

(12) 특허협력조약에 의하여 공개된 국제출원

(19) 세계지식재산권기구
국제사무국

(43) 국제공개일
2014 년 8 월 28 일 (28.08.2014)



(10) 국제공개번호
WO 2014/129869 A1

- (51) 국제특허분류:
C09K 11/06 (2006.01) *H01L 51/50* (2006.01)
- (21) 국제출원번호: PCT/KR2014/001503
- (22) 국제출원일: 2014 년 2 월 25 일 (25.02.2014)
- (25) 출원언어: 한국어
- (26) 공개언어: 한국어
- (30) 우선권정보:
10-2013-0019685 2013 년 2 월 25 일 (25.02.2013) KR
- (71) 출원인: 주식회사 두산 (DOOSAN CORPORATION)
[KR/KR]; 100-730 서울시 중구 장충단로 275, Seoul (KR).
- (72) 발명자: 김태형 (KIM, Tae Hyung); 463-834 경기도 성남시 분당구 황새울로 54 326-1201, Gyeonggi-do (KR). 박호철 (PARK, HoCheol); 442-710 경기도 수원시 팔달구 화양로 50 번길 30 108-1104, Gyeonggi-do (KR). 백영미 (BEAK, Youngmi); 448-737 경기도 용인시 수지구 성북 2 로 76 번길 31 105-1104, Gyeonggi-do (KR).
- (74) 대리인: 특허법인 한벗 (HANBEOT PATENT & LAW FIRM); 120-013 서울시 서대문구 충정로 7 구세군빌딩 15 층, Seoul (KR).
- (81) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 국내 권리의 보호를 위하여): AE, AG, AL, AM, AO,

AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

- (84) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 역내 권리의 보호를 위하여): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), 유라시아 (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), 유럽 (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

공개:

- 국제조사보고서와 함께 (조약 제 21 조(3))
- 청구범위 보정 기한 만료 전의 공개이며, 보정서를 접수하는 경우 그에 관하여 별도 공개함 (규칙 48.2(h))

(54) Title: ORGANIC FIELD EFFECT LIGHT-EMITTING DEVICE

(54) 발명의 명칭 : 유기 전계 발광 소자

(57) Abstract: The present invention provides an organic field effect light-emitting device including: a cathode; an anode; and one or more organic layers interposed between the cathode and the anode, wherein at least one of the organic layers includes a first and a second host.

(57) 요약서: 본 발명은 양극; 음극; 및 상기 양극과 음극 사이에 개재(介在)된 1 층 이상의 유기물층을 포함하며, 상기 1 층 이상의 유기물층 중 적어도 하나는 제 1 호스트 및 제 2 호스트를 포함하는 유기 전계 발광 소자를 제공한다.



WO 2014/129869 A1

명세서

발명의 명칭: 유기 전계 발광 소자

기술분야

- [1] 본 발명은 1층 이상의 유기물층을 포함하는 유기 전계 발광 소자에 관한 것이다.

배경기술

- [2] 유기 전계 발광 소자는 두 전극 사이에 전압을 걸어 주면 양극에서는 정공이 유기물층으로 주입되고, 음극에서는 전자가 유기물층으로 주입된다. 주입된 정공과 전자가 만났을 때 엑시톤(exciton)이 형성되며, 이 엑시톤이 바닥상태로 떨어질 때 빛이 나게 된다. 상기 유기물층으로 사용되는 물질은 그 기능에 따라, 발광 물질, 정공주입 물질, 정공수송 물질, 전자수송 물질, 전자주입 물질 등으로 분류될 수 있다.
- [3] 유기 전계 발광 소자의 발광 효율을 높이기 위해서는 색순도 증가와 에너지 전이가 필요한데, 이를 위해 호스트 물질과 도펀트 물질이 혼합된 발광 물질을 사용할 수 있다.
- [4] 상기 도펀트 물질은 유기 물질을 사용하는 형광 도펀트와 Ir, Pt 등의 중원자(heavy atoms)가 포함된 금속 착체 화합물을 사용하는 인광 도펀트로 나눌 수 있다. 상기 인광 물질은 이론적으로 형광 물질에 비해 4배까지 발광 효율을 향상시킬 수 있기 때문에, 인광 도펀트 뿐만 아니라 인광 호스트에 대한 연구가 많이 진행되고 있다.
- [5] 현재 발광층의 인광 도펀트 물질로는 Firpic, Ir(ppy)₃, (acac)Ir(btp)₂ 등과 같은 Ir을 포함하는 금속 착체 화합물이 알려져 있으며, 인광 호스트 물질로는 CBP가 알려져 있다.
- [6] 그러나 종래의 물질들은 유리전이온도가 낮아 열적 안정성이 좋지 않기 때문에 유기 전계 발광 소자의 수명 측면에서 만족할 만한 수준이 되지 못하고 있다. 따라서, 우수한 성능을 가지는 발광 물질을 포함하는 유기 전계 발광 소자의 개발이 요구되고 있다.

