



**(19) 대한민국특허청(KR)**  
**(12) 공개특허공보(A)**

(11) 공개번호 10-2009-0024236  
 (43) 공개일자 2009년03월06일

(51) Int. Cl.  
*C09K 11/06* (2006.01) *H05B 33/14* (2006.01)  
*H01L 51/54* (2006.01)  
 (21) 출원번호 10-2009-7000028  
 (22) 출원일자 2009년01월02일  
 심사청구일자 없음  
 번역문제출일자 2009년01월02일  
 (86) 국제출원번호 PCT/JP2007/061332  
 국제출원일자 2007년06월05일  
 (87) 국제공개번호 WO 2007/142216  
 국제공개일자 2007년12월13일  
 (30) 우선권주장  
 JP-P-2006-156445 2006년06월05일 일본(JP)

(71) 출원인  
**이데미쓰 고산 가부시키키가이사**  
 일본 도쿄도 지요다쿠 마루노우치 3초메 1반 1고  
**소니 가부시키키 가이사**  
 일본국 도쿄도 미나토쿠 코난 1-7-1  
 (72) 발명자  
**아오야마, 요시아끼**  
 일본 2990293 치바켄 소테가우라시 가미이즈미  
 1280반지  
**모리시따, 히로노부**  
 일본 2990293 치바켄 소테가우라시 가미이즈미  
 1280반지  
 (뒷면에 계속)  
 (74) 대리인  
**박보현, 장수길**

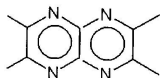
전체 청구항 수 : 총 29 항

**(54) 유기 전계발광 소자 및 유기 전계발광 소자용 재료**

**(57) 요약**

본 발명은 유기 EL 소자의 구성 성분으로서 유용한 신규한 화합물을 제공하고, 이 화합물을 이용함으로써 구동 전압이 낮고 긴 수명이면서 누설 전류가 적은 실용적인 유기 EL 소자를 실현하는 것을 목적으로 한다.

본 발명은 하기 구조(1)을 1 분자 중에 하나 이상 갖는 것을 특징으로 하는 화합물을 제공한다.



구조(1)

(72) 발명자

**호소가와, 치시오**

일본 2990293 치바켄 소테가우라시 가미이즈미  
1280번지

**마쯔나미, 시게유키**

일본 1080075 도쿄도 미나토쿠 코난 1-7-1 소니 가  
부시키 가이샤 내

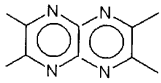
**기지마, 야스노리**

일본 1080075 도쿄도 미나토쿠 코난 1-7-1 소니 가  
부시키 가이샤 내

**특허청구의 범위**

**청구항 1**

하기 구조(1)을 1 분자 중에 하나 이상 갖는 것을 특징으로 하는 화합물.

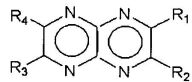


구조(1)

**청구항 2**

제1항에 있어서, 하기 화학식 1로 표시되는 화합물.

<화학식 1>



(식 중,

R<sub>1</sub> 내지 R<sub>4</sub>는 수소, 치환 또는 비치환된 알킬기, 치환 또는 비치환된 아릴기, 치환 또는 비치환된 복소환, 할로겐, 시아노기, 니트로기, 에스테르기, 아미드기, 알콕시기, 치환 또는 비치환된 페녹시기 및 아미노기로 이루어지는 군으로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있다. 또한, R<sub>1</sub> 내지 R<sub>4</sub> 중에 인접하는 것은 각각 서로 결합하여 환 구조를 형성할 수도 있다.)

**청구항 3**

제2항에 있어서, R<sub>1</sub>과 R<sub>2</sub>가 각각 서로 결합하여 환 구조를 형성하는 화합물.

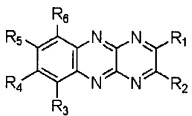
**청구항 4**

제3항에 있어서, R<sub>3</sub>과 R<sub>4</sub>가 각각 서로 결합하여 환 구조를 형성하는 화합물.

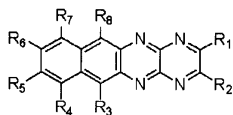
**청구항 5**

제1항에 있어서, 하기 화학식 2 내지 화학식 4 중 어느 것으로 표시되는 화합물.

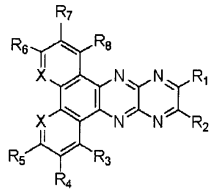
<화학식 2>



<화학식 3>



<화학식 4>



(식 중,

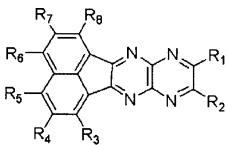
R<sub>1</sub> 내지 R<sub>8</sub>은 수소, 치환 또는 비치환된 알킬기, 치환 또는 비치환된 아릴기, 치환 또는 비치환된 복소환, 할로젠, 시아노기, 니트로기, 에스테르기, 아마이드기, 알콕시기, 치환 또는 비치환된 페녹시기 및 아미노기로 이루어지는 군으로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있다. 또한, R<sub>1</sub> 내지 R<sub>8</sub> 중에 인접하는 것은 각각 서로 결합하여 환 구조를 형성할 수도 있다. 단, R<sub>3</sub> 내지 R<sub>8</sub> 중 하나 이상은 치환 알킬기, 치환 아릴기, 치환 또는 비치환된 복소환, 할로젠, 시아노기, 니트로기, 에스테르기, 아마이드기, 치환 또는 비치환된 페녹시기 및 아미노기로 이루어지는 군으로부터 선택된다.

X는 N 또는 CH이다.)

**청구항 6**

제1항에 있어서, 하기 화학식 5로 표시되는 화합물.

<화학식 5>



(식 중,

R<sub>1</sub> 내지 R<sub>8</sub>은 수소, 치환 또는 비치환된 알킬기, 치환 또는 비치환된 아릴기, 치환 또는 비치환된 복소환, 할로젠, 시아노기, 니트로기, 에스테르기, 아마이드기, 알콕시기, 치환 또는 비치환된 페녹시기 및 아미노기로 이루어지는 군으로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있다. 또한, R<sub>1</sub> 내지 R<sub>8</sub> 중에 인접하는 것은 각각 서로 결합하여 환 구조를 형성할 수도 있다.)

**청구항 7**

제6항에 있어서, R<sub>1</sub> 및 R<sub>2</sub>가 각각 독립적으로 할로젠, 시아노기, 니트로기, 플루오로알킬기 및 플루오로아릴기로 이루어지는 군에서 선택되는 전자 흡인기이고, R<sub>3</sub> 내지 R<sub>8</sub>이 수소, 치환 또는 비치환된 알킬기, 치환 또는 비치환된 아릴기, 치환 또는 비치환된 복소환, 할로젠, 시아노기, 니트로기, 에스테르기, 아마이드기, 알콕시기, 치환 또는 비치환된 페녹시기 및 아미노기로 이루어지는 군으로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있고, R<sub>3</sub> 내지 R<sub>8</sub> 중에 인접하는 것은 각각 서로 결합하여 환 구조를 형성할 수도 있는 화합물.

**청구항 8**

제5항 내지 제7항 중 어느 한 항에 있어서, R<sub>1</sub> 및 R<sub>2</sub>가 시아노기인 화합물.

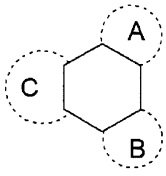
**청구항 9**

제5항 내지 제8항 중 어느 한 항에 있어서, R<sub>3</sub> 내지 R<sub>8</sub> 중 하나 이상이 불소를 포함하는 치환기인 화합물.

**청구항 10**

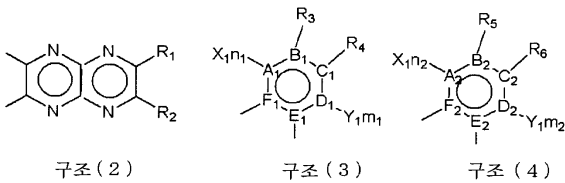
제1항에 있어서, 하기 화학식 6으로 표시되는 화합물.

<화학식 6>



(식 중,

A 내지 C환은 하기 구조(2) 내지 (4)로부터 구성되고, A 내지 C환 중 하나 이상이 구조(2)이다.



여기서, R<sub>1</sub> 내지 R<sub>6</sub>은 수소, 치환 또는 비치환된 알킬기, 치환 또는 비치환된 아릴기, 치환 또는 비치환된 복소환, 할로젠, 시아노기, 니트로기, 에스테르기, 아마이드기, 알콕시기, 치환 또는 비치환된 페녹시기 및 아미노기로 이루어지는 군으로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있다.

X<sub>1</sub> 및 X<sub>2</sub>, 및 Y<sub>1</sub> 및 Y<sub>2</sub>는 수소, 치환 또는 비치환된 알킬기, 치환 또는 비치환된 아릴기, 치환 또는 비치환된 복소환, 할로젠, 시아노기, 니트로기, 에스테르기, 아마이드기, 알콕시기, 치환 또는 비치환된 페녹시기 및 아미노기로 이루어지는 군으로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있다.

또한, R<sub>1</sub> 내지 R<sub>6</sub>, X<sub>1</sub> 및 X<sub>2</sub>, 및 Y<sub>1</sub> 및 Y<sub>2</sub> 중에 인접하는 것은 각각 서로 결합하여 환 구조를 형성할 수도 있다.

n<sub>1</sub> 및 n<sub>2</sub>, 및 m<sub>1</sub> 및 m<sub>2</sub>는 0 또는 1의 정수이다.

A<sub>1</sub>, B<sub>1</sub>, C<sub>1</sub>, D<sub>1</sub>, E<sub>1</sub> 및 F<sub>1</sub>, 및 A<sub>2</sub>, B<sub>2</sub>, C<sub>2</sub>, D<sub>2</sub>, E<sub>2</sub> 및 F<sub>2</sub>는 6원환을 형성하고, 각각 제14족 내지 제15족에 속하는 원소로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있다.)

**청구항 11**

제10항에 있어서, A<sub>1</sub> 및 A<sub>2</sub>, 및 D<sub>1</sub> 및 D<sub>2</sub>가 질소 원자인 화합물.

**청구항 12**

제10항 또는 제11항에 있어서, R<sub>1</sub> 및 R<sub>2</sub>가 시아노기인 화합물.

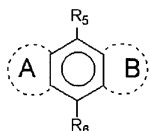
**청구항 13**

제1항에 있어서, 구조(1)을 1 분자 중에 2개 이상 갖는 화합물.

**청구항 14**

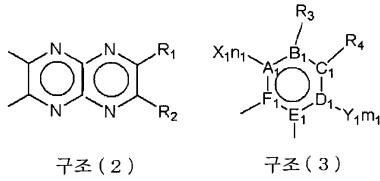
제1항에 있어서, 하기 화학식 7로 표시되는 화합물.

<화학식 7>



(식 중,

A환 및 B환은 하기 구조(2) 또는 구조(3)으로부터 구성되고, A환 및 B환 중 하나 이상이 구조(2)이다.



여기서, R<sub>1</sub> 내지 R<sub>6</sub>은 수소, 치환 또는 비치환된 알킬기, 치환 또는 비치환된 아릴기, 치환 또는 비치환된 복소환, 할로겐, 시아노기, 니트로기, 에스테르기, 아마이드기, 알콕시기, 치환 또는 비치환된 페녹시기 및 아미노기로 이루어지는 군으로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있다.

X<sub>1</sub> 및 Y<sub>1</sub>은 수소, 치환 또는 비치환된 알킬기, 치환 또는 비치환된 아릴기, 치환 또는 비치환된 복소환, 할로겐, 시아노기, 니트로기, 에스테르기, 아마이드기, 알콕시기, 치환 또는 비치환된 페녹시기 및 아미노기로 이루어지는 군으로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있다.

또한, R<sub>1</sub> 내지 R<sub>6</sub>, X<sub>1</sub> 및 Y<sub>1</sub> 중에 인접하는 것은 각각 서로 결합하여 환 구조를 형성할 수도 있다.

n<sub>1</sub> 및 m<sub>1</sub>은 0 또는 1의 정수이다.

A<sub>1</sub>, B<sub>1</sub>, C<sub>1</sub>, D<sub>1</sub>, E<sub>1</sub> 및 F<sub>1</sub>은 6원환을 형성하고, 각각 제14족 내지 제15족에 속하는 원소로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있다.)

**청구항 15**

제14항에 있어서, A환 및 B환이 모두 구조(2)인 화합물.

**청구항 16**

제14항에 있어서, A<sub>1</sub> 및 D<sub>1</sub>이 질소 원자인 화합물.

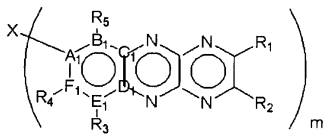
**청구항 17**

제14항 내지 제16항 중 어느 한 항에 있어서, R<sub>1</sub> 및 R<sub>2</sub>가 시아노기인 화합물.

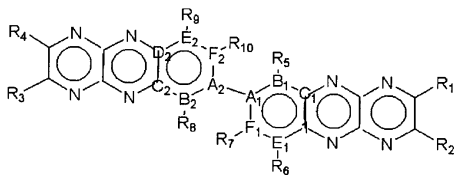
**청구항 18**

제1항에 있어서, 하기 화학식 9 또는 화학식 10으로 표시되는 화합물.

<화학식 9>



<화학식 10>



(식 중,

R<sub>1</sub> 내지 R<sub>10</sub>은 수소, 치환 또는 비치환된 알킬기, 치환 또는 비치환된 아릴기, 치환 또는 비치환된 복소환, 할로겐, 시아노기, 니트로기, 에스테르기, 아마이드기, 알콕시기, 치환 또는 비치환된 페녹시기 및 아미노기로 이루어

지는 군으로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있다.

X는 치환 또는 비치환된 알칸, 치환 또는 비치환된 방향족환, 치환 또는 비치환된 복소환, 치환 또는 비치환된 방향족환 수산화물 및 아민으로부터 유도되는 m개의 기로 이루어지는 군으로부터 선택된다.

또한, R<sub>1</sub> 내지 R<sub>10</sub> 및 X 중에 인접하는 것은 각각 서로 결합하여 환 구조를 형성할 수도 있다.

m은 2 이상의 정수이다.

A<sub>1</sub>, B<sub>1</sub>, C<sub>1</sub>, D<sub>1</sub>, E<sub>1</sub> 및 F<sub>1</sub>, 및 A<sub>2</sub>, B<sub>2</sub>, C<sub>2</sub>, D<sub>2</sub>, E<sub>2</sub> 및 F<sub>2</sub>는 6원환을 형성하고, 각각 제14족 내지 제15족에 속하는 원소로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있다.)

**청구항 19**

제18항에 있어서, 하기 화학식 9에서의 R<sub>1</sub> 및 R<sub>2</sub> 또는 화학식 10에서의 R<sub>1</sub> 내지 R<sub>4</sub>가 시아노기인 화합물.

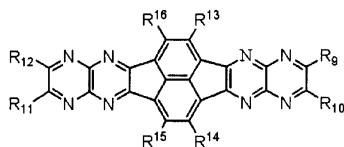
**청구항 20**

제18항 또는 제19항에 있어서, A<sub>1</sub> 및 A<sub>2</sub>, B<sub>1</sub> 및 B<sub>2</sub>, C<sub>1</sub> 및 C<sub>2</sub>, D<sub>1</sub> 및 D<sub>2</sub>, E<sub>1</sub> 및 E<sub>2</sub>, 및 F<sub>1</sub> 및 F<sub>2</sub>가 탄소인 화합물.

**청구항 21**

제1항에 있어서, 하기 화학식 11로 표시되는 화합물.

<화학식 11>



(식 중,

R<sup>9</sup> 내지 R<sup>12</sup>는 각각 독립적으로 할로젠, 시아노기, 니트로기, 플루오로알킬기 및 플루오로아릴기로 이루어지는 군에서 선택되는 전자 흡인기이다. R<sup>13</sup> 내지 R<sup>16</sup>은 각각 독립적으로 수소, 치환 또는 비치환된 알킬기, 치환 또는 비치환된 아릴기, 치환 또는 비치환된 복소환, 할로젠, 시아노기, 니트로기, 에스테르기, 아마이드기, 알콕시기, 치환 또는 비치환된 페녹시기 및 아미노기로 이루어지는 군으로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있다. 또한, R<sup>13</sup> 내지 R<sup>16</sup> 중에 인접하는 것은 각각 서로 결합하여 환 구조를 형성할 수도 있다.)

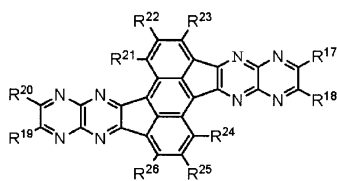
**청구항 22**

제21항에 있어서, R<sup>9</sup> 내지 R<sup>12</sup>가 시아노기인 화합물.

**청구항 23**

제1항에 있어서, 하기 화학식 12로 표시되는 화합물.

<화학식 12>



(식 중,

R<sup>17</sup> 내지 R<sup>20</sup>은 각각 독립적으로 할로젠, 시아노기, 니트로기, 플루오로알킬기 및 플루오로아릴기로 이루어지는

군에서 선택되는 전자 흡인기이다.  $R^{21}$  내지  $R^{26}$ 은 각각 독립적으로 수소, 치환 또는 비치환된 알킬기, 치환 또는 비치환된 아릴기, 치환 또는 비치환된 복소환, 할로젠, 시아노기, 니트로기, 에스테르기, 아미드기, 알콕시기, 치환 또는 비치환된 페녹시기 및 아미노기로 이루어지는 군으로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있다. 또한,  $R^{21}$  내지  $R^{26}$  중에 인접하는 것은 각각 서로 결합하여 환 구조를 형성할 수도 있다.)

**청구항 24**

제23항에 있어서,  $R^{17}$  내지  $R^{20}$ 이 시아노기인 화합물.

**청구항 25**

제1항 내지 제24항 중 어느 한 항에 기재된 화합물을 포함하는 유기 전계발광 소자용 재료.

**청구항 26**

제1항 내지 제24항 중 어느 한 항에 기재된 화합물을 포함하는 유기 전계발광 소자용 정공 주입 재료 또는 정공 수송 재료.

**청구항 27**

한쌍의 전극과, 이들에 협지되어 이루어지는 유기 발광층을 적어도 갖는 유기 전계발광 소자에 있어서, 제1항 내지 제24항 중 어느 한 항에 기재된 화합물을 함유하는 유기 전계발광 소자.

**청구항 28**

제27항에 있어서, 제1항 내지 제24항 중 어느 한 항에 기재된 화합물을 포함하는 정공 주입층 또는 정공 수송층을 갖는 유기 전계발광 소자.

**청구항 29**

제27항 또는 제28항에 기재된 유기 전계발광 소자를 갖는 장치.

**명세서**

**기술분야**

<1> 본 발명은 신규한 유기 전계발광(EL) 소자용 재료 및 그것을 함유하는 유기 전계발광 소자에 관한 것이고, 구동 전압이 낮으며 긴 수명이면서 누설 전류가 적은 유기 EL 소자에 관한 것이다.

**배경기술**

<2> 유기 물질을 사용한 유기 전계발광(EL) 소자는, 고체 발광형의 저가인 대면적 풀 컬러 표시 소자로서의 용도가 유망시되어, 많은 개발이 행해지고 있다. 일반적으로 EL 소자는 발광층 및 상기 층을 끼운 한쌍의 대향 전극으로 구성되어 있다. 발광은, 두 전극 사이에 전계가 인가되면 음극측으로부터 전자가 주입되고, 양극측으로부터 정공이 주입되며, 이 전자가 발광층에서 정공과 재결합하여 여기 상태를 생성하고, 여기 상태가 기저 상태로 되돌아갈 때에 에너지를 광으로서 방출하는 현상이다.

