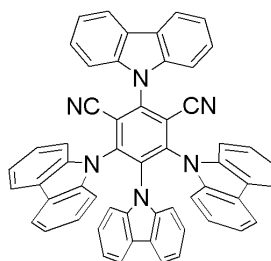
4CzBN-Ph



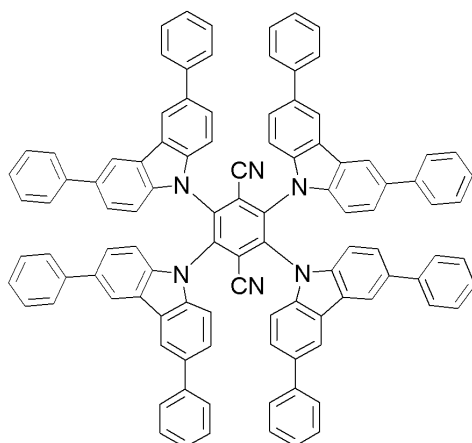
5CzBN



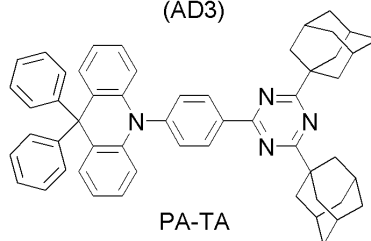
3Cz2DPhCzBN



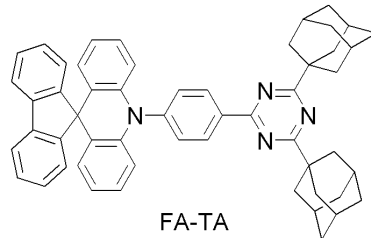
4CzIPN  
(AD3)



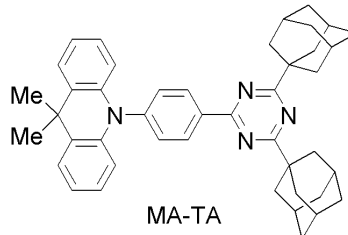
4CzTPN-Ph



PA-TA



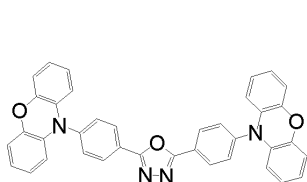
FA-TA



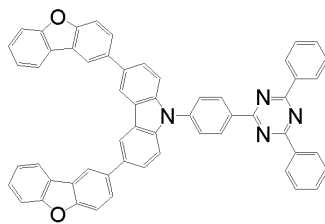
MA-TA

[0434]

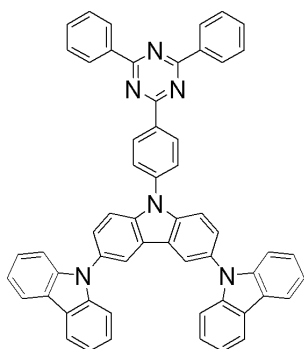




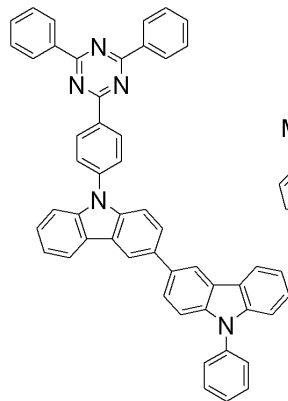
(AD1)



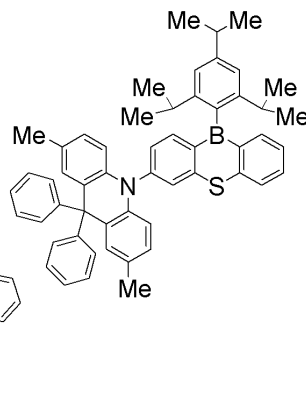
(AD2)



(AD6)



(AD7)



(AD8)

[0435]

[0436]

식(H7)으로 표시되는 화합물로서는, 상기 구체적인 화합물 중에서, PIC-TRZ, TXO-TPA, TXO-PhCz, PXZD SO<sub>2</sub>, ACRD SO<sub>2</sub>, DTC-DBT, DTAO, 4CzBN, 4CzBN-Ph, 5CzBN, 3Cz2DPPhCzBN, 4CzIPN, 2PXZ-TAZ, Cz-TRZ3, BDPCC-TPTA, MA-TA, PA-TA, FA-TA, PXZ-TRZ, DMAC-TRZ, BCzT, DCzTrz, DDCzTrz, spiroAC-TRZ, Ac-HPM, Ac-PPM, Ac-MPM, TCzTrz, TmCzTrz 및 DCzmCzTrz가 바람직하고, 특히, PIC-TRZ, TXO-TPA, TXO-PhCz, PXZD SO<sub>2</sub>, ACRD SO<sub>2</sub>, DTC-DBT, DTAO, 4CzBN(AD4), 4CzIPN(AD3), PXZ-TRZ(AD5), AD1, AD2, AD6, AD7 및 AD8이 바람직하다.

[0437]

[도펀트 재료]

[0438]

도펀트 재료로서는, 특별히 한정되지 않고, 기지(既知)의 화합물을 사용할 수 있고, 원하는 발광색에 따라 다양한 재료 중에서 선택할 수 있다. 구체적으로는, 예를 들면, 페난스렌, 안트라센, 피렌, 테트라센, 펜타센, 페틸렌, 나프토피렌, 디벤조피렌, 루브렌 및 크리센 등의 축합환 유도체, 벤즈옥사졸 유도체, 벤조티아졸 유도체, 벤즈이미다졸 유도체, 벤조트리아졸 유도체, 옥사졸 유도체, 옥사디아졸 유도체, 티아졸 유도체, 이미다졸 유도체, 티아디아졸 유도체, 트리아졸 유도체, 피라졸린 유도체, 스틸벤 유도체, 티오펜 유도체, 테트라페닐부타디엔 유도체, 시클로펜타디엔 유도체, 비스스티릴안트라센 유도체나 디스티릴벤젠 유도체 등의 비스스티릴 유도체(일본공개특허 평1-245087호 공보), 비스스티릴아릴렌 유도체(일본공개특허 평2-247278호 공보), 디아자인다센 유도체, 퓨란 유도체, 벤조퓨란 유도체, 페닐이소벤조퓨란, 디메틸이소벤조퓨란, 디(2-메틸페닐)이소벤조퓨란, 디(2-트리플루오로메틸페닐)이소벤조퓨란, 페닐이소벤조퓨란 등의 이소벤조퓨란 유도체, 디벤조퓨란 유도체, 7-디알킬아미노쿠마린 유도체, 7-피페리디노쿠마린 유도체, 7-하이드록시쿠마린 유도체, 7-메톡시 쿠마린 유도체, 7-아세톡시쿠마린유도체, 3-벤조티아졸릴쿠마린 유도체, 3-벤즈이미다졸릴쿠마린 유도체, 3-벤즈옥사졸릴쿠마린 유도체 등의 쿠마린 유도체, 디시아노메틸렌피란 유도체, 디시아노메틸렌티오피란 유도체, 폴리메틴 유도체, 시아닌 유도체, 옥소벤조안트라센 유도체, 크산텐 유도체, 로다민유도체, 플루오레세인 유도체, 피릴륨 유도체, 카르보스티릴 유도체, 아크리딘 유도체, 옥사진 유도체, 페닐렌옥사이드 유도체, 퀴나클리돈 유도체, 퀴나졸린유도체, 피롤로피리딘 유도체, 프로필리딘 유도체, 1,2,5-티아디아졸로피렌 유도체, 피로메텐 유도체, 페리논 유도체, 피롤로피롤 유도체, 스쿠아릴륨 유도체, 비올란트론 유도체, 페나진 유도체, 아크리돈 유도체, 데아자플라빈 유도체, 플루오렌 유도체 및 벤조플루오렌 유도체 등을 예로 들 수 있다. 또한, 국제공개 제2015/102118호 등에 기재된 다환 방향족 화합물을 사용할 수도 있다.

[0439]

발색광마다 예시하면, 청~청록색 도펀트 재료로서는, 나프탈렌, 안트라센, 페난스렌, 피렌, 트리페닐렌, 페틸렌, 플루오렌, 인덴, 크리센 등의 방향족 탄화 수소 화합물이나 그의 유도체, 퓨란, 피롤, 티오펜, 실롤, 9-실라플루오렌, 9,9'-스피로비실라플루오렌, 벤조티오펜, 벤조퓨란, 인돌, 디벤조티오펜, 디벤조퓨란, 이미다조피리딘, 페난트롤린, 피라진, 나프티리딘, 퀴놀살린, 피롤로피리딘, 티옥산텐 등의 방향족 복소환 화합물이나 그의 유도체, 디스티릴벤젠 유도체, 테트라페닐부타디엔 유도체, 스틸벤 유도체, 알다진 유도체, 쿠마린 유도체,

이미다졸, 티아졸, 티아디아졸, 카르바졸, 옥사졸, 옥사디아졸, 트리아졸 등의 아졸 유도체 및 그 금속 착체 및 N,N'-디페닐-N,N'-디(3-메틸페닐)-4,4'-디페닐-1,1'-디아민으로 대표되는 방향족 아민 유도체 등을 예로 들 수 있다.

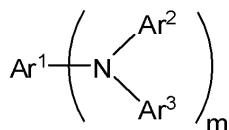
[0440] 또한, 녹색~황색 도펀트 재료로서는, 쿠마린 유도체, 프탈이미드 유도체, 나프탈이미드 유도체, 페리논 유도체, 피롤로피롤 유도체, 시클로펜타디엔 유도체, 아크리돈 유도체, 퀴나칼리돈 유도체 및 루브렌 등의 나프타센 유도체 등을 예로 들 수 있고, 나아가서는 상기 청~청록색 도펀트 재료로서 예시한 화합물에, 아릴, 헤테로아릴, 아릴비닐, 아미노, 시아노 등 장파장화를 가능하게 하는 치환기를 도입한 화합물도 바람직한 예로서 들 수 있다.

[0441] 또한, 오렌지~적색 도펀트 재료로서는, 비스(디이소프로필페닐)페릴렌테트라카르복시산이미드 등의 나프탈이미드 유도체, 페리논 유도체, 아세틸아세톤이나 벤조일아세톤과 페난트롤린 등을 배위자로 하는 Eu 착체 등의 희토류 착체, 4-(디시아노메틸렌)-2-메틸-6-(p-디메틸아미노스티릴)-4H-피란이나 그의 유사체, 마그네슘프탈로시아닌, 알루미늄클로로프탈로시아닌 등의 금속 프탈로시아닌 유도체, 로다민 화합물, 데아자플라빈 유도체, 쿠마린 유도체, 퀴나칼리돈 유도체, 페녹사진 유도체, 옥사진 유도체, 퀴나졸린 유도체, 피롤로피리딘 유도체, 스쿠아릴륨 유도체, 비올란트론 유도체, 페나진 유도체, 페녹사존 유도체 및 티아디아졸로피렌 유도체 등을 예로 들 수 있고, 나아가서는 상기 청~청록색 및 녹색~황색 도펀트 재료로서 예시한 화합물에, 아릴, 헤테로아릴, 아릴비닐, 아미노, 시아노 등 장파장화를 가능하게 하는 치환기를 도입한 화합물도 바람직한 예로서 들 수 있다.

[0442] 그 외, 도펀트로서는, 가가쿠고교 2004년 6월호 13페이지, 및 거기에서 예로 든 참고문헌 등에 기재된 화합물 등 중에서 적절하게 선택하여 사용할 수 있다.

[0443] 상술한 도펀트 재료 중에서도, 특히 스티벤 구조를 가지는 아민, 페릴렌 유도체, 보란 유도체, 방향족 아민 유도체, 쿠마린 유도체, 피란 유도체 또는 피렌 유도체가 바람직하다.

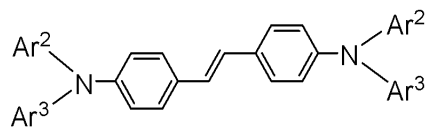
[0444] 스티벤 구조를 가지는 아민은, 예를 들면, 하기 식으로 표시된다.



[0445]

[0446] 상기 식 중,  $\text{Ar}^1$ 은 탄소수 6~30의 아릴에 유래하는 m개의 기이며,  $\text{Ar}^2$  및  $\text{Ar}^3$ 는, 각각 독립적으로 탄소수 6~30의 아릴이지만,  $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^3$  중 적어도 1개는 스티벤 구조를 가지고,  $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^3$ 는, 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 트리 치환 실릴(아릴 및/또는 알킬로 트리 치환된 실릴) 또는 시아노로 치환되어 있어도 되고, 그리고, m은 1~4의 정수이다.

[0447] 스티벤 구조를 가지는 아민은, 하기 식으로 표시되는 디아미노스티벤이 보다 바람직하다.



[0448]

[0449] 상기 식 중,  $\text{Ar}^2$  및  $\text{Ar}^3$ 는, 각각 독립적으로 탄소수 6~30의 아릴이며,  $\text{Ar}^2$  및  $\text{Ar}^3$ 는, 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 트리 치환 실릴(아릴 및/또는 알킬로 트리 치환된 실릴) 또는 시아노로 치환되어 있어도 된다.

[0450] 탄소수 6~30의 아릴의 구체예는, 페닐, 나프틸, 아세나프틸레닐, 플루오레닐, 페날레닐, 페난트레닐, 안트릴, 플루오란테닐, 트리페닐레닐, 피레닐, 크리스세닐, 나프타세닐, 페릴레닐, 스티베닐, 디스티릴페닐, 디스티릴비페닐, 디스티릴플루오레닐 등을 들 수 있다.

[0451] 스티벤 구조를 가지는 아민의 구체예는, N,N,N',N'-테트라(4-비페닐릴)-4,4'-디아미노스티벤, N,N,N',N'-테트라(1-나프틸)-4,4'-디아미노스티벤, N,N,N',N'-테트라(2-나프틸)-4,4'-디아미노스티벤, N,N'-디(2-나프틸)-N,N'-디페닐-4,4'-디아미노스티벤, N,N'-디(9-페난트릴)-N,N'-디페닐-4,4'-디아미노스티벤, 4,4'-비스[4"-비스(디페닐아미노)스티릴]-비페닐, 1,4-비스[4'-비스(디페닐아미노)스티릴]-벤젠, 2,7-비스[4'-비스(디페닐아미노)스티릴]-9,9-디메틸플루오렌, 4,4'-비스(9-에틸-3-카르바조비닐렌)-비페닐, 4,4'-비스(9-페닐-3-카르바조비닐렌)-비

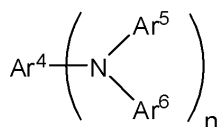
페닐 등을 들 수 있다. 또한, 일본공개특허 제2003-347056호 공보, 및 일본공개특허 제2001-307884호 공보 등에 기재된 스틸벤 구조를 가지는 아민을 사용할 수도 있다.

[0452] 페릴렌 유도체로서는, 예를 들면, 3,10-비스(2,6-디메틸페닐)페릴렌, 3,10-비스(2,4,6-트리메틸페닐)페릴렌, 3,10-디페닐페릴렌, 3,4-디페닐페릴렌, 2,5,8,11-테트라-tert-부틸페릴렌, 3,4,9,10-테트라페닐페릴렌, 3-(1'-피레닐)-8,11-디(tert-부틸)페릴렌, 3-(9'-안트릴)-8,11-디(tert-부틸)페릴렌, 3,3'-비스(8,11-디(tert-부틸)페릴레닐) 등이 있다.

[0453] 또한, 일본공개특허 평11-97178호 공보, 일본공개특허 제2000-133457호 공보, 일본공개특허 제2000-26324호 공보, 일본공개특허 제2001-267079호 공보, 일본공개특허 제2001-267078호 공보, 일본공개특허 제2001-267076호 공보, 일본공개특허 제2000-34234호 공보, 일본공개특허 제2001-267075호 공보, 및 일본공개특허 제2001-217077호 공보 등에 기재된 페릴렌 유도체를 사용할 수도 있다.

[0454] 보란 유도체로서는, 예를 들면, 1,8-디페닐-10-(디메시틸보릴)안트라센, 9-페닐-10-(디메시틸보릴)안트라센, 4-(9'-안트릴)디메시틸보릴나프탈렌, 4-(10'-페닐-9'-안트릴)디메시틸보릴나프탈렌, 9-(디메시틸보릴)안트라센, 9-(4'-비페닐릴)-10-(디메시틸보릴)안트라센, 9-(4'-(N-카르바졸릴)페닐)-10-(디메시틸보릴)안트라센 등이 있다. 또한, 국제공개 제2000/40586호 팜플렛 등에 기재된 보란 유도체를 사용할 수도 있다.

[0455] 방향족 아민 유도체는, 예를 들면, 하기 식으로 표시된다.



[0456]

[0457] 상기 식중, Ar<sup>4</sup>는 탄소수 6~30의 아릴에 유래하는 n개의 기이며, Ar<sup>5</sup> 및 Ar<sup>6</sup>는 각각 독립적으로 탄소수 6~30의 아릴이며, Ar<sup>4</sup>~Ar<sup>6</sup>는, 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 트리 치환 실릴(아릴 및/또는 알킬로 트리 치환된 실릴) 또는 시아노로 치환되어 있어도 되고, 그리고, n은 1~4의 정수이다.

[0458] 특히, Ar<sup>4</sup>이 안트라센, 크리센, 플루오렌, 벤조플루오렌 또는 피렌에 유래하는 2개의 기이며, Ar<sup>5</sup> 및 Ar<sup>6</sup>가 각각 독립적으로 탄소수 6~30의 아릴이며, Ar<sup>4</sup>~Ar<sup>6</sup>는, 아릴, 헤테로아릴, 알킬, 트리 치환 실릴(아릴 및/또는 알킬로 트리 치환된 실릴) 또는 시아노로 치환되어 있어도 되고, 그리고, n은 2인 방향족 아민 유도체가 보다 바람직하다.

[0459] 탄소수 6~30의 아릴 구체에는, 페닐, 나프틸, 아세나프틸레닐, 플루오레닐, 페날레닐, 페난트레닐, 안트릴, 플루오란테닐, 트리페닐레닐, 피레닐, 크리세닐, 나프타세닐, 페릴레닐, 펜타세닐 등을 들 수 있다.

[0460] 방향족 아민 유도체로서는, 크리센계로서는, 예를 들면, N,N,N',N'-테트라페닐크리센-6,12-디아민, N,N,N',N'-테트라(p-톨릴)크리센-6,12-디아민, N,N,N',N'-테트라(m-톨릴)크리센-6,12-디아민, N,N,N',N'-테트라키스(4-이소프로필페닐)크리센-6,12-디아민, N,N,N',N'-테트라(나프탈렌-2-일)크리센-6,12-디아민, N,N'-디페닐-N,N'-디(p-톨릴)크리센-6,12-디아민, N,N'-디페닐-N,N'-비스(4-에틸페닐)크리센-6,12-디아민, N,N'-디페닐-N,N'-비스(4-이소프로필페닐)크리센-6,12-디아민, N,N'-디페닐-N,N'-비스(4-tert-부틸페닐)크리센-6,12-디아민, N,N'-비스(4-이소프로필페닐)-N,N'-디(p-톨릴)크리센-6,12-디아민 등이 있다.

[0461] 또한, 피렌계로서는, 예를 들면, N,N,N',N'-테트라페닐피렌-1,6-디아민, N,N,N',N'-테트라(p-톨릴)피렌-1,6-디아민, N,N,N',N'-테트라(m-톨릴)피렌-1,6-디아민, N,N,N',N'-테트라키스(4-이소프로필페닐)피렌-1,6-디아민, N,N,N',N'-테트라키스(3,4-디메틸페닐)피렌-1,6-디아민, N,N'-디페닐-N,N'-디(p-톨릴)피렌-1,6-디아민, N,N'-디페닐-N,N'-비스(4-에틸페닐)피렌-1,6-디아민, N,N'-디페닐-N,N'-비스(4-이소프로필페닐)피렌-1,6-디아민, N,N'-디페닐-N,N'-비스(4-tert-부틸페닐)피렌-1,6-디아민, N,N'-비스(4-이소프로필페닐)-N,N'-디(p-톨릴)피렌-1,6-디아민, N,N,N',N'-테트라키스(3,4-디메틸페닐)-3,8-디페닐피렌-1,6-디아민, N,N,N,N'-테트라페닐피렌-1,8-디아민, N<sup>1</sup>N<sup>6</sup>-디페닐-N<sup>1</sup>N<sup>6</sup>-비스-(4-트리메틸실라닐-페닐)-1H,8H-피렌-1,6-디아민 등이 있다.

[0462] 또한, 안트라센계로서는, 예를 들면, N,N,N,N'-테트라페닐안트라센-9,10-디아민, N,N,N',N'-테트라(p-톨릴)안트라센-9,10-디아민, N,N,N',N'-테트라(m-톨릴)안트라센-9,10-디아민, N,N,N',N'-테트라키스(4-이소프로필페닐)안

트라센-9,10-디아민, N,N'-디페닐-N,N'-디(p-톨릴)안트라센-9,10-디아민, N,N'-디페닐-N,N'-디(m-톨릴)안트라센-9,10-디아민, N,N'-디페닐-N,N'-비스(4-에틸페닐)안트라센-9,10-디아민, N,N'-디페닐-N,N'-비스(4-이소프로필페닐)안트라센-9,10-디아민, N,N'-디페닐-N,N'-비스(4-tert-부틸페닐)안트라센-9,10-디아민, N,N'-비스(4-이소프로필페닐)-N,N'-디(p-톨릴)안트라센-9,10-디아민, 2,6-디-tert-부틸-N,N',N'-테트라(p-톨릴)안트라센-9,10-디아민, 2,6-디-tert-부틸-N,N'-디페닐-N,N'-비스(4-이소프로필페닐)안트라센-9,10-디아민, 2,6-디-tert-부틸-N,N'-비스(4-이소프로필페닐)-N,N'-디(p-톨릴)안트라센-9,10-디아민, 2,6-디시클로헥실-N,N'-비스(4-이소프로필페닐)-N,N'-디(p-톨릴)안트라센-9,10-디아민, 2,6-디시클로헥실-N,N'-비스(4-이소프로필페닐)-N,N'-비스(4-tert-부틸페닐)안트라센-9,10-디아민, 9,10-비스(4-디페닐아미노-페닐)안트라센, 9,10-비스(4-디(1-나프틸아미노)페닐)안트라센, 9,10-비스(4-디(2-나프틸아미노)페닐)안트라센, 10-디-p-톨릴아미노-9-(4-디-p-톨릴아미노-1-나프틸)안트라센, 10-디페닐아미노-9-(4-디페닐아미노-1-나프틸)안트라센, 10-디페닐아미노-9-(6-디페닐아미노-2-나프틸)안트라센 등이 있다.

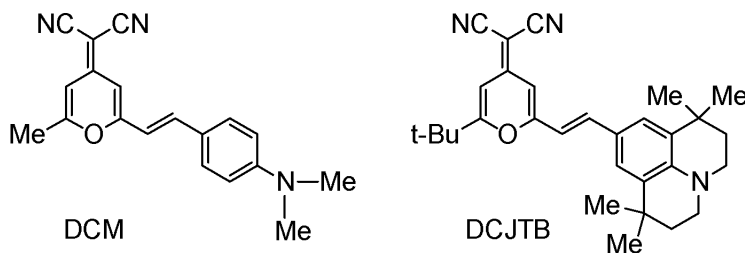
[0463] 또한, 그 외에는, [4-(4-디페닐아미노-페닐)나프탈렌-1-일]-디페닐아민, [6-(4-디페닐아미노-페닐)나프탈렌-2-일]-디페닐아민, 4,4'-비스[4-디페닐아미노나프탈렌-1-일]비페닐, 4,4'-비스[6-디페닐아미노나프탈렌-2-일]비페닐, 4,4''-비스[4-디페닐아미노나프탈렌-1-일]-p-터페닐, 4,4''-비스[6-디페닐아미노나프탈렌-2-일]-p-터페닐 등을 예로 들 수 있다.

[0464] 또한, 일본공개특허 제2006-156888호 공보 등에 기재된 방향족 아민 유도체를 사용할 수도 있다.

[0465] 쿠마린 유도체로서는, 쿠마린-6, 쿠마린-334 등을 예로 들 수 있다.

[0466] 또한, 일본공개특허 제2004-43646호 공보, 일본공개특허 제2001-76876호 공보, 및 일본공개특허 평6-298758호 공보 등에 기재된 쿠마린 유도체를 사용할 수도 있다.

[0467] 피란 유도체로서는, 하기 DCM, DCJTB 등을 예로 들 수 있다.



[0468]

[0469] 또한, 일본공개특허 제2005-126399호 공보, 일본공개특허 제2005-097283호 공보, 일본공개특허 제2002-234892호 공보, 일본공개특허 제2001-220577호 공보, 일본공개특허 제2001-081090호 공보, 및 일본공개특허 제2001-052869호 공보 등에 기재된 피란 유도체를 사용할 수도 있다.

[0470] <발광층형성용 조성물>

[0471] 식(1)으로 표시되는 다환 방향족 화합물은, 유기용매와 함께 발광층형성용 조성물로서 사용할 수도 있다. 상기 조성물은, 제1 성분으로서 적어도 1종의 다환 방향족 화합물과, 제2 성분으로서 적어도 1종의 호스트 재료와, 제3 성분으로서 적어도 1종의 유기용매를 함유한다. 제1 성분은, 상기 조성물로부터 얻어지는 발광층의 도펀트 성분으로서 기능하고, 제2 성분은 발광층의 호스트 성분으로서 기능한다. 제3 성분은, 조성물 중의 제1 성분과 제2 성분을 용해하는 용매로서 기능하고, 도포 시에는 제3 성분 자체의 제어된 증발 속도에 의해 평활하며 균일한 표면 형상을 제공한다.

[0472] [유기용매]

[0473] 상기 발광층형성용 조성물은, 제3 성분으로서, 적어도 1종의 유기용매를 포함한다. 성막 시에 유기용매의 증발 속도를 제어함으로써, 성막성 및 도막의 결함의 유무, 표면거칠기, 평활성을 제어 및 개선할 수 있다. 또한, 잉크젯법을 사용한 성막 시는, 잉크젯 헤드의 핀홀(pinhole)에서의 메니스커스 안정성을 제어하고, 토출성을 제어·개선할 수 있다. 또한, 막의 건조 속도 및 유도체 분자의 배향을 제어함으로써, 상기 발광층형성용 조성물로부터 얻어지는 발광층을 가지는 유기 EL 소자의 전기적 특성, 발광 특성, 효율, 및 수명을 개선할 수 있다.

[0474] (1) 유기용매의 물성

- [0475] 제3 성분에 있어서, 적어도 1종의 유기용매의 비점은, 130℃~300℃이며, 140℃~270℃가 보다 바람직하고, 150℃~250℃가 더욱 바람직하다. 비점이 130℃보다 높은 경우, 잉크젯의 토출성의 관점에서 바람직하다. 또한, 비점이 300℃보다 낮은 경우, 도막의 결함, 표면거칠기, 잔류 용매 및 평활성의 관점에서 바람직하다. 제3 성분은, 양호한 잉크젯의 토출성, 성막성, 평활성 및 낮은 잔류 용매의 관점에서, 2종 이상의 유기용매를 포함하는 구성이 더욱 바람직하다. 한편, 경우에 따라서는, 운반성 등을 고려하여, 발광층형성용 조성물 중에서 용매를 제거함으로써 고형 상태로 한 조성물이라도 된다.
- [0476] 또한, 제3 성분이 제2 성분의 호스트 재료에 대한 양용매(GS)와 부용매(PS)를 포함하고, 양용매(GS)의 비점(BP<sub>GS</sub>)이 부용매(PS)의 비점(BP<sub>PS</sub>)보다 낮은 구성이 특히 바람직하다.
- [0477] 고비점의 부용매를 가함으로써 성막 시에 저비점의 양용매가 먼저 휘발하고, 조성물 중의 함유물의 농도와 부용매의 농도가 증가하여 신속한 성막이 촉진된다. 이로써, 결함이 적고, 표면거칠기가 작은, 평활성이 높은 도막이 얻어진다.
- [0478] 용해도의 차(S<sub>GS</sub>-S<sub>PS</sub>)은, 1% 이상인 것이 바람직하고, 3% 이상인 것이 보다 바람직하고, 5% 이상인 것이 더욱 바람직하다. 비점의 차(BP<sub>PS</sub>-BP<sub>GS</sub>)는 10℃ 이상인 것이 바람직하고, 30℃ 이상인 것이 보다 바람직하고, 50℃ 이상인 것이 더욱 바람직하다.
- [0479] 유기용매는, 성막 후에, 진공, 감압, 가열 등의 건조 공정에 의해 도막으로부터 제거된다. 가열을 행할 경우, 도포 성막성 개선의 관점에서는, 제1 성분의 유리전이온도(Tg)+30℃ 이하에서 행하는 것이 바람직하다. 또한, 잔류 용매의 삭감의 관점에서는, 제1 성분의 유리전이점(Tg)-30℃ 이상에서 가열하는 것이 바람직하다. 가열온도가 유기용매의 비점보다 낮아도 막이 얇으므로, 유기용매는 충분히 제거된다. 또한, 다른 온도에서 복수 회 건조를 행해도 되고, 복수의 건조 방법을 병용해도 된다.
- [0480] (2) 유기용매의 구체예
- [0481] 발광층형성용 조성물에 사용되는 유기용매로서는, 알킬벤젠계 용매, 페닐에테르계 용매, 알킬에테르계 용매, 환형 케톤계 용매, 지방족 케톤계 용매, 단환성 케톤계 용매, 디에스테르 골격을 가지는 용매 및 불소 함유계 용매 등을 예로 들 수 있고, 구체예로서, 펜탄올, 헥산올, 헵탄올, 옥탄올, 노난올, 데칸올, 운데칸올, 도데칸올, 테트라데칸올, 헥산-2-올, 헵탄-2-올, 옥탄-2-올, 데칸-2-올, 도데칸-2-올, 시클로헥산올, α-테르피네올, β-테르피네올, γ-테르피네올, δ-테르피네올, 테르피네올(혼합물), 에틸렌글리콜모노메틸에테르아세테이트, 프로필렌글리콜모노메틸에테르아세테이트, 디에틸렌글리콜디메틸에테르, 디프로필렌글리콜디메틸에테르, 디에틸렌글리콜에틸메틸에테르, 디에틸렌글리콜이소프로필메틸에테르, 디프로필렌글리콜모노메틸에테르, 디에틸렌글리콜모노메틸에테르, 디에틸렌글리콜부틸메틸에테르, 트리프로필렌글리콜디메틸에테르, 트리에틸렌글리콜디메틸에테르, 디에틸렌글리콜모노부틸에테르, 에틸렌글리콜모노페닐에테르, 트리에틸렌글리콜모노메틸에테르, 디에틸렌글리콜디부틸에테르, 트리에틸렌글리콜부틸메틸에테르, 폴리에틸렌글리콜디메틸에테르, 테트라에틸렌글리콜디메틸에테르, p-크실렌, m-크실렌, o-크실렌, 2,6-루티딘, 2-플루오로-m-크실렌, 3-플루오로-o-크실렌, 2-클로로벤조 3불화물, 쿠멘, 톨루엔, 2-클로로-6-플루오로 톨루엔, 2-플루오로아니솔, 아니솔, 2,3-디메틸피라진, 브로모벤젠, 4-플루오로아니솔, 3-플루오로아니솔, 3-트리플루오로메틸아니솔, 메시틸렌, 1,2,4-트리메틸벤젠, tert-부틸벤젠, 2-메틸아니솔, 페넨톨, 벤조디옥솔, 4-메틸아니솔, sec-부틸 벤젠, 3-메틸아니솔, 4-플루오로-3-메틸아니솔, 시멘, 1,2,3-트리메틸벤젠, 1,2-디클로로벤젠, 2-플루오로벤조니트릴, 4-플루오로베라트올, 2,6-디메틸아니솔, n-부틸벤젠, 3-플루오로벤조니트릴, 데칼린(데카하이드로나프탈렌), 네오펜틸벤젠, 2,5-디메틸아니솔, 2,4-디메틸아니솔, 벤조니트릴, 3,5-디메틸아니솔, 디페닐에테르, 1-플루오로-3,5-디메톡시벤젠, 벤조산메틸, 이소펜틸벤젠, 3,4-디메틸아니솔, o-톨루니트릴, n-아밀벤젠, 베라트올, 1,2,3,4-테트라하이드로나프탈렌, 벤조산 에틸, n-헥실벤젠, 벤조산 프로필, 시클로헥실벤젠, 1-메틸나프탈렌, 벤조산 부틸, 2-메틸비페닐, 3-페녹시톨루엔, 2,2'-비톨릴, 도데실벤젠, 디펜틸벤젠, 테트라메틸벤젠, 트리메톡시벤젠, 트리메톡시톨루엔, 2,3-디하이드로벤조퓨란, 1-메틸-4-(프로폭시메틸)벤젠, 1-메틸-4-(부틸옥시메틸)벤젠, 1-메틸-4-(펜틸옥시메틸)벤젠, 1-메틸-4-(헥실옥시메틸)벤젠, 1-메틸-4-(헵틸옥시메틸)벤젠벤질부틸에테르, 벤질펜틸에테르, 벤질헥실에테르, 벤질헵틸에테르, 벤질옥틸에테르 등을 들 수 있지만, 이들만으로 한정되지 않는다. 또한, 용매는 단일로 사용해도 되고, 혼합해도 된다.
- [0482] [임의 성분]
- [0483] 발광층형성용 조성물은, 그 성질을 손상시키지 않는 범위에서, 임의 성분을 포함해도 된다. 임의 성분으로서,



바인더 및 계면활성제 등을 들 수 있다.

[0484]

(1) 바인더

[0485]

발광층형성용 조성물은, 바인더를 함유하고 있어도 된다. 바인더는, 성막 시에는 막을 형성하는 동시에, 얻어진 막을 기판과 접합한다. 또한, 해당 발광층형성용 조성물 중에서 다른 성분을 용해 및 분산 및 결합시키는 역할을 한다.

[0486]

발광층형성용 조성물에 사용되는 바인더로서는, 예를 들면, 아크릴 수지, 폴리에틸렌테레프탈레이트, 에틸렌-아세트산 비닐 공중합체, 에틸렌-비닐알코올 공중합체, 아크릴로니트릴-에틸렌-스티렌 공중합체(AES) 수지, 아이오노머, 염소화 폴리에테르, 디아릴프탈레이트 수지, 불포화 폴리에스테르 수지, 폴리에틸렌, 폴리프로필렌, 폴리염화 비닐, 폴리염화 비닐리덴, 폴리스티렌, 폴리아세트산 비닐, 테프론, 아크릴로니트릴-부타디엔-스티렌 공중합체(ABS) 수지, 아크릴로니트릴-스티렌 공중합체(AS) 수지, 페놀 수지, 에폭시 수지, 멜라민 수지, 요소 수지, 알키드 수지, 폴리우레탄, 및 상기 수지 및 폴리머의 공중합체가 있지만, 이들만으로 한정되지 않는다.

