



(19) 대한민국특허청(KR)  
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2013년11월04일  
(11) 등록번호 10-1325410  
(24) 등록일자 2013년10월29일

- (51) 국제특허분류(Int. Cl.)  
C09K 11/06 (2006.01) H01L 51/54 (2006.01)
- (21) 출원번호 10-2010-7028597(분할)
- (22) 출원일자(국제) 2004년12월13일  
심사청구일자 2011년01월19일
- (85) 번역문제출일자 2010년12월20일
- (65) 공개번호 10-2011-0004484
- (43) 공개일자 2011년01월13일
- (62) 원출원 특허 10-2006-7012158  
원출원일자(국제) 2004년12월13일  
심사청구일자 2008년04월22일
- (86) 국제출원번호 PCT/JP2004/018964
- (87) 국제공개번호 WO 2005/061656  
국제공개일자 2005년07월07일
- (30) 우선권주장  
JP-P-2003-423317 2003년12월19일 일본(JP)
- (56) 선행기술조사문헌  
JP2000182776 A\*  
JP2001097897 A\*  
JP2003086380 A\*  
\*는 심사관에 의하여 인용된 문헌
- (73) 특허권자  
이데미쓰 고산 가부시키가이샤  
일본 도쿄도 지요다쿠 마루노우치 3초메 1반 1고
- (72) 발명자  
구보타 미네유키  
일본 지바켄 소테가우라시 가미이즈미 1280반치  
후나하시 마사카즈  
일본 지바켄 소테가우라시 가미이즈미 1280반치  
호소카와 치시오  
일본 지바켄 소테가우라시 가미이즈미 1280반치
- (74) 대리인  
제일특허법인

전체 청구항 수 : 총 13 항

심사관 : 최영희

(54) 발명의 명칭 유기 전기 발광 소자용 발광 재료, 이를 이용한 유기 전기 발광 소자 및 유기 전기 발광 소자용 재료

(57) 요약

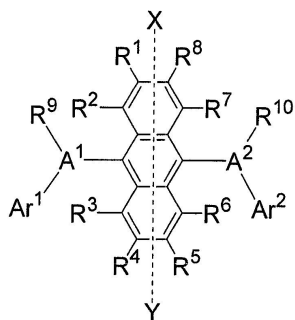
특정 구조의 비대칭 안트라센 유도체로 이루어지는 유기 전기 발광(EL) 소자용 발광 재료 및 유기 EL 소자용 재료, 및 음극과 양극 사이에 적어도 발광층을 포함하는 일층 또는 복수층으로 이루어지는 유기 박막층이 형성되어 있는 유기 EL 소자에 있어서, 상기 유기 박막층의 적어도 한 층이 상기 유기 EL 소자용 재료를 단독으로 또는 혼합물의 성분으로서 함유하는 유기 EL 소자로, 발광 효율이 높고 장수명인 유기 EL 소자, 이를 실현하는 유기 EL 소자용 발광 재료 및 유기 EL 소자용 재료를 제공한다.

# 특허청구의 범위

## 청구항 1

하기 화학식 1로 표시되는 비대칭 안트라센 유도체로 이루어지는 유기 전기 발광 소자용 발광 재료:

화학식 1



상기 식에서,

$A^1$ 은 1-나프틸기, 2-나프틸기, 1-안트릴기, 2-안트릴기, 9-안트릴기, 1-페난트릴기, 2-페난트릴기, 3-페난트릴기, 4-페난트릴기, 9-페난트릴기, 1-나프타센일기, 2-나프타센일기, 9-나프타센일기, 1-피렌일기, 2-피렌일기, 4-피렌일기, 3-메틸-2-나프틸기, 4-메틸-1-나프틸기 및 4-메틸-1-안트릴기로부터 선택되고,

$A^2$ 는 1-나프틸기, 1-안트릴기, 2-안트릴기, 9-안트릴기, 1-페난트릴기, 2-페난트릴기, 3-페난트릴기, 4-페난트릴기, 9-페난트릴기, 1-나프타센일기, 2-나프타센일기, 9-나프타센일기, 1-피렌일기, 2-피렌일기, 4-피렌일기, 3-메틸-2-나프틸기, 4-메틸-1-나프틸기 및 4-메틸-1-안트릴기로부터 선택되고,

$Ar^1$  및  $Ar^2$ 는 각각 독립적으로 수소원자, 또는 치환 또는 비치환된 핵탄소수 6 내지 50의 방향족 탄화수소환기이고,

$R^1$  내지  $R^8$ 은 각각 독립적으로 수소원자, 치환 또는 비치환된 핵탄소수 6 내지 50의 방향족 탄화수소환기, 치환 또는 비치환된 핵원자수 5 내지 50의 방향족 헤테로환기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 50의 알킬기, 치환 또는 비치환된 탄소수 3 내지 50의 사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 50의 알콕시기, 치환 또는 비치환된 탄소수 6 내지 50의 아르알킬기, 치환 또는 비치환된 탄소수 5 내지 50의 아릴옥시기, 치환 또는 비치환된 탄소수 5 내지 50의 아릴싸이오기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 50의 알콕시카보닐기, 치환 또는 비치환된 실릴기, 카복실기, 할로젠원자, 사이아노기, 나이트로기, 또는 하이드록실기이고,

$R^9$  및  $R^{10}$ 은 각각 독립적으로 수소원자, 치환 또는 비치환된 핵탄소수 6 내지 50의 방향족 탄화수소환기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 50의 알킬기, 치환 또는 비치환된 탄소수 3 내지 50의 사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 50의 알콕시기, 치환 또는 비치환된 탄소수 6 내지 50의 아르알킬기, 치환 또는 비치환된 탄소수 5 내지 50의 아릴옥시기, 치환 또는 비치환된 탄소수 5 내지 50의 아릴싸이오기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 50의 알콕시카보닐기, 치환 또는 비치환된 실릴기, 카복실기, 할로젠원자, 사이아노기, 나이트로기, 또는 하이드록실기이며,  $R^9$  및  $R^{10}$  중 어느 것도 알켄일기는 아니고,

$Ar^1$ ,  $Ar^2$ ,  $R^9$  및  $R^{10}$ 은 각각 복수일 수 있고, 인접하는 것끼리 포화 또는 불포화 환상 구조를 형성할 수 있으며,

$Ar^1$ ,  $Ar^2$  및  $R^1$  내지  $R^{10}$ 의 치환기는 할로젠원자, 하이드록실기, 나이트로기, 사이아노기, 알킬기, 아릴기, 사이클로알킬기, 알콕시기, 아르알킬기, 아릴옥시기, 아릴싸이오기, 알콕시카보닐기 및 카복실기로부터 선택되며,

단, 화학식 1에서 중심의 안트라센의 9위치 및 10위치에, 상기 안트라센 상에 표시된 X-Y축에 대하여 대칭형이 되는 기가 결합하는 경우는 없고,

$A^1$  및  $A^2$  중 적어도 하나는 1-나프틸기이다.

## 청구항 2

제 1 항에 있어서,

화학식 1에서 상기  $A^1$ 이 1-나프틸기, 2-나프틸기, 1-안트릴기, 2-안트릴기, 1-나프타센일기, 2-나프타센일기, 9-나프타센일기, 1-피렌일기, 2-피렌일기, 4-피렌일기, 4-메틸-1-나프틸기 및 4-메틸-1-안트릴기로부터 선택되고, 상기  $A^2$ 가 1-나프틸기, 1-안트릴기, 2-안트릴기, 1-나프타센일기, 2-나프타센일기, 9-나프타센일기, 1-피렌일기, 2-피렌일기, 4-피렌일기, 4-메틸-1-나프틸기 및 4-메틸-1-안트릴기로부터 선택되는 기인 유기 전기 발광 소자용 발광 재료.

## 청구항 3

삭제

## 청구항 4

제 1 항에 있어서,

화학식 1에서 상기  $Ar^1$  및  $Ar^2$ 가 각각 독립적으로 수소원자, 페닐기, 1-나프틸기, 2-나프틸기, 1-안트릴기, 2-안트릴기, 9-안트릴기, 1-페난트릴기, 2-페난트릴기, 3-페난트릴기, 4-페난트릴기, 9-페난트릴기, 1-나프타센일기, 2-나프타센일기, 9-나프타센일기, 1-피렌일기, 2-피렌일기, 4-피렌일기, 2-바이페닐일기, 3-바이페닐일기, 4-바이페닐일기, p-터페닐-4-일기, p-터페닐-3-일기, p-터페닐-2-일기, m-터페닐-4-일기, m-터페닐-3-일기, m-터페닐-2-일기, o-톨릴기, m-톨릴기, p-톨릴기, p-t-뷰틸페닐기, p-(2-페닐프로필)페닐기, 3-메틸-2-나프틸기, 4-메틸-1-나프틸기, 4-메틸-1-안트릴기, 4'-메틸바이페닐일기 및 4"-t-뷰틸-p-터페닐-4-일기 중 어느 하나인 유기 전기 발광 소자용 발광 재료.

## 청구항 5

제 1 항에 있어서,

화학식 1에서  $Ar^1$  및  $Ar^2$ 가 각각 독립적으로 수소원자, 페닐기, 1-나프틸기, 2-나프틸기 및 9-페난트릴기 중 어느 하나인 유기 전기 발광 소자용 발광 재료.

## 청구항 6

제 1 항에 있어서,

상기 비대칭 안트라센 유도체가 1-페난트릴기, 2-페난트릴기, 3-페난트릴기, 4-페난트릴기, 9-페난트릴기, 1-나프타센일기, 2-나프타센일기, 9-나프타센일기, 1-피렌일기, 2-피렌일기, 4-피렌일기, 3-메틸-2-나프틸기 및 4-메틸-1-나프틸기로부터 선택되는 축합 방향족 탄화수소환기를 갖는 유기 전기 발광 소자용 재료.

## 청구항 7

음극과 양극 사이에 적어도 발광층을 포함하는 일층 또는 복수층으로 이루어지는 유기 박막층이 형성되어 있는 유기 전기 발광 소자에 있어서, 발광 대역이 제 1 항에 기재된 유기 전기 발광 소자용 발광 재료를 단독으로 또는 혼합물의 성분으로서 함유하는 유기 전기 발광 소자.

## 청구항 8

제 7 항에 있어서,

상기 발광층이 상기 유기 전기 발광 소자용 발광 재료를 단독으로 또는 혼합물의 성분으로서 함유하는 유기 전기 발광 소자.

## 청구항 9

제 7 항에 있어서,

상기 유기 박막층이 상기 유기 전기 발광 소자용 발광 재료를 호스트 재료로서 함유하는 유기 전기 발광 소자.

#### 청구항 10

제 7 항 내지 제 9 항 중 어느 한 항에 있어서,  
상기 발광층이 아릴아민 화합물을 추가로 함유하는 유기 전기 발광 소자.

#### 청구항 11

제 7 항 내지 제 9 항 중 어느 한 항에 있어서,  
상기 발광층이 스타이릴아민 화합물을 추가로 함유하는 유기 전기 발광 소자.

#### 청구항 12

삭제

#### 청구항 13

삭제

#### 청구항 14

삭제

#### 청구항 15

제 1 항에 있어서,

화학식 1에서  $R^1$  내지  $R^8$ 은 각각 독립적으로 수소원자, 페닐기, 1-나프틸기, 2-나프틸기, 1-안트릴기, 2-안트릴기, 9-안트릴기, 1-페난트릴기, 2-페난트릴기, 3-페난트릴기, 4-페난트릴기, 9-페난트릴기, 1-나프타센일기, 2-나프타센일기, 9-나프타센일기, 메틸기, 비치환된 실릴기, 카복실기, 사이아노기, 나이트로기 및 하이드록실기로부터 선택되는 유기 전기 발광 소자용 발광 재료.

#### 청구항 16

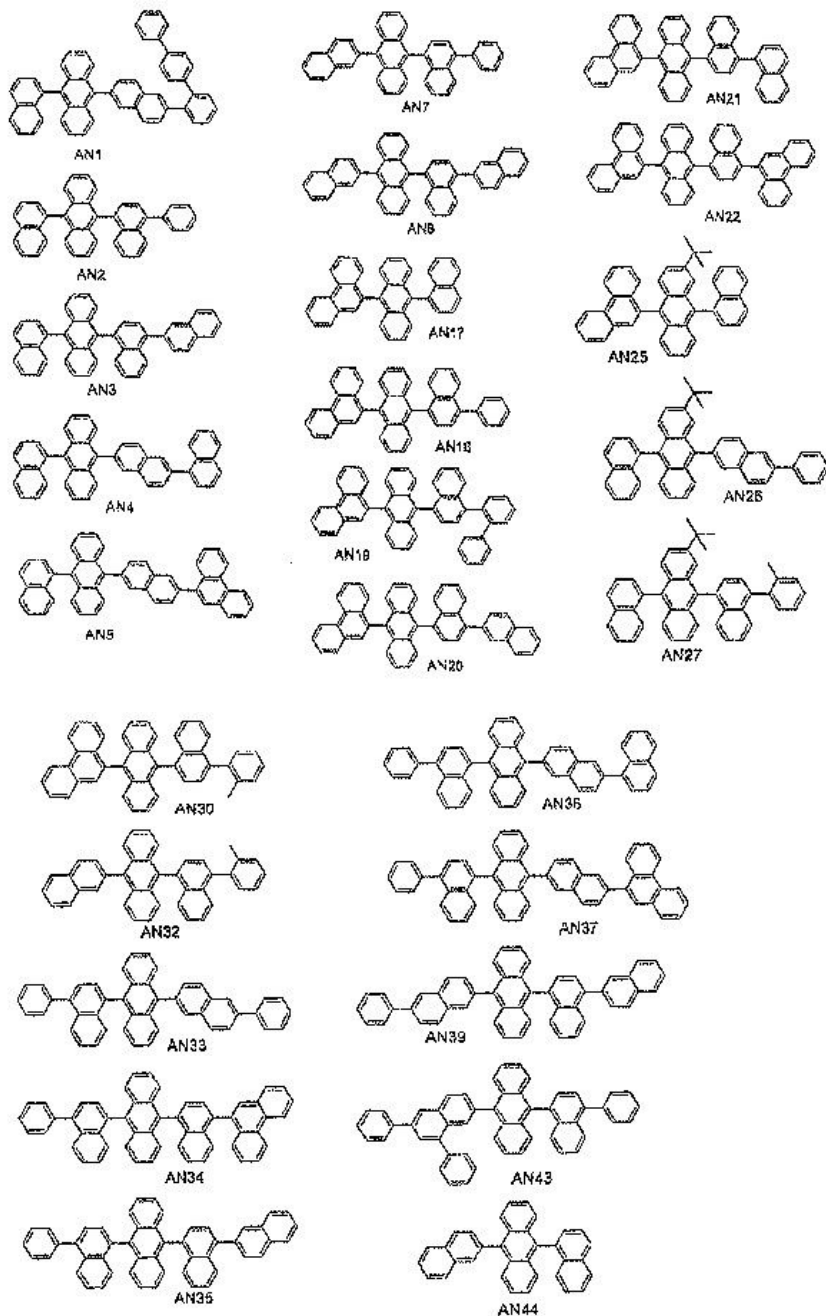
제 1 항에 있어서,

화학식 1에서  $R^9$  내지  $R^{10}$ 은 각각 독립적으로 수소원자, 페닐기, 1-나프틸기, 2-나프틸기, 1-안트릴기, 2-안트릴기, 9-안트릴기, 1-페난트릴기, 2-페난트릴기, 3-페난트릴기, 4-페난트릴기, 9-페난트릴기, 1-나프타센일기, 2-나프타센일기, 9-나프타센일기, 메틸기, 비치환된 실릴기, 카복실기, 사이아노기, 나이트로기 및 하이드록실기로부터 선택되는 유기 전기 발광 소자용 발광 재료.

#### 청구항 17

제 1 항에 있어서,

화학식 1로 표시되는 비대칭 안트라센 유도체가 하기 화학식 중 어느 하나로 표시되는 유기 전기 발광 소자용 발광 재료.



## 명세서

### 기술분야

[0001] 본 발명은 유기 전기 발광 소자용 발광 재료, 이를 이용한 유기 전기 발광 소자 및 유기 전기 발광 소자용 재료에 관한 것이며, 더욱 구체적으로는 발광 효율이 높고 장수명인 유기 전기 발광 소자, 이를 실현하는 유기 전기 발광 소자용 발광 재료 및 유기 전기 발광 소자용 재료에 관한 것이다.

