



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2020-0014447
(43) 공개일자 2020년02월10일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C09K 11/06 (2006.01) C07D 405/10 (2006.01)
C07D 409/10 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)
(52) CPC특허분류
C09K 11/06 (2013.01)
C07D 405/10 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2020-7002791(분할)
(22) 출원일자(국제) 2012년08월07일
심사청구일자 2020년01월29일
(62) 원출원 특허 10-2014-7007569
원출원일자(국제) 2012년08월07일
심사청구일자 2017년07월31일
(85) 번역문제출일자 2020년01월29일
(86) 국제출원번호 PCT/JP2012/070587
(87) 국제공개번호 WO 2013/031527
국제공개일자 2013년03월07일
(30) 우선권주장
JP-P-2011-188235 2011년08월31일 일본(JP)
JP-P-2012-144180 2012년06월27일 일본(JP)

(71) 출원인
가부시키가이샤 한도오파이 에네루기 켄큐쇼
일본국 가나가와켄 아쓰기시 하세 398
(72) 발명자
세오 사토시
일본국 2430036 가나가와켄 아쓰기시 하세 398 가
부시키가이샤 한도오파이 에네루기 켄큐쇼 내
시타가키 사토코
일본국 2430036 가나가와켄 아쓰기시 하세 398 가
부시키가이샤 한도오파이 에네루기 켄큐쇼 내
(뒷면에 계속)
(74) 대리인
황의만

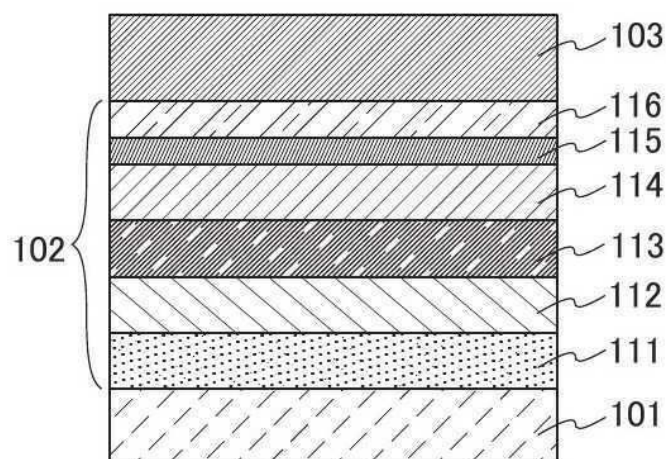
전체 청구항 수 : 총 11 항

(54) 발명의 명칭 발광 소자, 발광 장치, 전자기기, 조명 장치 및 헤테로사이클 화합물

(57) 요약

본 발명은 내열성이 우수하고 발광 물질(형광을 발하는 물질 또는 인광을 발하는 물질)에 대한 호스트 물질로서 사용될 수 있는 신규한 헤테로사이클 화합물을 제공한다. 발광 소자는 하나의 디벤조[f,h]퀴녹살린 고리, 정공 수송성 골격을 갖는 하나의 고리 및 2 내지 8의 벤젠 고리를 함유하는 헤테로사이클 화합물을 포함한다. 상기 구조에서, 헤테로사이클 화합물의 분자량은 564 내지 1000이다.

대표도 - 도1



(52) CPC특허분류

C07D 409/10 (2013.01)

H01L 51/50 (2013.01)

(72) 발명자

스즈키 히로키

일본국 2430036 가나가와켄 아쓰기시 하세 398 가
부시키가이샤 한도오파이 에네루기 켄큐쇼 내

오기타 카오리

일본국 2430036 가나가와켄 아쓰기시 하세 398 가
부시키가이샤 한도오파이 에네루기 켄큐쇼 내

쿠보타 토모히로

일본국 2430036 가나가와켄 아쓰기시 하세 398 가
부시키가이샤 한도오파이 에네루기 켄큐쇼 내

모리쿠보 미야코

일본국 2430036 가나가와켄 아쓰기시 하세 398 가
부시키가이샤 한도오파이 에네루기 켄큐쇼 내

키타노 야스시

일본국 2430036 가나가와켄 아쓰기시 하세 398 가
부시키가이샤 한도오파이 에네루기 켄큐쇼 내

명세서

청구범위

청구항 1

발광 소자로서,

하나의 디벤조[f,h]퀴녹살린 고리, 정공 수송성 골격을 갖는 하나의 고리, 및 2 내지 8의 벤젠 고리를 포함하는 헤테로사이클 화합물을 포함하는, 발광 소자.

청구항 2

제 1 항에 있어서,

상기 헤테로사이클 화합물의 분자량이 564 이상 1000 이하인, 발광 소자.

청구항 3

발광 소자로서,

하나의 디벤조[f,h]퀴녹살린 고리, 정공 수송성 골격을 갖는 하나의 고리, 및 4 내지 8의 벤젠 고리를 포함하는 헤테로사이클 화합물을 포함하는, 발광 소자.

청구항 4

제 3 항에 있어서,

상기 헤테로사이클 화합물의 분자량이 716 이상 1000 이하인, 발광 소자.

청구항 5

제 1 항 또는 제 3 항에 있어서,

상기 정공 수송성 골격을 갖는 상기 고리는 카르바졸 고리인, 발광 소자.

청구항 6

제 1 항 또는 제 3 항에 있어서,

상기 정공 수송성 골격을 갖는 상기 고리는 디벤조퓨란 고리인, 발광 소자.

청구항 7

제 1 항 또는 제 3 항에 있어서,

상기 정공 수송성 골격을 갖는 상기 고리는 디벤조티오펜 고리인, 발광 소자.

청구항 8

제 1 항 또는 제 3 항에 있어서,

상기 헤테로사이클 화합물은 비페닐기 또는 비페닐디일기를 포함하는, 발광 소자.

청구항 9

제 1 항 또는 제 3 항에 따른 발광 소자를 포함하는, 발광 장치.

청구항 10

제 9 항에 따른 발광 장치를 포함하는, 전자기기.

청구항 11

제 9 항에 따른 발광 장치를 포함하는, 조명 장치.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 발광 소자, 발광 장치, 전자기기, 조명 장치 및 헤테로사이클 화합물에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 최근, 전계발광(EL; electroluminescence)을 이용하는 발광 소자에 관한 연구와 개발이 광범위하게 실시되었다. 이러한 발광 소자의 기본 구조에서, 발광 물질을 함유하는 층은 한 쌍의 전극 사이에 개재(介在)되어 있다. 이러한 소자에 전압을 인가함으로써, 발광 물질로부터 발광을 얻을 수 있다.

[0003] 이러한 발광 소자는 자체 발광 소자이며, 예를 들면 화소 시인성이 높고 백라이트가 필요 없다는 점에서 액정 디스플레이보다 장점이 있고, 그러므로 발광 소자는 평판 디스플레이 소자에 적합하다고 사료된다. 발광 소자는 또한 얇고 가볍다는 점에서 매우 큰 장점이 있다. 더욱이, 매우 높은 응답 속도가 이러한 소자의 특징 중 하나이다.

[0004] 또한, 이러한 발광 소자는 막 형태로 형성될 수 있기 때문에, 면상(planar) 발광을 용이하게 제공할 수 있다. 따라서, 면상의 발광을 이용하는 대면적의 소자를 쉽게 형성할 수 있다. 이것은 백열등 및 LED로 대표되는 점광원 또는 형광등으로 대표되는 선광원으로는 얻기 어려운 특색이다. 이와 같이, 발광 소자는 또한 조명 등에 이용할 수 있는 면상 광원으로서 큰 잠재성을 갖는다.

[0005] 전계발광을 이용하는 이러한 발광 소자는 발광 물질이 유기 화합물인지 또는 무기 화합물인지에 따라 대별될 수 있다. 발광 물질로서 사용된 유기 화합물을 함유하는 층이 한 쌍의 전극 사이에 제공되는 유기 EL 소자의 경우에, 발광 소자에 전압을 인가하면, 발광성을 갖는 유기 화합물을 함유하는 층 내부로 음극으로부터의 전자와 양극으로부터의 정공을 주입하여 전류가 흐른다. 주입된 전자와 정공은 그 다음 발광성을 갖는 유기 화합물을 그의 여기된 상태로 유도함으로써, 발광성을 갖는 여기된 유기 화합물로부터 발광이 얻어진다.

[0006] 유기 화합물에 의해 형성된 여기된 상태는 일중항(singlet) 여기 상태 또는 삼중항(triplet) 여기 상태로 될 수 있다. 일중항 여기 상태(S^*)로부터의 발광을 형광이라 부르고, 삼중항 여기 상태(T^*)로부터의 발광을 인광이라 부른다. 또한, 발광 소자에 있어서 그의 통계적인 발생 비율은 다음과 같은 것으로 간주된다: 발광 소자: $S^* : T^* = 1:3$.

[0007] 일중항 여기 상태의 에너지를 발광으로 변환하는 화합물(이하, 형광성 화합물이라 함)에 있어서, 실온에서, 삼중항 여기 상태로부터의 발광(인광)은 관찰되지 않고, 반면에 일중항 여기 상태로부터의 발광(형광)만이 관찰된다. 그러므로, 형광성 화합물을 사용하는 발광 소자의 내부 양자 효율(주입된 캐리어에 대해 발생된 광자의 비)는 발광 소자 $S^* : T^* (1:3)$ 의 비를 근거로 25%의 이론 한계치를 갖는 것으로 추정된다.

[0008] 한편, 삼중항 여기 상태의 에너지를 발광으로 변환하는 화합물(이하, 인광성 화합물이라 함)에 있어서, 삼중항 여기 상태로부터의 발광(인광)이 관찰된다. 또한, 인광성 화합물에 있어서, 항간 교차(intersystem crossing) (즉, 일중항 여기 상태에서부터 삼중항 여기 상태로 전환)가 쉽게 발생하기 때문에, 내부 양자 효율은 이론상 75% 내지 100%까지 증가될 수 있다. 즉, 발광 효율은 형광성 화합물에 비해 3 내지 4배로 될 수 있다. 이러한 이유 때문에, 인광성 화합물을 사용하는 발광 소자는 고 효율의 발광 소자를 실현하기 위해 현재 개발이 활발히 이루어지고 있다.

[0009] 상술한 인광성 화합물을 사용하여 발광 소자의 발광층을 형성할 때, 인광성 화합물에서 농도 소광(concentration quenching) 또는 삼중항-삼중항 소멸에 의한 소광을 억제하기 위해서, 인광성 화합물이 또 다른 화합물의 매트릭스에 분산되도록 발광층이 종종 형성된다. 여기서, 매트릭스 역할을 하는 화합물은 호스트 재료로 불리고, 인광성 화합물과 같이 매트릭스에 분산된 화합물은 게스트 재료로 불린다.

[0010] 인광성 화합물이 게스트 재료인 경우에, 호스트 재료는 인광성 화합물보다 더 높은 삼중항 여기 에너지(기저 상태와 삼중항 여기 상태의 사이에서 큰 에너지 차)를 가질 필요가 있다.

- [0011] 또한, 일중항 여기 에너지(기저 상태와 일중항 여기 상태 사이의 에너지 차)가 삼중항 여기 에너지보다 높기 때문에, 높은 삼중항 여기 에너지를 갖는 물질도 또한 높은 일중항 여기 에너지를 갖는다. 그러므로, 높은 삼중항 여기 에너지를 갖는 상기 물질도 또한 발광 물질로서 형광성 화합물을 사용하는 발광 소자에서 효과적이다.
- [0012] 인광성 화합물이 게스트 재료일 때 사용된 호스트 재료의 예로서 디벤조[f,h]퀴녹살린 고리를 갖는 화합물에 대한 연구가 이루어졌다(예, 특허문헌 1 및 2 참조).

선행기술문헌

특허문헌

- [0013] (특허문헌 0001) PCT 국제 공개 번호 03/058667
(특허문헌 0002) 일본 특허 출원 공개 번호 2007-189001

발명의 내용

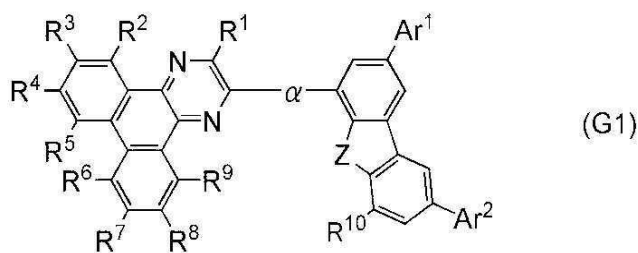
해결하려는 과제

- [0014] 본 발명의 실시양태에 따라서, 내열성이 우수하고 발광 물질(형광을 발생하는 물질 또는 인광을 발생하는 물질)에 대한 호스트 재료로서 사용될 수 있는 신규한 헤테로사이클 화합물이 제공된다. 또한, 본 발명의 실시양태에 따라서, 우수한 내열성, 낮은 구동 전압, 높은 전류 효율 및 긴 수명을 갖는 발광 소자가 제공된다. 또한, 본 발명의 실시양태에 따라서, 발광 소자의 사용으로 소비전력이 감소되는 발광 장치, 전자기기 및 조명 장치가 제공된다.

과제의 해결 수단

- [0015] 본 발명의 일 실시양태는 하나의 디벤조[f,h]퀴녹살린 고리, 정공 수송성 골격을 갖는 하나의 고리 및 2 내지 8의 벤젠 고리를 갖는 헤테로사이클 화합물을 포함하는 발광 소자이다.
- [0016] 또한, 본 발명의 일 실시양태는 하나의 디벤조[f,h]퀴녹살린 고리 및 정공 수송성 골격을 갖는 하나의 고리를 함유하고 분자량이 564 내지 1000인 헤테로사이클 화합물을 포함하는 발광 소자이다. 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물의 사용으로 인해, 진공 증착에 의해 균질한 막이 형성될 수 있지만, 분자량이 너무 크면 증착 온도가 올라가고, 이는 열분해 등의 문제를 일으킨다. 그러므로, 상기 범위의 분자량이 바람직하다. 또한, 헤테로사이클 화합물은 바람직하게는 하나의 디벤조[f,h]퀴녹살린 고리, 정공 수송성 골격을 갖는 하나의 고리 및 2 내지 8의 벤젠 고리를 포함한다.
- [0017] 본 발명의 또 다른 실시양태는 하나의 디벤조[f,h]퀴녹살린 고리, 정공 수송성 골격을 갖는 하나의 고리 및 4 내지 8의 벤젠 고리를 함유하는 헤테로사이클 화합물을 포함하는 발광 소자이다.
- [0018] 또한, 본 발명의 일 실시양태는 하나의 디벤조[f,h]퀴녹살린 고리 및 정공 수송성 골격을 갖는 하나의 고리를 함유하고 분자량이 716 내지 1000인 헤테로사이클 화합물을 포함하는 발광 소자이다. 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물의 사용으로 인해, 진공 증착에 의해 균질한 막을 형성할 수 있지만, 분자량이 너무 큰 경우 증착 온도가 상승되어 열 분해 등의 문제를 일으킨다. 그러므로, 분자량은 상기 범위가 바람직하다. 또한, 헤테로사이클 화합물은 하나의 디벤조[f,h]퀴녹살린 고리, 정공 수송성 골격을 갖는 하나의 고리 및 4 내지 8의 벤젠 고리를 포함하는 것이 바람직하다.
- [0019] 각 구성에 있어서, 정공 수송성 골격을 갖는 고리는 카르바졸 고리, 디벤조티오펜 고리, 또는 디벤조퓨란 고리이다.
- [0020] 또한, 각 구성에 있어서, 헤테로사이클 화합물은 비페닐기 또는 비페닐디일기를 갖는다. 비페닐 골격으로 내열성을 개선할 수 있다. 또한, 비페닐 골격은 큰 부피의 골격을 형성하여 결정화를 방지한다. 이와 같은 관점에서, m-비페닐기 또는 3,3'-비페닐디일기가 특히 바람직하다.
- [0021] 본 발명의 또 다른 실시양태는 다음 일반식(G1)으로 나타내어지는 헤테로사이클 화합물이다:

[0022] [일반식(G1)]



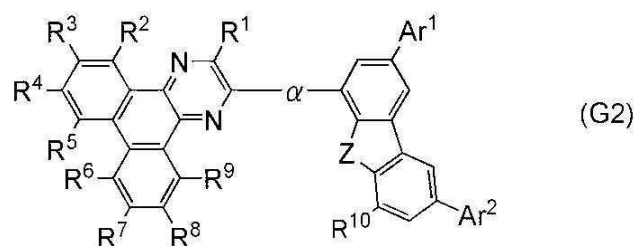
[0023]

[0024] 상기 식에서, α 는 치환 또는 비치환 페닐렌기를 나타내고, Ar^1 및 Ar^2 는 각각 치환 또는 비치환 비페닐기를 나타내고, R^1 내지 R^{10} 은 독립적으로 수소, 1 내지 4의 탄소 원자를 갖는 알킬기, 또는 6 내지 13의 탄소 원자를 갖는 치환 또는 비치환 아릴기를 나타내고, 그리고 Z는 산소 또는 황을 나타낸다.

[0025] 상기 구성에서, α 로 나타내어지는 페닐렌기는 m-페닐렌기이다.

[0026] 본 발명의 또 다른 실시양태는 하기 일반식(G2)으로 나타내어지는 헤테로사이클 화합물이다:

[0027] [일반식(G2)]



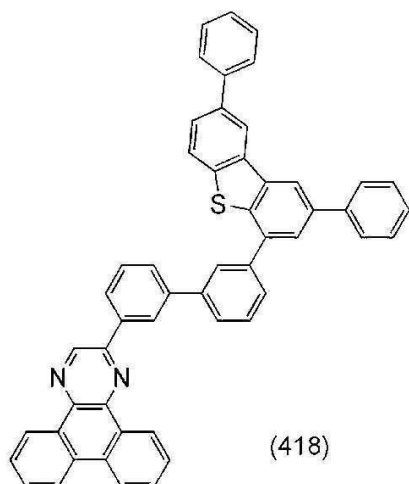
[0028]

[0029] 상기 식에서, α 는 치환 또는 비치환 페닐디일기를 나타내고, Ar^1 및 Ar^2 는 각각 치환 또는 비치환 페닐기 또는 치환 또는 비치환 비페닐기를 나타내고, R^1 내지 R^{10} 은 독립적으로 수소, 1 내지 4의 탄소 원자를 갖는 알킬기, 또는 6 내지 13의 탄소 원자를 갖는 치환 또는 비치환 아릴기를 나타내고, 그리고 Z는 산소 또는 황을 나타낸다.

[0030] 상기 구성에서, α 로 표시된 비페닐디일기는 비페닐-3,3'-디일기이다.

[0031] 본 발명의 또 다른 실시양태는 다음 구조식(418)으로 나타내어지는 헤테로사이클 화합물이다:

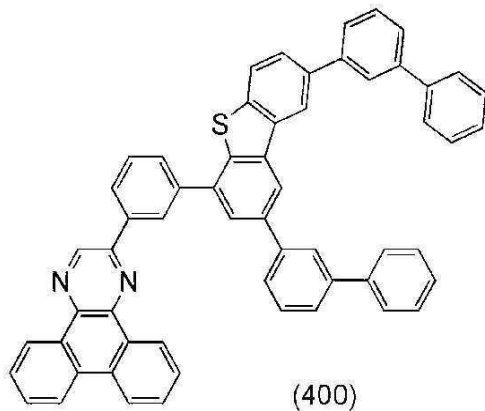
[0032] [구조식(418)]



[0033]

[0034] 본 발명의 또 다른 실시양태는 다음 구조식(400)으로 나타내어지는 헤테로사이클 화합물이다:

[0035] [구조식(400)]



[0036]

[0037] 본 발명의 실시양태 중 어느 하나에 따른 헤테로사이클 화합물은 디벤조[f,h]퀴놀살린 고리 이외에 정공 수송성 골격을 갖기 때문에 정공을 쉽게 수용한다. 또한, 본 발명의 실시양태 중 어느 하나에 따른 헤테로사이클 화합물은 복수의 벤젠 고리를 포함하기 때문에, 우수한 내열성을 갖는다. 따라서, 발광층의 호스트 재료로서 본 발명의 실시양태 중 어느 하나에 따른 헤테로사이클 화합물을 사용함으로써, 발광 소자는 우수한 내열성을 가질 수 있고, 그리고 전자 및 정공은 발광층을 재결합하므로, 발광 소자의 수명 감소를 억제할 수 있다. 또한, 정공 수송성 골격의 도입으로 인해 본 발명의 실시양태 중 어느 하나에 따른 헤테로사이클 화합물이 3차원의 부피 큰 구조를 갖게 하고, 그리고 헤테로사이클 화합물은 막으로 형성될 때 결정화되기 어렵다. 발광 소자에 대해 헤테로사이클 화합물을 사용함으로써, 소자는 긴 수명을 가질 수 있다. 더욱이, 이러한 헤테로사이클 화합물에 있어서, 디벤조[f,h]퀴놀살린 고리와 정공 수송성 골격이 벤젠 고리를 통해 결합되는 경우에, 디벤조[f,h]퀴놀살린 고리 및 정공 수송성 골격이 직접 결합되는 화합물에 비해 밴드 갭의 저하 및 삼중항 여기 에너지의 저하가 방지될 수 있다. 발광 소자에 헤테로사이클 화합물을 사용함으로써, 소자는 높은 전류 효율을 가질 수 있다. 따라서, 본 발명의 실시양태 중 어느 하나에 따른 헤테로사이클 화합물을 포함하는 발광 소자도 또한 본 발명의 일 실시양태이다.

[0038] 즉, 본 발명의 또 다른 실시양태는 본 발명의 실시양태 중 어느 하나에 따른 헤테로사이클 화합물이 EL층의 발광층에 포함되는 것을 특징으로 하는, 한 쌍의 전극 사이에 EL층을 포함하는 발광 소자이다.

[0039] 본 발명의 또 다른 실시양태는 발광 소자를 포함하는 발광 장치뿐만 아니라 각각 발광 장치를 포함하는 전자기기 및 조명 장치이다. 따라서, 본 명세서에서 발광 장치란 화상 표시 장치 또는 광원(조명 장치 포함)을 의미한다. 또한, 발광 장치는 다음 범주에 속하는 모듈 중 어느 것이라도 포함한다: 가요성 인쇄 회로(FPC), TAB(tape automated bonding) 테이프, 또는 TCP(tape carrier package)와 같은 커넥터가 발광 장치에 부착된 모듈; TAB 테이프 또는 단부에 인쇄 배선판이 제공된 TCP를 갖는 모듈; 및 COG(chip on glass) 방식에 의해 발광 소자에 직접 설치된 집적 회로(IC)를 갖는 모듈.

발명의 효과

[0040] 본 발명의 실시양태에 따라서, 내열성이 우수하고 발광 물질(형광을 발생하는 물질 또는 인광을 발생하는 물질)에 대한 호스트 재료로서 사용될 수 있는 신규한 헤테로사이클 화합물이 제공된다. 또한, 본 발명의 실시양태에 따라서, 우수한 내열성, 낮은 구동 전압, 높은 전류 효율 및 긴 수명을 갖는 발광 소자가 제공될 수 있다. 또한, 본 발명의 실시양태에 따라서, 발광 소자의 사용으로 소비전력이 감소되는 발광 장치, 전자기기 및 조명 장치가 제공될 수 있다.

도면의 간단한 설명

[0041] 도 1은 발광 소자의 구조를 나타낸 도면이다.

도 2는 발광 소자의 구조를 나타낸 도면이다.

도 3(A) 및 도 3(B)는 각각 발광 소자의 구조를 나타낸 도면이다.

- 도 4는 발광 장치를 나타낸 도면이다.
- 도 5(A) 및 도 5(B)는 발광 장치를 나타낸 도면이다.
- 도 6(A) 내지 도 6(D)은 각각 전자기기를 나타낸 도면이다.
- 도 7(A) 내지 도 7(C)는 전자기기를 나타낸 도면이다.
- 도 8은 조명 장치를 나타낸 도면이다.
- 도 9는 구조식(418)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물의 $^1\text{H-NMR}$ 차트이다.
- 도 10은 구조식(400)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물의 $^1\text{H-NMR}$ 차트이다.
- 도 11은 발광 소자를 나타낸 도면이다.
- 도 12는 발광 소자 1의 전류 밀도-휘도 특성을 나타낸 도면이다.
- 도 13은 발광 소자 1의 전압-휘도 특성을 나타낸 도면이다.
- 도 14는 발광 소자 1의 휘도-전류 효율 특성을 나타낸 도면이다.
- 도 15는 발광 소자 1의 발광 스펙트럼을 나타낸 도면이다.
- 도 16은 발광 소자 2 및 비교 발광 소자의 80℃ 보존 시험 결과를 나타낸 도면이다.
- 도 17은 발광 소자 3 및 비교 발광 소자의 80℃ 보존 시험 결과를 나타낸 도면이다.
- 도 18은 80℃ 보존 시험 결과를 나타낸 도면이다.
- 도 19는 구조식(418)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물의 LC-MS 측정 결과를 나타낸 도면이다.
- 도 20은 구조식(400)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물의 LC-MS 측정 결과를 나타낸 도면이다.
- 도 21은 구조식(103)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물의 LC-MS 측정 결과를 나타낸 도면이다.
- 도 22(A) 및 도 22(B)는 각각 구조식(113)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물의 LC-MS 측정 결과를 나타낸 도면이다.
- 도 23은 발광 소자 4의 전류 밀도-휘도 특성을 나타낸 도면이다.
- 도 24는 발광 소자 4의 전압-휘도 특성을 나타낸 도면이다.
- 도 25는 발광 소자 4의 휘도-전류 효율 특성을 나타낸 도면이다.
- 도 26은 발광 소자 4의 발광 스펙트럼을 나타낸 도면이다.
- 도 27은 발광 소자 4의 100℃ 보존 시험 결과를 나타낸 도면이다.
- 도 28은 100℃ 보존 시험 결과를 나타낸 도면이다.
- 도 29(A) 및 도 29(B)는 구조식(131)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물의 $^1\text{H-NMR}$ 차트이다.
- 도 30(A) 및 도 30(B)은 각각 구조식(131)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물의 LC-MS 측정 결과를 나타낸 도면이다.
- 도 31은 구조식(400)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물의 TOF-SIMS(정 이온) 측정 결과를 나타낸 도면이다.
- 도 32는 구조식(103)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물의 TOF-SIMS(부 이온) 측정 결과를 나타낸 도면이다.
- 도 33은 구조식(113)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물의 TOF-SIMS(정 이온) 측정 결과를 나타낸 도면이다.
- 도 34(A) 및 도 34(B)는 구조식(203)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물의 $^1\text{H-NMR}$ 차트이다.
- 도 35는 구조식(203)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물의 LC-MS 측정 결과를 나타낸 도면이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0042] 이하, 본 발명의 실시양태 및 실시예는 첨부 도면을 참고로 상세히 설명된다. 본 발명은 이하의 설명에 한정되지 않으며, 본 발명의 정신과 범위를 벗어나지 않고 여러 가지로 변경 및 변형될 수 있다. 그러므로, 본 발명은 하기 실시양태 및 실시예들의 설명에 제한되는 것으로 해석되어서는 안 된다.

[0043] (실시양태 1)

[0044] 본 실시양태에서, 본 발명의 일 실시양태인 발광 소자를 설명한다.

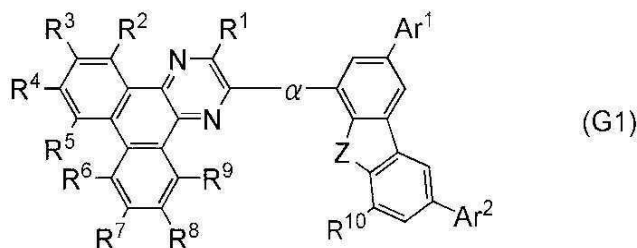
[0045] 본 발명의 실시양태에 따른 발광 소자는 하나의 디벤조[f,h]퀴녹살린 고리, 정공 수송성 골격을 갖는 하나의 고리 및 2 내지 8의 벤젠 고리를 함유하는 헤테로사이클 화합물을 포함한다. 화합물의 내열성이 증가될 수 있기 때문에, 벤젠 고리의 바람직한 수는 2 내지 8이다. 내열성 면에서, 본 발명의 실시양태에 따른 발광 소자는 하나의 디벤조[f,h]퀴녹살린 고리 및 정공 수송성 골격을 갖는 하나의 고리를 함유하고 분자량이 564 내지 1000인 헤테로사이클 화합물을 포함하는 것이 바람직하다. 헤테로사이클 화합물이 발광 소자의 발광층에 대해 사용되는 경우에 그러한 효과가 특히 얻어진다는 것을 주목하여야 한다.

[0046] 화합물의 내열성을 더욱 증가시키기 위해서, 본 발명의 실시양태에 따른 발광 소자는 하나의 디벤조[f,h]퀴녹살린 고리, 정공 수송성 골격을 갖는 하나의 고리 및 4 내지 8의 벤젠 고리를 함유하는 헤테로사이클 화합물을 포함해도 좋다. 내열성 면에서, 본 발명의 실시양태에 따른 발광 소자는 하나의 디벤조[f,h]퀴녹살린 고리 및 정공 수송성 골격을 갖는 하나의 고리를 함유하고 분자량이 716 내지 1000인 헤테로사이클 화합물을 포함하는 것이 바람직하다.

[0047] 발광 소자들 중 하나에 포함된 헤테로사이클 화합물은 비페닐기 또는 비페닐디일기를 갖는다. 정공 수송성 골격을 갖는 고리로서는, 카르바졸 고리, 디벤조티오펜 고리, 또는 디벤조퓨란 고리가 사용된다.

[0048] 본 발명의 실시양태는 하기 일반식(G1)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물이다:

[0049] [일반식(G1)]

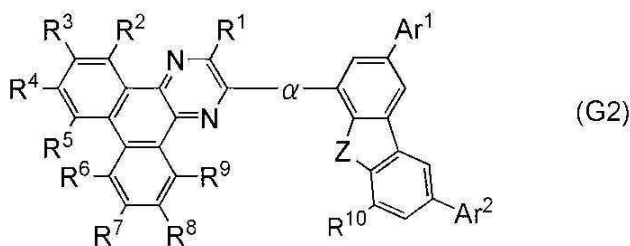


[0050]

[0051] 상기 일반식(G1)에서, α 는 치환 또는 비치환 페닐렌기를 나타내고, Ar^1 및 Ar^2 는 각각 치환 또는 비치환 비페닐기를 나타내고, R^1 내지 R^{10} 은 독립적으로 수소, 1 내지 4의 탄소 원자를 갖는 알킬기, 또는 6 내지 13의 탄소 원자를 갖는 치환 또는 비치환 아릴기를 나타내고, 그리고 Z는 산소 또는 황을 나타낸다.

[0052] 본 발명의 일 실시양태는 일반식(G2)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물이다.

[0053] [일반식(G2)]



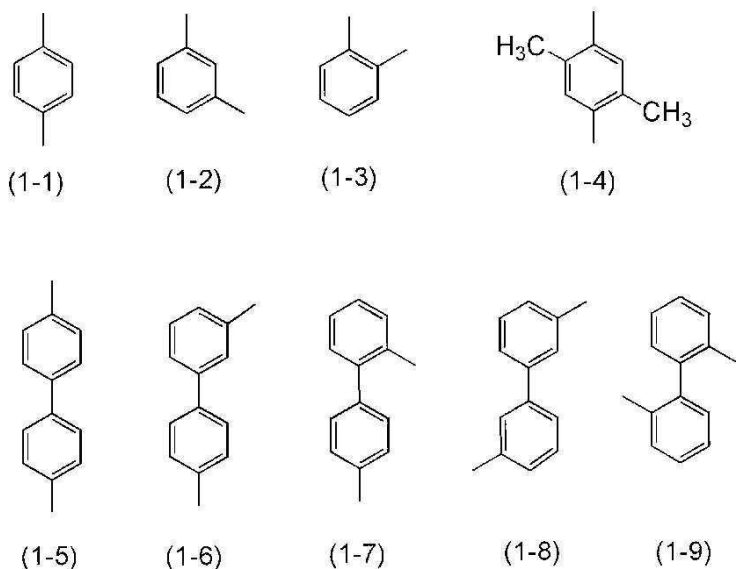
[0054]

[0055] 상기 일반식(G2)에서, α 는 치환 또는 비치환 비페닐디일기를 나타내고, Ar^1 및 Ar^2 는 각각 치환 또는 비치환 페

닐기 또는 치환 또는 비치환 비페닐기를 나타내고, R^1 내지 R^{10} 은 독립적으로 수소, 1 내지 4의 탄소 원자를 갖는 알킬기, 또는 6 내지 13의 탄소 원자를 갖는 치환 또는 비치환 아릴기를 나타내고, 그리고 Z는 산소 또는 황을 나타낸다.

[0056] 화학식(G1) 또는 일반식(G2)에서 a의 구체적인 구조로서는, 예를 들면 하기 구조식(1-1) 내지 구조식(1-9)로 나타내어지는 치환기가 있다:

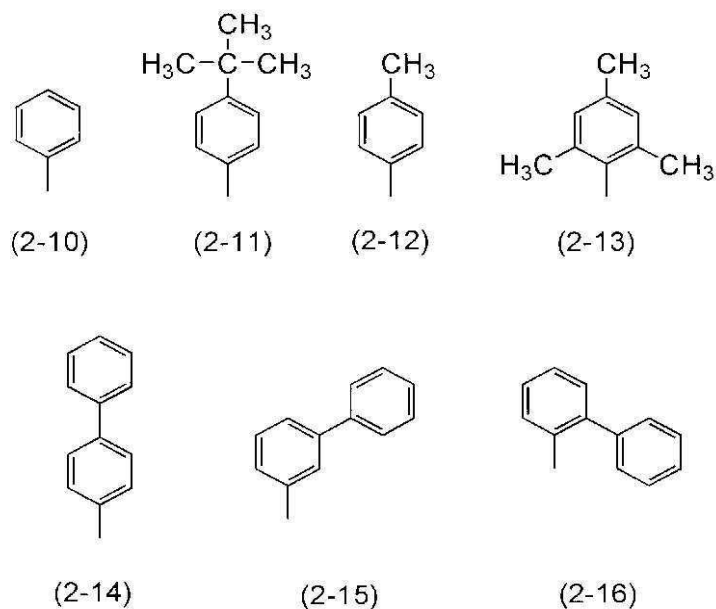
[0057] [구조식(1-1) 내지 구조식(1-9)]



[0058]

[0059] 일반식(G1) 또는 일반식(G2)에서 Ar^1 및 Ar^2 의 구체적인 구조로서는, 예를 들면 하기 구조식(2-10) 내지 구조식(2-16)으로 나타내어진 치환기가 있다:

[0060] [구조식(2-10) 내지 구조식(2-16)]

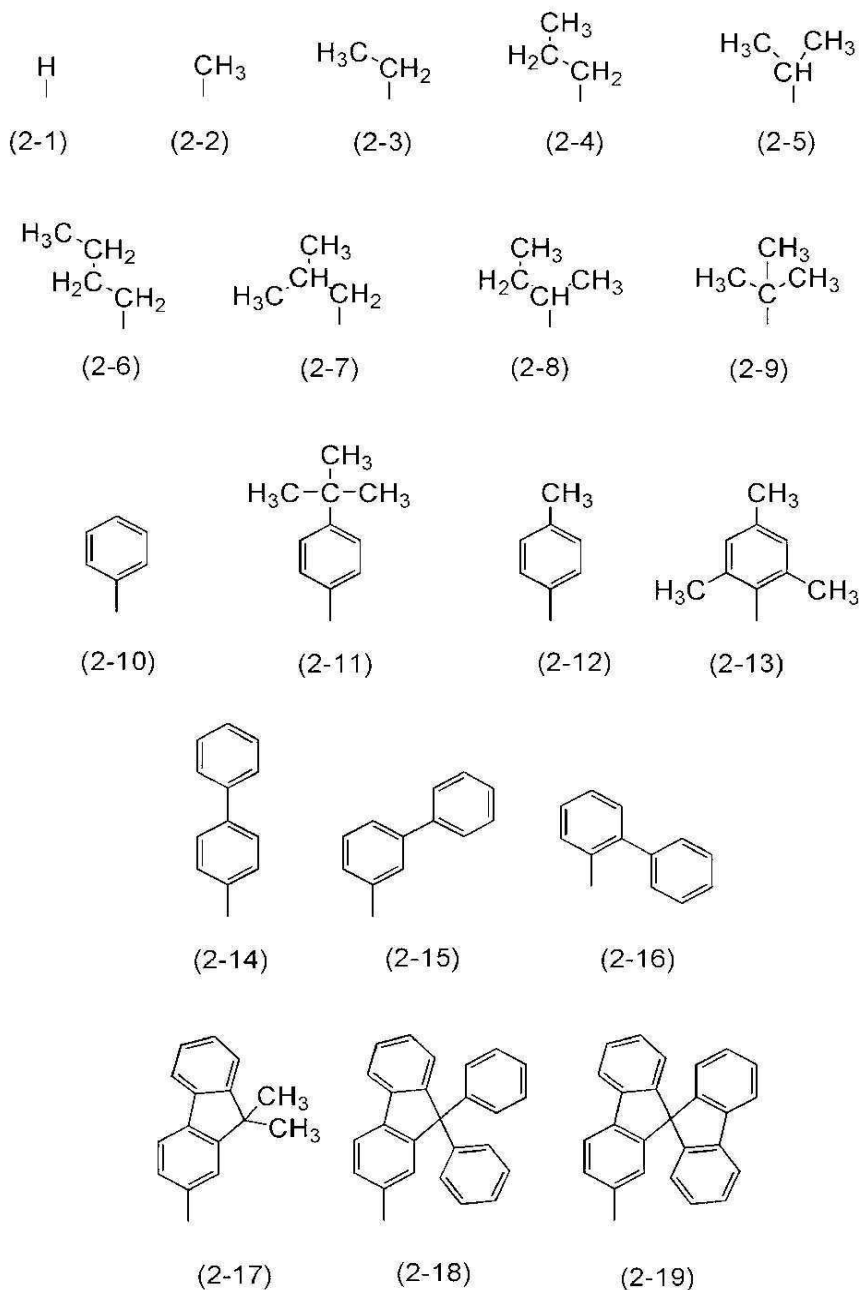


[0061]

[0062] 일반식(G1) 또는 일반식(G2)에서 R^1 내지 R^{10} 의 구체적인 구조로서는, 예를 들면 하기 구조식(2-1) 내지 구조식(2-19)으로 나타내어진 치환기가 있다:

[0063]

[구조식(2-1) 내지 구조식(2-19)]

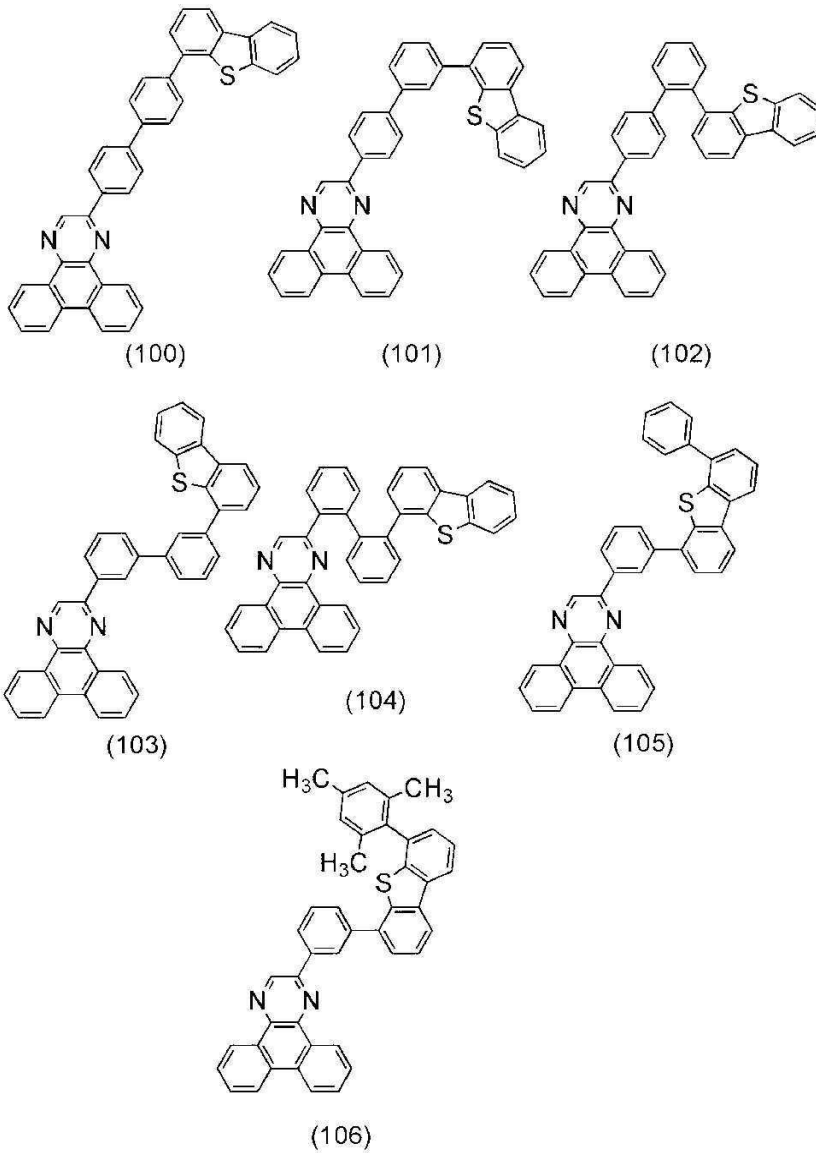


[0064]

[0065]

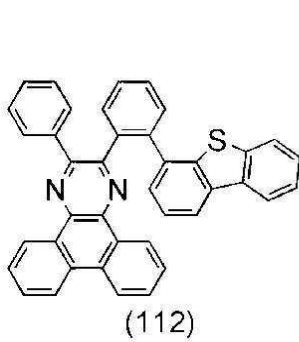
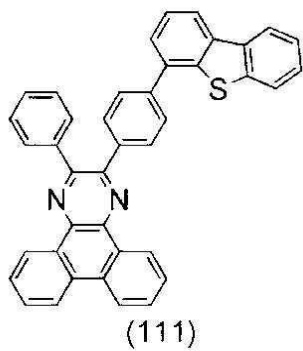
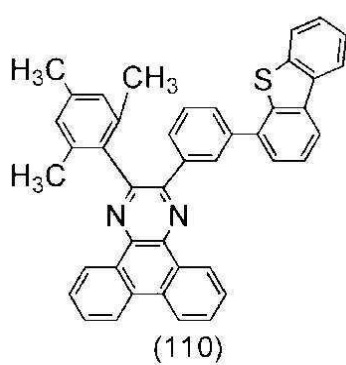
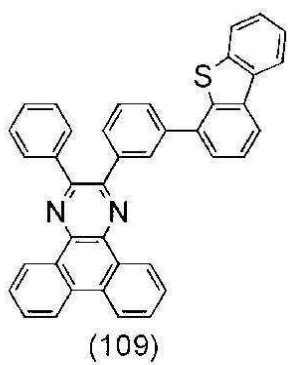
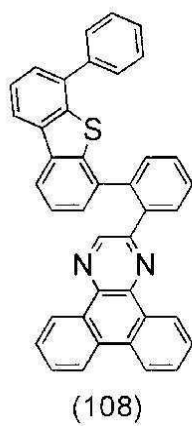
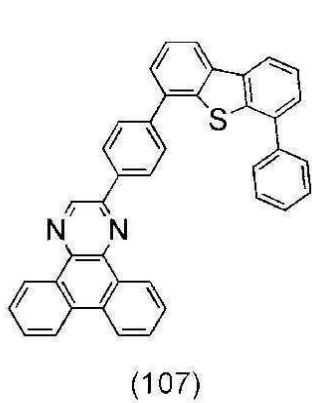
본 발명의 일 실시양태에서 사용될 수 있는 헤테로사이클 화합물의 구체적인 예로는 구조식(100) 내지 구조식(131), 구조식(200) 내지 구조식(230), 구조식(300) 내지 구조식(329), 구조식(400) 내지 구조식(436) 및 구조식(500) 내지 구조식(536)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물이 있다. 일반식(G1)으로 나타내어진 화합물의 구체적인 예로는 구조식(400) 내지 구조식(417) 및 구조식(500) 내지 구조식(517)으로 나타내어진 화합물이 있다. 또한, 일반식(G2)으로 나타내어진 화합물의 구체적인 예로는 구조식(418) 내지 구조식(436) 및 구조식(518) 내지 구조식(536)으로 나타내어진 화합물이 있다. 단, 본 발명은 상기 화합물에 한정되는 것은 아니다.

