



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2022-0131235
(43) 공개일자 2022년09월27일

- (51) 국제특허분류(Int. Cl.)
H01L 51/00 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)
- (52) CPC특허분류
H01L 51/0059 (2013.01)
H01L 51/0058 (2013.01)
- (21) 출원번호 10-2022-7024229
- (22) 출원일자(국제) 2021년01월21일
심사청구일자 없음
- (85) 번역문제출일자 2022년07월13일
- (86) 국제출원번호 PCT/JP2021/002068
- (87) 국제공개번호 WO 2021/149773
국제공개일자 2021년07월29일
- (30) 우선권주장
JP-P-2020-008577 2020년01월22일 일본(JP)

- (71) 출원인
호도가야 가가쿠 고교 가부시키키가이샤
일본국 도쿄도 미나토쿠 히가시신바시 1초메 9반 2고
에스에프씨 주식회사
충청북도 청주시 청원구 오창읍 과학산업5로 89
- (72) 발명자
이즈미다 준이치
일본국 도쿄도 미나토쿠 히가시신바시 1초메 9반 2고 호도가야 가가쿠 고교 가부시키키가이샤 나이
야마모토 다케시
일본국 도쿄도 미나토쿠 히가시신바시 1초메 9반 2고 호도가야 가가쿠 고교 가부시키키가이샤 나이
(뒷면에 계속)
- (74) 대리인
특허법인코리아나

전체 청구항 수 : 총 10 항

(54) 발명의 명칭 유기 일렉트로 루미네선스 소자

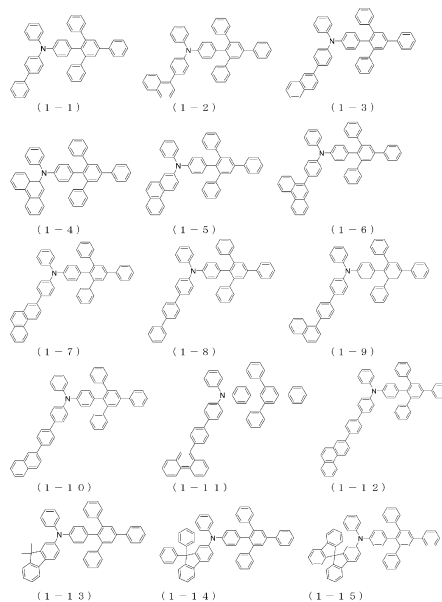
(57) 요약

양극 및 음극을 구비하고,

상기 양극과 상기 음극의 사이에, 상기 양극측으로부터 적어도 제 1 정공 수송층과 제 2 정공 수송층과 청색 발광층과 전자 수송층을 이 순서로 구비하고,

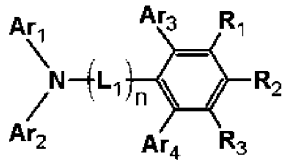
(뒷면에 계속)

대표도 - 도1



상기 제 1 정공 수송층과 상기 전자 수송층의 사이에 배치되는 층 중의 적어도 한 층이, 하기 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물을 함유하는,

유기 일렉트로 루미네선스 소자.



(1)

(52) CPC특허분류

H01L 51/006 (2013.01)

H01L 51/0072 (2013.01)

H01L 51/0073 (2013.01)

H01L 51/0074 (2013.01)

H01L 51/008 (2013.01)

H01L 51/5012 (2013.01)

H01L 51/5056 (2013.01)

(72) 발명자

가세 고우키

일본국 도쿄도 미나토쿠 히가시신바시 1쵸메 9반

2고 호도가야 가가쿠 교교 가부시키키가이샤 나이

스루가 가즈유키

일본국 도쿄도 미나토쿠 히가시신바시 1쵸메 9반

2고 호도가야 가가쿠 교교 가부시키키가이샤 나이

하야시 슈이치

일본국 도쿄도 미나토쿠 히가시신바시 1쵸메 9반

2고 호도가야 가가쿠 교교 가부시키키가이샤 나이

차 순욱

충청북도 청주시 청원구 오창읍 과학산업5로 89 에

스에프씨 주식회사 내

주 성훈

충청북도 청주시 청원구 오창읍 과학산업5로 89 에

스에프씨 주식회사 내

양 병선

충청북도 청주시 청원구 오창읍 과학산업5로 89 에

스에프씨 주식회사 내

김 지환

충청북도 청주시 청원구 오창읍 과학산업5로 89 에

스에프씨 주식회사 내

명세서

청구범위

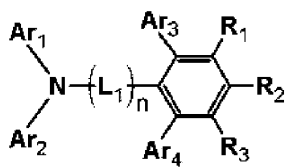
청구항 1

양극 및 음극을 구비하고,

상기 양극과 상기 음극의 사이에, 상기 양극측으로부터 적어도 제 1 정공 수송층과 제 2 정공 수송층과 청색 발광층과 전자 수송층을 이 순서로 구비하고,

상기 제 1 정공 수송층과 상기 전자 수송층의 사이에 배치되는 층 중의 적어도 한 층이, 하기 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물을 함유하는,

유기 일렉트로 루미네선스 소자.



(1)

(식 중, Ar₁, Ar₂, Ar₃ 및 Ar₄ 는 서로 동일해도 상이해도 되고, 치환 혹은 무치환의 방향족 탄화수소기, 치환 혹은 무치환의 방향족 복소 고리기 또는 치환 혹은 무치환의 축합 다고리 방향족 기를 나타내고,

L₁ 은 치환 혹은 무치환의 방향족 탄화수소의 2 가지, 치환 혹은 무치환의 방향족 복소 고리의 2 가지, 치환 혹은 무치환의 축합 다고리 방향족의 2 가지를 나타내고,

R₁, R₂ 및 R₃ 은 서로 동일해도 상이해도 되고, 수소 원자, 중수소 원자, 불소 원자, 염소 원자, 시아노기, 니트로기, 치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 1 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬기, 치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 5 ~ 10 의 시클로알킬기, 치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 2 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알케닐기, 치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 1 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬옥시기, 치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 5 ~ 10 의 시클로알킬옥시기, 치환 혹은 무치환의 방향족 탄화수소기, 치환 혹은 무치환의 방향족 복소 고리기, 치환 혹은 무치환의 축합 다고리 방향족 기 또는 치환 혹은 무치환의 아릴옥시기를 나타내고,

n 은 1 ~ 3 의 정수를 나타낸다.)

청구항 2

제 1 항에 있어서,

상기 제 1 정공 수송층과 상기 청색 발광층의 사이에 배치되는 층 중의 적어도 한 층이, 상기 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물을 함유하는, 유기 일렉트로 루미네선스 소자.

청구항 3

제 1 항 또는 제 2 항에 있어서,

상기 청색 발광층보다 상기 양극측에 배치되는 층 중의 상기 청색 발광층과 인접하는 층이, 상기 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물을 함유하는, 유기 일렉트로 루미네선스 소자.

청구항 4

제 1 항 내지 제 3 항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 제 2 정공 수송층이, 상기 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물을 함유하는, 유기 일렉트로 루미네선스 소자.

스 소자.

청구항 5

제 1 항 내지 제 4 항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 일반식 (1) 중의 R_1 , R_3 이 서로 동일해도 상이해도 되고, 수소 원자 또는 중수소 원자인, 유기 일렉트로 루미네선스 소자.

청구항 6

제 1 항 내지 제 5 항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 일반식 (1) 중의 n 이 1 또는 2 인, 유기 일렉트로 루미네선스 소자.

청구항 7

제 1 항 내지 제 6 항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 일반식 (1) 중의 L_1 이 치환 혹은 무치환의 페닐렌기인, 유기 일렉트로 루미네선스 소자.

청구항 8

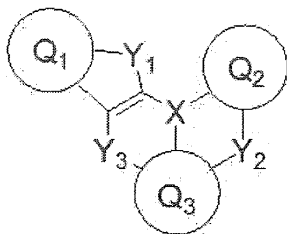
제 1 항 내지 제 7 항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 청색 발광층이, 청색 발광성 도펀트를 함유하는, 유기 일렉트로 루미네선스 소자.

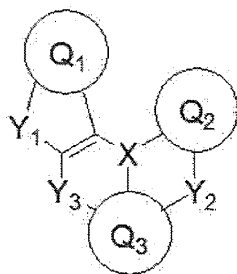
청구항 9

제 8 항에 있어서,

상기 청색 발광성 도펀트가, 하기 일반식 (2) 또는 (3) 으로 나타내는 화합물인, 유기 일렉트로 루미네선스 소자.



(2)



(3)

(식 (2) 및 (3) 중, $Q_1 \sim Q_3$ 은 서로 동일해도 상이해도 되고, 치환 혹은 무치환의 방향족 탄화수소, 또는 치환 혹은 무치환의 방향족 복소 고리를 나타낸다.

X 는 B, P, $P = O$, 또는 $P = S$ 를 나타낸다.

$Y_1 \sim Y_3$ 은 서로 동일해도 상이해도 되고, $N-R_4$, $C-R_5R_6$, O, S, Se 또는 $Si-R_7R_8$ 중에서 선택되는 어느 하나이며,

$R_4 \sim R_8$ 은 서로 동일해도 상이해도 되고, 수소 원자, 중수소 원자, 불소 원자, 염소 원자, 시아노기, 니트로기, 치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 1 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬기, 치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 5 ~ 10 의 시클로알킬기, 치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 2 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알케닐기, 치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 1 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬옥시기, 치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 5 ~ 10 의 시클로알킬옥시기, 치환 혹은 무치환의 방향족 탄화수소기, 또는 치환 혹은 무치환의 아릴옥시기를 나타낸다.

또, R_5 와 R_6 , R_7 과 R_8 은 각각의 기끼리로 단결합, 치환 혹은 무치환의 메틸렌기, 산소 원자 또는 황 원자를 개재하여 서로 결합하여 고리를 형성해도 된다.

단, $Y_1 \sim Y_3$ 이 N- R_4 , C- R_5R_6 , 또는 Si- R_7R_8 인 경우, $R_4 \sim R_8$ 은 각각 인접하는 $Q_1 \sim Q_3$ 과, 치환 혹은 무치환의 메틸렌기, 산소 원자, 황 원자, 일 치환 아미노기 등의 연결기를 개재하여 서로 결합하여 고리를 형성해도 된다.)

청구항 10

제 1 항 내지 제 9 항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 청색 발광층이, 안트라센 골격을 갖는 안트라센 유도체를 함유하는, 유기 일렉트로 루미네선스 소자.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은, 각종 표시 장치에 적합한 자발광 소자인 유기 일렉트로 루미네선스 소자에 관한 것으로, 상세하게는 특정한 아릴아민 화합물을 사용한 유기 일렉트로 루미네선스 소자 (이하, 유기 EL 소자로 약칭한다) 에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 유기 EL 소자는 자기 발광성 소자이기 때문에, 액정 소자에 비해 밝아 시인성이 우수하고, 선명한 표시가 가능한 점에서, 활발한 연구가 이루어져 왔다.

[0003] 1987년에 이스트만·코닥사의 C. W. Tang 등은 각종 역할을 각 재료에 분담시킨 적층 구조 소자를 개발함으로써 유기 재료를 사용한 유기 EL 소자를 실용적인 것으로 하였다. 그들은 전자를 수송할 수 있는 형광체와 정공을 수송할 수 있는 유기물을 적층하고, 양방의 전하를 형광체의 층 속으로 주입하여 발광시킴으로써, 10 V 이하의 전압으로 1000 cd/m² 이상의 고휘도가 얻어지게 되었다 (예를 들어, 특허문헌 1 및 특허문헌 2 참조).

[0004] 현재까지, 유기 EL 소자의 실용화를 위해서 많은 개량이 이루어져, 적층 구조의 각종 역할을 더욱 세분화하여, 기관 상에 순차적으로, 양극, 정공 주입층, 정공 수송층, 발광층, 전자 수송층, 전자 주입층, 음극을 형성한 단계 발광 소자에 의해 고효율과 고내구성이 달성되게 되었다 (예를 들어, 비특허문헌 1 참조).

[0005] 또, 발광 효율의 추가적인 향상을 목적으로 하여 삼중항 여기자의 이용이 시도되어, 인광 발광성 화합물의 이용이 검토되고 있다 (예를 들어, 비특허문헌 2 참조).

[0006] 그리고, 열 활성화 지연 형광 (TADF) 에 의한 발광을 이용하는 소자도 개발되어 있다. 2011년에 큐슈 대학의 아다치 등은, 열 활성화 지연 형광 재료를 사용한 소자에 의해 5.3 % 의 외부 양자 효율을 실현시켰다. (예를 들어, 비특허문헌 3 참조)

[0007] 발광층은, 일반적으로 호스트 재료라고 칭해지는 전하 수송성의 화합물에, 형광성 화합물이나 인광 발광성 화합물 또는 지연 형광을 방사하는 재료를 도프하여 제작할 수도 있다. 상기 비특허문헌에 기재되어 있는 바와 같이, 유기 EL 소자에 있어서의 유기 재료의 선택은, 그 소자의 효율이나 내구성 등 제반 특성에 큰 영향을 준다. (예를 들어, 비특허문헌 2 참조)

[0008] 유기 EL 소자에 있어서는, 양전극으로부터 주입된 전하가 발광층에서 재결합하여 발광이 얻어지는데, 정공, 전자의 양 전하를 어떻게 효율적으로 발광층에 받아들일지가 중요하여, 캐리어 밸런스가 우수한 소자로 할 필요가 있다. 또, 정공 주입성을 높여, 음극으로부터 주입된 전자를 블록하는 전자 저지성을 향상시키는 것에 의해, 정공과 전자가 재결합할 확률을 향상시키고, 나아가서는 발광층 내에서 생성된 여기자를 가두는 것에 의

해, 고발광 효율을 얻을 수 있다. 그 때문에, 정공 수송 재료가 하는 역할은 중요하며, 정공 주입성이 높고, 정공의 이동도가 크고, 전자 저지성이 높고, 나아가서는 전자에 대한 내구성이 높은 정공 수송 재료가 요구되고 있다.

[0009] 또, 소자의 수명에 관해서는 재료의 내열성이나 아모르퍼스성도 중요하다. 내열성이 낮은 재료에서는, 소자 구동시에 생기는 열에 의해, 낮은 온도에서도 열분해가 일어나, 재료가 열화한다. 아모르퍼스성이 낮은 재료에서는, 짧은 시간에도 박막의 결정화가 일어나, 소자가 열화되어 버린다. 그 때문에 사용하는 재료에는 내열성이 높고, 아모르퍼스성이 양호한 성질이 요구된다.

[0010] 지금까지 유기 EL 소자에 사용되어 온 정공 수송 재료로는, N,N'-디페닐-N,N'-디(α-나프틸)벤지딘 (NPD) 이나 각종 방향족 아민 유도체가 알려져 있었다 (예를 들어, 특허문헌 1 및 특허문헌 2 참조). NPD 는 양호한 정공 수송 능력을 가지고 있지만, 내열성의 지표가 되는 유리 전이점 (Tg) 이 96 °C 로 낮아, 고온 조건하에서는 결정화에 의한 소자 특성의 저하가 일어나 버린다 (예를 들어, 비특허문헌 4 참조). 또, 상기 특허문헌에 기재된 방향족 아민 유도체 중에는, 정공의 이동도가 10⁻³ cm²/Vs 이상으로 우수한 이동도를 갖는 화합물이 알려져 있지만 (예를 들어, 특허문헌 1 및 특허문헌 2 참조), 전자 저지성이 불충분하기 때문에, 전자의 일부가 발광층을 빠져나가 버려, 발광 효율의 향상을 기대할 수 없는 등, 추가적인 고효율화를 위해, 보다 전자 저지성이 높고, 박막이 보다 안정적이고 내열성이 높은 재료가 요구되고 있었다. 또, 내구성이 높은 방향족 아민 유도체에 관한 보고가 있지만 (예를 들어, 특허문헌 3 참조), 전자 사진 감광체에 사용되는 전자 수송 재료로서 사용한 것으로, 유기 EL 소자로서 사용한 예는 없었다.

[0011] 내열성이나 정공 주입성 등의 특성을 개량한 화합물로서, 치환 카르바졸 구조를 갖는 아릴아민 화합물이 제안되어 있는데 (예를 들어, 특허문헌 4 및 특허문헌 5 참조), 이들 화합물을 정공 주입층 또는 정공 수송층에 사용한 소자에서는, 내열성이나 발광 효율 등의 개량은 되어 있기는 하지만, 여전히 충분하다고는 할 수 없고, 추가적인 저구동 전압화나, 추가적인 고발광 효율화가 요구되고 있다.

[0012] 유기 EL 소자의 소자 특성의 개선이나 소자 제작의 수율 향상을 위해서, 정공 및 전자의 주입·수송 성능, 박막의 안정성이나 내구성이 우수한 재료를 조합함으로써, 정공 및 전자가 고효율로 재결합할 수 있는, 발광 효율이 높고, 구동 전압이 낮고, 장수명인 소자가 요구되고 있다.

[0013] 또, 유기 EL 소자의 소자 특성을 개선시키기 위해서, 정공 및 전자의 주입·수송 성능, 박막의 안정성이나 내구성이 우수한 재료를 조합함으로써, 캐리어 밸런스가 잡힌 고효율, 저구동 전압, 장수명인 소자가 요구되고 있다.

선행기술문헌

특허문헌

- [0014] (특허문헌 0001) 일본 공개특허공보 평8-048656호
- (특허문헌 0002) 일본 특허공보 제3194657호
- (특허문헌 0003) 일본 특허공보 제4943840호
- (특허문헌 0004) 일본 공개특허공보 2006-151979호
- (특허문헌 0005) 국제 공개 제2008/62636호
- (특허문헌 0006) 일본 특허공보 제5040216호
- (특허문헌 0007) 국제 공개 제2014/009310호

비특허문헌

- [0015] (비특허문헌 0001) 응용 물리학회 제 9 회 강습회 예고집 55 ~ 61 페이지 (2001)
- (비특허문헌 0002) 응용 물리학회 제 9 회 강습회 예고집 23 ~ 31 페이지 (2001)
- (비특허문헌 0003) Appl. Phys. Let., 98, 083302 (2011)

(비특허문헌 0004) 유기 EL 토론회 제 3 회 예회 예고집 13 ~ 14 페이지 (2006)

발명의 내용

해결하려는 과제

[0016] 본 발명의 목적은, 고효율, 고내구성의 유기 EL 소자용의 재료로서, 정공의 주입·수송 성능, 전자 저지 능력, 박막 상태에서의 안정성, 내구성이 우수한 유기 EL 소자용의 재료를 제공하고, 나아가서는, 그 재료 및, 정공 및 전자의 주입·수송 성능, 전자 저지 능력, 박막 상태에서의 안정성, 내구성이 우수한 유기 EL 소자용의 각종 재료를, 각각의 재료가 갖는 특성을 효과적으로 발휘할 수 있도록 조합함으로써, 고효율, 저구동 전압, 장수명의 유기 EL 소자를 제공하는 데에 있다.

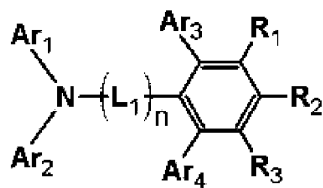
[0017] 본 발명이 제공하고자 하는 유기 화합물이 구비해야 할 물리적인 특성으로는, (1) 정공의 주입 특성이 좋을 것, (2) 정공의 이동도가 클 것, (3) 박막 상태가 안정적일 것, (4) 내열성이 우수할 것을 들 수 있다. 또, 본 발명이 제공하고자 하는 유기 EL 소자가 구비해야 할 물리적인 특성으로는, (1) 발광 효율 및 전력 효율이 높을 것, (2) 발광 개시 전압이 낮을 것, (3) 실용 구동 전압이 낮을 것 (4) 장수명일 것을 들 수 있다.

과제의 해결 수단

[0018] 그래서 본 발명자들은 상기 목적을 달성하기 위해서, 특정한 구조를 갖는 아릴아민 화합물이, 정공의 주입·수송 능력, 박막의 안정성 및 내구성이 우수한 점에 주목하여, 여러 가지의 아릴아민 화합물을 선택하여, 유기 EL 소자를 제작하고, 소자의 특성 평가를 예의 실시했다. 그 결과, 본 발명자들은, 특정한 구조를 갖는 아릴아민 화합물을 정공 수송층의 재료로서 선택하면, 양극측으로부터 주입된 정공을 효율적으로 수송할 수 있다는 지견을 얻었다. 또한, 특정한 구조를 갖는 발광 재료 등을 조합한 여러 가지의 유기 EL 소자를 제작하고, 소자의 특성 평가를 예의 실시했다. 그 결과, 본 발명을 완성하기에 이르렀다.

[0019] 상기 과제를 해결할 수 있는 본 발명의 유기 EL 소자는,
 [0020] 양극 및 음극을 구비하고,
 [0021] 상기 양극과 상기 음극의 사이에, 상기 양극측으로부터 적어도 제 1 정공 수송층과 제 2 정공 수송층과 청색 발광층과 전자 수송층을 이 순서로 구비하고,
 [0022] 상기 제 1 정공 수송층과 상기 전자 수송층의 사이에 배치되는 층 중의 적어도 한 층이, 하기 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물을 함유하는,
 [0023] 유기 일렉트로 루미네선스 소자이다.

[0024] [화학식 1]



(1)

[0025]
 [0026] (식 중, Ar₁, Ar₂, Ar₃ 및 Ar₄ 는 서로 동일해도 상이해도 되고, 치환 혹은 무치환의 방향족 탄화수소기, 치환 혹은 무치환의 방향족 복소 고리기 또는 치환 혹은 무치환의 축합 다고리 방향족 기를 나타내고,

[0027] L₁ 은 치환 혹은 무치환의 방향족 탄화수소의 2 가지, 치환 혹은 무치환의 방향족 복소 고리의 2 가지, 치환 혹은 무치환의 축합 다고리 방향족의 2 가지를 나타내고,

[0028] R₁, R₂ 및 R₃ 은 서로 동일해도 상이해도 되고, 수소 원자, 중수소 원자, 불소 원자, 염소 원자, 시아노기, 니트로기, 치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 1 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬기, 치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 5 ~ 10 의 시클로알킬기, 치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 2 ~ 6 의 직사

슬형 혹은 분기형의 알케닐기, 치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 1 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬옥시기, 치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 5 ~ 10 의 시클로알킬옥시기, 치환 혹은 무치환의 방향족 탄화수소기, 치환 혹은 무치환의 방향족 복소 고리기, 치환 혹은 무치환의 축합 다고리 방향족 기 또는 치환 혹은 무치환의 아릴옥시기를 나타내고,

[0029] n 은 1 ~ 3 의 정수를 나타낸다.)

발명의 효과

[0030] 본 발명의 유기 EL 소자에 바람직하게 사용되는, 상기 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물은, 유기 EL 소자의 정공 수송층의 구성 재료로서 사용할 수 있다. 상기 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물은, (1) 정공의 주입 특성이 좋은, (2) 정공의 이동도가 큰, (3) 전자 저지 능력이 우수한, (4) 박막 상태가 안정적이고, (5) 내열성이 우수하다는 특성을 가지고 있다.

[0031] 본 발명의 유기 EL 소자는, 종래의 정공 수송 재료보다 정공의 이동도가 크고, 우수한 전자의 저지 능력을 갖고, 우수한 아모르퍼스성을 갖고, 또한 박막 상태가 안정적인, 아릴아민 화합물을 사용하고 있기 때문에, 고효율, 저구동 전압, 장수명의 유기 EL 소자를 실현하는 것이 가능하다.