### 배경기술

[0002] 유기 전기 발광 소자(이하, 전기 발광을 'EL'로 약기하기도 함)는 전계를 인가함으로써 양극으로부터 주입된 정공과 음극으로부터 주입된 전자의 재결합 에너지에 의해 형광성 물질이 발광하는 원리를 이용한 자발광 소자이다. 이스트만 코닥사의 탕(C.W. Tang) 등에 의해 적층형 소자에 의한 저전압 구동 유기 EL 소자(C.W. Tang,

S.A. Vanslyke, Applied Physics Letters, 51권, 913페이지, 1987년 등)가 보고된 이래, 유기 재료를 구성 재료로 하는 유기 EL 소자에 관한 연구가 활발히 실시되고 있다. 탕 등은, 트리스(8-하이드록시퀴놀린올알루미늄)을 발광층에 이용하고, 트라이페닐다디아민 유도체를 정공 수송층에 이용하고 있다. 적층 구조의 이점으로서, 발광층으로의 정공의 주입 효율을 높이는 것, 음극으로부터 주입된 전자를 블로킹하여 재결합에 의해 생성되는 여기자의 생성 효율을 높이는 것, 발광층내에서 생성된 여기자를 가두는 것 등을 들 수 있다. 이러한 예의 유기 EL 소자의 소자 구조로서는 정공 수송(주입)층 및 전자 수송 발광층의 2층형, 또는 정공 수송(주입)층, 발광층 및 전자 수송(주입)층의 3층형 등이 잘 알려져 있다. 이러한 적층형 구조 소자에서는 주입된 정공과 전자의 재결합 효율을 높이기 위해 소자 구조나 형성 방법의 연구가 이루어지고 있다.

[0003] 또한, 발광 재료로서는 트리스(8-퀴놀리놀레이트)알루미늄 착체 등의 킬레이트 착체, 쿠마린 유도체, 테트라페닐뷰타다이엔 유도체, 비스스타이릴아릴렌 유도체, 옥사다리아졸 유도체 등의 발광 재료가 알려져 있고, 이들로부터는 청색부터 적색까지의 가시 영역의 발광이 획득되는 것이 보고되어 있으며, 컬러 표시 소자의 실현이 기대되고 있다(예컨대, 특허문헌 1, 특허문헌 2, 특허문헌 3 등 참조).

[0004] 또한, 발광 재료로서 페닐안트라센 유도체를 이용한 소자가 특허문헌 4에 개시되어 있다. 이러한 안트라센 유도체는 청색 발광 재료로서 사용되지만, 소자 수명을 늘리는 것이 요망되고 있다. 안트라센의 9, 10위치에 나프틸기를 갖는 재료가 특허문헌 5에 개시되어 있고, 안트라센의 9, 10위치에 플루오란텐기를 갖는 소자 재료가 특허문헌 6에 개시되어 있다. 이들 안트라센 유도체도 청색 발광 재료로서 사용되지만, 역시나 소자 수명의 개선이 요망되었다. 또한, 특허문헌 7에는 여러 안트라센 유도체를 정공 수송 재료로서 이용하는 것이 개시되어 있다. 그러나, 발광 재료로서의 평가는 아직 이루어지지 않았다.

[0005] [특허문헌 1] 일본 특허공개 제1996-239655호 공보

[0006] [특허문헌 2] 일본 특허공개 제1995-138561호 공보

[0007] [특허문헌 3] 일본 특허공개 제1991-200289호 공보

[0008] [특허문헌 4] 일본 특허공개 제1996-012600호 공보

[0009] [특허문헌 5] 일본 특허공개 제1999-3782호 공보

[0010] [특허문헌 6] 일본 특허공개 제2001-257074호 공보

[0011] [특허문헌 7] 일본 특허공개 제2000-182776호 공보

## 발명의 내용

### 해결하려는 과제

[0012] 발명의 개시

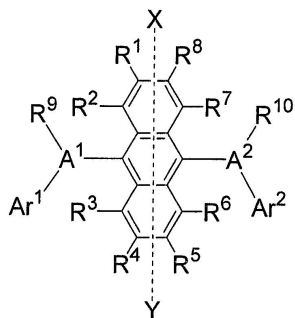
[0013] 본 발명은 상기 과제를 해결하기 위해 이루어진 것으로, 발광 효율이 높고 장수명인 유기 EL 소자, 이를 실현하는 유기 EL 소자용 발광 재료 및 유기 EL 소자용 재료를 제공하는 것을 목적으로 한다.

### 과제의 해결 수단

[0014] 본 발명자들은 상기 목적을 달성하기 위해 예의 연구를 거듭한 결과, 하기 화학식 1로 표시되는 비대칭형의 특정한 안트라센 구조를 갖는 화합물을 유기 EL 소자에 있어서의 발광 재료로서 이용하면, 발광 효율이 높고 수명이 긴 유기 EL 소자가 획득되는 것을 발견하여, 본 발명을 완성하는데 이르렀다.

[0015] 즉, 본 발명은 하기 화학식 1로 표시되는 비대칭 안트라센 유도체로 이루어지는 유기 EL 소자용 재료, 및 음극과 양극 사이에 적어도 발광층을 포함하는 일층 또는 복수층으로 이루어지는 유기 박막층이 형성되어 있는 유기 EL 소자에 있어서, 상기 유기 박막층의 적어도 한 층이 상기 화학식 1로 표시되는 비대칭 안트라센 유도체를 단독으로 또는 혼합물의 성분으로서 함유하는 유기 EL 소자를 제공하는 것이다.

[0016] <화학식 1>



[0017]

[0018] 상기 식에서,

[0019]  $A^1$  및  $A^2$ 는 각각 독립적으로 치환 또는 비치환된 헥탄소수 10 내지 20의 축합 방향족 탄화수소환기이고,

[0020]  $Ar^1$  및  $Ar^2$ 는 각각 독립적으로 수소원자, 또는 치환 또는 비치환된 헥탄소수 6 내지 50의 방향족 탄화수소환기이고,

[0021]  $R^1$  내지  $R^8$ 은 각각 독립적으로 수소원자, 치환 또는 비치환된 헥탄소수 6 내지 50의 방향족 탄화수소환기, 치환 또는 비치환된 헥탄소수 5 내지 50의 방향족 헤테로환기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 50의 알킬기, 치환 또는 비치환된 탄소수 3 내지 50의 사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 50의 알콕시기, 치환 또는 비치환된 탄소수 6 내지 50의 아르알킬기, 치환 또는 비치환된 탄소수 5 내지 50의 아릴옥시기, 치환 또는 비치환된 탄소수 5 내지 50의 아릴싸이오기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 50의 알콕시카보닐기, 치환 또는 비치환된 실릴기, 카복실기, 할로젠원자, 사이아노기, 나이트로기, 또는 하이드록실기이고,

[0022]  $R^9$  및  $R^{10}$ 은 각각 독립적으로 수소원자, 치환 또는 비치환된 헥탄소수 6 내지 50의 방향족 탄화수소환기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 50의 알킬기, 치환 또는 비치환된 탄소수 3 내지 50의 사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 50의 알콕시기, 치환 또는 비치환된 탄소수 6 내지 50의 아르알킬기, 치환 또는 비치환된 탄소수 5 내지 50의 아릴옥시기, 치환 또는 비치환된 탄소수 5 내지 50의 아릴싸이오기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 50의 알콕시카보닐기, 치환 또는 비치환된 실릴기, 카복실기, 할로젠원자, 사이아노기, 나이트로기, 또는 하이드록실기이며,  $R^9$  및  $R^{10}$  중 어느 것도 알켄일기는 아니고,

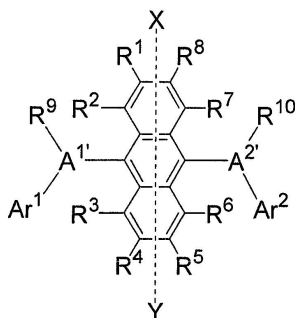
[0023]  $Ar^1$ ,  $Ar^2$ ,  $R^9$  및  $R^{10}$ 은 각각 복수일 수 있고, 인접하는 것끼리 포화 또는 불포화 환상 구조를 형성할 수 있되,

[0024] 단, 화학식 1에서 중심의 안트라센의 9위치 및 10위치에, 상기 안트라센 상에 표시된 X-Y축에 대하여 대칭형이 되는 기가 결합하는 경우는 없다.

[0025] 또한, 본 발명은 하기 화학식 1'로 표시되는 비대칭 안트라센 유도체로 이루어지는 유기 EL 소자용 재료를 제공하는 것이다.

[0026] 하기 화학식 1'로 표시되는 비대칭 안트라센 유도체로 이루어지는 유기 전기 발광 소자용 재료.

[0027] <화학식 1'>



[0028]

[0029] 상기 식에서,

- [0030]  $A^{1'}$  및  $A^{2'}$ 는 각각 독립적으로 치환 또는 비치환된 헥탄소수 10 내지 20의 축합 방향족 탄화수소환기이며,  $A^{1'}$  및  $A^{2'}$  중 적어도 하나는 4위치에 치환기를 갖는 나프탈렌-1-일기, 또는 치환 또는 비치환된 헥탄소수 12 내지 20의 축합 방향족 탄화수소환기이고,
- [0031]  $Ar^1$ ,  $Ar^2$  및  $R^1$  내지  $R^{10}$ 은 각각 독립적으로 상기와 같되,
- [0032] 단, 화학식 1'에서 중심의 안트라센의 9위치 및 10위치에, 상기 안트라센 상에 표시된 X-Y축에 대하여 대칭형이 되는 기가 결합하는 경우는 없다.
- [0033] 본 발명의 비대칭 안트라센 유도체를 유기 EL 소자용 발광 재료 또는 유기 EL 소자용 재료로서 이용한 유기 EL 소자는 발광 효율이 높고 장수명이다.

### 발명의 효과

- [0034] 이상, 구체적으로 설명한 바와 같이, 화학식 1로 표시되는 비대칭 안트라센 유도체로 이루어지는 본 발명의 유기 EL 소자용 발광 재료 또는 유기 EL 소자용 재료를 이용한 유기 EL 소자는 발광 효율이 높고 장수명이다. 이 때문에, 장기간의 연속 사용이 상정되는 유기 EL 소자로서 유용하다.

### 발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0035] 본 발명의 유기 EL 소자용 발광 재료는 상기 화학식 1로 표시되는 비대칭 안트라센 유도체로 이루어진다.
- [0036] 본 발명에 이용하는 화학식 1의 비대칭 안트라센 유도체는 중심의 안트라센의 9위치 및 10위치에 상기 안트라센 상에 표시된 X-Y축에 대하여 대칭형이 되는 기가 결합하는 경우는 없다.
- [0037] 여기서, 'X-Y축에 대하여 대칭형이 되는 기가 결합하는 경우가 없다'란 바람직하게는 화학식 1에 있어서 이하의 구조로 되어 있는 것을 말한다.
- [0038] (I)  $A^1$ 과  $A^2$ 가 다르다.
- [0039] (II)  $A^1$ 과  $A^2$ 가 같은 경우는,
- [0040] (II-i)  $Ar^1$ 과  $Ar^2$ 가 다르다.
- [0041] (II-ii)  $R^9$ 와  $R^{10}$ 이 다르다.
- [0042] (II-iii)  $Ar^1$ 과  $Ar^2$ 가 같고, 또한  $R^9$ 과  $R^{10}$ 과 같은 경우,
- [0043] (II-iii-1)  $A^1$ 에 있어서의 안트라센환 9위치와의 결합 위치와  $A^2$ 에 있어서의 안트라센환 10위치와의 결합 위치가 다르다.
- [0044] (II-iii-2)  $Ar^1$  및  $Ar^2$ 가 동시에 수소원자가 아닌 경우  $A^1$ 에 있어서의  $Ar^1$ 의 결합 위치와  $A^2$ 에 있어서의  $Ar^2$ 의 결합 위치가 다르다.
- [0045] (II-iii-3)  $R^9$  및  $R^{10}$ 이 동시에 수소원자가 아닌 경우  $A^1$ 에 있어서의  $R^9$ 의 결합 위치와  $A^2$ 에 있어서의  $R^{10}$ 의 결합 위치가 다르다.
- [0046] 화학식 1에 있어서,  $A^1$  및  $A^2$ 는 각각 독립적으로 치환 또는 비치환된 헥탄소수 10 내지 20(바람직하게는 헥탄소수 10 내지 16)의 축합 방향족 탄화수소환기이다.
- [0047]  $A^1$  및  $A^2$ 의 치환 또는 비치환된 축합 방향족 탄화수소환기로서는, 예컨대 1-나프틸기, 2-나프틸기, 1-안트릴기, 2-안트릴기, 9-안트릴기, 1-페난트릴기, 2-페난트릴기, 3-페난트릴기, 4-페난트릴기, 9-페난트릴기, 1-나프타센일기, 2-나프타센일기, 9-나프타센일기, 1-피렌일기, 2-피렌일기, 4-피렌일기, 3-메틸-2-나프틸기, 4-메틸-1-나

프틸기, 4-메틸-1-안트릴기 등을 들 수 있다.

[0048] 이들 중에서도 바람직하게는 1-나프틸기, 2-나프틸기, 9-페난트릴기이다.

[0049] 화학식 1에 있어서,  $Ar^1$  및  $Ar^2$ 는 각각 독립적으로 수소원자, 또는 치환 또는 비치환된 핵탄소수 6 내지 50(바람직하게는 핵탄소수 6 내지 16)의 방향족 탄화수소환기이다.

[0050]  $Ar^1$ 과  $Ar^2$ 의 치환 또는 비치환된 방향족 탄화수소환기로서는, 예컨대 페닐기, 1-나프틸기, 2-나프틸기, 1-안트릴기, 2-안트릴기, 9-안트릴기, 1-페난트릴기, 2-페난트릴기, 3-페난트릴기, 4-페난트릴기, 9-페난트릴기, 1-나프타센일기, 2-나프타센일기, 9-나프타센일기, 1-피렌일기, 2-피렌일기, 4-피렌일기, 2-바이페닐일기, 3-바이페닐일기, 4-바이페닐일기, p-터페닐-4-일기, p-터페닐-3-일기, p-터페닐-2-일기, m-터페닐-4-일기, m-터페닐-3-일기, m-터페닐-2-일기, o-톨릴기, m-톨릴기, p-톨릴기, p-t-뷰틸페닐기, p-(2-페닐프로필)페닐기, 3-메틸-2-나프틸기, 4-메틸-1-나프틸기, 4-메틸-1-안트릴기, 4'-메틸바이페닐일기, 4"-t-뷰틸-p-터페닐-4-일기 등을 들 수 있다.

[0051] 이들 중에서도 바람직하게는 페닐기, 1-나프틸기, 2-나프틸기, 9-페난트릴기, 1-나프타센일기, 2-나프타센일기, 9-나프타센일기, 1-피렌일기, 2-피렌일기, 4-피렌일기, 2-바이페닐일기, 3-바이페닐일기, 4-바이페닐일기, o-톨릴기, m-톨릴기, p-톨릴기, p-t-뷰틸페닐기이다.

[0052] 화학식 1에 있어서,  $R^1$  내지  $R^8$ 은 각각 독립적으로 수소원자, 치환 또는 비치환된 핵탄소수 6 내지 50의 방향족 탄화수소환기, 치환 또는 비치환된 핵원자수 5 내지 50의 방향족 헤테로환기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 50의 알킬기, 치환 또는 비치환된 탄소수 3 내지 50의 사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 50의 알콕시기, 치환 또는 비치환된 탄소수 6 내지 50의 아르알킬기, 치환 또는 비치환된 탄소수 5 내지 50의 아릴옥시기, 치환 또는 비치환된 탄소수 5 내지 50의 아릴싸이오기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 50의 알콕시카보닐기, 치환 또는 비치환된 실릴기, 카복실기, 할로젠원자, 사이아노기, 나이트로기, 또는 하이드록실기이다.

[0053]  $R^9$  및  $R^{10}$ 은 각각 독립적으로 수소원자, 치환 또는 비치환된 핵탄소수 6 내지 50의 방향족 탄화수소환기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 50의 알킬기, 치환 또는 비치환된 탄소수 3 내지 50의 사이클로알킬기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 50의 알콕시기, 치환 또는 비치환된 탄소수 6 내지 50의 아르알킬기, 치환 또는 비치환된 탄소수 5 내지 50의 아릴옥시기, 치환 또는 비치환된 탄소수 5 내지 50의 아릴싸이오기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 50의 알콕시카보닐기, 치환 또는 비치환된 실릴기, 카복실기, 할로젠원자, 사이아노기, 나이트로기, 또는 하이드록실기이며,  $R^9$  및  $R^{10}$  중 어느 것도 알켄일기는 아니다.

[0054]  $R^1$  내지  $R^{10}$ 의 치환 또는 비치환된 방향족 탄화수소환기의 예로서는, 페닐기, 1-나프틸기, 2-나프틸기, 1-안트릴기, 2-안트릴기, 9-안트릴기, 1-페난트릴기, 2-페난트릴기, 3-페난트릴기, 4-페난트릴기, 9-페난트릴기, 1-나프타센일기, 2-나프타센일기, 9-나프타센일기, 1-피렌일기, 2-피렌일기, 4-피렌일기, 2-바이페닐일기, 3-바이페닐일기, 4-바이페닐일기, p-터페닐-4-일기, p-터페닐-3-일기, p-터페닐-2-일기, m-터페닐-4-일기, m-터페닐-3-일기, m-터페닐-2-일기, o-톨릴기, m-톨릴기, p-톨릴기, p-t-뷰틸페닐기, p-(2-페닐프로필)페닐기, 3-메틸-2-나프틸기, 4-메틸-1-나프틸기, 4-메틸-1-안트릴기, 4'-메틸바이페닐일기, 4"-t-뷰틸-p-터페닐-4-일기 등을 들 수 있다.