[0066] [구조식(100) 내지 구조식(106)]



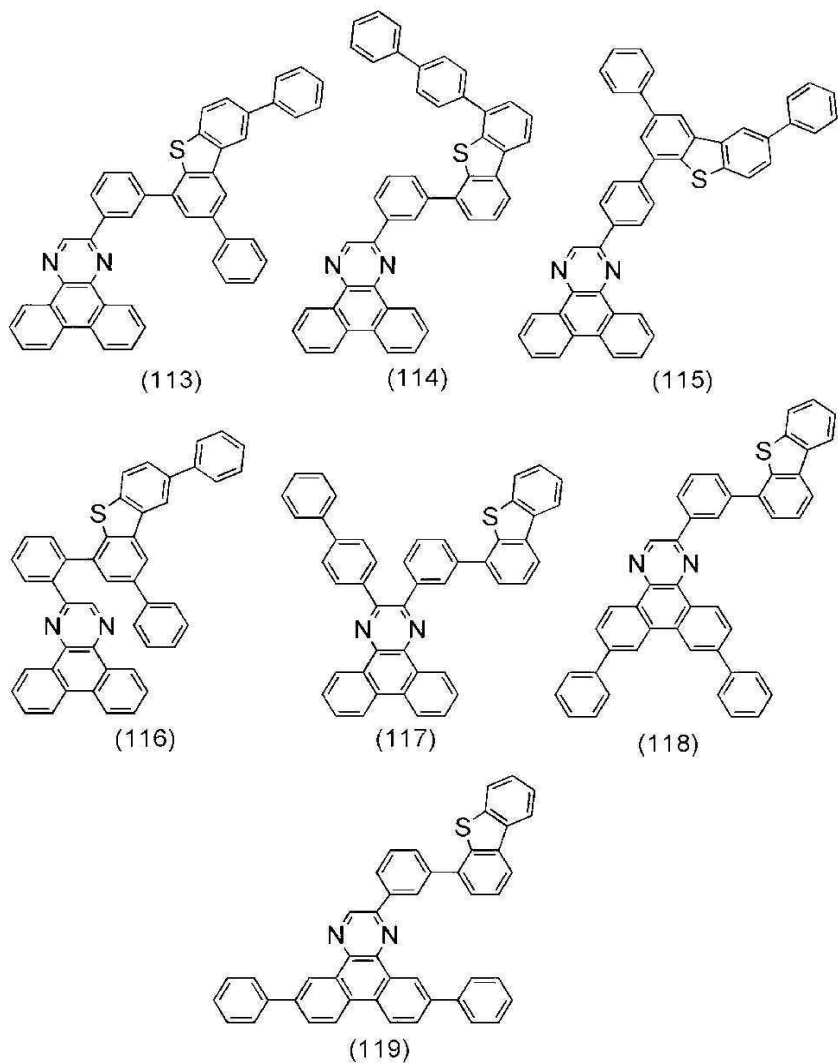
[0067]

[0068] [구조식(107) 내지 구조식(112)]



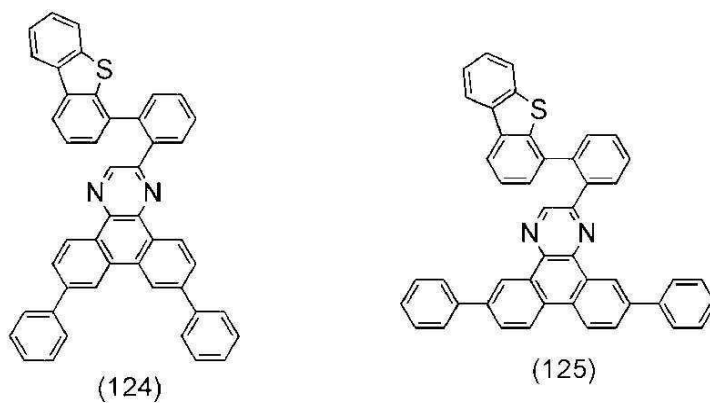
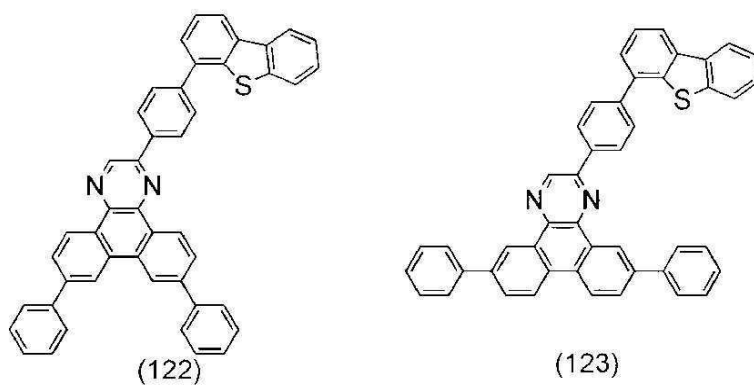
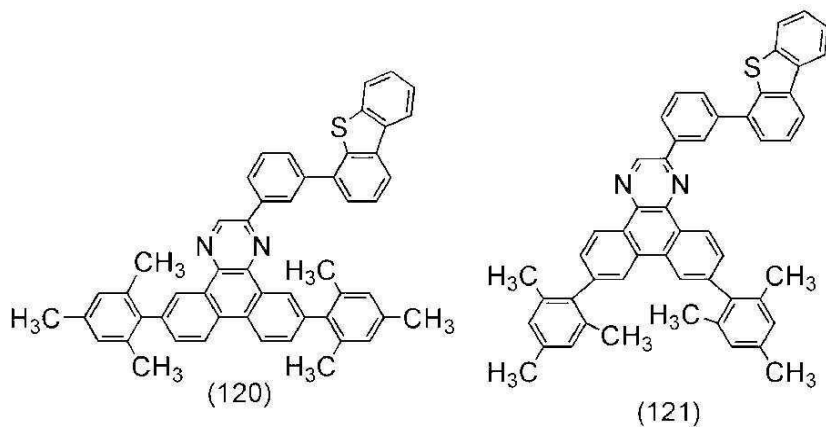
[0069]

[0070] [구조식(113) 내지 구조식(119)]



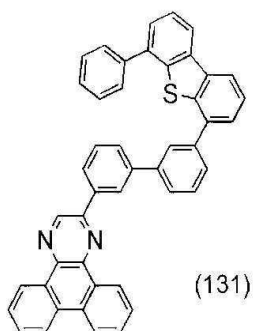
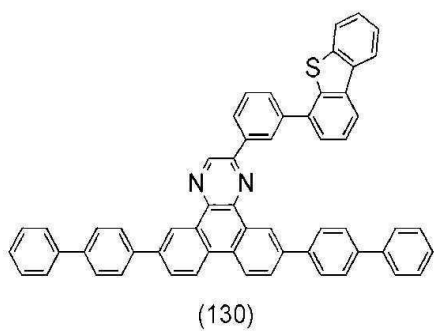
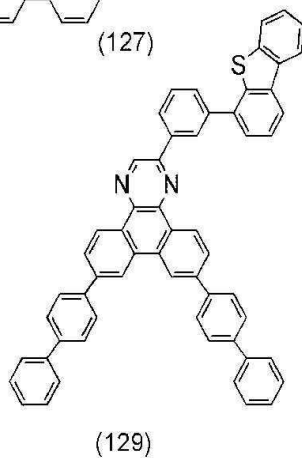
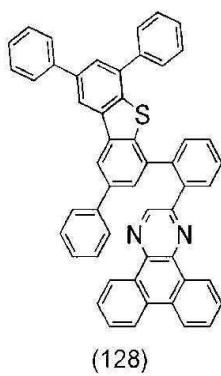
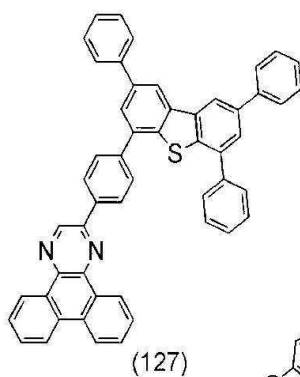
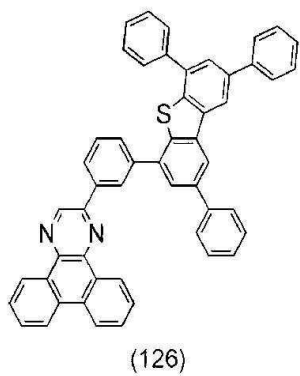
[0071]

[0072] [구조식(120) 내지 구조식(125)]



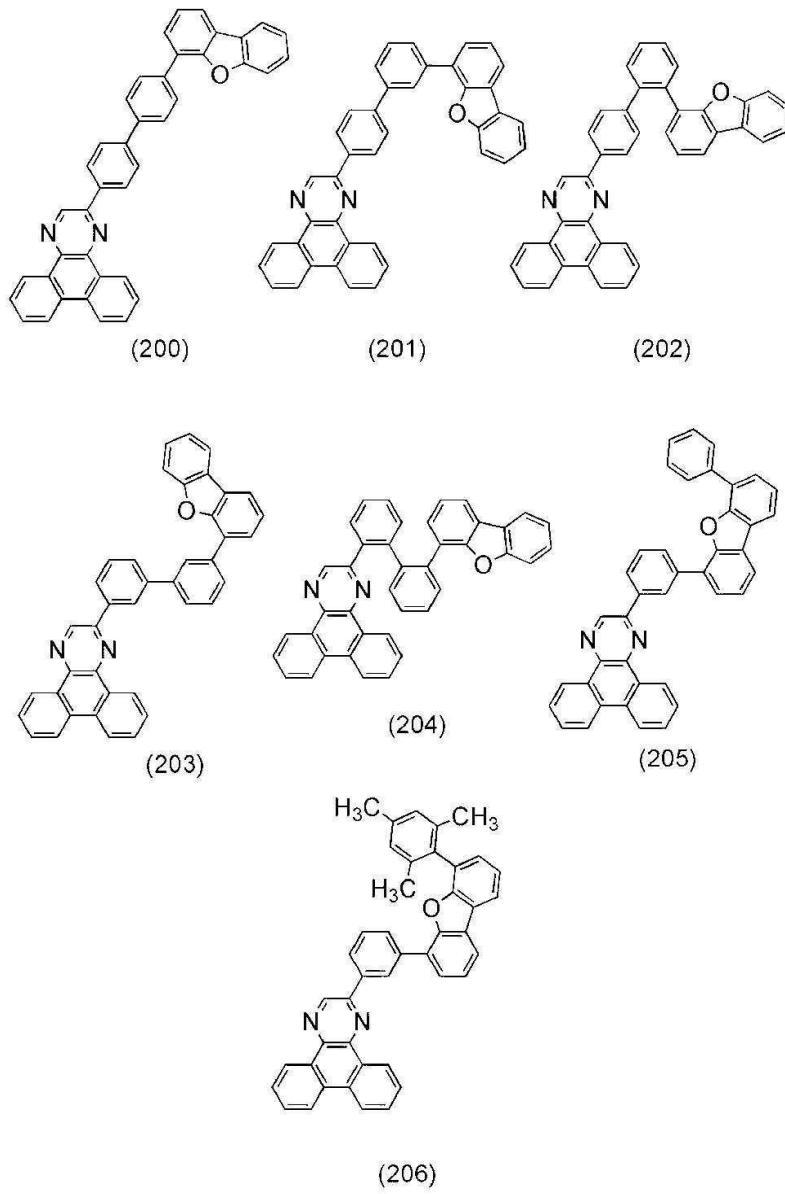
[0073]

[0074] [구조식(126) 내지 구조식(131)]



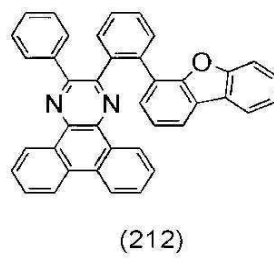
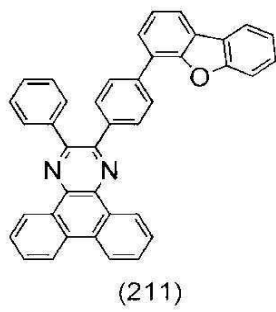
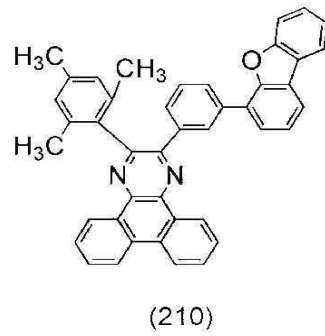
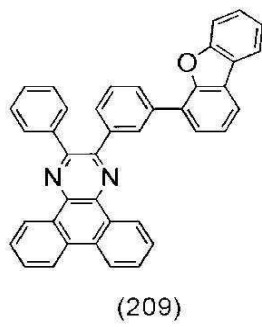
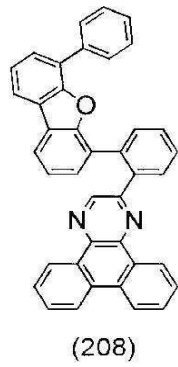
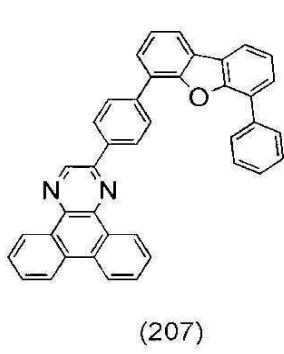
[0075]

[0076] [구조식(200) 내지 구조식(206)]



[0077]

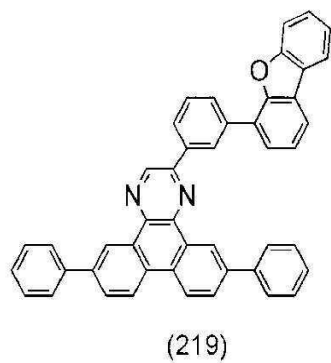
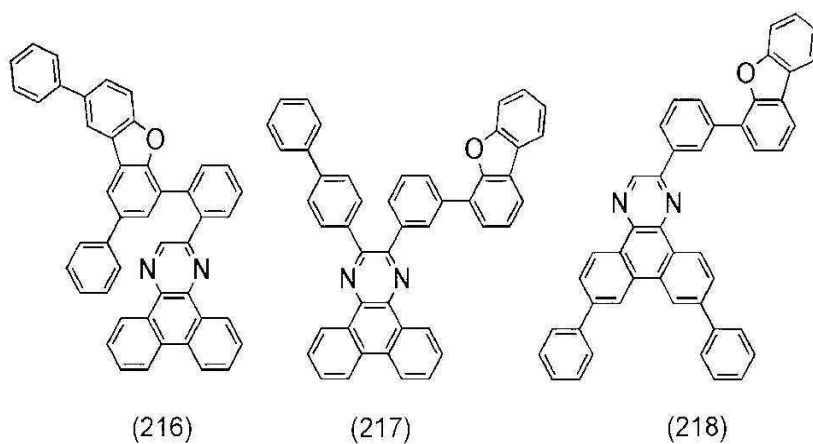
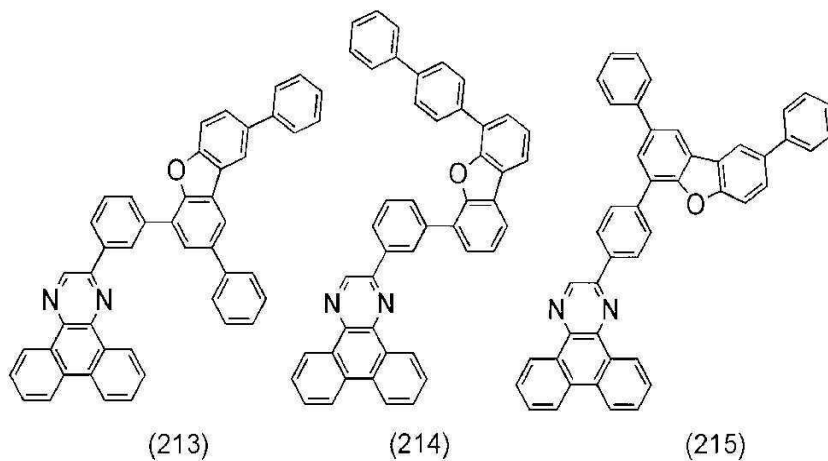
[0078] [구조식(207) 내지 구조식(212)]



[0079]

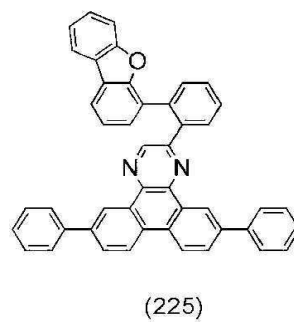
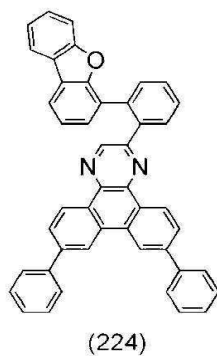
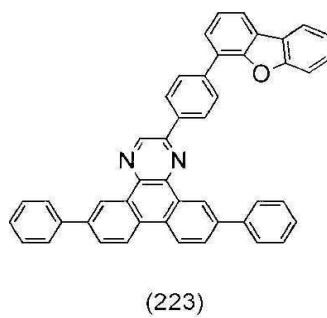
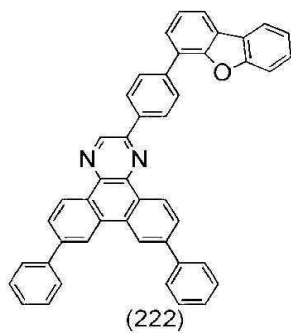
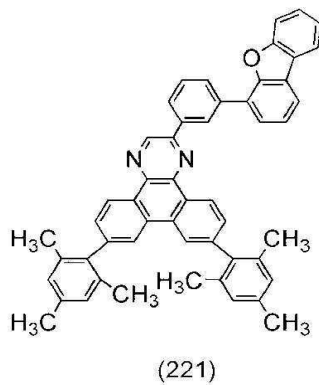
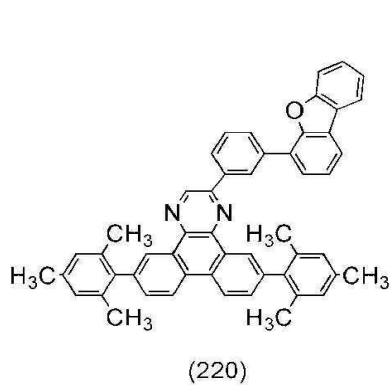
[0080]

[구조식(213) 내지 구조식(219)]



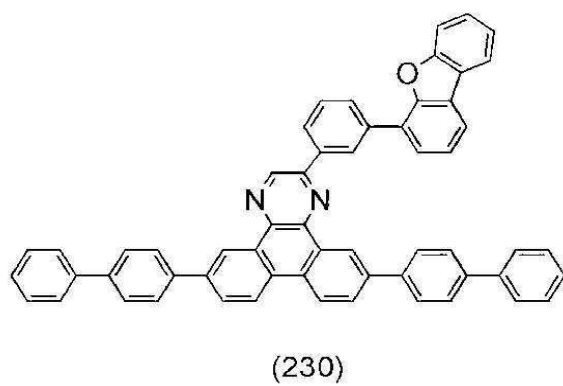
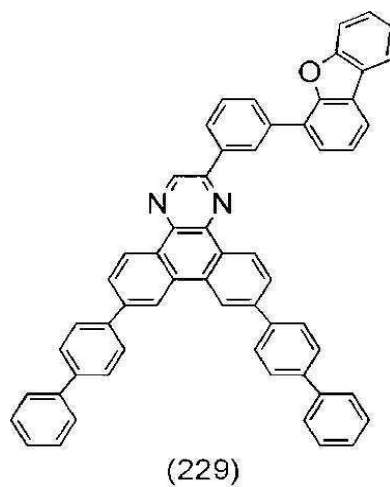
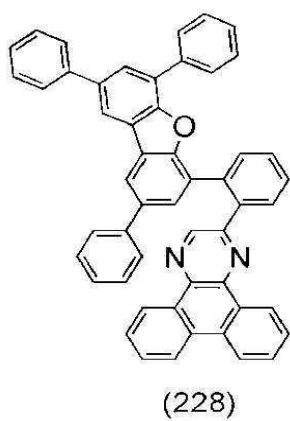
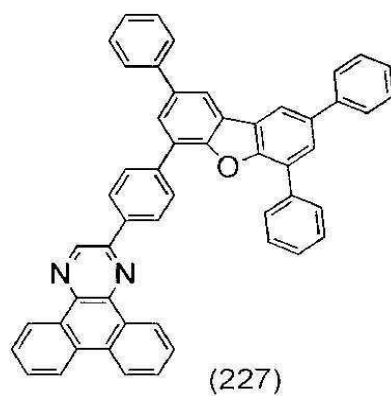
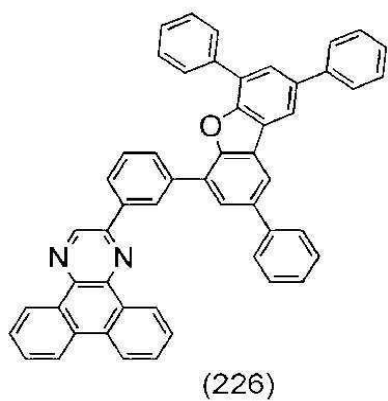
[0081]

[0082] [구조식(220) 내지 구조식(225)]



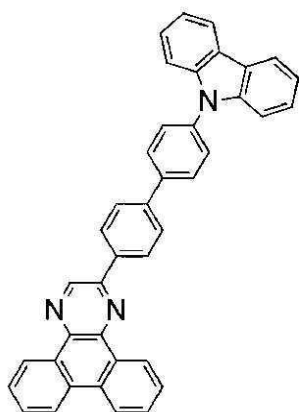
[0083]

[0084] [구조식(226) 내지 구조식(230)]

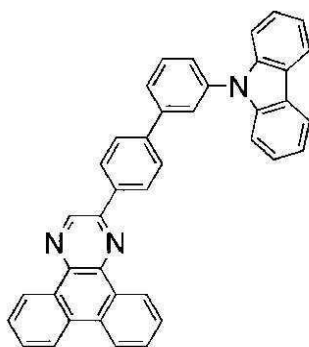


[0085]

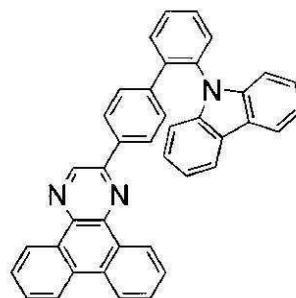
[0086] [구조식(300) 내지 구조식(306)]



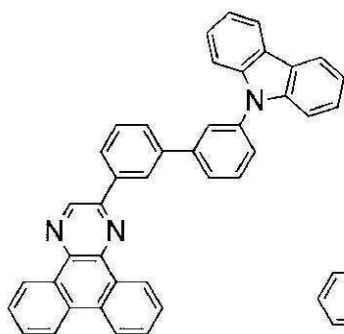
(300)



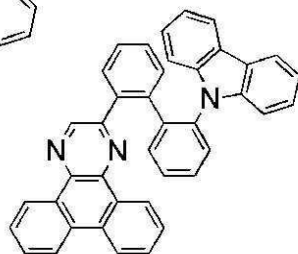
(301)



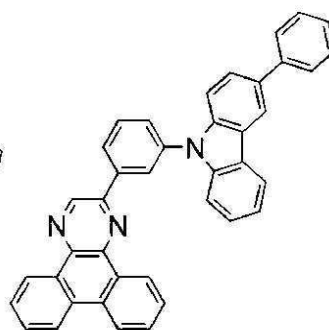
(302)



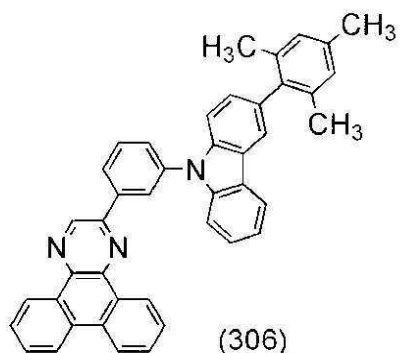
(303)



(304)



(305)

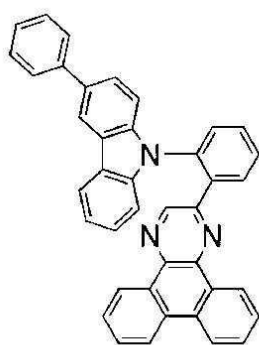


(306)

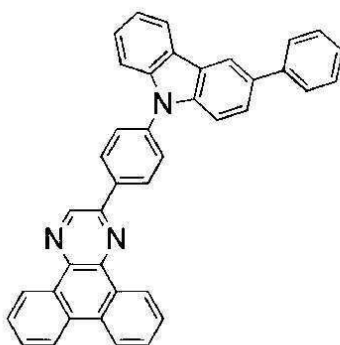
[0087]

[0088]

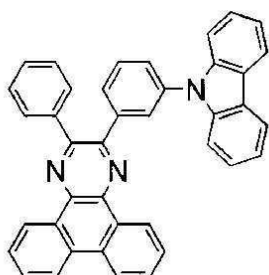
[구조식(307) 내지 구조식(312)]



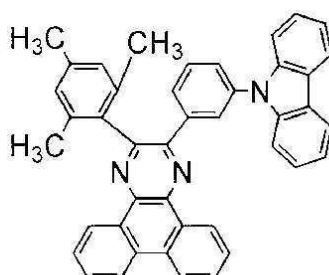
(307)



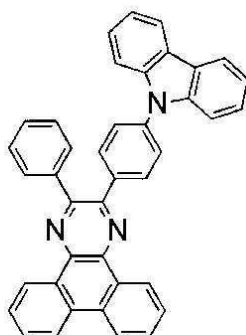
(308)



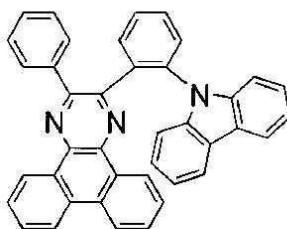
(309)



(310)



(311)

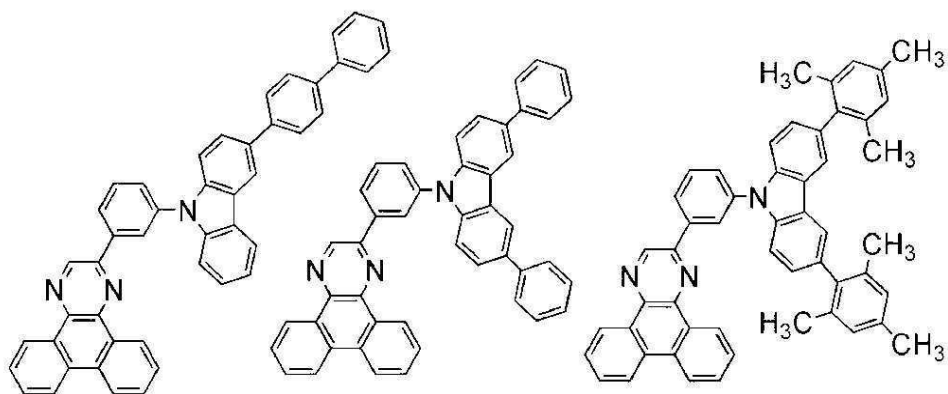


(312)

[0089]

[0090]

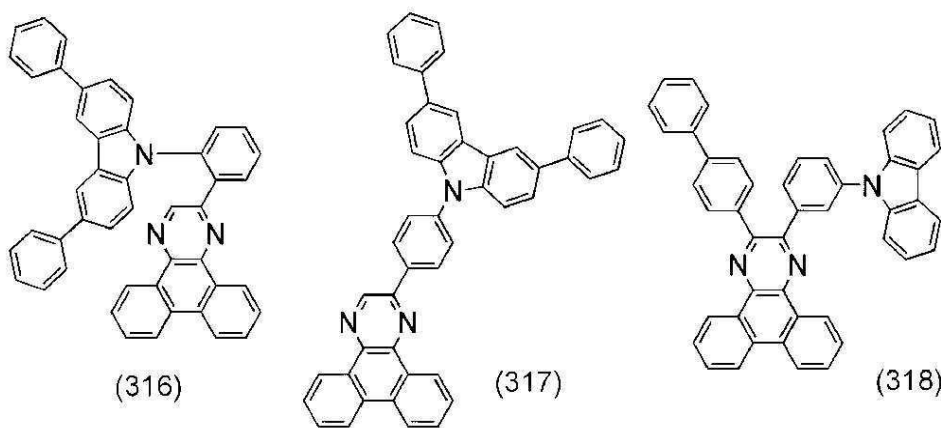
[구조식(313) 내지 구조식(320)]



(313)

(314)

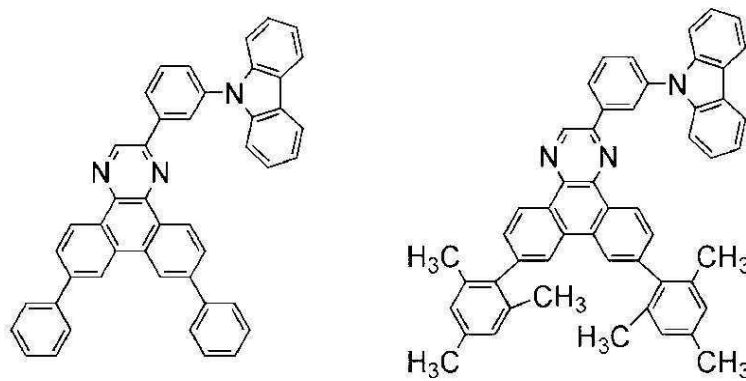
(315)



(316)

(317)

(318)

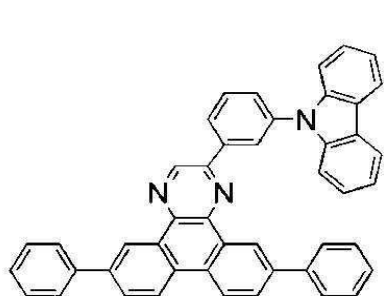


(319)

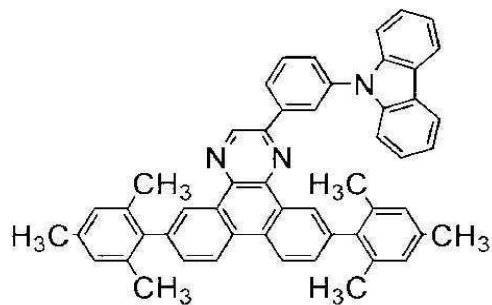
(320)

[0091]

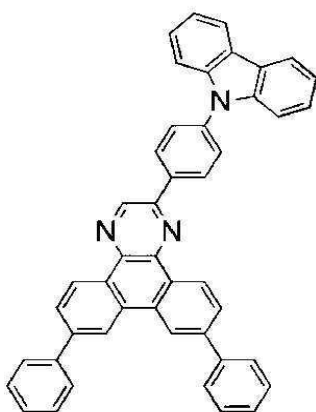
[0092] [구조식(321) 내지 구조식(326)]



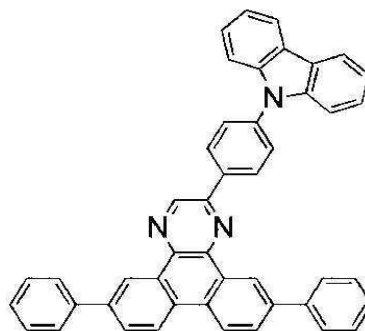
(321)



(322)



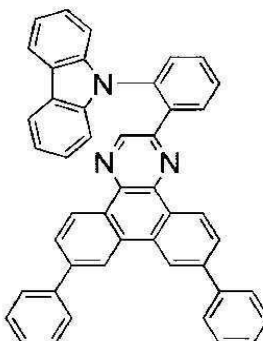
(323)



(324)



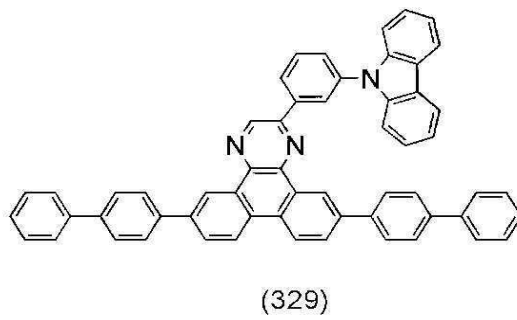
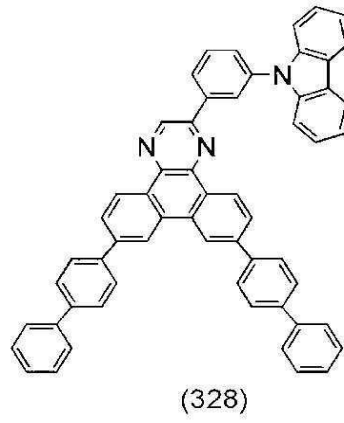
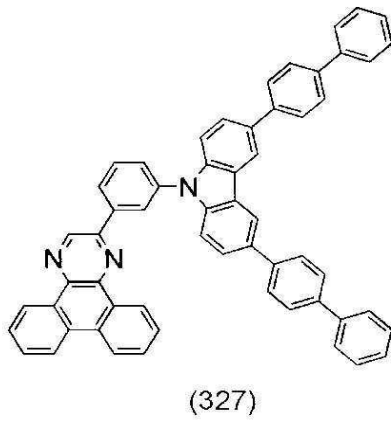
(325)



(326)

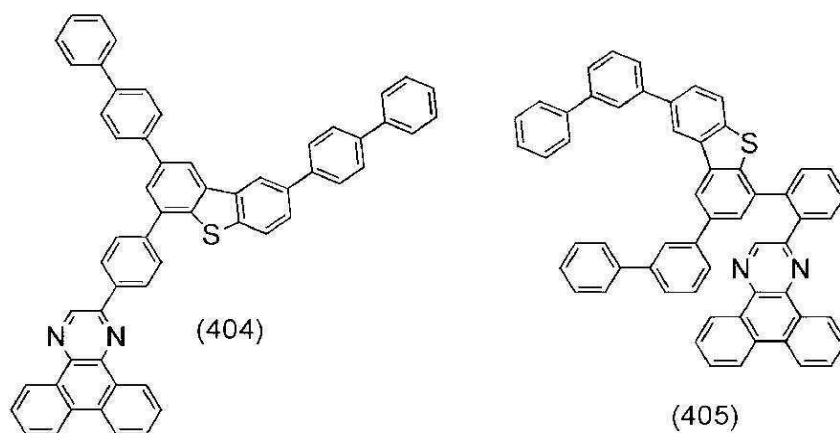
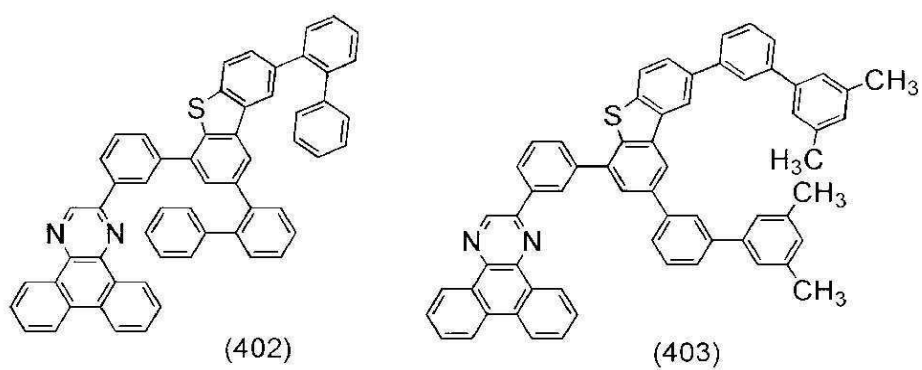
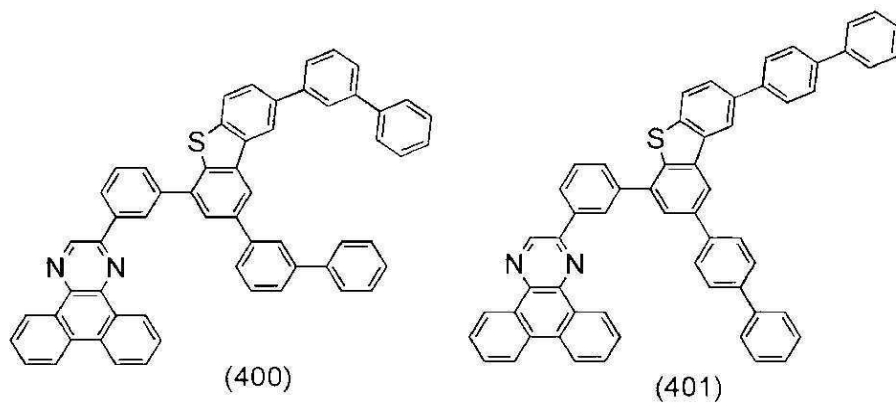
[0093]

[0094] [구조식(327) 내지 구조식(329)]



[0095]

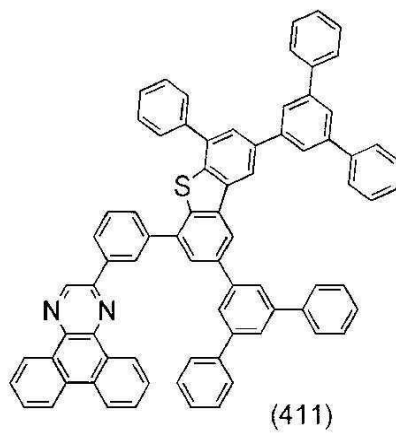
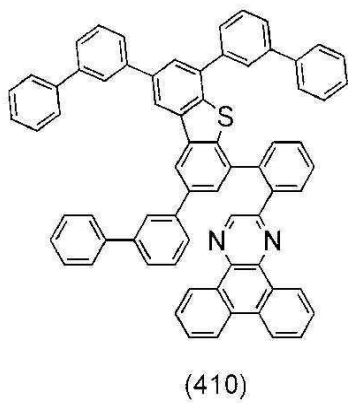
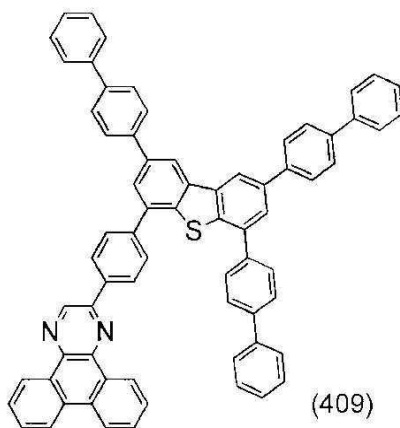
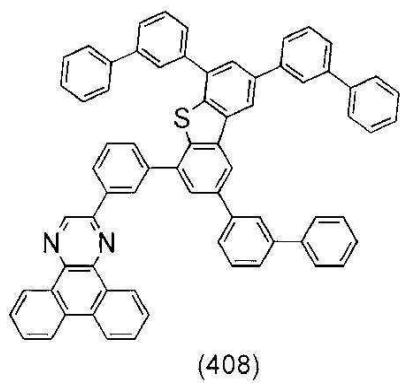
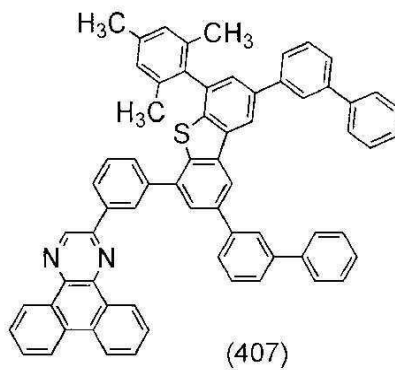
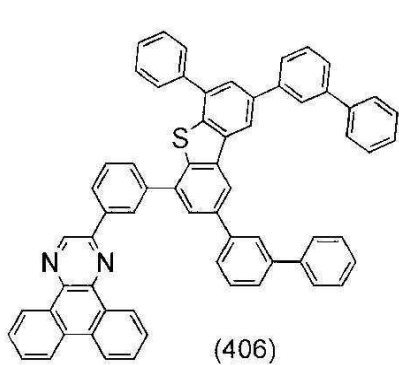
[0096] [구조식(400) 내지 구조식(405)]



[0097]

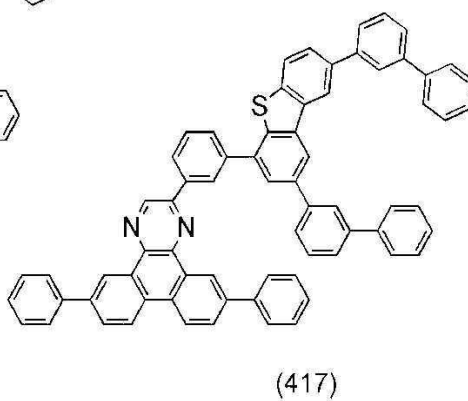
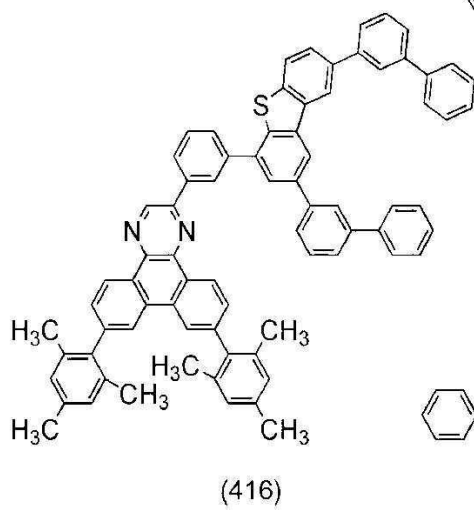
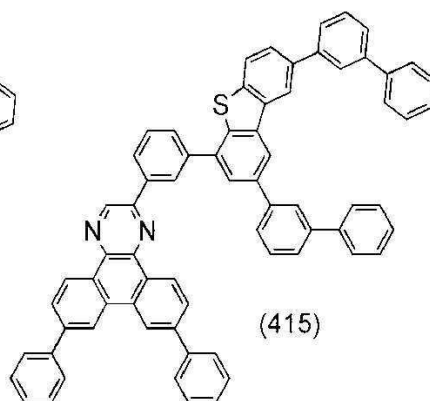
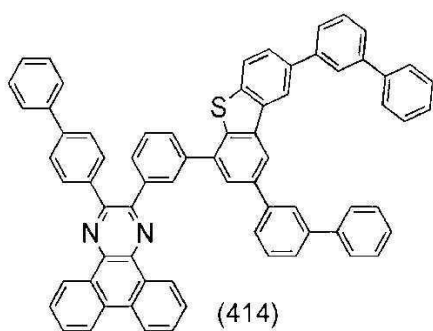
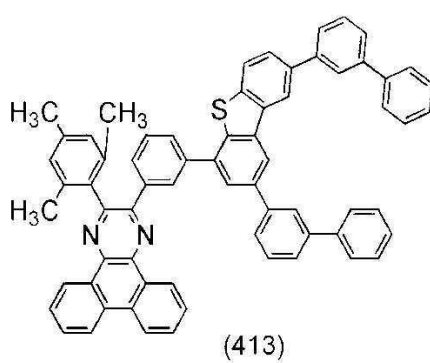
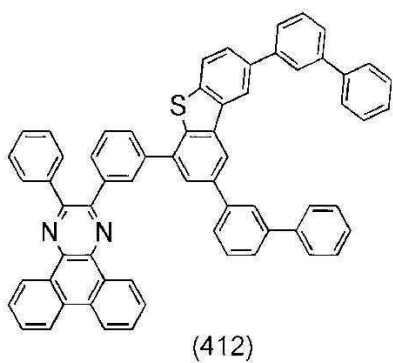
[0098]

[구조식(406) 내지 구조식(411)]



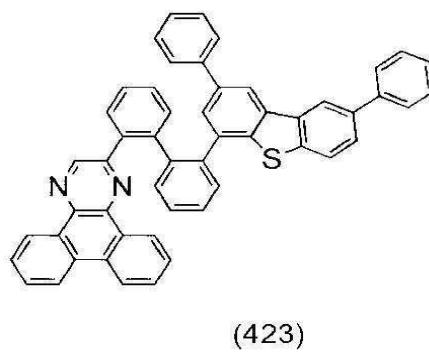
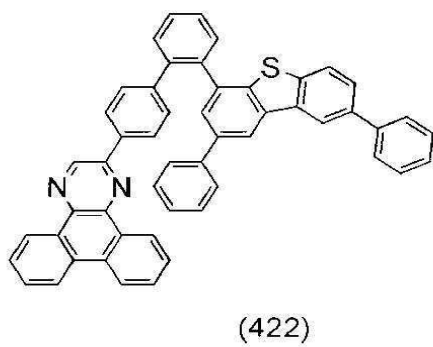
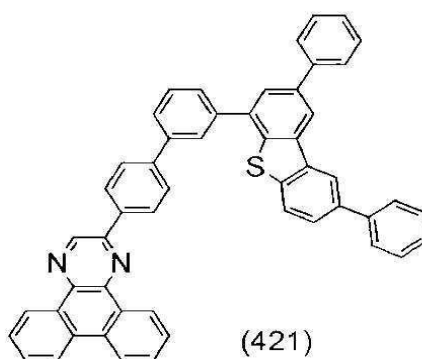
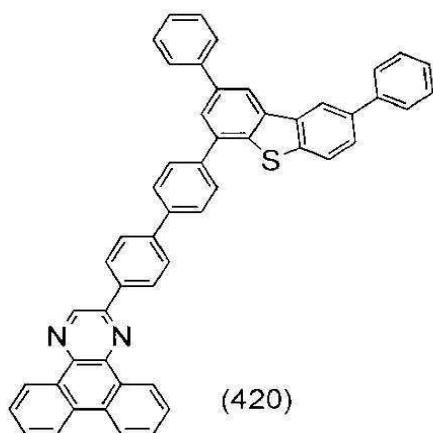
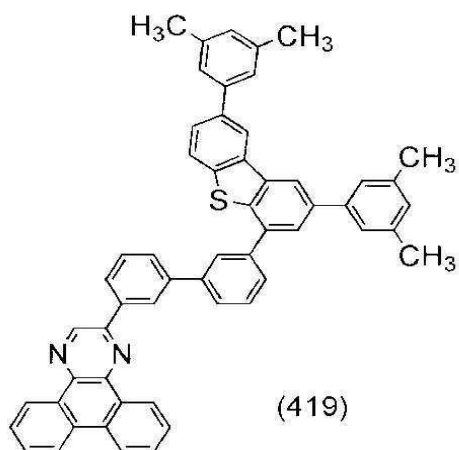
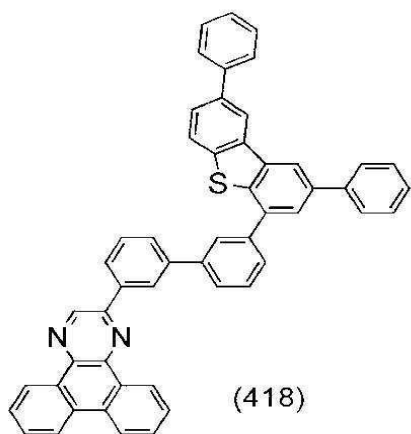
[0099]

[0100] [구조식(412) 내지 구조식(417)]



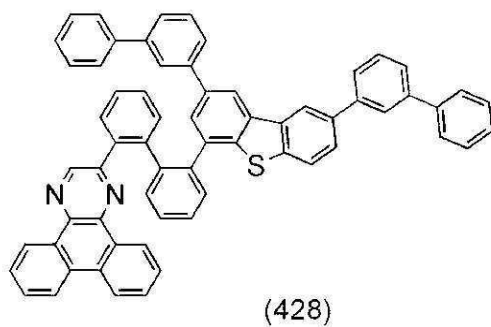
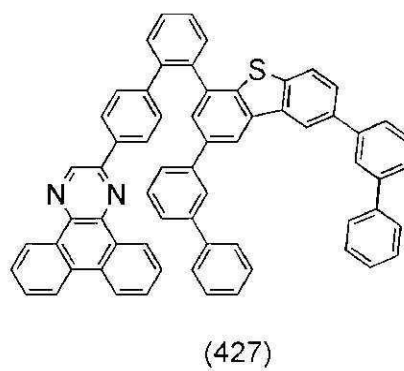
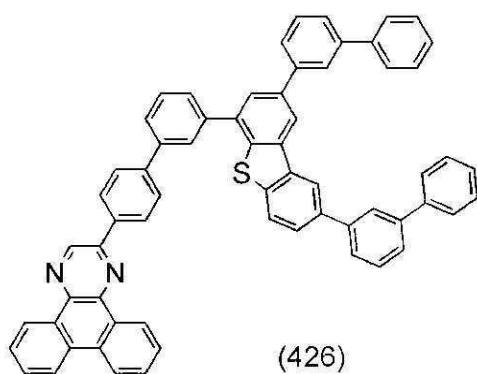
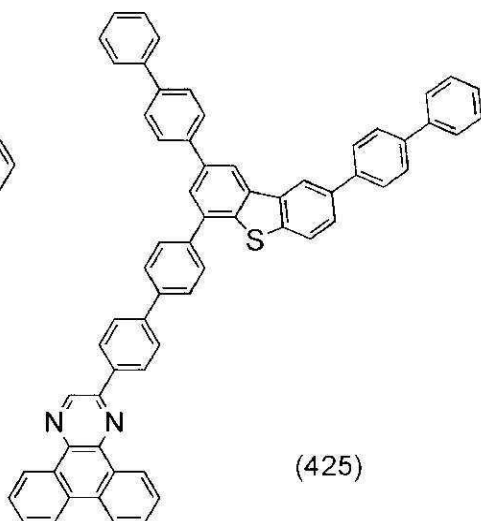
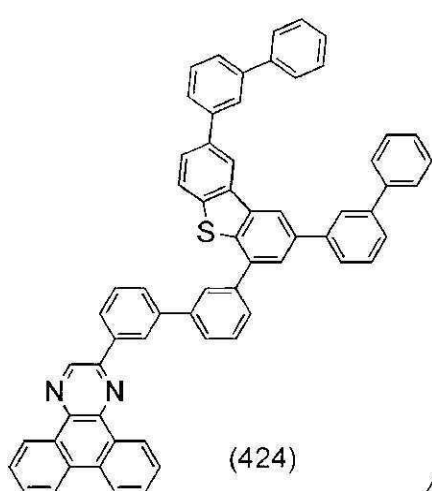
[0101]

[0102] [구조식(418) 내지 구조식(423)]



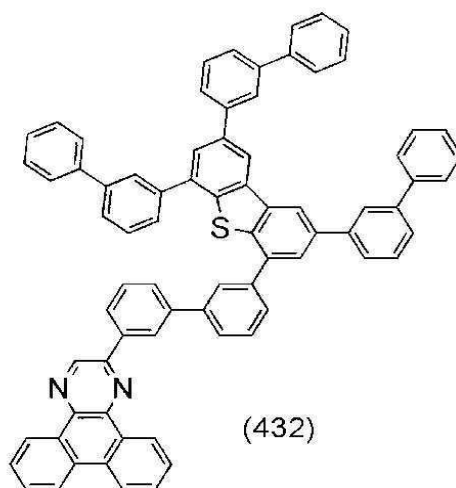
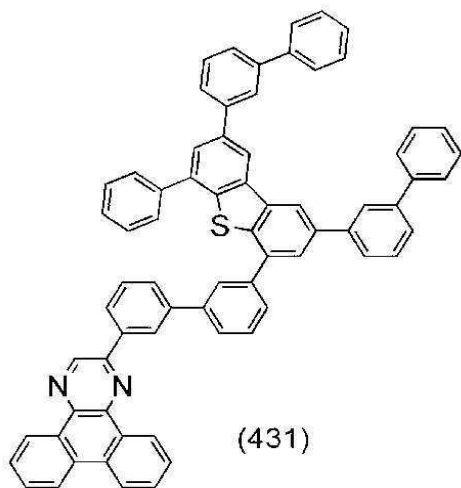
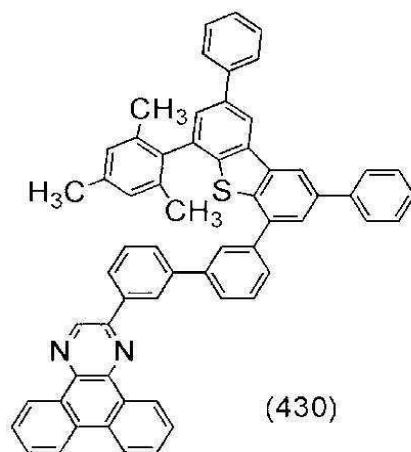
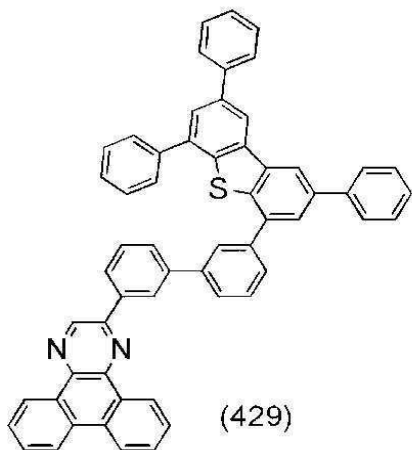
[0103]

[0104] [구조식(424) 내지 구조식(428)]



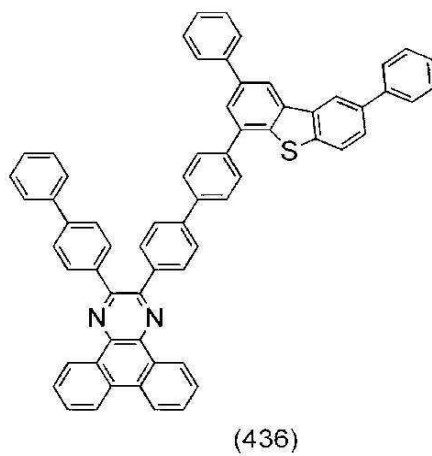
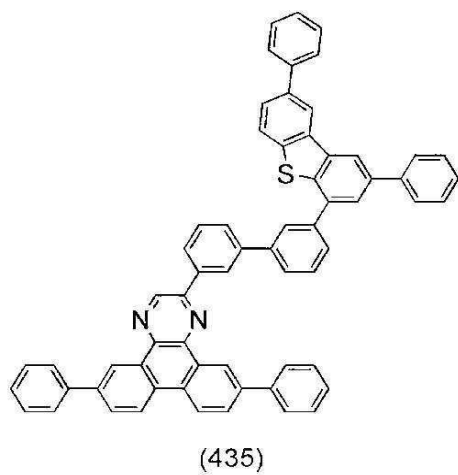
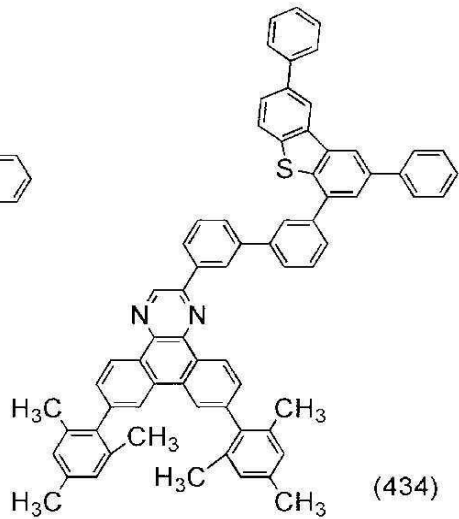
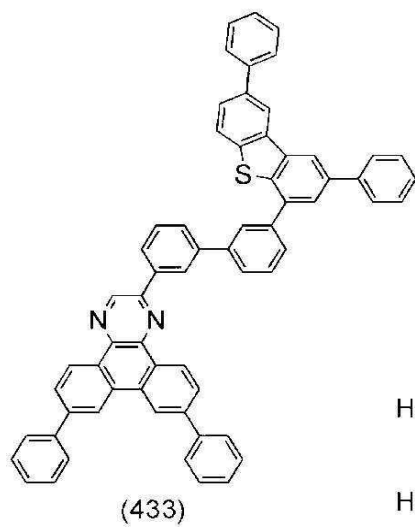
[0105]

[0106] [구조식(429) 내지 구조식(432)]



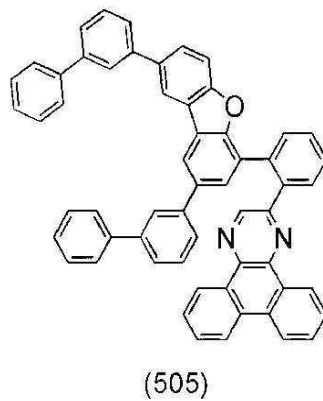
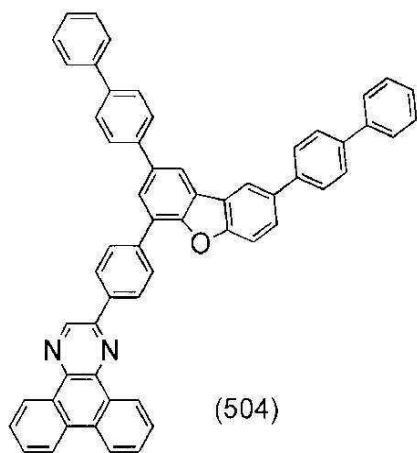
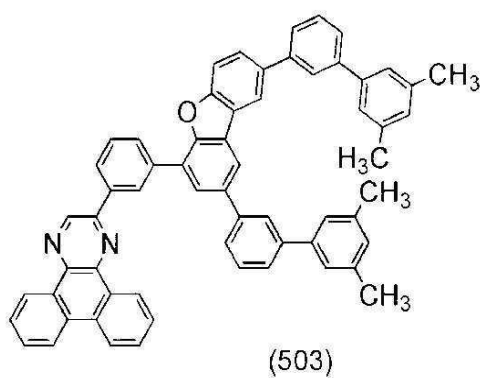
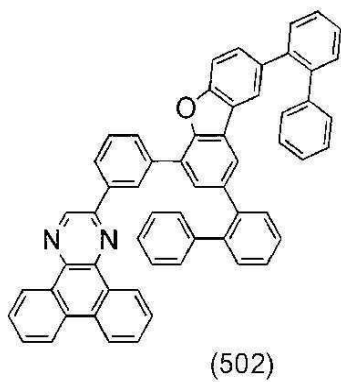
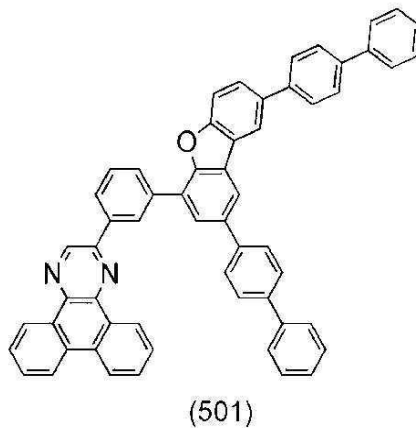
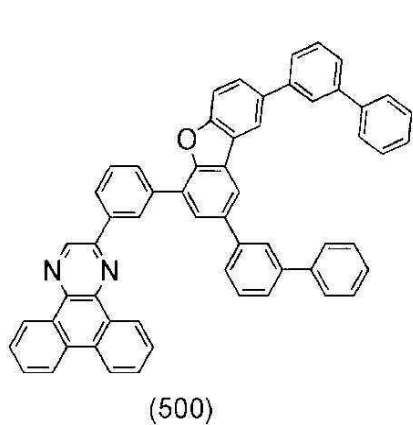
[0107]

[0108] [구조식(433) 내지 구조식(436)]