<3> 종래의 유기 EL 소자는 무기 발광 다이오드에 비해 구동 전압이 높고, 누설 전류가 높으며 발광 휘도나 발광 효율도 낮았다. 또한, 특성 열화도 현저하여 실용화에는 이르지 못하였다. 최근의 유기 EL 소자는 서서히 개량되고 있지만(예를 들면, 특허 문헌 1 및 특허 문헌 2 참조), 구동 전압을 더욱 낮추고, 수명을 길게 하면서 누설 전류를 적게 한다고 하는 요구가 있다.

<4> 특허 문헌 1: 일본 특허 제3571977호 공보

<5> 특허 문헌 2: 일본 특허 제3614405호 공보

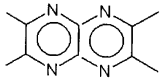
<6> <발명의 개시>

<7> <발명이 해결하고자 하는 과제>

<8> 본 발명은 상기 과제를 해결하기 위해 이루어진 것으로, 유기 EL 소자의 구성 성분으로서 유용한 신규한 화합물을 제공하고, 이 화합물을 이용함으로써 구동 전압이 낮고 긴 수명이면서 누설 전류가 적은 실용적인 유기 EL 소자를 실현하는 것을 목적으로 한다.

<9> <과제를 해결하기 위한 수단>

<10> 본 발명자들은 상기 목적을 달성하기 위해서 예의 연구를 거듭한 결과, 특정 구조를 갖는 신규한 화합물을 유기 EL 소자에 이용함으로써, 유기 EL 소자의 구동 전압을 낮게 할 수 있고, 수명을 길게 할 수 있으면서 누설 전류를 적게 할 수 있는 것을 발견하고, 본 발명을 완성하기에 이르렀다. 즉, 본 발명은 하기 구조(1)을 1 분자 중에 하나 이상 갖는 것을 특징으로 하는 화합물을 제공한다.



<11> 구조(1)

<12> 또한, 본 발명은 본 발명의 상기 화합물을 포함하는 유기 EL 소자용 재료 및 유기 EL 소자용 정공 주입 재료 또는 정공 수송 재료를 제공한다.

<13> 또한, 본 발명은 한쌍의 전극과, 이들에 협지되어 이루어지는 유기 발광층을 적어도 갖는 유기 전계발광 소자에 있어서, 본 발명의 상기 화합물을 함유하는 유기 EL 소자를 제공한다.

<14> 또한, 본 발명은 상기 유기 EL 소자를 갖는 장치를 제공한다.

<15> <발명의 효과>

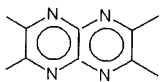
<16> 본 발명의 화합물은 유기 EL 소자 재료, 특히 정공 주입 재료로서 이용한 경우에 양호한 성능을 나타내었다. 또한, 일본 특허 공개 (평)03-232886에는 디시아노테트라아자나프탈렌의 합성예가 기재되어 있지만, 각 화합물의 물성이나 응용에 대한 구체적인 기재는 되어 있지 않다. 또한, 일본 특허 공개 제2004-323434에는 디시아노피라지노퀴놀리딘 유도체가 전자 수용성이나 전자 이동도가 우수하다는 보고예가 있다. 그러나, 전자 디바이스, 예를 들면 유기 EL 소자에 이용한 경우의 성능 등에 대한 설명은 없고, 본 발명과 같이 유기 EL 소자 재료, 특히 정공 주입 재료로서 이용한 경우의 예는 없다. 또한, 본 발명의 화합물은 구조(1)의 부위 외에, 예를 들면 아자플루오란텐 골격과 조합함으로써 전자 수용성을 더욱 높이는 등의 전자 상태를 최적화하거나, 분자의 입체 구조를 변화시킴으로써 결정화를 억제하는 등 박막 상태를 변화시킬 수 있어, 유기 EL 소자 성능을 향상시킬 수 있다. 즉, 본 발명의 화합물은 높은 전자 수용성을 가짐과 동시에 양호한 박막을 형성할 수 있기 때문에, 저전압 구동이 가능하고, 누설 전류의 감소, 또한 장기 수명이나 전압 상승을 감소시키는 것이 가능하다.

**발명의 상세한 설명**

<17> <발명을 실시하기 위한 최선의 형태>

<18> (화합물)

<19> 본 발명의 신규 화합물은 하기의 구조(1)을 1 분자 중에 하나 이상 갖는다. 바람직하게는 하기 구조(1)을 1 분자 중에 2개 이상 갖는다.

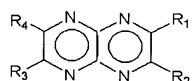


<20> 구조(1)

<21> 이러한 화합물로서는, 이하의 것을 들 수 있지만, 이들로 한정되지 않는다.

<22> (1) 하기 화학식 1로 표시되는 화합물.

**화학식 1**



<23>

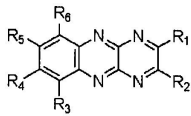
<24> (식 중,

<25> R<sub>1</sub> 내지 R<sub>4</sub>는 수소, 치환 또는 비치환된 알킬기, 치환 또는 비치환된 아릴기, 치환 또는 비치환된 복소환, 할로겐, 시아노기, 니트로기, 에스테르기, 아미드기, 알콕시기, 치환 또는 비치환된 페녹시기 및 아미노기로 이루어지는 군으로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있다. 또한, R<sub>1</sub> 내지 R<sub>4</sub> 중에 인접하는 것은 각각 서로 결합하여 환 구조를 형성할 수도 있다.)

<26> 화학식 1에 있어서, 바람직하게는 R<sub>1</sub>과 R<sub>2</sub>는 각각 서로 결합하여 환 구조를 형성한다. 또한, 바람직하게는 R<sub>1</sub>과 R<sub>2</sub>는 각각 서로 결합하여 환 구조를 형성하고, R<sub>3</sub>과 R<sub>4</sub>는 각각 서로 결합하여 환 구조를 형성한다.

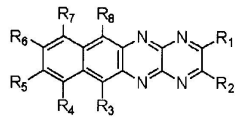
<27> (2) 하기 화학식 2 내지 화학식 4 중 어느 것으로 표시되는 화합물.

**화학식 2**



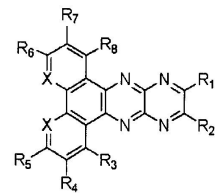
<28>

**화학식 3**



<29>

**화학식 4**



<30>

<31> (식 중,

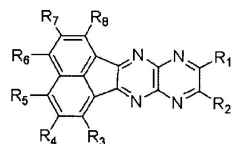
<32> R<sub>1</sub> 내지 R<sub>8</sub>은 수소, 치환 또는 비치환된 알킬기, 치환 또는 비치환된 아릴기, 치환 또는 비치환된 복소환, 할로겐, 시아노기, 니트로기, 에스테르기, 아미드기, 알콕시기, 치환 또는 비치환된 페녹시기 및 아미노기로 이루어지는 군으로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있다. 또한, R<sub>1</sub> 내지 R<sub>8</sub> 중에 인접하는 것은 각각 서로 결합하여 환 구조를 형성할 수도 있다. 단, R<sub>3</sub> 내지 R<sub>8</sub> 중 하나 이상은 치환 알킬기, 치환 아릴기, 치환 또는 비치환된 복소환, 할로겐, 시아노기, 니트로기, 에스테르기, 아미드기, 치환 또는 비치환된 페녹시기 및 아미노기로 이루어지는 군으로부터 선택된다.

<33> X는 N 또는 CH이다.)

<34> 화학식 2 내지 화학식 4에 있어서, 바람직하게는 R<sub>1</sub> 및 R<sub>2</sub>는 시아노기이다. 또한, 바람직하게는 R<sub>3</sub> 내지 R<sub>8</sub> 중 하나 이상은 불소를 포함하는 치환기이다.

<35> (3) 하기 화학식 5로 표시되는 화합물.

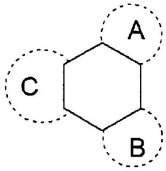
**화학식 5**



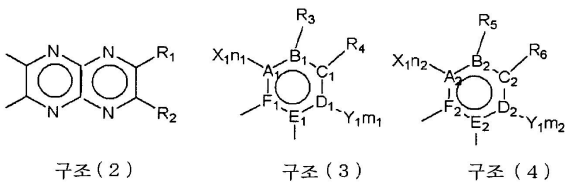
<36>

- <37> (식 중,
- <38>  $R_1$  내지  $R_8$ 은 수소, 치환 또는 비치환된 알킬기, 치환 또는 비치환된 아릴기, 치환 또는 비치환된 복소환, 할로젠, 시아노기, 니트로기, 에스테르기, 아미드기, 알콕시기, 치환 또는 비치환된 페녹시기 및 아미노기로 이루어지는 군으로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있다. 또한,  $R_1$  내지  $R_8$  중에 인접하는 것은 각각 서로 결합하여 환 구조를 형성할 수도 있다.)
- <39> 화학식 5에 있어서, 바람직하게는  $R_1$  및  $R_2$ 는 각각 독립적으로 할로젠, 시아노기, 니트로기, 플루오로알킬기 및 플루오로아릴기로 이루어지는 군에서 선택되는 전자 흡인기이고,  $R_3$  내지  $R_8$ 은 수소, 치환 또는 비치환된 알킬기, 치환 또는 비치환된 아릴기, 치환 또는 비치환된 복소환, 할로젠, 시아노기, 니트로기, 에스테르기, 아미드기, 알콕시기, 치환 또는 비치환된 페녹시기 및 아미노기로 이루어지는 군으로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있고,  $R_3$  내지  $R_8$  중에 인접하는 것은 각각 서로 결합하여 환 구조를 형성할 수도 있다.
- <40> 화학식 5에 있어서, 바람직하게는  $R_1$  및  $R_2$ 는 시아노기이다. 또한, 바람직하게는  $R_3$  내지  $R_8$  중 하나 이상은 불소를 포함하는 치환기이다.
- <41> (4) 하기 화학식 6으로 표시되는 화합물.

**화학식 6**

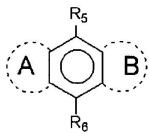


- <42>
- <43> (식 중,
- <44> A 내지 C환은 하기 구조(2) 내지 (4)로부터 구성되고, A 내지 C환 중 하나 이상이 구조(2)이다.



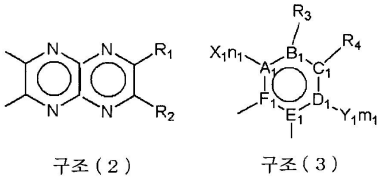
- <45>
- <46> 여기서,  $R_1$  내지  $R_6$ 은 수소, 치환 또는 비치환된 알킬기, 치환 또는 비치환된 아릴기, 치환 또는 비치환된 복소환, 할로젠, 시아노기, 니트로기, 에스테르기, 아미드기, 알콕시기, 치환 또는 비치환된 페녹시기 및 아미노기로 이루어지는 군으로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있다.
- <47>  $X_1$  및  $X_2$ , 및  $Y_1$  및  $Y_2$ 는 수소, 치환 또는 비치환된 알킬기, 치환 또는 비치환된 아릴기, 치환 또는 비치환된 복소환, 할로젠, 시아노기, 니트로기, 에스테르기, 아미드기, 알콕시기, 치환 또는 비치환된 페녹시기 및 아미노기로 이루어지는 군으로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있다.
- <48> 또한,  $R_1$  내지  $R_6$ ,  $X_1$  및  $X_2$ , 및  $Y_1$  및  $Y_2$  중에 인접하는 것은 각각 서로 결합하여 환 구조를 형성할 수도 있다.
- <49>  $n_1$  및  $n_2$ , 및  $m_1$  및  $m_2$ 는 0 또는 1의 정수이다.
- <50>  $A_1$ ,  $B_1$ ,  $C_1$ ,  $D_1$ ,  $E_1$  및  $F_1$ , 및  $A_2$ ,  $B_2$ ,  $C_2$ ,  $D_2$ ,  $E_2$  및  $F_2$ 는 6원환을 형성하고, 각각 제14족 내지 제15족에 속하는 원소로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있다.)
- <51> 화학식 6에 있어서, 바람직하게는  $A_1$  및  $A_2$ , 및  $D_1$  및  $D_2$ 는 질소 원자이다. 또한, 바람직하게는  $R_1$  및  $R_2$ 는 시아노기이다.
- <52> (5) 하기 화학식 7로 표시되는 화합물.

**화학식 7**



<53>

<54> (식 중, A환 및 B환은 하기 구조(2) 또는 구조(3)으로부터 구성되고, A환 및 B환 중 하나 이상이 구조(2)이다.



<55>

<56> 여기서, R<sub>1</sub> 내지 R<sub>6</sub>은 수소, 치환 또는 비치환된 알킬기, 치환 또는 비치환된 아릴기, 치환 또는 비치환된 복소환, 할로젠, 시아노기, 니트로기, 에스테르기, 아미드기, 알콕시기, 치환 또는 비치환된 페녹시기 및 아미노기로 이루어지는 군으로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있다.

<57> X<sub>1</sub> 및 Y<sub>1</sub>은 수소, 치환 또는 비치환된 알킬기, 치환 또는 비치환된 아릴기, 치환 또는 비치환된 복소환, 할로젠, 시아노기, 니트로기, 에스테르기, 아미드기, 알콕시기, 치환 또는 비치환된 페녹시기 및 아미노기로 이루어지는 군으로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있다.

<58> 또한, R<sub>1</sub> 내지 R<sub>6</sub>, X<sub>1</sub> 및 Y<sub>1</sub> 중에 인접하는 것은 각각 서로 결합하여 환 구조를 형성할 수도 있다.

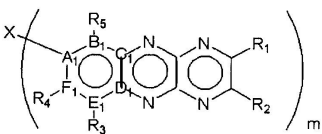
<59> n<sub>1</sub> 및 m<sub>1</sub>은 0 또는 1의 정수이다.

<60> A<sub>1</sub>, B<sub>1</sub>, C<sub>1</sub>, D<sub>1</sub>, E<sub>1</sub> 및 F<sub>1</sub>은 6원환을 형성하고, 각각 제14족 내지 제15족에 속하는 원소로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있다.)

<61> 화학식 7에 있어서, 바람직하게는 A환 및 B환은 모두 구조(2)이다. 또한, A<sub>1</sub> 및 D<sub>1</sub>은 바람직하게는 질소 원자이고, R<sub>1</sub> 및 R<sub>2</sub>는 바람직하게는 시아노기이다.

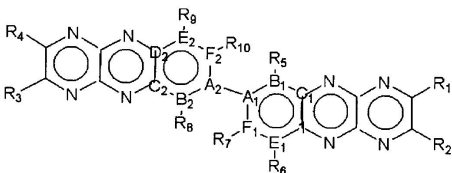
<62> (6) 하기 화학식 9 또는 화학식 10으로 표시되는 화합물.

**화학식 9**



<63>

**화학식 10**



<64>

<65> (식 중,

<66> R<sub>1</sub> 내지 R<sub>10</sub>은 수소, 치환 또는 비치환된 알킬기, 치환 또는 비치환된 아릴기, 치환 또는 비치환된 복소환, 할로젠, 시아노기, 니트로기, 에스테르기, 아미드기, 알콕시기, 치환 또는 비치환된 페녹시기 및 아미노기로 이루어지는 군으로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있다.

<67> X는 치환 또는 비치환된 알칸, 치환 또는 비치환된 방향족환, 치환 또는 비치환된 복소환, 치환 또는 비치환된

방향족환 수산화물 및 아민으로부터 유도되는 m개의 기로 이루어지는 군으로부터 선택된다.

<68> 또한, R<sub>1</sub> 내지 R<sub>10</sub> 및 X 중에 인접하는 것은 각각 서로 결합하여 환 구조를 형성할 수도 있다.

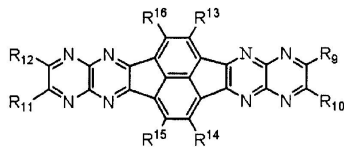
<69> m은 2 이상의 정수이다.

<70> A<sub>1</sub>, B<sub>1</sub>, C<sub>1</sub>, D<sub>1</sub>, E<sub>1</sub> 및 F<sub>1</sub>, 및 A<sub>2</sub>, B<sub>2</sub>, C<sub>2</sub>, D<sub>2</sub>, E<sub>2</sub> 및 F<sub>2</sub>는 6원환을 형성하고, 각각 제14족 내지 제15족에 속하는 원소로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있다.)

<71> 바람직하게는, 화학식 9에서의 R<sub>1</sub> 및 R<sub>2</sub> 또는 화학식 10에서의 R<sub>1</sub> 내지 R<sub>4</sub>는 시아노기이다. 또한, 바람직하게는 A<sub>1</sub> 및 A<sub>2</sub>, B<sub>1</sub> 및 B<sub>2</sub>, C<sub>1</sub> 및 C<sub>2</sub>, D<sub>1</sub> 및 D<sub>2</sub>, E<sub>1</sub> 및 E<sub>2</sub>, 및 F<sub>1</sub> 및 F<sub>2</sub>는 탄소이다.

<72> (7) 하기 화학식 11로 표시되는 화합물.

**화학식 11**



<73>

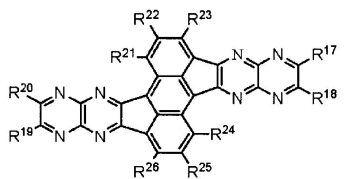
<74> (식 중,

<75> R<sup>9</sup> 내지 R<sup>12</sup>는 각각 독립적으로 할로젠, 시아노기, 니트로기, 플루오로알킬기 및 플루오로아릴기로 이루어지는 군에서 선택되는 전자 흡인기이다. R<sup>13</sup> 내지 R<sup>16</sup>은 각각 독립적으로 수소, 치환 또는 비치환된 알킬기, 치환 또는 비치환된 아릴기, 치환 또는 비치환된 복소환, 할로젠, 시아노기, 니트로기, 에스테르기, 아마이드기, 알콕시기, 치환 또는 비치환된 페녹시기 및 아미노기로 이루어지는 군으로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있다. 또한, R<sup>13</sup> 내지 R<sup>16</sup> 중에 인접하는 것은 각각 서로 결합하여 환 구조를 형성할 수도 있다.)

<76> 바람직하게는, 화학식 11에서의 R<sup>9</sup> 내지 R<sup>12</sup>는 시아노기이다.

<77> (8) 하기 화학식 12로 표시되는 화합물.

**화학식 12**



<78>

<79> (식 중,

<80> R<sup>17</sup> 내지 R<sup>20</sup>은 각각 독립적으로 할로젠, 시아노기, 니트로기, 플루오로알킬기 및 플루오로아릴기로 이루어지는 군에서 선택되는 전자 흡인기이다. R<sup>21</sup> 내지 R<sup>26</sup>은 각각 독립적으로 수소, 치환 또는 비치환된 알킬기, 치환 또는 비치환된 아릴기, 치환 또는 비치환된 복소환, 할로젠, 시아노기, 니트로기, 에스테르기, 아마이드기, 알콕시기, 치환 또는 비치환된 페녹시기 및 아미노기로 이루어지는 군으로부터 선택되고, 동일할 수도 상이할 수도 있다. 또한, R<sup>21</sup> 내지 R<sup>26</sup> 중에 인접하는 것은 각각 서로 결합하여 환 구조를 형성할 수도 있다.)

<81> 바람직하게는 화학식 12에서의 R<sup>17</sup> 내지 R<sup>20</sup>은 시아노기이다.