[0055]  $R^1$  내지  $R^8$ 의 치환 또는 비치환된 방향족 헤테로환기의 예로서는, 1-피롤릴기, 2-피롤릴기, 3-피롤릴기, 피라진일기, 2-피리딘일기, 3-피리딘일기, 4-피리딘일기, 1-인돌릴기, 2-인돌릴기, 3-인돌릴기, 4-인돌릴기, 5-인돌릴기, 6-인돌릴기, 7-인돌릴기, 1-아이소인돌릴기, 2-아이소인돌릴기, 3-아이소인돌릴기, 4-아이소인돌릴기, 5-아이소인돌릴기, 6-아이소인돌릴기, 7-아이소인돌릴기, 2-퓨릴기, 3-퓨릴기, 2-벤조퓨란일기, 3-벤조퓨란일기, 4-벤조퓨란일기, 5-벤조퓨란일기, 6-벤조퓨란일기, 7-벤조퓨란일기, 1-아이소벤조퓨란일기, 3-아이소벤조퓨란일기, 4-아이소벤조퓨란일기, 5-아이소벤조퓨란일기, 6-아이소벤조퓨란일기, 7-아이소벤조퓨란일기, 퀴놀릴기, 3-퀴놀릴기, 4-퀴놀릴기, 5-퀴놀릴기, 6-퀴놀릴기, 7-퀴놀릴기, 8-퀴놀릴기, 1-아이소퀴놀릴기, 3-아이소퀴놀릴기, 4-아이소퀴놀릴기, 5-아이소퀴놀릴기, 6-아이소퀴놀릴기, 7-아이소퀴놀릴기, 8-아이소퀴놀릴기, 2-퀴녹살린일기, 5-퀴녹살린일기, 6-퀴녹살린일기, 1-카바졸릴기, 2-카바졸릴기, 3-카바졸릴기, 4-카바졸릴기, 9-카바졸릴기, 1-페난트리딘일기, 2-페난트리딘일기, 3-페난트리딘일기, 4-페난트리딘일기, 6-페난트리딘일기, 7-페난트리딘일기, 8-페난트리딘일기, 9-페난트리딘일기, 10-페난트리딘일기, 1-아크리

단일기, 2-아크리딘일기, 3-아크리딘일기, 4-아크리딘일기, 9-아크리딘일기, 1,7-페난트롤린-2-일기, 1,7-페난트롤린-3-일기, 1,7-페난트롤린-4-일기, 1,7-페난트롤린-5-일기, 1,7-페난트롤린-6-일기, 1,7-페난트롤린-8-일기, 1,7-페난트롤린-9-일기, 1,7-페난트롤린-10-일기, 1,8-페난트롤린-2-일기, 1,8-페난트롤린-3-일기, 1,8-페난트롤린-4-일기, 1,8-페난트롤린-5-일기, 1,8-페난트롤린-6-일기, 1,8-페난트롤린-7-일기, 1,8-페난트롤린-9-일기, 1,8-페난트롤린-10-일기, 1,9-페난트롤린-2-일기, 1,9-페난트롤린-3-일기, 1,9-페난트롤린-4-일기, 1,9-페난트롤린-5-일기, 1,9-페난트롤린-6-일기, 1,9-페난트롤린-7-일기, 1,9-페난트롤린-8-일기, 1,9-페난트롤린-10-일기, 1,10-페난트롤린-2-일기, 1,10-페난트롤린-3-일기, 1,10-페난트롤린-4-일기, 1,10-페난트롤린-5-일기, 2,9-페난트롤린-1-일기, 2,9-페난트롤린-3-일기, 2,9-페난트롤린-4-일기, 2,9-페난트롤린-5-일기, 2,9-페난트롤린-6-일기, 2,9-페난트롤린-7-일기, 2,9-페난트롤린-8-일기, 2,9-페난트롤린-10-일기, 2,8-페난트롤린-1-일기, 2,8-페난트롤린-3-일기, 2,8-페난트롤린-4-일기, 2,8-페난트롤린-5-일기, 2,8-페난트롤린-6-일기, 2,8-페난트롤린-7-일기, 2,8-페난트롤린-9-일기, 2,8-페난트롤린-10-일기, 2,7-페난트롤린-1-일기, 2,7-페난트롤린-3-일기, 2,7-페난트롤린-4-일기, 2,7-페난트롤린-5-일기, 2,7-페난트롤린-6-일기, 2,7-페난트롤린-8-일기, 2,7-페난트롤린-9-일기, 2,7-페난트롤린-10-일기, 1-페나진일기, 2-페나진일기, 1-페노싸이아진일기, 2-페노싸이아진일기, 3-페노싸이아진일기, 4-페노싸이아진일기, 10-페노싸이아진일기, 1-페녹사진일기, 2-페녹사진일기, 3-페녹사진일기, 4-페녹사진일기, 10-페녹사진일기, 2-옥사졸릴기, 4-옥사졸릴기, 5-옥사졸릴기, 2-옥사다이하졸릴기, 5-옥사다이하졸릴기, 3-퓨라잔일기, 2-싸이엔일기, 3-싸이엔일기, 2-메틸피롤-1-일기, 2-메틸피롤-3-일기, 2-메틸피롤-4-일기, 2-메틸피롤-5-일기, 3-메틸피롤-1-일기, 3-메틸피롤-2-일기, 3-메틸피롤-4-일기, 3-메틸피롤-5-일기, 2-t-뷰틸피롤-4-일기, 3-(2-페닐프로필)피롤-1-일기, 2-메틸-1-인돌릴기, 4-메틸-1-인돌릴기, 2-메틸-3-인돌릴기, 4-메틸-3-인돌릴기, 2-t-뷰틸-1-인돌릴기, 4-t-뷰틸-1-인돌릴기, 2-t-뷰틸-3-인돌릴기, 4-t-뷰틸-3-인돌릴기 등을 들 수 있다.

[0056]  $R^1$  내지  $R^{10}$ 의 치환 또는 비치환된 알킬기의 예로서는, 메틸기, 에틸기, 프로필기, 아이소프로필기, n-뷰틸기, s-뷰틸기, 아이소뷰틸기, t-뷰틸기, n-펜틸기, n-헥실기, n-헵틸기, n-옥틸기, 하이드록시메틸기, 1-하이드록시메틸기, 2-하이드록시메틸기, 2-하이드록시아이소뷰틸기, 1,2-다이하이드록시메틸기, 1,3-다이하이드록시아이소프로필기, 2,3-다이하이드록시-t-뷰틸기, 1,2,3-트라이하이드록시프로필기, 클로로메틸기, 1-클로로에틸기, 2-클로로에틸기, 2-클로로아이소뷰틸기, 1,2-다이클로로에틸기, 1,3-다이클로로아이소프로필기, 2,3-다이클로로-t-뷰틸기, 1,2,3-트라이클로로프로필기, 브로모메틸기, 1-브로모에틸기, 2-브로모에틸기, 2-브로모아이소뷰틸기, 1,2-다이브로모에틸기, 1,3-다이브로모아이소프로필기, 2,3-다이브로모-t-뷰틸기, 1,2,3-트라이브로모프로필기, 아이오도메틸기, 1-아이오도메틸기, 2-아이오도메틸기, 2-아이오도아이소뷰틸기, 1,2-다이아이오도메틸기, 1,3-다이아이오도아이소프로필기, 2,3-다이아이오도-t-뷰틸기, 1,2,3-트라이아이오도프로필기, 아미노메틸기, 1-아미노메틸기, 2-아미노메틸기, 2-아미노아이소뷰틸기, 1,2-다이아미노메틸기, 1,3-다이아미노아이소프로필기, 2,3-다이아미노-t-뷰틸기, 1,2,3-트라이아미노프로필기, 사이아노메틸기, 1-사이아노메틸기, 2-사이아노메틸기, 2-사이아노아이소뷰틸기, 1,2-다이사이아노메틸기, 1,3-다이사이아노아이소프로필기, 2,3-다이사이아노-t-뷰틸기, 1,2,3-트라이사이아노프로필기, 나이트로메틸기, 1-나이트로메틸기, 2-나이트로메틸기, 2-나이트로아이소뷰틸기, 1,2-다이나이트로메틸기, 1,3-다이나이트로아이소프로필기, 2,3-다이나이트로-t-뷰틸기, 1,2,3-트라이나이트로프로필기 등을 들 수 있다.

[0057]  $R^1$  내지  $R^{10}$ 의 치환 또는 비치환된 사이클로알킬기의 예로서는, 예컨대 사이클로프로필기, 사이클로뷰틸기, 사이클로펜틸기, 사이클로헥실기, 4-메틸사이클로헥실기, 1-아다만틸기, 2-아다만틸기, 1-노보닐기, 2-노보닐기 등을 들 수 있다.

[0058]  $R^1$  내지  $R^{10}$ 의 치환 또는 비치환된 알콕시기는 -OY로 표시되는 기이며, Y의 예로서는 메틸기, 에틸기, 프로필기, 아이소프로필기, n-뷰틸기, s-뷰틸기, 아이소뷰틸기, t-뷰틸기, n-펜틸기, n-헥실기, n-헵틸기, n-옥틸기, 하이드록시메틸기, 1-하이드록시메틸기, 2-하이드록시메틸기, 2-하이드록시아이소뷰틸기, 1,2-다이하이드록시메틸기, 1,3-다이하이드록시아이소프로필기, 2,3-다이하이드록시-t-뷰틸기, 1,2,3-트라이하이드록시프로필기, 클로로메틸기, 1-클로로에틸기, 2-클로로에틸기, 2-클로로아이소뷰틸기, 1,2-다이클로로에틸기, 1,3-다이클로로아이소프로필기, 2,3-다이클로로-t-뷰틸기, 1,2,3-트라이클로로프로필기, 브로모메틸기, 1-브로모에틸기, 2-브로모에틸기, 2-브로모아이소뷰틸기, 1,2-다이브로모에틸기, 1,3-다이브로모아이소프로필기, 2,3-다이브로모-t-뷰틸기, 1,2,3-트라이브로모프로필기, 아이오도메틸기, 1-아이오도메틸기, 2-아이오도메틸기, 2-아이오도아이소뷰틸기, 1,2-다이아이오도메틸기, 1,3-다이아이오도아이소프로필기, 2,3-다이아이오도-t-뷰틸기, 1,2,3-트라이아이오도프로필기, 아미노메틸기, 1-아미노메틸기, 2-아미노메틸기, 2-아미노아이소뷰틸기,

1,2-다이아미노에틸기, 1,3-다이아미노아이소프로필기, 2,3-다이아미노-t-뷰틸기, 1,2,3-트라이아미노프로필기, 사이아노메틸기, 1-사이아노에틸기, 2-사이아노에틸기, 2-사이아노아이소뷰틸기, 1,2-다이사이아노에틸기, 1,3-다이사이아노아이소프로필기, 2,3-다이사이아노-t-뷰틸기, 1,2,3-트라이사이아노프로필기, 나이트로메틸기, 1-나이트로에틸기, 2-나이트로에틸기, 2-나이트로아이소뷰틸기, 1,2-다이나이트로에틸기, 1,3-다이나이트로아이소프로필기, 2,3-다이나이트로-t-뷰틸기, 1,2,3-트라이나이트로프로필기 등을 들 수 있다.

[0059]  $R^1$  내지  $R^{10}$ 의 치환 또는 비치환된 아르알킬기의 예로서는, 벤질기, 1-페닐에틸기, 2-페닐에틸기, 1-페닐아이소프로필기, 2-페닐아이소프로필기, 페닐-t-뷰틸기,  $\alpha$ -나프틸메틸기, 1- $\alpha$ -나프틸에틸기, 2- $\alpha$ -나프틸에틸기, 1- $\alpha$ -나프틸아이소프로필기, 2- $\alpha$ -나프틸아이소프로필기,  $\beta$ -나프틸메틸기, 1- $\beta$ -나프틸에틸기, 2- $\beta$ -나프틸에틸기, 1- $\beta$ -나프틸아이소프로필기, 2- $\beta$ -나프틸아이소프로필기, 1-피롤릴메틸기, 2-(1-피롤릴)에틸기, p-메틸벤질기, m-메틸벤질기, o-메틸벤질기, p-클로로벤질기, m-클로로벤질기, o-클로로벤질기, p-브로모벤질기, m-브로모벤질기, o-브로모벤질기, p-아이오도벤질기, m-아이오도벤질기, o-아이오도벤질기, p-하이드록시벤질기, m-하이드록시벤질기, o-하이드록시벤질기, p-아미노벤질기, m-아미노벤질기, o-아미노벤질기, p-나이트로벤질기, m-나이트로벤질기, o-나이트로벤질기, p-사이아노벤질기, m-사이아노벤질기, o-사이아노벤질기, 1-하이드록시-2-페닐아이소프로필기, 1-클로로-2-페닐아이소프로필기 등을 들 수 있다.

[0060]  $R^1$  내지  $R^{10}$ 의 치환 또는 비치환된 아릴옥시기는 -OY'로 표시되며, Y'의 예로서는 페닐기, 1-나프틸기, 2-나프틸기, 1-안트릴기, 2-안트릴기, 9-안트릴기, 1-페난트릴기, 2-페난트릴기, 3-페난트릴기, 4-페난트릴기, 9-페난트릴기, 1-나프타센일기, 2-나프타센일기, 9-나프타센일기, 1-피렌일기, 2-피렌일기, 4-피렌일기, 2-바이페닐일기, 3-바이페닐일기, 4-바이페닐일기, p-터페닐-4-일기, p-터페닐-3-일기, p-터페닐-2-일기, m-터페닐-4-일기, m-터페닐-3-일기, m-터페닐-2-일기, o-톨릴기, m-톨릴기, p-톨릴기, p-t-뷰틸페닐기, p-(2-페닐프로필)페닐기, 3-메틸-2-나프틸기, 4-메틸-1-나프틸기, 4-메틸-1-안트릴기, 4'-메틸바이페닐일기, 4"-t-뷰틸-p-터페닐-4-일기, 2-피롤릴기, 3-피롤릴기, 피라진일기, 2-피리딘일기, 3-피리딘일기, 4-피리딘일기, 2-인돌릴기, 3-인돌릴기, 4-인돌릴기, 5-인돌릴기, 6-인돌릴기, 7-인돌릴기, 1-아이소인돌릴기, 3-아이소인돌릴기, 4-아이소인돌릴기, 5-아이소인돌릴기, 6-아이소인돌릴기, 7-아이소인돌릴기, 2-퓨릴기, 3-퓨릴기, 2-벤조퓨란일기, 3-벤조퓨란일기, 4-벤조퓨란일기, 5-벤조퓨란일기, 6-벤조퓨란일기, 7-벤조퓨란일기, 1-아이소벤조퓨란일기, 3-아이소벤조퓨란일기, 4-아이소벤조퓨란일기, 5-아이소벤조퓨란일기, 6-아이소벤조퓨란일기, 7-아이소벤조퓨란일기, 2-퀴놀릴기, 3-퀴놀릴기, 4-퀴놀릴기, 5-퀴놀릴기, 6-퀴놀릴기, 7-퀴놀릴기, 8-퀴놀릴기, 1-아이소퀴놀릴기, 3-아이소퀴놀릴기, 4-아이소퀴놀릴기, 5-아이소퀴놀릴기, 6-아이소퀴놀릴기, 7-아이소퀴놀릴기, 8-아이소퀴놀릴기, 2-퀴녹살린일기, 5-퀴녹살린일기, 6-퀴녹살린일기, 1-카바졸릴기, 2-카바졸릴기, 3-카바졸릴기, 4-카바졸릴기, 1-페난트리딘일기, 2-페난트리딘일기, 3-페난트리딘일기, 4-페난트리딘일기, 6-페난트리딘일기, 7-페난트리딘일기, 8-페난트리딘일기, 9-페난트리딘일기, 10-페난트리딘일기, 1-아크리딘일기, 2-아크리딘일기, 3-아크리딘일기, 4-아크리딘일기, 9-아크리딘일기, 1,7-페난트롤린-2-일기, 1,7-페난트롤린-3-일기, 1,7-페난트롤린-4-일기, 1,7-페난트롤린-5-일기, 1,7-페난트롤린-6-일기, 1,7-페난트롤린-8-일기, 1,7-페난트롤린-9-일기, 1,7-페난트롤린-10-일기, 1,8-페난트롤린-2-일기, 1,8-페난트롤린-3-일기, 1,8-페난트롤린-4-일기, 1,8-페난트롤린-5-일기, 1,8-페난트롤린-6-일기, 1,8-페난트롤린-7-일기, 1,8-페난트롤린-9-일기, 1,8-페난트롤린-10-일기, 1,9-페난트롤린-2-일기, 1,9-페난트롤린-3-일기, 1,9-페난트롤린-4-일기, 1,9-페난트롤린-5-일기, 1,9-페난트롤린-6-일기, 1,9-페난트롤린-7-일기, 1,9-페난트롤린-8-일기, 1,9-페난트롤린-10-일기, 1,10-페난트롤린-2-일기, 1,10-페난트롤린-3-일기, 1,10-페난트롤린-4-일기, 1,10-페난트롤린-5-일기, 2,9-페난트롤린-1-일기, 2,9-페난트롤린-3-일기, 2,9-페난트롤린-4-일기, 2,9-페난트롤린-5-일기, 2,9-페난트롤린-6-일기, 2,9-페난트롤린-7-일기, 2,9-페난트롤린-8-일기, 2,9-페난트롤린-10-일기, 2,8-페난트롤린-1-일기, 2,8-페난트롤린-3-일기, 2,8-페난트롤린-4-일기, 2,8-페난트롤린-5-일기, 2,8-페난트롤린-6-일기, 2,8-페난트롤린-7-일기, 2,8-페난트롤린-9-일기, 2,8-페난트롤린-10-일기, 2,7-페난트롤린-1-일기, 2,7-페난트롤린-3-일기, 2,7-페난트롤린-4-일기, 2,7-페난트롤린-5-일기, 2,7-페난트롤린-6-일기, 2,7-페난트롤린-8-일기, 2,7-페난트롤린-9-일기, 2,7-페난트롤린-10-일기, 1-페나진일기, 2-페나진일기, 1-페노싸이아진일기, 2-페노싸이아진일기, 3-페노싸이아진일기, 4-페노싸이아진일기, 1-페녹사진일기, 2-페녹사진일기, 3-페녹사진일기, 4-페녹사진일기, 2-옥사졸릴기, 4-옥사졸릴기, 5-옥사졸릴기, 2-옥사다이하졸릴기, 5-옥사다이하졸릴기, 3-푸라잔일기, 2-싸이엔일기, 3-싸이엔일기, 2-메틸피롤-1-일기, 2-메틸바이롤-3-일기, 2-메틸피롤-4-일기, 2-메틸피롤-5-일기, 3-메틸피롤-1-일기, 3-메틸피롤-2-일기, 3-메틸피롤-4-일기, 3-메틸피롤-5-일기, 2-t-뷰틸피롤-4-일기, 3-(2-페닐프로필)피롤-1-일기, 2-메틸-1-인돌릴기, 4-메틸-1-인돌릴기, 2-메틸-3-인돌릴기, 4-메틸-3-인돌릴기, 2-t-뷰틸-1-인돌릴기, 4-t-뷰틸-1-인돌릴기, 2-t-뷰틸-3-인돌릴기, 4-t-뷰틸-3-인돌릴기 등을 들 수 있다.