[0487]

발광층형성용 조성물에 사용되는 바인더는, 1종만이라도 되고 복수 종류를 혼합하여 사용할 수도 있다.

[0488]

(2) 계면활성제

[0489]

발광층형성용 조성물은, 예를 들면, 발광층형성용 조성물의 막면 균일성, 막표면의 친용매성 및 발액성의 제어를 위해 계면활성제를 함유할 수도 있다. 계면활성제는, 친수성기의 구조로부터 이온 및 비이온으로 분류되고, 또한 소수성기의 구조로부터 알킬계 및 실리콘계 및 불소계로 분류된다. 또한, 분자의 구조로부터, 분자량이 비교적 작고 단순한 구조를 가지는 단분자계 및 분자량이 크고 측쇄나 분지를 가지는 고분자계로 분류된다. 또한, 조성으로부터, 단일계, 2종 이상의 계면활성제 및 기재(基材)를 혼합한 혼합계로 분류된다. 해당 발광층형성용 조성물에 사용할 수 있는 계면활성제로서는, 모든 종류의 계면활성제를 사용할 수 있다.

[0490]

계면활성제로서는, 예를 들면, 폴리플로우 No.45, 폴리플로우 KL-245, 폴리플로우 No.75, 폴리플로우 No.90, 폴리플로우 No.95(상품명, 교에이사항화(共榮社化學)공업(주) 제조), 디스퍼베이크(Disperbyk) 161, 디스퍼베이크 162, 디스퍼베이크 163, 디스퍼베이크 164, 디스퍼베이크 166, 디스퍼베이크 170, 디스퍼베이크 180, 디스퍼베이크 181, 디스퍼베이크 182, BYK300, BYK306, BYK310, BYK320, BYK330, BYK342, BYK344, BYK346(상품명, 빅케미·재팬(주) 제조), KP-341, KP-358, KP-368, KF-96-50CS, KF-50-100CS(상품명, 신에츠화학공업(信越化學工業)(주) 제조), 서플론(surflon) SC-101, 서플론 KH-40(상품명, 세이메키컬(주) 제조), 프타젠트(FTERGENT) 222F, 프타젠트 251, FTX-218(상품명, (주)네오스 제조), EFTOP EF-351, EFTOP EF-352, EFTOP EF-601, EFTOP EF-801, EFTOP EF-802(상품명, 미쓰비시머티리얼(주) 제조), 메가팩 F-470, 메가팩 F-471, 메가팩 F-475, 메가팩 R-08, 메가팩 F-477, 메가팩 F-479, 메가팩 F-553, 메가팩 F-554(상품명, DIC(주) 제조), 플루오로알킬벤젠술포산염, 플루오로알킬카르복시산염, 플루오로알킬폴리옥시에틸렌에테르, 플루오로알킬암모늄염, 플루오로알킬베타인, 플루오로알킬술포산염, 디글리세린테트라키스(플루오로알킬폴리옥시에틸렌에테르), 플루오로알킬트리메틸암모늄염, 플루오로알킬아미노술포산염, 폴리옥시에틸렌노닐페닐에테르, 폴리옥시에틸렌옥틸페닐에테르, 폴리옥시에틸렌알킬에테르, 폴리옥시에틸렌라우레이트, 폴리옥시에틸렌올레이트, 폴리옥시에틸렌스테아레이트, 폴리옥시에틸렌라우릴아민, 소르비탄라우레이트, 소르비탄팔미테이트, 소르비탄스테아레이트, 소르비탄올레이트, 소르비탄지방산 에스테르, 폴리옥시에틸렌소르비탄라우레이트, 폴리옥시에틸렌소르비탄팔미테이트, 폴리옥시에틸렌소르비탄스테아레이트, 폴리옥시에틸렌노닐페닐에테르디술포산염이 있다.

[0491]

또한, 계면활성제는 1종으로 사용해도 되고, 2종 이상을 병용해도 된다.

[0492]

[발광층형성용 조성물의 조성 및 물성]

[0493]

발광층형성용 조성물에서의 각 성분의 함유량은, 발광층형성용 조성물 중의 각 성분이 양호한 용해성, 보존안정성 및 성막성, 및 해당 발광층형성용 조성물로부터 얻어지는 도막이 양질의 막질, 또한, 잉크젯법을 사용한 경우의 양호한 토출성, 해당 조성물을 사용하여 제작된 발광층을 가지는 유기 EL 소자의, 양호한 전기적 특성, 발광 특성, 효율, 수명의 관점에서, 제1 성분이 발광층형성용 조성물의 전체 질량에 대하여, 0.0001질량%~2.0질량%, 제2 성분이 발광층형성용 조성물의 전체 질량에 대하여, 0.0999질량%~8.0질량%, 제3 성분이 발광층형성용 조성물의 전체 질량에 대하여, 90.0질량%~99.9질량%가 바람직하다.

[0494]

보다 바람직하게는, 제1 성분이 발광층형성용 조성물의 전체 질량에 대하여, 0.005질량%~1.0질량%, 제2 성분이 발광층형성용 조성물의 전체 질량에 대하여, 0.095질량%~4.0질량%, 제3 성분이 발광층형성용 조성물의 전체 질량에 대하여, 90.0질량%~99.9질량%가 바람직하다.

량에 대하여, 95.0질량%~99.9질량%이다. 더욱 바람직하게는, 제1 성분이 발광층형성용 조성물의 전체 질량에 대하여, 0.05질량%~0.5질량%, 제2 성분이 발광층형성용 조성물의 전체 질량에 대하여, 0.25질량%~2.5질량%, 제3 성분이 발광층형성용 조성물의 전체 질량에 대하여, 97.0질량%~99.7질량%이다.

[0495] 발광층형성용 조성물은, 전술한 성분을, 공지의 방법으로 교반, 혼합, 가열, 냉각, 용해, 분산 등을 적절하게 선택하여 행함으로써 제조할 수 있다. 또한, 조제 후에, 여과, 탈가스(디가싱이라고도 함), 이온 교환 처리 및 불활성 가스 치환·봉입(封入) 처리 등을 적절하게 선택하여 행해도 된다.

[0496] 발광층형성용 조성물의 점도로서는, 고점도인 것이, 양호한 성막성과 잉크젯법을 사용한 경우의 양호한 토출성이 얻어진다. 한편, 저점도인 것이 박막을 만들기 쉽다. 이에 따라, 상기 발광층형성용 조성물의 점도는, 25℃에서의 점도가 0.3mPa·s~3mPa·s인 것이 바람직하고, 1mPa·s~3mPa·s인 것이 보다 바람직하다. 본 발명에 있어서, 점도는 원뿔평판형 회전 점도계(콘플레이트 타입)를 사용하여 측정한 값이다.

[0497] 발광층형성용 조성물의 표면 장력으로서, 낮은 것이 양호한 성막성 및 결함이 없는 도막이 얻어진다. 한편, 높은 것이 양호한 잉크젯 토출성이 얻어진다. 이에 따라, 상기 발광층형성용 조성물의 표면 장력은, 25℃에서의 표면 장력이 20mN/m~40mN/m인 것이 바람직하고, 20mN/m~30mN/m인 것이 보다 바람직하다. 본 발명에 있어서, 표면 장력은 현탁법을 사용하여 측정한 값이다.

[0498] <유기전계 발광소자에서의 전자주입층, 전자수송층>

[0499] 전자주입층(107)은, 음극(108)으로부터 이동해 오는 전자를, 효율적으로 발광층(105) 내 또는 전자수송층(106) 내에 주입하는 역할을 한다. 전자수송층(106)은, 음극(108)으로부터 주입된 전자 또는 음극(108)으로부터 전자주입층(107)을 통하여 주입된 전자를, 효율적으로 발광층(105)에 수송하는 역할을 한다. 전자수송층(106) 및 전자주입층(107)은, 각각, 전자 수송·주입 재료의 1종 또는 2종 이상을 적층, 혼합하거나, 전자수송·주입 재료와 고분자 결합체의 혼합물에 의해 형성된다.

[0500] 전자 주입·수송층은, 음극으로부터 전자가 주입되고, 또한 전자를 수송하는 것을 담당하는 층이며, 전자주입 효율이 높고, 주입된 전자를 효율적으로 수송하는 것이 바람직하다. 이를 위해서는 전자친화력이 크고, 또한 전자이동도가 크고, 나아가서는 안정성이 우수하고, 트랩이 되는 불순물이 제조 시 및 사용 시에 쉽게 생기지 않는 물질인 것이 바람직하다. 그러나, 정공과 전자의 수송 밸런스를 고려한 경우에, 양극으로부터의 정공이 재결합하지 않고 음극 측으로 흐르는 것을 효율적으로 저지할 수 있는 역할을 주로 하는 경우에는, 전자수송능이 그다지 높지 않아도, 발광 효율을 향상시키는 효과는 전자수송능이 높은 재료와 동등하게 가진다. 따라서, 본 실시형태에서의 전자 주입·수송층은, 정공의 이동을 효율적으로 저지할 수 있는 층의 기능도 포함되어도 된다.

[0501] 전자수송층(106) 또는 전자주입층(107)을 형성하는 재료(전자수송 재료)로서는, 광도전 재료에 있어서 전자전달 화합물로서 종래부터 관용되고 있는 화합물, 유기 EL 소자의 전자주입층 및 전자수송층에 사용되고 있는 공지의 화합물 중에서 임의로 선택하여 사용할 수 있다.

[0502] 전자수송층 또는 전자주입층에 사용되는 재료로서는, 탄소, 수소, 산소, 유황, 규소 및 인 중에서 선택되는 1종 이상의 원자로 구성되는 방향족환 혹은 복소방향족환으로 이루어지는 화합물, 피롤 유도체 및 그 축합환 유도체 및 전자수용성 질소를 가지는 금속 착체 중에서 선택되는 적어도 1종을 함유하는 것이 바람직하다. 구체적으로는, 나프탈렌, 안트라센 등의 축합환계 방향족환 유도체, 4,4'-비스(디페닐에테닐)비페닐로 대표되는 스티릴계 방향족환 유도체, 페리논 유도체, 쿠마린 유도체, 나프탈이미드 유도체, 안트라퀴논이나 디페노퀴논 등의 퀴논 유도체, 포스핀옥사이드 유도체, 아릴니트릴 유도체 및 인돌 유도체 등을 예로 들 수 있다. 전자수용성 질소를 가지는 금속 착체로서는, 예를 들면, 하이드록시페닐옥사졸 착체 등의 하이드록시아졸 착체, 아조메틴착체, 트로폴론 금속 착체, 플라보놀 금속 착체 및 벤조퀴놀린 금속 착체 등이 있다. 이들 재료는 단독으로도 사용되지만, 다른 재료와 혼합하여 사용해도 상관없다.

[0503] 또한, 다른 전자전달 화합물의 구체예로서, 피리딘 유도체, 나프탈렌 유도체, 플루오란텐 유도체, BQ계 유도체, 안트라센 유도체, 페난트롤린 유도체, 페리논유도체, 쿠마린 유도체, 나프탈이미드 유도체, 안트라퀴논 유도체, 디페노퀴논 유도체, 디페닐퀴논 유도체, 페릴렌 유도체, 옥사디아졸 유도체 (1,3-비스[(4-tert-부틸페닐)1,3,4-옥사디아졸릴]페닐렌 등), 티오펜 유도체, 트리아졸 유도체(N-나프틸-2,5-디페닐-1,3,4-트리아졸 등), 티아디아졸 유도체, 옥신 유도체의 금속 착체, 퀴놀리논계 금속 착체, 퀴놀살린 유도체, 퀴놀살린 유도체의 폴리머, 벤자졸류 화합물, 갈륨 착체, 피라졸 유도체, 퍼플루오로화 페닐렌 유도체, 트리아진 유도체, 피라진 유도체, 벤조퀴놀린 유도체(2,2'-비스(벤조[h]퀴놀린-2-일)-9,9'-스피로비플루오렌 등), 이미다조피리딘 유도체, 보란 유도체, 벤즈이미다졸 유도체(트리스(N-페닐벤조이미다졸-2-일)벤젠 등), 벤즈옥사졸 유도체, 티아졸 유도체, 벤



조티아졸 유도체, 퀴놀린 유도체, 터피리딘 등의 올리고 피리딘 유도체, 비피리딘 유도체, 터피리딘 유도체 (1,3-비스(4'-(2,2':6',2"-터피리디닐))벤젠 등), 나프티리딘 유도체(비스(1-나프틸)-4-(1,8-나프티리딘-2-일)페닐포스핀옥사이드 등), 알다진 유도체, 아틸니트릴 유도체, 인돌 유도체, 포스핀옥사이드 유도체, 비스스티릴 유도체, 실릴 유도체, 및 아졸린 유도체 등을 들 수 있다.

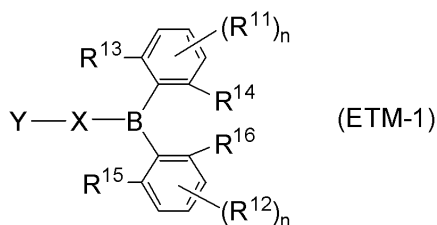
[0504] 또한, 전자수용성 질소를 가지는 금속 착체를 사용할 수도 있으며, 예를 들면, 퀴놀리놀계 금속 착체나 하이드록시페닐옥사졸 착체 등의 하이드록시아졸 착체, 아조메틴 착체, 트로폴론 금속 착체, 플라보놀 금속 착체 및 벤조퀴놀린 금속 착체 등이 있다.

[0505] 전술한 재료는 단독으로도 사용되지만, 다른 재료와 혼합하여 사용해도 상관없다.

[0506] 전술한 재료 중에서도, 보란 유도체, 피리딘 유도체, 플루오란텐 유도체, B0계 유도체, 안트라센 유도체, 벤조플루오렌 유도체, 포스핀옥사이드 유도체, 피리미딘 유도체, 아틸니트릴 유도체, 트리아진 유도체, 벤즈이미다졸 유도체, 페난트롤린 유도체, 퀴놀리놀계 금속 착체, 티아졸 유도체, 벤조티아졸 유도체, 실릴 유도체 및 아졸린 유도체가 바람직하다.

[0507] [보란 유도체]

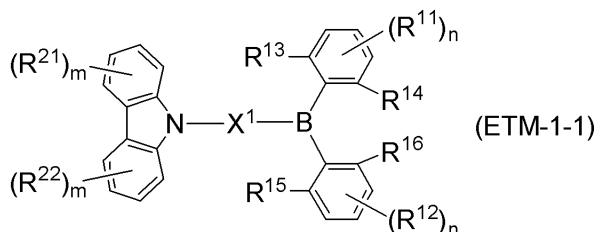
[0508] 보란 유도체는, 예를 들면, 하기 식(ETM-1)으로 표시되는 화합물이며, 상세하게는 일본공개특허 제2007-27587호 공보에 개시되어 있다.



[0509]

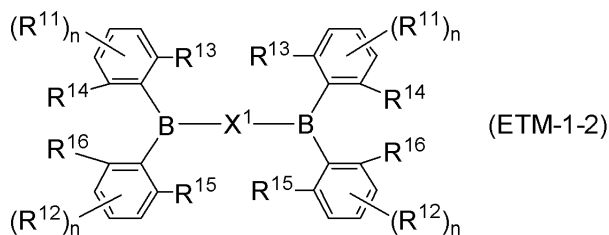
[0510] 식(ETM-1) 중,  $R^{11}$  및  $R^{12}$ 는, 각각 독립적으로, 수소, 알킬, 치환되어 있어도 되는 아릴, 치환되어 있는 실릴, 치환되어 있어도 되는 질소 함유 복소환, 또는 시아노 중 적어도 1개이며,  $R^{13} \sim R^{16}$ 은, 각각 독립적으로, 치환되어 있어도 되는 알킬, 또는 치환되어 있어도 되는 아릴이며, X는, 치환되어 있어도 되는 아릴렌이며, Y는, 치환되어 있어도 되는 탄소수 16 이하의 아릴, 치환되어 있는 보릴, 또는 치환되어 있어도 되는 카르바줄릴이며, 그리고, n은 각각 독립적으로 0~3의 정수이다.

[0511] 상기 식(ETM-1)으로 표시되는 화합물 중에서도, 하기 식(ETM-1-1)로 표시되는 화합물이나 하기 식(ETM-1-2)으로 표시되는 화합물이 바람직하다.



[0512]

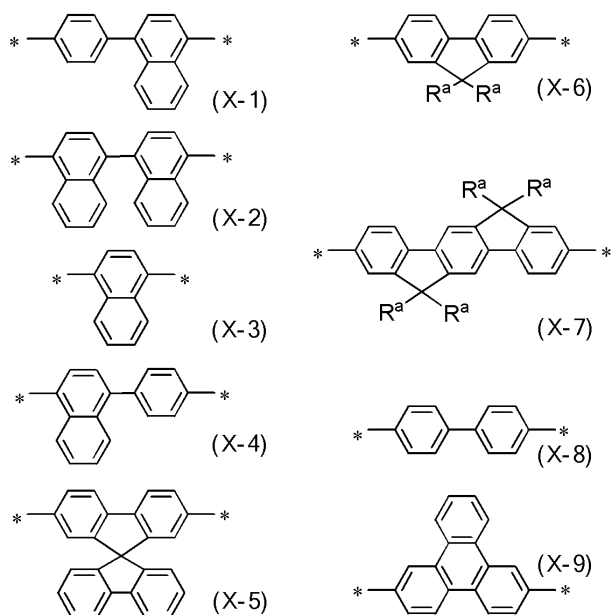
[0513] 식(ETM-1-1) 중,  $R^{11}$  및  $R^{12}$ 는, 각각 독립적으로, 수소, 알킬, 치환되어 있어도 되는 아릴, 치환되어 있는 실릴, 치환되어 있어도 되는 질소 함유 복소환, 또는 시아노 중 적어도 1개이며,  $R^{13} \sim R^{16}$ 은, 각각 독립적으로, 치환되어 있어도 되는 알킬, 또는 치환되어 있어도 되는 아릴이며,  $R^{21}$  및  $R^{22}$ 는, 각각 독립적으로, 수소, 알킬, 치환되어 있어도 되는 아릴, 치환되어 있는 실릴, 치환되어 있어도 되는 질소 함유 복소환, 또는 시아노 중 적어도 1개이며,  $X^1$ 은, 치환되어 있어도 되는 탄소수 20이하의 아릴렌이며, n은 각각 독립적으로 0~3의 정수이며, 그리고, m은 각각 독립적으로 0~4의 정수이다.



[0514]

[0515] 식(ETM-1-2) 중,  $R^{11}$  및  $R^{12}$ 는, 각각 독립적으로, 수소, 알킬, 치환되어 있어도 되는 아릴, 치환되어 있는 실릴, 치환되어 있어도 되는 질소 함유 복소환, 또는 시아노 중 적어도 1개이며,  $R^{13} \sim R^{16}$ 은, 각각 독립적으로, 치환되어 있어도 되는 알킬, 또는 치환되어 있어도 되는 아릴이며,  $X^1$ 은, 치환되어 있어도 되는 탄소수 20이하의 아릴렌이며, 그리고,  $n$ 은 각각 독립적으로 0~3의 정수이다.

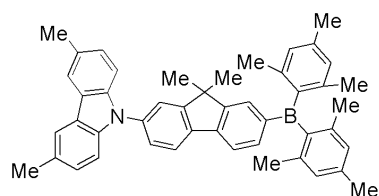
[0516]  $X^1$ 의 구체적인 예로서는, 하기 식(X-1)~식(X-9)으로 표시되는 2가의 기를 들 수 있다.



[0517]

[0518] (각 식 중,  $R^a$ 는, 각각 독립적으로 알킬 또는 치환되어 있어도 되는 페닐이며, \*는 결합 위치를 나타낸다.)

[0519] 이 보란 유도체의 구체예로서는, 예를 들면 이하의 화합물이 있다.

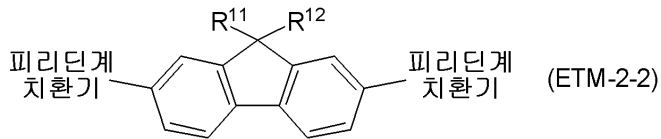
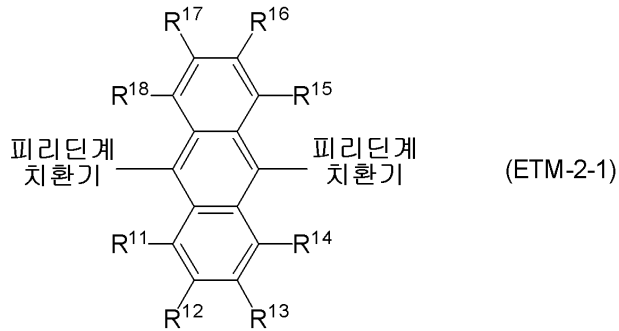
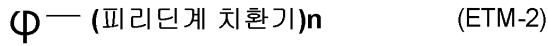


[0520]

[0521] 이 보란 유도체는 공지의 원료와 공지의 합성 방법을 사용하여 제조할 수 있다.

[0522] [피리딘 유도체]

[0523] 피리딘 유도체는, 예를 들면, 하기 식(ETM-2)으로 표시되는 화합물이며, 바람직하게는 식(ETM-2-1) 또는 식(ETM-2-2)으로 표시되는 화합물이다.



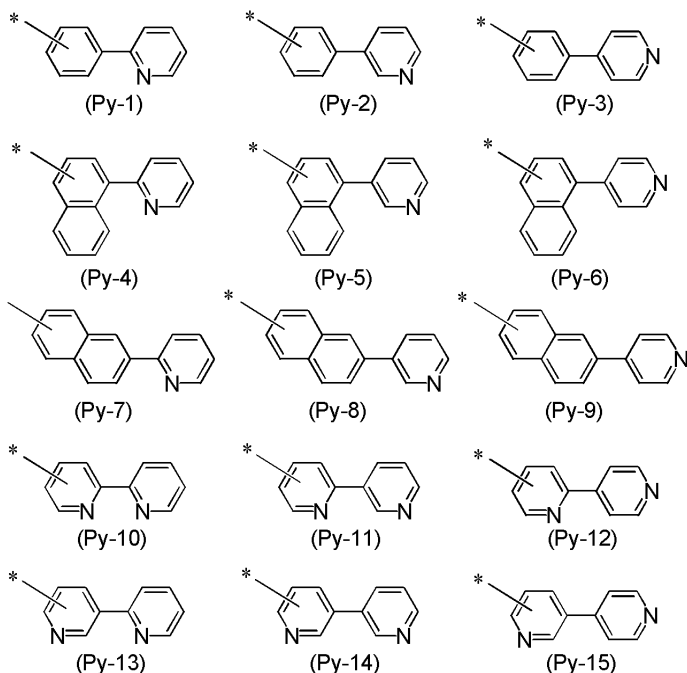
[0524]

[0525]  $\phi$ 는, n개의 아릴환(바람직하게는 n개의 벤젠환, 나프탈렌환, 안트라센환, 플루오렌환, 벤조플루오렌환, 페닐렌환, 페난트렌환 또는 트리페닐렌환)이며, n은 1~4의 정수이다.

[0526] 식(ETM-2-1)에 있어서,  $R^{11} \sim R^{18}$ 은, 각각 독립적으로, 수소, 알킬(바람직하게는 탄소수 1~24의 알킬), 시클로알킬(바람직하게는 탄소수 3~12의 시클로알킬) 또는 아릴(바람직하게는 탄소수 6~30의 아릴)이다.

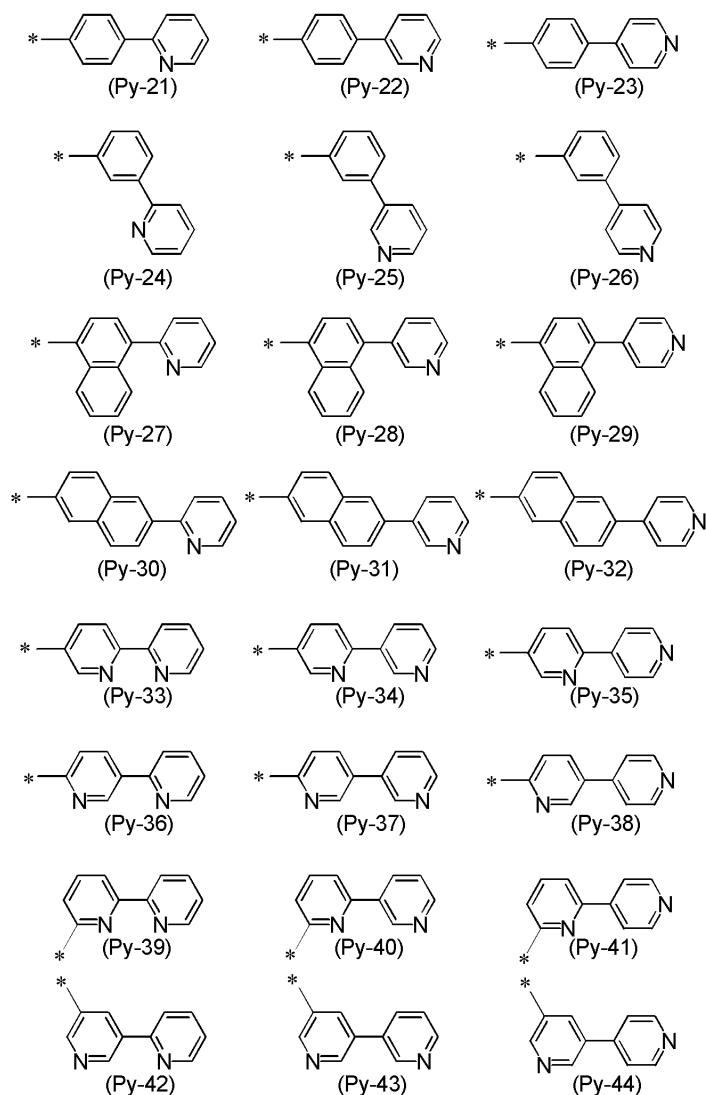
[0527] 식(ETM-2-2)에 있어서,  $R^{11}$  및  $R^{12}$ 는, 각각 독립적으로, 수소, 알킬(바람직하게는 탄소수 1~24의 알킬), 시클로알킬(바람직하게는 탄소수 3~12의 시클로알킬) 또는 아릴(바람직하게는 탄소수 6~30의 아릴)이며,  $R^{11}$  및  $R^{12}$ 는 결합하여 환을 형성하고 있어도 된다.

[0528] 각 식에 있어서, 「피리딘계 치환기」는, 하기 식(Py-1)~식(Py-15) 중 어느 하나(식 중의 \*는, 결합 위치를 나타낸다.)이며, 피리딘계 치환기는 각각 독립적으로 탄소수 1~4의 알킬로 치환되어 있어도 된다. 또한, 피리딘계 치환기는 페닐렌이나 나프틸렌을 통하여 각 식에서의  $\phi$ , 안트라센환 또는 플루오렌환에 결합하고 있어도 된다.



[0529]

[0530] 피리딘계 치환기는, 상기 식(Py-1)~식(Py-15) 중 어느 하나이지만, 이들 중에서도, 하기 식(Py-21)~식(Py-44) 중 어느 하나인 것이 바람직하다.



[0531]

[0532] 각 피리딘 유도체에서의 적어도 1개의 수소가 중수소로 치환되어 있어도 되고, 또한, 상기 식(ETM-2-1) 및 식(ETM-2-2)에서의 2개의 「피리딘계 치환기」 중 한쪽은 아릴로 치환되어 있어도 된다.

[0533]  $R^{11} \sim R^{18}$ 에서의 「알킬」로서는, 직쇄 및 분지쇄 중 어느 것이라도 되며, 예를 들면, 탄소수 1~24의 직쇄 알킬 또는 탄소수 3~24의 분지쇄 알킬이 있다. 바람직한 「알킬」은, 탄소수 1~18의 알킬(탄소수 3~18의 분지쇄 알킬)이다. 보다 바람직한 「알킬」은, 탄소수 1~12의 알킬(탄소수 3~12의 분지쇄 알킬)이다. 더욱 바람직한 「알킬」은, 탄소수 1~6의 알킬(탄소수 3~6의 분지쇄 알킬)이다. 특히 바람직한 「알킬」은, 탄소수 1~4의 알킬(탄소수 3~4의 분지쇄 알킬)이다.

[0534]

구체적인 「알킬」로서는, 메틸, 에틸, n-프로필, 이소프로필, n-부틸, 이소부틸, sec-부틸, tert-부틸, n-펜틸, 이소펜틸, 네오펜틸, tert-펜틸, n-헥실, 1-메틸헥실, 4-메틸-2-펜틸, 3,3-디메틸부틸, 2-에틸부틸, n-헵틸, 1-메틸헵틸, n-옥틸, tert-옥틸, 1-메틸헵틸, 2-에틸헵틸, 2-프로필헵틸, n-노닐, 2,2-디메틸헵틸, 2,6-디메틸-4-헵틸, 3,5,5-트리메틸헵틸, n-데실, n-운데실, 1-메틸데실, n-도데실, n-트리데실, 1-헵틸헵틸, n-테트라데실, n-펜타데실, n-헥사데실, n-헵타데실, n-옥타데실, n-에이코실 등을 예로 들 수 있다.

[0535]

피리딘계 치환기에 치환하는 탄소수 1~4의 알킬로서는, 상기 알킬의 설명을 인용할 수 있다.

[0536]

$R^{11} \sim R^{18}$ 에서의 「시클로알킬」로서는, 예를 들면, 탄소수 3~12의 시클로알킬이 있다. 바람직한 「시클로알킬」은, 탄소수 3~10의 시클로알킬이다. 보다 바람직한 「시클로알킬」은, 탄소수 3~8의 시클로알킬이다. 더욱 바람직한 「시클로알킬」은, 탄소수 3~6의 시클로알킬이다.

[0537] 구체적 「시클로알킬」로서는, 시클로프로필, 시클로부틸, 시클로펜틸, 시클로헥실, 메틸시클로펜틸, 시클로헵틸, 메틸시클로헥실, 시클로옥틸 또는 디메틸시클로헥실 등을 예로 들 수 있다.

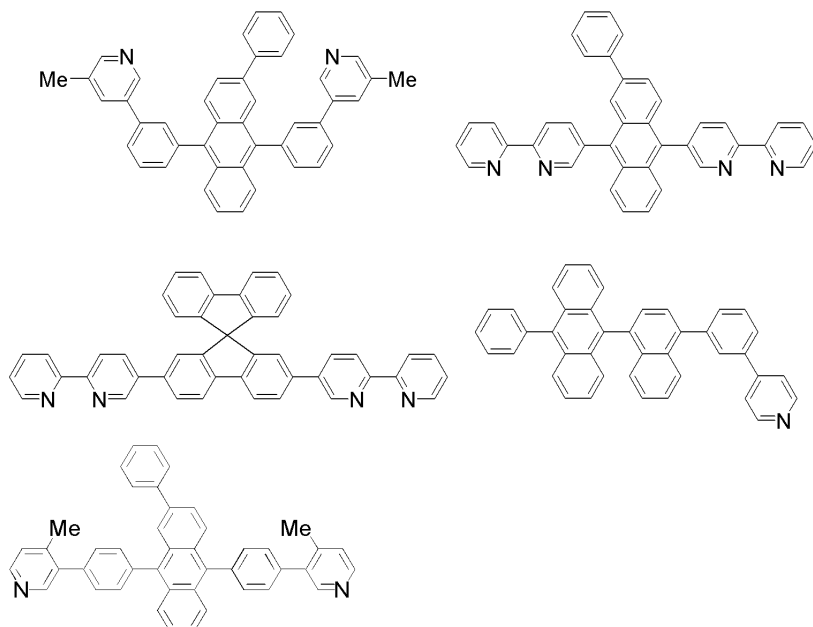
[0538]  $R^{11} \sim R^{18}$ 에서의 「아릴」로서는, 바람직한 아릴은 탄소수 6~30의 아릴이며, 보다 바람직한 아릴은 탄소수 6~18의 아릴이며, 더욱 바람직하게는 탄소수 6~14의 아릴이며, 특히 바람직하게는 탄소수 6~12의 아릴이다.

[0539] 구체적 「탄소수 6~30의 아릴」로서는, 단환계 아릴인 페닐, 축합 2환계 아릴인 (1-, 2-)나프틸, 축합 3환계 아릴인, 아세나프틸렌-(1-, 3-, 4-, 5-)일, 플루오렌-(1-, 2-, 3-, 4-, 9-)일, 페날렌-(1-, 2-)일, (1-, 2-, 3-, 4-, 9-)페난트릴, 축합 4환계 아릴인 트리페닐렌-(1-, 2-)일, 피렌-(1-, 2-, 4-)일, 나프타센-(1-, 2-, 5-)일, 축합 5환계 아릴인 페틸렌-(1-, 2-, 3-)일, 펜타센-(1-, 2-, 5-, 6-)일 등을 예로 들 수 있다.

[0540] 바람직한 「탄소수 6~30의 아릴」은, 페닐, 나프틸, 페난트릴, 크리스닐 또는 트리페닐레닐 등을 예로 들 수 있고, 더욱 바람직하게는 페닐, 1-나프틸, 2-나프틸 또는 페난트릴을 예로 들 수 있고, 특히 바람직하게는 페닐, 1-나프틸 또는 2-나프틸을 예로 들 수 있다.

[0541] 상기 식(ETM-2-2)에서의  $R^{11}$  및  $R^{12}$ 는 결합하여 환을 형성하고 있어도 되고, 그 결과, 플루오렌 골격의 5원환에는, 시클로부탄, 시클로펜탄, 시클로헥텐, 시클로헵타디엔, 시클로헥산, 플루오렌 또는 인텐 등이 스피로 결합하고 있어도 된다.

[0542] 이 피리딘 유도체의 구체예로서는, 예를 들면 하기 화합물이 있다.

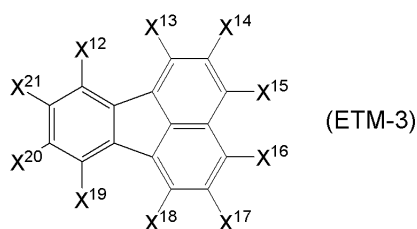


[0543]

[0544] 이 피리딘 유도체는 공지의 원료와 공지의 합성 방법을 사용하여 제조할 수 있다.

[0545] [플루오란텐 유도체]

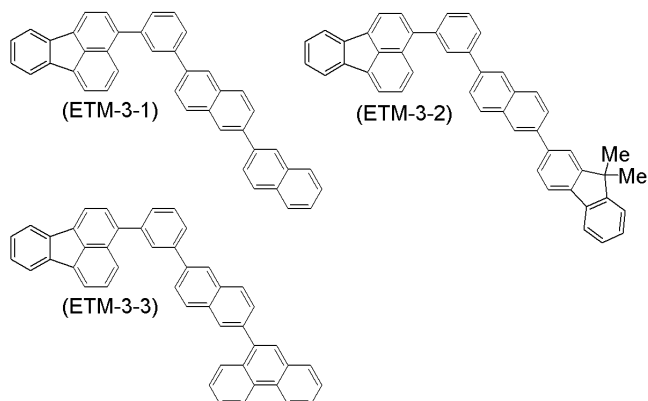
[0546] 플루오란텐 유도체는, 예를 들면 하기 식(ETM-3)으로 표시되는 화합물이며, 상세하게는 국제공개 제2010/134352 호에 개시되어 있다.



