



(19) 대한민국특허청(KR)

(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2022년10월19일

(11) 등록번호 10-2457008

(24) 등록일자 2022년10월17일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C07D 239/24 (2006.01) *C09K 11/06* (2006.01)
H01L 51/50 (2006.01)

(52) CPC특허분류
C07D 239/24 (2013.01)
C09K 11/06 (2022.01)

(21) 출원번호 10-2015-0068139

(22) 출원일자 2015년05월15일
 심사청구일자 2020년05월11일

(65) 공개번호 10-2015-0135097

(43) 공개일자 2015년12월02일

(30) 우선권주장
 JP-P-2014-106780 2014년05월23일 일본(JP)

(56) 선행기술조사문헌
 JP2006-510732A.*
 JP2013-209366A.*
 KR10-2010-0131745A.*
 *는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자
 가부시킴가이샤 한도오파이 에네루기 쉐큐쇼
 일본국 가나가와켄 아쓰기시 하세 398

(72) 발명자
 이노우에 히데코
 일본국 243-0036 가나가와켄 아쓰기시 하세 398
 가부시킴가이샤 한도오파이 에네루기 쉐큐쇼 내
 하라 토모카
 일본국 243-0036 가나가와켄 아쓰기시 하세 398
 가부시킴가이샤 한도오파이 에네루기 쉐큐쇼 내
 (뒷면에 계속)

(74) 대리인
 황의만

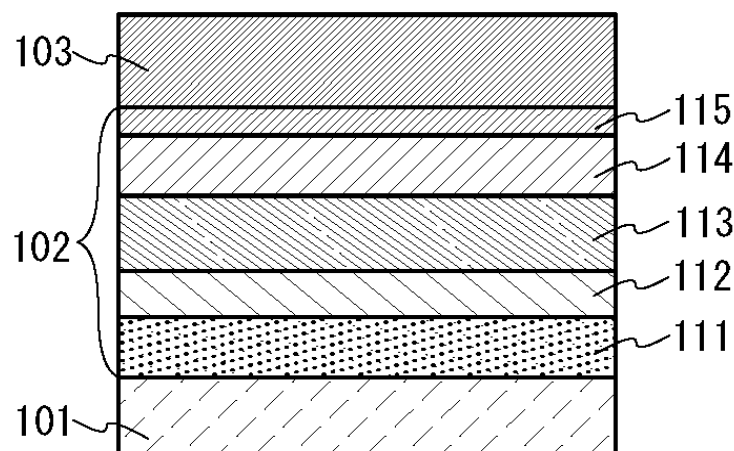
전체 청구항 수 : 총 10 항

심사관 : 장봉호

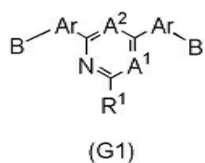
(54) 발명의 명칭 **헤테로고리 화합물, 발광 소자, 발광 장치, 전자 기기, 및 조명 장치****(57) 요약**

본 발명은 신규 헤테로고리 화합물을 제공한다. 또한, 발광 소자에 사용될 수 있는 신규 헤테로고리 화합물을 제공한다. 또한, 신규 헤테로고리 화합물을 사용한 발광 소자를 적용한 신뢰성이 높은 발광 장치, 전자 기기, 및 조명 장치를 제공한다.

(뒷면에 계속)

대 표 도 - 도1

본 발명의 일 형태는 일반식(G1)으로 표기되는 헤테로고리 화합물이다.



(다만, 일반식(G1)에서 A¹ 및 A²는 각각 독립적으로 질소, 또는 수소와 결합된 탄소를 나타내고, A¹ 및 A² 중 적어도 한쪽은 질소를 나타낸다. 또한, Ar은 치환 또는 비치환된 탄소수 6~18의 아릴렌기를 나타내고, B는 치환 또는 비치환된 플루오레닐기를 나타낸다. 또한, R¹은 수소, 탄소수 1~6의 알킬기, 탄소수 6~13의 아릴기 중 어느 것을 나타낸다.)

(52) CPC특허분류

H01L 51/50 (2013.01)

C09K 2211/1044 (2013.01)

(72) 발명자

키타노 야스시

일본국 243-0036 가나가와켄 아쓰기시 하세 398 가
부시키가이샤 한도오파이 에네루기 켄큐쇼 내

세오 히로미

일본국 243-0036 가나가와켄 아쓰기시 하세 398 가
부시키가이샤 한도오파이 에네루기 켄큐쇼 내

타카하시 타츠요시

일본국 243-0036 가나가와켄 아쓰기시 하세 398 가
부시키가이샤 한도오파이 에네루기 켄큐쇼 내

세오 사토시

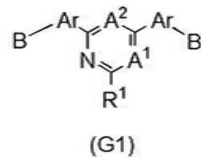
일본국 243-0036 가나가와켄 아쓰기시 하세 398 가
부시키가이샤 한도오파이 에네루기 켄큐쇼 내

명세서

청구범위

청구항 1

식(G1)으로 표기되는 화합물에 있어서,

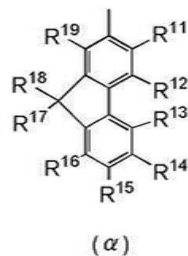


A^1 및 A^2 는 각각 독립적으로 질소, 및 수소와 결합된 탄소 중 하나를 나타내고,

A^1 및 A^2 중 적어도 한쪽은 질소를 나타내고,

Ar은 1,2-페닐렌기, 1,3-페닐렌기, 1,4-페닐렌기, 2,6-톨루일렌기, 3,5-톨루일렌기, 2,4-톨루일렌기, 4,6-다이메틸벤젠-1,3-다이일기, 2,4,6-트라이메틸벤젠-1,3-다이일기, 2,3,5,6-테트라메틸벤젠-1,4-다이일기, 3,3'-바이페닐렌기, 3,4'-바이페닐렌기, 4,4'-바이페닐렌기, 1,1':3',1''-터벤젠-3,3''-다이일기, 1,1':4',1''-터벤젠-3,3''-다이일기, 1,1':4',1''-터벤젠-4,4''-다이일기, 1,4-나프틸렌기, 1,5-나프틸렌기, 2,6-나프틸렌기, 2,7-나프틸렌기, 2,7-플루오레닐렌기, 9,9-다이메틸-2,7-플루오레닐렌기, 9,9-다이페닐-2,7-플루오레닐렌기, 9,9-다이이메틸-1,4-플루오레닐렌기, 스피로-9,9'-바이플루오렌-2,7-다이일기, 9,10-다이하이드로-2,7-페난트레닐렌기, 2,7-페난트레닐렌기, 3,6-페난트레닐렌기 또는 9,10-페난트레닐렌기를 나타내고,

B는 식(α)를 나타내고,



$R^{11} \sim R^{19}$ 는 각각 독립적으로 수소, 탄소수 1~6의 알킬기, 및 탄소수 6~12의 아릴기 중 하나를 나타내고,

R^1 은 수소, 탄소수 1~6의 알킬기, 및 탄소수 6~13의 아릴기 중 하나를 나타내는, 화합물.

청구항 2

삭제

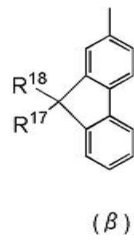
청구항 3

삭제

청구항 4

제 1 항에 있어서,

상기 식(G1)에서 B는 식(β)으로 표기되고,



R^{17} 및 R^{18} 은 각각 독립적으로 수소, 탄소수 1~6의 알킬기, 및 탄소수 6~12의 아릴기 중 하나를 나타내는, 화합물.

청구항 5

삭제

청구항 6

삭제

청구항 7

삭제

청구항 8

삭제

청구항 9

삭제

청구항 10

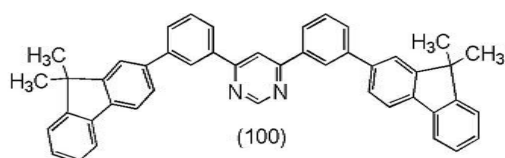
삭제

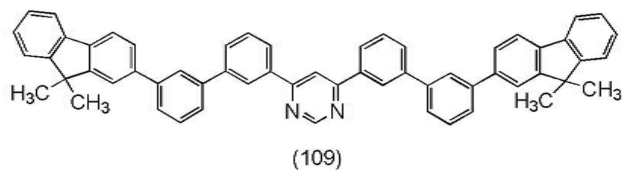
청구항 11

삭제

청구항 12

식(100) 및 식(109) 중 하나로 표기되는, 화합물.





청구항 13

제 1 항 또는 제 12 항에 따른 화합물을 포함하는, 발광 소자.

청구항 14

제 1 항 또는 제 12 항에 따른 화합물을 포함하는 발광 소자에 있어서,

한 쌍의 전극; 및

상기 한 쌍의 전극 사이의 EL층을 포함하고,

상기 화합물은 상기 EL층 내에 있는, 발광 소자.

청구항 15

제 1 항 또는 제 12 항에 따른 화합물을 포함하는 발광 소자에 있어서,

한 쌍의 전극;

상기 한 쌍의 전극 사이의 EL층; 및

상기 EL층 내의 발광층을 포함하고,

상기 발광층은 상기 화합물을 포함하는, 발광 소자.

청구항 16

제 1 항 또는 제 12 항에 따른 화합물을 포함하는 발광 소자에 있어서,

한 쌍의 전극;

상기 한 쌍의 전극 사이의 EL층; 및

상기 EL층 내에 있고 3종류 이상의 유기 화합물을 포함하는 발광층을 포함하고,

상기 3종류 이상의 유기 화합물 중 하나가 상기 화합물인, 발광 소자.

청구항 17

제 13 항에 따른 발광 소자를 포함하는 발광 장치에 있어서,

트랜지스터 및 기판 중 적어도 하나를 포함하는, 발광 장치.

청구항 18

제 17 항에 따른 발광 장치를 포함하는 전자 기기에 있어서,

마이크로폰, 카메라, 조작용 버튼, 외부 접속부, 및 스피커 중 적어도 하나를 포함하는, 전자 기기.

청구항 19

제 17 항에 따른 발광 장치를 포함하는 조명 장치에 있어서,

하우징, 커버, 및 지지대 중 적어도 하나를 포함하는, 조명 장치.

발명의 설명

기술 분야

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

배경 기술

- [0002] 박형, 경량, 고속 응답성, 직류 저전압 구동 등의 특징을 가지는 유기 화합물을 발광체로서 사용한 발광 소자는 차세대 평판 디스플레이로의 응용이 기대되고 있다. 특히 발광 소자를 매트릭스 형태로 배치한 표시 장치는 종래의 액정 표시 장치에 비하여 시야각이 넓고 시인성이 우수한 점에서 우위성이 있다고 생각되고 있다.
- [0003] 발광 소자는 한 쌍의 전극 사이에, 발광체를 포함한 EL(electroluminescence)층을 끼워 전압을 인가함으로써, 음극으로부터 주입된 전자 및 양극으로부터 주입된 정공이 EL층의 발광 중심에서 재결합하여 분자 여기자를 형성하고, 그 분자 여기자가 기저 상태로 완화될 때에 에너지를 방출하여 발광한다는 발광 기구(機構)를 가지는 것으로 알려져 있다. 여기 상태로서는 일중항 여기(singlet excitation)와 삼중항 여기(triplet excitation)가 알려져 있으며, 발광은 어느 쪽 여기 상태를 거쳐서도 가능한 것으로 생각되고 있다.
- [0004] 이러한 발광 소자에서 EL층에 주로 사용되는 유기 화합물은 발광 소자의 소자 특성의 향상에 크게 영향을 주기 때문에 다양한 신규 유기 화합물의 개발이 행해지고 있다(예를 들어, 특허문헌 1 참조).

선행기술문헌

특허문헌

- [0005] (특허문헌 0001) 일본국 특개 2011-201869호 공보

발명의 내용

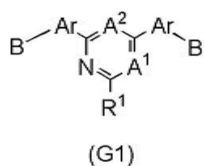
해결하려는 과제

- [0006] 그래서 본 발명의 일 형태는 신규 헤테로고리 화합물을 제공한다. 또한, 안정된 분자 구조를 가지는 신규 헤테로고리 화합물을 제공한다. 또한, 발광 소자에 사용될 수 있는 신규 헤테로고리 화합물을 제공한다. 또한, 발광 소자의 EL층에 사용될 수 있는 신규 헤테로고리 화합물을 제공한다. 또한, 본 발명의 일 형태에 따른 신규 헤테로고리 화합물을 사용한 발광 소자를 제공한다. 또한, 본 발명의 일 형태에 따른 신규 헤테로고리 화합물을 사용한 발광 소자를 적용한 신뢰성이 높은 발광 장치, 전자 기기, 및 조명 장치를 제공한다. 또는, 본 발명의 일 형태는 신규 발광 소자, 신규 발광 장치, 또는 신규 조명 장치 등을 제공한다. 또한, 이들 과제의 기재는 다른 과제의 존재를 방해하는 것은 아니다. 또한, 본 발명의 일 형태는 반드시 상술한 모든 과제를 해결할 필요는 없다. 또한, 상술한 것 이외의 과제는 명세서, 도면, 청구항 등의 기재로부터 저절로 명백해지는 것이며 명세서, 도면, 청구항 등의 기재로부터 상술한 것 이외의 과제가 추출될 수 있다.

과제의 해결 수단

- [0007] 본 발명의 일 형태는 헤테로고리 골격과 플루오렌 골격이 아릴렌기를 통하여 결합된 화합물이다.

[0008] 본 발명의 일 형태는 아래의 일반식(G1)으로 표기되는 헤테로고리 화합물이다.

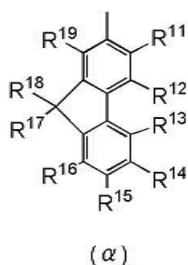


[0009]

[0010] (다만, 일반식(G1)에서 A^1 및 A^2 는 각각 독립적으로 질소, 또는 수소와 결합된 탄소를 나타내고, A^1 및 A^2 중 적어도 한쪽은 질소를 나타낸다. 또한, Ar은 치환 또는 비치환된 탄소수 6~18의 아릴렌기를 나타내고, B는 치환 또는 비치환된 플루오레닐기를 나타낸다. 또한, R^1 은 수소, 탄소수 1~6의 알킬기, 탄소수 6~13의 아릴기 중 어느 것을 나타낸다.)

[0011] 또한, 본 발명의 다른 일 형태는 위의 일반식(G1)에서 B가 치환 또는 비치환된 2-플루오레닐기인 헤테로고리 화합물이다.

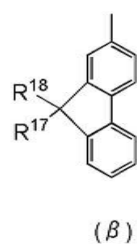
[0012] 또한, 본 발명의 다른 일 형태는 위의 일반식(G1)에서 B가 아래의 일반식(α)으로 표기되는 헤테로고리 화합물이다.



[0013]

[0014] (다만, 일반식(α)에서 $R^{11} \sim R^{19}$ 는 각각 독립적으로 수소, 탄소수 1~6의 알킬기, 탄소수 6~12의 아릴기를 나타낸다.)

[0015] 또한, 본 발명의 다른 일 형태는 위의 일반식(G1)에서 B가 아래의 일반식(β)으로 표기되는 헤테로고리 화합물이다.

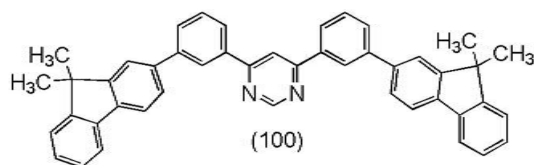


[0016]

[0017] (다만, 일반식(β)에서 R^{17} 및 R^{18} 은 각각 독립적으로 수소, 탄소수 1~6의 알킬기, 탄소수 6~12의 아릴기를 나타낸다.)

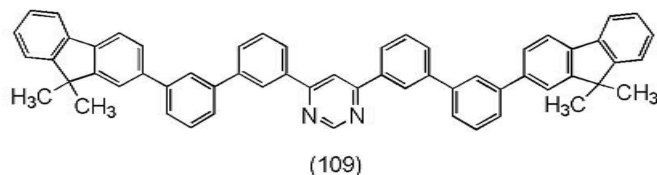
[0018] 또한, 위의 일반식(G1)에서 Ar은 치환 또는 비치환된 탄소수 6~18의 아릴렌기이며 페닐렌기, 바이페닐렌기 등일 수 있다. 또한, 위의 일반식(α), 일반식(β), 및 일반식(G1)에서 탄소수 1~6의 알킬기로서는 메틸기, 에틸기, 프로필기, 아이소프로필기, 뷰틸기 등을 들 수 있다. 또한, 위의 일반식(α) 및 일반식(β)에서 탄소수 6~12의 아릴기로서는 페닐기, 나프틸기, 바이페닐기 등을 들 수 있다.

[0019] 또한, 본 발명의 다른 일 형태는 아래의 구조식(100)으로 표기되는 헤테로고리 화합물이다.



[0020]

[0021] 또한, 본 발명의 다른 일 형태는 아래의 구조식(109)으로 표기되는 헤테로고리 화합물이다.



[0022]

[0023] 또한, 본 발명의 다른 일 형태는 상술한 각 구성의 헤테로고리 화합물을 포함하는 발광 소자이다.

[0024] 또한, 본 발명의 다른 일 형태는 상술한 각 구성의 발광 소자를 포함하며 트랜지스터 및 기판 중 적어도 하나를 가지는 발광 장치이다.

[0025] 또한, 본 발명의 일 형태는 발광 소자를 가지는 발광 장치뿐만 아니라 발광 장치를 사용한 전자 기기 및 조명 장치도 그 범주에 포함한다.

[0026] 따라서, 본 발명의 다른 일 형태는 상술한 각 구성의 발광 장치를 포함하며 마이크로폰, 카메라, 조작용 버튼, 외부 접속부, 및 스피커 중 적어도 하나를 가지는 전자 기기이다. 또한, 본 발명의 다른 일 형태는 상술한 각 구성의 발광 장치를 포함하며 하우징, 커버, 및 지지대 중 적어도 하나를 가지는 전자 기기이다.

[0027] 또한, 본 명세서에 있어서 발광 장치란, 화상 표시 디바이스 또는 광원(조명 장치를 포함함)을 가리킨다. 또한, 발광 장치에 커넥터, 예를 들어 FPC(Flexible Printed Circuit) 또는 TCP(Tape Carrier Package)가 장착된 모듈, TCP 끝에 프린트 배선판이 제공된 모듈, 또는 발광 소자에 COG(Chip On Glass) 방식으로 IC(집적 회로)가 직접 실장된 모듈도 모두 발광 장치의 범주에 포함된다.

발명의 효과

[0028] 본 발명의 일 형태에 의하여 신규 헤테로고리 화합물을 제공할 수 있다. 또한, 본 발명의 일 형태에 따른 신규 헤테로고리 화합물은 헤테로고리 골격(피리미딘 골격 또는 트리아진 골격)과 플루오렌 골격이 아릴렌기를 통하여 결합된 구조를 가진다. 또한, 본 발명의 일 형태에 따른 신규 헤테로고리 화합물은 반응 중간체인 플루오렌 유도체의 고순도화가 가능하며 이 중간체를 사용하여 합성함으로써 고순도의 헤테로고리 화합물을 얻을 수 있다. 또한, 플루오렌 골격을 가짐으로써 헤테로고리 화합물의 유기 용매에 대한 용해성이 높아지기 때문에, 용매를 사용하여 정제하는 것에 의하여 불순물을 저감할 수 있어 고순도의 헤테로고리 화합물을 얻을 수 있다. 또한, 이 고순도 헤테로고리 화합물을 EL 재료로서 사용하면 신뢰성이 높은 신규 발광 소자, 발광 장치, 전자 기기, 또는 조명 장치를 제공할 수 있다. 또한, 이들 효과의 기제는 다른 효과의 존재를 방해하는 것은 아니다. 또한, 본 발명의 일 형태는 반드시 상술한 모든 효과를 가질 필요는 없다. 또한, 상술한 것 이외의 효과는 명세서, 도면, 청구항 등의 기재로부터 저절로 명백해지는 것이며 명세서, 도면, 청구항 등의 기재로부터 상술한 것 이외의 효과가 추출될 수 있다.

도면의 간단한 설명

[0029] 도 1은 발광 소자의 구조에 대하여 설명하기 위한 도면.

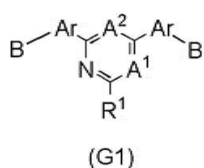
도 2는 발광 소자의 구조에 대하여 설명하기 위한 도면.

도 3은 발광 장치에 대하여 설명하기 위한 도면.

- 도 4는 전자 기기에 대하여 설명하기 위한 도면.
 도 5는 전자 기기에 대하여 설명하기 위한 도면.
 도 6은 조명 기구에 대하여 설명하기 위한 도면.
 도 7은 구조식(100)으로 표기되는 헤테로고리 화합물의 $^1\text{H-NMR}$ 차트.
 도 8은 구조식(100)으로 표기되는 헤테로고리 화합물의 LC-MS 측정 결과를 나타낸 도면.
 도 9는 구조식(109)으로 표기되는 헤테로고리 화합물의 $^1\text{H-NMR}$ 차트.
 도 10은 구조식(109)으로 표기되는 헤테로고리 화합물의 LC-MS 측정 결과를 나타낸 도면.
 도 11은 실시예 3에 기재된 발광 소자의 구조를 설명하기 위한 도면.
 도 12는 발광 소자 1의 전압-휘도 특성을 나타낸 도면.
 도 13은 발광 소자 1의 휘도-전류 효율 특성을 나타낸 도면.
 도 14는 발광 소자 1의 전압-전류 특성을 나타낸 도면.
 도 15는 발광 소자 1의 발광 스펙트럼을 나타낸 도면.
 도 16은 발광 소자 1의 신뢰성을 나타낸 도면.
 도 17은 발광 소자 2의 전압-휘도 특성을 나타낸 도면.
 도 18은 발광 소자 2의 휘도-전류 효율 특성을 나타낸 도면.
 도 19는 발광 소자 2의 전압-전류 특성을 나타낸 도면.
 도 20은 발광 소자 2의 발광 스펙트럼을 나타낸 도면.
 도 21은 발광 소자 3의 전압-휘도 특성을 나타낸 도면.
 도 22는 발광 소자 3의 휘도-전류 효율 특성을 나타낸 도면.
 도 23은 발광 소자 3의 전압-전류 특성을 나타낸 도면.
 도 24는 발광 소자 3의 발광 스펙트럼을 나타낸 도면.
 도 25는 발광 소자 2의 신뢰성을 나타낸 도면.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0030] 아래에서 본 발명의 실시형태에 대하여 도면을 사용하여 자세히 설명한다. 다만, 본 발명은 아래에 기재된 설명에 한정되지 않고 본 발명의 취지 및 그 범위에서 벗어남이 없이 그 형태 및 상세한 사항을 다양하게 변경할 수 있다. 따라서, 본 발명은 아래에 기재된 실시형태의 내용에 한정하여 해석되는 것은 아니다.
- [0031] (실시형태 1)
- [0032] 본 실시형태에서는 본 발명의 일 형태에 따른 헤테로고리 화합물에 대하여 설명한다. 또한, 본 발명의 일 형태에 따른 헤테로고리 화합물은 헤테로고리 골격(피리미딘 골격 또는 트리아진 골격)과 플루오렌 골격이 아릴렌기를 통하여 결합된 구조를 가지는 화합물이다.
- [0033] 본 발명의 일 형태는 아래의 일반식(G1)으로 표기되는 헤테로고리 화합물이다.

