



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2021년10월06일
(11) 등록번호 10-2309996
(24) 등록일자 2021년09월30일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C07D 409/10 (2006.01) C07D 241/36 (2006.01)
C09K 11/06 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)
(21) 출원번호 10-2014-0120066
(22) 출원일자 2014년09월11일
심사청구일자 2019년09월11일
(65) 공개번호 10-2015-0031193
(43) 공개일자 2015년03월23일
(30) 우선권주장
JP-P-2013-190214 2013년09월13일 일본(JP)
JP-P-2014-097738 2014년05월09일 일본(JP)
(56) 선행기술조사문헌
KR1020110099173 A*
*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자
가부시킴가이사 한도오따이 에네루기 켄큐쇼
일본국 가나가와켄 아쓰기시 하세 398
(72) 발명자
이노우에 히데코
일본 2430036 가나가와켄 아쓰기시 하세 398 가부
시킴가이사 한도오따이 에네루기 켄큐쇼 내
구보타 도모히로
일본 2430036 가나가와켄 아쓰기시 하세 398 가부
시킴가이사 한도오따이 에네루기 켄큐쇼 내
(뒷면에 계속)
(74) 대리인
양영준, 박충범

전체 청구항 수 : 총 6 항

심사관 : 허정오

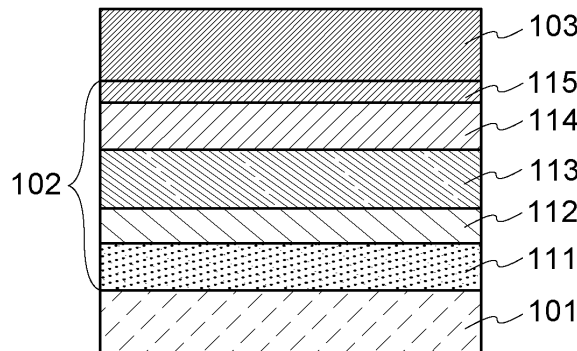
(54) 발명의 명칭 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체, 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체의 합성 방법, 발광 소자, 발광 장치, 전자 기기, 및 조명 장치

(57) 요약

본 발명은 불순물이 저감된 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체 및 불순물이 저감된 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체를 합성하는 신규 합성 방법을 제공한다. 또한, 상기 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체를 EL 재료로서 사용한, 발광 효율 및 신뢰성이 높은 발광 소자, 발광 장치, 전자 기기, 또는 조명 장치를 제공한다.

2-(클로로아릴)다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체를 합성 중간체로서 거침으로써, 최종 생성물에 함유되는 불순물을 승화 정제에 의하여 용이하게 제거할 수 있기 때문에, 불순물을 저감시킬 수 있게 되는 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체의 합성 방법 및 불순물이 저감된 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체이다.

대표도 - 도1



(72) 발명자

세오 사토시

일본 2430036 가나가와켄 아쓰기시 하세 398 가부
시키가이샤 한도오따이 에네루기 켄큐쇼 내

야마와키 하야토

일본 2430036 가나가와켄 아쓰기시 하세 398 가부
시키가이샤 한도오따이 에네루기 켄큐쇼 내

기타노 야스시

일본 2430036 가나가와켄 아쓰기시 하세 398 가부
시키가이샤 한도오따이 에네루기 켄큐쇼 내

명세서

청구범위

청구항 1

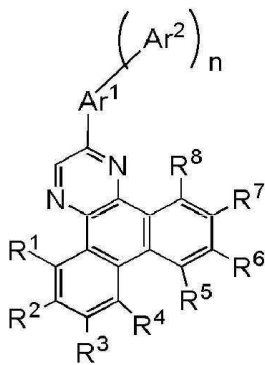
삭제

청구항 2

삭제

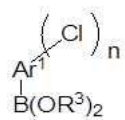
청구항 3

염소 함유량이 10ppm 이하인 식 (G1)로 표시되는 다이벤조[f,h]퀴놀살린의 합성 방법에 있어서,



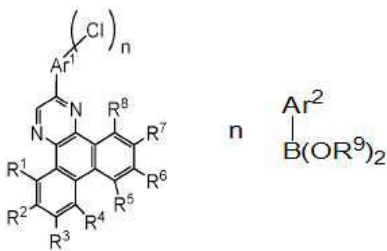
(G1)

2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린과 식 (A2)로 표시되는 클로로아릴보론산을 커플링시켜 2-(클로로아릴)다이벤조[f,h]퀴놀살린을 얻는 단계, 및



(A2)

식 (G0)으로 표시되는 2-(클로로아릴)다이벤조[f,h]퀴놀살린과 식 (A3)으로 표시되는 아릴보론산 또는 헤테로아릴보론산을 커플링시키는 단계를 포함하고,



(G0)

(A3)

여기서, Ar¹은 치환 또는 비치환된 탄소수 6~13의 아릴렌기를 나타내고, Ar²는 치환 또는 비치환된 탄소수 6~40

의 아틸기 또는 치환 또는 비치환된 탄소수 6~40의 헥테로아틸기를 나타내고, R¹~R⁸은 독립적으로 탄소수 1~6의 알킬기, 페닐기, 또는 치환기로서 탄소수 1~6의 알킬기를 갖는 페닐기를 나타내거나, 또는 R¹~R⁸은 모두 수소를 나타내고, n은 1~3의 정수이고, R⁹는 각각 독립적으로 수소 또는 알킬기를 나타내거나 또는 동일 식에서 2개의 R⁹가 함께 연결되어 이들이 결합되어 있는 산소와 함께 환 구조를 형성하는,

다이벤조[f,h]퀴놀살린의 합성 방법.

청구항 4

발광 소자에 있어서,

제 3 항에 따른 다이벤조[f,h]퀴놀살린을 포함하는, 발광 소자.

청구항 5

제 4 항에 있어서,

상기 발광 소자는 10mA/cm²의 밀도로 전류를 200시간 흘린 후에 초기 휘도의 90% 이상의 휘도를 유지하는, 발광 소자.

청구항 6

발광 장치에 있어서,

제 4 항에 따른 발광 소자를 포함하는, 발광 장치.

청구항 7

전자 기기에 있어서,

제 6 항에 따른 발광 장치를 포함하는, 전자 기기.

청구항 8

조명 장치에 있어서,

제 6 항에 따른 발광 장치를 포함하는, 조명 장치.

청구항 9

삭제

청구항 10

삭제

청구항 11

삭제

청구항 12

삭제

청구항 13

삭제

청구항 14

삭제

청구항 15

삭제

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 물건, 방법, 또는 제조 방법에 관한 것이다. 또는, 본 발명은 공정(process), 기계(machine), 제품(manufacture), 또는 조성물(composition of matter)에 관한 것이다. 특히 본 발명의 일 형태는 반도체 장치, 표시 장치, 발광 장치, 이들의 구동 방법, 또는 이들의 제조 방법에 관한 것이다. 본 발명의 일 형태는 특히 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체 및 그 신규 합성 방법에 관한 것이다. 또한, 상기 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체를 사용한 발광 소자, 발광 장치, 전자 기기, 및 조명 장치에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 한 쌍의 전극 사이에 EL층을 제공한 구조를 갖는 발광 소자는 전계를 인가함으로써, 양쪽 전극으로부터 캐리어(정공 또는 전자)가 주입되어 EL층에서의 캐리어의 재결합으로 인한 에너지로부터 발광이 얻어지는 자발광 소자이다.

[0003] 발광 소자의 EL층에 사용되는 EL 재료로서는 주로 유기 화합물이 사용되어 있으며, 발광 소자의 소자 특성 향상에 기여하기 때문에, 다양한 신규 유기 화합물이 개발되어 있다(예를 들어, 특허문헌 1 참조).

선행기술문헌

특허문헌

[0004] (특허문헌 0001) 일본 특개2011-201869호 공보

발명의 내용

해결하려는 과제

[0005] 유기 화합물의 합성에서는 간편하고 저렴한 방법을 이용하는 것이 바람직하나, 기술적으로 제거하지 못하는 물질(불순물)이 가능한 한 함유되지 않게 하는 것이 중요하다. 예를 들어, 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체의 합성에서는 모노클로로다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체를 원료로서 사용하는 방법(예를 들어, 특허문헌 1 참조)이 알려져 있지만, 이 합성 방법에서는 복수의 염소를 갖는 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체가 불순물로서 함유되기 쉽다. 이러한 불순물을 완전히 제거하기는 어려워, 최종 생성물에 혼재되어 있는 경우가 있다.

[0006] 또한, 발광 소자의 제작에 있어서, EL층의 형성은 그 소자 특성에 영향을 미치므로 매우 중요하며, EL층에 사용하는 EL 재료에 염화물 등 불순물이 함유되면, 발광 소자의 소자 특성이 저하된다는 문제가 있다.

[0007] 그러므로, 본 발명의 일 형태에서는 불순물이 저감된 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체 및 불순물이 저감된 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체를 합성하는 신규 합성 방법을 제공한다. 또한, 본 발명의 다른 일 형태에서는 상기 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체를 EL 재료로서 사용한, 발광 효율 및 신뢰성이 높은 발광 소자, 발광 장치, 전자 기기, 또는 조명 장치를 제공한다. 또는, 본 발명의 다른 일 형태에서는 신규 재료를 제공한다. 또는, 본 발명의 다른 일 형태에서는 신규의 발광 소자, 발광 장치를 제공한다. 다만, 이들 과제의 기재는 다른 과제의 존재를 방해하는 것이 아니다. 또한, 본 발명의 일 형태는 상술한 과제 모두를 해결할 필요는 없는 것으로 한다. 또한, 이들 이외의 과제는 명세서, 도면, 청구항 등의 기재로부터 저절로 명확해지는 것이며 명세서, 도면, 청구항 등의 기재로부터 이들 이외의 과제가 만들어질 수 있다.

과제의 해결 수단

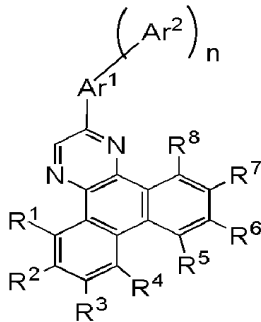
[0008] 본 발명의 일 형태는 2-(클로로아릴)다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체를 합성 중간체로서 거침으로써, 최종 생성물에 함유되는 불순물을 승화 정제(精製)에 의하여 용이하게 제거할 수 있기 때문에, 불순물을 저감시킬 수 있게 되는 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체의 합성 방법 및 불순물이 저감된 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체이다.

[0009] 또한, 상기 합성 방법에서는 2-클로로다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체와 클로로아릴보론산의 커플링에 의하여 합성 중간체로서 2-(클로로아릴)다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체가 얻어진다. 이 때, 2-클로로다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체의 다이벤조[f,h]퀴녹살린 골격이 복수의 염소로 치환된 불순물이 함유되어 있으나, 화학 반응에 의하여 다이벤조[f,h]퀴녹살린 골격의 복수의 염소 원자는 클로로아릴기 또는 수소 원자로 치환되어 있다. 따라서, 본 발명의 일 형태는 이 반응을 거쳐 얻어진 2-(클로로아릴)다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체와, 아릴보론산 또는 헤테로아릴보론산의 커플링에 의하여, 최종 생성물로서 불순물이 저감된 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체를 생성할 수 있는 합성 방법을 포함한다. 또한, 합성 중간체인 상기 2-(클로로아릴)다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체도 본 발명의 일 형태에 포함한다.

[0010] 따라서, 본 발명의 일 형태는 다이벤조[f,h]퀴녹살린 골격의 2위치에 아릴기를 갖고, 상기 아릴기는 치환기로서 아릴기 또는 헤테로아릴기를 적어도 하나 갖고, 염소 함유량이 10ppm 이하인, 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체이다.

[0011] 또한, 본 발명의 다른 일 형태는 하기 일반식 (G1)로 표시되고 염소 함유량이 10ppm 이하인, 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체이다.

[0012] [화학식 1]



(G1)

[0013]

[0014] 일반식 (G1) 중, Ar¹은 치환 또는 비치환된 탄소수 6~13의 아릴렌기를 나타내고, Ar²는 치환 또는 비치환된 탄소수 6~40의 아릴기 또는 헤테로아릴기를 나타낸다. R¹~R⁸은 각각 수소, 탄소수 1~6의 알킬기, 페닐기, 또는 치환기로서 탄소수 1~6의 알킬기를 갖는 페닐기를 나타낸다. 또한, n=1~3이다.

[0015] 또한, 본 발명의 다른 일 형태는 2-클로로다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체와 클로로아릴보론산을 커플링시켜 얻어진 2-(클로로아릴)다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체와, 아릴보론산 또는 헤테로아릴보론산을 커플링시킴으로써 얻어지는, 염소 함유량이 10ppm 이하인 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체이다.

[0016] 또한, 본 발명의 다른 일 형태는 2-클로로다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체와 클로로아릴보론산을 커플링시켜 얻어진 2-(클로로아릴)다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체와, 아릴보론산 또는 헤테로아릴보론산을 커플링시킴으로써 얻어지는, 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체의 합성 방법이다.

[0017] 또한, 본 발명의 다른 일 형태는 상기 각 구성으로 제시된 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체 중 어느 것이 사용된 발광 소자이다.

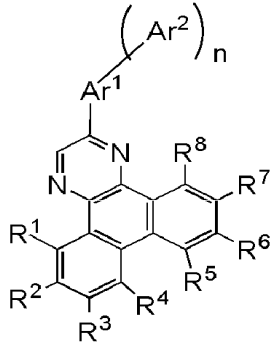
[0018] 또한, 본 발명의 다른 일 형태는 상기 각 구성으로 제시된 합성 방법에 의하여 얻어진 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체가 사용된 발광 소자이다.

[0019] 또한, 본 발명의 다른 일 형태는 한 쌍의 전극 사이에 EL층이 개재(介在)된 발광 소자이며, EL층에 적어도 구비되는 발광층에 주성분으로서 함유되는 물질의 염소 함유량을 10ppm 이하로 함으로써, 10mA/cm²의 전류 밀도로 전류를 200시간 흘린 후에 초기 휘도의 90% 이상의 휘도를 유지하는, 발광 소자이다.

[0020] 또한, 본 발명의 다른 일 형태는 한 쌍의 전극 사이에 EL층이 개재된 발광 소자이며, EL층에 적어도 구비되는 발광층에 주성분으로서 사용되는 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체의 염소 함유량을 10ppm 이하로 함으로써, 10mA/cm²의 전류 밀도로 전류를 200시간 흘린 후에 초기 휘도의 90% 이상의 휘도를 유지하는, 발광 소자이다.

[0021] 또한, 본 발명의 다른 일 형태는 한 쌍의 전극 사이에 EL층이 개재된 발광 소자이며, EL층에 적어도 구비되는 발광층에 주성분으로서 사용되는 하기 일반식 (G1)로 표시되는 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체의 염소 함유량을 10ppm 이하로 함으로써, 10mA/cm²의 전류 밀도로 전류를 200시간 흘린 후에 초기 휘도의 90% 이상의 휘도를 유지하는, 발광 소자이다.

[0022] [화학식 2]



(G1)

[0023]

[0024] 일반식 (G1) 중, Ar¹은 치환 또는 비치환된 탄소수 6~13의 아릴렌기를 나타내고, Ar²는 치환 또는 비치환된 탄소수 6~40의 아릴기 또는 헤테로아릴기를 나타낸다. R¹~R⁸은 각각 수소, 탄소수 1~6의 알킬기, 페닐기, 또는 치환기로서 탄소수 1~6의 알킬기를 갖는 페닐기를 나타낸다. 또한, n=1~3이다.

[0025] 또한, 본 발명의 다른 일 형태는 상기 각 구성에 제시된 발광 소자가 사용된 발광 장치이다.

[0026] 또한, 본 발명의 일 형태는 발광 소자를 구비하는 발광 장치뿐만 아니라, 발광 장치가 사용된 전자 기기 및 조명 장치도 그 범주에 포함된다. 따라서, 본 명세서에서 발광 장치란, 화상 표시 디바이스, 또는 광원(조명 장치를 포함함)을 가리킨다. 또한, 발광 장치에 커넥터, 예를 들어 FPC(Flexible Printed Circuit) 또는 TCP(Tape Carrier Package)가 장착된 모듈, TCP 끝에 프린트 배선판이 제공된 모듈, 또는 발광 소자에 COG(Chip On Glass) 방식으로 IC(집적 회로)가 직접 실장된 모듈도 모두 발광 장치에 포함되는 것으로 한다.

발명의 효과

[0027] 본 발명의 일 형태에 따르면, 불순물이 저감된 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체, 및 그 합성 방법을 제공할 수 있다. 또한, 본 발명의 일 형태에 따르면, 상기 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체를 EL 재료로서 사용한, 발광 효율 및 신뢰성이 높은 발광 소자, 발광 장치, 전자 기기, 또는 조명 장치를 제공할 수 있다. 또는, 본 발명의 일 형태에 따르면, 신규 재료를 제공할 수 있다. 또는, 본 발명의 일 형태에 따르면, 신규의 발광 소자, 발광 장치를 제공할 수 있다. 다만, 이들 효과의 기재는 다른 효과의 존재를 방해하는 것이 아니다. 또한, 본 발명의 일 형태는 반드시 상술한 모든 효과를 가지지 않아도 좋다. 또한, 이들 이외의 효과는 명세서, 도면, 청구항 등의 기재로부터 저절로 명확해지는 것이며 명세서, 도면, 청구항 등의 기재로부터 이들 이외의 효과가 얻어질 수 있다.

도면의 간단한 설명

- [0028] 도 1은 발광 소자의 구조에 대하여 설명하기 위한 도면.
- 도 2는 발광 소자의 구조에 대하여 설명하기 위한 도면.
- 도 3은 발광 장치에 대하여 설명하기 위한 도면.
- 도 4는 전자 기기에 대하여 설명하기 위한 도면.
- 도 5는 조명 장치에 대하여 설명하기 위한 도면.
- 도 6은 구조식 (100)으로 표시되는 중간체의 ¹H-NMR 차트.

도 7은 구조식 (200)으로 표시되는 EL 재료의 ¹H-NMR 차트.

도 8은 발광 소자 1, 비교 발광 소자 2, 및 비교 발광 소자 3의 구조를 설명하기 위한 도면.

도 9는 발광 소자 1, 비교 발광 소자 2, 및 비교 발광 소자 3의 전류 밀도-휘도 특성을 나타낸 그래프.

도 10은 발광 소자 1, 비교 발광 소자 2, 및 비교 발광 소자 3의 전압-휘도 특성을 나타낸 그래프.

도 11은 발광 소자 1, 비교 발광 소자 2, 및 비교 발광 소자 3의 신뢰성을 나타낸 그래프.

도 12는 구조식 (101)으로 표시되는 중간체의 ¹H-NMR 차트.

도 13은 EL 재료의 염소 함유량과 발광 소자의 신뢰성의 상관을 나타낸 그래프.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0029] 아래에, 본 발명의 실시형태에 대하여 도면을 참조하여 자세히 설명하기로 한다. 다만, 본 발명은 아래에 기재되는 설명에 한정되지 않으며, 본 발명의 취지 및 그 범위에서 벗어남이 없이 그 형태 및 상세한 사항을 다양하게 변경할 수 있다. 따라서, 본 발명은 아래에 기재되는 실시형태의 내용에 한정하여 해석되는 것은 아니다.

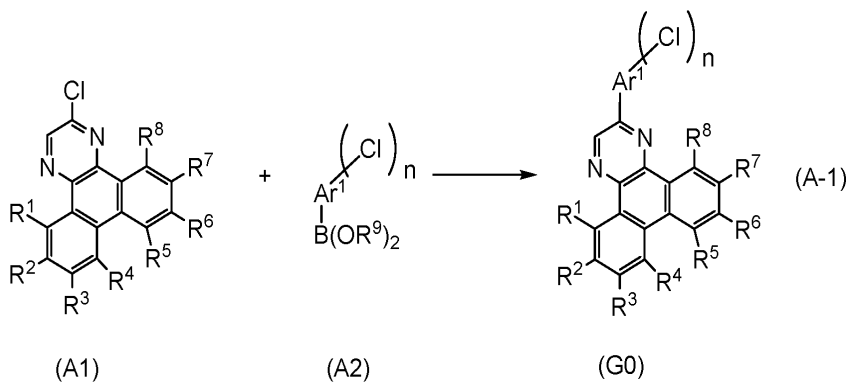
[0030] (실시형태 1)

[0031] 본 실시형태에서는 본 발명의 일 형태인 다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체의 합성 방법에 대하여 설명한다. 또한, 다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체에는 2-아릴다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체 또는 2-헤테로아릴다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체가 포함된다.