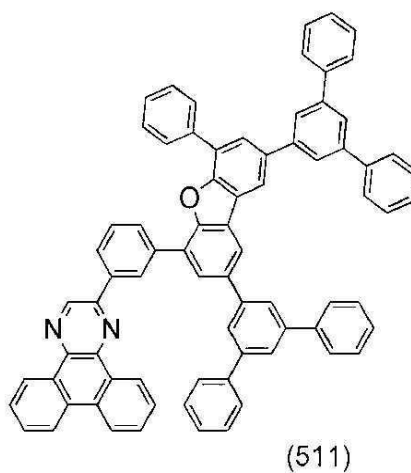
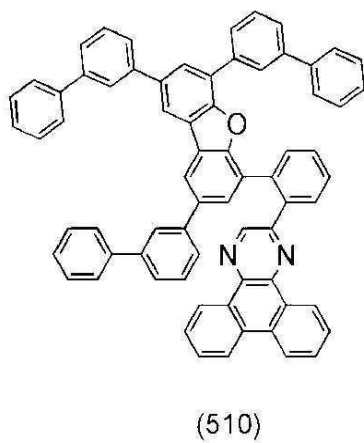
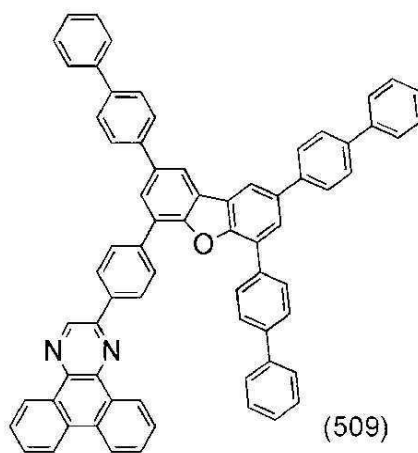
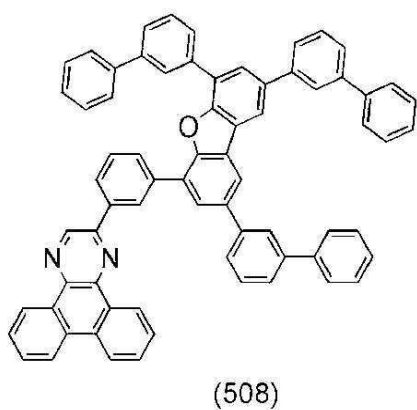
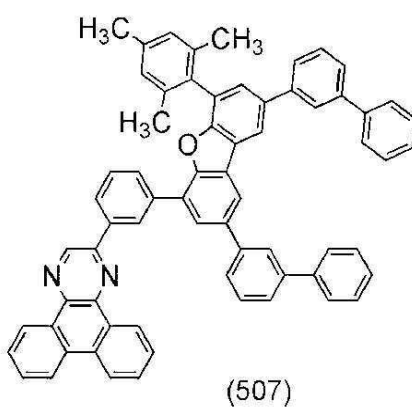
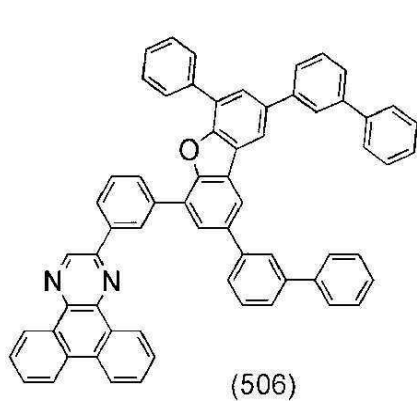
[0109]

[0110] [구조식(500) 내지 구조식(505)]



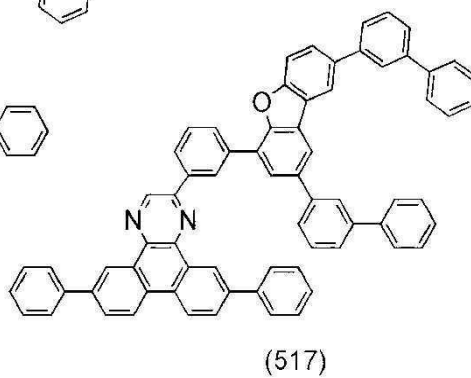
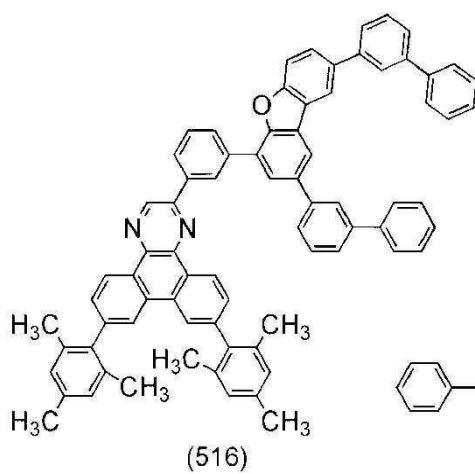
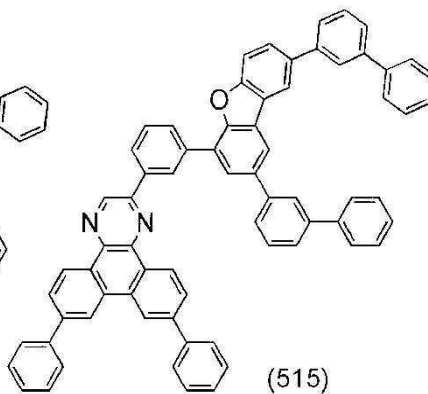
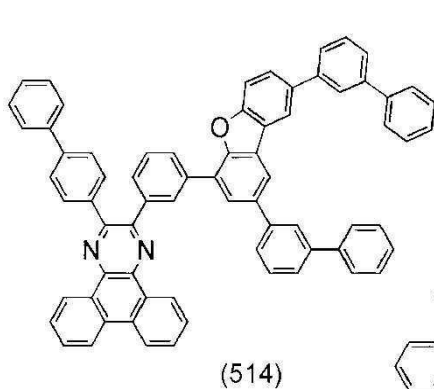
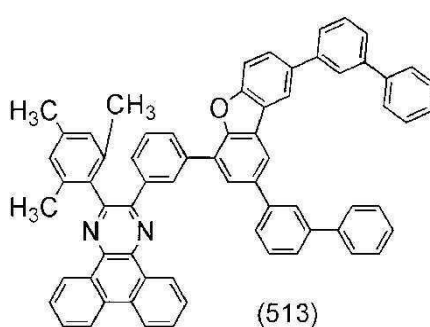
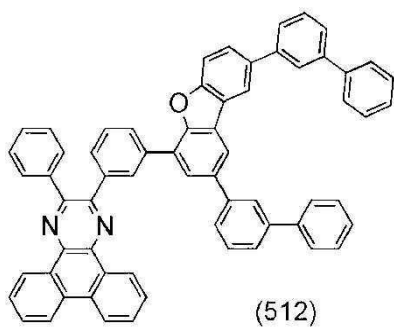
[0111]

[0112] [구조식(506) 내지 구조식(511)]



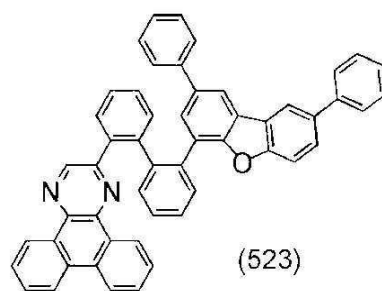
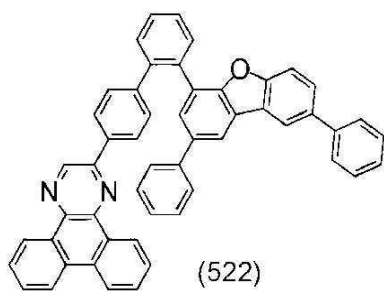
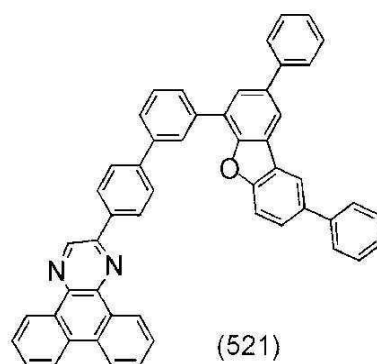
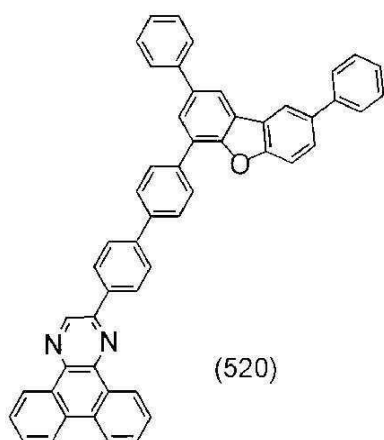
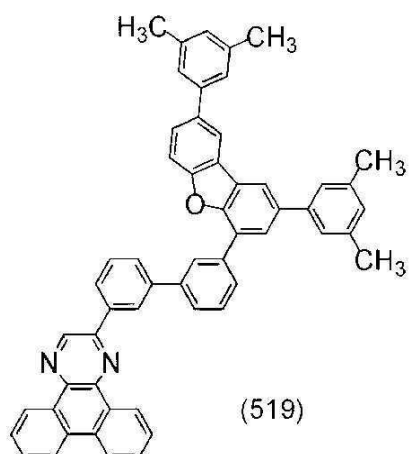
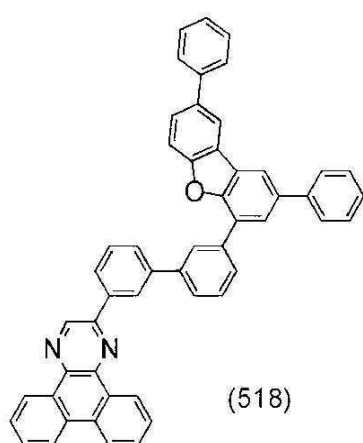
[0113]

[0114] [구조식(512) 내지 구조식(517)]



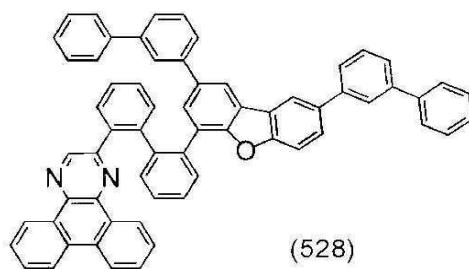
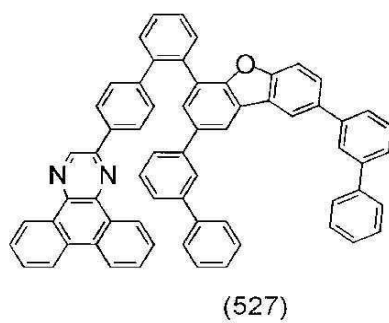
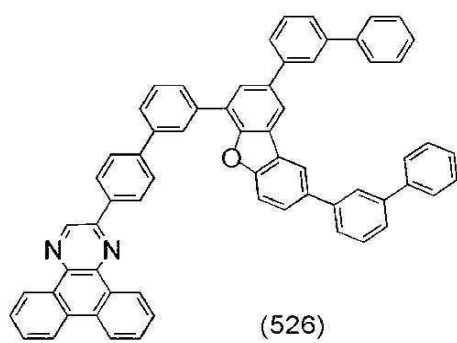
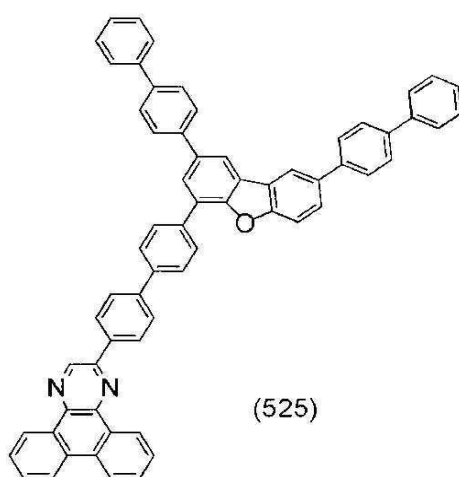
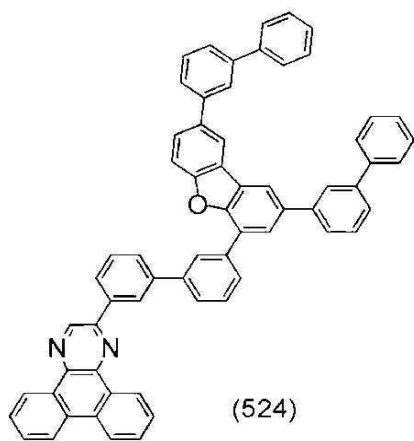
[0115]

[0116] [구조식(518) 내지 구조식(523)]



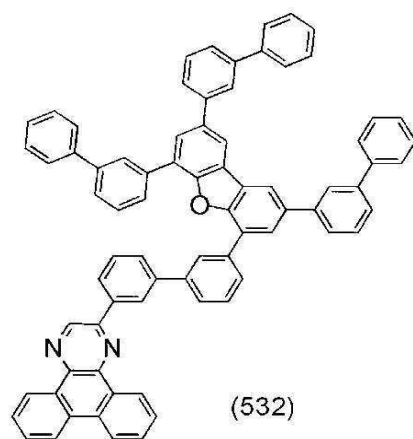
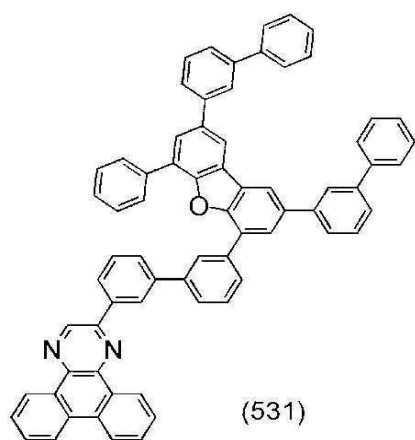
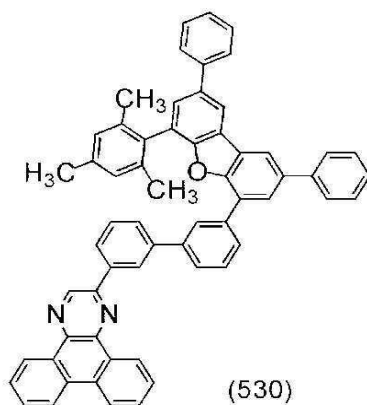
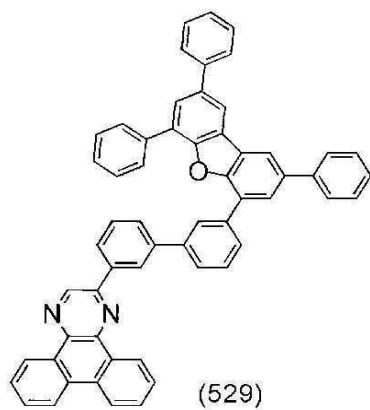
[0117]

[0118] [구조식(524) 내지 구조식(528)]



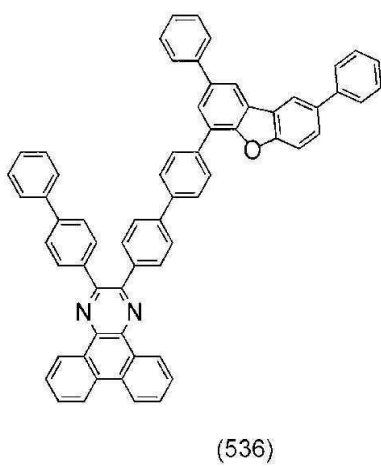
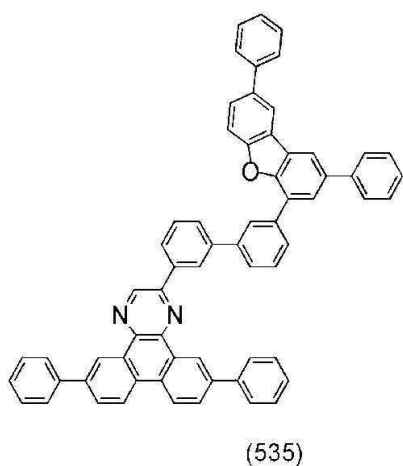
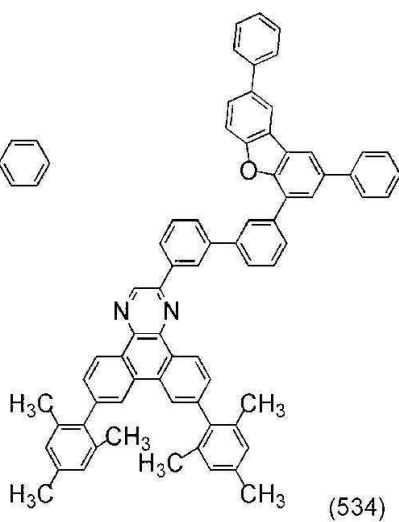
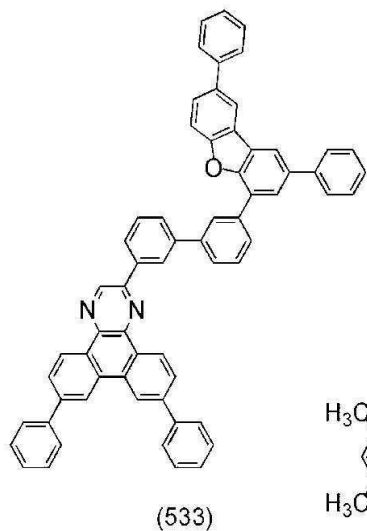
[0119]

[0120] [구조식(529) 내지 구조식(532)]



[0121]

[0122] [구조식(533) 내지 구조식(536)]



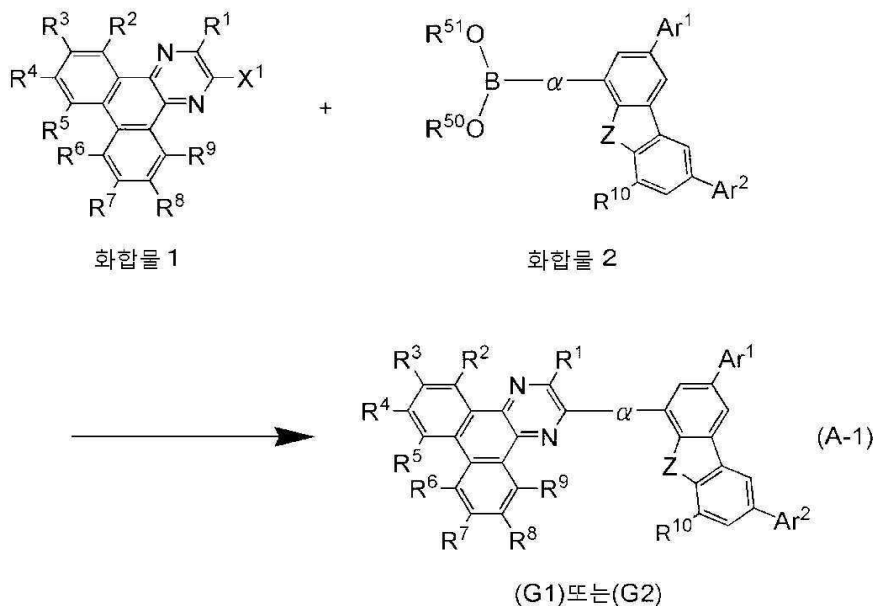
[0123]

[0124] 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물을 합성하는 방법에 다양한 반응이 적용될 수 있다. 예를 들면, 이하 설명되는 합성 반응은 일반식(G1) 또는 일반식(G2)으로 나타내어진 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물의 합성을 가능하게 한다. 단, 본 발명의 일 실시양태인 헤테로사이클 화합물을 합성하는 방법은 하기 합성법에 한정되는 것은 아니다.

[0125] <일반식(G1) 또는 일반식(G2)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물의 합성 방법 1 >

[0126] 먼저, 합성 스킴(A-1)을 하기에 나타낸다.

[0127] [합성 스킴(A-1)]



[0128]

[0129] 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물(G1) 또는 (G2)는 합성 스킴(A-1)에서 나타난 바와 같이 합성될 수 있다. 특히, 디벤조[f,h]퀴녹살린 유도체의 할로젠화물(화합물 1)은 스즈키-미야우라(Suzuki-Miyaura) 반응에 의해 디벤조퓨란 유도체 또는 디벤조티오펜 유도체의 붕산 또는 유기 붕소 화합물(화합물 2)과 커플링시킴으로써, 본 실시양태에서 나타난 헤테로사이클 화합물(G1) 또는 (G2)이 얻어질 수 있다.

[0130]

합성 스킴(A-1)에서, α 는 치환 또는 비치환 페닐렌기 또는 치환 또는 비치환 비페닐디일기를 나타내고; Ar^1 및 Ar^2 는 각각 치환 또는 비치환 페닐기 또는 치환 또는 비치환 비페닐기를 나타내고; R^1 내지 R^{10} 은 독립적으로 수소, 1 내지 4의 탄소 원자를 갖는 알킬기, 또는 6 내지 13의 탄소 원자를 갖는 치환 또는 비치환 아릴기를 나타내고; 그리고 R^{50} 및 R^{51} 은 독립적으로 수소 또는 1 내지 6의 탄소 원자를 갖는 알킬기를 나타낸다. 합성 스킴(A-1)에서, R^{50} 및 R^{51} 은 서로 결합되어 고리를 형성할 수 있다. 또한, X^1 은 할로젠을 나타낸다.

[0131]

합성 스킴(A-1)에서, 사용될 수 있는 팔라듐 촉매의 예로는 팔라듐(II) 아세테이트, 테트라키스(트리페닐포스핀)팔라듐(0), 비스(트리페닐포스핀)팔라듐(II)디클로라이드 등이 있으나 이들에 한정되지는 않는다.

[0132]

합성 스킴(A-1)에 사용될 수 있는 팔라듐 촉매의 리간드의 예로는 트리(오르토-톨일)포스핀, 트리페닐포스핀, 트리스클로헥실포스핀 등이 있으나 이들에 한정되지는 않는다.

[0133]

합성 스킴(A-1)에서 사용될 수 있는 염기의 예로는 나트륨 tert-부톡사이드와 같은 유기 염기, 탄산 칼륨 또는 탄산나트륨과 같은 무기 염기 등이 있으나 이들에 한정되지는 않는다.

[0134]

합성 스킴(A-1)에 사용될 수 있는 용매의 예로는 톨루엔과 물의 혼합 용매; 톨루엔, 알코올(예, 에탄올) 및 물의 혼합 용매; 크실렌과 물의 혼합 용매; 크실렌, 알코올(예, 에탄올) 및 물의 혼합 용매; 벤젠과 물의 혼합 용매; 벤젠, 알코올(예, 에탄올) 및 물의 혼합 용매; 물과 에테르(예, 에틸렌 글리콜 디메틸 에테르)의 혼합 용매 등이 있으나 이들에 한정되지는 않는다. 톨루엔과 물의 혼합 용매; 톨루엔, 에탄올 및 물의 혼합 용매; 또는 물과 에테르(예, 에틸렌 글리콜 디메틸 에테르)의 혼합 용매를 사용하는 것이 더욱 바람직하다.

[0135]

합성 스킴(A-1)에서 나타난 커플링 반응으로서, 화합물 2로 나타난 유기 붕소 화합물 또는 붕산을 사용하는 스즈키-미야우라 반응 대신에 유기 알루미늄 화합물, 유기 지르코늄 화합물, 유기 아연 화합물, 유기 주석 화합물 등을 사용하는 크로스 커플링(cross coupling) 반응을 이용해도 좋다. 그러나, 본 발명은 이들에 한정되지는 않는다.

[0136]

또한, 합성 스킴(A-1)으로 나타난 스즈키-미야우라 커플링 반응에서, 디벤조[f,h]퀴녹살린 유도체의 유기 붕소 화합물 또는 붕산은 스즈키-미야우라 반응에 의해 카르바졸 유도체, 디벤조퓨란 유도체 또는 디벤조티오펜 유도

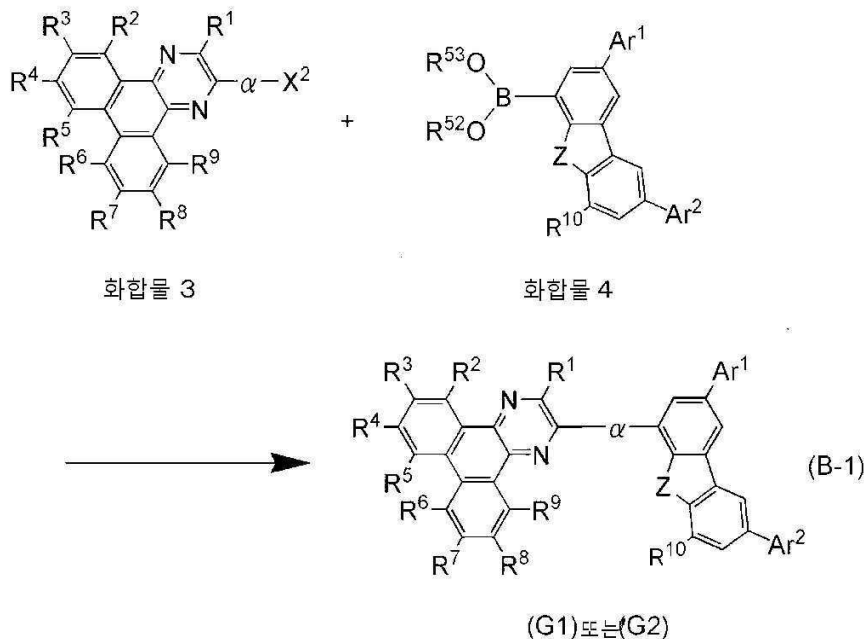
체의 할로겐화물; 또는 치환체로서 트리플레이트(triflate) 기를 갖는 카르바졸 유도체, 디벤조퓨란 유도체 또는 디벤조티오펜 유도체와 커플링되어도 좋다.

[0137] 위와 같이, 본 실시형태의 헤테로사이클 화합물은 합성될 수 있다.

[0138] <일반식(G1) 또는 일반식(G2)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물의 합성 방법 2>

[0139] 이하, 일반식(G1) 또는 일반식(G2)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물을 합성하기 위한 또 다른 방법을 설명한다. 먼저, 붕소 화합물이 재료로서 사용되는 합성 스킴(B-1)을 하기에 나타낸다.

[0140] [합성 스킴(B-1)]



[0141]

[0142] 합성 스킴(B-1)에서 나타낸 바와 같이, 디벤조[f,h]퀴놀살린 유도체 화합물의 할로겐화물(화합물 3)은 스즈키-미야우라 반응에 의해 디벤조퓨란 유도체 또는 디벤조티오펜 유도체의 유기 붕소 화합물 또는 보론산(화합물 4)과 커플링되어, 본 실시형태에서 설명된 헤테로사이클 화합물(G1) 또는 (G2)가 얻어질 수 있다.

[0143] 합성 스킴(B-1)에 있어서, α 는 치환 또는 비치환 페닐렌기 또는 치환 또는 비치환 비페닐디일기를 나타내고, Ar^1 및 Ar^2 는 각각 치환 또는 비치환 페닐기 또는 치환 또는 비치환 비페닐기를 나타내고, R^1 내지 R^{10} 은 독립적으로 수소, 1 내지 4의 탄소 원자를 갖는 알킬기, 또는 6 내지 13의 탄소 원자를 갖는 치환 또는 비치환 아릴기를 나타내고, 그리고 R^{52} 및 R^{53} 는 각각 수소 또는 1 내지 6의 탄소 원자를 갖는 알킬기를 나타낸다. 합성 스킴(B-1)에 있어서, R^{52} 및 R^{53} 은 서로 결합되어 고리를 형성할 수 있다. 또한, X^2 는 할로겐 또는 트리플레이트기를 나타내고, 그리고 할로겐은 요오드나 브롬이 바람직하다.

[0144] 합성 스킴(B-1)에서 사용될 수 있는 팔라듐 촉매의 예로는 팔라듐(II) 아세테이트, 테트라키스(트리페닐포스핀)팔라듐(0), 비스(트리페닐포스핀)팔라듐(II) 디클로라이드 등이 있으나 이들에 한정되지는 않는다.

[0145] 합성 스킴(B-1)에서 사용될 수 있는 팔라듐 촉매의 리간드의 예로는 트리(오르토-톨일)포스핀, 트리페닐포스핀, 트리스클로헥실포스핀 등이 있으나 이들에 한정되지는 않는다.

[0146] 합성 스킴(B-1)에서 사용될 수 있는 염기의 예로는 나트륨 tert-부톡사이드와 같은 유기 염기, 탄산 칼륨 또는 탄산나트륨과 같은 무기 염기가 있으나 이들에 한정되지는 않는다.

[0147] 합성 스킴(B-1)에서 사용될 수 있는 용매의 예로는 톨루엔과 물의 혼합 용매; 톨루엔, 알코올(예, 에탄올) 및 물의 혼합 용매; 크실렌과 물의 혼합 용매; 크실렌, 알코올(예, 에탄올) 및 물의 혼합 용매; 벤젠과 물의 혼합 용매; 벤젠, 알코올(예, 에탄올) 및 물의 혼합 용매; 물과 에테르(예, 에틸렌 글리콜 디메틸 에테르)의 혼합 용매 등이 있으나, 이들에 한정되지는 않는다. 톨루엔과 물의 혼합 용매; 톨루엔, 에탄올 및 물의 혼합 용매; 또는 물과 에테르(예, 에틸렌 글리콜 디메틸 에테르)의 혼합 용매를 사용하는 것이 더욱 바람직하다.

- [0148] 합성 스킵(B-1)에서 나타낸 커플링 반응으로서, 화합물 4로 나타낸 유기 붕소 화합물 또는 보론산을 사용하는 스즈키-미야우라 반응 대신에 유기 알루미늄 화합물, 유기 지르코늄 화합물, 유기 아연 화합물, 유기 주석 화합물 등을 사용하는 크로스 커플링 반응을 이용해도 좋다. 그러나, 본 발명은 이들에 한정되지 않는다. 또한, 이러한 커플링 반응에서, 할로젠 이외에 트리플레이트기 등을 사용할 수도 있지만, 본 발명은 이들에 한정되지 않는다.
- [0149] 또한, 합성 스킵(B-1)으로 나타낸 스즈키-미야우라 커플링 반응에서, 디벤조[f,h]퀴놀살린 유도체의 유기 붕소 화합물 또는 붕소산은 카르바졸 유도체, 디벤조퓨란 유도체 또는 디벤조티오펜 유도체의 할로겐화물; 또는 치환체로서 트리플레이트기를 갖는 카르바졸 유도체, 디벤조퓨란 유도체 또는 디벤조티오펜 유도체와 커플링되어도 좋다.
- [0150] 위와 같이, 본 실시형태의 헤테로사이클 화합물은 합성될 수 있다.
- [0151] 본 실시형태의 헤테로사이클 화합물은 우수한 내열성을 갖기 때문에, 발광 소자는 긴 수명을 가질 수 있다. 또한, 본 실시형태의 헤테로사이클 화합물은 큰 밴드 갭(band gap)을 갖기 때문에, 발광층의 발광 물질이 발광 소자에 분산되는 호스트 재료로서 헤테로사이클 화합물을 사용함으로써, 높은 전류 효율이 얻어질 수 있다. 특히, 본 실시형태의 헤테로사이클 화합물은 인광성 화합물이 분산되는 호스트 재료로서 적절히 사용된다. 또한, 본 실시형태의 헤테로사이클 화합물은 높은 전자 수송성을 갖기 때문에, 발광 소자 내의 전자 수송층을 위한 재료로서 적절히 사용될 수 있다. 본 실시형태의 헤테로사이클 화합물을 사용함으로써, 낮은 구동 전압을 갖는 발광 소자가 얻어질 수 있다. 이 외에, 높은 전류 효율을 갖는 발광 소자가 얻어질 수 있다. 또한, 이러한 발광 소자를 사용함으로써, 소비전력이 감소되는 발광 장치, 전자기기 및 조명 장치가 얻어질 수 있다.
- [0152] (실시형태 2)
- [0153] 본 실시형태에서는, 도 1을 참고로, 본 발명의 일 실시양태로서 실시형태 1에서 설명된 헤테로사이클 화합물 중 어느 것을 사용할 수 있는 발광 소자에 대하여 설명한다.
- [0154] 본 실시형태에서 설명된 발광 소자에 있어서, 도 1에 도시된 바와 같이, 발광층(113)을 포함하는 EL층(102)이 한 쌍의 전극(제 1 전극(양극, 101) 및 제 2 전극(음극, 103)) 사이에 제공되고, 그리고 EL층(102)은 발광층(113) 이외에 정공 주입층(111), 정공 수송층(112), 전자 수송층(114), 전자 주입층(115), 전하 발생층(E)(116) 등을 포함한다.
- [0155] 이러한 발광 소자에 전압을 인가함으로써, 제 1 전극(101) 측으로부터 주입된 정공 및 제 2 전극(103) 측으로부터 주입된 전자는 발광층(113)에서 재결합하여 발광층(113)에 함유된 물질을 여기 상태로 만든다. 그 다음, 여기 상태의 물질이 기저 상태로 돌아올 때 광이 발생된다.
- [0156] EL층(102)에 포함된 정공 주입층(111)은 높은 정공 수송성을 갖는 물질 및 수용성(acceptor) 물질을 함유하는 층이다. 전자가 수용성 물질로 인해 높은 정공 수송성을 갖는 물질로부터 추출(extracted)될 때, 정공이 발생된다. 이와 같이 하여, 정공은 정공 수송층(112)을 통해 정공 주입층(111)으로부터 발광층(113) 내부로 주입된다.
- [0157] 전하 발생층(E)(116)은 높은 정공 수송성을 갖는 물질 및 수용성 물질을 함유하는 층이다. 전자는 수용성 물질로 인해 높은 정공 수송성을 갖는 물질로부터 추출되고 및 추출된 전자는 전자 수송층(114)을 통해 전자 주입층(115)을 갖는 전자 주입층(115)로부터 발광층(113) 내부로 주입된다.
- [0158] 이하, 본 실시형태에서 설명된 발광 소자의 구체적인 예를 설명한다.
- [0159] 제 1 전극(양극)(101) 및 제 2 전극(음극)(103)을 위해, 금속, 합금, 전기 도전성 화합물, 이들의 혼합물 등이 사용될 수 있다. 구체적으로는, 산화 인듐-산화 주석(ITO: 산화 인듐 주석), 실리콘 또는 산화 실리콘을 함유하는 산화 인듐-산화 주석, 산화 인듐-산화 아연(산화 인듐 아연), 산화 텅스텐 및 산화 아연을 함유하는 산화 인듐, 금(Au), 백금(Pt), 니켈(Ni), 텅스텐(W), 크롬(Cr), 몰리브덴(Mo), 철(Fe), 코발트(Co), 구리(Cu), 팔라듐(Pd) 및 티탄(Ti)이 사용될 수 있다. 그 외에, 주기율표 1족 또는 2족에 속하는 원소, 예를 들면, 리튬(Li) 또는 세슘(Cs)과 같은 알칼리 금속, 칼슘(Ca) 또는 스트론튬(Sr), 마그네슘(Mg)과 같은 알칼리 토금속, 또는 이들의 합금(예, MgAg 또는 AlLi); 유로퓸(Eu) 또는 이테르븀(Yb) 또는 이들의 합금과 같은 희토류 금속; 그라펜 등이 사용될 수 있다. 제 1 전극(양극)(101) 및 제 2 전극(음극)(103)은, 예를 들면 스퍼터링법, 증착법(진공 증착법 포함) 등에 의해 형성될 수 있다.
- [0160] 정공 주입층(111), 정공 수송층(112) 및 전하 발생층(E)(116)에 사용되는 높은 정공 수송성을 갖는 물질의 예로

서는 다음과 같은 것들이 있다: 4,4'-비스[N-(1-나프틸)-N-페닐아미노]비페닐(약칭: NPB 또는 α -NPD), N,N'-비스(3-메틸페닐)-N,N'-디페닐-[1,1'-비페닐]-4,4'-디아민(약칭: TPD), 4,4',4''-트리스(카르바졸-9-일)트리페닐아민(약칭: TCTA), 4,4',4''-트리스(N,N-디페닐아미노)트리페닐아민(약칭: TDATA), 4,4',4''-트리스[N-(3-메틸페닐)-N-페닐아미노]트리페닐아민(약칭: MTDATA) 및 4,4'-비스[N-(스피로-9,9'-비플루오렌-2-일)-N-페닐아미노]비페닐(약칭: BSPB)과 같은 방향족 아민 화합물; 3-[N-(9-페닐카르바졸-3-일)-N-페닐아미노]-9-페닐카르바졸(약칭: PCzPCA1); 3,6-비스[N-(9-페닐카르바졸-3-일)-N-페닐아미노]-9-페닐카르바졸(약칭: PCzPCA2), 3-[N-(1-나프틸)-N-(9-페닐카르바졸-3-일)아미노]-9-페닐카르바졸(약칭: PCzPCN1) 등. 4,4'-디(N-카르바졸일)비페닐(약칭: CBP), 1,3,5-트리스[4-(N-카르바졸일)페닐]벤젠(약칭: TCPB), 또는 9-[4-(10-페닐-9-안트라센일)페닐]-9H-카르바졸(약칭: CzPA) 등과 같은 카르바졸 화합물이 사용될 수 있다. 여기에 열거된 물질들은 주로 10^{-6} cm²/Vs 이상의 정공 이동도를 갖는 물질이다. 또한, 이들 물질 이외에, 전자보다 정공 수송성이 높은 물질이라면 어느 것이라도 사용될 수 있다.

[0161] 다음과 같은 고분자 화합물도 또한 사용될 수 있다: 폴리(N-비닐카르바졸)(약칭: PVK), 폴리(4-비닐트리페닐아민)(약칭: PVTPA), 폴리[N-(4-{N'-[4-(4-디페닐아미노)페닐]페닐-N'-페닐아미노}페닐)메타크릴아미드](약칭: PTPDMA), 또는 폴리[N,N'-비스(4-부틸페닐)-N,N'-비스(페닐)벤지딘](약칭: Poly-TPD).

[0162] 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물은 높은 정공 수송성을 갖는 재료로서 사용될 수 있다.

[0163] 정공 주입층(111) 및 전하 발생층(E)(116)에 사용되는 수용성 물질의 예로서는, 전이 금속 산화물 또는 원소 주기율표의 4족 내지 8족에 속하는 금속의 산화물이 있다. 구체적으로는 산화 몰리브덴이 특히 바람직하다.

[0164] 발광층(113)은 발광 물질을 함유하는 층이다. 발광층(113)은 발광 물질만을 함유해도 좋고; 또는 발광 중심 물질이 발광층(113)에 호스트 재료로서 분산되어도 좋다.

[0165] 발광층(113)에서 발광 물질 및 발광 중심 물질로서 사용될 수 있는 재료에는 특별한 제한이 없고 및 이들 물질로부터 발생된 광은 형광 또는 인광일 수 있다. 상기 발광 물질 및 발광 중심 물질의 예로는 다음과 같은 것들이 있다.

[0166] 형광을 발생하는 물질의 예로는 다음과 같은 것들이 있다:

[0167] N,N'-비스[4-(9H-카르바졸-9-일)페닐]-N,N'-디페닐스티렌-4,4'-디아민(약칭: YGA2S), 4-(9H-카르바졸-9-일)-4'-(10-페닐-9-안트릴)트리페닐아민(약칭: YGAPA), 4-(9H-카르바졸-9-일)-4'-(9,10-디페닐-2-안트릴)트리페닐아민(약칭: 2YGAPPA), N,9-디페닐-N-[4-(10-페닐-9-안트릴)페닐]-9H-카르바졸-3-아민(약칭: PCAPA), 페릴렌, 2,5,8,11-테트라(tert-부틸)페릴렌(약칭: TBP), 4-(10-페닐-9-안트릴)-4'-(9-페닐-9H-카르바졸-3-일)트리페닐아민(약칭: PCBAPA), N,N'-(2-tert-부틸안트라센-9,10-디일디-4,1-페닐렌)비스[N,N',N'-트리페닐-1,4-페닐렌디아민](약칭: DPABPA), N,9-디페닐-N-[4-(9,10-디페닐-2-안트릴)페닐]-9H-카르바졸-3-아민(약칭: 2PCAPPA), N-[4-(9,10-디페닐-2-안트릴)페닐]-N,N',N'-트리페닐-1,4-페닐렌디아민(약칭: 2DPAPPA), N,N,N',N',N'',N''',N''''-옥타페닐디벤조[g,p]크리센-2,7,10,15-테트라아민(약칭: DBC1), 쿠마린 30, N-(9,10-디페닐-2-안트릴)-N,9-디페닐-9H-카르바졸-3-아민(약칭: 2PCAPA), N-[9,10-비스(1,1'-비페닐-2-일)-2-안트릴]-N,9-디페닐-9H-카르바졸-3-아민(약칭: 2PCABPhA), N-(9,10-디페닐-2-안트릴)-N,N',N'-트리페닐-1,4-페닐렌디아민(약칭: 2DPAPA), N-[9,10-비스(1,1'-비페닐-2-일)-2-안트릴]-N,N',N'-트리페닐-1,4-페닐렌디아민(약칭: 2DPABPhA), 9,10-비스(1,1'-비페닐-2-일)-N-[4-(9H-카르바졸-9-일)페닐]-N-페닐안트라센-2-아민(약칭: 2YGABPhA), N,N,9-트리페닐안트라센-9-아민(약칭: DPhAPhA) 쿠마린 545T, N,N'-디페닐퀴나크리돈(약칭: DPQd), 루브렌, 5,12-비스(1,1'-비페닐-4-일)-6,11-디페닐테트라센(약칭: BPT), 2-(2-{2-[4-(디메틸아미노)페닐]에테닐}-6-메틸-4H-피란-4-일리덴)프로판디니트릴(약칭: DCM1), 2-{2-메틸-6-[2-(2,3,6,7-테트라하이드로-1H,5H-벤조[ij]퀴놀리진-9-일)에테닐]-4H-피란-4-일리덴}프로판디니트릴(약칭: DCM2), N,N,N',N'-테트라키스(4-메틸페닐)테트라센-5,11-디아민(약칭: p-mPhTD), 7,14-디페닐-N,N,N',N'-테트라키스(4-메틸페닐)아세나프토[1,2- α]플루오란텐-3,10-디아민(약칭: p-mPhAFD), 2-{2-이소프로필-6-[2-(1,1,7,7-테트라메틸-2,3,6,7-테트라하이드로-1H,5H-벤조[ij]퀴놀리진-9-일)에테닐]-4H-피란-4-일리덴}프로판디니트릴(약칭: DCJTI), 2-{2-tert-부틸-6-[2-(1,1,7,7-테트라메틸-2,3,6,7-테트라하이드로-1H,5H-벤조[ij]퀴놀리진-9-일)에테닐]-4H-피란-4-일리덴}프로판디니트릴(약칭: DCJTB), 2-(2,6-비스[2-(8-메톡시-1,1,7,7-테트라메틸-2,3,6,7-테트라하이드로-1H,5H-벤조[ij]퀴놀리진-9-일)에테닐]-4H-피란-4-일리덴}프로판디니트릴(약칭: BisDCJTM) 등.

[0168] 형광을 발생하는 물질로서, 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물을 사용할 수도 있다.

[0169]

인광을 발생하는 물질의 예로는 다음과 같은 것들이 있다: 비스[2-(3',5'-비스트리플루오로메틸페닐)피리디나토-N,C^{2'}]이리듐(III) 피콜리네이트(약칭: Ir(CF₃ppy)₂(pic)), 비스[2-(4',6'-디플루오로페닐)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-디페닐-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- α]티에닐)피리디나토-N,C^{3'}]이리듐(III) 아세틸아세토네이트(약칭: Ir(btp)₂(acac)), 비스(1-페닐이소퀴놀리나토-N,C^{2'})이리듐(III) 아세틸아세토네이트(약칭: Ir(piq)₂(acac)), (아세틸아세토나토)비스[2,3-비스(4-플루오로페닐)퀴놀살리나토]이리듐(III)(약칭: Ir(Fdpq)₂(acac)), (아세틸아세토나토)비스(3,5-디메틸-2-페닐피라지나토)이리듐(III)(약칭: [Ir(mppr-Me)₂(acac)]), (아세틸아세토나토)비스(5-이소프로필-3-메틸-2-페닐피라지나토)이리듐(III)(약칭: [Ir(mppr-iPr)₂(acac)]), (아세틸아세토나토)비스(2,3,5-트리페닐피라지나토)이리듐(III)(약칭: Ir(tppr)₂(acac)), 비스(2,3,5-트리페닐피라지나토)(디피발로일메타나토)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-디페닐피리미디나토)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-디페닐-1,3-프로판디오나토)(모노페난트롤린)유로퓸(III)(약칭: Eu(DBM)₃(Phen)), 트리스[1-(2-테노일)-3,3,3-트리플루오로아세토나토](모노페난트롤린)유로퓸(III)(약칭: Eu(TTA)₃(Phen)) 등.

[0170]

상술한 호스트 재료로서 사용될 수 있는 재료에 대해 특별한 제한이 없지만, 예를 들면 다음과 같은 어떠한 물질도 호스트 재료로서 사용될 수 있다: 트리스(8-퀴놀리놀라토)알루미늄(III)(약칭: AlIq), 트리스(4-메틸-8-퀴놀리놀라토)알루미늄(III)(약칭: Almq₃), 비스(10-히드록시벤조[h]퀴놀리나토)베릴륨(II)(약칭: BeBq₂), 비스(2-메틸-8-퀴놀리놀라토)(4-페닐페놀라토)알루미늄(III)(약칭: BAlIq), 비스(8-퀴놀리놀라토)아연(II)(약칭: ZNq), 비스[2-(2-벤즈옥사졸일)페놀라토]아연(II)(약칭: ZnPBO) 및 비스[2-(2-벤조티아졸일)페놀라토]아연(II)(약칭: ZnBTZ)와 같은 금속 착체; 2-(4-비페닐일)-5-(4-tert-부틸페닐)-1,3,4-옥사디아졸(약칭: PBD), 1,3-비스[5-(p-tert-부틸페닐)-1,3,4-옥사디아졸-2-일]벤젠(약칭: OXD-7), 3-(4-비페닐일)-4-페닐-5-(4-tert-부틸페닐)-1,2,4-트리아졸(약칭: TAZ), 2,2',2''-(1,3,5-벤젠트리일)-트리스(1-페닐-1H-벤즈이미다졸)(약칭: TPBI), 바소페난트롤린(약칭: BPhen), 바소큐프로인(약칭: BCP) 및 9-[4-(5-페닐-1,3,4-옥사디아졸-2-일)페닐]-9H-카르바졸(약칭: CO11)와 같은 헤테로사이클 화합물; 및 4,4'-비스[N-(1-나프틸)-N-페닐아미노]비페닐(약칭: NPB 또는 α -NPD), N,N'-비스(3-메틸페닐)-N,N'-디페닐-[1,1'-비페닐]-4,4'-디아민(약칭: TPD) 및 4,4'-비스[N-(스피로-9,9'-비플루오렌-2-일)-N-페닐아미노]비페닐(약칭: BSPB)와 같은 방향족 아민 화합물. 그 외에, 안트라센 유도체, 페난트렌 유도체, 피렌 유도체, 크리센 유도체 및 디벤조[g,p]크리센 유도체와 같은 축합 다환 방향족 화합물이 사용될 수 있다. 축합 다환 방향족 화합물의 구체적인 예로는 다음과 같은 것들이 있다: 9,10-디페닐안트라센(약칭: DPAnth), N,N-디페닐-9-[4-(10-페닐-9-안트릴)페닐]-9H-카르바졸-3-아민(약칭: CzAIPA), 4-(10-페닐-9-안트릴)트리페닐아민(약칭: DPhPA), 4-(9H-카르바졸-9-일)-4'-(10-페닐-9-안트릴)트리페닐아민(약칭: YGAPA), N,9-디페닐-N-[4-(10-페닐-9-안트릴)페닐]-9H-카르바졸-3-아민(약칭: PCAPA), N,9-디페닐-N-{4-[4-(10-페닐-9-안트릴)페닐]페닐}-9H-카르바졸-3-아민(약칭: PCAPBA), N,9-디페닐-N-(9,10-디페닐-2-안트릴)-9H-카르바졸-3-아민(약칭: 2PCAPA), 6,12-디메톡시-5,11-디페닐크리센, N,N,N',N',N'',N''',N''''-옥타페닐디벤조[g,p]크리센-2,7,10,15-테트라아민(약칭: DBC1), 9-[4-(10-페닐-9-안트릴)페닐]-9H-카르바졸(약칭: CzPA), 3,6-디페닐-9-[4-(10-페닐-9-안트릴)페닐]-9H-카르바졸(약칭: DPCzPA), 9,10-비스(3,5-디페닐페닐)안트라센(약칭: DPPA), 9,10-디(2-나프틸)안트라센(약칭: DNA), 2-tert-부틸-9,10-디(2-나프틸)안트라센(약칭: t-BuDNA), 9,9'-비안트릴(약칭: BANT), 9,9'-(스틸벤-3,3'-디일)디페난트렌(약칭: DPNS), 9,9'-(스틸벤-4,4'-디일)디페난트렌(약칭: DPNS2) 및 1,3,5-트리(1-피레

닐)벤젠(약칭: TPB3). 상술한 발광 중심 물질보다 더 넓은 에너지 갭을 갖는 1 이상의 물질은 이들 물질과 공지된 물질로부터 바람직하게 선택된다. 더욱이, 발광 중심 물질이 인광을 발생하는 경우에, 발광 중심 물질보다 더 높은 삼중항 여기 에너지(기저 상태와 삼중항 여기 상태 사이의 에너지 차)를 갖는 물질이 호스트 재료로서 바람직하게 선택된다.

[0171] 상기 호스트 재료로서 사용될 수 있는 재료로서는, 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물을 사용할 있다. 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물은 높은 S1 준위를 갖기 때문에, 헤테로사이클 화합물이 형광을 발생하는 물질의 호스트 재료로서 사용될 때, 그 물질은 가시 영역의 광을 발생하도록 사용될 수 있다.

[0172] 디벤조[f,h]퀴녹살린 고리 및 정공 수송성 골격이 벤젠 고리를 통해 결합되는 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물에 있어서, 디벤조[f,h]퀴녹살린 골격이 LUMO 준위를 지배적으로 결정하는 골격인 것으로 간주된다는 것을 주목하여야 한다. 또한, 상기 화합물은 사이클릭 볼타메트리(cyclic voltammetry: CV) 측정 기준으로 적어도 -2.8 eV 이하, 특히 -2.9 eV 이하의 깊은 LUMO 준위를 갖는다. 예를 들면, 2mDBTPDBq-II의 LUMO 준위는 CV 측정에 의해 -2.96 eV인 것으로 밝혀졌다. 또한, [Ir(mppr-Me)₂(acac)], [Ir(mppr-iPr)₂(acac)], [Ir(tppr)₂(acac)], 또는 [Ir(tppr)₂(dpm)]과 같은 피라진 골격을 갖는 인광성 화합물, 또는 [Ir(tBuppm)₂(acac)] 또는 [Ir(dpmm)₂(acac)]과 같은 피리미딘 골격을 갖는 인광성 화합물로 대표되는 디아진 골격을 갖는 인광성 화합물의 LUMO 준위는 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물의 LUMO 준위만큼 사실상 동등하게 깊다. 그러므로, 발광층이 호스트 재료로서 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물 및 게스트 재료로서 디아진 골격(특히 피라진 골격 또는 피리미딘 골격)을 갖는 인광성 화합물을 포함할 때, 발광층 내에서의 전자 트랩이 최소로 감소될 수 있고, 극히 낮은 구동 전압이 실현될 수 있다.

[0173] 발광층(113)은 2 이상의 층이 적층되는 구조를 가질 수 있다. 예를 들면, 발광층(113)이 정공 수송층으로부터 순서대로 제 1 발광층과 제 2 발광층을 적층함으로써 형성되는 경우에, 정공 수송성을 갖는 물질이 제 1 발광층의 호스트 재료로 사용되고, 그리고 전자 수송성을 갖는 물질은 제 2 발광층의 호스트 재료로 사용된다.