발명의 상세한 설명

기술적 과제

- [7] 본 발명은 상기한 문제점을 해결하기 위해, 구동전압, 발광효율 및 수명 등의 특성이 향상된 유기 전계 발광 소자를 제공하는 것을 목적으로 한다.

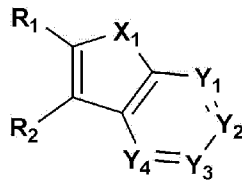
과제 해결 수단

- [8] 상기한 목적을 달성하기 위해, 본 발명은 양극; 음극; 및 상기 양극과 음극 사이에 개재(介在)된 1층 이상의 유기물층을 포함하며, 상기 1층 이상의 유기물층 중 적어도 하나는 제1 호스트와 제2 호스트를 포함하고, 상기 제1 호스트는 하기 화학식 1로 표시되는 화합물이며, 상기 제2 호스트는 하기 화학식

1로 표시되는 화합물보다 HOMO-LUMO 에너지 갭이 동등 이상이거나, LUMO값이 큰 화합물인 것을 특징으로 하는 유기 전계 발광 소자를 제공한다.

[9] [화학식 1]

[10]

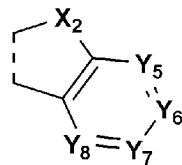


[11] 상기 화학식 1에서,

[12] Y₁ 내지 Y₄는 각각 독립적으로, N 또는 CR₃이고, Y₁과 Y₂, Y₂와 Y₃ 또는 Y₃와 Y₄ 중 하나는 하기 화학식 2로 표시되는 축합 고리를 형성하며,

[13] [화학식 2]

[14]



[15] 상기 화학식 2에서,

[16] 점선은 상기 화학식 1의 화합물과 축합이 이루어지는 부위를 의미하며, Y₅ 내지 Y₈는 각각 독립적으로, N 또는 CR₄이고,

[17] 상기 X₁ 및 X₂는 각각 독립적으로, O, S, Se, N(Ar₁), C(Ar₂)(Ar₃) 및 Si(Ar₄)(Ar₅)로 이루어진 군에서 선택되고, 이때, X₁ 및 X₂ 중에서 적어도 하나는 N(Ar₁)이며,

[18] 상기 R₁ 내지 R₄ 및 Ar₁ 내지 Ar₅는 각각 독립적으로, 수소, 중수소, 할로젠기, 시아노기, 니트로기, 아미노기, C₁~C₄₀의 알킬기, C₂~C₄₀의 알케닐기, C₂~C₄₀의 알키닐기, C₃~C₄₀의 시클로알킬기, 핵원자수 3 내지 40의 헤테로시클로알킬기, C₆~C₆₀의 아릴기, 핵원자수 5 내지 60의 헤테로아릴기, C₁~C₄₀의 알킬옥시기, C₆~C₆₀의 아릴옥시기, C₁~C₄₀의 알킬실릴기, C₆~C₆₀의 아릴실릴기, C₁~C₄₀의 알킬보론기, C₆~C₆₀의 아릴보론기, C₆~C₆₀의 아릴포스핀기, C₆~C₆₀의 아릴포스핀옥사이드기 및 C₆~C₆₀의 아릴아민기로 이루어진 군에서 선택되고,