[0032] 본 발명의 일 형태는 2-(클로로아릴)다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체를 합성 중간체로서 거침으로써, 최종 생성물에 함유되는 불순물을 승화 정제에 의하여 용이하게 제거할 수 있기 때문에, 불순물이 저장된 다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체가 얻어지는 합성 방법이다.

[0033] 예를 들어, 일반식 (G0)으로 표시되는 2-(클로로아릴)다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체는 아래에 제시된 바와 같은 합성 스킴 (A-1)에 의하여 합성할 수 있다. 즉, 하기 합성 스킴 (A-1)에 제시되는 바와 같이, 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체(일반식 (A1))와 클로로아릴보론산(일반식 (A2))을 반응시킴으로써, 2-(클로로아릴)다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체가 얻어진다.

[0034] [화학식 3]



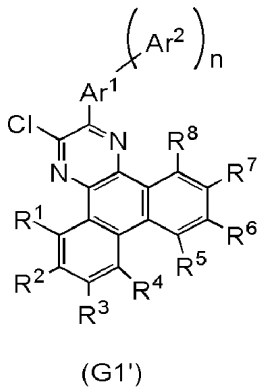
[0035]

[0036] 상기 합성 스킴 (A-1) 중, Ar¹은 치환 또는 비치환된 탄소수 6~13의 아릴렌기를 나타낸다. 또한, R¹-R⁸은 각각 수소, 탄소수 1~6의 알킬기, 페닐기, 또는 치환기로서 탄소수 1~6의 알킬기를 갖는 페닐기를 나타낸다. 또한, n=1~3이다. 또한, R⁹는 수소 또는 알킬기를 나타낸다. 또한, R⁹는 연결되어 환 구조를 형성하여도 좋다. 예를 들어, 피나콜보릴기 등 다이알콕시보릴기를 사용하여도 좋다.

[0037] 여기서, 상기 합성 스킴 (A-1)에서, 원료인 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체(일반식 (A1))는 일반적으로 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체의 염소 치환체(일염소 치환체 또는 이염소 치환체)(예를 들어 하기 일반식 (A1'))를 불순물로서 함유할 가능성이 높다. 그러므로, 2-(클로로아릴)다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체의 염소 치환체(일염소 치환체 또는 이염소 치환체)(일반식 (G0))이 복수의 염소로 부분적으로 치환된 불순물(예를 들

소자의 장수명화에 기여한다.

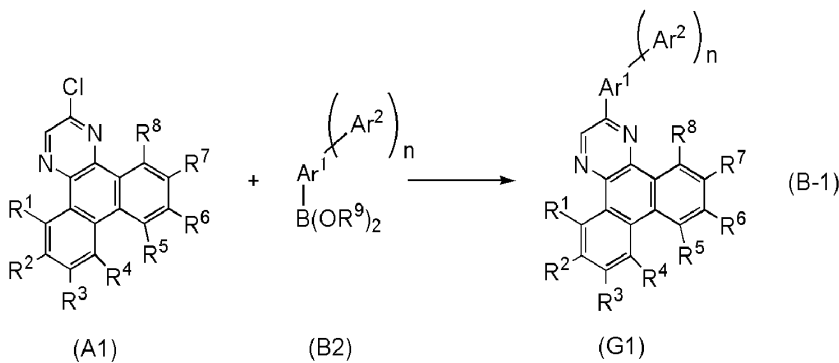
[0045] [화학식 6]



[0046]

[0047] 실시예에서 자세히 설명하지만, 실제로, 하기 합성 스킴 (B-1)로 표시되는 방법에 의하여 합성되는 다이벤조 [f,h]퀴놀살린 유도체(일반식 (G1))에 비하여 합성 스킴 (A-2)로 표시되는 방법에 의하여 합성되는 다이벤조 [f,h]퀴놀살린 유도체(일반식 (G1))를 사용한 발광 소자는 장수명화가 가능하다.

[0048] [화학식 7]

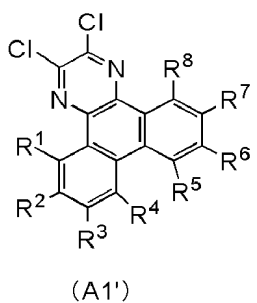


[0049]

[0050] 또한, 상기 합성 스킴 (B-1)에서는 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체(일반식 (A1))와, 아릴기 또는 헤테로 아릴기(Ar¹ 및 Ar²)를 치환기로서 갖는 보론산(일반식 (B2))을 커플링시킴으로써, 다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체(일반식 (G1))를 합성한다. 또한, 상기 합성 스킴 (B-1) 중의 기호는 상기 합성 스킴 (A-2)에 준한다.

[0051] 이 경우에는 원료인 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체(일반식 (A1))는 일반적으로 불순물로서 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체의 염소 치환체(일염소 치환체 또는 이염소 치환체)(일반식 (A1'))를 함유할 가능성이 높고, 분리나 정제도 어렵다.

[0052] [화학식 8]

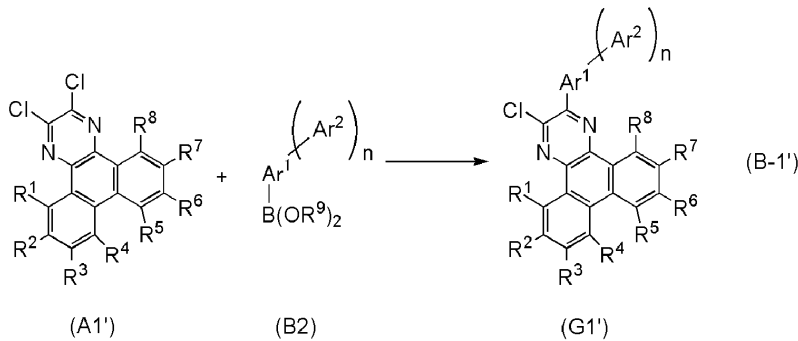


[0053]

[0054] 그리고, 이와 같은 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체의 염소 치환체(일염소 치환체 또는 이염소 치환체)(일반식 (A1'))를 함유한 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체(일반식 (A1))를 사용하여 상기 합성 스킴 (B-

1)로 표시되는 반응을 수행하면, 하기 합성 스킴 (B-1')에 제시되는 바와 같이 보론산(일반식 (B2))으로 중단되지 않은 염소가 남고, 결과적으로 다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체의 염소 치환체(일반식 (G1'))가 생성된다. 이것은 발광 소자의 신뢰성에 큰 악영향을 미친다.

[0055] [화학식 9]



[0056]

[0057] 상기 합성 스킴 (B-1')의 반응에 있어서, 보론산(일반식 (B2))이 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체의 염소 치환체(일반식 (A1'))의 모든 염소를 중단할 수 있으면, 다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체의 염소 치환체(일반식 (G1'))의 생성을 억제할 수 있어, 다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체의 염소 치환체(일반식 (G1'))에 기인한 악영향을 회피할 수 있다.

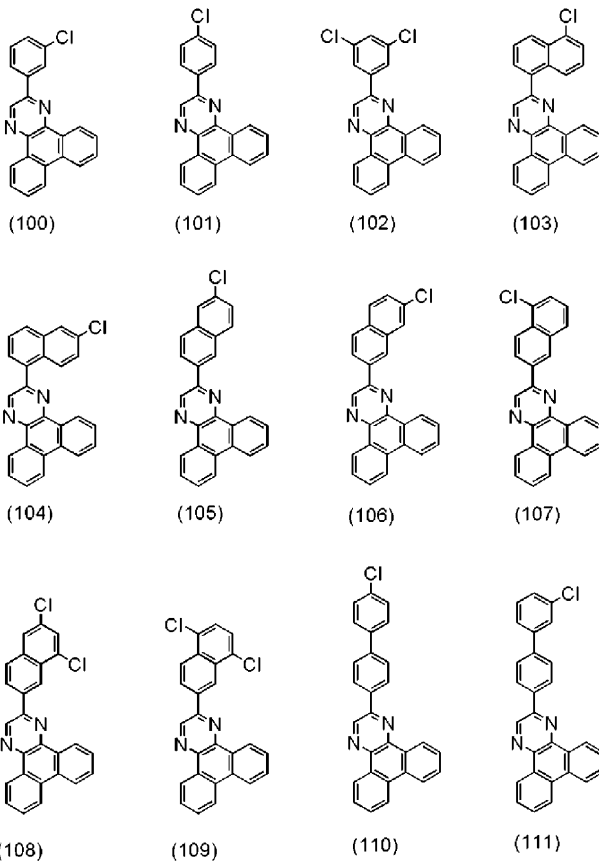
[0058] 그러나, 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체의 염소 치환체(일염소 치환체 또는 이염소 치환체)(일반식 (A1'))는 이웃하는 탄소(구체적으로는 피라진의 2위치 및 3위치)에 염소들이 결합되어 있는 경우, 입체 장애가 크기 때문에, 아릴보론산(일반식 (B2))에 의하여 모든 염소를 중단시키는 것은 어렵다. 즉, 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체의 염소 치환체(일염소 치환체 또는 이염소 치환체)(일반식 (A1'))가 존재하는 경우에는 다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체의 염소 치환체(일반식 (G1'))의 생성을 억제하기 어렵다.

[0059] 또한, 다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체의 염소 치환체(일반식 (G1'))는 한번 생성되면, 다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체(일반식 (G1))와 성질이 비슷하므로 분리하기 어렵다. 특히 R¹ 및 R²가 둘 다 페닐기이며 상기 페닐기의 오르토 위치가 서로 연결되어 다이벤조[f,h]퀴놀살린 환을 형성하는 경우, 용해성이 낮으며 분리되기 어렵다.

[0060] 따라서, 다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체의 염소 치환체(일반식 (G1'))의 생성을 억제할 수 있는 본 발명의 일 형태인 합성 방법(합성 스킴 (A-1) 및 합성 스킴 (A-2)로 표시됨)을 이용함으로써, 불순물이 저감된 다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체를 합성할 수 있다.

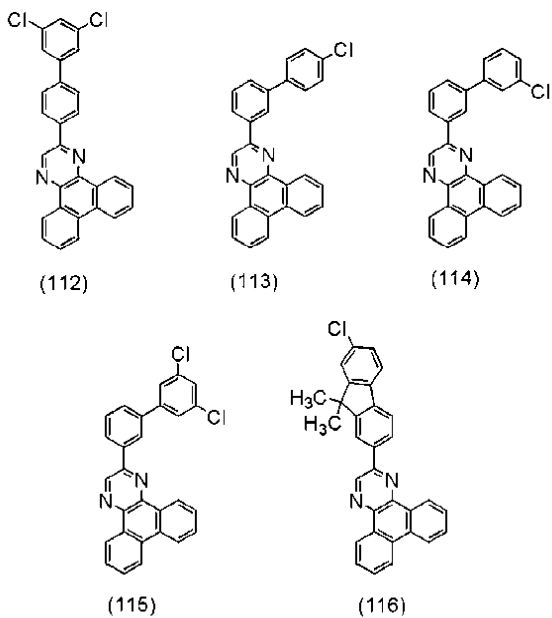
[0061] 또한, 2-(클로로아릴)다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체(일반식 (G0))는 유용한 신규 화합물이며, 본 발명의 일 형태이다. 상술한 합성 방법에 있어서, 합성 스킴 (A-1)에서 사용한 화합물(일반식 (A1) 및 일반식 (A2))은 다양한 종류가 시판되어 있거나 합성 가능하기 때문에, 이들을 사용하면 2-(클로로아릴)다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체(일반식 (G0))로서 수많은 종류의 합성이 가능하다. 아래에, 일반식 (G0)으로 표시되는 2-(클로로아릴)다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체의 구체적인 구조식을 제시한다(하기 구조식 (100)~(116)). 다만, 본 발명의 일 형태는 이들에 한정되지 않는다.

[0062] [화학식 10]



[0063]

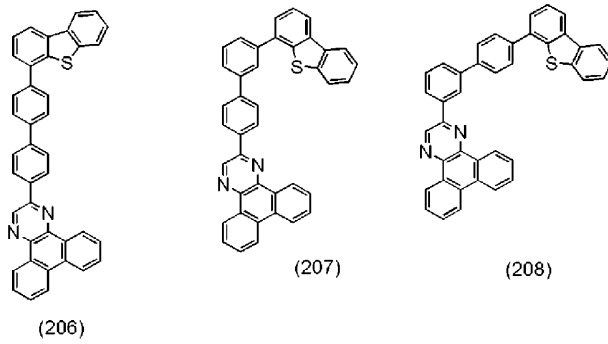
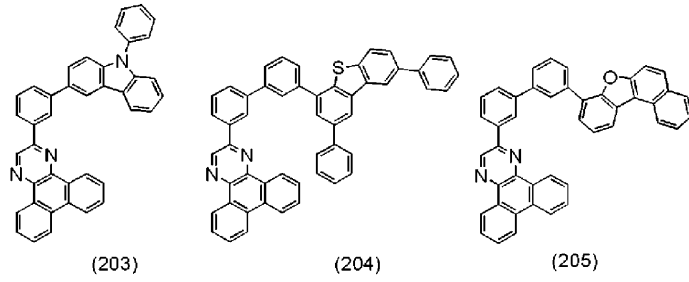
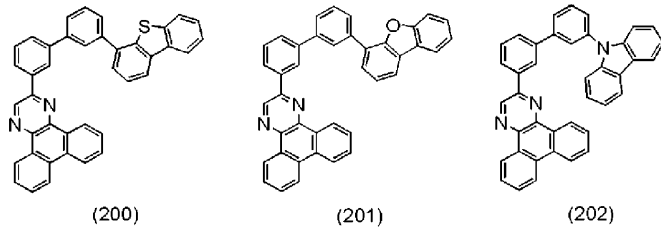
[0064] [화학식 11]



[0065]

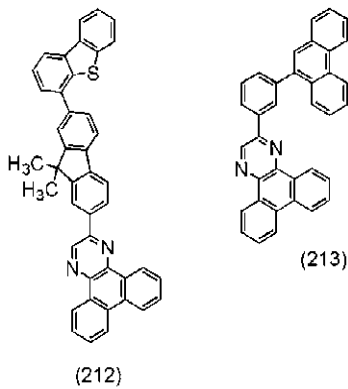
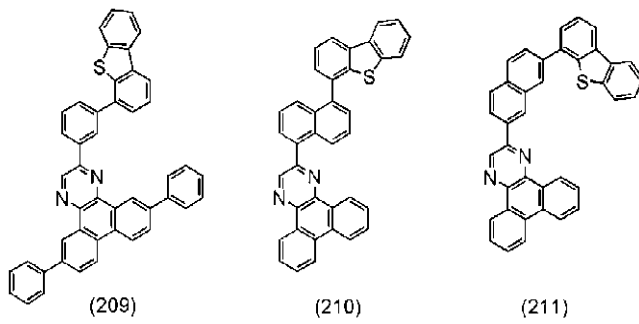
[0066] 또한, 본 발명의 일 형태인 합성 방법에 있어서, 상술한 2-(클로로아릴)다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체(일반식 (G0))를 중간체로서 거쳐 얻어지는 다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체(일반식 (G1))의 구체적인 구조식을 아래에 제시한다(하기 구조식 (200)~(213)). 다만, 본 발명의 일 형태는 이들에 한정되지 않는다.

[0067] [화학식 12]



[0068]

[0069] [화학식 13]



[0070]

[0071] 또한, 본 발명의 일 형태인 합성 방법에 의하여 합성되는 다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체(일반식 (G1))는 그 분

자량이 400 이상 2000 이하인 것이 바람직하다. 이는 분자량이 400 미만인 경우, 발광 소자를 제작할 때의 결정화 등에 의하여 막질이 저하되어 신뢰성에 악영향을 미치기 때문이다. 또한, 분자량이 2000보다 큰 경우, 승화 정제나 진공 증착이 어려워지기 때문이다.

- [0072] 이상에서는 본 발명의 일 형태인 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체의 합성 방법에 대하여 설명하였지만, 이 합성 방법에서는 합성 중간체로서 2-(클로로아릴)다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체를 생성하기 때문에, 최종 생성물에 함유되는 불순물을 용이하게 제거할 수 있다.
- [0073] 즉, 본 발명의 일 형태인 합성 방법에 의하여 얻어진 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체(즉, 다이벤조[f,h]퀴녹살린 골격의 2위치에 아릴기를 갖고, 상기 아릴기가 치환기로서 아릴기 또는 헤테로아릴기를 적어도 하나 갖는 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체)는 상술한 본 발명의 일 형태인 합성 방법에 의하여, 염소 함유량을 10ppm 이하로 할 수 있다.
- [0074] 또한, 본 발명의 일 형태인 합성 방법에 의하여, 불순물이 저감된 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체를 합성할 수 있기 때문에, 얻어진 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체를 EL 재료로서 사용함으로써, 발광 효율 및 신뢰성이 높은 발광 소자, 발광 장치, 전자 기기, 또는 조명 장치를 실현할 수 있다. 또한, 소비 전력이 낮은 발광 소자, 발광 장치, 전자 기기, 또는 조명 장치를 실현할 수 있다.
- [0075] 본 실시형태에 제시된 구성은 다른 실시형태에 제시되는 구성과 적절히 조합하여 사용할 수 있다.
- [0076] (실시형태 2)
- [0077] 본 실시형태에서는 본 발명의 일 형태인 합성 방법에 의하여 얻어진 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체(즉, 다이벤조[f,h]퀴녹살린 골격의 2위치에 아릴기를 갖고, 상기 아릴기가 치환기로서 아릴기 또는 헤테로아릴기를 적어도 하나 갖는 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체)를 EL 재료로서 사용할 수 있는 발광 소자의 일 형태에 대하여 도 1을 참조하여 설명한다.
- [0078] 본 실시형태에 제시되는 발광 소자는, 도 1에 도시된 바와 같이 한 쌍의 전극(제 1 전극(양극)(101)과 제 2 전극(음극)(103)) 사이에 발광층(113)을 함유한 EL층(102)이 제공되고, EL층(102)은 발광층(113)뿐만 아니라 정공(또는 홀) 주입층(111), 정공(또는 홀) 수송층(112), 전자 수송층(114), 전자 주입층(115) 등을 포함하여 형성된다.
- [0079] 이러한 발광 소자에 전압을 인가함으로써, 제 1 전극(101) 측으로부터 주입된 정공과 제 2 전극(103) 측으로부터 주입된 전자가 발광층(113)에서 재결합되어 발광층(113)에 함유되는 발광 물질이 여기 상태가 된다. 그리고, 여기 상태의 발광 물질이 기저 상태로 되돌아올 때에 발광한다.
- [0080] 또한, 본 발명의 일 형태인 합성 방법에 의하여 합성되는 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체는 본 실시형태에서 설명하는 EL층(102) 중 1층 또는 복수 층에 사용할 수 있으나, 발광층(113), 정공(또는 홀) 수송층(112), 또는 전자 수송층(114)에 사용하는 것이 더 바람직하다. 즉, 아래에 설명하는 발광 소자의 구성의 일부에 사용하기로 한다.
- [0081] 또한, 특히 본 발명의 일 형태인 합성 방법에 의하여 얻어진 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체를 발광층에 사용함으로써, 본 발명의 일 형태에 따른 발광층에 주성분으로서 함유되는 물질의 염소 함유량을 10ppm 이하로 할 수 있고, 이로써 10mA/cm²의 전류 밀도로 전류를 200시간 흘린 후에 초기 휘도의 90% 이상의 휘도를 유지하는 발광 소자를 제작할 수 있다.
- [0082] 즉, 본 발명의 발광 소자의 일 형태는 한 쌍의 전극 사이에 EL층이 개재된 발광 소자이며, 상기 EL층에 적어도 구비되는 발광층에 주성분으로서 함유되는 물질의 염소 함유량을 10ppm 이하로 함으로써, 10mA/cm²의 전류 밀도로 전류를 200시간 흘린 후에 초기 휘도의 90% 이상의 휘도를 유지하는, 발광 소자이다.
- [0083] 또한, 본 발명의 발광 소자의 일 형태는 한 쌍의 전극 사이에 EL층이 개재된 발광 소자이며, 상기 EL층에 적어도 구비되는 발광층에 주성분으로서 사용되는 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체(예를 들어 일반식 (G1))의 염소 함유량을 10ppm 이하로 함으로써, 10mA/cm²의 전류 밀도로 전류를 200시간 흘린 후에 초기 휘도의 90% 이상의 휘도를 유지하는, 발광 소자이다.
- [0084] 아래에, 본 실시형태에 제시되는 발광 소자를 제작하기 위한 구체적인 예를 설명한다.
- [0085] 제 1 전극(양극)(101) 및 제 2 전극(음극)(103)에는 금속, 합금, 전기 전도성 화합물, 및 이들의 혼합물 등을

사용할 수 있다. 구체적으로는 인듐 주석 산화물(ITO: Indium Tin Oxide), 실리콘 또는 산화 실리콘을 함유한 인듐 주석 산화물, 인듐 아연 산화물(Indium Zinc Oxide), 산화 텅스텐 및 산화 아연을 함유한 산화 인듐, 금(Au), 백금(Pt), 니켈(Ni), 텅스텐(W), 크롬(Cr), 몰리브덴(Mo), 철(Fe), 코발트(Co), 구리(Cu), 팔라듐(Pd), 티타늄(Ti) 외에도, 원소 주기율표의 1족 또는 2족에 속하는 원소, 즉 리튬(Li)이나 세슘(Cs) 등의 알칼리 금속, 및 칼슘(Ca), 스트론튬(Sr) 등의 알칼리 토금속, 마그네슘(Mg), 및 이들 중 어느 것을 함유한 합금(MgAg, AlLi), 유로퓸(Eu), 이테르븀(Yb) 등의 희토류 금속 및 이들 중 어느 것을 함유한 합금, 그래핀 등을 사용할 수 있다. 또한, 제 1 전극(양극)(101) 및 제 2 전극(음극)(103)은 예를 들어, 스퍼터링법이나 증착법(진공 증착법을 포함함) 등에 의하여 형성할 수 있다.