<82> 화학식 1 내지 화학식 10의 화합물에 있어서, 화학식 1의 R<sub>1</sub> 내지 R<sub>4</sub>, 화학식 2 내지 화학식 4의 R<sub>1</sub> 내지 R<sub>3</sub>, 화학식 5의 R<sub>1</sub> 내지 R<sub>8</sub>, 화학식 6의 R<sub>1</sub> 내지 R<sub>6</sub>, 화학식 7의 R<sub>1</sub> 내지 R<sub>6</sub>, 화학식 9 및 화학식 10의 R<sub>1</sub> 내지 R<sub>10</sub>, 화학식 11의 R<sup>13</sup> 내지 R<sup>16</sup>, 및 화학식 12의 R<sup>21</sup> 내지 R<sup>26</sup>으로 표시되는 치환 또는 비치환된 알킬기는 직쇄 또는 분지

쇄 중 어느 것일 수도 있고, 바람직하게는 탄소수가 1 내지 30이다. 또한, 치환기로서는 히드록시기, 아미노기, 시아노기, 니트로기, 할로젠 원자 등을 들 수 있다. 상기 알킬기는 상기 치환기를 1개 또는 복수개 가질 수도 있다. 구체적으로는, 예를 들어 메틸기, 에틸기, 프로필기, 이소프로필기, n-부틸기, s-부틸기, 이소부틸기, t-부틸기, n-펜틸기, n-헥실기, n-헵틸기, n-옥틸기, 히드록시메틸기, 1-히드록시에틸기, 2-히드록시에틸기, 2-히드록시이소부틸기, 1,2-디히드록시에틸기, 1,3-디히드록시이소프로필기, 2,3-디히드록시-t-부틸기, 1,2,3-트리히드록시프로필기나, 시클로헥실기, 시클로헵틸기 등의 환상 알킬기나, 플루오로알킬기(바람직하게는 탄소수가 1 내지 16이고, 예를 들면 트리플루오로메틸기, 펜타플루오로에틸기, 헵타플루오로프로필기, 퍼플루오로시클로헥실기, 퍼플루오로아다만틸기 등, 클로로메틸기, 1-클로로에틸기, 2-클로로에틸기, 2-클로로이소부틸기, 1,2-디클로로에틸기, 1,3-디클로로이소프로필기, 2,3-디클로로-t-부틸기, 1,2,3-트리클로로프로필기, 브로모메틸기, 1-브로모에틸기, 2-브로모에틸기, 2-브로모이소부틸기, 1,2-디브로모에틸기, 1,3-디브로모이소프로필기, 2,3-디브로모-t-부틸기, 1,2,3-트리브로모프로필기, 요오도메틸기, 1-요오도에틸기, 2-요오도에틸기, 2-요오도이소부틸기, 1,2-디요오도에틸기, 1,3-디요오도이소프로필기, 2,3-디요오도-t-부틸기, 1,2,3-트리요오도프로필기 등의 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 30의 할로젠화 알킬기, 아미노메틸기, 1-아미노에틸기, 2-아미노에틸기, 2-아미노이소부틸기, 1,2-디아미노에틸기, 1,3-디아미노이소프로필기, 2,3-디아미노-t-부틸기, 1,2,3-트리아미노프로필기, 시아노메틸기, 1-시아노에틸기, 2-시아노에틸기, 2-시아노이소부틸기, 1,2-디시아노에틸기, 1,3-디시아노이소프로필기, 2,3-디시아노-t-부틸기, 1,2,3-트리아미노프로필기, 니트로메틸기, 1-니트로에틸기, 2-니트로에틸기, 2-니트로이소부틸기, 1,2-디니트로에틸기, 1,3-디니트로이소프로필기, 2,3-디니트로-t-부틸기, 1,2,3-트리아미노프로필기 등을 들 수 있다. 이들 중에서, 바람직하게는 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 10의 알킬기이고, 예를 들어 메틸기, 트리플루오로메틸기, 이소프로필기, t-부틸기, 에틸기, 프로필기, 펜타플루오로에틸기, 시아노메틸기이다.

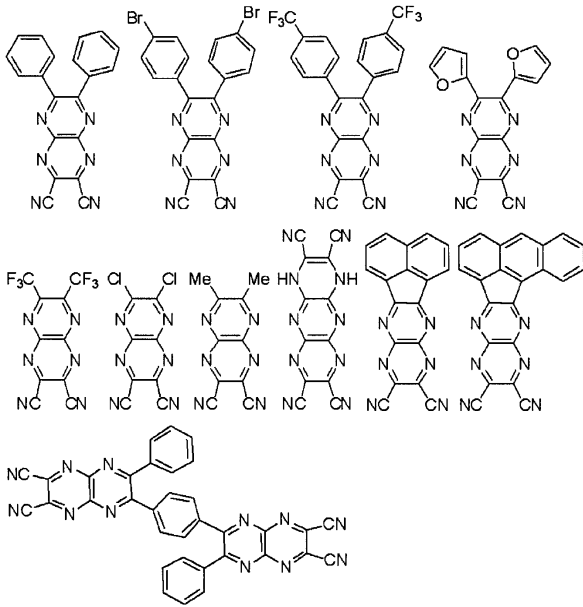
<83> 화학식 1 내지 화학식 10의 화합물에 있어서, 화학식 1의 R<sub>1</sub> 내지 R<sub>4</sub>, 화학식 2 내지 화학식 4의 R<sub>1</sub> 내지 R<sub>8</sub>, 화학식 5의 R<sub>1</sub> 내지 R<sub>8</sub>, 화학식 6의 R<sub>1</sub> 내지 R<sub>6</sub>, 화학식 7의 R<sub>1</sub> 내지 R<sub>6</sub>, 화학식 9 및 화학식 10의 R<sub>1</sub> 내지 R<sub>10</sub>, 화학식 11의 R<sup>13</sup> 내지 R<sup>16</sup> 및 화학식 12의 R<sup>21</sup> 내지 R<sup>26</sup>으로 표시되는 치환 또는 비치환된 아릴기는 단환식 또는 다환식 중 어느 것일 수도 있고, 바람직하게는 핵 원자수가 6 내지 40이다. 또한, 치환기로서는 탄소수 1 내지 20의 알킬기, 탄소수 1 내지 20의 알콕시기, 페녹시기, 히드록시기, 아미노기, 시아노기, 니트로기, 할로젠 원자 등을 들 수 있다. 상기 아릴기는 상기 치환기를 1개 또는 복수개 가질 수도 있다. 예를 들면, 플루오로아릴(바람직하게는 핵 원자수가 6 내지 40이고, 예를 들면 펜타플루오로페닐기, 테트라플루오로페닐기, 트리플루오로페닐기, 디플루오로페닐기, 플루오로페닐기, 트리플루오로메틸페닐기, 비스트리플루오로메틸페닐기, 트리스트리플루오로메틸페닐기, 테트라트리플루오로메틸페닐기, 펜타트리플루오로메틸페닐기 등) 등이다. 구체적으로는, 예를 들면 페닐기, 1-나프틸기, 2-나프틸기, 1-안트릴기, 2-안트릴기, 9-안트릴기, 1-페난트릴기, 2-페난트릴기, 3-페난트릴기, 4-페난트릴기, 9-페난트릴기, 1-나프타세닐기, 2-나프타세닐기, 9-나프타세닐기, 1-피레닐기, 2-피레닐기, 4-피레닐기, 2-비페닐일기, 3-비페닐일기, 4-비페닐일기, p-테르페닐-4-일기, p-테르페닐-3-일기, p-테르페닐-2-일기, m-테르페닐-4-일기, m-테르페닐-3-일기, m-테르페닐-2-일기, o-톨릴기, m-톨릴기, p-톨릴기, p-t-부틸페닐기, p-(2-페닐프로필)페닐기, 3-메틸-2-나프틸기, 4-메틸-1-나프틸기, 4-메틸-1-안트릴기, 4'-메틸비페닐일기, 4"-t-부틸-p-테르페닐-4-일기, 플루오란테닐기, 플루오레닐기 등을 들 수 있다. 이들 중에서, 바람직하게는 치환 또는 비치환된 핵 원자수 6 내지 20의 아릴기이고, 예를 들면 페닐기, 나프틸기, 비페닐일기, 안트라닐기, 페난트릴기, 피레닐기, 크리세닐기, 플루오란테닐기, 플루오레닐기이다. 이들 기는 상술한 치환기로 치환될 수도 있다.

<84> 화학식 1 내지 화학식 10의 화합물에 있어서, 화학식 1의 R<sub>1</sub> 내지 R<sub>4</sub>, 화학식 2 내지 화학식 4의 R<sub>1</sub> 내지 R<sub>8</sub>, 화학식 5의 R<sub>1</sub> 내지 R<sub>8</sub>, 화학식 6의 R<sub>1</sub> 내지 R<sub>6</sub>, 화학식 7의 R<sub>1</sub> 내지 R<sub>6</sub>, 화학식 9 및 화학식 10의 R<sub>1</sub> 내지 R<sub>10</sub>, 화학식 11의 R<sup>13</sup> 내지 R<sup>16</sup> 및 화학식 12의 R<sup>21</sup> 내지 R<sup>26</sup>으로 표시되는 치환 또는 비치환된 복소환은 단환식 또는 다환식 중 어느 것일 수도 있고, 바람직하게는 핵 원자수가 3 내지 18이다. 또한, 치환기로서는 탄소수 1 내지 20의 알킬기, 탄소수 1 내지 20의 알콕시기, 페녹시기, 히드록시기, 아미노기, 시아노기, 니트로기, 할로젠 원자 등을 들 수 있다. 상기 아릴기는 상기 치환기를 1개 또는 복수개 가질 수도 있다. 구체적으로는, 예를 들면 1-피롤리딜기, 2-피롤리딜기, 3-피롤리딜기, 1-피페리딜기, 2-피페리딜기, 3-피페리딜기, 4-피페리딜기, 1-피롤릴기, 2-피롤릴기, 3-피롤릴기, 피라지닐기, 2-피리디닐기, 3-피리디닐기, 4-피리디닐기, 1-인돌릴기, 2-인돌릴기, 3-인돌릴기, 4-인돌릴기, 5-인돌릴기, 6-인돌릴기, 7-인돌릴기, 1-이소인돌릴기, 2-이소인돌릴기, 3-이소인돌릴기, 4-이소인돌릴기, 5-이소인돌릴기, 6-이소인돌릴기, 7-이소인돌릴기, 2-푸릴기, 3-푸릴기, 2-벤조푸

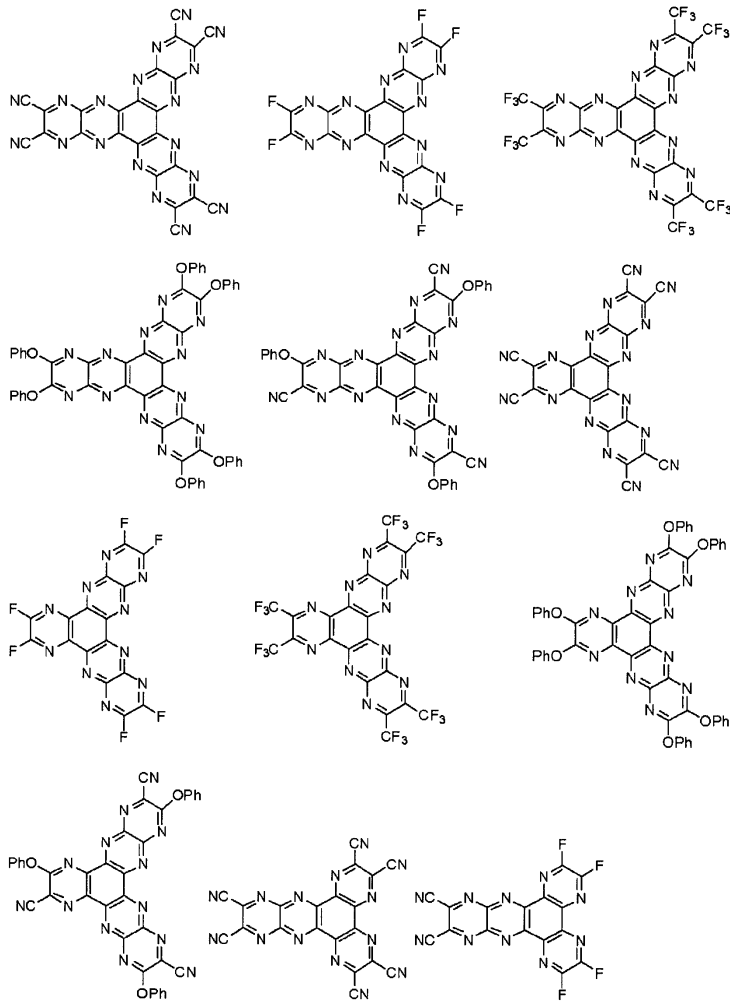
라닐기, 3-벤조푸라닐기, 4-벤조푸라닐기, 5-벤조푸라닐기, 6-벤조푸라닐기, 7-벤조푸라닐기, 1-이소벤조푸라닐기, 3-이소벤조푸라닐기, 4-이소벤조푸라닐기, 5-이소벤조푸라닐기, 6-이소벤조푸라닐기, 7-이소벤조푸라닐기, 2-퀴놀릴기, 3-퀴놀릴기, 4-퀴놀릴기, 5-퀴놀릴기, 6-퀴놀릴기, 7-퀴놀릴기, 8-퀴놀릴기, 1-이소퀴놀릴기, 3-이소퀴놀릴기, 4-이소퀴놀릴기, 5-이소퀴놀릴기, 6-이소퀴놀릴기, 7-이소퀴놀릴기, 8-이소퀴놀릴기, 2-퀴놀살리닐기, 5-퀴놀살리닐기, 6-퀴놀살리닐기, 1-카르바졸릴기, 2-카르바졸릴기, 3-카르바졸릴기, 4-카르바졸릴기, 9-카르바졸릴기, 1-페난트리디닐기, 2-페난트리디닐기, 3-페난트리디닐기, 4-페난트리디닐기, 6-페난트리디닐기, 7-페난트리디닐기, 8-페난트리디닐기, 9-페난트리디닐기, 10-페난트리디닐기, 1-아크리디닐기, 2-아크리디닐기, 3-아크리디닐기, 4-아크리디닐기, 9-아크리디닐기, 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-페나지닐기, 2-페나지닐기, 1-페노티아지닐기, 2-페노티아지닐기, 3-페노티아지닐기, 4-페노티아지닐기, 10-페노티아지닐기, 1-페녹사지닐기, 2-페녹사지닐기, 3-페녹사지닐기, 4-페녹사지닐기, 10-페녹사지닐기, 2-옥사졸릴기, 4-옥사졸릴기, 5-옥사졸릴기, 2-옥사디아졸릴기, 5-옥사디아졸릴기, 3-푸라자닐기, 2-티에닐기, 3-티에닐기, 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-부틸피롤-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-부틸-1-인돌릴기, 4-t-부틸-1-인돌릴기, 2-t-부틸-3-인돌릴기, 4-t-부틸-3-인돌릴기 등을 들 수 있다. 이들 중에서, 바람직하게는 치환 또는 비치환된 핵 원자수 5 내지 20의 복소환이고, 예를 들면 피리딜기, 피라질기, 퀴놀릴기, 퀴놀살릴기, 페난트롤리닐기이다.

- <85> 화학식 1 내지 화학식 10의 화합물에 있어서, 화학식 1의 R<sub>1</sub> 내지 R<sub>4</sub>, 화학식 2 내지 화학식 4의 R<sub>1</sub> 내지 R<sub>8</sub>, 화학식 5의 R<sub>1</sub> 내지 R<sub>8</sub>, 화학식 6의 R<sub>1</sub> 내지 R<sub>6</sub>, 화학식 7의 R<sub>1</sub> 내지 R<sub>6</sub>, 화학식 9 및 화학식 10의 R<sub>1</sub> 내지 R<sub>10</sub>, 화학식 11의 R<sup>9</sup> 내지 R<sup>16</sup> 및 화학식 12의 R<sup>17</sup> 내지 R<sup>26</sup>으로 표시되는 상기 이외의 기로서는, 예를 들면 이하의 것을 들 수 있다:
- <86> 할로겐 원자로서, 불소 원자, 염소 원자, 브롬 원자, 요오드 원자 등을 들 수 있다; 에스테르기로서, 바람직하게는 탄소수 1 내지 6의 에스테르기, 예를 들면 메톡시카르보닐기, 에톡시카르보닐기, 프로폭시카르보닐기, 이소프로폭시카르보닐기 등을 들 수 있다;
- <87> 아미드기로서, 카르복시아미드기(-C(=O)NH<sub>2</sub>), N-메틸카르복시아미드기(-C(=O)NMe<sub>2</sub>), N-페닐 N-메틸카르복시아미드기(-C(=O)NPh<sub>2</sub>) 등을 들 수 있다;
- <88> 알콕시기 및 치환 또는 비치환된 페녹시기는 -OY로 표시되는 기이고, Y 및 치환기의 예로서는, 상기 알킬기 및 아릴기에서 설명한 것과 동일한 예를 들 수 있고, 바람직하게는 탄소수 1 내지 30의 치환 또는 비치환된 페녹시기이다;
- <89> 그 밖의 기로서, 시아노기, 니트로기, 아미노기를 들 수 있다.
- <90> 화학식 6 내지 화학식 10의 화합물에 있어서, 화학식 6의 X<sub>1</sub> 및 X<sub>2</sub>, 및 Y<sub>1</sub> 및 Y<sub>2</sub>, 화학식 7의 X<sub>1</sub> 및 Y<sub>1</sub>, 및 화학식 9 및 화학식 10의 X로 표시되는 치환 또는 비치환된 알킬기, 치환 또는 비치환된 아릴기, 치환 또는 비치환된 복소환, 할로겐, 시아노기, 니트로기, 에스테르기, 아미드기, 알콕시기, 치환 또는 비치환된 페녹시기 및 아미노기는 상술한 것과 동일하다.
- <91> 또한, 화학식 6 내지 화학식 10의 화합물에 있어서, 화학식 6의 R<sub>1</sub> 내지 R<sub>6</sub>, X<sub>1</sub> 및 X<sub>2</sub>, 및 Y<sub>1</sub> 및 Y<sub>2</sub> 중에 인접하