[19] 상기 R₁ 내지 R₄는 인접한 기와 결합하여 축합 고리를 형성할 수 있으며,

[20] 상기 R₁ 내지 R₄ 및 Ar₁ 내지 Ar₅의 알킬기, 알케닐기, 알키닐기, 시클로알킬기, 헤테로시클로알킬기, 아릴기, 헤테로아릴기, 알킬옥시기, 아릴옥시기, 알킬실릴기, 아릴실릴기, 알킬보론기, 아릴보론기, 아릴포스핀기, 아릴포스핀옥사이드기 및 아릴아민기는 각각 독립적으로, 중수소, 할로젠기, 시아노기, 니트로기, 아미노기, C₁~C₄₀의 알킬기, C₂~C₄₀의 알케닐기, C₂~C₄₀의 알키닐기, C₃~C₄₀의 시클로알킬기, 핵원자수 3 내지 40의 헤테로시클로알킬기, C₆~C₆₀의 아릴기, 핵원자수 5 내지 40의 헤테로아릴기, C₁~C₄₀의 알킬옥시기, C₆~C₆₀의 아릴옥시기, C₁~C₄₀의 알킬실릴기, C₆~C₆₀의 아릴실릴기, C₁~C₄₀의 알킬보론기, C₆~C₆₀의 아릴보론기, C₆~C₆₀의 아릴포스핀기, C₆~C₆₀의 아릴포스핀옥사이드기 및 C₆~C₆₀의 아릴아민기로 이루어진 군에서 선택된 1종

이상으로 치환 또는 비치환될 수 있다. 이때, 복수개의 치환기는 서로 동일하거나 상이할 수 있다.

- [21] 한편, 본 발명에서의 알킬은 탄소수 1 내지 40의 직쇄 또는 측쇄의 포화 탄화수소에서 유래되는 1개의 치환기이며, 이의 예로는 메틸, 에틸, 프로필, 이소부틸, sec-부틸, 펜틸, iso-아밀, 헥실 등을 들 수 있다.
- [22] 본 발명에서의 알케닐(alkenyl)은 탄소-탄소 이중 결합을 1개 이상 가진 탄소수 2 내지 40의 직쇄 또는 측쇄의 불포화 탄화수소에서 유래되는 1개의 치환기이며, 이의 예로는 비닐(vinyl), 알릴(allyl), 이소프로펜일(isopropenyl), 2-부텐일(2-butenyl) 등을 들 수 있다.
- [23] 본 발명에서의 알키닐(alkynyl)은 탄소-탄소 삼중 결합을 1개 이상 가진 탄소수 2 내지 40의 직쇄 또는 측쇄의 불포화 탄화수소에서 유래되는 1개의 치환기이며, 이의 예로는 에티닐(ethynyl), 2-프로파닐(2-propynyl) 등을 들 수 있다.
- [24] 본 발명에서의 아릴은 단독 고리 또는 2이상의 고리가 조합된 탄소수 6 내지 60의 방향족 탄화수소로부터 유래된 1개의 치환기를 의미한다. 또한, 2 이상의 고리가 서로 단순 부착(pendant)되거나 축합된 형태도 포함될 수 있다. 이러한 아릴의 예로는 페닐, 나프틸, 페난트릴, 안트릴 등을 들 수 있다.
- [25] 본 발명에서의 헤테로아릴은 핵원자수 5 내지 60의 모노헤테로사이클릭 또는 폴리헤테로사이클릭 방향족 탄화수소로부터 유래된 1개의 치환기를 의미한다. 이때, 고리 중 하나 이상의 탄소, 바람직하게는 1 내지 3개의 탄소가 N, O, S 또는 Se와 같은 헤테로원자로 치환된다. 또한, 2 이상의 고리가 서로 단순 부착(pendant)되거나 축합된 형태도 포함될 수 있고, 아릴기와 축합된 형태도 포함할 수 있다. 이러한 헤테로아릴의 예로는 피리딜, 피라지닐, 피리미디닐, 피리다지닐, 트리아지닐과 같은 6-원 모노사이클릭 고리, 페녹사티에닐(phenoxathieryl), 인돌리지닐(indoliziny), 인돌릴(indolyl), 퓨리닐(puriny), 퀴놀릴(quinolyl), 벤조티아졸(benzothiazole), 카바졸릴(carbazolyl)과 같은 폴리사이클릭 고리, 2-퓨라닐, N-이미다졸릴, 2-이속사졸릴, 2-피리디닐, 2-피리미디닐 등을 들 수 있다.
- [26] 본 발명에서의 아릴옥시는 RO-로 표시되는 1개의 치환기로 상기 R은 탄소수 6 내지 60의 아릴을 의미한다. 이러한 아릴옥시의 예로는 페닐옥시, 나프틸옥시, 디페닐옥시 등을 들 수 있다.
- [27] 본 발명에서의 알킬옥시는 R'O-로 표시되는 1개의 치환기로 상기 R'는 1 내지 40개의 알킬을 의미하며, 직쇄(linear), 측쇄(branched) 또는 사이클릭(cyclic) 구조를 포함하는 것으로 해석한다. 이러한 알킬옥시의 예로는 메톡시, 에톡시, n-프로폭시, 1-프로폭시, t-부톡시, n-부톡시, 펜톡시 등을 들 수 있다.
- [28] 본 발명에서의 아릴아민은 탄소수 6 내지 60의 아릴로 치환된 아민을 의미한다.
- [29] 본 발명에서의 시클로알킬은 탄소수 3 내지 40의 모노사이클릭 또는 폴리사이클릭 비-방향족 탄화수소로부터 유래된 1개의 치환기를 의미한다. 이러한 사이클로알킬의 예로는 사이클로프로필, 사이클로펜틸, 사이클로헥실,