[0032] 또한, 본 발명에 있어서는, 정공 수송층을 제 1 정공 수송층과 제 2 정공 수송층의 2 층 구조로 하고, 발광층에 인접하는 측에 위치하는 제 2 정공 수송층을, 상기 일반식 (1) 의 아릴아민 화합물에 의해 형성함으로써, 그 아릴아민 화합물이 갖는 전자 저지 성능을 최대한으로 활용할 수 있고, 보다 고효율로 장수명의 유기 EL 소자를 실현할 수 있다.

도면의 간단한 설명

[0033] 도 1 은 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물의 예시로서, 화합물 1-1 ~ 1-15 의 구조식을 나타내는 도면이다.

도 2 는 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물의 예시로서, 화합물 1-16 ~ 1-30 의 구조식을 나타내는 도면이다.

도 3 은 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물의 예시로서, 화합물 1-31 ~ 1-45 의 구조식을 나타내는 도면이다.

도 4 는 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물의 예시로서, 화합물 1-46 ~ 1-60 의 구조식을 나타내는 도면이다.

도 5 는 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물의 예시로서, 화합물 1-61 ~ 1-75 의 구조식을 나타내는 도면이다.

도 6 은 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물의 예시로서, 화합물 1-76 ~ 1-90 의 구조식을 나타내는 도면이다.

도 7 은 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물의 예시로서, 화합물 1-91 ~ 1-105 의 구조식을 나타내는 도면이다.

도 8 은 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물의 예시로서, 화합물 1-106 ~ 1-120 의 구조식을 나타내는 도면이다.

도 9 는 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물의 예시로서, 화합물 1-121 ~ 1-135 의 구조식을 나타내는 도면이다.

도 10 은 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물의 예시로서, 화합물 1-136 ~ 1-150 의 구조식을 나타내는 도면이다.

도 11 은 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물의 예시로서, 화합물 1-151 ~ 1-165 의 구조식을 나타내는 도면이다.

도 12 는 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물의 예시로서, 화합물 1-166 ~ 1-178 의 구조식을 나타내는 도면이다.

도 13 은 일반식 (2) 로 나타내는 화합물의 예시로서, 화합물 2-1 ~ 2-15 의 구조를 나타내는 도면이다.

도 14 는 일반식 (2) 로 나타내는 화합물의 예시로서, 화합물 2-16 ~ 2-24 의 구조식을 나타내는 도면이다.

도 15 는 일반식 (3) 으로 나타내는 화합물의 예시로서, 화합물 3-1 ~ 3-6 의 구조를 나타내는 도면이다.

도 16 은 실시예 16 ~ 27, 비교예 1 ~ 2 의 유기 EL 소자 구성을 나타낸 도면이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0034] 이하, 본 발명의 실시형태에 대해 상세하게 설명한다. 먼저, 본 실시형태에 대해, 그 양태를 열거하여 설명한다.

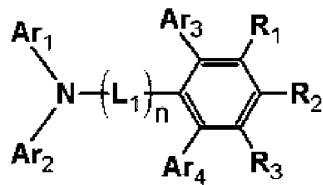
[0035] 1) 양극 및 음극을 구비하고,

[0036] 상기 양극과 상기 음극의 사이에, 상기 양극측으로부터 적어도 제 1 정공 수송층과 제 2 정공 수송층과 청색 발광층과 전자 수송층을 이 순서로 구비하고,

[0037] 상기 제 1 정공 수송층과 상기 전자 수송층의 사이에 배치되는 층 중의 적어도 한 층이, 하기 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물을 함유하는,

[0038] 유기 일렉트로 루미네선스 소자.

[0039] [화학식 2]



(1)

[0040] (식 중, Ar₁, Ar₂, Ar₃ 및 Ar₄ 는 서로 동일해도 상이해도 되고, 치환 혹은 무치환의 방향족 탄화수소기, 치환 혹은 무치환의 방향족 복소 고리기 또는 치환 혹은 무치환의 축합 다고리 방향족 기를 나타내고,

[0042] L₁ 은 치환 혹은 무치환의 방향족 탄화수소의 2 가지, 치환 혹은 무치환의 방향족 복소 고리의 2 가지, 치환 혹은 무치환의 축합 다고리 방향족의 2 가지를 나타내고,

[0043] R₁, R₂ 및 R₃ 은 서로 동일해도 상이해도 되고, 수소 원자, 중수소 원자, 불소 원자, 염소 원자, 시아노기, 니트로기, 치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 1 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬기, 치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 5 ~ 10 의 시클로알킬기, 치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 2 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알케닐기, 치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 1 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬옥시기, 치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 5 ~ 10 의 시클로알킬옥시기, 치환 혹은 무치환의 방향족 탄화수소기, 치환 혹은 무치환의 방향족 복소 고리기, 치환 혹은 무치환의 축합 다고리 방향족 기 또는 치환 혹은 무치환의 아릴옥시기를 나타내고,

[0044] n 은 1 ~ 3 의 정수를 나타낸다.)

[0045] 2) 상기 제 1 정공 수송층과 상기 청색 발광층의 사이에 배치되는 층 중의 적어도 한 층이, 상기 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물을 함유하는, 상기 1) 에 기재된 유기 일렉트로 루미네선스 소자.

[0046] 3) 상기 청색 발광층보다 상기 양극측에 배치되는 층 중의 상기 청색 발광층과 인접하는 층이, 상기 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물을 함유하는, 상기 1) 또는 2) 에 기재된 유기 일렉트로 루미네선스 소자.

[0047] 4) 상기 제 2 정공 수송층이, 상기 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물을 함유하는, 상기 1) ~ 3) 중 어느 한 항에 기재된 유기 일렉트로 루미네선스 소자.

[0048] 5) 상기 일반식 (1) 중의 R₁, R₃ 이 서로 동일해도 상이해도 되고, 수소 원자 또는 중수소 원자인, 상기 1) ~ 4) 중 어느 한 항에 기재된 유기 일렉트로 루미네선스 소자.

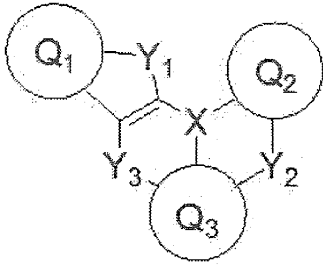
[0049] 6) 상기 일반식 (1) 중의 n 이 1 또는 2 인, 상기 1) ~ 5) 중 어느 한 항에 기재된 유기 일렉트로 루미네선스 소자.

[0050] 7) 상기 일반식 (1) 중의 L_1 이 치환 혹은 무치환의 페닐렌기인, 상기 1) ~ 6) 중 어느 한 항에 기재된 유기 일렉트로 루미네선스 소자.

[0051] 8) 상기 청색 발광층이, 청색 발광성 도펀트를 함유하는, 상기 1) ~ 7) 중 어느 한 항에 기재된 유기 일렉트로 루미네선스 소자.

[0052] 9) 상기 청색 발광성 도펀트가, 하기 일반식 (2) 또는 (3) 으로 나타내는 화합물인, 상기 8) 에 기재된 유기 일렉트로 루미네선스 소자.

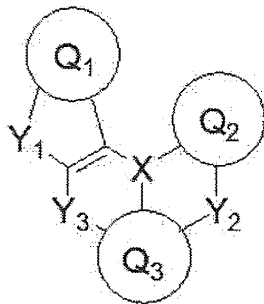
[0053] [화학식 3]



(2)

[0054]

[0055] [화학식 4]



(3)

[0056]

[0057] (식 (2) 및 (3) 중, $Q_1 \sim Q_3$ 은 서로 동일해도 상이해도 되고, 치환 혹은 무치환의 방향족 탄화수소, 또는 치환 혹은 무치환의 방향족 복소 고리를 나타낸다.

[0058] X 는 B, P, $P = O$, 또는 $P = S$ 를 나타낸다.

[0059] $Y_1 \sim Y_3$ 은 서로 동일해도 상이해도 되고, $N-R_4$, $C-R_5R_6$, O, S, Se 또는 $Si-R_7R_8$ 중에서 선택되는 어느 하나이며,

[0060] $R_4 \sim R_8$ 은 서로 동일해도 상이해도 되고, 수소 원자, 중수소 원자, 불소 원자, 염소 원자, 시아노기, 니트로기, 치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 1 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬기, 치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 5 ~ 10 의 시클로알킬기, 치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 2 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알케닐기, 치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 1 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬옥시기, 치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 5 ~ 10 의 시클로알킬옥시기, 치환 혹은 무치환의 방향족 탄화수소기, 또는 치환 혹은 무치환의 아릴옥시기를 나타낸다.

[0061] 또, R_5 와 R_6 , R_7 과 R_8 은 각각의 기끼리로 단결합, 치환 혹은 무치환의 메틸렌기, 산소 원자 또는 황 원자를 개재하여 서로 결합하여 고리를 형성해도 된다.

[0062] 단, $Y_1 \sim Y_3$ 이 $N-R_4$, $C-R_5R_6$, 또는 $Si-R_7R_8$ 인 경우, $R_4 \sim R_8$ 은 각각 인접하는 $Q_1 \sim Q_3$ 과, 치환 혹은 무치환의 메틸렌기, 산소 원자, 황 원자, 일 치환 아미노기 등의 연결기를 개재하여 서로 결합하여 고리를 형성해도

된다.)

- [0063] 10) 상기 청색 발광층이, 안트라센 골격을 갖는 안트라센 유도체를 함유하는, 상기 1) ~ 9) 중 어느 한 항에 기재된 유기 일렉트로 루미네선스 소자.
- [0064] 일반식 (1) 중의 $Ar_1 \sim Ar_4$ 로 나타내는 「치환 혹은 무치환의 방향족 탄화수소기」, 「치환 혹은 무치환의 방향족 복소 고리기」 또는 「치환 혹은 무치환의 축합 다고리 방향족 기」에 있어서의 「방향족 탄화수소기」, 「방향족 복소 고리기」 또는 「축합 다고리 방향족 기」로는, 구체적으로, 페닐기, 비페닐릴기, 터페닐릴기, 나프틸기, 안트라세닐기, 페난트레닐기, 플루오레닐기, 인데닐기, 피레닐기, 페릴레닐기, 플루오란테닐기, 트리페닐레닐기, 피리딜기, 피리미디닐기, 트리아지닐기, 푸릴기, 피롤릴기, 티에닐기, 퀴놀릴기, 이소퀴놀릴기, 벤조푸라닐기, 벤조티에닐기, 인돌릴기, 카르바졸릴기, 벤조옥사졸릴기, 벤조티아졸릴기, 퀴놀살리닐기, 벤조이미다졸릴기, 피라졸릴기, 디벤조푸라닐기, 디벤조티에닐기, 나프티리디닐기, 페난트롤리닐기, 아크리디닐기, 및 카르볼리닐기 등을 들 수 있다.
- [0065] 일반식 (1) 중의 $Ar_1 \sim Ar_4$ 로 나타내는 「치환 방향족 탄화수소기」, 「치환 방향족 복소 고리기」 또는 「치환 축합 다고리 방향족 기」에 있어서의 「치환기」로는, 구체적으로, 중수소 원자, 시아노기, 니트로기 ; 불소 원자, 염소 원자, 브롬 원자, 요오드 원자 등의 할로겐 원자 ; 메틸기, 에틸기, n-프로필기, 이소프로필기, n-부틸기, 이소부틸기, tert-부틸기, n-펜틸기, 이소펜틸기, 네오펜틸기, n-헥실기 등의 탄소 원자수 1 내지 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬기 ; 메틸옥시기, 에틸옥시기, 프로필옥시기 등의 탄소 원자수 1 내지 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬옥시기 ; 비닐기, 알릴기 등의 알케닐기 ; 페닐옥시기, 톨릴옥시기 등의 아릴옥시기 ; 벤질옥시기, 페네틸옥시기 등의 아릴알킬옥시기 ; 페닐기, 비페닐릴기, 터페닐릴기, 나프틸기, 안트라세닐기, 페난트레닐기, 플루오레닐기, 인데닐기, 피레닐기, 페릴레닐기, 플루오란테닐기, 트리페닐레닐기 등의 방향족 탄화수소기 혹은 축합 다고리 방향족 기 ; 피리딜기, 피리미디닐기, 트리아지닐기, 티에닐기, 푸릴기, 피롤릴기, 퀴놀릴기, 이소퀴놀릴기, 벤조푸라닐기, 벤조티에닐기, 인돌릴기, 카르바졸릴기, 벤조옥사졸릴기, 벤조티아졸릴기, 퀴놀살리닐기, 벤조이미다졸릴기, 피라졸릴기, 디벤조푸라닐기, 디벤조티에닐기, 카르볼리닐기 등의 방향족 복소 고리기 ; 스티릴기, 나프틸비닐기 등의 아릴비닐기 ; 아세틸기, 벤조일기 등의 아실기 등을 들 수 있다.
이들 치환기는, 나아가 상기 예시한 치환기가 치환되어 있어도 된다. 또, 이들 치환기끼리가 단결합, 치환 혹은 무치환의 메틸렌기, 산소 원자 또는 황 원자를 개재하여 서로 결합하여 고리를 형성하고 있어도 된다.
- [0066] 일반식 (1) 중의 L_1 로 나타내는 「치환 혹은 무치환의 방향족 탄화수소의 2 가지」, 「치환 혹은 무치환의 방향족 복소 고리의 2 가지」 또는 「치환 혹은 무치환의 축합 다고리 방향족의 2 가지」에 있어서의 「방향족 탄화수소의 2 가지」, 「방향족 복소 고리의 2 가지」 또는 「축합 다고리 방향족의 2 가지」로는, 구체적으로, 페닐렌기, 비페닐렌기, 터페닐렌기, 테트라키스페닐렌기, 나프틸렌기, 안티릴렌기, 페난트릴렌기, 플루오레닐렌기, 페난트롤리렌기, 인데닐렌기, 피레닐렌기, 페릴레닐렌기, 플루오란테닐렌기, 트리페닐레닐렌기, 피리디닐렌기, 피리미디닐렌기, 퀴놀릴렌기, 이소퀴놀릴렌기, 인돌릴렌기, 카르바졸릴렌기, 퀴놀살릴렌기, 벤조이미다졸릴렌기, 피라졸릴렌기, 나프티리디닐렌기, 페난트롤리닐렌기, 아크리디닐렌기, 티오펜릴렌기, 벤조티오펜릴렌기, 벤조티아졸릴렌기, 디벤조티오펜릴렌기 등을 들 수 있다. 또, n 이 2 또는 3 인 경우, 복수개 존재하는 L_1 은 동일해도 되고 상이해도 된다.
- [0067] 일반식 (1) 중의 L_1 로 나타내는 「치환 방향족 탄화수소의 2 가지」, 「치환 방향족 복소 고리의 2 가지」 또는 「치환 축합 다고리 방향족의 2 가지」에 있어서의 「치환기」로는, 상기 일반식 (1) 중의 $Ar_1 \sim Ar_4$ 로 나타내는 「치환 방향족 탄화수소기」, 「치환 방향족 복소 고리기」 또는 「치환 축합 다고리 방향족 기」에 있어서의 「치환기」에 관해서 나타낸 것과 동일한 것을 들 수 있고, 취할 수 있는 양태도, 동일한 것을 들 수 있다.
- [0068] 일반식 (1) 중의 $R_1 \sim R_3$ 으로 나타내는 「치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 1 내지 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬기」, 「치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 5 내지 10 의 시클로알킬기」 또는 「치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 2 내지 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알케닐기」에 있어서의 「탄소 원자수 1 내지 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬기」, 「탄소 원자수 5 내지 10 의 시클로알킬기」 또는 「탄소 원자수 2 내지 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알케닐기」로는, 구체적으로, 메틸기, 에틸기, n-프로필기, 이소프로필기, n-부틸기, 이소부틸기, tert-부틸기, n-펜틸기, 이소펜틸기, 네오펜틸기, n-헥실기, 시클로펜틸기, 시클로헥실기, 1-아다만틸기, 2-아다만틸기, 비닐기, 알릴기, 이소프로페닐기, 2-부테닐기 등을 들 수 있다. 이들 기끼리가 단결합, 치환 혹은 무치환의 메틸렌기, 산소 원자 또는 황 원자를 개재하여 서로 결합하여 고리를 형성해도

된다.

[0069] 일반식 (1) 중의 $R_1 \sim R_3$ 으로 나타내는 「치환기를 갖는 탄소 원자수 1 내지 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬기」, 「치환기를 갖는 탄소 원자수 5 내지 10 의 시클로알킬기」 또는 「치환기를 갖는 탄소 원자수 2 내지 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알케닐기」에 있어서의 「치환기」로는, 구체적으로, 중수소 원자, 시아노기, 니트로기 ; 불소 원자, 염소 원자, 브롬 원자, 요오드 원자 등의 할로겐 원자 ; 메틸옥시기, 에틸옥시기, 프로필옥시기 등의 탄소 원자수 1 내지 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬옥시기 ; 비닐기, 알릴기 등의 알케닐기 ; 페닐옥시기, 톨릴옥시기 등의 아릴옥시기 ; 벤질옥시기, 페닐옥시기 등의 아릴알킬옥시기 ; 페닐기, 비페닐릴기, 터페닐릴기, 나프틸기, 안트라세닐기, 페난트레닐기, 플루오레닐기, 인데닐기, 피레닐기, 페릴레닐기, 플루오란테닐기, 트리페닐레닐기 등의 방향족 탄화수소기 혹은 축합 다고리 방향족 기 ; 피리딜기, 피리미디닐기, 트리아지닐기, 티에닐기, 푸릴기, 피롤릴기, 퀴놀릴기, 이소퀴놀릴기, 벤조푸라닐기, 벤조티에닐기, 인돌릴기, 카르바졸릴기, 벤조옥사졸릴기, 벤조티아졸릴기, 퀴놀살리닐기, 벤조이미다졸릴기, 피라졸릴기, 디벤조푸라닐기, 디벤조티에닐기, 카르볼리닐기 등의 방향족 복소 고리기 등을 들 수 있다. 이들 치환기는 추가로 상기 예시한 치환기가 치환되어 있어도 된다. 또, 이들 치환기끼리가 단결합, 치환 혹은 무치환의 메틸렌기, 산소 원자 또는 황 원자를 개재하여 서로 결합하여 고리를 형성하고 있어도 된다.

[0070] 일반식 (1) 중의 $R_1 \sim R_3$ 으로 나타내는 「치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 1 내지 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬옥시기」 또는 「치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 5 내지 10 의 시클로알킬옥시기」에 있어서의 「탄소 원자수 1 내지 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬옥시기」 또는 「탄소 원자수 5 내지 10 의 시클로알킬옥시기」로는, 구체적으로, 메틸옥시기, 에틸옥시기, n-프로필옥시기, 이소프로필옥시기, n-부틸옥시기, tert-부틸옥시기, n-펜틸옥시기, n-헥실옥시기, 시클로펜틸옥시기, 시클로헥실옥시기, 시클로헥틸옥시기, 시클로옥틸옥시기, 1-아다만틸옥시기, 2-아다만틸옥시기 등을 들 수 있다. 이들 기끼리가 단결합, 치환 혹은 무치환의 메틸렌기, 산소 원자 또는 황 원자를 개재하여 서로 결합하여 고리를 형성하고 있어도 된다.

[0071] 일반식 (1) 중의 $R_1 \sim R_3$ 으로 나타내는 「치환기를 갖는 탄소 원자수 1 내지 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬옥시기」 또는 「치환기를 갖는 탄소 원자수 5 내지 10 의 시클로알킬옥시기」에 있어서의 「치환기」로는, 상기 일반식 (1) 중의 $R_1 \sim R_3$ 으로 나타내는 「치환기를 갖는 탄소 원자수 1 내지 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬기」, 「치환기를 갖는 탄소 원자수 5 내지 10 의 시클로알킬기」 또는 「치환기를 갖는 탄소 원자수 2 내지 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알케닐기」에 있어서의 「치환기」에 관해서 나타낸 것과 동일한 것을 들 수 있고, 취할 수 있는 양태도, 동일한 것을 들 수 있다.

[0072] 일반식 (1) 중의 $R_1 \sim R_3$ 으로 나타내는 「치환 혹은 무치환의 방향족 탄화수소기」, 「치환 혹은 무치환의 방향족 복소 고리기」 또는 「치환 혹은 무치환의 축합 다고리 방향족 기」에 있어서의 「방향족 탄화수소기」, 「방향족 복소 고리기」 또는 「축합 다고리 방향족 기」로는, 상기 일반식 (1) 중의 $Ar_1 \sim Ar_4$ 로 나타내는 「치환 혹은 무치환의 방향족 탄화수소기」, 「치환 혹은 무치환의 방향족 복소 고리기」 또는 「치환 혹은 무치환의 축합 다고리 방향족 기」에 있어서의 「방향족 탄화수소기」, 「방향족 복소 고리기」 또는 「축합 다고리 방향족 기」에 관해서 나타낸 것과 동일한 것을 들 수 있다. 이들 기끼리가 단결합, 치환 혹은 무치환의 메틸렌기, 산소 원자 또는 황 원자를 개재하여 서로 결합하여 고리를 형성해도 된다. 또, 이들 기는 치환기를 가지고 있어도 되고, 치환기로서 상기 일반식 (1) 중의 $Ar_1 \sim Ar_4$ 로 나타내는 「치환 방향족 탄화수소기」, 「치환 방향족 복소 고리기」 또는 「치환 축합 다고리 방향족 기」에 있어서의 「치환기」에 관해서 나타낸 것과 동일한 것을 들 수 있고, 취할 수 있는 양태도, 동일한 것을 들 수 있다.

[0073] 일반식 (1) 중의 $R_1 \sim R_3$ 으로 나타내는 「치환 혹은 무치환의 아릴옥시기」에 있어서의 「아릴옥시기」로는, 구체적으로, 페닐옥시기, 비페닐릴옥시기, 터페닐릴옥시기, 나프틸옥시기, 안트라세닐옥시기, 페난트레닐옥시기, 플루오레닐옥시기, 인데닐옥시기, 피레닐옥시기, 페릴레닐옥시기 등을 들 수 있다. 이들 기끼리가 단결합, 치환 혹은 무치환의 메틸렌기, 산소 원자 또는 황 원자를 개재하여 서로 결합하여 고리를 형성하고 있어도 된다. 또, 이들 기는 치환기를 가지고 있어도 되고, 치환기로서 상기 일반식 (1) 중의 $Ar_1 \sim Ar_4$ 로 나타내는 「치환 방향족 탄화수소기」, 「치환 방향족 복소 고리기」 또는 「치환 축합 다고리 방향족 기」에 있어서의 「치환기」에 관해서 나타낸 것과 동일한 것을 들 수 있고, 취할 수 있는 양태도, 동일한 것을 들 수 있다.

[0074] 일반식 (1) 중의 Ar_1, Ar_2 로는, 「치환 혹은 무치환의 방향족 탄화수소기」, 또는 「치환 혹은 무치환의 축합 다고리 방향족 기」가 바람직하고, 치환 혹은 무치환의 페닐기, 나프틸기, 페난트레닐기, 플루오레닐기가 보다 바

람직하고, 치환 혹은 무치환의 페닐기, 치환기를 갖는 플루오레닐기가 특히 바람직하다. 여기서, 페닐기의 치환기로는, 페닐기, 비페닐릴기, 터페닐릴기, 나프틸기, 페난트레닐기, 플루오레닐기가 바람직하고, 플루오레닐기의 치환기로는, 메틸기, 페닐기가 바람직하다. 또, Ar₁ 및 Ar₂ 는 서로 상이하면 바람직하다.