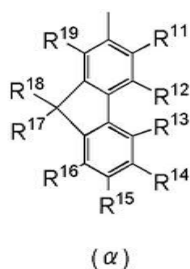


[0034]

[0035] (다만, 일반식(G1)에서 A^1 및 A^2 는 각각 독립적으로 질소, 또는 수소와 결합된 탄소를 나타내고, A^1 및 A^2 중 적어도 한쪽은 질소를 나타낸다. 또한, Ar은 치환 또는 비치환된 탄소수 6~18의 아릴렌기를 나타내고, B는 치환 또는 비치환된 플루오레닐기를 나타낸다. 또한, R^1 은 수소, 탄소수 1~6의 알킬기, 탄소수 6~13의 아릴기 중 어느 것을 나타낸다.)

[0036] 또한, 본 발명의 다른 일 형태는 위의 일반식(G1)에서 B가 치환 또는 비치환된 2-플루오레닐기인 헤테로고리 화합물이다.

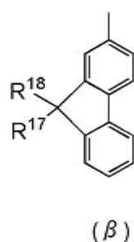
[0037] 또한, 본 발명의 다른 일 형태는 위의 일반식(G1)에서 B가 아래의 일반식(α)으로 표기되는 헤테로고리 화합물이다.



[0038]

[0039] (다만, 일반식(α)에서 $R^{11} \sim R^{19}$ 는 각각 독립적으로 수소, 탄소수 1~6의 알킬기, 탄소수 6~12의 아릴기를 나타낸다.)

[0040] 또한, 본 발명의 다른 일 형태는 위의 일반식(G1)에서 B가 아래의 일반식(β)으로 표기되는 헤테로고리 화합물이다.



[0041]

[0042] (다만, 일반식(β)에서 R^{17} 및 R^{18} 은 각각 독립적으로 수소, 탄소수 1~6의 알킬기, 탄소수 6~12의 아릴기를 나타낸다.)

[0043] 또한, 위의 일반식(G1)에서 Ar은 치환 또는 비치환된 탄소수 6~18의 아릴렌기이며 페닐렌기, 바이페닐렌기 등일 수 있다. 구체적으로는 1,2-페닐렌기, 1,3-페닐렌기, 1,4-페닐렌기, 2,6-톨루일렌기, 3,5-톨루일렌기, 2,4-톨루일렌기, 4,6-다이메틸벤젠-1,3-다이일기, 2,4,6-트라이메틸벤젠-1,3-다이일기, 2,3,5,6-테트라메틸벤젠-1,4-다이일기, 3,3'-바이페닐렌기, 3,4'-바이페닐렌기, 4,4'-바이페닐렌기, 1,1':3',1''-터벤젠-3,3''-다이일기, 1,1':4',1''-터벤젠-3,3''-다이일기, 1,1':4',1''-터벤젠-4,4''-다이일기, 1,4-나프틸렌기, 1,5-나프틸렌기, 2,6-나프틸렌기, 2,7-나프틸렌기, 2,7-플루오레닐렌기, 9,9-다이메틸-2,7-플루오레닐렌기, 9,9-다이페닐-2,7-플루오레닐렌기, 9,9-다이메틸-1,4-플루오레닐렌기, 스파이로-9,9'-바이플루오렌-2,7-다이일기, 9,10-다이하이드로-2,7-페난트레닐렌기, 2,7-페난트레닐렌기, 3,6-페난트레닐렌기, 9,10-페난트레닐렌기 등을 들 수 있다. 또한, 결합이 가능하다면 결합 위치는 한정되지 않는다.

[0044] 또한, 위의 일반식(α), 일반식(β), 및 일반식(G1)에서 탄소수 1~6의 알킬기의 구체적인 예로서는 메틸기, 에틸기, 프로필기, 아이소프로필기, 뷰틸기, sec-뷰틸기, 아이소뷰틸기, tert-뷰틸기, 펜틸기, 아이소펜틸기, sec-펜틸기, tert-펜틸기, 네오펜틸기, 헥실기, 아이소헥실기, sec-헥실기, tert-헥실기, 네오헥실기, 3-메틸펜틸기, 2-메틸펜틸기, 2-에틸뷰틸기, 1,2-다이메틸뷰틸기, 2,3-다이메틸뷰틸기 등을 들 수 있다.

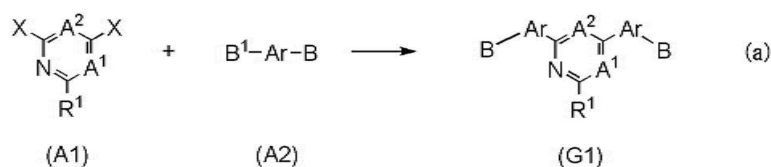
[0045] 또한, 위의 일반식(α), 일반식(β), 및 일반식(G1)에서 탄소수 6~12의 아릴기의 구체적인 예로서는 페닐기,

나프틸기, 바이페닐기 등을 들 수 있다. 또한, 결합이 가능하다면 결합 위치는 한정되지 않는다.

[0046] 다음에, 본 발명의 일 형태에 따른 헤테로고리 화합물의 합성 방법의 일례로서, 위의 일반식(G1)으로 표기되는 헤테로고리 화합물의 합성 방법의 일례에 대하여 설명한다.

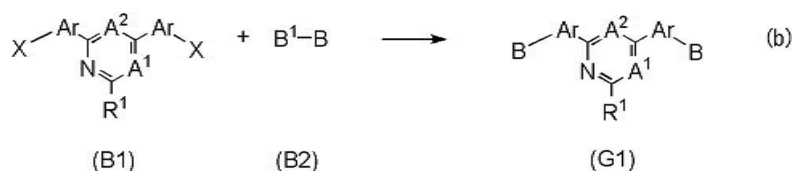
[0047] <<일반식(G1)으로 표기되는 헤테로고리 화합물의 합성 방법>>

[0048] 일반식(G1)으로 표기되는 헤테로고리 화합물은 아래와 같은 간편한 합성 스킴으로 합성할 수 있다. 예를 들어, 아래의 합성 스킴(a)과 같이 피리미딘 유도체 또는 트리아진 유도체의 할로젠 화합물(A1)과 플루오렌 유도체로 치환된 아릴보론산 화합물(A2)을 반응시킴으로써 얻을 수 있다.



[0049]

[0050] 또한, 아래의 합성 스킴(b)과 같이 아릴기로 치환된 피리미딘 유도체 또는 트리아진 유도체(B1)를 얻은 후에 그것과 플루오렌 유도체의 보론산 화합물(B2)을 반응시켜도 좋다.



[0051]

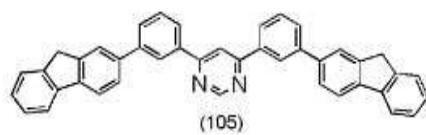
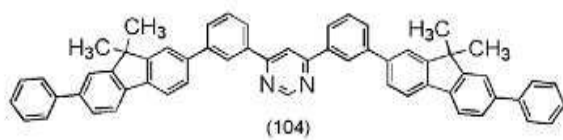
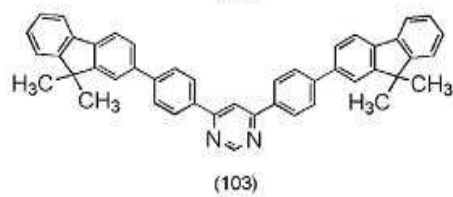
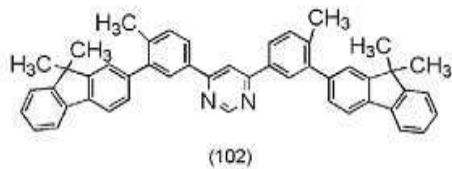
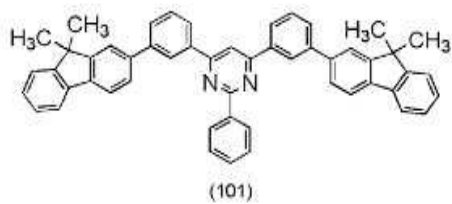
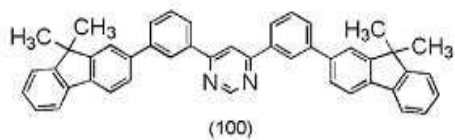
[0052] 또한, 위의 합성 스킴(a) 및 합성 스킴(b)에서 A^1 및 A^2 는 각각 독립적으로 질소, 또는 수소와 결합된 탄소를 나타내고, A^1 및 A^2 중 적어도 한쪽은 질소를 나타낸다. 또한, Ar은 치환 또는 비치환된 탄소수 6~18의 아릴렌기를 나타내고, B는 치환 또는 비치환된 플루오레닐기를 나타낸다. 또한, B^1 은 보론산 또는 보론산에스터 또는 고리형 트라이올보산염(cyclic-triolborate salt) 등을 나타내고, 고리형 트라이올보산염으로서는 리튬염 외에 칼륨염이나 나트륨염을 사용하여도 좋다. 또한, R^1 은 수소, 탄소수 1~6의 알킬기, 탄소수 6~13의 아릴기 중 어느 것을 나타낸다. 또한, X는 할로젠을 나타내고, 염소, 브로민, 또는 아이오딘인 것이 특히 바람직하다. 또한, 위의 합성 스킴(a) 및 합성 스킴(b)에서 팔라듐 촉매 등 공지의 촉매를 사용할 수 있다. 또한, 용매로서는 톨루엔, 자일렌, 에탄올 등의 알코올류, 또는 이들의 혼합 용매 등을 사용할 수 있다.

[0053] 여기서는 스킴을 기재하지 않지만, 피리미딘 유도체 또는 트리아진 유도체의 보론산 화합물과 플루오렌 유도체의 할로젠 화합물을 반응시켜도 좋다.

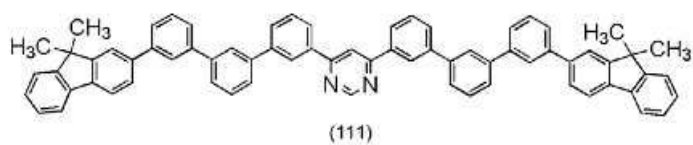
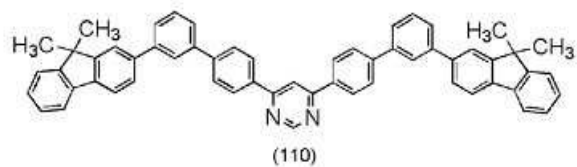
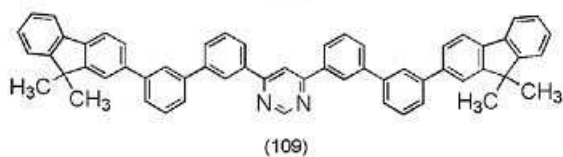
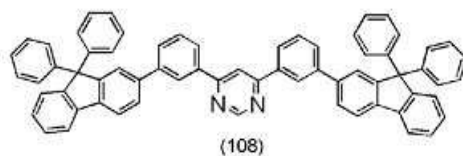
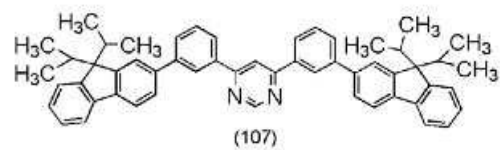
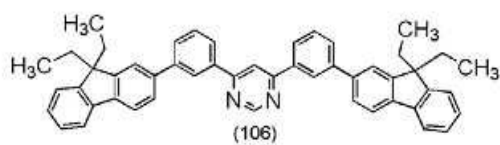
[0054] 또한, 위의 합성 스킴(a) 및 합성 스킴(b)에서의 화합물(A1), (A2), (B1), (B2)로서는 다양한 종류의 화합물이 시판되고 있거나 합성이 가능하기 때문에, 일반식(G1)으로 표기되는 헤테로고리 화합물로서 수많은 종류의 화합물을 합성할 수 있다. 따라서, 본 발명의 일 형태에 따른 헤테로고리 화합물은 베리에이션이 풍부하다는 특징을 가진다.

[0055] 이와 같이 본 발명의 일 형태로서 헤테로고리 화합물의 합성 방법의 일례에 대하여 설명하였지만 본 발명은 이에 한정되지 않고 다른 합성 방법으로 합성된 것이라도 좋다.

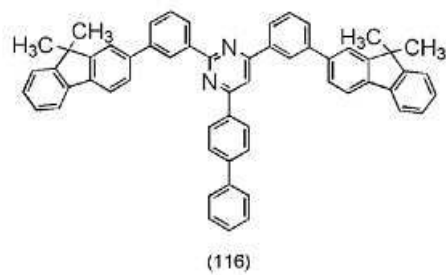
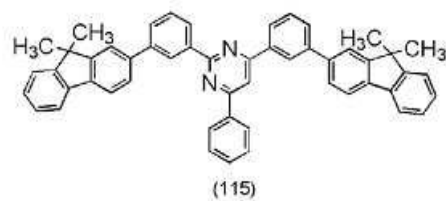
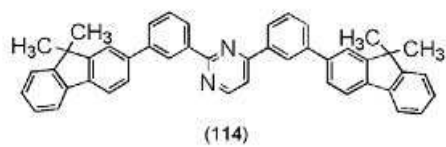
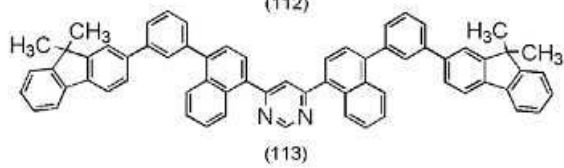
[0056] 또한, 본 발명의 일 형태에 따른 헤테로고리 화합물(일반식(G1))의 구체적인 구조식을 아래에 나타낸다(구조식(100)~(123)). 다만, 본 발명의 일 형태는 이들에 한정되지 않는다.



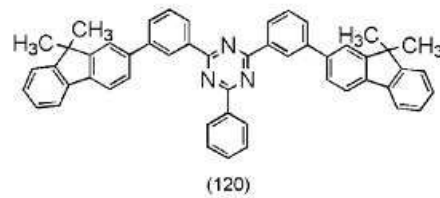
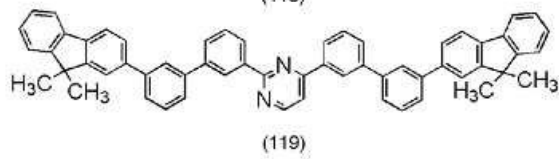
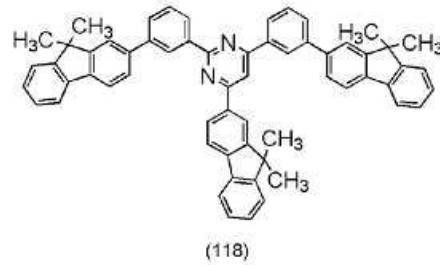
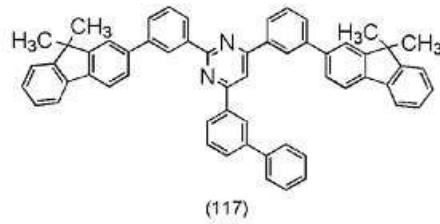
[0057]



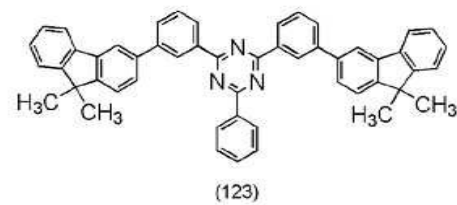
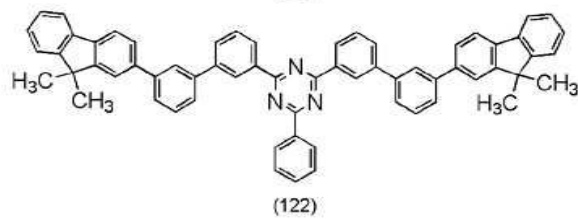
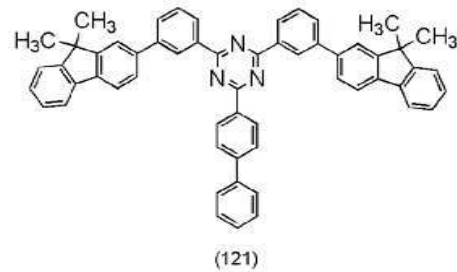
[0058]



[0059]



[0060]



[0061]

[0062]

또한, 본 발명의 일 형태에 따른 헤테로고리 화합물은 전자 수송 골격인 헤테로고리 골격(피리미딘 골격 또는 트리아진 골격)과 정공 수송 골격인 플루오렌 골격을 가지기 때문에 전자 및 정공을 용이하게 받을 수 있다. 따라서, 본 발명의 일 형태에 따른 헤테로고리 화합물을 발광층의 호스트 재료에 사용함으로써, 전자와 정공의 재결합을 발광층 내의 원하는 영역에서 이루어지게 할 수 있기 때문에 발광 소자의 수명의 저하를 억제할 수 있

다.

- [0063] 또한, 본 발명의 일 형태에 따른 헤테로고리 화합물은 헤테로고리 골격이 아릴렌기를 통하여 플루오렌 골격과 결합된 구조를 가지기 때문에 공액계의 확장을 억제할 수 있고 밴드갭의 축소나 삼중항 여기 에너지의 저하를 방지할 수 있다.
- [0064] 본 실시형태에 기재된 구성은 다른 실시형태에 기재된 구성과 적절히 조합하여 사용할 수 있다.
- [0065] (실시형태 2)
- [0066] 본 실시형태에서는 본 발명의 일 형태에 따른 헤테로고리 화합물을 EL 재료로서 사용할 수 있는 발광 소자의 일 형태에 대하여 도 1을 사용하여 설명한다.
- [0067] 본 실시형태에서 설명하는 발광 소자는, 도 1에 도시된 바와 같이 한 쌍의 전극(제 1 전극(양극)(101)과 제 2 전극(음극)(103)) 사이에 발광층(113)을 포함하는 EL층(102)이 제공되고, EL층(102)은 발광층(113)뿐만 아니라 정공(또는 홀) 주입층(111), 정공 수송층(112), 전자 수송층(114), 전자 주입층(115) 등을 포함하여 형성된다.
- [0068] 이와 같은 발광 소자에 전압을 인가함으로써, 제 1 전극(101) 측으로부터 주입된 정공과 제 2 전극(103) 측으로부터 주입된 전자가 발광층(113)에서 재결합되면서 발광층(113)에 포함되는 발광 물질을 여기 상태로 한다. 그리고, 여기 상태의 발광 물질이 기저 상태로 되돌아갈 때에 발광한다.
- [0069] 또한, 본 발명의 일 형태에 따른 헤테로고리 화합물은 본 실시형태에서 설명하는 EL층(102) 중 하나 또는 복수의 층에 사용될 수 있지만, 발광층(113), 정공 수송층(112), 또는 전자 수송층(114)에 사용하는 것이 더 바람직하다. 즉, 아래에서 설명하는 발광 소자의 구성의 일부에 사용한다.
- [0070] 아래에서 본 실시형태에서 설명하는 발광 소자를 제작함에 있어서 바람직한 예에 대하여 구체적으로 설명한다.
- [0071] 제 1 전극(양극)(101) 및 제 2 전극(음극)(103)에는 금속, 합금, 전기 전도성 화합물, 및 이들의 혼합물 등을 사용할 수 있다. 구체적으로는 산화 인듐-산화 주석(ITO: Indium Tin Oxide), 실리콘 또는 산화 실리콘을 포함하는 산화 인듐-산화 주석, 산화 인듐-산화 아연(Indium Zinc Oxide), 산화 텅스텐 및 산화 아연을 포함하는 산화 인듐, 금(Au), 백금(Pt), 니켈(Ni), 텅스텐(W), 크로뮴(Cr), 몰리브데넘(Mo), 철(Fe), 코발트(Co), 구리(Cu), 팔라듐(Pd), 타이타늄(Ti) 외에도, 원소 주기율표의 1족 또는 2족에 속하는 원소, 즉 리튬(Li)이나 세슘(Cs) 등의 알칼리 금속, 및 칼슘(Ca), 스트론튬(Sr) 등의 알칼리 토금속, 마그네슘(Mg), 및 이들을 포함하는 합금(MgAg, AlLi), 유로퓸(Eu)이나 이터븀(Yb) 등의 희토류 금속, 이들을 포함하는 합금, 그래핀 등을 사용할 수 있다. 또한, 제 1 전극(양극)(101) 및 제 2 전극(음극)(103)은 예를 들어, 스퍼터링법이나 증착법(진공 증착법을 포함함) 등에 의하여 형성할 수 있다.
- [0072] 정공 주입층(111)은 정공 수송성이 높은 정공 수송층(112)을 통하여 발광층(113)에 정공을 주입하는 층이며 정공 수송성이 높은 물질과 엑셉터성 물질을 포함한다. 정공 수송성이 높은 물질과 엑셉터성 물질을 포함함으로써, 엑셉터성 물질에 의하여 정공 수송성이 높은 물질로부터 전자가 빼앗겨 정공이 발생된다. 정공은 정공 수송층(112)을 통하여 발광층(113)에 주입된다. 또한, 정공 수송층(112)은 정공 수송성이 높은 물질을 사용하여 형성된다.
- [0073] 정공 주입층(111) 및 정공 수송층(112)에 사용하는 정공 수송성이 높은 물질로서는 예를 들어, 4,4'-비스[N-(1-나프틸)-N-페닐아미노]바이페닐(약칭: NPB 또는 α -NPD)이나 N,N'-비스(3-메틸페닐)-N,N'-다이페닐-[1,1'-바이페닐]-4,4'-다이아민(약칭: TPD), 4,4',4''-트리스(카바졸-9-일)트라이페닐아민(약칭: TCTA), 4,4',4''-트리스(N,N'-다이페닐아미노)트라이페닐아민(약칭: TDATA), 4,4',4''-트리스[N-(3-메틸페닐)-N-페닐아미노]트라이페닐아민(약칭: MTDATA), 4,4'-비스[N-(스파이로-9,9'-바이플루오렌-2-일)-N-페닐아미노]바이페닐(약칭: BSPB) 등의 방향족 아민 화합물, 3-[N-(9-페닐카바졸-3-일)-N-페닐아미노]-9-페닐카바졸(약칭: PCzPCA1), 3,6-비스[N-(9-페닐카바졸-3-일)-N-페닐아미노]-9-페닐카바졸(약칭: PCzPCA2), 3-[N-(1-나프틸)-N-(9-페닐카바졸-3-일)아미노]-9-페닐카바졸(약칭: PCzPCN1) 등을 들 수 있다. 이 외에, 4,4'-다이(N-카바졸일)바이페닐(약칭: CBP), 1,3,5-트리스[4-(N-카바졸일)페닐]벤젠(약칭: TCPB), 9-[4-(10-페닐-9-안트라센일)페닐]-9H-카바졸(약칭: CzPA) 등의 카바졸 유도체 등을 사용할 수 있다. 여기서 기재한 물질은, 주로 $1 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 이상의 정공 이동도를 가지는 물질이다. 다만, 전자보다 정공의 수송성이 높은 물질이면 이들 외의 물질을 사용하여도 좋다.
- [0074] 또한, 폴리(N-바이닐카바졸)(약칭: PVK), 폴리(4-바이닐트라이페닐아민)(약칭: PVTPA), 폴리[N-(4-{N'-[4-(4-다이페닐아미노)페닐]페닐-N'-페닐아미노}페닐) 메타크릴아마이드](약칭: PTPDMA), 폴리[N,N'-비스(4-뷰틸페

닐)-N,N'-비스(페닐)벤지딘](약칭: Poly-TPD) 등의 고분자 화합물을 사용할 수도 있다.