[0086] 정공 주입층(111)은 정공 수송성이 높은 정공 수송층(112)을 통하여 발광층(113)에 정공을 주입하는 층이며, 정공 수송성이 높은 물질과 억셉터 물질을 함유한 층이다. 정공 수송성이 높은 물질과 억셉터 물질을 함유함으로써, 억셉터 물질에 의하여 정공 수송성이 높은 물질로부터 전자가 뽑아내어 정공(홀)이 발생되어, 정공 수송층(112)을 통하여 발광층(113)에 정공이 주입된다. 또한, 정공 수송층(112)은 정공 수송성이 높은 물질을 사용하여 형성된다.

[0087] 정공 주입층(111) 및 정공 수송층(112)에 사용하는 정공 수송성이 높은 물질로서는 예를 들어, 4,4'-비스[N-(1-나프틸)-N-페닐아미노]바이페닐(약칭: NPB 또는 α -NPD)이나 N,N'-비스(3-메틸페닐)-N,N'-다이페닐-[1,1'-바이페닐]-4,4'-다이아민(약칭: TPD), 4,4',4''-트리스(카바졸-9-일)트라이페닐아민(약칭: TCTA), 4,4',4''-트리스(N,N'-다이페닐아미노)트라이페닐아민(약칭: TDATA), 4,4',4''-트리스[N-(3-메틸페닐)-N-페닐아미노]트라이페닐아민(약칭: MTDATA), 4,4'-비스[N-(스피로-9,9'-바이플루오렌-2-일)-N-페닐아미노]바이페닐(약칭: BSPB) 등의 방향족 아민 화합물, 3-[N-(9-페닐카바졸-3-일)-N-페닐아미노]-9-페닐카바졸(약칭: PCzPCA1), 3,6-비스[N-(9-페닐카바졸-3-일)-N-페닐아미노]-9-페닐카바졸(약칭: PCzPCA2), 3-[N-(1-나프틸)-N-(9-페닐카바졸-3-일)아미노]-9-페닐카바졸(약칭: PCzPCN1) 등을 들 수 있다. 또한, 4,4'-다이(N-카바졸일)바이페닐(약칭: CBP), 1,3,5-트리스[4-(N-카바졸일)페닐]벤젠(약칭: TCPB), 9-[4-(10-페닐-9-안트라센일)페닐]-9H-카바졸(약칭: CzPA) 등의 카바졸 유도체 등을 사용할 수 있다. 여기에 든 물질은 주로 $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 이상의 정공 이동도를 갖는 물질이다. 다만, 전자보다 정공의 수송성이 높은 물질이면 이들 이외의 물질을 사용하여도 좋다.

[0088] 또한, 폴리(N-바이닐카바졸)(약칭: PVK), 폴리(4-바이닐트라이페닐아민)(약칭: PVTPA), 폴리[N-(4-{N'-[4-(4-다이페닐아미노)페닐]페닐-N'-페닐아미노}페닐)메타크릴아마이드](약칭: PTPDMA), 폴리[N,N'-비스(4-부틸페닐)-N,N'-비스(페닐)벤지딘](약칭: Poly-TPD) 등의 고분자 화합물을 사용할 수도 있다.

[0089] 또한, 정공 주입층(111)에 사용하는 억셉터 물질로서는, 전이 금속 산화물이나 원소 주기율표에서 4족~8족에 속하는 금속의 산화물을 들 수 있다. 구체적으로는, 특히 산화 몰리브덴이 바람직하다.

[0090] 발광층(113)은 발광 물질을 함유한 층이다. 발광층(113)은 발광 물질만으로 구성되어도 좋고, 호스트 재료 중에 발광 중심 물질(게스트 재료)이 분산된 상태로 구성되어도 좋다. 또한, 호스트 재료로서는 삼중항 여기 에너지가 큰 물질을 사용하는 것이 바람직하다.

[0091] 발광층(113)에 있어서 발광 물질 및 발광 중심 물질로서 사용할 수 있는 재료에는 특별한 제한은 없으며, 일중항 여기 에너지를 발광으로 변환하는 발광 물질, 또는 삼중항 여기 에너지를 발광으로 변환하는 발광 물질을 사용할 수 있다. 또한, 상기 발광 물질 및 발광 중심 물질로서는, 예를 들어 아래와 같은 것을 들 수 있다.

[0092] 일중항 여기 에너지를 발광으로 변환하는 발광 물질로서는, 예를 들어 형광을 발하는 물질을 들 수 있다.

[0093] 형광을 발하는 물질로서는, N,N'-비스[4-(9H-카바졸-9-일)페닐]-N,N'-다이페닐스티벤-4,4'-다이아민(약칭: YGA2S), 4-(9H-카바졸-9-일)-4'-(10-페닐-9-안트릴)트라이페닐아민(약칭: YGAPA), 4-(9H-카바졸-9-일)-4'-(9,10-다이페닐-2-안트릴)트라이페닐아민(약칭: 2YGAPPA), N,9-다이페닐-N-[4-(10-페닐-9-안트릴)페닐]-9H-카바졸-3-아민(약칭: PCAPA), 페릴렌, 2,5,8,11-테트라(tert-부틸)페릴렌(약칭: TBP), 4-(10-페닐-9-안트릴)-4'-(9-페닐-9H-카바졸-3-일)트라이페닐아민(약칭: PCBAPA), N,N''-(2-tert-부틸안트라센-9,10-다이일다이-4,1-페닐렌)비스[N,N',N'-트라이페닐-1,4-페닐렌다이아민](약칭: DPABPA), N,9-다이페닐-N-[4-(9,10-다이페닐-2-안트릴)페닐]-9H-카바졸-3-아민(약칭: 2PCAPPA), N-[4-(9,10-다이페닐-2-안트릴)페닐]-N,N',N'-트라이페닐-1,4-페닐렌다이아민(약칭: 2DPAPPA), N,N,N',N',N'',N''',N''''-옥타페닐다이벤조[g,p]크리센-2,7,10,15-테트라아민(약칭: DBC1), 쿠마린 30, N-(9,10-다이페닐-2-안트릴)-N,9-다이페닐-9H-카바졸-3-아민(약칭: 2PCAPA), N-[9,10-비스(1,1'-바이페닐-2-일)-2-안트릴]-N,9-다이페닐-9H-카바졸-3-아민(약칭: 2PCABPhA), N-(9,10-다이페닐-2-안트릴)-N,N',N'-트라이페닐-1,4-페닐렌다이아민(약칭: 2DPAPA), N-[9,10-비스(1,1'-바이페닐-2-일)-2-안

트릴]-N,N',N'-트라이페닐-1,4-페닐렌다이아민(약칭: 2DPABPhA), 9,10-비스(1,1'-바이페닐-2-일)-N-[4-(9H-카바졸-9-일)페닐]-N-페닐안트라센-2-아민(약칭: 2YGABPhA), N,N,9-트라이페닐안트라센-9-아민(약칭: DPhAPhA), 쿠마린 545T, N,N'-다이페닐퀴나크리돈(약칭: DPQd), 루브렌, 5,12-비스(1,1'-바이페닐-4-일)-6,11-다이페닐테트라센(약칭: BPT), 2-(2-{2-[4-(다이메틸아미노)페닐]에텐일}-6-메틸-4H-피란-4-일리텐)프로판다이 나이트릴(약칭: DCM1), {2-메틸-6-[2-(2,3,6,7-테트라하이드로-1H,5H-벤조[ij]퀴놀리진-9-일)에텐일]-4H-피란-4-일리텐}프로판다이 나이트릴(약칭: DCM2), N,N,N',N'-테트라키스(4-메틸페닐)테트라센-5,11-다이아민(약칭: p-mPhTD), 7,14-다이페닐-N,N,N',N'-테트라키스(4-메틸페닐)아세나프토[1,2-a]플루오란텐-3,10-다이아민(약칭: p-mPhAFD), {2-아이소프로필-6-[2-(1,1,7,7-테트라메틸-2,3,6,7-테트라하이드로-1H,5H-벤조[ij]퀴놀리진-9-일)에텐일]-4H-피란-4-일리텐}프로판다이 나이트릴(약칭: DCJTI), {2-tert-부틸-6-[2-(1,1,7,7-테트라메틸-2,3,6,7-테트라하이드로-1H,5H-벤조[ij]퀴놀리진-9-일)에텐일]-4H-피란-4-일리텐}프로판다이 나이트릴(약칭: DCJTB), 2-(2,6-비스{2-[4-(다이메틸아미노)페닐]에텐일}-4H-피란-4-일리텐)프로판다이 나이트릴(약칭: BisDCM), 2-{2,6-비스[2-(8-메톡시-1,1,7,7-테트라메틸-2,3,6,7-테트라하이드로-1H,5H-벤조[ij]퀴놀리진-9-일)에텐일]-4H-피란-4-일리텐}프로판다이 나이트릴(약칭: BisDCJTM) 등을 들 수 있다.

[0094] 삼중항 여기 에너지를 발광으로 변환하는 발광 물질로서는, 예를 들어 인광을 발하는 물질이나 열 활성화 지연 형광을 나타내는 열 활성화 지연 형광(TADF) 재료를 들 수 있다. 또한, TADF 재료에서 지연 형광이란, 일반적인 형광과 같은 스펙트럼을 가지면서도 수명이 현저하게 긴 발광을 말한다. 그 수명은 10^{-6} 초 이상, 바람직하게는 10^{-3} 초 이상이다.

[0095] 인광을 발하는 물질로서는, 비스{2-[3',5'-비스(트라이플루오로메틸)페닐]피리디나토-N,C^{2'}}이리듐(III)피콜리네이트(약칭: Ir(CF₃ppy)₂(pic)), 비스[2-(4',6'-다이플루오로페닐)피리디나토-N,C^{2'}]이리듐(III)아세틸아세토네이트(약칭: FIracac), 트리스(2-페닐피리디나토)이리듐(III)(약칭: Ir(ppy)₃), 비스(2-페닐피리디나토)이리듐(III)아세틸아세토네이트(약칭: Ir(ppy)₂(acac)), 트리스(아세틸아세토나토)(모노페난트롤린)테르븀(III)(약칭: Tb(acac)₃(Phen)), 비스(벤조[h]퀴놀리나토)이리듐(III)아세틸아세토네이트(약칭: Ir(bzq)₂(acac)), 비스(2,4-다이페닐-1,3-옥사졸라토-N,C^{2'})이리듐(III)아세틸아세토네이트(약칭: Ir(dpo)₂(acac)), 비스{2-[4'-(피플루오로페닐)페닐]피리디나토-N,C^{2'}}이리듐(III)아세틸아세토네이트(약칭: Ir(p-PF-ph)₂(acac)), 비스(2-페닐벤조티아졸라토-N,C^{2'})이리듐(III)아세틸아세토네이트(약칭: Ir(bt)₂(acac)), 비스[2-(2'-벤조[4,5-a]티에닐)피리디나토-N,C^{3'}]이리듐(III)아세틸아세토네이트(약칭: Ir(btp)₂(acac)), 비스(1-페닐아이소퀴놀리나토-N,C^{2'})이리듐(III)아세틸아세토네이트(약칭: Ir(piq)₂(acac)), (아세틸아세토나토)비스[2,3-비스(4-플루오로페닐)퀴녹살리나토]이리듐(III)(약칭: Ir(Fdpp)₂(acac)), (아세틸아세토나토)비스(3,5-다이메틸-2-페닐피라지나토)이리듐(III)(약칭: [Ir(mppr-Me)₂(acac)]), (아세틸아세토나토)비스(5-아이소프로필-3-메틸-2-페닐피라지나토)이리듐(III)(약칭: [Ir(mppr-iPr)₂(acac)]), (아세틸아세토나토)비스(2,3,5-트라이페닐피라지나토)이리듐(III)(약칭: Ir(tppr)₂(acac)), 비스(2,3,5-트라이페닐피라지나토)(다이피발로일메타나토)이리듐(III)(약칭: [Ir(tppr)₂(dpm)]), (아세틸아세토나토)비스(6-tert-부틸-4-페닐피리미디나토)이리듐(III)(약칭: [Ir(tBuppm)₂(acac)]), (아세틸아세토나토)비스(4,6-다이페닐피리미디나토)이리듐(III)(약칭: [Ir(dppm)₂(acac)]), 2,3,7,8,12,13,17,18-옥타에틸-21H,23H-포르피린 백금(II)(약칭: PtOEP), 트리스(1,3-다이페닐-1,3-프로판디오나토)(모노페난트롤린)유로퓸(III)(약칭: Eu(DBM)₃(Phen)), 트리스[1-(2-테노일)-3,3,3-트라이플루오로아세토나토](모노페난트롤린)유로퓸(III)(약칭: Eu(TTA)₃(Phen)) 등을 들 수 있다.

[0096] 또한, 상기 삼중항 여기 에너지를 발광으로 변환하는 발광 물질을 분산 상태로 하기 위하여 사용하는 물질(즉 호스트 재료)로서는 예를 들어, 2,3-비스(4-다이페닐아미노페닐)퀴녹살린(약칭: TPAQn), NPB 등 아릴아민 골격을 갖는 화합물 외에, CBP, 4,4',4''-트리스(카바졸-9-일)트라이페닐아민(약칭: TCTA) 등의 카바졸 유도체나, 비스[2-(2-하이드록시페닐)피리디나토]아연(약칭: Znpp₂), 비스[2-(2-하이드록시페닐)벤즈옥사졸라토]아연(약칭: Zn(BOX)₂),

비스(2-메틸-8-퀴놀리놀라토)(4-페닐페놀라토)알루미늄(약칭: Alq_3), 트리스(8-퀴놀리놀라토)알루미늄(약칭: Alq_3) 등의 금속 착체가 바람직하다. 또한, PVK 등 고분자 화합물을 사용할 수도 있다.

[0097] 또한, TADF 재료로서는, 예를 들어 풀러렌이나 그 유도체, 프로플라빈 등의 아크리딘 유도체, 에오신 등을 들 수 있다. 또한, 마그네슘(Mg), 아연(Zn), 카드뮴(Cd), 주석(Sn), 백금(Pt), 인듐(In), 또는 팔라듐(Pd) 등을 함유한 금속 함유 포르피린을 들 수 있다. 상기 금속 함유 포르피린으로서, 예를 들어 프로토포르피린 불화 주석 착체($SnF_2(Proto IX)$), 메소포르피린 불화 주석 착체($SnF_2(Meso IX)$), 헤마토포르피린 불화 주석 착체($SnF_2(Hemato IX)$), 코프로포르피린테트라메틸에스테르 불화 주석 착체($SnF_2(Copro III-4Me)$), 옥타에틸포르피린 불화 주석 착체($SnF_2(OEP)$), 에티오포르피린 불화 주석 착체($SnF_2(Etio I)$), 옥타에틸포르피린 염화 백금 착체($PtCl_2OEP$) 등을 들 수 있다. 또한, 2-(바이페닐-4-일)-4,6-비스(12-페닐인드로[2,3-a]카바졸-11-일)-1,3,5-트리아진(PIC-TRZ) 등의 π 전자 과잉형 복소 방향환 및 π 전자 부족형 복소 방향환을 갖는 복소환 화합물을 사용할 수도 있다. 또한, π 전자 과잉형 복소 방향환과 π 전자 부족형 복소 방향환이 직접 결합된 물질은, π 전자 과잉형 복소 방향환의 도너성과 π 전자 부족형 복소 방향환의 억셉터성의 양쪽이 강해져 S1과 T1의 에너지 차이가 작아지므로 특히 바람직하다.

[0098] 또한, 발광층(113)에 상술한 일중항 여기 에너지를 발광으로 변환하는 발광 물질이나 삼중항 여기 에너지를 발광으로 변환하는 발광 물질(게스트 재료)과 호스트 재료가 함유되면, 발광층(113)으로부터 발광 효율이 높은 발광을 얻을 수 있다.

[0099] 전자 수송층(114)은 전자 수송성이 높은 물질을 함유한 층이다. 전자 수송층(114)에는 Alq_3 , 트리스(4-메틸-8-퀴놀리놀라토)알루미늄(약칭: $Almq_3$), 비스(10-하이드록시벤조[h]퀴놀리나토)베릴륨(약칭: $BeBq_2$), Alq , $Zn(BOX)_2$, 비스[2-(2-하이드록시페닐)벤조티아졸라토]아연(약칭: $Zn(BTZ)_2$) 등의 금속 착체를 사용할 수 있다. 또한, 2-(4-바이페닐일)-5-(4-tert-부틸페닐)-1,3,4-옥사다이아졸(약칭: PBD), 1,3-비스[5-(p-tert-부틸페닐)-1,3,4-옥사다이아졸-2-일]벤젠(약칭: OXD-7), 3-(4-tert-부틸페닐)-4-페닐-5-(4-바이페닐일)-1,2,4-트리아졸(약칭: TAZ), 3-(4-tert-부틸페닐)-4-(4-에틸페닐)-5-(4-바이페닐일)-1,2,4-트리아졸(약칭: p-EtTAZ), 바소페난트롤린(약칭: BPhen), 바소큐프로인(약칭: BCP), 4,4'-비스(5-메틸벤즈옥사졸-2-일)스틸벤(약칭: BzOs) 등의 복소 방향족 화합물도 사용할 수 있다. 또한, 폴리(2,5-피리딘다이일)(약칭: PPy), 폴리[(9,9-다이옥실플루오렌-2,7-다이일)-co-(피리딘-3,5-다이일)](약칭: PF-Py), 폴리[(9,9-다이옥실플루오렌-2,7-다이일)-co-(2,2'-바이피리딘-6,6'-다이일)](약칭: PF-BPy) 등의 고분자 화합물을 사용할 수도 있다. 여기에 든 물질은 주로 $1 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 이상의 전자 이동도를 갖는 물질이다. 또한, 정공보다 전자의 수송성이 높은 물질이면 상술한 물질 이외의 물질을 전자 수송층(114)에 사용하여도 좋다.

[0100] 또한, 전자 수송층(114)은 단층에 한정되지 않으며, 상기 물질을 함유한 층이 2층 이상 적층된 것이어도 좋다.

[0101] 전자 주입층(115)은 전자 주입성이 높은 물질을 함유한 층이다. 전자 주입층(115)에는 불화 리튬(LiF), 불화 세슘(CsF), 불화 칼슘(CaF_2), 리튬 산화물(LiO_x) 등의 알칼리 금속, 알칼리 토금속, 또는 이들의 화합물을 사용할 수 있다. 또한, 불화 에르븀(ErF_3) 등의 희토류 금속 화합물을 사용할 수 있다. 또한, 전자 주입층(115)에 전자화물(electride)을 사용하여도 좋다. 상기 전자화물로서는 예를 들어, 칼슘과 알루미늄의 혼합 산화물에 전자가 고농도로 첨가된 물질 등을 들 수 있다. 또한, 상술한 전자 수송층(114)에 사용되는 물질을 사용할 수도 있다.