[0075] 일반식 (1) 중의 Ar₃, Ar₄ 로는, 「치환 혹은 무치환의 방향족 탄화수소기」 또는 「치환 혹은 무치환의 축합 다고리 방향족 기」가 바람직하고, 치환 혹은 무치환의 페닐기, 비페닐릴기, 나프틸기, 페난트레닐기, 플루오레닐기가 보다 바람직하고, 무치환의 페닐기, 무치환의 비페닐릴기, 무치환의 나프틸기, 치환기를 갖는 플루오레닐기가 특히 바람직하다. 여기서, 플루오레닐기의 치환기로는, 메틸기, 페닐기가 바람직하다.

[0076] 일반식 (1) 중의 L₁ 로는, 「치환 혹은 무치환의 방향족 탄화수소의 2 가지」 또는 「치환 혹은 무치환의 축합 다고리 방향족의 2 가지」가 바람직하고, 벤젠, 비페닐, 나프탈렌, 또는 페난트렌으로부터 수소 원자를 2 개 제거하여 생기는 2 가기가 보다 바람직하고, 벤젠으로부터 수소 원자를 2 개 제거하여 생기는 2 가지, 즉 페닐렌기가 특히 바람직하다. 이 경우, 무치환의 페닐렌기가 바람직하고, 페닐렌기의 결합 양식으로는, 파라 위치 - 메타 위치에서의 결합, 또는 파라 위치끼리에서의 결합, 즉 1,3-페닐렌기, 또는 1,4-페닐렌기인 것이 바람직하다.

[0077] L₁ 의 개수를 나타내는 n 은, 1 ~ 3 의 정수를 나타내지만, 1 또는 2 인 것이 바람직하다.

[0078] 일반식 (1) 중의 R₁, R₃ 으로는, 수소 원자, 중수소 원자가 바람직하고, 합성 상의 관점에서, 수소 원자가 보다 바람직하다. 일반식 (1) 중의 R₂ 로는, 「치환 혹은 무치환의 방향족 탄화수소기」 또는 「치환 혹은 무치환의 축합 다고리 방향족 기」가 바람직하고, 치환 혹은 무치환의 페닐기, 비페닐릴기, 나프틸기, 페난트레닐기, 플루오레닐기가 보다 바람직하고, 무치환의 페닐기, 무치환의 비페닐릴기, 무치환의 나프틸기, 치환기를 갖는 플루오레닐기가 특히 바람직하다. 여기서, 플루오레닐기의 치환기로는, 메틸기, 페닐기가 바람직하다. Ar₃, Ar₄ 및 R₂ 는 서로 동일하면 바람직하다.

[0079] 여기서, 상기 일반식 (1) 중의 Ar₁ 은 치환 혹은 무치환의 페닐기여도 되고, 치환 페닐에 있어서의 치환기로는, 치환 혹은 무치환의 페닐기, 나프틸기여도 된다. 상기 일반식 (1) 중의 Ar₂ 는 치환 페닐기여도 되고, 치환 페닐에 있어서의 치환기로는, 치환 혹은 무치환의 페닐기, 비페닐릴기, 나프틸기여도 된다. 상기 일반식 (1) 중의 Ar₃, Ar₄ 및 R₂ 는 무치환의 페닐기, 무치환의 비페닐릴기, 무치환의 나프틸기, 치환기를 갖는 플루오레닐기여도 되고, 무치환의 페닐기여도 된다.

[0080] 일반식 (2) 및 식 (3) 중의 Q₁ ~ Q₃ 으로 나타내는 「치환 혹은 무치환의 방향족 탄화수소」 또는 「치환 혹은 무치환의 방향족 복소 고리」에 있어서의 「방향족 탄화수소」 또는 「방향족 복소 고리」로는, 구체적으로, 벤젠, 나프탈렌, 안트라센, 플루오렌, 페난트렌, 피리딘, 피리미딘, 트리아진, 피롤, 푸란, 티오펜, 퀴놀린, 이소퀴놀린, 인덴, 벤조푸란, 벤조티오펜, 인돌, 인돌린, 카르바졸, 카르볼린, 벤조옥사졸, 벤조티아졸, 퀴녹살린, 벤조이미다졸, 피라졸, 디벤조푸란, 디벤조티오펜, 나프티리딘, 페난트롤린, 아크리딘 등을 들 수 있다.

[0081] 또, 이들은 치환기를 가지고 있어도 되고, 치환기로서 상기 일반식 (1) 중의 R₁ ~ R₃ 으로 나타내는 「치환기를 갖는 탄소 원자수 1 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬기」, 「치환기를 갖는 탄소 원자수 5 ~ 10 의 시클로 알킬기」 또는 「치환기를 갖는 탄소 원자수 2 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알케닐기」에 있어서의 「치환기」에 관해서 나타낸 것과 동일한 것을 들 수 있다. 또, 이들 치환기끼리가 단결합, 치환 혹은 무치환의 메틸렌기, 산소 원자 또는 황 원자를 개재하여 서로 결합하여 고리를 형성하고 있어도 된다.

[0082] 일반식 (2) 및 식 (3) 중의 X 는 B, P, P = O, 또는 P = S 를 나타낸다. B 는 붕소 원자, P 는 인 원자, P = O 는 산소 원자가 이중 결합한 인 원자, 또는 P = S 는 황 원자가 이중 결합한 인 원자라고 정의한다. X 가 P = O 또는 P = S 인 경우, 인 원자가 일반식 (2) 및 식 (3) 중의 다른 원자와의 결합 지점이 된다.

[0083] 일반식 (2) 및 식 (3) 중의 Y₁ ~ Y₃ 은 서로 동일해도 상이해도 되고, N-R₄, C-R₅R₆, O, S, Se 또는 Si-R₇R₈ 중 에서 선택되는 어느 하나이다. N-R₄ 는 R₄ 를 치환기로서 갖는 질소 원자, C-R₅R₆ 은 R₅ 및 R₆ 을 치환기로서 갖는 탄소 원자, O 는 산소 원자, S 는 황 원자, Se 는 셀렌 원자, 또 Si-R₇R₈ 은 R₇ 및 R₈ 을 치환기로서 갖는 실리콘 원자라고 정의한다. Y₁ ~ Y₃ 이 N-R₄, C-R₅R₆ 또는 Si-R₇R₈ 인 경우, 각각 질소 원자, 탄소 원자 또는 실리콘 원자가 일반식 (2) 및 식 (3) 중의 다른 원자와의 결합 지점이 된다. 또한, R₄ ~ R₈ 의 정의는

추가로 하기의 기재로 상세하게 설명한다.

- [0084] 일반식 (2) 및 식 (3) 중의 $Y_1 \sim Y_3$ 이 $N-R_4$, $C-R_5R_6$, 또는 $Si-R_7R_8$ 인 경우, $R_4 \sim R_8$ 로 나타내는 「치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 1 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬기」, 「치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 5 ~ 10 의 시클로알킬기」 또는 「치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 2 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알케닐기」에 있어서의 「탄소 원자수 1 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬기」, 「탄소 원자수 5 ~ 10 의 시클로알킬기」 또는 「탄소 원자수 2 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알케닐기」로는, 구체적으로, 메틸기, 에틸기, n-프로필기, 이소프로필기, n-부틸기, 이소부틸기, tert-부틸기, n-펜틸기, 이소펜틸기, 네오펜틸기, n-헥실기, 시클로펜틸기, 시클로헥실기, 1-아다만틸기, 2-아다만틸기, 비닐기, 알릴기, 이소프로페닐기, 2-부테닐기 등을 들 수 있다. 또, 이들은 치환기를 가지고 있어도 되고, 치환기로서 상기 일반식 (1) 중의 $R_1 \sim R_3$ 으로 나타내는 「치환기를 갖는 탄소 원자수 1 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬기」, 「치환기를 갖는 탄소 원자수 5 ~ 10 의 시클로알킬기」 또는 「치환기를 갖는 탄소 원자수 2 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알케닐기」에 있어서의 「치환기」에 관해서 나타낸 것과 동일한 것을 들 수 있다.
- [0085] 일반식 (2) 및 식 (3) 중의 $Y_1 \sim Y_3$ 이 $N-R_4$, $C-R_5R_6$, 또는 $Si-R_7R_8$ 인 경우, $R_4 \sim R_8$ 로 나타내는 「치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 1 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬옥시기」 또는 「치환기를 가지고 있어도 되는 탄소 원자수 5 ~ 10 의 시클로알킬옥시기」에 있어서의 「탄소 원자수 1 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬옥시기」 또는 「탄소 원자수 5 ~ 10 의 시클로알킬옥시기」로는, 구체적으로, 메틸옥시기, 에틸옥시기, n-프로필옥시기, 이소프로필옥시기, n-부틸옥시기, tert-부틸옥시기, n-펜틸옥시기, n-헥실옥시기, 시클로펜틸옥시기, 시클로헥실옥시기, 시클로헵틸옥시기, 시클로옥틸옥시기, 1-아다만틸옥시기, 2-아다만틸옥시기 등을 들 수 있다.
- [0086] 또, 이들 기는 치환기를 가지고 있어도 되고, 치환기로서 상기 일반식 (1) 중의 $R_1 \sim R_3$ 으로 나타내는 「치환기를 갖는 탄소 원자수 1 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬기」, 「치환기를 갖는 탄소 원자수 5 ~ 10 의 시클로알킬기」 또는 「치환기를 갖는 탄소 원자수 2 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알케닐기」에 있어서의 「치환기」에 관해서 나타낸 것과 동일한 것을 들 수 있다.
- [0087] 일반식 (2) 및 식 (3) 중의 $Y_1 \sim Y_3$ 이 $N-R_4$, $C-R_5R_6$, 또는 $Si-R_7R_8$ 인 경우, $R_4 \sim R_8$ 로 나타내는 「치환 혹은 무치환의 방향족 탄화수소기」에 있어서의 「방향족 탄화수소기」로는, 구체적으로, 페닐기, 비페닐릴기, 터페닐릴기, 나프틸기, 안트라세닐기, 페난트레닐기 등을 들 수 있다. 또, 이들 기는 치환기를 가지고 있어도 되고, 치환기로서 상기 일반식 (1) 중의 $R_1 \sim R_3$ 으로 나타내는 「치환기를 갖는 탄소 원자수 1 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬기」, 「치환기를 갖는 탄소 원자수 5 ~ 10 의 시클로알킬기」 또는 「치환기를 갖는 탄소 원자수 2 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알케닐기」에 있어서의 「치환기」에 관해서 나타낸 것과 동일한 것을 들 수 있다.
- [0088] 일반식 (2) 및 식 (3) 중의 $Y_1 \sim Y_3$ 이 $N-R_4$, $C-R_5R_6$, 또는 $Si-R_7R_8$ 인 경우, $R_4 \sim R_8$ 로 나타내는 「치환 혹은 무치환의 아릴옥시기」에 있어서의 「아릴옥시기」로는, 구체적으로, 페닐옥시기, 비페닐릴옥시기, 터페닐릴옥시기, 나프틸옥시기, 안트라세닐옥시기, 페난트레닐옥시기, 플루오레닐옥시기, 인데닐옥시기, 피레닐옥시기, 페릴레닐옥시기 등을 들 수 있다. 또, 이들 기는 치환기를 가지고 있어도 되고, 치환기로서 상기 일반식 (1) 중의 $R_1 \sim R_3$ 으로 나타내는 「치환기를 갖는 탄소 원자수 1 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알킬기」, 「치환기를 갖는 탄소 원자수 5 ~ 10 의 시클로알킬기」 또는 「치환기를 갖는 탄소 원자수 2 ~ 6 의 직사슬형 혹은 분기형의 알케닐기」에 있어서의 「치환기」에 관해서 나타낸 것과 동일한 것을 들 수 있다.
- [0089] 일반식 (2) 및 식 (3) 에 있어서, $Q_1 \sim Q_3$ 의 「치환 혹은 무치환의 방향족 탄화수소」 또는 「치환 혹은 무치환의 방향족 복소 고리」에 있어서의 「방향족 탄화수소」 또는 「방향족 복소 고리」로는, 벤젠, 나프탈렌, 페난트렌, 피리딘, 피리미딘, 인덴, 벤조푸란, 벤조티오펜, 인돌이 바람직하고, 벤젠, 나프탈렌이 보다 바람직하다.
- [0090] 일반식 (2) 및 식 (3) 에 있어서, Y_1 로는, $N-R_4$, O, S 가 바람직하고, O, S 가 보다 바람직하다. 또, 일반식 (2) 에 있어서, Y_2 와 Y_3 중 적어도 일방은 $N-R_4$ 인 것이 바람직하고, 어느 쪽이나 $N-R_4$ 인 것이 보다 바람직하다. R_4 로는, 「치환 혹은 무치환의 방향족 탄화수소기」가 바람직하고, 치환 혹은 무치환의 페닐기, 비페닐릴기, 터페닐릴기, 나프틸기가 보다 바람직하다. 일반식 (2) 및 식 (3) 중의 X 는 B 여도 된다.

- [0091] 본 실시형태의 유기 EL 소자에 바람직하게 사용되는, 상기 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물 중에서, 바람직한 화합물의 구체예를 도 1 ~ 도 12 에 나타내는데, 이들 화합물로 한정되는 것은 아니다.
- [0092] 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물의 정제는 칼럼 크로마토그래프에 의한 정제, 실리카 겔, 활성탄, 활성 백토 등에 의한 흡착 정제, 용매에 의한 재결정이나 정석법, 승화 정제법 등에 의해 실시해도 된다. 화합물의 동정은, NMR 분석에 의해 행해도 된다. 물성치로서 용점, 유리 전이점 (Tg) 과 일 함수의 측정을 실시해도 된다. 용점은 증착성의 지표가 되는 것이며, 유리 전이점 (Tg) 은 박막 상태의 안정성의 지표가 되고, 일 함수는 정공 수송성이나 정공 저지 성의 지표가 되는 것이다. 그 외, 본 실시형태의 유기 EL 소자에 사용되는 화합물은, 칼럼 크로마토그래프에 의한 정제, 실리카 겔, 활성탄, 활성 백토 등에 의한 흡착 정제, 용매에 의한 재결정이나 정석법, 승화 정제법 등에 의해 정제를 실시한 후, 마지막으로 승화 정제법에 의해 정제한 것을 사용해도 된다.
- [0093] 용점과 유리 전이점 (Tg) 은, 분체를 사용하여 고감도 시차 주사 열량계 (브루커·에이엑스에스 제조, DSC3100SA) 에 의해 측정된다. 일반식 (1) 로 나타내는 화합물의 유리 전이점은, 특별히 한정되는 것은 아니지만, 형성된 박막의 안정성의 관점에서 80 ℃ 이상이면 바람직하고, 100 ℃ 이상이면 더욱 바람직하고, 110 ℃ 이상이면 특히 바람직하다. 유리 전이점의 상한은 특별히 한정되는 것은 아니지만, 예를 들어 250 ℃ 이하의 화합물을 채용할 수 있다.
- [0094] 일 함수는, ITO 기판 상에 100 nm 의 박막을 제작하여, 이온화 포텐셜 측정 장치 (스미토모 증기계공업 주식회사 제조, PYS-202) 에 의해 구해진다. 일반식 (1) 로 나타내는 화합물을 사용하여 ITO 기판 상에 제작한, 막두께 100 nm 의 증착막에 있어서의 일 함수는, 특별히 한정되는 것은 아니지만, 5.4 eV 보다 크면 바람직하다. 이 증착막의 일 함수의 상한은 특별히 한정되는 것은 아니지만, 예를 들어 7.0 eV 이하의 증착막으로 할 수 있다.
- [0095] 본 실시형태의 유기 EL 소자의 구조로는, 기판 상에 순차적으로, 양극, 정공 수송층, 발광층, 전자 수송층 및 음극으로 이루어지는 것, 또, 양극과 정공 수송층의 사이에 정공 주입층을 갖는 것, 발광층과 전자 수송층의 사이에 정공 저지층을 갖는 것, 전자 수송층과 음극의 사이에 전자 주입층을 갖는 것을 들 수 있다. 이들 다층 구조에 있어서는 유기층을 몇 층 생략 혹은 겸하는 것이 가능하고, 예를 들어 정공 주입층과 정공 수송층을 겸한 구성으로 하는 것, 전자 주입층과 전자 수송층을 겸한 구성으로 하는 것, 등도 할 수 있다. 또, 동일한 기능을 갖는 유기층을 2 층 이상 적층한 구성으로 하는 것이 가능하고, 정공 수송층을 2 층 적층한 구성, 발광층을 2 층 적층한 구성, 전자 수송층을 2 층 적층한 구성, 등도 할 수 있다. 본 실시형태의 유기 EL 소자의 구조로서, 정공 수송층이 제 1 정공 수송층과 제 2 정공 수송층의 2 층 구조인 것이 바람직하고, 이 경우의 제 2 정공 수송층은 발광층과 인접하고 있고, 전자 저지층으로서의 기능을 갖는다.
- [0096] 본 실시형태의 유기 EL 소자의 양극으로는, ITO 나 금과 같은 일 함수가 큰 전극 재료가 사용된다. 본 실시형태의 유기 EL 소자의 정공 주입층으로서, 스타 버스트형의 트리페닐아민 유도체, 여러 가지의 트리페닐아민 사량체 등의 재료 ; 구리 프탈로시아닌으로 대표되는 포르피린 화합물 ; 헥사시아노아자트리페닐렌과 같은 억셉터성의 복소 고리 화합물이나 도포형의 고분자 재료, 등을 사용할 수 있다. 이들 재료는 증착법 외, 스핀 코트법이나 잉크젯법 등의 공지된 방법에 의해 박막 형성을 실시할 수 있다.
- [0097] 본 실시형태의 유기 EL 소자의 정공 수송층으로서, 상기 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물이 사용된다. 상기 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물과 혼합 혹은 동시에 사용할 수 있는, 정공 수송성의 재료로는, N,N'-디페닐-N,N'-디(m-톨릴)벤지딘 (TPD), N,N'-디페닐-N,N'-디(α-나프틸)벤지딘 (NPD), N,N,N',N'-테트라비페닐벤지딘 등의 벤지딘 유도체, 1,1-비스[4-(디-4-톨릴아미노)페닐]시클로hex산 (TAPC), 상기 일반식 (1) 로 나타내는 트리페닐아민 유도체 외, 여러 가지의 트리페닐아민 유도체 등의 화합물을 사용할 수 있다. 이들은, 단독으로 성막해도 되지만, 다른 재료와 함께 혼합하여 성막한 단층으로서 사용해도 되고, 단독으로 성막한 층끼리, 혼합하여 성막한 층끼리, 또는 단독으로 성막한 층과 혼합하여 성막한 층의 적층 구조로 해도 된다. 이들 재료는 증착법 외, 스핀 코트법이나 잉크젯법 등의 공지된 방법에 의해 박막 형성을 실시할 수 있다.
- [0098] 또, 정공 주입층 혹은 정공 수송층에 있어서, 그 층에 통상 사용되는 재료에 대해, 또한 트리스브로모페닐아민 헥사클로르안티몬, 라디알렌 유도체 (예를 들어, 특허문헌 7 참조) 등을 P 도핑한 것이나, TPD 등의 벤지딘 유도체의 구조를 그 부분 구조에 갖는 고분자 화합물 등을 사용할 수 있다.
- [0099] 본 실시형태의 유기 EL 소자의 정공 수송층이 제 1 정공 수송층과 제 2 정공 수송층의 2층 구조를 갖는 경우,

발광층과 인접하는 제 2 정공 수송층으로는, 상기 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물이 사용된다. 상기 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물과 혼합 혹은 동시에 사용할 수 있는, 정공 수송성의 재료로는, 4,4',4''-트리(N-카르바졸릴)트리페닐아민 (TCTA), 9,9-비스[4-(카르바졸-9-일)페닐]플루오렌, 1,3-비스(카르바졸-9-일)벤젠 (mCP), 2,2-비스(4-카르바졸-9-일페닐)아다만탄 (Ad-Cz) 등의 카르바졸 유도체, 9-[4-(카르바졸-9-일)페닐]-9-[4-(트리페닐실릴)페닐]-9H-플루오렌으로 대표되는 트리페닐실릴기와 트리아릴아민 구조를 갖는 화합물 등의 전자 저지 작용을 갖는 화합물을 들 수 있다.

[0100] 이들은, 단독으로 성막해도 되지만, 다른 재료와 함께 혼합하여 성막한 단층으로서 사용해도 되고, 단독으로 성막한 층끼리, 혼합하여 성막한 층끼리, 또는 단독으로 성막한 층과 혼합하여 성막한 층의 적층 구조로 해도 된다. 이들 재료는 증착법 외, 스핀 코트법이나 잉크젯법 등의 공지된 방법에 의해 박막 형성을 실시할 수 있다.

[0101] 본 실시형태의 유기 EL 소자의 발광층으로서, Alq₃ 을 비롯한 퀴놀리놀 유도체의 금속 착물 외, 각종 금속 착물, 안트라센 유도체, 비스스티릴벤젠 유도체, 피렌 유도체, 옥사졸 유도체, 폴리과라페닐렌비닐렌 유도체 등을 사용할 수 있다. 또, 발광층을 호스트 재료와 도펀트 재료로 구성해도 되고, 호스트 재료로서, 안트라센 유도체가 바람직하게 사용되지만, 그 외, 상기 발광 재료에 더해, 인돌 고리를 축합 고리의 부분 구조로서 갖는 복소 고리 화합물, 카르바졸 고리를 축합 고리의 부분 구조로서 갖는 복소 고리 화합물, 카르바졸 유도체, 티아졸 유도체, 벤즈이미다졸 유도체, 폴리디알킬플루오렌 유도체 등을 사용할 수 있다. 또 도펀트 재료로는, 피렌 유도체, 상기 일반식 (2) 로 나타내는 화합물이 바람직하게 사용되지만, 그 외, 퀴나크리돈, 쿠마린, 루브렌, 페틸렌, 및 그들의 유도체, 벤조피란 유도체, 인데노페난트렌 유도체, 로다민 유도체, 아미노스티릴 유도체 등을 사용할 수 있다. 이들은, 단독으로 성막해도 되지만, 다른 재료와 함께 혼합하여 성막한 단층으로서 사용해도 되고, 단독으로 성막한 층끼리, 혼합하여 성막한 층끼리, 또는 단독으로 성막한 층과 혼합하여 성막한 층의 적층 구조로 해도 된다.

[0102] 또, 발광 재료로서 인광 발광체를 사용할 수도 있다. 인광 발광체로는, 이리듐이나 백금 등의 금속 착물의 인광 발광체를 사용할 수 있다. Ir(ppy)₃ 등의 녹색의 인광 발광체, FIrpic, FIr6 등의 청색의 인광 발광체, Btp₂Ir(acac) 등의 적색의 인광 발광체 등이 사용되고, 이 때의 호스트 재료로는 정공 주입·수송성의 호스트 재료로서 4,4'-디(N-카르바졸릴)비페닐 (CBP) 이나 TCTA, mCP 등의 카르바졸 유도체 등을 사용할 수 있다. 전자 수송성의 호스트 재료로서, p-비스(트리페닐실릴)벤젠 (UGH2) 이나 2,2',2''-(1,3,5-페닐렌)-트리스(1-페닐-1H-벤즈이미다졸) (TPBI) 등을 사용할 수 있고, 고성능의 유기 EL 소자를 제작할 수 있다.

[0103] 인광성의 발광 재료의 호스트 재료에 대한 도프는 농도 소광을 피하기 위해, 발광층 전체에 대해 1 ~ 30 중량 퍼센트의 범위에서, 공증착에 의해 도프하는 것이 바람직하다.