[0075] 또한, 정공 주입층(111)에 사용하는 엑셉터성 물질로서는, 원소 주기율표에서 4족~8족에 속하는 금속의 산화물을 들 수 있다. 구체적으로는, 산화 폴리브테늄이 특히 바람직하다.

[0076] 발광층(113)은 발광 물질을 포함하는 층이다. 또한, 발광층(113)은 발광 물질만으로 구성되어도 좋고, 호스트 재료 내에 발광 중심 물질(게스트 재료)이 분산된 상태로 구성되어도 좋다. 또한, 호스트 재료로서는 상술한 정공 수송성이 높은 물질이나 후술하는 전자 수송성이 높은 물질을 사용할 수 있고, 삼중항 여기 에너지가 큰 물질을 사용하는 구성이 더 바람직하다. 또한, 실시형태 1에 기재된 본 발명의 일 형태에 따른 헤테로고리 화합물을 조합하여 사용할 수 있다.

[0077] 발광 물질 및 발광 중심 물질로서 발광층(113)에 사용할 수 있는 재료에 특별한 제한은 없으며, 일중항 여기 에너지를 광으로 바꾸는 발광 물질, 또는 삼중항 여기 에너지를 광으로 바꾸는 발광 물질을 사용할 수 있다. 또한, 발광 물질 및 발광 중심 물질로서는 예를 들어, 아래와 같은 것을 들 수 있다.

[0078] 일중항 여기 에너지를 광으로 바꾸는 발광 물질로서는 예를 들어, 형광을 발하는 물질을 들 수 있다.

[0079] 형광을 발하는 물질로서, N,N'-비스[4-(9H-카바졸-9-일)페닐]-N,N'-다이페닐스티벤-4,4'-다이아민(약칭: YGA2S), 4-(9H-카바졸-9-일)-4'-(10-페닐-9-안트릴)트라이페닐아민(약칭: YGAPA), 4-(9H-카바졸-9-일)-4'-(9,10-다이페닐-2-안트릴)트라이페닐아민(약칭: 2YGAPA), N,9-다이페닐-N-[4-(10-페닐-9-안트릴)페닐]-9H-카바졸-3-아민(약칭: PCAPA), 페릴렌, 2,5,8,11-테트라-(tert-부틸)페릴렌(약칭: TBP), 4-(10-페닐-9-안트릴)-4'-(9-페닐-9H-카바졸-3-일)트라이페닐아민(약칭: PCBAPA), N,N'-(2-tert-부틸안트라센-9,10-다이일다이-4,1-페닐렌)비스[N,N',N'-트라이페닐-1,4-페닐렌다이아민](약칭: DPABPA), N,9-다이페닐-N-[4-(9,10-다이페닐-2-안트릴)페닐]-9H-카바졸-3-아민(약칭: 2PCAPA), N-[4-(9,10-다이페닐-2-안트릴)페닐]-N,N',N'-트라이페닐-1,4-페닐렌다이아민(약칭: 2DPAPA), N,N,N',N',N',N',N',N'-옥타페닐다이벤조[g,p]크리센-2,7,10,15-테트라아민(약칭: DBC1), 쿠마린30, N-(9,10-다이페닐-2-안트릴)-N,9-다이페닐-9H-카바졸-3-아민(약칭: 2PCAPA), N-[9,10-비스(1,1'-바이페닐-2-일)-2-안트릴]-N,9-다이페닐-9H-카바졸-3-아민(약칭: 2PCABPhA), N-(9,10-다이페닐-2-안트릴)-N,N',N'-트라이페닐-1,4-페닐렌다이아민(약칭: 2DPAPA), N-[9,10-비스(1,1'-바이페닐-2-일)-2-안트릴]-N,N',N'-트라이페닐-1,4-페닐렌다이아민(약칭: 2DPABPhA), 9,10-비스(1,1'-바이페닐-2-일)-N-[4-(9H-카바졸-9-일)페닐]-N-페닐안트라센-2-아민(약칭: 2YGABPhA), N,N,9-트라이페닐안트라센-9-아민(약칭: DPhPhA), 쿠마린545T, N,N'-다이페닐퀴나크리돈(약칭: DPQd), 루브렌, 5,12-비스(1,1'-바이페닐-4-일)-6,11-다이페닐테트라센(약칭: BPT), 2-(2-{2-[4-(다이메틸아미노)페닐]에텐일}-6-메틸-4H-피란-4-일리덴)프로페인다이아이트릴(약칭: DCM1), 2-{2-메틸-6-[2-(2,3,6,7-테트라하이드로-1H,5H-벤조[ij]퀴놀리진-9-일)에텐일]-4H-피란-4-일리덴}프로페인다이아이트릴(약칭: DCM2), N,N,N',N'-테트라키스(4-메틸페닐)테트라센-5,11-다이아민(약칭: p-mPhTD), 7,14-다이페닐-N,N,N',N'-테트라키스(4-메틸페닐)아세나프토[1,2-a]플루오란텐-3,10-다이아민(약칭: p-mPhAFD), {2-아이소프로필-6-[2-(1,1,7,7-테트라메틸-2,3,6,7-테트라하이드로-1H,5H-벤조[ij]퀴놀리진-9-일)에텐일]-4H-피란-4-일리덴}프로페인다이아이트릴(약칭: DCJTI), {2-tert-부틸-6-[2-(1,1,7,7-테트라메틸-2,3,6,7-테트라하이드로-1H,5H-벤조[ij]퀴놀리진-9-일)에텐일]-4H-피란-4-일리덴}프로페인다이아이트릴(약칭: DCJTB), 2-(2,6-비스[2-[4-(다이메틸아미노)페닐]에텐일]-4H-피란-4-일리덴)프로페인다이아이트릴(약칭: BisDCM), 2-{2,6-비스[2-(8-메톡시-1,1,7,7-테트라메틸-2,3,6,7-테트라하이드로-1H,5H-벤조[ij]퀴놀리진-9-일)에텐일]-4H-피란-4-일리덴}프로페인다이아이트릴(약칭: BisDCJTM) 등을 들 수 있다.

[0080] 삼중항 여기 에너지를 광으로 바꾸는 발광 물질로서는, 예를 들어 인광을 발하는 물질이나 열활성화 지연 형광을 발하는 열활성화 지연 형광(TADF) 재료를 들 수 있다. 또한, TADF 재료의 지연 형광이란, 일반적인 형광과 같은 스펙트럼을 가지면서도 수명이 현저하게 긴 발광을 말한다. 그 수명은 10^{-6} 초 이상, 바람직하게는 10^{-3} 초 이상이다.

[0081] 인광을 발하는 물질로서는, 비스{2-[3',5'-비스(트라이플루오로메틸)페닐]피리디나토-N,C^{2'}}이리듐(III)피콜리네이트(약칭: Ir(CF₃ppy)₂(pic)), 비스[2-(4',6'-다이플루오로페닐)피리디나토-N,C^{2'}]이리듐(III)아세틸아세토네이트(약칭: FIracac), 트리스(2-페닐피리디나토)이리듐(III)(약칭: [Ir(ppy)₃]), 비스(2-페닐피리디나토)이리듐(III)아세틸아세토네이트(약칭: Ir(ppy)₂(acac)), 트리스(아세틸아세토나토)(모노페난트롤린)터븀(III)(약칭: Tb(acac)₃(Phen)), 비스(벤조[h]퀴놀리나토)이리듐(III)아세틸아세토네이트(약칭: Ir(bzq)₂(acac)), 비스(2,4-

다이페닐-1,3-옥사졸라토-N,C^{2'})이리듐(III)아세틸아세토네이트(약칭: Ir(dpo)₂(acac)), 비스{2-[4'-(피플루오로페닐)페닐]피리디나토-N,C^{2'}}이리듐(III)아세틸아세토네이트(약칭: Ir(p-PF-ph)₂(acac)), 비스(2-페닐벤조싸이아졸라토-N,C^{2'})이리듐(III)아세틸아세토네이트(약칭: Ir(bt)₂(acac)), 비스[2-(2'-벤조[4,5-a]싸이엔일)피리디나토-N,C^{3'}]이리듐(III)아세틸아세토네이트(약칭: Ir(btp)₂(acac)), 비스(1-페닐아이소퀴놀리나토-N,C^{2'})이리듐(III)아세틸아세토네이트(약칭: Ir(piq)₂(acac)), (아세틸아세토나토)비스[2,3-비스(4-플루오로페닐)퀴녹살리나토]이리듐(III)(약칭: Ir(Fdpq)₂(acac)), (아세틸아세토나토)비스(3,5-다이메틸-2-페닐피라지나토)이리듐(III)(약칭: [Ir(mppr-Me)₂(acac)]), (아세틸아세토나토)비스(5-아이소프로필-3-메틸-2-페닐피라지나토)이리듐(III)(약칭: [Ir(mppr-iPr)₂(acac)]), (아세틸아세토나토)비스(2,3,5-트라이페닐피라지나토)이리듐(III)(약칭: Ir(tppr)₂(acac)), 비스(2,3,5-트라이페닐피라지나토)(다이피발로일메타나토)이리듐(III)(약칭: [Ir(tppr)₂(dpm)]), (아세틸아세토나토)비스(6-tert-부틸-4-페닐피리미디나토)이리듐(III)(약칭: [Ir(tBuppm)₂(acac)]), (아세틸아세토나토)비스(4,6-다이페닐피리미디나토)이리듐(III)(약칭: [Ir(dppm)₂(acac)]), 2,3,7,8,12,13,17,18-옥타에틸-21H,23H-포르피린백금(II)(약칭: PtOEP), 트리스(1,3-다이페닐-1,3-프로페인다이오나토)(모노페난트롤린)유로퓸(III)(약칭: Eu(DBM)₃(Phen)), 트리스[1-(2-테노일)-3,3,3-트라이플루오로아세토나토](모노페난트롤린)유로퓸(III)(약칭: Eu(TTA)₃(Phen)) 등을 들 수 있다.

[0082] 또한, 상술한 삼중항 여기 에너지를 광으로 바꾸는 발광 물질을 분산 상태로 하기 위하여 사용하는 물질(즉 호스트 재료)로서는 예를 들어, 2,3-비스(4-다이페닐아미노페닐)퀴녹살린(약칭: TPAQn), NPB 등 아릴아민 골격을 가지는 화합물이나, CBP, 4,4',4''-트리스(카바졸-9-일)트라이페닐아민(약칭: TCTA) 등의 카바졸 유도체나, 비스[2-(2-하이드록시페닐)피리디나토]아연(약칭: Znpp₂), 비스[2-(2-하이드록시페닐)벤즈옥사졸라토]아연(약칭: Zn(BOX)₂), 비스(2-메틸-8-퀴놀리놀라토)(4-페닐페놀라토)알루미늄(약칭: BAlq), 트리스(8-퀴놀리놀라토)알루미늄(약칭: Alq₃) 등의 금속 착체가 바람직하다. 또한, PVK와 같은 고분자 화합물을 사용할 수도 있다.

[0083] 또한, TADF 재료로서는, 예를 들어 풀러렌이나 그 유도체, 프로플라빈 등의 아크리딘 유도체, 에오신 등을 들 수 있다. 또한, 마그네슘(Mg), 아연(Zn), 카드뮴(Cd), 주석(Sn), 백금(Pt), 인듐(In), 또는 팔라듐(Pd) 등을 포함하는 금속 함유 포르피린을 들 수 있다. 금속 함유 포르피린으로서, 예를 들어 프로토포르피린-플루오린화 주석 착체(SnF₂(Proto IX)), 메소포르피린-플루오린화 주석 착체(SnF₂(Meso IX)), 헤마토포르피린-플루오린화 주석 착체(SnF₂(Hemato IX)), 코프로포르피린테트라메틸에스터-플루오린화 주석 착체(SnF₂(Copro III-4Me)), 옥타에틸포르피린-플루오린화 주석 착체(SnF₂(OEP)), 에티오포르피린-플루오린화 주석 착체(SnF₂(Etio I)), 옥타에틸포르피린-염화 백금 착체(PtCl₂OEP) 등을 들 수 있다. 또한, 2-(바이페닐-4-일)-4,6-비스(12-페닐인돌로[2,3-a]카바졸-11-일)-1,3,5-트리아진(PIC-TRZ) 등의 파이 전자 과잉형 헤테로 방향족 고리(π -electron rich heteroaromatic ring) 및 파이 전자 부족형 헤테로 방향족 고리(π -electron deficient heteroaromatic ring)를 가지는 헤테로고리 화합물을 사용할 수도 있다. 또한, 파이 전자 과잉형 헤테로 방향족 고리와 파이 전자 부족형 헤테로 방향족 고리가 직접 결합된 물질은, 파이 전자 과잉형 헤테로 방향족 고리의 도너성과 파이 전자 부족형 헤테로 방향족 고리의 억셉터성이 모두 강해지며 S1과 T1의 에너지 차가 작아지므로 특히 바람직하다.

[0084] 또한, 발광층(113)에 상술한 일중항 여기 에너지를 광으로 바꾸는 발광 물질이나 삼중항 여기 에너지를 광으로 바꾸는 발광 물질(게스트 재료)과 호스트 재료를 1종류 또는 복수 종류 사용하면, 발광층(113)으로부터 발광 효율이 높은 발광을 얻을 수 있다. 또한, 복수 종류의 호스트 재료를 사용하는 경우에는 여기 착체(엑시플렉스(exciplex)라고도 함)를 형성하는 조합으로 하는 것이 바람직하다.

[0085] 또한, 발광층(113)은 적층 구조를 가져도 좋다. 다만, 이 경우에는 적층된 층들 각각으로부터 발광이 얻어지는 구성으로 한다. 예를 들어, 1층째 발광층으로부터는 형광 발광이 얻어지고, 1층째 발광층에 적층되는 2층째 발광층으로부터 인광 발광이 얻어지는 구성으로 하면 좋다. 또한, 적층 순서는 이 반대라도 좋다. 또한, 인광 발광이 얻어지는 층에서는 여기 착체로부터 도펀트로의 에너지 이동에 따른 발광이 얻어지는 구성으로 하는 것이 바람직하다. 또한, 발광색에 대해서는 한쪽 층으로부터 청색 발광이 얻어지는 구성으로 하는 경우, 다른 쪽

층으로부터 주황색 또는 황색 발광 등이 얻어지는 구성으로 할 수 있다. 또한, 각 층에 복수 종류의 도펀트가 포함되는 구성으로 하여도 좋다.

[0086] 전자 수송층(114)은, 전자 수송성이 높은 물질을 포함하는 층이다. 전자 수송층(114)에는 트리스(8-퀴놀리놀라토)알루미늄(약칭: Alq_3), 트리스(4-메틸-8-퀴놀리놀라토)알루미늄(약칭: Almq_3), 비스(10-하이드록시벤조[h]퀴놀리나토)베릴륨(약칭: BeBq_2), 비스(2-메틸-8-퀴놀리놀라토)(4-페닐페놀라토)알루미늄(약칭: BAIq), 비스[2-(2-하이드록시페닐)벤즈옥사졸라토]아연(약칭: $\text{Zn}(\text{BOX})_2$), 비스[2-(2-하이드록시페닐)벤조싸이아졸라토]아연(약칭: $\text{Zn}(\text{BTZ})_2$) 등의 금속 착체를 사용할 수 있다. 또한, 2-(4-바이페닐일)-5-(4-tert-부틸페닐)-1,3,4-옥사다리아졸(약칭: PBD), 1,3-비스[5-(p-tert-부틸페닐)-1,3,4-옥사다리아졸-2-일]벤젠(약칭: OXD-7), 3-(4'-tert-부틸페닐)-4-페닐-5-(4'-바이페닐)-1,2,4-트리아아졸(약칭: TAZ), 3-(4-tert-부틸페닐)-4-(4-에틸페닐)-5-(4-바이페닐일)-1,2,4-트리아아졸(약칭: p-EtTAZ), 바소페난트롤린(약칭: BPhen), 바소큐프로인(약칭: BCP), 4,4'-비스(5-메틸벤즈옥사졸-2-일)스틸벤(약칭: BzOs) 등의 헤테로 방향족 화합물도 사용할 수 있다. 또한, 폴리(2,5-피리딘다이일)(약칭: PPy), 폴리[(9,9-다이헥실플루오렌-2,7-다이일)-co-(피리딘-3,5-다이일)](약칭: PF-Py), 폴리[(9,9-다이옥틸플루오렌-2,7-다이일)-co-(2,2'-바이피리딘-6,6'-다이일)](약칭: PF-BPy)과 같은 고분자 화합물을 사용할 수도 있다. 여기서 기재한 물질은, 주로 $1 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 이상의 전자 이동도를 가지는 물질이다. 또한, 정공 수송성보다 전자 수송성이 높은 물질이면 상술한 물질 외의 물질을 전자 수송층(114)에 사용하여도 좋다. 또한, 실시형태 1에 기재된 본 발명의 일 형태에 따른 헤테로고리 화합물을 사용할 수도 있다.

[0087] 또한, 전자 수송층(114)은 단층 구조로 하여도 좋고, 상술한 물질을 포함하는 층이 2층 이상 적층된 구조로 하여도 좋다.

[0088] 전자 주입층(115)은 전자 주입성이 높은 물질을 포함하는 층이다. 전자 주입층(115)에는 플루오린화 리튬(LiF), 플루오린화 세슘(CsF), 플루오린화 칼슘(CaF_2), 리튬 산화물(LiO_x) 등과 같은 알칼리 금속, 알칼리 토금속, 또는 이들의 화합물을 사용할 수 있다. 또한, 플루오린화 어븀(ErF_3)과 같은 희토류 금속 화합물을 사용할 수 있다. 또한, 전자 주입층(115)에 전자화물(electride)을 사용하여도 좋다. 전자화물로서는 예를 들어, 칼슘과 알루미늄의 혼합 산화물에 높은 농도로 전자가 첨가된 물질 등을 들 수 있다. 또한, 상술한 전자 수송층(114)에 사용되는 물질을 사용할 수도 있다.

[0089] 또한, 전자 주입층(115)에 유기 화합물과 전자 공여체(도너)를 혼합한 복합 재료를 사용하여도 좋다. 이러한 복합 재료는 전자 공여체에 의하여 유기 화합물에 전자가 발생되기 때문에, 전자 주입성 및 전자 수송성이 우수하다. 이 경우 유기 화합물은 발생된 전자의 수송에 우수한 재료인 것이 바람직하며, 구체적으로는 예를 들어 상술한 전자 수송층(114)에 사용되는 물질(금속 착체나 헤테로 방향족 화합물 등)을 사용할 수 있다. 전자 공여체로서는, 유기 화합물에 대한 전자 공여성을 가지는 물질이면 좋다. 구체적으로는 알칼리 금속이나 알칼리 토금속이나 희토류 금속이 바람직하고, 리튬, 세슘, 마그네슘, 칼슘, 어븀, 이터븀 등을 들 수 있다. 또한, 알칼리 금속 산화물이나 알칼리 토금속 산화물이 바람직하고, 리튬 산화물, 칼슘 산화물, 바륨 산화물 등을 들 수 있다. 또한, 산화 마그네슘과 같은 루이스 염기를 사용할 수도 있다. 또한, 테트라싸이아폴발렌(약칭: TTF) 등의 유기 화합물을 사용할 수도 있다.