[0547]

[0548] 식(ETM-3) 중,  $X^{12} \sim X^{21}$ 은 수소, 할로젠, 직쇄, 분지 혹은 환형의 알킬, 직쇄, 분지 혹은 환형의 알콕시, 치환 혹은 무치환의 아릴, 또는 치환 혹은 무치환의 헤테로아릴을 나타낸다.

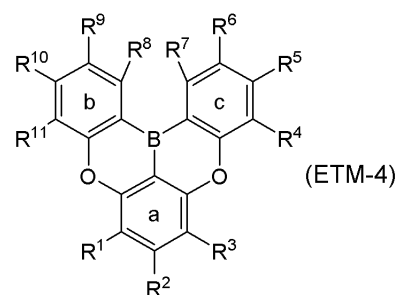
[0549] 이 플루오란텐 유도체의 구체예로서는, 예를 들면 하기 화합물이 있다.



[0550]

[0551] [B0계 유도체]

[0552] B0계 유도체는, 예를 들면, 하기 식(ETM-4)으로 표시되는 다환 방향족 화합물, 또는 하기 식(ETM-4)으로 표시되는 구조를 복수 가지는 다환 방향족 화합물의 다량체이다.



[0553]

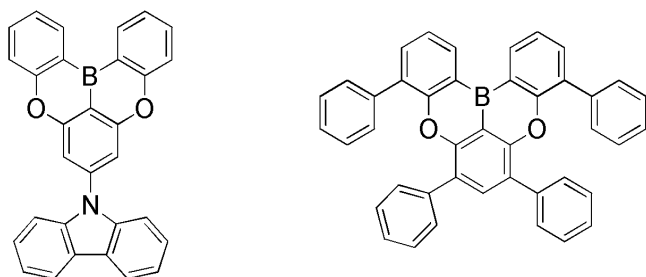
[0554]  $R^1 \sim R^{11}$ 은, 각각 독립적으로, 수소, 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 디헤테로아릴아미노, 아릴헤테로아릴아미노, 알킬, 알콕시 또는 아릴옥시이며, 이들에서의 적어도 1개의 수소는 아릴, 헤테로아릴 또는 알킬로 치환되어 있어도 된다.

[0555] 또한,  $R^1 \sim R^{11}$  중 인접하는 기끼리 결합하여 a환, b환 또는 c환과 함께 아릴환 또는 헤테로아릴환을 형성하고 있어도 되고, 형성된 환에서의 적어도 1개의 수소는 아릴, 헤테로아릴, 디아릴아미노, 디헤테로아릴아미노, 아릴헤테로아릴아미노, 알킬, 알콕시 또는 아릴옥시로 치환되어 있어도 되고, 이들에서의 적어도 1개의 수소는 아릴, 헤테로아릴 또는 알킬로 치환되어 있어도 된다.

[0556] 또한, 식(ETM-4)으로 표시되는 화합물 또는 구조에서의 적어도 1개의 수소가 할로겐 또는 중수소로 치환되어 있어도 된다.

[0557] 식(ETM-4)에서의 치환기나 환 형성의 형태, 또한 식(ETM-4)의 구조가 복수 합쳐져서 형성되는 다량체의 설명에 대해서는, 국제공개 제2015/102118호에서의 다량체의 설명을 인용할 수 있다.

[0558] 이 B0계 유도체의 구체예로서는, 예를 들면 하기 화합물이 있다.

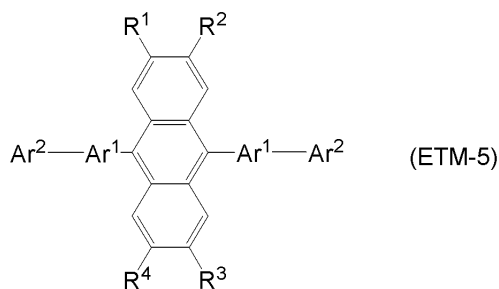


[0559]

[0560] 이 B0계 유도체는 공지의 원료와 공지의 합성 방법을 사용하여 제조할 수 있다.

[0561] [안트라센 유도체]

[0562] 안트라센 유도체에 1개는, 예를 들면 하기 식(ETM-5)로 표시되는 화합물이다.



[0563]

[0564] Ar<sup>1</sup>은, 각각 독립적으로, 단결합, 2가의 벤젠, 나프탈렌, 안트라센, 플루오렌, 또는 페날렌이다.

[0565] Ar<sup>2</sup>는, 각각 독립적으로, 탄소수 6~20의 아릴이며, 탄소수 6~16의 아릴이 바람직하고, 탄소수 6~12의 아릴이 보다 바람직하고, 탄소수 6~10의 아릴이 특히 바람직하다. 「탄소수 6~20의 아릴」의 구체예로서는, 단환계 아릴인 페닐, (o-, m-, p-)톨릴, (2,3-, 2,4-, 2,5-, 2,6-, 3,4-, 3,5-)크실릴, 메시틸(2,4,6-트리메틸페닐), (o-, m-, p-)쿠메닐, 2환계 아릴인 (2-, 3-, 4-)비페닐릴, 축합 2환계 아릴인 (1-, 2-)나프틸, 3환계 아릴인 터페닐릴(m-터페닐-2'-일, m-터페닐-4'-일, m-터페닐-5'-일, o-터페닐-3'-일, o-터페닐-4'-일, p-터페닐-2'-일, m-터페닐-2-일, m-터페닐-3-일, m-터페닐-4-일, o-터페닐-2-일, o-터페닐-3-일, o-터페닐-4-일, p-터페닐-2-일, p-터페닐-3-일, p-터페닐-4-일), 축합 3환계 아릴인, 안트라센-(1-, 2-, 9-)일, 아세나프틸렌-(1-, 3-, 4-, 5-)일, 플루오렌-(1-, 2-, 3-, 4-, 9-)일, 페날렌-(1-, 2-)일, (1-, 2-, 3-, 4-, 9-)페난트릴, 축합 4환계 아릴인 트리페닐렌-(1-, 2-)일, 피렌-(1-, 2-, 4-)일, 테트라센-(1-, 2-, 5-)일, 축합 5환계 아릴인 페릴렌-(1-, 2-, 3-)일 등을 들 수 있다. 「탄소수 6~10의 아릴」의 구체예로서는, 페닐, 비페닐릴, 나프틸, 터페닐릴, 안트라세닐, 아세나프틸레닐, 플루오레닐, 페날레닐, 페난트릴, 트리페닐레닐, 피레닐, 테트라세닐, 페릴레닐 등을 들 수 있다.

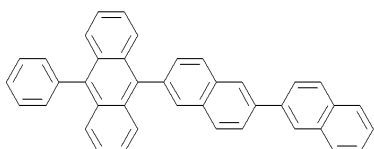
[0566] R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>는, 각각 독립적으로, 수소, 탄소수 1~6의 알킬, 탄소수3~6의 시클로알킬 또는 탄소수 6~20의 아릴이다.

[0567] R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>에서의 탄소수 1~6의 알킬에 대해서는 직쇄 및 분지쇄 중 어느 하나라도 된다. 즉, 탄소수 1~6의 직쇄 알킬 또는 탄소수 3~6의 분지쇄 알킬이다. 보다 바람직하게는, 탄소수 1~4의 알킬(탄소수 3~4의 분지쇄 알킬)이다. 구체예로서는, 메틸, 에틸, n-프로필, 이소프로필, n-부틸, 이소부틸, sec-부틸, tert-부틸, n-펜틸, 이소펜틸, 네오펀틸, tert-펜틸, n-헥실, 1-메틸펜틸, 4-메틸-2-펜틸, 3,3-디메틸부틸, 또는 2-에틸부틸 등을 예로 들 수 있고, 메틸, 에틸, n-프로필, 이소프로필, n-부틸, 이소부틸, sec-부틸, 또는 tert-부틸이 바람직하고, 메틸, 에틸, 또는 tert-부틸이 보다 바람직하다.

[0568] R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>에서의 탄소수 3~6의 시클로알킬의 구체예로서는, 시클로프로필, 시클로부틸, 시클로펜틸, 시클로헥실, 메틸시클로펜틸, 시클로헵틸, 메틸시클로헥실, 시클로옥틸 또는 디메틸시클로헥실 등을 들 수 있다.

[0569] R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>에서의 탄소수 6~20의 아릴에 대해서는, 탄소수 6~16의 아릴이 바람직하고, 탄소수 6~12의 아릴이 보다 바람직하고, 탄소수 6~10의 아릴이 특히 바람직하다. 「탄소수 6~20의 아릴」의 구체예로서는, Ar<sup>2</sup>에서의 「탄소수 6~20의 아릴」의 구체예를 인용할 수 있다. 바람직한 「탄소수 6~20의 아릴」은, 페닐, 비페닐릴, 터페닐릴 또는 나프틸이며, 보다 바람직하게는, 페닐, 비페닐릴, 1-나프틸, 2-나프틸 또는 m-터페닐-5'-일이며, 더욱 바람직하게는, 페닐, 비페닐릴, 1-나프틸 또는 2-나프틸이며, 가장 바람직하게는 페닐이다.

[0570] 이들 안트라센 유도체의 구체예로서는, 예를 들면 하기 화합물이 있다.



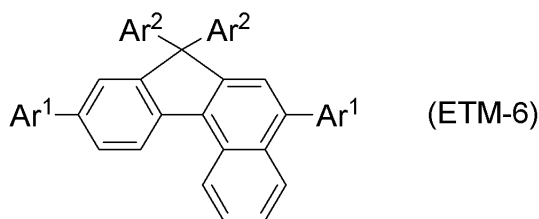
[0571]



[0572] 이들 안트라센 유도체는 공지의 원료와 공지의 합성 방법을 사용하여 제조할 수 있다.

[0573] [벤조플루오렌 유도체]

[0574] 벤조플루오렌 유도체는, 예를 들면 하기 식(ETM-6)으로 표시되는 화합물이다.



[0575]

[0576] Ar<sup>1</sup>은, 각각 독립적으로, 탄소수 6~20의 아릴이며, 상기 식(ETM-5-1)에서의 「탄소수 6~20의 아릴」과 동일한 설명을 인용할 수 있다. 탄소수 6~16의 아릴이 바람직하고, 탄소수 6~12의 아릴이 보다 바람직하고, 탄소수 6~10의 아릴이 특히 바람직하다. 구체예로서는, 페닐, 비페닐릴, 나프틸, 터페닐릴, 안트라세닐, 아세나프틸레닐, 플루오레닐, 페날레닐, 페난트릴, 트리페닐레닐, 피레닐, 테트라세닐, 페틸레닐 등을 들 수 있다.

[0577] Ar<sup>2</sup>는, 각각 독립적으로, 수소, 알킬(바람직하게는 탄소수 1~24의 알킬), 시클로알킬(바람직하게는 탄소수 3~12의 시클로알킬) 또는 아릴(바람직하게는 탄소수 6~30의 아릴)이며, 2개의 Ar<sup>2</sup>은 결합하여 환을 형성하고 있어도 된다.

[0578] Ar<sup>2</sup>에서의 「알킬」로서는, 직쇄 및 분지쇄 중 어느 것이라도 되고, 예를 들면, 탄소수 1~24의 직쇄 알킬 또는 탄소수 3~24의 분지쇄 알킬이 있다. 바람직한 「알킬」은, 탄소수 1~18의 알킬(탄소수 3~18의 분지쇄 알킬)이다. 보다 바람직한 「알킬」은, 탄소수 1~12의 알킬(탄소수 3~12의 분지쇄 알킬)이다. 더욱 바람직한 「알킬」은, 탄소수 1~6의 알킬(탄소수 3~6의 분지쇄 알킬)이다. 특히 바람직한 「알킬」은, 탄소수 1~4의 알킬(탄소수 3~4의 분지쇄 알킬)이다. 구체적인 「알킬」로서는, 메틸, 에틸, n-프로필, 이소프로필, n-부틸, 이소부틸, sec-부틸, tert-부틸, n-펜틸, 이소펜틸, 네오펜틸, tert-펜틸, n-헥실, 1-메틸펜틸, 4-메틸-2-펜틸, 3,3-디메틸부틸, 2-에틸부틸, n-헵틸, 1-메틸헥실 등을 예로 들 수 있다.

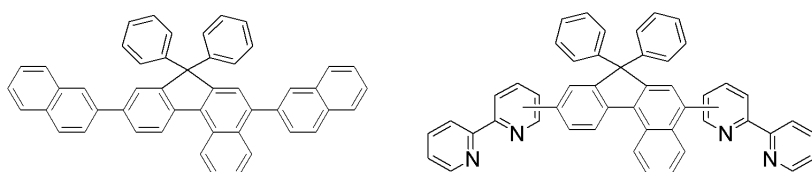
[0579] Ar<sup>2</sup>에서의 「시클로알킬」로서는, 예를 들면, 탄소수 3~12의 시클로알킬이 있다. 바람직한 「시클로알킬」은, 탄소수 3~10의 시클로알킬이다. 보다 바람직한 「시클로알킬」은, 탄소수 3~8의 시클로알킬이다. 더욱 바람직한 「시클로알킬」은, 탄소수 3~6의 시클로알킬이다. 구체적인 「시클로알킬」로서는, 시클로프로필, 시클로부틸, 시클로펜틸, 시클로헥실, 메틸시클로펜틸, 시클로헵틸, 메틸시클로헥실, 시클로옥틸 또는 디메틸시클로헥실 등을 예로 들 수 있다.

[0580] Ar<sup>2</sup>에서의 「아릴」로서는, 바람직한 아릴은 탄소수 6~30의 아릴이며, 보다 바람직한 아릴은 탄소수 6~18의 아릴이며, 더욱 바람직하게는 탄소수 6~14의 아릴이며, 특히 바람직하게는 탄소수 6~12의 아릴이다.

[0581] 구체적인 「탄소수 6~30의 아릴」로서는, 페닐, 나프틸, 아세나프틸레닐, 플루오레닐, 페날레닐, 페난트릴, 트리페닐레닐, 피레닐, 나프타세닐, 페틸레닐, 펜타세닐 등을 예로 들 수 있다.

[0582] 2개의 Ar<sup>2</sup>는 결합하여 환을 형성하고 있어도 되며, 그 결과, 플루오렌 골격의 5원환에는, 시클로부탄, 시클로펜탄, 시클로펜텐, 시클로펜타디엔, 시클로헥산, 플루오렌 또는 인텐 등이 스피로 결합하고 있어도 된다.

[0584] 이 벤조플루오렌 유도체의 구체예로서는, 예를 들면 하기 화합물이 있다.

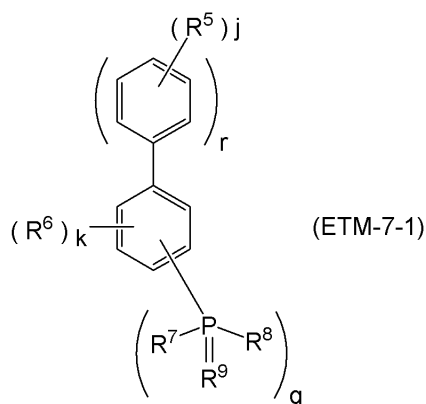


[0585]

[0586] 이 벤조플루오렌 유도체는 공지의 원료와 공지의 합성 방법을 사용하여 제조할 수 있다.

[0587] [포스핀옥사이드 유도체]

[0588] 포스핀옥사이드 유도체는, 예를 들면, 하기 식(ETM-7-1)으로 표시되는 화합물이다. 상세한 것은 국제공개 제 2013/079217호 및 국제공개 제2013/079678호에도 기재되어 있다.



[0589]

[0590]  $R^5$ 는, 치환 또는 무치환의, 탄소수 1~20의 알킬, 탄소수 6~20의 아릴 또는 탄소수 5~20의 헤테로아릴이며,

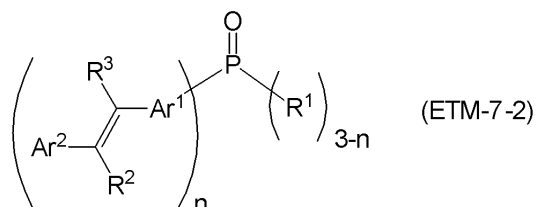
[0591]  $R^6$ 는, CN, 치환 또는 무치환의, 탄소수 1~20의 알킬, 탄소수 1~20의 헤테로 알킬, 탄소수 6~20의 아릴, 탄소수 5~20의 헤테로아릴, 탄소수 1~20의 알콕시 또는 탄소수 6~20의 아릴옥시이며,

[0592]  $R^7$  및  $R^8$ 은, 각각 독립적으로, 치환 또는 무치환의, 탄소수 6~20의 아릴 또는 탄소수 5~20의 헤테로아릴이며,

[0593]  $R^9$ 은 산소 또는 유황이며,

[0594]  $j$ 는 0 또는 1이며,  $k$ 는 0 또는 1이며,  $r$ 은 0~4의 정수이며,  $q$ 는 1~3의 정수이다.

[0595] 포스핀옥사이드 유도체는, 예를 들면, 하기 식(ETM-7-2)으로 표시되는 화합물이라도 된다.



[0596]

[0597]  $R^1 \sim R^3$ 는, 동일해도 되고 상이해도 되며, 수소, 알킬, 시클로알킬, 아랄킬, 알케닐, 시클로알케닐, 알키닐, 알콕시, 알킬티오, 아릴에테르기, 아릴티오에테르기, 아릴, 복소환기, 할로젠, 시아노, 포르밀, 카르보닐, 카르복실, 아미노, 니트로, 실릴, 및 인접 치환기와의 사이에 형성되는 축합환 중에서 선택된다.

[0598]  $Ar^1$ 은, 동일해도 되고 상이해도 되며, 아릴렌 또는 헤테로아릴렌이며,  $Ar^2$ 는, 동일해도 되고 상이해도 되며, 아릴 또는 헤테로아릴이다. 다만,  $Ar^1$  및  $Ar^2$  중 적어도 한쪽은 치환기를 가지고 있거나, 또는 인접 치환기와의 사이에 축합환을 형성하고 있다.  $n$ 은 0~3의 정수이며,  $n$ 이 0일 때 불포화 구조 부분은 존재하지 않고,  $n$ 이 3일 때  $R^1$ 은 존재하지 않는다.

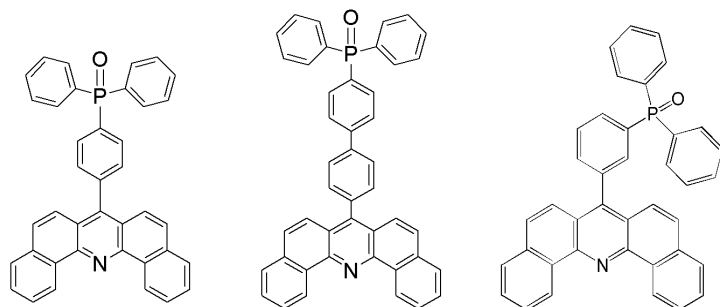
[0599] 이들 치환기 중, 알킬은, 예를 들면, 메틸, 에틸, 프로필, 부틸 등의 포화 지방족 탄화 수소기를 나타내고, 이것은 무치환이라도 되고 치환되어 있어도 상관없다. 치환되어 있는 경우의 치환기에는 특별히 제한은 없고, 예를 들면, 알킬, 아릴, 복소환기 등이 있으며, 이 점은, 이하의 기재에도 공통된다. 또한, 알킬의 탄소수는 특별히 한정되지 않지만, 입수의 용이성이나 비용의 점에서, 통상, 1~20의 범위이다.

[0600] 또한, 시클로알킬은, 예를 들면, 시클로프로필, 시클로헥실, 노르보르닐, 아다만틸 등의 포화 치환식 탄화 수소기를 나타내고, 이것은 무치환이라도 되고 치환되어 있어도 상관없다. 알킬 부분의 탄소수는 특별히 한정되지

않지만, 통상, 3~20의 범위이다.

- [0601] 또한, 아랄길은, 예를 들면, 벤질, 페닐에틸 등의 지방족 탄화 수소를 통한 방향족 탄화 수소기를 나타내고, 지방족 탄화 수소와 방향족 탄화 수소는 모두 무치환이라도 되고 치환되어 있어도 상관없다. 지방족 부분의 탄소수는 특별히 한정되지 않지만, 통상, 1~20의 범위이다.
- [0602] 또한, 알케닐은, 예를 들면, 비닐, 알릴, 부타디에닐 등의 2중 결합을 포함하는 불포화 지방족 탄화 수소기를 나타내고, 이것은 무치환이라도 되고 치환되어 있어도 상관없다. 알케닐의 탄소수는 특별히 한정되지 않지만, 통상, 2~20의 범위이다.
- [0603] 또한, 시클로알케닐은, 예를 들면, 시클로펜테닐, 시클로헥타디에닐, 시클로헥센 등의 2중 결합을 포함하는 불포화 지환식 탄화 수소기를 나타내고, 이것은 무치환이라도 되고 치환되어 있어도 상관없다.
- [0604] 또한, 알키닐은, 예를 들면, 아세틸레닐등의 3중 결합을 포함하는 불포화 지방족 탄화 수소기를 나타내고, 이것은 무치환이라도 되고 치환되어 있어도 상관없다. 알키닐의 탄소수는 특별히 한정되지 않지만, 통상, 2~20의 범위이다.
- [0605] 또한, 알콕시는, 예를 들면, 메톡시 등의 에테르 결합을 통한 지방족 탄화 수소기를 나타내고, 지방족 탄화 수소는 무치환이라도 되고 치환되어 있어도 상관없다. 알콕시의 탄소수는 특별히 한정되지 않지만, 통상, 1~20의 범위이다.
- [0606] 또한, 알킬티오는, 알콕시의 에테르 결합의 산소 원자가 유황 원자로 치환된 기이다.
- [0607] 또한, 아릴에테르기는, 예를 들면, 페녹시 등의 에테르 결합을 통한 방향족 탄화 수소기를 나타내고, 방향족 탄화 수소는 무치환이라도 되고 치환되어 있어도 상관없다. 아릴에테르의 탄소수는 특별히 한정되지 않지만, 통상, 6~40의 범위이다.
- [0608] 또한, 아릴티오에테르기는, 아릴에테르에테르 결합의 산소 원자가 유황 원자로 치환된 기이다.
- [0609] 또한, 아릴은, 예를 들면, 페닐, 나프틸, 비페닐릴, 페난트릴, 터페닐릴, 피레닐 등의 방향족 탄화 수소기를 나타낸다. 아릴은, 무치환이라도 되고 치환되어 있어도 상관없다. 아릴기의 탄소수는 특별히 한정되지 않지만, 통상, 6~40의 범위이다.
- [0610] 또한, 복소환기는, 예를 들면, 퓨라닐, 티에닐, 옥사졸릴, 피리딜, 퀴놀리닐, 카르바졸릴 등의 탄소 이외의 원자를 가지는 환형 구조기를 나타내고, 이것은 무치환이라도 되고 치환되어 있어도 상관없다. 복소환기의 탄소수는 특별히 한정되지 않지만, 통상, 2~30의 범위이다.
- [0611] 할로젠은, 불소, 염소, 브롬, 요오드를 나타낸다.
- [0612] 포르밀, 카르보닐, 아미노에는, 지방족 탄화 수소, 지환식 탄화 수소, 방향족 탄화 수소, 복소환 등으로 치환된 기도 포함할 수 있다.
- [0613] 또한, 지방족 탄화 수소, 지환식 탄화 수소, 방향족 탄화 수소, 복소환은 무치환이라도 되고 치환되어 있어도 상관없다.
- [0614] 실릴은, 예를 들면, 트리메틸실릴 등의 규소 화합물기를 나타내고, 이것은 무치환이라도 되고 치환되어 있어도 상관없다. 실릴의 탄소수는 특별히 한정되지 않지만, 통상, 3~20의 범위이다. 또한, 규소수는, 통상, 1~6이다.
- [0615] 인접 치환기와의 사이에 형성되는 축합환은, 예를 들면,  $Ar^1$ 과  $R^2$ ,  $Ar^1$ 과  $R^3$ ,  $Ar^2$ 과  $R^2$ ,  $Ar^2$ 과  $R^3$ ,  $R^2$ 와  $R^3$ ,  $Ar^1$ 과  $Ar^2$  등의 사이에서 형성된 공역 또는 비공역의 축합환이다. 여기서, n이 1인 경우, 2개의  $R^1$ 끼리 공역 또는 비공역의 축합환을 형성해도 된다. 이들 축합환은, 환내 구조에 질소, 산소, 유황 원자를 포함하고 있어도 되고, 또한 다른 환과 축합해도 된다.

[0616] 이 포스핀옥사이드 유도체의 구체예로서는, 예를 들면 하기 화합물이 있다.

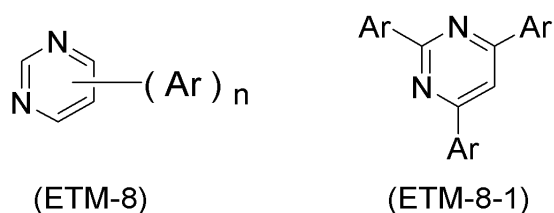


[0617]

[0618] 이 포스핀옥사이드 유도체는 공지의 원료와 공지의 합성 방법을 사용하여 제조할 수 있다.

[0619] [피리미딘 유도체]

[0620] 피리미딘 유도체는, 예를 들면, 하기 식(ETM-8)으로 표시되는 화합물이며, 바람직하게는 하기 식(ETM-8-1)로 표시되는 화합물이다. 상세한 것은 국제공개 제2011/021689호에도 기재되어 있다.



[0621]

[0622] Ar은, 각각 독립적으로, 치환되어 있어도 되는 아릴, 또는 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴이다. n은 1~4의 정수이며, 바람직하게는 1~3의 정수이며, 보다 바람직하게는 2 또는 3이다.

[0623] 「치환되어 있어도 되는 아릴」의 「아릴」로서는, 예를 들면, 탄소수 6~30의 아릴이 있고, 바람직하게는 탄소수 6~24의 아릴, 보다 바람직하게는 탄소수 6~20의 아릴, 더욱 바람직하게는 탄소수 6~12의 아릴이다.

[0624] 구체적인 「아릴」로서는, 단환계 아릴인 페닐, 2환계 아릴인 (2-, 3-, 4-)비페닐릴, 축합 2환계 아릴인 (1-, 2-)나프틸, 3환계 아릴인 터페닐릴(m-터페닐-2'-일, m-터페닐-4'-일, m-터페닐-5'-일, o-터페닐-3'-일, o-터페닐-4'-일, p-터페닐-2'-일, m-터페닐-2-일, m-터페닐-3-일, m-터페닐-4-일, o-터페닐-2-일, o-터페닐-3-일, o-터페닐-4-일, p-터페닐-2-일, p-터페닐-3-일, p-터페닐-4-일), 축합 3환계 아릴인, 아세나프틸렌-(1-, 3-, 4-, 5-)일, 플루오렌-(1-, 2-, 3-, 4-, 9-)일, 페날렌-(1-, 2-)일, (1-, 2-, 3-, 4-, 9-)페난트릴, 4환계 아릴인 쿼터페닐릴 (5'-페닐-m-터페닐-2-일, 5'-페닐-m-터페닐-3-일, 5'-페닐-m-터페닐-4-일, m-쿼터페닐릴), 축합 4환계 아릴인 트리페닐렌-(1-, 2-)일, 피렌-(1-, 2-, 4-)일, 나프타센-(1-, 2-, 5-)일, 축합 5환계 아릴인 페틸렌-(1-, 2-, 3-)일, 펜타센-(1-, 2-, 5-, 6-)일 등을 예로 들 수 있다.

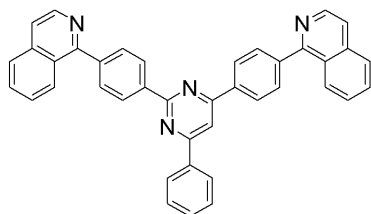
[0625] 「치환되어 있어도 되는 헤테로아릴」의 「헤테로아릴」로서는, 예를 들면, 탄소수 2~30의 헤테로아릴이 있고, 탄소수 2~25의 헤테로아릴이 바람직하고, 탄소수 2~20의 헤테로아릴이 보다 바람직하고, 탄소수 2~15의 헤테로아릴이 더욱 바람직하고, 탄소수 2~10의 헤테로아릴이 특히 바람직하다. 또한, 헤테로아릴로서는, 예를 들면, 환 구성 원자로서 탄소 이외에 산소, 유황 및 질소로부터 선택되는 헤테로 원자를 1 내지 5 개 함유하는 복소환 등이 있다.

[0626] 구체적인 헤테로아릴로서는, 예를 들면, 퓨릴, 티에닐, 피롤릴, 옥사졸릴, 이소옥사졸릴, 티아졸릴, 이소티아졸릴, 이미다졸릴, 피라졸릴, 옥사디아졸릴, 퓨라자닐, 티아디아졸릴, 트리아졸릴, 테트라졸릴, 피리딜, 피리미디닐, 피리다지닐, 피라지닐, 트리아지닐, 벤조퓨라닐, 이소벤조퓨라닐, 벤조[b]티에닐, 인돌릴, 이소인돌릴, 1H-

인다졸릴, 벤즈이미다졸릴, 벤즈옥사졸릴, 벤조티아졸릴, 1H-벤조트리아졸릴, 퀴놀릴, 이소퀴놀릴, 신놀릴, 퀴나졸릴, 퀴녹살리닐, 프탈라지닐, 나프티리디닐, 퓨리닐, 프테리디닐, 카르바졸릴, 아크리디닐, 페녹사지닐, 페노티아지닐, 페나지닐, 페녹사티이닐, 티안트레닐, 인돌리지닐 등이 있다.

[0627] 또한, 상기 아릴 및 헤테로아릴은 치환되어 있어도 되고, 각각 예를 들면, 상기 아릴이나 헤테로아릴로 치환되어 있어도 된다.

[0628] 이 피리미딘 유도체의 구체예로서는, 예를 들면 하기 화합물이 있다.

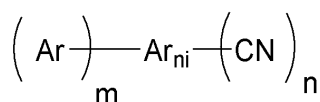


[0629]

[0630] 이 피리미딘 유도체는 공지의 원료와 공지의 합성 방법을 사용하여 제조할 수 있다.

[0631] [아릴니트릴 유도체]

[0632] 아릴니트릴 유도체는, 예를 들면, 하기 식(ETM-9)으로 표시되는 화합물, 또는 그것이 단결합 등으로 복수 결합한 다량체이다. 상세한 것은 미국출원 공개 제2014/0197386호 명세서에 기재되어 있다.



(ETM-9)

[0633]

[0634]  $\text{Ar}_{\text{ni}}$ 는, 빠른 전자수송성의 관점에서는 탄소수가 많은 것이 바람직하고, 높은  $E_{\text{T1}}$ 의 관점에서는 탄소수가 적은 것이 바람직하다.  $\text{Ar}_{\text{ni}}$ 는, 구체적으로는, 발광층에 인접하는 층에 사용하기 위해서는 높은  $E_{\text{T1}}$ 인 것이 바람직하고, 탄소수 6~20의 아릴이며, 바람직하게는 탄소수 6~14의 아릴, 보다 바람직하게는 탄소수 6~10의 아릴이다. 또한, 니트릴기의 치환 개수  $n$ 은, 높은  $E_{\text{T1}}$ 의 관점에서는 많은 것이 바람직하고, 높은  $E_{\text{S1}}$ 의 관점에서는 적은 것이 바람직하다. 니트릴기의 치환 개수  $n$ 은, 구체적으로는, 1~4의 정수이며, 바람직하게는 1~3의 정수이며, 보다 바람직하게는 1~2의 정수이며, 더욱 바람직하게는 1이다.

[0635]  $\text{Ar}$ 은, 각각 독립적으로, 치환되어 있어도 되는 아릴, 또는 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴이다. 높은  $E_{\text{S1}}$  및 높은  $E_{\text{T1}}$ 의 관점에서 도너성의 헤테로아릴인 것이 바람직하고, 전자수송층으로서 사용하기 위해 도너성의 헤테로아릴은 적은 것이 바람직하다. 전자수송성의 관점에서는 탄소수가 많은 아릴 또는 헤테로아릴이 바람직하고, 치환기를 많이 가지는 것이 바람직하다.  $\text{Ar}$ 의 치환 개수  $m$ 은, 구체적으로는, 1~4의 정수이며, 바람직하게는 1~3의 정수이며, 보다 바람직하게는 1~2이다.

[0636] 「치환되어 있어도 되는 아릴」의 「아릴」로서는, 예를 들면, 탄소수 6~30의 아릴이 있고, 바람직하게는 탄소수 6~24의 아릴, 보다 바람직하게는 탄소수 6~20의 아릴, 더욱 바람직하게는 탄소수 6~12의 아릴이다.

[0637] 구체적인 「아릴」로서는, 단환계 아릴인 페닐, 2환계 아릴인 (2-, 3-, 4-)비페닐릴, 축합 2환계 아릴인 (1-, 2-)나프틸, 3환계 아릴인 터페닐릴(*m*-터페닐-2'-일, *m*-터페닐-4'-일, *m*-터페닐-5'-일, *o*-터페닐-3'-일, *o*-터페닐-4'-일, *p*-터페닐-2'-일, *m*-터페닐-2-일, *m*-터페닐-3-일, *m*-터페닐-4-일, *o*-터페닐-2-일, *o*-터페닐-3-일, *o*-터페닐-4-일, *p*-터페닐-2-일, *p*-터페닐-3-일, *p*-터페닐-4-일), 축합 3환계 아릴인, 아세나프틸렌-(1-, 3-, 4-, 5-)일, 플루오렌-(1-, 2-, 3-, 4-, 9-)일, 페날렌-(1-, 2-)일, (1-, 2-, 3-, 4-, 9-)페난트릴, 4환계 아릴인 쿼터페닐릴 (5'-페닐-*m*-터페닐-2-일, 5'-페닐-*m*-터페닐-3-일, 5'-페닐-*m*-터페닐-4-일, *m*-쿼터페닐릴), 축합 4환계 아릴인 트리페닐렌-(1-, 2-)일, 피렌-(1-, 2-, 4-)일, 나프타센-(1-, 2-, 5-)일, 축합 5환계 아릴인 페릴렌-(1-, 2-, 3-)일, 펜타센-(1-, 2-, 5-, 6-)일 등을 예로 들 수 있다.