[0104] 또, 발광 재료로서 PIC-TRZ, CC2TA, PXZ-TRZ, 4CzIPN 등의 CDCB 유도체 등의 지연 형광을 방사하는 재료를 사용할 수도 있다. (예를 들어, 비특허문헌 3 참조)

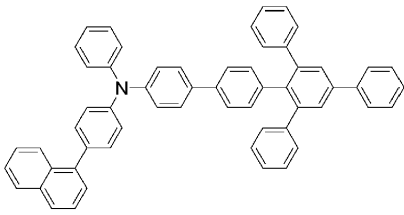
[0105] 이들 재료는 증착법 외, 스핀 코트법이나 잉크젯법 등의 공지된 방법에 의해 박막 형성을 실시할 수 있다.

[0106] 본 실시형태의 유기 EL 소자의 정공 저지층으로서, 바소쿠프로인 (BCP) 등의 페난트롤린 유도체나, 알루미늄 (III) 비스(2-메틸-8-퀴놀리네이트)-4-페닐페놀레이트 (이후, BA1q 로 약칭한다) 등의 퀴놀리놀 유도체의 금속 착물 외, 각종 희토류 착물, 트리아졸 유도체, 트리아진 유도체, 옥사디아졸 유도체 등, 정공 저지 작용을 갖는 화합물을 사용할 수 있다. 이들 재료는 전자 수송층의 재료를 겸해도 된다. 이들은, 단독으로 성막해도 되지만, 다른 재료와 함께 혼합하여 성막한 단층으로서 사용해도 되고, 단독으로 성막한 층끼리, 혼합하여 성막한 층끼리, 또는 단독으로 성막한 층과 혼합하여 성막한 층의 적층 구조로 해도 된다. 이들 재료는 증착법 외, 스핀 코트법이나 잉크젯법 등의 공지된 방법에 의해 박막 형성을 실시할 수 있다.

[0107] 본 실시형태의 유기 EL 소자의 전자 수송층으로서, Alq₃, BA1q 를 비롯한 퀴놀리놀 유도체의 금속 착물, 각종 금속 착물, 트리아졸 유도체, 트리아진 유도체, 옥사디아졸 유도체, 피리딘 유도체, 피리미딘 유도체, 벤즈이미다졸 유도체, 티아디아졸 유도체, 안트라센 유도체, 카르보다이미드 유도체, 퀴놀살린 유도체, 피리도인돌 유도체, 페난트롤린 유도체, 실롤 유도체 등을 사용할 수 있다. 이들은, 단독으로 성막해도 되지만, 다른 재료와 함께 혼합하여 성막한 단층으로서 사용해도 되고, 단독으로 성막한 층끼리, 혼합하여 성막한 층끼리, 또는 단독으로 성막한 층과 혼합하여 성막한 층의 적층 구조로 해도 된다. 이들 재료는 증착법 외, 스핀 코트법이나 잉크젯법 등의 공지된 방법에 의해 박막 형성을 실시할 수 있다.

- [0108] 본 실시형태의 유기 EL 소자의 전자 주입층으로서, 불화리튬, 불화세슘 등의 알칼리 금속염, 불화마그네슘 등의 알칼리 토금속염, 리튬퀴놀리놀 등의 퀴놀리놀 유도체의 금속 착물, 산화알루미늄 등의 금속 산화물, 혹은 이테르븀 (Yb), 사마륨 (Sm), 칼슘 (Ca), 스트론튬 (Sr), 세슘 (Cs) 등의 금속 등을 사용할 수 있지만, 전자 수송층과 음극의 바람직한 선택에 있어서는, 이것을 생략할 수 있다.
- [0109] 또한, 전자 주입층 혹은 전자 수송층에 있어서, 그 층에 통상 사용되는 재료에 대해, 추가로 세슘 등의 금속을 N 도핑한 것을 사용할 수 있다.
- [0110] 본 실시형태의 유기 EL 소자의 음극으로서, 알루미늄과 같은 일 함수가 낮은 전극 재료나, 마그네슘은 합금, 마그네슘인듐 합금, 알루미늄마그네슘 합금과 같은, 보다 일 함수가 낮은 합금이 전극 재료로서 사용된다.
- [0111] 본 실시형태에 있어서, 제 1 정공 수송층과 전자 수송층의 사이에 배치되는 층 중의 적어도 한 층이, 상기 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물을 함유한다. 본 실시형태에 있어서, 제 1 정공 수송층과 청색 발광층의 사이에 배치되는 층 중의 적어도 한 층이, 상기 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물을 함유하면 바람직하다. 본 실시형태에 있어서, 청색 발광층보다 양극측에 배치되는 층 중 청색 발광층과 인접하는 층이, 상기 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물을 함유하면 더욱 바람직하다. 본 실시형태에 있어서, 제 2 정공 수송층이, 상기 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물을 함유하면 더욱 바람직하다.
- [0112] 이하, 본 발명의 실시형태에 대해, 실시예에 의해 구체적으로 설명하지만, 본 발명은 이하의 실시예로 한정되는 것은 아니다.
- [0113] 실시예 1
- [0114] <N-(4-나프탈렌-1-일-페닐)-N,3',5'-트리페닐-[1,1' : 2',1'' : 4'',1''']쿼터페닐-4'''-아민 (화합물 1-80)의 합성>
- [0115] 질소 치환한 반응 용기에, 아닐린 14.3 g, 4-브로모-4'-요오드비페닐 50.0 g, 톨루엔 500 mL, t-부톡시나트륨 16.1 g 을 더해, 30 분간 초음파를 조사하면서 질소 가스를 통기하였다. 테트라키스(트리페닐포스핀)팔라듐 3.2 g 을 더해 가열하고, 72 °C 에서 27 시간 교반하였다. 실온까지 냉각한 후, 여과하여 얻은 여과액을 농축하였다. 잔류물을 칼럼 크로마토그래피로 정제하고, 4'-브로모-N-페닐-[1,1'-비페닐]-4-아민의 갈색 분체 34.2 g (수율 75.7 %) 을 얻었다.
- [0116] 질소 치환한 반응 용기에, 4'-브로모-N-페닐-[1,1'-비페닐]-4-아민 34.1 g, 톨루엔 340 mL, 비스피나콜라토디보론 32.0 g, 아세트산칼륨 31.0 g 을 더해, 30 분간 초음파를 조사하면서 질소 가스를 통기하였다. 디페닐포스피노페로센팔라듐디클로라이드 1.7 g 을 더해 가열하고, 100 °C 에서 19 시간 교반하였다. 실온까지 냉각한 후, 여과하여 얻은 여과액을 농축하였다. 잔류물을 칼럼 크로마토그래피로 정제하고, N-페닐-4'-(4,4,5,5-테트라메틸-1,3,2-디옥사보롤란-2-일)-[1,1'-비페닐]-4-아민의 담황색 분체 24.5 g (수율 62.6 %) 을 얻었다.
- [0117] 질소 치환한 반응 용기에, 1-브로모-2,4,6-트리페닐벤젠 30.4 g, N-페닐-4'-(4,4,5,5-테트라메틸-1,3,2-디옥사보롤란-2-일)-[1,1'-비페닐]-4-아민 24.4 g, 톨루엔 150 mL, 에탄올 90 mL, 탄산칼륨 13.6 g 을 물 60 mL 에 용해한 용액을 더해, 30 분간 초음파를 조사하면서 질소 가스를 통기하였다. 테트라키스(트리페닐포스핀)팔라듐 3.8 g 을 더해 가열하고, 72 °C 에서 24 시간 교반하였다. 실온까지 냉각하고, 반응액을 분액하고, 유기층을 물, 포화 식염수로 순차 세정하였다. 무수 황산마그네슘으로 건조시키고, 건조제를 여과에 의해 제거하고, 여과액을 농축하였다. 잔류물을 클로로벤젠, 아세톤으로 정석하고, N,3',5'-트리페닐-[1,1' : 2',1'' : 4'',1''']쿼터페닐-4'''-아민의 백색 분체 24.5 g (수율 67.8 %) 을 얻었다.
- [0118] 질소 치환한 반응 용기에, N,3',5'-트리페닐-[1,1' : 2',1'' : 4'',1''']쿼터페닐-4'''-아민 8.6 g, 1-(4-브로모페닐)나프탈렌 5.3 g, 톨루엔 86 mL, t-부톡시나트륨 2.3 g 을 더해, 30 분간 초음파를 조사하면서 질소 가스를 통기하였다. 트리스디벤질리덴아세톤디팔라듐 0.35 g, t-부틸포스핀의 50 % (w/v) 톨루엔 용액 0.31 g 을 더해 가열하고, 100 °C 에서 24 시간 교반하였다. 반응액을 80 °C 까지 냉각하고, 열여과하여 얻은 여과액을 농축하였다. 잔류물을 톨루엔, 아세톤으로 정석하고, N-(4-나프탈렌-1-일-페닐)-N,3',5'-트리페닐-[1,1' : 2',1'' : 4'',1''']쿼터페닐-4'''-아민 (화합물 1-80) 의 백색 분체 8.8 g (수율 75 %) 을 얻었다.

[0119] [화학식 5]



(1 - 8 0)

[0120]

얻어진 백색 분체에 대해 NMR 을 사용하여 구조를 동정하였다.

[0121]

¹H-NMR (CDCl₃) 로 이하의 41 개의 수소의 시그널을 검출하였다.

[0122]

δ (p p m) = 8 . 0 4 - 8 . 0 9 (1 H) 、 8 . 7 . 8 5 - 7 . 9 6 (2 H) 、 7 . 7 3 - 7 . 7 8 (4 H) 、 7 . 0 7 - 7 . 5 7 (3 2 H) 、 6 . 9 3 - 6 . 9 7 (2 H) 。

[0123]

[0124]

실시예 2

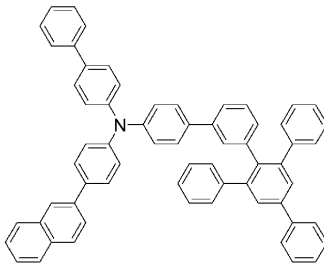
[0125]

<N-([1,1'-비페닐]-4-일)-N-(4-(나프탈렌-2-일)페닐)-3',5'-디페닐-[1,1' : 2',1'' : 3'',1'''쿼터페닐]-4'''-아민 (화합물 1-120) 의 합성 >

[0126]

실시예 1 의 N,3',5'-트리페닐-[1,1' : 2',1'' : 4'',1'''쿼터페닐]-4'''-아민을, N-([1,1'-비페닐]-4-일)-3',5'-디페닐-[1,1' : 2',1'' : 3'',1'''쿼터페닐]-4'''-아민으로 바꾸고, 1-(4-브로모페닐)나프탈렌을 2-(4-브로모페닐)나프탈렌으로 바꾸어, 동일한 조작을 실시하여, N-([1,1'-비페닐]-4-일)-N-(4-(나프탈렌-2-일)페닐)-3',5'-디페닐-[1,1' : 2',1'' : 3'',1'''쿼터페닐]-4'''-아민 (화합물 1-120) 의 백색 분체 9.1 g (수율 69 %) 을 얻었다.

[0127] [화학식 6]



(1 - 1 2 0)

[0128]

[0129]

얻어진 백색 분체에 대해 NMR 을 사용하여 구조를 동정하였다.

[0130]

¹H-NMR (CDCl₃) 로 이하의 45 개의 수소의 시그널을 검출하였다.

[0131]

δ (p p m) = 8 . 0 8 (1 H) 、 7 . 8 8 - 7 . 9 6 (3 H) 、 7 . 7 5 - 7 . 8 2 (5 H) 、 7 . 6 2 - 7 . 7 0 (4 H) 、 7 . 0 6 - 7 . 3 0 (3 1 H) 、 6 . 8 5 - 6 . 8 8 (1 H) 。

[0132]

실시예 3

[0133]

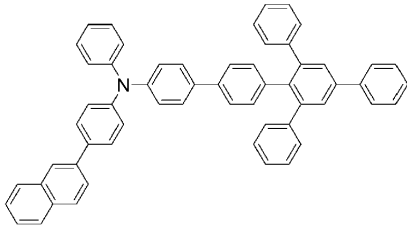
<N-(4-나프탈렌-2-일-페닐)-N,3',5'-트리페닐-[1,1' : 2',1'' : 4'',1'''쿼터페닐]-4'''-아민 (화합물 1-81) 의 합성 >

[0134]

실시예 1 의 1-(4-브로모페닐)나프탈렌을 2-(4-브로모페닐)나프탈렌으로 바꾸고, 동일한 조작을 실시하여, N-(4-나프탈렌-2-일-페닐)-N,3',5'-트리페닐-[1,1' : 2',1'' : 4'',1'''쿼터페닐]-4'''-아민 (화합물 1-81) 의

백색 분체 9.9 g (수율 76 %) 을 얻었다.

[0135] [화학식 7]



(1 - 8 1)

[0136]

얻어진 백색 분체에 대해 NMR 을 사용하여 구조를 동정하였다.

[0137]

¹H-NMR (CDCl₃) 로 이하의 41 개의 수소의 시그널을 검출하였다.

[0138]

δ (p p m) = 8 . 0 6 (1 H) 、 7 . 8 8 - 7 . 9 6 (3 H) 、 7 . 7 4 - 7 . 7 9 (5 H) 、 7 . 6 3 - 7 . 6 8 (2 H) 、 7 . 0 7 - 7 . 5 6 (2 8 H) 、 6 . 9 5 - 6 . 9 7 (2 H) 。

[0139]

실시예 4

[0140]

<N-([1,1'-비페닐]-4-일)-N,3',5'-트리페닐-[1,1' : 2',1'' : 4'',1''']쿼터페닐]-4'''-아민 (화합물 1-79) 의 합성 >

[0141]

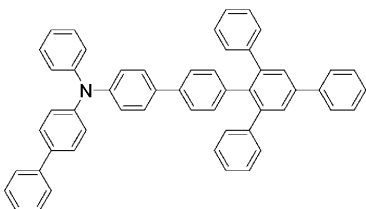
질소 치환한 반응 용기에 N-[1,1'-비페닐]-4-일-4'-브로모-N-페닐-[1,1'-비페닐]-4-아민 26.0 g, 톨루엔 340 mL, 비스피나콜라토디보론 15.2 g, 아세트산칼륨 8.0 g 을 더해, 30 분간 초음파를 조사하면서 질소 가스를 통기하였다. 디페닐포스포노페로센팔라듐디클로라이드 0.4 g 을 더해 가열하고, 100 °C 에서 19 시간 교반하였다. 실온까지 냉각한 후, 여과하여 얻은 여과액을 농축하였다. 잔류물을 칼럼 크로마토그래피로 정제하고, N-[1,1'-비페닐]-4-일-4'-(4,4,5,5-테트라메틸-1,3,2-디옥사보롤란-2-일)-N-페닐-[1,1'-비페닐]-4-아민의 담황색 분체 18.4 g (수율 64.3 %) 을 얻었다.

[0142]

질소 치환한 반응 용기에, 1-브로모-2,4,6-트리페닐벤젠 7.5 g, N-[1,1'-비페닐]-4-일-4'-(4,4,5,5-테트라메틸-1,3,2-디옥사보롤란-2-일)-N-페닐-[1,1'-비페닐]-4-아민 12.2 g, 톨루엔 50 mL, 에탄올 30 mL, 탄산칼륨 4.0 g 을 물 20 mL 에 용해한 용액을 더해, 30 분간 초음파를 조사하면서 질소 가스를 통기하였다. 테트라키스(트리페닐포스핀)팔라듐 0.50 g 을 더해 가열하고, 72 °C 에서 16 시간 교반하였다. 실온까지 냉각하고, 반응액을 분액하고, 유기층을 물, 포화 식염수로 순차 세정하였다. 무수 황산마그네슘으로 건조시키고, 건조제를 여과에 의해 제거하고, 여과액을 농축하였다. 잔류물을 톨루엔, 아세톤으로 정석하고, N-([1,1'-비페닐]-4-일)-N,3',5'-트리페닐-[1,1' : 2',1'' : 4'',1''']쿼터페닐]-4'''-아민 (화합물 1-79) 의 백색 분체 8.3 g (수율 61 %) 을 얻었다.

[0143]

[0144] [화학식 8]



(1 - 7 9)

[0145]

얻어진 백색 분체에 대해 NMR 을 사용하여 구조를 동정하였다.

[0146]

[0147] ¹H-NMR (CDCl₃) 로 이하의 39 개의 수소의 시그널을 검출하였다.

δ (ppm) = 7.77-7.80 (4H), 7.62-7.65 (2H)
 , 7.07-7.55 (31H), 6.96-6.99 (2H) .

[0148]

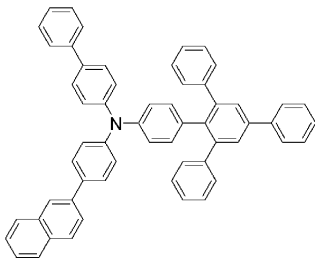
[0149] 실시예 5

[0150] <N-([1,1'-비페닐]-4-일)-N-(4-(나프탈렌-2-일)페닐)-4',6'-디페닐-[1,1' : 2',1''터페닐]-4-아민 (화합물 1-18) 의 합성>

[0151] 질소 치환한 반응 용기에 N-(4-브로모페닐)-N-(4-(나프탈렌-2-일)페닐)-[1,1'-비페닐]-4-아민 117.0 g, 테트라하이드로푸란 1.0 L 를 더해, 드라이아이스-메탄올욕에서 냉각하였다. 1.6 M 의 n-부틸리튬의 헥산 용액 170 mL 를 더해, 30 분 교반하였다. 트리메틸보레이트 34.6 g 을 더해, 서서히 온도를 올리면서 하룻밤 교반하였다. 2 규정 염산을 더해, 산성으로 하고, 테트라하이드로푸란을 감압 증류 제거하였다. 잔류물을 아세트산에틸, 물로 추출하였다. 유기층을 물, 포화 식염수로 순차 세정하고, 유기층을 무수 황산마그네슘으로 건조시켰다. 여과에 의해 건조제를 제거하고, 여과액을 농축하였다. 잔류물을 톨루엔, 헵탄으로 정석하고, (4- {[1,1'-비페닐]-4-일} (4-(나프탈렌-2-일)페닐)아미노페닐)보론산의 황백색 분체 107 g (수율 98.2 %) 을 얻었다.

[0152] 질소 치환한 반응 용기에, 1-브로모-2,4,6-트리페닐벤젠 40.0 g, (4- {[1,1'-비페닐]-4-일} (4-(나프탈렌-2-일)페닐)아미노페닐)보론산 61.2 g, 1,4-디옥산 720 mL, 인산칼륨 66.2 g 을 물 80 mL 에 용해한 용액을 더해, 30 분간 초음파를 조사하면서 질소 가스를 통기하였다. 트리스디벤질리덴아세톤디팔라듐 2.9 g, 트리시클로헥실포스핀 7.3 g 을 더해 가열하고, 100 °C 에서 16 시간 교반하였다. 실온까지 냉각하고, 석출한 고체를 여과에 의해 채취하였다. 고체를 클로로벤젠으로 정석하고, N-([1,1'-비페닐]-4-일)-N-(4-(나프탈렌-2-일)페닐)-4',6'-디페닐-[1,1' : 2',1''터페닐]-4-아민 (화합물 1-18) 의 백색 분체 53.0 g (수율 67.9 %) 을 얻었다.

[0153] [화학식 9]



(1-18)

[0154]

[0155] 얻어진 백색 분체에 대해 NMR 을 사용하여 구조를 동정하였다.

[0156] ¹H-NMR (CDCl₃) 로 이하의 41 개의 수소의 시그널을 검출하였다.

δ (ppm) = 8.08 (1H), 7.89-7.98 (3H), 7.77-7.82 (5H), 7.64-7.67 (4H), 7.28-7.58 (20H), 7.13-7.18 (4H), 6.86-6.95 (4H) .

[0157]

[0158] 실시예 6

[0159] <(비페닐-4-일)-(3',5'-디페닐-1,1' : 2',1''-터페닐-3''-일)-(4-나프탈렌-2-일-페닐)-아민 (화합물 1-138) 의 합성>

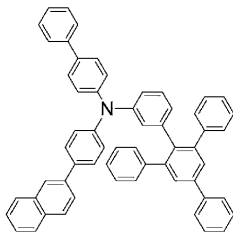
[0160] 질소 치환한 반응 용기에 (비페닐-4-일)-(2-나프탈레닐페닐)-4-아민 20.0 g, 1-브로모-3-요오드벤젠 17.5 g, 톨루엔 200 mL, t-부톡시나트륨 7.8 g, 요오드화구리 1.0 g, 디메틸에틸렌디아민 0.9 g 을 더해, 100 °C 에서 12 시간 교반하였다. 80 °C 로 냉각하고, 열여과하고, 여과액을 농축하였다. 잔류물을 칼럼 크로마토그래피로 정제하고, N-(3-브로모페닐)-N-(4-(나프탈렌-2-일)페닐)-비페닐-4-아민의 황색 오일 28.0 g (수율 98.7

%) 을 얻었다.

[0161] N-(3-브로모페닐)-N-(4-(나프탈렌-2-일)페닐)-비페닐-4-아민 28.0 g, 디옥산 280 mL, 비스피나콜라토디보론 17.6 g, 아세트산칼륨 15.7 g 을 더해, 30 분간 초음파를 조사하면서 질소 가스를 통기하였다. 디페닐포스피노페로센팔라듐디클로라이드 1.3 g 을 더해 가열하고, 100 °C 에서 16 시간 교반하였다. 80 °C 까지 냉각하고, 열여과하고, 여과액을 농축하였다. 잔류물에, 톨루엔 300 mL 를 더해 교반, 가열하고, 80 °C 에서 실리카 겔 28 g, 활성 백토 28 g 을 더해 1 시간 교반하였다. 열여과하고, 여과액을 농축하고, N-(4-(나프탈렌-2-일)페닐)-N-(3-(4,4,5,5-테트라메틸-1,3,2-디옥사보롤란-2-일)페닐)-비페닐-4-아민의 황색 오일 30.5 g (수율 100 %) 을 얻었다.

[0162] 반응 용기에, 2,4,6-트리페닐-브로모벤젠 11.0 g, N-(4-(나프탈렌-2-일)페닐)-N-(3-(4,4,5,5-테트라메틸-1,3,2-디옥사보롤란-2-일)페닐)-비페닐-4-아민 24.6 g, 디페닐포스피노페로센팔라듐디클로라이드 0.5 g, 탄산수소나트륨 5.6 g 을 주입하고, 테트라하이드로푸란, 물 혼합 용매하에서 하룻밤 환류 교반하였다. 방랭한 후, 계 내에 아세트산에틸, 물을 더해, 추출 및 분액 조작으로 유기층을 꺼내고, 농축하였다. 잔류물을 칼럼 크로마토그래피에 의해 정제를 실시함으로써, (비페닐-4-일)-(3',5'-디페닐-1,1' : 2',1''-터페닐-3''-일)-(4-나프탈렌-2-일-페닐)-아민 (화합물 1-138) 의 백색 분체 15.5 g (수율 : 72.0 %) 을 얻었다.

[0163] [화학식 10]



(1 - 1 3 8)

[0164] 얻어진 백색 분체에 대해 NMR 을 사용하여 구조를 동정하였다.

[0165] ¹H-NMR (CDCl₃) 로 이하의 41 개의 수소 시그널을 검출하였다.