[0090] 또한, 상술한 정공 주입층(111), 정공 수송층(112), 발광층(113), 전자 수송층(114), 전자 주입층(115)은 각각, 증착법(진공 증착법을 포함함), 잉크젯법, 도포법 등의 방법으로 형성할 수 있다.

[0091] 상술한 발광 소자는 EL층(102)에서의 정공과 전자의 재결합에 의하여 발광한다. 그리고, 이 발광은 제 1 전극(101) 및 제 2 전극(103) 중 어느 하나 또는 양쪽 모두를 통하여 외부로 추출된다. 따라서, 제 1 전극(101) 및 제 2 전극(103) 중 어느 하나 또는 양쪽 모두를 투광성을 가지는 전극으로 한다.

[0092] 또한, 본 실시형태에서 설명한 발광 소자는 본 발명의 일 형태에 따른 헤테로고리 화합물을 EL 재료로서 사용한 발광 소자의 일례이다. 또한, 본 발명의 일 형태에 따른 헤테로고리 화합물은 높은 용해성을 가지기 때문에 합성 시에 승화 정제가 용이하며 고순도화가 가능하다. 따라서, 본 발명의 일 형태에 따른 헤테로고리 화합물을 사용함으로써 신뢰성이 높은 발광 소자를 얻을 수 있다.

[0093] 또한, 본 실시형태에 기재된 구성은 다른 실시형태에 기재된 구성과 적절히 조합하여 사용할 수 있다.

[0094] (실시형태 3)

- [0095] 본 실시형태에서는 본 발명의 일 형태에 따른 헥세로고리 화합물을 EL 재료로서 EL층에 사용한, 전하 발생층을 끼우는 복수의 EL층을 가지는 구조의 발광 소자(아래에서 탠덤형 발광 소자라고 함)에 대하여 설명한다.
- [0096] 본 실시형태에서 설명하는 발광 소자는 도 2의 (A)에 도시된 바와 같이 한 쌍의 전극(제 1 전극(201) 및 제 2 전극(204)) 사이에 복수의 EL층(제 1 EL층(202(1)), 제 2 EL층(202(2)))을 가지는 탠덤형 발광 소자이다.
- [0097] 본 실시형태에 있어서 제 1 전극(201)은 양극으로서 기능하고, 제 2 전극(204)은 음극으로서 기능한다. 또한, 제 1 전극(201) 및 제 2 전극(204)의 구성은 실시형태 2와 같은 구성으로 할 수 있다. 또한, 복수의 EL층(제 1 EL층(202(1)) 및 제 2 EL층(202(2)))을 모두 실시형태 2에 기재된 EL층과 같은 구성으로 하여도 좋지만, 어느 하나만을 같은 구성으로 하여도 좋다. 즉, 제 1 EL층(202(1))과 제 2 EL층(202(2))은 동일한 구성으로 하여도 좋고 다른 구성으로 하여도 좋으며, 이들의 구성을 실시형태 2에 기재된 것과 같은 구성으로 할 수 있다.
- [0098] 또한, 복수의 EL층(제 1 EL층(202(1)), 제 2 EL층(202(2))) 사이에는 전하 발생층(205)이 제공된다. 전하 발생층(205)은 제 1 전극(201)과 제 2 전극(204)에 전압을 인가하였을 때에, 한쪽 EL층에 전자를 주입하고 다른 쪽 EL층에 정공을 주입하는 기능을 가진다. 본 실시형태의 경우에는, 제 1 전극(201)의 전위가 제 2 전극(204)보다 높게 되도록 전압을 인가하였을 때에, 전하 발생층(205)으로부터 제 1 EL층(202(1))에 전자가 주입되고, 제 2 EL층(202(2))에 정공이 주입된다.
- [0099] 또한, 전하 발생층(205)은 광의 추출 효율의 관점에서 가시광에 대한 투광성을 가지는(구체적으로는, 전하 발생층(205)의 가시광 투과율이 40% 이상인) 것이 바람직하다. 또한, 전하 발생층(205)은 제 1 전극(201)이나 제 2 전극(204)보다 도전율이 낮아도 기능한다.
- [0100] 전하 발생층(205)은 정공 수송성이 높은 유기 화합물에 전자 수용체(억셉터)가 첨가된 구성이어도 좋고, 전자 수송성이 높은 유기 화합물에 전자 공여체(도너)가 첨가된 구성이어도 좋다. 또한, 이들 구성이 적층된 구조라도 좋다.
- [0101] 정공 수송성이 높은 유기 화합물에 전자 수용체가 첨가된 구성으로 하는 경우, 정공 수송성이 높은 유기 화합물로서는 예를 들어, NPB나 TPD, TDATA, MTDATA, BSPB 등의 방향족 아민 화합물 등을 사용할 수 있다. 여기서 기재한 물질은, 주로 $1 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 이상의 정공 이동도를 가지는 물질이다. 다만, 전자보다 정공의 수송성이 높은 유기 화합물이면, 상술한 것 이외의 물질을 사용하여도 좋다.
- [0102] 또한, 전자 수용체로서는, 7,7,8,8-테트라사이아노-2,3,5,6-테트라플루오로퀴노다이드메테인(약칭: F₄-TCNQ), 클로라닐 등을 들 수 있다. 또한, 원소 주기율표에서의 4족~8족에 속하는 금속의 산화물을 들 수 있다. 구체적으로는, 산화 바나듐, 산화 나이오븀, 산화 탄탈럼, 산화 크로뮴, 산화 몰리브데넘, 산화 텅스텐, 산화 망가니즈, 산화 레늄은 전자 수용성이 높으므로 바람직하다. 이 중에서도 특히 산화 몰리브데넘은 대기 중에서도 안정적이고 흡습성이 낮으며 취급하기 쉬우므로 바람직하다.
- [0103] 한편, 전자 수송성이 높은 유기 화합물에 전자 공여체가 첨가된 구성으로 하는 경우에는, 전자 수송성이 높은 유기 화합물로서 예를 들어, Alq, Almq₃, BeBq₂, BA1q 등, 퀴놀린 골격 또는 벤조퀴놀린 골격을 가지는 금속 착체 등을 사용할 수 있다. 또한, 이 외에 Zn(BOX)₂, Zn(BTZ)₂ 등의 옥사졸계, 싸이아졸계 리간드를 가지는 금속 착체 등도 사용할 수 있다. 또한, 금속 착체 이외에도 PBD나 OXD-7, TAZ, BPhen, BCP 등도 사용할 수 있다. 여기서 기재한 물질은, 주로 $1 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 이상의 전자 이동도를 가지는 물질이다. 다만, 정공보다 전자의 수송성이 높은 유기 화합물이면, 상술한 것 이외의 물질을 사용하여도 좋다.
- [0104] 또한, 전자 공여체로서는 알칼리 금속 또는 알칼리 토금속 또는 희토류 금속 또는 원소 주기율표에서의 2족, 13족에 속하는 금속, 및 그 산화물, 탄산염을 사용할 수 있다. 구체적으로는 리튬(Li), 세슘(Cs), 마그네슘(Mg), 칼슘(Ca), 이터븀(Yb), 인듐(In), 산화 리튬, 탄산 세슘 등을 사용하는 것이 바람직하다. 또한, 테트라싸이아나프타센과 같은 유기 화합물을 전자 공여체로서 사용하여도 좋다.
- [0105] 또한, 상술한 재료를 사용하여 전하 발생층(205)을 형성함으로써, EL층이 적층된 경우의 구동 전압의 상승을 억제할 수 있다.
- [0106] 본 실시형태에서는 EL층을 2층 가지는 발광 소자에 대하여 설명하였지만, 도 2의 (B)에 도시된 바와 같이 n층(다만, n은 3 이상)의 EL층(202(1)~202(n))을 적층한 발광 소자에 대해서도 마찬가지로 적용할 수 있다. 본 실시형태에 따른 발광 소자와 같이, 한 쌍의 전극 사이에 복수의 EL층을 가지는 경우, EL층과 EL층 사이에 각각

전하 발생층(205(1)~205(n-1))을 배치함으로써, 전류 밀도를 낮게 유지하면서 고휘도 영역에서의 발광이 가능하다. 전류 밀도를 낮게 유지할 수 있기 때문에 수명이 긴 소자를 구현할 수 있다. 또한, 발광면이 큰 발광 장치, 전자 기기, 및 조명 장치 등에 응용한 경우는, 전극 재료의 저항으로 인한 전압 강하를 작게 할 수 있으므로, 대면적에서의 균일한 발광이 가능해진다.

[0107] 또한, 각 EL층의 발광색을 다르게 함으로써, 발광 소자 전체로서 원하는 색의 발광을 얻을 수 있다. 예를 들어, 2개의 EL층을 가지는 발광 소자에 있어서, 제 1 EL층의 발광색과 제 2 EL층의 발광색을 보색의 관계가 되도록 함으로써, 발광 소자 전체로서 백색으로 발광하는 발광 소자를 얻는 것도 가능하다. 또한, 보색이란 혼합 되면 무채색이 되는 색들 사이의 관계를 말한다. 즉, 보색의 관계에 있는 색의 광을 혼합하면 백색 발광을 얻을 수 있다. 구체적으로는 제 1 EL층으로부터 청색 발광, 제 2 EL층으로부터 황색 또는 주황색 발광이 얻어지는 조합을 들 수 있다. 이 경우, 청색 발광과 황색(또는 주황색) 발광을 모두 형광 발광 또는 인광 발광으로 할 필요는 없으며, 청색 발광이 형광 발광이고 황색(또는 주황색) 발광이 인광 발광인 조합이나 그 반대의 조합으로 하여도 좋다.

[0108] 또한, 3개의 EL층을 가지는 발광 소자의 경우도 마찬가지이며, 예를 들어 제 1 EL층의 발광색이 적색이고, 제 2 EL층의 발광색이 녹색이고, 제 3 EL층의 발광색이 청색인 경우, 발광 소자 전체로서 백색 발광을 얻을 수 있다.

[0109] 또한, 본 실시형태에 기재된 구성은 다른 실시형태에 기재된 구성과 적절히 조합하여 사용할 수 있다.

[0110] (실시형태 4)

[0111] 본 실시형태에서는, 본 발명의 일 형태에 따른 헤테로고리 화합물을 EL층에 사용한 발광 소자를 가지는 발광 장치에 대하여 설명한다.

[0112] 또한, 상기 발광 장치는 패시브 매트릭스형이라도 좋고 액티브 매트릭스형이라도 좋다. 또한, 본 실시형태에서 설명하는 발광 장치에 다른 실시형태에 기재된 발광 소자를 적용할 수 있다.

[0113] 본 실시형태에서는 액티브 매트릭스형 발광 장치에 대하여 도 3을 사용하여 설명한다.

[0114] 또한, 도 3의 (A)는 발광 장치를 도시한 상면도이고, 도 3의 (B)는 도 3의 (A)를 섹션 A-A'를 따라 자른 단면도이다. 본 실시형태에서 설명하는 액티브 매트릭스형 발광 장치는 소자 기관(301) 위에 제공된 화소부(302), 구동 회로부(소스선 구동 회로)(303), 및 구동 회로부(게이트선 구동 회로)(304a, 304b)를 가진다. 화소부(302), 구동 회로부(303), 및 구동 회로부(304a, 304b)는 밀봉재(305)에 의하여 소자 기관(301)과 밀봉 기관(306) 사이에 밀봉된다.

[0115] 또한, 소자 기관(301) 위에는 구동 회로부(303)와, 구동 회로부(304a, 304b)에 외부로부터의 신호(예를 들어, 비디오 신호, 클럭 신호, 스타트 신호, 또는 리셋 신호 등)나 전위를 전달하는 외부 입력 단자를 접속하기 위한 리드(lead) 배선(307)이 제공된다. 여기서는, 외부 입력 단자로서 FPC(308)를 제공하는 경우의 예를 도시하였다. 또한, 여기서는 FPC만을 도시하였지만, 이 FPC에는 프린트 배선 기관(PWB)이 장착되어도 좋다. 본 명세서에서 발광 장치는 발광 장치 본체뿐만 아니라, 이것에 FPC 또는 PWB가 장착된 상태도 그 범주에 포함하는 것으로 한다.

[0116] 다음에, 단면 구조에 대하여 도 3의 (B)를 참조하여 설명한다. 소자 기관(301) 위에는 구동 회로부 및 화소부가 형성되지만, 여기서는 소스선 구동 회로인 구동 회로부(303)와, 화소부(302)를 도시하였다.

[0117] 구동 회로부(303)를 FET(309)와 FET(310)를 조합한 구성으로 하는 경우를 일례로서 도시하였다. 또한, 구동 회로부(303)는 단극성(n형 및 p형 중 어느 한쪽만) 트랜지스터들을 포함하는 회로로 형성되어도 좋고, n형 트랜지스터와 p형 트랜지스터를 포함하는 CMOS 회로로 형성되어도 좋다. 또한, 본 실시형태에서는 기관 위에 구동 회로를 형성한 드라이버 일체형에 대하여 설명하지만, 이에 한정되지 않고 기관 위가 아니라 외부에 구동 회로를 형성할 수도 있다.

[0118] 또한, 화소부(302)는 스위칭용 FET(311), 전류 제어용 FET(312), 및 전류 제어용 FET(312)의 배선(소스 전극 또는 드레인 전극)에 전기적으로 접속된 제 1 전극(양극)(313)을 포함하는 복수의 화소로 형성된다. 또한, 본 실시형태에서는 스위칭용 FET(311)와 전류 제어용 FET(312)의 2개의 FET로 화소부(302)를 구성하는 예에 대하여 설명하였지만 이에 한정되지 않는다. 예를 들어, 3개 이상의 FET와, 용량 소자를 조합한 화소부(302)로 하여도 좋다.

[0119] FET(309, 310, 311, 312)로서는, 예를 들어 스테거형이나 역스테거형의 트랜지스터를 사용할 수 있다.

FET(309, 310, 311, 312)에 사용할 수 있는 반도체 재료로서는, 예를 들어 13족 반도체(갈륨 등), 14족 반도체(실리콘 등), 화합물 반도체, 산화물 반도체, 유기 반도체를 사용할 수 있다. 또한, 상기 반도체 재료의 결정성은 특별히 한정되지 않고, 예를 들어 비정질 반도체 또는 결정성 반도체를 사용할 수 있다. 특히, FET(309, 310, 311, 312)에 산화물 반도체를 사용하면 바람직하다. 상기 산화물 반도체로서는 예를 들어, In-Ga 산화물, In-M-Zn 산화물(M은 Al, Ga, Y, Zr, La, Ce, 또는 Nd) 등을 들 수 있다. FET(309, 310, 311, 312)에 예를 들어 에너지 갭이 2eV 이상, 바람직하게는 2.5eV 이상, 더 바람직하게는 3eV 이상인 산화물 반도체를 사용함으로써 트랜지스터의 오프 전류를 저감할 수 있다.

[0120] 또한, 제 1 전극(313)의 단부를 덮도록 절연물(314)이 형성되어 있다. 여기서는, 포지티브형 감광성 아크릴 수지를 사용하여 절연물(314)을 형성한다. 또한, 본 실시형태에서는 제 1 전극(313)을 양극으로서 사용한다.

[0121] 또한, 절연물(314)의 상단부 또는 하단부에 곡률을 가지는 곡면이 형성되는 것이 바람직하다. 절연물(314)을 이와 같은 형상으로 함으로써, 절연물(314) 위에 형성되는 막의 피복성을 양호하게 할 수 있다. 예를 들어, 절연물(314)의 재료로서는 네거티브형 감광성 수지 및 포지티브형 감광성 수지 중 어느 것을 사용할 수 있으며 유기 화합물에 한정되지 않고 무기 화합물, 예를 들어 산화 실리콘, 산화 질화 실리콘, 질화 실리콘 등을 사용할 수 있다.

[0122] 제 1 전극(양극)(313) 위에 EL층(315) 및 제 2 전극(음극)(316)이 적층되어 있다. EL층(315)에는 적어도 발광층이 제공된다. 또한, EL층(315)에는 발광층 외에도 정공 주입층, 정공 수송층, 전자 수송층, 전자 주입층, 전하 발생층 등을 적절히 제공할 수 있다.

[0123] 또한, 제 1 전극(양극)(313), EL층(315), 및 제 2 전극(음극)(316)이 적층되어 발광 소자(317)가 형성되어 있다. 제 1 전극(양극)(313), EL층(315), 및 제 2 전극(음극)(316)에 사용하는 재료로서는 실시형태 2에 기재된 재료를 사용할 수 있다. 또한, 여기서는 도시하지 않았지만, 제 2 전극(음극)(316)은 외부 입력 단자인 FPC(308)에 전기적으로 접속되어 있다.

[0124] 또한, 도 3의 (B)에 도시된 단면도에는 발광 소자(317)를 하나만 도시하였지만, 화소부(302)에는 복수의 발광 소자가 매트릭스 형태로 배치된다. 화소부(302)에 3종류(R, G, B)의 발광이 얻어지는 발광 소자를 각각 선택적으로 형성함으로써, 풀 컬러 표시가 가능한 발광 장치를 제작할 수 있다. 또한, 3종류(R, G, B)의 발광이 얻어지는 발광 소자에 한정되지 않고, 예를 들어 백색(W), 황색(Y), 마젠타(M), 시안(C) 등의 발광이 얻어지는 발광 소자를 형성하여도 좋다. 예를 들어, 3종류(R, G, B)의 발광이 얻어지는 발광 소자에 상술한 여러 종류의 발광이 얻어지는 발광 소자를 추가함으로써, 색 순도의 향상, 소비 전력의 저감 등의 효과를 얻을 수 있다. 또한, 컬러 필터와 조합함으로써 풀 컬러 표시가 가능한 발광 장치로 하여도 좋다. 또한, 퀀텀닷과 조합함으로써 발광 효율을 향상시키고 소비 전력을 저감한 발광 장치로 하여도 좋다.

[0125] 또한, 밀봉 기관(306)과 소자 기관(301)을 밀봉재(305)로 접합함으로써, 소자 기관(301), 밀봉 기관(306), 및 밀봉재(305)로 둘러싸인 공간(318)에 발광 소자(317)가 제공된 구조로 한다. 또한, 공간(318)은 불활성 가스(질소나 아르곤 등)로 충전되는 구성 외에 밀봉재(305)로 충전되는 구성도 가능하다.

[0126] 또한, 밀봉재(305)에는 에폭시계 수지나 글라스 프릿을 사용하는 것이 바람직하다. 또한, 이들 재료는 가능한 수분이나 산소를 투과시키지 않는 재료인 것이 바람직하다. 또한, 밀봉 기관(306)으로서 유리 기관이나 석영 기관 외에, FRP(Fiber-Reinforced Plastics), PVF(폴리바이닐플루오라이드), 폴리에스터, 또는 아크릴 수지 등으로 이루어진 플라스틱 기관을 사용할 수 있다. 밀봉재로서 글라스 프릿을 사용하는 경우에는 접착성의 관점에서 소자 기관(301) 및 밀봉 기관(306)으로서 유리 기관을 사용하는 것이 바람직하다.

[0127] 상술한 바와 같이 하여, 액티브 매트릭스형 발광 장치를 얻을 수 있다.

[0128] 또한, 본 실시형태에 기재된 구성은 다른 실시형태에 기재된 구성과 적절히 조합하여 사용할 수 있다.

[0129] (실시형태 5)

[0130] 본 실시형태에서는 본 발명의 일 형태에 따른 발광 장치를 적용하여 제작된 다양한 전자 기기의 일례에 대하여, 도 4 및 도 5를 사용하여 설명한다.

[0131] 발광 장치를 적용한 전자 기기로서, 예를 들어 텔레비전 장치(텔레비전 또는 텔레비전 수신기라고도 함), 컴퓨터용 등의 모니터, 디지털 카메라, 디지털 비디오 카메라, 디지털 액자, 휴대 전화기(휴대 전화, 휴대 전화 장치라고도 함), 휴대용 게임기, 휴대 정보 단말, 음향 재생 장치, 파친코기 등의 대형 게임기 등을 들 수 있다.

이들 전자 기기의 구체적인 예를 도 4에 도시하였다.