[0102] 또한, 전자 주입층(115)에, 유기 화합물과 전자 공여체(도너)를 혼합하여 이루어진 복합 재료를 사용하여도 좋다. 이러한 복합 재료는 전자 공여체에 의하여 유기 화합물에 전자가 발생되기 때문에, 전자 주입성 및 전자 수송성이 우수하다. 이 경우, 유기 화합물로서는, 발생된 전자의 수송에 우수한 재료인 것이 바람직하고, 구체적으로는, 예를 들어, 상술한 전자 수송층(114)에 사용되는 물질(금속 착체나 복소 방향족 화합물 등)을 사용할 수 있다. 전자 공여체로서는, 유기 화합물에 대하여 전자 공여성을 나타내는 물질이면 된다. 구체적으로는, 알칼리 금속이나 알칼리 토금속이나 희토류 금속이 바람직하고, 리튬, 세슘, 마그네슘, 칼슘, 에르븀, 이테르븀 등을 들 수 있다. 또한, 알칼리 금속 산화물이나 알칼리 토금속 산화물이 바람직하고, 리튬 산화물, 칼슘 산화물, 바륨 산화물 등을 들 수 있다. 또한, 산화 마그네슘 등의 루이스 염기를 사용할 수도 있다. 또한, 테트라티아폴바렌(약칭: TTF) 등의 유기 화합물을 사용할 수도 있다.

[0103] 또한, 상술한 정공 주입층(111), 정공 수송층(112), 발광층(113), 전자 수송층(114), 전자 주입층(115)은 각각

증착법(진공 증착법을 포함함), 잉크젯법, 도포법 등의 방법으로 형성할 수 있다.

- [0104] 상술한 발광 소자는 제 1 전극(101)과 제 2 전극(103) 사이에 발생한 전위차에 기인하여 전류가 흘러 EL층(102)에서 정공과 전자가 재결합되어 발광이 이루어진다. 그리고, 이 발광은 제 1 전극(101) 및 제 2 전극(103) 중 어느 하나 또는 양쪽 모두를 통하여 외부로 추출된다. 따라서, 제 1 전극(101) 및 제 2 전극(103) 중 어느 하나 또는 양쪽 모두는 투광성을 갖는다.
- [0105] 또한, 본 실시형태에 제시되는 발광 소자는 본 발명의 일 형태인 합성 방법에 의하여 얻어진 다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체를 EL 재료로서 사용한 발광 소자의 일례이다. 또한, 상기 발광 소자를 구비한 발광 장치의 구성으로서, 패시브 매트릭스형(passive matrix) 발광 장치나 액티브 매트릭스형(active matrix) 발광 장치뿐만 아니라, 마이크로 캐비티 구조의 발광 소자를 구비한 발광 장치 등을 제작할 수 있고, 이들은 모두 본 발명의 일 형태에 포함되는 것으로 한다.
- [0106] 또한, 액티브 매트릭스형 발광 장치에서 트랜지스터(FET)의 구조에 특별한 제한은 없다. 예를 들어, 스테거형 FET나 역스태거형 FET를 적절히 사용할 수 있다. 또한, FET 기판에 형성되는 구동용 회로도 N형 FET 및 P형 FET로 이루어져도 좋고, N형 FET 및 P형 FET 중 어느 하나로 이루어져도 좋다. 또한, FET에 사용되는 반도체막의 결정성에 대해서도 특별한 제한은 없다. 예를 들어, 비정질 반도체막, 결정성 반도체막을 사용할 수 있다. 또한, 반도체 재료로서는 IV족(실리콘 등) 반도체, III족(갈륨 등) 반도체, 화합물 반도체(산화물 반도체를 포함함)뿐만 아니라 유기 반도체 등을 사용할 수 있다.
- [0107] 또한, 본 실시형태에 제시된 구성은 다른 실시형태에 제시되는 구성과 적절히 조합하여 사용할 수 있다.
- [0108] (실시형태 3)
- [0109] 본 실시형태에서는 본 발명의 일 형태인 합성 방법에 의하여 얻어진 다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체를 EL 재료로서 EL층에 사용하고, 전하 발생층을 사이에 개재한 복수의 EL층을 갖는 구조의 발광 소자(아래에서는 탠덤 발광 소자라고 함)를 제작하는 경우에 대하여 설명한다.
- [0110] 본 실시형태에 제시되는 발광 소자는 도 2의 (A)에 도시된 바와 같이 한 쌍의 전극(제 1 전극(201)과 제 2 전극(204)) 사이에 복수의 EL층(제 1 EL층(202(1)), 제 2 EL층(202(2)))을 구비하는 탠덤 발광 소자이다.
- [0111] 본 실시형태에 있어서 제 1 전극(201)은 양극으로서 기능하고 제 2 전극(204)은 음극으로서 기능한다. 또한, 제 1 전극(201) 및 제 2 전극(204)의 구성은 실시형태 2와 같은 구성으로 할 수 있다. 또한, 복수의 EL층(제 1 EL층(202(1)), 제 2 EL층(202(2)))의 구성은 실시형태 2에 제시된 EL층과 같은 구성으로 하여도 좋지만, 어느 하나가 같은 구성이어도 좋다. 즉, 제 1 EL층(202(1))과 제 2 EL층(202(2))은 서로 같은 구성이든 다른 구성이든 어느 쪽이라도 좋고, 이들의 구성은 실시형태 2에 제시된 것과 같은 것을 적용할 수 있다.
- [0112] 또한, 복수의 EL층(제 1 EL층(202(1))과 제 2 EL층(202(2))) 사이에 전하 발생층(205)이 제공되어 있다. 전하 발생층(205)은 제 1 전극(201)과 제 2 전극(204) 사이에 전압이 인가되었을 때, 한쪽 EL층에 전자를 주입하고 다른 쪽 EL층에 정공을 주입하는 기능을 갖는다. 본 실시형태에서는, 제 1 전극(201)의 전위가 제 2 전극(204)의 전위보다 높게 되도록 전압을 인가하면, 전하 발생층(205)으로부터 제 1 EL층(202(1))에 전자가 주입되고 제 2 EL층(202(2))에 정공이 주입된다.
- [0113] 또한, 전하 발생층(205)은 광 추출 효율의 관점에서, 가시광에 대한 투광성을 갖는 것(구체적으로는, 전하 발생층(205)에 대한 가시광의 투과율이 40% 이상)이 바람직하다. 또한, 전하 발생층(205)은 제 1 전극(201)이나 제 2 전극(204)보다 도전율이 낮아도 기능한다.
- [0114] 전하 발생층(205)은 정공 수송성이 높은 유기 화합물에 전자 수용체(억셉터)가 첨가된 구성이어도 좋고, 전자 수송성이 높은 유기 화합물에 전자 공여체(도너)가 첨가된 구성이어도 좋다. 또한, 이들 양쪽 구성의 적층이어도 좋다.
- [0115] 정공 수송성이 높은 유기 화합물에 전자 수용체가 첨가된 구성으로 하는 경우에, 정공 수송성이 높은 유기 화합물로서는, 예를 들어, NPB이나 TPD, TDATA, MTDATA, 4,4'-비스[N-(스피로-9,9'-바이플루오렌-2-일)-N-페닐아미노]바이페닐(약칭: BSPB) 등의 방향족 아민 화합물 등을 사용할 수 있다. 여기에 든 물질은 주로 $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 이상의 정공 이동도를 갖는 물질이다. 다만, 전자보다 정공의 수송성이 높은 유기 화합물이면 이들 이외의 물질을 사용하여도 좋다.
- [0116] 또한, 전자 수용체로서는, 7,7,8,8-테트라시아아노-2,3,5,6-테트라플루오로퀴노다이메탄(약칭: F₄-TCNQ), 클로

라닐 등을 들 수 있다. 또한, 전이 금속 산화물을 들 수 있다. 또한, 원소 주기율표의 4족~8족에 속하는 금속의 산화물을 들 수 있다. 구체적으로는, 산화 바나듐, 산화 니오븀, 산화 탄탈, 산화 크롬, 산화 몰리브덴, 산화 텅스텐, 산화 망간, 산화 레늄은 전자 수용성이 높으므로 바람직하다. 그 중에서도 특히 산화 몰리브덴은 대기 중에서도 안정적이고 흡습성이 낮으며 취급하기 쉬우므로 바람직하다.

[0117] 한편, 전자 수송성이 높은 유기 화합물에 전자 공여체가 첨가된 구성으로 하는 경우에, 전자 수송성이 높은 유기 화합물로서는, 예를 들어, Alq, Almq₃, BeBq₂, BA1q 등, 퀴놀린 골격 또는 벤조퀴놀린 골격을 갖는 금속 착체 등을 사용할 수 있다. 또한, 이 이외에 Zn(BOX)₂, Zn(BTZ)₂ 등의 옥사졸계, 티아졸계 리간드를 갖는 금속 착체 등도 사용할 수 있다. 또한, 금속 착체 이외에도, PBD나 OXD-7, TAZ, BPhen, BCP 등도 사용할 수 있다. 여기에 든 물질은 주로 10⁻⁶cm²/Vs 이상의 전자 이동도를 갖는 물질이다. 또한, 정공보다 전자의 수송성이 높은 유기 화합물이면, 상기 이외의 물질을 사용하여도 좋다.

[0118] 또한, 전자 공여체로서는 알칼리 금속, 알칼리 토금속, 희토류 금속, 또는 원소 주기율표의 2족, 13족에 속하는 금속 및 그 산화물, 탄산염을 사용할 수 있다. 구체적으로는, 리튬(Li), 세슘(Cs), 마그네슘(Mg), 칼슘(Ca), 이테르븀(Yb), 인듐(In), 산화 리튬, 탄산 세슘 등을 사용하는 것이 바람직하다. 또한, 테트라티아나프타센 등의 유기 화합물을 전자 공여체로서 사용하여도 좋다.

[0119] 또한, 상술한 재료를 사용하여 전하 발생층(205)을 형성함으로써, EL층이 적층된 경우에 구동 전압이 상승되는 것을 억제할 수 있다.

[0120] 본 실시형태에서는 EL층을 2층 갖는 발광 소자에 대하여 설명하였으나, 도 2의 (B)에 도시된 바와 같이 n층(다만, n은 3 이상)의 EL층(202(1)~202(n))을 적층한 발광 소자에 대해서도 마찬가지로 적용할 수 있다. 본 실시형태에 따른 발광 소자와 같이, 한 쌍의 전극 사이에 복수의 EL층을 갖는 경우, EL층과 EL층 사이에 각각 전하 발생층(205(1)~205(n-1))을 배치함으로써, 전류 밀도를 낮게 유지하면서 고휘도 영역에서의 발광이 가능하다. 전류 밀도를 낮게 유지할 수 있기 때문에, 장수명 소자를 실현할 수 있다. 또한, 상기 발광 소자를 조명으로 응용한 경우에는 전극 재료의 저항으로 인한 전압 강하를 작게 할 수 있으므로 대면적의 균일한 발광이 가능해진다. 또한, 저전압 구동이 가능하고 소비 전력이 낮은 발광 장치를 실현할 수 있다.

[0121] 또한, 각 EL층의 발광색을 다르게 함으로써, 발광 소자 전체로서 원하는 색의 발광을 얻을 수 있다. 예를 들어, 2개의 EL층을 갖는 발광 소자에 있어서, 제 1 EL층의 발광색과 제 2 EL층의 발광색이 보색의 관계가 되도록 선택함으로써, 발광 소자 전체로서 백색으로 발광하는 발광 소자를 얻는 것도 가능하다. 또한, 보색이란, 혼합하면 무채색(無彩色)이 되는 색들간의 관계를 말한다. 즉, 보색의 관계에 있는 색의 광과, 발광하는 물질로부터 얻어진 광을 혼합하면 백색 발광을 얻을 수 있다.

[0122] 또한, 3개의 EL층을 갖는 발광 소자의 경우에도 마찬가지이며, 예를 들어, 제 1 EL층의 발광색이 적색이고 제 2 EL층의 발광색이 녹색이고 제 3 EL층의 발광색이 청색인 경우, 발광 소자 전체로서는 백색 발광을 얻을 수 있다.

[0123] 본 실시형태에 제시된 구성은 다른 실시형태에 제시되는 구성과 적절히 조합하여 사용할 수 있다.

[0124] (실시형태 4)

[0125] 본 실시형태에서는 본 발명의 일 형태인 합성 방법에 의하여 얻어진 다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체를 EL 재료로서 발광층에 사용한 발광 소자를 구비하는 발광 장치에 대하여 설명한다.

[0126] 또한, 상기 발광 장치는 패시브 매트릭스형 발광 장치든 액티브 매트릭스형 발광 장치든 어느 쪽이어도 좋다. 본 실시형태에 제시되는 발광 장치에는 다른 실시형태에서 설명한 발광 소자를 사용할 수 있다.

[0127] 본 실시형태에서는 액티브 매트릭스형 발광 장치에 대하여 도 3을 참조하여 설명하기로 한다.

[0128] 또한, 도 3의 (A)는 발광 장치를 도시한 상면도이고, 도 3의 (B)는 도 3의 (A)에 도시된 쇄선 A-A' 부분의 단면도이다. 본 실시형태에 제시되는 액티브 매트릭스형 발광 장치는 소자 기관(301) 위에 형성된 화소부(302), 구동 회로부(소스선 구동 회로)(303), 및 구동 회로부(게이트선 구동 회로)(304a, 304b)를 구비한다. 화소부(302), 구동 회로부(303), 및 구동 회로부(304a, 304b)는 밀봉재(305)에 의하여 소자 기관(301)과 밀봉 기관(306) 사이에 밀봉된다.

[0129] 또한, 소자 기관(301) 위에는 구동 회로부(303) 및 구동 회로부(304a, 304b)에 외부로부터의 신호(예를 들어,

비디오 신호, 클럭 신호, 스타트 신호, 또는 리셋 신호 등)나 전위를 전달하는 외부 입력 단자를 접속하기 위한 리드(lead) 배선(307)이 제공된다. 여기서는, 외부 입력 단자로서 FPC(연성 인쇄 회로)(308)를 제공하는 예를 제시한다. 또한, 여기서는 FPC만 도시되어 있지만, 이 FPC에는 프린트 배선판(PWB)이 장착되어 있어도 좋다. 본 명세서에서 발광 장치는 발광 장치 본체뿐만 아니라, 이에 FPC 또는 PWB가 장착된 것도 그 범주에 포함한다.

[0130] 다음에, 도 3의 (B)를 참조하여 단면 구조에 대하여 설명한다. 소자 기판(301) 위에는 구동 회로부 및 화소부가 형성되어 있으며, 여기서는 소스선 구동 회로인 구동 회로부(303)와, 화소부(302)가 도시되어 있다.

[0131] 구동 회로부(303)의 구성의 예로서는 FET(309)와 FET(310)를 조합한 구성을 도시하였다. 또한, 구동 회로부(303)는 단극성(N형 및 P형 중 어느 한쪽만) 트랜지스터를 포함하는 회로로 형성되어도 좋고, N형 트랜지스터와 P형 트랜지스터를 포함하는 CMOS 회로로 형성되어도 좋다. 또한, 본 실시형태에서는 기판 위에 구동 회로를 형성한 드라이버 일체형을 제시하지만, 반드시 그럴 필요는 없으며, 기판 위가 아니라 외부에 구동 회로를 형성할 수도 있다.

[0132] 또한, 화소부(302)는 스위칭용 FET(311), 전류 제어용 FET(312), 및 전류 제어용 FET(312)의 배선(소스 전극 또는 드레인 전극)에 전기적으로 접속된 제 1 전극(양극)(313)을 포함하는 복수의 화소로 형성된다. 또한, 본 실시형태에서는 화소부(302)가 스위칭용 FET(311)와 전류 제어용 FET(312)의 2개의 FET를 포함하는 예에 대하여 설명하였으나 이에 한정되지 않는다. 예를 들어, 화소부(302)는 3개 이상의 FET와, 용량 소자를 조합하여 형성되어도 좋다.

[0133] FET(309, 310, 311, 312)로서는, 예를 들어 스테거형이나 역스테거형의 트랜지스터를 사용할 수 있다. FET(309, 310, 311, 312)에 사용할 수 있는 반도체 재료로서는, 예를 들어 IV족(실리콘 등), III족 반도체, 화합물 반도체, 산화물 반도체, 유기 반도체를 사용할 수 있다. 또한, 상기 반도체 재료의 결정성에 특별한 제한은 없으며, 예를 들어 비정질 반도체, 또는 결정성 반도체를 사용할 수 있다. 특히, FET(309, 310, 311, 312)로서는 산화물 반도체를 사용하면 바람직하다. 상기 산화물 반도체로서는, 예를 들어, In-Ga 산화물, In-M-Zn 산화물(M은, Al, Ga, Y, Zr, La, Ce, 또는 Nd) 등을 들 수 있다. FET(309, 310, 311, 312)로서, 예를 들어 에너지 갭이 2eV 이상, 바람직하게는 2.5eV 이상, 더 바람직하게는 3eV 이상인 산화물 반도체를 사용함으로써 트랜지스터의 오프 전류를 저감할 수 있다.

[0134] 또한, 제 1 전극(313)의 단부를 덮도록 절연물(314)이 형성되어 있다. 여기서는, 절연물(314)로서 포지티브형 감광성 아크릴 수지를 사용하여 형성한다. 또한, 본 실시형태에서는 제 1 전극(313)을 양극으로서 사용한다.

[0135] 또한, 절연물(314)의 상단부 또는 하단부에 곡률을 갖는 곡면이 형성되는 것이 바람직하다. 절연물(314)의 형상을 이와 같이 형성함으로써, 절연물(314)의 상층에 형성되는 막의 피복성을 양호하게 할 수 있다. 예를 들어, 절연물(314)의 재료로서 네거티브형 감광성 수지 및 포지티브형 감광성 수지 중 어느 하나를 사용할 수 있고, 유기 화합물에 한정되지 않으며 무기 화합물, 예를 들어 산화 실리콘, 산화질화 실리콘, 질화 실리콘 등을 사용할 수 있다.

[0136] 제 1 전극(양극)(313) 위에 EL층(315) 및 제 2 전극(음극)(316)이 적층되어 형성되어 있다. EL층(315)에는 적어도 발광층이 제공되어 있다. 또한, EL층(315)에는 발광층 외에도 정공 주입층, 정공 수송층, 전자 수송층, 전자 주입층, 전하 발생층 등을 적절히 제공할 수 있다.

[0137] 또한, 발광 소자(317)는 제 1 전극(양극)(313), EL층(315), 및 제 2 전극(음극)(316)이 적층된 구조로 형성되어 있다. 제 1 전극(양극)(313), EL층(315), 및 제 2 전극(음극)(316)에 사용되는 재료로서는 실시형태 2에 제시된 재료를 사용할 수 있다. 또한, 여기서는 도시되지 않았지만, 제 2 전극(음극)(316)은 외부 입력 단자인 FPC(308)에 전기적으로 접속되어 있다.

[0138] 또한, 도 3의 (B)에 도시된 단면도에서는 발광 소자(317)를 하나만 도시하였지만, 화소부(302)에서 복수의 발광 소자가 매트릭스 형태로 배치되는 것으로 한다. 화소부(302)에는 3종류(R, G, B)의 발광이 얻어지는 발광 소자를 각각 선택적으로 형성함으로써, 풀 컬러 표시가 가능한 발광 장치를 형성할 수 있다. 또한, 3종류(R, G, B)의 발광이 얻어지는 발광 소자 이외에, 예를 들어 백색(W), 황색(Y), 마젠타(M), 시안(C) 등의 발광이 얻어지는 발광 소자를 형성하여도 좋다. 예를 들어, 3종류(R, G, B)의 발광이 얻어지는 발광 소자에 상기 여러 종류의 발광이 얻어지는 발광 소자를 추가함으로써, 색 순도의 향상, 소비 전력의 절감 등의 효과를 얻을 수 있다. 또한, 컬러 필터와 조합함으로써, 풀 컬러 표시가 가능한 발광 장치로 하여도 좋다.

[0139] 또한, 밀봉 기판(306)과 소자 기판(301)을 밀봉재(305)로 접합함으로써, 소자 기판(301), 밀봉 기판(306), 및 밀봉재(305)로 둘러싸인 공간(318)에 발광 소자(317)가 구비된 구조가 되어 있다. 또한, 공간(318)에는 불활성

가스(질소나 아르곤 등)나 밀봉재(305)가 충전되는 경우도 있다.