[0638] 「치환되어 있어도 되는 헤테로아릴」의 「헤테로아릴」로서는, 예를 들면, 탄소수 2~30의 헤테로아릴이 있고, 탄소수 2~25의 헤테로아릴이 바람직하고, 탄소수 2~20의 헤테로아릴이 보다 바람직하고, 탄소수 2~15의 헤테

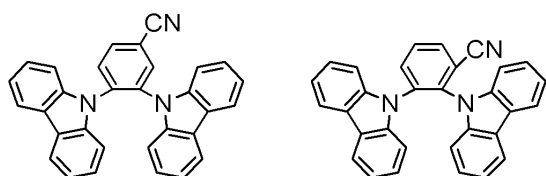
로아릴이 더욱 바람직하고, 탄소수 2~10의 헤테로아릴이 특히 바람직하다. 또한, 헤테로아릴로서는, 예를 들면, 환 구성 원자로서 탄소 이외에 산소, 유황 및 질소로부터 선택되는 헤테로 원자를 1 내지 5 개 함유하는 복소환 등이 있다.

[0639] 구체적인 헤테로아릴로서는, 예를 들면, 퓨릴, 티에닐, 피롤릴, 옥사졸릴, 이소옥사졸릴, 티아졸릴, 이소티아졸릴, 이미다졸릴, 피라졸릴, 옥사디아졸릴, 퓨라자닐, 티아디아졸릴, 트리아졸릴, 테트라졸릴, 피리딜, 피리미디닐, 피리다지닐, 피라지닐, 트리아지닐, 벤조퓨라닐, 이소벤조퓨라닐, 벤조[b]티에닐, 인돌릴, 이소인돌릴, 1H-인다졸릴, 벤즈이미다졸릴, 벤즈옥사졸릴, 벤조티아졸릴, 1H-벤조트리아졸일, 퀴놀릴, 이소퀴놀릴, 신놀릴, 퀴나졸릴, 퀴녹살리닐, 프탈라지닐, 나프티리디닐, 퓨리닐, 프테리디닐, 카르바졸릴, 아크리디닐, 페녹사지닐, 페노티아지닐, 페나지닐, 페녹사티이닐, 티안트레닐, 인돌리지닐 등이 있다.

[0640] 또한, 상기 아릴 및 헤테로아릴은 치환되어 있어도 되며, 각각 예를 들면, 상기 아릴이나 헤테로아릴로 치환되어 있어도 된다.

[0641] 아릴니트릴 유도체는, 식(ETM-9)으로 표시되는 화합물이 단결합 등으로 복수 결합한 다량체라도 된다. 이 경우에, 단결합 이외에, 아릴환(바람직하게는 다가의 벤젠환, 나프탈렌환, 안트라센환, 플루오렌환, 벤조플루오렌환, 페날렌환, 페난트렌환 또는 트리페닐렌환)으로 결합되어 있어도 된다.

[0642] 이 아릴니트릴 유도체의 구체예로서는, 예를 들면 하기 화합물이 있다.

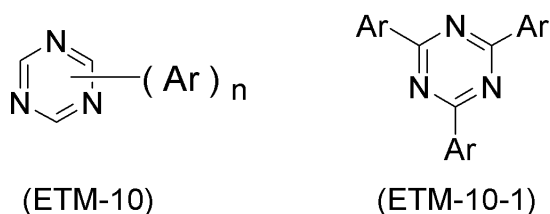


[0643]

[0644] 이 아릴니트릴 유도체는 공지의 원료와 공지의 합성 방법을 사용하여 제조할 수 있다.

[0645] [트리아진 유도체]

[0646] 트리아진 유도체는, 예를 들면 하기 식(ETM-10)으로 표시되는 화합물이며, 바람직하게는 하기 식(ETM-10-1)으로 표시되는 화합물이다. 상세한 것은 미국 특허 출원 제2011/0156013호 명세서에 기재되어 있다.



[0647]

[0648] Ar은, 각각 독립적으로, 치환되어 있어도 되는 아릴, 또는 치환되어 있어도 되는 헤테로아릴이다. n은 1~3의 정수이며, 바람직하게는 2 또는 3이다.

[0649] 「치환되어 있어도 되는 아릴」의 「아릴」로서는, 예를 들면, 탄소수 6~30의 아릴을 들 수 있고, 바람직하게는 탄소수 6~24의 아릴, 더욱 바람직하게는 탄소수 6~20의 아릴, 더욱 바람직하게는 탄소수 6~12의 아릴이다.

[0650] 구체적인 「아릴」로서는, 단환계 아릴인 페닐, 2환계 아릴인 (2-, 3-, 4-)비페닐릴, 축합 2환계 아릴인 (1-, 2-)나프틸, 3환계 아릴인 터페닐릴(m-터페닐-2'-일, m-터페닐-4'-일, m-터페닐-5'-일, o-터페닐-3'-일, o-터페닐-4'-일, p-터페닐-2'-일, m-터페닐-2-일, m-터페닐-3-일, m-터페닐-4-일, o-터페닐-2-일, o-터페닐-3-일, o-터페닐-4-일, p-터페닐-2-일, p-터페닐-3-일, p-터페닐-4-일), 축합 3환계 아릴인, 아세나프틸렌-(1-, 3-, 4-, 5-)일, 플루오렌-(1-, 2-, 3-, 4-, 9-)일, 페날렌-(1-, 2-)일, (1-, 2-, 3-, 4-, 9-)페난트릴, 4환계 아릴인 쿼터페닐릴 (5'-페닐-m-터페닐-2-일, 5'-페닐-m-터페닐-3-일, 5'-페닐-m-터페닐-4-일, m-쿼터페닐릴), 축합 4환계 아릴인 트리페닐렌-(1-, 2-)일, 피렌-(1-, 2-, 4-)일, 나프타센-(1-, 2-, 5-)일, 축합 5환계 아릴인 페틸렌-(1-, 2-, 3-)일, 펜타센-(1-, 2-, 5-, 6-)일 등을 예로 들 수 있다.

[0651] 「치환되어 있어도 되는 헤테로아릴」의 「헤테로아릴」로서는, 예를 들면, 탄소수 2~30의 헤테로아릴이 있고, 탄소수 2~25의 헤테로아릴이 바람직하고, 탄소수 2~20의 헤테로아릴이 보다 바람직하고, 탄소수 2~15의 헤테

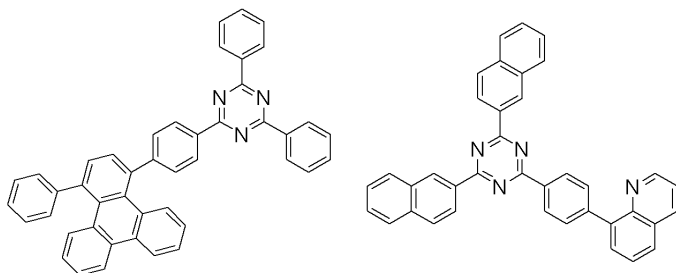


로아릴이 더욱 바람직하고, 탄소수 2~10의 헤테로아릴이 특히 바람직하다. 또한, 헤테로아릴로서는, 예를 들면 환 구성 원자로서 탄소 이외에 산소, 유황 및 질소로부터 선택되는 헤테로 원자를 1 내지 5 개 함유하는 복소환 등이 있다.

[0652] 구체적인 헤테로아릴로서는, 예를 들면, 퓨릴, 티에닐, 피롤릴, 옥사졸릴, 이소옥사졸릴, 티아졸릴, 이소티아졸릴, 이미다졸릴, 피라졸릴, 옥사디아졸릴, 퓨라자닐, 티아디아졸릴, 트리아졸릴, 테트라졸릴, 피리딜, 피리미디닐, 피리다지닐, 피라지닐, 트리아지닐, 벤조퓨라닐, 이소벤조퓨라닐, 벤조[b]티에닐, 인돌릴, 이소인돌릴, 1H-인다졸릴, 벤즈이미다졸릴, 벤즈옥사졸릴, 벤조티아졸릴, 1H-벤조트리아졸일, 퀴놀릴, 이소퀴놀릴, 신놀릴, 퀴나졸릴, 퀴녹살리닐, 프탈라지닐, 나프티리디닐, 퓨리닐, 프테리디닐, 카르바졸릴, 아크리디닐, 페녹사지닐, 페노티아지닐, 페나지닐, 페녹사티이닐, 티안트레닐, 인돌리지닐 등이 있다.

[0653] 또한, 상기 아릴 및 헤테로아릴은 치환되어 있어도 되며, 각각 예를 들면, 상기 아릴이나 헤테로아릴로 치환되어 있어도 된다.

[0654] 이 트리아진 유도체의 구체예로서는, 예를 들면 하기 화합물이 있다.



[0655]

[0656] 이 트리아진 유도체는 공지의 원료와 공지의 합성 방법을 사용하여 제조할 수 있다.

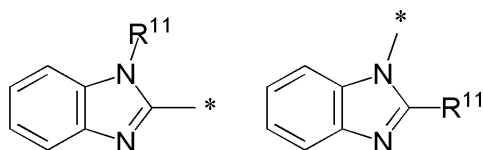
[0657] [벤즈이미다졸 유도체]

[0658] 벤즈이미다졸 유도체는, 예를 들면 하기 식(ETM-11)으로 표시되는 화합물이다.

## $\Phi$ — (벤즈이미다졸계 치환기) $_n$ (ETM-11)

[0659]

[0660]  $\Phi$ 는,  $n$ 개의 아릴환(바람직하게는  $n$ 개의 벤젠환, 나프탈렌환, 안트라센환, 플루오렌환, 벤조플루오렌환, 페날렌환, 페난트렌환 또는 트리페닐렌환)이며,  $n$ 은 1~4의 정수이며, 「벤즈이미다졸계 치환기」는, 상기 식(ETM-2), 식(ETM-2-1) 및 식(ETM-2-2)에서의 「피리딘계 치환기」 중의 피리디닐이 벤즈이미다졸릴로 치환한 치환기이며, 벤즈이미다졸 유도체에서의 적어도 1개의 수소는 중수소로 치환되어 있어도 된다.



벤즈이미다졸릴

\*는 결합위치를 나타냄.

[0661]

[0662] 상기 벤즈이미다졸릴에서의  $R^{11}$ 은, 수소, 탄소수 1~24의 알킬, 탄소수 3~12의 시클로알킬 또는 탄소수 6~30의 아릴이며, 상기 식(ETM-2-1) 및 식(ETM-2-2)에서의  $R^{11}$ 의 설명을 인용할 수 있다.

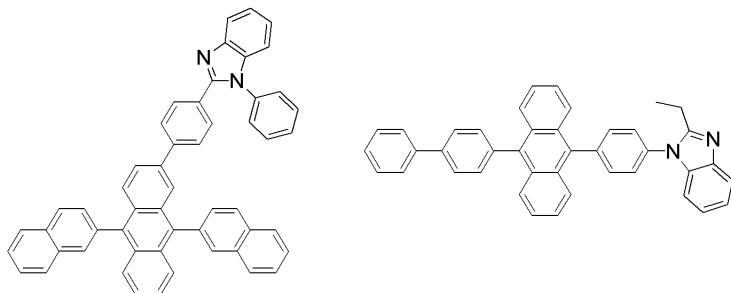
[0663]  $\Phi$ 는, 또한 안트라센환 또는 플루오렌환인 것이 바람직하고, 이 경우의 구조는 상기 식(ETM-2-1) 또는 식(ETM-2-2)에서의 설명을 인용할 수 있고, 각 식 중의  $R^{11} \sim R^{18}$ 은 상기 식(ETM-2-1) 또는 식(ETM-2-2)에서의 설명을 인용할 수 있다. 또한, 상기 식(ETM-2-1) 또는 식(ETM-2-2)에서는 2개의 피리딘계 치환기가 결합한 형태로 설명되어 있지만, 이들을 벤즈이미다졸계 치환기로 치환할 때는, 양쪽의 피리딘계 치환기를 벤즈이미다졸계 치환기로 치환해도 되고(즉  $n=2$ ), 어느 하나의 피리딘계 치환기를 벤즈이미다졸계 치환기로 치환하고 다른 쪽의 피리딘계 치환기를  $R^{11} \sim R^{18}$ 로 치환해도 된다(즉  $n=1$ ). 또한, 예를 들면, 상기 식(ETM-2-1)에서의  $R^{11} \sim R^{18}$  중 적어도 1개를



벤즈이미다졸계 치환기로 치환하고 「피리딘계 치환기」를  $R^{11} \sim R^{18}$ 로 치환해도 된다.

[0664]

이 벤즈이미다졸 유도체의 구체예로서는, 예를 들면, 1-페닐-2-(4-(10-페닐안트라센-9-일)페닐)-1H-벤조[d]이미다졸, 2-(4-(10-(나프탈렌-2-일)안트라센-9-일)페닐)-1-페닐-1H-벤조[d]이미다졸, 2-(3-(10-(나프탈렌-2-일)안트라센-9-일)페닐)-1-페닐-1H-벤조[d]이미다졸, 5-(10-(나프탈렌-2-일)안트라센-9-일)-1,2-디페닐-1H-벤조[d]이미다졸, 1-(4-(10-(나프탈렌-2-일)안트라센-9-일)페닐)-2-페닐-1H-벤조[d]이미다졸, 2-(4-(9,10-디(나프탈렌-2-일)안트라센-2-일)페닐)-1-페닐-1H-벤조[d]이미다졸, 1-(4-(9,10-디(나프탈렌-2-일)안트라센-2-일)페닐)-2-페닐-1H-벤조[d]이미다졸, 5-(9,10-디(나프탈렌-2-일)안트라센-2-일)-1,2-디페닐-1H-벤조[d]이미다졸 등이 있다.



[0665]

이 벤즈이미다졸 유도체는 공지의 원료와 공지의 합성 방법을 사용하여 제조할 수 있다.

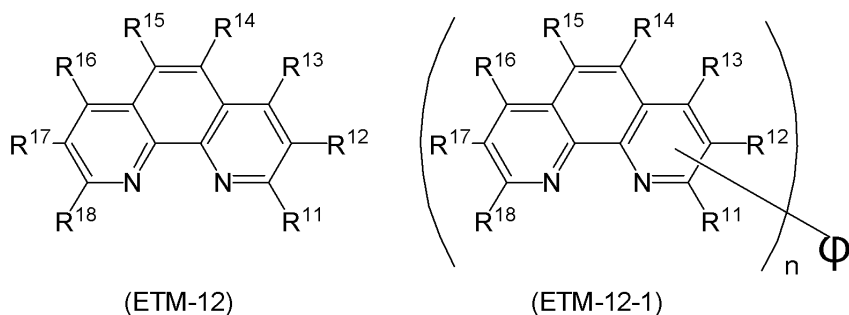
[0666]

[페난트롤린 유도체]

[0667]

페난트롤린 유도체는, 예를 들면 하기 식(ETM-12) 또는 식(ETM-12-1)으로 표시되는 화합물이다. 상세한 것은 국 제공개 제2006/021982호에 기재되어 있다.

[0668]



(ETM-12)

(ETM-12-1)

[0669]

$\phi$ 는, n개의 아릴환(바람직하게는 n개의 벤젠환, 나프탈렌환, 안트라센환, 플루오렌환, 벤조플루오렌환, 페날렌 환, 페난트렌환 또는 트리페닐렌환)이며, n은 1~4의 정수이다.

[0670]

각 식의  $R^{11} \sim R^{18}$ 은, 각각 독립적으로, 수소, 알킬(바람직하게는 탄소수 1~24의 알킬), 시클로알킬(바람직하게는 탄소수 3~12의 시클로알킬) 또는 아릴(바람직하게는 탄소수 6~30의 아릴)이다. 또한, 상기 식(ETM-12-1)에 있어서는  $R^{11} \sim R^{18}$  중 어느 하나가 아릴환인  $\phi$ 와의 결합손이 된다.

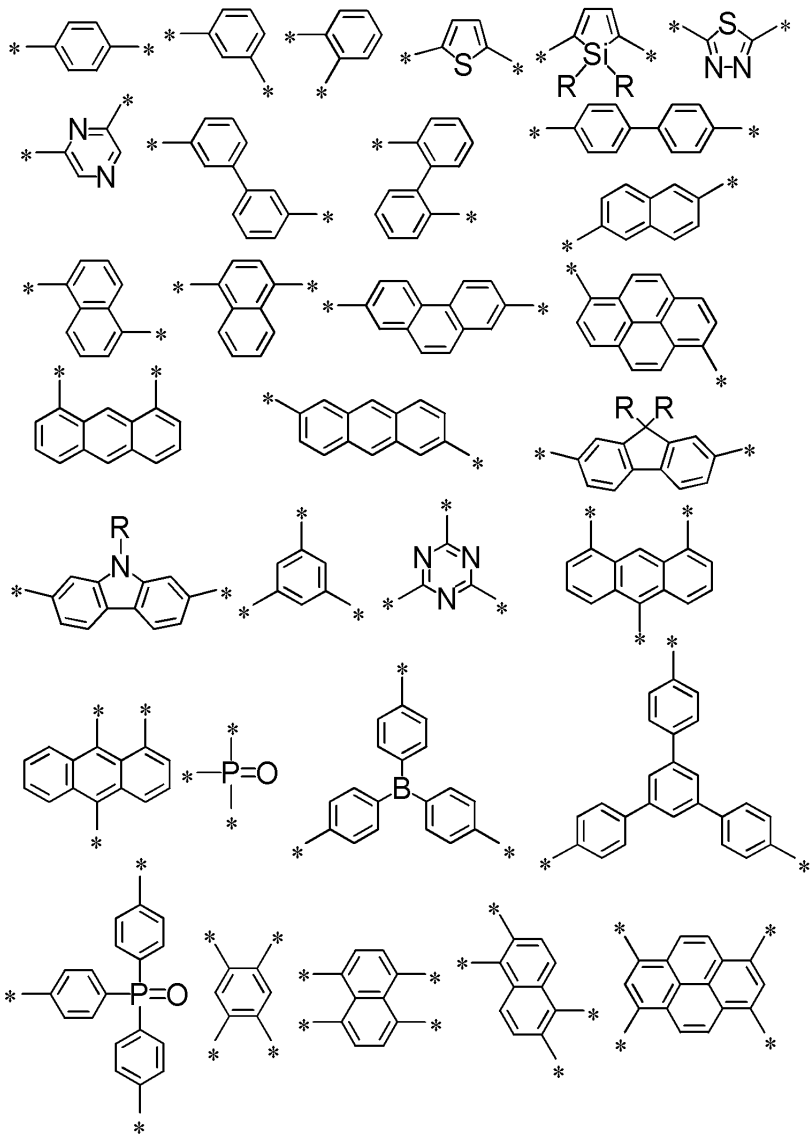
[0671]

각 페난트롤린 유도체에서의 적어도 1개의 수소가 중수소로 치환되어 있어도 된다.

[0672]

$R^{11} \sim R^{18}$ 에서의 알킬, 시클로알킬 및 아릴로서는, 상기 식(ETM-2)에서의  $R^{11} \sim R^{18}$ 의 설명을 인용할 수 있다. 또한,  $\phi$ 는 상기한 예 외에, 예를 들면, 하기 구조식이 있다. 그리고, 하기 구조식 중의 R은, 각각 독립적으로, 수소, 메틸, 에틸, 이소프로필, 시클로헥실, 페닐, 1-나프틸, 2-나프틸, 비페닐릴 또는 터페닐릴이며, \*는, 결합 위치를 나타낸다.

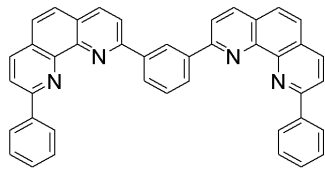
[0673]



[0674]

[0675]

이 페난트롤린 유도체의 구체예로서는, 예를 들면, 4,7-디페닐-1,10-페난트롤린, 2,9-디메틸-4,7-디페닐-1,10-페난트롤린, 9,10-디(1,10-페난트롤린-2-일)안트라센, 2,6-디(1,10-페난트롤린-5-일)피리딘, 1,3,5-트리(1,10-페난트롤린-5-일)벤젠, 9,9'-디플루오로-비스(1,10-페난트롤린-5-일), 바소쿠프로인이나 1,3-비스(2-페닐-1,10-페난트롤린-9-일)벤젠 등이 있다.



[0676]

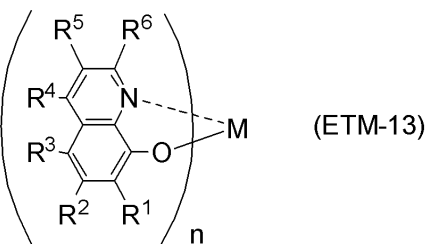
[0677]

이 페난트롤린 유도체는 공지의 원료와 공지의 합성 방법을 사용하여 제조할 수 있다.

[0678]

[퀴놀리놀계 금속 착체]

[0679] 퀴놀리놀계 금속 착체는, 예를 들면 하기 식(ETM-13)으로 표시되는 화합물이다.



[0680]

[0681] 식 중,  $R^1 \sim R^6$ 는 수소 또는 치환기이며, M은 Li, Al, Ga, Be 또는 Zn이며, n은 1~3의 정수이다.

[0682]

퀴놀리놀계 금속 착체의 구체예로서는, 8-퀴놀리놀리튬, 트리스(8-퀴놀리놀라토)알루미늄, 트리스(4-메틸-8-퀴놀리놀라토)알루미늄, 트리스(5-메틸-8-퀴놀리놀라토)알루미늄, 트리스(3,4-디메틸-8-퀴놀리놀라토)알루미늄, 트리스(4,5-디메틸-8-퀴놀리놀라토)알루미늄, 트리스(4,6-디메틸-8-퀴놀리놀라토)알루미늄, 비스(2-메틸-8-퀴놀리놀라토)(페놀라토)알루미늄, 비스(2-메틸-8-퀴놀리놀라토)(2-메틸페놀라토)알루미늄, 비스(2-메틸-8-퀴놀리놀라토)(3-메틸페놀라토)알루미늄, 비스(2-메틸-8-퀴놀리놀라토)(4-메틸페놀라토)알루미늄, 비스(2-메틸-8-퀴놀리놀라토)(2-페닐페놀라토)알루미늄, 비스(2-메틸-8-퀴놀리놀라토)(3-페닐페놀라토)알루미늄, 비스(2-메틸-8-퀴놀리놀라토)(4-페닐페놀라토)알루미늄, 비스(2-메틸-8-퀴놀리놀라토)(2,3-디메틸페놀라토)알루미늄, 비스(2-메틸-8-퀴놀리놀라토)(2,6-디메틸페놀라토)알루미늄, 비스(2-메틸-8-퀴놀리놀라토)(3,4-디메틸페놀라토)알루미늄, 비스(2-메틸-8-퀴놀리놀라토)(3,5-디메틸페놀라토)알루미늄, 비스(2-메틸-8-퀴놀리놀라토)(3,5-디-tert-부틸페놀라토)알루미늄, 비스(2-메틸-8-퀴놀리놀라토)(2,6-디페닐페놀라토)알루미늄, 비스(2-메틸-8-퀴놀리놀라토)(2,4,6-트리페닐페놀라토)알루미늄, 비스(2-메틸-8-퀴놀리놀라토)(2,4,6-트리메틸페놀라토)알루미늄, 비스(2-메틸-8-퀴놀리놀라토)(2,4,5,6-테트라메틸페놀라토)알루미늄, 비스(2-메틸-8-퀴놀리놀라토)(1-나프토라토)알루미늄, 비스(2-메틸-8-퀴놀리놀라토)(2-나프토라토)알루미늄, 비스(2,4-디메틸-8-퀴놀리놀라토)(2-페닐페놀라토)알루미늄, 비스(2,4-디메틸-8-퀴놀리놀라토)(3-페닐페놀라토)알루미늄, 비스(2,4-디메틸-8-퀴놀리놀라토)(4-페닐페놀라토)알루미늄, 비스(2,4-디메틸-8-퀴놀리놀라토)(3,5-디메틸페놀라토)알루미늄, 비스(2,4-디메틸-8-퀴놀리놀라토)(3,5-디-tert-부틸페놀라토)알루미늄, 비스(2-메틸-8-퀴놀리놀라토)알루미늄- $\mu$ -옥소-비스(2-메틸-8-퀴놀리놀라토)알루미늄, 비스(2,4-디메틸-8-퀴놀리놀라토)알루미늄- $\mu$ -옥소-비스(2,4-디메틸-8-퀴놀리놀라토)알루미늄, 비스(2-메틸-4-에틸-8-퀴놀리놀라토)알루미늄- $\mu$ -옥소-비스(2-메틸-4-에틸-8-퀴놀리놀라토)알루미늄, 비스(2-메틸-4-메톡시-8-퀴놀리놀라토)알루미늄- $\mu$ -옥소-비스(2-메틸-4-메톡시-8-퀴놀리놀라토)알루미늄, 비스(2-메틸-5-시아노-8-퀴놀리놀라토)알루미늄- $\mu$ -옥소-비스(2-메틸-5-시아노-8-퀴놀리놀라토)알루미늄, 비스(2-메틸-5-트리플루오로메틸-8-퀴놀리놀라토)알루미늄- $\mu$ -옥소-비스(2-메틸-5-트리플루오로메틸-8-퀴놀리놀라토)알루미늄, 비스(10-하이드록시벤조[h]퀴놀린)베릴륨 등을 들 수 있다.

[0683]

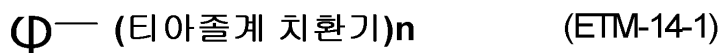
이 퀴놀리놀계 금속 착체는 공지의 원료와 공지의 합성 방법을 사용하여 제조할 수 있다.

[0684]

[티아졸 유도체 및 벤조티아졸 유도체]

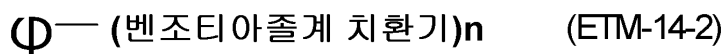
[0685]

티아졸 유도체는, 예를 들면 하기 식(ETM-14-1)으로 표시되는 화합물이다.



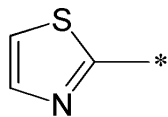
[0686]

[0687] 벤조티아졸 유도체는, 예를 들면 하기 식(ETM-14-2)으로 표시되는 화합물이다.

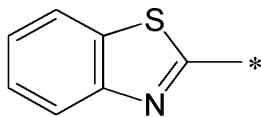


[0688]

[0689] 각 식의  $\Phi$ 는, n개의 아릴환(바람직하게는 n개의 벤젠환, 나프탈렌환, 안트라센환, 플루오렌환, 벤조플루오렌환, 페날렌환, 페난트렌환 또는 트리페닐렌환)이며, n은 1~4의 정수이며, 「티아졸계 치환기」나 「벤조티아졸계 치환기」는, 상기 식(ETM-2), 식(ETM-2-1) 및 식(ETM-2-2)에서의 「피리딘계 치환기」 중의 피리딘이 티아졸릴이나 벤조티아졸릴로 치환한 치환기이며, 티아졸 유도체 및 벤조티아졸 유도체에서의 적어도 1개의 수소가 중수소로 치환되어 있어도 된다.



티아졸릴



벤조티아졸릴

\*는 결합위치를 나타냄.

[0690]

[0691]

$\phi$ 는, 또한 안트라센환 또는 플루오렌환인 것이 바람직하고, 이 경우의 구조는 상기 식(ETM-2-1) 또는 식(ETM-2-2)에서의 설명을 인용할 수 있고, 각 식 중의  $R^{11} \sim R^{18}$ 은 상기 식(ETM-2-1) 또는 식(ETM-2-2)에서의 설명을 인용할 수 있다. 또한, 상기 식(ETM-2-1) 또는 식(ETM-2-2)에서는 2개의 피리딘계 치환기가 결합한 형태로 설명되어 있지만, 이들을 티아졸계 치환기(또는 벤조티아졸계 치환기)로 치환할 때는, 양쪽의 피리딘계 치환기를 티아졸계 치환기(또는 벤조티아졸계 치환기)로 치환해도 되고(즉  $n=2$ ), 어느 하나의 피리딘계 치환기를 티아졸계 치환기(또는 벤조티아졸계 치환기)로 치환하고 다른 쪽의 피리딘계 치환기를  $R^{11} \sim R^{18}$ 로 치환해도 좋다(즉  $n=1$ ). 또한, 예를 들면, 상기 식(ETM-2-1)에서의  $R^{11} \sim R^{18}$  중 적어도 1개를 티아졸계 치환기(또는 벤조티아졸계 치환기)로 치환하고 「피리딘계 치환기」를  $R^{11} \sim R^{18}$ 로 치환해도 된다.

[0692]

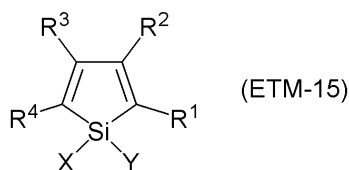
이들 티아졸 유도체 또는 벤조티아졸 유도체는 공지의 원료와 공지의 합성 방법을 사용하여 제조할 수 있다.

[0693]

[실릴 유도체]

[0694]

실릴 유도체는, 예를 들면, 하기 식(ETM-15)으로 표시되는 화합물이다. 상세한 것은 일본공개특허 평9-194487호 공보에 기재되어 있다.



[0695]

[0696]

X 및 Y는, 각각 독립적으로, 알킬, 시클로알킬, 알케닐, 알킬닐, 알콕시, 알케닐옥시, 알킬닐옥시, 아릴, 헤테로아릴이며, 이들은 치환되어 있어도 된다. 이들 기의 상세한 것에 대해서는, 식(1) 및 식(2)에서의 설명, 또한 식(ETM-7-2)에서의 설명을 인용할 수 있다. 또한, 알케닐옥시 및 알킬닐옥시는, 각각 알콕시에서의 알킬 부분이 알케닐 또는 알킬닐로 치환한 기이며, 이들 알케닐 및 알킬닐의 상세한 것에 대해서는 식(ETM-7-2)에서의 설명을 인용할 수 있다.

[0697]

또한, 모두 알킬인 X와 Y가 결합하여 환을 형성하고 있어도 된다.

[0698]

$R^1 \sim R^4$ 는, 각각 독립적으로, 수소, 할로젠, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 아미노, 알킬카르보닐, 아릴카르보닐, 알콕시카르보닐, 아릴옥시카르보닐, 아조기, 알킬카르보닐옥시, 아릴카르보닐옥시, 알콕시카르보닐옥시, 아릴옥시카르보닐옥시, 술피닐, 술포닐, 술팜닐, 실릴, 카르바모일, 아릴, 헤테로아릴, 알케닐, 알킬닐, 니트로, 포르밀, 니트로소, 포르밀옥시, 이소시아노, 시아네이트기, 이소시아네이트기, 티오시아네이트기, 이소티오시아네이트기, 또는, 시아노이며, 이들은 알킬, 시클로알킬, 아릴 또는 할로젠으로 치환되어 있어도 되고, 인접 치환기와 사이에 축합환을 형성하고 있어도 된다.

[0699]

$R^1 \sim R^4$ 에서의, 할로젠, 알킬, 시클로알킬, 알콕시, 아릴옥시, 아미노, 아릴, 헤테로아릴, 알케닐 및 알킬닐의 상세한 것에 대해서는, 식(1) 및 식(2)에서의 설명을 인용할 수 있다.

[0700]

$R^1 \sim R^4$ 에서의, 알킬 카르보닐, 아릴카르보닐, 알콕시카르보닐, 아릴옥시카르보닐, 알킬카르보닐옥시, 아릴카르보닐옥시, 알콕시카르보닐옥시 및 아릴옥시카르보닐옥시 중의, 알킬, 아릴 및 알콕시의 상세한 것에 대하여도, 식(1) 및 식(2)에서의 설명을 인용할 수 있다.

[0701]

실릴로서는, 실릴기, 및 실릴기의 3개의 수소 중 적어도 1개가, 각각 독립적으로, 아릴, 알킬 또는 시클로알킬로 치환된 기를 예로 들 수 있고, 트리 치환 실릴이 바람직하고, 트리아릴실릴, 트리알킬실릴, 트리시클로알킬실릴, 디알킬시클로알킬실릴 및 알킬디시클로알킬실릴 등을 예로 들 수 있다. 이들에서의, 아릴, 알킬 및 시클로알킬의 상세한 것에 대해서는, 식(1) 및 식(2)에서의 설명을 인용할 수 있다.

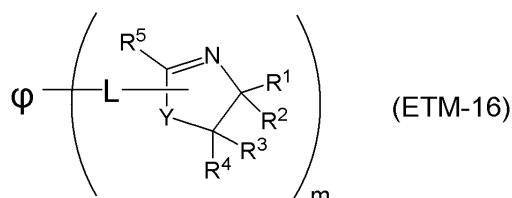
[0702] 인접 치환기와의 사이에 형성되는 축합환은, 예를 들면,  $R^1$ 과  $R^2$ ,  $R^2$ 와  $R^3$ ,  $R^3$ 와  $R^4$  등의 사이에 형성된 공역 또는 비공역의 축합환이다. 이들 축합환은, 환내 구조에 질소, 산소, 유황 원자를 포함해도 되고, 또한 다른 환과 축합해도 된다.

[0703] 다만, 바람직하게는,  $R^1$  및  $R^4$ 가 페닐인 경우, X 및 Y는, 알킬 또는 페닐이 아니다. 또한, 바람직하게는,  $R^1$  및  $R^4$ 가 티에닐인 경우, X 및 Y는, 알킬을,  $R^2$  및  $R^3$ 는, 알킬, 아릴, 알케닐 또는  $R^2$ 와  $R^3$ 가 결합하여 환을 형성하는 시클로알킬을 동시에 만족시키지 않는 구조이다. 또한, 바람직하게는,  $R^1$  및  $R^4$ 가 실릴기인 경우,  $R^2$ ,  $R^3$ , X 및 Y는, 각각 독립적으로, 수소 또는 탄소수 1~6의 알킬이 아니다. 또한, 바람직하게는,  $R^1$  및  $R^2$ 로 벤젠환이 축합한 구조인 경우, X 및 Y는, 알킬 및 페닐이 아니다.

[0704] 이들 실물 유도체는 공지의 원료와 공지의 합성 방법을 사용하여 제조할 수 있다.

[0705] [아졸린 유도체]

[0706] 아졸린 유도체는, 예를 들면 하기 식(ETM-16)으로 표시되는 화합물이다. 상세한 것은 국제공개 제2017/014226호에 기재되어 있다.