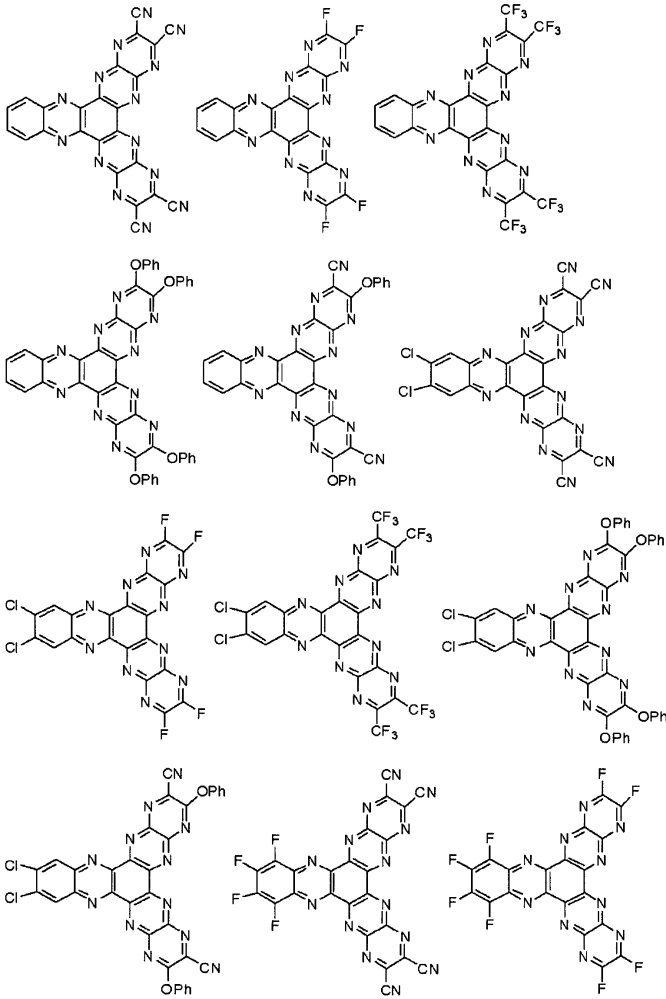




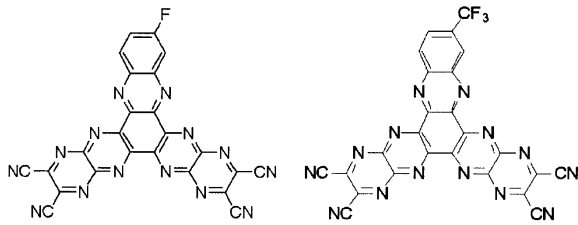
<95>



<96>

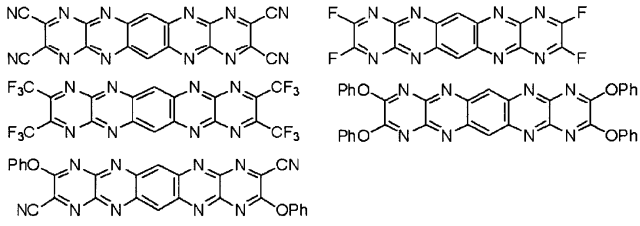


<97>

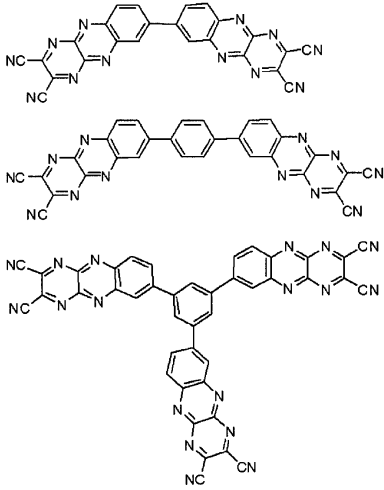


<98>





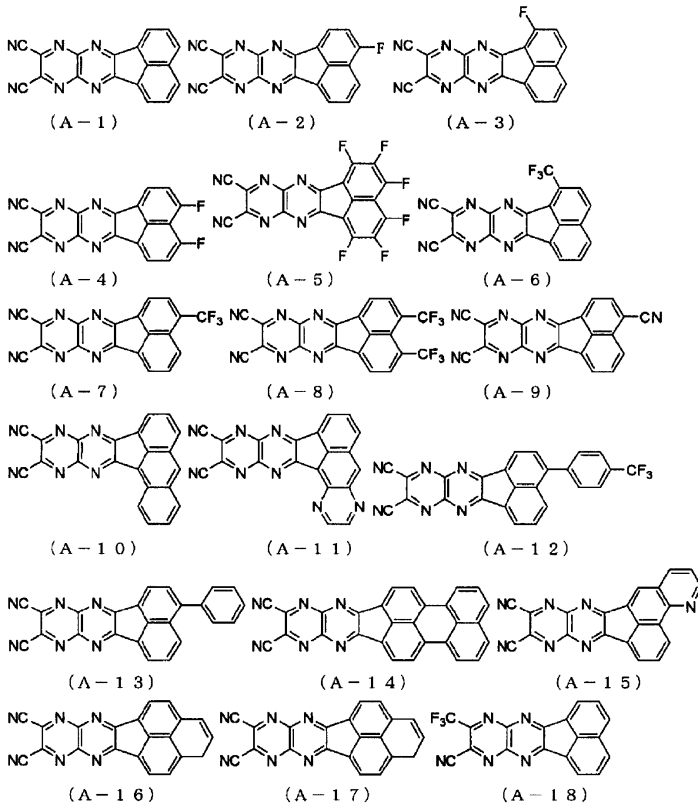
<101>



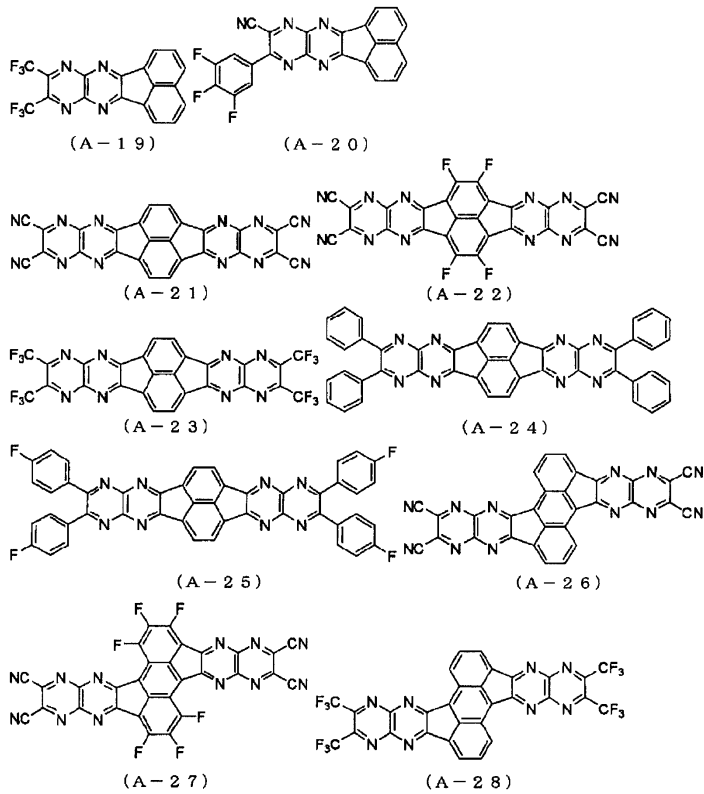
<102>

<103>

또한, 화학식 5, 화학식 11 및 화학식 12로 표시되는 화합물의 구체적인 예를 이하에 나타낸다.



<104>



<105>

<106>

(본 발명의 화합물의 합성 방법)

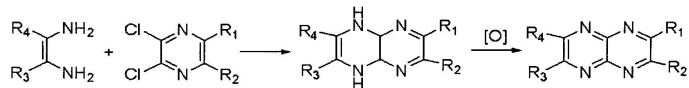
<107>

일례로서, 이하에 몇개의 합성 반응식을 나타내지만, 이들로 한정되는 것은 아니다.

<108>

(1) 디클로로피라진 유도체와 아민 화합물에 의한 합성법(문헌[Organic Letters Vol.6, No.12, 2007 내지 2010(2004)] 등 참조)

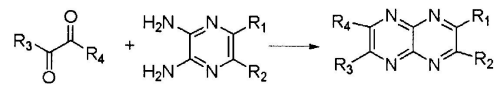
<109>



<110>

(2) 디아미노피라진 유도체와 카르보닐 화합물에 의한 합성법(문헌[Organic Letters Vol.6, No.12, 2007 내지 2010(2004)] 등 참조)

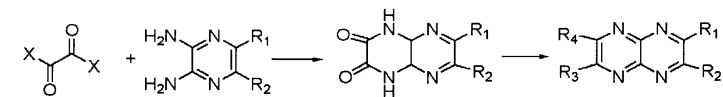
<111>



<112>

(3) 카르보닐 유도체와 아민 화합물에 의한 합성법(문헌[Journal of Heterocyclic Chemistry Vol.34, No.2,653 내지 657(1997)] 등 참조)

<113>



(X: 할로젠)

<114>

(유기 EL 소자의 구성)

<115>

본 발명의 유기 EL 소자는 한쌍의 전극과, 이들에 협지되어 이루어지는 유기 발광층을 적어도 갖는 유기 전계발광 소자이며, 본 발명의 화합물을 함유한다.

<116>

본 발명의 유기 EL 소자의 대표적인 소자 구성으로서는,

<117>

(1) 양극/발광층/음극

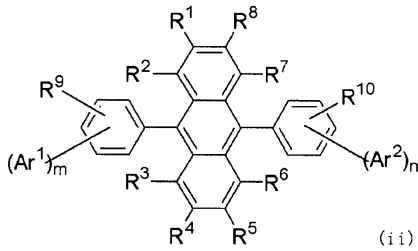
<118>

(2) 양극/정공 주입층/발광층/음극

- <119> (3) 양극/발광층/전자 주입층/음극
- <120> (4) 양극/정공 주입층/발광층/전자 주입층/음극
- <121> (5) 양극/유기 반도체층/발광층/음극
- <122> (6) 양극/유기 반도체층/전자 장벽층/발광층/음극
- <123> (7) 양극/유기 반도체층/발광층/부착 개선층/음극
- <124> (8) 양극/정공 주입층/정공 수송층/발광층/전자 주입층/음극
- <125> (9) 양극/절연층/발광층/절연층/음극
- <126> (10) 양극/무기 반도체층/절연층/발광층/절연층/음극
- <127> (11) 양극/유기 반도체층/절연층/발광층/절연층/음극
- <128> (12) 양극/절연층/정공 주입층/정공 수송층/발광층/절연층/음극
- <129> (13) 양극/절연층/정공 주입층/정공 수송층/발광층/전자 주입층/음극
- <130> 등의 구조를 들 수 있다.
- <131> 이들 중에서 통상 (8)의 구성이 바람직하게 이용되지만, 이것으로 한정되는 것은 아니다.
- <132> 본 발명의 신규 화합물은 유기 EL 소자의 어느 유기 박막층에 이용할 수도 있지만, 바람직하게는 정공 주입층 또는 정공 수송층에 사용할 수 있다. 본 발명의 신규 화합물을 정공 주입층 또는 정공 수송층에 이용함으로써 구동 전압이 낮고 긴 수명이면서 누설 전류가 적은 실용적인 유기 EL 소자를 실현할 수 있다.
- <133> 본 발명의 신규 화합물을 유기 박막층에 함유시키는 양으로서, 1 내지 100 몰%인 것이 바람직하다.
- <134> (투광성 기관)
- <135> 본 발명의 유기 EL 소자는 투광성의 기관 상에 제조한다. 여기서 말하는 투광성 기관은 유기 EL 소자를 지지하는 기관이고, 400 내지 700 nm의 가시 영역의 광 투과율이 50 % 이상이며 평활한 기관이 바람직하다.
- <136> 구체적으로는 유리판, 중합체판 등을 들 수 있다. 유리판으로서는, 특히 소다 석회 유리, 바륨·스트론튬 함유 유리, 납 유리, 알루미늄 규산 유리, 붕규산 유리, 바륨 붕규산 유리, 석영 등을 들 수 있다. 또한, 중합체판으로서는, 폴리카르보네이트, 아크릴, 폴리에틸렌테레프탈레이트, 폴리에테르술퍼드, 폴리술폰 등을 들 수 있다.
- <137> (양극)
- <138> 유기 박막 EL 소자의 양극은 정공을 정공 수송층 또는 발광층에 주입하는 역할을 담당하는 것이고, 양극측에 투명성을 필요로 하는 경우에는, 산화인듐 주석 합금(ITO), 산화주석(NESA), 산화인듐 아연 합금(IZO), 금, 은, 백금, 구리 등을 적용할 수 있다. 또한, 투명성을 필요로 하지 않는 반사형 전극으로 하는 경우에는, 이들 금속 외에, 알루미늄, 몰리브덴, 크롬, 니켈 등의 금속이나 합금을 사용할 수도 있다.
- <139> 이들 재료는 단독으로 이용할 수도 있지만, 이들 재료끼리의 합금이나, 그 밖의 원소를 첨가한 재료도 적절하게 선택하여 사용할 수 있다.
- <140> 양극은 이들 전극 물질을 증착법이나 스퍼터링법 등의 방법으로 박막을 형성시킴으로써 제조할 수 있다.
- <141> 발광층으로부터의 발광을 양극으로부터 취출하는 경우, 양극의 발광에 대한 투과율은 10 %보다 크게 하는 것이 바람직하다. 또한, 양극의 시트 저항은 수백  $\Omega/\square$  이하인 것이 바람직하다. 양극의 막 두께는 재료에도 의존하지만, 통상 10 nm 내지 1  $\mu\text{m}$ , 바람직하게는 10 내지 200 nm의 범위에서 선택된다.
- <142> (발광층)
- <143> 유기 EL 소자의 발광층은 이하 (1) 내지 (3)의 기능을 겸비하는 것이다.
- <144> (1) 주입 기능; 전계 인가시에 양극 또는 정공 주입층으로부터 정공을 주입할 수 있고, 음극 또는 전자 주입층으로부터 전자를 주입할 수 있는 기능

- <145> (2) 수송 기능; 주입한 전하(전자와 정공)를 전계의 힘으로 이동시키는 기능
  - <146> (3) 발광 기능; 전자와 정공의 재결합 장소를 제공하고, 이것을 발광으로 연결하는 기능
  - <147> 즉, 정공의 주입 용이성과 전자의 주입 용이성에 차이가 있을 수도 있고, 또한 정공과 전자의 이동도로 표시되는 수송능에 대소가 있을 수도 있지만, 어느 쪽이든 한쪽 전하를 이동시키는 것이 바람직하다.
  - <148> 이 발광층을 형성하는 방법으로서, 예를 들면 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 박막이나, 용액 상태 또는 액상 상태의 재료 화합물로부터 고체화되어 형성된 막을 말하고, 통상 이 분자 퇴적막은 LB법에 의해 형성된 박막(분자 누적막)과는 응집 구조, 고차 구조의 차이나, 그것에서 기인하는 기능적인 차이에 의해 구분할 수 있다.
  - <149> 또한, 일본 특허 공개 (소)57-51781호 공보에 개시되어 있는 바와 같이, 수지 등의 결합제와 재료 화합물을 용제에 용해시켜 용액으로 만든 후, 이것을 스핀 코팅법 등에 의해 박막화함으로써도 발광층을 형성할 수 있다.
  - <150> 본 발명에 있어서, 발광층에 사용할 수 있는 발광 재료 또는 호스트 재료로서는, 예를 들면 안트라센, 나프탈렌, 페난트렌, 피렌, 테트라센, 코로넨, 크리센, 플루오레세인, 페틸렌, 프탈로페틸렌, 나프탈로페틸렌, 페리논, 프탈로페리논, 나프탈로페리논, 디페닐부타디엔, 테트라페닐부타디엔, 쿠마린, 옥사디아졸, 알다진, 비스벤족사졸린, 비스스티릴, 피라진, 시클로펜타디엔, 퀴놀린 금속 착체, 아미노퀴놀린 금속 착체, 벤조퀴놀린 금속 착체, 이민, 디페닐에틸렌, 비닐안트라센, 디아미노카르바졸, 피란, 티오피란, 폴리메틴, 메로시아닌, 이미다졸 킬레이트화 옥시노이드 화합물, 퀴나크리돈, 루브렌 및 형광 색소 등을 들 수 있지만, 이것으로 한정되는 것은 아니다.
  - <151> 본 발명에 있어서는 본 발명의 신규 화합물을 발광 재료로서 이용할 수도 있다. 이 경우, 본 발명의 목적이 손상되지 않는 범위에서, 목적에 따라서 발광층에 본 발명의 신규 화합물로 이루어지는 발광 재료 이외의 다른 공지된 발광 재료를 함유시킬 수도 있고, 또한 본 발명의 신규 화합물로 이루어지는 발광 재료를 포함하는 발광층에, 다른 공지된 발광 재료를 포함하는 발광층을 적층할 수도 있다.
  - <152> 본 발명의 신규 화합물과 함께 발광층에 사용할 수 있는 발광 재료 또는 도핑 재료로서는, 앞서 발광층에 사용할 수 있는 발광 재료 또는 호스트 재료로서 예시된 재료를 사용할 수 있다.
  - <153> 본 발명의 신규 화합물과 함께, 또는 상기 발광 재료와 함께 발광층에 사용할 수 있는 호스트 재료로서는, 하기 (i) 내지 (ix)로 표시되는 화합물이 바람직하다.
  - <154> 하기 화학식(i)로 표시되는 비대칭 안트라센.
- (i)
- <155>
  - <156> (식 중, Ar은 치환 또는 비치환된 핵 탄소수 10 내지 50의 축합 방향족기이다.
  - <157> Ar'는 치환 또는 비치환된 핵 탄소수 6 내지 50의 방향족기이다.
  - <158> X는 치환 또는 비치환된 핵 탄소수 6 내지 50의 방향족기, 치환 또는 비치환된 핵 원자수 5 내지 50의 방향족 복소환기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 50의 알킬기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 50의 알콕시기, 치환 또는 비치환된 탄소수 6 내지 50의 아르알킬기, 치환 또는 비치환된 핵 원자수 5 내지 50의 아릴옥시기, 치환 또는 비치환된 핵 원자수 5 내지 50의 아릴티오기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 50의 알콕시카르보닐기, 카르복실기, 할로겐 원자, 시아노기, 니트로기, 히드록실기이다.
  - <159> a, b 및 c는 각각 0 내지 4의 정수이다.
  - <160> n은 1 내지 3의 정수이다. 또한, n이 2 이상인 경우에는, [] 안은 동일할 수도 상이할 수도 있다.)

<161> 하기 화학식(ii)로 표시되는 비대칭 모노안트라센 유도체.

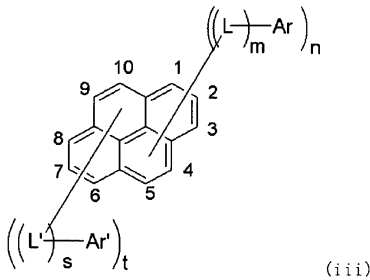


<162>

<163> (식 중, Ar<sup>1</sup> 및 Ar<sup>2</sup>는 각각 독립적으로 치환 또는 비치환된 핵 탄소수 6 내지 50의 방향족환기이고, m 및 n은 각각 1 내지 4의 정수이다. 단, m=n=1이면서 Ar<sup>1</sup>과 Ar<sup>2</sup>의 벤젠환에의 결합 위치가 좌우 대칭형인 경우에는, Ar<sup>1</sup>과 Ar<sup>2</sup>는 동일하지 않고, m 또는 n이 2 내지 4의 정수인 경우에는 m과 n은 상이한 정수이다.

<164> R<sup>1</sup> 내지 R<sup>10</sup>은 각각 독립적으로 수소 원자, 치환 또는 비치환된 핵 탄소수 6 내지 50의 방향족환기, 치환 또는 비치환된 핵 원자수 5 내지 50의 방향족 복소환기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 50의 알킬기, 치환 또는 비치환된 시클로알킬기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 50의 알콕시기, 치환 또는 비치환된 탄소수 6 내지 50의 아르알킬기, 치환 또는 비치환된 핵 원자수 5 내지 50의 아릴옥시기, 치환 또는 비치환된 핵 원자수 5 내지 50의 아릴티오기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 50의 알콕시카르보닐기, 치환 또는 비치환된 실릴기, 카르복실기, 할로젠 원자, 시아노기, 니트로기, 히드록실기이다.)

<165> 하기 화학식(iii)으로 표시되는 비대칭 피렌 유도체.



<166>

<167> (식 중, Ar 및 Ar'는 각각 치환 또는 비치환된 핵 탄소수 6 내지 50의 방향족기이다.

<168> L<sup>1</sup> 및 L'는 각각 치환 또는 비치환된 페닐렌기, 치환 또는 비치환된 나프탈레닐렌기, 치환 또는 비치환된 플루오레닐렌기, 또는 치환 또는 비치환된 디벤조실롤릴렌기이다.

<169> m은 0 내지 2의 정수, n은 1 내지 4의 정수, s는 0 내지 2의 정수, t는 0 내지 4의 정수이다.

<170> 또한, L 또는 Ar은 피렌의 1 내지 5 위치 중 어느 것에 결합하고, L' 또는 Ar'는 피렌의 6 내지 10 위치 중 어느 것에 결합한다.

<171> 단, n+t가 짝수일 때, Ar, Ar', L, L'는 하기 (1) 또는 (2)를 만족시킨다.