- [0140] 또한, 밀봉재(305)에는 에폭시계 수지나 글라스 프릿을 사용하는 것이 바람직하다. 또한, 이들 재료는 가능한 수분이나 산소를 투과시키지 않는 재료인 것이 바람직하다. 또한, 밀봉 기관(306)에 사용하는 재료로서 유리 기관이나 석영 기관 외에, FRP(Fiber Reinforced Plastics), PVF(폴리바이닐플루오라이드), 폴리에스테르, 또는 아크릴 등으로 이루어진 플라스틱 기관을 들 수 있다. 밀봉재로서 글라스 프릿을 사용하는 경우에는 접착성의 관점에서 소자 기관(301) 및 밀봉 기관(306)은 유리 기관인 것이 바람직하다.
- [0141] 상술한 바와 같이 하여 액티브 매트릭스형 발광 장치를 얻을 수 있다.
- [0142] 본 실시형태에 제시된 구성은 다른 실시형태에 제시되는 구성과 적절히 조합되어 사용할 수 있다.
- [0143] (실시형태 5)
- [0144] 본 실시형태에서는 본 발명의 일 형태인 합성 방법에 의하여 얻어진 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체를 EL 재료로서 사용한 발광 장치를 사용하여 완성시킨 다양한 전자 기기의 일례에 대하여 도 4를 참조하여 설명하기로 한다.
- [0145] 발광 장치를 사용한 전자 기기로서, 예를 들어, 텔레비전 장치(텔레비전, 또는 텔레비전 수신기라고도 함), 컴퓨터용 등의 모니터, 디지털 카메라, 디지털 비디오 카메라, 디지털 포토 프레임, 휴대 전화기(휴대 전화, 휴대 전화 장치라고도 함), 휴대형 게임기, 휴대 정보 단말, 음향 재생 장치, 파친코기 등 대형 게임기 등을 들 수 있다. 이들 전자 기기의 구체적인 예를 도 4에 도시하였다.
- [0146] 도 4의 (A)는 텔레비전 장치의 일례이다. 텔레비전 장치(7100)는 하우징(7101)에 표시부(7103)가 제공된다. 표시부(7103)에 영상을 표시할 수 있으며, 발광 장치를 표시부(7103)에 사용할 수 있다. 또한, 여기서는 스탠드(7105)에 의하여 하우징(7101)을 지지한 구성을 도시하였다.
- [0147] 텔레비전 장치(7100)는 하우징(7101)에 구비되는 조작 스위치나, 별체의 리모트 컨트롤러(7110)에 의하여 조작할 수 있다. 리모트 컨트롤러(7110)에 구비되는 조작 키(7109)에 의하여 채널이나 음량을 조작할 수 있으며 표시부(7103)에 표시되는 영상을 조작할 수 있다. 또한, 리모트 컨트롤러(7110)로부터 출력하는 정보를 표시하는 표시부(7107)를 상기 리모트 컨트롤러(7110)에 제공하는 구성으로 하여도 좋다.
- [0148] 또한, 텔레비전 장치(7100)는 수신기나 모뎀 등을 구비한 구성으로 한다. 수신기에 의하여 일반적인 텔레비전 방송을 수신할 수 있고, 또한 모뎀을 통하여 유선 또는 무선으로 통신 네트워크에 접속함으로써, 단방향(송신자로부터 수신자) 또는 쌍방향(송신자와 수신자 사이, 또는 수신자들간 등)의 정보 통신도 가능하다.
- [0149] 도 4의 (B)는 컴퓨터이며, 본체(7201), 하우징(7202), 표시부(7203), 키보드(7204), 외부 접속 포트(7205), 포인팅 디바이스(7206) 등을 포함한다. 또한, 컴퓨터는 발광 장치를 그 표시부(7203)에 사용함으로써 제작할 수 있다.
- [0150] 도 4의 (C)는 스마트 워치이며, 하우징(7302), 표시 패널(7304), 조작 버튼(7311, 7312), 접속 단자(7313), 밴드(7321), 버클(7322) 등을 구비한다.
- [0151] 베젤 부분을 겸하는 하우징(7302)에 탑재된 표시 패널(7304)은 비직사각형 표시 영역을 갖는다. 표시 패널(7304)은 시각을 표시하는 아이콘(7305), 기타 아이콘(7306) 등을 표시할 수 있다.
- [0152] 또한, 도 4의 (C)에 도시된 스마트 워치는 다양한 기능을 가질 수 있다. 예를 들어, 다양한 정보(정지 화상, 동영상, 텍스트 화상 등)를 표시부에 표시하는 기능, 터치 패널 기능, 달력, 날짜, 또는 시각 등을 표시하는 기능, 다양한 소프트웨어(프로그램)에 의하여 처리를 제어하는 기능, 무선 통신 기능, 무선 통신 기능을 이용하여 다양한 컴퓨터 네트워크에 접속하는 기능, 무선 통신 기능을 이용하여 다양한 데이터의 송신 또는 수신을 수행하는 기능, 기록 매체에 기록되어 있는 프로그램 또는 데이터를 판독하여 표시부에 표시하는 기능 등을 가질 수 있다.
- [0153] 또한, 하우징(7302)은 스피커, 센서(힘, 변위, 위치, 속도, 가속도, 각속도, 회전수, 거리, 광, 액체, 자기(磁氣), 온도, 화학 물질, 음성, 시간, 경도(硬度), 전기장, 전류, 전압, 전력, 방사선, 유량, 습도, 경사도, 진동, 냄새 또는 적외선을 측정하는 기능을 포함하는 것), 마이크로폰 등을 구비할 수 있다. 또한, 스마트 워치는 발광 장치를 표시 패널(7304)에 사용하여 제작할 수 있다.
- [0154] 도 4의 (D)는 휴대 전화기의 일례이다. 휴대 전화기(7400)는 하우징(7401)에 표시부(7402), 마이크로폰(7406),

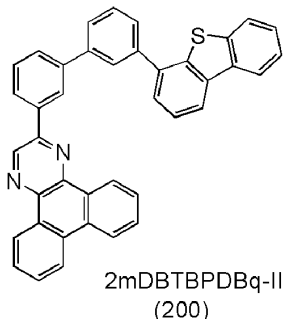
스피커(7405), 카메라(7407), 외부 접속부(7404), 조작용 버튼(7403) 등을 구비한다. 또한, 본 발명의 일 형태에 따른 발광 소자를, 가요성을 갖는 기판에 형성한 경우, 도 4의 (D)에 도시한 바와 같은 곡면을 갖는 표시부(7402)에 사용할 수 있다.

- [0155] 도 4의 (D)에 도시된 휴대 전화기(7400)는 표시부(7402)를 손가락 등으로 터치하여 정보를 입력할 수 있다. 또한, 전화를 걸거나 메일을 작성하는 등의 조작은 표시부(7402)를 손가락 등으로 터치하여 수행할 수 있다.
- [0156] 표시부(7402)의 화면은 주로 3가지 모드가 있다. 제 1 모드는 화상 표시를 주로 하는 표시 모드이고, 제 2 모드는 문자 등 정보의 입력을 주로 하는 입력 모드이다. 제 3 모드는 표시 모드와 입력 모드의 2종류의 모드가 혼합된 표시+입력 모드이다.
- [0157] 예를 들어, 전화를 걸거나 메일을 작성하는 경우에는, 표시부(7402)를 문자 입력을 주로 하는 문자 입력 모드로 하여, 화면에 표시시킨 문자의 입력 조작을 수행하면 좋다. 이 경우, 표시부(7402)의 화면의 대부분에 키보드 또는 번호 버튼을 표시시키는 것이 바람직하다.
- [0158] 또한, 휴대 전화기(7400) 내부에, 자이로(gyroscope), 가속도 센서 등 기울기를 검출하는 센서를 갖는 검출 장치를 제공함으로써, 휴대 전화기(7400)의 방향(세로인지 가로인지)을 판단하여, 표시부(7402)의 화면 표시를 자동적으로 전환하도록 할 수 있다.
- [0159] 또한, 화면 모드는 표시부(7402)를 터치하거나 하우스링(7401)의 조작 버튼(7403)을 조작함으로써 전환된다. 또한, 표시부(7402)에 표시되는 화상의 종류에 따라 전환하도록 할 수도 있다. 예를 들어, 표시부에 표시하는 화상 신호가 동영상의 데이터 신호이면 표시 모드, 텍스트 데이터 신호이면 입력 모드로 전환한다.
- [0160] 또한, 입력 모드에 있어서, 표시부(7402)의 광 센서에서 검출되는 신호를 검지하여, 표시부(7402)의 터치 조작에 의한 입력이 일정 기간 없는 경우에는, 화면의 모드를 입력 모드로부터 표시 모드로 전환하도록 제어하여도 좋다.
- [0161] 표시부(7402)는 이미지 센서로서 기능시킬 수도 있다. 예를 들어, 표시부(7402)를 손바닥이나 손가락으로 터치함으로써, 장문(掌紋), 지문 등을 촬상(撮像)하여 본인 인증을 수행할 수 있다. 또한, 표시부에 근적외광을 발광하는 백 라이트 또는 근적외광을 발광하는 센싱용 광원을 사용하면, 손가락 정맥, 손바닥 정맥 등을 촬상할 수도 있다.
- [0162] 이와 같이 하여, 본 발명의 일 형태인 제작 방법에 의하여 제작된 발광 소자를 포함하는 발광 장치를 사용하여 전자 기기를 얻을 수 있다. 또한, 발광 장치가 사용될 수 있는 전자 기기는 본 실시형태에 제시된 것에 한정되지 않으며, 다양한 분야의 전자 기기에 사용할 수 있다.
- [0163] 본 실시형태에 제시된 구성은 다른 실시형태에 제시되는 구성과 적절히 조합하여 사용할 수 있다.
- [0164] (실시형태 6)
- [0165] 본 실시형태에서는 본 발명의 일 형태인 합성 방법에 의하여 얻어진 다이벤조[f,h]퀴녹살린 유도체를 포함하는 발광 장치를 사용한 조명 장치의 일례에 대하여 도 5를 참조하여 설명하기로 한다.
- [0166] 도 5는 발광 장치를 실내 조명 장치(8001)로서 사용한 예이다. 또한, 발광 장치는 대면적화도 가능하므로 대면적의 조명 장치를 형성할 수도 있다. 또한, 곡면을 갖는 하우스링을 사용함으로써 발광 영역이 곡면을 갖는 조명 장치(8002)를 형성할 수도 있다. 본 실시형태에 제시되는 발광 장치에 포함되는 발광 소자는 박막 형상이며, 하우스링의 디자인 자유도가 높다. 따라서, 다양한 의장을 집약한 조명 장치를 형성할 수 있다. 또한, 실내의 벽면에 대형 조명 장치(8003)를 제공하여도 좋다.
- [0167] 또한, 발광 장치를 테이블의 표면에 사용함으로써 테이블로서의 기능을 구비한 조명 장치(8004)를 구현할 수 있다. 또한, 그 외의 가구의 일부에 발광 장치를 사용함으로써 가구로서의 기능을 갖는 조명 장치를 구현할 수 있다.
- [0168] 이와 같이 발광 장치를 사용한 다양한 조명 장치를 얻을 수 있다. 또한, 이러한 조명 장치는 본 발명의 일 형태에 포함된다.
- [0169] 또한, 본 실시형태에 제시된 구성은 다른 실시형태에 제시된 구성과 적절히 조합하여 사용할 수 있다.
- [0170] (실시에 1)

[0171] <<합성에 1>>

[0172] 본 실시예에서는 본 발명의 일 형태인 합성 방법으로서 2-[3'-(다이벤조티오펜-4-일)바이페닐-3-일]다이벤조[f,h]퀴놀살린(약칭: 2mDBTBPDBq-II)(구조식 (200))의 합성 방법에 대하여 설명한다. 또한, 2mDBTBPDBq-II의 구조를 아래에 제시한다.

[0173] [화학식 14]



[0174]

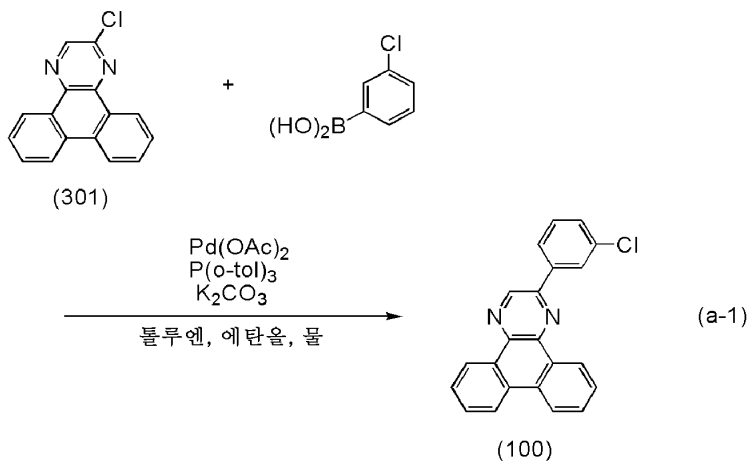
[0175] <단계 1: 2-(3-클로로페닐)다이벤조[f,h]퀴놀살린의 합성>

[0176] 우선, 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린(구조식 (301)) 19.9g(75mmol), 3-클로로페닐보론산 12.9g(82.5mmol), 탄산 칼륨 31.1g(225mmol), 톨루엔 380mL, 에탄올 100mL, 물 115mL를 1L 3구 플라스크에 넣고, 플라스크 내를 질소 치환하였다. 이 혼합물을 감압 하에서 교반하여 탈기하였다.

[0177] 다음에, 이 혼합물에 아세트산 팔라듐(II)(약칭: Pd(OAc)₂) 0.51g(2.25mmol), 트리스(2-메틸페닐)포스핀 1.53g(4.5mmol)을 첨가하였다. 이 혼합물을 질소 기류 하에서 약 80℃에서 6시간 교반하였다. 반응 후, 석출된 회색 고체를 흡인 여과에 의하여 분별하고, 그 고체를 에탄올, 물, 에탄올을 순차적으로 사용하여 세정하였다. 얻어진 고체를 감압 하에서 70℃에서 건조하여 24.3g의 목적물을 얻었고, 그 수율은 95%이었다.

[0178] 단계 1의 합성 스킴을 하기 (a-1)에 제시한다.

[0179] [화학식 15]



[0180]

[0181] 상기 단계 1에서 얻어진 회색 고체를 핵자기 공명 분광법(¹H-NMR)에 의하여 분석한 결과를 아래에 제시한다. 또한, ¹H-NMR 차트를 도 6의 (A), (B)에 나타내었다. 또한, 도 6의 (B)는 도 6의 (A) 중 가로축(δ)이 6.5(ppm) 내지 10(ppm)인 부분의 확대도이다. 이를 보면, 상기 단계 1에서 2-(3-클로로페닐)다이벤조[f,h]퀴놀살린(구조식 (100))이 얻어진 것을 알 수 있다.

[0182] ¹H-NMR(CDC₁₃, 500MHz): δ (ppm)=7.50-7.57(m, 2H), 7.74-7.85(m, 4H), 8.20(td, J=7.5Hz, 1.5Hz, 1H), 8.38(t, J=2.0Hz, 1H), 8.66(d, J=8.0Hz, 2H), 9.23(dd, J=8.0Hz, 2.0Hz, 1H), 9.36(s, 1H),

9.40(dd, J=8.5Hz, 2.0Hz, 1H).

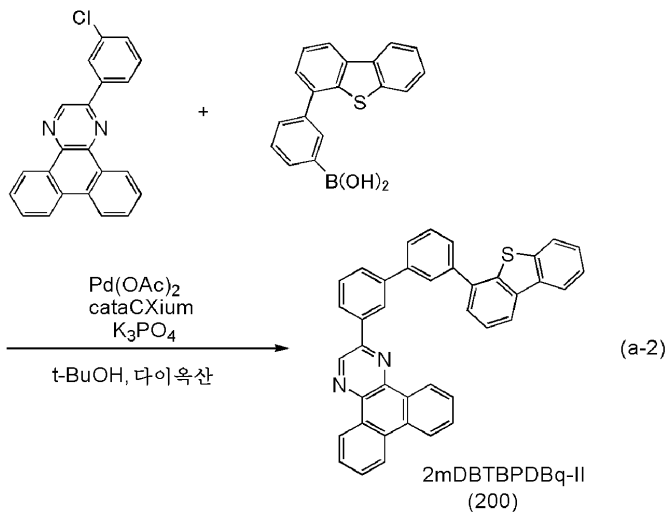
[0183] <단계 2: 2-[3'-(다이벤조티오펜-4-일)바이페닐-3-일]다이벤조[f,h]퀴놀살린(약칭: 2mDBTBPDBq-II)의 합성>

[0184] 다음에, 상기 단계 1에서 얻어진 2-(3-클로로페닐)다이벤조[f,h]퀴놀살린 23.9g(70mmol), 3-(다이벤조티오펜-4-일)페닐보론산 23.4g(77mmol), 인산삼칼륨 44.6g(210mmol), t-부탄올 15.6g(210mmol), 다이옥산 470mL를 1L 3구 플라스크에 넣고 플라스크 내를 질소 치환하였다. 이 혼합물을 감압 하에서 교반하여 탈기하였다.

[0185] 다음에, 이 혼합물에 아세트산 팔라듐(II) 157mg(0.70mmol), 다이(1-아다만틸)-n-부틸포스핀(약칭: cataCXium®) 502mg(1.4mmol), 2-(3-클로로페닐)다이벤조[f,h]퀴놀살린을 첨가하였다. 이 혼합물을 질소 기류 하에서 약 100℃에서 14시간 교반하였다. 반응 후, 석출된 회색 고체를 흡인 여과에 의하여 분별하고, 그 고체를 에탄올, 물, 에탄올, 톨루엔을 순차적으로 사용하여 세정하였다. 얻어진 고체를 감압 하에서 100℃에서 건조하여 37.6g의 목적물을 얻었고, 그 수율은 95%이었다.

[0186] 얻어진 목적물의 고체 35g을 트레인 서블리메이션법(train sublimation method)에 의하여 승화 정제하였다. 승화 정제는 압력 2.7Pa의 조건에서 목적물을 온도 325℃에서 가열하면서 수행하였다. 냉각 후, 29.6g의 담황색 고체를 얻었고, 그 수율은 84%이었다. 단계 2의 합성 스킴을 하기 (a-2)에 제시한다.

[0187] [화학적식 16]



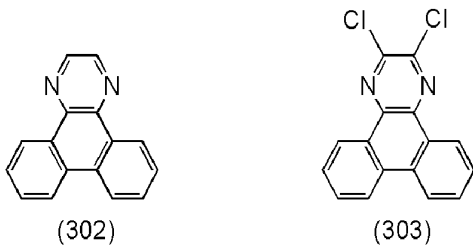
[0188]

[0189] 상기 단계 2에서 얻어진 담황색 고체를 핵자기 공명 분광법(¹H-NMR)에 의하여 분석한 결과를 아래에 제시한다. 또한, ¹H-NMR 차트를 도 7의 (A), (B)에 나타내었다. 또한, 도 7의 (B)는 도 7의 (A) 중 가로축(δ)이 6.5(ppm) 내지 10(ppm)인 부분의 확대도이다. 이를 보면, 상기 단계 2에서 2-[3'-(다이벤조티오펜-4-일)바이페닐-3-일]다이벤조[f,h]퀴놀살린(약칭: 2mDBTBPDBq-II)(구조식 (200))이 얻어진 것을 알 수 있다.

[0190] ¹H-NMR(CDCl₃, 500MHz): δ (ppm)=7.44-7.52(m, 2H), 7.62(d, J=5.0Hz, 2H), 7.68-7.75(m, 3H), 7.75-7.89(m, 7H), 8.18(s, 1H), 8.19-8.24(m, 2H), 8.35(d, J=7.0Hz, 1H), 8.67(d, J=8.0Hz, 2H), 8.70(s, 1H), 9.26(d, J=7.5Hz, 1H), 9.45(d, J=8.0Hz, 1H), 9.48(s, 1H).

[0191] 여기서, 단계 1의 원료에 사용한 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린(구조식 (301))의 순도 분석을 ACQUITY Ultra Performance LC(아래에서는 ACQUITY UPLC라고 함)에 의하여 수행하였다. 이에 의하여, 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린(구조식 (301)) 이외의 불순물로서 m/z(질량 대 전하비)=231의 물질이 면적비로 0.3%, m/z=299의 물질이 면적비로 0.8% 함유되어 있으며, 순도는 98.7%로 산출되었다. 이들 불순물은 아래에 제시하는 바와 같은, 다이벤조[f,h]퀴놀살린(구조식 (302))과 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린의 일염소 치환체(구조식 (303))인 것으로 추정된다.

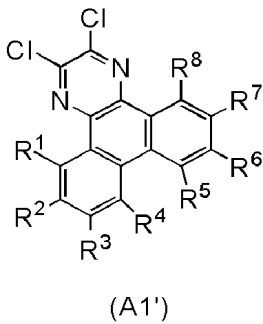
[0192] [화학식 17]



[0193]

[0194] 상술한 것으로부터, 실시형태 1에 제시된 합성 방법(합성 스킴 (A-1))에서, 원료로서 제시한 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체(일반식 (A1))는 일반적으로, 하기 일반식 (A1')로 표시되는 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체의 염소 치환체(일염소 치환체 또는 이염소 치환체)가 불순물로서 함유되어 있는 것을 알 수 있다.

[0195] [화학식 18]



[0196]

[0197] 상기 일반식 (A1') 중 R¹-R⁸은 각각 수소, 탄소수 1-6의 알킬기, 페닐기, 또는 치환기로서 탄소수 1-6의 알킬기를 갖는 페닐기를 나타낸다.