놀보닐(norbornyl), 아다만틴(adamantine) 등을 들 수 있다.

- [30] 본 발명에서의 헤테로시클로알킬은 핵원자수 3 내지 40의 비-방향족 탄화수소로부터 유래된 1가의 치환기를 의미하며, 고리 중 하나 이상의 탄소, 바람직하게는 1 내지 3개의 탄소가 N, O, S 또는 Se와 같은 헤테로 원자로 치환된다. 이러한 헤테로시클로알킬의 예로는 모르폴린, 피페라진 등을 들 수 있다.

- [31] 본 발명에서의 알킬실릴은 탄소수 1 내지 40의 알킬로 치환된 실릴이고, 아릴실릴은 탄소수 6 내지 60의 아릴로 치환된 실릴을 의미한다.

- [32] 본 발명에서의 축합 고리는 축합 지방족 고리, 축합 방향족 고리, 축합 헤테로지방족 고리, 축합 헤테로방향족 고리 또는 이들의 조합된 형태를 의미한다.

발명의 실시를 위한 형태

- [33] 이하, 본 발명을 설명한다.

[34]

- [35] 유기물층에 사용되는 화합물은 정공 주입을 원활하게 하기 위해서 유기물층(특히, 발광층)과 양극의 중간에 해당되는 HOMO(highest occupied molecular orbital)를 가져야 하고, 전자 전달을 원활하게 하기 위해서 유기물층(특히, 발광층)과 음극의 중간에 해당되는 LUMO(lowest unoccupied molecular orbital)를 가져야 한다. 또한 LUMO 값이 큰 화합물의 경우 전자 수송 시 barrier를 낮춰 주는 역할을 하여 전자 전달을 원활하게 할 수 있다. 따라서, LUMO 값이 큰 화합물을 유기물층에 도입할 경우 유기 전계 발광 소자로 유입되는 정공과 전자의 균형이 맞추어져 유기 전계 발광 소자의 수명을 향상시킬 수 있다.

- [36] 이에 따라, 본 발명의 유기 전계 발광 소자는 상기와 같이 소자의 특성이 향상될 수 있도록 양극, 음극 및 상기 양극과 음극 사이에 개재(介在)된 1층 이상의 유기물층을 포함하되, 상기 1층 이상의 유기물층 중 적어도 하나는 제1 호스트와 제2 호스트를 포함하고, 상기 제1 호스트는 상기 화학식 1로 표시되는 화합물이며, 상기 제2 호스트는 상기 화학식 1로 표시되는 화합물보다 HOMO-LUMO 에너지 갭이 동등 이상이거나 LUMO값이 큰 화합물인 것을 특징으로 한다.