[0174] 전자 수송층(114)은 높은 전자 수송성을 갖는 물질을 함유하는 층이다. 전자 수송층(114)에 있어서, Alq₃, 트리스(4-메틸-8-퀴놀리놀라토)알루미늄(약칭: Almq₃), 비스(10-히드록시벤조[h]퀴놀리나토)베릴륨(약칭: BeBq₂), BaIq, Zn(BOX)₂, 또는 비스[2-(2-히드록시페닐)벤조티아졸라토]아연(약칭: Zn(BTZ)₂)과 같은 금속 착체를 사용할 수 있다. 또한, 2-(4-비페닐일)-5-(4-tert-부틸페닐)-1,3,4-옥사디아졸(약칭: PBD), 1,3-비스[5-(p-tert-부틸페닐)-1,3,4-옥사디아졸-2-일]벤젠(약칭: OXD-7), 3-(4-tert-부틸페닐)-4-페닐-5-(4-비페닐일)-1,2,4-트리아졸(약칭: TAZ), 3-(4-tert-부틸페닐)-4-(4-에틸페닐)-5-(4-비페닐일)-1,2,4-트리아졸(약칭: p-EtTAZ), 바소페난트롤린(약칭: BPhen), 바소큐프로인(약칭: BCP), 또는 4,4'-비스(5-메틸벤즈옥사졸-2-일)스틸벤(약칭: BzOs)와 같은 헤테로 방향족 화합물을 사용할 수 있다. 또한, 폴리(2,5-피리딘디일)(약칭: PPy), 폴리[(9,9-디헥실플루오렌-2,7-디일)-co-(피리딘-3,5-디일)](약칭: PF-Py), 또는 폴리[(9,9-디옥틸플루오렌-2,7-디일)-co-(2,2'-비피리딘-6,6'-디일)](약칭: PF-BPy)과 같은 고분자 화합물을 사용할 수 있다. 여기에 언급한 물질들은 주로 10⁻⁶ cm²/Vs 이상의 전자 이동도를 갖는다. 이들 물질 이외에도, 정공보다 전자를 더 수송하는 성질을 갖는 물질이 전자 수송층에 사용될 수 있다.

[0175] 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물이 또한 전자 수송성을 갖는 물질로서 사용될 수 있다.

[0176] 또한, 전자 수송층은 단일층으로 한정되지 않으며 상기 물질 중 어떠한 것도 함유하는 2층 이상의 적층으로 될 수 있다.

[0177] 전자 주입층(115)은 높은 전자 주입성을 갖는 물질을 함유하는 층이다. 전자 주입층(115)에 있어서, 알칼리 금속, 알칼리 토금속, 또는 불화 리튬(LiF), 불화 세슘(CsF), 불화 칼슘(CaF₂), 또는 산화 리튬(LiO_x)과 같은 이들의 화합물이 사용될 수 있다. 한편 불화 에르븀(ErF₃)과 같은 희토류 금속 화합물이 사용될 수 있다. 전자 수송층(114)을 형성하는 물질이라면 상기 물질 중 어느 것이라도 사용될 수 있다.

[0178] 한편, 유기 화합물과 전자 공여체(donor)가 혼합되는 복합 재료가 전자 주입층(115)에 사용될 수 있다. 전자 공여체는 유기 화합물에서 전자 발생을 일으키므로, 이러한 복합 재료는 전자 주입성과 전자 수송성이 우수하다. 여기서 바람직한 유기 화합물은 발생된 전자를 수송하는 데 우수한 재료이고; 구체적인 예로는 전자 수송층(114)을 형성하는 상술한 물질(예, 금속 착체 또는 헤테로 방향족 화합물)이 있다. 바람직한 전자 공여

체는 유기 화합물에 대해 전자 공여성을 나타내는 물질이다. 구체적으로는, 알칼리 금속, 알칼리 토금속 및 희토류 금속이 바람직하고, 예로서 리튬, 세슘, 마그네슘, 칼슘, 에르븀, 이테르븀 등이 있다, 예를 들면. 알칼리 금속 산화물과 알칼리 토금속 산화물이 바람직하고 그 예로는 산화 리튬, 산화 칼슘, 산화 바륨 등이 있다. 산화 마그네슘과 같은 루이스 염기도 또한 사용될 수 있다. 테트라티아폴발렌(약칭: TTF)과 같은 유기 화합물도 또한 사용될 수 있다.

- [0179] 상술한 정공 주입층(111), 정공 수송층(112), 발광층(113), 전자 수송층(114), 전자 주입층(115) 및 전하 발생층(E)(116)은 각각 증착법(예, 진공 증착법), 잉크젯법, 또는 코팅법과 같은 방법에 의해 형성될 수 있다.
- [0180] 상술한 발광 소자에 있어서, 제 1 전극(101)과 제 2 전극(103) 사이에서 발생한 전위차로 인해 전류가 흐르고, 그리고 정공과 전자는 EL층(102)을 재결합함으로써 발광한다. 그 다음, 발광된 광은 제 1 전극(101) 및 제 2 전극(103) 중 하나 또는 모두를 통해 외부로 추출된다. 그러므로, 제 1 전극(101) 및 제 2 전극(103) 중 하나 또는 모두는 광 수송성을 갖는 전극이다.
- [0181] 상술한 발광 소자는 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물을 사용하여 형성되고, 그에 따라 발광 소자의 내열성뿐만 아니라 소자 효율이 개선될 수 있고, 그리고 구동 전압의 증가도 최소화할 수 있다.
- [0182] 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물이 발광층의 인광 물질에 대한 호스트 재료로서 더욱 바람직하게 사용되지만, 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물은 또한 발광층의 발광 물질 또는 발광층의 형광 물질에 대한 호스트 재료 또는 또 다른 층(예, 정공 주입층, 정공 수송층, 또는 전자 수송층)에도 사용될 수 있다. 그러므로, 일반 재료가 복수의 층에 사용될 수 있다. 따라서, 재료의 합성 및 발광 소자의 제조 비용이 감소될 수 있어 바람직하다.
- [0183] 본 실시형태에서 설명된 발광 소자가 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물을 사용하여 제조된 발광 소자의 예이라는 것을 주목하여야 한다. 또한, 상기 발광 소자를 포함하는 발광 장치로서, 패시브 매트릭스 발광 장치 및 액티브 매트릭스 발광 장치가 제조될 수 있다. 또한, 또 다른 실시형태에서 설명된 발광 소자와 다른 구조를 갖는 발광 소자를 포함하는 광 공진기(microcavity) 구조의 발광 장치를 제조하는 것이 가능하다. 상기 발광 장치의 모두는 본 발명에 포함된다. 이들 발광 장치의 소비 전력이 감소될 수 있다.
- [0184] 액티브 매트릭스 발광 장치를 제조하는 경우에 TFT 구조에 특별한 제한은 없다. 예를 들면, 스테거형 TFT 또는 역스태거형 TFT가 적절히 사용될 수 있다. 또한, TFT 기판 위에 형성된 구동용 회로도 n-형 TFT 및 p-형 TFT 모두를 사용하거나 또는 n-형 TFT 또는 p-형 TFT의 어느 하나만을 사용하여 형성될 수도 있다. 또한, TFT에 사용된 반도체막의 결정화도에 특별한 제한이 없다. 예를 들면, 비정질 반도체막, 결정성 반도체막, 산화물 반도체막 등이 사용될 수 있다.
- [0185] 본 실시형태에서 설명된 구성은 다른 실시형태에서 설명된 구성과 적절히 조합될 수 있다.
- [0186] (실시형태 3)
- [0187] 본 발명의 일 실시양태로서 본 실시형태에서, 유기 화합물뿐만 아니라 인광성 화합물의 2종 이상이 발광층에 사용되는 발광 소자에 대하여 설명한다.
- [0188] 본 실시형태에서 설명되는 발광 소자는, 도 2에 도시된 바와 같이, 한 쌍의 전극(양극(201) 및 음극(202)) 사이에 EL층(203)을 포함한다. EL층(203)이 적어도 하나의 발광층(204)을 포함하고 정공 주입층, 정공 수송층, 전자 수송층, 전자 주입층, 전하 발생층(E) 등을 포함할 수 있다. 또한 정공 주입층, 정공 수송층, 전자 수송층, 전자 주입층 및 전하 발생층(E)에 실시형태 2에서 설명된 물질이 사용될 수 있다.
- [0189] 본 실시형태에서 설명된 발광층(204)은 인광성 화합물(205), 제 1 유기 화합물(206) 및 제 2 유기 화합물(207)을 함유한다. 실시형태 1에서 설명된 헤테로사이클 화합물은 제 1 유기 화합물(206) 또는 제 2 유기 화합물(207)로서 사용될 수 있다. 인광성 화합물(205)은 발광층(204)에서 게스트 재료이다. 또한, 제 1 유기 화합물(206) 및 제 2 유기 화합물(207) 중, 발광층(204)에 함유되어 있는 비율이 많은 쪽을 발광층(204)에서의 호스트 재료로 한다.
- [0190] 발광층(204)은 게스트 재료가 호스트 재료에 분산되는 구조를 가질 때, 발광층의 결정화가 억제될 수 있다. 또한, 게스트 재료의 높은 농도로 인하여 농도 소광을 억제할 수 있으므로, 발광 소자는 더 높은 발광 효율을 가질 수 있다.
- [0191] 제 1 유기 화합물(206) 및 제 2 유기 화합물(207) 각각의 삼중항 여기 에너지 준위(T1 준위)는 인광성 화합물

(205)보다 더 높은 것이 바람직하다. 그 이유는, 제 1 유기 화합물(206)(또는 제 2 유기 화합물(207))의 T1 준위가 인광성 화합물(205)보다 더 낮을 때, 발광에 기여하는 인광성 화합물(205)의 삼중항 여기 에너지가 제 1 유기 화합물(206)(또는 제 2 유기 화합물(207))에 의해 소광되고, 그에 따라 발광 효율이 저하되기 때문이다.

[0192] 여기서, 호스트 재료로부터 게스트 재료까지 에너지 전달 효율을 개선하기 위해서, 분자들 사이에 에너지 전달 메커니즘으로 알려진 펠스터(Förster) 메커니즘(쌍극자-쌍극자 상호 작용) 및 텍스터(Dexter) 메커니즘(전자 교환 상호 작용)이 고려되고 있다. 메커니즘에 따라, 호스트 재료의 발광 스펙트럼(일중항 여기 상태에서부터 에너지가 전달되는 경우의 형광 스펙트럼 및 삼중항 여기 상태에서부터 에너지가 전달되는 경우의 인광 스펙트럼)이 게스트 재료의 흡수 스펙트럼(구체적으로는, 가장 긴 파장(최저 에너지) 측의 흡수 밴드의 스펙트럼)과 크게 중첩되는 것이 바람직하다. 그러나, 일반적으로, 호스트 재료의 형광 스펙트럼과 게스트 재료의 가장 긴 파장(최저 에너지) 측의 흡수 밴드의 흡수 스펙트럼과의 사이에 중첩되는 것이 어렵다. 이러한 이유는 다음과 같다: 호스트 재료의 형광 스펙트럼이 게스트 재료의 가장 낮은 파장(최저 에너지) 측의 흡수 밴드의 흡수 스펙트럼과 중첩되는 경우, 호스트 재료 인광 스펙트럼은 형광 스펙트럼보다도 긴 파장(저 에너지) 측에 위치하기 때문에, 호스트 재료의 T1 준위는 인광성 화합물의 T1 준위보다 더 낮아지고 상술한 소광(quenching) 문제가 발생한다. 한편, 소광 문제를 피하기 위해서 호스트 재료의 T1 준위가 인광성 화합물의 T1 준위보다 더 높게 하는 방식으로 호스트 재료가 설계될 때, 호스트 재료의 형광 스펙트럼은 더 짧은 파장(더 높은 에너지) 측으로 변환되므로 형광 스펙트럼은 게스트 재료의 가장 긴 파장(최저 에너지) 측의 흡수 밴드의 흡수 스펙트럼과 어떠한 중첩도 가지지 않는다. 이러한 이유 때문에, 일반적으로, 호스트 재료의 일중항 여기 상태에서부터 에너지 전달을 극대화하기 위해서 호스트 재료의 형광 스펙트럼과 게스트 재료의 가장 긴 파장(최저 에너지) 측의 흡수 밴드에서의 흡수 스펙트럼과의 사이에 중첩을 얻기가 어렵다.

[0193] 그러므로, 본 실시형태에서, 제 1 유기 화합물과 제 2 유기 화합물의 조합은 바람직하게 여기착체(exciplex)를 형성한다. 이 경우에, 제 1 유기 화합물(206)과 제 2 유기 화합물(207)은 발광층(204)에서의 캐리어(전자 및 정공)의 재조합 시에 여기착체(또한 여기된 착체라고도 함)를 형성한다. 이에 의해, 발광층(204)에 있어서, 제 1 유기 화합물(206)의 형광 스펙트럼과 제 2 유기 화합물(207)의 형광 스펙트럼은 보다 긴 파장 측에 위치하는 여기착체의 발광 스펙트럼으로 변환된다. 또한, 여기착체의 발광 스펙트럼이 게스트 재료의 흡수 스펙트럼과 크게 중첩되는 방식으로 제 1 유기 화합물 및 제 2 유기 화합물이 선택될 때, 일중항 여기 상태에서부터의 에너지 전달은 최대될 수 있다. 또한, 삼중항 여기 상태의 경우에, 호스트 재료가 아닌 여기착체로부터의 에너지 전달이 일어날 것으로 생각된다.

[0194] 인광성 화합물(205)로서는, 인광 유기 금속 착체가 바람직하게 사용된다. 여기착체가 형성되도록 제 1 유기 화합물(206) 및 제 2 유기 화합물(207)의 조합이 결정될 수 있지만, 전자를 수용하기 쉬운 화합물(전자 트래핑성을 갖는 화합물)과 정공을 수용하기 쉬운 화합물(정공 트래핑성을 갖는 화합물)의 조합이 바람직하게 이용된다.

[0195] 인광 유기 금속성 착체의 예로는 다음과 같은 것들이 있다: 비스[2-(3',5'-비스트리플루오로메틸페닐)피리디나토-N,C^{2'}]이리듐(III) 피콜리네이트(약칭: Ir(CF₃ppy)₂(pic)), 비스[2-(4',6'-디플루오로페닐)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-디페닐-1,3-옥사졸라토-N,C^{2'})이리듐(III) 아세틸아세토네이트(약칭: Ir(dpo)₂(acac)), 비스{2-[4'-(퍼플루오로페닐)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-α]티에닐)피리디나토-N,C^{3'}]이리듐(III) 아세틸아세토네이트(약칭: Ir(btp)₂(acac)), 비스(1-페닐이소퀴놀리나토-N,C^{2'})이리듐(III) 아세틸아세토네이트(약칭: Ir(piq)₂(acac)), (아세틸아세토나토)비스[2,3-비스(4-플루오로페닐)퀴놀살리나토]이리듐(III)(약칭: Ir(Fdpq)₂(acac)), (아세틸아세토나토)비스(2,3,5-트리페닐피라지나토)이리듐(III)(약칭: Ir(tppr)₂(acac)), 2,3,7,8,12,13,17,18-옥타에틸-2H,23H-포르피린 백금(II)(약칭: PtOEP), 트리스(1,3-디페닐-1,3-프로판디오나토)(모노페난트롤린)유로퓸(III)(약칭:

Eu(DBM)₃(Phen)), 트리스[1-(2-테노일)-3,3,3-트리플루오로아세토나토](모노페난트롤린)유로퓸(III)(약칭: Eu(TTA)₃(Phen)) 등.

[0196] 전자를 수용하기 쉬운 화합물로서, 질소-함유 헤테로 방향족 화합물과 같은 π -전자 부족형 헤테로 방향족 화합물이 바람직하다. 예를 들면, 퀴녹살린 유도체 및 디벤조퀴녹살린 유도체를 들 수 있고, 그 예로는 다음과 같은 것들이 있다: 2-[3-(디벤조티오펜-4-일)페닐]디벤조[f,h]퀴녹살린(약칭: 2mDBTPDBq-II), 2-[3'-(디벤조티오펜-4-일)비페닐-3-일]디벤조[f,h]퀴녹살린(약칭: 2mDBTPDBq-II), 2-[4-(3,6-디페닐-9H-카르바졸-9-일)페닐]디벤조[f,h]퀴녹살린(약칭: 2CzPDBq-III), 7-[3-(디벤조티오펜-4-일)페닐]디벤조[f,h]퀴녹살린(약칭: 7mDBTPDBq-II), 6-[3-(디벤조티오펜-4-일)페닐]디벤조[f,h]퀴녹살린(약칭: 6mDBTPDBq-II) 등. 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물이 전자를 수용하기 쉬운 화합물로서 사용될 수 있다.

[0197] 정공을 수용하기 쉬운 화합물로서는, π -전자 과잉형 헤테로 방향족 화합물(예, 카르바졸 유도체 또는 인돌 유도체) 또는 방향족 아민 화합물이 바람직하다. 예를 들면, 다음과 같은 것들이 있을 수 있다: 4-페닐-4'-(9-페닐-9H-카르바졸-3-일)트리페닐아민(약칭: PCBA1BP), 4,4'-디(1-나프틸)-4'-(9-페닐-9H-카르바졸-3-일)트리페닐아민(약칭: PCBNBB), 3-[N-(1-나프틸)-N-(9-페닐카르바졸-3-일)아미노]-9-페닐카르바졸(약칭: PCzPCN1), 4,4',4'-'-트리스[N-(1-나프틸)-N-페닐아미노]트리페닐아민(약칭: I'-TNATA), 2,7-비스[N-(4-디페닐아미노페닐)-N-페닐아미노]-스피로-9,9'-비플루오렌(약칭: DPA2SF), N,N'-비스(9-페닐카르바졸-3-일)-N,N'-디페닐벤젠-1,3-디아민(약칭: PCA2B), N-(9,9-디메틸-2-N',N'-디페닐아미노-9H-플루오렌-7-일)디페닐아민(약칭: DPNF), N,N',N'-'-트리페닐-N,N',N'-'-트리스(9-페닐카르바졸-3-일)벤젠-1,3,5-트리아민(약칭: PCA3B), 2-[N-(9-페닐카르바졸-3-일)-N-페닐아미노]스피로-9,9'-비플루오렌(약칭: PCASF), 2-[N-(4-디페닐아미노페닐)-N-페닐아미노]스피로-9,9'-비플루오렌(약칭: DPASF), N,N'-비스[4-(카르바졸-9-일)페닐]-N,N'-디페닐-9,9-디메틸플루오렌-2,7-디아민(약칭: YGA2F), 4,4'-비스[N-(3-메틸페닐)-N-페닐아미노]비페닐(약칭: TPD), 4,4'-비스[N-(4-디페닐아미노페닐)-N-페닐아미노]비페닐(약칭: DPAB), N-(9,9-디메틸-9H-플루오렌-2-일)-N-(9,9-디메틸-2-[N'-페닐-N'-(9,9-디메틸-9H-플루오렌-2-일)아미노]-9H-플루오렌-7-일)페닐아민(약칭: DFLADFL), 3-[N-(9-페닐카르바졸-3-일)-N-페닐아미노]-9-페닐카르바졸(약칭: PCzPCA1), 3-[N-(4-디페닐아미노페닐)-N-페닐아미노]-9-페닐카르바졸(약칭: PCzDPA1), 3,6-비스[N-(4-디페닐아미노페닐)-N-페닐아미노]-9-페닐카르바졸(약칭: PCzDPA2), 4,4'-비스[N-(4-[N'-(3-메틸페닐)-N'-페닐아미노]페닐)-N-페닐아미노]비페닐(약칭: DNTPD), 3,6-비스[N-(4-디페닐아미노페닐)-N-(1-나프틸)아미노]-9-페닐카르바졸(약칭: PCzTPN2) 및 3,6-비스[N-(9-페닐카르바졸-3-일)-N-페닐아미노]-9-페닐카르바졸(약칭: PCzPCA2). 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물은 정공을 수용하기 쉬운 화합물로서 사용될 수 있다.

[0198] 상술한 제 1 및 제 2 유기 화합물(206, 207)에 대해서, 본 발명은 상기 예에 한정되지 않는다. 여기착체가 형성될 수 있도록 조합이 결정되고, 여기착체의 발광 스펙트럼은 인광성 화합물(205)의 흡수 스펙트럼과 중첩되고, 그리고 여기착체의 발광 스펙트럼의 피크는 인광성 화합물(205)의 흡수 스펙트럼의 피크보다 더 긴 파장에 있을 수 있다.

[0199] 전자를 수용하기 쉬운 화합물 및 정공을 수용하기 쉬운 화합물이 제 1 유기 화합물(206) 및 제 2 유기 화합물(207)에 대해 사용되는 경우에, 캐리어 균형은 화합물들의 혼합비에 의해 제어될 수 있다. 구체적으로, 제 1 유기 화합물 대 제 2 유기 화합물의 바람직한 비는 1:9 내지 9:1이다.

[0200] 본 실시형태에서 설명된 발광 소자에서, 에너지 전달 효율은 여기착체의 발광 스펙트럼과 인광성 화합물의 흡수 스펙트럼 사이에 중첩을 이용하는 에너지 전달로 인해 개선될 수 있다. 그러므로, 발광 소자의 높은 외부 양자 효율이 실현될 수 있다.

[0201] 본 발명의 또 다른 구성에서, 정공과 전자가 2 종류의 호스트 분자와 게스트 분자에 존재하는 게스트 분자에 도입되어 게스트 분자가 여기 상태로 되는 현상(Guest Coupled with Complementary Hosts: GCCH)이 일어나도록, 발광층(204)은 인광성 화합물(205)(게스트 재료) 외에 2 종류의 유기 화합물로서 정공 트랩성을 갖는 호스트 분자 및 전자 트랩성을 갖는 호스트 분자를 사용하여 형성될 수 있다.

[0202] 이 때, 정공 트랩성을 갖는 호스트 분자 및 전자 트랩성을 갖는 호스트 분자는 정공을 수용하기 쉬운 상술한 화합물 및 전자를 수용하기 쉬운 상술한 화합물로부터 각각 선택될 수 있다.

[0203] 본 실시형태에서 설명된 발광 소자는 발광 소자 구조의 일 예이며, 또 다른 실시형태에서 설명된 또 다른 구조를 갖는 발광 소자를 본 발명의 일 실시양태인 발광 장치에 적용할 수 있다. 또한, 상기 발광 소자를 포함하는 발광 장치로서, 패시브 매트릭스 발광 장치 및 액티브 매트릭스 발광 장치가 제조될 수 있다. 또한, 또 다른

실시형태에서 설명된 발광 소자와 다른 구조를 갖는 발광 소자를 포함하는 미세공동(microcavity) 구조의 발광 장치를 제조할 수 있다. 상기 발광 장치의 모든 것은 본 발명에 포함된다.

- [0204] 액티브 매트릭스 발광 장치를 제조하는 경우에 TFT 구조에 특별히 제한은 없다. 예를 들면, 스테거형 TFT 또는 역스테거형 TFT가 적절히 사용될 수 있다. 또한, TFT 기판 위에 형성된 구동 회로는 n-형 TFT 및 p-형 TFT 모두 또는 n-형 TFT 또는 p-형 TFT 중 어느 하나만을 사용하여 형성될 수 있다. 또한, TFT에 사용된 반도체막의 결정성에 특별한 제한이 없다. 예를 들면, 비정질 반도체막, 결정질 반도체막, 산화물 반도체막 등이 사용될 수 있다.
- [0205] 본 실시형태에서 설명된 구성은 다른 실시형태에서 설명된 구성과 적절히 조합될 수 있다.
- [0206] (실시형태 4)
- [0207] 본 실시형태에서는, 본 발명의 일 형태로서, 전하 발생층이 복수개의 EL층 사이에 개재되는 발광 소자(이하, 탠덤형 발광 소자라 함)가 설명된다.
- [0208] 본 실시형태에서 설명된 발광 소자는, 도 3(A)에 도시된 바와 같이, 한 쌍의 전극(제 1 전극(301) 및 제 2 전극(304)) 사이에 복수의 EL층(제 1 EL층(302(1)) 및 제 2 EL층(302(2)))을 포함하는 탠덤형 발광 소자이다.
- [0209] 본 실시형태에서, 제 1 전극(301)은 양극으로서 기능하고 및 제 2 전극(304)은 음극으로서 기능한다. 제 1 전극(301) 및 제 2 전극(304)은 실시형태 2에 설명된 것들과 유사한 구조를 가질 수 있다. 또한, 복수의 EL층(제 1 EL층(302(1)) 및 제 2 EL층(302(2)))이 실시형태 2 또는 3에 설명된 것들과 유사한 구조를 가질 수 있지만, EL층의 어떠한 것도 실시형태 2 또는 3에서 설명된 것과 유사한 구조를 가질 수 있다. 즉, 제 1 EL층(302(1)) 및 제 2 EL층(302(2))의 구조는 동일하거나 서로 다를 수 있으며, 실시형태 2 또는 3에서 설명된 것들과 유사할 수 있다.
- [0210] 또한, 전하 발생층(I)(305)은 복수의 EL층(제 1 EL층(302(1)) 및 제 2 EL층(302(2))) 사이에 제공된다. 전하 발생층(I)(305)은 전압이 제 1 전극(301)과 제 2 전극(304) 사이에 인가될 때, 한쪽의 EL층에 전자를 주입하고 다른 한쪽의 EL층에 정공을 주입하는 기능을 갖는다. 본 실시형태에서는, 제 1 전극(301)의 전위가 제 2 전극(304)의 전위보다 더 높아지도록 전압이 인가될 때, 전하 발생층(I)(305)은 전자를 제 1 EL층(302(1))에 주입하고, 정공을 제 2 EL층(302(2))에 주입한다.
- [0211] 광 추출 효율 면에서, 전하 발생층(I)(305)이 가시광에 대해 광투과성을 바람직하게 갖는다(구체적으로는, 전하 발생층(I)(305)은 40 % 이상의 가시광 투과율을 가짐). 또한, 제 1 전극(301) 또는 제 2 전극(304)보다 더 낮은 도전율을 가질지라도, 전하 발생층(I)(305)은 기능한다.
- [0212] 전하 발생층(I)(305)은 전자 수용체(acceptor)가 높은 정공 수송성을 갖는 유기 화합물에 첨가되는 구조 또는 전자 공여체(donor)가 높은 전자 수송성을 갖는 유기 화합물에 첨가되는 구조를 가질 수 있다. 한편, 이들 구조의 모두가 적층될 수 있다.
- [0213] 전자 수용체가 높은 정공 수송성을 갖는 유기 화합물에 첨가되는 구성인 경우에, 높은 정공 수송성을 갖는 유기 화합물로서 예를 들면, NPB, TPD, TDATA, MTDATA, 또는 4,4'-비스[N-(스피로-9,9'-비플루오렌-2-일)-N-페닐아미노]비페닐(약칭: BSPB) 등과 같은 방향족 아민 화합물이 사용될 수 있다. 여기서 언급한 물질들은 주로 10^{-6} cm²/Vs 이상의 정공 이동도를 갖는 것들이다. 그러나, 물질이 전자 수송성보다 더 높은 정공 수송성을 갖는 유기 화합물이라면, 또 다른 물질이 사용될 수 있다. 또한 전하 발생층(I)(305)에서 높은 정공 수송성을 갖는 유기 화합물로서 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물을 사용할 수 있다.
- [0214] 또한, 전자 수용체로서 7,7,8,8-테트라시아노-2,3,5,6-테트라플루오로퀴노디메탄(약칭: F₄-TCNQ), 클로라닐 등이 사용될 수 있다. 한편, 전이 금속 산화물이 사용될 수 있다. 또 한편으로는, 주기율표 4족 내지 8족에 속하는 금속 산화물이 사용될 수 있다. 구체적으로는, 전자 수용성이 높기 때문에 산화 바나듐, 산화 니오븀, 산화 탄탈, 산화 크롬, 산화 몰리브덴, 산화 텅스텐, 산화 망간, 또는 산화 레늄을 사용하는 것이 바람직하다. 이들 중에서, 산화 몰리브덴이 특히 바람직한데, 그 이유는 그것이 공기 중에서 안정적이고, 낮은 흡습성을 갖고, 취급하기 쉽기 때문이다.
- [0215] 다른 한편으로는, 전자 공여체가 높은 전자 수송성을 갖는 유기 화합물에 첨가되는 경우에, 높은 전자 수송성을 갖는 유기 화합물로서, 예를 들면, Alq, Almq₃, BeBq₂, 또는 BA1q 등과 같이 퀴놀린 골격 또는 벤조퀴놀린 골격을 갖는 금속 착체를 사용할 수 있다. 한편, Zn(BOX)₂ 또는 Zn(BTZ)₂과 같이 옥사졸계 리간드 또는 티아졸계 리

간드를 갖는 금속 착제를 사용할 수도 있다. 또한, 금속 착체 대신에, PBD, OXD-7, TAZ, BPhen, BCP 등을 사용할 수도 있다. 여기서 언급한 물질들은 주로 10^{-6} cm²/Vs 이상의 전자 이동도를 갖는 것들이다. 단, 물질이 정공 수송성보다 더 높은 전자 수송성을 갖는 유기 화합물이라면, 다른 물질이 사용될 수도 있다.

- [0216] 전자 공여체로서는, 알칼리 금속, 알칼리 토금속, 희토류 금속, 원소 주기율표의 2족 또는 13족에 속하는 금속, 또는 그의 산화물 또는 탄산염을 사용할 수 있다. 구체적으로는, 리튬(Li), 세슘(Cs), 마그네슘(Mg), 칼슘(Ca), 이테르븀(Yb), 인듐(In), 산화 리튬, 탄산세슘 등을 사용하는 것이 바람직하다. 한편, 테트라티아나프타센과 같은 유기 화합물이 전자 공여체로서 사용되어도 좋다.
- [0217] 상기 재료들 중 어느 것이라도 사용하여 전하 발생층(I)(305)을 형성하면 EL층의 적층체에 의해 야기된 구동 전압의 증가를 억제할 수 있다.
- [0218] 본 실시형태는 2개의 EL층을 갖는 발광 소자를 나타내지만, 도 3(B)에 도시된 바와 같이, 본 발명은 n EL층(302(1) 내지 302(n))(n은 3 이상임)이 적층되고, 전하 발생층(I)(305(1) 내지 305(n-1))이 이들 EL층(302(1) 내지 302(n)) 사이에 각각 제공되는 발광 소자에 마찬가지로 적용될 수 있다. 복수의 EL층이 EL층들 사이에 전하 발생층(I)을 제공함으로써 본 실시형태에 따른 발광 소자에서처럼 한 쌍의 전극 사이에 포함되는 경우에, 전류 밀도를 낮게 유지한 채 고 휘도 영역에서 발광이 얻어질 수 있다. 전류 밀도가 낮게 유지될 수 있기 때문에, 소자는 긴 수명을 가질 수 있다. 발광 소자가 조명에 이용될 때, 전극 재료의 저항으로 인해 전압 강하가 감소될 수 있으므로, 큰 면적에서의 균일한 발광이 가능하다. 또한, 소비 전력이 적고, 낮은 전압에서 구동될 수 있는 발광 장치를 얻을 수 있다.
- [0219] EL층의 발광색을 각각 서로 다르게 함으로써, 발광 소자는 전체적으로 소망하는 색의 발광을 제공할 수 있다. 예를 들면, 제 1 EL층의 발광색과 제 2 EL층의 발광색이 보색 관계가 되도록 2개의 EL층을 갖는 발광 소자를 형성함으로써, 발광 소자는 전체적으로 백색광을 발생할 수 있다. "보색"이란 용어는 색이 혼합될 때 무채색이 되는 색상 관계를 의미한다. 즉, 보색 관계에 있는 색을 발광하는 물질로부터 얻어진 광이 혼합될 때, 백색 발광이 얻어질 수 있다.
- [0220] 또한, 3개의 EL층을 갖는 발광 소자에도 동일하게 적용될 수 있다. 예를 들면, 제 1 EL층의 발광색이 적색이고, 제 2 EL층의 발광색이 녹색이고, 그리고 제 3 EL층의 발광색이 청색일 때, 발광 소자는 전체적으로 백색 발광을 제공할 수 있다.
- [0221] 본 실시형태에서 설명된 구성은 다른 실시형태에서 설명된 구성과 적절히 조합될 수 있다.
- [0222] (실시형태 5)
- [0223] 본 실시형태에서 설명된 발광 장치는 한 쌍의 전극 사이에서 광공진 효과(light resonant effect)가 이용되는 미소 광공진기 구조를 갖고 있다. 발광 장치는, 도 4에 도시된 바와 같이, 한 쌍의 전극(반사 전극(401) 및 반투과-반 반사 전극(402)) 사이에 적어도 EL층(405)을 갖는 복수의 발광 소자를 포함한다. 또한, EL층(405)은 적어도 발광 영역으로 되는 발광층(404)을 포함하고, 또한 정공 주입층, 정공 수송층, 전자 수송층, 전자 주입층, 전하 발생층(E) 등을 더 포함할 수 있다. 본 발명의 일 실시양태에 따른 헥테로사이클 화합물은 EL층(405)에 포함되는 정공 주입층, 정공 수송층, 발광층(404) 및 전자 수송층 중 어느 것에도 사용될 수 있다.
- [0224] 본 실시형태에서는, 도 4에 도시된 바와 같이, 상이한 구조를 갖는 발광 소자(제 1 발광 소자(R)(410R), 제 2 발광 소자(G)(410G); 및 제 3 발광 소자(B)(410B)를 포함하는 발광 장치가 설명된다.
- [0225] 제 1 발광 소자(R)(410R)는 반사 전극(401) 위에 제 1 투명 도전층(403a); 제 1 발광층(B)(404B), 제 2 발광층(G)(404G) 및 제 3 발광층(R)(404R)을 일부 포함하는 EL층(405); 및 반투과 및 반반사 전극(402)이 순차적으로 적층된 구조를 갖는다. 제 2 발광 소자(G)(410G)는 제 2 투명 도전층(403b), EL층(405) 및 반투과 및 반반사 전극(402)이 반사 전극(401) 위에 순차적으로 적층된 구조를 갖는다. 제 3 발광 소자(B)(410B)는 EL층(405) 및 반투과 및 반반사 전극(402)이 반사 전극(401) 위에 순차적으로 적층되는 구조를 갖는다.
- [0226] 반사 전극(401), EL층(405) 및 반투과 및 반반사 전극(402)은 발광 소자(제 1 발광 소자(R)(410R), 제 2 발광 소자(G)(410G); 및 제 3 발광 소자(B)(410B)에 대해서 공통적임을 주목하여야 한다. 제 1 발광층(B)(404B)은 420 nm 내지 480 nm의 파장 영역에서 피크를 갖는 광(λ_B)을 발광한다. 제 2 발광층(G)(404G)은 500 nm 내지 550 nm의 파장 영역에서 피크를 갖는 광(λ_G)을 발광한다. 제 3 발광층(R)(404R)은 600 nm 내지 760 nm의 파장에서 피크를 갖는 광(λ_R)을 발생한다. 이에 의해, 발광 소자(제 1 발광 소자(R)(410R), 제 2 발광 소자

(G)(410G) 및 제 3 발광 소자(B)(410B)의 각각에서, 제 1 발광층(B)(404B)으로부터 발생된 광, 제 2 발광층(G)(404G)로부터 발생된 광; 제 3 발광층(R)(404R)로부터 발생된 광이 서로 중첩되므로, 가시광 영역에 걸친 넓은 발광 스펙트럼을 갖는 광이 발생될 수 있다. 상기 파장은 $\lambda_B < \lambda_G < \lambda_R$ 의 관계를 만족한다.

[0227] 본 실시형태에서 설명된 발광 소자 각각은 EL층(405)이 반사 전극(401)과 반투과 및 반반사 전극(402)의 사이에 게재되는 구조를 갖는다. EL층(405)에 포함된 발광층으로부터 모든 방향으로의 발광은 미소 광공진기(미소공동)로서 기능하는 반사 전극(401)과 반투과 및 반반사 전극(402)에 의해 공진된다. 반사 전극(401)은 반사성을 갖는 도전성 재료를 사용하여 형성되고, 그리고 가시광 반사율이 40 % 내지 100 %, 바람직하게는 70 % 내지 100 %이고 저항이 $1 \times 10^{-2} \Omega \text{cm}$ 이하인 막이 사용된다. 또한, 반투과 및 반반사 전극(402)은 반사성을 갖는 도전성 재료와 광투과성을 갖는 도전성 재료를 사용하여 형성되고, 그리고 가시광 반사율이 20 % 내지 80 %, 바람직하게는 40 % 내지 70 %이고, 저항이 $1 \times 10^{-2} \Omega \text{cm}$ 이하인 막이 사용된다.

[0228] 본 실시형태에서는, 제 1 발광 소자(R)(410R) 및 제 2 발광 소자(G)(410G)에 각각 제공된 투명 도전층(제 1 투명 도전층 (403a) 및 제 2 투명 도전층 (403b))의 두께는 발광 소자들 사이에서 변하므로, 발광 소자는 반사 전극(401)으로부터 반투과 및 반반사 전극(402)까지 광학 거리가 다르다. 즉, 각 발광 소자의 발광층으로부터 발광되는 넓은 발광 스펙트럼을 갖는 광에서, 반사 전극(401)과 반투과 및 반반사 전극(402)의 사이에서 공진되는 파장을 갖는 광은 강해질 수 있는 반면, 그들 사이에서 공진되지 않는 파장을 갖는 광은 약해질 수 있다. 그러므로, 소자는 반사 전극(401)으로부터 반투과 및 반반사 전극(402)으로 광학 거리가 다를 때, 상이한 파장을 갖는 광이 추출될 수 있다.

[0229] 광학 거리('광로 거리' 라고도 함)는 실제 거리에 굴절률을 곱한 값으로 나타내지고, 본 실시형태에서는 실제 두께에 $n(\text{굴절률})$ 을 곱한 값으로 나타내어진다. 즉 "광학 거리 = 실제 두께 $\times n$ "이다.

[0230] 또한, 제 1 발광 소자(R)(410R)에서 반사 전극(401)으로부터 반투과 및 반반사 전극(402)까지 총 두께는 $m\lambda_R/2$ (m 은 0을 제외한 자연수)로 하고; 제 2 발광 소자(G)(410G)에서 반사 전극(401)으로부터 반투과 및 반반사 전극(402)까지의 총 거리는 $m\lambda_G/2$ (m 은 0을 제외한 자연수임)로 하고; 그리고 제 3 발광 소자(B)(410B)에서 반사 전극(401)으로부터 반투과 및 반반사 전극(402)까지의 총 두께는 $m\lambda_B/2$ (m 은 0을 제외한 자연수임)로 한다.

[0231] 이러한 방식으로, 제 1 발광 소자(R)(410R)로부터는 EL층(405)에 포함된 제 3 발광층(R)(404R)에서 발생된 광(λ_R)이 주로 추출되고, 제 2 발광 소자(G)(410G)로부터는 EL층(405)에 포함된 제 2 발광층(G)(404G)에서 발생된 광(λ_G)가 주로 추출되고, 그리고 제 3 발광 소자(B)(410B)로부터는 EL층(405)에 포함된 제 1 발광층(B)(404B)에서 발생된 광(λ_B)이 주로 추출된다. 각 발광 소자로부터 추출된 광은 반투과 및 반반사 전극(402) 측으로부터 발광되는 것을 주목하여야 한다.

[0232] 또한, 엄밀히 말해서, 반사 전극(401)로부터 반투과 및 반반사 전극(402)까지의 총 두께는 반사 전극(401)에서의 반사 영역으로부터 반투과 및 반반사 전극(402)에서의 반사 영역까지의 총 두께가 될 수 있다. 그러나, 반사 전극(401)과 반투과 및 반반사 전극(402)에서 반사 영역의 위치를 정확하게 결정하는 것은 어렵다. 그러므로, 반사 영역이 반사 전극(401)과 반투과 및 반반사 전극(402)에서 설정될 수 있으면 상기 효과는 충분히 얻어질 수 있는 것으로 생각된다.

[0233] 그 다음, 제 1 발광 소자(R)(410R)에 있어서, 반사 전극(401)으로부터 제 3 발광층(R)(404R)까지의 광학 거리는 소망의 두께[($2m' + 1$) $\lambda_R/4$, 여기서 m' 는 자연수임]로 조절되므로, 제 3 발광층(R)(404R)으로부터 발생된 광은 증폭될 수 있다. 제 3 발광층(R)(404R)으로부터의 발광 중 반사 전극(401)에 의해 반사되는 광(제 1 반사광)은 제 3 발광층(R)(404R)으로부터 반투과 및 반반사 전극(402)으로 직접 입사하는 광(제 1 입사광)과 간섭을 일으킨다. 그러므로, 반사 전극(401)으로부터 제 3 발광층(R)(404R)까지의 광학 거리를 소망의 값(($2m' + 1$) $\lambda_R/4$, 여기서 m' 는 자연수임)을 조절함으로써, 제 1 반사광과 제 1 입사광의 위상은 서로 정렬될 수 있으며, 제 3 발광층(R)(404R)으로부터의 발광이 증폭될 수 있다.

[0234] 엄밀히 말해서, 반사 전극(401)으로부터 제 3 발광층(R)(404R)까지의 광학 거리는 반사 전극(401)의 반사 영역으로부터 제 3 발광층(R)(404R)의 발광 영역까지로 될 수 있다. 그러나, 반사 전극(401)에서의 반사 영역과 제 3 발광층(R)(404R)에서의 발광 영역의 위치를 정확하게 결정하는 것은 어렵다. 그러므로, 반사 영역과 발광 영

역이 반사 전극(401)과 제 3 발광층(R)(404R)에서 각각 설정될 수 있으면 상기 효과는 충분히 얻어질 수 있을 것으로 생각된다.

[0235] 그 다음, 제 2 발광 소자(G)(410G)에 있어서, 반사 전극(401)으로부터 제 2 발광층(G)(404G)까지의 광학 거리는 소망의 두께($(2m'' + 1)\lambda_G/4$, 여기서 m'' 는 자연수임)로 조절되므로, 제 2 발광층(G)(404G)로부터 발생된 광은 증폭될 수 있다. 제 2 발광층(G)(404G)으로부터 발생된 발광의 반사 전극(401)에 의해 반사되는 광(제 2 반사광)은 제 2 발광층(G)(404G)로부터 반투과 및 반반사 전극(402)로 직접 입사되는 광(제 2 입사광)과 간섭한다. 그러므로, 반사 전극(401)으로부터 제 2 발광층(G)(404G)까지 소망의 값($(2m'' + 1)\lambda_G/4$, 여기서 m'' 는 자연수임)을 조절함으로써, 제 2 반사광과 제 2 입사광의 위상이 서로 정렬될 수 있고, 제 2 발광층(G)(404G)으로부터의 발광은 증폭될 수 있다.

[0236] 엄밀히 말해서, 반사 전극(401)로부터 제 2 발광층(G)(404G)까지의 광학 거리는 반사 전극(401)의 반사 영역으로부터 제 2 발광층(G)(404G)의 발광 영역까지로 될 수 있다. 그러나, 반사 전극(401)에서의 반사 영역과 제 2 발광층(G)(404G)에서의 발광 영역의 위치를 정확하게 결정하는 것은 어렵다. 그러므로, 반사 영역과 발광 영역이 반사 전극(401)과 제 2 발광층(G)(404G)에서 각각 설정될 수 있으면 상기 효과는 충분히 얻어질 수 있을 것으로 생각된다.

[0237] 그 다음, 제 3 발광 소자(B)(410B)에 있어서, 반사 전극(401)으로부터 제 1 발광층(B)(404B)까지의 광학 거리는 소망의 두께($(2m''' + 1)\lambda_B/4$, 여기서 m''' 는 자연수임)로 조절되므로, 제 1 발광층(B)(404B)로부터 발생된 광은 증폭될 수 있다. 제 1 발광층(B)(404B)으로부터 발생된 발광의 반사 전극(401)에 의해 반사되는 광(제 3 반사광)은 제 1 발광층(B)(404B)으로부터 반투과 및 반반사 전극(402)로 직접 입사되는 광(제 3 입사광)과 간섭한다. 그러므로, 반사 전극(401)으로부터 제 1 발광층(B)(404B)까지 소망의 값($(2m''' + 1)\lambda_B/4$, 여기서 m''' 는 자연수임)을 조절함으로써, 제 3 반사광과 제 3 입사광의 위상이 서로 정렬될 수 있고, 제 1 발광층(B)(404B)으로부터의 발광은 증폭될 수 있다.

[0238] 엄밀히 말해서, 제 3 발광 소자에 있어서, 반사 전극(401)로부터 제 1 발광층(B)(404B)까지의 광학 거리는 반사 전극(401)의 반사 영역으로부터 제 1 발광층(B)(404B)의 발광 영역까지 광학 거리가 될 수 있다. 그러나, 반사 전극(401)에서의 반사 영역과 제 1 발광층(B)(404B)에서의 발광 영역의 위치를 정확하게 결정하는 것은 어렵다. 그러므로, 반사 영역과 발광 영역이 반사 전극(401)과 제 1 발광층(B)(404B)에서 각각 설정될 수 있으면 상기 효과는 충분히 얻어질 수 있을 것으로 생각된다.

[0239] 상술한 구성에 있어서, 발광 소자의 각각은 EL층에 복수의 발광층을 포함하지만, 본 발명은 이에 한정되지 않고, 예를 들면, 실시형태 4에서 설명된 탠덤형 발광 소자의 구성과 조합될 수 있으며, 이 경우 그들 사이에 개재된 복수의 EL층과 전하 발생층이 하나의 발광 소자에 제공되고, 그리고 각 EL층에 1 이상의 발광층이 형성된다.

[0240] 본 실시형태에서 설명된 발광 장치는 광공진기 구조를 갖고 있고, 여기서 발광 소자에 따라 달라지는 파장을 갖는 광은 발광 장치가 동일한 EL층을 포함할 때에도 취출될 수 있으므로, R, G 및 B의 색에 대한 발광 소자를 형성할 필요가 없다. 그러므로, 상기 구성은 해상도가 더욱 높은 표시를 얻는 것이 용이하기 때문에 풀컬러 표시에 유리하다. 또한, 정면 방향에서 특정 파장을 갖는 발광 강도가 증가될 수 있으므로, 소비 전력이 감소될 수 있다. 상기 구성은 3색 이상의 화소를 포함하는 컬러 디스플레이(화상 표시 장치)에 적용하는 경우에 특히 유용하지만 조명 등에도 적용될 수 있다.

[0241] (실시형태 6)

[0242] 본 실시형태에서는, 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물이 발광층에 사용되는 발광 소자를 포함하는 발광 장치가 설명된다.

[0243] 발광 장치는 패시브 매트릭스 발광 장치이어도 액티브 매트릭스 발광 장치이어도 좋다. 다른 실시형태에서 설명된 발광 소자 중 어느 것도 본 실시형태에서 설명된 발광 장치에 적용될 수 있다.

[0244] 본 실시형태에서, 도 5(A) 및 도 5(B)를 참고로 액티브 매트릭스 발광 장치에 대하여 설명한다.

[0245] 도 5(A)는 발광 장치를 나타낸 평면도이고, 도 5(B)는 도 5(A)의 A-A'선 단면도이다. 본 실시형태에 따른 액티브 매트릭스 발광 장치는 소자 기관(501) 위에 제공된 화소부(502), 구동 회로부(소스선 구동 회로)(503) 및 구동 회로부(게이트선 구동 회로)(504a, 504b)를 포함한다. 화소부(502), 구동 회로부(503) 및 구동 회로부

(504a, 504b)는 밀봉재(505)에 의해 소자 기관(501)과 밀봉 기관(506) 사이에서 밀봉된다.

- [0246] 또한, 배선(507)이 소자 기관(501) 위에 제공된다. 배선(507)은 외부로부터의 신호(예, 비디오 신호, 클럭 신호, 스타트 신호 및 리셋 신호) 또는 전위가 구동 회로부(503) 및 구동 회로부(504a, 504b)로 전달되는 외부 입력 단자를 연결하기 위해 제공된다. 여기서는, 가요성 인쇄 회로(FPC)(508)가 외부 입력 단자로서 제공되는 예를 나타낸다. 여기서는 FPC만을 예시하였지만, 인쇄 배선판(PWB)도 FPC에 부착될 수 있다. 본 명세서에서 발광 장치의 범주는 발광 장치 자체뿐만 아니라 FPC 또는 PWB가 구비된 발광 장치를 포함한다.
- [0247] 그 다음, 도 5(B)를 참고로 하여 그 단면 구조를 설명한다. 구동 회로부 및 화소부는 소자 기관(501) 위에 형성되고, 여기서는 소스선 구동 회로인 구동 회로부(503)와 화소부(502)를 예시한다.
- [0248] 구동 회로부(503)는 n-채널형 TFT(509) 및 p-채널형 TFT(510)의 조합인 CMOS 회로가 형성되는 예이다. 구동 회로부에 포함된 회로는 각종 CMOS 회로, PMOS 회로, 또는 NMOS 회로를 이용하여 형성될 수 있다. 구동 회로가 기관 위에 형성되는 구동 집적형이 본 실시형태에서 설명되지만, 구동 회로는 기관 위에 형성될 필요가 없고, 그리고 구동 회로는 기관 상이 아닌 외부에 형성될 수 있다.
- [0249] 화소부(502)는 스위칭용 TFT(511), 전류 제어용 TFT(512) 및 전류 제어용 TFT(512)의 배선(소스 전극 또는 드레인 전극)에 전기적으로 접속된 제 1 전극(양극)(513)을 포함하는 복수의 화소로 형성된다. 절연체(514)는 제 1 전극(양극)(513)의 단부를 커버하도록 형성된다는 것을 주목하여야 한다. 본 실시형태에서, 절연체(514)는 포지티브형 감광성 아크릴 수지를 사용함으로써 형성된다.
- [0250] 절연체(514) 위에 적층되는 막에 의해 양호한 피복성을 얻기 위해서, 절연체(514)의 상단부 또는 하단부에 곡률을 갖는 곡면이 형성되는 것이 바람직하다. 예를 들면, 절연체(514)의 재료로서 포지티브형 감광성 아크릴 수지를 사용하는 경우에, 절연체(514)에는 상단부에 곡률 반경(0.2 μm 내지 3 μm)을 갖는 곡면이 형성되는 것이 바람직하다. 절연체(514)는 네거티브형 감광성 수지 또는 포지티브형 감광성 수지를 사용하여 형성될 수 있다. 유기 화합물에 한정되지 않고, 유기 화합물, 또는 산화 실리콘 또는 산질화 실리콘과 같은 무기 화합물을 사용할 수 있다.
- [0251] EL층(515) 및 제 2 전극(음극)(516)은 제 1 전극(양극)(513) 위에 적층된다. EL층(515)에는 적어도 발광층이 형성된다. 또한, EL층(515)에는, 정공 주입층, 정공 수송층, 전자 수송층, 전자 주입층, 전하 발생층 등이 발광층에 추가하여 적절히 제공될 수 있다. 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물은 발광층, 정공 주입층, 정공 수송층, 또는 전자 수송층에 적용될 수 있다.
- [0252] 발광 소자(517)는 제 1 전극(양극)(513), EL층(515) 및 제 2 전극(음극)(516)의 적층 구조로 이루어진다. 제 1 전극(양극)(513), EL층(515) 및 제 2 전극(음극)(516)의 재료로서는, 실시형태 2에서 설명된 재료가 사용될 수 있다. 도시되어 있지는 않지만, 제 2 전극(음극)(516)은 외부 입력 단자인 FPC(508)에 전기적으로 접속된다.
- [0253] 도 5(B)의 단면도가 하나의 발광 소자(517)만을 예시하지만, 복수의 발광 소자는 화소부(502) 내의 매트릭스에 배치된다. 3 종류의 발광(R, G 및 B)을 제공하는 발광 소자는 화소부(502)에서 선택적으로 형성되어, 풀컬러 표시가 가능한 발광 장치가 형성될 수 있다. 한편, 풀 컬러 표시가 가능한 발광 장치는 컬러 필터와 조합함으로써 제조될 수 있다.
- [0254] 또한, 밀봉 기관(506)은 밀봉재(505)로 소자 기관(501)에 부착되므로, 발광 소자(517)는 소자 기관(501), 밀봉 기관(506) 및 밀봉재(505)로 둘러싸인 공간(518)에 제공된다. 공간(518)은 불활성 가스(예, 질소 또는 아르곤), 또는 밀봉재(505)로 충전될 수 있다.
- [0255] 에폭시계 수지는 밀봉재(505)로 바람직하게 사용된다. 이러한 재료는 가능한 한 수분이나 산소를 투과하지 않는 것이 바람직하다. 밀봉 기관(506)으로서는, 유리 기관, 석영 기관, 또는 유리 섬유 보강 플라스틱(FRP), 폴리비닐 플루오라이드(PVF), 폴리에스테르, 아크릴 등으로 이루어진 플라스틱 기관이 사용될 수 있다.
- [0256] 상술한 바와 같이, 액티브 매트릭스 발광 장치가 얻어질 수 있다.
- [0257] 본 실시형태에서 설명된 구성은 다른 실시형태에서 설명된 구성과 적절히 조합될 수 있다.
- [0258] (실시형태 7)
- [0259] 본 실시형태에서는, 도 6(A) 내지 도 6(D)를 참고로, 발광 장치를 사용하여 완성되는 다양한 전자기기의 일 예가 설명된다. 발광 장치는 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물을 포함하는 발광 소자를 사용하

여 제조된다.