- [0132] 도 4의 (A)는 텔레비전 장치의 일례를 도시한 것이다. 텔레비전 장치(7100)는 하우징(7101)에 표시부(7103)가 제공되어 있다. 표시부(7103)에 영상을 표시할 수 있고, 표시부(7103)는 터치 센서(입력 장치)가 탑재된 터치 패널(입출력 장치)이라도 좋다. 또한, 본 발명의 일 형태에 따른 발광 장치를 표시부(7103)에 사용할 수 있다. 또한, 여기서는, 스탠드(7105)에 의하여 하우징(7101)을 지지한 구성을 도시하였다.
- [0133] 텔레비전 장치(7100)는 하우징(7101)에 구비된 조작 스위치나, 별체의 리모트 컨트롤러(7110)로 조작할 수 있다. 리모트 컨트롤러(7110)에 구비된 조작 키(7109)로 채널이나 음량, 또한 표시부(7103)에 표시되는 영상을 조작할 수 있다. 또한, 리모트 컨트롤러(7110)에, 상기 리모트 컨트롤러(7110)로부터 출력되는 정보를 표시하는 표시부(7107)를 제공하는 구성으로 하여도 좋다.
- [0134] 또한, 텔레비전 장치(7100)는 수신기나 모뎀 등을 구비한 구성으로 한다. 수신기에 의하여 일반 텔레비전 방송을 수신할 수 있고, 또한 모뎀을 통하여 유선 또는 무선 통신 네트워크에 접속함으로써, 단방향(송신자로부터 수신자) 또는 쌍방향(송신자와 수신자 사이, 또는 수신자들끼리 등)의 정보 통신도 가능하다.
- [0135] 도 4의 (B)에 도시된 컴퓨터는 본체(7201), 하우징(7202), 표시부(7203), 키보드(7204), 외부 접속 포트(7205), 포인팅 디바이스(7206) 등을 포함한다. 또한, 컴퓨터는 본 발명의 일 형태에 따른 발광 장치를 그 표시부(7203)에 사용하여 제작될 수 있다. 또한, 표시부(7203)는 터치 센서(입력 장치)가 탑재된 터치 패널(입출력 장치)이라도 좋다.
- [0136] 도 4의 (C)에 도시된 스마트 워치는 하우징(7302), 표시 패널(7304), 조작용 버튼(7311, 7312), 접속 단자(7313), 밴드(7321), 버클(7322) 등을 구비한다.
- [0137] 베젤 부분을 겸하는 하우징(7302)에 탑재된 표시 패널(7304)은 비직사각형(non-rectangular)의 표시 영역을 가진다. 표시 패널(7304)은 시각을 나타내는 아이콘(7305), 기타 아이콘(7306) 등을 표시할 수 있다. 또한, 표시 패널(7304)은 터치 센서(입력 장치)가 탑재된 터치 패널(입출력 장치)이라도 좋다.
- [0138] 또한, 도 4의 (C)에 도시된 스마트 워치는 다양한 기능을 가질 수 있다. 예를 들어, 다양한 정보(정지 화상, 동영상, 텍스트 화상 등)를 표시부에 표시하는 기능, 터치 패널 기능, 달력, 날짜, 또는 시각 등을 표시하는 기능, 다양한 소프트웨어(프로그램)에 의하여 처리를 제어하는 기능, 무선 통신 기능, 무선 통신 기능을 사용하여 다양한 컴퓨터 네트워크에 접속하는 기능, 무선 통신 기능을 사용하여 다양한 데이터를 송신 또는 수신하는 기능, 기록 매체에 기록된 프로그램 또는 데이터를 판독하여 표시부에 표시하는 기능 등을 가질 수 있다.
- [0139] 또한, 하우징(7302) 내부에, 스피커, 센서(힘, 변위, 위치, 속도, 가속도, 각속도, 회전수, 거리, 광, 액체, 자기(磁氣), 온도, 화학 물질, 음성, 시간, 경도(硬度), 전기장, 전류, 전압, 전력, 방사선, 유량, 습도, 경사도, 진동, 냄새, 또는 적외선을 측정하는 기능을 포함하는 것), 마이크로폰 등을 가질 수 있다. 또한, 스마트 워치는 발광 장치를 그 표시 패널(7304)에 사용하여 제작될 수 있다.
- [0140] 도 4의 (D)는 휴대 전화기(스마트폰을 포함함)의 일례를 도시한 것이다. 휴대 전화기(7400)는 하우징(7401)에 표시부(7402), 마이크로폰(7406), 스피커(7405), 카메라(7407), 외부 접속부(7404), 조작용 버튼(7403) 등을 구비한다. 또한, 본 발명의 일 형태에 따른 발광 소자를, 가요성을 가지는 기판에 형성하여 발광 장치를 제작하면, 도 4의 (D)에 도시한 바와 같은 곡면을 가지는 표시부(7402)에 사용할 수 있다.
- [0141] 도 4의 (D)에 도시된 휴대 전화기(7400)는 표시부(7402)를 손가락 등으로 터치함으로써 정보를 입력할 수 있다. 또한, 전화를 걸거나 또는 메일을 작성하는 등의 조작은, 표시부(7402)를 손가락 등으로 터치함으로써 행할 수 있다.
- [0142] 표시부(7402)의 화면에는 주로 세 가지 모드가 있다. 제 1 모드는, 화상의 표시를 주로 하는 표시 모드이고, 제 2 모드는 문자 등의 정보의 입력을 주로 하는 입력 모드이다. 제 3 모드는 표시 모드와 입력 모드의 2개의 모드가 혼합한 표시+입력 모드이다.
- [0143] 예를 들어, 전화를 걸거나 또는 메일을 작성하는 경우에는, 표시부(7402)를 문자의 입력을 주로 하는 입력 모드로 하여, 화면에 표시시킨 문자의 입력 조작을 하면 좋다. 이 경우, 표시부(7402)의 화면의 대부분에 키보드 또는 번호 버튼을 표시시키는 것이 바람직하다.
- [0144] 또한, 휴대 전화기(7400) 내부에 자이로 센서나 가속도 센서 등의 검출 장치를 제공함으로써, 휴대 전화기(7400)의 방향(세로인지 가로인지)을 판단하여 표시부(7402)의 화면 표시를 자동적으로 전환 가능하게 할 수 있

다.

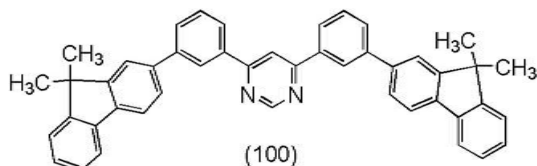
- [0145] 또한, 화면 모드는 표시부(7402)를 터치하거나 또는 하우징(7401)의 조작용 버튼(7403)을 조작함으로써 전환된다. 또한, 표시부(7402)에 표시되는 화상의 종류에 따라 전환되도록 할 수도 있다. 예를 들어, 표시부에 표시하는 화상의 신호가 동영상의 데이터이면 표시 모드, 텍스트 데이터이면 입력 모드로 전환한다.
- [0146] 또한, 입력 모드에 있어서, 표시부(7402)의 광 센서에서 검출되는 신호를 검지하여, 표시부(7402)에서의 터치 조작에 의한 입력이 일정 기간 동안 없는 경우에는, 화면의 모드를 입력 모드로부터 표시 모드로 전환하도록 제어하여도 좋다.
- [0147] 표시부(7402)는 이미지 센서로서 기능시킬 수도 있다. 예를 들어, 손바닥이나 손가락으로 표시부(7402)에 터치함으로써, 장문이나 지문 등을 촬상(撮像)하여 본인 인증을 할 수 있다. 또한, 표시부에 근적외광을 발광하는 백 라이트 또는 근적외광을 발광하는 센싱용 광원을 사용하면, 손가락 정맥, 손바닥 정맥 등을 촬상할 수도 있다.
- [0148] 또한, 휴대 전화기(스마트폰을 포함함)의 다른 구성으로서 도 4의 (D'-1)이나 도 4의 (D'-2)에 도시된 바와 같은 구조를 가지는 휴대 전화기로 할 수도 있다.
- [0149] 또한, 도 4의 (D'-1)이나 도 4의 (D'-2)에 도시된 바와 같은 구조를 가지는 경우에는 문자 정보나 화상 정보 등을 하우징((7500(1)) 및 (7500(2)))의 제 1 면((7501(1)) 및 (7501(2)))뿐만 아니라 제 2 면((7502(1)) 및 (7502(2)))에 표시할 수 있다. 이와 같은 구조를 가지면 휴대 전화를 가슴주머니에 넣은 채 제 2 면((7502(1)) 및 (7502(2))) 등에 표시된 문자 정보나 화상 정보 등을 사용자가 용이하게 확인할 수 있다.
- [0150] 또한, 도 5의 (A)~(C)에 접을 수 있는 휴대 정보 단말(9310)을 도시하였다. 도 5의 (A)는 펼친 상태의 휴대 정보 단말(9310)을 도시한 것이다. 도 5의 (B)는 펼친 상태 및 접은 상태 중 한쪽으로부터 다른 쪽으로 변화하는 도중 상태의 휴대 정보 단말(9310)을 도시한 것이다. 도 5의 (C)는 접은 상태의 휴대 정보 단말(9310)을 도시한 것이다. 휴대 정보 단말(9310)은 접으면 휴대가 쉽고, 펼치면 이음매가 없는 큰 표시 영역을 가지기 때문에 표시의 일람성이 우수하다.
- [0151] 표시 패널(9311)은 힌지(9313)로 연결된 3개의 하우징(9315)에 의하여 지지되어 있다. 또한, 표시 패널(9311)은 터치 센서(입력 장치)가 탑재된 터치 패널(입출력 장치)이라도 좋다. 또한, 힌지(9313)를 이용하여 2개의 하우징(9315) 사이에서 표시 패널(9311)을 구부림으로써 휴대 정보 단말(9310)을 펼친 상태에서부터 접은 상태로 가역적으로 변형할 수 있다. 본 발명의 일 형태에 따른 발광 장치를 표시 패널(9311)에 사용할 수 있다. 표시 패널(9311)에서의 표시 영역(9312)은 접은 상태의 휴대 정보 단말(9310)에 있어서 측면에 위치한다. 표시 영역(9312)에는 정보 아이콘이나, 사용 빈도가 높은 애플리케이션이나 프로그램의 바로가기(쇼트컷) 등을 표시할 수 있고, 정보의 확인이나 애플리케이션의 기동을 원활하게 할 수 있다.
- [0152] 상술한 바와 같이, 본 발명의 일 형태에 따른 발광 장치를 적용하여 전자 기기를 얻을 수 있다. 또한, 본 실시 형태에 기재된 것에 한정되지 않고 모든 분야의 전자 기기에 적용할 수 있다.
- [0153] 또한, 본 실시 형태에 기재된 구성은 다른 실시 형태에 기재된 구성과 적절히 조합하여 사용할 수 있다.
- [0154] (실시 형태 6)
- [0155] 본 실시 형태에서는 본 발명의 일 형태에 따른 발광 장치를 적용한 조명 장치의 일례에 대하여 도 6을 사용하여 설명한다.
- [0156] 도 6은 발광 장치를 실내의 조명 장치(8001)로서 사용한 예이다. 또한, 발광 장치는 대면적화도 가능하므로 대면적의 조명 장치를 제작할 수도 있다. 이 외에도 곡면을 가지는 하우징을 사용함으로써 하우징, 커버, 또는 지지대를 가지고 발광 영역이 곡면을 가지는 조명 장치(8002)를 제작할 수도 있다. 본 실시 형태에서의 발광 장치에 포함되는 발광 소자는 박막 형상이며, 하우징의 디자인 자유도가 높다. 따라서, 다양한 디자인을 집약한 조명 장치를 제작할 수 있다. 또한, 대형 조명 장치(8003)를 실내의 벽면에 설치하여도 좋다.
- [0157] 또한, 발광 장치를 테이블의 표면에 사용함으로써 테이블로서의 기능을 가지는 조명 장치(8004)를 구현할 수 있다. 또한, 이 외의 가구의 일부에 발광 장치를 사용함으로써 가구로서의 기능을 가지는 조명 장치를 구현할 수 있다.
- [0158] 상술한 바와 같이, 발광 장치를 적용한 다양한 조명 장치가 얻어진다. 또한, 이러한 조명 장치는 본 발명의 일 형태에 포함된다.

[0159] 또한, 본 실시형태에 기재된 구성은 다른 실시형태에 기재된 구성과 적절히 조합하여 사용할 수 있다.

[0160] (실시예 1)

[0161] <<합성예>>

[0162] 본 실시예에서는 본 발명의 일 형태에 따른 헤테로고리 화합물 4,6-비스[3-(9,9-다이메틸플루오렌-2-일)페닐]피리미딘(약칭: 4,6mFP2Pm)(구조식(100))의 합성 방법에 대하여 설명한다. 또한, 4,6mFP2Pm의 구조를 아래에 나타낸다.



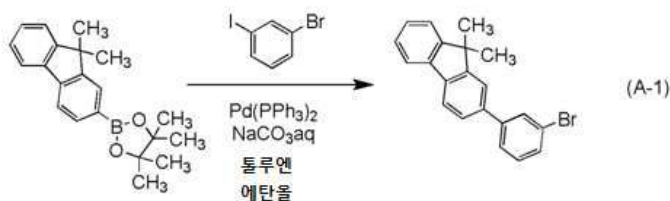
[0163]

[0164] <단계 1: 2-(3-브로모페닐)-9,9-다이메틸플루오렌의 합성>

[0165] 먼저, 9,9-다이메틸플루오렌-2-보론산피나콜에스터 7.8g(24mmol), 3-브로모요오도벤젠 6.2g(22mmol), 탄산 나트륨 5.0g(47mmol), 톨루엔 100mL, 에탄올 10mL를 300mL의 삼구 플라스크에 넣고 플라스크 내를 질소로 치환하였다. 이 혼합물에 테트라키스(트라이페닐포스핀)팔라듐(0)(약칭: Pd(PPh₃)₄) 0.42g(0.36mmol)을 첨가하고 80℃로 10시간 동안 가열하여 교반하였다. 얻어진 혼합물에 물을 첨가하여 수성층과 유기층으로 이루어진 혼합 용액을 얻었다. 혼합 용액의 수성층을 톨루엔으로 추출하였다.

[0166] 얻어진 추출 용액과 유기층을 합하여, 포화 식염수로 세정하였다. 유기층에 무수 황산 마그네슘을 첨가하여 건조시켜, 얻어진 혼합물을 자연 여과하여 여과액을 얻었다. 이 여과액을 농축하여 유상(油狀) 물질을 얻었다. 이 유상 물질을 플래시 칼럼 크로마토그래피에 의하여 정제하였다. 전개 용매에는 헥산:톨루엔=3:2(v/v)의 혼합 용매를 사용하였다. 얻어진 프랙션을 농축하여 유상 물질을 얻었다. 이 유상 물질에 헥산을 첨가하고 초음파를 조사한 바, 고체가 석출되었다. 이 고체를 흡인 여과한 후에 톨루엔과 헥산으로 세정하여, 2-(3-브로모페닐)-9,9-다이메틸플루오렌을 얻었다(백색의 고체 4.8g, 수율 57%).

[0167] 단계 1의 합성 스킴(A-1)을 아래에 나타낸다.



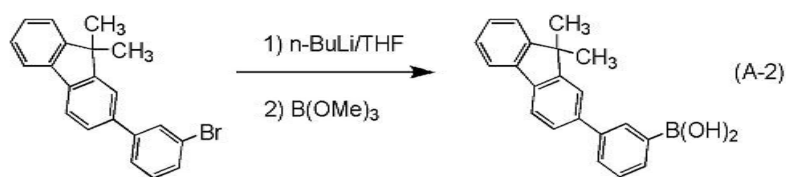
[0168]

[0169] <단계 2: 3-(9,9-다이메틸플루오렌-2-일)페닐보론산의 합성>

[0170] 2-(3-브로모페닐)-9,9-다이메틸플루오렌 4.8g(14mmol)을 300mL의 삼구 플라스크에 넣고 플라스크 내를 질소로 치환한 후, 테트라하이드로퓨란(THF) 70mL를 첨가하여 -78℃로 교반하였다. 이 혼합 용액에 n-부틸리튬 (1.58mol/L 헥산 용액) 10mL(15mmol)를 적하하여 -78℃로 1.5시간 동안 교반하였다. 이 혼합 용액에 붕산트라이메틸 1.8mL(16mmol)를 적하하여 20℃로 승온시키면서 18시간 동안 교반하였다. 소정의 시간 경과 후에 이 혼합 용액에 1mol/L의 염산 100mL를 첨가하고 실온에서 교반하였다. 이에 의하여 수성층과 유기층으로 이루어진 혼합 용액을 얻었다.

[0171] 혼합 용액의 수성층을 아세트산 에틸로 추출하고, 추출 용액과 유기층을 합하여 물과 포화 식염수로 세정하였다. 유기층에 무수 황산 마그네슘을 첨가하여 건조시켜, 얻어진 혼합물을 자연 여과하여 여과액을 얻었다. 이 여과액을 농축하여 얻은 유상 물질에 헥산을 첨가한 바, 고체가 석출되었다. 이 혼합물을 흡인 여과하여 얻은 고체를 소량의 톨루엔으로 세정하여 3-(9,9-다이메틸플루오렌-2-일)페닐보론산을 얻었다(백색의 고체 1.9g, 수율 45%).

[0172] 단계 2의 합성 스킴(A-2)을 아래에 나타낸다.



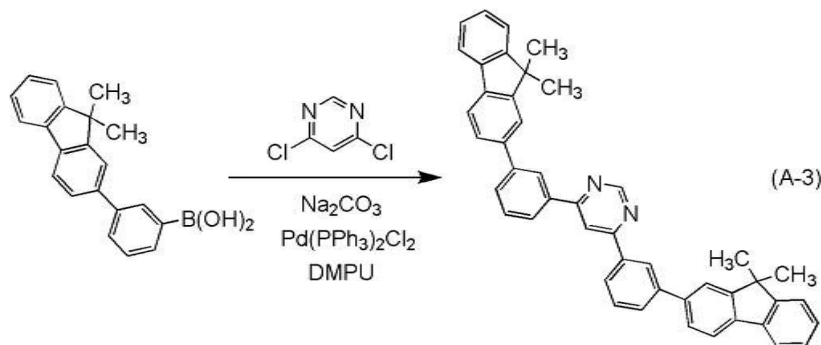
[0173]

[0174] <단계 3: 4,6-비스[3-(9,9-다이메틸플루오렌-2-일)페닐]피리미딘 (약칭: 4,6mFP2Pm)의 합성>

[0175] 3-(9,9-다이메틸플루오렌-2-일)페닐보르산 1.9g(6.1mmol), 4,6-다이클로로피리미딘 0.36g(2.4mmol), 탄산 나트륨 1.3g(12mmol), 1,3-다이메틸-3,4,5,6-테트라하이드로-2(1H)피리미딘온(DMPU) 25mL, 물 15mL를 100mL의 둥근 바닥 플라스크에 넣고 플라스크 내를 아르곤으로 치환하였다. 이 혼합물에 비스(트라이페닐포스핀)팔라듐(II) 다이클로라이드 17mg(0.020mmol)을 첨가하고 150℃, 100W의 조건으로 마이크로파를 1시간 동안 조사하여 반응시켰다.

[0176] 얻어진 반응 용액에 물을 첨가하여 수성층과 유기층으로 이루어진 혼합 용액을 얻었다. 혼합 용액의 수성층을 톨루엔으로 추출하였다. 얻어진 추출 용액을 물과 포화 식염수로 세정하고, 유기층에 무수 황산 마그네슘을 첨가하여 건조시켰다. 얻어진 혼합물을 자연 여과하여 얻은 여과액을 농축하여, 유상 물질을 얻었다. 이 유상 물질을 톨루엔에 녹이고 셀라이트, 알루미늄, 플로리실을 순차적으로 쌓은 여과지를 이용하여 흡인 여과하였다. 얻어진 여과액을 농축하여 고체를 얻었다. 이 고체를 톨루엔을 사용하여 재결정하여 4,6mFP2Pm을 얻었다(백색의 고체 0.9g, 수율 61%).

[0177] 단계 3의 합성 스킴(A-3)을 아래에 나타낸다.



[0178]

[0179] 얻어진 고체를 트레인 서블리메이션법(train sublimation method)에 의하여 승화 정제하였다. 승화 정제의 조건은 압력 2.6Pa, 아르곤 가스의 유량 5mL/min, 가열 온도 260℃로 하였다. 승화 정제 후에 목적물인 백색의 고체를 회수율 46%로 얻었다.

[0180] 단계 3으로 얻어진 백색의 고체의 핵자기 공명 분광법(¹H-NMR)에 의한 분석 결과를 아래에 나타낸다. 또한, ¹H-NMR 차트를 도 7에 나타내었다. 이것으로부터 단계 3에서 본 발명의 일 형태에 따른 헤테로고리 화합물 4,6mFP2Pm(구조식(100))이 얻어진 것을 알았다.

[0181] ¹H NMR(CDC1₃, 500MHz): δ (ppm)=1.57(s, 12H), 7.33-7.39(m, 4H), 7.46-7.48(m, 2H), 7.64-7.69(m, 4H), 7.74(s, 2H), 7.77(d, 2H), 7.82-7.85(m, 4H), 8.13(d, 2H), 8.25(d, 1H), 8.45(s, 2H).

[0182] 또한, 4,6mFP2Pm을 액체 크로마토그래피 질량 분석(Liquid Chromatography Mass Spectrometry, 약칭: LC/MS 분석)에 의하여 분석하였다.

[0183] LC/MS 분석은 Acquity UPLC(Waters사 제조) 및 Xevo G2 ToF MS(Waters사 제조)를 사용하여 수행하였다.

[0184] MS 분석에서는 전기 분무 이온화법(Electrospray Ionization, 약칭: ESI)에 의한 이온화를 수행하였다. 이 때의 캐필러리(capillary) 전압은 3.0kV, 샘플 콘 전압은 30V로 하고, 검출은 포지티브 모드로 수행하였다.

또한, 상술한 조건으로 이온화된 성분을 충돌실(collision cell) 내에서 아르곤 가스에 충돌시켜 프로덕트 이온으로 해리시켰다. 아르곤에 충돌시킬 때의 에너지(collision energy)는 70eV로 하였다. 또한, 측정하는 질량 범위는 $m/z=100\sim1200$ 으로 하였다.

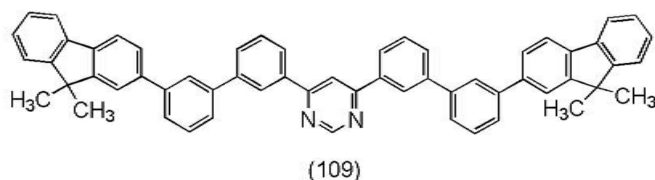
[0185] 측정 결과를 도 8에 나타내었다. 도 8에 나타난 결과로부터 구조식(100)으로 표기되는 본 발명의 일 형태에 따른 헤테로고리 화합물 4,6mFP2Pm의 프로덕트 이온은 주로 $m/z=617$ 부근, $m/z=601$ 부근, $m/z=585$ 부근, $m/z=572$ 부근에서 검출되는 것을 알았다. 또한, 도 8에 나타난 결과는 4,6mFP2Pm에서 유래하는 특징적인 결과를 나타내는 것이며 혼합물에 포함되는 4,6mFP2Pm을 동정(同定)함에 있어서 중요한 데이터라고 할 수 있다.