- [37] 본 발명의 제1 호스트로 사용되는 상기 화학식 1로 표시되는 화합물은 인돌계 기본 골격에 축합 탄소고리 또는 축합 헤테로환 모이어티가 연결되고, 여러 치환체에 의해 에너지 레벨이 조절됨으로써 넓은 에너지 밴드 갭(sky blue ~ red)을 가진다. 따라서, 화학식 1로 표시되는 화합물을 유기 전계 발광 소자의 유기물층의 제1 호스트로 사용할 경우 유기 전계 발광 소자의 발광(인광)특성이 개선됨과 동시에 전자 및/또는 정공 수송 능력을 높일 수 있다.

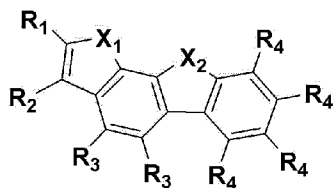
- [38] 상기 화학식 1로 표시되는 화합물을 제1 호스트로 포함하는 유기물층은 정공

수송층, 전자 수송층 및 발광층인 것이 바람직하다. 특히, 상기 화학식 1로 표시되는 화합물은 인돌계 기본골격으로 인해 종래의 CBP에 비해 인광 호스트 물질로써 우수한 특성을 나타내기 때문에 제1 호스트로 포함하는 유기물층은 발광층인 것이 더욱 바람직하다.

- [39] 구체적으로, 상기 화학식 1로 표시되는 화합물은 인돌계 기본골격에 다양한 방향족 환(aromatic ring)이 치환체로 결합되어 화합물의 분자량이 유의적으로 증대됨으로써, 유리전이온도가 향상되고 이로 인해 종래 CBP보다 높은 열적 안정성을 가질 수 있다. 또한 다양한 방향족 환 치환체로 인해 분자 전체가 바이폴라(bipolar)한 성격을 가지면서 정공과 전자의 결합력을 높일 수 있기 때문에, 종래 CBP에 비해 발광층의 인광 호스트 물질로서 우수한 특성을 나타낼 수 있다.
- [40] 이러한 화학식 1로 표시되는 화합물에서, Y_1 내지 Y_4 는 N 또는 CR_3 인데, 이 중 화학식 2로 표시되는 축합 고리를 형성하지 않는 것은 모두 CR_3 인 것이 바람직하다. 이때, 복수개의 R_3 는 서로 동일하거나 상이할 수 있다. 또한, 화학식 2로 표시되는 축합 고리에서 Y_5 내지 Y_8 은 N 또는 CR_4 인데, 모두 CR_4 인 것이 바람직하다. 이때, 복수개의 R_4 는 서로 동일하거나 상이할 수 있다.
- [41] 한편, 화학식 1로 표시되는 화합물의 넓은 에너지 밴드 갭(band-gap)과 열안정성을 고려할 때, R_1 내지 R_4 는 각각 독립적으로 수소, $C_6 \sim C_{60}$ 의 아릴기(예: 페닐, 나프틸, 비스페닐) 또는 핵원자수 5 내지 60의 헤테로아릴기(예: 피리딘)인 것이 바람직하다.
- [42] 이러한 제1 호스트로 사용되는 화학식 1의 화합물은 하기 화학식 1a 내지 1f로 표시되는 화합물로 이루어진 군에서 선택되는 것이 바람직하다.

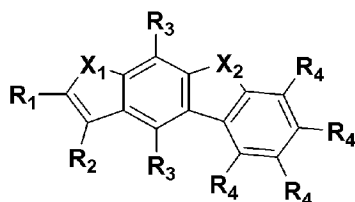
[43] [화학식 1a]

[44]



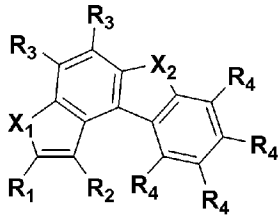
[45] [화학식 1b]

[46]



[47] [화학식 1c]