[0061]  $R^1$  내지  $R^{10}$ 의 치환 또는 비치환된 아릴싸이오기는 -SY''로 표시되며, Y''의 예로서는 페닐기, 1-나프틸기, 2-나프틸기, 1-안트릴기, 2-안트릴기, 9-안트릴기, 1-페난트릴기, 2-페난트릴기, 3-페난트릴기, 4-페난트릴기, 9-페난트릴기, 1-나프타센일기, 2-나프타센일기, 9-나프타센일기, 1-피렌일기, 2-피렌일기, 4-피렌일기, 2-바이페닐일기, 3-바이페닐일기, 4-바이페닐일기, p-터페닐-4-일기, p-터페닐-3-일기, p-터페닐-2-일기, m-터페닐-4-일기, m-터페닐-3-일기, m-터페닐-2-일기, o-톨릴기, m-톨릴기, p-톨릴기, p-t-뷰틸페닐기, p-(2-페닐프로필)페닐기, 3-메틸-2-나프틸기, 4-메틸-1-나프틸기, 4-메틸-1-안트릴기, 4'-메틸바이페닐일기, 4"-t-뷰틸-p-터페닐-4-일기, 2-피롤릴기, 3-피롤릴기, 피라진일기, 2-피리딘일기, 3-피리딘일기, 4-피리딘일기, 2-인돌릴기, 3-인돌릴기, 4-인돌릴기, 5-인돌릴기, 6-인돌릴기, 7-인돌릴기, 1-아이소인돌릴기, 3-아이소인돌릴기, 4-아이소인돌릴기, 5-아이소인돌릴기, 6-아이소인돌릴기, 7-아이소인돌릴기, 2-퓨릴기, 3-퓨릴기, 2-벤조퓨란일기, 3-벤조퓨란일기, 4-벤조퓨란일기, 5-벤조퓨란일기, 6-벤조퓨란일기, 7-벤조퓨란일기, 1-아이소벤조퓨란일기, 3-아이소벤조퓨란일기, 4-아이소벤조퓨란일기, 5-아이소벤조퓨란일기, 6-아이소벤조퓨란일기, 7-아이소벤조퓨란일기, 2-퀴놀릴기, 3-퀴놀릴기, 4-퀴놀릴기, 5-퀴놀릴기, 6-퀴놀릴기, 7-퀴놀릴기, 8-퀴놀릴기, 1-아이소퀴놀릴기, 3-아이소퀴놀릴기, 4-아이소퀴놀릴기, 5-아이소퀴놀릴기, 6-아이소퀴놀릴기, 7-아이소퀴놀릴기, 8-아이소퀴놀릴기, 2-퀴녹살린일기, 5-퀴녹살린일기, 6-퀴녹살린일기, 1-카바졸릴기, 2-카바졸릴기, 3-카바졸릴기, 4-카바졸릴기, 1-페난트리딘일기, 2-페난트리딘일기, 3-페난트리딘일기, 4-페난트리딘일기, 6-페난트리딘일기, 7-페난트리딘일기, 8-페난트리딘일기, 9-페난트리딘일기, 10-페난트리딘일기, 1-아크리딘일기, 2-아크리딘일기, 3-아크리딘일기, 4-아크리딘일기, 9-아크리딘일기, 1,7-페난트롤린-2-일기, 1,7-페난트롤린-3-일기, 1,7-페난트롤린-4-일기, 1,7-페난트롤린-5-일기, 1,7-페난트롤린-6-일기, 1,7-페난트롤린-8-일기, 1,7-페난트롤린-9-일기, 1,7-페난트롤린-10-일기, 1,8-페난트롤린-2-일기, 1,8-페난트롤린-3-일기, 1,8-페난트롤린-4-일기, 1,8-페난트롤린-5-일기, 1,8-페난트롤린-6-일기, 1,8-페난트롤린-7-일기, 1,8-페난트롤린-9-일기, 1,8-페난트롤린-10-일기, 1,9-페난트롤린-2-일기, 1,9-페난트롤린-3-일기, 1,9-페난트롤린-4-일기, 1,9-페난트롤린-5-일기, 1,9-페난트롤린-6-일기, 1,9-페난트롤린-7-일기, 1,9-페난트롤린-8-일기, 1,9-페난트롤린-10-일기, 1,10-페난트롤린-2-일기, 1,10-페난트롤린-3-일기, 1,10-페난트롤린-4-일기, 1,10-페난트롤린-5-일기, 2,9-페난트롤린-1-일기, 2,9-페난트롤린-3-일기, 2,9-페난트롤린-4-일기, 2,9-페난트롤린-5-일기, 2,9-페난트롤린-6-일기, 2,9-페난트롤린-7-일기, 2,9-페난트롤린-8-일기, 2,9-페난트롤린-10-일기, 2,8-페난트롤린-1-일기, 2,8-페난트롤린-3-일기, 2,8-페난트롤린-4-일기, 2,8-페난트롤린-5-일기, 2,8-페난트롤린-6-일기, 2,8-페난트롤린-7-일기, 2,8-페난트롤린-9-일기, 2,8-페난트롤린-10-일기, 2,7-페난트롤린-1-일기, 2,7-페난트롤린-3-일기, 2,7-페난트롤린-4-일기, 2,7-페난트롤린-5-일기, 2,7-페난트롤린-6-일기, 2,7-페난트롤린-8-일기, 2,7-페난트롤린-9-일기, 2,7-페난트롤린-10-일기, 1-페나진일기, 2-페나진일기, 1-페노싸이아진일기, 2-페노싸이아진일기, 3-페노싸이아진일기, 4-페노싸이아진일기, 1-페녹사진일기, 2-페녹사진일기, 3-페녹사진일기, 4-페녹사진일기, 2-옥사졸릴기, 4-옥사졸릴기, 5-옥사졸릴기, 2-옥사다이하졸릴기, 5-옥사다이하졸릴기, 3-퓨라잔일기, 2-싸이엔일기, 3-싸이엔일기, 2-메틸피롤-1-일기, 2-메틸피롤-3-일기, 2-메틸피롤-4-일기, 2-메틸피롤-5-일기, 3-메틸피롤-1-일기, 3-메틸피롤-2-일기, 3-메틸피롤-4-일기, 3-메틸피롤-5-일기, 2-t-뷰틸피롤-4-일기, 3-(2-페닐프로필)피롤-1-일기, 2-메틸-1-인돌릴기, 4-메틸-1-인돌릴기, 2-메틸-3-인돌릴기, 4-메틸-3-인돌릴기, 2-t-뷰틸-1-인돌릴기, 4-t-뷰틸-1-인돌릴기, 2-t-뷰틸-3-인돌릴기, 4-t-뷰틸-3-인돌릴기 등을 들 수 있다.

[0062]  $R^1$  내지  $R^{10}$ 의 치환 또는 비치환된 알콕시카보닐기는 -COOZ로 표시되며, Z의 예로서는 메틸기, 에틸기, 프로필기, 아이소프로필기, n-뷰틸기, s-뷰틸기, 아이소뷰틸기, t-뷰틸기, n-헨틸기, n-헥실기, n-헵틸기, n-옥틸기, 하이드록시메틸기, 1-하이드록시에틸기, 2-하이드록시에틸기, 2-하이드록시아이소뷰틸기, 1,2-다이하이드록시에틸기, 1,3-다이하이드록시아이소프로필기, 2,3-다이하이드록시-t-뷰틸기, 1,2,3-트라이하이드록시프로필기, 클로로메틸기, 1-클로로에틸기, 2-클로로에틸기, 2-클로로아이소뷰틸기, 1,2-다이클로로에틸기, 1,3-다이클로로아이소프로필기, 2,3-다이클로로-t-뷰틸기, 1,2,3-트라이클로로프로필기, 브로모메틸기, 1-브로모에틸기, 2-브로모에틸기, 2-브로모아이소뷰틸기, 1,2-다이브로모에틸기, 1,3-다이브로모아이소프로필기, 2,3-다이브로모-t-뷰틸기, 1,2,3-트라이브로모프로필기, 아이오도메틸기, 1-아이오도에틸기, 2-아이오도에틸기, 2-아이오도아이소뷰틸기, 1,2-다이아이오도에틸기, 1,3-다이아이오도아이소프로필기, 2,3-다이아이오도-t-뷰틸기, 1,2,3-트라이아이오도프로필기, 아미노메틸기, 1-아미노에틸기, 2-아미노에틸기, 2-아미노아이소뷰틸기, 1,2-다이아미노에틸기, 1,3-다이아미노아이소프로필기, 2,3-다이아미노-t-뷰틸기, 1,2,3-트리아미노프로필기, 사이아노메틸기, 1-사이아노에틸기, 2-사이아노에틸기, 2-사이아노아이소뷰틸기, 1,2-다이사이아노에틸기, 1,3-다이사이아노아이소프로필기, 2,3-다이사이아노-t-뷰틸기, 1,2,3-트라이사이아노프로필기, 나이트로메틸기, 1-나이트로에틸기, 2-나이트로에틸기, 2-나이트로아이소뷰틸기, 1,2-다이나이트로에틸기, 1,3-다이나이트로아이소프로필기,

2,3-다이나이트로-t-뷰틸기, 1,2,3-트라이나이트로프로필기 등을 들 수 있다.

[0063]  $R^1$  내지  $R^{10}$ 의 할로젠원자로서는 불소, 염소, 브롬, 요오드 등을 들 수 있다.

[0064] 상기  $Ar^1$ ,  $Ar^2$  및  $R^1$  내지  $R^{10}$ 이 나타내는 기에 있어서의 치환기로서는, 할로젠원자, 하이드록실기, 나이트로기, 사이아노기, 알킬기, 아릴기, 사이클로알킬기, 알콕시기, 아르알킬기, 아릴옥시기, 아릴싸이오기, 알콕시카보닐기 또는 카복실기 등을 들 수 있다.

[0065]  $Ar^1$ ,  $Ar^2$ ,  $R^9$  및  $R^{10}$ 은 각각 복수일 수 있고, 인접하는 것끼리 포화 또는 불포화의 환상 구조를 형성할 수 있으며, 환상 구조로서는 벤젠환 등의 불포화 6원환 외에 포화 또는 불포화 5원환 또는 7원환 구조 등을 들 수 있다.

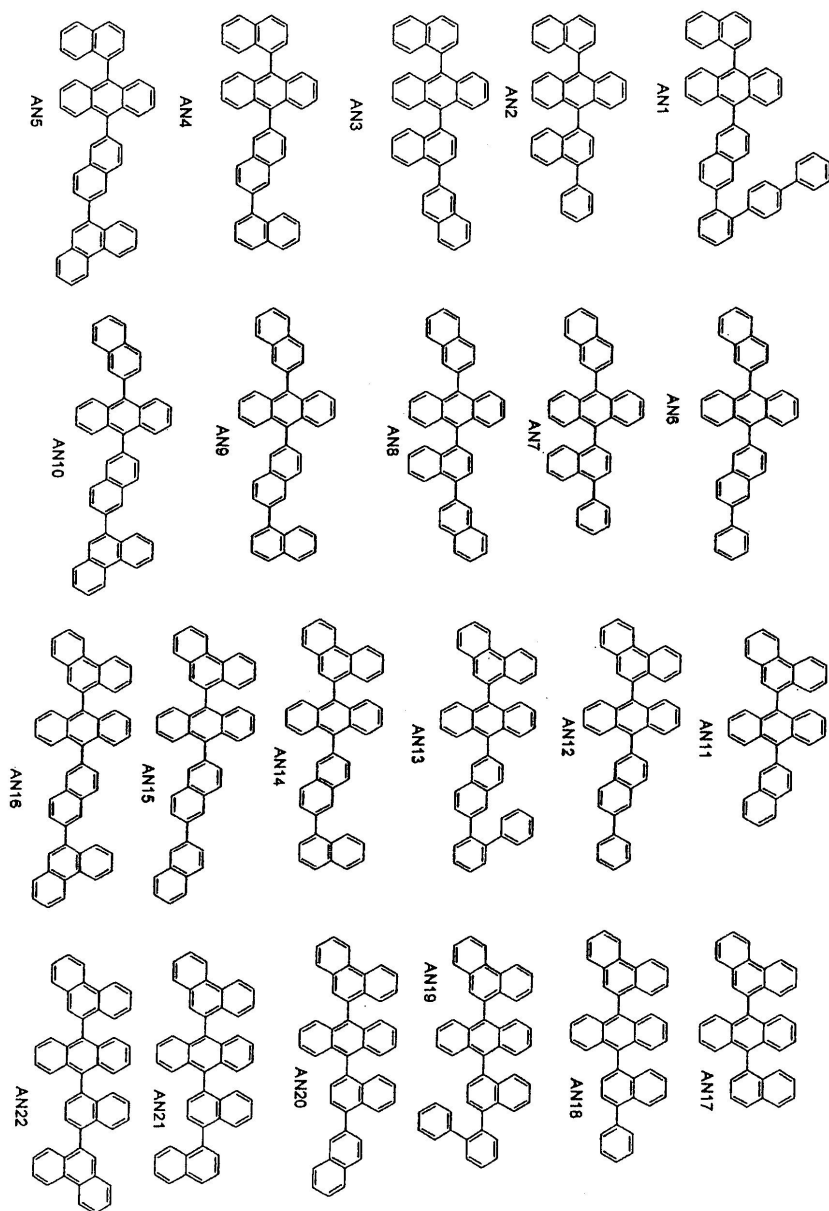
[0066] 또한, 본 발명에 있어서, 상기 화학식 1로 표시되는 비대칭 안트라센 유도체가 4위치에 치환기를 갖는 나프탈렌-1-일기, 및/또는 치환 또는 비치환된 핵탄소수 12 내지 20의 축합 방향족 탄화수소환기를 가지면 바람직하다. 이 치환기로서는 상기  $Ar^1$ ,  $Ar^2$  및  $R^1$  내지  $R^{10}$ 이 나타내는 기에 있어서의 치환기와 같은 것을 들 수 있다.

[0067] 본 발명의 유기 EL 소자용 재료는 상기 화학식 1'로 표시되는 비대칭 안트라센 유도체로 이루어진다.