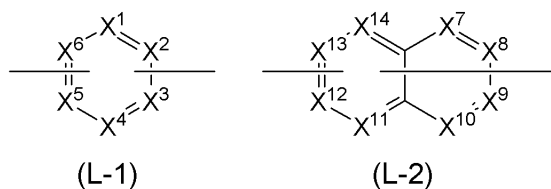
[0707]

[0708] 식(ETM-16) 중,

[0709]  $\phi$ 는 탄소수 6~40의 방향족 탄화 수소에 유래하는 m개의 기 또는 탄소수 2~40의 방향족 복소환에 유래하는 m개의 기이며,  $\phi$  중 적어도 1개의 수소는 탄소수 1~6의 알킬, 탄소수 3~14의 시클로알킬, 탄소수 6~18의 아릴 또는 탄소수 2~18의 헤테로아릴로 치환되어 있어도 되고,

[0710] Y는, 각각 독립적으로, -O-, -S- 또는 >N-Ar이며, Ar은 탄소수 6~12의 아릴 또는 탄소수 2~12의 헤테로아릴이며, Ar 중 적어도 1개의 수소는 탄소수 1~4의 알킬, 탄소수 5~10의 시클로알킬, 탄소수 6~12의 아릴 또는 탄소수 2~12의 헤테로아릴로 치환되어 있어도 되고,  $R^1 \sim R^5$ 는 각각 독립적으로 수소, 탄소수 1~4의 알킬 또는 탄소수 5~10의 시클로알킬이며, 다만, 상기 >N-Ar에서의 Ar 및 상기  $R^1 \sim R^5$  중 어느 1개는 L과 결합하는 부위이며,

[0711] L은, 각각 독립적으로, 하기 식(L-1)으로 표시되는 2가의 기, 및 하기 식(L-2)으로 표시되는 2가의 기로 이루어지는 군으로부터 선택되고,



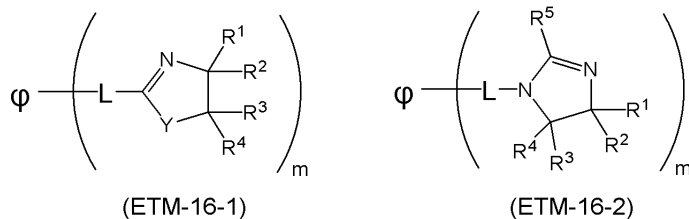
[0712]

[0713] 식(L-1) 중,  $X^1 \sim X^6$ 는 각각 독립적으로  $=CR^6-$  또는  $=N-$ 이며,  $X^1 \sim X^6$  중 적어도 2개는  $=CR^6-$ 이며,  $X^1 \sim X^6$  중 2개의  $=CR^6-$ 에서의  $R^6$ 는  $\phi$  또는 아졸린환과 결합하는 부위이며, 그 이외의  $=CR^6-$ 에서의  $R^6$ 는 수소이며,

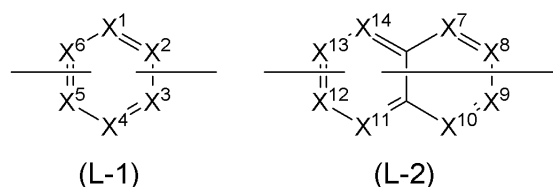
[0714] 식(L-2) 중,  $X^7 \sim X^{14}$ 는 각각 독립적으로  $=CR^6-$  또는  $=N-$ 이며,  $X^7 \sim X^{14}$  가운데 중 적어도 2개는  $=CR^6-$ 이며,  $X^7 \sim X^{14}$  중 2개의  $=CR^6-$ 에서의  $R^6$ 는  $\phi$  또는 아졸린환과 결합하는 부위이며, 그 이외의  $=CR^6-$ 에서의  $R^6$ 는 수소이며,

[0715] L 중 적어도 1개의 수소는 탄소수 1~4의 알킬, 탄소수 5~10의 시클로알킬, 탄소수 6~10의 아릴 또는 탄소수 2~10의 헤테로아릴로 치환되어 있어도 되고,

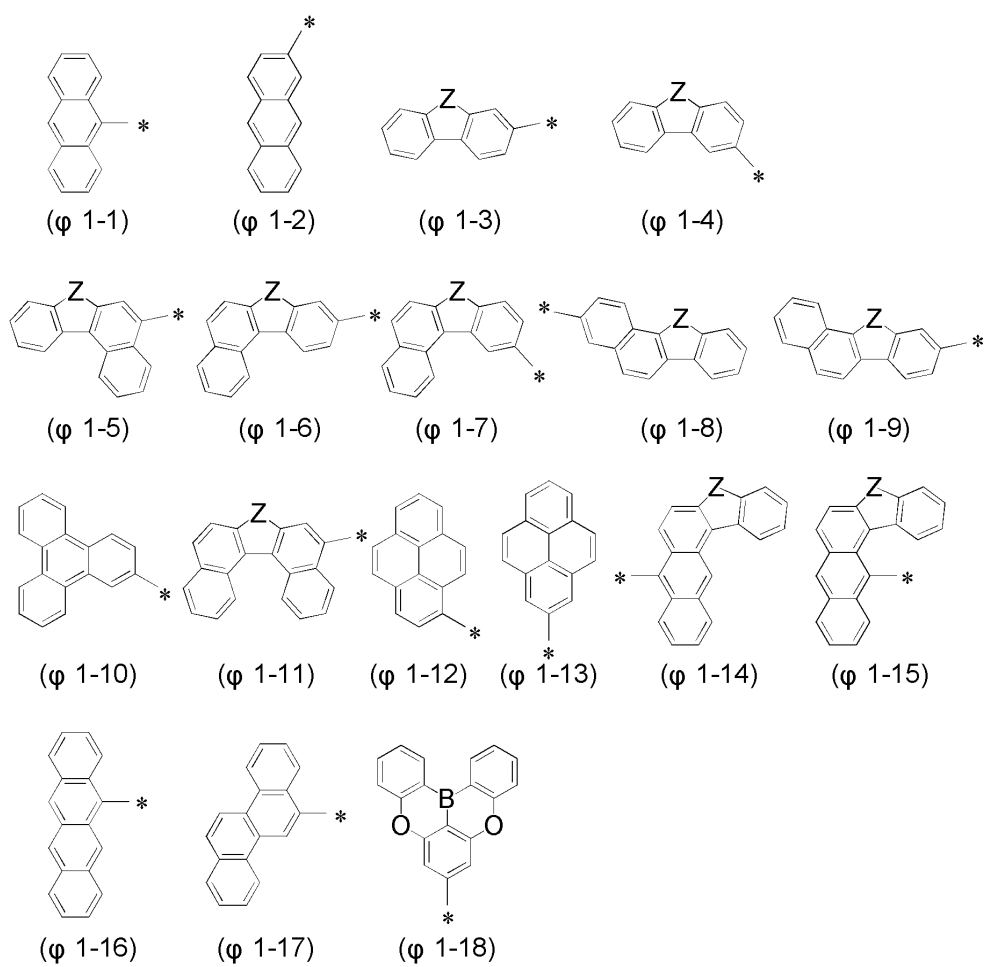
- [0716]  $m$ 은 1~4의 정수이며,  $m$ 이 2~4일 때, 아졸린환과 L로 형성되는 기는 동일해도 상이해도 되고, 그리고,
- [0717] 식(ETM-16)으로 표시되는 화합물 중 적어도 1개의 수소는 중수소로 치환되어 있어도 된다.
- [0718] 구체적인 아졸린 유도체는, 하기 식(ETM-16-1) 또는 식(ETM-16-2)으로 표시되는 화합물이다.



- [0719]
- [0720] 식(ETM-16-1) 및 식(ETM-16-2) 중,
- [0721]  $\phi$ 는 탄소수 6~40의 방향족 탄화 수소에 유래하는  $m$ 개의 기 또는 탄소수 2~40의 방향족 복소환에 유래하는  $m$ 개의 기이며,  $\phi$  중 적어도 1개의 수소는 탄소수 1~6의 알킬, 탄소수 3~14의 시클로알킬, 탄소수 6~18의 아릴 또는 탄소수 2~18의 헤테로아릴로 치환되어 있어도 되고,
- [0722] 식(ETM-16-1) 중, Y는, 각각 독립적으로, -O-, -S- 또는 >N-Ar이며, Ar은 탄소수 6~12의 아릴 또는 탄소수 2~12의 헤테로아릴이며, Ar 중 적어도 1개의 수소는 탄소수 1~4의 알킬, 탄소수 5~10의 시클로알킬, 탄소수 6~12의 아릴 또는 탄소수 2~12의 헤테로아릴로 치환되어 있어도 되고,
- [0723] 식(ETM-16-1) 중,  $R^1 \sim R^4$ 는 각각 독립적으로 수소, 탄소수 1~4의 알킬 또는 탄소수 5~10의 시클로알킬이며, 다만,  $R^1$ 과  $R^2$ 는 동일하고, 또한  $R^3$ 과  $R^4$ 는 동일하며,
- [0724] 식(ETM-16-2) 중,  $R^1 \sim R^5$ 는 각각 독립적으로 수소, 탄소수 1~4의 알킬 또는 탄소수 5~10의 시클로알킬이며, 다만,  $R^1$ 과  $R^2$ 는 동일하고, 또한  $R^3$ 과  $R^4$ 는 동일하며,
- [0725] 식(ETM-16-1) 및 식(ETM-16-2) 중,
- [0726] L은, 각각 독립적으로, 하기 식(L-1)으로 표시되는 2가의 기, 및 하기 식(L-2)로 표시되는 2가의 기로 이루어지는 군으로부터 선택되고,

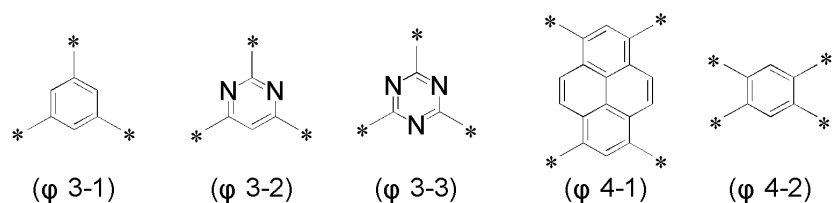
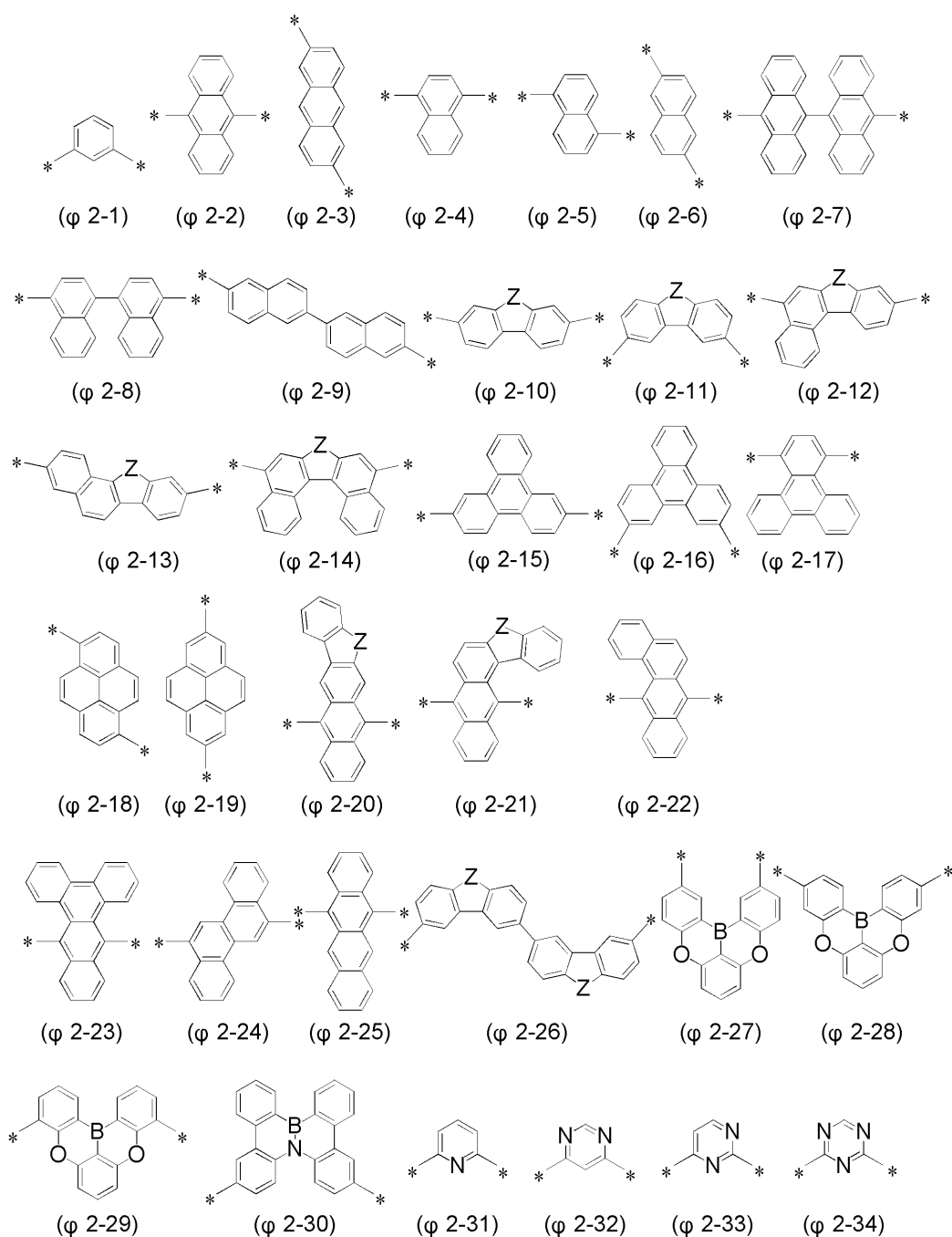


- [0727]
- [0728] 식(L-1) 중,  $X^1 \sim X^6$ 는 각각 독립적으로  $=CR^6-$  또는  $=N-$ 이며,  $X^1 \sim X^6$  중 적어도 2개는  $=CR^6-$ 이며,  $X^1 \sim X^6$  중 2개의  $=CR^6-$ 에서의  $R^6$ 는  $\phi$  또는 아졸린환과 결합하는 부위이며, 그 이외의  $=CR^6-$ 에서의  $R^6$ 는 수소이며,
- [0729] 식(L-2) 중,  $X^7 \sim X^{14}$ 는 각각 독립적으로  $=CR^6-$  또는  $=N-$ 이며,  $X^7 \sim X^{14}$  중 적어도 2개는  $=CR^6-$ 이며,  $X^7 \sim X^{14}$  중 2개의  $=CR^6-$ 에서의  $R^6$ 는  $\phi$  또는 아졸린환과 결합하는 부위이며, 그 이외의  $=CR^6-$ 에서의  $R^6$ 는 수소이며,
- [0730] L 중 적어도 1개의 수소는 탄소수 1~4의 알킬, 탄소수 5~10의 시클로알킬, 탄소수 6~10의 아릴 또는 탄소수 2~10의 헤테로아릴로 치환되어 있어도 되고,
- [0731]  $m$ 은 1~4의 정수이며,  $m$ 이 2~4일 때, 아졸린환과 L로 형성되는 기는 동일해도 상이해도 되고, 그리고,
- [0732] 식(ETM-16-1) 또는 식(ETM-16-2)으로 표시되는 화합물 중 적어도 1개의 수소는 중수소로 치환되어 있어도 된다.
- [0733] 바람직하게는,  $\phi$ 는, 하기 식( $\phi$  1-1)~식( $\phi$  1-18)으로 표시되는 1가의 기, 하기 식( $\phi$  2-1)~식( $\phi$  2-34)으로 표시되는 2가의 기, 하기 식( $\phi$  3-1)~식( $\phi$  3-3)으로 표시되는 3가의 기, 및 하기 식( $\phi$  4-1)~식( $\phi$  4-2)으로 표시되는 4가의 기로 이루어지는 군으로부터 선택되고,  $\phi$  중 적어도 1개의 수소는 탄소수 1~6의 알킬, 탄소수 3~14의 시클로알킬, 탄소수 6~18의 아릴 또는 탄소수 2~18의 헤테로아릴로 치환되어 있어도 된다.



[0734]





식 중의 Z는,  $>CR_2$ ,  $>N-Ar$ ,  $>N-L$ ,  $-O-$  또는  $-S-$ 이며,  $>CR_2$ 에서의 R은, 각각 독립적으로, 탄소수 1~4의 알킬, 탄소수 5~10의 시클로알킬, 탄소수 6~12의 아릴 또는 탄소수 2~12의 헤테로아릴이며, R은 서로 결합하여 환을 형성하고 있어도 되고,  $>N-Ar$ 에서의 Ar은 탄소수 6~12의 아릴 또는 탄소수 2~12의 헤테로아릴이며,  $>N-L$ 에서의 L은 식(ETM-16), 식(ETM-16-1) 또는 식(ETM-16-2)에서의 L이다. 식 중의 \*는, 결합 위치를 나타낸다.

바람직하게는, L은, 벤젠, 나프탈렌, 피리딘, 피라진, 피리미딘, 피리다진, 트리아진, 퀴놀린, 이소퀴놀린, 나프티리딘, 프탈라진, 퀴녹살린, 퀴나졸린, 신놀린, 및 프레티리딘으로 이루어지는 군으로부터 선택되는 환의 2개의 기이며, L 중 적어도 1개의 수소는 탄소수 1~4의 알킬, 탄소수 5~10의 시클로알킬, 탄소수 6~10의 아릴

또는 탄소수 2~10의 헤테로아릴로 치환되어 있어도 된다.

[0739]

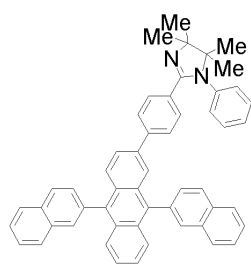
바람직하게는, Y 또는 Z로서의 >N-Ar에서의 Ar은, 페닐, 나프틸, 피리디닐, 피라지닐, 피리미디닐, 피리다지닐, 트리아지닐, 퀴놀리닐, 이소퀴놀리닐, 나프티리디닐, 프탈라지닐, 퀴놀살리닐, 퀴나졸리닐, 신놀릴, 및 프테리디닐로 이루어지는 군으로부터 선택되고, Y로서의 >N-Ar에서의 Ar중 적어도 1개의 수소는 탄소수 1~4의 알킬, 탄소수 5~10의 시클로알킬 또는 탄소수 6~10의 아릴로 치환되어 있어도 된다.

[0740]

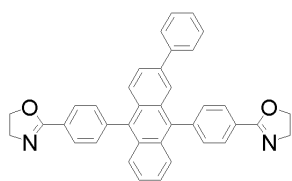
바람직하게는, R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>는 각각 독립적으로 수소, 탄소수 1~4의 알킬 또는 탄소수 5~10의 시클로알킬이며, 다만, R<sup>1</sup>과 R<sup>2</sup>는 동일하고, R<sup>3</sup>와 R<sup>4</sup>는 동일하며, 또한 R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>의 모두가 동시에 수소가 되지는 않으며, 그리고, m은 1 또는 2이며, m이 2일 때, 아졸린환과 L로 형성되는 기는 동일하다.

[0741]

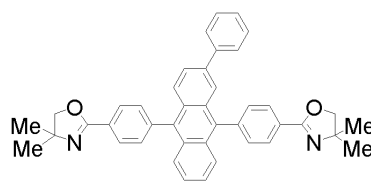
아졸린 유도체의 구체예로서는, 예를 들면 하기 화합물이 있다. 그리고, 구조식 중의 「Me」는 메틸을 나타낸다.



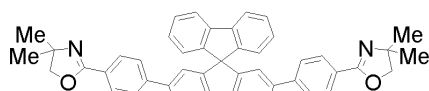
ETM-16-(1)



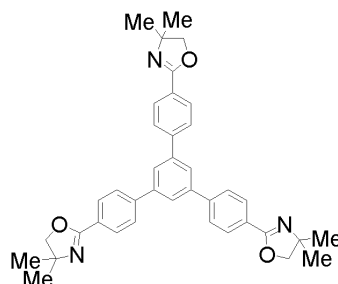
ETM-16-(2)



ETM-16-(3)

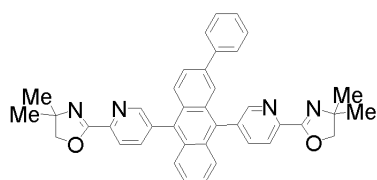


ETM-16-(4)

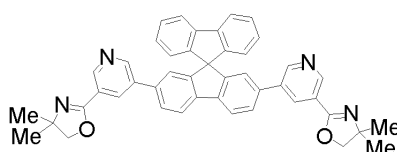


ETM-16-(5)

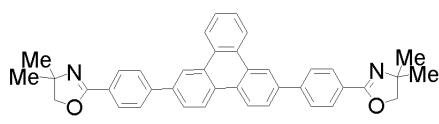
[0742]



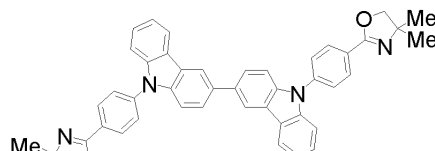
ETM-16-(6)



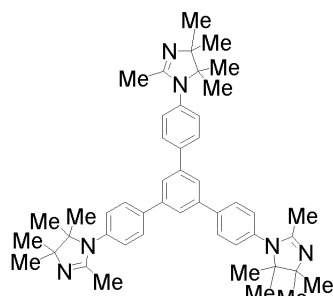
ETM-16-(7)



ETM-16-(8)



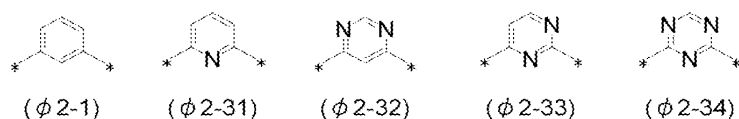
ETM-16-(9)



ETM-16-(10)

[0743]

[0744] 보다 바람직하게는,  $\phi$ 는, 하기 식( $\phi$ 2-1), 식( $\phi$ 2-31), 식( $\phi$ 2-32), 식( $\phi$ 2-33) 및 식( $\phi$ 2-34)으로 표시되는 2가의 기로 이루어지는 군으로부터 선택되고,  $\phi$  중 적어도 1개의 수소는 탄소수 6~18의 아릴로 치환되어 있어도 되고,



(\*는 결합위치를 나타냄.)

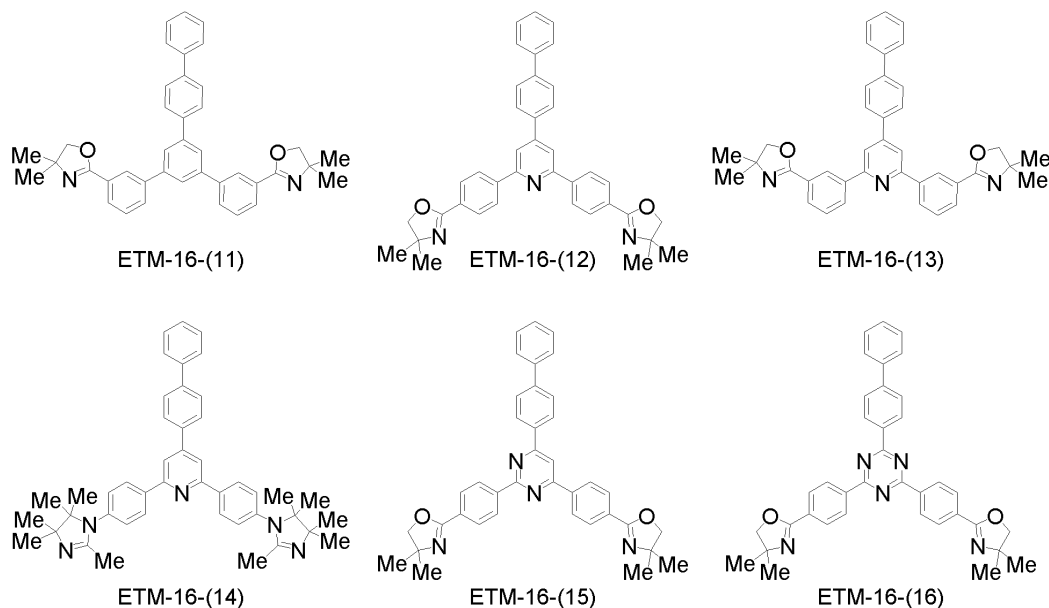
[0745] L은, 벤젠, 피리딘, 피라진, 피리미딘, 피리다진, 및 트리아진으로 이루어지는 군으로부터 선택되는 환에 2가의 기이며, L 중 적어도 1개의 수소는 탄소수 1~4의 알킬, 탄소수 5~10의 시클로알킬, 탄소수 6~10의 아릴 또는 탄소수 2~14의 헤테로아릴로 치환되어 있어도 되고,

[0747] Y로서의 >N-Ar에서의 Ar은, 페닐, 피리디닐, 피라지닐, 피리미디닐, 피리다지닐, 및 트리아지닐로 이루어지는 군으로부터 선택되고, 상기 Ar 중 적어도 1개의 수소는 탄소수 1~4의 알킬, 탄소수 5~10의 시클로알킬 또는 탄소수 6~10의 아릴로 치환되어 있어도 되고,

[0748]  $R^1 \sim R^4$ 는 각각 독립적으로 수소, 탄소수 1~4의 알킬 또는 탄소수 5~10의 시클로알킬이며, 다만,  $R^1$ 과  $R^2$ 는 동일하고,  $R^3$ 와  $R^4$ 는 동일하며, 또한  $R^1 \sim R^4$ 의 모두가 동시에 수소가 되지는 않으며, 그리고,

[0749] m은 2이며, 아졸린환과 L로 형성되는 기는 동일하다.

[0750] 아졸린 유도체의 다른 구체예로서는, 예를 들면 하기 화합물이 있다. 그리고, 구조식 중의 「Me」는 메틸을 나타낸다.



[0751] 이 아졸린 유도체를 규정하는 상기 각 식 중의, 알킬, 시클로알킬, 아릴 또는 헤테로아릴의 상세한 것에 대해서는, 식(1) 및 식(2)에서의 설명을 인용할 수 있다.

[0753] 이 아졸린 유도체는 공지의 원료와 공지의 합성 방법을 사용하여 제조할 수 있다.

[0754] [환원성 물질, 그 외]

[0755] 전자수송층 또는 전자주입층에는, 전자수송층 또는 전자주입층을 형성하는 재료를 환원할 수 있는 물질을 더 포함해도 된다. 이 환원성 물질은, 일정한 환원성을 가지는 물질이라면, 다양한 물질이 사용되고, 예를 들면, 알칼리 금속, 알칼리토류 금속, 희토류 금속, 알칼리 금속의 산화물, 알칼리 금속의 할로겐화물, 알칼리토류 금속의 산화물, 알칼리토류 금속의 할로겐화물, 희토류 금속의 산화물, 희토류 금속의 할로겐화물, 알칼리 금속의 유기착체, 알칼리토류 금속의 유기착체 및 희토류 금속의 유기착체로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 1

개를 바람직하게 사용할 수 있다.

[0756] 바람직한 환원성 물질로서는, Na(일함수 2.36eV), K(동(同)2.28eV), Rb(일함수 2.16eV) 또는 Cs(일함수 1.95eV) 등의 알칼리 금속이나, Ca(일함수 2.9eV), Sr(일함수 2.0~2.5eV) 또는 Ba(일함수 2.52eV) 등의 알칼리토류 금속을 예로 들 수 있고, 일함수가 2.9eV 이하인 물질이 특히 바람직하다. 이들 중, 보다 바람직한 환원성 물질은, K, Rb 또는 Cs의 알칼리 금속이며, 더욱 바람직하게는 Rb 또는 Cs이며, 가장 바람직한 것은 Cs이다. 이 알칼리 금속은, 특히 환원능력이 높고, 전자수송층 또는 전자주입층을 형성하는 재료로의 비교적 소량의 첨가에 의해, 유기 EL 소자에서의 발광 휘도의 향상이나 장수명화가 도모된다. 또한, 일함수가 2.9eV 이하인 환원성 물질로서, 이들 2종 이상의 알칼리 금속의 조합도 바람직하고, 특히, Cs를 포함한 조합, 예를 들면, Cs와 Na, Cs와 K, Cs와 Rb, 또는 Cs와 Na와 K의 조합이 바람직하다. Cs를 포함함으로써, 환원능력을 효율적으로 발휘할 수 있고, 전자수송층 또는 전자주입층을 형성하는 재료로의 첨가에 의해, 유기 EL 소자에서의 발광 휘도의 향상이나 장수명화가 도모된다.

[0757] <유기전계 발광소자에서의 음극>

[0758] 음극(108)은, 전자주입층(107) 및 전자수송층(106)을 통하여, 발광층(105)에 전자를 주입하는 역할을 한다.

[0759] 음극(108)을 형성하는 재료로서는, 전자를 유기층에 효율적으로 주입할 수 있는 물질이면 특별히 한정되지 않지만, 양극(102)을 형성하는 재료와 동일한 물질을 사용할 수 있다. 그중에서도, 주석, 인듐, 갈륨, 알루미늄, 은, 구리, 니켈, 크롬, 금, 백금, 철, 아연, 리튬, 나트륨, 칼륨, 세슘 및 마그네슘 등의 금속 또는 이들의 합금(마그네슘-은 합금, 마그네슘-인듐 합금, 불화 리튬/알루미늄 등의 알루미늄-리튬 합금 등) 등이 바람직하다. 전자주입 효율을 높여서 소자 특성을 향상시키기 위해서는, 리튬, 나트륨, 칼륨, 세슘, 갈륨, 마그네슘 또는 이들 저일함수 금속을 포함하는 합금이 유효하다. 그러나, 이들 저일함수 금속은 일반적으로 대기 중에서 불안정한 경우가 많다. 이 점을 개선하기 위하여, 예를 들면, 유기층에 미량의 리튬, 세슘이나 마그네슘을 도핑하여, 안정성이 높은 전극을 사용하는 방법이 알려져 있다. 그 외의 도펀트로서는, 불화 리튬, 불화 세슘, 산화 리튬 및 산화 세슘과 같은 무기염도 사용할 수 있다. 단, 이들로 한정되지 않는다.

[0760] 또한, 전극 보호를 위해 백금, 금, 은, 구리, 철, 주석, 알루미늄 및 인듐 등의 금속, 또는 이들 금속을 사용한 합금, 그리고, 실리카, 티타니아 및 질화 규소 등의 무기물, 폴리비닐알코올, 염화 비닐, 탄화 수소계 고분자 화합물 등을 적층하는 것이, 바람직한 예로서 들 수 있다. 이 전극의 제작법도, 저항 가열, 전자 빔 증착, 스퍼터링, 이온 플레이팅 및 코팅 등, 도통할 수 있으면 특별히 한정되지 않는다.

[0761] <각 층에서 사용해도 되는 결합제>

[0762] 이상의 정공주입층, 정공수송층, 발광층, 전자수송층 및 전자주입층에 사용되는 재료는 단독으로 각 층을 형성할 수 있지만, 고분자 결합제로서 폴리염화비닐, 폴리카보네이트, 폴리스티렌, 폴리(N-비닐카르바졸), 폴리메틸메타크릴레이트, 폴리부틸메타크릴레이트, 폴리에스테르, 폴리술폰, 폴리페닐렌옥사이드, 폴리부타디엔, 탄화수소 수지, 케톤 수지, 페녹시 수지, 폴리아미드, 에틸셀룰로오스, 아세트산 비닐 수지, ABS 수지, 폴리우레탄 수지 등의 용제가용성 수지나, 페놀 수지, 크실렌 수지, 석유 수지, 우레아 수지, 멜라민 수지, 불포화 폴리에스테르 수지, 알키드 수지, 에폭시 수지, 실리콘 수지 등의 경화성 수지 등에 분산시켜 사용하는 것도 가능하다.

[0763] <유기전계 발광소자의 제작 방법>

[0764] 유기전계 발광소자를 구성하는 각 층은, 각 층을 구성할 재료를 증착법, 저항가열 증착, 전자 빔 증착, 스퍼터링, 분자적층법, 인쇄법, 스핀 코팅법 또는 캐스트법, 코팅법 등의 방법으로 막막으로 함으로써, 형성할 수 있다. 이와 같이 하여 형성된 각 층의 막 두께에 대해서는 특별히 한정되지 않고, 재료의 성질에 따라 적절하게 설정할 수 있지만, 통상 2nm~5000nm의 범위이다. 막 두께는 통상, 수정발진식 막두께 측정장치 등으로 측정할 수 있다.

[0765] 이와 같이 하여 얻어진 유기전계 발광소자에 직류 전압을 인가하는 경우에는, 양극을 +, 음극을 -의 극성으로서 인가하면 되고, 전압 2~40 V 정도를 인가하면, 투명 또는 반투명의 전극 측(양극 또는 음극, 및 양쪽)으로부터 발광을 관측할 수 있다. 또한, 이 유기전계 발광소자는, 펄스 전류나 교류 전류를 인가한 경우에도 발광한다. 그리고, 인가하는 교류의 파형은 임의이면 된다.

[0766] 다음으로, 유기전계 발광소자를 제작하는 방법의 일례로서, 양극/정공주입층/정공수송층/호스트 재료와 도펀트 재료로 이루어지는 발광층/전자수송층/전자주입층/음극으로 이루어지는 유기전계 발광소자의 제작법에 대하여

설명한다.

[증착법]

적절한 기판 상에, 양극재료의 박막을 증착법 등에 의해 형성시켜 양극을 제작한 후, 이 양극 상에 정공주입층 및 정공수송층의 박막을 형성시킨다. 이 위에 호스트 재료와 도펀트 재료를 공증착하고 박막을 형성시켜 발광층으로 하고, 이 발광층 위에 전자수송층, 전자주입층을 형성시키고, 또한 음극용 물질로 이루어지는 박막을 증착법 등에 의해 형성시켜 음극으로 함으로써, 목적의 유기전계 발광소자가 얻어진다. 그리고, 전술한 유기전계 발광소자의 제작에 있어서는, 제작 순서를 반대로 하여, 음극, 전자주입층, 전자수송층, 발광층, 정공수송층, 정공주입층, 양극의 순으로 제작할 수도 있다.

증착법을 사용하여 박막화할 경우, 그 증착 조건은, 재료의 종류, 막이 목적으로 하는 결정 구조 및 회합 구조 등에 따라 상이하다. 증착 조건은 일반적으로, 증착용 도가니의 가열온도+50~+400℃, 진공도  $10^{-6} \sim 10^{-3}$  Pa, 증착 속도 0.01~50 nm/초, 기판 온도-150~+300℃, 막 두께 2nm~5μm의 범위에서 적절하게 설정하는 것이 바람직하다.

[습식성막법]

습식성막법은, 유기 EL 소자의 각 유기층을 형성할 수 있는 저분자 화합물을 액상(液狀)의 유기층 형성용 조성물로서 준비하고, 이것을 사용함으로써 실시된다. 이 저분자 화합물을 용해하는 적절한 유기용매가 없을 경우에는, 상기 저분자 화합물에 반응성 치환기를 치환시킨 반응성 화합물로서 용해성 기능을 가지는 다른 모노머나 주쇄형 고분자와 함께 고분자화시킨 고분자 화합물 등으로부터 유기층 형성용 조성물을 준비해도 된다.

전술한 발광층형성용 조성물은 유기층 형성용 조성물의 일례이며, 유기층 형성용 조성물을 사용한 발광층의 형성도, 습식성막법에 의해 행할 수 있다. 유기층 형성용 조성물의 조제에 사용할 수 있는 유기용매나 임의 성분, 및 조성물의 물성에 대해서는, 전술한 발광층형성용 조성물의 설명을 참조할 수 있다.