δ (p p m) = 8. 0 0 (1 H) 、 7. 8 3 - 7. 8 9 (3 H) 、 7. 6 4 - 7. 7 3 (5 H) 、 7. 2 0 - 7. 5 8 (2 4 H) 、 6. 9 5 - 6. 9 7 (1 H) 、 6. 8 1 - 6. 9 0 (6 H) 、 6. 6 4 - 6. 6 6 (1 H) 。

[0167]

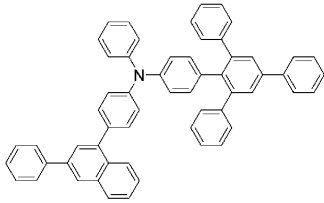
[0168] 실시예 7

[0169] <N,4',6'-트리페닐-N-(4-(3-페닐나프탈렌-1-일)페닐)-[1,1' : 2',1''-터페닐]-4-아민 (화합물 1-151) 의 합성 >

[0170] 질소 치환한 반응 용기에, 2,4,6-트리페닐-브로모벤젠 40.0 g, N-페닐-4-(4,4,5,5-테트라메틸-1,3,2-디옥사보롤란-2-일)아닐린 33.7 g, [1,1'-비스(디페닐포스피노)페로센]팔라듐 (II) 디클로라이드 1.7 g, 탄산수소나트륨 13.1 g 을 주입하고, 테트라하이드로푸란, 물 혼합 용매하에서 하룻밤 환류 교반하였다. 방랭한 후, 계 내에 아세트산에틸, 물을 더해, 추출 및 분액 조작으로 유기층을 꺼내고, 농축하여 미정제 생성물을 얻었다. 잔류물에 톨루엔 500 mL 를 더해, 교반, 가열하고, 80 °C 에서 활성 백토, 실리카 겔을 더해 1 시간 교반하였다. 열여과로 고체를 제거하고, 여과액을 농축하였다. 잔류물을 톨루엔-헵탄으로 재결정하고, N,4',6'-트리페닐-[1,1' : 2',1''-터페닐]-4-아민의 적백색 분체 44.3 g (수율 90.2 %) 을 얻었다.

[0171] 질소 치환한 반응 용기에, N,4',6'-트리페닐-[1,1' : 2',1''-터페닐]-4-아민 7.5 g, 1-(4-브로모페닐)-3-페닐 나프탈렌 7.4 g, 톨루엔 75 mL, t-부톡시나트륨 2.3 g 을 더해, 30 분간 초음파를 조사하면서 질소 가스를 통기 하였다. 아세트산팔라듐 0.1 g, t-부틸포스핀의 50 % (w/v) 톨루엔 용액 0.3 g 을 더해 가열하고, 100 °C 에서 4 시간 교반하였다. 반응액을 80 °C 까지 냉각하고, 열여과하여 얻은 여과액을 농축하였다. 잔류 물을 칼럼 크로마토그래피로 정제하고, N,4',6'-트리페닐-N-(4-(3-페닐나프탈렌-1-일)페닐)-[1,1' : 2',1''-터페닐]-4-아민 (화합물 1-151) 의 백색 분체 3.9 g (수율 33 %) 을 얻었다.

[0172] [화학식 11]



(1 - 1 5 1)

[0173]

[0174]

얻어진 백색 분체에 대해 NMR 을 사용하여 구조를 동정하였다.

[0175]

¹H-NMR (CDCl₃) 로 이하의 41 개의 수소 시그널을 검출하였다.

δ (p p m) = 7 . 9 3 - 8 . 0 3 (3 H) 、 7 . 7 0 - 7 . 7 6 (7 H)
 、 7 . 3 4 - 7 . 5 2 (1 0 H) 、 7 . 1 9 - 7 . 2 4 (1 2 H) 、 6 . 9
 9 - 7 . 0 7 (5 H) 、 6 . 7 8 - 6 . 8 6 (4 H) 。

[0176]

[0177]

실시예 8

[0178]

<N-([1,1' : 2',1''-터페닐]-4'-일)-N-(4-(나프탈렌-2-일)페닐)-4',6'-디페닐-[1,1' : 2',1''-터페닐]-4-아민 (화합물 1-156) 의 합성 >

[0179]

질소 치환한 반응 용기에, N-(4-(나프탈렌-2-일)페닐)-[1,1' : 2',1''-터페닐]-4'-아민 28.3 g, 1-브로모-4-요오드벤젠 19.7 g, 톨루엔 400 mL, t-부톡시나트륨 8.6 g 을 더해, 30 분간 초음파를 조사하면서 질소 가스를 통기하였다. 아세트산팔라듐 0.28 g, 4,5-비스(디페닐포스포노)-9,9-디메틸크산텐 0.37 g 을 더해 가열하고, 100 °C 에서 하룻밤 교반하였다. 80 °C 까지 냉각하고, 열여과하였다. 여과액을 농축하고, 잔류물을 칼럼 크로마토그래피로 정제하고, N-(4-브로모페닐)-N-(4-(나프탈렌-2-일)페닐)-[1,1' : 2',1''-터페닐]-4'-아민의 황백색 분체 17.0 g (수율 44.6 %) 을 얻었다.

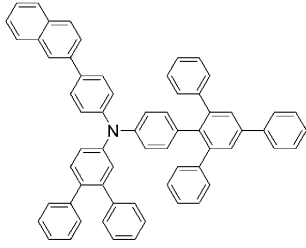
[0180]

질소 치환한 반응 용기에, N-(4-브로모페닐)-N-(4-(나프탈렌-2-일)페닐)-[1,1' : 2',1''-터페닐]-4'-아민 17.0 g, 톨루엔 170 mL, 비스피나콜라토디보론 8.6 g, 아세트산칼륨 5.5 g 을 더해, 30 분간 초음파를 조사하면서 질소 가스를 통기하였다. 디페닐포스포노페로센팔라듐디클로라이드 0.5 g 을 더해 가열하고, 100 °C 에서 하룻밤 교반하였다. 80 °C 까지 냉각하고, 열여과하고, 여과액을 농축하였다. 잔류물을 칼럼 크로마토그래피로 정제하고, N-(4-(나프탈렌-2-일)페닐)-N-(4-(4,4,5,5-테트라메틸-1,3,2-디옥사보롤란-2-일)페닐)-[1,1' : 2',1''-터페닐]-4'-아민의 갈색 오일 18.0 g (수율 98.2 %) 을 얻었다.

[0181]

질소 치환한 반응 용기에, 2,4,6-트리페닐-브로모벤젠 10.0 g, N-(4-(나프탈렌-2-일)페닐)-N-(4-(4,4,5,5-테트라메틸-1,3,2-디옥사보롤란-2-일)페닐)-[1,1' : 2',1''-터페닐]-4'-아민 18.0 g, 디페닐포스포노페로센팔라듐디클로라이드 0.4 g, 탄산수소나트륨 3.3 g 을 주입하고, 테트라하이드로푸란, 물 혼합 용매하에서 하룻밤 환류 교반하였다. 방랭한 후, 반응액에 아세트산에틸, 물을 더해, 추출 및 분액 조작으로 유기층을 꺼내고, 농축하였다. 잔류물을 톨루엔에 용해하고, 교반, 가열하고, 80 °C 에서 실리카 겔, 활성탄을 더해, 1 시간 교반하고, 열여과에 의해 고체를 제거하였다. 여과액을 농축하고, 디클로로메탄, 아세톤으로 재결정하고, N-([1,1' : 2',1''-터페닐]-4'-일)-N-(4-(나프탈렌-2-일)페닐)-4',6'-디페닐-[1,1' : 2',1''-터페닐]-4-아민 (화합물 1-156) 의 백색 분체 15.8 g (수율 : 73.5 %) 을 얻었다.

[0182] [화학식 12]



(1 - 1 5 6)

[0183]

[0184] 얻어진 백색 분체에 대해 NMR 을 사용하여 구조를 동정하였다.

[0185] ¹H-NMR (CDCl₃) 로 이하의 45 개의 수소 시그널을 검출하였다.

δ (p p m) = 8 . 0 0 (1 H) , 7 . 8 3 - 7 . 9 0 (3 H) , 7 . 7 0 - 7 . 7 4 (5 H) , 7 . 5 7 - 7 . 5 9 (2 H) , 7 . 0 6 - 7 . 5 0 (3 0 H) , 6 . 7 8 - 6 . 9 2 (4 H) .

[0186]

[0187] 실시예 9

[0188] <N-(4-(나프탈렌-2-일)-[1,1' : 2',1''-터페닐]-4'-일)-N,4',6'-트리페닐-[1,1' : 2',1''-터페닐]-4-아민 (화합물 1-159) 의 합성 >

[0189] 질소 치환한 반응 용기에 3-아미노비페닐 13.3 g, 디메틸포름아미드 130 mL 를 더해, 5 °C 로 냉각하였다. N-브로모숙신이미드 14.0 g 을 디메틸포름아미드 50 mL 에 용해한 용액을 30 분 들여 적하하였다. 5 °C 에서 3시간 교반한 후, 반응액에 디클로로메탄, 물을 더해, 분액하였다. 유기층을 물, 포화 식염수로 순차 세정하고, 유기층을 무수 황산마그네슘으로 건조시켰다. 건조제를 여과에 의해 제거하고, 여과액을 농축하고, 2-브로모-[1,1'-비페닐]-5-아민의 갈색 오일 19.5 g (수율 100 %) 을 얻었다.

[0190] 질소 치환한 반응 용기에, 2-브로모-[1,1'-비페닐]-5-아민 10.0 g, 4-(2-나프탈레닐)페닐보론산 12.0 g, 테트라하이드로푸란 120 mL, 탄산수소나트륨 5.1 g 을 물 30 mL 에 용해한 용액을 더해, 30 분간 초음파를 조사하면서 질소 가스를 통기하였다. 디페닐포스피노페로센팔라듐디클로라이드 0.7 g 을 더해 가열하고, 환류하 16 시간 교반하였다. 실온까지 냉각하고, 반응액에 아세트산에틸, 물을 더해 분액하고, 유기층을 물, 포화 식염수로 순차 세정하였다. 무수 황산마그네슘으로 건조시키고, 건조제를 여과에 의해 제거하고, 여과액을 농축하였다. 잔류물을 칼럼 크로마토그래피로 정제하고, 4-(나프탈렌-2-일)-[1,1' : 2',1''-터페닐]-4'-아민의 백색 분체 10.2 g (수율 68.1 %) 을 얻었다.

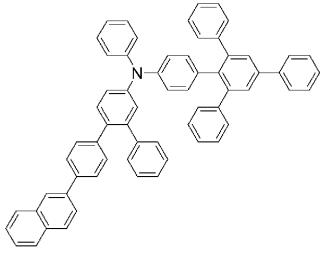
[0191] 질소 치환한 반응 용기에, 4-(나프탈렌-2-일)-[1,1' : 2',1''-터페닐]-4'-아민 10.1 g, 브로모벤젠 3.9 g, 톨루엔 100 mL, t-부톡시나트륨 3.2 g 을 더해, 30 분간 초음파를 조사하면서 질소 가스를 통기하였다. 트리스디벤질리덴아세톤디팔라듐 0.5 g, 2,2'-비스(디페닐포스피노)-1,1'-비나프틸 0.6 g 을 더해 가열하고, 100 °C 에서 4 시간 교반하였다. 반응액을 80 °C 까지 냉각하고, 열여과하여 얻은 여과액을 농축하였다. 잔류물을 디클로로메탄, 헵탄으로 정석하고, 4-(나프탈렌-2-일)-N-페닐-[1,1' : 2',1''-터페닐]-4'-아민의 백색 분체 10.4 g (수율 93.5 %) 을 얻었다.

[0192] 질소 치환한 반응 용기에, 2,4,6-트리페닐-브로모벤젠 50.0 g, 4-클로로페닐보론산 24.4 g, 디페닐포스피노페로센팔라듐디클로라이드 2.1 g, 탄산수소나트륨 16.4 g 을 주입하고, 테트라하이드로푸란, 물 혼합 용매하에서 하룻밤 환류 교반하였다. 방랭한 후, 반응액에 아세트산에틸, 물을 더해, 추출 및 분액 조작으로 유기층을 꺼내고, 농축하였다. 잔류물을 디클로로메탄, 아세톤으로 정석하고, 4''-클로로-3',5'-디페닐-1,1' : 2',1''-터페닐의 백색 분체 46.0 g (수율 : 85.0 %) 을 얻었다.

[0193] 질소 치환한 반응 용기에, 4-(나프탈렌-2-일)-N-페닐-[1,1' : 2',1''-터페닐]-4'-아민 10.4 g, 4''-클로로-3',5'-디페닐-1,1' : 2',1''-터페닐 8.8 g, 톨루엔 100 mL, t-부톡시나트륨 4.1 g 을 더해, 30 분간 초음파를 조사하면서 질소 가스를 통기하였다. 비스(트리t-부틸포스핀)팔라듐 0.22 g 을 더해 가열하고, 100 °C 에서 4 시간 교반하였다. 반응액을 80 °C 까지 냉각하고, 열여과하여 얻은 여과액을 농축하였다. 잔류물을

디클로로메탄, 아세톤으로 정석하고, N-(4-(나프탈렌-2-일)-[1,1' : 2',1''-터페닐]-4'-일)-N,4',6'-트리페닐-[1,1' : 2',1''-터페닐]-4-아민 (화합물 1-159) 의 백색 분체 10.5 g (수율 60.1 %) 을 얻었다.

[0194] [화학식 13]



(1 - 1 5 9)

[0195]

[0196] 얻어진 백색 분체에 대해 NMR 을 사용하여 구조를 동정하였다.

[0197] ¹H-NMR (CDCl₃) 로 이하의 45 개의 수소 시그널을 검출하였다.

δ (p p m) = 8 . 2 0 (1 H) , 7 . 8 2 - 7 . 8 7 (3 H) , 7 . 6 9 - 7 . 7 6 (5 H) , 7 . 5 6 - 7 . 5 9 (2 H) , 7 . 4 3 - 7 . 5 0 (4 H) , 6 . 9 5 - 7 . 3 8 (2 6 H) , 6 . 7 6 - 6 . 8 7 (4 H) .

[0198]

[0199] 실시예 10

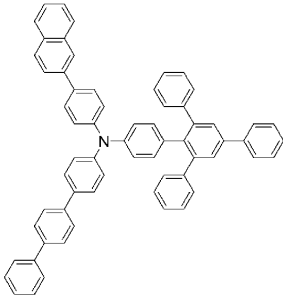
[0200] <N-([1,1' : 4',1''-터페닐]-4-일)-N-(4-(나프탈렌-2-일)페닐)-4',6'-디페닐-[1,1' : 2',1''-터페닐]-4-아민 (화합물 1-162) 의 합성 >

[0201] 질소 치환한 반응 용기에, 4-브로모-N-(4-(나프탈렌-2-일)페닐)아닐린 10.0 g, 톨루엔 100 mL, 비스피나콜라토 디보론 8.1 g, 아세트산칼륨 5.2 g 을 더해, 30 분간 초음파를 조사하면서 질소 가스를 통기하였다. 디페닐 포스피노페로센팔라듐디클로라이드 0.4 g 을 더해 가열하고, 100 °C 에서 하룻밤 교반하였다. 80 °C 까지 냉각하고, 열여과하고, 여과액을 농축하였다. 잔류물을 칼럼 크로마토그래피로 정제하고, 4-(나프탈렌-2-일)-N-(4-(4,4,5,5-테트라메틸-1,3,2-디옥사보롤란-2-일)페닐)아닐린의 갈색 분체 5.8 g (수율 51 %) 을 얻었다.

[0202] 질소 치환한 반응 용기에, 2,4,6-트리페닐-브로모벤젠 4.8 g, 4-(나프탈렌-2-일)-N-(4-(4,4,5,5-테트라메틸-1,3,2-디옥사보롤란-2-일)페닐)아닐린 5.8 g, 디페닐포스피노페로센팔라듐디클로라이드 0.2 g, 탄산수소나트륨 1.6 g 을 주입하고, 테트라하이드로푸란, 물 혼합 용매하에서 하룻밤 환류 교반하였다. 방랭한 후, 반응액에 아세트산에틸, 물을 더해, 추출 및 분액 조작으로 유기층을 꺼내고, 농축하였다. 잔류물을 디클로로메탄, 헵탄으로 정석하고, N-(4-(나프탈렌-2-일)페닐)-4',6'-디페닐-[1,1' : 2',1''-터페닐]-4-아민의 백색 분체 5.5 g (수율 : 73 %) 을 얻었다.

[0203] 질소 치환한 반응 용기에, N-(4-(나프탈렌-2-일)페닐)-4',6'-디페닐-[1,1' : 2',1''-터페닐]-4-아민 5.5 g, 4-브로모터페닐 2.6 g, 톨루엔 60 mL, t-부톡시나트륨 1.0 g 을 더해, 30 분간 초음파를 조사하면서 질소 가스를 통기하였다. 아세트산팔라듐 0.1 g, 트리t-부틸포스핀의 50 % (w/v) 톨루엔 용액 0.1 g 을 더해 가열하고, 100 °C 에서 4 시간 교반하였다. 반응액을 80 °C 까지 냉각하고, 열여과하고, 여과액을 80 °C 로 가열하고, 실리카 겔, 활성 백토를 더해, 1 시간 교반하였다. 열여과에 의해 고체를 제거하고, 여과액을 농축하였다. 잔류물을 디클로로메탄, 아세톤으로 정석하고, N-([1,1' : 4',1''-터페닐]-4-일)-N-(4-(나프탈렌-2-일)페닐)-4',6'-디페닐-[1,1' : 2',1''-터페닐]-4-아민 (화합물 1-162) 의 백색 분체 6.1 g (수율 87 %) 을 얻었다.

[0204] [화학식 14]



(1 - 1 6 2)

[0205]

[0206] 얻어진 백색 분체에 대해 NMR 을 사용하여 구조를 동정하였다.

[0207] $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) 로 이하의 45 개의 수소 시그널을 검출하였다.

δ (p p m) = 8 . 0 0 (1 H) , 7 . 8 2 - 7 . 9 0 (3 H) , 7 . 5 7 - 7 . 7 4 (1 3 H) , 7 . 2 1 - 7 . 5 2 (2 0 H) , 7 . 0 7 - 7 . 1 1 (4 H) , 6 . 7 9 - 6 . 8 7 (4 H) .

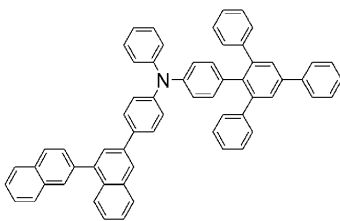
[0208]

[0209] 실시예 11

[0210] <N,4',6'-트리페닐-N-(4-([1,2']비나프탈레닐-3-일)페닐)-[1,1' : 2',1''-터페닐]-4-아민 (화합물 1-167) 의 합성 >

[0211] 질소 치환한 반응 용기에, N,4',6'-트리페닐-[1,1' : 2',1''-터페닐]-4-아민 6.0 g, 3-(4-클로로페닐)-[1,2']비나프탈레닐 8.6 g, 톨루엔 60 mL, t-부톡시나트륨 3.2 g 을 더해, 30 분간 초음파를 조사하면서 질소 가스를 통기하였다. 비스(트리-t-부틸포스핀)팔라듐 (0) 0.2 g 을 더해 가열하고, 100 °C 에서 하룻밤 교반 하였다. 반응액을 실온까지 냉각하고 메탄올을 더해 석출한 미정제 생성물을 여과하여 얻었다. 얻어진 미정제 생성물을 톨루엔/아세톤 혼합 용매로 정석 정제를 실시한 결과, N,4',6'-트리페닐-N-(4-([1,2']비나프탈레닐-3-일)페닐)-[1,1' : 2',1''-터페닐]-4-아민 (화합물 1-167) 의 백색 분체 10.5 g (수율 80 %) 을 얻었다.

[0212] [화학식 15]



(1 - 1 6 7)

[0213]

[0214] 얻어진 백색 분체에 대해 NMR 을 사용하여 구조를 동정하였다.

[0215] $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) 로 이하의 43 개의 수소 시그널을 검출하였다.

δ (ppm) = 8.05 (1H), 8.01 (1H), 7.98 (1H), 7.97-7.88 (4H), 7.78 (1H), 7.70 (3H), 7.69 (2H), 7.61 (2H), 7.55 (2H), 7.51 (1H), 7.46 (2H), 7.41 (1H), 7.38 (1H), 7.25-7.18 (12H), 7.05 (2H), 7.01 (2H), 6.99 (1H), 6.78 (4H) .

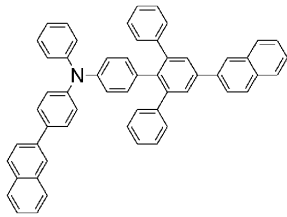
[0216]

[0217] 실시예 12

[0218] <N,2',6'-트리페닐-4'-나프탈렌-2-일-N-(4-나프탈렌-2-일-페닐)-비페닐-4-아민 (화합물 1-171) 의 합성>

[0219] 질소 치환한 반응 용기에, N,2',6'-트리페닐-4'-나프탈렌-2-일-비페닐-4-아민 9.5 g, 4-브로모-(나프탈렌-2-일)-벤젠 5.7 g, 톨루엔 85 mL, t-부톡시나트륨 2.3 g 을 더해, 30 분간 초음파를 조사하면서 질소 가스를 통기 하였다. 아세트산팔라듐 0.1 g, 트리t-부틸포스핀의 50 % (w/v) 자일렌 용액 0.2 g 을 더해 가열하고, 100 °C 에서 하룻밤 교반하였다. 반응액을 80 °C 까지 냉각하고, 실리카 겔, 활성 백토를 더해 1 시간 교반하였다. 열여과에 의해 고체를 제거하고, 여과액을 농축하여 미정제 생성물을 얻었다. 얻어진 미정제 생성물을 디클로로메탄/메탄올 혼합 용매로 정석 정제를 실시한 결과, N,2',6'-트리페닐-4'-나프탈렌-2-일-N-(4-나프탈렌-2-일-페닐)-비페닐-4-아민 (화합물 1-171) 의 백색 분체 8.0 g (수율 61 %) 을 얻었다.

[0220] [화학식 16]



(1 - 1 7 1)

[0221]

[0222] 얻어진 백색 분체에 대해 NMR 을 사용하여 구조를 동정하였다.

[0223] $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) 로 이하의 39 개의 수소 시그널을 검출하였다.

δ (ppm) = 8.17 (1H), 7.99 (1H), 7.92 (1H), 7.90-7.83 (6H), 7.83 (2H), 7.72 (1H), 7.56 (2H), 7.53-7.42 (4H), 7.31-7.19 (12H), 7.07-6.96 (5H), 6.80 (4H) .

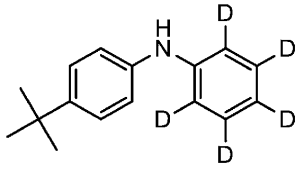
[0224]

[0225] 실시예 13

[0226] <화합물 (2-11) 의 합성>

[0227] 반응 용기에 1-브로모벤젠 (D-치환) : 45.0 g, 4-tert-부틸아닐린 : 58.0 g, 아세트산팔라듐 (II) : 1.0 g, t-부톡시나트륨 : 30.0 g, 비스(디페닐포스피노)-1,1'-비나프틸 : 2.0 g, 톨루엔 : 450 mL 를 더해 24 시간 환류 교반하였다. 방랭한 후, 농축하여 칼럼 크로마토그래프에 의해 정제를 실시함으로써, 하기 화합물 (2-11a) 의 분체 : 49.9 g (수율 78 %) 을 얻었다.