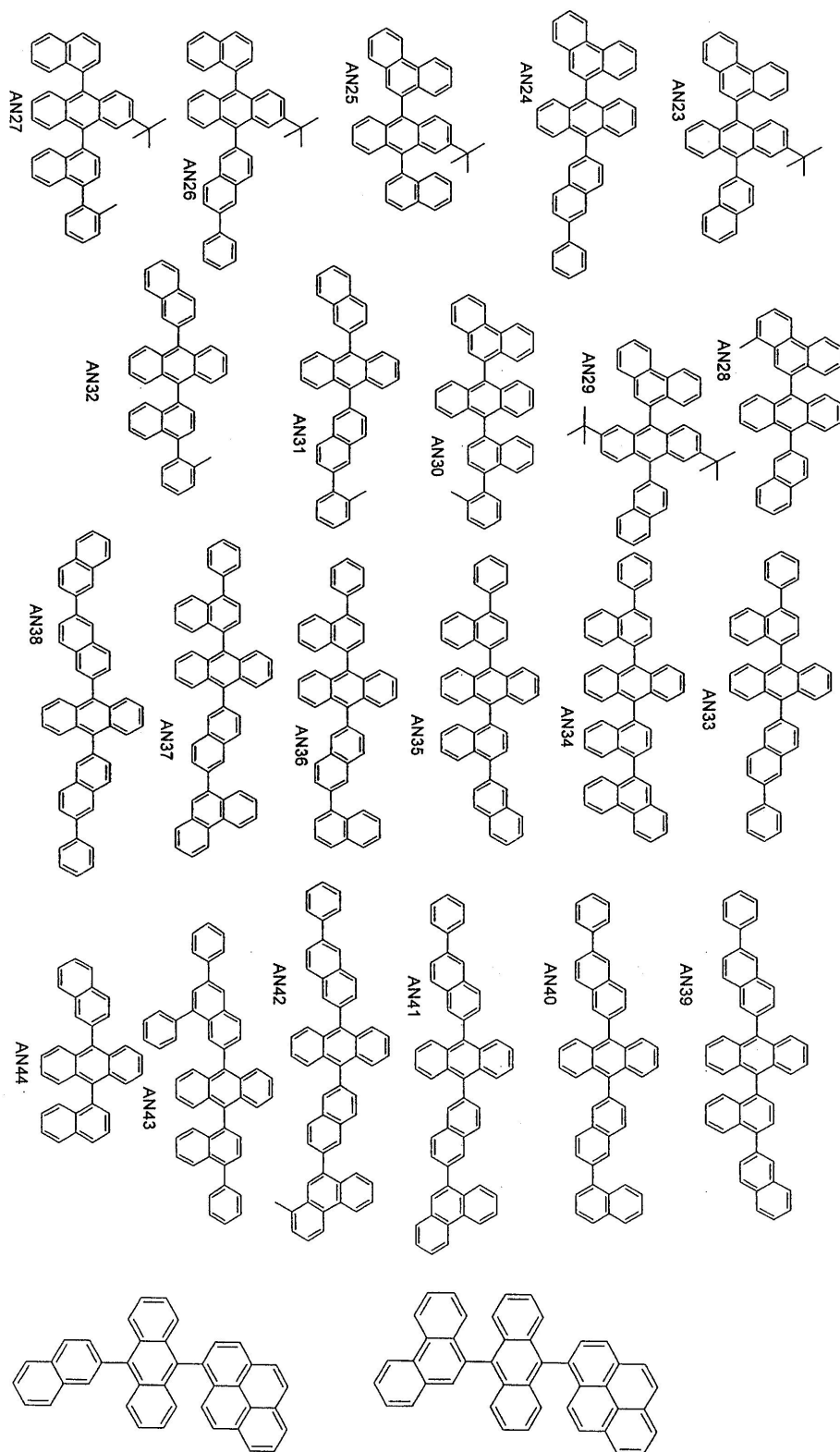
[0068] 화학식 1'는 상기 화학식 1에 있어서,  $A^{1'}$  및  $A^{2'}$ 가 각각 독립적으로 치환 또는 비치환된 핵탄소수 10 내지 20의 축합 방향족 탄화수소환기이며,  $A^{1'}$  및  $A^{2'}$  중 적어도 하나는 4위치에 치환기를 갖는 나프탈렌-1-일기 또는 치환 또는 비치환된 핵탄소수 12 내지 20의 축합 방향족 탄화수소환기이면 한정되지 않으며,  $Ar^1$ ,  $Ar^2$ ,  $R^1$  내지  $R^{10}$ 은 각각 독립적으로 상기와 같기 때문에, 이들 각 기의 구체예, 바람직한 기 및 치환기의 예는 상기에서 설명한 것과 같다. 또한, 화학식 1과 마찬가지로 화학식 1'에 있어서, 중심의 안트라센의 9위치 및 10위치에 상기 안트라센 상에 표시된 X-Y축에 대하여 대칭형이 되는 기가 결합하는 경우는 없다.

[0069] 화학식 1'는 화학식 1에 포함되므로, 이하 단지 화학식 1이라 한 경우에는 화학식 1'도 포함한다.

[0070] 본 발명에 있어서의 화학식 1로 표시되는 비대칭 안트라센 유도체의 구체예를 이하에 나타내지만, 이들 예시 화합물에 한정되는 것은 아니다.



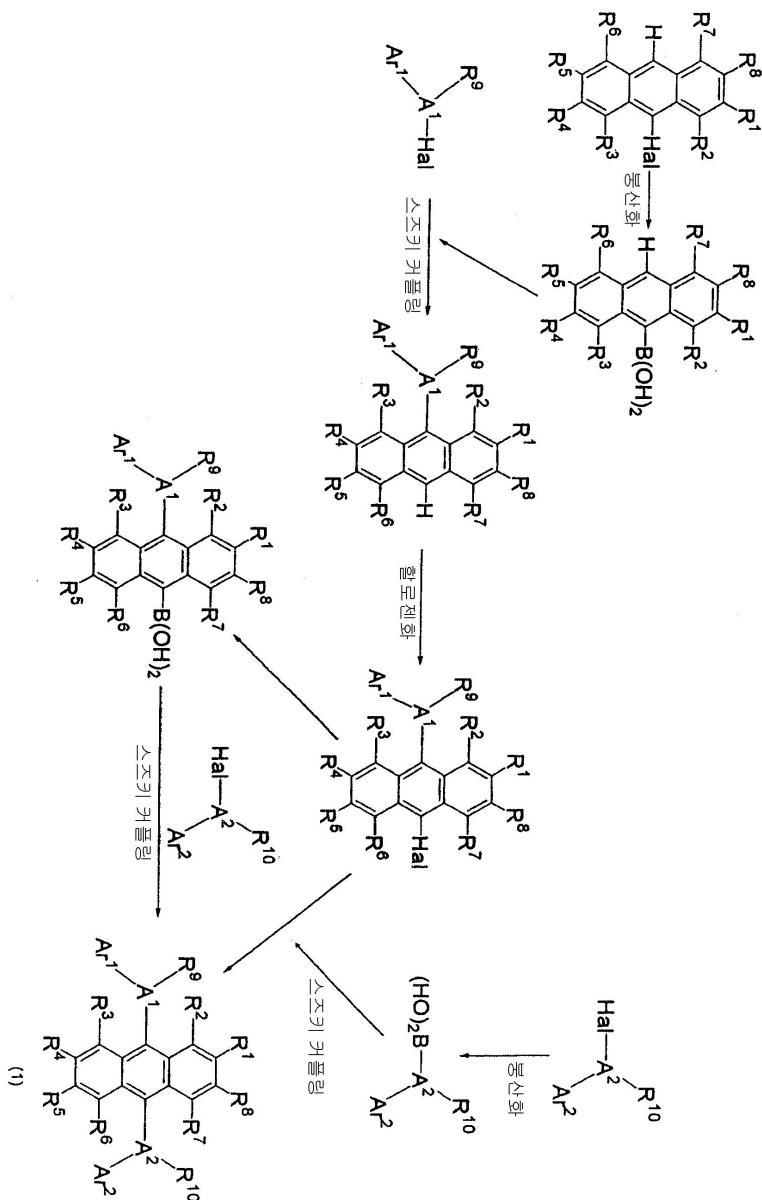
[0071]



AN45

AN46

본 발명의 화학식 1로 표시되는 비대칭 안트라센 유도체는 공지된 방법에 의해 할로젠화아릴 화합물과 안트라센 보론산 화합물을 출발 원료로 하고 스즈키 커플링 반응·할로젠화 반응·붕산화 반응을 적절히 조합하여 합성할 수 있다. 이하에 그 합성 반응식을 나타낸다.



[0075]

[0076]

스즈키 커플링 반응은 지금까지 수많은 보고되어 있고 문헌 '(Chem. Rev., Vol.95, No.7, 2457(1995))' 등), 이들에 기재된 반응 조건으로 실시할 수 있다.

[0077]

반응은 보통 상압하에 질소, 아르곤, 헬륨 등의 불활성 분위기 하에서 실시되지만, 필요에 따라 가압 조건하에 실시할 수도 있다. 반응 온도는 15 내지 300℃의 범위이지만, 특히 바람직하게는 30 내지 200℃이다.

[0078]

반응 용매로서는, 물, 벤젠, 톨루엔, 자일렌 등의 방향족 탄화수소류, 1,2-다이메톡시에테인, 다이에틸에터, 메틸-t-부틸에터, 테트라하이드로퓨란, 다이옥세인 등의 에테르류, 펜테인, 헥세인, 헵테인, 옥테인, 사이클로헥세인 등의 포화 탄화수소류, 다이클로로메테인, 클로로폼, 4염화탄소, 1,2-다이클로로에테인, 1,1,1-트라이클로로에테인 등의 할로젠류, 아세트나이트릴, 벤조나이트릴 등의 나이트릴류, 아세트산에틸, 아세트산메틸, 아세트산부틸 등의 에스테르류, N,N-다이메틸폼아마이드, N,N-다이메틸아세트아마이드, N-메틸피롤리돈 등의 아마이드류 등을 단독으로 또는 혼합하여 사용할 수 있다. 이들 중에서, 바람직하게는 톨루엔, 1,2-다이메톡시에테인, 다이옥세인 및 물이다. 용매의 사용량은 아릴보론산 또는 그 유도체에 대하여 보통 3 내지 50중량배, 바람직하게는 4 내지 20중량배이다.

[0079]

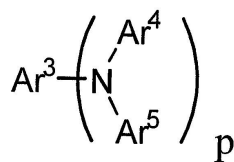
반응에 이용하는 염기로서는, 예컨대 탄산나트륨, 탄산칼륨, 수산화나트륨, 수산화칼륨, 탄산수소나트륨, 탄산수소칼륨, 탄산마그네슘, 탄산리튬, 불화칼륨, 불화세슘, 염화세슘, 브롬화세슘, 탄산세슘, 인산칼륨, 메톡시나트륨, t-부톡시칼륨, t-부톡시나트륨, t-부톡시리튬 등을 들 수 있고, 바람직하게는 탄산나트륨이다. 이들 염기의 사용량은 아릴보론산 또는 그 유도체에 대하여 보통 0.7 내지 10몰당량, 바람직하게는 0.9 내지 6몰당량이

다.

- [0080] 반응에 이용하는 촉매로서는, 예컨대 테트라키스(트라이페닐포스핀)팔라듐, 다이클로로비스(트라이페닐포스핀)팔라듐, 다이클로로[비스(다이페닐포스피노)에테인]팔라듐, 다이클로로[비스(다이페닐포스피노)프로페인]팔라듐, 다이클로로[비스(다이페닐포스피노)뷰테인]팔라듐, 다이클로로[비스(다이페닐포스피노)펠로센]팔라듐 등의 팔라듐 촉매, 테트라키스(트라이페닐포스핀)니켈, 다이클로로비스(트라이페닐포스핀)니켈, 다이클로로[비스(다이페닐포스피노)에테인]니켈, 다이클로로[비스(다이페닐포스피노)프로페인]니켈, 다이클로로[비스(다이페닐포스피노)뷰테인]니켈, 다이클로로[비스(다이페닐포스피노)펠로센]니켈 등의 니켈 촉매 등을 들 수 있고, 바람직하게는 테트라키스(트라이페닐포스핀)팔라듐이다. 이들 촉매의 사용량은 할로젠화아릴 화합물에 대하여 보통 0.001 내지 1몰당량, 바람직하게는 0.01 내지 0.1몰당량이다.
- [0081] 할로젠화 아릴 화합물의 할로젠으로서, 예컨대 요오드원자, 브롬원자, 염소원자 등을 들 수 있고, 바람직하게는 요오드원자 및 브롬원자이다.
- [0082] 할로젠화 반응에 있어서의 할로젠화제는 특별히 한정되지 않지만, 예컨대 N-할로젠화 석신산 이미드가 적합하게 사용된다. 할로젠화제의 사용량은 아릴화합물에 대하여 보통 0.8 내지 10몰당량, 바람직하게는 1 내지 5몰당량이다.
- [0083] 반응은 보통 질소, 아르곤, 헬륨 등의 불활성 분위기하에 불활성 용매 중에서 실시된다. 사용되는 불활성 용매로서는, 예컨대 N,N-다이메틸폼아마이드, N,N-다이메틸아세트아마이드, N-메틸피롤리돈, 다이메틸설폭사이드, 4-염화탄소, 클로로벤젠, 다이클로로벤젠, 나이트로벤젠, 톨루엔, 자일렌메틸셀로솔브, 에틸셀로솔브, 물 등을 들 수 있고, 바람직하게는 N,N-다이메틸폼아마이드, N-메틸피롤리돈이다. 용매의 사용량은 아릴 화합물에 대하여 보통 3 내지 50중량배, 바람직하게는 5 내지 20중량배이다. 반응 온도는 보통 0℃ 내지 200℃에서 실시되고, 바람직하게는 20℃ 내지 120℃이다.
- [0084] 붕산화 반응은 기지의 방법(문헌 '일본화학회편·실험화학강좌 제4권 24권 61~90페이지' 및 문헌 'J. Org. Chem., Vol.60, 7508(1995)' 등)에 의해 실시하는 것이 가능하다. 예컨대, 할로젠화 아릴 화합물의 리티오화(lithiation) 또는 그리냐르 반응을 경유하는 반응의 경우 보통 질소, 아르곤, 헬륨 등의 불활성 분위기 하에서 실시되며, 반응 용매로서는 불활성 용매가 사용된다. 예컨대, 펜테인, 헥세인, 헵테인, 옥테인, 사이클로헥세인 등의 포화 탄화수소류, 1,2-다이메톡시에테인, 다이에틸에터, 메틸-t-뷰틸에터, 테트라하이드로퓨란, 다이옥세인 등의 에터류, 벤젠, 톨루엔, 자일렌 등의 방향족 탄화수소류를 단독으로 또는 혼합 용매로서 이용할 수 있고, 바람직하게는 다이에틸에터 및 톨루엔이다. 용매의 사용량은 할로젠화 아릴 화합물에 대하여 보통 3 내지 50중량배, 바람직하게는 4 내지 20중량배이다.
- [0085] 리티오화제로서는, 예컨대 n-뷰틸리튬, t-뷰틸리튬, 페닐리튬, 메틸리튬 등의 알킬 금속 시약, 리튬다이아이소프로필아마이드, 리튬비스트라이메틸실릴아마이드 등의 아마이드 염기를 이용할 수 있고, 바람직하게는 n-뷰틸리튬이다. 또한, 그리냐르 시약은 할로젠화 아릴 화합물과 금속 마그네슘의 반응에 의해 제조할 수 있다. 붕산화제인 붕산트라이알킬로서는, 예컨대 붕산트라이메틸, 붕산트라이에틸, 붕산트라이아이소프로필, 붕산트라이뷰틸 등을 사용할 수 있고, 바람직하게는 붕산트라이메틸 및 붕산트라이아이소프로필이다.
- [0086] 리티오화제 및 금속 마그네슘의 사용량은 각각 할로젠화 아릴 화합물에 대하여 보통 1 내지 10몰당량, 바람직하게는 1 내지 2몰당량이며, 붕산트라이알킬의 사용량은 할로젠화 아릴 화합물에 대하여 보통 1 내지 10몰당량, 바람직하게는 1 내지 5몰당량이다. 반응 온도는 보통 -100 내지 50℃, 바람직하게는 -75 내지 10℃이다.
- [0087] 본 발명의 유기 EL 소자는 음극과 양극 사이에 적어도 발광층을 포함하는 일층 또는 복수층으로 이루어지는 유기 박막층이 형성되어 있는 유기 EL 소자에 있어서, 상기 유기 박막층 중 적어도 한 층이 상기 유기 EL 소자용 발광 재료 또는 유기 EL 소자용 재료를 단독으로 또는 혼합물의 성분으로서 함유한다.
- [0088] 상기 발광층이 상기 유기 EL 소자용 발광 재료 또는 유기 EL 소자용 재료를 단독으로 또는 혼합물의 성분으로서 함유하면 바람직하다.
- [0089] 상기 유기 박막층이 상기 유기 EL 소자용 발광 재료 또는 유기 EL 소자용 재료를 호스트 재료로서 함유하면 바람직하다.
- [0090] 또한, 본 발명의 유기 EL 소자는 상기 발광층이 추가로 아릴아민 화합물 및/또는 스타이릴아민 화합물을 함유하면 바람직하다.

[0091] 스타이릴아민 화합물로서는 하기 화학식 A로 표시되는 것이 바람직하다.

[0092] <화학식 A>



[0093]

[0094] 상기 식에서,

[0095]  $\text{Ar}^3$ 은 페닐기, 바이페닐기, 터페닐기, 스틸벤기 또는 다이스타이릴아릴기로부터 선택되는 기이고,

[0096]  $\text{Ar}^4$  및  $\text{Ar}^5$ 는 각각 수소원자 또는 탄소수가 6 내지 20인 방향족 탄화수소환기이고,

[0097]  $\text{Ar}^3$ ,  $\text{Ar}^4$  및  $\text{Ar}^5$ 는 치환될 수 있으며,

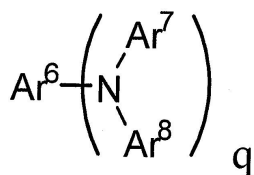
[0098] p는 1 내지 4의 정수이고,

[0099] 더욱 바람직하게는  $\text{Ar}^4$  및  $\text{Ar}^5$  중 적어도 하나는 스타이릴기로 치환되어 있다.