[0198] 다음에, 단계 1에서 얻어진 화합물(중간체)인 2-(3-클로로페닐)다이벤조[f,h]퀴놀살린(구조식 (100))의 순도 분석을 마찬가지로 수행하였다. 분석 결과에서 2-(3-클로로페닐)다이벤조[f,h]퀴놀살린(구조식 (100)) 이외의 불순물로서, m/z(질량 대 전하비)=265의 물질이 면적비로 0.1%, m/z=307의 물질이 면적비로 0.3%, m/z=417의 물질이 면적비로 0.3%, m/z=493의 물질이 면적비로 0.1% 함유되어 있으며, 순도는 99.2%로 산출되었다. 이들 불순물은 각각 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린, 2-페닐다이벤조[f,h]퀴놀살린, 2-[3-(3'-클로로페닐)-페닐]다이벤조[f,h]퀴놀살린, 2-{3-[3'-(3''-클로로페닐)-페닐]-페닐}다이벤조[f,h]퀴놀살린인 것으로 추정된다. 다만, 이들 불순물은 이후의 반응에서 소비되거나 정제에 의하여 제거될 수 있다. 또한, 순도 분석의 결과로부터, 본 합성 방법에서는 원료인 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린(구조식 (301))에 함유될 수 있는 불순물인 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린의 일염소 치환체(구조식 (303))에서 유래하는 불순물(염소 치환체(일염소 치환체 또는 이염소 치환체)이 거의 검출되지 않는 것을 알았다.

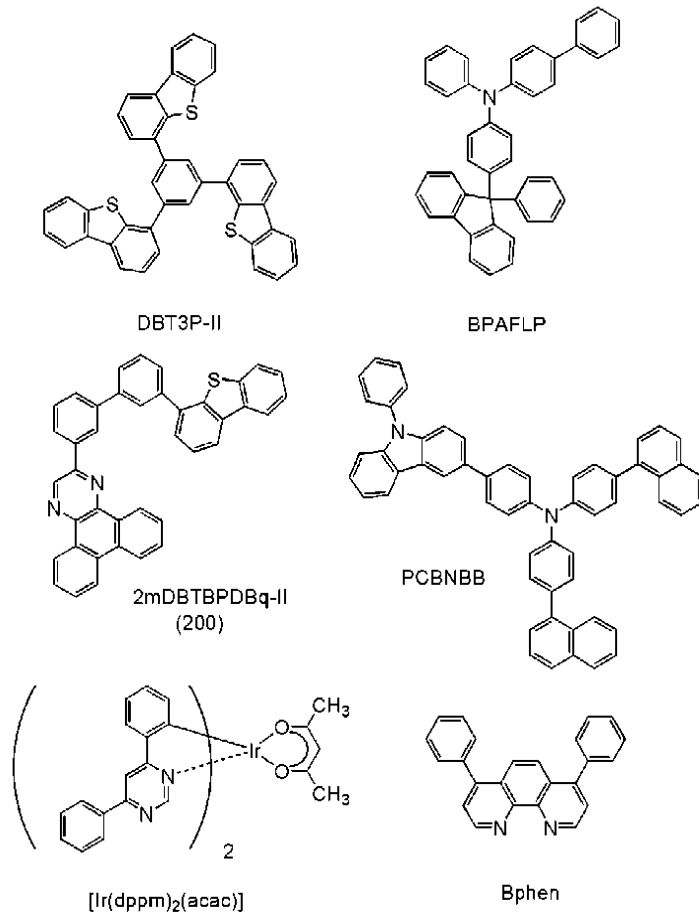
[0199] 따라서, 실시형태 1에 제시된 합성 방법(합성 스킴 (A-1))에서, 원료로서 제시한 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체(일반식 (A1))에 일반식 (A1')로 표시되는 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체의 염소 치환체(일염소 치환체 또는 이염소 치환체)가 불순물로서 함유되어 있는 경우에도 중간체 이외에 생성되는 것은 제거 가능한 일염소 치환체이기 때문에, 목적물을 정제하기 쉬운 것을 알 수 있다.

[0200] 또한, 연소 이온 크로마토그래피(combustion-ion chromatography)에 의하여, 본 실시예의 목적물인 2mDBTBPDq-II의 염소 함유량을 측정하였다. 측정 결과에서 2mDBTBPDq-II에 함유되는 염소 함유량은 1ppm(μg/g)로 매우 미량이었다.

[0201] (실시예 2)

[0202] 본 실시예에서는 본 발명의 일 형태인 발광 소자 1 및 이와 비교하기 위하여 제작한 비교 발광 소자 2 및 비교 발광 소자 3에 대하여 도 8을 참조하여 설명하기로 한다. 또한, 본 실시예에서 사용하는 재료의 화학식을 아래에 제시한다.

[0203] [화학식 19]



[0204] [0205] <<발광 소자 1, 비교 발광 소자 2, 및 비교 발광 소자 3의 제작>>

[0206] 우선, 산화 실리콘을 함유한 인듐 주석 산화물(ITSO)을 유리 기판(800) 위에 스퍼터링법으로 성막하여, 양극으로서 기능하는 제 1 전극(801)을 형성하였다. 이 때, 그 막 두께는 110nm로 하고, 전극 면적은 2mm×2mm로 하였다.

[0207] 다음에, 기판(800) 위에 발광 소자 1, 비교 발광 소자 2, 및 비교 발광 소자 3을 형성하기 위한 전(前) 처리로서 기판 표면을 물로 세정하고 200℃에서 1시간 소성한 후, UV 오존 처리를 370초 동안 수행하였다.

[0208] 이 후, 내부가 10⁻⁴Pa 정도까지 감압된 진공 증착 장치에 기판을 도입하고, 진공 증착 장치 내의 가열실에서 170℃에서 30분 동안 진공 소성을 수행한 후, 기판(800)을 30분 정도 방랭시켰다.

[0209] 다음에, 진공 증착 장치 내에 제공된 홀더에 기판(800)을 제 1 전극(801)이 형성된 면이 아래 쪽이 되도록 고정하였다. 본 실시예에서는, 진공 증착법에 의하여, EL층(802)을 구성하는 정공 주입층(811), 정공 수송층(812), 발광층(813), 전자 수송층(814), 전자 주입층(815)이 순차적으로 형성되는 경우에 대하여 설명한다.

[0210] 진공 증착 장치 내를 10⁻⁴Pa로 감압한 후, 1,3,5-트라이(다이벤조티오펜-4-일)벤젠(약칭: DBT3P-II)과 산화 몰리브덴(VI)을 DBT3P-II: 산화 몰리브덴= 4:2(질량비)가 되도록 동시 증착함으로써 제 1 전극(801) 위에 정공 주입층(811)을 형성하였다. 그 막 두께는 20nm로 하였다. 또한 동시 증착이란, 복수의 상이한 물질을 각각 상이한 증착 공급원으로부터 동시에 증발시키는 증착법이다.

[0211] 다음에, 4-페닐-4'-(9-페닐플루오렌-9-일)트라이페닐아민(약칭: BPAFLP)을 막 두께 20nm로 증착함으로써 정공 수송층(812)을 형성하였다.

[0212] 다음에, 정공 수송층(812) 위에 발광층(813)을 형성하였다. 2-[3'-(다이벤조티오펜-4-일)바이페닐-3-일]다이벤조[f,h]퀴놀살린(약칭: 2mDBTBPDBq-II), 4,4'-다이(1-나프틸)-4''-(9-페닐-9H-카바졸-3-일)트라이페닐아민(약

칭: PCBNBB), (아세틸아세토나토)비스(4,6-다이페닐피리미디나토)이리듐(III)(약칭: [Ir(dppm)₂(acac)])을 2mDBTBPDBq-II:PCBNBB:[Ir(dppm)₂(acac)]=0.7:0.3:0.05(질량비)가 되도록 동시 증착하여 막 두께 20nm로 형성한 후, 2mDBTBPDBq-II:PCBNBB:[Ir(dppm)₂(acac)]=0.8:0.2:0.05(질량비)가 되도록 동시 증착하여 막 두께 20nm로 형성함으로써, 적층 구조를 갖는 발광층(813)을 막 두께 40nm로 형성하였다.

[0213] 다음에, 발광층(813) 위에 2mDBTBPDBq-II를 막 두께 20nm로 증착한 후, 바소페난트롤린(약칭: Bphen)을 막 두께 10nm로 증착함으로써, 전자 수송층(814)을 형성하였다. 또한, 전자 수송층(814) 위에 불화 리튬을 막 두께 1nm로 증착함으로써 전자 주입층(815)을 형성하였다.

[0214] 또한, 발광 소자 1(발광층(813) 및 전자 수송층(814))에 사용한 2mDBTBPDBq-II는 본 발명의 일 형태인 합성 방법(구체적으로는 실시예 1에서 제시한 합성 방법)에 의하여 합성하고, 비교 발광 소자 2 및 비교 발광 소자 3에 사용한 2mDBTBPDBq-II는 종래의 합성 방법(구체적으로는 본 실시예에서 제시한 참고 합성예)에 의하여 합성하였다.

[0215] 마지막으로, 전자 주입층(815) 위에 알루미늄을 막 두께 200nm로 증착하여, 음극이 되는 제 2 전극(803)을 형성함으로써, 발광 소자 1, 비교 발광 소자 2, 및 비교 발광 소자 3을 얻었다. 또한, 상술한 증착 과정에서 모든 증착을 저항 가열법으로 수행하였다.

[0216] 이와 같이 하여 얻어진 발광 소자 1, 비교 발광 소자 2, 및 비교 발광 소자 3의 소자 구조를 표 1에 제시한다.

표 1

[0217]	제 1 전극	정공 주입층	정공 수송층	발광층		전자 수송층		전자 주입층	제 2 전극
				*	**				
발광 소자 1	ITSO (110nm)	DBT3P-II:MoOx (4:2 20nm)	BPAFLP (20nm)	*	**	2mDBTBPDBq-II (본 합성 방법) (20nm)	Bphen (10nm)	LiF (1nm)	Al (200nm)
비교 발광 소자 2	ITSO (110nm)	DBT3P-II:MoOx (4:2 20nm)	BPAFLP (20nm)	***	****	2mDBTBPDBq-II (종래의 합성 방법) (20nm)	Bphen (10nm)	LiF (1nm)	Al (200nm)
비교 발광 소자 3	ITSO (110nm)	DBT3P-II:MoOx (4:2 20nm)	BPAFLP (20nm)	***	****	2mDBTBPDBq-II (종래의 합성 방법) (20nm)	Bphen (10nm)	LiF (1nm)	Al (200nm)

[0218] * 2mDBTBPDBq-II(본 합성 방법):PCBNBB:[Ir(dppm)₂(acac)] (0.7:0.3:0.05 20nm)

[0219] ** 2mDBTBPDBq-II(본 합성 방법):PCBNBB:[Ir(dppm)₂(acac)] (0.8:0.2:0.05 20nm)

[0220] *** 2mDBTBPDBq-II (종래의 합성 방법):PCBNBB:[Ir(dppm)₂(acac)] (0.7:0.3:0.05 20nm)

[0221] **** 2mDBTBPDBq-II(종래의 합성 방법):PCBNBB:[Ir(dppm)₂(acac)] (0.8:0.2:0.05 20nm)

[0222] 또한, 제작한 발광 소자 1, 비교 발광 소자 2, 및 비교 발광 소자 3은 대기에 노출되지 않도록 질소 분위기를 함유하는 글로브 박스에서 밀봉하였다(밀봉재를 소자의 주위에 도포하고, 밀봉 시에 UV 처리 및 80℃에서 1시간 동안 열처리).

[0223] <<발광 소자 1, 비교 발광 소자 2, 및 비교 발광 소자 3의 동작 특성>>

[0224] 제작한 발광 소자 1, 비교 발광 소자 2, 및 비교 발광 소자 3의 동작 특성을 측정하였다. 또한, 측정은 실온(25℃로 유지된 분위기)에서 수행하였다.

[0225] 발광 소자 1, 비교 발광 소자 2, 및 비교 발광 소자 3의 전류 밀도-휘도 특성을 도 9에 나타내었다. 도 9에서 세로축은 휘도(cd/m²), 가로축은 전류 밀도(mA/cm²)를 나타낸다. 또한, 발광 소자 1, 비교 발광 소자 2, 및 비교 발광 소자 3의 전압-휘도 특성을 도 10에 나타내었다. 도 10에서 세로축은 휘도(cd/m²), 가로축은 전압(V)을 나타낸다.

[0226] 또한, 1000cd/m² 부근에서의 발광 소자 1, 비교 발광 소자 2, 및 비교 발광 소자 3의 주된 초기 특성값을 다음

표 2에 나타내었다. 또한, 모든 발광 소자에서 [Ir(dppm)₂(acac)]에서 유래하는 주황색 발광을 얻었다.

표 2

[0227]

	전압 (V)	전류 (mA)	전류 밀도 (mA/cm ²)	휘도 (cd/m ²)	전류 효율 (cd/A)	파워 효율 (lm/W)
발광 소자 1	2.8	0.032	0.81	620	76	86
비교 발광 소자 2	3.0	0.054	1.4	1200	86	90
비교 발광 소자 3	2.9	0.049	1.2	1000	84	91

[0228]

또한, 발광 소자 1, 비교 발광 소자 2, 및 비교 발광 소자 3 각각의 신뢰성 시험의 결과를 도 11에 나타내었다. 도 11에 있어서, 세로축은 초기 휘도를 100%로 하였을 때의 정규화 휘도(%)를 나타내고, 가로축은 소자의 구동 시간(h)을 나타낸다. 신뢰성 시험에서는 초기 휘도를 5000cd/m²로 설정하고 전류 밀도가 일정한 조건 하에서 발광 소자 1, 비교 발광 소자 2, 및 비교 발광 소자 3을 구동시켰다.

[0229]

또한, 발광 소자 1은 본 발명의 일 형태인 합성 방법, 즉 승화 정제에 의한 분리 제거가 가능한 2-(클로로아릴)다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체를 합성 중간체로서 거치는 합성 방법에 의하여 합성된 2mDBTBPDBq-II를 EL 재료로서 EL층에 사용한 발광 소자인 한편, 비교 발광 소자 2 및 비교 발광 소자 3은 본 실시예에서 참고예로서 제시하는 종래의 합성 방법에 의하여 합성된 2mDBTBPDBq-II를 EL 재료로서 EL층에 사용한 발광 소자이다. 따라서, 본 발명의 일 형태인 합성 방법에 의하여 얻어진 2mDBTBPDBq-II를 EL 재료로서 사용하여 제작된 발광 소자 1은 비교 발광 소자 2 및 비교 발광 소자 3에 비하여 신뢰성이 높고 장수명 발광 소자인 것을 알았다.

[0230]

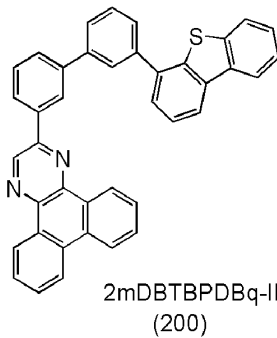
(참고 합성 방법: 종래의 합성 방법)

[0231]

아래에, 참고 합성 방법으로서 2-[3'-(다이벤조티오펜-4-일)바이페닐-3-일]다이벤조[f,h]퀴놀살린(약칭: 2mDBTBPDBq-II)의 종래의 합성 방법을 제시한다.

[0232]

[화학식 20]



[0233]

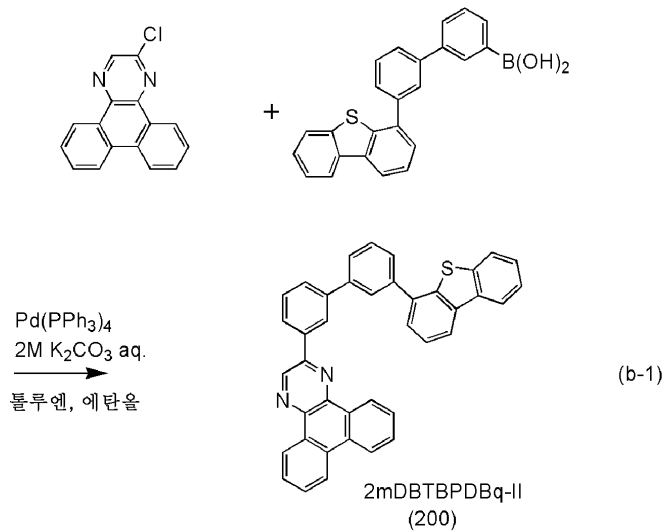
[0234]

«2mDBTBPDBq-II의 합성»

[0235]

2mDBTBPDBq-II의 합성 스킴을 (b-1)에 제시한다.

[0236] [화학식 21]



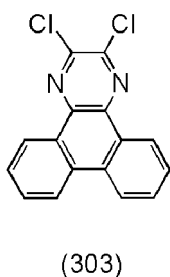
[0237]

[0238] 200mL 3구 플라스크에 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린 0.83g(3.2mmol), 3'-(다이벤조티오펜-4-일)-3-바이페닐보론산 1.3g(3.5mmol), 톨루엔 40mL, 에탄올 4mL, 2M의 탄산칼륨 수용액 5mL를 첨가하였다. 이 혼합물을 감압 하에서 교반하여 탈기하고, 플라스크 내를 질소 치환하였다. 이 혼합물에 테트라키스(트라이페닐포스핀)팔라듐(0) 80mg(70 μmol)를 첨가하였다. 이 혼합물을 질소 기류 하에서 80℃에서 16시간 동안 교반하였다. 소정 시간이 지난 후, 석출된 고체를 여과하여 분별하여 황색 고체를 얻었다. 이 고체에 에탄올을 첨가하고 초음파를 조사하여 흡인 여과를 수행하여 고체를 얻었다. 얻어진 고체를 톨루엔에 용해하고, 상기 톨루엔 용액을 알루미늄나, 셀라이트(Wako Pure Chemical Industries, Ltd., 카탈로그 번호: 531-16855)를 통하여 흡인 여과하고, 얻어진 여과액을 농축하여 황색 고체를 얻었다. 또한, 톨루엔을 사용하여 이 고체를 재결정화한 결과, 황색 분말을 1.1g 얻었고 그 수율은 57%이었다.

[0239] 상기 합성 방법의 반응 규모를 확장시켜 얻어진 황색 분말 40.3g을 트레인 서블리메이션법에 의하여 승화 정제하였다. 승화 정제는 압력 7.6Pa, 아르곤 유량 100mL/min의 조건에서 황색 분말을 350℃에서 가열하여 수행하였다. 승화 정제 후, 가열 온도 310℃보다 높고 345℃ 이하의 고온 영역에서는 목적물인 황색 분말을 6.4g 얻었고 그 수율은 15.9%이었다. 또한, 가열 온도 310℃의 중온 영역에서는 목적물인 황색 분말을 2.9g 얻었고 그 수율은 7.2%이었다.

[0240] 여기서, 원료인 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린의 순도 분석을 ACQUITY UPLC에 의하여 수행하였다. 분석 결과에서, 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린 이외의 불순물로서 m/z(질량 대 전하비)=232의 물질이 면적비로 0.4%, m/z=299의 물질이 면적비로 0.9% 함유되어 있으며, 순도는 98.7%로 산출되었다. 이들 불순물은 다이벤조[f,h]퀴놀살린과 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린의 일염소 치환체(구조식 (303))인 것으로 추정된다. 구조식 (303)을 아래에 제시한다. 이와 같이 원료인 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린 등 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체는 일반적으로 구조식 (303)으로 표시되는 바와 같은 다이할로젠화물이 불순물로서 함유되어 있는 것을 알 수 있다.

[0241] [화학식 22]



[0242]

[0243] 상술한 합성 및 정제 방법으로 얻어진 2mDBTBPDBq-II의 순도 분석을 UPLC(고속 액체 크로마토그래피)에 의하여

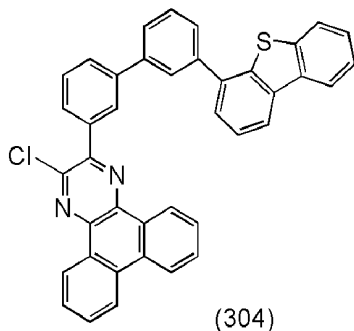
수행하였다. 분석 결과에서, 승화 정제의 가열 온도 고온 영역으로부터 수집한 시료에서는 불순물로서 m/z(질량 대 전하비)=599의 물질이 0.1%보다 작은 면적비로 검출되고, 가열 온도 중온 영역으로부터 수집한 시료에서는 상기 물질이 0.1%의 면적비로 검출되었다.