- [0260] 발광 장치가 적용되는 전자기기의 예는 텔레비전 장치(또한 텔레비전 또는 텔레비전 수상기라고도 함), 컴퓨터 등의 모니터, 디지털 카메라 또는 디지털 비디오 카메라와 같은 카메라, 디지털 포토 프레임, 휴대 전화기(또한 휴대 전화 또는 휴대 전화 장치라고도 함), 휴대용 게임기, 휴대용 정보 단말기, 오디오 재생장치 및 파칭코 기와 같은 대형 게임기이다. 이들 전자기기의 구체적인 예는 도 6(A) 내지 도 6(D)에 도시되어 있다.
- [0261] 도 6(A)는 텔레비전 세트의 예를 나타낸다. 텔레비전 세트(7100)에서, 표시부(7103)는 하우징(7101)에 조립된다. 영상은 표시부(7103) 위에 표시될 수 있고, 발광 장치는 표시부(7103)에 사용될 수 있다. 또한, 여기서 하우징(7101)은 스탠드(7105)에 의해 지지된다.
- [0262] 텔레비전 세트(7100)는 하우징(7101) 또는 별도의 리모트 컨트롤러(7110)의 조작 스위치로 조작될 수 있다. 리모트 컨트롤러(7110)의 조작 키(7109)에 의해, 채널과 볼륨은 제어될 수 있고, 그리고 표시부(7103) 위에 표시된 영상은 제어될 수 있다. 또한, 리모트 컨트롤러(7110)에는 리모트 컨트롤러(7110)로부터의 데이터 출력을 표시하는 표시부(7107)가 제공될 수 있다.
- [0263] 텔레비전 세트(7100)에는 수신기, 모뎀 등이 제공된다. 수신기에 의해, 일반 텔레비전 방송이 수신될 수 있다. 또한, 텔레비전 세트(7100)가 모뎀을 통하여 유선 또는 무선 접속에 의해 통신 네트워크에 접속될 때, 일방향(송신자로부터 수신자에게) 또는 쌍방향(송신자와 수신자 간, 수신자들 간 등) 데이터 통신이 이루어질 수 있다.
- [0264] 도 6(B)는 본체(7201), 하우징(7202), 표시부(7203), 키보드 7204, 외부 접속부(7205), 포인팅 장치(pointing device)(7206) 등을 갖는 컴퓨터를 예시한다. 이 컴퓨터는 표시부(7203)에 발광 장치를 사용하여 제조된다.
- [0265] 도 6(C)는 휴대용 게임기가 개폐될 수 있도록, 연결부(7303)에 연결되는 2개의 하우징, 즉 하우징(7301) 및 하우징(7302)을 갖는 휴대용 게임기를 예시한다. 표시부(7304)는 하우징(7301)에 조립되고, 표시부(7305)는 하우징(7302)에 조립된다. 또한, 도 6(C)에 도시된 휴대용 게임기는 스피커부(7306), 기록 매체 삽입부(7307), LED 램프(7308), 입력 수단(조작 키(7309), 접속 단자(7310), 센서(7311)(힘, 변위, 위치, 속도, 가속도, 각속도, 회전 수, 거리, 광, 액체, 자기, 온도, 화학 물질, 음성, 시간, 경도, 전기장, 전류, 전압, 전력, 방사선, 유량, 습도, 구배, 진동, 냄새 또는 적외선을 측정하는 기능을 포함하는 센서) 및 마이크로폰(7312)) 등을 포함한다. 말할 필요도 없이, 휴대용 게임기의 구성은, 발광 장치가 표시부(7304) 및 표시부(7305) 중 적어도 하나에 사용된다면, 상기에 제한받지 않고, 기타 부속 설비를 적절히 포함할 수 있다. 도 6(C)에 나타난 휴대용 게임기는 저장 매체에 저장된 프로그램이나 데이터를 판독하여 그것을 표시부에 표시하는 기능, 그리고 무선통신에 의해 다른 휴대용 게임기와 정보를 공유하는 기능을 갖는다. 도 6(C)에 나타난 휴대용 게임기는 상기에 제한받지 않고 다양한 기능을 가질 수 있다.
- [0266] 도 6(D)는 휴대전화기의 예를 나타낸다. 휴대전화기(7400)에는 하우징(7401)에 내장된 표시부(7402), 조작 버튼(7403), 외부 접속 포트(7404), 스피커(7405), 마이크로폰(7406) 등이 제공되어 있다. 휴대전화기(7400)는 표시부(7402)에 발광 장치를 사용하여 제조된다는 것을 주목하여야 한다.
- [0267] 도 6(D)에 도시된 휴대전화기(7400)의 표시부(7402)가 손가락 등으로 터치할 때, 데이터는 휴대전화기(7400)로 입력될 수 있다. 또한, 전화를 걸고 이메일을 작성하는 것과 같은 조작은 표시부(7402)를 손가락 등으로 터치함으로써 행해질 수 있다.
- [0268] 주로 3 화면 모드의 표시부(7402)가 있다. 제 1 모드는 주로 영상을 표시하기 위한 표시 모드이다. 제 2 모드는 문자와 같은 데이터를 주로 입력하기 위한 입력 모드이다. 제 3 모드는 표시 모드와 입력 모드의 2 모드가 조합된 표시-입력 모드이다.
- [0269] 예를 들면, 전화를 걸고 이메일을 작성하는 경우에, 문자 입력을 주로 하는 문자 입력 모드가 표시부(7402)에 대해 선택되므로 화면에 표시된 문자가 입력될 수 있다. 이 경우에, 표시부(7402)의 거의 모든 화면에 키보드 또는 숫자 버튼을 표시하는 것이 바람직하다.
- [0270] 자이로스코프 또는 가속도 센서 같이 기울기를 검출하기 위한 센서를 포함하는 검출 장치가 휴대전화기(7400) 내부에 제공될 때, 표시부(7402)의 화면 상의 표시는 휴대전화기(7400)의 방향(휴대전화기가 경치 모드나 인물 모드에 대해 수평으로 놓이는지 또는 수직으로 놓이는지 하는 방향)을 결정함으로써 자동적으로 전환(switch)될 수 있다.
- [0271] 화면 모드는 표시부(7402)를 터치하거나 하우징(7401)의 조작 버튼(7403)을 조작함으로써 전환된다. 화면 모드

는 또한 표시부(7402) 위에 표시된 화상의 종류에 따라 전환될 수 있다. 예를 들면, 표시부에 표시된 화상의 신호가 화상 데이터를 이동하는 신호일 때, 화면 모드는 표시 모드로 전환된다. 신호가 문자 데이터의 신호일 때, 화면 모드가 입력 모드로 전환된다.

- [0272] 또한, 입력 모드에서, 표시부(7402) 내의 광학 센서에 의해 검출된 신호가 검출되는 동안 표시부(7402)를 접촉함으로써 입력이 특정 기간 동안 실행되지 않을 때, 화면 모드는 입력 모드로부터 표시 모드로 전환되도록 제어될 수 있다.
- [0273] 표시부(7402)는 화상 센서로서 기능할 수 있다. 예를 들면, 손바닥 지문, 손가락 지문 등의 화상은 표시부(7402)가 손바닥 또는 손가락에 의해 접촉될 때 촬상됨으로써 본인 인증이 실행될 수 있다. 또한, 표시부에 근적외선 광을 발광하는 백라이트 또는 감지용 광원을 제공함으로써, 손가락 정맥, 손바닥 정맥 등의 화상이 촬상될 수 있다.
- [0274] 도 7(A) 및 도 7(B)는 접을 수 있는 태블릿형 단말기를 나타낸다. 도 7(A)에서, 태블릿형 단말기는 개방되어 있고, 하우징(9630), 표시부(9631a), 표시부(9631b), 표시 모드 전환 버튼(9034), 전원 버튼(9035), 절전 모드 전환 버튼(9036), 클립(9033) 및 조작 버튼(9038)을 포함한다. 태블릿형 단말기는 표시부(9631a) 및 표시부((9631b)) 중 어느 하나 또는 모두에 발광 장치를 사용함으로써 제조된다.
- [0275] 터치 패널 영역(9632a)은 데이터가 표시된 조작 키(9637)를 터치함으로써 입력될 수 있는 표시부(9631a)의 일부분에 제공될 수 있다. 표시부(9631a)의 절반은 표시 기능만을 갖고 그리고 다른 절반은 터치 패널 기능을 갖는다. 그러나, 본 발명의 일 실시양태는 이러한 구성에 제한받지 않고, 전체적인 표시부(9631a)는 터치 패널 기능을 가질 수 있다. 예를 들면, 키보드는 터치 패널로서 사용되는 표시부(9631a) 전체에 표시될 수 있고, 그리고 표시부(9631b)는 표시 화면으로서 사용될 수 있다.
- [0276] 터치 패널 영역(9632b)은 표시부(9631a)에서처럼 표시부(9631b)의 일부분에 제공될 수 있다. 터치 패널 위에 표시된 키보드 표시 전환 버튼(9639)를 손가락, 스타일러스 등으로 터치할 때, 키보드는 표시부(9631b) 위에 표시될 수 있다.
- [0277] 터치 패널 영역(9632a)과 터치 패널 영역(9632b)은 터치 입력에 의해 동시에 제어될 수 있다.
- [0278] 표시 모드 전환 버튼(9034)은 경치 모드와 인물 모드 사이의 전환, 컬러 표시와 흑백 표시 사이의 전환 등을 한다. 절전 모드 전환 버튼(9036)은 태블릿형 단말기에 내장된 광학 센서에 의해 검출되는 외부 광의 광량에 따라 표시 휘도를 최적화한다. 광학 센서 이외에, 자이로스코프나 가속 센서와 같이 기울기를 검출하기 위한 센서와 같은 또 다른 장치가 태블릿형 단말기에 조립될 수 있다.
- [0279] 표시부(9631a) 및 표시부(9631b)가 도 7(A)에서 동일한 표시 영역을 갖지만, 본 발명의 일 실시양태는 이러한 예에 제한되지 않는다. 표시부(9631a) 및 표시부(9631b)는 상이한 영역이나 상이한 표시 품질을 가질 수 있다. 예를 들면, 고정세한 화상이 표시부(9631a) 및 (9631b) 중 하나에 표시될 수 있다.
- [0280] 도 7(B)는 하우징(9630), 태양전지(9633), 충방전 제어 회로(9634), 배터리(9635) 및 DCDC 컨버터(9636)를 포함하는 접힌 상태의 태블릿형 단말기를 도시한다. 도 7(B)는 충방전 제어 회로(9634)가 배터리(9635) 및 DCDC 컨버터(9636)를 포함하는 예를 나타낸다.
- [0281] 태블릿형 단말기는 접을 수 있기 때문에, 하우징(9630)은 사용하지 않을 때 접은 상태로 할 수 있다. 이와 같이, 표시부(9631a) 및 표시부(9631b)는 보호될 수 있어, 태블릿형 단말기의 내구성을 높이고 장시간 사용시 신뢰성을 개선할 수 있다.
- [0282] 도 7(A) 및 도 7(B)에 도시된 태블릿형 단말기는 여러 종류의 데이터(예, 정지 화면, 동영상 및 텍스트 화상)를 표시하는 기능; 달력, 날짜, 시간 등을 표시부 위에 표시하는 기능; 터치 입력에 의해 표시부 위에 표시된 데이터를 조작 또는 편집하는 터치-입력 기능; 및 여러 종류의 소프트웨어(프로그램)에 의한 제어공정 기능 등과 같은 다른 기능을 가질 수 있다.
- [0283] 태블릿형 단말기의 표면에 부착되는 태양전지(9633)는 터치 패널, 표시부, 화상 신호 처리부 등에 전원을 공급한다. 태양전지(9633)가 제공되는 구성이 바람직한 데, 그 이유는 표시부(9631a) 및/또는 표시부(9631b)에 전원을 공급하는 배터리(9635)가 충전될 수 있기 때문이다. 배터리(9635)로서 리튬 이온 전지를 사용하면 소형화 등에 장점이 있다.
- [0284] 도 7(C)의 블록 다이어그램을 참고로, 도 7(B)에 도시된 충방전 제어 회로(9634)의 구성 및 동작을 설명한다.

도 7(C)는 태양전지(9633), 배터리(9635), DCDC 컨버터(9636), 컨버터(9638), 스위치(SW1 내지 SW3) 및 표시부(9631)를 예시하고 있다. 배터리(9635), DCDC 컨버터(9636), 컨버터(9638) 및 스위치(SW1 내지 SW3)는 도 7(B)에서 충방전 제어 회로(9634)에 대응된다.

[0285] 먼저, 외부 광을 이용하는 태양전지(9633)에 의해 전기가 발생되는 경우의, 동작의 예를 설명한다. 태양전지에 의해 발생된 전력의 전압은 DCDC 컨버터(9636)에 의해 승압 또는 감압되어 배터리(9635)를 충전하는 전압이 얻어진다. 표시부(9631)가 태양전지(9633)의 전력으로 동작될 때, 스위치(SW1)는 켜지고, 그리고 전압은 컨버터(9638)에 의해 표시부(9631)를 동작하는 데 필요한 전압까지 승압 또는 강압된다. 표시부(9631) 위에 표시되지 않을 때, 스위치(SW1)는 꺼지고, 스위치(SW2)는 켜져 배터리(9635)가 충전될 수 있다.

[0286] 태양전지(9633)가 충전 수단의 예로서 나타나 있지만 충전 수단에는 특별한 제한이 없으며, 그리고 배터리(9635)는 압전 소자 또는 열전 변환 소자(Peltier 소자)와 같은 또 다른 수단으로 충전될 수 있다. 예를 들면, 배터리(9635)는 무선(비접촉)으로 전력을 송수신하여 전지를 충전하는 무접점 전력 전송 모듈과, 또 다른 충전 수단을 조합시켜 충전될 수 있다.

[0287] 상기 실시형태에 설명된 표시부가 포함된다면, 본 발명의 일 실시양태는 도 7(A) 내지 도 7(C)에 도시된 전자기기에 한정되지 않는다는 것은 말할 필요도 없다.

[0288] 상술한 바와 같이, 전자기기는 본 발명의 실시양태에 따른 발광 장치의 사용에 의해 얻어질 수 있다. 발광 장치는 넓은 적용 범위를 갖고 있고 여러 분야의 전자기기에 적용될 수 있다.

[0289] 본 실시형태에서 설명된 구성은 다른 실시형태에서 설명된 구성과 적절히 조합될 수 있다.

[0290] (실시형태 8)

[0291] 본 실시형태에서는, 도 8을 참고로 하여, 발광 장치를 사용하여 완성된 조명 장치의 예를 설명한다. 발광 장치는 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물을 포함하는 발광 소자를 사용하여 제조된다.

[0292] 도 8은 발광 장치가 실내 조명 장치(8001)로서 사용되는 예를 도시한다. 발광 장치는 더 큰 영역을 가질 수 있기 때문에, 큰 영역을 갖는 조명 장치에 사용될 수 있다. 또한, 발광 영역이 굴곡 면을 갖는 조명 장치(8002)는 또한 굴곡 면을 갖는 하우징을 사용함으로써 얻어질 수 있다. 본 실시형태에서 설명된 발광 장치에 포함된 발광 소자는 하우징을 더욱 자유롭게 설계하도록 하는 막막 형태이다. 그러므로, 조명 장치는 여러 가지 방법으로 정교하게 설계될 수 있다. 또한, 실내 벽에는 대형 조명 장치(8003)를 설치할 수 있다.

[0293] 더욱이, 발광 장치가 테이블의 표면으로서 사용됨으로써 테이블에 사용될 때, 테이블 기능을 갖는 조명 장치(8004)가 얻어질 수 있다. 발광 장치가 다른 가구의 일부로서 사용될 때, 가구의 기능을 갖는 조명 장치를 얻을 수 있다.

[0294] 이러한 방식으로, 발광 장치가 적용되는 여러 가지 조명 장치가 얻어질 수 있다. 이러한 조명 장치는 또한 본 발명의 실시형태이다.

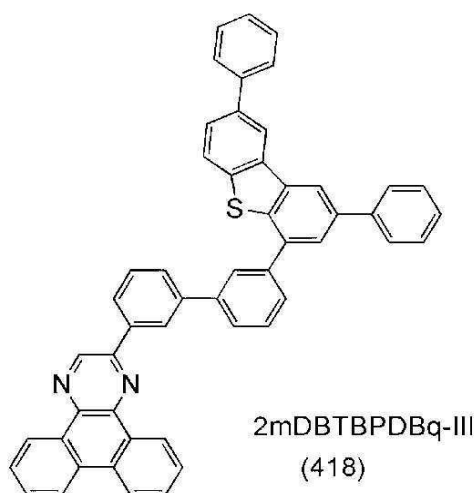
[0295] 본 실시형태에서 설명된 구성은 다른 실시형태에서 설명된 구성의 어느 것과도 적절히 조합될 수 있다.

[0296] [실시예 1]

[0297] (합성 실시예 1)

[0298] 본 실시예에서는 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물로서 실시형태 1에서 구조식(418)으로 나타내어진 2-{3-[3-(2,8-디페닐디벤조티오펜-4-일)페닐]페닐}디벤조[f,h]퀴녹살린(약칭: 2mDBTBPDq-III)을 합성하는 방법을 설명한다. 2mDBTBPDq-III(약칭)의 구조는 다음과 같다.

[0299] [2mDBTBPDq-III]

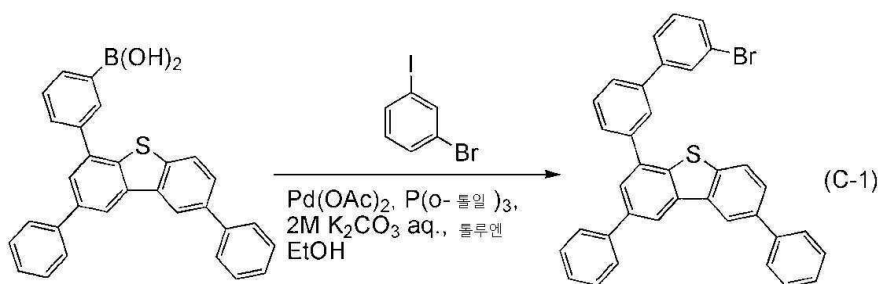


[0300]

[0301] <단계 1: 4-[3-(3-브로모페닐)페닐]-2,8-디페닐디벤조티오펜의 합성>

[0302] 4-[3-(3-브로모페닐)페닐]-2,8-디페닐디벤조티오펜의 합성 스킴을 (C-1)로 나타낸다.

[0303] [합성 스킴(C-1)]



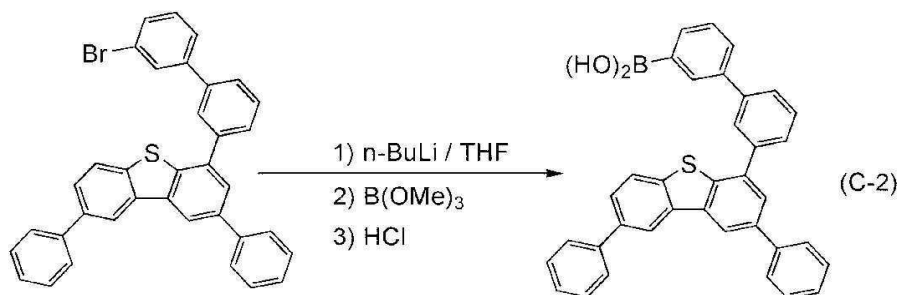
[0304]

[0305] 300 mL의 3구 플라스크에 6.5 g(23 mmol)의 3-브로모요오드벤젠, 10 g(22 mmol)의 3-(2,8-디페닐디벤조티오펜-4-일)페닐 보론산 및 0.33 g(1.1 mmol)의 트리(오르토-톨일)포스핀을 넣었다. 플라스크 내의 공기는 질소로 치환시켰다. 이 혼합물에 80 mL의 톨루엔, 30 mL의 에탄올 및 25 mL의 탄산 칼륨 수용액(2.0 mol/L)을 첨가하였다. 이 혼합물을 탈기하도록 교반하면서 압력을 감소시켰다. 이 혼합물에 49 mg(0.22 mmol)의 팔라듐(II) 아세테이트를 첨가하고, 이 혼합물을 질소 기류 하에 80℃에서 3 시간 동안 교반하였다. 그 다음, 이 혼합물의 수층을 톨루엔으로 추출한 후, 추출된 용액과 유기층을 혼합하고, 포화 식염수로 세정하였다. 유기층을 황산 마그네슘으로 건조하였다. 건조 후, 혼합물을 자연 여과(gravity filtration) 시켰다. 얻어진 여과액을 농축하여 고체를 얻었으며, 이 고체에 톨루엔/헥산을 첨가하였다. 혼합물에 초음파를 조사함으로써 고체를 침전시켰다. 이 고체를 흡입 여과에 의해 회수하여 수율 96 %로 목적하는 백색 분말 11g을 얻었다.

[0306] <단계 2: 3-[3-(2,8-디페닐디벤조티오펜-4-일)페닐]페닐 보론산의 합성>

[0307] 3-[3-(2,8-디페닐디벤조티오펜-4-일)페닐]페닐 보론산의 합성 스킴은 (C-2)로 나타낸다.

[0308] [합성 스킴(C-2)]



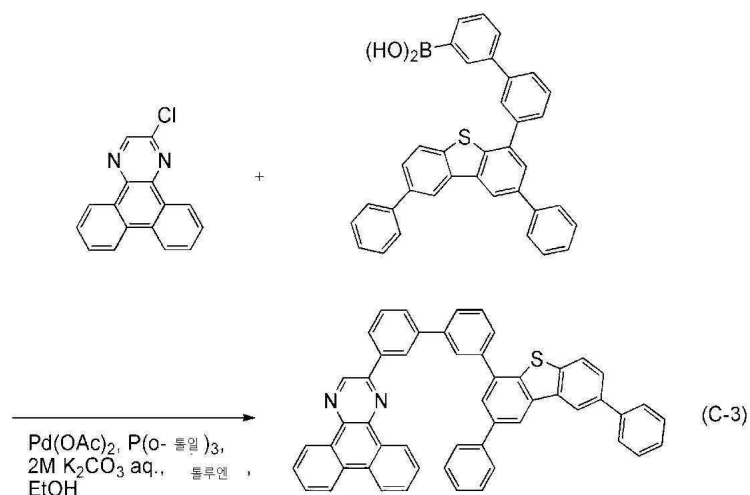
[0309]

[0310] 500 mL의 3구 플라스크에 10 g(17 mmol)의 4-[3-(3-브로모페닐)페닐]-2,8-디페닐디벤조티오펜을 넣었다. 플라스크 내의 공기를 질소로 치환시켰다. 이 혼합물에 176 mL의 테트라하이드로퓨란(THF)을 첨가하고, 이 용액을 -80℃까지 냉각하였다. 그 다음, 11 mL(19 mmol)의 n-부틸리튬(1.6 mol/L 헥산 용액)을 주사기로 상기 용액에 적하하였다. 그 후, 이 용액을 동일한 온도에서 2 시간 동안 교반하였다. 그 다음, 2.4 mL(21 mmol)의 트리메틸 붕산염을 상기 용액에 첨가하고, 이 혼합물을 16 시간 동안 교반함과 동시에 실온에서 냉각시켰다. 그 후, 약 80 mL의 묽은 염산(1.0 mol/L)을 상기 용액에 첨가한 다음 2.5 시간 동안 교반하였다. 그 다음, 이 혼합물의 수성층을 에틸 아세테이트로 추출한 후, 추출된 용액과 유기층을 혼합한 후, 탄산나트륨수소의 포화 수용액과 포화 식염수로 세정하였다. 유기층을 황산 마그네슘으로 건조하였다. 건조 후, 혼합물을 자연 여과시켰다. 얻어진 여과액을 농축하여 고체 물질을 얻었다. 고체를 에틸 아세테이트/헥산으로 재결정하여, 37 %의 수율로 목적하는 담갈색 분말 3.5g을 얻었다.

[0311] <단계 3: 2mDBTPDBq-III(약칭)의 합성>

[0312] 2mDBTPDBq-III(약칭)의 합성 스킴은 (C-3)로 나타낸다.

[0313] [합성 스킴(C-3)]



[0314]

[0315] 300 mL의 3구 플라스크에 1.7 g(6.5 mmol)의 2-클로로디벤조[f,h]퀴놀살린 및 3.4 g(6.5 mmol)의 3-[3-(2,8-디페닐디벤조티오펜-4-일)페닐]페닐 보론산을 넣었다. 플라스크 내의 공기를 질소로 치환시켰다. 이 혼합물에 43 mL의 톨루엔, 54 mL의 에탄올 및 6.5 mL의 탄산나트륨 수용액(2.0 mol/L)을 첨가하였다. 이 혼합물을 탈기 하도록 교반하면서 압력을 감소시켰다. 이 혼합물에 75 mg(0.065 mmol)의 테트라키스(트리페닐포스핀)팔라듐(0)을 첨가하고, 이 혼합물을 질소 기류 하에 80℃에서 4 시간 동안 교반하여 고체를 침전시켰다. 그 다음, 이 혼합물에 200 mL의 물을 첨가하고, 이 혼합물을 30분 동안 교반하였다. 교반 후, 이 혼합물을 흡입 여과하여 고체를 얻었다. 이와 같이 하여 얻어진 혼합물에 200 mL의 에탄올을 첨가하였다. 그 다음, 초음파를 조사하고 고체를 세정하였다. 세정 후, 혼합물을 흡입 여과하여 고체를 얻었다. 고체를 감압 하에 건조하였다. 건조 후, 고체를 800 mL의 고온 톨루엔에 첨가하고, 이 용액을 셀라이트(Cellite)와 알루미나를 통해 흡입 여과하였다. 이와 같이 생성된 여과액을 농축하여 얻어진 고체를 실리카 겔 칼럼 크로마토그래피(전개 용액은 헥산:톨루엔 = 2:1 비율의 혼합 용매임)로 정제하여 고체를 얻었다. 얻어진 고체를 HPLC에 의해 정제하여 고체를 얻었다.

다. 얻어진 고체를 감압 하에서 건조하여 15%의 수율로 0.72 g의 목적하는 백색 고체를 얻었다.

[0316] 트레인 승화법(train sublimation method)에 의해, 얻어진 백색 고체 0.72 g을 정제하였다. 정제에 있어서, 5.0 mL/min의 아르곤 가스 유속으로 360℃ 및 2.8 Pa의 압력 하에서 2mDBTPDBq-III(약칭)을 가열하였다. 정제를 통하여 백색 고체로서 0.61 g의 2mDBTPDBq-III(약칭)를 84 %의 수율로 얻었다.

[0317] 상기 합성법으로 얻어진 화합물에 대해 핵자기 공명 분광법(^1H -NMR)으로 분석한 결과를 하기에 나타냈다. ^1H -NMR 차트를 도 9에 나타냈다. 그 결과, 본 발명의 일 실시양태에 따라 구조식(418)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물인 2mDBTPDBq-III(약칭)가 얻어졌음이 밝혀졌다.

[0318] ^1H NMR (CDCl_3 , 500 MHz): δ = 7.39-7.43(m, 2H), 7.52(ddd, J = 8.0, 1.7 Hz, 4H), 7.66-7.90(m, 16H), 8.23(t, J = 1.7 Hz, 1H), 8.34(d, J = 2.4 Hz, 1H), 8.46(dd, J = 6.3, 1.7 Hz, 2H), 8.65(d, J = 8.0 Hz, 2H), 8.71(t, J = 1.7 Hz, 1H), 9.25(dd, J = 5.0, 1.1 Hz, 1H), 9.44(dd, J = 3.0, 1.1 Hz, 1H), 9.47(s, 1H).

[0319] 그 다음, 본 실시예에서 얻어진 2mDBTPDBq-III(약칭)를 액체 크로마토그래피 질량 분석법(LC/MS)에 의해 분석하였다.

[0320] LC/MS 분석은 Acquity UPLC(Waters Corporation) 및 Xevo G2 Tof MS(Waters Corporation)으로 실시되었다.

[0321] MS 분석에서, 전자 분무 이온화법(ESI)에 의해 이온화를 실시하였다. 이 때, 캐필러리(capillary) 전압과 샘플 콘(sample cone) 전압은 각각 3.015 kV 및 30 V으로 설정되었고, 그리고 검출은 포지티브 모드로 실시되었다.

[0322] 상술한 조건 하에서 이온화된 성분은 충돌실에서 아르곤 가스와 충돌하여 복수의 생성 이온으로 분해하였다. 아르곤에 의한 충돌을 위한 에너지(충돌 에너지)는 70 eV이었다. 측정을 위한 질량 범위는 m/z = 100 내지 1200이었다.

[0323] 도 19는 측정 결과를 나타낸다. 도 19의 결과는 본 발명의 일 실시양태에 따라 구조식(418)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물로서 2mDBTPDBq-III(약칭)의 생성 이온이 주로 m/z = 690, m/z = 229, m/z = 202, m/z = 177 및 m/z = 165 부근에서 검출되었다는 것을 나타낸다.

[0324] 도 19의 결과는 2mDBTPDBq-III(약칭)으로부터 유래된 특성을 나타내므로, 혼합물에 함유된 2mDBTPDBq-III(약칭)을 확인하기 위해 중요한 데이터로 간주될 수 있다.

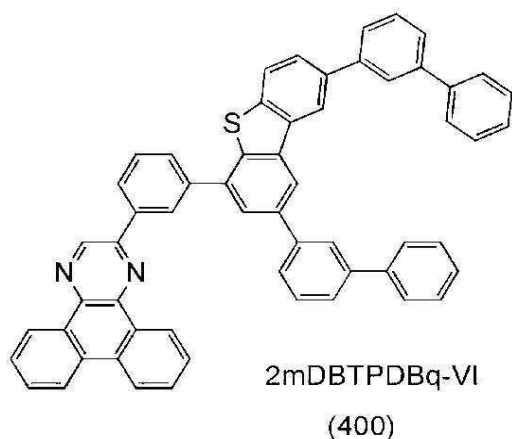
[0325] m/z = 690 부근의 생성 이온은 하나의 C 원자와 하나의 N 원자가 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물 중 하나로서 구조식(418)로 나타내어진 화합물의 디벤조[f,h]퀴녹살린 고리로부터 이탈된 상태에서 양이온으로 되는 것으로 추정된다. 또한, m/z = 229 부근의 생성 이온은 디벤조[f,h]퀴녹살린과 같은 디아자트리페닐렌일기의 양이온인 것으로 추정된다. 더욱이, m/z = 202, m/z = 177 및 m/z = 165 부근의 생성 이온도 또한 동시에 검출된다. 그러므로, 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물인 2mDBTPDBq-III(약칭)이 디벤조[f,h]퀴녹살린 고리를 포함한다는 것을 시사한다.

[0326] [실시예 2]

[0327] <합성 실시예 2>

[0328] 본 실시예에서는 실시형태 1에서 본 발명의 일 실시양태에 따라 구조식(400)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물인 2-{3-[2,8-비스(비페닐-3-일)디벤조티오펜-4-일]페닐}디벤조[f,h]퀴녹살린(약칭: 2mDBTPDBq-VI)을 합성하는 방법을 설명한다. 2mDBTPDBq-VI(약칭)의 구조를 하기에 나타낸다.

[0329] [2mDBTPDBq-VI]

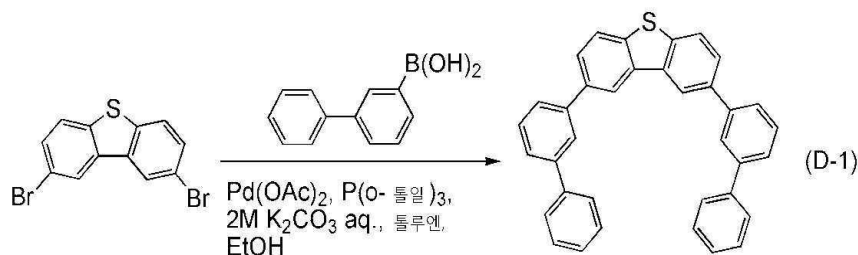


[0330]

[0331] <단계 1: 2,8-비스(비페닐-3-일)디벤조티오펜의 합성>

[0332] 2,8-비스(비페닐-3-일)디벤조티오펜의 합성 스킴은 (D-1)으로 나타낸다.

[0333] [합성 스킴(D-1)]



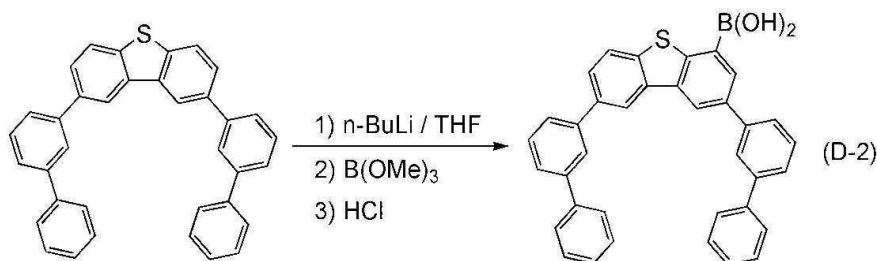
[0334]

[0335] 3.0 L의 3구 플라스크에 50 g(0.14 mol)의 2,8-디브로모디벤조티오펜, 69 g(0.35 mmol)의 3-비페닐 보론산, 4.4 g(14 mmol)의 트리(오르토-톨일)포스핀, 60 g(0.43 mol)의 탄산 칼륨, 380 mL의 물, 1.2 L의 톨루엔 및 120 mL의 에탄올을 넣었다. 압력을 감소하면서 상기 혼합물을 교반하여 탈기하였다. 이 혼합물에 0.65 g(2.9 mmol)의 팔라듐(II) 아세테이트를 첨가하고, 이 혼합물을 질소 기류 하에 80℃에서 3 시간 동안 교반하였다. 교반 후에, 이 혼합물의 수층을 톨루엔으로 추출한 후, 추출된 용액과 유기층을 혼합한 후 포화 식염수로 세정하였다. 유기층을 황산 마그네슘으로 건조하고, 이 혼합물을 자연 여과시켰다. 그 결과 얻어진 여과액을 농축하여 얻은 고체를 약 500 mL의 톨루엔에 용해하였다. 이 용액을 셀라이트, 알루미나 및 플로리실(Florisil)을 통해 흡입 여과하였다. 얻어진 여과액을 농축함으로써 얻어진 고체에 톨루엔/헥산을 첨가하고, 이 혼합물에 초음파를 조사한 후 세정하였다. 고체를 흡입 여과에 의해 회수하여, 수율 84%로 목적하는 백색 분말 60 g을 얻었다.

[0336] <단계 2: 2,8-비스(비페닐-3-일)디벤조티오펜-4-일 보론산의 합성>

[0337] 2,8-비스(비페닐-3-일)디벤조티오펜-4-일 보론산의 합성 스킴은 (D-2)으로 나타낸다.

[0338] [합성 스킴(D-2)]



[0339]

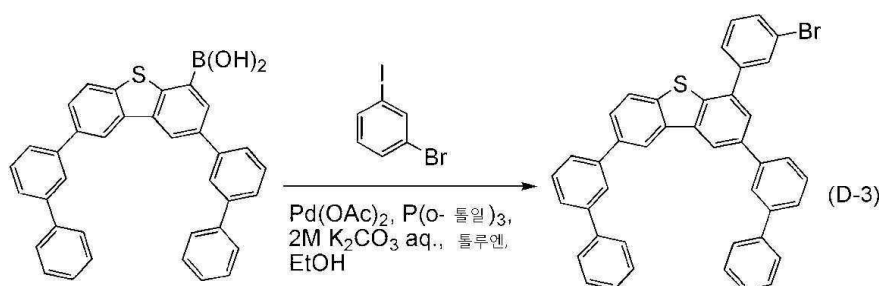
[0340] 2.0 L의 3구 플라스크에 36 g(73 mmol)의 2,8-비스(비페닐-3-일)디벤조티오펜을 넣었다. 플라스크 내의 공기는

질소로 치환시켰다. 플라스크에 370 mL의 테트라하이드로퓨란(THF)을 넣고, 이 용액을 -80℃까지 냉각하였다. 그 다음, 이 용액에 적하 깔대기로 50 mL(80 mmol)의 n-부틸리튬(1.6 mol/L 헥산 용액)을 적하하였다. 적하한 후, 이 용액을 2 시간 동안 교반하면서 온도를 실온으로 냉각하였다. 교반 후, 이 용액을 다시 -80℃로 냉각하고, 11 mL(100 mmol)의 트리메틸 붕산염을 이 용액에 첨가한 다음 18 시간 동안 교반하면서 온도를 실온으로 냉각하였다. 교반 후, 약 200 mL의 묽은 염산(1.0 mol/L)을 이 용액에 첨가하고, 이 용액을 1 시간 동안 교반하였다. 교반 후, 이 혼합물의 수층을 에틸 아세테이트로 추출한 후, 추출된 용액과 유기층을 혼합하고 탄산수소나트륨의 포화 수용액과 포화 식염수로 세정하였다. 유기층을 황산 마그네슘으로 건조하고, 이 혼합물을 자연 여과시켰다. 그 결과 얻어진 여과액을 농축하여 고체를 얻었다. 얻어진 고체에 에틸 아세테이트/톨루엔을 첨가하고, 그 혼합물에 초음파를 조사한 후, 고체를 흡입 여과에 의해 회수하여, 수율 87%로 목적하는 백색 분말 33 g을 얻었다.

[0341] <단계 3: 4-(3-브로모페닐)-2,8-비스(비페닐-3-일)디벤조티오펜의 합성>

[0342] 4-(3-브로모페닐)-2,8-비스(비페닐-3-일)디벤조티오펜의 합성 스킴은 (D-3)으로 나타낸다.

[0343] [합성 스킴(D-3)]



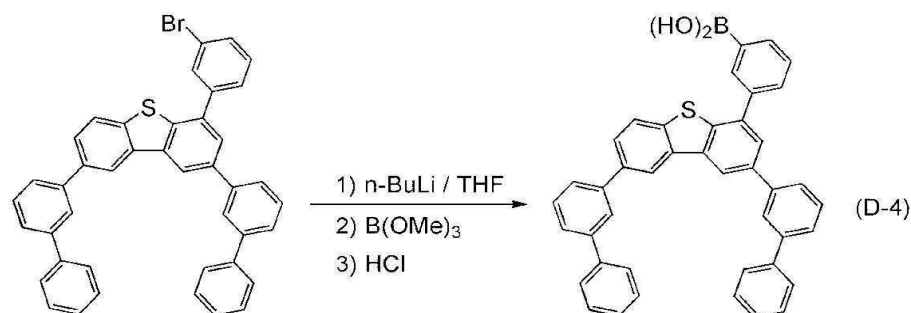
[0344]

[0345] 1.0 L의 3구 플라스크에 4.8 mL(37 mmol)의 3-브로모요오드벤젠, 20 g(37 mmol)의 2,8-비스(비페닐-3-일)디벤조티오펜-4-일 보론산 및 1.5 g(5.6 mmol)의 트리(오르토-톨일)포스핀을 넣었다. 플라스크 내의 공기를 질소로 치환시켰다. 이 혼합물에 140 mL의 톨루엔, 47 mL의 에탄올, 10 g의 탄산 칼륨 및 37 mL의 물을 첨가하였다. 이 혼합물을 교반하여 탈기하면서 압력을 감소하였다. 이 혼합물에 0.16 g(1.1 mmol)의 팔라듐(II) 아세테이트를 첨가하고, 이 혼합물을 질소 기류 하에 80℃에서 6 시간 동안 교반하였다. 교반 후에, 이 혼합물의 수층을 톨루엔으로 추출한 후, 추출된 용액과 유기층을 혼합한 후 포화 식염수로 세정하였다. 유기층을 황산 마그네슘으로 건조하고, 이 혼합물을 자연 여과시켰다. 그 결과 얻어진 여과액을 농축하여 얻은 오일상 물질에 톨루엔/메탄올을 첨가하고, 그 혼합물에 초음파를 조사하여 고체를 침전시켰다. 침전된 고체를 흡입 여과에 의해 회수하여, 수율 94%로 목적하는 담갈색 고체 22 g을 얻었다.

[0346] <단계 4: 3-[2,8-비스(비페닐-3-일)디벤조티오펜-4-일]페닐 보론산의 합성>

[0347] 3-[2,8-비스(비페닐-3-일)디벤조티오펜-4-일]페닐 보론산의 합성 스킴은 (D-4)로 나타낸다.

[0348] [합성 스킴(D-4)]



[0349]

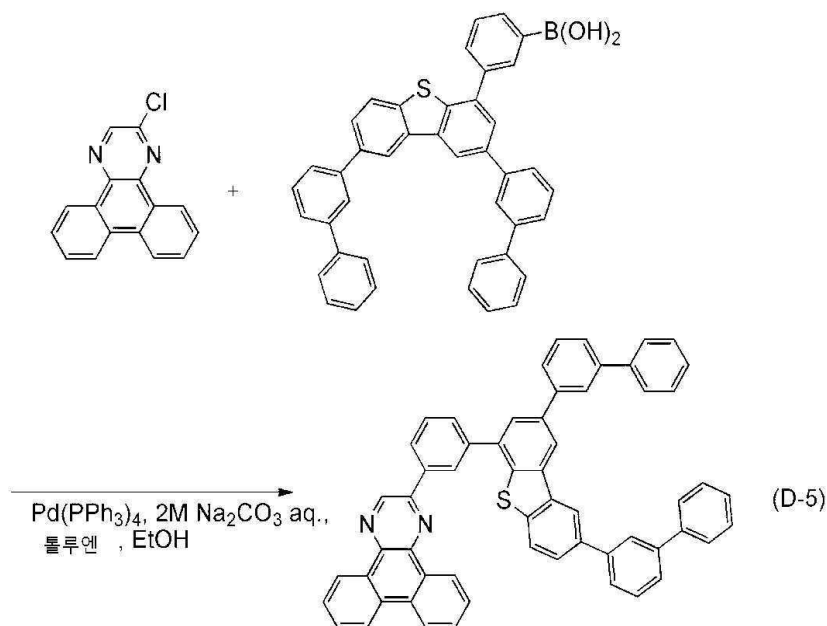
[0350] 500 mL의 3구 플라스크에 20 g(31 mmol)의 4-(3-브로모페닐)-2,8-비스(비페닐-3-일)디벤조티오펜을 넣었다. 플라스크 내의 공기를 질소로 치환시켰다. 플라스크에 310 mL의 테트라하이드로퓨란(THF)을 넣고, 이 용액을 -80℃까지 냉각하였다. 이 용액에, 21 mL(34 mmol)의 n-부틸리튬(1.6 mol/L 헥산 용액)을 주사기로 적하하였다. 적하한 후, 이 용액을 동일한 온도에서 2 시간 동안 교반하였다. 교반 후, 4.2 mL(37 mmol)의 트리메틸 붕산염

을 이 용액에 첨가하고, 이 용액을 18 시간 동안 교반하면서 온도를 실온까지 냉각하였다. 교반 후, 약 10 mL의 묽은 염산(1.0 mol/L)을 용액에 첨가하고, 그 혼합물을 1 시간 동안 교반하였다. 그 다음, 이 혼합물의 수층을 에틸 아세테이트로 추출하고, 추출된 용액과 유기층을 혼합한 후, 탄산 수소 나트륨의 포화 수용액과 포화 식염수로 세정하였다. 유기층을 황산 마그네슘으로 건조하였다. 건조 후, 혼합물을 자연 여과시켰다. 얻어진 여과액을 농축하여 고체를 얻었다. 얻어진 고체를 가열된 에틸 아세테이트에 용해하고, 헥산을 첨가하여 재결정함으로써 63 %의 수율로 목적하는 담갈색 분말 12g을 얻었다.

[0351] <단계 5: 2mDBTPDBq-VI(약칭)의 합성>

[0352] 2mDBTPDBq-VI(약칭)의 합성 스킴은 (D-5)으로 나타낸다.

[0353] [합성 스킴(D-5)]



[0354]

[0355] 300 mL의 3구 플라스크에 5.1 g(19 mmol)의 2-클로로디벤조[f,h]퀴놀살린, 12 g(2.4 mmol)의 3-[2,8-비스(비페닐-3-일)디벤조티오펜-4-일]페닐 보론산, 130 mL의 톨루엔, 13 mL의 에탄올 및 20 mL의 탄산나트륨 수용액(2.0 mol/L)을 넣었다. 이 혼합물을 탈기되도록 교반하면서 압력을 감소하였다. 이 혼합물에 0.23 g(0.20 mmol)의 테트라키스(트리페닐포스핀)팔라듐(0)을 첨가하고, 그 혼합물을 질소 기류 하에 80℃에서 3.5 시간 동안 교반하여 고체를 침전하였다. 교반 후, 200 mL의 물을 이 혼합물에 첨가하고, 혼합물을 실온에서 30분 동안 교반하였다. 그 다음, 혼합물을 흡입 여과하여 고체를 얻었다. 얻어진 고체에 200 mL의 에탄올을 첨가하고, 이 고체에 초음파를 조사하고 세정하였다. 세정 후, 이 혼합물을 흡입 여과하여 고체를 얻었다. 얻어진 고체를 감압 하에서 건조하였다. 건조 후, 고체를 800 mL의 뜨거운 톨루엔에 용해하고, 이 용액을 셀라이트 및 알루미나를 통해 흡입 여과하였다. 얻어진 여과액을 농축하여 얻은 고체를 감압 하에서 건조하여, 46 %의 수율로 목적하는 백색 분말 7.2g을 얻었다.

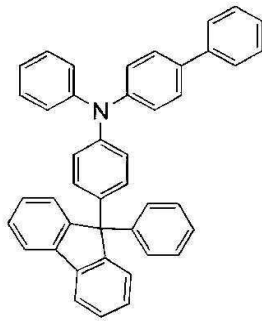
[0356] 트레인 승화법에 의해, 얻어진 백색 분말성 고체 7.2 g을 정제하였다. 정제에서, 15 mL/min의 아르곤 가스 유속으로 3.5 Pa의 압력 하에 395℃로 2mDBTPDBq-VI(약칭)를 가열하였다. 정제를 통하여, 86%의 수율로 백색 고체로서 6.2 g의 2mDBTPDBq-VI(약칭)를 얻었다.

[0357] 상기 합성법으로 얻어진 화합물에 대해 핵자기 공명 분광법(¹H-NMR)으로 분석한 결과를 하기에 나타냈다. ¹H-NMR 차트를 도 10에 나타냈다. 그 결과, 본 발명의 일 실시양태에 따라 구조식(400)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물인 2mDBTPDBq-VI(약칭)가 얻어졌음이 밝혀졌다.

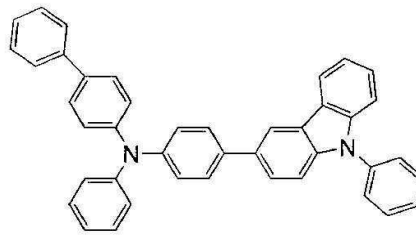
[0358] ¹H NMR (CDCl₃, 500 MHz): { δ = 7.38(ddd, J = 8.6, 7.5 Hz, 2H), 7.48(ddd, J = 8.1, 7.4 Hz, 4H), 7.59-7.66(m, 4H), 7.70-7.82(m, 12H), 7.95-7.99(m, 4H), 8.02(dd, 15 J = 1.7 Hz, 1H), 8.46(d, J = 8.0 Hz, 1H), 8.53(d, J = 1.8 Hz, 2H), 8.65(d, J = 8.0 Hz, 2H), 8.87(dd, J = 1.7 Hz, 1H), 9.25(dd, J = 6.3, 1.7

Hz, 1H), 9.45(dd, J = 6.8, 1.2 Hz, 1H), 9.51(s, 1H).

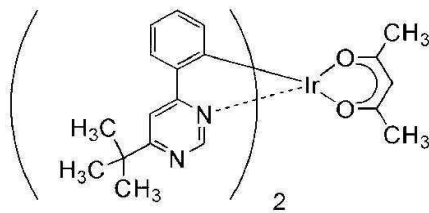
- [0359] 그 다음, 본 실시예에서 얻어진 2mDBTPDBq-VI(약칭)을 액체 크로마토그래피 질량 분석법(LC/MS)에 의해 분석하였다.
- [0360] LC/MS 분석은 Acquity UPLC(Waters Corporation) 및 Xevo G2 ToF MS(Waters Corporation)으로 실시되었다.
- [0361] MS 분석에서, 전자 분무 이온화법(ESI)에 의해 이온화를 실시하였다. 이 때, 캐필러리 전압과 샘플 콘 전압은 각각 3.0 kV 및 30 V으로 설정되었고, 그리고 검출은 포지티브 모드로 실시되었다.
- [0362] 상술한 조건 하에서 이온화된 성분은 충돌실에서 아르곤 가스와 충돌하여 복수의 생성 이온으로 분해하였다. 아르곤에 의한 충돌을 위한 에너지(충돌 에너지)는 70 eV이었다. 측정을 위한 질량 범위는 $m/z = 100$ 내지 1200이었다.
- [0363] 도 20은 측정 결과를 나타낸다. 도 20의 결과는 본 발명의 일 실시양태에 따라 구조식(400)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물로서 2mDBTPDBq-VI(약칭)의 생성 이온이 주로 $m/z = 766$, $m/z = 229$, $m/z = 165$ 부근에서 검출되었다는 것을 나타낸다.
- [0364] 도 20의 결과는 2mDBTPDBq-VI(약칭)으로부터 유래된 특성을 나타내므로, 혼합물에 함유된 2mDBTPDBq-VI(약칭)을 확인하기 위해 중요한 데이터로 간주될 수 있다.
- [0365] $m/z = 766$ 부근의 생성 이온은 하나의 C 원자와 하나의 N 원자가 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물 중 하나인 구조식(400)로 나타내어진 화합물의 디벤조[f,h]퀴녹살린 고리로부터 이탈된 상태에서 양이온으로 되는 것으로 추정된다. 또한, $m/z = 229$ 부근의 생성 이온은 디벤조[f,h]퀴녹살린과 같은 디아자트리페닐렌일의 양이온인 것으로 추정된다. 더욱이, $m/z = 202$, $m/z = 177$ 및 $m/z = 165$ 부근의 생성 이온도 또한 동시에 검출된다. 그러므로, 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물인 2mDBTPDBq-VI(약칭)이 디벤조[f,h]퀴녹살린 고리를 포함한다는 것을 나타낸다.
- [0366] 또한, 본 발명의 일 실시양태인 2mDBTPDBq-VI(약칭)는 비행 시간 이차 이온 질량 분석계(time-of-flight secondary ion mass spectrometer)(TOF-SIMS)으로 측정되었고; 도 31은 정 이온의 경우에 얻어진 정성 스펙트럼을 나타낸다.
- [0367] TOE-SIMS 5(ION-TOF사(ION-TOF GmbH)제)가 사용되었고, 일차 이온원으로서 Bi_3^{++} 가 사용되었다. 펄스 폭 7 nm 내지 12 nm의 펄스 상으로 일차 이온에 의한 조사를 실시하였다. 조사량은 8.2×10^{10} 이온/ cm^2 내지 6.7×10^{11} 이온/ cm^2 (1×10^{12} 이온/ cm^2 이하)이었고, 가속 전압은 25 keV이었고, 그리고 전류 값은 0.2 pA 이었다. 측정을 위해 사용된 샘플은 2mDBTPDBq-VI(약칭) 분말이었다.
- [0368] 도 31에서 TOF-SIMS(정 이온)에 의한 분석 결과, 본 발명의 일 실시양태에 따라 구조식(400)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물인 2mDBTPDBq-VI(약칭)($m/z = 792.26$)의 생성 이온은 주로 약 $m/z = 176$ 부근에서 검출된다는 것을 나타낸다. 여기서, "부근"이란 표현은 수소 이온이나 동위체(isotope)가 존재하는지 여부에 따라 달라지는 생성 이온 값의 차가 허용된다는 것을 의미한다. 도 31의 결과에 나타난 생성 이온은 도 20에 나타내고 MS 분석(정 이온)에 의해 검출된 2mDBTPDBq-VI(약칭)의 생성 이온과 유사하기 때문에, TOF-SIMS에 의한 측정 결과는 혼합물에 함유된 2mDBTPDBq-VI(약칭)을 확인하기 위해 중요한 데이터로서 간주될 수 있다.
- [0369] [실시예 3]
- [0370] 본 실시예에서는, 도 11을 참고로 하여, 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물인 2-{3-[2,8-비스(비페닐-3-일)디벤조티오펜-4-일]페닐}디벤조[f,h]퀴녹살린(약칭: 2mDBTPDBq-VI)(구조식(400))이 발광층의 일부로 사용되는 발광 소자 1을 설명한다. 본 실시예에서 사용된 재료의 화학식을 하기에 나타낸다.