[0228] [화학식 17]

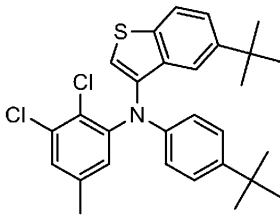


(2 - 1 1 a)

[0229]

[0230] 반응 용기에 상기 화합물 (2-11a) : 20.0 g, 하기 화합물 (2-11b) : 18.4 g, 아세트산팔라듐 (II) : 0.5 g, t-부톡시나트륨 : 18.9 g, 트리(t-부틸)포스핀 : 0.8 g, 톨루엔 : 200 mL 를 더해 24 시간 환류 교반하였다. 방랭한 후, 농축하여 칼럼 크로마토그래프에 의해 정제를 실시함으로써, 하기 화합물 (2-11c) 의 분체 : 21.5 g (수율 84 %) 을 얻었다.

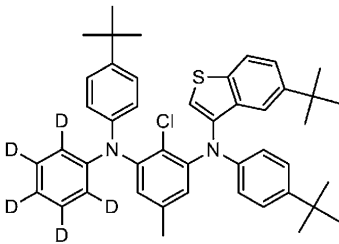
[0231] [화학식 18]



(2 - 1 1 b)

[0232]

[0233] [화학식 19]

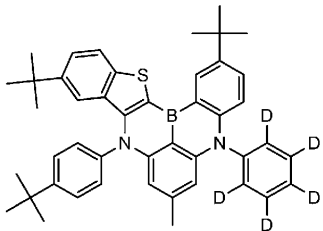


(2 - 1 1 c)

[0234]

[0235] 반응 용기에 상기 화합물 (2-11c) : 12.0 g, tert-부틸벤젠 120 ml 를 더해 -78 °C 에서 n-부틸리튬 42.5 ml 를 적하한 후, 60 °C 에서 3 시간 교반하면서 질소 가스를 통기하였다. 다음으로, -78 °C 에서 보론트리브로마이드 11.3 g 을 적하한 후, 상온에서 1 시간 교반하고, 0 °C 에서 N,N-디이소프로필에틸아민 5.9 g 을 적하한 후, 120 °C 에서 2 시간 교반하였다. 방랭한 후, 아세트산나트륨 수용액을 넣어 교반하고, 아세트산에틸로 추출하고, 유기층을 농축한 후, 칼럼 크로마토그래프에 의해 정제를 실시함으로써, 하기 화합물 (2-11) 의 분체 : 1.7 g (수율 11 %) 을 얻었다.

[0236] [화학식 20]



(2 - 1 1)

[0237]

[0238] 실시예 14

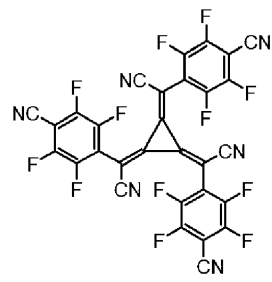
[0239] 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물에 대해, 고감도 시차 주사 열량계 (브루커·에이엑스에스 제조, DSC3100SA) 에 의해 유리 전이점을 측정하였다.

- [0240] 유리 전이점
- [0241] 실시예 1 의 화합물 128.8 °C
- [0242] 실시예 2 의 화합물 136.3 °C
- [0243] 실시예 3 의 화합물 127.3 °C
- [0244] 실시예 4 의 화합물 120.0 °C
- [0245] 실시예 5 의 화합물 115.0 °C
- [0246] 실시예 6 의 화합물 112.2 °C
- [0247] 실시예 7 의 화합물 117.7 °C
- [0248] 실시예 8 의 화합물 126.4 °C
- [0249] 실시예 9 의 화합물 124.1 °C
- [0250] 실시예 10 의 화합물 125.7 °C
- [0251] 실시예 11 의 화합물 128.9 °C
- [0252] 실시예 12 의 화합물 105.5 °C
- [0253] 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물은 100 °C 이상의 유리 전이점을 가지고 있어, 박막 상태가 안정적인 것을 나타내는 것이다.
- [0254] 실시예 15
- [0255] 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물을 사용하여, ITO 기판 상에 막두께 100 nm 의 증착막을 제작하고, 이 온화 포텐셜 측정 장치 (스미토모 중기계공업 주식회사 제조, PYS-202) 에 의해 일 함수를 측정하였다.
- [0256] 일 함수
- [0257] 실시예 1 의 화합물 5.78 eV
- [0258] 실시예 2 의 화합물 5.69 eV
- [0259] 실시예 3 의 화합물 5.74 eV
- [0260] 실시예 4 의 화합물 5.76 eV
- [0261] 실시예 5 의 화합물 5.70 eV
- [0262] 실시예 6 의 화합물 5.74 eV
- [0263] 실시예 7 의 화합물 5.80 eV
- [0264] 실시예 8 의 화합물 5.76 eV
- [0265] 실시예 9 의 화합물 5.78 eV
- [0266] 실시예 10 의 화합물 5.69 eV
- [0267] 실시예 11 의 화합물 5.73 eV
- [0268] 실시예 12 의 화합물 5.71 eV
- [0269] 일반식 (1) 로 나타내는 아릴아민 화합물은 NPD, TPD 등의 일반적인 정공 수송 재료가 갖는 일 함수 5.4 eV 와 비교하여, 바람직한 에너지 준위를 나타내고 있어, 양호한 정공 수송 능력을 가지고 있는 것을 알 수 있다.
- [0270] 실시예 16
- [0271] 본 실시예에 있어서의 유기 EL 소자는, 도 16 에 나타내는 바와 같이, 유리 기판 (1) 상에 투명 양극 (2) 으로서 반사 ITO 전극을 미리 형성한 것을 준비하고, 그 위에, 정공 주입층 (3), 제 1 정공 수송층 (4), 제 2 정공 수송층 (5), 발광층 (6), 전자 수송층 (7), 전자 주입층 (8), 음극 (9), 및 캐핑층 (10) 을 이 순서로 증착하여

제작하였다.

[0272] 구체적으로는, 막두께 50 nm 의 ITO, 막두께 100 nm 의 은 합금의 반사막, 막두께 5 nm 의 ITO 를 차례로 성막한 유리 기판 (1) 을 이소프로필알코올 속에서 초음파 세정을 20 분간 실시한 후, 250 ℃ 로 가열한 핫 플레이트 상에서 10 분간 건조를 실시하였다. 그 후, UV 오존 처리를 15 분간 실시한 후, 이 ITO 부착 유리 기판을 진공 증착기 내에 장착하고, 0.001 Pa 이하까지 감압하였다. 계속해서, 하기 구조식의 전자 억셉터 (Acceptor-1) 와 하기 구조식의 화합물 (HTM-1) 을, 증착 속도비가 Acceptor-1 : 화합물 (HTM-1) = 3 : 97 이 되는 증착 속도로 투명 양극 (2) 에 2 원 증착하고, 투명 양극 (2) 을 덮는 정공 주입층 (3) 을 막두께 10 nm 가 되도록 형성하였다. 이 정공 주입층 (3) 상에, 하기 구조식의 화합물 (HTM-1) 에 의해 제 1 정공 수송층 (4) 을 막두께 140 nm 가 되도록 형성하였다. 이 제 1 정공 수송층 (4) 상에, 실시예 1 의 화합물 (1-80) 에 의해 제 2 정공 수송층 (5) 을 막두께 5 nm 가 되도록 형성하였다. 이 제 2 정공 수송층 (5) 상에, 실시예 6 의 화합물 (2-11) 과 하기 구조식의 화합물 (EMH-1) 을, 증착 속도비가 화합물 (2-11) : (EMH-1) = 5 : 95 가 되는 증착 속도로 2 원 증착하여, 발광층 (6) 을 막두께 20 nm 가 되도록 형성하였다. 이 발광층 (6) 상에, 하기 구조식의 화합물 (ETM-1) 과 하기 구조식의 화합물 (ETM-2) 를, 증착 속도비가 화합물 (ETM-1) : (ETM-2) = 50 : 50 이 되는 증착 속도로 2 원 증착하여, 전자 수송층 (7) 을 막두께 30 nm 가 되도록 형성하였다. 이 전자 수송층 (7) 상에, 불화리튬에 의해 전자 주입층 (8) 을 막두께 1 nm 가 되도록 형성하였다. 이 전자 주입층 (8) 상에, 마그네슘은 합금에 의해 음극 (9) 을 막두께 12 nm 가 되도록 형성하였다. 마지막으로, 하기 구조식의 화합물 (CPL-1) 에 의해 캐핑층 (10) 을 막두께 60 nm 가 되도록 형성하였다. 제작한 유기 EL 소자에 대해, 대기중, 상온에서 물성 측정을 실시하였다. 제작한 유기 EL 소자에 직류 전압을 인가한 발광 특성의 측정 결과를 표 1 에 정리하여 나타내었다.

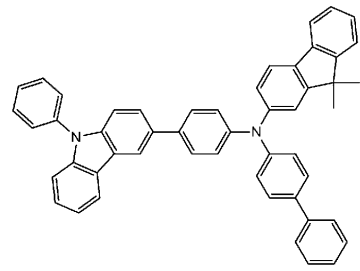
[0273] [화학식 21]



(Acceptor - 1)

[0274]

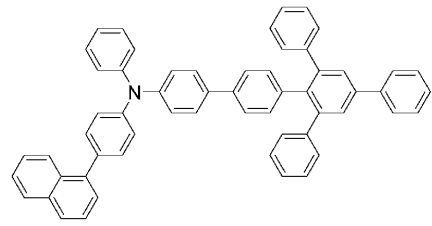
[0275] [화학식 22]



(HTM - 1)

[0276]

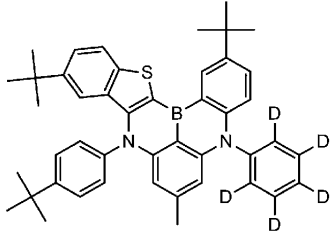
[0277] [화학식 23]



화합물 (1 - 80)

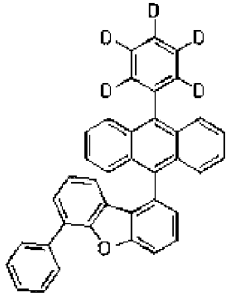
[0278]

[0279] [화학식 24]



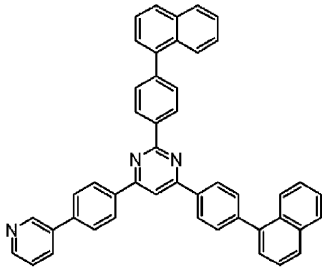
[0280] (2 - 1 1)

[0281] [화학식 25]



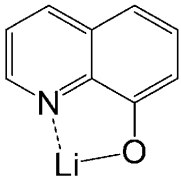
[0282] (E M H - 1)

[0283] [화학식 26]



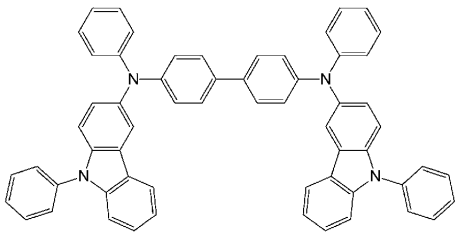
[0284] (E T M - 1)

[0285] [화학식 27]



[0286] (E T M - 2)

[0287] [화학식 28]

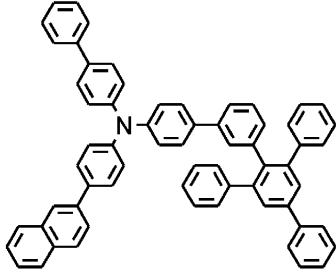


[0288] (C P L - 1)

[0289] 실시예 17

[0290] 실시예 16 에 있어서, 제 2 정공 수송층 (5) 의 재료로서 실시예 1 의 화합물 (1-80) 대신에 실시예 2 의 화합물 (1-120) 을 사용한 것 이외에는, 동일한 조건으로 유기 EL 소자를 제작하였다. 제작한 유기 EL 소자에 대해, 대기중, 상온에서 특성 측정을 행하였다. 제작한 유기 EL 소자에 직류 전압을 인가했을 때의 발광 특성의 측정 결과를 표 1 에 정리하여 나타내었다.

[0291] [화학식 29]



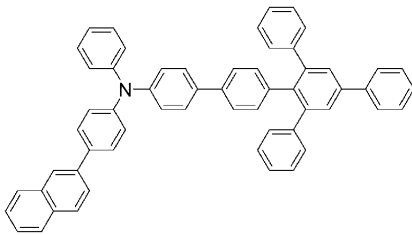
화합물 (1 - 1 2 0)

[0292]

[0293] 실시예 18

[0294] 실시예 16 에 있어서, 제 2 정공 수송층 (5) 의 재료로서 실시예 1 의 화합물 (1-80) 대신에 실시예 3 의 화합물 (1-81) 을 사용한 것 이외에는, 동일한 조건으로 유기 EL 소자를 제작하였다. 제작한 유기 EL 소자에 대해, 대기중, 상온에서 특성 측정을 행하였다. 제작한 유기 EL 소자에 직류 전압을 인가했을 때의 발광 특성의 측정 결과를 표 1 에 정리하여 나타내었다.

[0295] [화학식 30]



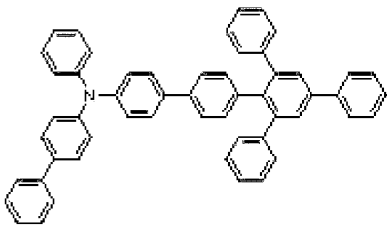
화합물 (1 - 8 1)

[0296]

[0297] 실시예 19

[0298] 실시예 16 에 있어서, 제 2 정공 수송층 (5) 의 재료로서 실시예 1 의 화합물 (1-80) 대신에 실시예 4 의 화합물 (1-79) 을 사용한 것 이외에는, 동일한 조건으로 유기 EL 소자를 제작하였다. 제작한 유기 EL 소자에 대해, 대기중, 상온에서 특성 측정을 행하였다. 제작한 유기 EL 소자에 직류 전압을 인가했을 때의 발광 특성의 측정 결과를 표 1 에 정리하여 나타내었다.

[0299] [화학식 31]



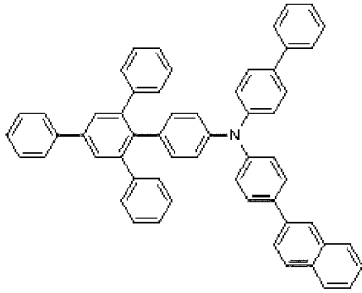
화합물 (1 - 7 9)

[0300]

[0301] 실시예 20

[0302] 실시예 16 에 있어서, 제 2 정공 수송층 (5) 의 재료로서 실시예 1 의 화합물 (1-80) 대신에 실시예 5 의 화합물 (1-18) 을 사용한 것 이외에는, 동일한 조건으로 유기 EL 소자를 제작하였다. 제작한 유기 EL 소자에 대해, 대기중, 상온에서 특성 측정을 행하였다. 제작한 유기 EL 소자에 직류 전압을 인가했을 때의 발광 특성의 측정 결과를 표 1 에 정리하여 나타내었다.

[0303] [화학식 32]



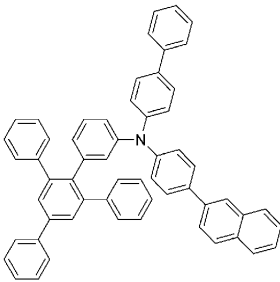
화합물 (1 - 1 8)

[0304]

[0305] 실시예 21

[0306] 실시예 16 에 있어서, 제 2 정공 수송층 (5) 의 재료로서 실시예 1 의 화합물 (1-80) 대신에 실시예 6 의 화합물 (1-138) 을 사용한 것 이외에는, 동일한 조건으로 유기 EL 소자를 제작하였다. 제작한 유기 EL 소자에 대해, 대기중, 상온에서 특성 측정을 행하였다. 제작한 유기 EL 소자에 직류 전압을 인가했을 때의 발광 특성의 측정 결과를 표 1 에 정리하여 나타내었다.

[0307] [화학식 33]



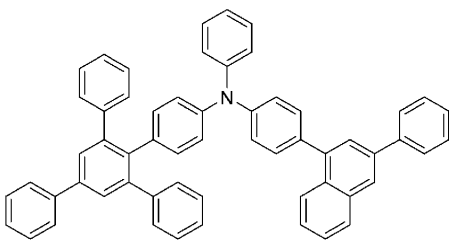
화합물 (1 - 1 3 8)

[0308]

[0309] 실시예 22

[0310] 실시예 16 에 있어서, 제 2 정공 수송층 (5) 의 재료로서 실시예 1 의 화합물 (1-80) 대신에 실시예 7 의 화합물 (1-151) 을 사용한 것 이외에는, 동일한 조건으로 유기 EL 소자를 제작하였다. 제작한 유기 EL 소자에 대해, 대기중, 상온에서 특성 측정을 행하였다. 제작한 유기 EL 소자에 직류 전압을 인가했을 때의 발광 특성의 측정 결과를 표 1 에 정리하여 나타내었다.

[0311] [화학식 34]



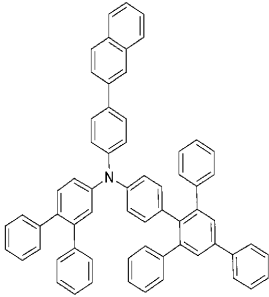
화합물 (1 - 1 5 1)

[0312]

[0313] 실시예 23

[0314] 실시예 16 에 있어서, 제 2 정공 수송층 (5) 의 재료로서 실시예 1 의 화합물 (1-80) 대신에 실시예 8 의 화합물 (1-156) 을 사용한 것 이외에는, 동일한 조건으로 유기 EL 소자를 제작하였다. 제작한 유기 EL 소자에 대해, 대기중, 상온에서 특성 측정을 행하였다. 제작한 유기 EL 소자에 직류 전압을 인가했을 때의 발광 특성의 측정 결과를 표 1 에 정리하여 나타내었다.

[0315] [화학식 35]



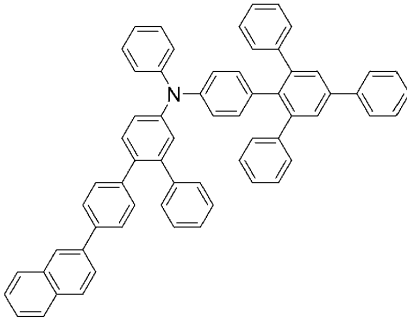
화합물 (1 - 1 5 6)

[0316]

[0317] 실시예 24

[0318] 실시예 16 에 있어서, 제 2 정공 수송층 (5) 의 재료로서 실시예 1 의 화합물 (1-80) 대신에 실시예 9 의 화합물 (1-159) 을 사용한 것 이외에는, 동일한 조건으로 유기 EL 소자를 제작하였다. 제작한 유기 EL 소자에 대해, 대기중, 상온에서 특성 측정을 행하였다. 제작한 유기 EL 소자에 직류 전압을 인가했을 때의 발광 특성의 측정 결과를 표 1 에 정리하여 나타내었다.

[0319] [화학식 36]



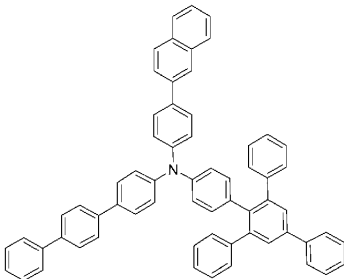
화합물 (1 - 1 5 9)

[0320]

[0321] 실시예 25

[0322] 실시예 16 에 있어서, 제 2 정공 수송층 (5) 의 재료로서 실시예 1 의 화합물 (1-80) 대신에 실시예 10 의 화합물 (1-162) 을 사용한 것 이외에는, 동일한 조건으로 유기 EL 소자를 제작하였다. 제작한 유기 EL 소자에 대해, 대기중, 상온에서 특성 측정을 행하였다. 제작한 유기 EL 소자에 직류 전압을 인가했을 때의 발광 특성의 측정 결과를 표 1 에 정리하여 나타내었다.

[0323] [화학식 37]



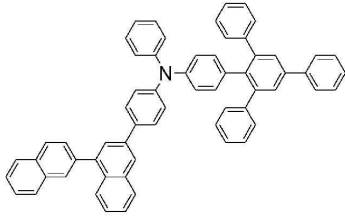
화합물 (1 - 1 6 2)

[0324]

[0325] 실시예 26

[0326] 실시예 16 에 있어서, 제 2 정공 수송층 (5) 의 재료로서 실시예 1 의 화합물 (1-80) 대신에 실시예 11 의 화합물 (1-167) 을 사용한 것 이외에는, 동일한 조건으로 유기 EL 소자를 제작하였다. 제작한 유기 EL 소자에 대해, 대기중, 상온에서 특성 측정을 행하였다. 제작한 유기 EL 소자에 직류 전압을 인가했을 때의 발광 특성의 측정 결과를 표 1 에 정리하여 나타내었다.

[0327] [화학식 38]



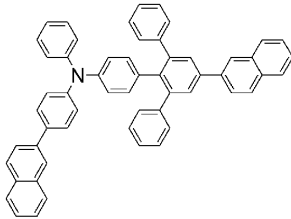
화합물 (1 - 1 6 7)

[0328]

실시예 27

[0330] 실시예 16 에 있어서, 제 2 정공 수송층 (5) 의 재료로서 실시예 1 의 화합물 (1-80) 대신에 실시예 12 의 화합물 (1-171) 을 사용한 것 이외에는, 동일한 조건으로 유기 EL 소자를 제작하였다. 제작한 유기 EL 소자에 대해, 대기중, 상온에서 특성 측정을 행하였다. 제작한 유기 EL 소자에 직류 전압을 인가했을 때의 발광 특성의 측정 결과를 표 1 에 정리하여 나타내었다.

[0331] [화학식 39]



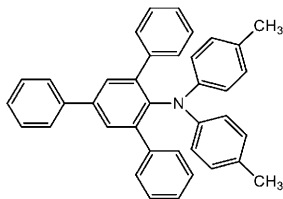
화합물 (1 - 1 7 1)

[0332]

[비교예 1]

[0334] 비교를 위해서, 실시예 16 에 있어서, 제 2 정공 수송층 (5) 의 재료로서 실시예 1 의 화합물 (1-80) 대신에 하기 구조식의 화합물 (HTM-2) 을 사용한 것 이외에는, 동일한 조건으로 유기 EL 소자를 제작하였다. 제작한 유기 EL 소자에 대해, 대기중, 상온에서 특성 측정을 행하였다. 제작한 유기 EL 소자에 직류 전압을 인가했을 때의 발광 특성의 측정 결과를 표 1 에 정리하여 나타내었다.

[0335] [화학식 40]



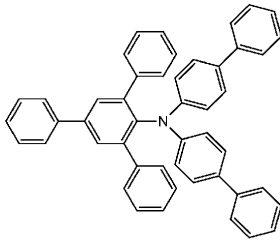
(HTM-2)

[0336]

[비교예 2]

[0338] 비교를 위해서, 실시예 16 에 있어서, 제 2 정공 수송층 (5) 의 재료로서 실시예 1 의 화합물 (1-80) 대신에 하기 구조식의 화합물 (HTM-3) 을 사용한 것 이외에는, 동일한 조건으로 유기 EL 소자를 제작하였다. 제작한 유기 EL 소자에 대해, 대기중, 상온에서 특성 측정을 행하였다. 제작한 유기 EL 소자에 직류 전압을 인가했을 때의 발광 특성의 측정 결과를 표 1 에 정리하여 나타내었다.