습식성막법은, 일반적으로는, 기판에 유기층 형성용 조성물을 도포하는 도포 공정 및 도포된 유기층 형성용 조성물로부터 용매를 제거하는 건조 공정을 거침으로써 도막을 형성한다. 도포 공정의 상이에 따라, 스핀 코터를 사용하는 방법을 스핀 코팅법, 슬릿 코터를 사용하는 방법을 슬릿 코팅법, 판을 사용하는 방법을 그라비아, 오프셋, 리버스 오프셋, 플렉소 인쇄법, 잉크젯 프린터를 사용하는 방법을 잉크젯법, 안개 상태로 분사하는 방법을 스프레이법이라고 한다. 건조 공정에는, 풍건(風乾), 가열, 감압 건조 등의 방법이 있다. 건조 공정은 1회만 행해도 되고, 다른 방법이나 조건을 사용하여 복수 회 행해도 된다. 또한, 예를 들면, 감압 하에서의 소성, 다른 방법을 병용해도 된다.

습식성막법은 용액을 사용한 성막법이며, 예를 들면, 일부 인쇄법(잉크젯법), 스핀 코팅법 또는 캐스트법, 코팅법 등이다. 습식성막법은 진공증착법과 달리 고가의 진공증착장치를 사용할 필요가 없고, 대기압 하에서 성막할 수 있다. 부가하여, 습식성막법은 대면적화나 연속 생산이 가능하여, 제조 비용의 저감으로 이어진다.

한편, 진공증착법과 비교한 경우에는, 습식성막법은 적층화가 어렵다. 습식성막법을 사용하여 적층막을 제작할 경우, 상층의 조성물에 의한 하층의 용해를 방지할 필요가 있고, 용해성을 제어한 조성물, 하층의 가교 및 직교 용매(Orthogonal solvent, 서로 용해하지 않는 용매) 등이 구사된다. 그러나, 이들 기술을 사용해도, 모든 막의 도포에 습식성막법을 사용하는 것은 곤란한 경우가 있다.

이에, 일반적으로는, 몇 개의 층만을 습식성막법을 사용하고, 나머지를 진공증착법으로 유기 EL 소자를 제작하는 방법이 채용된다.

예를 들면, 습식성막법을 일부 적용하여 유기 EL 소자를 제작하는 수순을 이하에 나타낸다.

(수순 1) 양극의 진공증착법에 의한 성막

(수순 2) 정공주입층의 습식성막법에 의한 성막

(수순 3) 정공수송층의 습식성막법에 의한 성막

(수순 4) 호스트 재료와 도펀트 재료를 포함하는 발광층형성용 조성물의 습식성막법에 의한 성막

(수순 5) 전자수송층의 진공증착법에 의한 성막

(수순 6) 전자주입층의 진공증착법에 의한 성막

- [0784] (수순 7) 음극의 진공증착법에 의한 성막
- [0785] 이 수순을 거침으로써, 양극/정공주입층/정공수송층/호스트 재료와 도펀트 재료로 이루어지는 발광층/전자수송층/전자주입층/음극으로 이루어지는 유기 EL 소자가 얻어진다.
- [0786] 물론, 전자수송층 및 전자주입층에 대하여도, 각각 전자수송층용 재료 및 전자주입층용 재료를 포함하는 층 형성용 조성물을 사용하여 습식성막법에 의해 성막해도 된다. 이 때, 하층의 발광층 용해를 방지하는 수단, 또는 상기 수순과는 반대로 음극 측으로부터 성막하는 수단을 사용하는 것이 바람직하다.
- [0787] [그 외의 성막법]
- [0788] 발광층형성용 조성물의 성막화에는, 레이저가열묘화법(LITI)을 사용할 수 있다. LITI는 기체에 부착시킨 화합물을 레이저로 가열 증착하는 방법이며, 기체에 도포되는 재료에 발광층형성용 조성물을 사용할 수 있다.
- [0789] <임의의 공정>
- [0790] 성막의 각 공정의 전후에, 적절한 처리 공정, 세정 공정 및 건조 공정을 적당히 넣어도 된다. 처리 공정으로서, 예를 들면, 노광 처리, 플라즈마 표면 처리, 초음파 처리, 오존 처리, 적절한 용매를 사용한 세정 처리 및 가열 처리 등이 있다. 나아가서는, बैं크를 제작하는 일련의 공정도 예로 들 수 있다.
- [0791] बैं크의 제작에는 포토리소그래피 기술을 사용할 수 있다. 포토리소그래피를 사용 가능한 बैं크 재료로서는, 포토티브형 레지스트 재료 및 네가티브형 레지스트 재료를 사용할 수 있다. 또한, 잉크젯법, 그라비아 오프셋 인쇄, 리버스 오프셋 인쇄, 스크린 인쇄 등의 패턴 가능한 인쇄법도 사용할 수 있다. 이 때는 영구 레지스트 재료를 사용할 수도 있다.
- [0792] बैं크에 사용되는 재료로서는, 다당류 및 그의 유도체, 하이드록실을 가지는 에틸렌성 모노머의 단독 중합체 및 공중합체, 생체고분자 화합물, 폴리아크릴로일 화합물, 폴리에스테르, 폴리스티렌, 폴리이미드, 폴리아미드이미드, 폴리에테르이미드, 폴리술퍼드, 폴리술폰, 폴리페닐렌, 폴리페닐에테르, 폴리우레탄, 에폭시(메타)아크릴레이트, 멜라민(메타)아크릴레이트, 폴리올레핀, 환형 폴리올레핀, 아크릴로니트릴-부타디엔-스티렌 공중합 폴리머(ABS), 실리콘 수지, 폴리염화비닐, 염소화 폴리에틸렌, 염소화 폴리프로필렌, 폴리아세테이트, 폴리노르보르넨, 합성 고무, 폴리플루오로비닐리덴, 폴리테트라플루오로에틸렌, 폴리헥사플루오로프로필렌등의 불화 폴리머, 플루오로 올레핀-하이드로카본올레핀의 공중합 폴리머, 플루오로 카본 폴리머를 들 수 있지만, 이들 만으로 한정되지 않는다.
- [0793] 도 2를 참고로 하여, बैं크를 가지는 기관에 잉크젯법을 사용하여 유기 EL 소자를 제작하는 방법을 설명한다. 먼저, बैं크(200)는 기관(110) 상의 전극(120) 위에 설치되어 있다. 이 경우에, 잉크젯 헤드(300)으로부터, बैं크(200) 사이에 잉크의 액적(310)을 적하하고, 건조시킴으로써 도막(130)을 제작할 수 있다. 이것을 반복하여, 다음 도막(140), 나아가서는 발광층(150)까지 제작하고, 진공증착법을 사용하여 전자수송층, 전자주입층 및 전극을 성막하면, बैं크 재료로 발광 부위가 구획된 유기 EL 소자를 제작할 수 있다.
- [0794] <유기전계 발광소자의 응용예>
- [0795] 또한, 본 발명은, 유기전계 발광소자를 구비한 표시 장치 또는 유기전계 발광소자를 구비한 조명 장치 등에도 응용할 수 있다.
- [0796] 유기전계 발광소자를 구비한 표시 장치 또는 조명 장치는, 본 실시형태에 따른 유기전계 발광소자와 공지의 구동 장치를 접속하는 등 공지의 방법에 의해 제조할 수 있고, 직류 구동, 펄스 구동, 교류 구동 등 공지의 구동 방법을 적절하게 사용하여 구동할 수 있다.
- [0797] 표시 장치로서는, 예를 들면, 컬러 평판 디스플레이 등의 패널 디스플레이, 플렉시블 컬러 유기전계 발광(EL) 디스플레이 등의 플렉시블 디스플레이 등이 있다(예를 들면, 일본공개특허 평10-335066호 공보, 일본공개특허 제2003-321546호 공보, 일본공개특허 제2004-281086호 공보 등 참조). 또한, 디스플레이의 표시 방식으로서는, 예를 들면, 매트릭스 및/또는 세그먼트 방식 등이 있다. 그리고, 매트릭스 표시와 세그먼트 표시는 동일 패널 중에 공존하고 있어도 된다.
- [0798] 매트릭스에서는, 표시를 위한 화소가 격자형이나 모자이크형 등 2차원적으로 배치되어 있고, 화소의 집합으로 문자나 화상을 표시한다. 화소의 형상이나 사이즈는 용도에 따라 정해진다. 예를 들면, 컴퓨터, 모니터, 텔레비전의 화상 및 문자표시에는, 통상 1변이 300 $\mu$ m 이하인 4각형의 화소가 사용되고, 또한 표시 패널과 같은 대형 디스플레이의 경우에는, 1변이 mm오더의 화소를 사용하게 된다. 흑백 표시의 경우에는, 동일한 색의 화소를 배



열하면 되지만, 컬러 표시의 경우에는, 적, 녹, 청색 화소를 배열하여 표시시킨다. 이 경우에, 전형적으로는 델타 타입과 스트라이프 타입이 있다. 그리고, 이 매트릭스의 구동 방법으로서, 선순차 구동방법이나 액티브 매트릭스의 어느 쪽이라도 된다. 선순차 구동 쪽이 구조가 간단하다는 이점이 있지만, 동작 특성을 고려한 경우, 액티브 매트릭스 쪽이 뛰어난 경우가 있어, 이것도 용도에 따라 구분하여 사용할 필요가 있다.

[0799] 세그먼트 방식(타입)에서는, 미리 결정된 정보를 표시하도록 패턴을 형성하고, 결정된 영역을 발광시키게 된다. 예를 들면, 디지털시계나 온도계에서의 시각이나 온도 표시, 오디오 기기나 전자 조리기 등의 동작 상태 표시 및 자동차의 패널 표시 등이 있다.

[0800] 조명 장치로서는, 예를 들면, 실내 조명 등의 조명 장치, 액정 표시 장치의 백라이트 등이 있다(예를 들면, 일본공개특허 제2003-257621호 공보, 일본공개특허 제2003-277741호 공보, 일본공개특허 제2004-119211호 공보 등 참조). 백라이트는, 주로 자발광하지 않는 표시 장치의 시인성(視認性)을 향상시킬 목적으로 사용되고, 액정 표시 장치, 시계, 오디오 장치, 자동차 패널, 표시판 및 표시 등에 사용된다. 특히, 액정 표시 장치, 그 중에서도 박형화가 과제로 되고 있는 컴퓨터용도의 백라이트로서는, 종래 방식이 형광등이나 도광판으로 이루어져 있기 때문에 박형화가 곤란한 것을 고려하면, 본 실시형태에 따른 발광 소자를 사용한 백라이트는 박형이며 경량이 특징이 된다.

[0801] 3-2. 그 외의 유기 디바이스

[0802] 본 발명에 따른 다환 방향족 화합물은, 전술한 유기전계 발광소자 이외에, 유기전계 효과 트랜지스터 또는 유기 박막 태양전지 등의 제작에 사용할 수 있다.

[0803] 유기전계 효과 트랜지스터는, 전압 입력에 의해 발생시킨 전계에 의해 전류를 제어하는 트랜지스터이며, 소스 전극과 드레인 전극 이외에 게이트 전극이 설치되어 있다. 게이트 전극에 전압을 인가하면 전계가 발생하고, 소스 전극과 드레인 전극 사이를 흐르는 전자(혹은 홀)의 흐름을 임의로 막아서 전류를 제어할 수 있는 트랜지스터이다. 전계효과 트랜지스터는, 단순한 트랜지스터(바이폴라 트랜지스터(bipolar transistor))에 비교하여 소형화가 용이하여, 집적 회로 등을 구성하는 소자로서 자주 사용되고 있다.

[0804] 유기전계 효과 트랜지스터의 구조는, 통상, 본 발명에 따른 다환 방향족 화합물을 사용하여 형성되는 유기반도체 활성층에 접하여 소스 전극 및 드레인 전극이 형성되어 있고, 유기반도체 활성층에 접한 절연층(유전체층)을 사이에 두고 게이트 전극이 더욱 설치되어 있으면 된다. 그 소자 구조로서는, 예를 들면 하기 구조가 있다.

[0805] (1) 기판/게이트 전극/절연체층/소스 전극·드레인 전극/유기반도체 활성층

[0806] (2) 기판/게이트 전극/절연체층/유기반도체 활성층/소스 전극·드레인 전극

[0807] (3) 기판/유기반도체 활성층/소스 전극·드레인 전극/절연체층/게이트 전극

[0808] (4) 기판/소스 전극·드레인 전극/유기반도체 활성층/절연체층/게이트 전극

[0809] 이와 같이 구성된 유기전계 효과 트랜지스터는, 액티브 매트릭스 구동 방식의 액정 모니터나 유기 발광 소자 디스플레이의 화소 구동 스위칭 소자 등으로서 적용할 수 있다.

[0810] 유기박막 태양전지는, 유리 등의 투명 기판 상에 ITO 등의 양극, 홀 수송층, 광전 변환층, 전자수송층, 음극이 적층된 구조를 가진다. 광전 변환층은 양극 측에 p형 반도체층을 가지고, 음극 측에 n형 반도체층을 가지고 있다. 본 발명에 따른 다환 방향족 화합물은, 그 물성에 따라, 홀 수송층, p형 반도체층, n형 반도체층, 전자수송층의 재료로서 사용하는 것이 가능하다. 본 발명에 따른 다환 방향족 화합물은, 유기박막 태양전지에 있어서 홀 수송 재료나 전자수송 재료로서 기능할 수 있다. 유기박막 태양전지는, 상기한 것 외에 홀 블록층, 전자블록층, 전자주입층, 홀 주입층, 평활화층 등을 적절하게 구비하고 있어도 된다. 유기박막 태양전지에는, 유기박막 태양전지에 사용되는 기지(既知)의 재료를 적절하게 선택하고 조합하여 사용할 수 있다.

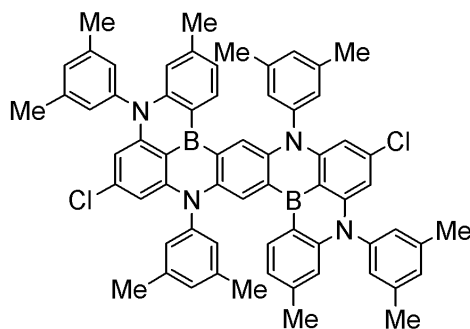
[0811] [실시예]

[0812] 이하, 본 발명을 실시예에 의해 구체적으로 설명하지만, 본 발명은 이들 실시예에 의해 전혀 한정되지 않는다. 이하는 실시예에서 합성한 화합물이다.

[0813] 합성예(1)

[0814] 화합물(1-307): 7,17-디클로로-5,9,15,19-테트라키스(3,5-디메틸페닐)-3,13-디메틸-5,9,15,19-테트라하이드로-5,9,15,19-테트라아자-10b,20b-디보라디나프토[3,2,1-de:3',2',1'-op]펜타센의 합성





(1-307)

[0815]

[0816]

[제1 단계]

[0817]

3,5-디메틸아닐린(12.5mL, 0.10mol), 3-브로모톨루엔(14.0mL, 0.11mol), tert-부톡시나트륨(10.6g, 0.11mol), 비스(디벤질리덴아세톤)팔라듐(0)(456mg, 0.50mmol), 디시클로헥실(2',6'-디메톡시-[1,1'-비페닐]-2-일)포스핀(SPhos; 409mg, 1.0mmol)을 질소 분위기 하, 실온 중에서 톨루엔(500mL)에 가하고, 50℃로 12시간 가열 교반을 행하였다. 반응액을 실온까지 식힌 후, 물(500mL)을 가하고, 톨루엔(300mL)을 사용하여 2회 추출을 행하였다. 그 후 포화 식염수(100mL)로 세정했다. 유기층을 회수하고, 용매를 감압 하에서 증류 제거한 후, 실리카겔 컬럼(전개액/핵산)을 행함으로써, 황색 액체로서 3,5-디메틸-N-(m-톨릴)아닐린(20.8g, 수율 99%)을 얻었다. 반응 혼합물을 핵산, 아세트니트릴을 사용하여 세정했다. 얻어진 조생성물을, 핵산을 사용하여 60℃로 3시간 교반함으로써, 적색 분말로서 7,17-디클로로-5,9,15,19-테트라키스(3,5-디메틸페닐)-3,13-디메틸-5,9,15,19-테트라하이드로-5,9,15,19-테트라아자-10b,20b-디보라디나프토[3,2,1-de:3',2',1'-op]펜타센(45.7mg, 수율 48%)을 얻었다.

[0818]

[0819]

[0496]

[0820]

NMR 스펙트럼에 의해 얻어진 화합물의 구조를 확인했다.

[0821]

<sup>1</sup>H-NMR(δ ppm in CDCl<sub>3</sub>, 500 MHz); 2.26(s, 6H), 2.30(s 3H), 5.54(s, 1H), 6.57(s, 1H), 6.32(s, 2H), 6.69(s, 2H), 6.72(d, 1H), 6.85(s, 1H), 6.86(d, 1H), 7.12(t, 1H)

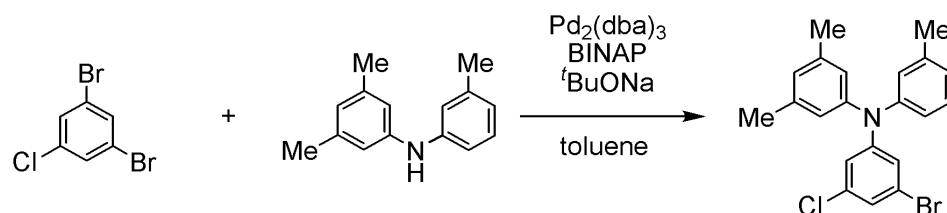
[0822]

[제2 단계]

[0823]

1,3-디브로모-5-클로로벤젠(21.6g, 80mmol), 3,5-디메틸-N-(m-톨릴)아닐린(16.9g, 80mmol), tert-부톡시나트륨(9.23g, 96mmol), 비스(디벤질리덴아세톤)팔라듐(0)(733mg, 0.80mmol), 2,2'-비스(디페닐포스피노)-1,1'-비나프틸(BINAP; 996mg, 1.6mmol)을 질소 분위기 하, 실온 중에서 톨루엔(400mL)에 가하고, 90℃로 24시간 가열 교반을 행하였다. 반응액을 실온까지 식힌 후, 물(400mL)을 가하고, 톨루엔(200mL)을 사용하여 3회 추출을 행하고, 포화 식염수로 세정했다. 유기층을 회수하고, 용매를 증류 제거한 후, 반응 혼합물을 실리카겔쇼트패스 컬럼(전개액/핵산)에 통과시켰다. 용매를 증류 제거한 후, 100℃로 건조함으로써 백색 분말로서 3-브로모-5-클로로-N-(3,5-디메틸페닐)-N-(m-톨릴)아닐린(19.3g, 수율 60%)을 얻었다.

[0824]



[0825] NMR 스펙트럼에 의해 얻어진 화합물의 구조를 확인했다.

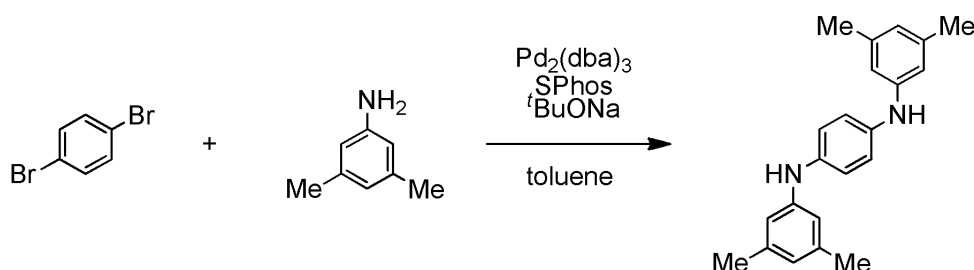
[0826]  $^1\text{H-NMR}$  ( $\delta$  ppm in  $\text{CDCl}_3$ , 500 MHz); 2.24(s, 6H), 2.28(s 3H), 6.70(s, 2H), 6.76(s, 1H), 6.84(t, 1H), 6.87(m, 3H), 6.69(t, 1H), 6.99(t, 1H), 7.16(t, 1H)

[0827]  $^{13}\text{C-NMR}$  ( $\delta$  ppm in  $\text{CDCl}_3$ , 500 MHz); 21.2(2C), 21.2(1C), 120.0(1C),

[0828] 122.3(1C), 122.4(1C), 122.7(1C), 123.3(1C), 123.4(2C), 125.1(1C), 125.9(1C), 126.4(1C), 129.3(1C), 135.2(1C), 139.3(2C), 139.4(1C), 146.3(1C), 146.4(1C), 150.4(1C)

[0829] [제3 단계]

[0830] 1,4-디브로모벤젠(7.08g, 30mmol), 3,5-디메틸아닐린(9.00mL, 72mmol), *tert*-부톡시나트륨(8.66g, 90mmol), 비스(디벤질리덴아세톤)팔라듐(0)(549mg, 0.60mmol), 디시클로헥실(2',6'-디메톡시-[1,1'-비페닐]-2-일)포스핀(SPhos; 493mg, 1.2mmol)을 질소 분위기 하, 실온 중에서 톨루엔(90mL)에 가하고, 60℃로 4시간 가열 교반을 행하였다. 반응액을 실온까지 식히고, 헥산 및 물을 사용하여 세정을 행하였다. 그 후, 실리카겔쇼트패스컬럼(전개액/톨루엔)에 통과시켰다. 용매를 감압 하에서 증류 제거한 후, 헥산을 사용하여 세정함으로써, 백색 분말로서  $\text{N}^1, \text{N}^4$ -bis(3,5-디메틸페닐)벤젠-1,4-디아민(7.67g, 수율 81%)을 얻었다.



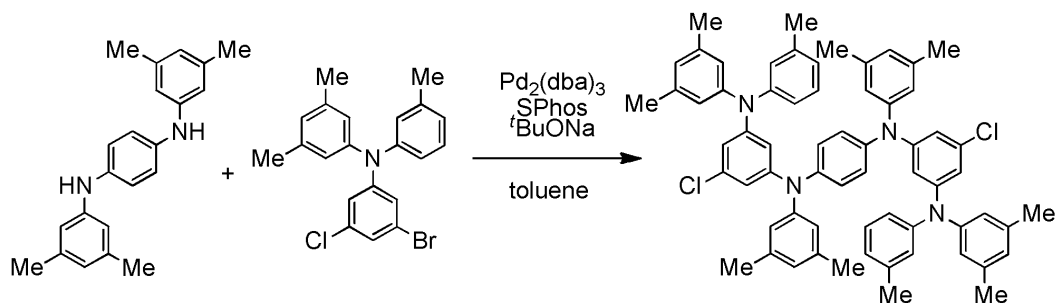
[0831]

[0832] NMR 스펙트럼에 의해 얻어진 화합물의 구조를 확인했다.

[0833]  $^1\text{H-NMR}$  ( $\delta$  ppm in  $\text{CDCl}_3$ , 500 MHz); 2.25(s, 12H), 5.47(s, 2H), 6.52(s, 2H), 6.61(s, 4H), 7.03(s, 4H)

[0834] [제4 단계]

[0835]  $\text{N}^1, \text{N}^4$ -bis(3,5-디메틸페닐)벤젠-1,4-디아민(1.58g, 5.0mmol), 3-브로모-5-클로로-N-(3,5-디메틸페닐)-N-(*m*-톨릴)아닐린(4.81g, 12mmol), *tert*-부톡시나트륨(1.45g, 15mmol), 비스(디벤질리덴아세톤)팔라듐(0)(91.6mg, 0.10mmol), 디시클로헥실(2',6'-디메톡시-[1,1'-비페닐]-2-일)포스핀(SPhos; 81.7mg, 0.20mmol)을 질소 분위기 하, 실온 중에서 톨루엔(15mL)에 가하고, 100℃로 12시간 가열 교반을 행하였다. 반응액을 실온까지 식히고, 실리카겔쇼트패스컬럼(전개액/톨루엔)에 통과시켰다. 용매를 감압 하에서 증류 제거한 후, 조생성물을 사용하여 실리카겔 컬럼(전개액/헥산:톨루엔=5:1)을 행하였다. 그 후, 메탄올을 사용하여 세정함으로써, 백색 분말로서  $\text{N}^1, \text{N}^1$ -(1,4-페닐렌)비스(5-클로로-N $^1, \text{N}^3$ -비스(3,5-디메틸페닐)-N $^3$ -(*m*-톨릴)벤젠-1,3-디아민)(4.63g, 수율 97%)을 얻었다.



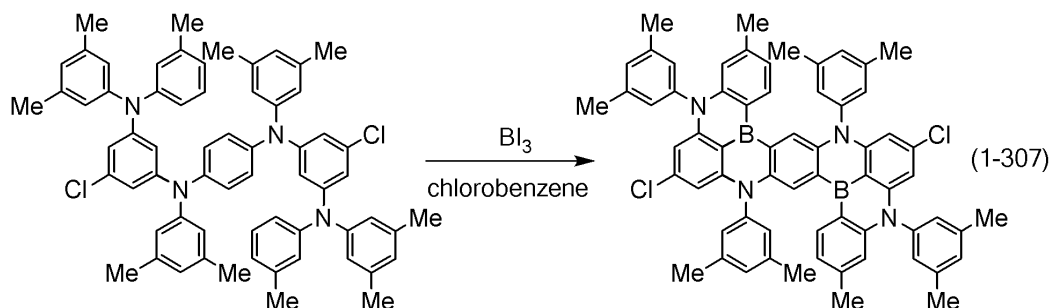
[0836]

[0837]  $^1\text{H-NMR}$  ( $\delta$  ppm in  $\text{CDCl}_3$ , 500 MHz); 2.19(s, 12H), 2.21(s 12H), 2.23(s, 6H), 6.49(d, 4H), 6.60(t, 1H), 6.64

(m, 12H), 6.80 (m, 6H), 6.86(s, 4H), 7.08(t, 2H)

[0838] [제5 단계]

[0839]  $N^1, N^1$ -(1,4-페닐렌)비스(5-클로로- $N^1, N^3$ -비스(3,5-디메틸페닐)- $N^3$ -(m-톨릴)벤젠-1,3-디아민)(95.8mg, 0.10mmol), 3요오드화 붕소(0.314g, 0.80mmol)를 질소 분위기 하, 실온 중에서 클로로벤젠(1.0mL)에 가하고, 90℃로 4시간 가열 교반을 행하였다. 반응액을 실온까지 식힌 후, 인산 완충용액(pH=6.8, 20mL)을 가한 후, 디클로로메탄(20mL)을 사용하여 3회 추출을 행하였다. 유기층을 회수하고, 용매를 증류 제거한 후, 반응 혼합물을 헥산, 아세토니트릴을 사용하여 세정했다. 얻어진 조생성물을, 헥산을 사용하여 60℃로 3시간 교반함으로써, 적색 분말로서 7,17-디클로로-5,9,15,19-테트라키스(3,5-디메틸페닐)-3,13-디메틸-5,9,15,19-테트라하이드로-5,9,15,19-테트라아자-10b,20b-디보라디나프토[3,2,1-de:3',2',1'-op]펜타센(45.7mg, 수율 48%)을 얻었다.



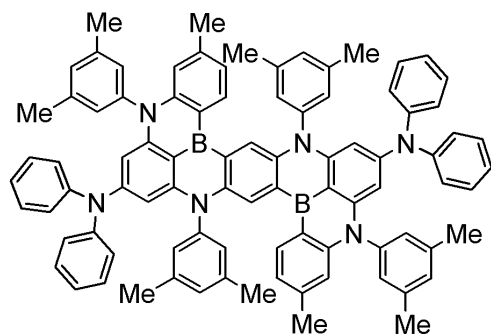
[0840]

[0841]  $^1\text{H-NMR}$ ( $\delta$  ppm in  $\text{CDCl}_3$ , 500 MHz); 2.33(s, 6H), 2.43(s, 12H), 2.51(s, 12H),

[0842] 6.09(s, 2H), 6.32(s, 2H), 6.32(s, 2H), 6.79(d, 2H), 6.92(s, 4H), 7.14(s, 4H), 7.21(s, 2H), 7.36 (2, 2H), 8.05(d, 2H), 8.32(s, 2H)

[0843] 합성예(2)

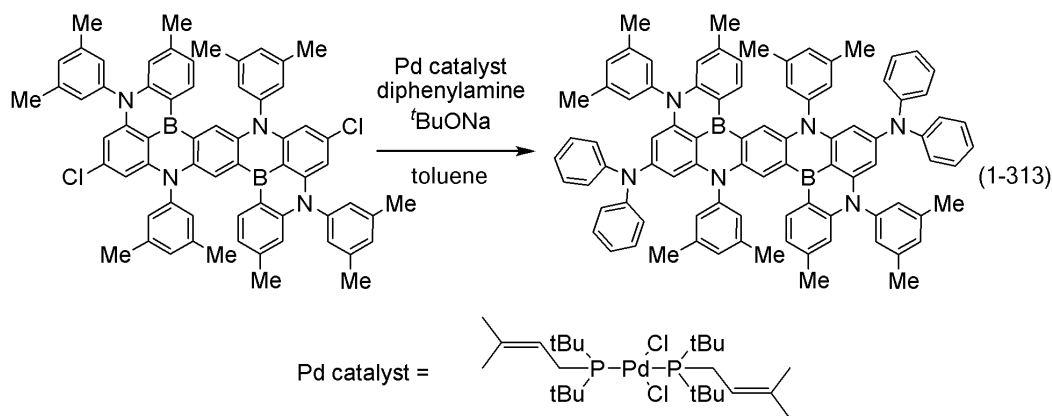
[0844] 화합물(1-313): 5,9,15,19-테트라키스(3,5-디메틸페닐)-3,13-디메틸-5,9,15,19-테트라하이드로-5,9,15,19-테트라아자-10b,20b-디보라디나프토[3,2,1-de:3',2',1'-op]펜타센-7,17-디아민의 합성



(1-313)

[0845]

[0846] 7,17-디클로로-5,9,15,19-테트라키스(3,5-디메틸페닐)-3,13-디메틸-5,9,15,19-테트라하이드로-5,9,15,19-테트라아자-10b,20b-디보라디나프토[3,2,1-de:3',2',1'-op]펜타센(0.292g, 0.30mmol), 비스(디-tert-부틸(3-메틸-2-부테닐)포스핀)디클로로팔라듐(II)(18.1mg, 0.030mmol), 디페닐아민(0.112mg, 0.66mmol)을 10mL 슈렌크관에 가한 후, 아르곤 분위기 하에서 tert-부톡시나트륨(0.174g, 1.8mmol)을 가하였다. 그 후, 질소 분위기 하, 실온 중에서 메시틸렌(1.0mL)을 가하고, 160℃로 20시간 가열 교반을 행하였다. 반응 용액을 실온까지 식힌 후, 용매를 증류 제거하고, 얻어진 조생성물을 헥산, 아세토니트릴을 사용하여 세정했다. 얻어진 고체를 톨루엔을 사용하여 재결정을 행함으로써, 적색 분말로서 5,9,15,19-테트라키스(3,5-디메틸페닐)-3,13-디메틸-5,9,15,19-테트라하이드로-5,9,15,19-테트라아자-10b,20b-디보라디나프토[3,2,1-de:3',2',1'-op]펜타센-7,17-디아민(0.173g, 수율 47%)을 얻었다.

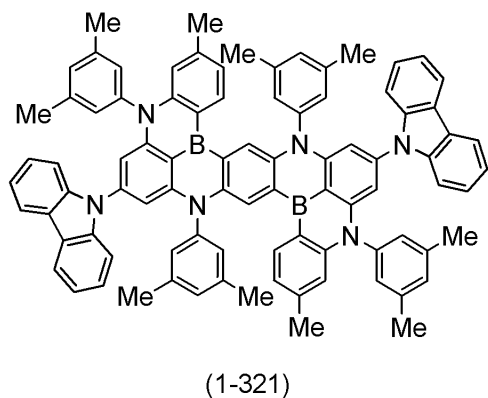


[0847]

[0848]  $^1\text{H-NMR}$  ( $\delta$  ppm in  $\text{CDCl}_3$ , 500 MHz); 2.26(s, 12H), 2.27(s, 6H), 2.36(s, 12H), 5.54(s, 2H), 5.88(s, 2H), 6.51(s, 2H), 6.67(d, 2H), 6.77(s, 4H), 6.92 (m, 6H), 6.98 (m, 12H), 7.08 (m, 10H), 8.01(d, 2H), 8.25(s, 2H)

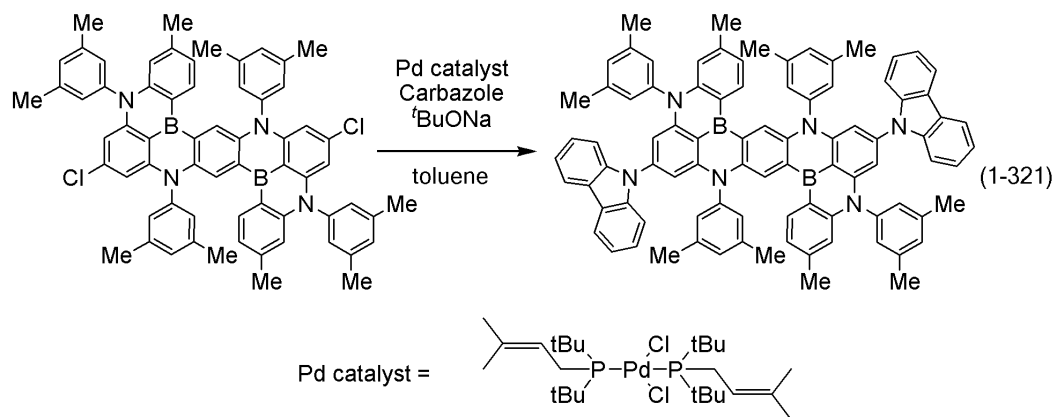
[0849] 합성예 (3)

[0850] 화합물 (1-321): 7,17-디(9H-카르바졸-9-일)-5,9,15,19-테트라키스(3,5-디메틸페닐)-3,13-디메틸-5,9,15,19-테트라하이드로-5,9,15,19-테트라아자-10b,20b-디보라디나프토[3,2,1-de:3',2',1'-op]펜타센의 합성



[0851]

[0852] 7,17-디클로로-5,9,15,19-테트라키스(3,5-디메틸페닐)-3,13-디메틸-5,9,15,19-테트라하이드로-5,9,15,19-테트라아자-10b,20b-디보라디나프토[3,2,1-de:3',2',1'-op]펜타센(0.292g, 0.30mmol), 비스(디-tert-부틸(3-메틸-2-부테닐)포스핀)디클로로팔라듐(II)(18.1mg, 0.030mmol), 카르바졸(0.111mg, 0.66mmol)을 10mL 슈렌크란에 가한 후, 아르곤 분위기 하에서 tert-부톡시나트륨(0.174g, 1.8mmol)을 가하였다. 그 후, 질소 분위기 하, 실온 중에서 메시틸렌(1.0mL)을 가하고, 160°C로 20시간 가열 교반을 행하였다. 반응 용액을 실온까지 식힌 후, 용매를 증류 제거하고, 얻어진 조생성물을 헥산, 아세토니트릴을 사용하여 세정했다. 얻어진 고체를 오르토-디클로로벤젠을 사용하여 재결정을 행함으로써, 적색 분말로서 7,17-디(9H-카르바졸-9-일)-5,9,15,19-테트라키스(3,5-디메틸페닐)-3,13-디메틸-5,9,15,19-테트라하이드로-5,9,15,19-테트라아자-10b,20b-디보라디나프토[3,2,1-de:3',2',1'-op]펜타센(0.241g, 수율 58%)을 얻었다.