[0244] 또한, 2mDBTBPDBq-II에 함유되는 할로젠 원소의 농도를 알아보기 위하여, 연소 이온 크로마토그래피법에 의하여 염소의 정량을 수행한 결과, 승화 정제의 가열 온도 고온 영역으로부터 수집한 시료에서는 63ppm의 염소가 검출되고, 가열 온도 중온 영역으로부터 수집한 시료에서는 276ppm의 염소가 검출되었다.

[0245] 이들 결과로부터 이 불순물은 2mDBTBPDBq-II의 일염소 치환체(구조식 (304))인 것으로 추정된다. 구조식 (304)를 아래에 제시한다. 이와 같이, 원료에 함유된 구조식 (303)으로 표시되는 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린의 일염소 치환체가 1당량의 보론산과 반응하여, 치환기로서 염소를 함유한 EL 재료(목적물인 2mDBTBPDBq-II)가 불순물로서 남는 것을 알았다. 또한, 상술한 비교 발광 소자 2 및 비교 발광 소자 3의 데이터로부터, 이 치환기로서 염소를 함유한 EL 재료의 염소 치환체는 소자의 신뢰성에 악영향을 미치는 것이 시사되고, EL 재료 내의 염소 함유량이 63ppm인 승화 정제의 가열 온도 고온 영역으로부터 수집한 시료를 사용한 비교 발광 소자 2보다 승화 정제의 가열 온도 중온 영역으로부터 수집한 시료 내의 염소 함유량이 276ppm로 더 많은 비교 발광 소자 3은 휘도가 더 빨리 열화되는 것을 알 수 있다.

[0246] 그러므로, EL 재료 내의 염소 함유량이 정량적으로 소자의 신뢰성(열화율)에 상관하는 것이 시사되어, 염소 함유량을 10ppm 이하로 억제할 수 있는 본 발명의 일 형태인 합성 방법은 소자의 열화율을 최소한으로 억제할 수 있어 높은 신뢰성이 얻어지는 것을 알 수 있다.

[0247] [화학식 23]



[0248] 상술한 것으로부터, 실시형태에서 기재한 바와 같이, 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체의 염소 치환체(일염소 치환체 또는 이염소 치환체)(일반식 (A1'))를 함유한 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체(일반식 (A1))를 사용하여 상기 합성 스킴 (B-1)로 표시되는 반응을 수행하면, 합성 스킴 (B-1')에서 제시한 바와 같이, 다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체의 염소 치환체(일반식 (G1'))가 생성되는 것을 알았다. 또한, 이러한 다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체의 염소 치환체(일반식 (G1'))가 발광 소자의 신뢰성에 큰 악영향을 미치는 것을 알았다.

[0250] <<EL 재료의 염소 함유량과 발광 소자의 동작 특성>>

[0251] 또한, EL 재료의 염소 함유량과 발광 소자의 신뢰성의 상관에 대하여 자세히 알아보았다.

[0252] 본 실시예에서 발광 소자에 사용한, 복수의 합성 로트(lot)에서 얻어진 2mDBTBPDBq-II를 샘플링하여 연소 이온 크로마토그래피에 의하여 염소 함유량을 측정하였다.

[0253] 또한, 본 발명의 일 형태인 합성 방법에 의하여 2mDBTBPDBq-II로서 4종류의 시료(시료 1~시료 4)를 얻었으나, 염소 함유량은 모두 1ppm(μg/g)로 매우 미량이었다. 또한, 아래에 제시하는 종래의 합성 방법에 의하여 2mDBTBPDBq-II로서 6종류의 시료(시료 5~시료 10)를 얻으며, 염소의 함유량은 다음 표 3과 같다.

표 3

시료 번호	정규화 휘도(%)	염소 함유량(ppm)	발광 소자
시료 1	94.13	1	발광 소자 1
시료 2	93.66	1	발광 소자 2
시료 3	91.97	1	발광 소자 3
시료 4	95.63	1	발광 소자 4

시료 5	81.96	45	발광 소자 5
시료 6	82.16	63	발광 소자 6
시료 7	80.38	71	발광 소자 7
시료 8	72.16	137	발광 소자 8
시료 9	65.02	208	발광 소자 9
시료 10	60.66	276	발광 소자 10

[0255] 이들 시료(시료 1~시료 10)를 사용한 발광 소자(발광 소자 1~발광 소자 10)를 제작하고, 450시간 동안 신뢰성 시험을 수행하였다. 또한, 제작한 발광 소자의 구조나 신뢰성 시험의 조건은 상술한 바와 같다.

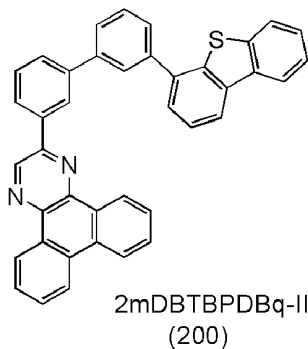
[0256] 가로축을 450시간이 지난 후의 각 발광 소자의 정규화 휘도(%)로 하고 세로축을 각 발광 소자에 사용한 시료의 염소 함유량(ppm)으로 하여 플롯하고, 이 플롯으로부터 구한 근사 곡선을 도 13에 나타내었다. 이 근사 곡선을 보면, 염소 함유량이 약 10ppm~20ppm보다 많은 경우에는 염소 함유량이 감소되면 신뢰성이 향상되나, 염소 함유량이 그 이하이면 신뢰성은 포화되는 것을 알 수 있다. 즉, EL 재료의 염소 함유량을 10ppm 이하로 함으로써, 안정된 높은 신뢰성이 얻어지는 것을 알 수 있다.

[0257] (실시예 3)

[0258] <<합성예 2>>

[0259] 본 실시예에서는 본 발명의 일 형태인 합성 방법으로서 실시예 1의 반응 조건을 바꾼 2-[3'-(다이벤조티오펜-4-일)바이페닐-3-일]다이벤조[f,h]퀴놀살린(약칭: 2mDBTBPDq-II)(구조식 (200))의 합성 방법에 대하여 설명한다. 또한, 2mDBTBPDq-II의 구조를 아래에 제시한다.

[0260] [화학식 24]



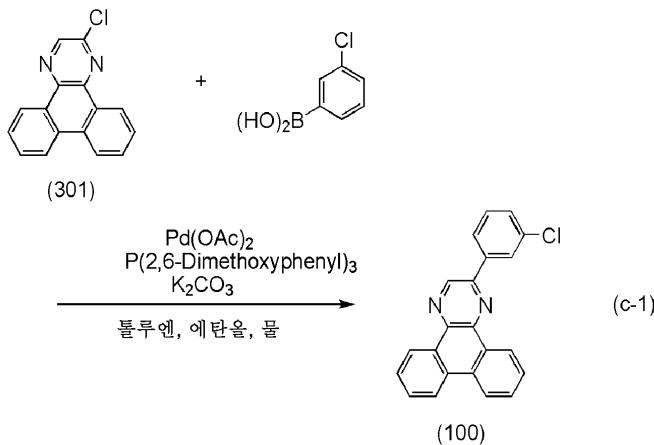
[0261] <단계 1: 2-(3-클로로페닐)다이벤조[f,h]퀴놀살린의 합성>

[0262] 우선, 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린(구조식 (301)) 132.4g(500mmol), 3-클로로페닐보론산 86.0g(550mmol), 탄산 칼륨 159.0g(1.5mol), 톨루엔 2.5L, 에탄올 630mL, 물 750mL를 1L 3구 플라스크에 넣고 감압 하에서 탈기 처리한 후, 플라스크 내를 질소 치환하였다.

[0263] 다음에, 이 혼합물에 아세트산 팔라듐(II)(약칭: Pd(OAc)₂) 2.23g(10mmol), 트리스(2,6-다이메톡시페닐)포스핀 8.85g(20mmol)을 첨가하고, 이 혼합물을 약 4시간 동안 가열 환류하였다. 이 후, 플라스크의 온도를 실온까지 냉각시키고, 석출된 물질을 여과하여 분별하였다. 그 물질을 물, 에탄올, 및 톨루엔을 사용하여 세정하였다. 얻어진 잔재(殘滓)를 가열된 톨루엔에 용해하고, 셀라이트를 사용하여 이 용액을 여과하였다. 얻어진 여과액을 실온까지 냉각시키고, 석출된 물질을 여과하여 분별하였다. 얻어진 잔재를 감압 하에서 100℃에서 건조시켜, 목적물인 담황색 고체를 149.5g 얻었고, 그 수율은 88%이었다.

[0264] 단계 1의 합성 스킴을 하기 (c-1)에 제시한다.

[0266] [화학식 25]



[0267]

[0268] 상기 단계 1에서 얻어진 담황색 고체를 핵자기 공명 분광법(¹H-NMR)에 의하여 분석하여, 상기 단계 1에서 2-(3-클로로페닐)다이벤조[f,h]퀴놀살린(구조식 (100))이 얻어진 것을 확인하였다.

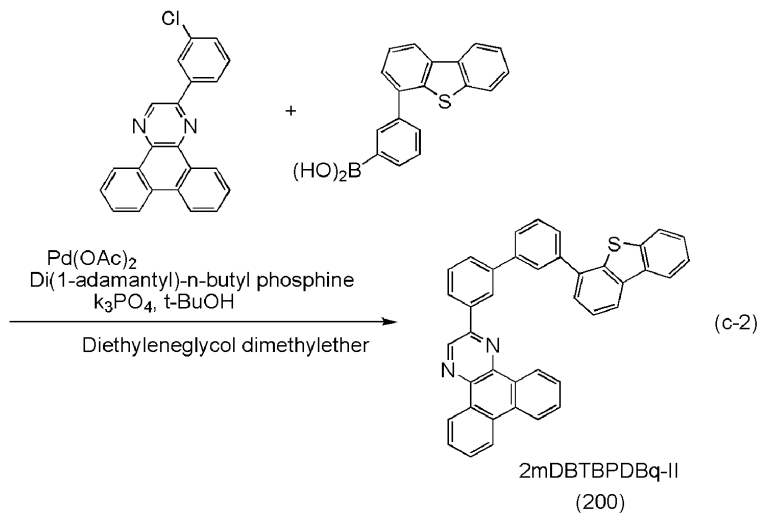
[0269] <단계 2: 2-[3'(다이벤조티오펜-4-일)바이페닐-3-일]다이벤조[f,h]퀴놀살린(약칭: 2mDBTBPDq-II)의 합성>

[0270] 다음에, 상기 단계 1에서 얻어진 2-(3-클로로페닐)다이벤조[f,h]퀴놀살린 35.0g(103mmol), 3-(다이벤조티오펜-4-일)페닐보론산 33.5g(110mmol), 인산삼칼륨 63.7g(300mmol), t-부탄올 29mL, 다이에틸렌글라이콜다이메틸에테르 670mL를 1L 3구 플라스크에 넣고 플라스크 내를 질소 치환하였다. 이 혼합물을 감압 하에서 교반하여 탈기하였다.

[0271] 다음에, 이 혼합물에 아세트산 팔라듐(II) 0.69g(3.1mmol), 다이(1-아다만틸)-n-부틸포스핀(약칭: cataCXium[®]) 2.22g(6.2mmol)을 첨가하고, 이 혼합물을 약 8시간 동안 가열 환류하였다. 이 후, 플라스크의 온도를 실온까지 냉각시키고 석출된 물질을 여과하여 분별하였다. 그 물질을 물, 에탄올, 및 톨루엔을 사용하여 세정하였다. 얻어진 잔재를 가열된 톨루엔에 용해시키고, 셀라이트를 사용하여 이 용액을 여과하였다. 얻어진 여과액을 실온까지 냉각시키고, 석출된 물질을 여과하여 분별하였다. 얻어진 잔재를 감압 하에서 100℃에서 건조시켜, 목적물인 담황색 결정성 고체를 53.0g 얻었고, 그 수율은 94%이었다.

[0272] 상기 방법의 반응 규모를 확장시켜 얻어진 목적물의 고체 110g을 트레인 서블리메이션법에 의하여 승화 정제하였다. 승화 정제는 압력 5.6×10⁻³Pa의 조건에서 목적물을 온도 350℃에서 가열하면서 수행하였다. 냉각 후, 67.2g의 담황색 고체를 얻었고, 그 수율은 62%이었다. 단계 2의 합성 스킴을 하기 (c-2)에 제시한다.

[0273] [화학식 26]



[0274]

[0275] 상기 단계 2에서 얻어진 담황색 고체를 핵자기 공명 분광법(¹H-NMR)에 의하여 분석하여, 상기 단계 2에서 2-[3'(다이벤조티오펜-4-일)바이페닐-3-일]다이벤조[f,h]퀴놀살린(약칭: 2mDBTBPDBq-II)(구조식 (200))이 얻어진 것을 확인하였다.

[0276]

다음에, 단계 1에서 얻어진 화합물(중간체)인 2-(3-클로로페닐)다이벤조[f,h]퀴놀살린(구조식 (100))의 순도 분석을 마찬가지로 수행하였다. 분석 결과에서, 2-(3-클로로페닐)다이벤조[f,h]퀴놀살린(구조식 (100)) 이외의 불순물로서, m/z(질량 대 전하비)=265의 물질이 면적비로 0.2%, m/z=307의 물질이 면적비로 0.2%, m/z=417의 물질이 면적비로 0.1%, m/z=459의 물질이 면적비로 0.1%, m/z=611의 물질이 면적비로 0.2% 함유되어 있으며, 순도는 99.2%로 산출되었다. 이들 불순물은 각각 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린, 2-페닐다이벤조[f,h]퀴놀살린, 2-(3-클로로페닐)다이벤조[f,h]퀴놀살린, 2-(1,1':3',1''-테르페닐)다이벤조[f,h]퀴놀살린, 2,2'-(1,1'-바이페닐-3,3'-다이일)다이(다이벤조[f,h]퀴놀살린)인 것으로 추정된다. 그러나, 이들 불순물은 이후의 반응에서 소비되거나 정제되어 제거될 수 있다. 또한, 순도 분석의 결과로부터, 본 합성 방법에서는 원료인 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린(구조식 (301))에 함유될 수 있는 불순물인 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린의 일염소 치환체(구조식 (303))에서 유래하는 불순물(염소 치환체(일염소 치환체 또는 이염소 치환체))이 거의 검출되지 않는 것을 알았다.

[0277]

또한, 연소 이온 크로마토그래피에 의하여, 본 실시예의 목적물인 2mDBTBPDBq-II의 염소 함유량을 측정하였다. 측정 결과에서 2mDBTBPDBq-II에 함유되는 염소 함유량은 1ppm(μg/g)로 매우 미량이었다. 이것으로부터, 반응 조건을 변경하여도 본 발명을 실시할 수 있는 것을 알 수 있다.

[0278]

(실시예 4)

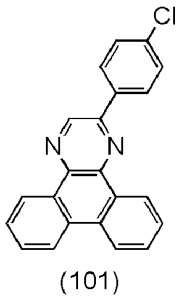
[0279]

《합성예 3》

[0280]

본 실시예에서는 본 발명의 일 형태이며, 승화 정제에 의하여 분리 제거가 가능한 합성 중간체인 2-(4-클로로아릴)다이벤조[f,h]퀴놀살린 유도체의 구체적인 합성 방법으로서, 실시형태 1의 구조식 (101)로 표시되는 2-(4-클로로페닐)다이벤조[f,h]퀴놀살린의 합성 방법에 대하여 설명한다. 또한, 2-(4-클로로페닐)다이벤조[f,h]퀴놀살린의 구조를 아래에 제시한다.

[0281] [화학식 27]



[0282]

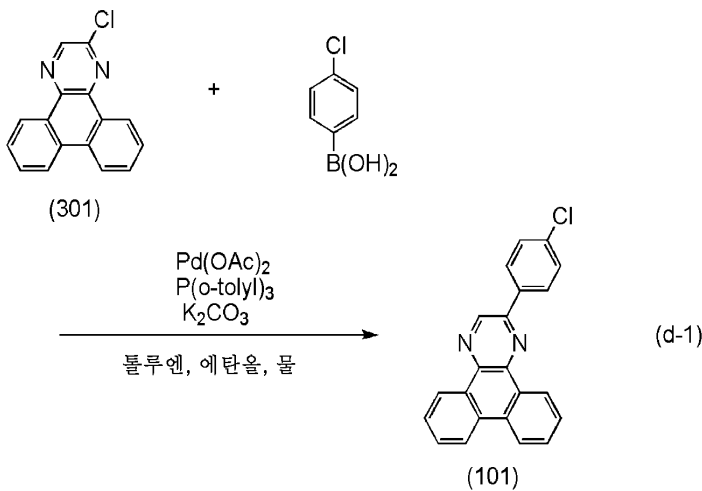
[0283] <단계: 2-(4-클로로페닐)다이벤조[f,h]퀴놀살린의 합성>

[0284] 우선, 200mL 3구 플라스크에 2-클로로다이벤조[f,h]퀴놀살린(구조식 (301)) 4.0g(15mmol), 4-클로로페닐보론산 2.5g(17mmol), 톨루엔 76mL, 에탄올 19mL, 2M의 탄산칼륨 수용액 22.7mL를 첨가하였다. 이 혼합물을 감압 하에서 교반하여 탈기하고, 플라스크 내를 질소 치환하였다.

[0285] 다음에, 이 혼합물에 아세트산 팔라듐(II)(약칭: Pd(OAc)₂) 68mg(15mmol) 및 트리스(2-메틸페닐)포스핀 0.18g(0.60mmol)을 첨가하였다. 이 혼합물을 질소 기류 하에서 80℃에서 8시간 동안 교반하였다. 소정 시간이 지난 후, 석출된 고체를 여과하여 분별하여 갈색 고체를 얻었다. 얻어진 고체의 톨루엔 용액을 알루미늄, 셀라이트를 사용하여 흡인 여과하고, 얻어진 여과액을 농축하여 황색 고체를 얻었다. 또한, 톨루엔을 사용하여 이 고체를 재결정화한 결과, 황색 고체를 3.8g 얻었고 그 수율은 75%이었다.

[0286] 상기 단계의 합성 스킴을 하기 (d-1)에 제시한다.

[0287] [화학식 28]



[0288]

[0289] 상기 단계에서 얻어진 황색 고체를 핵자기 공명 분광법(¹H-NMR)에 의하여 분석한 결과를 아래에 제시한다. 또한, ¹H-NMR 차트를 도 12의 (A), (B)에 나타내었다. 또한, 도 12의 (B)는 도 12의 (A) 중 가로축(δ)이 7(ppm) 내지 10(ppm)인 부분의 확대도이다. 이를 보면, 상기 단계에서 2-(4-클로로페닐)다이벤조[f,h]퀴놀살린(구조식 (101))이 얻어진 것을 알 수 있다.

[0290] ¹H-NMR(CDCl₃, 500MHz): δ (ppm)=7.45-7.50(m, 3H), 7.54-7.60(m, 3H), 7.64(d, J=8.5Hz, 1H), 7.71(dd, J=8.0Hz, 1.7Hz, 1H), 7.82-7.86(m, 3H), 8.17(dd, J=8.0Hz, 1.8Hz, 1H), 8.19-8.23(m, 1H).