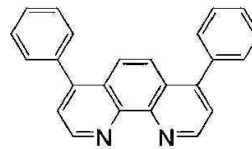
BPAFLP



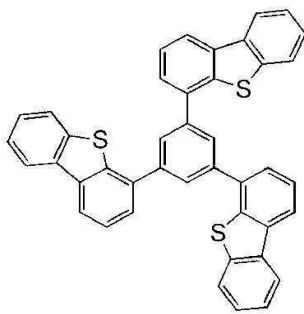
PCBA1BP



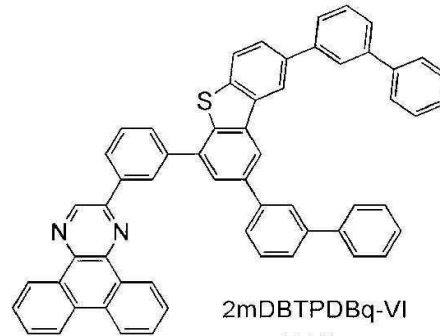
[Ir(tBuppm)₂(acac)]



BPhen



DBT3P-II



(400)

[0371]

[0372]

<발광 소자 1의 제조>

[0373]

먼저, 산화 실리콘을 함유하는 인듐 주석 산화물(ITSO)을 스퍼터링법에 의해 유리 기판(1100) 위에 증착하여 양극으로서 기능하는 제 1 전극(1101)이 형성되었다. 두께는 110 nm이었고, 전극 면적은 2 mm×2 mm이었다.

[0374]

그 다음, 기판(1100) 위에 발광 소자를 형성하기 위한 전처리로서, 기판 표면을 물로 세정하고 200℃에서 1 시간 동안 소성한 후, 370초 동안 UV 오존 처리를 실시하였다.

[0375]

그 후, 약 10⁻⁴ Pa까지 감압된 진공 증착 장치 내부로 기판을 도입하고, 기판을 진공 증착 장치의 가열실에서 170℃에서 30분 동안 진공 소성한 후, 기판(1100)을 약 30 분 동안 방랭하였다.

[0376]

그 다음, 기판(1100)은 제 1 전극(1101)이 형성된 기판(1100)의 표면이 하방이 되도록, 진공 증착 장치에 제공된 홀더에 고정되었다. 본 실시예에서는 EL층(1102)에 포함되는 정공 주입층(1111), 정공 수송층(1112), 발광층(1113), 전자 수송층(1114) 및 전자 주입층(1115)이 진공 증착법에 의해 순차적으로 형성되는 경우에 대해서 설명한다.

[0377]

진공 증착 장치의 압력을 10⁻⁴ Pa까지 감소한 후, 1,3,5-트리(디벤조티오펜-4-일)벤젠(약칭: DBT3P-II) 및 산화 몰리브덴(VI)은 DBT3P-II(약칭) : 산화 몰리브덴의 중량비가 4:2로 되도록 공증착되고, 정공 주입층(1111)은 제 1 전극(1101) 위에 형성되었다. 정공 주입층(1111)의 두께는 40 nm이었다. 공증착은 일부 상이한 물질들이 일부 상이한 증발원으로부터 동시에 증발되는 증착법이다.

[0378]

그 다음, 4-페닐-4'-(9-페닐플루오렌-9-일)트리페닐아민(약칭: BPAFLP)은 20 nm의 두께로 증착되어, 정공 수송층(1112)이 형성되었다.

[0379] 그 다음, 발광층(1113)은 정공 수송층(1112) 위에 형성되었다. 2mDBTPDBq-VI(약칭) : PCBA1BP(약칭) : [Ir(tBuppm)₂(acac)](약칭)의 질량비가 0.8:0.2:0.05로 되도록 하여, 2-{3-[2,8-비스(비페닐-3-일)디벤조티오펜-4-일]페닐}디벤조[f,h]퀴놀살린(약칭: 2mDBTPDBq-VI), 4-페닐-4'-(9-페닐-9H-카르바졸-3-일)트리페닐아민(약칭: PCBA1BP) 및 (아세틸아세토나토)비스(6-tert-부틸-4-페닐피리미디나토)이리듐(III)(약칭: [Ir(tBuppm)₂(acac)])를 공증착하였다. 발광층(1113)의 두께는 40 nm이었다. 이와 같이 하여 발광층(1113)이 형성되었다.

[0380] 그 다음, 2mDBTPDBq-VI(약칭)이 발광층(1113) 위에 10 nm의 두께로 증착되었고, 바소페난트롤린(약칭: Bphen)이 20 nm의 두께로 증착되어, 적층된 구조를 갖는 전자 수송층(1114)이 형성되었다. 또한, 불화 리튬이 전자 수송층(1114) 위에 1 nm의 두께로 증착되어 전자 주입층(1115)이 형성되었다.

[0381] 마지막으로, 알루미늄이 전자 주입층(1115) 위에 200 nm의 두께로 증착되어 음극으로서 작용하는 제 2 전극(1103)을 형성하므로 발광 소자 1이 얻어졌다. 상기 모든 증착 단계에서, 증착은 저항 가열법으로 실시되었다.

[0382] 상술한 바와 같이 얻어진 발광 소자 1의 소자 구조를 하기 표 1에 나타냈다.

표 1

	제 1 전극	정공 주입층	정공 수송층	발광층	전자 수송층		전자 주입층	제 2 전극
발광 소자 1	ITSO (110 nm)	DBT3P-II: MoOx (4:2, 40 nm)	BPAFLP (20 nm)	*1	**1	Bphen (20 nm)	LiF (1nm)	Al (200 nm)

[0384] *1 2mDBTPDBq-VI: PCBA1BP; [Ir(tBuppm)₂(acac)](0.8:0.2:0.05, 40 nm)

[0385] **1 2mDBTPDBq-VI(10 nm)

[0386] 또한, 제조된 발광 소자 1은 대기에 노출되지 않도록 질소 분위기를 함유하는 글로브 박스에서 밀봉되었다(밀봉 재가 소자의 주위에 도포되었고, 밀봉과 동시에 80℃에서 1 시간 동안 열처리를 하였다).

[0387] <발광 소자 1의 동작 특성>

[0388] 제조된 발광 소자 1의 동작 특성을 측정하였다. 측정은 실온(25℃로 유지된 분위기)에서 실시되었다.

[0389] 도 12는 발광 소자 1의 전류 밀도-휘도 특성을 나타내고, 도 13은 발광 소자 1의 전압-휘도 특성을 나타내고, 도 14는 발광 소자 1의 휘도-전류 효율 특성을 나타낸다.

[0390] 도 14는 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물이 호스트 재료로서 발광층의 일부에 사용되는 발광 소자 1가 낮은 소비전력으로 높은 효율을 갖는다는 것을 나타낸다.

[0391] 하기 표 2는 약 1000 cd/m²의 휘도에서 발광 소자 1의 주된 특성의 초기 값을 나타낸다.

표 2

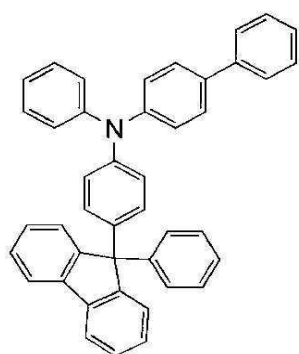
	전압 (V)	전류 (mA)	전류 밀도 (mA/cm ²)	색도 (x,y)	휘도 (cd/m ²)	전류 효율 (cd/A)	전력 효율 (lm/W)	외부 양자 효율(%)
발광 소자 1	3.1	0.068	1.7	(0.42, 0.56)	1100	63	64	18

[0393] 또한 상기 표 2에 나타난 결과로부터, 본 실시예에서 제조된 발광 소자 1은 높은 휘도와 높은 전류 효율을 갖는다는 것을 알 수 있다. 도 15는 0.1 mA/cm²의 전류 밀도로 전류를 발광 소자 1에 흐르게 할 때의 발광 스펙트럼을 나타낸다. 도 15는 발광 소자 1의 발광 스펙트럼이 약 544 nm에서 피크를 갖는 것을 나타내는 데, 이는 발광 스펙트럼이 발광층(1113)에 포함된 [Ir(tBuppm)₂(acac)](약칭)의 발광으로부터 유래된다는 것을 나타낸다.

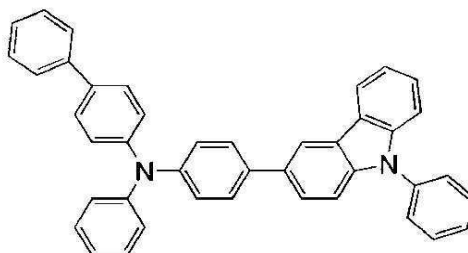
[0394] 그러므로, 2mDBTPDBq-VI(약칭)은 높은 T1 준위를 갖고, 가시광 영역(청색광 이상의 긴 파장)에서 인광을 나타내는 발광 소자의 호스트 재료 또는 캐리어 수송 재료로 사용될 수 있다는 것이 밝혀졌다.

[0395] [실시예 4]

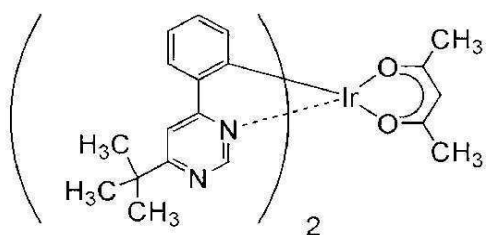
[0396] 본 실시예에서는, 본 발명의 실시형태에 따른 헤테로사이클 화합물인 2-[3'-(디벤조티오펜-4-일)비페닐-3-일] 디벤조[f,h]퀴녹살린(약칭: 2mDBTBPDq-II)(구조식(103))이 발광층의 일부에 사용되는 발광 소자 2; 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물인 2-[3-(2,8-디페닐디벤조티오펜-4-일)페닐]디벤조[f,h]퀴녹살린(약칭: 2mDBTPDq-III)(구조식(113))이 발광층의 일부에 사용되는 발광 소자 3; 및 2-[3-(디벤조티오펜-4-일)페닐]디벤조[f,h]퀴녹살린(약칭: 2mDBTPDq-II)(화학식(600))이 발광층의 일부에 사용되는 비교 발광 소자에 대해서 설명한다. 본 실시예에서의 발광 소자 2, 발광 소자 3 및 비교 발광 소자의 설명에는, 실시예 3에서의 발광 소자 1의 설명에 사용되는 도 11을 사용한다. 본 실시예에서 사용된 재료의 화학식은 하기에 나타낸다.



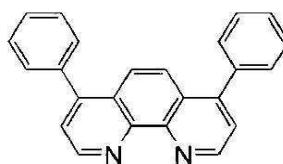
BPAFLP



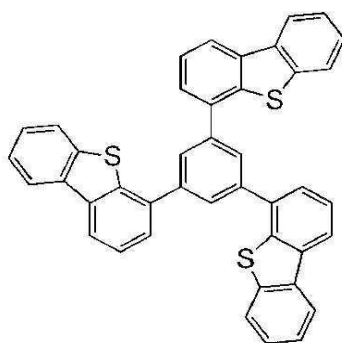
PCBA1BP



[Ir(tBuppm)₂(acac)]

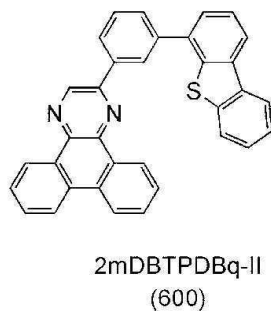
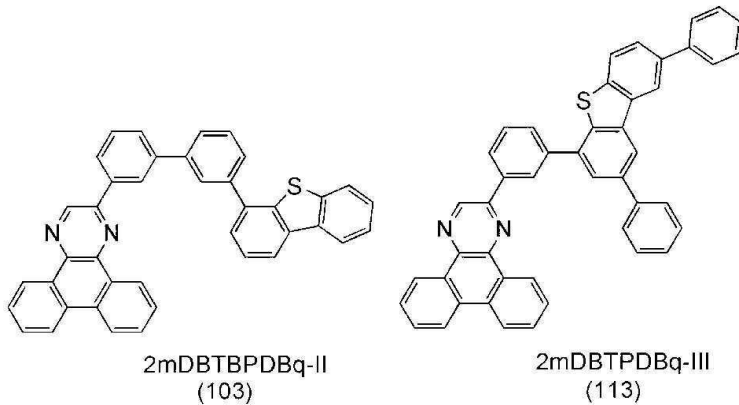


BPhen



DBT3P-II

[0397]



[0399]

[0400]

<발광 소자 2, 발광 소자 3 및 비교 발광 소자의 제조>

[0401]

먼저, 산화 실리콘을 함유하는 인듐 주석 산화물(ITSO)을 스퍼터링법에 의해 유리 기판(1100) 위에 증착하여 양극으로서 기능하는 제 1 전극(1101)이 형성되었다. 두께는 110 nm이었고, 전극 면적은 2 mm×2 mm이었다.

[0402]

그 다음, 기판(1100) 위에 발광 소자를 형성하기 위한 전처리로서, 기판 표면을 물로 세정하고 200℃에서 1 시간 동안 소성한 후, 370초 동안 UV 오존 처리를 실시하였다.

[0403]

그 후, 약 10^{-4} Pa까지 감압된 진공 증착 장치 내부로 기판을 도입하고, 기판을 진공 증착 장치의 가열실에서 170℃에서 30분 동안 진공 소성한 후, 기판(1100)을 약 30 분 동안 방랭하였다.

[0404]

그 다음, 기판(1100)은 제 1 전극(1101)이 형성된 기판(1100)의 표면이 하방이 되도록, 진공 증착 장치에 제공된 홀더에 고정되었다. 본 실시예에서는, EL층(1102)에 포함되는 정공 주입층(1111), 정공 수송층(1112), 발광층(1113), 전자 수송층(1114) 및 전자 주입층(1115)이 진공 증착법에 의해 순차적으로 형성되는 경우에 대해서 설명한다.

[0405]

진공 증착 장치의 압력을 10^{-4} Pa까지 감소한 후, 1,3,5-트리(디벤조티오펜-4-일)벤젠(약칭: DBT3P-II) 및 산화 몰리브덴(VI)은 DBT3P-II(약칭) : 산화 몰리브덴의 중량비가 1:0.5가 되도록 공증착되고, 그에 의해 정공 주입층(1111)이 제 1 전극(1101) 위에 형성되었다. 정공 주입층(1111)의 두께는 40 nm이었다. 공증착은 일부 상이한 물질들이 일부 상이한 증발원으로부터 동시에 증발되는 증착법이다.

[0406]

그 다음, 4-페닐-4'-(9-페닐플루오렌-9-일)트리페닐아민(약칭: BPAFLP)은 20 nm의 두께로 증착되어, 정공 수송층(1112)이 형성되었다. 지금까지의 단계들은 발광 소자 2, 발광 소자 3 및 비교 발광 소자에 공통적이다.

[0407]

그 다음, 발광층(1113)이 정공 수송층(1112) 위에 형성되었다.

[0408]

발광 소자 2에서, 2mDBTBPDq-II(약칭) : PCBA1BP(약칭) : [Ir(tBuppm)₂(acac)](약칭)의 질량비가 0.8:0.2:0.05가 되도록 하여, 2-[3'-(디벤조티오펜-4-일)비페닐-3-일]디벤조[f,h]퀴녹살린(약칭: 2mDBTBPDq-II), 4-페닐-4'-(9-페닐-9H-카르바졸-3-일)트리페닐아민(약칭: PCBA1BP) 및 (아세틸아세토나토)비스(6-tert-부틸-4-페닐피리

미디나토)이리듐(III)(약칭: $[\text{Ir}(\text{tBuppm})_2(\text{acac})]$)를 공증착하였다. 발광층(1113)의 두께는 40 nm이었다. 이와 같이 하여 발광층(1113)이 형성되었다.

[0409] 발광 소자 3에서, 2mDBTPDBq-III(약칭) : PCBA1BP(약칭) : $[\text{Ir}(\text{tBuppm})_2(\text{acac})]$ 의 질량비가 0.8:0.2:0.05로 되도록 하여, 2-[3-(2,8-디페닐디벤조티오펜-4-일)페닐]디벤조[f,h]퀴녹살린(약칭: 2mDBTPDBq-III), PCBA1BP(약칭) 및 $[\text{Ir}(\text{tBuppm})_2(\text{acac})]$ (약칭)를 공증착하였다. 발광층(1113)의 두께는 40 nm이었다. 이와 같이 하여 발광층(1113)이 형성되었다.

[0410] 비교 발광 소자에서, 2mDBTPDBq-II(약칭) : PCBA1BP(약칭) : $[\text{Ir}(\text{tBuppm})_2(\text{acac})]$ 의 질량비가 0.8:0.2:0.05로 되도록 하여, 2-[3-(디벤조티오펜-4-일)페닐]디벤조[f,h]퀴녹살린(약칭: 2mDBTPDBq-II), PCBA1BP(약칭) 및 $[\text{Ir}(\text{tBuppm})_2(\text{acac})]$ (약칭)를 공증착하였다. 발광층(1113)의 두께는 40 nm이었다. 이와 같이 하여 발광층(1113)이 형성되었다.

[0411] 그 다음, 발광 소자 2, 발광 소자 3 및 비교 발광 소자에서, 2mDBTPDBq-II(약칭)이 발광층(1113) 위에 10 nm의 두께로 증착되었고, 그리고 바소페난트롤린(약칭: Bphen)이 20 nm의 두께로 증착되어, 적층된 구조를 갖는 전자 수송층(1114)이 형성되었다. 또한, 불화 리튬이 전자 수송층(1114) 위에 1 nm의 두께로 증착되어 전자 주입층(1115)이 형성되었다.

[0412] 마지막으로, 알루미늄이 전자 주입층(1115) 위에 200 nm의 두께로 증착되어 음극으로서 작용하는 제 2 전극(1103)을 형성하므로 발광 소자 2, 발광 소자 3 및 비교 발광 소자가 얻어졌다. 상기 모든 증착 단계에서, 증착은 저항 가열법으로 실시되었다.

[0413] 발광 소자 2, 발광 소자 3 및 비교 발광 소자 각각에서, 발광층(1113)의 형성 후 단계들은 유사한 방법으로 실시되었다.

[0414] 하기 표 3은 상술한 바와 같이 얻어진 발광 소자 2, 발광 소자 3 및 비교 발광 소자를 나타낸다.

표 3

	제 1 전극	정공 주입층	정공 수송층	발광층	전자 수송층		전자 주입층	제 2 전극
발광 소자 2	ITSO (110 nm)	DBT3P-II: MoOx (1:0.5, 40 nm)	BPAFLP (20 nm)	*2	**2	Bphen (20 nm)	LiF(1nm)	Al(200 nm)
발광 소자 3	ITSO (110 nm)	DBT3P-II: MoOx (1:0.5, 40 nm)	BPAFLP (20 nm)	*3	**3	Bphen (20 nm)	LiF(1nm)	Al(200 nm)
비교 발광 소자	ITSO (110 nm)	DBT3P-II: MoOx (1:0.5, 40 nm)	BPAFLP (20 nm)	*0	**0	Bphen (20 nm)	LiF(1nm)	Al(200 nm)

[0416] *2 2mDBTPDBq-II: PCBA1BP: $[\text{Ir}(\text{tBuppm})_2(\text{acac})]$ (0.8:0.2:0.05, 40 nm)

[0417] **2 2mDBTPDBq-II (10 nm)

[0418] *3 2mDBTPDBq-III: PCBA1BP: $[\text{Ir}(\text{tBuppm})_2(\text{acac})]$ (0.8:0.2:0.05, 40 nm)

[0419] **3 2mDBTPDBq-III (10 nm)

[0420] *0 2mDBTPDBq-II: PCBA1BP: $[\text{Ir}(\text{tBuppm})_2(\text{acac})]$ (0.8:0.2:0.05, 40 nm)

[0421] **0 2mDBTPDBq-II (10 nm)

[0422] 또한, 제조된 발광 소자 2, 발광 소자 3 및 비교 발광 소자는 각각 대기에 노출되지 않도록 질소 분위기를 함유하는 글로브 박스에서 밀봉되었다(밀봉재가 각 소자의 주위에 도포되었고, 밀봉과 동시에 80℃에서 1 시간 동안 열처리를 하였다).

[0423] <발광 소자 2, 발광 소자 3 및 비교 발광 소자의 내열성>

[0424] 내열성 시험은 제조된 발광 소자 2, 발광 소자 3 및 비교 발광 소자에 대해서 실시되었다. 평가는 각 발광 소자가 80℃의 항온조에서 소정 기간 동안 보존되도록 하여 실시되었고, 그 다음 전류 효율이 측정되었다. 전류 효율은, 발광 소자를 항온조에서 꺼낸 후, 실온(25℃로 유지되는 분위기)에서 측정되었다.

[0425] 도 16 및 도 17은 80℃에서 1090 시간 동안 보존된 발광 소자의 전류 효율을 측정한 결과를 나타낸다. 도 16은 발광 소자 2(2mDBTPDBq-II; 2개의 벤젠 고리 함유) 및 비교 발광 소자(2mDBTPDBq-II; 1개의 벤젠 고리 함유) 사이의 비교를 나타낸다. 도 17은 발광 소자 3(2mDBTPDBq-III; 3개의 벤젠 고리 함유)와 비교 발광 소자(2mDBTPDBq-II; 한 개의 벤젠 고리 함유) 사이의 비교를 나타낸다.

[0426] 이들 측정 결과로부터 알 수 있는 바와 같이, 발광 소자 2 및 발광 소자 3의 전류 효율 저하는 80℃에서 1000 시간 이상 보존된 후에도 매우 적다. 반면, 비교 발광 소자의 전류 효율은 크게 저하되는 데, 이는 전류 누설을 시사하는 것이다.

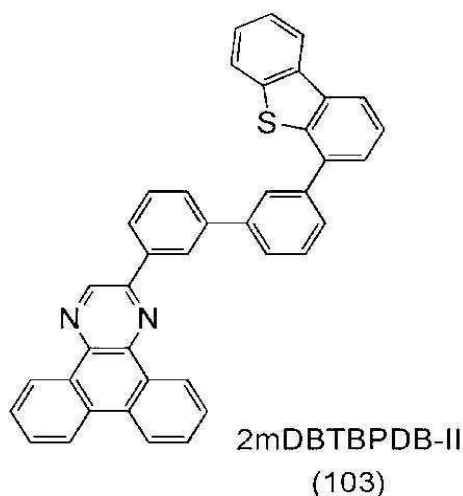
[0427] 도 18은 본 실시예에서 보존 시험 결과를 나타낸다. 도 18에서, 수평 축은 80℃에서의 보존 시간을 나타내고, 수직 축은 1000 [cd/m²]의 휘도에서 각 소자에 대한 전류 효율을, 보존시험 전의 전류 효율을 100%로 하여 정규화한 값을 나타낸다. 이들 결과로부터, 고온 보존 시험에서, 하나의 벤젠 고리만을 함유하는 2mDBTPDBq-II를 포함하는 비교 발광 소자의 거동이 각각 2 이상의 벤젠 고리를 함유하는 발광 소자 2 및 3의 거동과 매우 다르다는 것을 알 수 있다. 즉, 비교 발광 소자의 특성은 크게 저하되는 반면, 발광 소자 2 및 3의 특성은 거의 저하되지 않는다.

[0428] 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물과 같이 하나의 디벤조[f,h]퀴놀살린 고리, 정공 수송성 골격을 갖는 하나의 고리 및 벤젠 고리를 포함하는 화합물은 진공 증착에 의해 균질한 막이 형성될 수 있으므로, 진공 증착에 의한 형성에 적합하다. 그러나, 유리 전이 온도(Tg)가 관측되지 않기 때문에, 화합물 중 어느 부분의 골격이 내열성에 효과가 있는지는 알려지지 않았다. 즉, 벤젠 고리 수의 차이에 따라 Tg가 얼마나 달라지는지를 결정하는 것은 지금까지 어려웠다. 그러나, 본 발명에서 설명된 바와 같이, 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물의 구조의 경우에, 하나의 벤젠 고리를 갖는 화합물의 막 및 2 이상의 벤젠 고리를 갖는 화합물의 막의 내열성에 있어서 분명한 차이가 밝혀졌다. 그러므로, 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물은 벤젠 고리의 독특한 수를 포함함으로써 종래의 헤테로사이클 화합물보다 더 높은 내열성을 갖는다.

[0429] (참고 합성 실시예 1)

[0430] 본 실시예에서는, 실시예 4에서 사용된 하기 구조식(103)으로 나타낸 2-[3'-(디벤조티오펜-4-일)비페닐-3-일]디벤조[f,h]퀴놀살린(약칭: 2mDBTPDBq-II)을 합성하는 방법의 일 예를 설명한다.

[0431] [2mDBTPDBq-II]

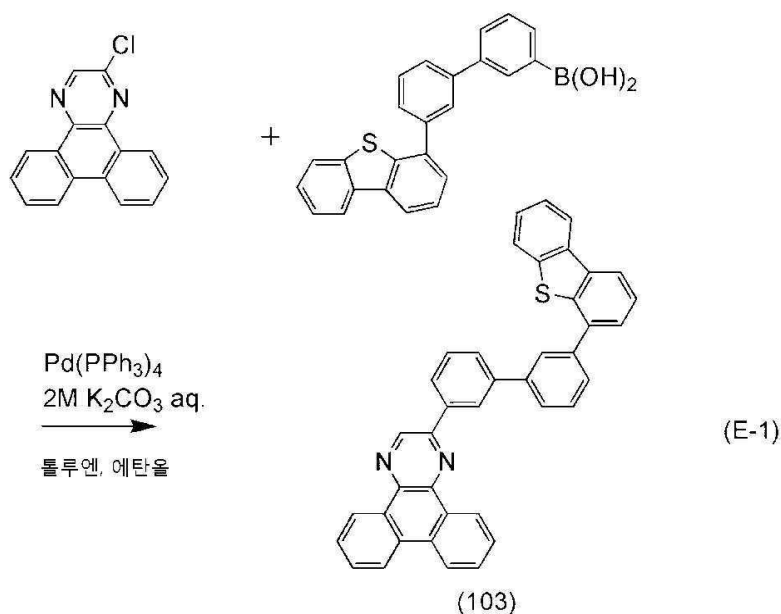


[0432]

[0433] <2mDBTPDBq-II(약칭)의 합성>

[0434] 2mDBTBPDBq-II(약칭)의 합성 스킴은 (E-1)로 나타낸다.

[0435] [합성 스킴(E-1)]



[0436]

[0437] 200 mL의 3구 플라스크에, 0.83 g(3.2 mmol)의 2-클로로디벤조[f,h]퀴녹살린, 1.3 g(3.5 mmol)의 3'-(디벤조티오펜-4-일)-3-비페닐 보론산, 40 mL의 톨루엔, 4 mL의 에탄올 및 5 mL의 2M 탄산 칼륨 수용액을 넣었다. 이 혼합물을 감압 하에서 교반에 의해 탈기한 후, 플라스크 내의 공기를 질소로 치환시켰다. 이 혼합물에 80 mg(70 μ mol)의 테트라키스(트리페닐포스핀)팔라듐(0)을 첨가하였다. 이 혼합물을 질소 기류 하에 80℃에서 16 시간 동안 교반하였다. 소정의 시간이 경과한 후, 침전된 고체를 여과 분리하여 황색 고체를 얻었다. 에탄올을 이 고체에 첨가한 후, 초음파를 조사시켰다. 이 혼합물을 흡입 여과하여 고체를 얻었다. 얻어진 고체를 톨루엔에 용해하고, 톨루엔 용액을 알루미늄 및 셀라이트(Celite)(Wako Pure Chemical Industries, Ltd., Catalog No.531-16855)를 통해 흡입 여과한 후, 여과액을 농축하여 황색 고체를 얻었다. 또한, 이 고체를 톨루엔으로 재결정하여 57%의 수율로 황색 분말 1.1 g을 얻었다.

[0438] 트레인 승화법에 의해, 얻어진 황색 분말 1.1 g을 정제하였다. 정제에 있어서, 15 mL/min의 아르곤 가스 유속으로 300℃ 및 6.2 Pa의 압력 하에서 황색 분말을 가열하였다. 정제를 통하여 73%의 수율로 목적하는 황색 분말 0.80 g을 얻었다.

[0439] 이 화합물은 핵자기 공명(NMR) 분광법에 의해 합성의 목적물인 2mDBTBPDBq-II(약칭)으로 확인되었다.

[0440] 얻어진 물질의 ^1H NMR 데이터는 다음과 같다. ^1H NMR (CDCl_3 , 300 MHz): δ = 7.46-7.50(m, 2H), 7.61(d, J = 4.5 Hz, 2H), 7.67-7.89(m, 10H), 8.17-8.24(m, 3H), 8.35(d, J = 8.1 Hz, 1H), 8.65-8.70(m, 3H), 9.24-9.27(m, 1H), 9.44-9.48(m, 2H).

[0441] 그 다음, 참고 합성 실시예 1에서 얻어진 2mDBTBPDBq-II(약칭)을 액체 크로마토그래피 질량 분석법(LC/MS)에 의해 분석한 결과를 하기에 나타낸다.

[0442] LC/MS 분석은 Acquity UPLC(Waters Corporation) 및 Xevo G2 ToF MS(Waters Corporation)으로 실시되었다.

[0443] MS 분석에서, 전자 분무 이온화법(ESI)에 의해 이온화를 실시하였다. 이 때, 캐필러리 전압과 샘플 콘 전압은 각각 3.0 kV 및 30 V으로 설정되었고, 그리고 검출은 포지티브 모드로 실시되었다.

[0444] 상술한 조건 하에서 이온화된 성분은 충돌실에서 아르곤 가스와 충돌하여 복수의 생성 이온으로 분해하였다. 아르곤에 의한 충돌을 위한 에너지(충돌 에너지)는 50 eV이었다. 측정을 위한 질량 범위는 m/z = 100 내지 1200이었다.

[0445] 도 21은 측정 결과를 나타낸다. 도 21의 결과는 본 발명의 일 실시양태에 따라 구조식(103)으로 나타내어진 테로사이클 화합물로서 2mDBTBPDBq-II(약칭)의 생성 이온이 주로 m/z = 347, m/z = 229 부근에서 검출되었다는

것을 나타낸다.

[0446] 도 21의 결과는 2mDBTPDBq-II(약칭)으로부터 유래된 특성을 나타내므로, 혼합물에 함유된 2mDBTPDBq-II(약칭)을 확인하기 위해 중요한 데이터로 간주될 수 있다.

[0447] $m/z = 538$ 부근의 생성 이온은, 하나의 C 원자와 하나의 N 원자가 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물 중 하나인 구조식(103)으로 나타내어진 화합물의 디벤조[f,h]퀴녹살린 고리로부터 이탈된 상태에서 양이온으로 되는 것으로 추정된다. 또한, $m/z = 229$ 부근의 생성 이온은 디벤조[f,h]퀴녹살린과 같은 디아자트리페닐렌일기의 양이온인 것으로 추정된다. 더욱이, $m/z = 202$, $m/z = 177$ 및 $m/z = 165$ 부근의 생성 이온도 또한 동시에 검출된다. 그러므로, 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물인 2mDBTPDBq-II(약칭)이 디벤조[f,h]퀴녹살린 고리를 포함한다는 것을 시사한다.

[0448] 또한, 본 발명의 일 실시양태인 2mDBTPDBq-II(약칭)는 비행 시간 이차 이온 질량 분석계(TOF-SIMS)로 측정되었고; 도 32는 정 이온의 경우에 얻어진 정성 스펙트럼을 나타낸다.

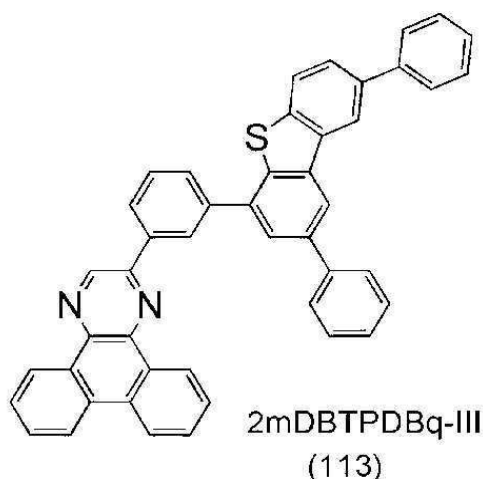
[0449] TOE-SIM 5(ION-TOF 사제)가 사용되었고, 일차 이온원으로서 Bi_3^{++} 가 사용되었다. 펄스 폭 7 nm 내지 12 nm의 펄스 상으로 일차 이온에 의한 조사를 실시하였다. 조사량은 8.2×10^{10} 이온/ cm^2 내지 6.7×10^{11} 이온/ cm^2 (1×10^{12} 이온/ cm^2 이하)이었고, 가속 전압은 25 keV이었고 및 전류 값은 0.2 pA 이었다. 측정을 위해 사용된 샘플은 2mDBTPDBq-II(약칭) 분말이었다.

[0450] 도 32에서 TOF-SIMS(정 이온)에 의한 분석 결과, 본 발명의 일 실시양태에 따라 구조식(103)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물인 2mDBTPDBq-II(약칭)($m/z = 564.17$)의 생성 이온은, 주로 약 $m/z = 565$, $m/z = 201$ 및 $m/z = 176$ 부근에서 검출된다는 것을 나타낸다. 여기서, "부근"이란 표현은 수소 이온이나 동위체(isotope)가 존재하는지 여부에 따라 달라지는 생성 이온 값의 차가 허용된다는 것을 의미한다. 도 32의 결과에 나타난 생성 이온이 도 21에 나타내고 MS 분석(정 이온)에 의해 검출된 2mDBTPDBq-II(약칭)의 생성 이온과 유사하기 때문에, TOF-SIMS에 의한 측정 결과는 또한 혼합물에 함유된 2mDBTPDBq-II(약칭)을 확인하기 위해 중요한 데이터로서 간주될 수 있다.

[0451] (참고 합성 실시예 2)

[0452] 본 실시예에서는, 실시예 4에서 사용된 하기 구조식(113)으로 나타낸 2-[3-(2,8-디페닐디벤조티오펜-4-일)페닐]디벤조[f,h]퀴녹살린(약칭: 2mDBTPDBq-III)을 합성하는 방법의 일 예를 설명한다.

[0453] [2mDBTPDBq-III]

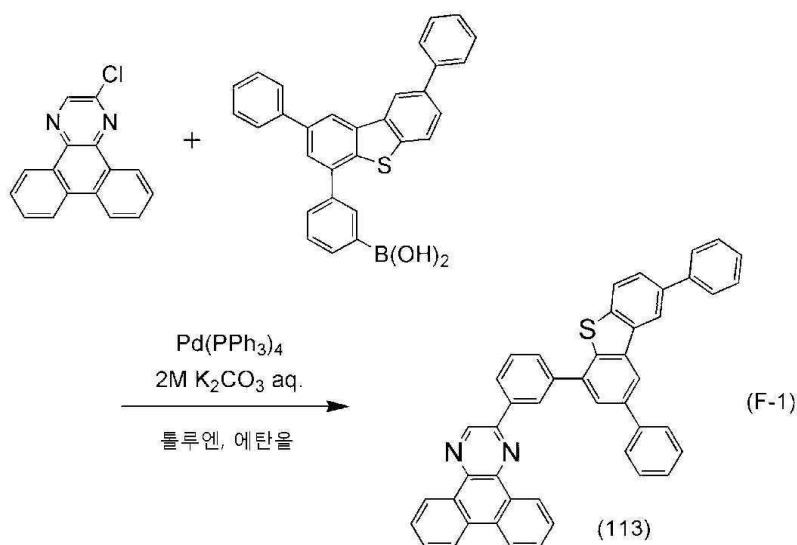


[0454]

[0455] <2mDBTPDBq-III(약칭)의 합성>

[0456] 2mDBTPDBq-III(약칭)의 합성 스킴은 (F-1)으로 나타낸다.

[0457] [합성 스킴(F-1)]



[0458]

[0459] 100 mL의 3구 플라스크에, 0.40 g(1.5 mmol)의 2-클로로디벤조[f,h]퀴놀살린, 0.68 g(1.5 mmol)의 3-(2,8-디페닐디벤조티오펜-4-일)페닐 보론산, 15 mL의 톨루엔, 2.0 mL의 에탄올 및 1.5 mL의 2M 탄산 칼륨 수용액을 넣었다. 이 혼합물을 감압 하에서 교반에 의해 탈기한 후, 플라스크 내의 공기를 질소로 치환시켰다. 이 혼합물에 51 mg(43 μ mol)의 테트라키스(트리페닐포스핀)팔라듐(0)을 첨가하였다. 이 혼합물을 질소 기류 하에 80℃에서 4 시간 동안 교반하였다. 소정의 시간이 경과한 후, 상기 혼합물에 물을 첨가하고, 톨루엔으로 수층으로부터 유기 물질을 추출하였다. 추출된 용액과 유기층을 혼합하고 포화 식염수로 세정한 후, 황산 마그네슘으로 건조하였다. 얻어진 혼합물을 자연 여과시킨 후, 여과액을 농축하여 고체를 얻었다. 얻어진 고체를 톨루엔에 용해하고, 톨루엔 용액을 알루미나, Florisil(Wako Pure Chemical Industries, Ltd., Catalog No. 540-00135) 및 Celite(Wako Pure Chemical Industries, Ltd., Catalog No. 531-16855)를 통해 흡입 여과한 후, 얻어진 여과액을 농축하여 고체를 얻었다. 얻어진 고체를 톨루엔으로 세정하고, 메탄올을 이 고체에 첨가한 후, 메탄올 현탁액에 초음파를 조사하였다. 고체를 흡입 여과에 의해 회수하여 수율 61%로 목적하는 백색 분말 0.60 g을 얻었다.

[0460] 트레인 승화법에 의해, 얻어진 백색 분말 0.59 g을 정제하였다. 정제에 있어서, 5 mL/min의 아르곤 가스 유속으로 330℃ 및 2.7 Pa의 압력 하에서 백색 분말을 가열하였다. 정제를 통하여 90%의 수율로 목적하는 백색 분말 0.54 g을 얻었다.

[0461] 이 화합물은 핵자기 공명(NMR) 분광법에 의해 합성의 목적물인 2mDBTPDBq-III(약칭)으로 확인되었다.

[0462] 얻어진 물질의 ^1H NMR 데이터는 다음과 같다. ^1H NMR(CDCl_3 , 300 MHz): δ = 7.37-7.55 (m, 6H), 7.73-7.84(m, 10H), 7.90-7.98(m, 3H), 8.44-8.48(m, 3H), 8.65(dd, J = 7.8 Hz, 1.5 Hz, 2H), 8.84-8.85(m, 1H), 9.27(dd, J = 7.2 Hz, 2.7 Hz, 1H), 9.46(dd, J = 7.8 Hz, 2.1 Hz, 1H), 9.51(s, 1H).

[0463] 그 다음, 참고 합성 실시예 2에서 얻어진 2mDBTPDBq-III(약칭)을 액체 크로마토그래피 질량 분석법(LC/MS)에 의해 분석한 결과를 하기에 나타낸다.

[0464] LC/MS 분석은 Acquity UPLC(Waters Corporation) 및 Xevo G2 ToF MS(Waters Corporation)으로 실시되었다.

[0465] MS 분석에서, 전자 분무 이온화법(ESI)에 의해 이온화를 실시하였다. 이 때, 캐필러리 전압과 샘플 콘 전압은 각각 3.0 kV 및 30 V으로 설정되었고, 그리고 검출은 포지티브 모드로 실시되었다.

[0466] 상술한 조건 하에서 이온화된 성분은 충돌실에서 아르곤 가스와 충돌하여 복수의 생성 이온으로 분해하였다. 아르곤에 의한 충돌을 위한 에너지(충돌 에너지)는 50 eV 및 70 eV이었다. 측정을 위한 질량 범위는 m/z = 100 내지 1200이었다.

[0467] 도 22(A) 및 도 22(B)는 측정 결과를 나타낸다. 도 22(A)는 50 eV의 경우를 나타내고, 도 22(B)는 70 eV의 경우를 나타낸다. 도 22(B)의 결과는 본 발명의 일 실시양태에 따라 구조식(113)으로 나타내어진 헤테로사이클

화합물로서 2mDBTPDBq-III(약칭)의 생성 이온이 주로 $m/z = 229$, $m/z = 202$ 및 $m/z = 177$ 부근에서 검출되었다는 것을 나타낸다.

[0468] 도 22(B)의 결과는 2mDBTPDBq-III(약칭)으로부터 유래된 특성을 나타내므로, 혼합물에 함유된 2mDBTPDBq-III(약칭)을 확인하기 위해 중요한 데이터로 간주될 수 있다.

[0469] 도 22(A)에서 $m/z = 614$ 부근의 생성 이온은, 하나의 C 원자와 하나의 N 원자가 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물 중 하나인 구조식(113)로 나타내어진 화합물의 디벤조[f,h]퀴녹살린 고리로부터 이탈된 상태에서 양이온으로 되는 것으로 추정된다. 또한, $m/z = 229$ 부근의 생성 이온은 디벤조[f,h]퀴녹살린과 같은 디아자트리페닐렌기의 양이온인 것으로 추정된다. 더욱이, $m/z = 202$, $m/z = 177$ 및 $m/z = 165$ 부근의 생성 이온도 또한 동시에 검출된다. 그러므로, 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물인 2mDBTPDBq-III(약칭)이 디벤조[f,h]퀴녹살린 고리를 포함한다는 것을 시사한다.

[0470] 또한, 본 발명의 일 실시양태인 2mDBTPDBq-III(약칭)는 비행 시간 이차 이온 질량 분석계(TOF-SIMS)로 측정되었고; 도 33은 정 이온의 경우에 얻어진 정성 스펙트럼을 나타낸다.

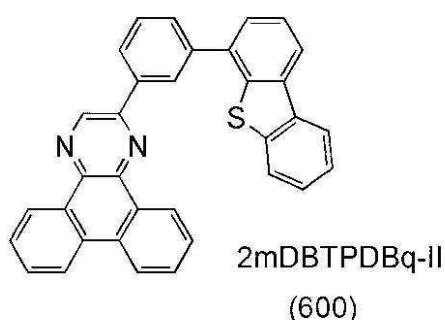
[0471] TOE-SIMS 5(ION-TOF 사제)가 사용되었고, 일차 이온원으로서 Bi_3^{++} 가 사용되었다. 펄스 폭 7 nm 내지 12 nm의 펄스 상으로 일차 이온에 의한 조사를 실시하였다. 조사량은 8.2×10^{10} 이온/ cm^2 내지 6.7×10^{11} 이온/ cm^2 (1×10^{12} 이온/ cm^2 이하)이었고, 가속 전압은 25 keV이었으며, 그리고 전류 값은 0.2 pA이었다. 측정을 위해 사용된 샘플은 2mDBTPDBq-III(약칭) 분말이었다.

[0472] 도 33에서 TOF-SIMS(정 이온)에 의한 분석 결과, 본 발명의 일 실시양태에 따라 구조식(113)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물인 2mDBTPDBq-III(약칭) ($m/z = 640.2$)의 생성 이온은 주로 약 $m/z = 176$ 부근에서 검출된다는 것을 나타낸다. 여기서, "부근"이란 표현은 수소 이온이나 동위체(isotope)가 존재하는지 여부에 따라 달라지는 생성 이온 값의 차가 허용된다는 것을 의미한다. 도 33의 결과에 나타난 생성 이온이 도 22(A) 및 도 22(B)에 나타내고 MS 분석(정 이온)에 의해 검출된 2mDBTPDBq-III(약칭)의 생성 이온과 유사하기 때문에, TOF-SIMS에 의한 측정 결과는 혼합물에 함유된 2mDBTPDBq-III(약칭)을 확인하기 위해 중요한 데이터로서 간주될 수 있다.

[0473] (참고 합성 실시예 3)

[0474] 본 실시예에서는, 하기 화학식(600)으로 나타낸 2-[3-(디벤조티오펜-4-일)페닐] 디벤조[f,h]퀴녹살린(약칭: 2mDBTPDBq-II)을 합성하는 방법의 일 예를 설명한다.

[0475] [2mDBTPDBq-II]

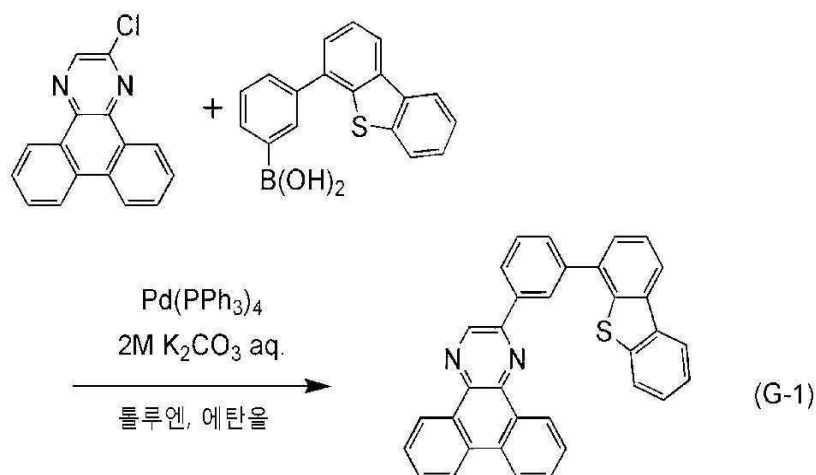


[0476]

[0477] <2mDBTPDBq-II(약칭)의 합성>

[0478] 2mDBTPDBq-II(약칭)의 합성 스킴은 (G-1)으로 나타낸다.

[0479] [합성 스킴(G-1)]



[0480]

[0481] 2 L의 3구 플라스크에, 5.3 g(20 mmol)의 2-클로로디벤조[f,h]퀴녹살린, 6.1 g(20 mmol)의 3-(디벤조티오펜-4-일)페닐 보론산, 460 mg(0.4 mmol)의 테트라키스(트리페닐포스핀)팔라듐(0), 300 mL의 톨루엔, 20 mL의 에탄올 및 20 mL의 2M 탄산 칼륨 수용액을 넣었다. 이 혼합물을 감압 하에서 교반에 의해 탈기 한 후, 플라스크 내의 공기를 질소로 치환시켰다. 이 혼합물을 질소 기류 하에 100℃에서 7.5 시간 동안 교반하였다. 실온으로 냉각 한 후, 얻어진 혼합물을 여과하여 백색 잔류물을 얻었다. 얻어진 잔류물을 물과 에탄올로 차례로 세정한 후, 건조하였다. 얻어진 고체를 뜨거운 톨루엔 약 600 mL에 용해한 후, Celite(Wako Pure Chemical Industries, Ltd., Catalog No. 531-16855) 및 Florisil(Wako Pure Chemical Industries, Ltd., Catalog No. 540-00135)를 통해 흡입 여과하여 무색 투명한 여과액을 얻었다. 얻어진 여과액을 농축한 후 실리카겔 칼럼 크로마토그래피로 정제하였다. 전개 용매로서 뜨거운 톨루엔을 사용하여 크로마토그래피를 실시하였다. 여기에서 얻어진 고체에 아세톤과 에탄올을 첨가한 후, 초음파를 조사시켰다. 그 다음, 생성된 현탁 고체를 여과하여 얻어진 고체를 건조하여 80% 수율로 목적하는 백색 분말 7.85 g을 얻었다.

[0482] 상기에서 생성된 물질은 뜨거운 톨루엔에 비교적 용해성이 있으나, 냉각될 때 침전되기 쉬운 물질이다. 또한, 이 물질은 아세톤 및 에탄올과 같은 기타 유기 용매에 잘 용해되지 않는다. 그러므로, 이들의 용해도 차를 이용하면 상기와 같이 단순한 방법에 의해 고수율로 합성이 가능하였다. 구체적으로는, 반응이 종결된 후, 혼합물은 실온까지 냉각되고, 침전된 고체를 여과 수집하여 대부분의 불순물은 쉽게 제거될 수 있었다. 또한, 전개 용매로서 뜨거운 톨루엔으로 칼럼 크로마토그래피 함으로써 침전되기 쉬운 생성 물질은 쉽게 정제될 수 있었다.

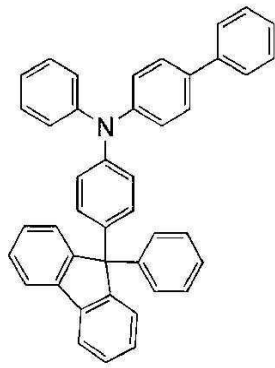
[0483] 트레인 승화법에 의해, 얻어진 백색 분말 4.0 g을 정제하였다. 정제에 있어서, 5 mL/min의 아르곤 가스 유속으로 300℃ 및 5.0 Pa의 압력 하에서 백색 분말을 가열하였다. 정제를 통하여 88%의 수율로 목적하는 백색 분말 3.5 g을 얻었다.

[0484] 이 화합물은 핵자기 공명(NMR) 분광법에 의해 합성의 목적물인 2mDBTPDBq-II(약칭)으로 확인되었다.

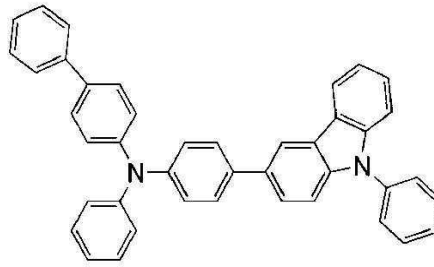
[0485] 얻어진 물질의 ¹H NMR 데이터는 다음과 같다. ¹H NMR (CDCl₃, 300 MHz): δ (ppm) = 7.45-7.52(m, 2H), 7.59-7.65(m, 2H), 7.71-7.91(m, 7H), 8.20-8.25(m, 2H), 8.41(d, J = 7.8 Hz, 1H), 8.65(d, J = 7.5 Hz, 2H), 8.77-8.78(m, 1H), 9.23(dd, J = 7.2 Hz, 1.5 Hz, 1H), 9.42(dd, J = 7.8 Hz, 1.5 Hz, 1H), 9.48(s, 1H).

[0486] [실시에 5]

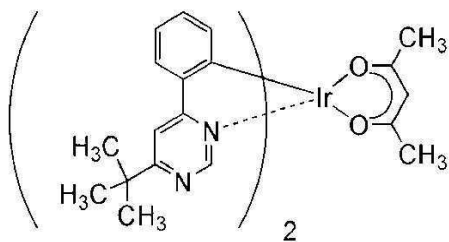
[0487] 본 실시예에서는, 실시예 3에서 발광 소자 1의 설명에 사용된 도 11을 참고로, 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물인 2-{3-[3-(2,8-디페닐디벤조티오펜-4-일)페닐]페닐}디벤조[f,h]퀴녹살린(약칭: 2mDBTPDBq-III)(구조식(418))이 발광층의 일부로 사용되는 발광 소자 4에 대해서 설명한다. 본 실시예에서 사용된 재료의 화학식은 다음과 같다.