[0100] 여기서, 탄소수가 6 내지 20인 방향족 탄화수소환기로서는 페닐기, 나프틸기, 안트라닐기, 페난트릴기, 터페닐기 등을 들 수 있다.

[0101] 아릴아민 화합물로서는 하기 화학식 B로 표시되는 것이 바람직하다.

[0102] <화학식 B>



[0103]

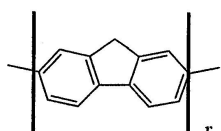
[0104] 상기 식에서,

[0105]  $\text{Ar}^6$  내지  $\text{Ar}^8$ 은 치환 또는 비치환된 핵탄소수 5 내지 40의 아릴기이고,

[0106] q는 1 내지 4의 정수이다.

[0107] 여기서, 핵탄소수가 5 내지 40인 아릴기로서는, 예컨대 페닐기, 나프틸기, 안트라닐기, 페난트릴기, 피렌일기, 코로닐기, 바이페닐기, 터페닐기, 피롤릴기, 퓨란일기, 싸이오페닐기, 벤조싸이오페닐기, 옥사다이아졸릴기, 다이페닐안트라닐기, 인돌릴기, 카바졸릴기, 피리딜기, 벤조퀴놀릴기, 플루오란텐일기, 아세나프트플루오란텐일기, 스틸벤기, 페릴렌일기, 크리센일기, 피센일기, 트라이페닐렌일기, 루비센일기, 벤조안트라센일기, 페닐안트라닐기, 비스안트라센일기, 또는 하기 화학식 C 및 D로 표시되는 아릴기 등을 들 수 있다.

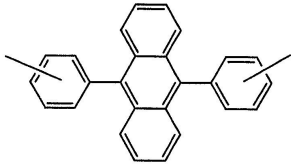
[0108] <화학식 C>



[0109]

[0110] 상기 식에서, r은 1 내지 3의 정수이다.

[0111] <화학식 D>



[0112]

[0113] 한편, 상기 아릴기의 바람직한 치환기로서는, 탄소수 1 내지 6의 알킬기(에틸기, 메틸기, i-프로필기, n-프로필기, s-뷰틸기, t-뷰틸기, 펜틸기, 헥실기, 사이클로펜틸기, 사이클로헥실기 등), 탄소수 1 내지 6의 알콕시기(에톡시기, 메톡시기, i-프로폭시기, n-프로폭시기, s-뷰톡시기, t-뷰톡시기, 펜톡시기, 헥실옥시기, 사이클로펜톡시기, 사이클로헥실옥시기 등), 핵원자수 5 내지 40의 아릴기, 핵원자수 5 내지 40의 아릴기로 치환된 아미노기, 핵원자수 5 내지 40의 아릴기를 갖는 에스테르기, 탄소수 1 내지 6의 알킬기를 갖는 에스테르기, 사이아노기, 나이트로기, 할로젠원자 등을 들 수 있다.

[0114]  $Ar^5$ 는 특히 바람직하게는 각각 치환 또는 비치환된 나프틸기, 안트라닐기, 크라이센일기, 피렌일기, 또는 화학식 D로 표시되는 아릴기이다.

[0115] 이하, 본 발명의 유기 EL 소자의 소자 구성에 대하여 설명한다.

[0116] 본 발명의 유기 EL 소자의 대표적인 소자 구성으로서는,

[0117] (1) 양극/발광층/음극

[0118] (2) 양극/정공 주입층/발광층/음극

[0119] (3) 양극/발광층/전자 주입층/음극

[0120] (4) 양극/정공 주입층/발광층/전자 주입층/음극

[0121] (5) 양극/유기 반도체층/발광층/음극

[0122] (6) 양극/유기 반도체층/전자 장벽층/발광층/음극

[0123] (7) 양극/유기 반도체층/발광층/부착 개선층/음극

[0124] (8) 양극/정공 주입층/정공 수송층/발광층/전자 주입층/음극

[0125] (9) 양극/절연층/발광층/절연층/음극

[0126] (10) 양극/무기 반도체층/절연층/발광층/절연층/음극

[0127] (11) 양극/유기 반도체층/절연층/발광층/절연층/음극

[0128] (12) 양극/절연층/정공 주입층/정공 수송층/발광층/절연층/음극

[0129] (13 )양극/절연층/정공 주입층/정공 수송층/발광층/전자 주입층/음극

[0130] 등의 구조를 들 수 있다.

[0131] 이들 중 보통 (8)의 구성이 바람직하게 사용되지만, 이들에 한정되는 것은 아니다.

[0132] 이 유기 EL 소자는 보통 투광성 기판 상에 제작된다. 이 투광성 기판은 유기 EL 소자를 지지하는 기판이며, 그 투광성에 관해서는 400 내지 700nm의 가시영역의 광투과율이 50% 이상인 것이 바람직하고, 또한 평활한 기판을 이용하는 것이 바람직하다.

[0133] 이러한 투광성 기판으로서는, 예컨대 유리판, 합성 수지판 등이 적합하게 사용된다. 유리판으로서는, 특히 소다석회유리, 바륨·스트론튬 함유 유리, 납유리, 알루미늄노규산 유리, 붕규산유리, 바륨붕규산 유리, 석영 등으로 성형된 판을 들 수 있다. 또한, 합성 수지판으로서는, 폴리카보네이트 수지, 아크릴 수지, 폴리에틸렌테레프탈레이트 수지, 폴리에테르설파이드 수지, 폴리설폰 수지 등의 판을 들 수 있다.

[0134] 다음으로, 양극은 정공을 정공 수송층 또는 발광층에 주입하는 역할을 맡은 것이며, 4.5 eV 이상의 일함수를 갖는 것이 효과적이다. 본 발명에 사용되는 양극 재료의 구체예로서는, 산화인듐주석합금(ITO), 산화주석(NESA), 금, 은, 백금, 구리 등을 적용할 수 있다. 또한, 음극으로서는 전자 수송층 또는 발광층에 전자를 주입할 목적

으로 일함수가 작은 재료가 바람직하다.

[0135] 양극은 이들의 전극 물질을 증착법이나 스퍼터링법 등의 방법으로 박막을 형성시킴으로써 제작할 수 있다.

[0136] 이와 같이 발광층으로부터의 발광을 양극으로부터 추출하는 경우, 양극의 발광에 대한 투과율이 10%보다 크게 하는 것이 바람직하다. 또한, 양극의 시트 저항은, 수백  $\Omega/\square$  이하가 바람직하다. 양극의 막 두께는 재료에 따르지만, 보통 10nm 내지 1 $\mu\text{m}$ , 바람직하게는 10 내지 200nm의 범위에서 선택된다.

[0137] 본 발명의 유기 EL 소자에 있어서 발광층은,

[0138] (i) 주입 기능: 전계 인가시에 양극 또는 정공 주입층으로부터 정공을 주입할 수 있고, 음극 또는 전자 주입층으로부터 전자를 주입할 수 있는 기능,

[0139] (ii) 수송 기능: 주입한 전하(전자와 정공)를 전계의 힘으로 이동시키는 기능, 및

[0140] (iii) 발광 기능: 전자와 정공의 재결합 장소를 제공하고, 이것을 발광에 연결시키는 기능을 갖는다.

[0141] 이 발광층을 형성하는 방법으로서, 예컨대 증착법, 스핀 코팅법, LB법 등의 공지된 방법을 적용할 수 있다. 발광층은 특히 분자 퇴적막인 것이 바람직하다. 여기서, 분자 퇴적막이란 기상 상태의 재료 화합물로부터 침착되어 형성된 박막, 또는 용액 상태 또는 액상 상태의 재료 화합물로부터 고체화되어 형성된 막이며, 보통 이 분자 퇴적막은 LB법에 의해 형성된 박막(분자 누적막)과는 응집 구조 및 고차 구조의 차이, 및 이에 기인하는 기능적인 차이에 의해 구분할 수 있다.

[0142] 또한, 일본 특허공개 제1982-51781호 공보에 개시되어 있는 바와 같이, 수지 등의 결합제와 재료 화합물을 용액에 녹여 용액으로 한 후, 이것을 스핀 코팅법 등에 의해 박막화함으로써 발광층을 형성할 수 있다.

[0143] 본 발명의 목적이 손상되지 않는 범위에서, 소망에 따라, 발광층에 본 발명의 발광 재료 이외의 다른 공지된 발광 재료를 함유시킬 수 있으며, 또한 본 발명의 발광 재료를 포함하는 발광층에 다른 공지된 발광 재료를 포함하는 발광층을 적층할 수도 있다.

[0144] 다음으로, 정공 주입·수송층은 발광층에 정공 주입을 도와 발광 영역까지 수송하는 층으로 정공 이동도가 크고 이온화 에너지가 보통 5.5 eV 이하로 작다. 이러한 정공 주입·수송층으로서 보다 낮은 전계 강도로 정공을 발광층에 수송하는 재료가 바람직하고, 또한 정공 이동도가 예컨대  $10^4$  내지  $10^6 \text{V/cm}$ 의 전계 인가시 적어도  $10^{-6} \text{cm}^2/\text{V} \cdot \text{초}$ 인 것이 바람직하다. 이러한 재료로서는, 종래 광도전 재료에 있어서 정공의 전하 수송 재료로서 관용되고 있는 것, 및 유기 EL 소자의 정공 주입층에 사용되고 있는 공지된 것 중에서 임의의 것을 선택하여 이용할 수 있다.

[0145] 구체예로서, 예컨대 트리아아졸 유도체(미국특허 제3,112,197호 명세서 등 참조), 옥사다이아졸 유도체(미국특허 제3,189,447호 명세서 등 참조), 이미다졸 유도체(일본 특허공개 제1962-16096호 공보 등 참조), 폴리아릴알케인 유도체(미국특허 제3,615,402호 명세서, 동 제3,820,989호 명세서, 동 제3,542,544호 명세서, 일본 특허공개 제1970-555호 공보, 동 제1976-10983호 공보, 일본 특허공개 제1976-93224호 공보, 동 제1980-17105호 공보, 동 제1981-4148호 공보, 동 제1980-108667호 공보, 동 제1980-156953호 공보, 동 제1981-36656호 공보 등 참조), 피라졸린 유도체 및 피라졸론 유도체(미국특허 제3,180,729호 명세서, 동 제4,278,746호 명세서, 일본 특허공개 제1980-88064호 공보, 동 제1980-88065호 공보, 동 제1974-105537호 공보, 동 제1980-51086호 공보, 동 제1981-80051호 공보, 동 제1981-88141호 공보, 동 제1982-45545호 공보, 동 제1979-112637호 공보, 동 제1980-74546호 공보 등 참조), 페닐렌다이아민 유도체(미국특허 제3,615,404호 명세서, 일본 특허공개 제1976-10105호 공보, 동 제1971-3712호 공보, 동 제1972-25336호 공보, 일본 특허공개 제1979-53435호 공보, 동 제1979-110536호 공보, 동 제1979-119925호 공보 등 참조), 아릴아민 유도체(미국특허 제3,567,450호 명세서, 동 제3,180,703호 명세서, 동 제3,240,597호 명세서, 동 제3,658,520호 명세서, 동 제4,232,103호 명세서, 동 제4,175,961호 명세서, 동 제4,012,376호 명세서, 일본 특허공개 제1974-35702호 공보, 동 제1964-27577호 공보, 일본 특허공개 제1980-144250호 공보, 동 제1981-119132호 공보, 동 제1981-22437호 공보, 서독특허 제1,110,518호 명세서 등 참조), 아미노 치환 칼콘 유도체(미국특허 제3,526,501호 명세서 등 참조), 옥사졸 유도체(미국특허 제3,257,203호 명세서 등에 개시된 것), 스타이릴안트라센 유도체(일본 특허공개 제1981-46234호 공보 등 참조), 플루오레논 유도체(일본 특허공개 제1979-110837호 공보 등 참조), 하이드라존 유도체(미국특허 제3,717,462호 명세서, 일본 특허공개 제1979-59143호 공보, 동 제1980-52063호 공보, 동 제1980-52064호 공보, 동 제1980-46760호 공보, 동 제1980-85495호 공보, 동 제1982-11350호 공보, 동 제1982-148749호 공보, 일본

특허공개 제1990-311591호 공보 등 참조), 스티븐 유도체(일본 특허공개 제1986-210363호 공보, 동 제1986-228451호 공보, 동 제1986-14642호 공보, 동 1986-72255호 공보, 동 제1987-47646호 공보, 동 제1987-36674호 공보, 동 제1987-10652호 공보, 동 제1987-30255호 공보, 동 제1985-93455호 공보, 동 제1985-94462호 공보, 동 제1985-174749호 공보, 동 제1985-175052호 공보 등 참조), 실라잔 유도체(미국특허 제4,950,950호 명세서), 폴리실레인계(일본 특허공개 제1990-204996호 공보), 아닐린계 공중합체(일본 특허공개 제1990-282263호 공보), 일본 특허공개 제1989-211399호 공보에 개시되어 있는 도전성 고분자 올리고머(특히 싸이오페논 올리고머) 등을 들 수 있다.

[0146] 정공 주입층의 재료로서는 상기한 것을 사용할 수 있지만, 포르피린 화합물(일본 특허공개 제1988-2956965호 공보 등에 개시된 것), 방향족 3급 아민 화합물 및 스타이릴아민 화합물(미국특허 제4,127,412호 명세서, 일본 특허공개 제1978-27033호 공보, 동 제1979-58445호 공보, 동 제1979-149634호 공보, 동 제1979-64299호 공보, 동 제1980-79450호 공보, 동 제1980-144250호 공보, 동 제1981-119132호 공보, 동 제1986-295558호 공보, 동 제1986-98353호 공보, 동 제1988-295695호 공보 등 참조), 특히 방향족 3급 아민 화합물을 이용하는 것이 바람직하다.

[0147] 또한, 미국특허 제5,061,569호에 기재되어 있는 2개의 축합 방향족환을 분자내에 갖는, 예컨대 4,4'-비스(N-(1-나프틸)-N-페닐아미노)바이페닐(이하 'NPD'로 약기한다), 또한 일본 특허공개 제1992-308688호 공보에 기재되어 있는 트라이페닐아민 유닛이 3개의 스타 버스트형으로 연결된 4,4',4"-트리스(N-(3-메틸페닐)-N-페닐아미노)트라이페닐아민(이하 'MTDATA'로 약기한다) 등을 들 수 있다.

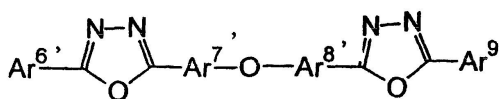
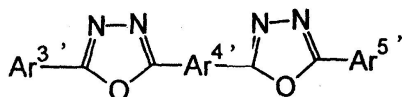
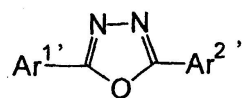
[0148] 또한, 발광층 재료로서 제시한 상술한 방향족 다이메틸리딘계 화합물 외에, p형 Si, p형 SiC 등의 무기 화합물도 정공 주입층 재료로서 사용할 수 있다.

[0149] 정공 주입, 수송층은 상술한 화합물을 예컨대 진공 증착법, 스핀 코팅법, 캐스팅법, LB법 등의 공지된 방법에 의해 박막화함으로써 형성할 수 있다. 정공 주입, 수송층으로서의 막 두께는 특별히 제한되지 않지만, 보통 5 nm 내지 5 $\mu$ m이다. 이 정공 주입, 수송층은 정공 수송 대역에 본 발명의 화합물을 함유하고 있으면 상술한 재료의 1종 또는 2종 이상으로 이루어진 1층으로 구성될 수도 있고, 또는 상기 정공 주입, 수송층과는 별종의 화합물로 이루어진 정공 주입, 수송층을 적층한 것일 수도 있다.

[0150] 또한, 유기 반도체층은 발광층으로서의 정공 주입 또는 전자 주입을 돕는 층으로, 10<sup>-10</sup> S/cm 이상의 도전율을 갖는 것이 적합하다. 이러한 유기 반도체층 재료로서는 싸이오펜 함유 올리고머나 일본 특허공개 제1996-193191호 공보에 개시되어 있는 아릴아민 함유 올리고머 등의 도전성 올리고머, 아릴아민 함유 덴드리머 등의 도전성 덴드리머 등을 이용할 수 있다.

[0151] 다음으로, 전자 주입층·수송층은, 발광층으로의 전자의 주입을 도와 발광 영역까지 수송하는 층으로, 전자 이동도가 크고, 또한 부차 개선층은 이 전자 주입층 중에서 특히 음극과의 부착이 좋은 재료로 이루어지는 층이다. 전자 주입층에 사용되는 재료로서는, 8-하이드록시퀴놀린 또는 그 유도체의 금속 착체나 옥사디아아졸 유도체가 적합하다. 상기 8-하이드록시퀴놀린 또는 그 유도체의 금속 착체의 구체예로서는, 옥신(일반적으로 8-퀴놀린을 또는 8-하이드록시퀴놀린)의 킬레이트를 포함하는 금속 킬레이트 옥시노이드 화합물, 예컨대 트리스(8-퀴놀린올)알루미늄을 전자 주입 재료로서 이용할 수 있다.