[0339] [화학식 41]



(HTM-3)

[0340]

[0341] 실시예 16 ~ 27 및 비교예 1 ~ 2 에서 제작한 유기 EL 소자를 사용하여, 소자 수명을 측정된 결과를 표 1 에 정리하여 나타내었다. 소자 수명은, 발광 개시시의 발광 휘도 (초기 휘도) 를 2000 cd/m² 로 하여 정전류 구동을 실시했을 때, 발광 휘도가 1900 cd/m² (초기 휘도를 100 % 로 했을 때의 95 % 에 상당 : 95 % 감쇠) 로 감쇠할 때까지의 시간으로서 측정하였다.

표 1

	제 2 정공 수송층	(@10mA/cm ²)				소자 수명 95%감쇠
		전압[V]	휘도 [cd/m ²]	발광 효율 [cd/A]	전력 효율 [lm/W]	
실시예16	화합물1-80	3.41	1045	10.46	9.49	498시간
실시예17	화합물1-120	3.42	1004	10.05	9.23	448시간
실시예18	화합물1-81	3.41	979	9.79	9.02	448시간
실시예19	화합물1-79	3.44	972	9.73	8.90	446시간
실시예20	화합물1-18	3.44	945	9.45	8.63	409시간
실시예21	화합물1-138	3.43	1036	10.36	9.40	365시간
실시예22	화합물1-151	3.45	996	9.98	9.04	322시간
실시예23	화합물1-156	3.36	1017	10.18	9.53	452시간
실시예24	화합물1-159	3.37	981	9.83	9.16	307시간
실시예25	화합물1-162	3.39	981	9.81	9.09	662시간
실시예26	화합물1-167	3.36	966	9.65	9.04	423시간
실시예27	화합물1-171	3.36	987	9.86	9.23	536시간
비교예1	HTM-2	3.49	915	9.15	8.23	245시간
비교예2	HTM-3	3.54	897	8.97	8.19	269시간

[0342]

[0343] 표 1 에 나타내는 바와 같이, 전류 밀도 10 mA/cm² 의 전류를 흘렸을 때의 발광 효율은, 비교예 1 ~ 2 의 유기 EL 소자의 8.97 ~ 9.15 cd/A 에 비해, 실시예 16 ~ 27 의 유기 EL 소자에서는 9.45 ~ 10.46 cd/A 로 고효율 이었다. 또, 전력 효율에 있어서도, 비교예 1 ~ 2 의 유기 EL 소자의 8.19 ~ 8.23 lm/W 에 비해, 실시예 16 ~ 27 의 유기 EL 소자에서는 8.63 ~ 9.53 lm/W 로 고효율이었다. 또한 소자 수명 (95 % 감쇠) 에 있어서는, 비교예 1 ~ 2 의 유기 EL 소자의 245 ~ 269 시간에 비해, 실시예 16 ~ 27 의 유기 EL 소자에서는 307 ~ 662 시간으로 장수명화한 것을 알 수 있다.

[0344]

이상의 결과로 분명한 바와 같이, 일반식 (1) 로 나타내는 특정한 구조를 갖는 아릴아민 화합물은, 비교예 1 ~ 2 의 종래의 아릴아민 화합물에 비해, 정공의 이동도가 크고, 우수한 전자의 저지 능력을 가지고 있다. 그 때문에, 본 개시의 발광층과 함께 사용하고 있는 유기 EL 소자는, 종래의 유기 EL 소자와 비교하여, 고발광 효율로서, 또한 장수명의 유기 EL 소자를 실현할 수 있는 것을 알 수 있었다.

[0345]

본 발명을 특정한 양태를 참조하여 상세하게 설명했지만, 본 발명의 정신과 범위를 벗어나지 않고 다양한 변경 및 수정이 가능한 것은, 당업자에게 있어서 분명하다.

[0346]

또한, 본원은, 2020년 1월 22일자로 출원된 일본 특허출원 (일본 특허출원 2020-8577) 에 기초하고 있으며, 그 전체가 인용에 의해 원용된다. 또, 여기에 인용되는 모든 참조는 전체로서 받아들여진다.

산업상 이용가능성

[0348]

본 발명의, 특정한 구조를 갖는 아릴아민 화합물을 사용한 유기 EL 소자는, 발광 효율이 향상됨과 함께, 유기 EL 소자의 내구성을 개선시킬 수 있어, 예를 들어, 가정 전화 제품이나 조명 용도로의 전개가 가능해졌다.

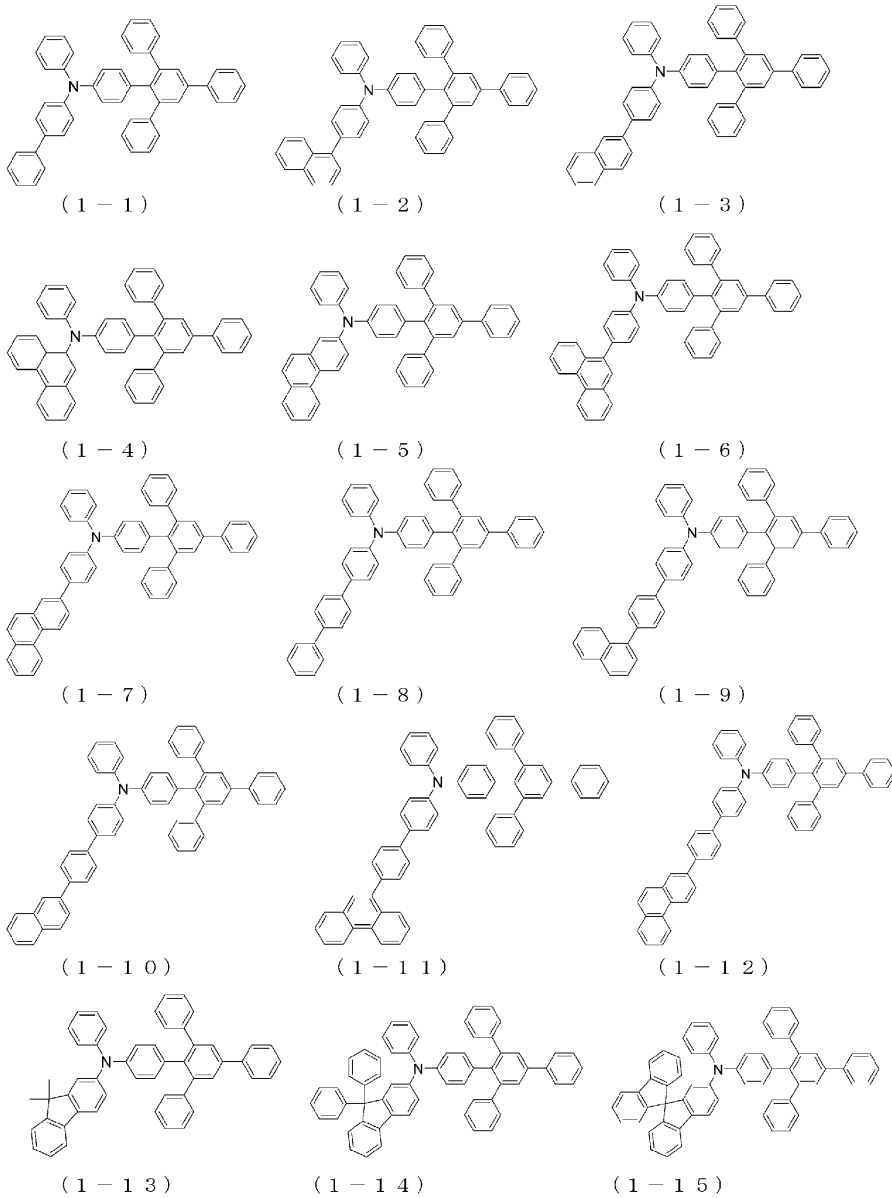
부호의 설명

[0349]

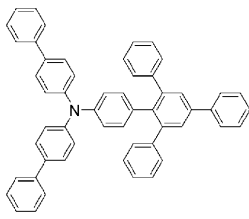
- 1 : 유리 기판
- 2 : 투명 양극
- 3 : 정공 주입층
- 4 : 제 1 정공 수송층
- 5 : 제 2 정공 수송층
- 6 : 발광층
- 7 : 전자 수송층
- 8 : 전자 주입층
- 9 : 음극
- 10 : 캐핑층

도면

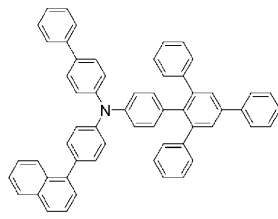
도면1



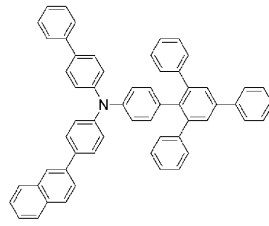
도면2



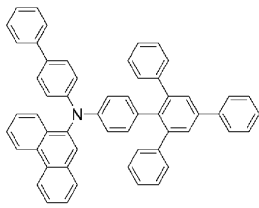
(1-16)



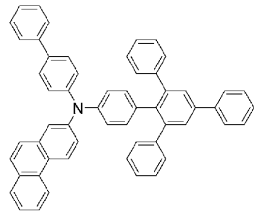
(1-17)



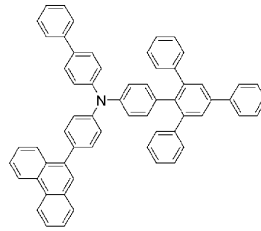
(1-18)



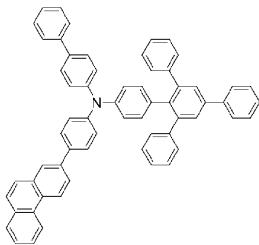
(1-19)



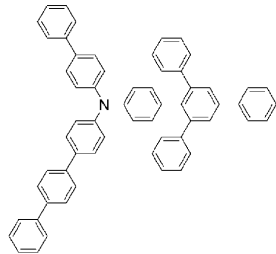
(1-20)



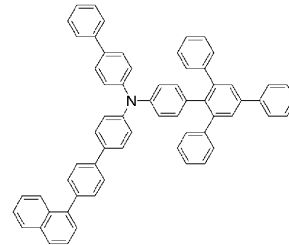
(1-21)



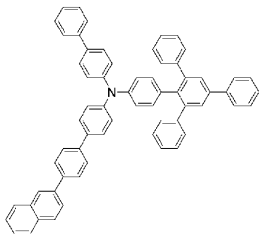
(1-22)



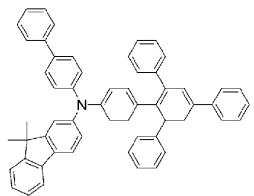
(1-23)



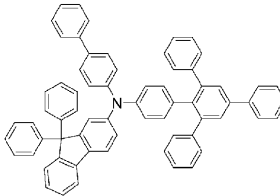
(1-24)



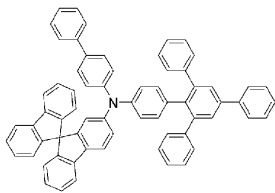
(1-25)



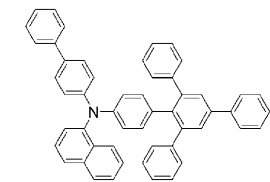
(1-26)



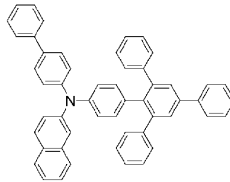
(1-27)



(1-28)

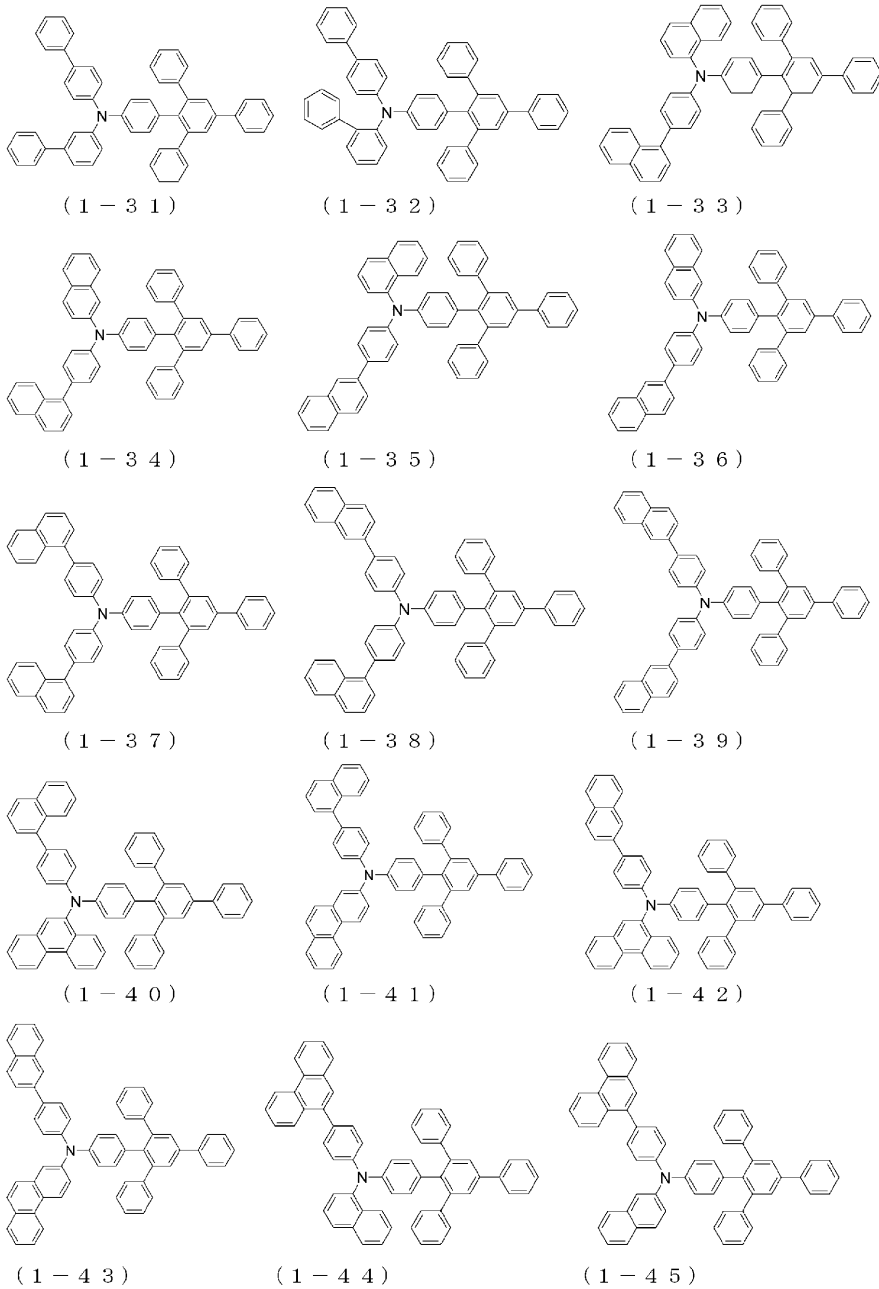


(1-29)

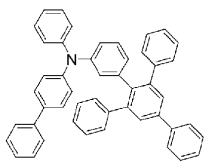


(1-30)

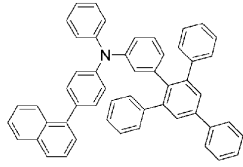
도면3



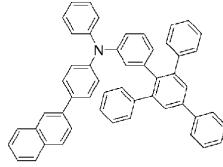
도면4



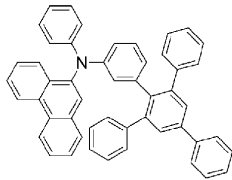
(1-46)



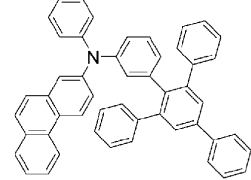
(1-47)



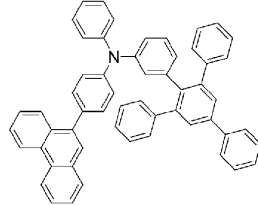
(1-48)



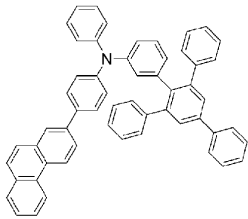
(1-49)



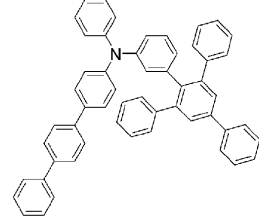
(1-50)



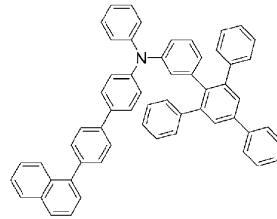
(1-51)



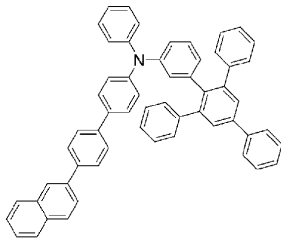
(1-52)



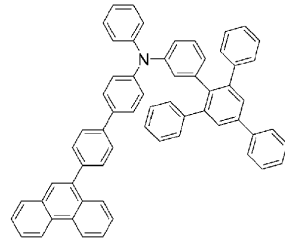
(1-53)



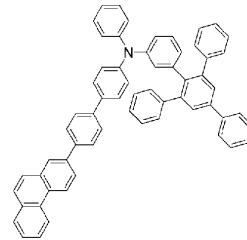
(1-54)



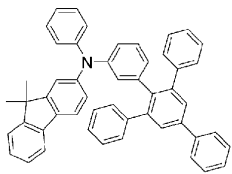
(1-55)



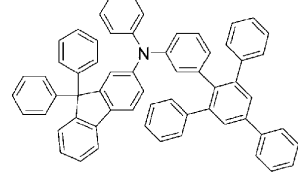
(1-56)



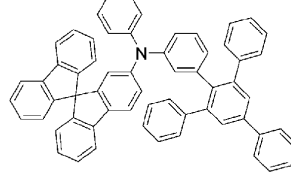
(1-57)



(1-58)

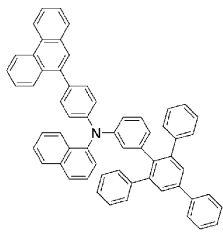


(1-59)

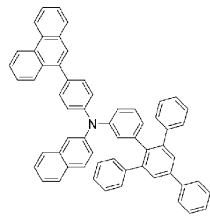


(1-60)

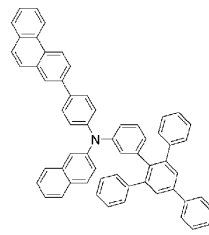
도면6



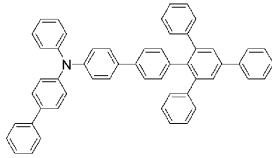
(1-76)



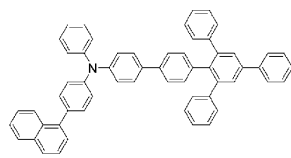
(1-77)



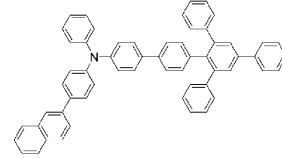
(1-78)



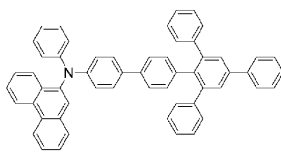
(1-79)



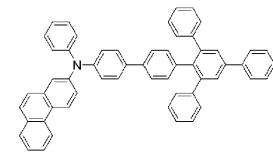
(1-80)



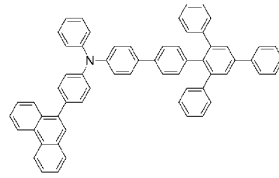
(1-81)



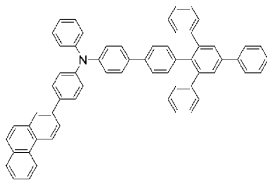
(1-82)



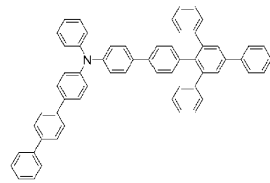
(1-83)



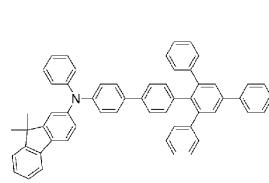
(1-84)



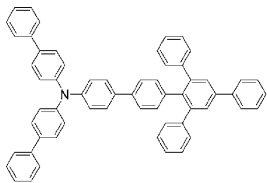
(1-85)



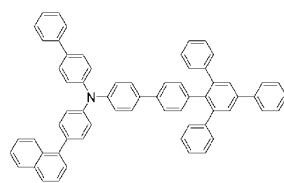
(1-86)



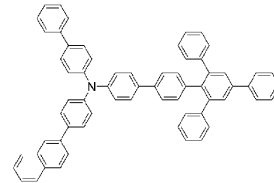
(1-87)



(1-88)

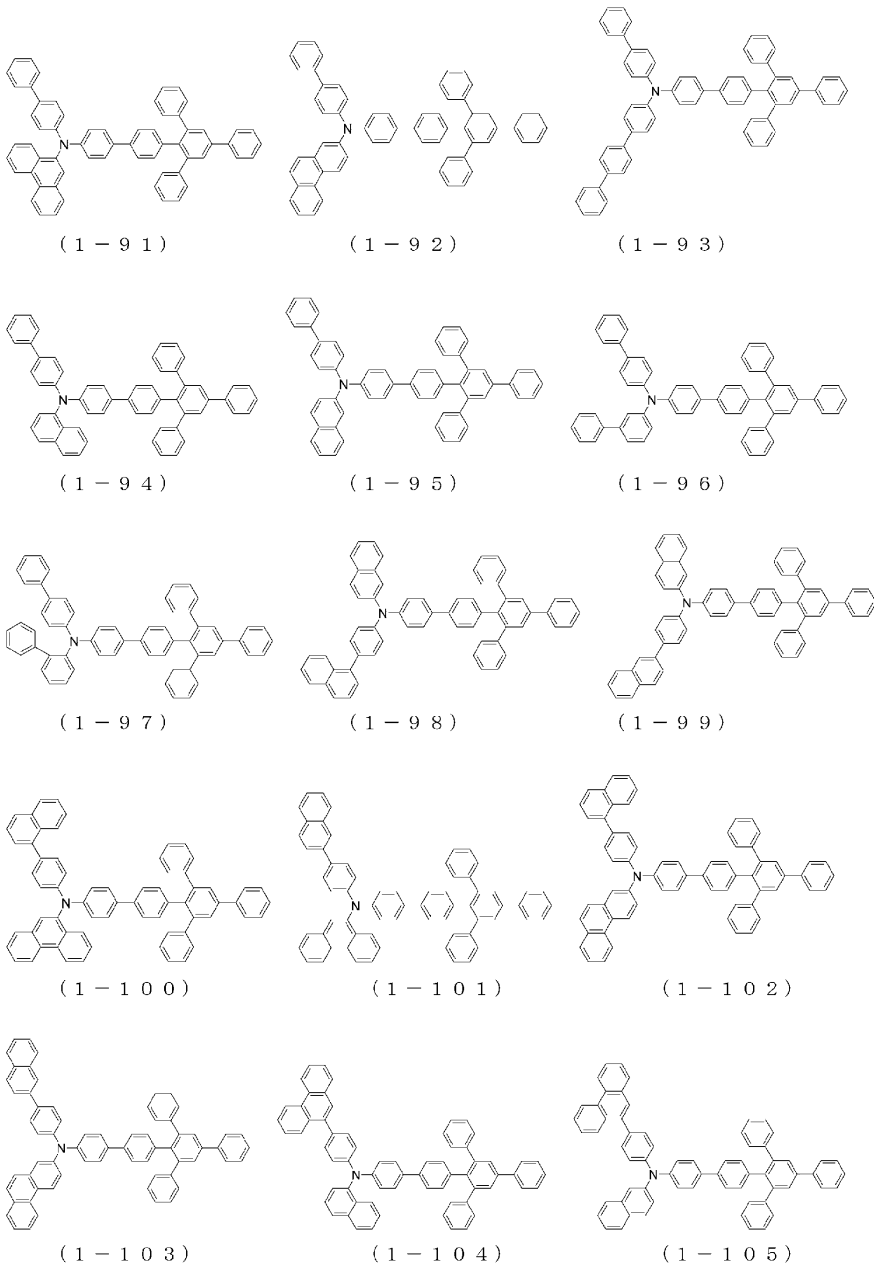


(1-89)