<172> (1) Ar ≠ Ar' 및/또는 L ≠ L' (여기서, ≠는 상이한 구조의 기인 것을 나타냄)

<173> (2) Ar = Ar' 이면서 L = L' 일 때

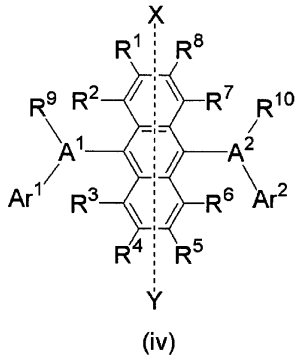
<174> (2-1) m ≠ s 및/또는 n ≠ t, 또는

<175> (2-2) m = s 이면서 n = t 일 때,

<176> (2-2-1) L 및 L', 또는 피렌이 각각 Ar 및 Ar' 상의 상이한 결합 위치에 결합되어 있거나,

<177> (2-2-2) L 및 L', 또는 피렌이 각각 Ar 및 Ar' 상의 동일 결합 위치에서 결합되어 있는 경우, L 및 L' 또는 Ar 및 Ar'의 피렌에서의 치환 위치가 1 위치와 6 위치, 또는 2 위치와 7 위치인 경우는 없다.)

<178> 하기 화학식(iv)로 표시되는 비대칭 안트라센 유도체.



<179> (식 중, A<sup>1</sup> 및 A<sup>2</sup>는 각각 독립적으로 치환 또는 비치환된 핵 탄소수 10 내지 20의 축합 방향족환기이다.

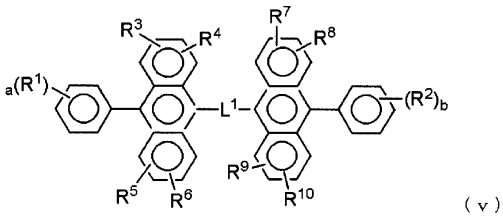
<181> Ar<sup>1</sup> 및 Ar<sup>2</sup>는 각각 독립적으로 수소 원자, 또는 치환 또는 비치환된 핵 탄소수 6 내지 50의 방향족환기이다.

<182> R<sup>1</sup> 내지 R<sup>10</sup>은 각각 독립적으로 수소 원자, 치환 또는 비치환된 핵 탄소수 6 내지 50의 방향족환기, 치환 또는 비치환된 핵 원자수 5 내지 50의 방향족 복소환기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 50의 알킬기, 치환 또는 비치환된 시클로알킬기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 50의 알콕시기, 치환 또는 비치환된 탄소수 6 내지 50의 아르알킬기, 치환 또는 비치환된 핵 원자수 5 내지 50의 아릴옥시기, 치환 또는 비치환된 핵 원자수 5 내지 50의 아릴티오기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 50의 알콕시카르보닐기, 치환 또는 비치환된 실릴기, 카르복실기, 할로젠 원자, 시아노기, 니트로기 또는 히드록실기이다.

<183> Ar<sup>1</sup>, Ar<sup>2</sup>, R<sup>9</sup> 및 R<sup>10</sup>은 각각 복수개일 수도 있고, 인접하는 것끼리 포화 또는 불포화된 환상 구조를 형성할 수도 있다.

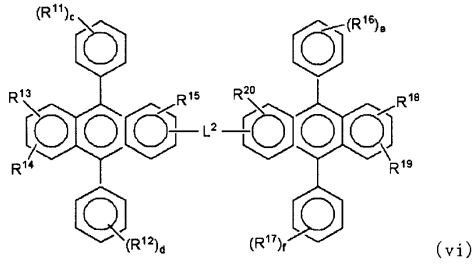
<184> 단, 화학식(iv)에 있어서, 중심의 안트라센의 9 위치 및 10 위치에, 상기 안트라센 상에 나타내는 X-Y축에 대하여 대칭형이 되는 기가 결합하는 경우는 없다.)

<185> 하기 화학식(v)로 표시되는 안트라센 유도체.



<186> (식 중, R<sup>1</sup> 내지 R<sup>10</sup>은 각각 독립적으로 수소 원자, 알킬기, 시클로알킬기, 치환될 수도 있는 아릴기, 알콕실기, 아릴옥시기, 알킬아미노기, 알케닐기, 아릴아미노기, 또는 치환될 수도 있는 복소환식기를 나타내고, a 및 b는 각각 1 내지 5의 정수를 나타내고, 이들이 2 이상인 경우, R<sup>1</sup>끼리 또는 R<sup>2</sup>끼리는 각각에 있어서 동일할 수도 상이할 수도 있고, 또한 R<sup>1</sup>끼리 또는 R<sup>2</sup>끼리 결합하여 환을 형성할 수도 있고, R<sup>3</sup>과 R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup>와 R<sup>6</sup>, R<sup>7</sup>과 R<sup>8</sup>, R<sup>9</sup>와 R<sup>10</sup>이 서로 결합하여 환을 형성할 수도 있다. L<sup>1</sup>은 단결합, -O-, -S-, -N(R)-(R은 알킬기, 또는 치환될 수도 있는 아릴기임), 알킬렌기 또는 아릴렌기를 나타낸다.)

<188> 하기 화학식(vi)으로 표시되는 안트라센 유도체.



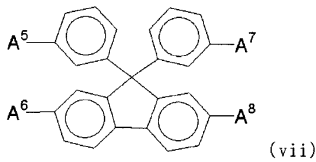
<189>

<190>

(식 중, R<sup>11</sup> 내지 R<sup>20</sup>은 각각 독립적으로 수소 원자, 알킬기, 시클로알킬기, 아릴기, 알콕실기, 아릴옥시기, 알킬아미노기, 아릴아미노기, 또는 치환될 수도 있는 복수 환식기를 나타내고, c, d, e 및 f는 각각 1 내지 5의 정수를 나타내고, 이들이 2 이상인 경우, R<sup>11</sup>끼리, R<sup>12</sup>끼리, R<sup>16</sup>끼리 또는 R<sup>17</sup>끼리는 각각에 있어서 동일할 수도 상이할 수도 있고, 또한 R<sup>11</sup>끼리, R<sup>12</sup>끼리, R<sup>16</sup>끼리 또는 R<sup>17</sup>끼리 결합하여 환을 형성할 수도 있고, R<sup>13</sup>과 R<sup>14</sup>, R<sup>18</sup>과 R<sup>19</sup>가 서로 결합하여 환을 형성할 수도 있다. L<sup>2</sup>는 단결합, -O-, -S-, -N(R)-(R은 알킬기, 또는 치환될 수도 있는 아릴기임), 알킬렌기 또는 아릴렌기를 나타낸다.)

<191>

하기 화학식(vii)로 표시되는 스피로플루오렌 유도체.



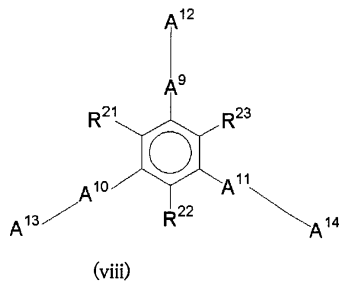
<192>

<193>

(식 중, A<sup>5</sup> 내지 A<sup>8</sup>은 각각 독립적으로 치환 또는 비치환된 비페닐기, 또는 치환 또는 비치환된 나프틸기이다.)

<194>

하기 화학식(viii)로 표시되는 축합환 함유 화합물.



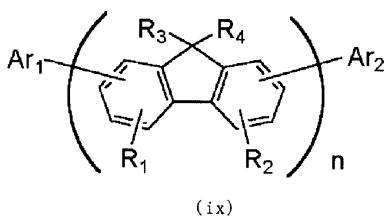
<195>

<196>

(식 중, A<sup>9</sup> 내지 A<sup>14</sup>는 상기와 동일하고, R<sup>21</sup> 내지 R<sup>23</sup>은 각각 독립적으로 수소 원자, 탄소수 1 내지 6의 알킬기, 탄소수 3 내지 6의 시클로알킬기, 탄소수 1 내지 6의 알콕실기, 탄소수 5 내지 18의 아릴옥시기, 탄소수 7 내지 18의 아르알킬옥시기, 탄소수 5 내지 16의 아릴아미노기, 니트로기, 시아노기, 탄소수 1 내지 6의 에스테르기 또는 할로젠 원자를 나타내고, A<sup>9</sup> 내지 A<sup>14</sup> 중 하나 이상은 3환 이상의 축합 방향족환을 갖는 기이다.)

<197>

하기 화학식(ix)로 표시되는 플루오렌 화합물.



<198>

<199>

(식 중, R<sub>1</sub> 및 R<sub>2</sub>는 수소 원자, 치환 또는 비치환된 알킬기, 치환 또는 비치환된 아르알킬기, 치환 또는 비치환된 아릴기, 치환 또는 비치환된 복소환기, 치환 아미노기, 시아노기 또는 할로젠 원자를 나타낸다. 상이한 플

플루오렌기에 결합하는 R<sub>1</sub>끼리, R<sub>2</sub>끼리는 동일할 수도 상이할 수도 있고, 동일한 플루오렌기에 결합하는 R<sub>1</sub> 및 R<sub>2</sub>는 동일할 수도 상이할 수도 있다. R<sub>3</sub> 및 R<sub>4</sub>는 수소 원자, 치환 또는 비치환된 알킬기, 치환 또는 비치환된 아르알킬기, 치환 또는 비치환된 아릴기, 또는 치환 또는 비치환된 복소환기를 나타내고, 상이한 플루오렌기에 결합하는 R<sub>3</sub>끼리, R<sub>4</sub>끼리는 동일할 수도 상이할 수도 있고, 동일한 플루오렌기에 결합하는 R<sub>3</sub> 및 R<sub>4</sub>는 동일할 수도 상이할 수도 있다. Ar<sub>1</sub> 및 Ar<sub>2</sub>는 벤젠환의 합계가 3개 이상인 치환 또는 비치환된 축합 다환 방향족기, 또는 벤젠환과 복소환의 합계가 3개 이상인 치환 또는 비치환된 탄소로 플루오렌기에 결합하는 축합 다환 복소환기를 나타내고, Ar<sub>1</sub> 및 Ar<sub>2</sub>는 동일할 수도 상이할 수도 있다. n은 1 내지 10의 정수를 나타낸다.)

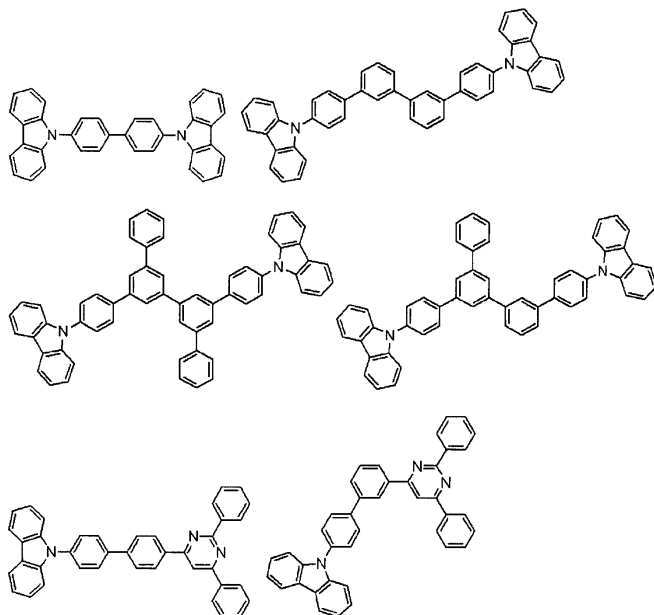
<200> 이상의 호스트 재료 중에서도, 바람직하게는 안트라센 유도체, 더욱 바람직하게는 모노안트라센 유도체, 특히 바람직하게는 비대칭 안트라센이다.

<201> 또한, 도펀트의 발광 재료로서는, 인광 발광성 화합물을 이용할 수도 있다. 인광 발광성 화합물의 호스트 재료로서는, 카르바졸환을 포함하는 화합물이 바람직하다.

<202> 카르바졸환을 포함하는 화합물로 이루어지는 인광 발광에 바람직한 호스트는, 그의 여기 상태에서부터 인광 발광성 화합물로 에너지 이동이 발생하는 결과, 인광 발광성 화합물을 발광시키는 기능을 갖는 화합물이다. 호스트 화합물로서는 여기자 에너지를 인광 발광성 화합물로 에너지 이동할 수 있는 화합물이면 특별히 제한은 없고, 목적에 따라서 적절하게 선택할 수 있다. 카르바졸환 이외에 임의의 복소환 등을 가질 수도 있다.

<203> 이러한 호스트 화합물의 구체적인 예로서는, 카르바졸 유도체, 트리아졸 유도체, 옥사졸 유도체, 옥사디아졸 유도체, 이미다졸 유도체, 폴리아릴알칸 유도체, 피라졸린 유도체, 피라졸론 유도체, 페닐렌디아민 유도체, 아릴아민 유도체, 아미노 치환 칼콘 유도체, 스티릴안트라센 유도체, 플루오레논 유도체, 히드라존 유도체, 스티벤 유도체, 실라잔 유도체, 방향족 제3 아민 화합물, 스티릴아민 화합물, 방향족 디메틸리텐계 화합물, 포르피린계 화합물, 안트라퀴노디메탄 유도체, 안트론 유도체, 디페닐퀴논 유도체, 티오피란디옥시드 유도체, 카르보디이미드 유도체, 플루오레닐리텐메탄 유도체, 디스티릴피라진 유도체, 나프탈렌페릴렌 등의 복소환 테트라카르복실산 무수물, 프탈로시아닌 유도체, 8-퀴놀리논 유도체의 금속 착체나 메탈프탈로시아닌, 벤조옥사졸이나 벤조디아졸을 배위자로 하는 금속 착체로 대표되는 각종 금속 착체 폴리실란계 화합물, 폴리(N-비닐카르바졸) 유도체, 아닐린계 공중합체, 티오펜 올리고머, 폴리티오펜 등의 도전성 고분자 올리고머, 폴리티오펜 유도체, 폴리페닐렌 유도체, 폴리페닐렌비닐렌 유도체, 폴리플루오렌 유도체 등의 고분자 화합물 등을 들 수 있다. 호스트 화합물은 단독으로 사용할 수도 있고, 2종 이상을 병용할 수도 있다.

<204> 구체적인 예로서는, 이하와 같은 화합물을 들 수 있다.



<205> 인광 발광성 도펀트는 삼중항 여기자로부터 발광할 수 있는 화합물이다. 삼중항 여기자로부터 발광하는 한 특별히 한정되지 않지만, Ir, Ru, Pd, Pt, Os 및 Re로 이루어지는 군으로부터 선택되는 하나 이상의 금속을 포함

하는 금속 착체인 것이 바람직하고, 포르피린 금속 착체 또는 오르토메탈화 금속 착체가 바람직하다. 포르피린 금속 착체로서는, 포르피린 백금 착체가 바람직하다. 인광 발광성 화합물은 단독으로 사용할 수도 있고, 2종 이상을 병용할 수도 있다.

- <207> 오르토메탈화 금속 착체를 형성하는 배위자로서는 다양한 것이 있지만, 바람직한 배위자로서는, 2-페닐피리딘 유도체, 7,8-벤조퀴놀린 유도체, 2-(2-티에닐)피리딘 유도체, 2-(1-나프틸)피리딘 유도체, 2-페닐퀴놀린 유도체 등을 들 수 있다. 이들 유도체는 필요에 따라서 치환기를 가질 수도 있다. 특히 불소화물, 트리플루오로메틸기를 도입한 것이, 청색계 도펀트로서는 바람직하다. 또한, 보조 배위자로서 아세틸아세토네이트, 피크르산 등의 상기 배위자 이외의 배위자를 가질 수도 있다.
- <208> 인광 발광성 도펀트의 발광층에서의 함유량으로서, 특별히 제한은 없고, 목적에 따라서 적절하게 선택할 수 있지만, 예를 들면 0.1 내지 70 질량%이고, 1 내지 30 질량%가 바람직하다. 인광 발광성 화합물의 함유량이 0.1 질량% 미만이면 발광이 미약하고, 그의 함유 효과가 충분히 발휘되지 않으며, 70 질량%를 초과하는 경우에는, 농도 소광이라고 알려져 있는 현상이 현저해져 성능이 저하된다.
- <209> 또한, 발광층은 필요에 따라서 정공 수송재, 전자 수송재, 중합체 결합제를 함유할 수도 있다.
- <210> 또한, 발광층의 막 두께는 바람직하게는 5 내지 50 nm, 보다 바람직하게는 7 내지 50 nm, 가장 바람직하게는 10 내지 50 nm이다. 5 nm 미만이면 발광층 형성이 곤란해지고, 색도 조정이 곤란해질 우려가 있고, 50 nm를 초과하면 구동 전압이 상승할 우려가 있다.
- <211> (정공 주입·수송층(정공 수송 대역))
- <212> 정공 주입·수송층은 발광층에의 정공 주입을 돕고, 발광 영역까지 수송하는 층이며, 정공 이동도가 크고, 이온화 에너지가 통상 5.5 eV 이하로 작다. 이러한 정공 수송층으로서, 보다 낮은 전계 강도로 정공을 발광층에 수송하는 재료가 바람직하고, 또한 정공의 이동도가, 예를 들면  $10^4$  내지  $10^6$  V/cm의 전계 인가시에 적어도  $10^{-4}$  cm<sup>2</sup>/V·초이면 바람직하다.
- <213> 본 발명의 신규 화합물을 정공 수송 대역에 이용하는 경우, 본 발명의 신규 화합물 단독으로 정공 주입, 수송층을 형성할 수도 있고, 다른 재료와 혼합하여 이용할 수도 있다.
- <214> 본 발명의 신규 화합물과 혼합하여 정공 주입·수송층을 형성하는 재료로서는, 상기 바람직한 성질을 갖는 것이면 특별히 제한은 없고, 종래 광 도전 재료에 있어서 정공의 전하 수송 재료로서 관용되고 있는 것이나, 유기 EL 소자의 정공 주입·수송층에 사용되는 공지된 것 중에서 임의의 것을 선택하여 사용할 수 있다.
- <215> 구체적인 예로서는, 트리아졸 유도체(미국 특허 3,112,197호 명세서 등 참조), 옥사디아졸 유도체(미국 특허 3,189,447호 명세서 등 참조), 이미다졸 유도체(일본 특허 공고 (소)37-16096호 공보 등 참조), 폴리아릴알칸 유도체(미국 특허3,615,402호 명세서, 동 제3,820,989호 명세서, 동 제3,542,544호 명세서, 일본 특허 공고 (소)45-555호 공보, 동 51-10983호 공보, 일본 특허 공개 (소)51-93224호 공보, 동 55-17105호 공보, 동 56-4148호 공보, 동 55-108667호 공보, 동 55-156953호 공보, 동 56-36656호 공보 등 참조), 피라졸린 유도체 및 피라졸론 유도체(미국 특허 제3,180,729호 명세서, 동 제4,278,746호 명세서, 일본 특허 공개 (소)55-88064호 공보, 동 55-88065호 공보, 동 49-105537호 공보, 동 55-51086호 공보, 동 56-80051호 공보, 동 56-88141호 공보, 동 57-45545호 공보, 동 54-112637호 공보, 동 55-74546호 공보 등 참조), 페닐렌디아민 유도체(미국 특허 제3,615,404호 명세서, 일본 특허 공고 (소)51-10105호 공보, 동 46-3712호 공보, 동 47-25336호 공보, 일본 특허 공개 (소)54-53435호 공보, 동 54-110536호 공보, 동 54-119925호 공보 등 참조), 아릴아민 유도체(미국 특허 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 특허 공고 (소)49-35702호 공보, 동 39-27577호 공보, 일본 특허 공개 (소)55-144250호 공보, 동 56-119132호 공보, 동 56-22437호 공보, 서독 특허 제1,110,518호 명세서 등 참조), 아미노 치환 칼콘 유도체(미국 특허 제3,526,501호 명세서 등 참조), 옥사졸 유도체(미국 특허 제3,257,203호 명세서 등에 개시된 것), 스티릴안트라센 유도체(일본 특허 공개 (소)56-46234호 공보 등 참조), 플루오레논 유도체(일본 특허 공개 (소)54-110837호 공보 등 참조), 히드라존 유도체(미국 특허 제3,717,462호 명세서, 일본 특허 공개 (소)54-59143호 공보, 동 55-52063호 공보, 동 55-52064호 공보, 동 55-46760호 공보, 동 55-85495호 공보, 동 57-11350호 공보, 동 57-148749호 공보, 일본 특허 공개 (평)2-311591호 공보 등 참조), 스티벤 유도체(일본 특허 공개 (소)61-210363호 공보, 동 제61-228451호 공보, 동 61-14642호 공보, 동 61-72255호 공보, 동 62-47646호 공보, 동 62-36674호 공보, 동 62-

10652호 공보, 동 62-30255호 공보, 동 60-93455호 공보, 동 60-94462호 공보, 동 60-174749호 공보, 동 60-175052호 공보 등 참조), 실라잔 유도체(미국 특허 제4,950,950호 명세서), 폴리실란계(일본 특허 공개(평)2-204996호 공보), 아닐린계 공중합체(일본 특허 공개(평)2-282263호 공보), 일본 특허 공개(평)1-211399호 공보에 개시되어 있는 도전성 고분자 올리고머(특히 티오펜 올리고머) 등을 들 수 있다.