부호의 설명

[0291]

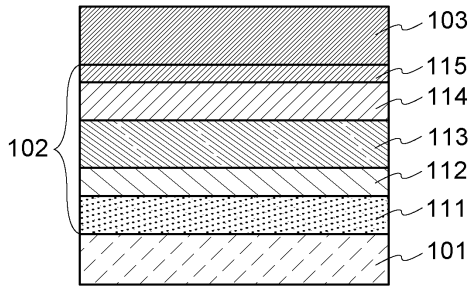
- 101: 제 1 전극
- 102: EL층
- 103: 제 2 전극
- 111: 정공 주입층
- 112: 정공 수송층
- 113: 발광층
- 114: 전자 수송층
- 115: 전자 주입층
- 201: 제 1 전극
- 202(1): 제 1 EL층
- 202(2): 제 2 EL층
- 202(n-1): 제 (n-1) EL층
- 202(n): 제 (n) EL층
- 204: 제 2 전극
- 205: 전하 발생층
- 205(1): 제 1 전하 발생층
- 205(2): 제 2 전하 발생층
- 205(n-2): 제 (n-2) 전하 발생층
- 205(n-1): 제 (n-1) 전하 발생층
- 301: 소자 기판
- 302: 화소부
- 303: 구동 회로부(소스선 구동 회로)
- 304a, 304b: 구동 회로부(게이트선 구동 회로)
- 305: 밀봉재
- 306: 밀봉 기판
- 307: 배선
- 308: FPC(연성 인쇄 회로)
- 309: FET
- 310: FET
- 311: 스위칭용 FET
- 312: 전류 제어용 FET
- 313: 제 1 전극(양극)
- 314: 절연물
- 315: EL층
- 316: 제 2 전극(음극)
- 317: 발광 소자

318: 공간
800: 기관
801: 제 1 전극
802: EL층
803: 제 2 전극
811: 정공 주입층
812: 정공 수송층
813: 발광층
814: 전자 수송층
815: 전자 주입층
7100: 텔레비전 장치
7101:하우징
7103: 표시부
7105: 스탠드
7107: 표시부
7109: 조작 키
7110: 리모트 컨트롤러
7201: 본체
7202: 하우징
7203: 표시부
7204: 키보드
7205: 외부 접속 포트
7206: 포인팅 디바이스
7302: 하우징
7304: 표시 패널
7305: 시각을 표시하는 아이콘
7306: 기타 아이콘
7311: 조작 버튼
7312: 조작 버튼
7313: 접속 단자
7321: 밴드
7322: 버클
7400: 휴대 전화기
7401: 하우징
7402: 표시부
7403: 조작용 버튼

- 7404: 외부 접속부
- 7405: 스피커
- 7406: 마이크로폰
- 7407: 카메라
- 8001: 조명 장치
- 8002: 조명 장치
- 8003: 조명 장치
- 8004: 조명 장치

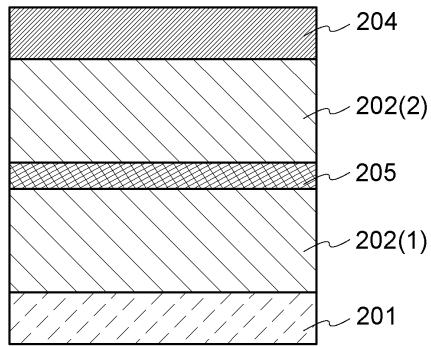
도면

도면1

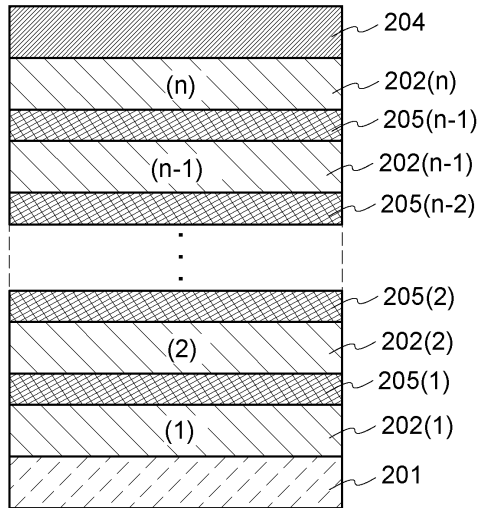


도면2

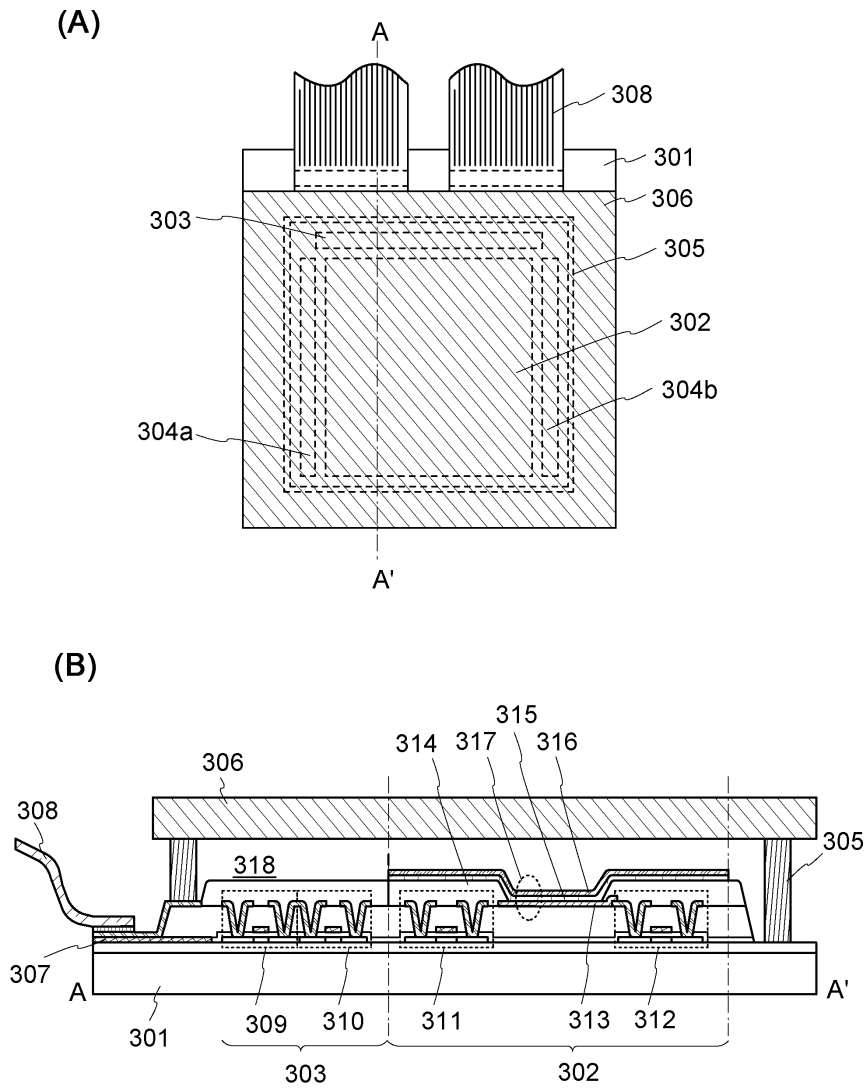
(A)



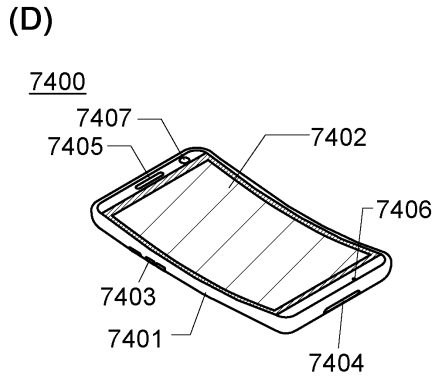
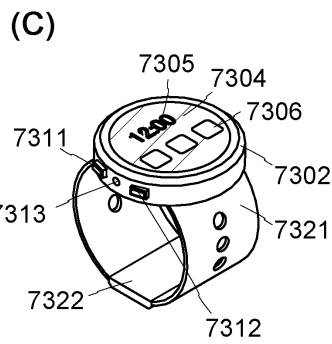
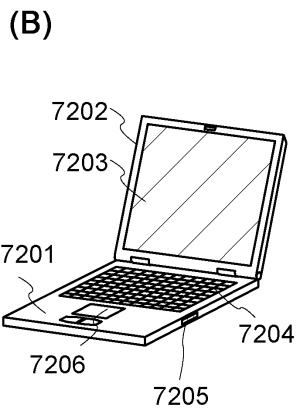
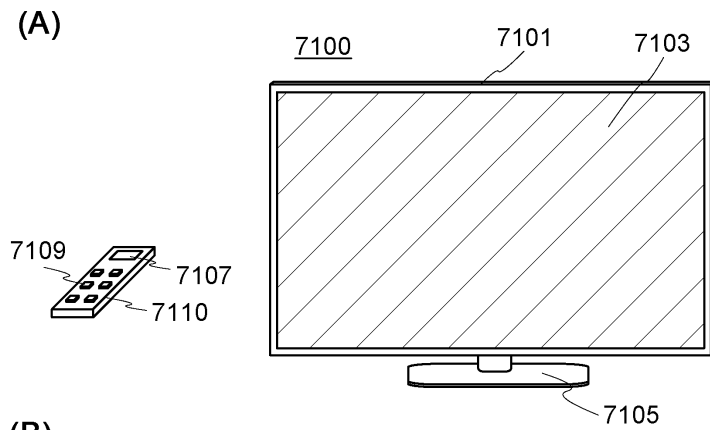
(B)



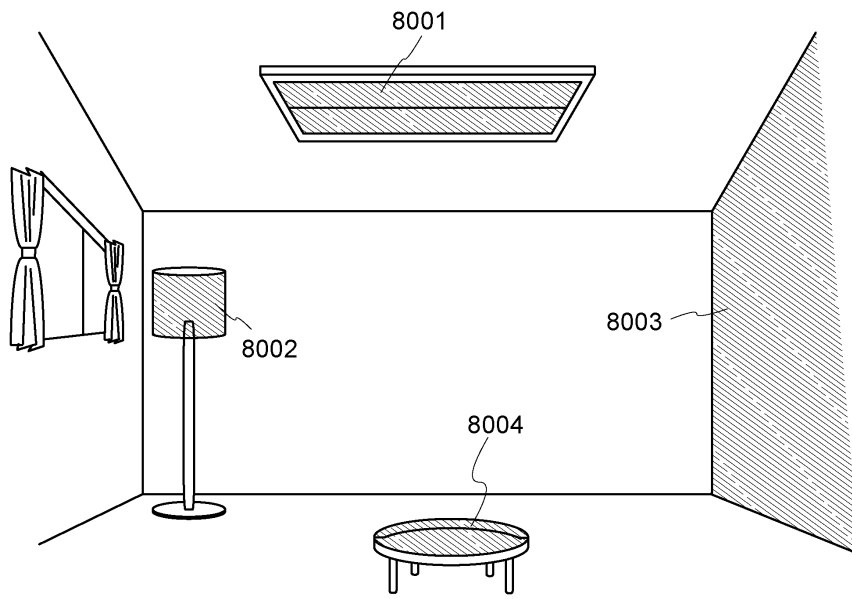
도면3



도면4

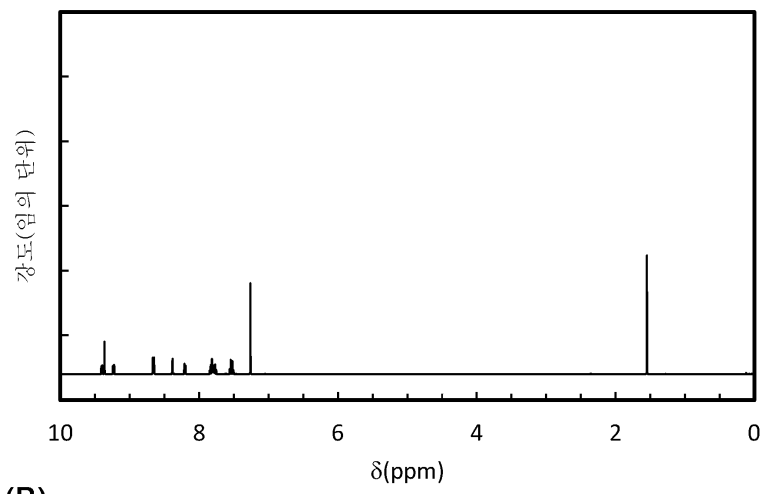


도면5

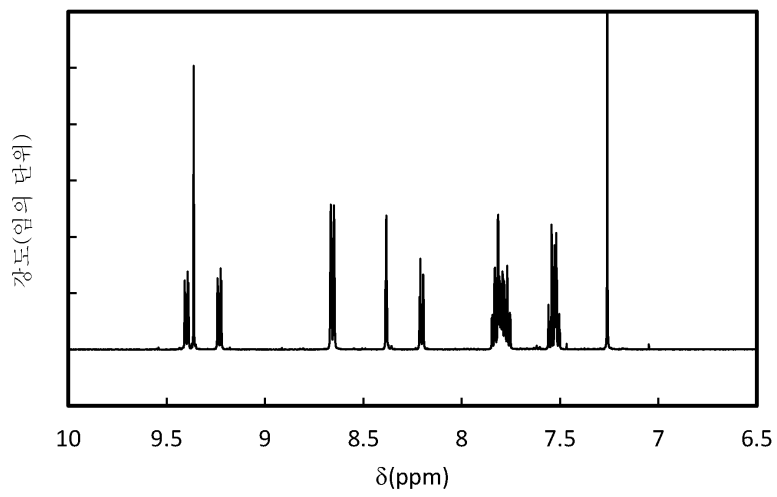


도면6

(A)

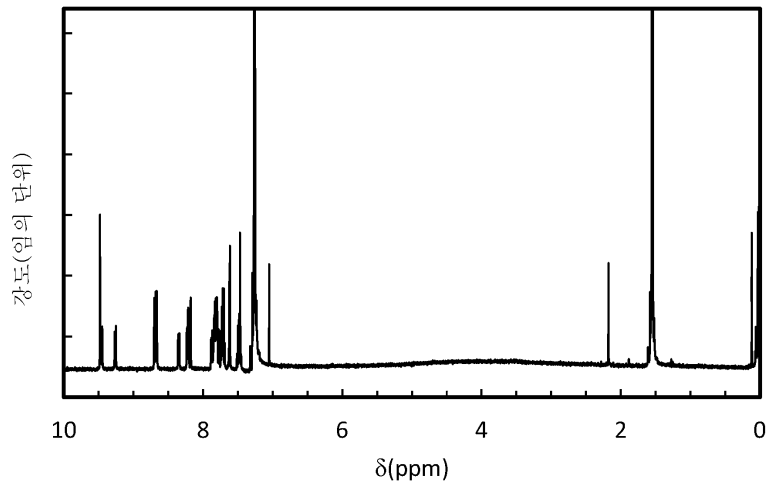


(B)

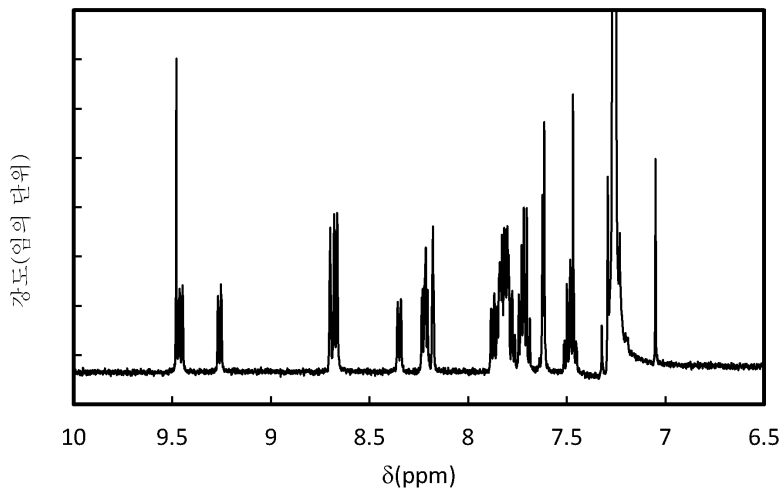


도면7

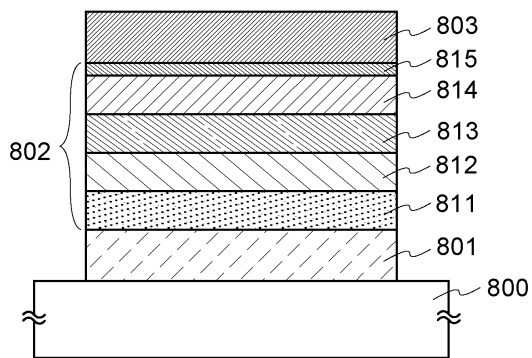
(A)



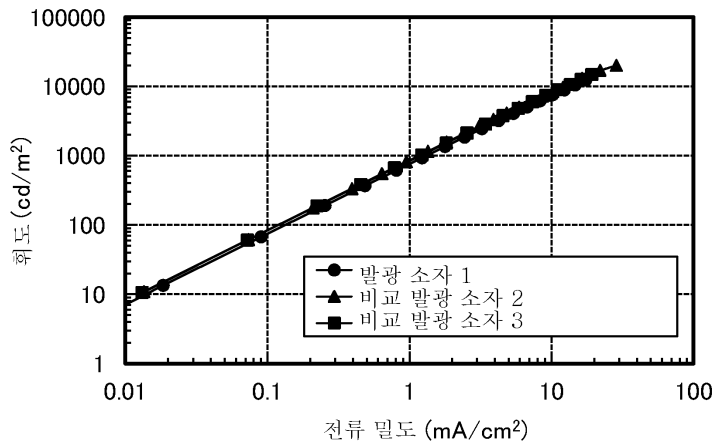
(B)



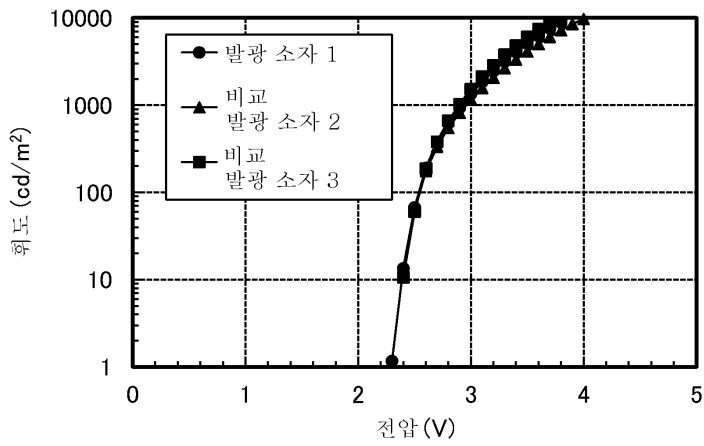
도면8



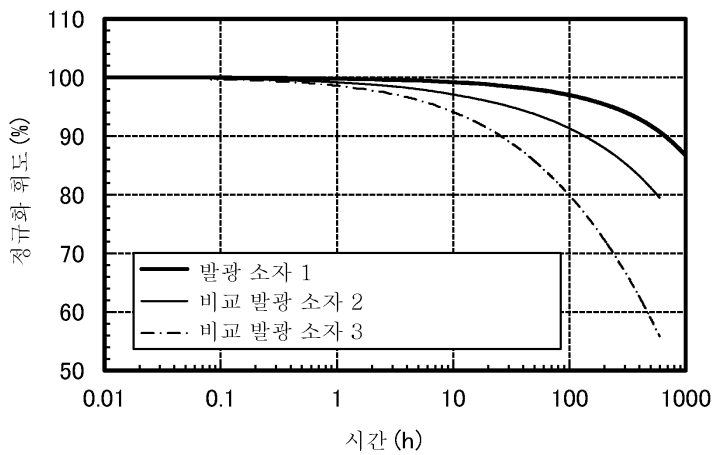
도면9



도면10

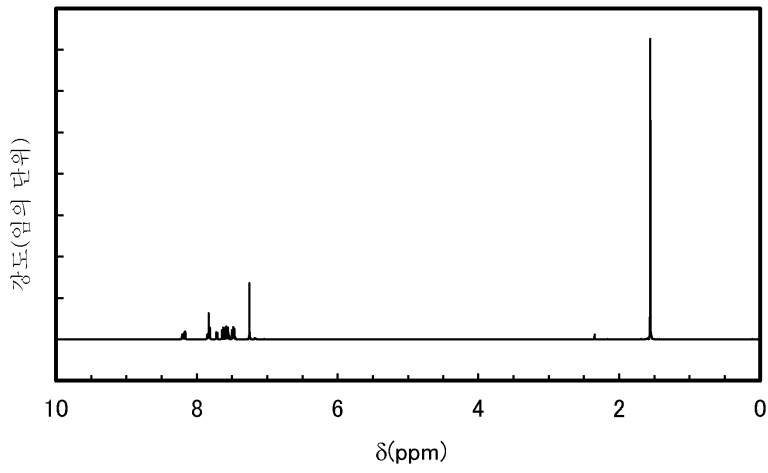


도면11

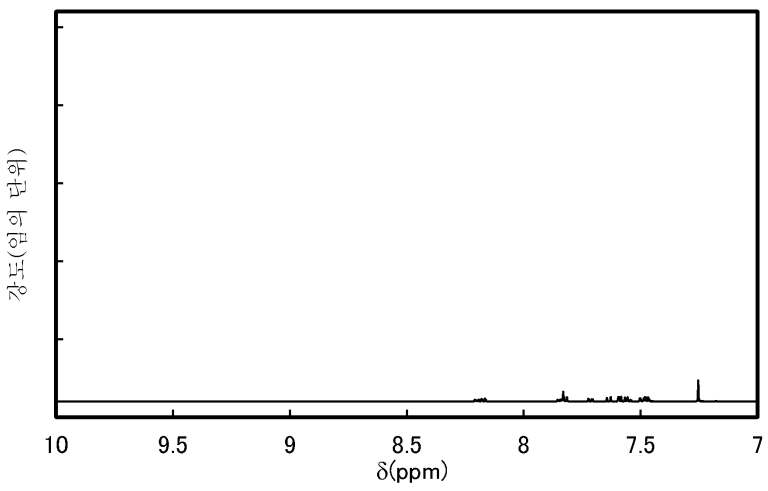


도면12

(A)



(B)



도면13