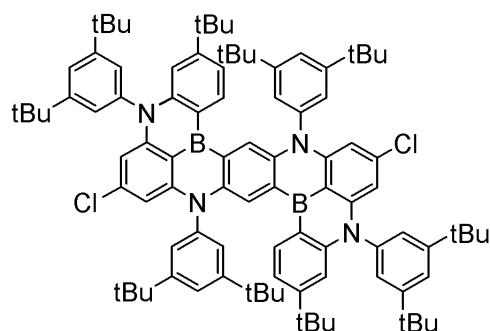
[0853]

[0854]  $^1\text{H-NMR}$  ( $\delta$  ppm in  $\text{CDCl}_3$ , 500 MHz); 2.35(s, 6H), 2.38(s, 12H), 2.49(s, 12H), 6.29(s, 2H), 6.55(s, 2H), 6.68(s, 2H), 6.81(d, 2H), 7.02(s, 4H), 7.07(s, 2H), 7.17 (m, 8H), 7.25 (m, 12H), 7.42 (m, 8H), 8.02(d, 4H), 8.18(d, 2H), 8.51(s, 2H)

[0855] 합성예 (4)

[0856] 화합물 (1-331):

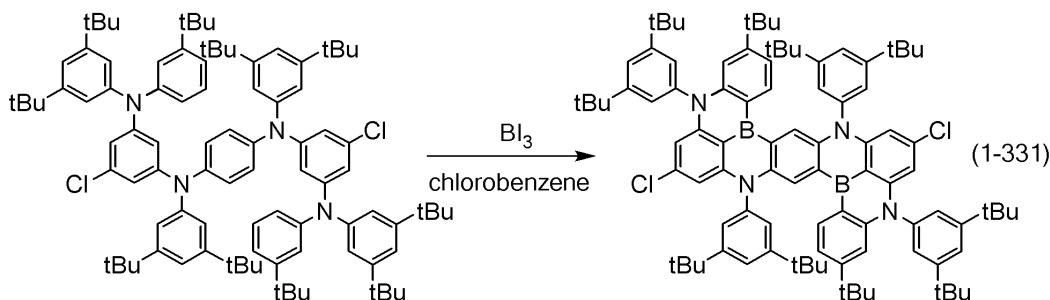
3,13-디-tert-부틸-7,17-디클로로-5,15-비스(3,5-디-tert-부틸페닐)-9,19-비스(3,5-디메틸페닐)-5,9,15,19-테트라하이드로-5,9,15,19-테트라아자-10b,20b-디보라디나프토[3,2,1-de:3',2',1'-op]펜타센



(1-331)

[0857]

[0858]  $\text{N}^1, \text{N}^1$ -(1,4-페닐렌)비스(N8-(3-(tert-부틸)페닐)-5-클로로-(N8-(3,5-디-tert-부틸페닐)-N1(3,5-디메틸페닐)벤젠-1,3-디아민)(0.362g, 0.30mmol)을 10mL 슈렌크관에 가한 후, 아르곤 분위기 하에서 3요오드화 붕소(0.475g, 1.2mmol)를 가하였다. 그 후, 질소 분위기 하, 실온 중에서 클로로벤젠(1.0mL)을 가하고, 80°C로 20시간 가열 교반을 행하였다. 반응 용액을 실온까지 식힌 후, 인산 완충용액(pH=6.8, 20mL)을 가하고, 톨루엔(20mL)을 사용하여 3회 추출을 행하였다. 유기층을 회수하고, 용매를 증류 제거한 후, 얻어진 조생성물을 헥산, 아세트니트릴을 사용하여 세정함으로써, 붉은색 분말로서, 3,13-디-tert-부틸-7,17-디클로로-5,15-비스(3,5-디-tert-부틸페닐)-9,19-비스(3,5-디메틸페닐)-5,9,15,19-테트라하이드로-5,9,15,19-테트라아자-10b,20b-디보라디나프토[3,2,1-de:3',2',1'-op]펜타센(0.199g, 수율 54%)을 얻었다.



[0859]

- [0860]  $^1\text{H-NMR}$ ( $\delta$  ppm in  $\text{CDCl}_3$ , 500 MHz); 1.20(s, 18H), 1.37(s, 36H), 2.52(s, 12H), 6.22(s, 2H) 6.35(s, 2H), 6.63(s, 2H), 7.04(s, 2H), 7.17(s, 8H), 7.36(s, 2H), 7.63(s, 2H), 8.13(s, 2H), 8.35(s, 2H)
- [0861] 원료의 화합물을 적절하게 변경함으로써, 전술한 합성예에 준한 방법으로, 본 발명의 다른 화합물을 합성할 수 있다.
- [0862] 다음으로, 본 발명의 화합물 기초 물성의 평가와 본 발명의 화합물을 사용한 유기 EL 소자의 제작과 평가에 대하여 기재한다.
- [0863] <기초 물성의 평가>
- [0864] 샘플의 준비
- [0865] 평가 대상의 화합물 흡수 특성과 발광 특성(형광과 인광)을 평가하는 경우, 평가 대상의 화합물을 용매에 용해하여 용매 중에서 평가하는 경우와 박막 상태로 평가하는 경우가 있다. 또한, 박막 상태로 평가하는 경우에는, 평가 대상의 화합물의 유기 EL 소자에서의 사용 태양에 따라, 평가 대상의 화합물만을 박막화하고 평가하는 경우와 평가 대상의 화합물을 적절한 매트릭스 재료 중에 분산하여 박막화하여 평가하는 경우가 있다.
- [0866] 매트릭스 재료로서는, 시판하고 있는 PMMA(폴리메틸메타크릴레이트) 등을 사용할 수 있다. PMMA에 분산된 박막 샘플은, 예를 들면, PMMA와 평가 대상의 화합물을 톨루엔 중에서 용해시킨 후, 스핀 코팅법에 의해 석영체의 투명 지지 기판( $10\text{mm} \times 10\text{mm}$ ) 상에 박막을 형성하여 제작할 수 있다.
- [0867] 또한, 매트릭스 재료가 호스트 재료인 경우의 박막 샘플의 제작 방법을 이하에 기재한다. 석영체의 투명 지지 기판( $10\text{mm} \times 10\text{mm} \times 1.0\text{mm}$ )을 시판하고 있는 증착장치(쇼와(昭和)진공(주) 제조)의 기판 홀더에 고정하고, 호스트 재료를 넣은 폴리브덴계 증착용 보트, 도펀트 재료를 넣은 폴리브덴계 증착용 보트를 장착한다. 다음으로, 진공조를  $5 \times 10^{-4}$  Pa까지 감압하고, 호스트 재료가 들어간 증착용 보트와 도펀트 재료가 들어간 증착용 보트를 동시에 가열하여 적절한 막 두께로 되도록 증착하여 호스트 재료와 도펀트 재료의 혼합 박막을 형성한다. 호스트 재료와 도펀트 재료의 설정 질량비에 따라 증착 속도를 제어한다.
- [0868] 흡수 특성과 발광 특성의 평가
- [0869] 상기 샘플의 흡수 스펙트럼 측정은, 자외가시근적외선 분광광도계((주)시마즈제작소(島津製作所), UV-2600)을 사용하여 행하였다. 또한, 상기 샘플의 형광 스펙트럼 또는 인광 스펙트럼의 측정은, 분광형광광도계(히타치하이테크(주) 제조, F-7000)를 사용하여 행하였다.
- [0870] 형광 스펙트럼의 측정에 대해서는, 실온에서 적절한 여기 파장으로 여기하여 포토 루미네선스(luminescence)를 측정했다. 인광 스펙트럼의 측정에 대해서는, 부속의 냉각 유닛을 사용하여, 상기 샘플을 액체 질소에 침지한 상태(온도 77K)로 측정했다. 인광 스펙트럼을 관측하기 위하여, 광학 초퍼를 사용하여 여기광 조사로부터 측정 개시까지의 지연 시간을 조정했다.
- [0871] 화합물(1-307)의 기초 물성의 평가
- [0872] [흡수 특성]
- [0873] 화합물(1-307)을  $2.0 \times 10^{-5}$  M의 농도로 톨루엔에 용해한 샘플을 준비하여 흡수 스펙트럼의 측정을 했다(도 3). 그 결과, 가시광 영역에서 극대 흡수 파장은 522nm였다.
- [0874] [발광 특성]
- [0875] 형광 스펙트럼의 측정은, 화합물(1-307)을  $2.0 \times 10^{-5}$  M의 농도로 톨루엔에 용해한 샘플을 준비하고, 여기 파장 470nm로 여기하여 포토 루미네선스를 측정하였다(도 3). 그 결과, 극대 발광 파장은 533nm이며, 반값폭은 18nm이며, 색도는 CIE색도(x, y)=(0.314, 0.666)이었다. 또한, 동일한 용액을 준비하고, 여기 파장 470nm로 여기하여 형광 양자 수율을 측정한 결과, 94.5%로 높은 값이었다.
- [0876] 화합물(1-313)의 기초 물성의 평가
- [0877] [흡수 특성]
- [0878] 화합물(1-313)을  $2.0 \times 10^{-5}$  M의 농도로 톨루엔에 용해한 샘플을 준비하여 흡수 스펙트럼의 측정을 했다(도 4). 그

결과, 가시광 영역에서 극대 흡수 파장은 528nm였다.

[발광 특성]

형광 스펙트럼의 측정은, 화합물(1-313)을  $2.0 \times 10^{-5}$  M의 농도로 톨루엔에 용해한 샘플을 준비하고, 여기 파장 470nm로 여기하여 포토 루미네선스를 측정하였다(도 4). 그 결과, 극대 발광 파장은 541nm이며, 반값폭은 21nm이며, 색도는 CIE색도(x, y)=(0.347, 0.642)였다. 또한, 동일한 용액을 준비하고, 여기 파장 470nm로 여기하여 형광 양자 수율을 측정한 결과, 98.7%로 높은 값이었다.

화합물(1-321)의 기초 물성의 평가

[흡수 특성]

화합물(1-321)을  $2.0 \times 10^{-5}$  M의 농도로 톨루엔에 용해한 샘플을 준비하여 흡수 스펙트럼의 측정을 했다(도 5). 그 결과, 가시광 영역에서 극대 흡수 파장은 530nm였다.

[발광 특성]

형광 스펙트럼의 측정은, 화합물(1-321)을  $2.0 \times 10^{-5}$  M의 농도로 톨루엔에 용해한 샘플을 준비하고, 여기 파장 470nm로 여기하여 포토 루미네선스를 측정하였다(도 5). 그 결과, 극대 발광 파장은 542nm이며, 반값폭은 18nm이며, 색도는 CIE색도(x, y)=(0.362, 0.628)이었다. 또한, 동일한 용액을 준비하고, 여기 파장 470nm로 여기하여 형광 양자 수율을 측정한 결과, 78.4%였다.

비교 화합물 1(C545T)의 기초 물성의 평가

화합물(C545T)은 Lumtec사(대만)로부터 구입하였고 정제하지 않고 사용했다.

[흡수 특성]

화합물(C545T)을  $2.0 \times 10^{-5}$  M의 농도로 톨루엔에 용해한 샘플을 준비하여 흡수 스펙트럼의 측정을 했다. 그 결과, 가시광 영역에서 극대 흡수 파장은 473nm였다.

[발광 특성]

형광 스펙트럼의 측정은, 화합물(C545T)을  $2.0 \times 10^{-5}$  M의 농도로 톨루엔에 용해한 샘플을 준비하고, 여기 파장 470nm로 여기하여 포토 루미네선스를 측정했다. 그 결과, 극대 발광 파장은 506nm이며, 반값폭은 58nm였다.

비교 화합물 2(BA-NPB)의 기초 물성의 평가

화합물(BA-NPB)은 Lumtec사(대만)로부터 구입하였고 정제하지 않고 사용했다.

[흡수 특성]

화합물(BA-NPB)을  $2.0 \times 10^{-5}$  M의 농도로 톨루엔에 용해한 샘플을 준비하여 흡수 스펙트럼의 측정을 했다. 그 결과, 가시광 영역에서 극대 흡수 파장은 441nm였다.

[발광 특성]

형광 스펙트럼의 측정은, 화합물(BA-NPB)을  $2.0 \times 10^{-5}$  M의 농도로 톨루엔에 용해한 샘플을 준비하고, 여기 파장 441nm로 여기하여 포토 루미네선스를 측정했다. 그 결과, 극대 발광 파장은 517nm이며, 반값폭은 57nm였다.

비교 화합물 3(Ir(ppy)<sub>3</sub>)의 기초 물성의 평가

화합물(Ir(ppy)<sub>3</sub>)은 Lumtec사(대만)로부터 구입하였고 정제하지 않고 사용했다.

[흡수 특성]

화합물(Ir(ppy)<sub>3</sub>)을  $2.0 \times 10^{-5}$  M의 농도로 톨루엔에 용해한 샘플을 준비하여 흡수 스펙트럼의 측정을 했다. 그 결과, 가시광 영역에서 극대 흡수 파장은 350nm였다.

[발광 특성]



[0903] 인광 스펙트럼의 측정은, 화합물(Ir(ppy)<sub>3</sub>)을  $2.0 \times 10^{-5}$  M의 농도로 톨루엔에 용해한 샘플을 준비하고, 여기 파장 230nm로 여기하여 포토 루미네센스를 측정했다. 그 결과, 극대 발광 파장은 517nm이며, 반값폭은 66nm였다.

[0904] 유기 EL 소자의 제작

[0905] 실시예 및 비교예에 따른 유기 EL 소자를 제작하고, 전압을 인가하여 전류 밀도, 휘도, 색도 및 외부 양자 효율 등을 측정했다.

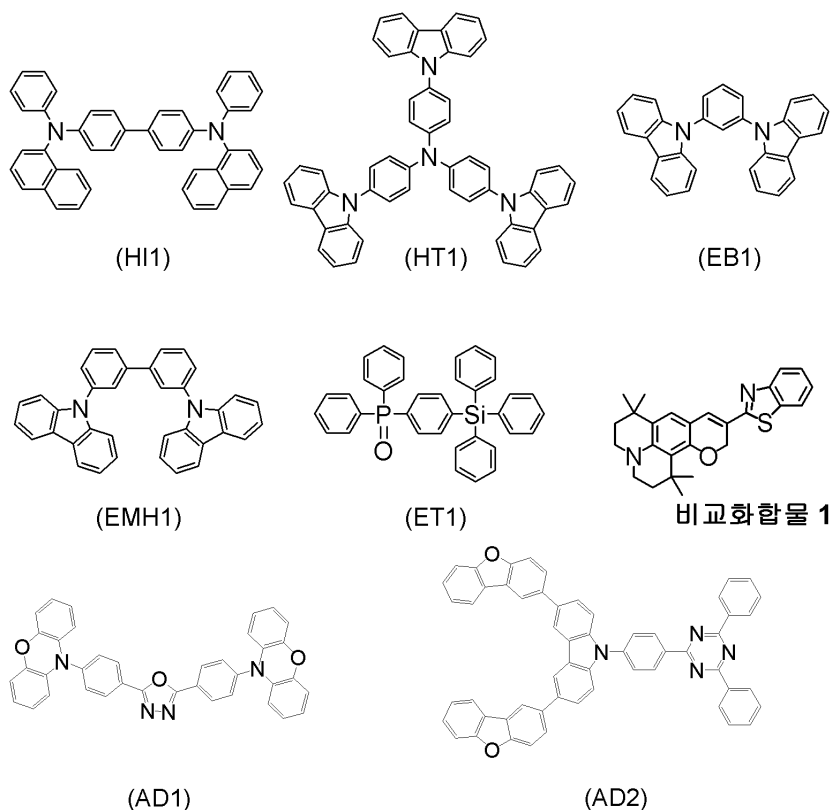
[0906] [표 1] (유기 EL 소자의 구성 A)

	정공 주입층 (40nm)	정공 수송층 (15nm)	전자 저지층 (15nm)	발광층 (20nm)			전자 수송층 (30nm)	음극 (1nm/ 100nm)
				호스트	어시스팅 도펀트	에미팅 도펀트		
실시예 1	HI1	HT1	EB1	EMH1	화합물 (AD1)	화합물 (1-307)	ET1	LiF/AI
비교예 1	HI1	HT1	EB1	EMH1	화합물 (AD 1)	없음	ET1	LiF/AI
비교예 2	HI1	HT1	EB1	EMH1	화합물 (AD 1)	비교화합물 1	ET1	LiF/AI
실시예 2	HI1	HT1	EB1	EMH 1	화합물 (AD 2)	화합물 (1-307)	ET1	LiF/AI
비교예 3	HI1	HT1	EB1	EMH1	화합물 (AD 2)	없음	ET1	LiF/AI

[0907]

[0908] 표 1에 있어서, 「HI1」은 N,N'-디페닐-N,N'-디나프틸-4,4'-디아미노비페닐이며, 「HT1」은 4,4',4"-트리스(N-카르바졸릴)트리페닐아민이며, 「EB1」은 1,3-비스(N-카르바졸릴)벤젠이며, 「EMH1」은 3,3'-비스(N-카르바졸릴)-1,1'-비페닐이며, 「ET1」은 디페닐[4-(트리페닐실릴)페닐]포스핀옥사이드이다.

[0909] 표 1에 있어서, 「AD1」은 2,5-비스-(4-(10H-페녹사진-10-일)페닐)-1,3,4-옥사디아졸이며, 「AD2」은 3,6-비스-(디벤조[b,d]퓨란-2-일)-9-(4-(4,6-디페닐-1,3,5-트리아진-2-일)페닐)-9H-카르바졸이며, 「AD1」, 「AD2」, 및 「비교 화합물1」과 함께 이하에 화학 구조를 나타낸다.



[0910]

[0911]

<실시예 1>

[0912]

<구성 A: 호스트 화합물을 EMH1, 어시스팅 도펀트를 AD1, 에미팅 도펀트를 화합물(1-307)로 한 소자>

[0913]

스퍼터링에 의해 200nm의 두께로 성막한 ITO를 50nm까지 연마한, 26mm×28mm×0.7mm의 유리 기판((주)오프토사이언스 제조)을 투명 지지 기판으로 했다. 이 투명 지지 기판을 시판하고 있는 증착장치(조슈(長州)산업(주) 제조)의 기판 홀더에 고정하고, HI1, HT1, EB1, EMH1, AD1, 화합물(1-307), 및 ET1을 각각 넣은 탄탈제 증착용 보트, LiF 및 알루미늄을 각각 넣은 질화 알루미늄제 증착용 보트를 장착했다.

[0914]

투명 지지 기판의 ITO막 위에 순차적으로, 하기 각 층을 증착했다. 진공조를  $5 \times 10^{-4}$  Pa까지 감압하고, 먼저, HI1을 가열하여 막 두께 40nm로 되도록 증착하고, 다음으로, HT1을 가열하여 막 두께 15nm로 되도록 증착하여 2층으로 이루어지는 정공주입수송층을 형성했다. 다음으로, EB1을 가열하여 막 두께 15nm로 되도록 증착하여 전자저지층을 형성했다. 다음으로, 호스트로서 EMH1, 어시스팅 도펀트로서 AD1 및 에미팅 도펀트로서 화합물(1-307)을 동시에 가열하여 막 두께 20nm로 되도록 공증착하여 발광층을 형성했다. 호스트, 어시스팅 도펀트 및 에미팅 도펀트의 질량비가 약 90:9:1로 되도록 증착 속도를 조절했다. 다음으로, ET1을 가열하여 30nm로 되도록 증착하여 전자수송층을 형성했다. 이상의 각 층의 증착 속도는 0.01~1 nm/초로 했다. 그 후, LiF를 가열하여 막 두께 1nm로 되도록 0.01~0.1 nm/초의 증착 속도로 증착하고, 이어서, 알루미늄을 가열하여 막 두께 100nm로 되도록 증착하여 음극을 형성하고, 유기 EL 소자를 얻었다. 이 때, 알루미늄의 증착 속도는 1nm~10nm로 되도록 조절했다.

[0915]

ITO 전극을 양극, 알루미늄 전극을 음극으로 하여 직류 전압을 인가하고, 휘도, 색도 및 외부 양자 효율을 측정했다. 100cd/m<sup>2</sup> 발광 시의 발광 스펙트럼은 피크 파장 522nm 및 반값폭 18nm이며, 녹색의 발광이 관찰되었다. 또한, 100cd/m<sup>2</sup> 발광 시의 외부 양자 효율은 26.0%로서, 높은 양자 효율이었다.

[0916]

<비교예 1>

[0917]

<구성 A: 에미팅 도펀트를 사용하지 않고, 어시스팅 도펀트를 AD1로 한 소자>

[0918]

에미팅 도펀트를 사용하지 않고, 호스트와 어시스팅 도펀트의 질량비를 90:10로 변경한 점 이외에는 실시예 1과 동일한 수순 및 구성으로 EL 소자를 얻었다. ITO 전극을 양극, 알루미늄 전극을 음극으로 하여 직류 전압을 인가하고, 휘도, 색도 및 외부 양자 효율을 측정했다. 100cd/m<sup>2</sup> 발광 시의 발광 스펙트럼은 피크 파장 522nm 및

반값폭 72nm이며, 녹색의 발광이 관찰되었다. 또한,  $100\text{cd/m}^2$  발광 시의 외부 양자 효율은 10.2%로서, 낮은 양자 효율이었다.

[0919] <비교예 2>

[0920] <구성 A: 호스트 화합물을 EMH1, 어시스팅 도펀트를 AD1, 에미팅 도펀트를 비교 화합물 1로 한 소자>

[0921] 에미팅 도펀트를 비교 화합물 1로 변경한 점 이외에는 실시예 1과 동일한 수순 및 구성으로 EL 소자를 얻었다. ITO 전극을 양극, 알루미늄 전극을 음극으로 하여 직류 전압을 인가하고, 휘도, 색도 및 외부 양자 효율을 측정했다.  $100\text{cd/m}^2$  발광 시의 발광 스펙트럼은 피크 파장 520nm 및 반값폭 55nm이며, 녹색의 발광이 관찰되었다.

[0922] <실시예 2>

[0923] <구성 A: 호스트 화합물을 EMH1, 어시스팅 도펀트를 AD2, 에미팅 도펀트를 화합물(1-307)로 한 소자>

[0924] 어시스팅 도펀트를 AD2로 변경한 점 이외에는 실시예 1과 동일한 수순 및 구성으로 EL 소자를 얻었다. ITO 전극을 양극, 알루미늄 전극을 음극으로 하여 직류 전압을 인가하고, 휘도, 색도 및 외부 양자 효율을 측정했다.  $100\text{cd/m}^2$  발광 시의 발광 스펙트럼은 피크 파장 522nm 및 반값폭 18nm이며, 녹색의 발광이 관찰되었다. 또한,  $100\text{cd/m}^2$  발광 시의 외부 양자 효율은 24.0%로서, 높은 양자 효율이었다.

[0925] <비교예 3>

[0926] <구성 A: 에미팅 도펀트를 사용하지 않고, 어시스팅 도펀트를 AD2로 한 소자>

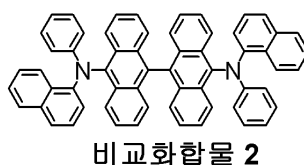
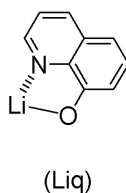
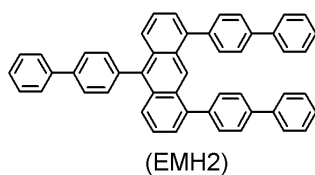
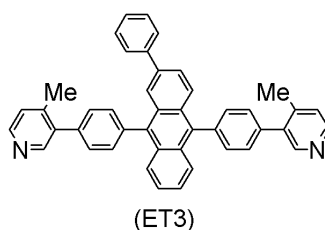
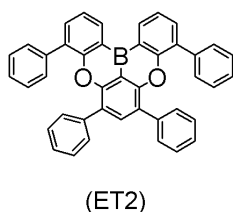
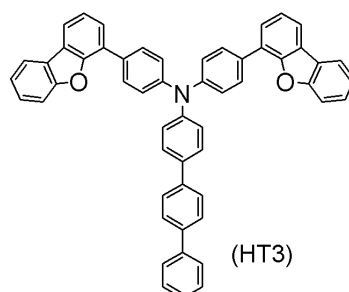
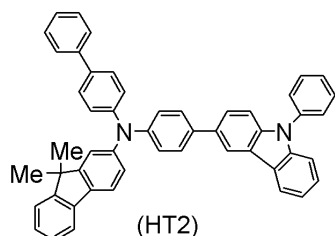
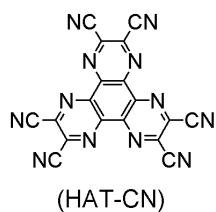
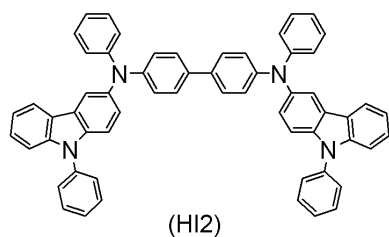
[0927] 에미팅 도펀트를 사용하지 않고, 호스트와 어시스팅 도펀트의 질량비를 90:10로 변경한 점 이외에는 실시예 2와 동일한 수순 및 구성으로 EL 소자를 얻었다. ITO 전극을 양극, 알루미늄 전극을 음극으로 하여 직류 전압을 인가하고, 휘도, 색도 및 외부 양자 효율을 측정했다.  $100\text{cd/m}^2$  발광 시의 발광 스펙트럼은 피크 파장 528nm 및 반값폭 60nm이며, 녹색의 발광이 관찰되었다. 또한,  $100\text{cd/m}^2$  발광 시의 외부 양자 효율은 9.8%로서, 낮은 양자 효율이었다.

[0928] [표 2] (유기 EL 소자의 구성 B)

	정공주입층		정공수송층		발광층 25nm		전자수송층		음극 1nm/ 100nm
	1 40nm	2 5nm	1 15nm	2 10nm	호스트	도펀트	1 5nm	2 25nm	
실시예 3	HI2	HAT-CN	HT2	HT3	EMH2	화합물 (1-307)	ET2	ET3 + Liq	Liq/ MgAg
실시예 4	HI2	HAT-CN	HT2	HT3	EMH2	화합물 (1-313)	ET2	ET3 + Liq	Liq/ MgAg
실시예 5	HI2	HAT-CN	HT2	HT3	EMH2	화합물 (1-321)	ET2	ET3 + Liq	Liq/ MgAg
비교예 4	HI2	HAT-CN	HT2	HT3	EMH2	비교 화합물 1	ET2	ET3 + Liq	Liq/ MgAg
비교예 5	HI2	HAT-CN	HT2	HT3	EMH2	비교 화합물 2	ET2	ET3 + Liq	Liq/ MgAg

[0929]

[0930] 표 2에 있어서, 「HI2」는  $\text{N}^4, \text{N}^{4'}$ -디페닐- $\text{N}^4, \text{N}^{4'}$ -비스(9-페닐-9H-카르바졸-3-일)-[1,1'-비페닐]-4,4'-디아민이며, 「HAT-CN」은 1,4,5,8,9, 12-헥사아자트리페닐렌헥사카르보니트릴이며, 「HT2」는 N-([1,1'-비페닐]-4-일)-9,9-디메틸-N-(4-(9-페닐-9H-카르바졸-3-일)페닐)-9H-플루오렌-2-아민이며, 「HT3」는 N,N-비스(4-(디벤조[b,d]퓨란-4-일)페닐)-[1,1':4',1"-터페닐]-4-아민이며, 「EMH2」는 1,8,10-트리([1,1'-비페닐]-4-일)안트라센이며, 「ET2」는 4,6,8,10-테트라페닐[1,4]벤조사블리노[2,3,4-k]페녹사블리닌이며, 「ET3」는 3,3'-((2-페닐안트라센-9,10-디일)비스(4,1-페닐렌))비스(4-메틸피리딘)이며, 「Liq」, 「비교 화합물 1」, 및 「비교 화합물 2」과 함께 이하에 화학 구조를 나타낸다.



[0931]

[0932]

<실시예 3>

[0933]

<구성 B: 화합물(1-307)을 도펀트에, EMH2을 호스트에 사용한 소자>

[0934]

스퍼터링에 의해 200nm의 두께로 성막한 ITO를 120nm까지 연마한, 26mm×28mm×0.7mm의 유리 기판((주)오프토사이언스 제조)을 투명 지지 기판으로 했다. 이 투명 지지 기판을 시판하고 있는 증착장치(조슈산업(주) 제조)의 기판 홀더에 고정하고, HI2, HT2, HAT-CN, EB2, EMH2, 화합물(1-307), Liq, ET2 및 ET3를 각각 넣은 탄탈제 증착용 보트, LiF 및 알루미늄을 각각 넣은 질화 알루미늄제 증착용 보트를 장착했다.

[0935]

투명 지지 기판의 ITO막 위에 순차적으로, 하기 각 층을 형성했다. 진공조를  $5 \times 10^{-4}$  Pa까지 감압하고, 먼저, HI2을 가열하여 막 두께 40nm로 되도록 증착하고, 다음으로, HAT-CN을 가열하여 막 두께 5nm로 되도록 증착하여 정공수송층을 형성했다. 다음으로, HT2를 가열하여 막 두께 15nm로 되도록 증착하고, 다음으로, HT3를 가열하여 막 두께 10nm로 되도록 증착하여 정공수송층을 형성했다. 다음으로, 호스트로서 EMH2, 도펀트로서 화합물(1-307)을 동시에 가열하여 막 두께 25nm로 되도록 공증착하여 발광층을 형성했다. 호스트 및 도펀트의 질량비가 약 98:2로 되도록 증착 속도를 조절했다. 다음으로, ET2를 가열하여 5nm로 되도록 증착하고, 다음으로, ET3와 Liq를 동시에 가열하여 막 두께 25nm로 되도록 공증착하여 전자수송층을 형성했다. ET3 및 Liq의 질량비가 50:50으로 되도록 증착 속도를 조정했다. 이상의 각 층의 증착 속도는 0.01~1 nm/초로 했다. 그 후, Liq를 가

열하여 막 두께 1nm로 되도록 0.01~0.1 nm/초의 증착 속도로 증착하고, 이어서, 마그네슘과 은을 동시에 가열하여 막 두께 100nm로 되도록 증착하여 음극을 형성하고, 유기 EL 소자를 얻었다. 이 때, 마그네슘과 은의 질량비가 90:10으로 되도록 증착 속도를 조정하고, 증착 속도는 0.1nm~1nm로 되도록 조절했다.

[0936] ITO 전극을 양극, 마그네슘 은 전극을 음극으로 하여 직류 전압을 인가하고, 휘도, 색도 및 외부 양자 효율을 측정했다. 100cd/m<sup>2</sup> 발광 시의 발광 스펙트럼은 피크 파장 522nm 및 반값폭 17nm이며, 녹색의 발광이 관찰되었다. 또한, 1000cd/m<sup>2</sup> 발광 시의 외부 양자 효율은 7.0%였다. 특히 발광 스펙트럼의 반값폭이 작고 깊은 녹색을 달성할 수 있다.

[0937] <실시예 4>

[0938] <구성 B: 화합물(1-313)을 도펀트로 한 소자>

[0939] 도펀트를 변경한 점 이외에는 실시예 3과 동일한 수순 및 구성으로 EL 소자를 얻었다. 그 결과, 1000cd/m<sup>2</sup> 발광 시 외부 양자 효율은 7.2%, 발광 스펙트럼은 극대 발광 파장은 518nm, 반값폭은 20nm가 되었다. 특히 발광 스펙트럼의 반값폭이 작고 깊은 녹색을 달성할 수 있다.

[0940] <실시예 5>

[0941] <구성 B: 화합물(1-321)을 도펀트로 한 소자>

[0942] 도펀트를 변경한 점 이외에는 실시예 3과 동일한 수순 및 구성으로 EL 소자를 얻었다. 그 결과, 1000cd/m<sup>2</sup> 발광 시 외부 양자 효율은 6.8%, 발광 스펙트럼은 극대 발광 파장은 532nm, 반값폭은 19nm가 되었다. 특히 발광 스펙트럼의 반값폭이 작고 깊은 녹색을 달성할 수 있다.

[0943] <비교예 4>

[0944] <구성 B: 비교 화합물 1을 도펀트로 한 소자>

[0945] 도펀트를 변경한 점 이외에는 실시예 3과 동일한 수순 및 구성으로 EL 소자를 얻었다. 그 결과, 1000cd/m<sup>2</sup> 발광 시 외부 양자 효율은 6.6%, 발광 스펙트럼은 극대 발광 파장은 518nm, 반값폭은 60nm가 되었다. 화합물(1-313)와 비교하여 외부 양자 효율은 동등하지만, 반값폭이 넓은 결과가 되었다.

[0946] <비교예 5>

[0947] <구성 B: 비교 화합물 2을 도펀트로 한 소자>

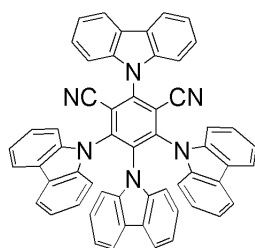
[0948] 도펀트를 변경한 점 이외에는 실시예 3과 동일한 수순 및 구성으로 EL 소자를 얻었다. 그 결과, 1000cd/m<sup>2</sup> 발광 시 외부 양자 효율은 6.8%, 발광 스펙트럼은 극대 발광 파장은 527nm, 반값폭은 58nm가 되었다. 화합물(1-321)와 비교하여 외부 양자 효율은 동등하지만, 반값폭이 넓은 결과가 되었다.

[0949] [표 3] (유기 EL 소자의 구성 A)

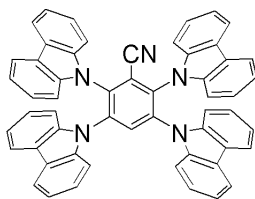
	정공 주입층 (40nm)	정공 수송층 (15nm)	전자 저지층 (15nm)	발광층 (20nm)			전자 수송층 (30nm)	음극 (1nm/ 100nm)
				호스트	어시스팅 도펀트	에미팅 도펀트		
실시예 6	HI1	HT1	EB1	EMH1	화합물 (AD3)	화합물 (1-313)	ET1	LiF/AI
실시예 7	HI1	HT1	EB1	EMH 1	화합물 (AD4)	화합물 (1-313)	ET1	LiF/AI
실시예 8	HI1	HT1	EB1	EMH 1	화합물 (AD5)	화합물 (1-313)	ET1	LiF/AI
실시예 9	HI1	HT1	EB1	EMH 1	화합물 (AD6)	화합물 (1-313)	ET1	LiF/AI
실시예 10	HI1	HT1	EB1	EMH 1	화합물 (AD7)	화합물 (1-313)	ET1	LiF/AI
실시예 11	HI1	HT1	EB1	EMH 1	화합물 (AD8)	화합물 (1-313)	ET1	LiF/AI
실시예 12	HI1	HT1	EB1	EMH3	화합물 (AD3)	화합물 (1-313)	ET1	LiF/AI
실시예 13	HI1	HT1	EB1	EMH4	화합물 (AD3)	화합물 (1-313)	ET1	LiF/AI
실시예 14	HI1	HT1	EB1	EMH5	화합물 (AD3)	화합물 (1-313)	ET1	LiF/AI

[0950]

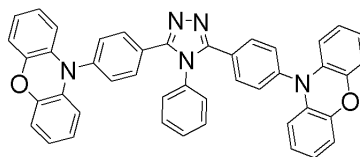
[0951] 표 3에 있어서, 「AD3」, 「AD4」, 「AD5」, 「AD6」, 「AD7」, 「AD8」, 「EMH3」, 「EMH4」 및 「EMH5」와 함께 이하에 화학 구조를 나타낸다.