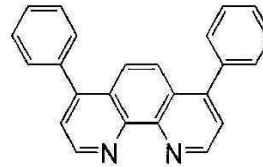
BPAFLP



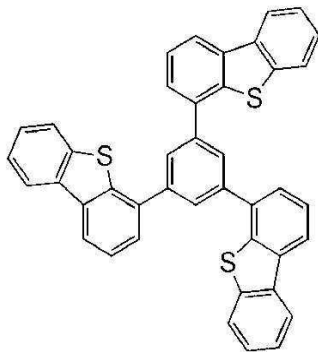
PCBA1BP



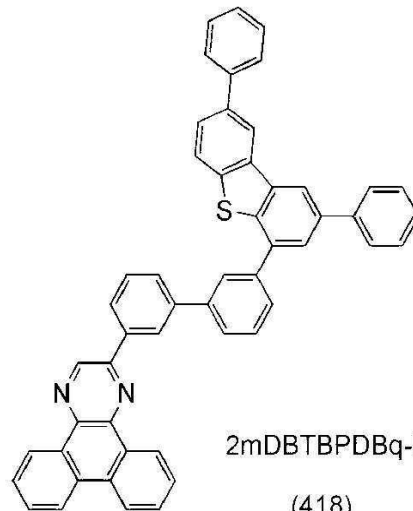
[Ir(tBuppm)₂(acac)]



BPhen



DBT3P-II



2mDBTBPD Bq-III
(418)

[0488]

[0489] <발광 소자 4의 제조>

[0490] 먼저, 산화 실리콘을 함유하는 인듐 주석 산화물(ITSO)을 스퍼터링법에 의해 유리 기판(1100) 위에 증착하여 양극으로서 기능하는 제 1 전극(1101)이 형성되었다. 두께는 110 nm이었고, 전극 면적은 2 mm×2 mm이었다.

[0491] 그 다음, 기판(1100) 위에 발광 소자를 형성하기 위한 전처리로서, 기판 표면을 물로 세정하고 200℃에서 1 시간 동안 소성한 후, 370초 동안 UV 오존 처리를 실시하였다.

[0492] 그 후, 약 10⁻⁴ Pa까지 감압된 진공 증착 장치 내부로 기판을 도입하고, 기판을 진공 증착 장치의 가열실에서 170℃에서 30분 동안 진공 소성한 후, 기판(1100)을 약 30 분 동안 방랭하였다.

[0493] 그 다음, 기판(1100)은 제 1 전극(1101)이 형성된 기판(1100)의 표면이 하방이 되도록, 진공 증착 장치에 제공된 홀더에 고정되었다. 본 실시예에서는, EL층(1102)에 포함되는 정공 주입층(1111), 정공 수송층(1112), 발광층(1113), 전자 수송층(1114) 및 전자 주입층(1115)이 진공 증착법에 의해 순차적으로 형성되는 경우에 대해서 설명한다.

[0494] 진공 증착 장치의 압력을 10⁻⁴ Pa까지 감소한 후, 1,3,5-트리(디벤조티오펜-4-일)벤젠(약칭: DBT3P-II) 및 산화

몰리브덴(VI)은 DBT3P-II(약칭) : 산화 몰리브덴의 중량비가 4:2로 되도록 공증착되어, 정공 주입층(1111)이 제 1 전극(1101) 위에 형성되었다. 정공 주입층(1111)의 두께는 40 nm이었다. 공증착은 일부 상이한 물질들이 일부 상이한 증발원으로부터 동시에 증발되는 증착법이다.

[0495] 그 다음, 4-페닐-4'-(9-페닐플루오렌-9-일)트리페닐아민(약칭: BPAFLP)은 20 nm의 두께로 증착되어, 정공 수송층(1112)이 형성되었다.

[0496] 그 다음, 발광층(1113)은 정공 수송층(1112) 위에 형성되었다. 2mDBTBPDq-III(약칭) : PCBA1BP(약칭) : [Ir(tBuppm)₂(acac)](약칭)의 질량비가 0.8:0.2:0.05로 되도록 하여, 2-{3-[3-(2,8-디페닐디벤조티오펜-4-일)페닐]페닐}디벤조[f,h]퀴놀살린(약칭: 2mDBTBPDq-III), 4-페닐-4'-(9-페닐-9H-카르바졸-3-일)트리페닐아민(약칭: PCBA1BP) 및 (아세틸아세토나토)비스(6-tert-부틸-4-페닐피리미디나토)이리듐(III)(약칭: [Ir(tBuppm)₂(acac)])를 공증착하였다. 발광층(1113)의 두께는 40 nm이었다. 이와 같이 하여 발광층(1113)이 형성되었다.

[0497] 그 다음, 2mDBTBPDq-III(약칭)이 발광층(1113) 위에 10 nm의 두께로 증착되었고, 그리고 바소페난트롤린(약칭: Bphen)이 20 nm의 두께로 증착되어, 적층된 구조를 갖는 전자 수송층(1114)이 형성되었다. 또한, 불화 리튬이 전자 수송층(1114) 위에 1 nm의 두께로 증착되어 전자 주입층(1115)이 형성되었다.

[0498] 마지막으로, 알루미늄이 전자 주입층(1115) 위에 200 nm의 두께로 증착되어 음극으로서 작용하는 제 2 전극(1103)을 형성하므로 발광 소자 4가 얻어졌다. 상기 모든 증착 단계에서, 증착은 저항 가열법으로 실시되었다.

[0499] 상술한 바와 같이 얻어진 발광 소자 4의 소자 구조를 하기 표 4에 나타냈다.

표 4

[0500]

	제 1 전극	정공 주입층	정공 수송층	발광층	전자 수송층		전자 주입층	제 2 전극
발광 소자 4	ITSO (110 nm)	DBT3P-II: MoOx (4:2, 40 nm)	BPAFLP (20 nm)	*4	**4	Bphen (20 nm)	LiF(1nm)	Al(200 nm)

[0501] *4 2mDBTBPDq-III: PCBA1BP; [Ir(tBuppm)₂(acac)](0.8:0.2:0.05, 40 nm)

[0502] **4 2mDBTBPDq-III (10 nm)

[0503] 또한, 제조된 발광 소자 4는 대기에 노출되지 않도록 질소 분위기를 함유하는 글로브 박스에서 밀봉되었다(밀봉재가 소자의 주위에 도포되었고, 밀봉과 동시에 80℃에서 1 시간 동안 열처리를 하였다).

[0504] <발광 소자 4의 동작 특성>

[0505] 제조된 발광 소자 4의 동작 특성을 측정하였다. 측정은 실온(25℃로 유지된 분위기 하)에서 실시되었다.

[0506] 도 23은 발광 소자 4의 전류 밀도-휘도 특성을 나타내고, 도 24는 발광 소자 4의 전압-휘도 특성을 나타내고, 그리고 도 25는 발광 소자 4의 휘도-전류 효율 특성을 나타낸다.

[0507] 도 25는 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물이 호스트 재료로서 발광층의 일부에 사용되는 발광 소자 4가 낮은 소비전력으로 높은 효율을 갖는다는 것을 나타낸다.

[0508] 하기 표 5는 약 1000 cd/m²의 휘도에서 발광 소자 4의 주된 특성의 초기 값을 나타낸다.

표 5

[0509]

	전압 (V)	전류 (mA)	전류 밀도 (mA/cm ²)	색도 (x,y)	휘도 (cd/m ²)	전류 효율 (cd/A)	전력 효율 (lm/W)	외부 양자 효율(%)
발광 소자 4	3.0	0.043	1.1	(0.43, 0.56)	930	87	92	24

[0510] 또한 상기 표 5에 나타낸 결과로부터, 본 실시예에서 제조된 발광 소자 4는 높은 휘도와 높은 전류 효율을 갖는

다는 것을 알 수 있다. 도 26은 0.1 mA/cm²의 전류 밀도로 전류를 발광 소자 4에 흐르게 할 때 발광 스펙트럼을 나타낸다. 도 26은 발광 소자 4의 발광 스펙트럼이 약 544 nm에서 피크를 갖는 것을 나타내는 데, 이는 발광 스펙트럼이 발광층(1113)에 포함된 [Ir(tBuppm)₂(acac)](약칭)의 발광으로부터 유래된다는 것을 나타낸다.

[0511] 그러므로, 2mDBTBPDq-III(약칭)은 높은 T1 준위를 갖고, 가시광 영역(청색광보다 더 긴 파장)에서 인광을 나타내는 발광 소자의 호스트 재료 또는 캐리어 수송 재료로 사용될 수 있다는 것이 밝혀졌다.

[0512] <발광 소자 4의 내열성>

[0513] 내열성 시험은 제조된 발광 소자 4에 대해서 실시되었다. 평가는 각 발광 소자 4가 100℃의 항온조에서 소정 기간 동안 보존되도록 하여 실시되었고, 그 다음 전류 효율이 측정되었다. 전류 효율은 발광 소자 4를 항온조에서 꺼낸 후, 실온(25℃로 유지되는 분위기)에서 측정되었다.

[0514] 도 27은 100℃에서 1130 시간 동안 보존된 발광 소자 4의 전류 효율을 측정한 결과를 나타낸다.

[0515] 이러한 측정 결과로부터 알 수 있는 바와 같이, 발광 소자 4의 전류 효율 저하는 100℃에서 1000 시간 이상 보존된 후에도 매우 적다.

[0516] 도 28은 본 실시예에서 보존 시험 결과로서, 100℃에서 정규화된 보존 시간에 대한 전류 밀도를 나타낸다. 도 28에서, 수평 축은 100℃에서의 보존 시간을 나타내고, 수직 축은 1000 [cd/m²]의 휘도에서 각 발광 소자 4에 대한 전류 효율을, 보존시험 전의 전류 효율을 100%로 하여 정규화한 값을 나타낸다. 이 결과로부터, 4개의 벤젠 고리를 함유하는 2mDBTBPDq-III(약칭)를 포함하는 발광 소자 4의 특성이 거의 저하되지 않는다는 것을 알 수 있다.

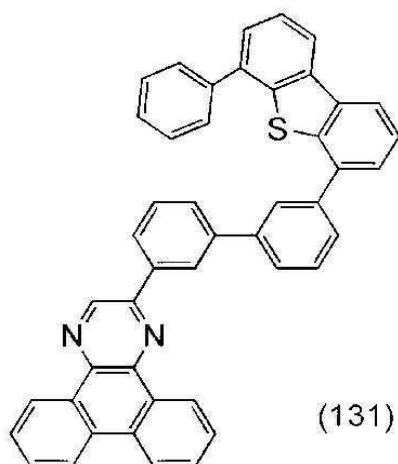
[0517] 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물과 같이 하나의 디벤조[f,h]퀴놀살린 고리, 정공 수송성 골격을 갖는 하나의 고리 및 벤젠 고리를 포함하는 화합물은 진공 증착에 의해 균질한 막이 형성될 수 있으므로, 진공 증착에 의한 형성에 적합하다. 그러나, 유리 전이 온도(Tg)가 관측되지 않기 때문에, 화합물 중 어느 부분의 골격이 내열성에 효과가 있는지는 알려지지 않았다. 즉, 벤젠 고리 수의 차이에 따라 Tg가 얼마나 달라지는지를 결정하는 것은 지금까지 어려웠다. 그러나, 본 발명에서 설명된 바와 같이, 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물의 구조의 경우에, 하나의 벤젠 고리를 갖는 화합물의 막 및 2 이상의 벤젠 고리를 갖는 화합물의 막에 대한 내열성에 있어서 분명한 차이가 있음이 밝혀졌다. 그러므로, 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물은 벤젠 고리의 독특한 수를 포함함으로써 종래의 헤테로사이클 화합물보다 더 높은 내열성을 갖는다.

[0518] [실시예 6]

[0519] <합성 실시예 3>

[0520] 본 실시예에서는 실시형태 1에서 본 발명의 일 실시양태에 따라 구조식(131)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물인 2-{3-[3-(6-페닐디벤조티오펜-4-일)페닐]페닐}디벤조[f,h]퀴놀살린(약칭: 2mDBTBPDq-IV)을 합성하는 방법을 설명한다. 2mDBTBPDq-IV(약칭)의 구조를 하기에 나타낸다.

[0521] [2mDBTBPDQ-IV]

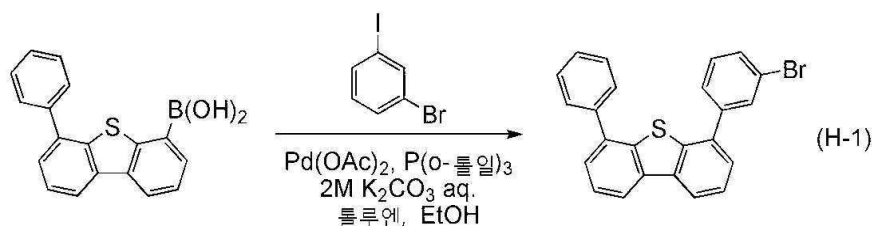


[0522]

[0523] <단계 1: 4-(3-브로모페닐)-6-페닐디벤조티오펜의 합성>

[0524] 4-(3-브로모페닐)-6-페닐디벤조티오펜의 합성 스킴은 (H-1)로 나타낸다.

[0525] [합성 스킴(H-1)]



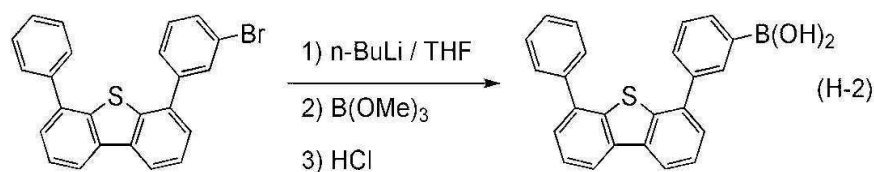
[0526]

[0527] 300 mL의 3구 플라스크에 7.00 g(23.0 mmol)의 6-페닐디벤조티오펜-4-일 보론산, 8.46 g(29.9 mmol)의 1-브로모-3-요오드벤젠, 840 mg(2.8 mmol)의 트리스(2-메틸페닐)포스핀, 115 mL의 톨루엔, 23 mL의 에탄올 및 35 mL의 2M 탄산 칼륨 수용액을 넣었다. 이 혼합물을 교반에 의해 탈기시켰다. 그 다음, 155 mg(0.69 mmol)의 팔라듐 아세테이트를 이 혼합물에 첨가하고, 이 혼합물을 가열한 후, 질소 기류 하에 80℃에서 4 시간 동안 교반하여 반응하도록 하였다. 반응 후, 이 혼합물의 수층을 톨루엔으로 추출한 후, 추출된 용액과 유기층을 혼합한 다음 포화 식염수로 세정하였다. 유기층을 황산 마그네슘으로 건조하고, 건조 후 이 혼합물을 자연 여과시켰다. 그 결과 얻어진 여과액을 적당량으로 농축한 후, Celite와 알루미나를 통해 여과하였다. 여과액을 농축함으로써 갈색 오일성 물질을 얻었다. 분리를 위해, 헥산과 아세토니트릴을 오일성 물질에 첨가한 후, 헥산층을 농축하여 78.0%의 수율로 백색 고체 7.45 g을 얻었다.

[0528] <단계 2: 3-(6-페닐디벤조티오펜-4-일)페닐 보론산의 합성>

[0529] 3-(6-페닐디벤조티오펜-4-일)페닐 보론산의 합성 스킴은 (H-2)로 나타낸다.

[0530] [합성 스킴(H-2)]



[0531]

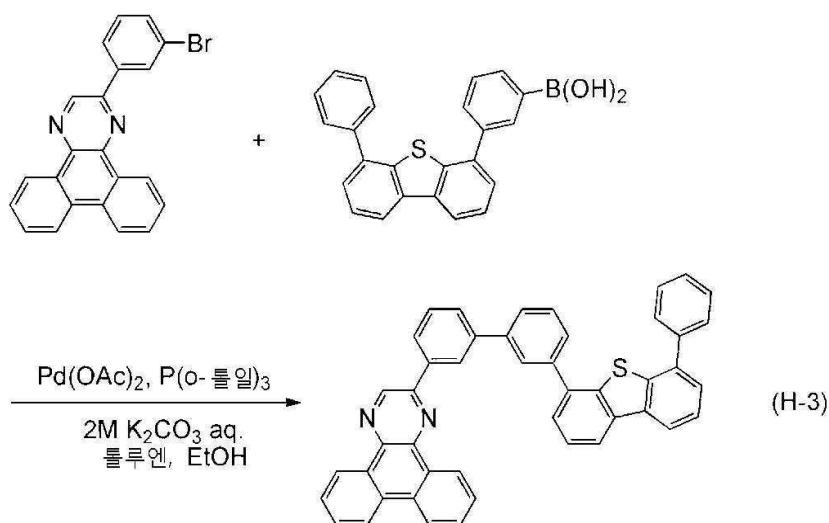
[0532] 300 mL 플라스크에 5.69 g(13.7 mmol)의 4-(3-브로모페닐)-6-페닐디벤조티오펜을 넣고, 플라스크 내의 공기를 질소로 치환시켰다. 그 다음, 137 mL의 테트라하이드로퓨란(THF)을 첨가하고, 이 용액을 질소 기류 하에서 -78

℃까지 냉각하였다. 냉각 후, 9.4 mL(15.0 mmol)의 n-부틸리튬(1.6 mol/L 헥산 용액)을 주사기로 상기 용액에 적하하였다. 그 후, 이 용액을 동일한 온도에서 2 시간 동안 교반하였다. 그 다음, 1.6 mL(16.4 mmol)의 트리메틸 붕산염을 상기 용액에 첨가하고, 이 혼합물을 16 시간 동안 교반하면서 실온으로 냉각하였다. 교반 후, 약 40 mL의 1M 염산을 이 용액에 첨가한 후, 2.5 시간 동안 교반하였다. 그 다음, 이 혼합물의 수성층을 에틸 아세테이트로 추출한 후, 얻어진 추출 용액과 유기층을 혼합하고 탄산수소나트륨 포화 수용액과 포화 식염수로 세정하였다. 유기층을 황산 마그네슘으로 건조하였다. 건조 후, 이 혼합물을 자연 여과시키고, 그 여과액을 농축하여 갈색 오일성 물질을 얻었다. 오일성 물질을 톨루엔/헥산으로 재결정하여 23 %의 수율로 목적으로 하는 담갈색 고체 1.2g을 얻었다.

[0533] <단계 3: 2-{3-[3-(6-페닐디벤조티오펜-4-일)페닐]페닐}디벤조[f,h]퀴녹살린(약칭: 2mDBTBPDBq-IV)의 합성>

[0534] 2mDBTBPDBq-IV(약칭)의 합성 스킴은 (H-3)으로 나타낸다.

[0535] [합성 스킴(H-3)]



[0536]

[0537] 300 mL의 3구 플라스크에 1.04 g(2.7 mmol)의 3-(6-페닐디벤조티오펜-4-일)페닐 보론산, 910 mg(2.6 mmol)의 2-(3-브로모페닐)디벤조퀴녹살린, 100 mg(0.33 mmol)의 트리스(2-메틸페닐)포스핀, 13 mL의 톨루엔, 3 mL의 에탄올 및 4 mL의 2M 탄산 칼륨 수용액을 넣었다. 교반에 의해 탈기한 후, 18 mg(0.08 mmol)의 팔라듐 아세테이트를 이 혼합물에 첨가하였다. 이 혼합물을 질소 기류 하 80℃에서 6 시간 동안 가열 및 교반하여 반응시켰다. 반응 후, 이 혼합물을 여과하였다. 톨루엔을 잔류물에 첨가한 후, 이 혼합물을 가열하면서 여과하였다. 여과액을 농축하여 수율 37.5%로 백색 고체 0.6 g을 얻었다.

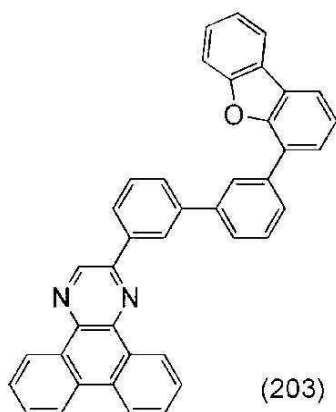
[0538] 트레인 승화법에 의해, 얻어진 백색 분말 0.60 g을 정제하였다. 정제에 있어서, 5.0 mL/min의 아르곤 가스 유속으로 280℃ 및 2.8 Pa의 압력 하에서 2mDBTBPDBq-IV(약칭)을 가열하였다. 정제를 통하여 77%의 수율로 백색 고체로서 2mDBTBPDBq-IV(약칭) 0.46 g을 얻었다.

[0539] 상기 합성법에 의해 얻어진 화합물의 핵자기 공명 분석법($^1\text{H-NMR}$)의 결과는 다음과 같다. 도 29(A) 및 도 29(B)에 $^1\text{H-NMR}$ 차트를 나타낸다. 도 29(B)는 7 ppm 내지 10 ppm의 범위에 있어서 도 29(A)의 확대도이다. 그 결과로부터, 본 발명의 일 실시양태에 따라 구조식(131)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물인 2mDBTBPDBq-IV(약칭)이 얻어졌음을 알 수 있다.

[0540] $^1\text{H NMR}$ (CDCl₃, 500 MHz): δ = 7.34-7.37(m, 1H), 7.44-7.47(t, J = 7.7 Hz, 2H), 7.49-7.50(dd, J = 7.5 Hz, 1.1 Hz, 1H), 7.58-7.73(m, 8H), 7.75-7.83(m, 6H), 8.06(t, J = 1.7 Hz, 1H), 8.21-8.25(t, J = 9.1 Hz, 2H), 8.33-8.35(d, J = 8.0 Hz, 1H), 8.62(t, J = 1.7 Hz, 1H), 8.65-8.67(d, J = 8.0 Hz, 2H), 9.25-9.27(dd, J = 8.0, 1.7 Hz, 1H), 9.40-9.42(dd, J = 8.0, 1.1 Hz, 1H), 9.45(s, 1H).

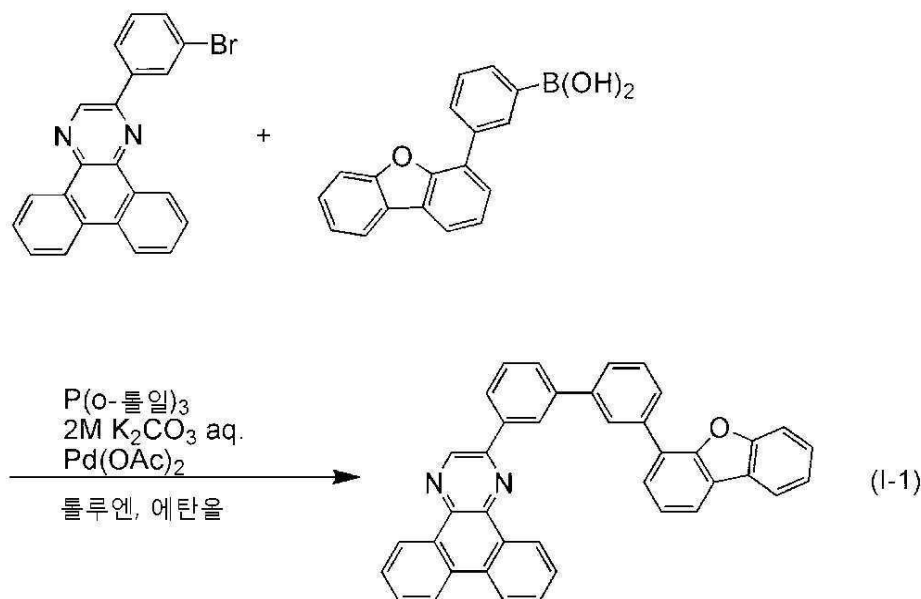
[0541] 그 다음, 본 실시예에서 얻어진 2mDBTBPDBq-IV(약칭)를 액체 크로마토그래피 질량 분석법(LC/MS)으로 분석하였다.

- [0542] LC/MS 분석은 Acquity UPLC(Waters Corporation) 및 Xevo G2 ToF MS(Waters Corporation)으로 실시되었다.
- [0543] MS 분석에서, 전자 분무 이온화법(ESI)에 의해 이온화를 실시하였다. 이 때, 캐필러리 전압과 샘플 콘 전압은 각각 3.0 kV 및 30 V으로 설정되었고, 그리고 검출은 포지티브 모드로 실시되었다.
- [0544] 상술한 조건 하에서 이온화된 성분은 충돌실에서 아르곤 가스와 충돌하여 복수의 생성 이온으로 분해하였다. 아르곤에 의한 충돌을 위한 에너지(충돌 에너지)는 50 eV 및 70 eV이었다. 측정을 위한 질량 범위는 $m/z = 100$ 내지 1200이었다.
- [0545] 도 30(A) 및 도 30(B)는 측정 결과를 나타낸다. 도 30(A)는 50 eV의 경우를 나타내고, 도 30(B)는 70 eV의 경우를 나타낸다. 도 30(B)의 결과는 본 발명의 일 실시양태에 따라 구조식(131)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물로서 2mDBTBPDq-IV(약칭)의 생성 이온이 주로 $m/z = 229$, $m/z = 202$ 및 $m/z = 177$ 부근에서 검출되었다는 것을 나타낸다.
- [0546] 도 30(B)의 결과는 2mDBTBPDq-IV(약칭)으로부터 유래된 특성을 나타내므로, 혼합물에 함유된 2mDBTBPDq-IV(약칭)을 확인하기 위해 중요한 데이터로 간주될 수 있다.
- [0547] 도 30(A)에서 $m/z = 614$ 부근의 생성 이온은, 하나의 C 원자와 하나의 N 원자가 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물 중 하나인 구조식(131)로 나타내어진 화합물의 디벤조[f,h]퀴녹살린 고리로부터 이탈된 상태에서 양이온으로 되는 것으로 추정된다. 또한, $m/z = 229$ 부근의 생성 이온은 디벤조[f,h]퀴녹살린과 같은 디아자트리페닐렌기의 양이온인 것으로 추정된다. 더욱이, $m/z = 202$, $m/z = 177$ 및 $m/z = 165$ 부근의 생성 이온도 또한 동시에 검출된다. 그러므로, 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물인 2mDBTBPDq-IV(약칭)이 디벤조[f,h]퀴녹살린 고리를 포함한다는 것을 시사한다.
- [0548] [실시예 7]
- [0549] <합성 실시예 4>
- [0550] 본 실시예에서는 실시형태 1에서 본 발명의 일 실시양태에 따라 구조식(203)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물인 2-{3-[3-(디벤조퓨란-4-일)페닐]페닐}디벤조[f,h]퀴녹살린(약칭: 2mDBFBPDq-II)을 합성하는 방법을 설명한다. 2mDBFBPDq-II(약칭)의 구조를 하기에 나타낸다.
- [0551] [2mDBFBPDq-II]



- [0552]
- [0553] <2mDBFBPDq-II(약칭)의 합성>
- [0554] 2mDBFBPDq-II(약칭)의 합성 스킴은 (I-1)에 나타낸다.

[0555] [합성 스킴(I-1)]



[0556]

[0557] 300 mL의 3구 플라스크에 4.0 g(10 mmol)의 2-(3-브로모페닐)디벤조[f,h]퀴놀살린, 3.3 g(11 mmol)의 3-(벤조퓨란-4-일)페닐 보론산 및 0.28g(1.0 mmol)의 트리(오르토-톨일)포스핀을 넣고 및 플라스크 내의 공기를 질소로 치환시켰다. 이 혼합물에 100 mL의 톨루엔, 10 mL의 에탄올 및 16 mL의 탄산 칼륨 수용액(2.0 mol/L)을 첨가하였다. 이 혼합물을 감압하면서 교반에 의해 탈기하였다. 이 혼합물에 67.1 mg(0.3 mmol)의 팔라듐(II) 아세테이트를 첨가하고, 이 혼합물을 질소 기류 하에 80℃에서 1.5 시간 동안 교반하였다. 교반 후, 47.3 mg(0.2 mmol)의 팔라듐(II) 아세테이트를 첨가하고, 2.8 시간 동안 교반하였다. 이 혼합물에 0.23 g(0.8 mmol)의 트리(오르토-톨일)포스핀 및 91.2 mg(0.4 mmol)의 팔라듐(II) 아세테이트를 첨가하고 2.2 시간 동안 교반하였다. 교반 후, 혼합물의 온도를 90℃로 설정하고, 0.23 g(0.8 mmol)의 트리(오르토-톨일)포스핀 및 0.12 g(0.5 mmol)의 팔라듐(II) 아세테이트를 첨가한 후, 1 시간 동안 교반하였다. 물과 톨루엔을 이 혼합물에 첨가하여 가열한 후, 이 혼합물을 Celite를 통해 흡입 여과하였다. 얻어진 여과액의 수성층을 톨루엔으로 추출한 후, 추출된 용액과 유기층을 혼합한 다음 황산 마그네슘으로 건조하였다. 건조 후, 이 혼합물을 자연 건조시켰다. 얻어진 여과액을 농축하여 얻어진 고체를 톨루엔과 에탄올의 혼합 용매로 재결정하여 91%의 수율로 목적하는 고체 5.3 g을 얻었다.

[0558] 상기 합성법으로 얻어진 화합물의 핵자기 공명 분광법($^1\text{H-NMR}$)의 분석 결과는 하기에 나타낸다. 도 34(A) 및 도 34(B)는 $^1\text{H-NMR}$ 차트를 나타낸다. 도 34(B)는 7 ppm 내지 8.5 ppm의 범위 내에서 도 34(A)의 확대도이다. 그 결과로부터, 본 발명의 일 실시양태에 따라 구조식(203)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물인 2mDBFBPDBq-II(약칭)이 얻어졌음을 알 수 있다.

[0559] $^1\text{H NMR}$ (CDCl_3 , 500 MHz): δ = 7.37(ddd, J = 7.5, 1.5 Hz, 1H), 7.43-7.50(m, 2H), 7.62(d, J = 8.0 Hz, 1H), 7.70-7.83(m, 8H), 7.87(dd, J = 6.0, 2.0 Hz, 1H), 7.97-8.02(m, 3H), 8.27(t, J = 1.5 Hz, 1H), 8.34(d, J = 7.5 Hz, 1H), 8.64-8.67(m, 3H), 9.24(dd, J = 7.5, 1.5 Hz, 1H), 9.43(d, J = 8.0 Hz, 1H), 9.46(s, 1H).

[0560] 그 다음, 본 실시예에서 얻어진 2mDBFBPDBq-II(약칭)은 액체 크로마토그래피 질량 분석법(LC/MS)에 의해 분석되었다.

[0561] LC/MS 분석은 Acquity UPLC(Waters Corporation) 및 Xevo G2 Tof MS(Waters Corporation)으로 실시되었다.

[0562] MS 분석에서, 전자 분무 이온화법(ESI)에 의해 이온화를 실시하였다. 이 때, 캐필러리 전압과 샘플 콘 전압은 각각 3.0 kV 및 30 V으로 설정되었고, 그리고 검출은 포지티브 모드로 실시되었다.

[0563] 상술한 조건 하에서 이온화된 성분은 충돌실에서 아르곤 가스와 충돌하여 복수의 생성 이온으로 분해하였다. 아르곤에 의한 충돌을 위한 에너지(충돌 에너지)는 50 eV이었다. 측정을 위한 질량 범위는 m/z = 100 내지

1200이었다.

[0564] 도 35는 측정 결과를 나타낸다. 도 35의 결과는 본 발명의 일 실시양태에 따라 구조식(203)으로 나타내어진 헤테로사이클 화합물로서 2mDBFBPDBq-II(약칭)의 생성 이온이 주로 $m/z = 229$, $m/z = 331$ 및 $m/z = 522$ 부근에서 검출되었다는 것을 나타낸다.

[0565] 도 35의 결과는 2mDBFBPDBq-II(약칭)으로부터 유래된 특성을 나타내므로, 혼합물에 함유된 2mDBFBPDBq-II(약칭)을 확인하기 위해 중요한 데이터로 간주될 수 있다.

[0566] $m/z = 522$ 부근의 생성 이온은, 하나의 C 원자와 하나의 N 원자가 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물 중 하나인 구조식(131)로 나타내어진 화합물의 디벤조[f,h]퀴녹살린 고리로부터 이탈된 상태에서 양이온으로 되는 것으로 추정된다. 또한, $m/z = 229$ 부근의 생성 이온은 디벤조[f,h]퀴녹살린과 같은 디아자트리페닐렌일기의 양이온인 것으로 추정된다. 더욱이, $m/z = 331$ 부근의 생성 이온도 또한 동시에 검출된다. 그러므로, 본 발명의 일 실시양태에 따른 헤테로사이클 화합물인 2mDBFBPDBq-II(약칭)이 디벤조[f,h]퀴녹살린 고리를 포함한다는 것을 시사한다.

부호의 설명

[0567] 101: 제 1 전극

102: EL층

103: 제 2 전극

111: 정공 주입층

112: 정공 수송층

113: 발광층

114: 전자 수송층

115: 전자 주입층

116: 전하 발생층

201: 양극

202: 음극

203: EL층

204: 발광층

205: 인광성 화합물

206: 제 1 유기 화합물

207: 제 2 유기 화합물

301: 제 1 전극

302(1): 제 1 EL층

302(2): 제 2 EL층

302(n-1): 제 (n-1) EL층

302(n): 제 (n) EL층

304: 제 2 전극

305: 전하 발생층(I)

305(1): 제 1 전하 발생층(I)

305(2): 제 2 전하 발생층(I)

305(n-2): 제 (n-2) 전하 발생층(I)
 305(n-1): 제 (n-1) 전하 발생층(I)
 401: 반사 전극
 402: 반투과 및 반반사 전극
 403a: 제 1 투명 도전층
 403b: 제 2 투명 도전층
 404B: 제 1 발광층(B)
 404G: 제 2 발광층(G)
 404R: 제 3 발광층(R)
 405: EL층
 410R: 제 1 발광 소자(R)
 410G: 제 2 발광 소자(G)
 410B: 제 3 발광 소자(B)
 501: 소자 기판
 502: 화소부
 503: 구동 회로부(소스선 구동 회로)
 504a: 구동 회로부(게이트선 구동 회로)
 504b: 구동 회로부(게이트선 구동 회로)
 505: 밀봉재
 506: 밀봉 기판
 507: 배선
 508: 가요성 인쇄 회로(FPC)
 509: n-채널형 TFT
 510: p-채널형 TFT
 511: 스위칭용 TFT
 512: 전류 제어용 TFT
 513: 제 1 전극(양극)
 514: 절연체
 515: EL층
 516: 제 2 전극(음극)
 517: 발광 소자
 518: 공간
 7100: 텔레비전 세트
 7101: 하우징
 7103: 표시부
 7105: 스탠드

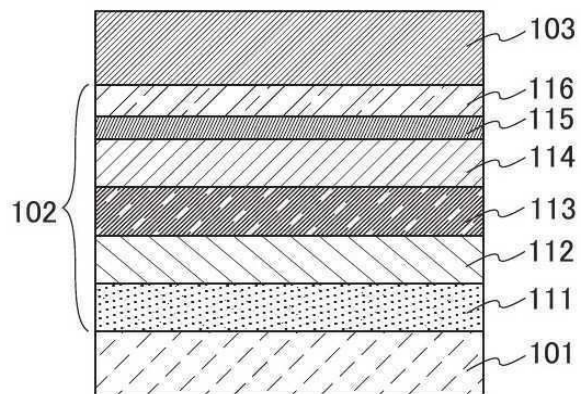
7107: 표시부
7109: 조작 키
7110: 리모트 컨트롤러
7201: 본체
7202: 하우징
7203: 표시부
7204: 키보드
7205: 외부 접속 포트
7206: 포인팅 장치
7301: 하우징
7302: 하우징
7303: 연결부
7304, 7305: 표시부
7306: 스피커부
7307: 기록 매체 삽입부
7308: LED 램프
7309: 조작 키
7310: 접속 단자
7311: 센서
7312: 마이크로폰
7400: 휴대전화기
7401: 하우징
7402: 표시부
7403: 조작 버튼
7404: 외부 접속 포트
7405: 스피커
7406: 마이크로폰
8001, 8002, 8003, 8004: 조명 장치
9033: 클립
9034: 표시 모드 전환 버튼
9035: 전원 버튼
9036: 절전 모드 전환 버튼
9038: 조작 버튼
9630: 하우징
9631: 표시부
9631a, 9631b: 표시부

- 9632a: 터치 패널 영역
- 9632b: 터치 패널 영역
- 9633: 태양전지
- 9634: 충방전 제어 회로
- 9635: 배터리
- 9636: DCDC 컨버터
- 9637: 조작 키
- 9638: 컨버터
- 9639: 버튼

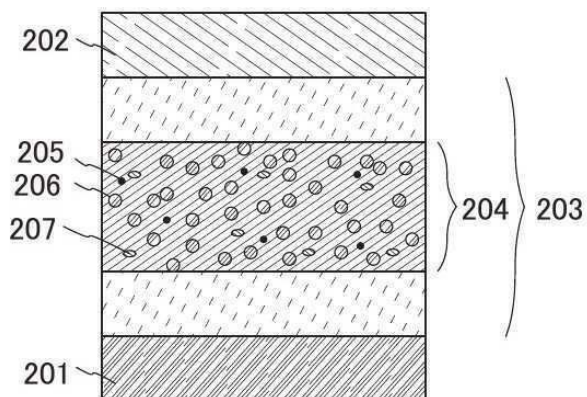
본 출원은 2011년 8월 31일자로 일본 특허청에 출원된 일본 특허 출원 제 2011-188235호 및 2012년 6월 27일자로 일본 특허청에 출원된 특허 출원 제 2012-144180호를 기초로 한 것이며, 본 명세서에 그 전문이 참조로 본 명세서에 포함한다.

도면

도면1

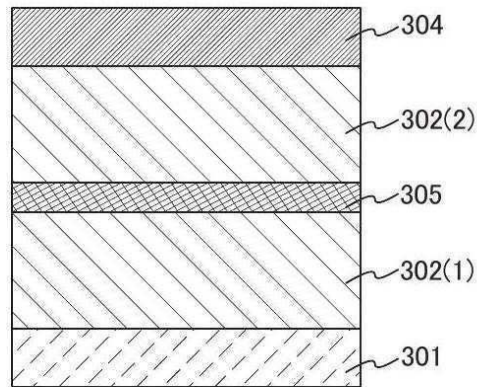


도면2

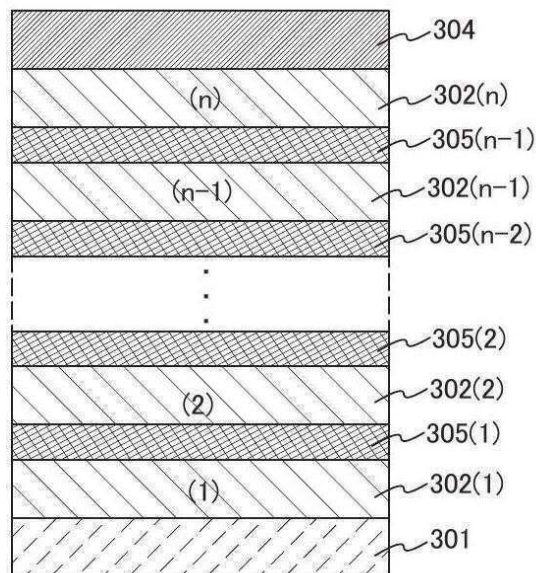


도면3

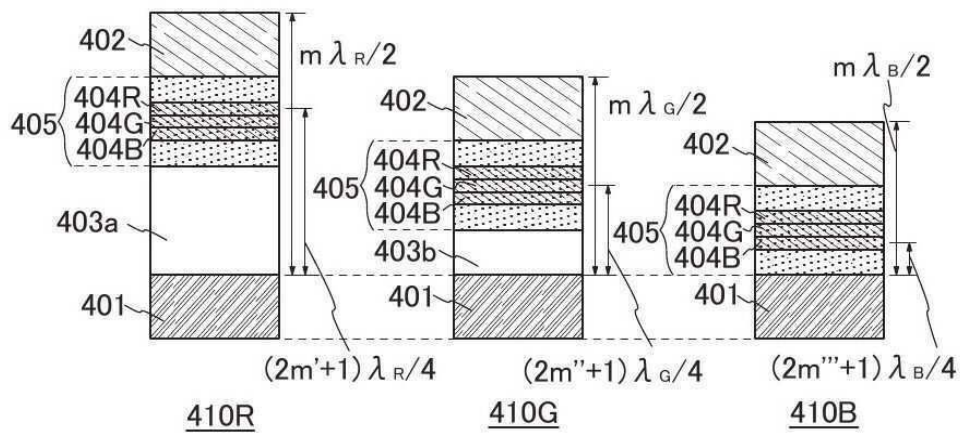
(A)



(B)

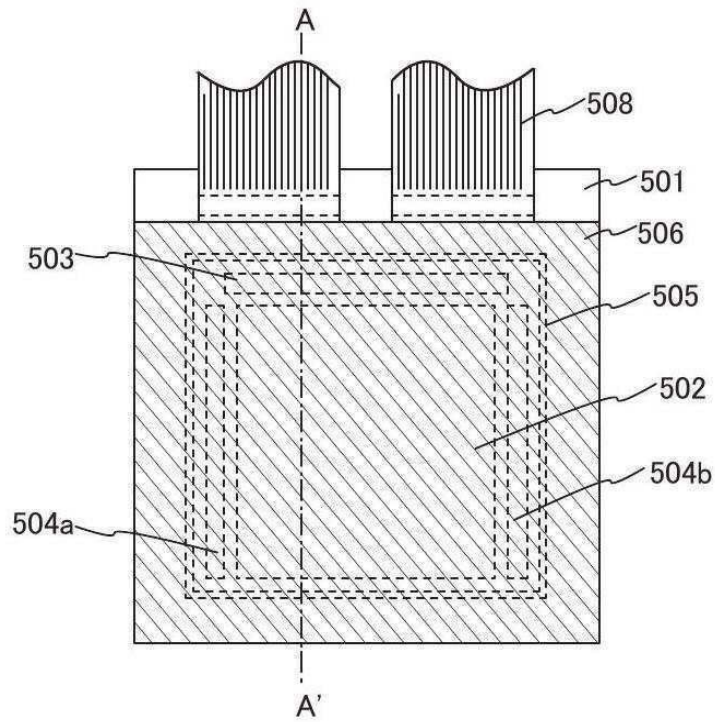


도면4

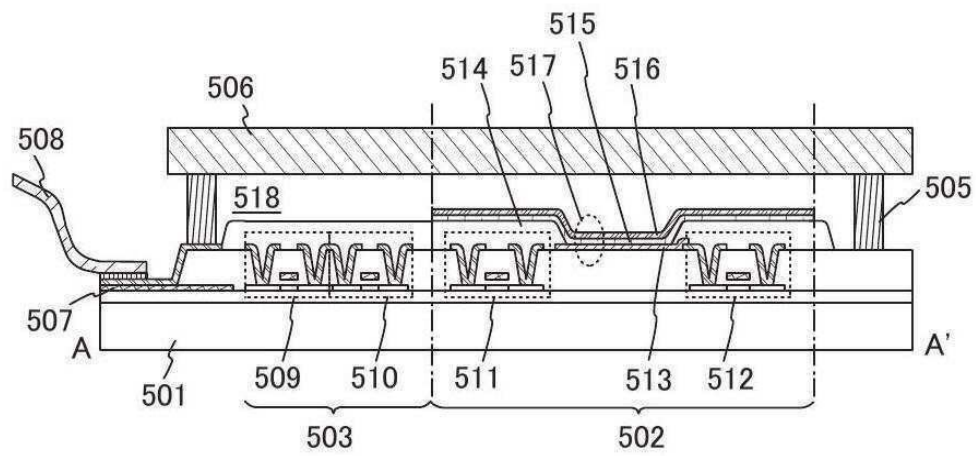


도면5

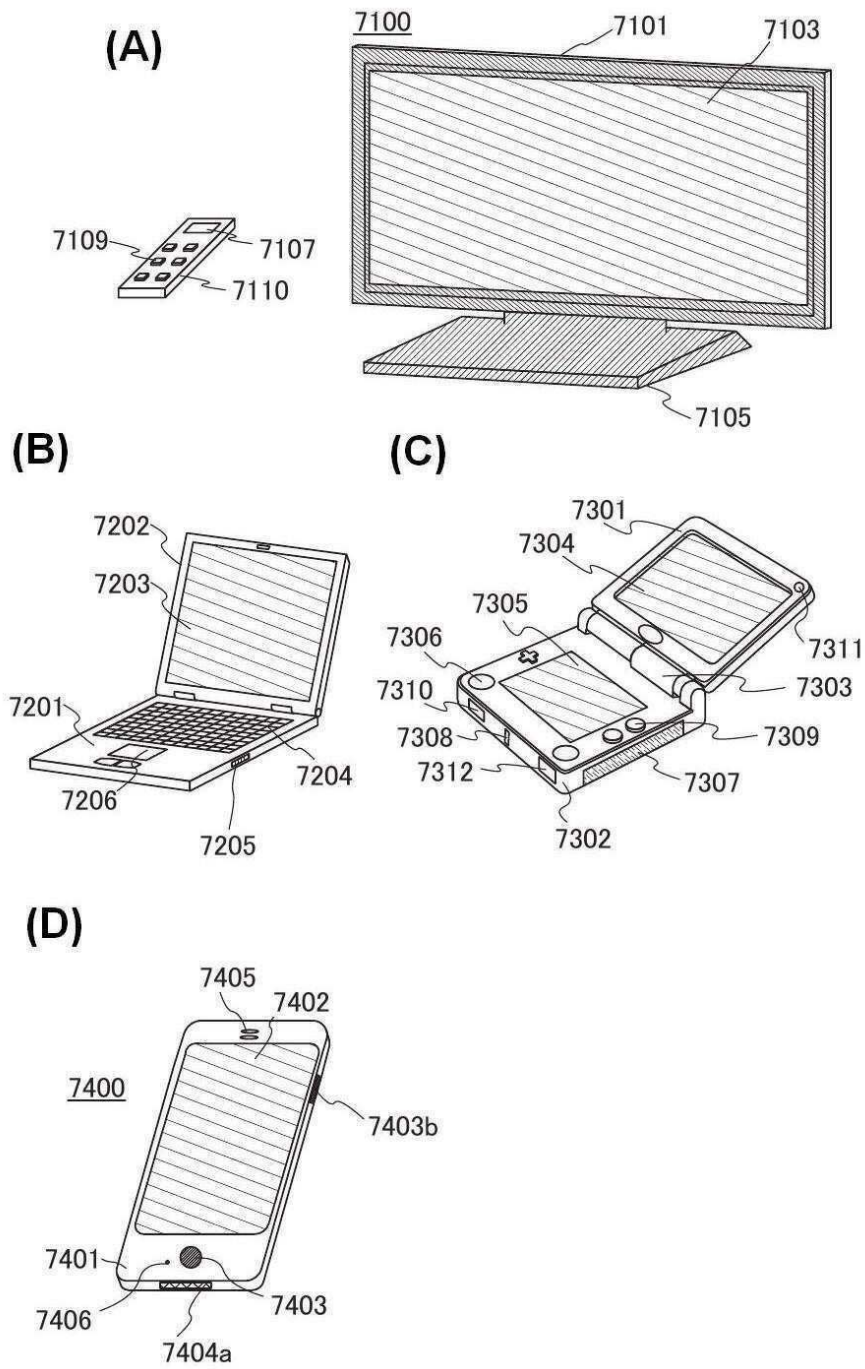
(A)



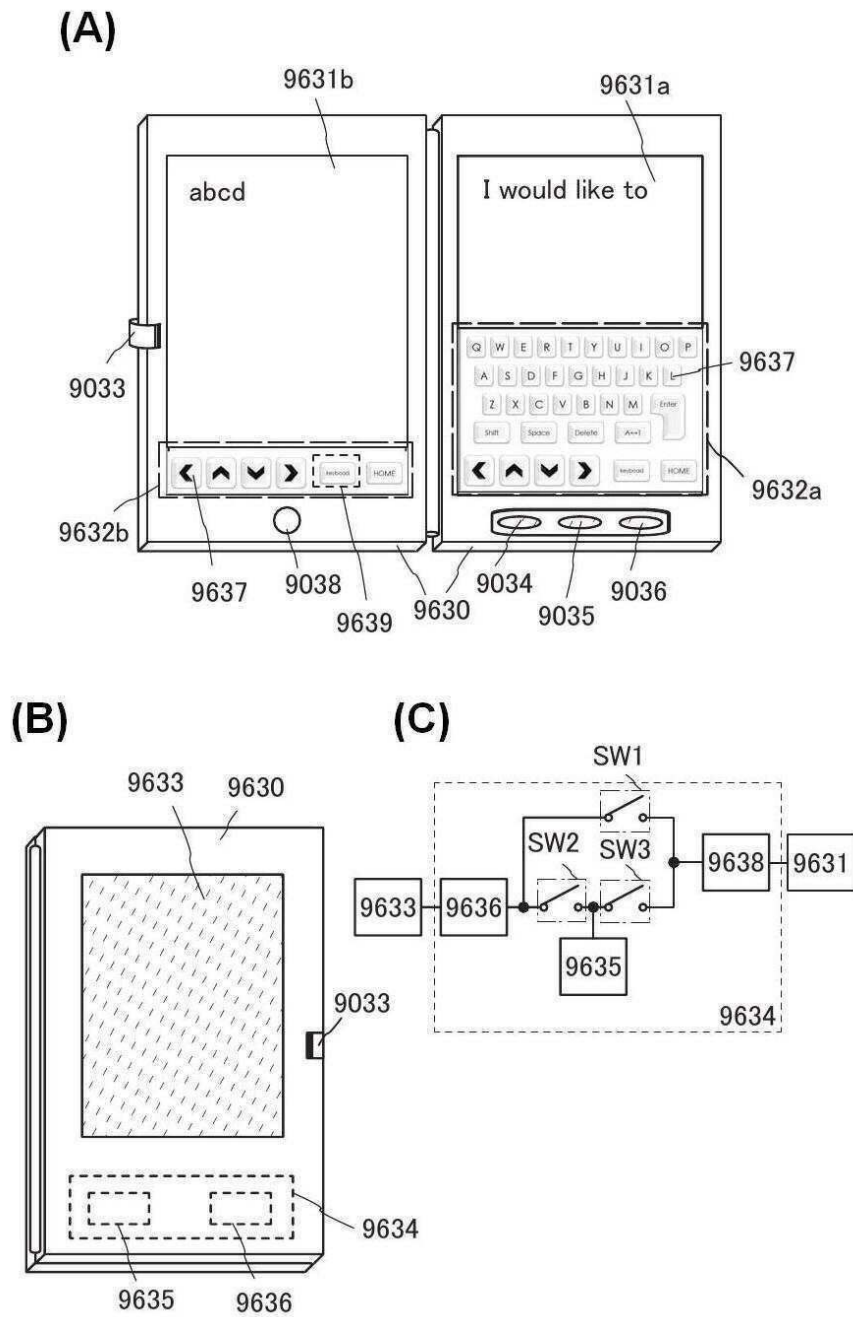
(B)