[0152] 한편, 옥사디아아졸 유도체로서는, 이하의 화학식으로 표시되는 전자 전달 화합물을 들 수 있다.



[0153]

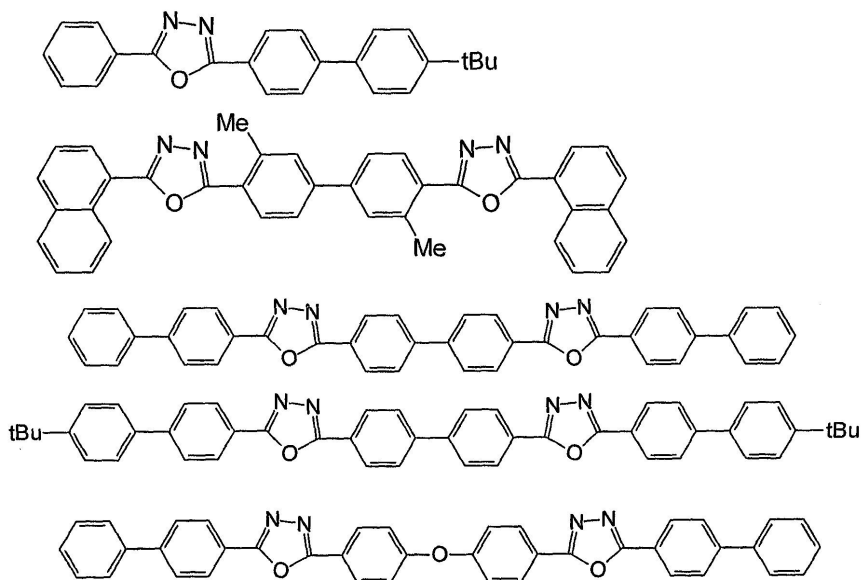
[0154] 상기 식에서,

[0155]  $Ar^{1'}$ ,  $Ar^{2'}$ ,  $Ar^{3'}$ ,  $Ar^{5'}$ ,  $Ar^{6'}$  및  $Ar^{9'}$ 는 각각 치환 또는 비치환된 아릴기를 나타내고, 각각 서로 동일하거나 상이할 수 있으며,

[0156]  $Ar^{4'}$ ,  $Ar^{7'}$  및  $Ar^{8'}$ 는 치환 또는 비치환된 아릴렌기를 나타내고, 각각 동일하거나 상이할 수 있다.

[0157] 여기서, 아릴기로서는 페닐기, 바이페닐기, 안트라닐기, 페릴렌일기, 피렌일기를 들 수 있다. 또한 아릴렌기로서는 페닐렌기, 나프틸렌기, 바이페닐렌기, 안트라닐렌기, 페릴렌일렌기, 피렌일렌기 등을 들 수 있다. 또한, 치환기로서는 탄소수 1 내지 10의 알킬기, 탄소수 1 내지 10의 알콕시기 또는 사이아노기 등을 들 수 있다. 이 전자 전달 화합물은 박막 형성성인 것이 바람직하다.

[0158] 상기 전자 전달성 화합물의 구체예로서는 하기의 것을 들 수 있다.



[0159]

[0160] 본 발명의 유기 EL 소자의 바람직한 형태로는 전자를 수송하는 영역 또는 음극과 유기층의 계면 영역에 환원성 도펀트를 함유하는 소자가 있다. 여기서, 환원성 도펀트란 전자 수송성 화합물을 환원시킬 수 있는 물질로 정의된다. 따라서, 일정한 환원성을 갖는 것이면 다양한 것이 사용되며, 예컨대 알칼리 금속, 알칼리 토금속, 희토류 금속, 알칼리 금속의 산화물, 알칼리 금속의 할로젠화물, 알칼리 토금속의 산화물, 알칼리 토금속의 할로젠화물, 희토류 금속의 산화물 또는 희토류 금속의 할로젠화물, 알칼리 금속의 유기 착체, 알칼리 토금속의 유기 착체, 희토류 금속의 유기 착체로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 하나의 물질을 적합하게 사용할 수 있다.

[0161] 또한, 보다 구체적으로, 바람직한 환원성 도펀트로서는 Na(일함수: 2.36eV), K(일함수: 2.28eV), Rb(일함수: 2.16eV) 및 Cs(일함수: 1.95eV)로 이루어지는 군으로부터 선택되는 하나 이상의 알칼리 금속이나, Ca(일함수: 2.9eV), Sr(일함수: 2.0 내지 2.5eV), 및 Ba(일함수: 2.52eV)로 이루어지는 군으로부터 선택되는 하나 이상의 알칼리 토금속을 들 수 있고, 일함수가 2.9eV 이하인 것이 특히 바람직하다. 이들 중, 더욱 바람직한 환원성 도펀트는, K, Rb 및 Cs로 이루어지는 군으로부터 선택되는 하나 이상의 알칼리 금속이며, 더욱 바람직하게는 Rb 또는 Cs이며, 가장 바람직하게는 Cs이다. 이들 알칼리 금속은 특히 환원 능력이 높고, 전자 주입 영역으로의 비교적 소량의 첨가에 의해, 유기 EL 소자에 있어서의 발광 휘도의 향상이나 장수명화가 달성된다. 또한, 일함수가 2.9eV 이하인 환원성 도펀트로서, 이들 2종 이상의 알칼리 금속의 조합도 바람직하고, 특히 Cs를 포함한 조합, 예컨대 Cs와 Na, Cs와 K, Cs와 Rb 또는 Cs, Na와 K의 조합인 것이 바람직하다. Cs를 조합시켜 포함함으로써, 환원 능력을 효율적으로 발휘시킬 수 있고, 전자 주입 영역으로의 첨가에 의해, 유기 EL 소자에 있어서의 발광 휘도의 향상이나 장수명화가 달성된다.

[0162] 본 발명에 있어서는, 음극과 유기층의 사이에 절연체나 반도체로 구성되는 전자 주입층을 추가로 설치할 수 있다. 이 때, 전류의 누출을 효과적으로 방지하여, 전자 주입성을 향상시킬 수 있다. 이러한 절연체로서는 알칼리 금속 칼코게나이드, 알칼리 토금속 칼코게나이드, 알칼리 금속의 할로젠화물 및 알칼리 토금속의 할로젠화물로 이루어지는 군으로부터 선택되는 하나 이상의 금속 화합물을 사용하는 것이 바람직하다. 전자 주입층이 이들 알칼리 금속 칼코게나이드 등으로 구성되어 있으면, 전자 주입성을 더욱 향상시킬 수 있다는 점에서 바람직

하다. 구체적으로는, 바람직한 알칼리 금속 칼코게나이드로서는, 예컨대  $\text{Li}_2\text{O}$ ,  $\text{LiO}$ ,  $\text{Na}_2\text{S}$ ,  $\text{Na}_2\text{Se}$  및  $\text{NaO}$ 를 들 수 있으며, 바람직한 알칼리 토금속 칼코게나이드로서는, 예컨대  $\text{CaO}$ ,  $\text{BaO}$ ,  $\text{SrO}$ ,  $\text{BeO}$ ,  $\text{BaS}$  및  $\text{CaSe}$ 를 들 수 있다. 또한, 바람직한 알칼리 금속의 할로젠화물로서는, 예컨대  $\text{LiF}$ ,  $\text{NaF}$ ,  $\text{KF}$ ,  $\text{LiCl}$ ,  $\text{KCl}$  및  $\text{NaCl}$  등을 들 수 있다. 또한, 바람직한 알칼리 토금속의 할로젠화물로서는, 예컨대  $\text{CaF}_2$ ,  $\text{BaF}_2$ ,  $\text{SrF}_2$ ,  $\text{MgF}_2$  및  $\text{BeF}_2$  등의 불화물이 나, 불화물 이외의 할로젠화물을 들 수 있다.

[0163] 또한, 전자 수송층을 구성하는 반도체로서는, Ba, Ca, Sr, Yb, Al, Ga, In, Li, Na, Cd, Mg, Si, Ta, Sb 및 Zn 중 하나 이상의 원소를 포함하는 산화물, 질화물 또는 산질화물 등의 1종 단독 또는 2종 이상의 조합을 들 수 있다. 또한, 전자 수송층을 구성하는 무기 화합물은 미세결정성 또는 비정질의 절연성 박막인 것이 바람직하다. 전자 주입층이 이들 절연성 박막으로 구성되어 있으면, 보다 균질한 박막을 형성할 수 있기 때문에 다크 스팟 등의 화소 결함을 감소시킬 수 있다. 한편, 이러한 무기 화합물로서는 상술한 알칼리 금속 칼코게나이드, 알칼리 토금속 칼코게나이드, 알칼리 금속의 할로젠화물 및 알칼리 토금속의 할로젠화물 등을 들 수 있다.

[0164] 다음으로, 음극으로서의 일함수가 작은(4eV 이하) 금속, 합금, 전기 전도성 화합물 및 이들 혼합물을 전극 물질로 하는 것이 사용된다. 이러한 전극 물질의 구체예로서는 나트륨, 나트륨-칼륨 합금, 마그네슘, 리튬, 마그네슘-은 합금, 알루미늄/산화알루미늄,  $\text{Al/Li}_2\text{O}$ ,  $\text{Al/LiO}_2$ ,  $\text{Al/LiF}$ , 알루미늄·리튬 합금, 인듐, 희토류 금속 등을 들 수 있다.

[0165] 이 음극은 이들 전극 물질을 증착이나 스퍼터링 등의 방법에 의해 박막을 형성시킴으로써 제작할 수 있다.

[0166] 여기서, 발광층으로부터의 발광을 음극으로부터 추출하는 경우, 음극의 발광에 대한 투과율은 10%보다 크게 하는 것이 바람직하다. 또한, 음극으로서의 시트 저항은 수백Ω/□ 이하가 바람직하며, 막 두께는 보통 10nm 내지 1μm, 바람직하게는 50 내지 200nm이다.

[0167] 또한, 일반적으로, 유기 EL 소자는 초박막에 전계를 인가하기 때문에 누출이나 쇼트에 의한 화소 결함이 생기기 쉽다. 이를 방지하기 위해 한 쌍의 전극 간에 절연성 박막층을 삽입하는 것이 바람직하다.

[0168] 절연층에 사용되는 재료로서는 예컨대, 산화알루미늄, 불화리튬, 산화리튬, 불화세슘, 산화세슘, 산화마그네슘, 불화마그네슘, 산화칼슘, 불화칼슘, 질화알루미늄, 산화타이타늄, 산화규소, 산화게르마늄, 질화규소, 질화붕소, 산화몰리브덴, 산화루테튬, 산화바나듐 등을 들 수 있다. 이들의 혼합물이나 적층물을 사용할 수 있다.

[0169] 다음으로, 본 발명의 유기 EL 소자를 제작하는 방법에 관해서는, 예컨대 상기 재료 및 방법에 의해 양극, 발광층, 필요에 따라 정공 주입층, 및 필요에 따라 전자 주입층을 형성하고, 마지막으로 음극을 형성하면 바람직하다. 또한, 음극으로부터 양극으로, 상기와 반대의 순서로 유기 EL 소자를 제작할 수도 있다.

[0170] 이하, 투광성 기판 상에 양극/정공 주입층/발광층/전자 주입층/음극이 순차적으로 설치된 구성의 유기 EL 소자의 제작예에 대하여 설명한다.

[0171] 우선, 적당한 투광성 기판 상에 양극 재료로 이루어지는 박막을 1μm 이하, 바람직하게는 10 내지 200nm의 범위의 막 두께가 되도록 증착법 또는 스퍼터링법에 의해 형성하여 양극으로 한다. 다음으로, 이 양극 상에 정공 주입층을 설치한다. 정공 주입층의 형성은 상술한 바와 같이 진공 증착법, 스핀 코팅법, 캐스팅법, LB법 등의 방법에 의해 할 수 있지만, 균질한 막이 얻어지기 쉽고 또한 핀홀이 발생하기 어렵다는 점 등에서 진공 증착법에 의해 형성하는 것이 바람직하다. 진공 증착법에 의해 정공 주입층을 형성하는 경우, 그 증착 조건은 사용하는 화합물(정공 주입층의 재료), 목적으로 하는 정공 주입층의 결정 구조나 재결합 구조 등에 의해 다르지만, 일반적으로 증착원 온도 50 내지 450℃, 진공도  $10^{-7}$  내지  $10^{-3}$  torr, 증착속도 0.01 내지 50nm/초, 기판온도 -50 내지 300℃, 막 두께 5nm 내지 5μm의 범위에서 적절히 선택하는 것이 바람직하다.

[0172] 다음으로, 이 정공 주입층 상에 발광층을 설치한다. 이 발광층의 형성도 본 발명에 관한 발광 재료를 이용하여 진공 증착법, 스퍼터링, 스핀 코팅법, 캐스팅법 등의 방법에 의해, 발광 재료를 박막화함으로써 형성할 수 있지만, 균질한 막이 얻어지기 쉽고, 또한 핀홀이 발생하기 어려운 점 등으로부터 진공 증착법에 의해 형성하는 것이 바람직하다. 진공 증착법에 의해 발광층을 형성하는 경우, 그 증착 조건은 사용하는 화합물에 따라 다르지만, 일반적으로 정공 주입층의 형성과 동일한 조건 범위 중에서 선택할 수 있다. 막 두께는 10 내지 40nm의 범위가 바람직하다.

[0173] 다음으로, 이 발광층상에 전자 주입층을 설치한다. 이 경우에도 정공 주입층, 발광층과 동일하게 균질한 막을

연기 위해 진공 증착법에 의해 형성하는 것이 바람직하다. 증착 조건은 정공 주입층, 발광층과 같은 조건 범위로부터 선택할 수 있다.

[0174] 그리고, 마지막으로 음극을 적층하여 유기 EL 소자를 얻을 수 있다. 음극은 금속으로 구성되는 것으로, 증착법, 스퍼터링을 이용할 수 있다. 그러나, 하지(下地)의 유기물층을 제막시의 손상으로부터 지키기 위해서는 진공 증착법이 바람직하다.

[0175] 이상의 유기 EL 소자의 제작은 1회의 진공 흡인으로 일괄적으로 양극에서 음극까지 제작하는 것이 바람직하다.

[0176] 본 발명의 유기 EL 소자의 각 층의 형성 방법은 특별히 한정되지 않는다. 종래 공지된 진공 증착법, 스프인 코팅법 등에 의한 형성 방법을 이용할 수 있다. 본 발명의 유기 EL 소자에 이용하는 상기 화학식 1로 표시되는 화합물을 함유하는 유기 박막층은, 진공 증착법, 분자선 증착법(MBE 법) 또는 용매에 녹인 용액의 디핑법, 스프인 코팅법, 캐스팅법, 바 코팅법, 롤 코팅법 등의 도포법에 의한 공지된 방법으로 형성할 수 있다.

[0177] 본 발명의 유기 EL 소자의 각 유기층의 막 두께는 특별히 제한되지 않지만, 핀홀 등의 결함이나, 효율을 좋게 하기 위해 보통은 수 nm에서 1 $\mu$ m의 범위가 바람직하다.

[0178] 한편, 유기 EL 소자에 직류 전압을 인가하는 경우, 양극을 +, 음극을 -의 극성으로 하여, 5 내지 40V의 전압을 인가하면 발광을 관측할 수 있다. 또한, 역의 극성으로 전압을 인가하여도 전류는 흐르지 않고, 발광은 전혀 생기지 않는다. 또한, 교류 전압을 인가한 경우에는 양극이 +, 음극이 -의 극성이 되었을 때만 균일한 발광이 관측된다. 인가하는 교류의 파형은 임의일 수 있다.

[0179] [실시예]

[0180] 다음으로, 본 발명을 실시예에 의해 더욱 구체적으로 설명하지만, 본 발명은 이들 예에 의해 한정되지 않는다.

[0181] 합성예 1 (1-브로모-4-페닐나프탈렌의 합성)

[0182] 시판되는 1,4-다이브로모나프탈렌 15g, 페닐보론산 7.7g 및 테트라키스트라이페닐포스핀팔라듐 1.8g을 혼합하여 아르곤 치환했다. 톨루엔 200ml 및 2M 탄산나트륨 수용액 90ml를 가하고, 7시간 가열 환류했다.

[0183] 방냉 후, 톨루엔으로 유기층을 추출하고, 물·포화식염수로 세정했다. 유기층을 무수 황산나트륨으로 건조한 후, 용매를 증류 제거했다. 생성물을 실리카겔 컬럼 크로마토그래피로 정제하여 목적하는 1-브로모-4-페닐나프탈렌 8.9g(수율 60%)을 백색 결정으로서 수득했다.

[0184] 합성예 2 (1-브로모-4-(나프탈렌-2-일)나프탈렌의 합성)

[0185] 합성예 1에 있어서, 페닐보론산 대신에 2-나프탈렌보론산을 이용한 것 외에는 같은 방법에 의해 목적하는 1-브로모-4-(나프탈렌-2-일)나프탈렌 7.5g(수율 43%)을 백색 결정으로서 수득했다.