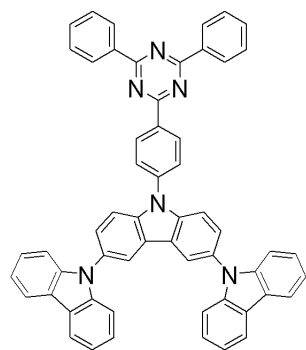
(AD3)



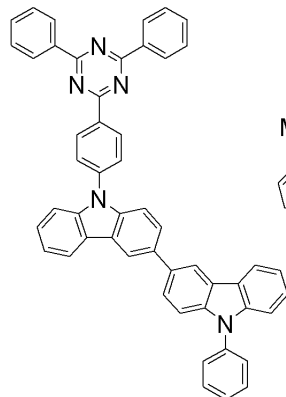
(AD4)



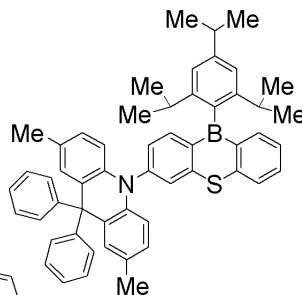
(AD5)



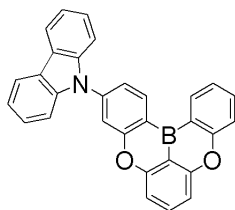
(AD6)



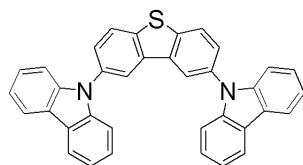
(AD7)



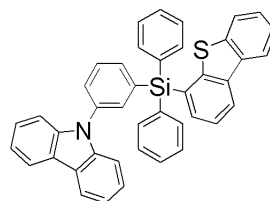
(AD8)



(EMH3)



(EMH4)



(EMH5)

[0952]

[0953]

<실시예 6>

[0954]

<구성 A: 호스트 화합물을 EMH1, 어시스팅 도펀트를 AD3, 에미팅 도펀트를 화합물(1-313)로 한 소자>

[0955]

스퍼터링에 의해 200nm의 두께로 성막한 ITO를 50nm까지 연마한, 26mm×28mm×0.7mm의 유리 기판((주)오프토사이언스 제조)을 투명 지지 기판으로 했다. 이 투명 지지 기판을 시판하고 있는 증착장치(조슈산업(주) 제조)의 기판 홀더에 고정하고, HI1, HT1, EB1, EMH1, AD3, 화합물(1-313), 및 ET1을 각각 넣은 탄탈제 증착용 보트, LiF 및 알루미늄을 각각 넣은 질화 알루미늄제 증착용 보트를 장착했다.

[0956]

투명 지지 기판의 ITO막 위에 순차적으로, 하기 각 층을 증착했다. 진공조를  $5 \times 10^{-4}$  Pa까지 감압하고, 먼저, HI1을 가열하여 막 두께 40nm로 되도록 증착하고, 다음으로, HT1을 가열하여 막 두께 15nm로 되도록 증착하여 2층으로 이루어지는 정공 주입 수송층을 형성했다. 다음으로, EB1을 가열하여 막 두께 15nm로 되도록 증착하여 전자저지층을 형성했다. 다음으로, 호스트로서 EMH1, 어시스팅 도펀트로서 AD3 및 에미팅 도펀트로서 화합물(1-313)을 동시에 가열하여 막 두께 20nm로 되도록 공증착하여 발광층을 형성했다. 호스트, 어시스팅 도펀트 및 에미팅 도펀트의 질량비가 약 90:9:1로 되도록 증착 속도를 조절했다. 다음으로, ET1을 가열하여 30nm로 되도록 증착하여 전자수송층을 형성했다. 이상의 각 층의 증착 속도는 0.01~1 nm/초로 했다. 그 후, LiF를 가열하여 막 두께 1nm로 되도록 0.01~0.1 nm/초의 증착 속도로 증착하고, 이어서, 알루미늄을 가열하여 막 두께 100nm로 되도록 증착하여 음극을 형성하고, 유기 EL 소자를 얻었다. 이 때, 알루미늄의 증착 속도는 1nm~10nm로 되도록 조절했다.

[0957]

ITO 전극을 양극, 알루미늄 전극을 음극으로 하여 직류 전압을 인가하고, 휘도, 색도 및 외부 양자 효율을 측정했다. 100cd/m<sup>2</sup> 발광 시의 발광 스펙트럼은 피크 파장 520nm 및 반값폭 19nm이며, 녹색의 발광이 관찰되었다. 또한, 100cd/m<sup>2</sup> 발광 시의 외부 양자 효율은 27.0%로서, 높은 양자 효율이었다.



- [0958] <실시예 7>
- [0959] <구성 A: 호스트 화합물을 EMH1, 어시스팅 도펀트를 AD4, 에미팅 도펀트를 화합물(1-313)로 한 소자>
- [0960] 어시스팅 도펀트를 AD4로 변경한 점 이외에는 실시예 6과 동일한 수순 및 구성으로 EL 소자를 얻었다. ITO 전극을 양극, 알루미늄 전극을 음극으로 하여 직류 전압을 인가하고, 휘도, 색도 및 외부 양자 효율을 측정했다.  $100\text{cd/m}^2$  발광 시의 발광 스펙트럼은 피크 파장 522nm 및 반값폭 20nm이며, 녹색의 발광이 관찰되었다. 또한,  $100\text{cd/m}^2$  발광 시의 외부 양자 효율은 24.4%로서, 높은 양자 효율이었다.
- [0961] <실시예 8>
- [0962] <구성 A: 호스트 화합물을 EMH1, 어시스팅 도펀트를 AD5, 에미팅 도펀트를 화합물(1-313)로 한 소자>
- [0963] 어시스팅 도펀트를 AD5로 변경한 점 이외에는 실시예 6과 동일한 수순 및 구성으로 EL 소자를 얻었다. ITO 전극을 양극, 알루미늄 전극을 음극으로 하여 직류 전압을 인가하고, 휘도, 색도 및 외부 양자 효율을 측정했다.  $100\text{cd/m}^2$  발광 시의 발광 스펙트럼은 피크 파장 518nm 및 반값폭 17nm이며, 녹색의 발광이 관찰되었다. 또한,  $100\text{cd/m}^2$  발광 시의 외부 양자 효율은 22.3%로서, 높은 양자 효율이었다.
- [0964] <실시예 9>
- [0965] <구성 A: 호스트 화합물을 EMH1, 어시스팅 도펀트를 AD6, 에미팅 도펀트를 화합물(1-313)로 한 소자>
- [0966] 어시스팅 도펀트를 AD6로 변경한 점 이외에는 실시예 6과 동일한 수순 및 구성으로 EL 소자를 얻었다. ITO 전극을 양극, 알루미늄 전극을 음극으로 하여 직류 전압을 인가하고, 휘도, 색도 및 외부 양자 효율을 측정했다.  $100\text{cd/m}^2$  발광 시의 발광 스펙트럼은 피크 파장 524nm 및 반값폭 22nm이며, 녹색의 발광이 관찰되었다. 또한,  $100\text{cd/m}^2$  발광 시의 외부 양자 효율은 23.5%로서, 높은 양자 효율이었다.
- [0967] <실시예 10>
- [0968] <구성 A: 호스트 화합물을 EMH1, 어시스팅 도펀트를 AD7, 에미팅 도펀트를 화합물(1-313)로 한 소자>
- [0969] 어시스팅 도펀트를 AD7로 변경한 점 이외에는 실시예 6과 동일한 수순 및 구성으로 EL 소자를 얻었다. ITO 전극을 양극, 알루미늄 전극을 음극으로 하여 직류 전압을 인가하고, 휘도, 색도 및 외부 양자 효율을 측정했다.  $100\text{cd/m}^2$  발광 시의 발광 스펙트럼은 피크 파장 525nm 및 반값폭 24nm이며, 녹색의 발광이 관찰되었다. 또한,  $100\text{cd/m}^2$  발광 시의 외부 양자 효율은 22.0%로서, 높은 양자 효율이었다.
- [0970] <실시예 11>
- [0971] <구성 A: 호스트 화합물을 EMH1, 어시스팅 도펀트를 AD8, 에미팅 도펀트를 화합물(1-313)로 한 소자>
- [0972] 어시스팅 도펀트를 AD8로 변경한 점 이외에는 실시예 6과 동일한 수순 및 구성으로 EL 소자를 얻었다. ITO 전극을 양극, 알루미늄 전극을 음극으로 하여 직류 전압을 인가하고, 휘도, 색도 및 외부 양자 효율을 측정했다.  $100\text{cd/m}^2$  발광 시의 발광 스펙트럼은 피크 파장 520nm 및 반값폭 20nm이며, 녹색의 발광이 관찰되었다. 또한,  $100\text{cd/m}^2$  발광 시의 외부 양자 효율은 22.6%로서, 높은 양자 효율이었다.
- [0973] <실시예 12>
- [0974] <구성 A: 호스트 화합물을 EMH3, 어시스팅 도펀트를 AD3, 에미팅 도펀트를 화합물(1-313)로 한 소자>
- [0975] 호스트 화합물을 EMH3로 변경한 점 이외에는 실시예 6과 동일한 수순 및 구성으로 EL 소자를 얻었다. ITO 전극을 양극, 알루미늄 전극을 음극으로 하여 직류 전압을 인가하고, 휘도, 색도 및 외부 양자 효율을 측정했다.  $100\text{cd/m}^2$  발광 시의 발광 스펙트럼은 피크 파장 523nm 및 반값폭 25nm이며, 녹색의 발광이 관찰되었다. 또한,  $100\text{cd/m}^2$  발광 시의 외부 양자 효율은 19.0%로서, 높은 양자 효율이었다.
- [0976] <실시예 13>
- [0977] <구성 A: 호스트 화합물을 EMH4, 어시스팅 도펀트를 AD3, 에미팅 도펀트를 화합물(1-313)로 한 소자>

[0978] 호스트 화합물을 EMH4로 변경한 점 이외에는 실시예 6과 동일한 수순 및 구성으로 EL 소자를 얻었다. ITO 전극을 양극, 알루미늄 전극을 음극으로 하여 직류 전압을 인가하고, 휘도, 색도 및 외부 양자 효율을 측정했다. 100cd/m<sup>2</sup> 발광 시의 발광 스펙트럼은 피크 파장 523nm 및 반값폭 22nm이며, 녹색의 발광이 관찰되었다. 또한, 100cd/m<sup>2</sup> 발광 시의 외부 양자 효율은 23.2%로서, 높은 양자 효율이었다.

[0979] <실시예 14>

[0980] <구성 A: 호스트 화합물을 EMH5, 어시스팅 도펀트를 AD3, 에미팅 도펀트를 화합물(1-313)로 한 소자>

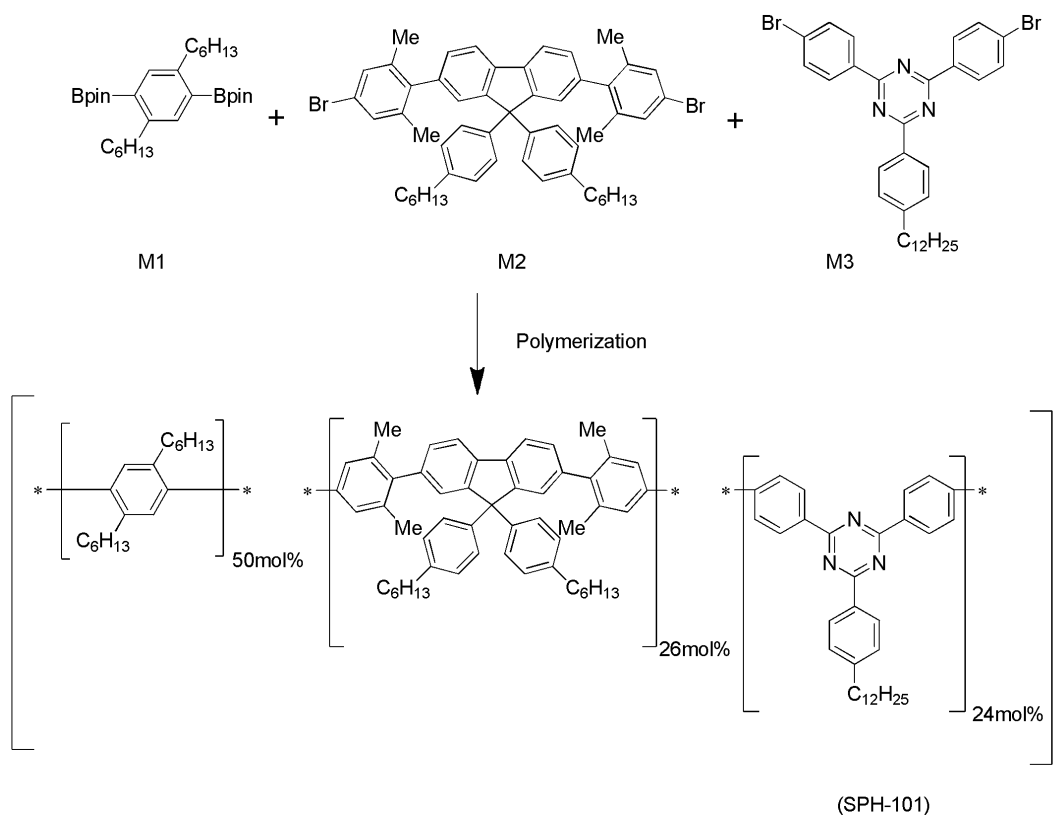
[0981] 호스트 화합물을 EMH5로 변경한 점 이외에는 실시예 6과 동일한 수순 및 구성으로 EL 소자를 얻었다. ITO 전극을 양극, 알루미늄 전극을 음극으로 하여 직류 전압을 인가하고, 휘도, 색도 및 외부 양자 효율을 측정했다. 100cd/m<sup>2</sup> 발광 시의 발광 스펙트럼은 피크 파장 519nm 및 반값폭 19nm이며, 녹색의 발광이 관찰되었다. 또한, 100cd/m<sup>2</sup> 발광 시의 외부 양자 효율은 22.0%로서, 높은 양자 효율이었다.

[0982] 이와 같이 발명의 화합물은, 어시스팅 도펀트를 사용함으로써 매우 반값 폭이 좁은 고효율의 녹색 발광이 가능하다. 이것을 디스플레이에 적용할 경우에, 고효율이며 고색순도의 녹색 발광이 실현되는 것을 의미한다. 본 발명의 실시예로서 어시스팅 도펀트를 사용한 것을 기재하였으나, 예를 들면, 규슈 대학의 아다치(安達) 및 나카노 타니(中野谷) 등에 의해 보고된(Adv. Mater. 2020, 1906614) 엑시플렉스(exciplex) 호스트를 어시스팅 도펀트 대신 사용할 수도 있다.

[0983] <<도포형(발광층) 유기 EL 소자의 제작과 평가>>

[0984] <합성예: 고분자 호스트 화합물: SPH-101의 합성>

[0985] 국제공개 제2015/008851호에 기재된 방법에 따라, SPH-101을 합성했다. M1의 옆에 M2 또는 M3가 결합한 공중합체가 얻어지고, 투입비로부터 각 유닛은 50:26:24(몰비)이다.



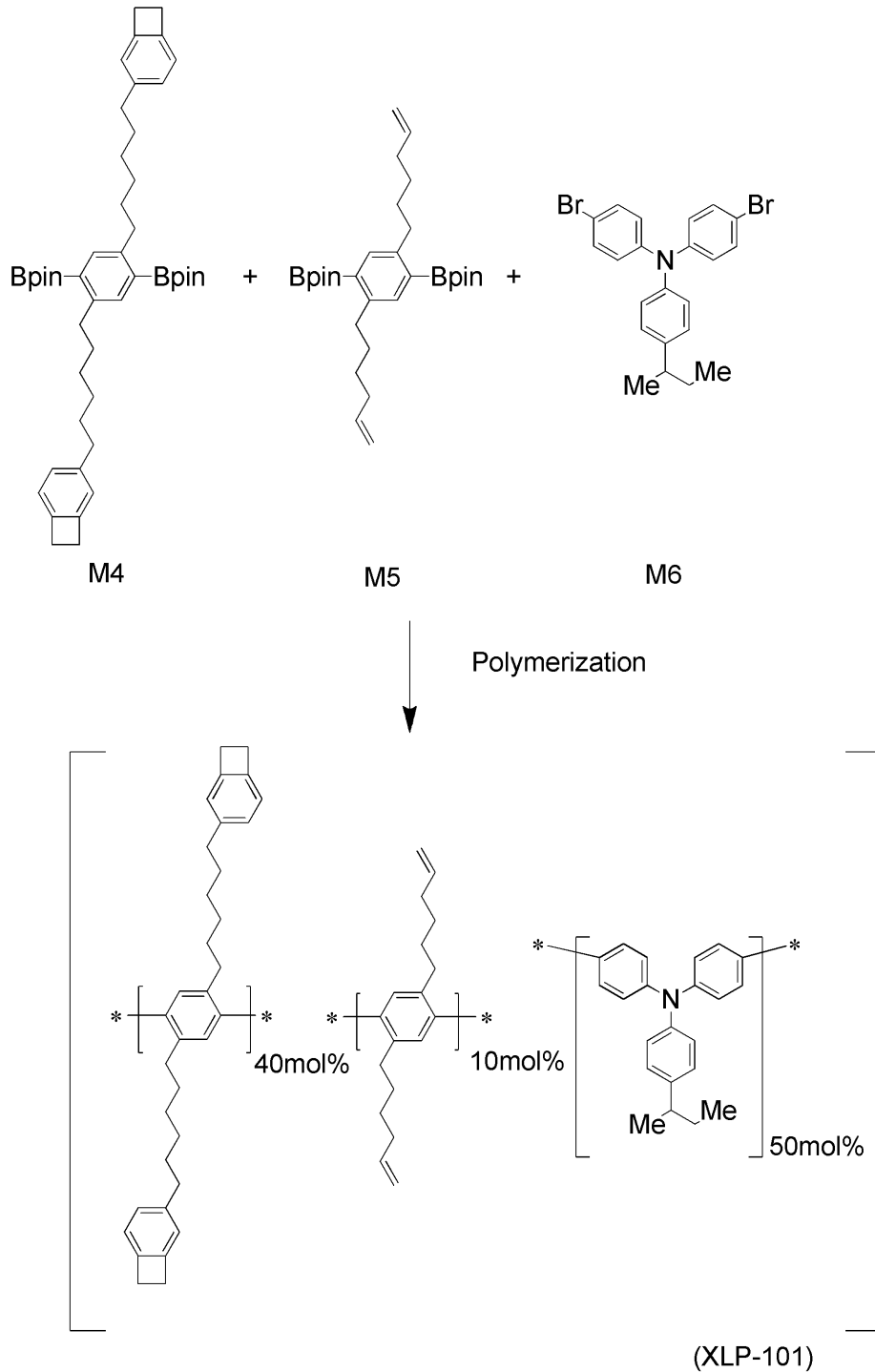
[0986]

[0987] 식 중, Me는 메틸, Bpin은 피나콜라토보릴이다. \*는 각 유닛로의 결합을 나타내고, 말단의 \*는 수소 또는 아릴기에 결합되어 있다.

[0988] <합성예: 고분자 정공수송 화합물: XLP-101의 합성>

[0989] 일본공개특허 제2018-61028호 공보에 기재된 방법에 따라, XLP-101을 합성했다. M4, M5 및 M6가 결합한 공중합

체가 얻어졌다. 투입비로부터 각 유닛은 40:10:50(몰비)이다.



식 중, Bpin은 피나콜라토보릴이며, \*는 각 유닛으로의 결합을 나타낸다. 그리고, 말단의 \*는 수소 또는 아틸기에 결합되어 있다.

<XLP-101 용액의 조제>

크실렌에 XLP-101을 용해시켜, 0.6wt% XLP-101 용액을 조제했다.

<발광층형성용 조성물의 조제>

실시에 F-1에 따른 발광층형성용 조성물을 조제할 수 있다. 조성물의 조제에 사용한 화합물을 이하에 나타낸다.

<실시에 F-1>

하기 성분을 균일한 용액이 될 때까지 교반함으로써 발광층형성용 조성물을 조제한다.

[0998] 화합물(1-313) 0.02질량%

[0999] 화합물(AD3) 0.18질량%

[1000] SPH-101 1.80질량%

[1001] 크실렌 69.00질량%

[1002] 테칼린 29.00질량%

[1003] 조제한 발광층형성용 조성물을 유리 기판에 스핀 코팅하고, 감압 가열 건조시킴으로써, 막 결함이 없고 평활성이 우수한 도포막이 얻어졌다.

[1004] <유기 EL 소자의 제작>

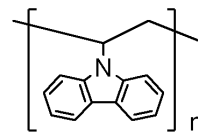
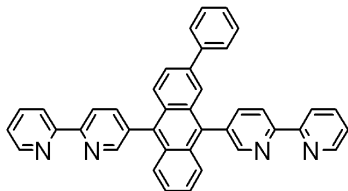
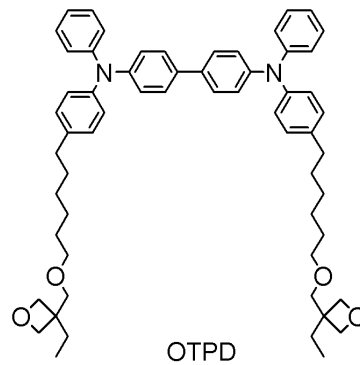
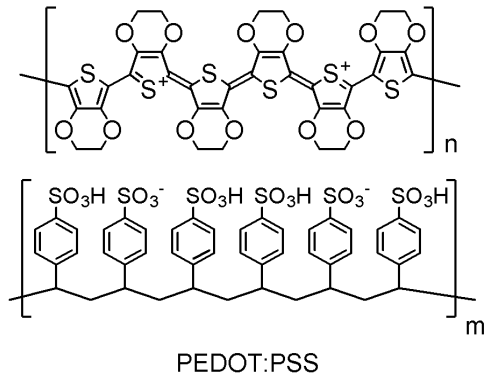
[1005] 실시예 S-1 및 실시예 S-2에서 가교성 정공수송 재료를 사용한 유기 EL 소자의 제작 방법을, 실시예 S-3에서 직교 용매계를 사용한 유기 EL 소자의 제작 방법을 나타내었다. 제작하는 유기 EL 소자에서의 각 층의 재료 구성을 표 4에 나타낸다.

[1006] [표 4]

	정공 주입층 (40nm)	정공 수송층 (30nm)	발광층 (20nm)			전자 수송층 (30nm)	음극 (1nm /100nm)
			호스트	도펀트	조성물		
실시예 S-1	PEDOT:PSS	OTPD	SPH-101	1-313	실시예 F-1	ET4	LiF/Al
실시예 S-2	PEDOT:PSS	XLP-101	SPH-101	1-313	실시예 F-1	ET4	LiF/Al
실시예 S-3	PEDOT:PSS	PCz	SPH-101	1-313	실시예 F-1	ET4	LiF/Al

[1007]

[1008] 표 4에서의, 「PEDOT:PSS」, 「OTPD」, 「PCz」, 「ET4」의 구조를 이하에 나타낸다.



PCz

[1009]

[1010] <PEDOT:PSS 용액>

[1011] 시판하고 있는 PEDOT:PSS 용액(Clevios(TM) P VP AI4083, PEDOT:PSS의 수분산액, Heraeus Holdings사 제조)을 사용한다.

[1012] <OTPD 용액의 조제>

- [1013] OTPD(LT-N159, Luminescence Technology Corp사 제조) 및 IK-2(광 양이온 중합개시제, 산아프로사 제조)를 톨루엔에 용해시켜, OTPD 농도 0.7wt%, IK-2 농도 0.007wt%의 OTPD 용액을 조제한다.
- [1014] <PCz 용액의 조제>
- [1015] PCz(폴리비닐카르바졸)를 디클로로벤젠에 용해시켜, 0.7wt% PCz 용액을 조제했다.
- [1016] <실시예 S-1>
- [1017] ITO가 150nm의 두께로 증착된 유리 기판 상에, PEDOT:PSS 용액을 스핀 코팅하고, 200℃의 핫 플레이트(hot plate) 상에서 1시간 소성하여, 막 두께 40nm의 PEDOT:PSS 막을 성막한다(정공주입층). 다음으로, OTPD 용액을 스핀 코팅하고, 80℃의 핫 플레이트 상에서 10분간 건조한다. 노광기로 노광 강도 100mJ/cm<sup>2</sup>로 노광하고, 100℃의 핫 플레이트 상에서 1시간 소성함으로써, 막 두께 30nm이며 용액에 불용인 OTPD막을 성막한다(정공수송층). 다음으로, 실시예 F-1의 발광층형성용 조성물을 스핀 코팅하고, 120℃의 핫 플레이트 상에서 1시간 소성함으로써, 막 두께 20nm의 발광층을 성막한다.
- [1018] 제작한 다층막을 시판하고 있는 증착장치(쇼와진공(주) 제조)의 기판 홀더에 고정하고, ET1을 넣은 폴리브덴제 증착용 보트, LiF를 넣은 폴리브덴제 증착용 보트, 알루미늄을 넣은 텅스텐제 증착용 보트를 장착한다. 진공조를 5×10<sup>-4</sup> Pa까지 감압한 후, ET1이 들어간 증착용 보트를 가열하여 막 두께 30nm로 되도록 증착하여 전자수송층을 형성한다. 전자수송층을 형성할 때의 증착 속도는 1nm/초로 한다. 그 후, LiF가 들어간 증착용 보트를 가열하여 막 두께 1nm로 되도록 0.01~0.1 nm/초의 증착 속도로 증착한다. 다음으로, 알루미늄이 들어간 보트를 가열하여 막 두께 100nm로 되도록 증착하여 음극을 형성한다. 이와 같이 하여 유기 EL 소자를 얻는다.
- [1019] <실시예 S-2>
- [1020] ITO가 150nm의 두께로 증착된 유리 기판 상에, PEDOT:PSS 용액을 스핀 코팅하고, 200℃의 핫 플레이트 상에서 1시간 소성하여, 막 두께 40nm의 PEDOT:PSS 막을 성막한다(정공주입층). 다음으로, XLP-101 용액을 스핀 코팅하고, 80℃의 핫 플레이트 상에서 10분간 건조하고, 이어서, 180℃의 핫 플레이트 상에서 1시간 소성함으로써, 막 두께 30nm이며 용액에 불용인 XLP-101막을 성막한다(정공수송층). 다음으로, 실시예 F-1의 발광층형성용 조성물을 스핀 코팅하고, 120℃의 핫 플레이트 상에서 1시간 소성함으로써, 막 두께 20nm의 발광층을 성막한다.
- [1021] 제작한 다층막을 사용하여, 실시예 S-1과 동일한 순서로 전자수송층 및 음극을 형성하고, 유기 EL 소자를 얻는다.
- [1022] <실시예 S-3>
- [1023] ITO가 150nm의 두께로 증착된 유리 기판 상에, PEDOT:PSS 용액을 스핀 코팅하고, 200℃의 핫 플레이트 상에서 1시간 소성하여, 막 두께 40nm의 PEDOT:PSS 막을 성막한다(정공주입층). 다음으로, PCz 용액을 스핀 코팅하고, 80℃의 핫 플레이트 상에서 10분간 건조하고, 이어서, 100℃의 핫 플레이트 상에서 1시간 소성함으로써, 막 두께 30nm이며 발광층형성용 조성물에 불용인 PCz막을 성막한다(정공수송층). 다음으로, 실시예 F-1의 발광층형성용 조성물을 스핀 코팅하고, 120℃의 핫 플레이트 상에서 1시간 소성함으로써, 막 두께 20nm의 발광층을 성막한다.
- [1024] 제작한 다층막을 사용하여, 실시예 S-1과 동일한 순서로 전자수송층 및 음극을 형성하고, 유기 EL 소자를 얻는다.

### 산업상 이용가능성

- [1025] 본 발명에서는, 신규한 다환 방향족 화합물을 제공함으로써, 유기 EL 소자용 재료의 선택 사항을 증가시킬 수 있다. 또한, 신규한 다환 방향족 화합물을 유기전계 발광소자용 재료로서 사용함으로써, 우수한 유기 EL 소자, 이것을 구비한 표시 장치 및 이것을 구비한 조명 장치 등을 제공할 수 있다.

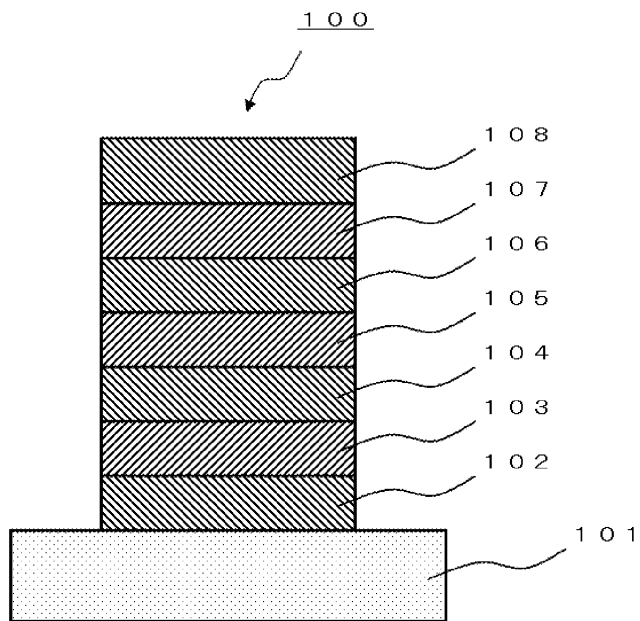
### 부호의 설명

- [1026] 100: 유기전계 발광소자  
101: 기판  
102: 양극

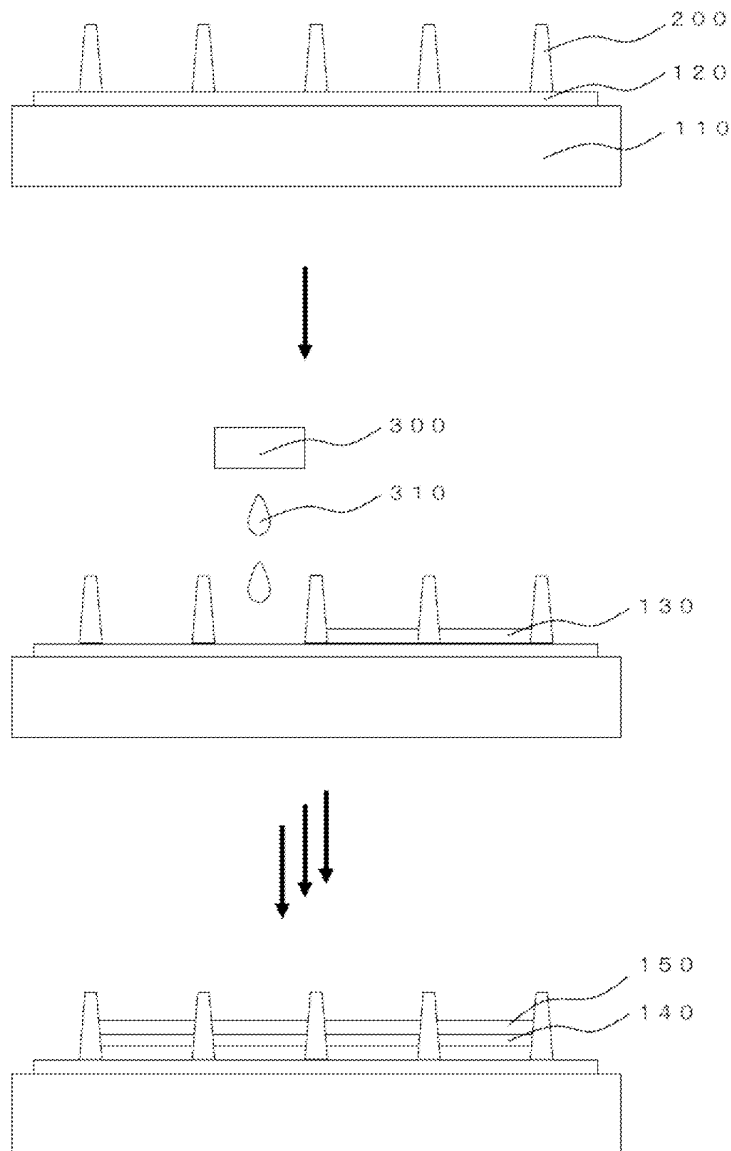
- 103: 정공주입층
- 104: 정공수송층
- 105: 발광층
- 106: 전자수송층
- 107: 전자주입층
- 108: 음극
- 110: 기관
- 120: 전극
- 130: 도막
- 140: 도막
- 150: 발광층
- 200: 뱅크
- 300: 잉크젯 헤드
- 310: 잉크의 액적

도면

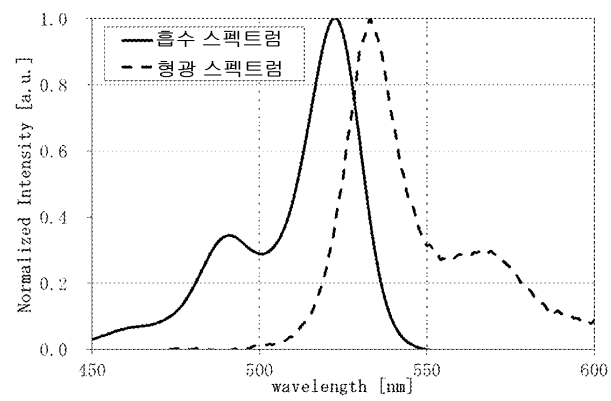
도면1



도면2

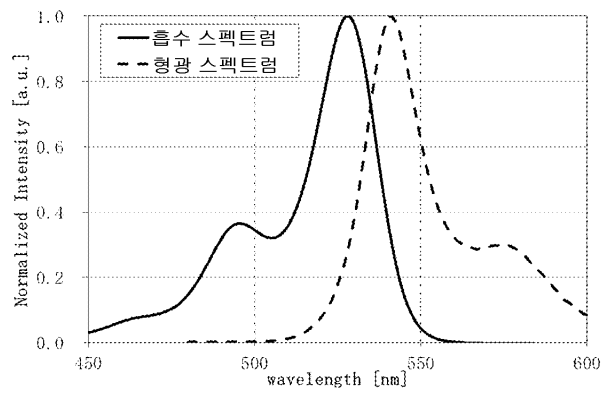


도면3





도면4



도면5