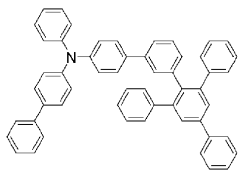


(1-90)

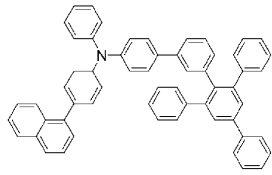
도면7



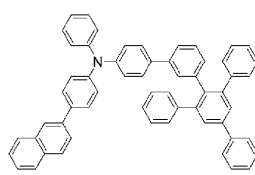
도면8



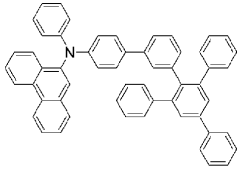
(1-106)



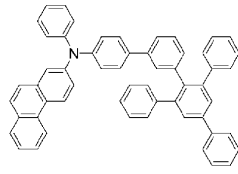
(1-107)



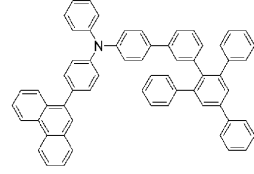
(1-108)



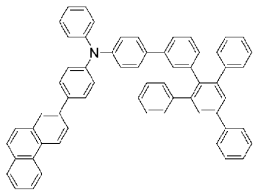
(1-109)



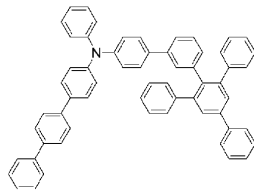
(1-110)



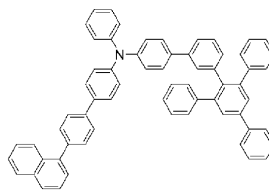
(1-111)



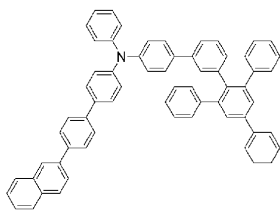
(1-112)



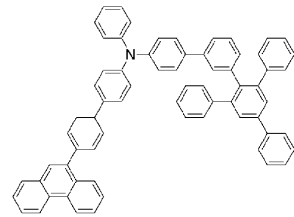
(1-113)



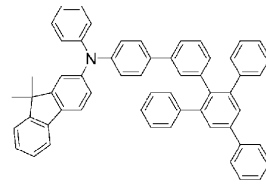
(1-114)



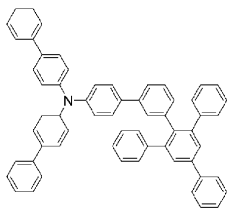
(1-115)



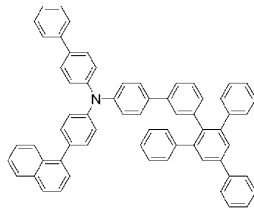
(1-116)



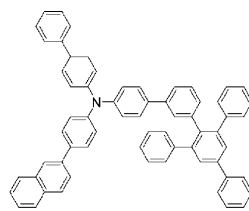
(1-117)



(1-118)

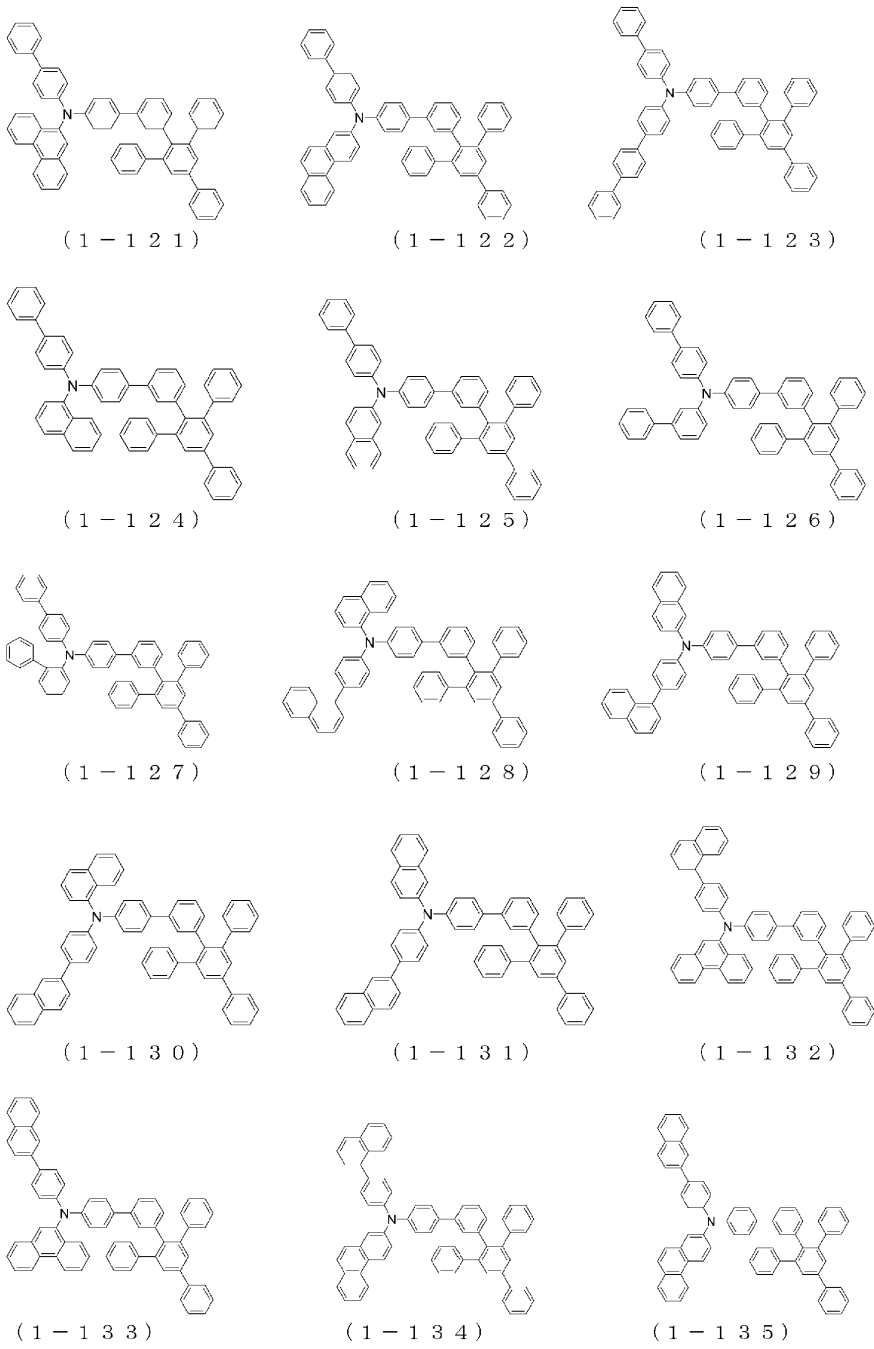


(1-119)

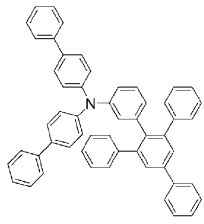


(1-120)

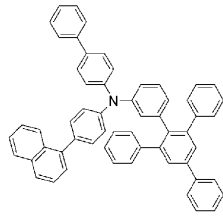
도면9



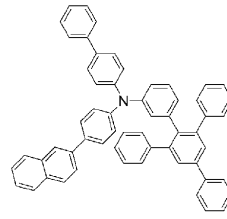
도면10



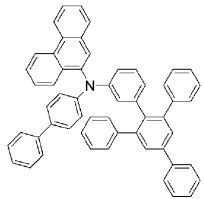
(1-136)



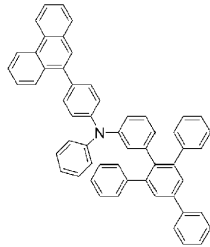
(1-137)



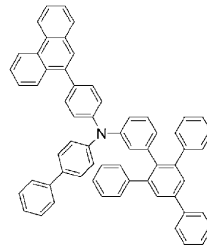
(1-138)



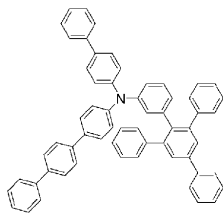
(1-139)



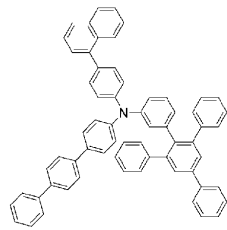
(1-140)



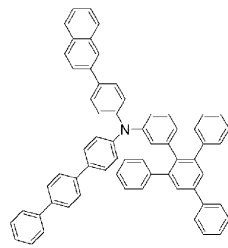
(1-141)



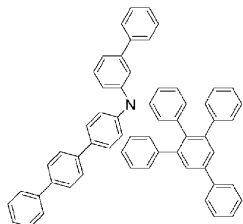
(1-142)



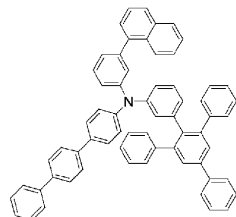
(1-143)



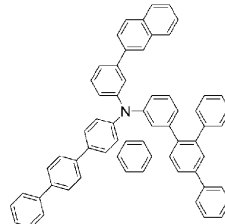
(1-144)



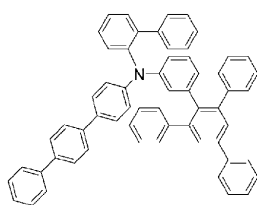
(1-145)



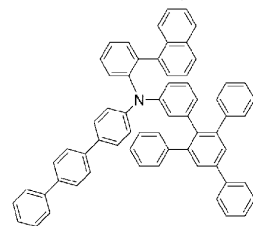
(1-146)



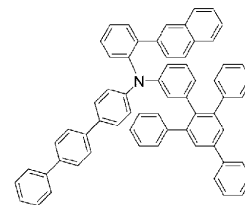
(1-147)



(1-148)

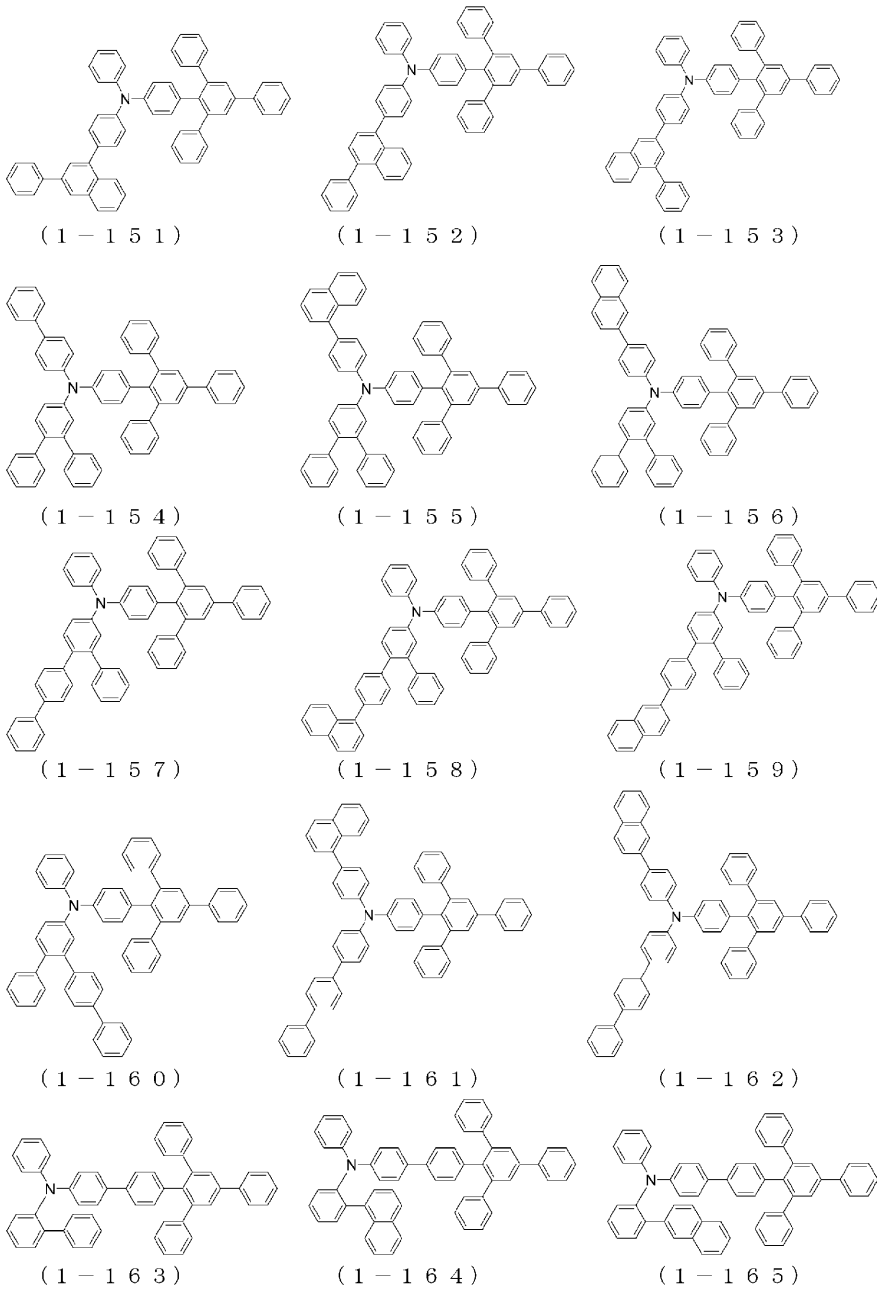


(1-149)

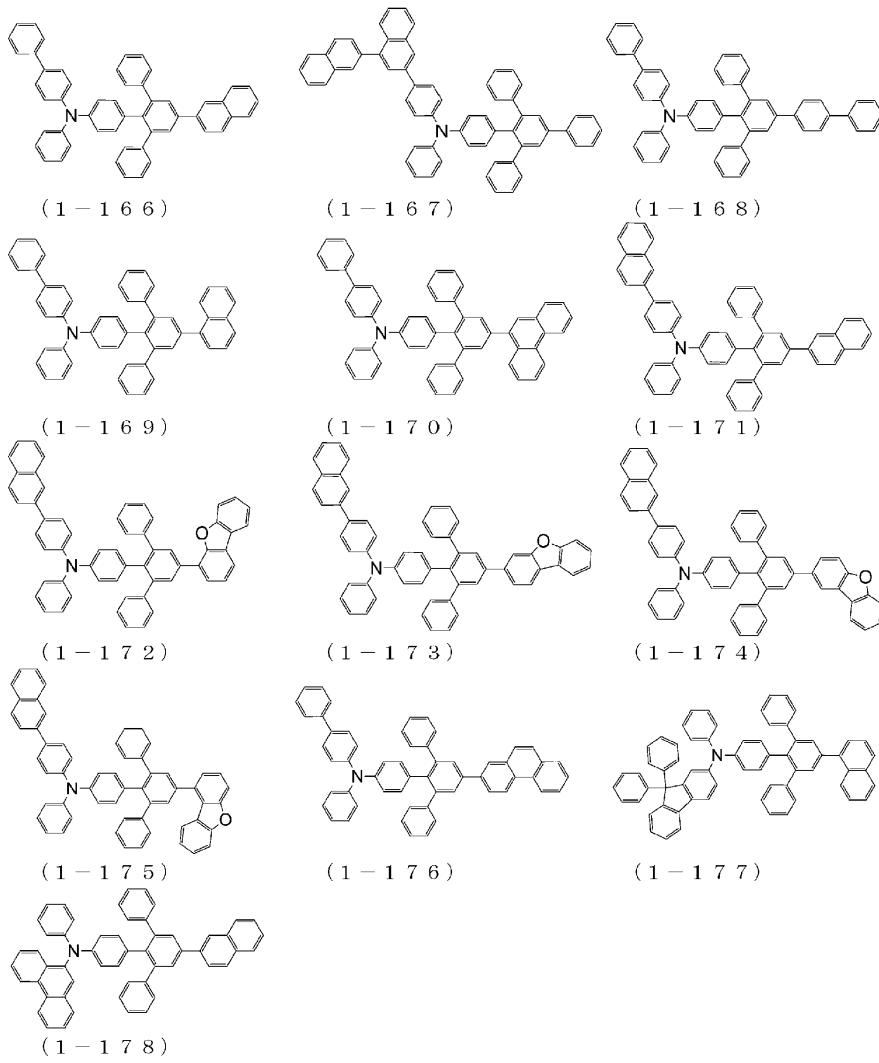


(1-150)

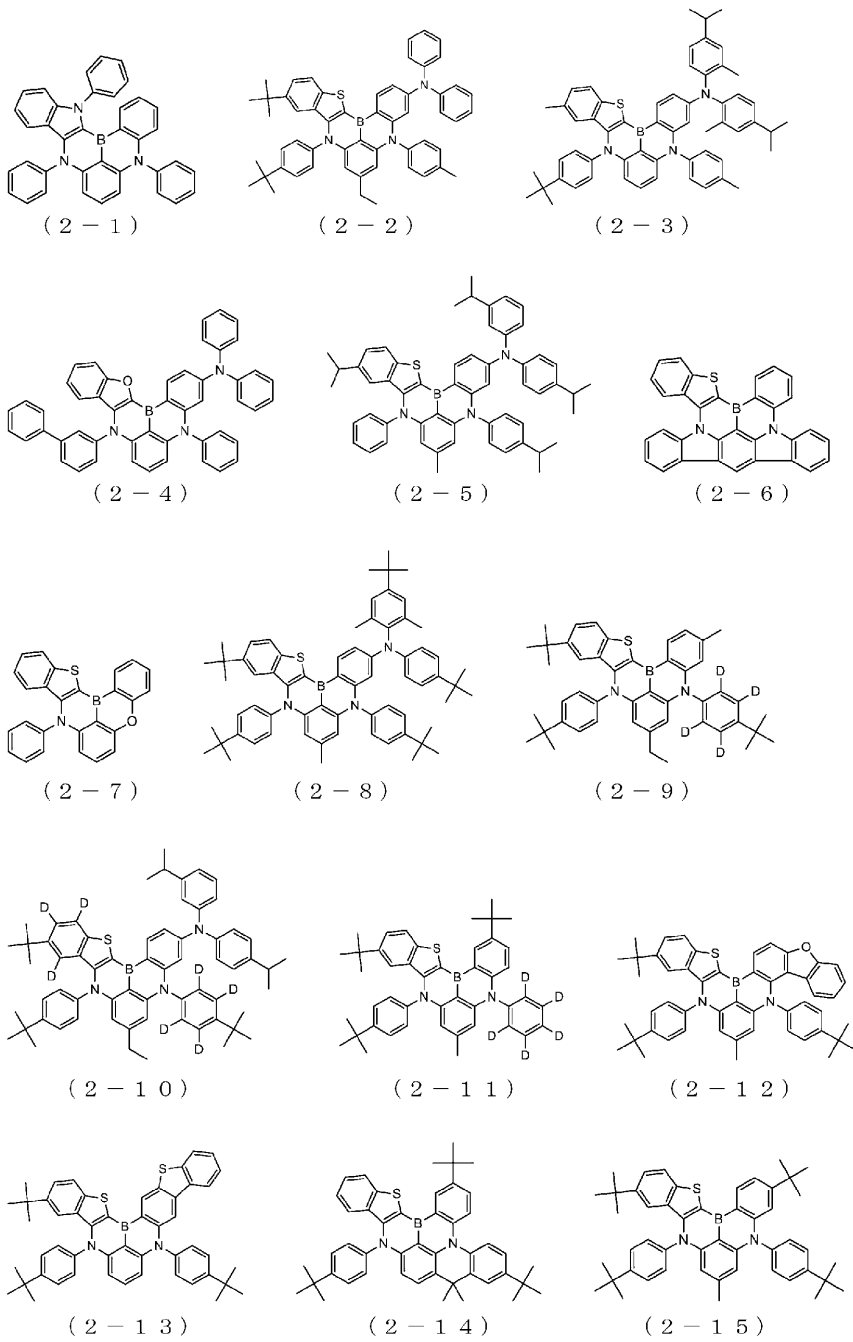
도면11



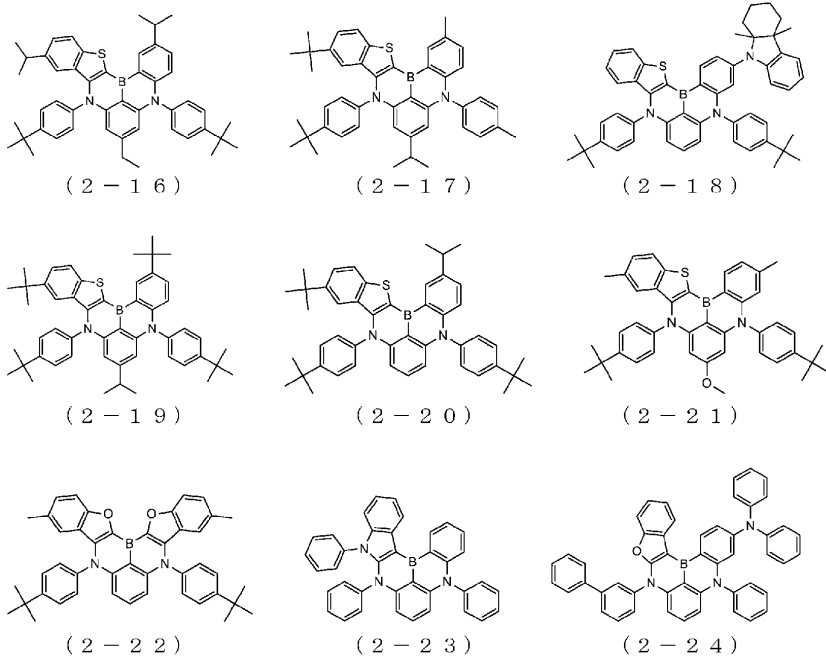
도면12



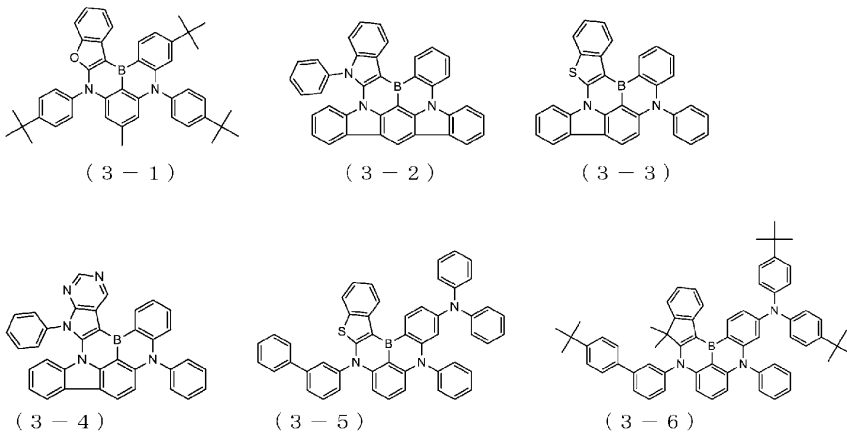
도면13



도면14



도면15



도면16