[0186] 또한, $m/z=601$ 부근의 피크는 메틸기와 프로톤이 구조식(100)의 화합물에서 이탈된 상태의 양이온에서 유래하고, $m/z=585$ 부근의 피크는 메틸기가 하나 더 이탈된 상태의 양이온에서 유래하고, $m/z=572$ 부근의 피크는 메틸기가 하나 더 이탈된 상태의 양이온에서 유래한 것으로 짐작되며 본 발명의 일 형태에 따른 헤테로고리 화합물 4,6mFP2Pm이 복수의 메틸기를 포함하는 것이 시사된다.

[0187] (실시예 2)

[0188] <<합성예>>

[0189] 본 실시예에서는 본 발명의 일 형태에 따른 헤테로고리 화합물 4,6-비스{3-[3-(9,9-다이메틸플루오렌-2-일)페닐]페닐}피리미딘(약칭: 4,6mFBP2Pm)(구조식(109))의 합성 방법에 대하여 설명한다. 또한, 4,6mFBP2Pm의 구조를 아래에 나타낸다.

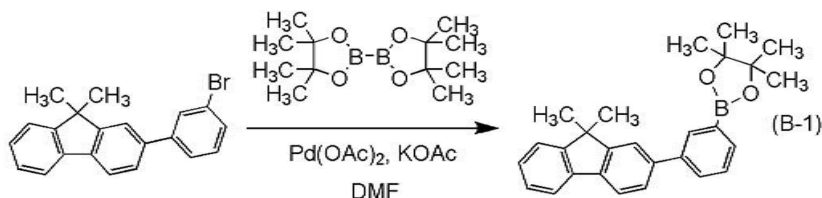


[0190]

[0191] <단계 1: 2-[3-(4,4,5,5-테트라메틸-1,3,2-다이옥사보롤란-2-일)페닐]-9,9-다이메틸플루오렌의 합성>

[0192] 3L의 삼구 플라스크에 2-(3-브로모페닐)-9,9-다이메틸플루오렌 130g(0.37mol), 4,4,4',4',5,5,5',5'-옥타메틸-2,2'-바이-1,3,2-다이옥사보롤레인 103g(0.41mol), 아세트산 칼륨 109g(1.1mol), N,N-다이메틸폼아마이드(DMF) 1.2L를 넣었다. 이 혼합물을 감압 하에서 교반하여 탈기시키고 플라스크 내를 질소로 치환하였다. 이 혼합물에 아세트산 팔라듐(II) 2.5g(0.011mol)을 첨가하였다. 이 혼합물을 질소 기류 하에서 100℃로 5시간 동안 교반하였다. 소정의 시간 경과 후에 이 혼합물을 셀라이트, 알루미늄을 순차적으로 쌓은 여과지를 이용하여 흡인 여과하고, 얻어진 여과액을 농축하여 유상 물질을 얻었다. 이 고체를 에탄올을 사용하여 재결정한 바, 갈색의 고체 118g을 수율 81%로 얻었다.

[0193] 단계 1의 합성 스킴(B-1)을 아래에 나타낸다.



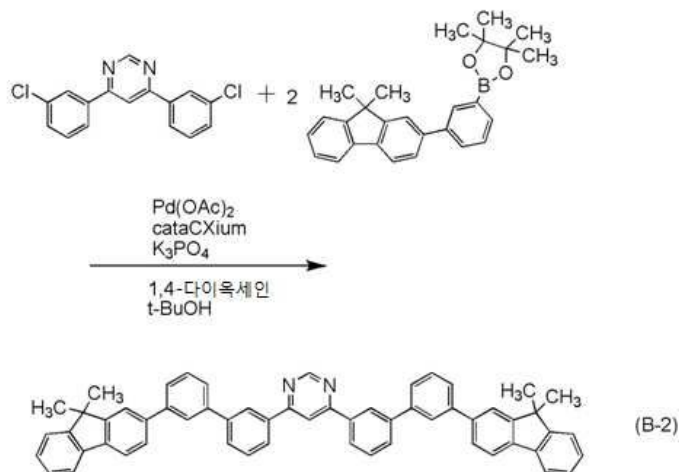
[0194]

[0195] <단계 2: 4,6-비스{3-[3-(9,9-다이메틸플루오렌-2-일)페닐]페닐}피리미딘(약칭: 4,6mFBP2Pm)의 합성>

[0196] 100mL의 삼구 플라스크에 4,6-비스(3-클로로페닐)피리미딘 1.0g(3.3mmol), 2-[3-(4,4,5,5-테트라메틸-1,3,2-다이옥사보롤란-2-일)페닐]-9,9-다이메틸플루오렌 2.9g(7.3mmol), t-부탄올 0.70g(9.9mmol), 인산삼칼륨 5.6g(11mmol), 1,4-다이옥세인 22mL를 넣었다. 이 혼합물을 감압 하에서 교반하여 탈기시키고 플라스크 내를 질소로 치환하였다. 이 혼합물에 아세트산 팔라듐(II) 22mg(1.0mmol), 다이(1-아다만틸)-n-뷰틸포스핀(별명: cataXium(등록 상표) A, Aldrich 제조)(약칭: cataCXium) 71g(2.0mmol)을 첨가하였다.

[0197] 이 혼합물을 질소 기류 하에서 100℃로 8시간 동안 교반하였다. 소정의 시간 경과 후에 이 혼합물을 셀라이트를 통과시켜 흡인 여과하고, 얻어진 여과액을 농축함으로써 고체를 얻었다. 이 고체를 실리카 젤 칼럼 크로마토그래피에 의하여 정제하였다. 전개 용매에는 톨루엔:헥산=1:1을 사용하였다. 얻어진 프랙션을 농축, 건조하고 아세트나이트릴을 사용하여 재결정한 바, 백색의 고체 3.7g을 수율 74%로 얻었다.

[0198] 단계 2의 합성 스킴(B-2)을 아래에 나타낸다.



[0199]

[0200] 얻어진 백색의 고체 0.81g을 트레인 서블리메이션법에 의하여 승화 정제하였다. 승화 정제는 압력 2.7Pa, 아르곤 유량 10mL/min의 조건으로 백색의 고체를 328℃로 가열하여 수행하였다. 승화 정제 후, 목적물인 백색의 고체 0.52g을 회수율 64%로 얻었다.

[0201] 단계 2로 얻어진 백색의 고체의 핵자기 공명 분광법(¹H-NMR)에 의한 분석 결과를 아래에 나타낸다. 또한, ¹H-NMR 차트를 도 9의 (A) 및 (B)에 나타내었다. 또한, 도 9의 (B)는 가로축(δ)을 7(ppm)~10(ppm)의 범위로 한 도 9의 (A)의 확대도이다. 이것으로부터 단계 2에서 본 발명의 일 형태에 따른 헤테로고리 화합물 4,6mFBP2Pm(구조식(109))이 얻어진 것을 알았다.

[0202] ¹H NMR(CDCl₃, 500MHz): δ(ppm)=1.54(s, 12H), 7.31-7.37(m, 4H), 7.46(d, J=6.9Hz, 2H), 7.57(t, J=7.5Hz, 2H), 7.63-7.70(m, 10H), 7.75-7.95(m, 6H), 7.93(d, J=1.7Hz, 2H), 8.16(d, J=7.4Hz, 2H), 8.24(d, J=1.2Hz, 1H), 8.45(d, J=1.7Hz, 2H), 9.38(s, 1H).

[0203] 또한, 4,6mFBP2Pm을 LC/MS 분석에 의하여 분석하였다.

[0204] LC/MS 분석은 Acquity UPLC(Waters사 제조) 및 Xevo G2 ToF MS(Waters사 제조)를 사용하여 수행하였다.

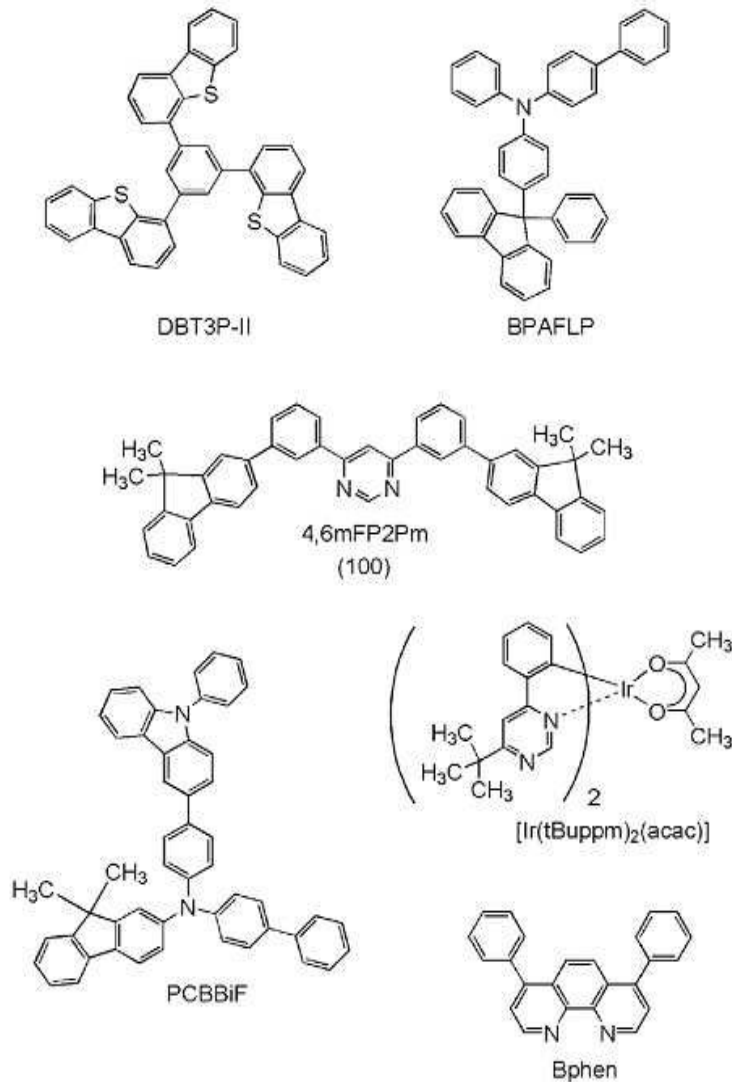
[0205] MS 분석에서는 전기 분무 이온화법에 의한 이온화를 수행하였다. 이 때의 캐필러리 전압은 3.0kV, 샘플 콘 전압은 30V로 하고, 검출은 포지티브 모드로 수행하였다. 또한, 상술한 조건으로 이온화된 성분을 충돌실 내에서 아르곤 가스에 충돌시켜 프로드트 이온으로 해리시켰다. 아르곤에 충돌시킬 때의 에너지는 70eV로 하였다. 또한, 측정하는 질량 범위는 m/z=100~1200으로 하였다.

[0206] 측정 결과를 도 10에 나타내었다. 도 10에 나타난 결과로부터 구조식(109)으로 표기되는 본 발명의 일 형태에 따른 헤테로고리 화합물 4,6mFBP2Pm의 프로드트 이온은 주로 m/z=769 부근, m/z=754 부근, m/z=738 부근, m/z=724 부근에서 검출되는 것을 알았다. 또한, 도 10에 나타난 결과는 4,6mFBP2Pm에서 유래하는 특징적인 결과를 나타내는 것이며 혼합물에 포함되는 4,6mFBP2Pm을 동정함에 있어서 중요한 데이터라고 할 수 있다.

[0207] 또한, m/z=754 부근의 피크는 메틸기와 프로톤이 구조식(109)의 화합물에서 이탈된 상태의 양이온에서 유래하고, m/z=738 부근의 피크는 메틸기가 하나 더 이탈된 상태의 양이온에서 유래하고, m/z=724 부근의 피크는 메틸기가 하나 더 이탈된 상태의 양이온에서 유래한 것으로 짐작되며 본 발명의 일 형태에 따른 헤테로고리 화합물 4,6mFBP2Pm이 복수의 메틸기를 포함하는 것이 시사된다.

[0208] (실시예 3)

[0209] 본 실시예에서는 본 발명의 일 형태에 따른 발광 소자로서 발광 소자 1을 제작하였다. 또한, 발광 소자 1에 대하여 도 11을 사용하여 설명한다. 또한, 본 실시예에서 사용한 재료의 화학식을 아래에 나타낸다.



[0210]

[0211] <<발광 소자 1의 제작>>

[0212] 먼저, 유리체의 기판(800) 위에 산화 실리콘을 포함하는 인듐 주석 산화물(ITO-2)을 스퍼터링법으로 성막하여, 양극으로서 기능하는 제 1 전극(801)을 형성하였다. 막 두께는 110nm로 하고 전극 면적은 2mm×2mm로 하였다.

[0213] 다음에, 기판(800) 위에 발광 소자 1을 형성하기 위한 전(前)처리로서 기판 표면을 물로 세정하고 200℃로 1시간 동안 소성한 후, UV 오존 처리를 370초 동안 수행하였다.

[0214] 이 후, 내부가 10⁻⁴Pa 정도까지 감압된 진공 증착 장치에 기판을 도입하고, 진공 증착 장치 내의 가열실에서 170℃로 30분 동안의 진공 소성을 수행한 후, 기판(800)을 약 30분 동안 방랭(放冷)하였다.

[0215] 다음에, 제 1 전극(801)이 형성된 면을 아래로 하여 기판(800)을 진공 증착 장치 내에 제공된 홀더에 고정하였다. 본 실시예에서는 진공 증착법에 의하여, EL층(802)을 구성하는 정공 주입층(811), 정공 수송층(812), 발광층(813), 전자 수송층(814), 전자 주입층(815)을 순차적으로 형성하는 경우에 대하여 설명한다.

[0216] 진공 증착 장치 내를 10⁻⁴Pa로 감압한 후, 1,3,5-트라이(다이벤조싸이오펜-4-일)-벤젠(약칭: DBT3P-II)과 산화 몰리브데넘을 DBT3P-II:산화 몰리브데넘=4:2(질량비)가 되도록 공증착(co-evaporation)함으로써 제 1 전극(801) 위에 정공 주입층(811)을 형성하였다. 막 두께는 20nm로 하였다. 또한, 공증착이란, 복수의 다른 물질을 각각 다른 증착원으로부터 동시에 증발시키는 증착법이다.

[0217] 다음에, 4-페닐-4'-(9-페닐플루오렌-9-일)트라이페닐아민(약칭: BPAFLP)을 막 두께 20nm로 증착함으로써 정공 수송층(812)을 형성하였다.

[0218] 다음에, 정공 수송층(812) 위에 발광층(813)을 형성하였다.

[0219] 4,6mFP2Pm, N-(1,1'-바이페닐-4-일)-N-[4-(9-페닐-9H-카바졸-3-일)페닐]-9,9-다이메틸-9H-플루오렌-2-아민(약칭: PCBBiF), (아세틸아세토나토)비스(6-tert-부틸-4-페닐피리미디나토)이리듐(III)(약칭: [Ir(tBuppm)₂(acac)])을 4,6mFP2Pm:PCBBiF:[Ir(tBuppm)₂(acac)]=0.7:0.3:0.05(질량비)가 되도록 공증착하여 두께 20nm의 막을 형성한 후, 4,6mFP2Pm:PCBBiF:[Ir(tBuppm)₂(acac)]=0.8:0.2:0.05(질량비)가 되도록 공증착하여 두께 20nm의 막을 더 형성함으로써 적층 구조를 가지는 두께 40nm의 발광층(813)을 형성하였다.

[0220] 다음에, 발광층(813) 위에 전자 수송층(814)을 형성하였다.

[0221] 먼저, 4,6mFP2Pm을 25nm 증착한 후에 바소페난트폴린(약칭: Bphen)을 10nm 증착하여 전자 수송층(814)을 형성하였다.

[0222] 다음에, 전자 수송층(814) 위에 플루오린화 리튬을 두께 1nm로 증착함으로써 전자 주입층(815)을 형성하였다.

[0223] 마지막으로 전자 주입층(815) 위에 알루미늄을 두께 200nm로 증착하여, 음극이 되는 제 2 전극(803)을 형성함으로써 발광 소자 1을 얻었다. 또한, 상술한 증착 과정에서 증착은 모두 저항 가열법으로 수행하였다.

[0224] 상술한 바와 같이 하여 얻어진 발광 소자 1의 소자 구조를 표 1에 나타낸다.

[0225] [표 1]

	제 1 전극	정공 주입층	정공 수송층	발광층	전자 수송층	전자 주입층	제 2 전극
발광 소자 1	ITO-2 (110nm)	DBT3P-II :MoOx (4:2 20nm)	BPAFLP (20nm)	*	4,6mFP2Pm (25nm)	Bphen (10nm) LiF (1nm)	Al (200nm)

[0226] * 4,6mFP2Pm:PCBBiF:[Ir(tBuppm)₂(acac)] (0.7:0.3:0.05 (20nm)\0.8:0.2:0.05 (20nm))

[0227] 또한, 제작한 발광 소자 1은 대기에 노출되지 않도록 질소 분위기의 글로브 박스 내에서 밀봉하였다(밀봉재를 소자의 주위에 도포하고 밀봉 시에 UV 처리 및 80℃로 1시간 동안 가열 처리).

[0228] <<발광 소자 1의 동작 특성>>

[0229] 제작한 발광 소자 1의 동작 특성을 측정하였다. 또한, 측정은 실온(25℃로 유지된 분위기)에서 수행하였다.

[0230] 발광 소자 1의 전압-휘도 특성을 도 12에 나타내었다. 또한, 도 12에서 세로축은 휘도(cd/m²), 가로축은 전압(V)을 나타낸다. 또한, 발광 소자 1의 휘도-전류 효율 특성을 도 13에 나타내었다. 또한, 도 13에서 세로축은 전류 효율(cd/A), 가로축은 휘도(cd/m²)를 나타낸다. 또한, 발광 소자 1의 전압-전류 특성을 도 14에 나타내었다. 또한, 도 14에서 세로축은 전류(mA), 가로축은 전압(V)을 나타낸다.

[0231] 도 13의 결과로부터 본 발명의 일 형태에 따른 발광 소자 1은 고효율의 소자임을 알았다. 또한, 1000cd/m² 부근에서의 발광 소자 1의 주된 초기 특성값을 아래의 표 2에 나타낸다.

[0232] [표 2]

	전압 (V)	전류 (mA)	전류 밀도 (mA/cm ²)	색도 (x,y)	휘도 (cd/m ²)	전류 효율 (cd/A)	파워 효율 (lm/W)	외부 양자 효율 (%)
발광 소자 1	3.1	0.034	0.85	(0.41,0.58)	830	98	99	26

[0233]

[0234] 또한, 전류 밀도 25mA/cm²로 발광 소자 1에 전류를 흘렸을 때의 발광 스펙트럼을 도 15에 나타내었다. 도 15에 나타낸 바와 같이 발광 소자 1의 발광 스펙트럼은 545nm 부근에 피크를 가지며 발광층에 사용한 게스트 재료인 유기 금속 착체 [Ir(tBuppm)₂(acac)](약칭)의 발광에서 유래하는 녹색 발광이 얻어진 것을 알 수 있다.

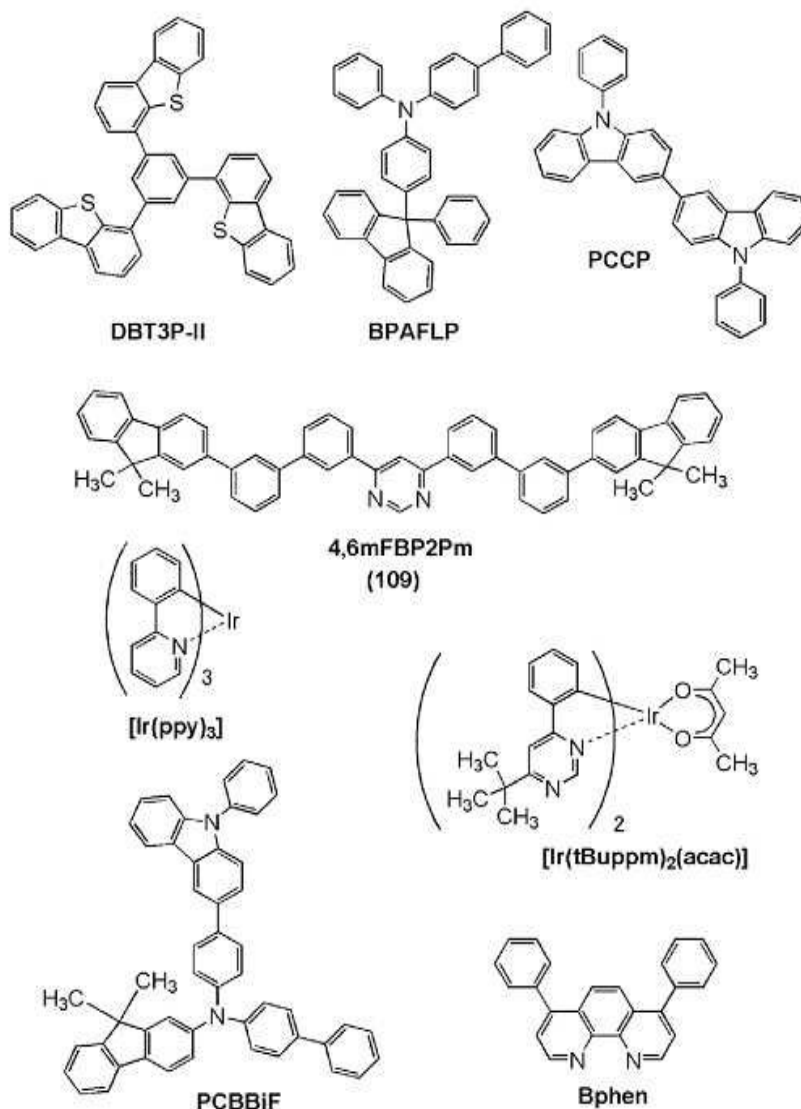
[0235] 다음에, 발광 소자 1의 신뢰성 시험을 수행하였다. 신뢰성 시험의 결과를 도 16에 나타내었다. 도 16에서 세로축은 초기 휘도를 100%로 하였을 때의 정규화 휘도(%), 가로축은 소자의 구동 시간(h)을 나타낸다. 또한, 신

퇴성 시험은 초기 휘도를 5000cd/m^2 로 설정하고 전류 밀도를 일정하게 하는 조건으로 발광 소자 1을 구동시켜 수행하였다. 그 결과, 100시간 후의 발광 소자 1의 휘도는 초기 휘도의 약 96%를 유지하였다.