<216> 정공 주입·수송층 재료로서는 상기한 것을 사용할 수 있지만, 포르피린 화합물(일본 특허 공개(소)63-2956965호 공보 등에 개시된 것), 방향족 3급 아민 화합물 및 스티릴아민 화합물(미국 특허 제4,127,412호 명세서, 일본 특허 공개(소)53-27033호 공보, 동 54-58445호 공보, 동 54-149634호 공보, 동 54-64299호 공보, 동 55-79450호 공보, 동 55-144250호 공보, 동 56-119132호 공보, 동 61-295558호 공보, 동 61-98353호 공보, 동 63-295695호 공보 등 참조) 등을 들 수 있고, 특히 방향족 3급 아민 화합물을 이용하는 것이 바람직하다.

<217> 또한, 미국 특허 제5,061,569호에 기재되어 있는 2개의 축합 방향족환을 분자 내에 갖는, 예를 들면 4,4'-비스(N-(1-나프틸)-N-페닐아미노)비페닐(이하 NPDP라 약기함), 또한 일본 특허 공개(평)4-308688호 공보에 기재되어 있는 트리페닐아민 유닛이 3개 스타버스트형으로 연결된 4,4',4"-트리스(N-(3-메틸페닐)-N-페닐아미노)트리페닐아민(이하 MTDATA라 약기함) 등을 들 수 있다.

<218> 또한, 발광층 재료로서 나타낸 상술한 방향족 디메틸리덴계 화합물 외에, p형 Si, p형 SiC 등의 무기 화합물도 정공 주입·수송층의 재료로서 사용할 수 있다.

<219> 정공 주입·수송층은 본 발명의 신규 화합물을, 예를 들면 진공 증착법, 스프인 코팅법, 캐스팅법, LB법 등의 공지된 방법에 의해 박막화합으로써 형성할 수 있다. 정공 주입·수송층으로서의 막 두께는 특별히 제한은 없지만, 통상은 5 nm 내지 5 μm이다. 이 정공 주입·수송층은 정공 수송 대역에 본 발명의 신규 화합물을 함유하고 있으면, 상술한 재료의 1종 또는 2종 이상으로 이루어지는 한층으로 구성될 수도 있고, 상기 정공 주입·수송층과는 다른 종류의 화합물로 이루어지는 정공 주입·수송층을 적층한 것일 수도 있다.

<220> 또한, 발광층에의 정공 주입 또는 전자 주입을 돕는 층으로서 유기 반도체층을 설치할 수도 있고, 10<sup>-10</sup> S/cm 이상의 도전율을 갖는 것이 바람직하다. 이러한 유기 반도체층의 재료로서는, 티오펜 함유 올리고머나 일본 특허 공개(평)8-193191호 공보에 개시된 아릴아민 함유 올리고머 등의 도전성 올리고머, 아릴아민 함유 덴드리머 등의 도전성 덴드리머 등을 사용할 수 있다.

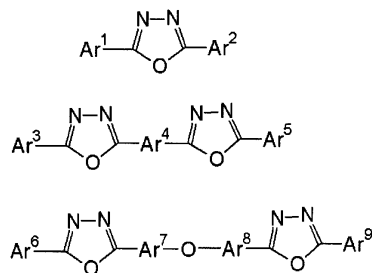
<221> (전자 주입층·수송층)

<222> 다음에, 전자 주입층·수송층은 발광층에의 전자의 주입을 돕고, 발광 영역까지 수송하는 층이며, 전자 이동도가 크고, 또한 부착 개선층은 이 전자 주입층 중에서 특히 음극과의 부착이 양호한 재료로 이루어지는 층이다.

<223> 또한, 유기 EL 소자는 발광한 광이 전극(이 경우에는 음극)에 의해 반사되기 때문에, 직접 양극으로부터 추출되는 발광과, 전극에 의한 반사를 경유하여 추출되는 발광이 간섭하는 것으로 알려져 있다. 이 간섭 효과를 효율적으로 이용하기 위해서, 전자 수송층은 수 nm 내지 수 μm의 막 두께로 적절하게 선택되지만, 특히 막 두께가 두꺼울 때, 전압 상승을 피하기 위해서 10<sup>4</sup> 내지 10<sup>6</sup> V/cm의 전계 인가시에 전자 이동도가 적어도 10<sup>-5</sup> cm<sup>2</sup>/Vs 이상인 것이 바람직하다.

<224> 전자 주입층에 이용되는 재료로서는, 8-히드록시퀴놀린 또는 그의 유도체의 금속 착체나 옥사디아졸 유도체가 바람직하다. 상기 8-히드록시퀴놀린 또는 그의 유도체의 금속 착체의 구체적인 예로서는, 옥신(일반적으로 8-퀴놀리놀 또는 8-히드록시퀴놀린)의 킬레이트를 포함하는 금속 킬레이트 옥시노이드 화합물, 예를 들면 트리스(8-퀴놀리놀)알루미늄을 전자 주입 재료로서 사용할 수 있다.

<225> 한편, 옥사디아졸 유도체로서는, 이하의 화학식으로 표시되는 전자 전달 화합물을 들 수 있다.

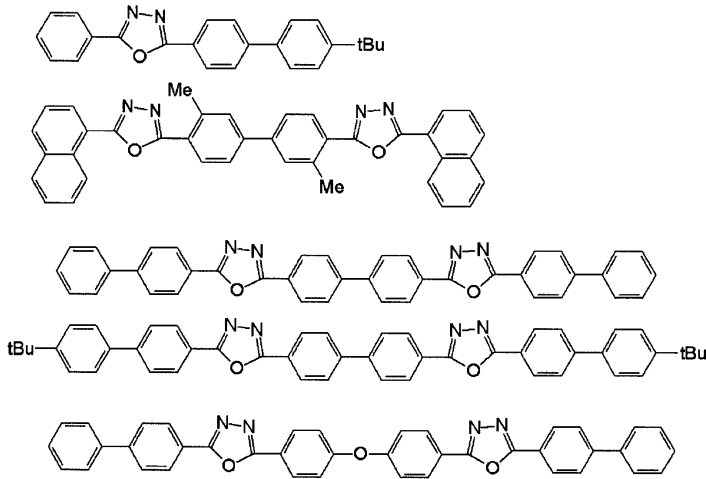


<226>

<227> (식 중, Ar<sup>1</sup>, Ar<sup>2</sup>, Ar<sup>3</sup>, Ar<sup>5</sup>, Ar<sup>6</sup>, Ar<sup>9</sup>는 각각 치환 또는 비치환된 아릴기를 나타내고, 각각 서로 동일할 수도 상이할 수도 있다. 또한, Ar<sup>4</sup>, Ar<sup>7</sup>, Ar<sup>8</sup>은 치환 또는 비치환된 아릴렌기를 나타내고, 각각 동일할 수도 상이할 수도 있다.)

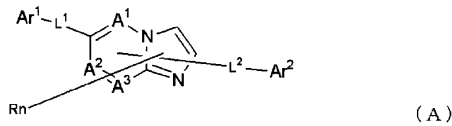
<228> 여기서 아릴기로서는 페닐기, 비페닐기, 안트라닐기, 페릴레닐기, 피레닐기를 들 수 있다. 또한, 아릴렌기로서는 페닐렌기, 나프틸렌기, 비페닐렌기, 안트라닐렌기, 페릴레닐렌기, 피레닐렌기 등을 들 수 있다. 또한, 치환기로서는 탄소수 1 내지 10의 알킬기, 탄소수 1 내지 10의 알콕시기 또는 시아노기 등을 들 수 있다. 이 전자 전달 화합물은 박막 형성성의 것이 바람직하다.

<229> 상기 전자 전달성 화합물의 구체적인 예로서는 하기의 것을 들 수 있다.

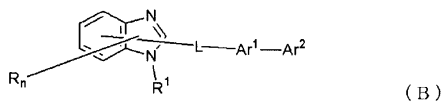


<230>

<231> 또한, 전자 주입층 및 전자 수송층에 이용되는 재료로서, 하기 화학식(A) 내지 (F)로 표시되는 것도 사용할 수 있다.



<232>



<233> (식 중, A<sup>1</sup> 내지 A<sup>3</sup>은 각각 독립적으로 질소 원자 또는 탄소 원자이다.

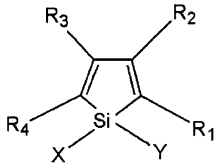
<234> Ar<sup>1</sup>은 치환 또는 비치환된 핵 탄소수 6 내지 60의 아릴기, 또는 치환 또는 비치환된 핵 탄소수 3 내지 60의 헤테로아릴기이고, Ar<sup>2</sup>는 수소 원자, 치환 또는 비치환된 핵 탄소수 6 내지 60의 아릴기, 치환 또는 비치환된 핵 탄소수 3 내지 60의 헤테로아릴기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 20의 알킬기, 또는 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 20의 알콕시기, 또는 이들의 2가의 기이다. 단, Ar<sup>1</sup> 및 Ar<sup>2</sup> 중 어느 하나는 치환 또는 비치환된 핵 탄소수 10 내지 60의 축합환기, 또는 치환 또는 비치환된 핵 탄소수 3 내지 60의 모노헤테로 축합환기이다.

<235> L<sup>1</sup>, L<sup>2</sup> 및 L은 각각 독립적으로 단결합, 치환 또는 비치환된 핵 탄소수 6 내지 60의 아릴렌기, 치환 또는 비치환된 핵 탄소수 3 내지 60의 헤테로아릴렌기, 또는 치환 또는 비치환된 플루오레닐렌기이다.

<236> R은 수소 원자, 치환 또는 비치환된 핵 탄소수 6 내지 60의 아릴기, 치환 또는 비치환된 핵 탄소수 3 내지 60의 헤테로아릴기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 20의 알킬기, 또는 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 20의 알콕시기이고, n은 0 내지 5의 정수이고, n이 2 이상인 경우, 복수개의 R은 동일할 수도 상이할 수도 있고, 또한 인접하는 복수개의 R기끼리 결합하여 탄소환식 지방족환 또는 탄소환식 방향족환을 형성할 수도 있다.)

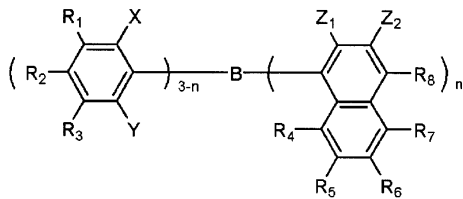
<237> HAr-L-Ar<sup>1</sup>-Ar<sup>2</sup> (C)

<238> (식 중, HAr은 치환기를 가질 수도 있는 탄소수 3 내지 40의 질소 함유 복소환이고, L은 단결합, 치환기를 가질 수도 있는 탄소수 6 내지 60의 아틸렌기, 치환기를 가질 수도 있는 탄소수 3 내지 60의 헤테로아틸렌기, 또는 치환기를 가질 수도 있는 플루오레닐렌기이고, Ar<sup>1</sup>은 치환기를 가질 수도 있는 탄소수 6 내지 60의 2가의 방향족 탄화수소기이고, Ar<sup>2</sup>는 치환기를 가질 수도 있는 탄소수 6 내지 60의 아틸기, 또는 치환기를 가질 수도 있는 탄소수 3 내지 60의 헤테로아틸기이다.)



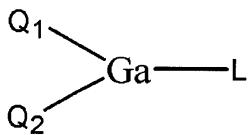
(D)

<239>  
 <240> (식 중, X 및 Y는 각각 독립적으로 탄소수 1 내지 6의 포화 또는 불포화된 탄화수소기, 알콕시기, 알케닐옥시기, 알킬닐옥시기, 히드록시기, 치환 또는 비치환된 아틸기, 치환 또는 비치환된 헤테로환, 또는 X와 Y가 결합하여 포화 또는 불포화된 환을 형성한 구조이고, R<sub>1</sub> 내지 R<sub>4</sub>는 각각 독립적으로 수소, 할로젠 원자, 치환 또는 비치환된 탄소수 1 내지 6의 알킬기, 알콕시기, 아틸옥시기, 퍼플루오로알킬기, 퍼플루오로알콕시기, 아미노기, 알킬카르보닐기, 아릴카르보닐기, 알콕시카르보닐기, 아릴옥시카르보닐기, 아조기, 알킬카르보닐옥시기, 아릴카르보닐옥시기, 알콕시카르보닐옥시기, 아릴옥시카르보닐옥시기, 술폰닐기, 술폰닐기, 술폰닐기, 실릴기, 카르바모일기, 아틸기, 헤테로환기, 알케닐기, 알킬닐기, 니트로기, 포르밀기, 니트로소기, 포르밀옥시기, 이소시아노기, 시아네이트기, 이소시아네이트기, 티오시아네이트기, 이소티오시아네이트기 또는 시아노기, 또는 인접한 경우에는 치환 또는 비치환된 환이 축합된 구조이다.)



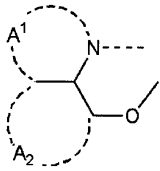
(E)

<241>  
 <242> (식 중, R<sub>1</sub> 내지 R<sub>8</sub> 및 Z<sub>2</sub>는 각각 독립적으로 수소 원자, 포화 또는 불포화된 탄화수소기, 방향족기, 헤테로환기, 치환 아미노기, 치환 보릴기, 알콕시기 또는 아틸옥시기를 나타내고, X, Y 및 Z<sub>1</sub>은 각각 독립적으로 포화 또는 불포화된 탄화수소기, 방향족기, 헤테로환기, 치환 아미노기, 알콕시기 또는 아틸옥시기를 나타내고, Z<sub>1</sub>과 Z<sub>2</sub>의 치환기는 서로 결합하여 축합환을 형성할 수도 있고, n은 1 내지 3의 정수를 나타내고, n이 2 이상인 경우, Z<sub>1</sub>은 상이할 수도 있다. 단, n이 1, X, Y 및 R<sub>2</sub>가 메틸기이며, R<sub>8</sub>이 수소 원자 또는 치환 보릴기인 경우, 및 n이 3이며 Z<sub>1</sub>이 메틸기인 경우를 포함하지 않는다.)



(F)

<243>  
 <244> (식 중, Q<sup>1</sup> 및 Q<sup>2</sup>는 각각 독립적으로 하기 화학식(G)로 표시되는 배위자를 나타내고, L은 할로젠 원자, 치환 또는 비치환된 알킬기, 치환 또는 비치환된 시클로알킬기, 치환 또는 비치환된 아틸기, 치환 또는 비치환된 복소환기, -OR<sup>1</sup>(R<sup>1</sup>은 수소 원자, 치환 또는 비치환된 알킬기, 치환 또는 비치환된 시클로알킬기, 치환 또는 비치환된 아틸기, 치환 또는 비치환된 복소환기임) 또는 -O-Ga-Q<sup>3</sup>(Q<sup>4</sup>)(Q<sup>3</sup> 및 Q<sup>4</sup>는 Q<sup>1</sup> 및 Q<sup>2</sup>와 동일함)로 표시되는 배위자를 나타낸다.)



(G)

<245>

<246> (식 중, 환 A<sup>1</sup> 및 A<sup>2</sup>는 치환기를 가질 수도 있는 서로 축합된 6원 아릴환 구조이다.)

<247> 이 금속 착체는 n형 반도체로서의 성질이 강하고, 전자 주입 능력이 크다. 또한, 착체 형성시의 생성 에너지도 낮기 때문에, 형성된 금속 착체의 금속과 배위자와의 결합성도 견고해지고, 발광 재료로서의 형광 양자 효율도 커진다.

<248> 화학식(G)의 배위자를 형성하는 환 A<sup>1</sup> 및 A<sup>2</sup>의 치환기의 구체적인 예를 들면, 염소, 브롬, 요오드, 불소의 할로겐 원자, 메틸기, 에틸기, 프로필기, 부틸기, sec-부틸기, t-부틸기, 펜틸기, 헥실기, 헵틸기, 옥틸기, 스테아릴기, 트리클로로메틸기 등의 치환 또는 비치환된 알킬기, 페닐기, 나프틸기, 3-메틸페닐기, 3-메톡시페닐기, 3-플루오로페닐기, 3-트리클로로메틸페닐기, 3-트리플루오로메틸페닐기, 3-니트로페닐기 등의 치환 또는 비치환된 아릴기, 메톡시기, n-부톡시기, t-부톡시기, 트리클로로메톡시기, 트리플루오로에톡시기, 펜타플루오로프로폭시기, 2,2,3,3-테트라플루오로프로폭시기, 1,1,1,3,3,3-헥사플루오로-2-프로폭시기, 6-(피플루오로에틸)헥실옥시기 등의 치환 또는 비치환된 알콕시기, 페녹시기, p-니트로페녹시기, p-t-부틸페녹시기, 3-플루오로페녹시기, 펜타플루오로페닐기, 3-트리플루오로메틸페녹시기 등의 치환 또는 비치환된 아릴옥시기, 메틸티오기, 에틸티오기, t-부틸티오기, 헥실티오기, 옥틸티오기, 트리플루오로메틸티오기 등의 치환 또는 비치환된 알킬티오기, 페닐티오기, p-니트로페닐티오기, p-t-부틸페닐티오기, 3-플루오로페닐티오기, 펜타플루오로페닐티오기, 3-트리플루오로메틸페닐티오기 등의 치환 또는 비치환된 아릴티오기, 시아노기, 니트로기, 아미노기, 메틸아미노기, 디에틸아미노기, 에틸아미노기, 디에틸아미노기, 디프로필아미노기, 디부틸아미노기, 디페닐아미노기 등의 모노 또는 디치환 아미노기, 비스(아세톡시메틸)아미노기, 비스(아세톡시에틸)아미노기, 비스(아세톡시프로필)아미노기, 비스(아세톡시부틸)아미노기 등의 아실아미노기, 수산기, 실록시기, 아실기, 메틸카르바모일기, 디메틸카르바모일기, 에틸카르바모일기, 디에틸카르바모일기, 프로필카르바모일기, 부틸카르바모일기, 페닐카르바모일기 등의 카르바모일기, 카르복실산기, 술폰산기, 이미드기, 시클로펜탄기, 시클로헥실기 등의 시클로알킬기, 페닐기, 나프틸기, 비페닐기, 안트라닐기, 페난트릴기, 플루오레닐기, 피레닐기 등의 아릴기, 피리디닐기, 피라지닐기, 피리미디닐기, 피리다지닐기, 트리아지닐기, 인돌리닐기, 퀴놀리닐기, 아크리디닐기, 피롤리디닐기, 디옥사닐기, 피페리디닐기, 모르폴리디닐기, 피페라지닐기, 트리아티닐기, 카르바졸릴기, 푸라닐기, 티오펜릴기, 옥사졸릴기, 옥사디아졸릴기, 벤조옥사졸릴기, 티아졸릴기, 티아디아졸릴기, 벤조티아졸릴기, 트리아졸릴기, 이미다졸릴기, 벤조이미다졸릴기, 푸라닐기 등의 복소환기 등이 있다. 또한, 이상의 치환기끼리 결합하여 또한 6원 아릴환 또는 복소환을 형성할 수도 있다.