[0186] 합성예 3 (2-(바이페닐-2-일)-6-브로모나프탈렌의 합성)

[0187] 시판되는 2,6-다이브로모나프탈렌 15g, 2-바이페닐보론산 12.5g 및 테트라키스트라이페닐포스핀팔라듐 1.8g을 혼합하여 아르곤 치환했다. 톨루엔 250ml 및 2M 탄산나트륨 수용액 90ml를 가하고, 7시간 가열 환류했다.

[0188] 방냉 후, 톨루엔으로 유기층을 추출하고, 물·포화식염수로 세정했다. 유기층을 무수 황산나트륨으로 건조한 후, 용매를 증류 제거했다. 생성물을 실리카겔 컬럼 크로마토그래피로 정제함으로써 목적하는 2-(바이페닐-2-일)-6-브로모나프탈렌 10.9g(수율 58%)을 백색 결정으로서 수득했다.

[0189] 합성예 4 (9-(나프탈렌-2-일)안트라센의 합성)

[0190] 9-브로모안트라센 22.5g, 2-나프탈렌보론산 15.8g 및 테트라키스트라이페닐포스핀팔라듐 2.0g을 혼합하고 아르곤 치환했다. 톨루엔 150ml 및 2M 탄산나트륨 수용액 140ml를 가하고, 7시간 가열 환류했다.

[0191] 방냉 후, 석출된 결정을 여과하고, 에탄올 및 톨루엔으로 세정했다. 수득된 결정을 톨루엔으로부터 재결정화하고, 여과·건조함으로써 목적하는 9-(나프탈렌-2-일)안트라센 23.1g을 수득했다(수율 87%).

[0192] 합성예 5 (9-브로모-10-(나프탈렌-2-일)안트라센의 합성)

[0193] 9-(나프탈렌-2-일)안트라센 23.1g을 DMF(다이메틸폼아마이드) 250ml에 분산시키고, 실온에서 NBS(N-브로모석신이미드) 14.9g DMF 용액(150ml)을 적하했다. 실온에서 7시간 교반한 후, 밤새 방치했다. 물 200ml를 가하고,

석출된 결정을 여과하고, 에탄올로 충분히 세정하고, 건조함으로써 목적하는 9-브로모-10-(나프탈렌-2-일)안트라센 28.8g을 베이지색 결정으로서 수득했다(수율 99%).

[0194] 합성예 6 (10-(나프탈렌-2-일)안트라센-9-보론산의 합성)

[0195] 아르곤 분위기하, 9-브로모-10-(나프탈렌-2-일)안트라센 28.8g에 탈수 톨루엔 150ml, 탈수 에터 150ml를 가하고, -63℃로 냉각했다. 1.58M n-부틸리튬헥세인 용액 58ml를 적하하고, -63℃에서 30분간 교반한 후, -10℃까지 승온시켰다. 다시 -70℃까지 냉각하고, 보론산 트라이메틸에스터 23.4ml 탈수 에터 용액을 서서히 적하했다. -70℃에서 2시간 교반한 후, 서서히 실온까지 승온시켰다. 밤새 방치 후, 10% 염산 수용액으로 산성화하고, 톨루엔으로 2회 추출했다. 유기층을 포화 식염수로 세정하고, 무수 황산나트륨으로 건조했다. 용매를 증류 제거하고, 톨루엔/헥세인으로부터 결정화하고, 여과·건조함으로써 목적하는 10-(나프탈렌-2-일)안트라센-9-보론산 17g을 베이지색 결정으로서 수득했다(수율 65%).

[0196] 합성예 7 (9-페난트렌 보론산의 합성)

[0197] 9-브로모페난트렌 38.6g에 탈수 톨루엔 80ml, 탈수 THF(테트라하이드로퓨란) 160ml를 가하고, -40℃로 냉각했다. 1.58M n-부틸리튬헥세인 용액 106ml를 적하하고, -40℃에서 30분간 교반한 후, -10℃까지 승온시켰다. 다시 -70℃까지 냉각하고, 보론산 트라이메틸에스터 50.0ml 탈수 THF 용액을 서서히 적하했다. -70℃에서 2시간 교반한 후, 서서히 실온까지 승온시켰다. 밤새 방치 후, 10% 염산 수용액 100ml를 가하여 교반하고, 톨루엔으로 2회 추출했다. 유기층을 포화 식염수로 세정하고, 무수 황산나트륨으로 건조했다. 용매를 증류 제거하고, 톨루엔/헥세인으로부터 결정화하고, 여과·건조함으로써 목적하는 9-페난트렌 보론산 21.5g을 담갈색 결정으로서 수득했다(수율 64%).

[0198] 합성예 8 (10-(페난트렌-9-일)안트라센-9-보론산의 합성)

[0199] 합성예 4 내지 6에 있어서, 출발 원료로서 2-나프탈렌 보론산 대신 9-페난트렌 보론산을 이용한 것 외에는 같은 방법에 의해 10-(페난트렌-9-일)안트라센-9-보론산을 합성했다.

[0200] 제조예 1 (화합물 AN7의 합성)

[0201] 1-브로모-4-페닐나프탈렌 5.0g, 10-(나프탈렌-2-일)안트라센-9-보론산 7.38g, 및 테트라키스트라이페닐포스핀팔라듐 0.61g을 혼합하고, 아르곤 치환했다. DME(다이메톡시에테인) 100ml 및 2M 탄산나트륨 수용액 30ml를 가하고, 10시간 가열 환류했다.

[0202] 방냉 후, 석출된 결정을 여과하고, 물, 메탄올 및 톨루엔으로 세정했다. 수득된 결정을 톨루엔으로부터 재결정화하고, 여과·건조함으로써 목적하는 화합물 AN7 6.37g을 크림색 결정으로서 수득했다(수율 71%).

[0203] 이 화합물의 FD-MS(field desorption mass spectrum)는  $C_{40}H_{26}=506$ 에 대하여  $m/z$ (측정치)=506인 것으로부터 목적 화합물임을 확인했다.

[0204] 제조예 2 (화합물 AN8의 합성)

[0205] 제조예 1에 있어서, 1-브로모-4-페닐나프탈렌 대신에 1-브로모-4-(나프탈렌-2-일)나프탈렌을 이용한 것 외에는 같은 방법에 의해 목적하는 화합물 AN8을 크림색 결정으로서 수득했다(수율 63%).

[0206] 이 화합물의 FD-MS는  $C_{44}H_{28}=556$ 에 대하여  $m/z=556$ 인 것으로부터 목적 화합물임을 확인했다.

[0207] 제조예 3 (화합물 AN11의 합성)

[0208] 제조예 1에 있어서, 1-브로모-4-페닐나프탈렌 대신에 2-브로모나프탈렌을 이용하고, 10-(나프탈렌-2-일)안트라센-9-보론산 대신에 10-(페난트렌-9-일)안트라센-9-보론산을 이용한 것 외에는 같은 방법에 의해 목적하는 화합물 AN11을 크림색 결정으로서 수득했다(수율 67%).

[0209] 이 화합물의 FD-MS는  $C_{38}H_{24}=480$ 에 대하여  $m/z=480$ 을 보였다.

[0210] 제조예 4 (화합물 AN13의 합성)

[0211] 제조예 1에 있어서, 1-브로모-4-페닐나프탈렌 대신에 2-(바이페닐-2-일)-6-브로모나프탈렌을 이용하고, 10-(나프탈렌-2-일)안트라센-9-보론산 대신에 10-(페난트렌-9-일)안트라센-9-보론산을 이용한 것 외에는 같은 방법에 의해 목적하는 화합물 AN13을 크림색 결정으로서 수득했다(수율 67%).

[0212] 이 화합물의 FD-MS는  $C_{50}H_{32}=632$ 에 대하여  $m/z=632$ 를 보였다.

[0213] 제조예 5 (화합물 AN44의 합성)

[0214] 제조예 1에 있어서, 1-브로모-4-페닐나프탈렌 대신에 1-브로모나프탈렌을 이용한 것 외에는 같은 방법에 의해 목적하는 화합물 AN44를 크림색 결정으로서 수득했다(수율 69%).

[0215] 이 화합물의 FD-MS는  $C_{34}H_{22}=430$ 에 대하여  $m/z=430$ 을 보였다.

[0216] 제조예 6(화합물 AN6의 합성)

[0217] 제조예 1에 있어서, 1-브로모-4-페닐나프탈렌 대신에 2-브로모-6-페닐나프탈렌을 이용한 것 외에는 같은 방법에 의해 목적하는 화합물 AN6을 크림색 결정으로서 수득했다(수율 54%).

[0218] 이 화합물의 FD-MS는  $C_{40}H_{26}=506$ 에 대하여  $m/z=506$ 을 보였다.

[0219] 제조예 7 (화합물 AN12의 합성)

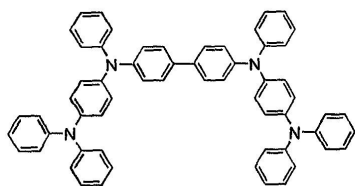
[0220] 제조예 1에 있어서, 1-브로모-4-페닐나프탈렌 대신에 2-브로모-6-페닐나프탈렌을 이용하고, 10-(나프탈렌-2-일)안트라센-9-보론산 대신에 10-(페난트렌-9-일)안트라센-9-보론산을 이용한 것 외에는 같은 방법에 의해 목적하는 화합물 AN13을 크림색 결정으로서 수득했다(수율 60%).

[0221] 이 화합물의 FD-MS는  $C_{44}H_{28}=556$ 에 대하여  $m/z=556$ 을 보였다.

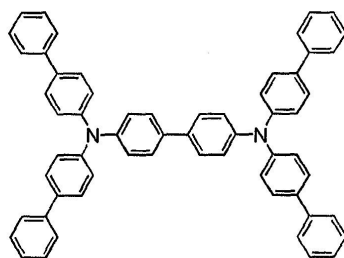
[0222] 실시예 1 (유기 EL 소자의 제조)

[0223] 25mm×75mm×1.1mm 두께의 ITO 투명 전극 부착 유리 기판(지오마텍사 제품)을 아이소프로필 알코올 중에서 초음파 세정을 5분간 실시한 후, UV 오존 세정을 30분간 실시했다. 세정 후의 투명 전극 라인 부착 유리 기판을 진공 증착 장치의 기판 홀더에 장착하고, 우선 투명 전극 라인이 형성되어 있는 측면 상에 상기 투명 전극을 덮도록 막 두께 60nm의 하기 N,N'-비스(N,N'-다이페닐-4-아미노페닐)-N,N'-다이페닐-4,4'-다이아미노-1,1'-바이페닐 막(이하, 「TPD232막」)을 성막했다. 이 TPD232막은 정공 주입층으로서 기능한다. 다음으로, 이 TPD232막 상에 막 두께 20nm의 하기 N,N,N',N'-테트라(4-바이페닐)-다이아미노바이페닐렌층(이하, 「TBDB 층」)을 성막했다. 이 막은 정공 수송층으로서 기능한다. 추가로 막 두께 40nm의 상기 화합물 AN7을 증착하여 성막했다. 동시에 발광 재료로서 하기의 스타이릴기를 갖는 아민 화합물 D1을 AN7에 대하여 중량비 AN7:D1=40:3으로 증착했다. 이 막은 발광층으로서 기능한다. 이 막 상에 막 두께 10nm의 Alq막을 성막했다. 이것은 전자 주입층으로서 기능한다. 그 다음, 환원성 도펀트인 Li(Li원: 사에스게터사 제품)와 하기 Alq를 2원 증착시켜 전자 주입층(또는 음극)으로서 Alq:Li 막(막 두께 10nm)을 형성했다. 이 Alq:Li 막 상에 금속 Al을 증착시켜 금속 음극을 형성하여 유기 EL 소자를 제작했다.

[0224] 수득된 유기 EL 소자에 대하여 발광 효율을 측정하고, 추가로 초기 휘도를 1000nit로 하여 반감 수명을 측정했다. 그 결과를 표 1에 나타낸다.

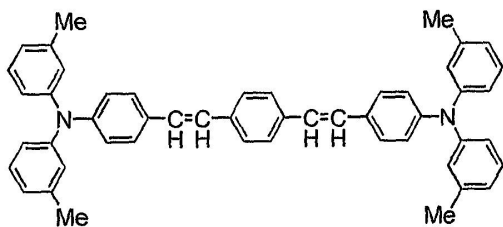


TPD232

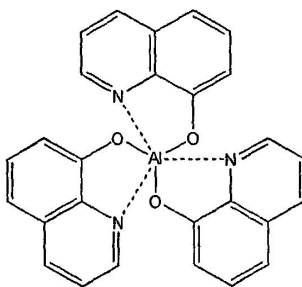


TBDB

[0225]



D1



Alq

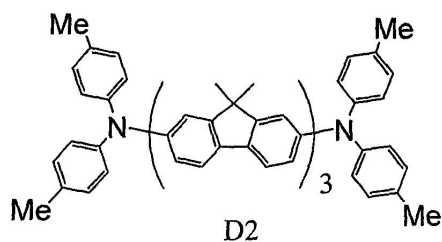
[0226]

[0227] 실시예 2 내지 7 (유기 EL 소자의 제조)

[0228] 실시예 1에 있어서, 발광층의 재료로서 화합물 AN7 대신에 표 1에 기재된 화합물을 이용한 것 외에는 동일하게 하여 유기 EL 소자를 제작하고, 실시예 1과 동일하게 하여 발광 효율 및 반감 수명을 측정했다. 이들 결과를 표 1에 나타낸다.

[0229] 실시예 8 (유기 EL 소자의 제조)

[0230] 실시예 1에 있어서, 발광층의 재료로서 화합물 AN7 대신에 AN11을 이용하고, 아민 화합물 D1의 대신에 아민 화합물 D2를 이용한 것 외에는 동일하게 하여 유기 EL 소자를 제작하고, 실시예 1과 동일하게 하여 발광 효율 및 반감 수명을 측정했다. 이들 결과를 표 1에 나타낸다.

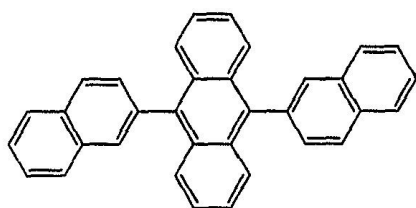


D2

[0231]

[0232] 비교예 1

[0233] 실시예 1에 있어서, 발광층의 재료로서 화합물 AN7 대신에 하기 an1을 이용한 것 외에는 동일하게 하여 유기 EL 소자를 제작하고, 실시예 1과 동일하게 하여 발광 효율 및 반감 수명을 측정했다. 이들 결과를 표 1에 나타낸다.



an1

[0234]

표 1

	발광층의 화합물	발광 효율(cd/A)	반감 수명(시간)
실시예 1	AN7/D1	10.9	4200
실시예 2	AN8/D1	10.8	4200
실시예 3	AN11/D1	11.0	5800
실시예 4	AN13/D1	10.8	3700
실시예 5	AN44/D1	10.0	3000
실시예 6	AN6/D1	10.1	3300
실시예 7	AN12/D1	10.8	4900
실시예 8	AN11/D2	10.3	3700
비교예 1	an-1/D1	9.0	2200

[0235]

[0236] 표 1에 제시된 바와 같이, 실시예 1 내지 8의 유기 EL 소자는 비교예 1의 소자에 비해 발광 효율이 높고 장수명이었다.

专利名称(译)	用于有机电致发光器件的发光材料，使用其的有机电致发光器件和用于有机电致发光器件的材料		
公开(公告)号	<a href="#">KR101325410B1</a>	公开(公告)日	2013-11-04
申请号	KR1020107028597	申请日	2004-12-13
申请(专利权)人(译)	高山出光株式会社		
当前申请(专利权)人(译)	高山出光株式会社		
[标]发明人	KUBOTA MINEYUKI 구보타미네유키 FUNAHASHI MASAKAZU 후나하시마사카즈 HOSOKAWA CHISHIO 호소카와치시오		
发明人	구보타미네유키 후나하시마사카즈 호소카와치시오		
IPC分类号	H05B33/14 C09K11/06 H05B33/22 H01L51/54		
CPC分类号	C07C15/28 H01L51/0058 H05B33/14 C07C2103/24 H01L51/5012 C09K2211/1011 H01L51/0059 C09K2211/1014 C09K11/06 C07C15/38 C07C2103/50 C07C15/60 C07C2603/24 C07C2603/50 C09K2211/1007 H01L51/5056		
优先权	2003423317 2003-12-19 JP		
其他公开文献	KR1020110004484A		
外部链接	<a href="#">Espacenet</a>		

#### 摘要(译)

发光效率高，或者至少单层的有机薄膜层独立地提供了长寿的材料，并且用于\*\*\*和\*\*\*的发光材料实现了这一点。至少包括用于有机电致发光（EL）器件的发光材料之间的发光层，所述有机电致发光（EL）器件包括具有特定结构的不对称蒽衍生物和\*\*\*以及阴极和阳极或\*\*\*将由多层构成的有机薄膜层夹在中间，作为混合物的组分。