[0236] 따라서, 본 발명의 일 형태에 따른 헤테로고리 화합물(4,6mFBP2Pm)을 발광층에 사용한 발광 소자 1은 높은 신뢰성을 가짐을 알았다. 또한, 본 발명의 일 형태에 따른 헤테로고리 화합물을 발광 소자에 사용하면 고효율일 뿐만 아니라 수명이 긴 발광 소자가 얻어짐을 알았다.

[0237] (실시예 4)

[0238] 본 실시예에서는 본 발명의 일 형태에 따른 발광 소자로서 발광 소자 2 및 발광 소자 3을 제작하였다. 또한, 발광 소자 2 및 발광 소자 3의 제작은 일부의 재료나 비율, 막 두께 등이 다르다는 것을 제외하고는 실시예 3에서의 발광 소자 1과 마찬가지로이기 때문에 자세한 설명을 생략한다. 또한, 본 실시예에서 사용한 재료의 화학식을 아래에 나타낸다.



[0239]

[0240] <<발광 소자 2 및 발광 소자 3의 제작>>

[0241] 본 실시예에서 제작한 발광 소자 2 및 발광 소자 3의 소자 구조를 표 3에 나타낸다. 또한, 발광 소자 2 및 발광 소자 3의 제 1 전극은 산화 실리콘을 포함하는 인듐 주석 산화물(ITO-3)을 스퍼터링법으로 성막하여 형성하였다. 또한, 발광 소자 3의 정공 수송층에는 9-페닐-9H-3-(9-페닐-9H-카바졸-3-일)카바졸(약칭: PCCP)을 사용하였다. 또한, 발광 소자 2 및 발광 소자 3의 발광층에는 실시예 2에서 합성한 4,6mFBP2Pm을 사용하였다.

[0242] [표 3]

	제 1 전극	정공 주입층	정공 수송층	발광층	전자 수송층	전자 주입층	제 2 전극
발광 소자 2	ITO-3 (110nm)	DBT3P-II :MoO _x (4:2 60nm)	BPAFLP (20nm)	*	4,6mFBP2Pm (20nm)	Bphen (10nm)	LiF (1nm) Al (200nm)
발광 소자 3	ITO-3 (110nm)	DBT3P-II :MoO _x (4:2 60nm)	POCP (20nm)	**	4,6mFBP2Pm (20nm)	Bphen (10nm)	LiF (1nm) Al (200nm)

* 4,6mFBP2Pm:PCBBIF:[Ir(tBuppm)₂(acac)] (0.7:0.3:0.05 (20nm)\0.8:0.2:0.05 (20nm))

** 4,6mFBP2Pm:POCP:[Ir(ppy)₃] (0.5:0.5:0.05 (20nm)\0.8:0.2:0.05 (20nm))

[0243]

[0244] 또한, 제작한 발광 소자 2 및 발광 소자 3은 대기에 노출되지 않도록 질소 분위기의 글로브 박스 내에서 밀봉하였다(밀봉재를 소자의 주위에 도포하고 밀봉 시에 UV 처리 및 80℃로 1시간 동안 가열 처리).

[0245]

《발광 소자 2 및 발광 소자 3의 동작 특성》

[0246]

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

[0247]

발광 소자 2의 전압-휘도 특성을 도 17, 발광 소자 3의 전압-휘도 특성을 도 21에 각각 나타내었다. 또한, 도 17 및 도 21에서 세로축은 휘도(cd/m²), 가로축은 전압(V)을 나타낸다. 또한, 발광 소자 2의 휘도-전류 효율 특성을 도 18, 발광 소자 3의 휘도-전류 효율 특성을 도 22에 각각 나타내었다. 또한, 도 18 및 도 22에서 세로축은 전류 효율(cd/A), 가로축은 휘도(cd/m²)를 나타낸다. 또한, 발광 소자 2의 전압-전류 특성을 도 19, 발광 소자 3의 전압-전류 특성을 도 23에 각각 나타내었다. 또한, 도 19 및 도 23에서 세로축은 전류(mA), 가로축은 전압(V)을 나타낸다.

[0248]

도 18 및 도 22의 결과로부터 본 발명의 일 형태에 따른 발광 소자 2 및 발광 소자 3은 고효율의 소자임을 알았다. 또한, 1000cd/m² 부근에서의 발광 소자 2 및 발광 소자 3의 주된 초기 특성값을 아래의 표 4에 나타낸다.

[0249]

[표 4]

	전압 (V)	전류 (mA)	전류 밀도 (mA/cm ²)	색도 (x,y)	휘도 (cd/m ²)	전류 효율 (cd/A)	파워 효율 (lm/W)	외부 양자 효율 (%)
발광 소자 2	3.1	0.047	1.2	(0.42,0.57)	1200	100	100	27
발광 소자 3	3.6	0.053	1.3	(0.32,0.64)	1100	84	73	23

[0250]

[0251] 또한, 전류 밀도 25mA/cm²로 상술한 각 발광 소자에 전류를 흘려서 발광 스펙트럼을 측정하였다. 얻어진 발광 소자 2의 발광 스펙트럼을 도 20, 발광 소자 3의 발광 스펙트럼을 도 24에 각각 나타내었다. 그 결과 발광 소자 2의 발광 스펙트럼은 545nm 부근에 피크를 가지며 발광층에 사용한 게스트 재료인 유기 금속 착체 [Ir(tBuppm)₂(acac)]의 발광에서 유래하는 황록색 발광이 얻어졌다. 또한, 발광 소자 3의 발광 스펙트럼은 518nm 부근에 피크를 가지며 발광층에 사용한 게스트 재료인 유기 금속 착체 [Ir(ppy)₃]의 발광에서 유래하는 녹색 발광이 얻어졌다.

[0252]

다음에, 발광 소자 2의 신뢰성 시험을 수행하였다. 신뢰성 시험의 결과를 도 25에 나타내었다. 도 25에서 세로축은 초기 휘도를 100%로 하였을 때의 정규화 휘도(%), 가로축은 소자의 구동 시간(h)을 나타낸다. 또한, 신뢰성 시험은 초기 휘도를 5000cd/m²로 설정하고 전류 밀도를 일정하게 하는 조건으로 발광 소자 2를 구동시켜 수행하였다. 그 결과, 100시간 후의 발광 소자 2의 휘도는 초기 휘도의 약 92%를 유지하였다.

[0253]

따라서, 본 발명의 일 형태에 따른 발광 소자는 높은 신뢰성을 가짐을 알았다. 또한, 본 발명의 일 형태에 따른 헤테로고리 화합물을 발광 소자에 사용하면 고효율일 뿐만 아니라 수명이 긴 발광 소자가 얻어짐을 알았다.

부호의 설명

[0254]

101: 제 1 전극

102: EL층

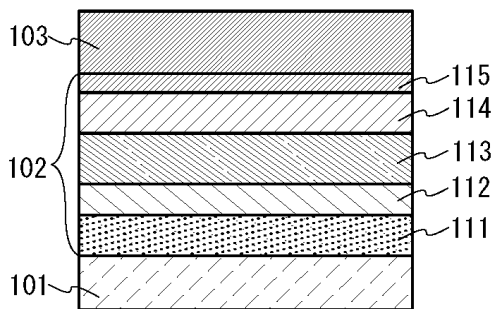
103: 제 2 전극
 111: 정공 주입층
 112: 정공 수송층
 113: 발광층
 114: 전자 수송층
 115: 전자 주입층
 201: 제 1 전극
 202(1): 제 1 EL층
 202(2): 제 2 EL층
 202(n-1): 제 (n-1) EL층
 202(n): 제 (n) EL층
 204: 제 2 전극
 205: 전하 발생층
 205(1): 제 1 전하 발생층
 205(2): 제 2 전하 발생층
 205(n-2): 제 (n-2) 전하 발생층
 205(n-1): 제 (n-1) 전하 발생층
 301: 소자 기관
 302: 화소부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

801: 제 1 전극
802: EL층
803: 제 2 전극
811: 정공 주입층
812: 정공 수송층
813: 발광층
814: 전자 수송층
815: 전자 주입층
7100: 텔레비전 장치
7101: 하우징
7103: 표시부
7105: 스탠드
7107: 표시부
7109: 조작 키
7110: 리모트 컨트롤러
7201: 본체
7202: 하우징
7203: 표시부
7204: 키보드
7205: 외부 접속 포트
7206: 포인팅 디바이스
7302: 하우징
7304: 표시 패널
7305: 시각을 나타내는 아이콘
7306: 기타 아이콘
7311: 조작용 버튼
7312: 조작용 버튼
7313: 접속 단자
7321: 밴드
7322: 버클
7400: 휴대 전화기
7401: 하우징
7402: 표시부
7403: 조작용 버튼
7404: 외부 접속부
7405: 스피커

- 7406: 마이크론
- 7407: 카메라
- 8001: 조명 장치
- 8002: 조명 장치
- 8003: 조명 장치
- 8004: 조명 장치
- 9310: 휴대 정보 단말
- 9311: 표시 패널
- 9312: 표시 영역
- 9313: 힌지
- 9315: 하우징

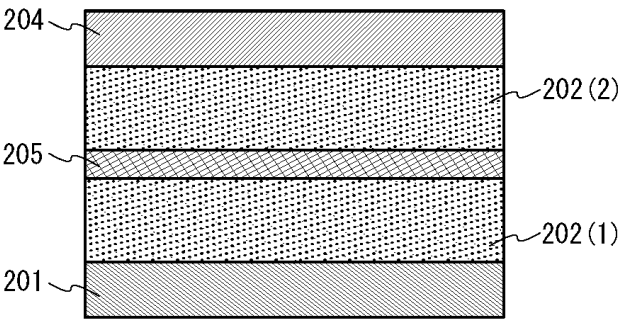
도면

도면1

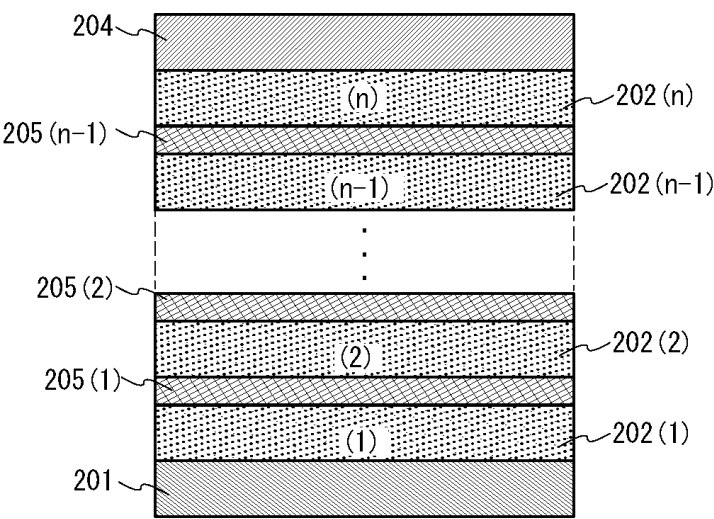


도면2

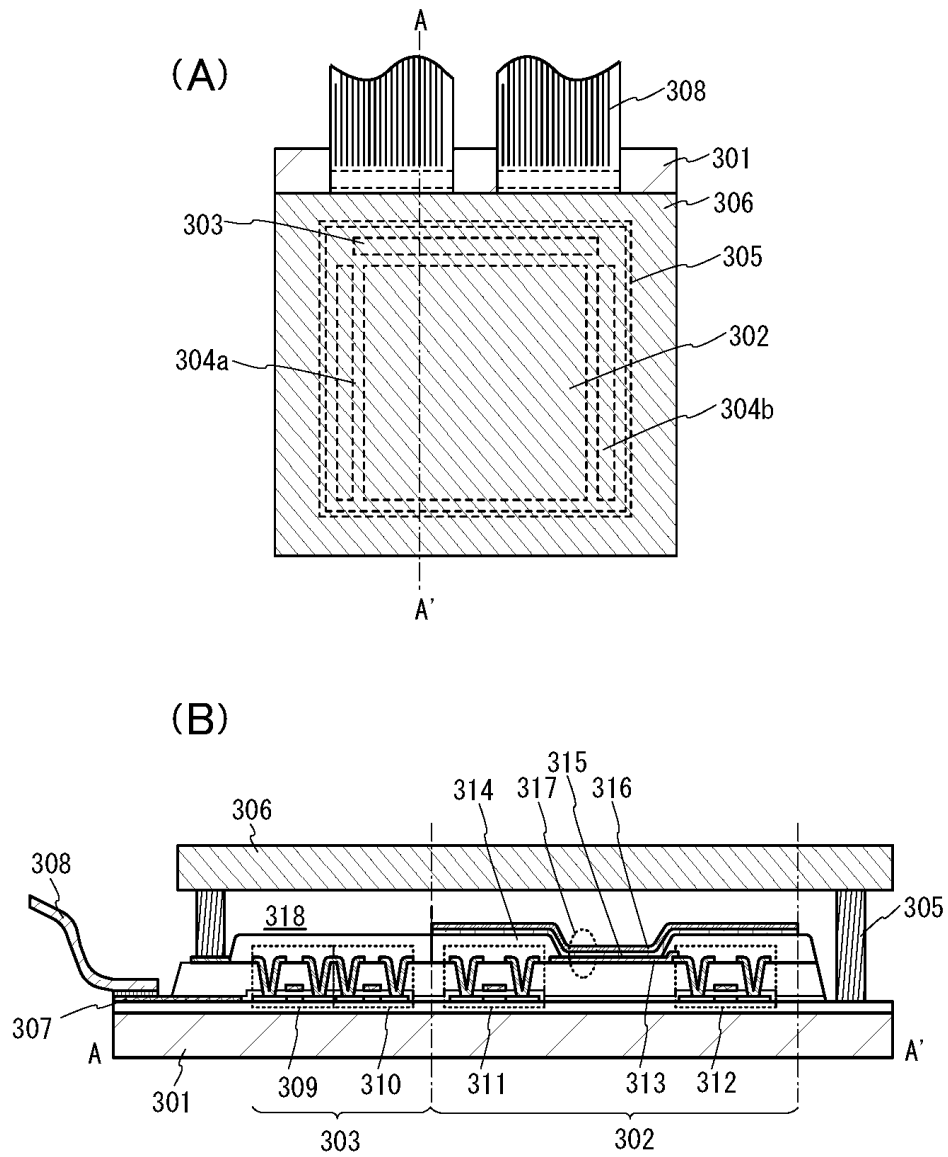
(A)



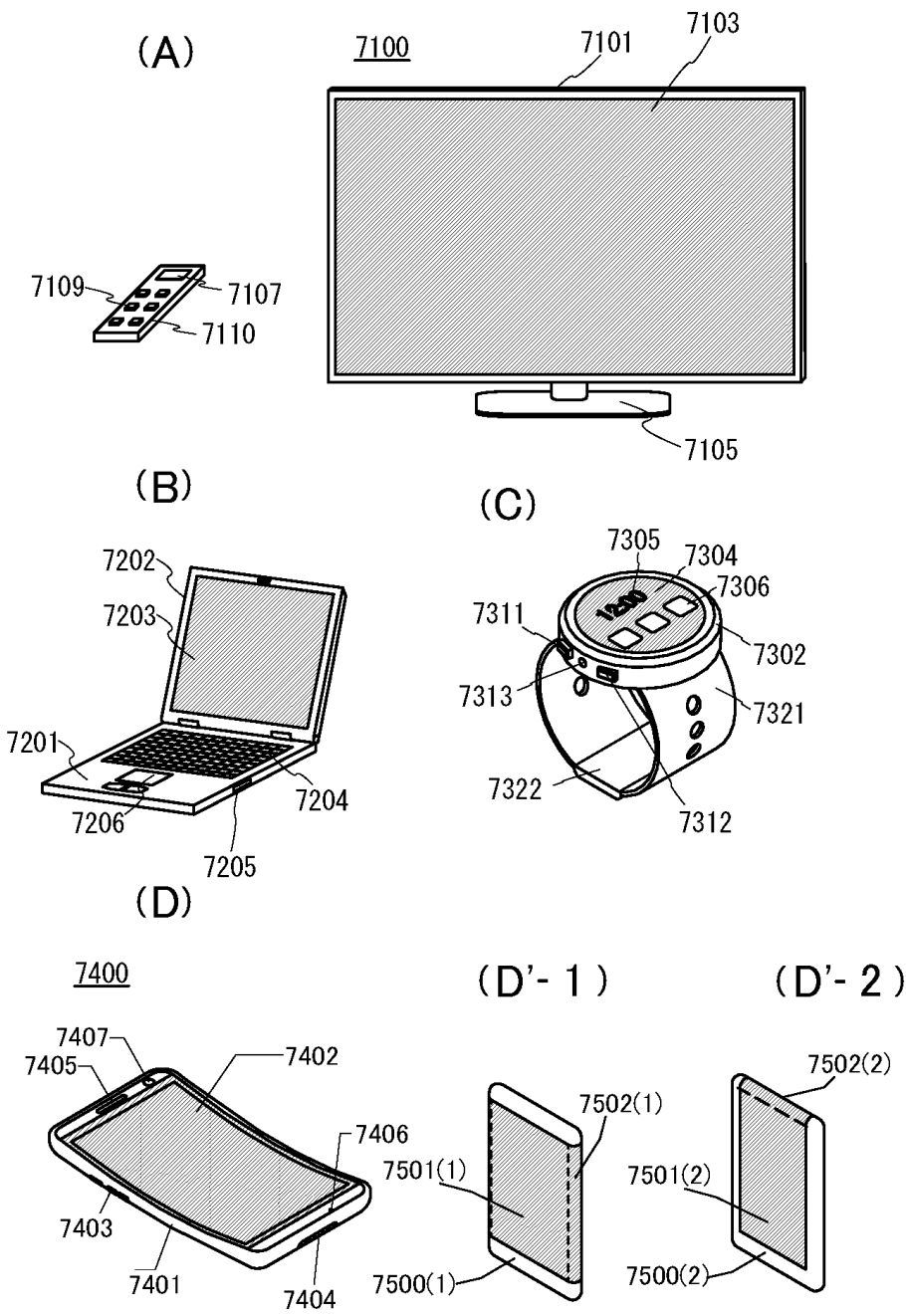
(B)



도면3

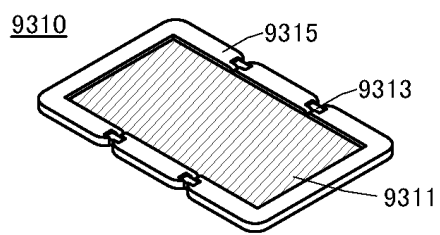


도면4

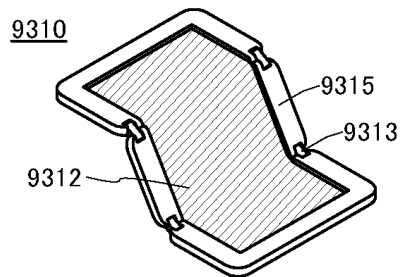


도면5

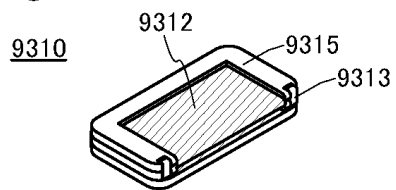
(A)



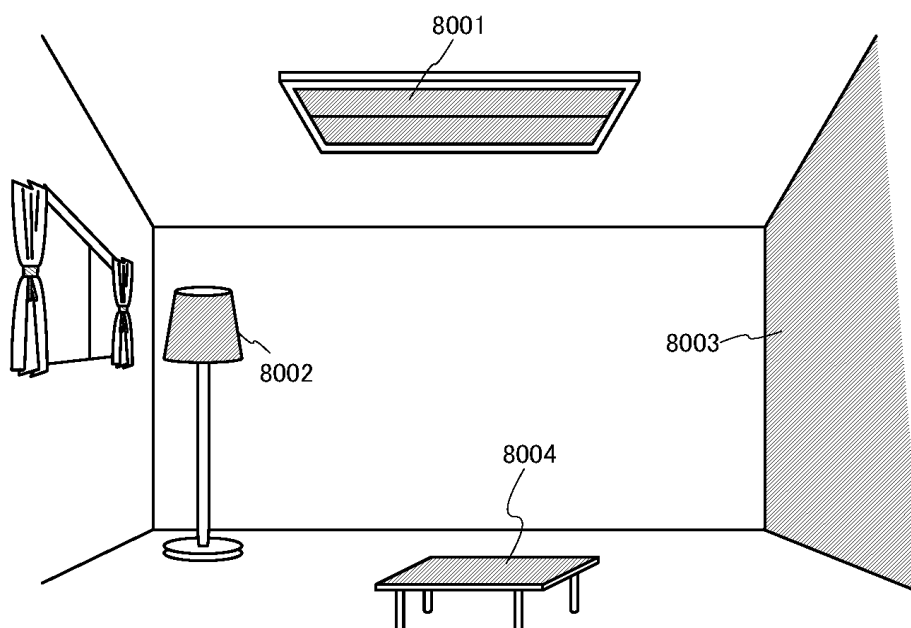
(B)