<249> 본 발명의 유기 EL 소자의 바람직한 형태로, 전자를 수송하는 영역 또는 음극과 유기층의 계면 영역에 환원성 도펀트를 함유하는 소자가 있다. 여기서, 환원성 도펀트란, 전자 수송성 화합물을 환원시킬 수 있는 물질이라 정의된다. 따라서, 일정 환원성을 갖는 것이면 다양한 것이 이용되고, 예를 들면 알칼리 금속, 알칼리 토류 금속, 희토류 금속, 알칼리 금속의 산화물, 알칼리 금속의 할로겐화물, 알칼리 토류 금속의 산화물, 알칼리 토류 금속의 할로겐화물, 희토류 금속의 산화물 또는 희토류 금속의 할로겐화물, 알칼리 금속의 유기 착체, 알칼리 토류 금속의 유기 착체, 희토류 금속의 유기 착체로 이루어지는 군으로부터 선택되는 하나 이상의 물질을 바람직하게 사용할 수 있다.

<250> 또한, 보다 구체적으로 바람직한 환원성 도펀트로서는, Li(일함수: 2.9 eV), Na(일함수: 2.36 eV), K(일함수: 2.28 eV), Rb(일함수: 2.16 eV) 및 Cs(일함수: 1.95 eV)로 이루어지는 군으로부터 선택되는 하나 이상의 알칼리 금속이나, Ca(일함수: 2.9 eV), Sr(일함수: 2.0 내지 2.5 eV) 및 Ba(일함수: 2.52 eV)로 이루어지는 군으로부터 선택되는 하나 이상의 알칼리 토류 금속을 들 수 있다. 일함수가 2.9 eV 이하인 것이 특히 바람직하다. 이들 중에서 보다 바람직한 환원성 도펀트는 Li, K, Rb 및 Cs로 이루어지는 군으로부터 선택되는 하나 이상의 알칼리 금속이고, 더욱 바람직하게는 Rb 또는 Cs이고, 가장 바람직하게는 Cs이다. 이들 알칼리 금속은 특히 환원 능력이 높고, 전자 주입 영역에의 비교적 소량의 첨가에 의해 유기 EL 소자에서의 발광 휘도의 향상이나 장기 수명화가 도모된다. 또한, 일함수가 2.9 eV 이하인 환원성 도펀트로서, 이들 2종 이상의 알칼리 금속의 조합도 바람직하고, 특히 Cs를 포함한 조합, 예를 들면 Cs와 Na, Cs와 K, Cs와 Rb 또는 Cs와 Na와 K의 조합인 것이 바

람직하다. Cs를 조합하여 포함함으로써, 환원 능력을 효율적으로 발휘할 수 있고, 전자 주입 영역에의 첨가에 의해 유기 EL 소자에서의 발광 휘도의 향상이나 장기 수명화가 도모된다.

<251> 본 발명에 있어서는 음극과 유기층 사이에 절연체나 반도체로 구성되는 전자 주입층을 더 설치할 수도 있다. 이 때, 전류의 누설을 효과적으로 방지하여 전자 주입성을 향상시킬 수 있다. 이러한 절연체로서는, 알칼리 금속 칼코게나이드, 알칼리 토류 금속 칼코게나이드, 알칼리 금속의 할로겐화물 및 알칼리 토류 금속의 할로겐화물로 이루어지는 군으로부터 선택되는 하나 이상의 금속 화합물을 사용하는 것이 바람직하다. 전자 주입층이 이들 알칼리 금속 칼코게나이드 등으로 구성되어 있으면, 전자 주입성을 더욱 향상시킬 수 있는 점에서 바람직하다. 구체적으로, 바람직한 알칼리 금속 칼코게나이드로서는, 예를 들면  $Li_2O$ ,  $K_2O$ ,  $Na_2S$ ,  $Na_2Se$  및  $Na_2O$ 를 들 수 있고, 바람직한 알칼리 토류 금속 칼코게나이드로서는, 예를 들면  $CaO$ ,  $BaO$ ,  $SrO$ ,  $BeO$ ,  $BaS$  및  $CaSe$ 를 들 수 있다. 또한, 바람직한 알칼리 금속의 할로겐화물로서는, 예를 들면  $LiF$ ,  $NaF$ ,  $KF$ ,  $LiCl$ ,  $KCl$  및  $NaCl$  등을 들 수 있다. 또한, 바람직한 알칼리 토류 금속의 할로겐화물로서는, 예를 들면  $CaF_2$ ,  $BaF_2$ ,  $SrF_2$ ,  $MgF_2$  및  $BeF_2$ 라는 불화물이나, 불화물 이외의 할로겐화물을 들 수 있다.

<252> 또한, 전자 수송층을 구성하는 반도체로서는, Ba, Ca, Sr, Yb, Al, Ga, In, Li, Na, Cd, Mg, Si, Ta, Sb 및 Zn의 하나 이상의 원소를 포함하는 산화물, 질화물 또는 산화질화물 등의 1종 단독 또는 2종 이상의 조합을 들 수 있다. 또한, 전자 수송층을 구성하는 무기 화합물이 미세 결정 또는 비정질의 절연성 박막인 것이 바람직하다. 전자 수송층이 이들 절연성 박막으로 구성되어 있으면, 보다 균질한 박막이 형성되기 때문에, 다크 스폿 등의 화소 결함을 감소시킬 수 있다. 또한, 이러한 무기 화합물로서는, 상술한 알칼리 금속 칼코게나이드, 알칼리 토류 금속 칼코게나이드, 알칼리 금속의 할로겐화물 및 알칼리 토류 금속의 할로겐화물 등을 들 수 있다.

<253> (음극)

<254> 음극으로서, 전자 주입·수송층 또는 발광층에 전자를 주입하기 때문에, 일함수가 작은 (4 eV 이하) 금속, 합금, 전기 전도성 화합물 및 이들의 혼합물을 전극 물질로 하는 것이 이용된다. 이러한 전극 물질의 구체적인 예로서는, 나트륨, 나트륨·칼륨 합금, 마그네슘, 리튬, 마그네슘·은 합금, 알루미늄/산화알루미늄, 알루미늄·리튬 합금, 인듐, 희토류 금속 등을 들 수 있다.

<255> 이 음극은 이들 전극 물질을 증착이나 스퍼터링 등의 방법에 의해 박막을 형성시킴으로써 제조할 수 있다.

<256> 여기서 발광층으로부터의 발광을 음극으로부터 추출하는 경우, 음극의 발광에 대한 투과율은 10 %보다 크게 하는 것이 바람직하다.

<257> 또한, 음극으로서의 시트 저항은 수백  $\Omega/\square$  이하인 것이 바람직하고, 막 두께는 통상 10 nm 내지 1  $\mu m$ , 바람직하게는 50 내지 200 nm이다.

<258> (절연층)

<259> 유기 EL 소자는 초박막에 전계를 인가하기 때문에, 누설이나 쇼트에 의한 화소 결함이 생기기 쉽다. 이것을 방지하기 위해서, 한쌍의 전극 사이에 절연성 박막층을 삽입하는 것이 바람직하다.

<260> 절연층에 이용되는 재료로서는, 예를 들면 산화알루미늄, 불화리튬, 산화리튬, 불화세슘, 산화세슘, 산화마그네슘, 불화마그네슘, 산화칼슘, 불화칼슘, 질화알루미늄, 산화티탄, 산화규소, 산화게르마늄, 질화규소, 질화붕소, 산화몰리브덴, 산화루테튬, 산화바나듐 등을 들 수 있고, 이들의 혼합물이나 적층물을 이용할 수도 있다.

<261> (유기 EL 소자의 제조 방법)

<262> 이상 예시한 재료 및 형성 방법에 의해 양극, 발광층, 필요에 따라서 정공 주입·수송층, 및 필요에 따라서 전자 주입·수송층을 형성하고, 또한 음극을 형성함으로써 유기 EL 소자를 제조할 수 있다. 또한, 음극으로부터 양극으로, 상기와 반대 순서로 유기 EL 소자를 제조할 수도 있다.

<263> 이하, 투광성 기판 상에 양극/정공 주입층/발광층/전자 주입층/음극이 순차 설치된 구성의 유기 EL 소자의 제조 예를 기재한다.

<264> 우선, 적당한 투광성 기판 상에 양극 재료로 이루어지는 박막을 1  $\mu m$  이하, 바람직하게는 10 내지 200 nm 범위의 막 두께가 되도록 증착이나 스퍼터링 등의 방법에 의해 형성하여 양극을 제조한다. 다음에, 이 양극 상에 정공 주입층을 설치한다. 정공 주입층의 형성은 상술한 바와 같이 진공 증착법, 스핀 코팅법, 캐스팅법, LB법

등의 방법에 의해 행할 수 있지만, 균질한 막이 얻어지기 쉬우면서 핀홀이 발생하기 어려운 등의 점에서, 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 따라 다르지만, 일반적으로 증착원 온도 50 내지 450 °C, 진공도  $10^{-7}$  내지  $10^{-3}$  torr, 증착 속도 0.01 내지 50 nm/초, 기판 온도 -50 내지 300 °C, 막 두께 5 nm 내지 5 μm의 범위에서 적절하게 선택하는 것이 바람직하다.

<265> 다음에, 정공 주입층 상에 발광층을 설치하는 발광층의 형성도 원하는 유기 발광 재료를 이용하여 진공 증착법, 스퍼터링, 스핀 코팅법, 캐스팅법 등의 방법에 의해 유기 발광 재료를 박막화함으로써 형성할 수 있지만, 균질한 막이 얻어지기 쉬우면서 핀홀이 발생하기 어려운 등의 점에서, 진공 증착법에 의해 형성하는 것이 바람직하다. 진공 증착법에 의해 발광층을 형성하는 경우, 그 증착 조건은 사용되는 화합물에 따라 다르지만, 일반적으로 정공 주입층과 동일한 조건 범위 중에서 선택할 수 있다.

<266> 다음에, 이 발광층 상에 전자 주입층을 설치한다. 정공 주입층, 발광층과 동일하게, 균질한 막을 얻을 필요에서 진공 증착법에 의해 형성하는 것이 바람직하다. 증착 조건은 정공 주입층, 발광층과 동일한 조건 범위에서 선택할 수 있다.

<267> 본 발명의 방향족 아민 유도체는 발광 대역이나 정공 수송 대역 중 어느 층에 함유시키는가에 따라서 다르지만, 진공 증착법을 이용하는 경우에는 다른 재료와의 공증착을 행할 수 있다.

<268> 또한, 스핀 코팅법을 이용하는 경우에는, 다른 재료와 혼합함으로써 함유시킬 수 있다.

<269> 마지막으로 음극을 적층하여 유기 EL 소자를 얻을 수 있다.

<270> 음극은 금속으로 구성되는 것이며, 증착법, 스퍼터링을 사용할 수 있다. 그러나 바탕의 유기물층을 제막시의 손상으로부터 지키기 위해서는 진공 증착법이 바람직하다.

<271> 이 유기 EL 소자의 제조는 1회의 탈기로 일관해서 양극에서 음극까지 제조하는 것이 바람직하다.

<272> 본 발명의 유기 EL 소자의 각 층의 형성 방법은 특별히 한정되지 않는다. 종래 공지된 진공 증착법, 스핀 코팅법 등에 의한 형성 방법을 사용할 수 있다. 본 발명의 유기 EL 소자에 이용하는, 상기 화학식 1로 표시되는 화합물을 함유하는 유기 박막층은 진공 증착법, 분자선 증착법(MBE법) 또는 용매에 용해시킨 용액의 디핑법, 스핀 코팅법, 캐스팅법, 바 코팅법, 롤 코팅법 등의 도포법에 의한 공지된 방법으로 형성할 수 있다.

<273> 본 발명의 유기 EL 소자의 각 유기층의 막 두께는 특별히 제한되지 않지만, 일반적으로 막 두께가 너무 얇으면 핀홀 등의 결함이 생기기 쉽고, 반대로 너무 두꺼우면 높은 인가 전압이 필요하여 효율이 나빠지기 때문에, 통상은 수 nm 내지 1 μm의 범위인 것이 바람직하다.

<274> 또한, 유기 EL 소자에 직류 전압을 인가하는 경우, 양극을 +, 음극을 -의 극성으로 하고, 5 내지 40 V의 전압을 인가하면 발광을 관측할 수 있다. 또한, 반대 극성으로 전압을 인가하더라도 전류는 흐르지 않고, 발광은 전혀 생기지 않는다. 또한 교류 전압을 인가한 경우에는 양극이 +, 음극이 -의 극성이 되었을 때만 균일한 발광이 관측된다. 인가하는 교류의 파형은 임의로 할 수 있다.

<275> (유기 EL 소자의 응용)

<276> 본 발명의 유기 EL 소자는 저전압에서도 고휘도 및 고발광 효율이 요구되는 제품에 응용이 가능하다. 응용예로서는, 표시 장치, 조명 장치, 프린터 광원, 액정 표시 장치의 백 라이트 등을 들 수 있고, 표시, 간판, 인테리어 등의 분야에도 적용할 수 있다. 표시 장치로서는, 에너지 절약이나 고시인성 평판 디스플레이를 들 수 있다. 또한, 프린터 광원으로서, 레이저 빔 프린터의 광원으로서 사용할 수 있다. 또한, 본 발명의 소자를 이용함으로써 장치 부피를 대폭 감소시킬 수도 있다. 조명 장치나 백 라이트에 대해서는, 본 발명의 유기 EL 소자를 이용함으로써 에너지 절약 효과를 기대할 수 있다.

<277> 다음에, 본 발명을 실시예를 이용하여 더욱 상세하게 설명하지만, 본 발명은 이들 예에 의해 조금도 한정되지 않는다.

### 실시예

<278> (실시예 1) 화합물(1)의 합성

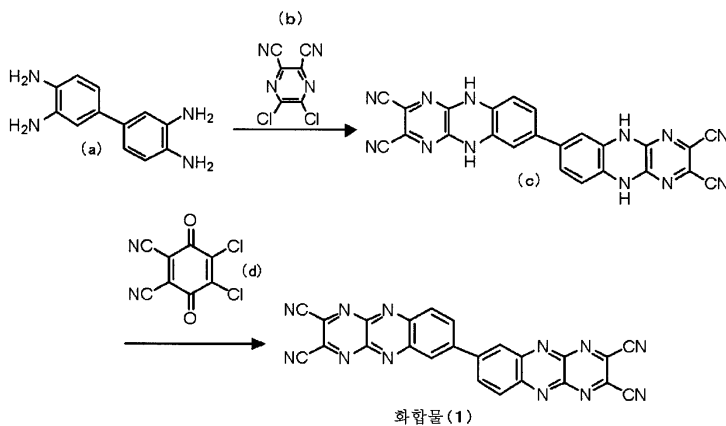
<279> 3,3'-디아미노벤지딘(a) 3 g과 5,6-디클로로-2,3-디시아노피라진(b) 6.13 g을 아세토니트릴 150 ml 중에서 가열

환류하에 10 시간 반응시켰다. 반응액을 실온하에 여과하고, 고체 부분을 아세트니트릴 100 ml, 물 200 ml, MeOH 50 ml로 세정하였다. 얻어진 고체를 감압하에 40 °C에서 4 시간 건조시켜 조생성물(c) 3.13 g을 얻었다. 조생성물(c)에 대하여 질량 분석(FDMS법)을 행한 결과, m/e=466을 확인하고, 목적물이라고 동정하였다.

<280> 또한, 조생성물(c) 3 g과 DDQ(d) 3.21 g을 THF 150 ml 중에서 실온하에 7 시간 반응시켰다. 반응액을 여과하고, 얻어진 고체를 THF 100 ml, 헥산 30 ml로 세정하였다. 얻어진 고체를 감압하에 40 °C에서 4 시간 건조시켜 화합물(1) 2.77 g을 얻었다.

<281> 화합물(1)에 대하여 질량 분석(FDMS법)을 행한 결과, m/e=462를 확인하고, 목적물이라고 동정하였다. 생성물에 대하여 승화 정제를 실시하였다.

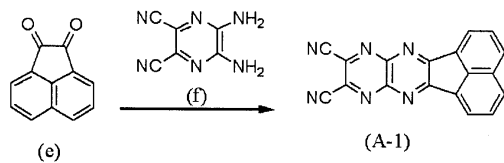
<282> 이 화합물을 아세트니트릴 중에 0.01 몰/리터의 농도로 용해시키고, 지지 전해질로서 과염소산테트라부틸암모늄(TBAP), 참조 전극에 은-염화은 전극을 이용하여 시클릭·볼타메트리에 의해 환원 전위를 측정하였다. 표준 물질로서 페로센(이하 Fc라 함)의 제1 산화 전위를 기준으로 한 경우, 화합물(1)의 환원 전위는 -0.36 V(vsFc<sup>+</sup>/Fc)였다.



<283>

<284> (실시예 2) 화합물(A-1)의 합성

<285> 아세나프텐퀴논(e) 10 g과 5,6-디아미노-2,3-디시아노피라진(f) 8.8 g을 피리딘 250 ml 중에서 가열 환류하에 18 시간 반응시켰다. 반응액을 실온하에 여과하고, 고체 부분을 THF, 또한 아세트니트릴로 세정하였다. 얻어진 고체를 감압하에 60 °C에서 8 시간 건조시켜 화합물(A-1) 11 g을 얻었다. 화합물(A-1)에 대하여 질량 분석(FDMS법)을 행한 결과, m/e=306을 확인하고, 목적물이라고 동정하였다. 생성물에 대하여 승화 정제를 실시하였다. 이 화합물을 실시예 1과 동일하게 하여 환원 전위를 측정한 결과, 환원 전위는 -0.48 V(vsFc<sup>+</sup>/Fc)였다.



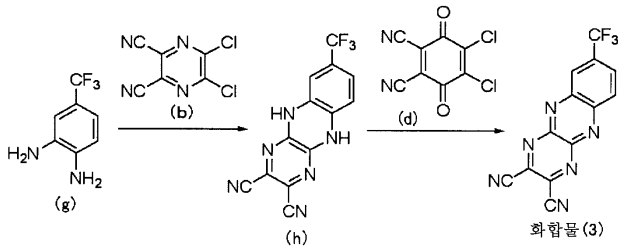
<286>

<287> (실시예 3) 화합물(3)의 합성

<288> 4-트리플루오로메틸-1,2-페닐렌디아민(g) 5 g과 5,6-디클로로-2,3-디시아노피라진(b) 6.21 g을 아세트니트릴 200 ml 중에서 가열 환류하에 10 시간 반응시켰다. 반응액을 실온하에 여과하고, 여과액을 농축하여 조생성물(h) 8.2 g을 얻었다. 조생성물(h)에 대하여 질량 분석(GC-MS법)을 행한 결과, m/e=302를 확인하고, 목적물이라고 동정하였다. 또한, 조생성물(h) 6 g과 DDQ(d) 4.48 g을 THF 100 ml 중에서 실온하에 8 시간 반응시켰다. 반응액에 헥산 400 ml를 첨가하고, 침전물을 여과하였다. 얻어진 고체를 감압하에 60 °C에서 건조시켜 화합물(3) 3.33 g을 얻었다.

<289> 화합물(3)에 대하여 질량 분석(GC-MS법)을 행한 결과, m/e=300을 확인하고, 목적물이라고 동정하였다. 생성물에 대하여 승화 정제를 실시하였다.

<290> 이 화합물을 실시예 1과 동일하게 하여 환원 전위를 측정된 결과, 환원 전위는  $-0.28 \text{ V}(\text{vsFc}^+/\text{Fc})$ 였다.