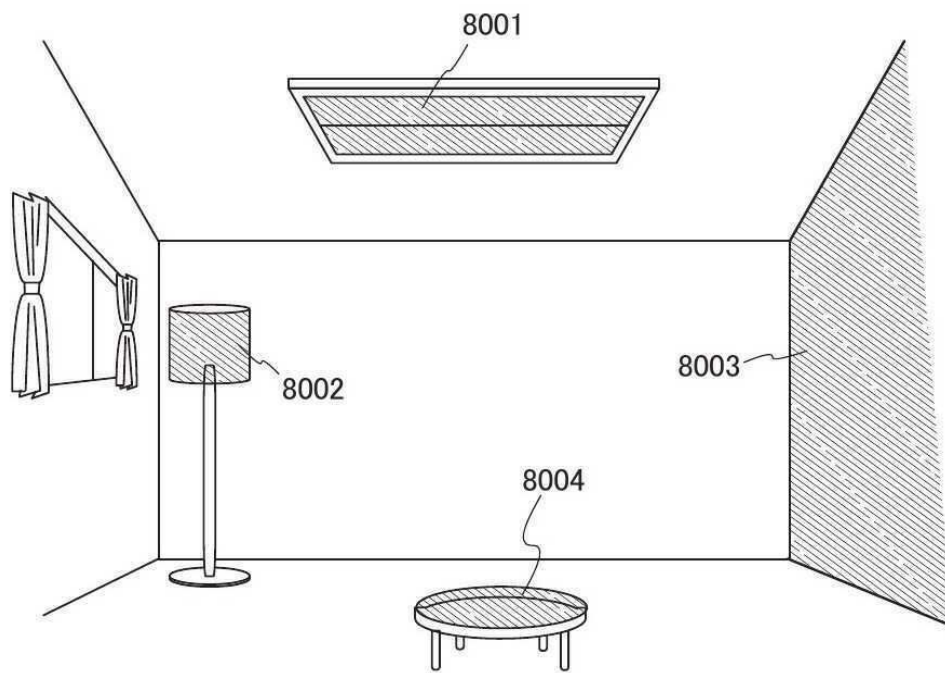
도면6



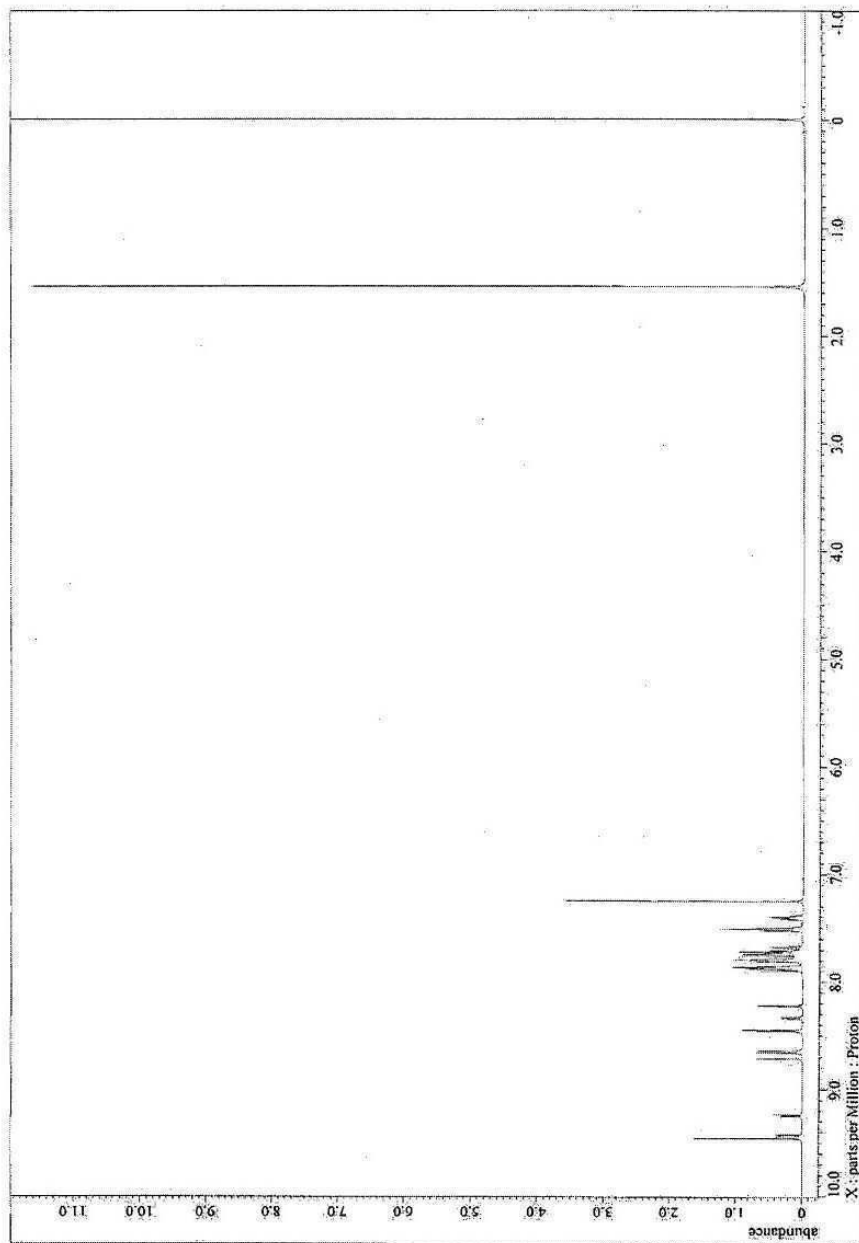
도면7



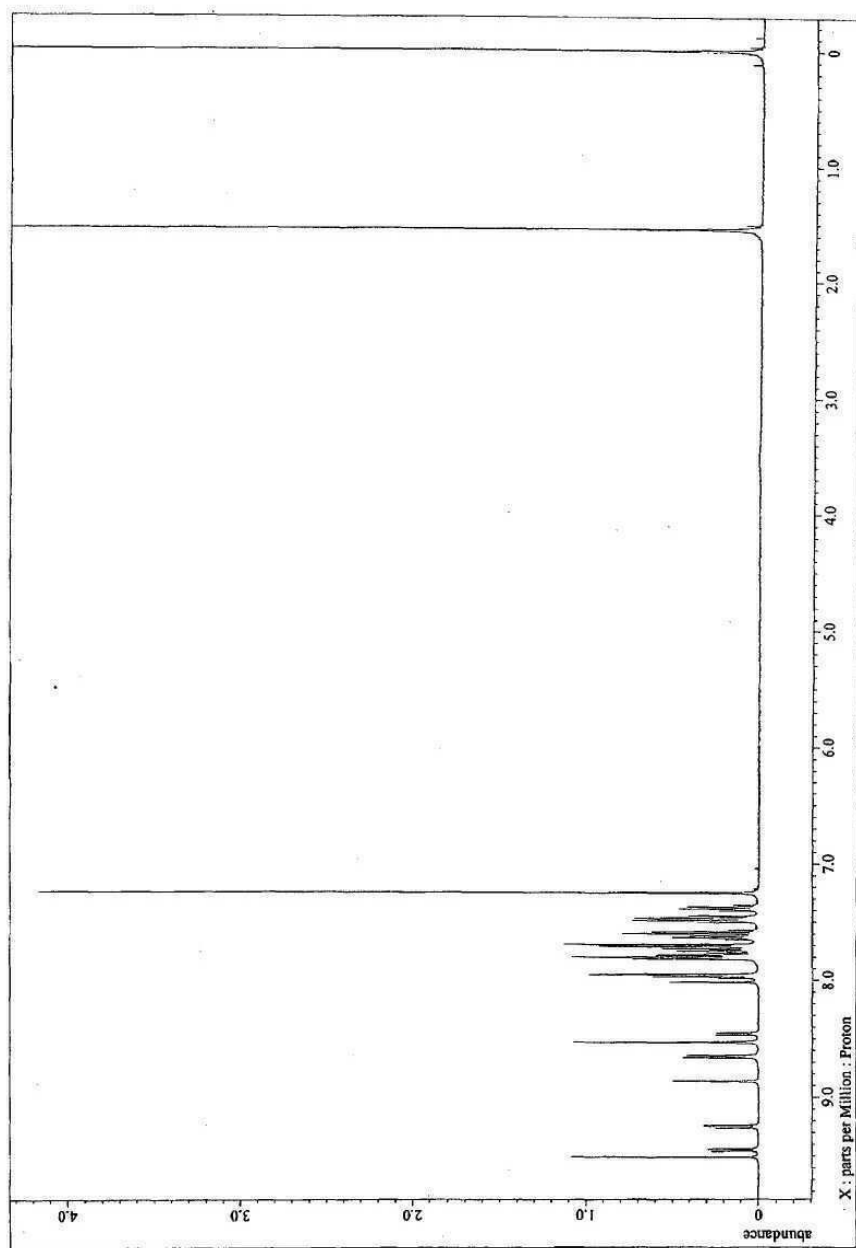
도면8



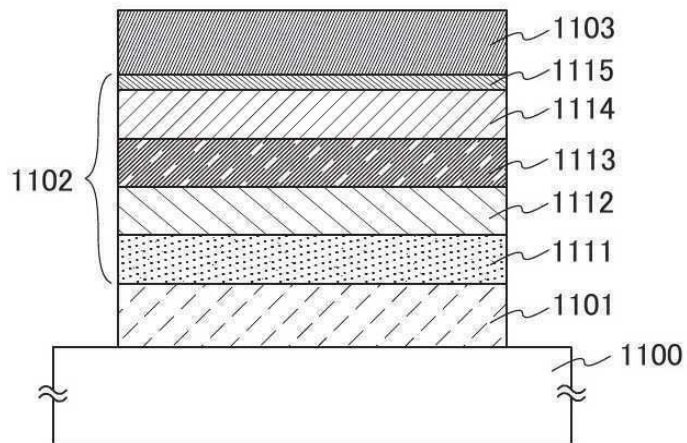
도면9



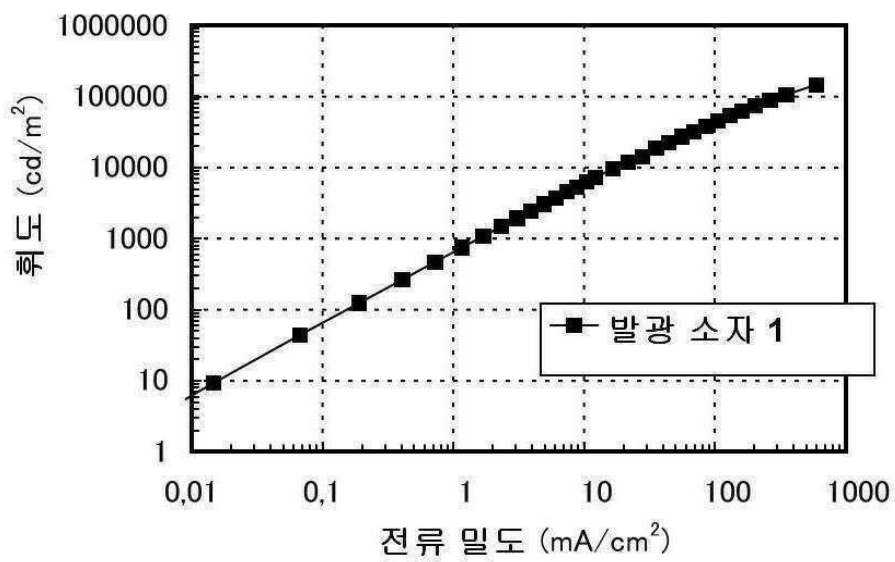
도면10



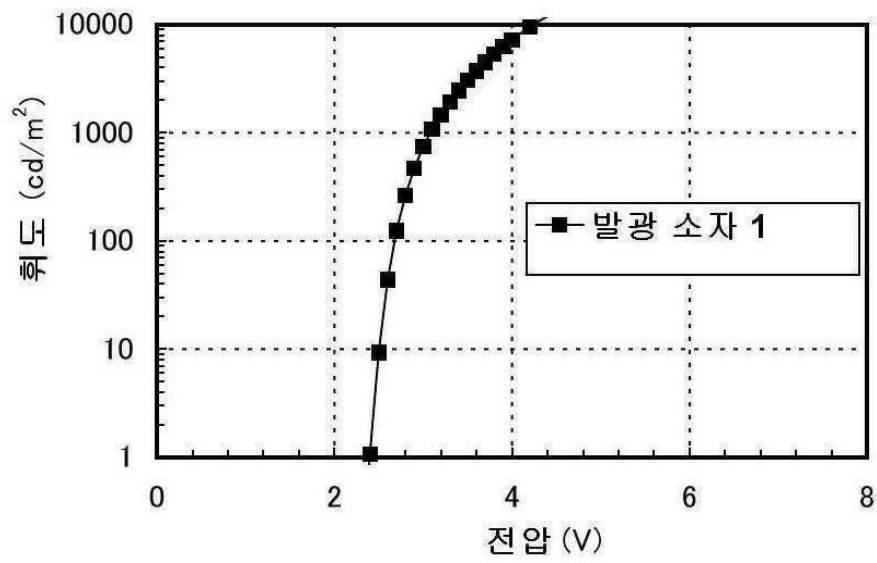
도면11



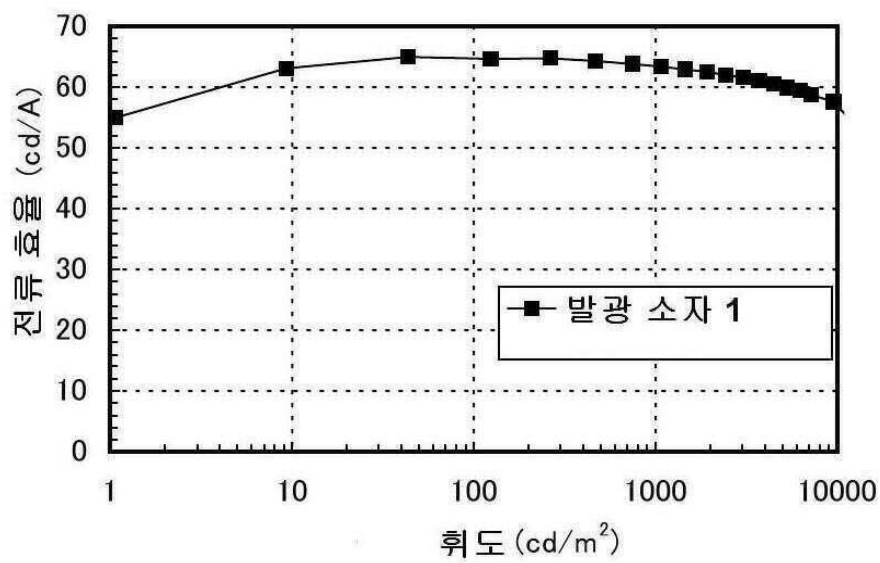
도면12



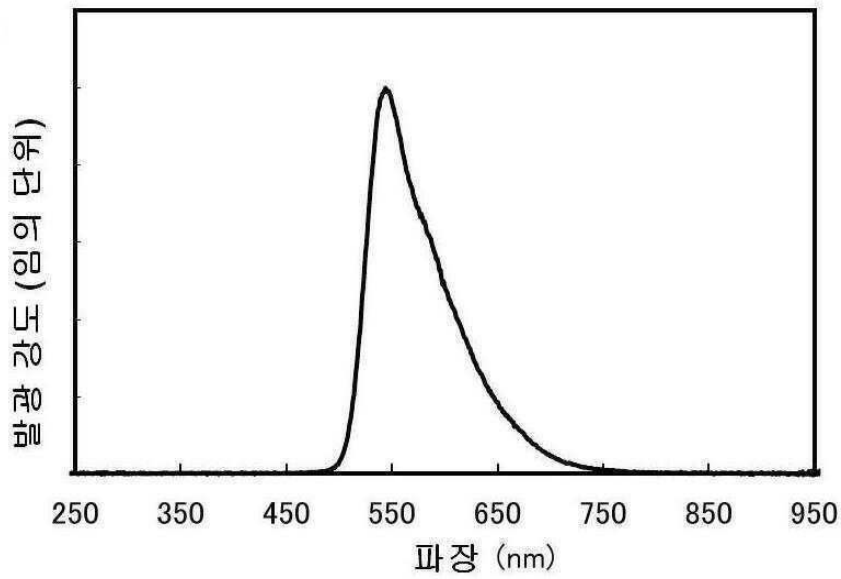
도면13



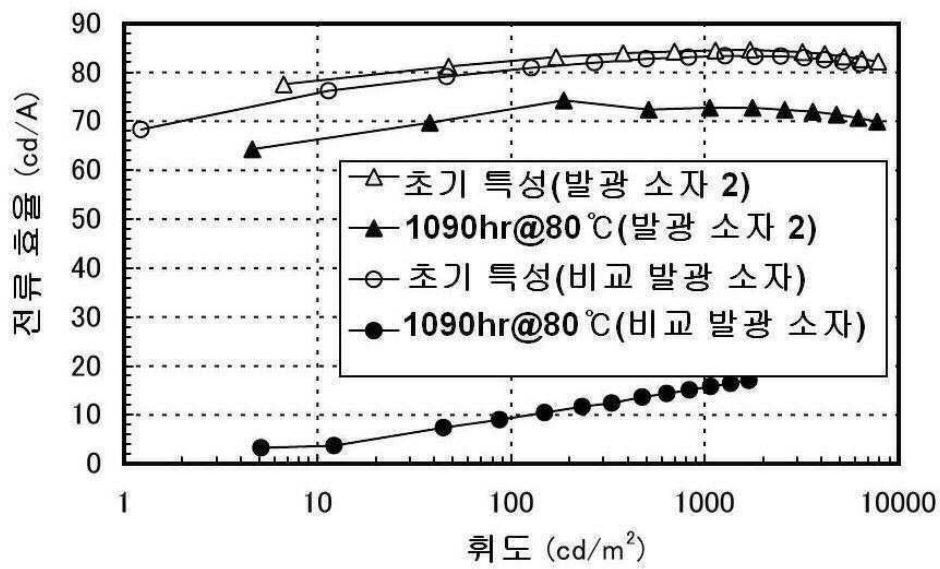
도면14



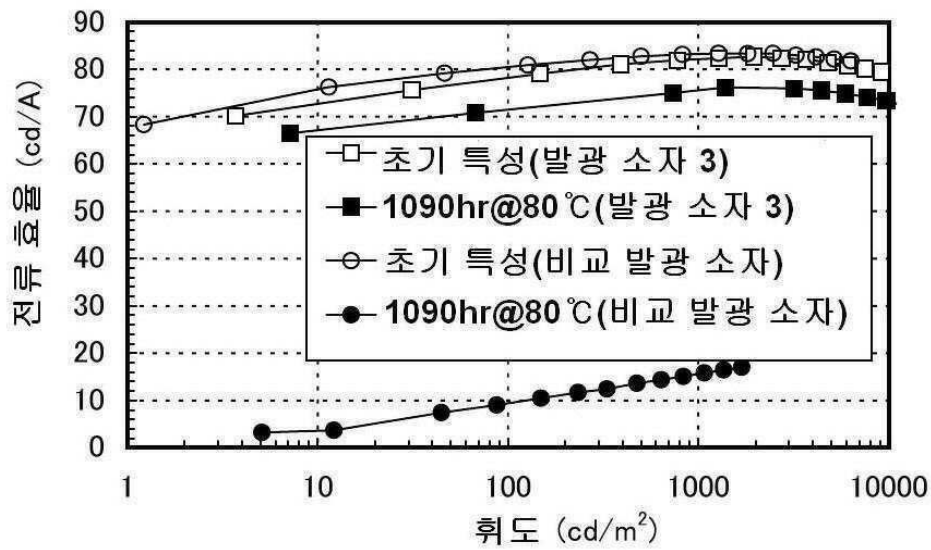
도면15



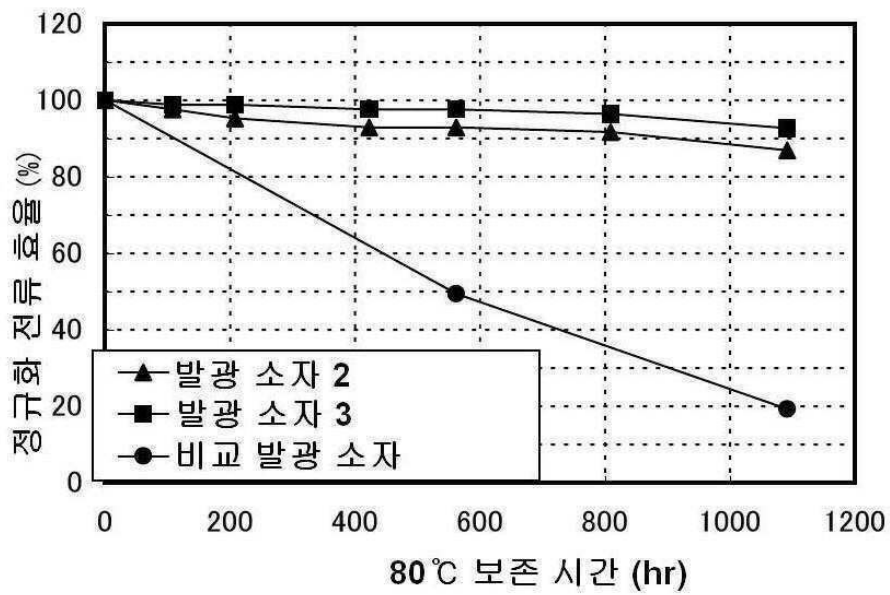
도면16



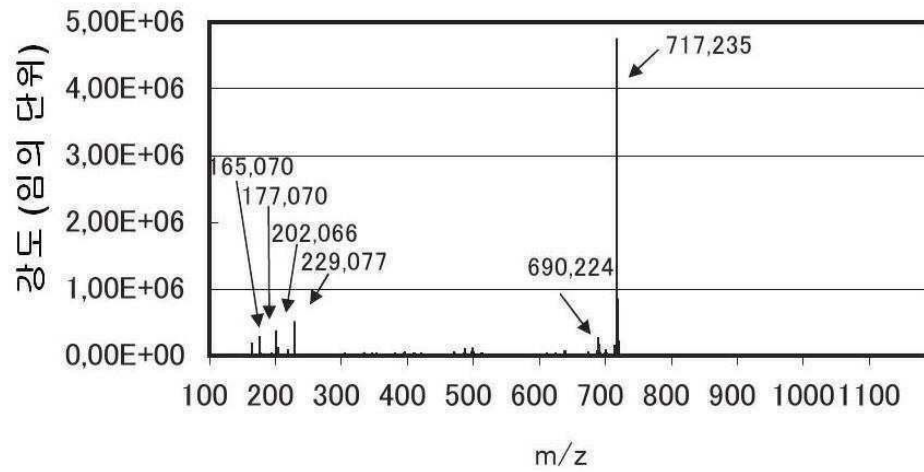
도면17



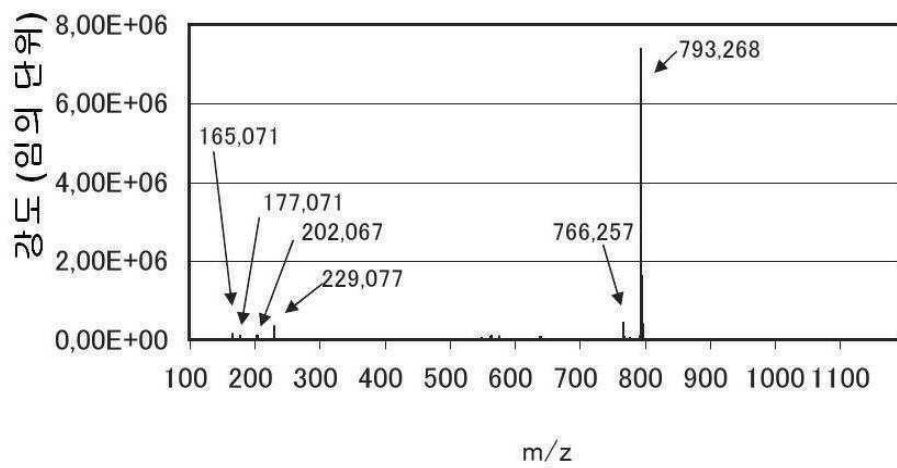
도면18



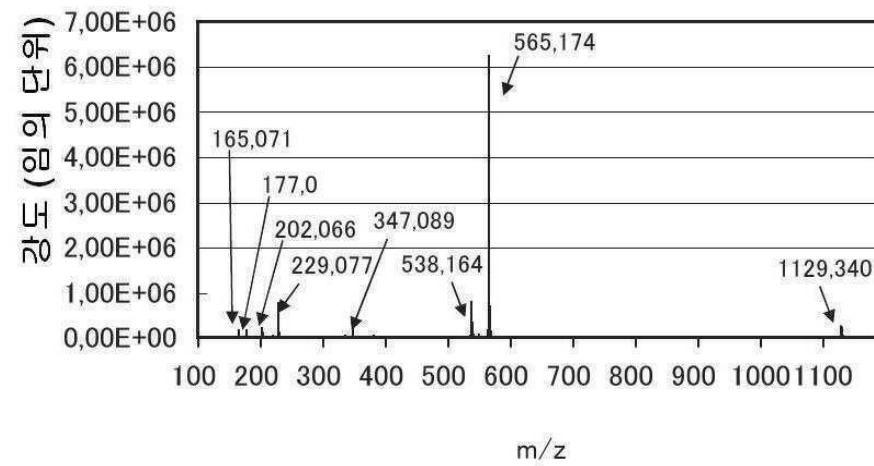
도면19



도면20

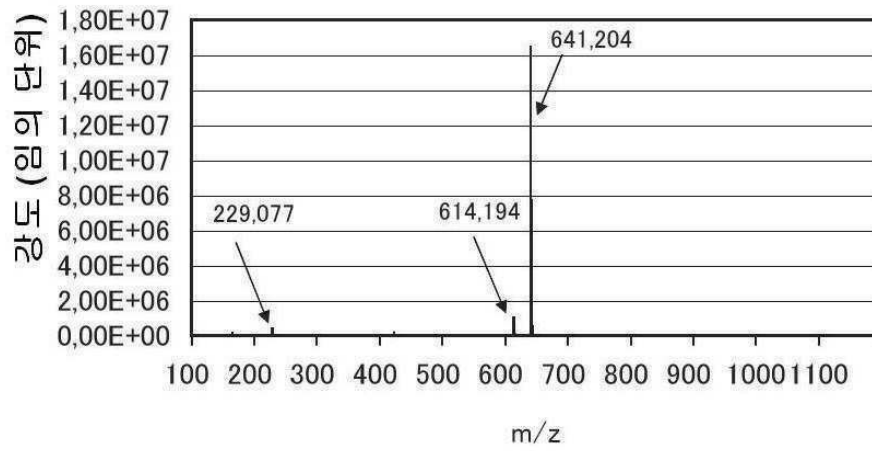


도면21

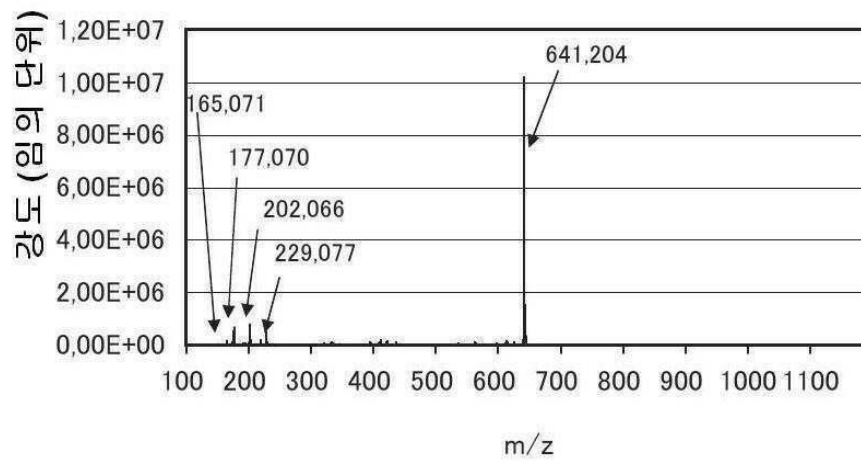


도면22

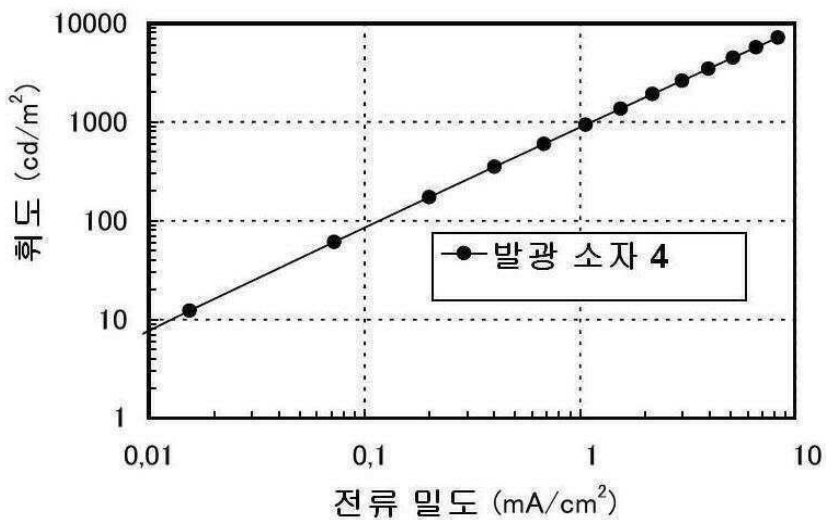
(A)



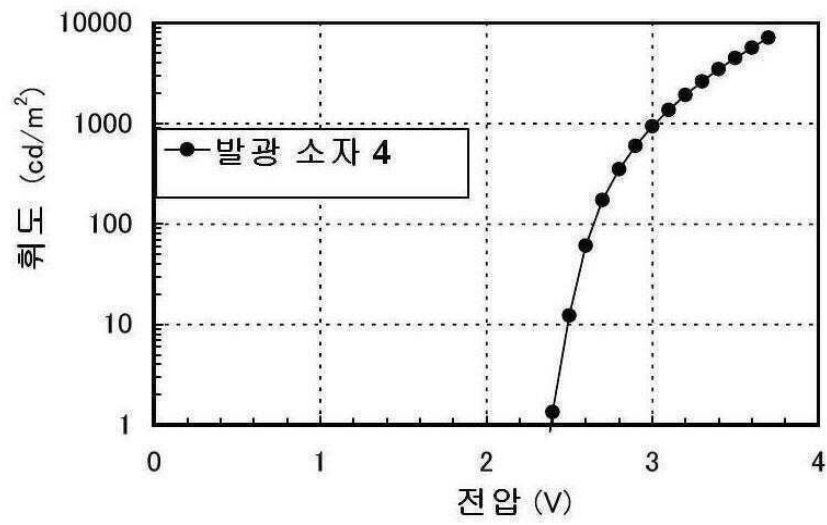
(B)



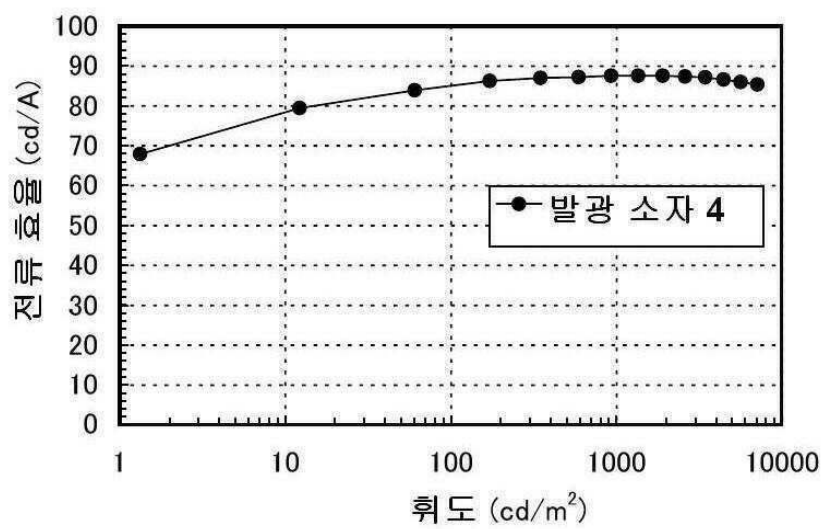
도면23



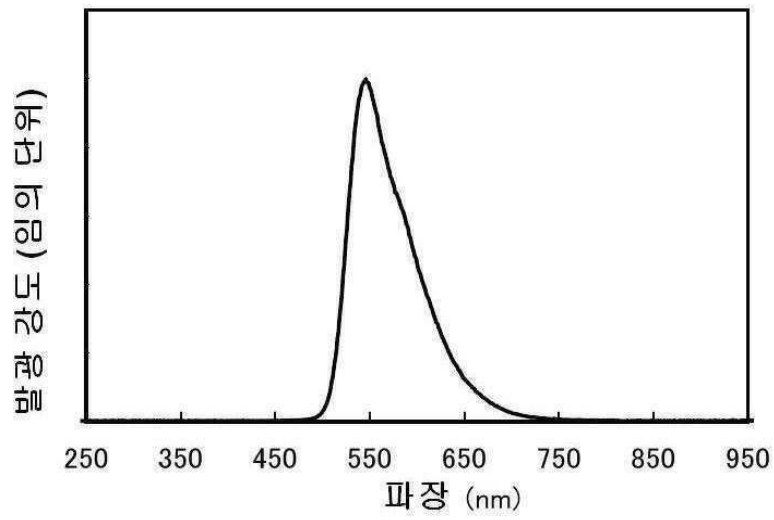
도면24



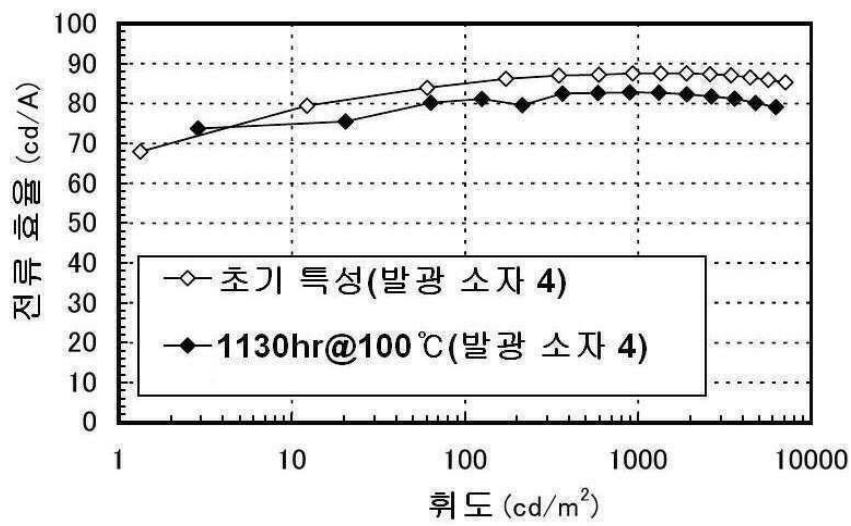
도면25



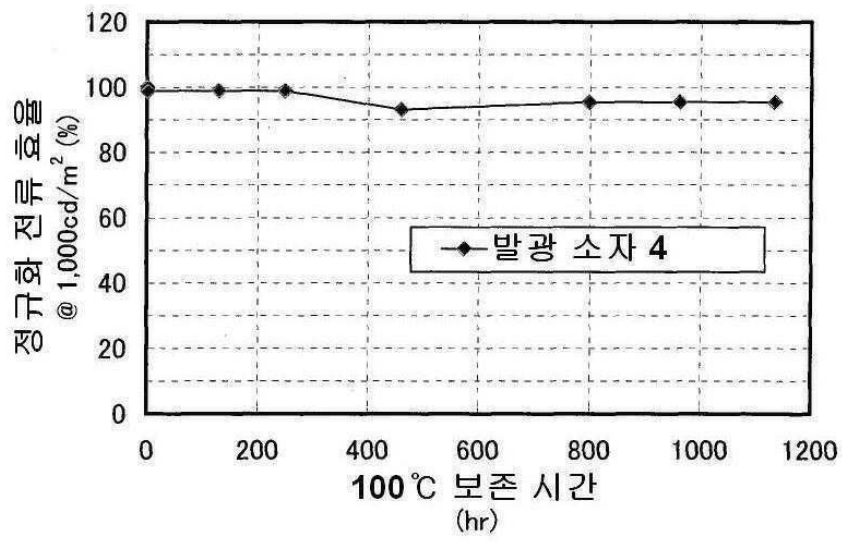
도면26



도면27

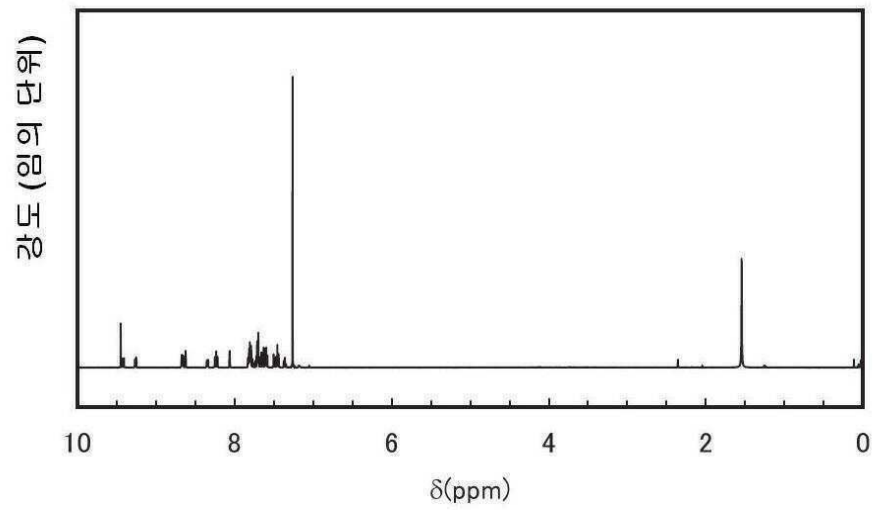


도면28

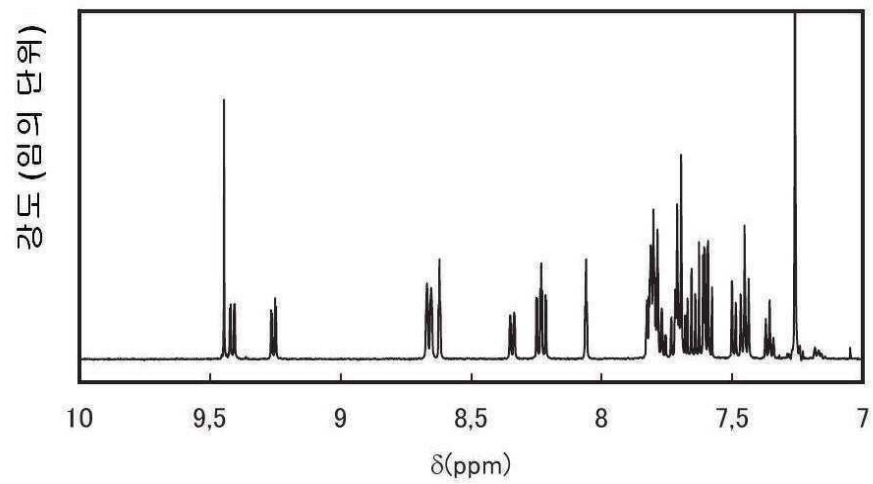


도면29

(A)

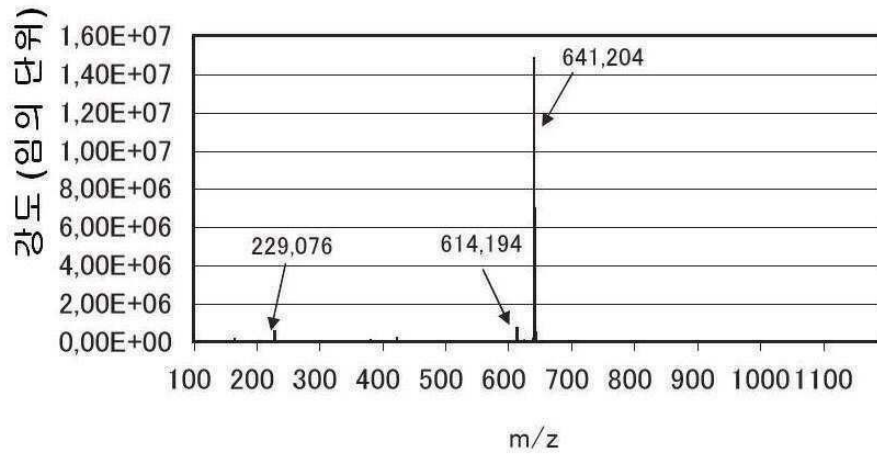


(B)

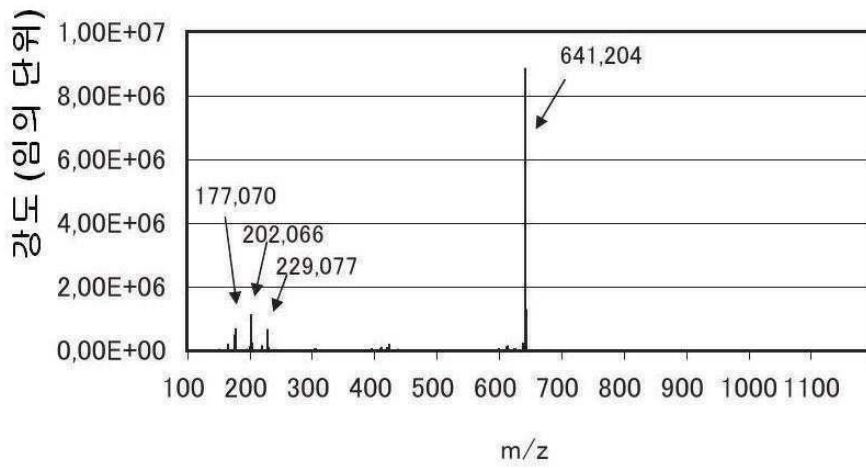


도면30

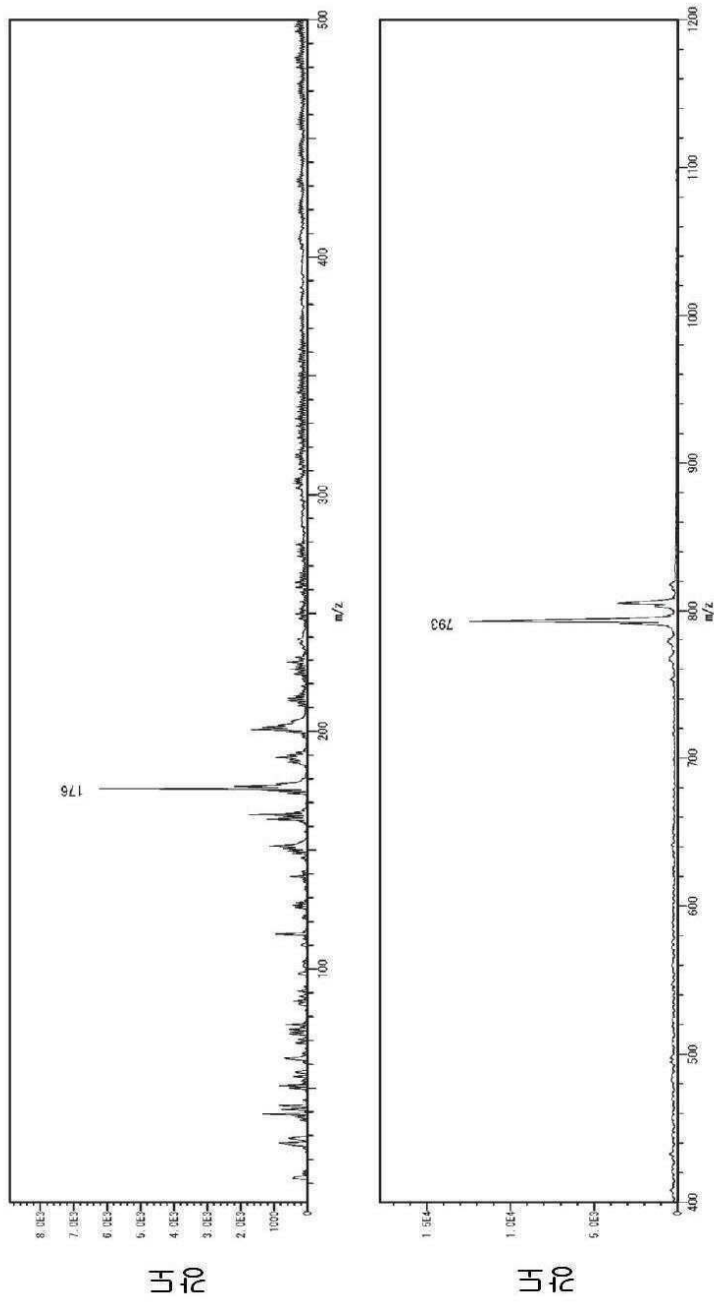
(A)



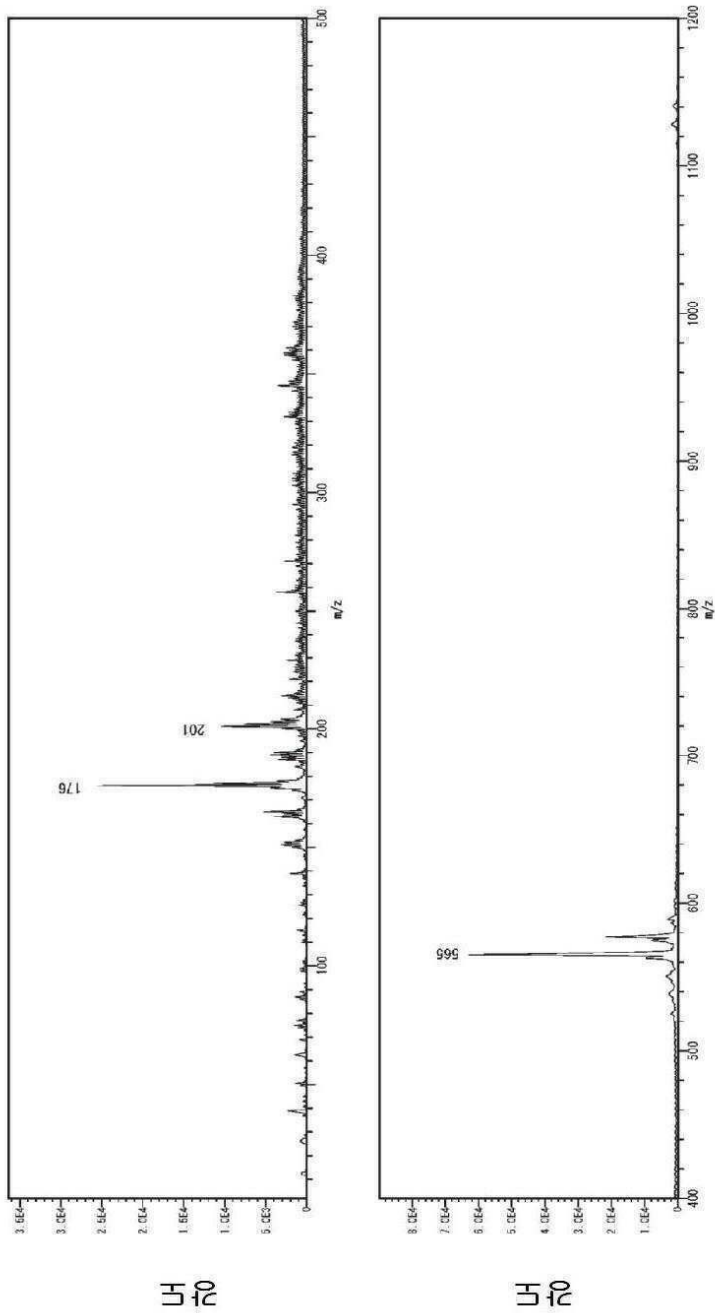
(B)



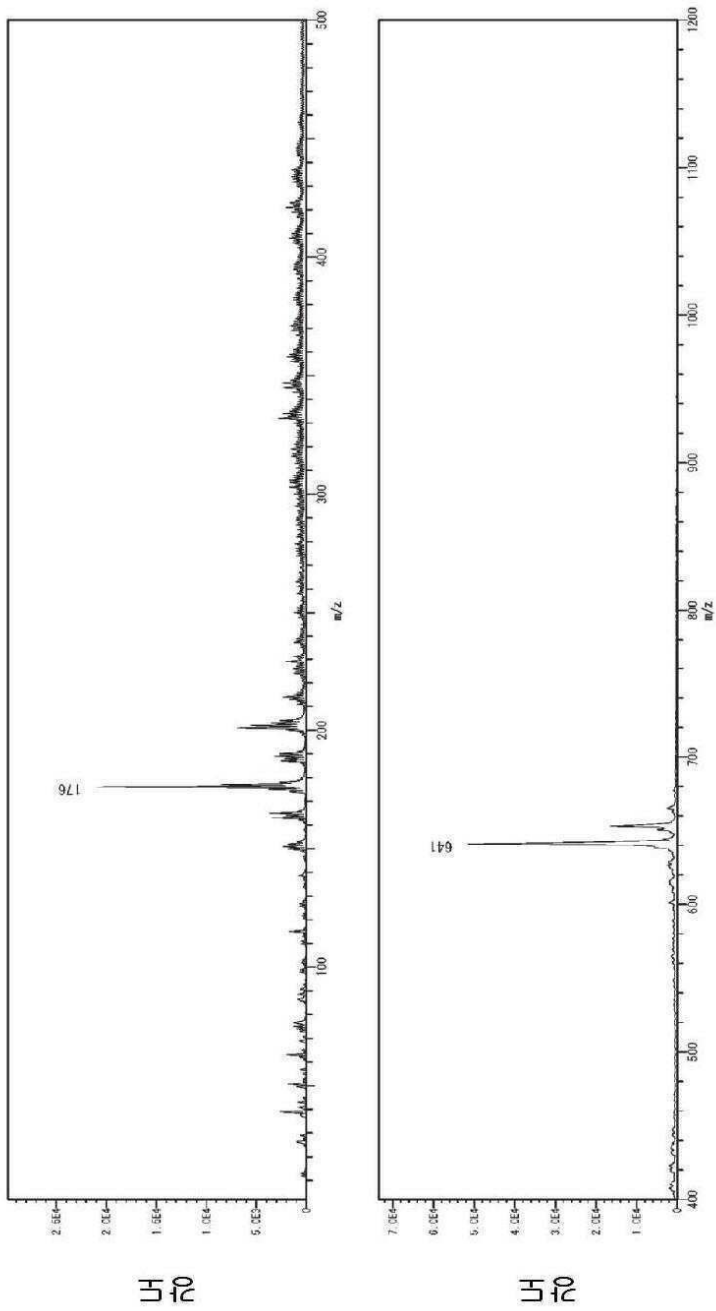
도면31



도면32

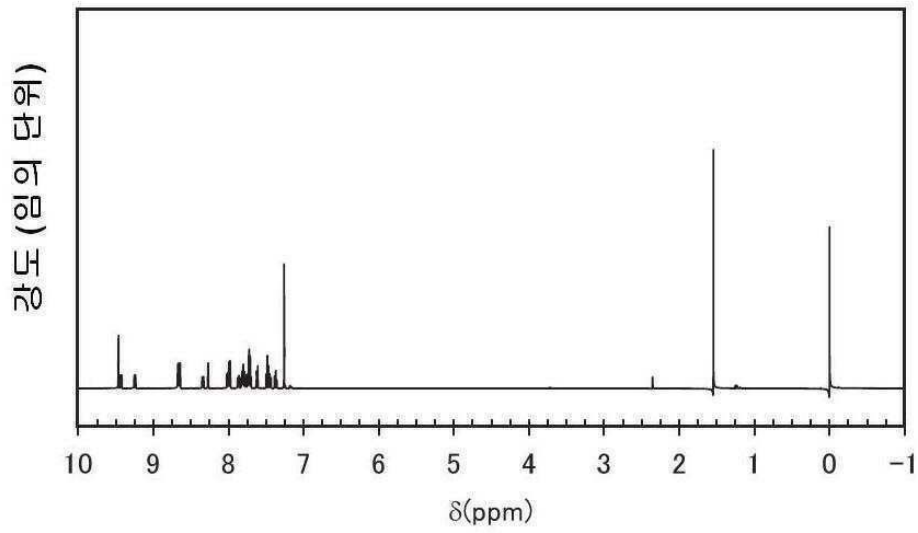


도면33

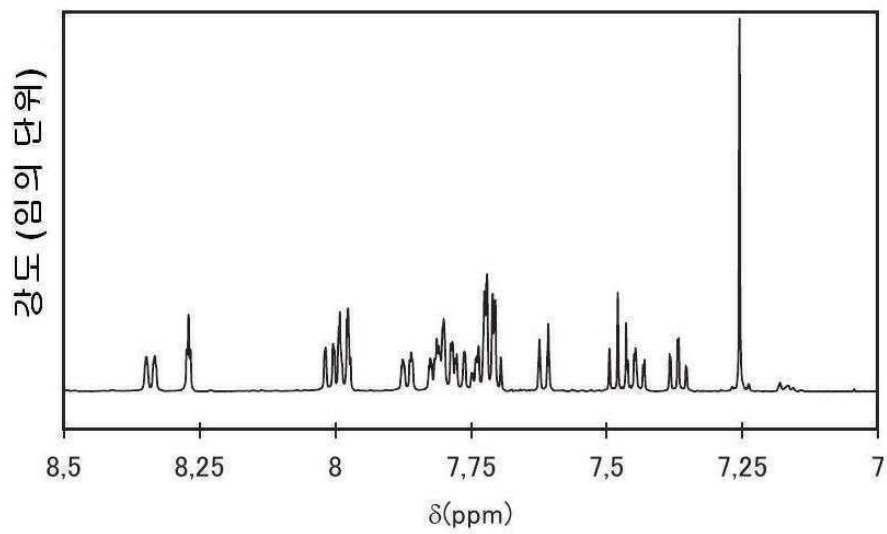


도면34

(A)



(B)



도면35