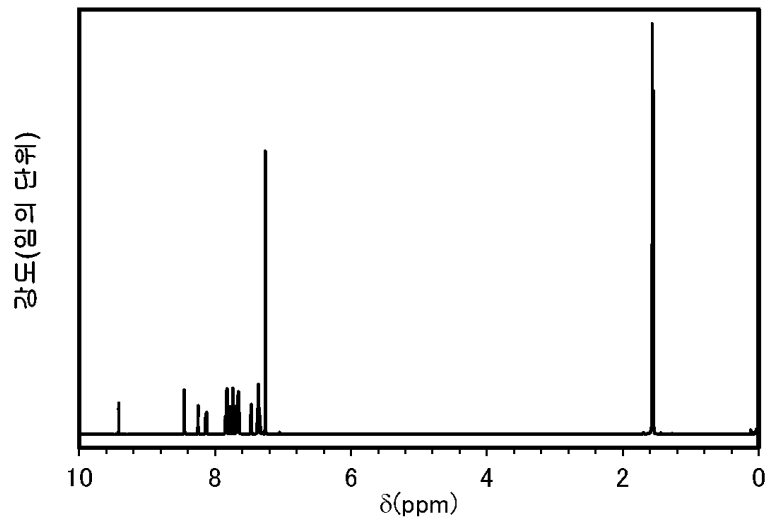
(C)



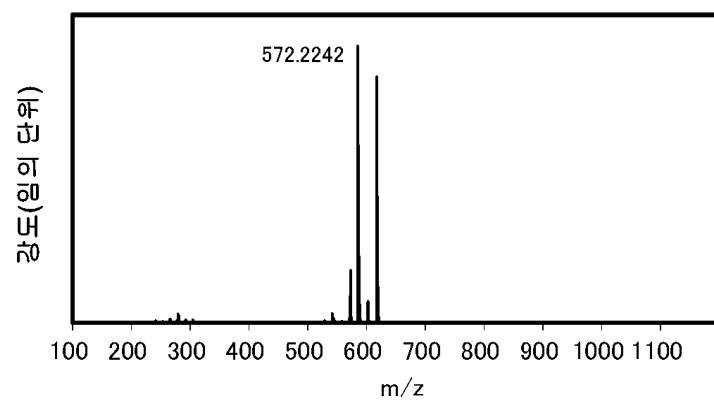
도면6



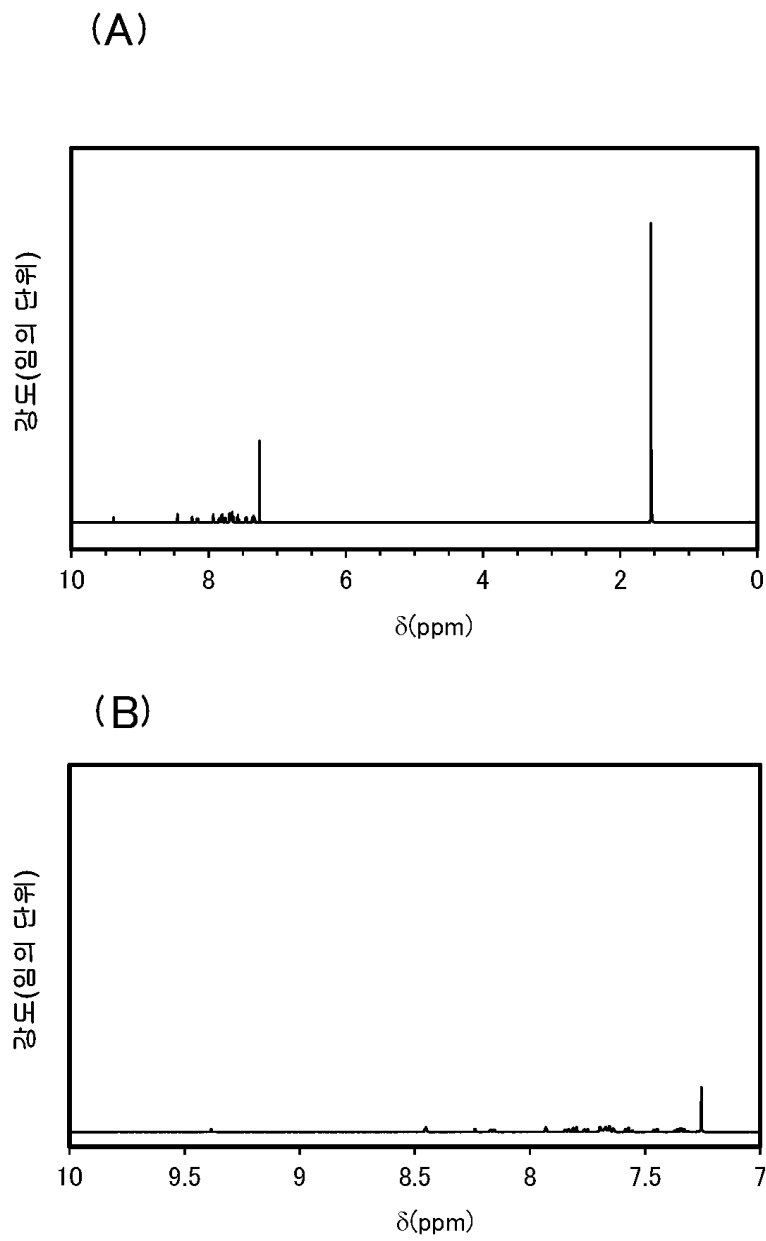
도면7



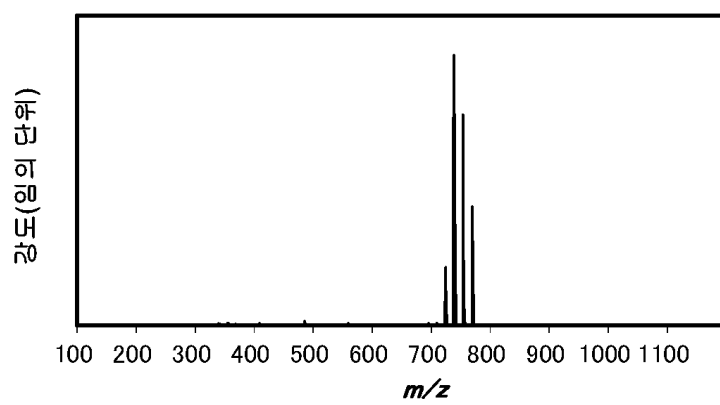
도면8



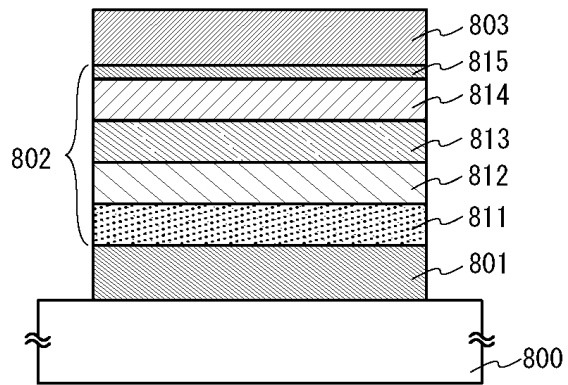
도면9



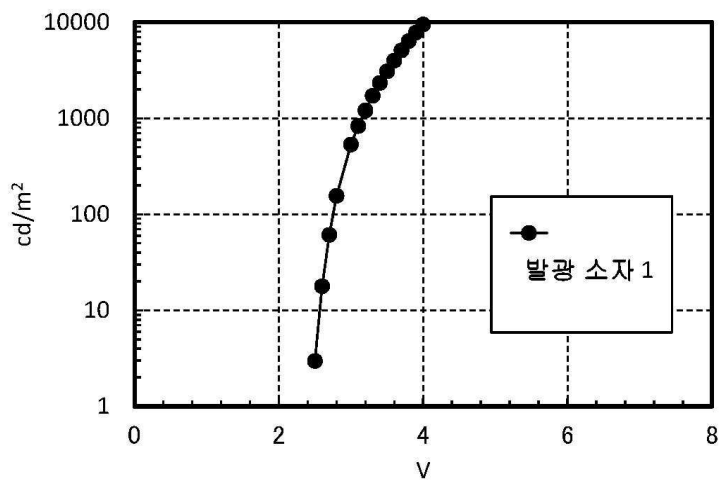
도면10



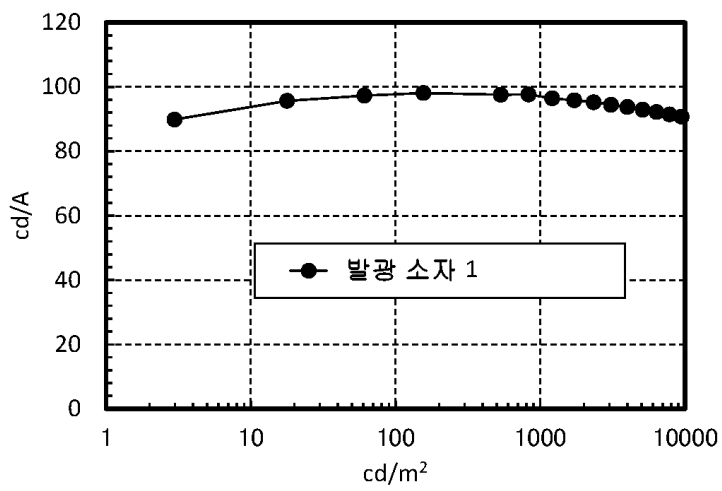
도면11



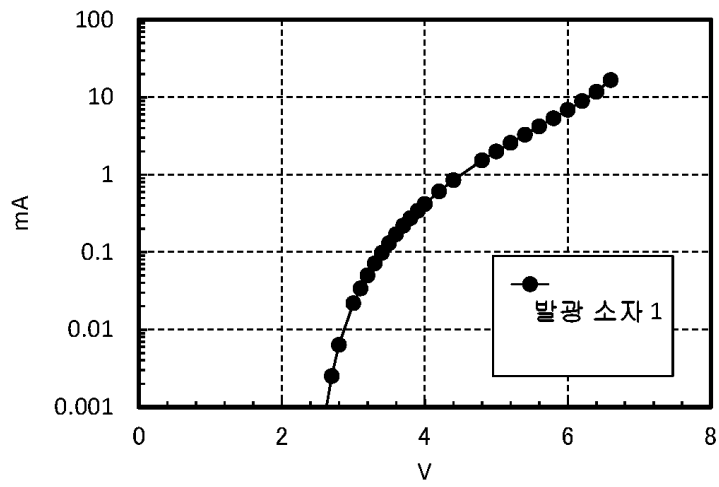
도면12



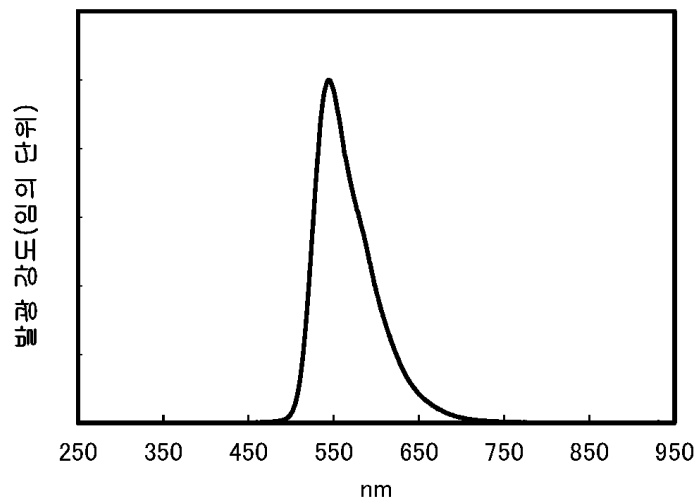
도면13



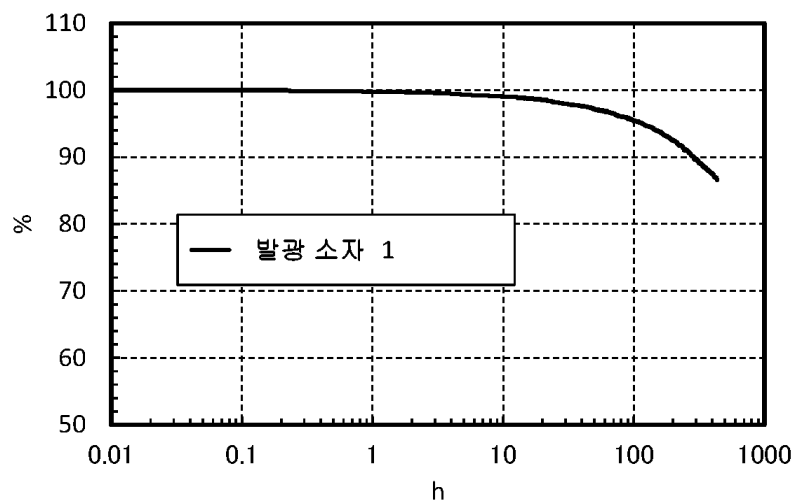
도면14



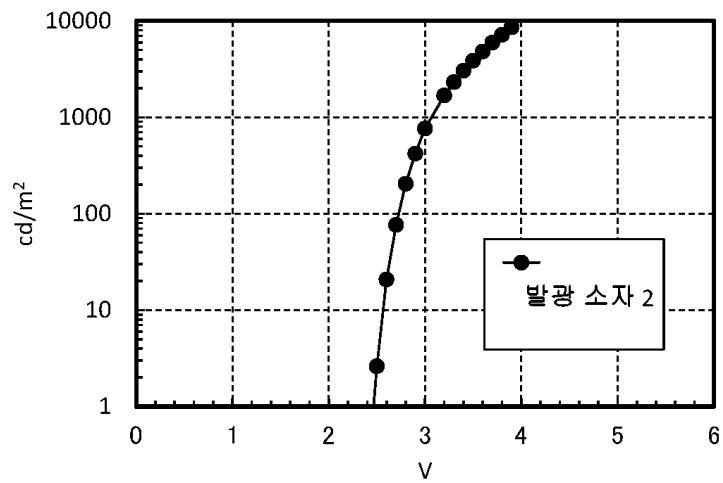
도면15



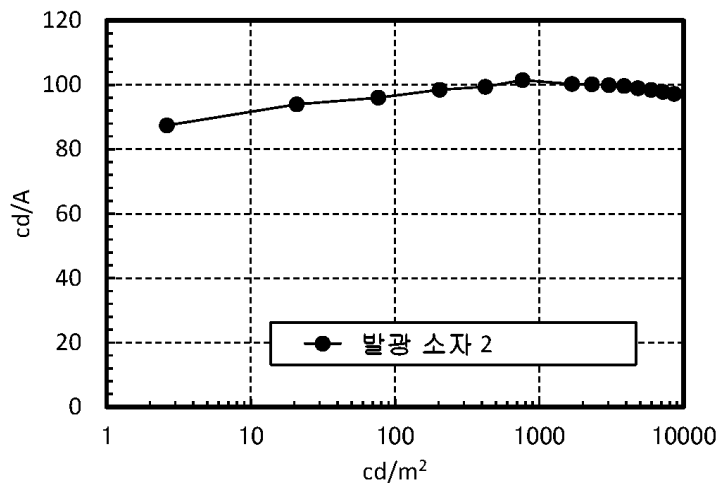
도면16



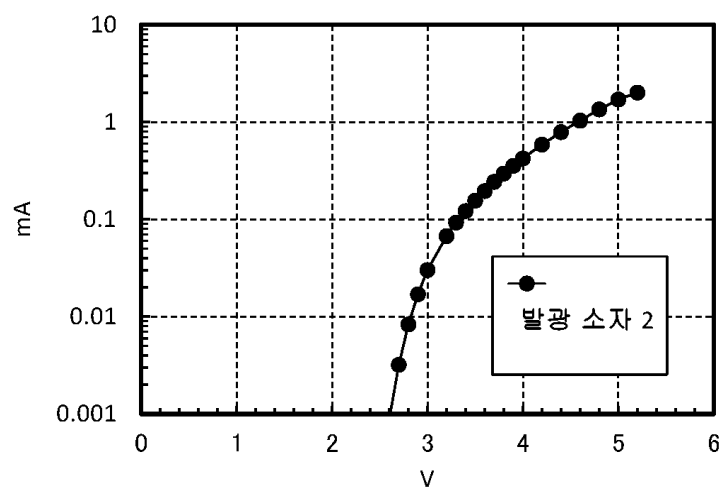
도면17



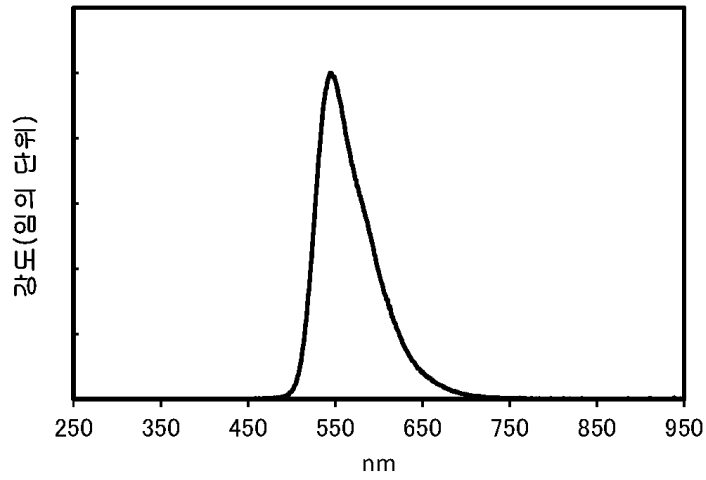
도면18



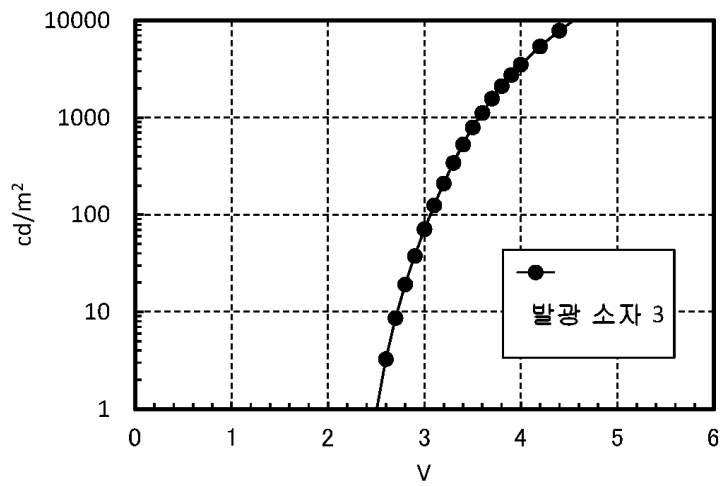
도면19



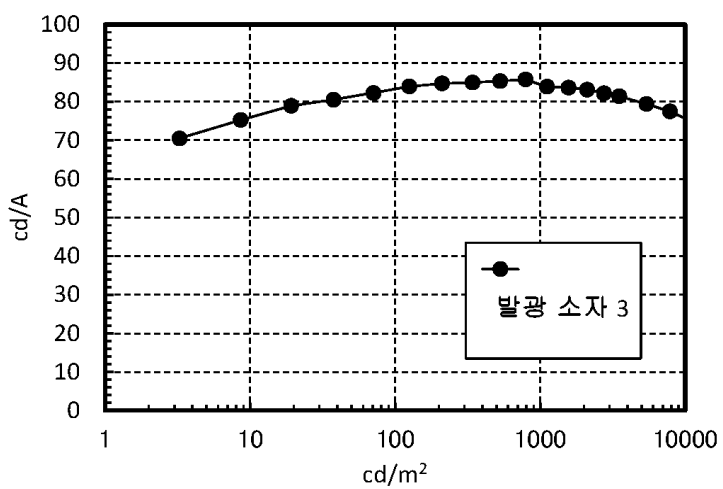
도면20



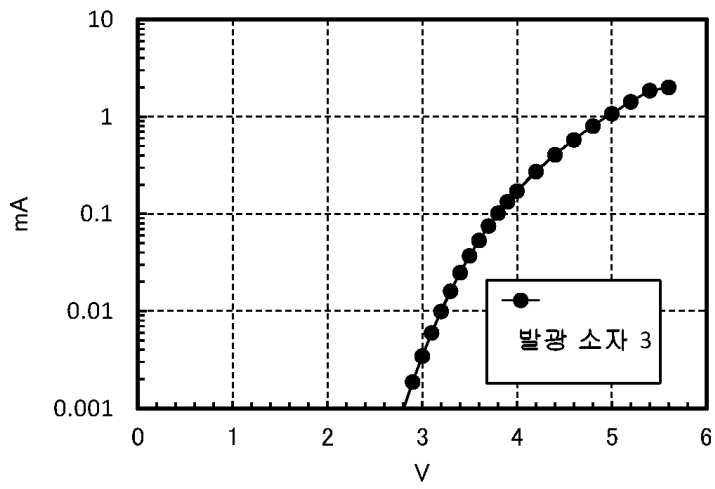
도면21



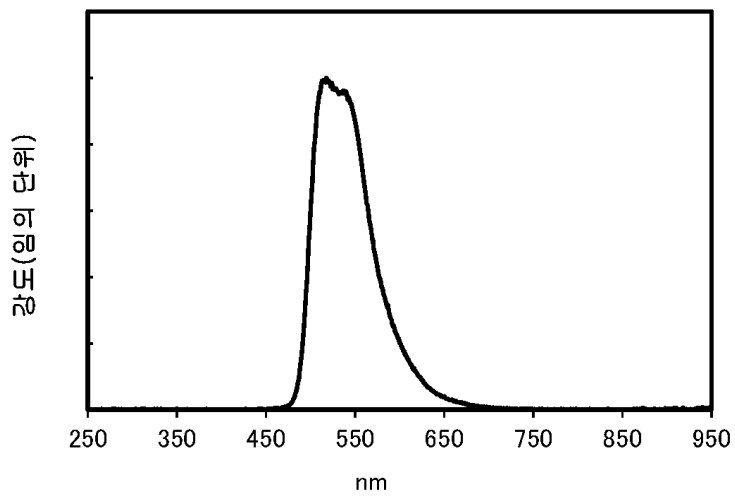
도면22



도면23



도면24



도면25