<291>

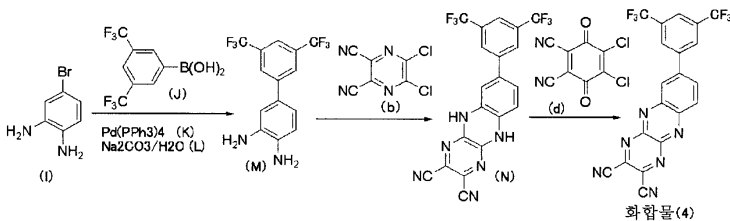
<292> (실시예 4) 화합물(4)의 합성

<293> 4-브로모-1,2-디아미노벤젠(I) 15.6 g, 3,5-비스(트리플루오로메틸)페닐보론산(J) 25 g, 테트라키스(트리페닐포스핀)팔라듐(K) 2.88 g, 탄산나트륨 26.5 g을 물 125 ml에 용해시킨 수용액(L), DME 150 ml를 Ar 분위기하에 플라스크에 투입하고, 8 시간 가열 환류하에 반응시켰다. 실온까지 냉각 후, 아세트산에틸로 추출하고, 물로 세정하였다. 이어서, 유기층을 무수 황산마그네슘으로 건조 후, 용매를 증류 제거하였다. 조생성물을 실리카 겔 칼럼 크로마토그래피(전개액: 아세트산에틸/염화메틸 혼합 용매)로 정제하여 화합물(M) 23 g을 얻었다.

<294> 다음에, 화합물(M) 33 g, 5,6-디클로로-2,3-디시아노피라진(b) 22 g을 아세트니트릴 중 질소하에서 가열 환류하에 8 시간 반응시켰다. 반응액을 여과하고,  $\text{CH}_2\text{Cl}_2$  50 ml 및  $\text{NaHCO}_3$  포화 수용액으로 세정하여 화합물(N) 13.1 g을 얻었다.

<295> 다음에, 화합물(N) 13 g과 DDQ(d) 7.3 g을 THF 450 ml 중에서 실온에서 질소하에 8 시간 반응시켰다. 반응액을 여과하고, 얻어진 고체를 THF, 아세트산에틸,  $\text{CH}_2\text{Cl}_2$ 로 세정하여 화합물(4) 7.9 g을 얻었다. 화합물(4)에 대하여 질량 분석(직도(直導) MS법)를 행한 결과,  $m/e=444$ 를 확인하고, 목적물이라고 동정하였다. 생성물에 대하여 승화 정제를 실시하였다.

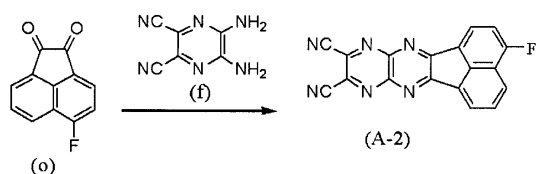
<296> 이 화합물을 실시예 1과 동일하게 하여 환원 전위를 측정된 결과, 환원 전위는  $-0.35 \text{ V}(\text{vsFc}^+/\text{Fc})$ 였다.



<297>

<298> (실시예 5) 화합물(A-2)의 합성

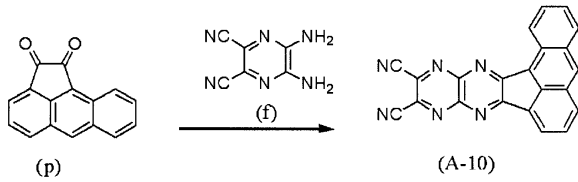
<299> 실시예 2의 아세나프텐퀴논(e) 10 g을 5-플루오로아세나프텐퀴논(o) 11 g으로 변경한 것 이외에는 동일하게 합성을 행하고, 생성물에 대하여 질량 분석(FDMS법)을 행한 결과,  $m/e=324$ 를 확인하고, 목적물이라고 동정하였다. 생성물에 대하여 승화 정제를 실시하였다. 이 화합물을 실시예 1과 동일하게 하여 환원 전위를 측정된 결과, 환원 전위는  $-0.43 \text{ V}(\text{vsFc}^+/\text{Fc})$ 였다.



<300>

<301> (실시예 6) 화합물(A-10)의 합성

<302> 실시예 2의 아세나프텐퀴논(e) 10 g을 아세나프텐퀴논(p) 12.5 g으로 변경한 것 이외에는 동일하게 합성을 행하고, 생성물에 대하여 질량 분석(FDMS법)을 행한 결과,  $m/e=356$ 를 확인하고, 목적물이라고 동정하였다. 생성물에 대하여 승화 정제를 실시하였다. 이 화합물을 실시예 1과 동일하게 하여 환원 전위를 측정된 결과, 환원 전위는  $-0.43 \text{ V}(\text{vsFc}^+/\text{Fc})$ 였다.



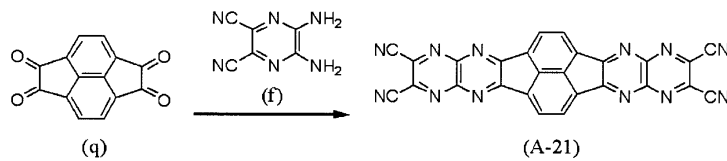
<303>

<304>

(실시예 7) 화합물(A-21)의 합성

<305>

시클로펜타[fg]아세나프틸렌-1,2,5,6-테트라온(q) 5.0 g과 5,6-디아미노-2,3-디시아노피라진(f) 7.0 g을 피리딘 250 ml 중에서 가열 환류하에 18 시간 반응시켰다. 반응액을 실온하에 여과하고, 고체 부분을 아세트니트릴로 세정하였다. 얻어진 고체를 감압하에 60 °C에서 8 시간 건조시켜 화합물(A-21) 11 g을 얻었다. 화합물(A-21)에 대하여 질량 분석(FDMS법)을 행한 결과, m/e=484를 확인하고, 목적물이라고 동정하였다. 생성물에 대하여 승화 정제를 실시하였다. 이 화합물을 실시예 1과 동일하게 하여 환원 전위를 측정된 결과, 환원 전위는 -0.26 V(vsFc+/Fc)였다.



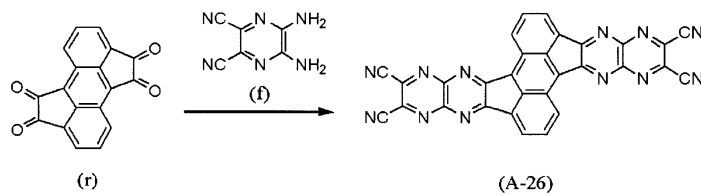
<306>

<307>

(실시예 8) 화합물(A-26)의 합성

<308>

실시예 7의 시클로펜타[fg]아세나프틸렌-1,2,5,6-테트라온 5.0 g을 하기 테트라온 화합물(r) 6.0 g으로 변경한 것 이외에는 실시예 7과 동일하게 행하고, 생성물에 대하여 질량 분석(FDMS법)을 행한 결과, m/e=534를 확인하고, 목적물이라고 동정하였다. 생성물에 대하여 승화 정제를 실시하였다. 이 화합물을 실시예 1과 동일하게 하여 환원 전위를 측정된 결과, 환원 전위는 -0.27 V(vsFc<sup>+</sup>/Fc)였다.



<309>

<310>

(실시예 9) 본 발명 화합물을 정공 주입층에 이용한 유기 EL 소자의 제조

<311>

25 mm×75 mm×0.7 mm의 유리 기판 상에 막 두께 120 nm의 인듐 주석 산화물로 이루어지는 투명 전극을 설치하였다. 이 유리 기판을 이소프로필알코올 중에서 초음파 세정을 5 분간 행한 후, UV 오존 세정을 30 분간 행하고, 진공 증착 장치에 이 기판을 설치하였다.

<312>

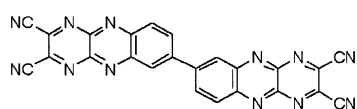
그 기판에 우선, 정공 주입층으로서 화합물(1)을 10 nm의 두께로 증착시킨 후, 그 위에 정공 수송층으로서 N,N'-비스[4'-(N-(나프틸-1-일)-N-페닐)아미노비페닐-4-일]-N-페닐아민을 20 nm의 두께로 증착시켰다.

<313>

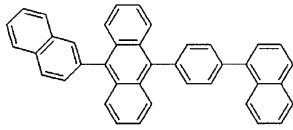
또한, 그 위에 막 두께 40 nm로, 하기 화학식으로 표시되는 화합물 EM1과 하기 화학식으로 표시되는 스티릴아민 유도체 S1을 40:2의 막 두께비로 성막하여 청색계 발광층으로 하였다.

<314>

이 막 상에 전자 수송층으로서 막 두께 20 nm로 트리스(8-히드록시퀴노나토)알루미늄을 증착에 의해 성막하였다. 이 후, LiF를 막 두께 1 nm로 성막하였다. 이 LiF막 상에 금속 Al을 150 nm 증착시켜 금속 음극을 형성하여 유기 EL 발광 소자를 형성하였다.

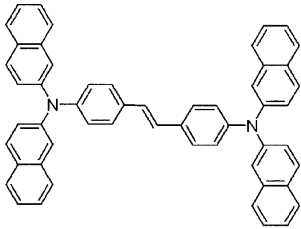


<315>



EM 1

<316>



S 1

<317>

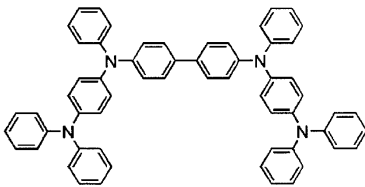
<318> (실시에 10) 본 발명 화합물을 정공 주입층에 이용한 유기 EL 소자의 제조

<319> 25 mm×75 mm×0.7 mm의 유리 기판 상에 막 두께 120 nm의 인듐 주석 산화물로 이루어지는 투명 전극을 설치하였다. 이 유리 기판을 이소프로필알코올 중에서 초음파 세정을 5 분간 행한 후, UV 오존 세정을 30 분간 행하여 진공 증착 장치에 이 기판을 설치하였다.

<320> 그 기판에 막 두께 10 nm로, 앞서 합성한 화합물(1) 및 N',N''-비스[4-(디페닐아미노)페닐]-N',N''-디페닐비페닐-4,4'-디아민(이하, 화합물(B))을 2:98의 비가 되도록 성막하였다. 이 혼합막은 정공 주입층으로서 기능한다. 그 위에 정공 수송층으로서 N,N'-비스[4'-(N-(나프틸-1-일)-N-페닐)아미노비페닐-4-일]-N-페닐아민을 20 nm의 두께로 증착시켰다.

<321> 또한, 그 위에 막 두께 40 nm로, 화합물 EM1과 스티릴아민 유도체 S1을 40:2의 막 두께비로 성막하여 청색계 발광층으로 하였다.

<322> 이 막 상에 전자 수송층으로서 막 두께 20 nm로 트리스(8-히드록시퀴노나토)알루미늄을 증착에 의해 성막하였다. 이 후, LiF를 막 두께 1 nm로 성막하였다. 이 LiF막 상에 금속 Al을 150 nm 증착시켜 금속 음극을 형성하여 유기 EL 발광 소자를 형성하였다.



화합물 (B)

<323>

<324> (실시에 11) 본 발명 화합물을 정공 주입층에 이용한 유기 EL 소자의 제조

<325> 25 mm×75 mm×0.7 mm의 유리 기판 상에 막 두께 120 nm의 인듐 주석 산화물로 이루어지는 투명 전극을 설치하였다. 이 유리 기판을 이소프로필알코올 중에서 초음파 세정을 5 분간 행한 후, UV 오존 세정을 30 분간 행하여 진공 증착 장치에 이 기판을 설치하였다.

<326> 그 기판에 우선, 정공 주입층으로서 화합물(A-1)을 10 nm의 두께로 증착시킨 후, 그 위에 정공 수송층으로서 N,N'-비스[4'-(N-(나프틸-1-일)-N-페닐)아미노비페닐-4-일]-N-페닐아민을 20 nm의 두께로 증착시켰다.

<327> 또한, 그 위에 막 두께 40 nm로, 화합물 EM1과 스티릴아민 유도체 S1을 40:2의 막 두께비로 성막하여 청색계 발광층으로 하였다.

<328> 이 막 상에 전자 수송층으로서 막 두께 20 nm로 트리스(8-히드록시퀴노나토)알루미늄을 증착에 의해 성막하였다. 이 후, LiF를 막 두께 1 nm로 성막하였다. 이 LiF막 상에 금속 Al을 150 nm 증착시켜 금속 음극을 형성하여 유기 EL 발광 소자를 형성하였다.

<329> (실시에 12) 본 발명 화합물을 정공 주입층에 이용한 유기 EL 소자의 제조

<330> 25 mm×75 mm×0.7 mm의 유리 기판 상에 막 두께 120 nm의 인듐 주석 산화물로 이루어지는 투명 전극을 설치하

였다. 이 유리 기판을 이소프로필알코올 중에서 초음파 세정을 5 분간 행한 후, UV 오존 세정을 30 분간 행하여 진공 증착 장치에 이 기판을 설치하였다.

<331> 그 기판에 막 두께 10 nm로, 앞서 합성한 화합물(A-2) 및 화합물(B)를 2:98의 비가 되도록 성막하였다. 이 혼합막은 정공 주입층으로서 기능한다. 그 위에 정공 수송층으로서 N,N'-비스[4'-(N-(나프틸-1-일)-N-페닐)아미노비페닐-4-일]-N-페닐아민을 20 nm의 두께로 증착시켰다.

<332> 또한, 그 위에 막 두께 40 nm로 화합물 EM1과 스티릴아민 유도체 S1을 40:2의 막 두께비로 성막하여 청색계 발광층으로 하였다.

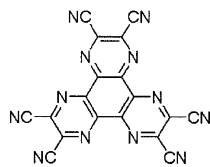
<333> 이 막 상에 전자 수송층으로서 막 두께 20 nm로 트리스(8-히드록시퀴노나토)알루미늄을 증착에 의해 성막하였다. 이 후, LiF를 막 두께 1 nm로 성막하였다. 이 LiF막 상에 금속 Al을 150 nm 증착시켜 금속 음극을 형성하여 유기 EL 발광 소자를 형성하였다.

<334> (실시예 13) 본 발명 화합물을 정공 주입층에 이용한 유기 EL 소자의 제조

<335> 실시예 11에 있어서 정공 주입층에 화합물(A-1) 대신에 (A-21)을 이용한 것 이외에는 동일하게 하여 유기 EL 발광 소자를 형성하였다.

<336> (비교예 1)

<337> 실시예 9에 있어서, 화합물(1) 대신에 일본 특허 제3614405호 공보에 기재된 하기 화합물(A)를 이용한 것 이외에는 동일하게 하여 유기 EL 소자를 제조하였다.



<338> 화합물 (A)

<339> (비교예 2)

<340> 실시예 9에 있어서, 화합물(1) 대신에 화합물(B)를 이용한 것 이외에는 동일하게 하여 유기 EL 소자를 제조하였다.

<341> (유기 EL 소자의 평가)

<342> 상기 실시예 9 내지 실시예 13 및 비교예 1 내지 2에서 얻어진 유기 EL 소자에 대하여, 전류 밀도 10 mA/cm<sup>2</sup>가 얻어지는 전압 및 초기 휘도 1000 nit, 실온, DC 정전류 구동에 의한 발광의 반감 수명을 측정하였다. 또한, 소자에 -5 V의 전압을 인가하여 누설 전류를 측정하였다. 이들의 결과를 표 1에 나타내었다.

**표 1**

|        | 정공 주입층의 화합물            | 전압 10mA/cm <sup>2</sup><br>(V) | 반감 수명<br>(hr) | 누설 전류 0-5V<br>(μA) |
|--------|------------------------|--------------------------------|---------------|--------------------|
| 실시예 9  | 화합물 (1)                | 5.4                            |               | -0.0045            |
| 실시예 10 | 화합물 (1)<br>/ 화합물 (B)   | 5.5                            |               | -0.0028            |
| 실시예 11 | 화합물 (A-1)              | 5.3                            | 7000          | -0.0056            |
| 실시예 12 | 화합물 (A-2)<br>/ 화합물 (B) | 5.5                            | 7200          | -0.0028            |
| 실시예 13 | 화합물 (A-21)             | 5.1                            | 7200          | -0.0075            |
| 비교예 1  | 화합물 (A)                | 5.3                            | 6900          | -0.84              |
| 비교예 2  | 화합물 (B)                | 6.4                            | 6800          | -0.0019            |

<343>

<344> 상기 표 1의 결과로부터, 본 발명의 화합물을 정공 주입층에 이용함으로써 구동 전압이 낮고 긴 수명이면서 누설 전류가 적은 소자를 제조할 수 있음을 알았다.

**산업상 이용 가능성**

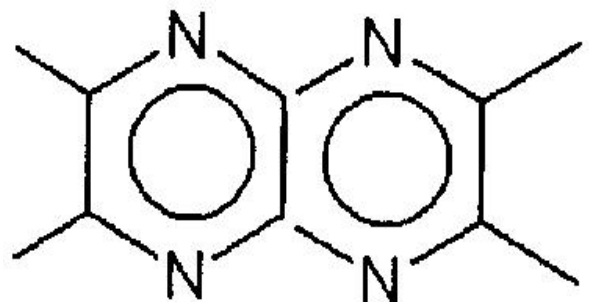
<345> 이상 상세하게 설명한 바와 같이, 본 발명의 화합물을 이용한 유기 EL 소자는 구동 전압이 낮고 긴 수명이면서 누설 전류가 적기 때문에, 청색을 비롯한 각 색 유기 EL용 재료로서 사용 가능하고, 각종 표시 소자, 디스플레이

이, 백 라이트, 조명 광원, 표지, 간판, 인테리어 등의 분야에 적용할 수 있으며, 특히 컬러 디스플레이의 표시 소자로서 적합하다.

|                |   |         |            |
|----------------|---|---------|------------|
| 专利名称(译)        | 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="#">KR1020090024236A</a>  | 公开(公告)日 | 2009-03-06 |
| 申请号            | KR1020097000028   | 申请日     | 2007-06-05 |
| [标]申请(专利权)人(译) | 索尼公司  |         |            |
| 申请(专利权)人(译)    | 高山出光株式会社<br>索尼公司  |         |            |
| [标]发明人         | AOYAMA YOSHIAKI<br>아오야마요시아끼<br>MORISHITA HIRONOBU<br>모리시따히로노부<br>HOSOKAWA CHISHIO<br>호소까와치시오<br>MATSUNAMI SHIGEYUKI<br>마쯔나미시게유키<br>KIJIMA YASUNORI<br>기지마야스노리 |         |            |
| 发明人            | 아오야마,요시아끼<br>모리시따,히로노부<br>호소까와,치시오<br>마쯔나미,시게유키<br>기지마,야스노리   |         |            |
| IPC分类号         | C09K11/06 H05B33/14 H01L51/54   |         |            |
| CPC分类号         | H01L51/0072 C07D487/04 C07D519/00 C09K11/06 C09K2211/1011 C09K2211/1044 H01L51/0052<br>H01L51/006 H01L51/0081 H01L51/5048                                     |         |            |
| 代理人(译)         | Jangsugil<br>Bakbohyeon   |         |            |
| 优先权            | 2006156445 2006-06-05 JP  |         |            |
| 外部链接           | <a href="#">Espacenet</a>   |         |            |

摘要(译)

公开了一种可用作有机EL器件的组分的新化合物。还公开了使用该化合物的实用有机EL器件。该有机EL器件具有低驱动电压，长寿命和减小的漏电流。具体公开了一种化合物，其特征在于在分子中具有至少一个如下所示的结构(1)。结构(1) ÖKIPO0026 #WIPO 2009



구조(1)