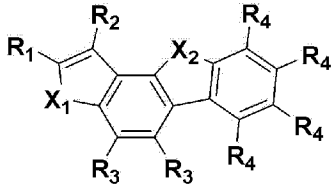
[48]



[49]

[화학식 1d]

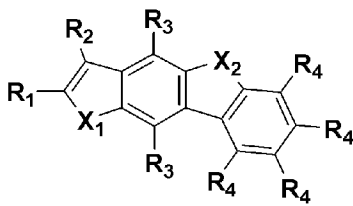
[50]



[51]

[화학식 1e]

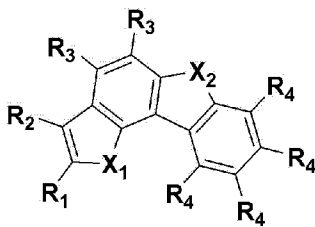
[52]



[53]

[화학식 1f]

[54]



[55]

상기 화학식 1a 내지 1f에서, X_1 , X_2 및 R_1 내지 R_4 는 상기에서 정의한 바와 같다. 이때, 복수개의 R_3 는 서로 동일하거나 상이하며, 복수개의 R_4 도 서로 동일하거나 상이하다.

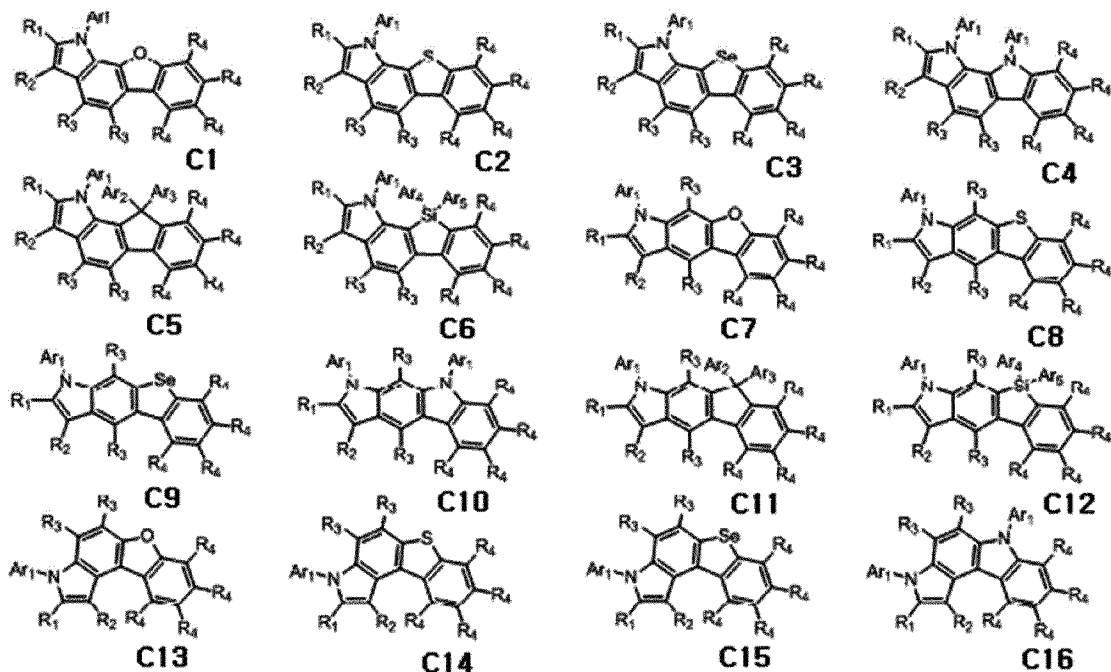
[56]

유기 전계 발광 소자의 발광 효율, 구동 전압 및 수명 등의 특성을 고려할 때, 제1 호스트로 사용되는 화학식 1에서 X_1 및 X_2 는 각각 독립적으로, $N(Ar_1)$ 또는 S 인 것이 바람직하다. 즉, X_1 이 $N(Ar_1)$ 이고 X_2 가 S 이거나, X_1 이 S 이고 X_2 가 $N(Ar_1)$ 이거나, X_1 및 X_2 가 모두 $N(Ar_1)$ 인 것이 바람직하다.

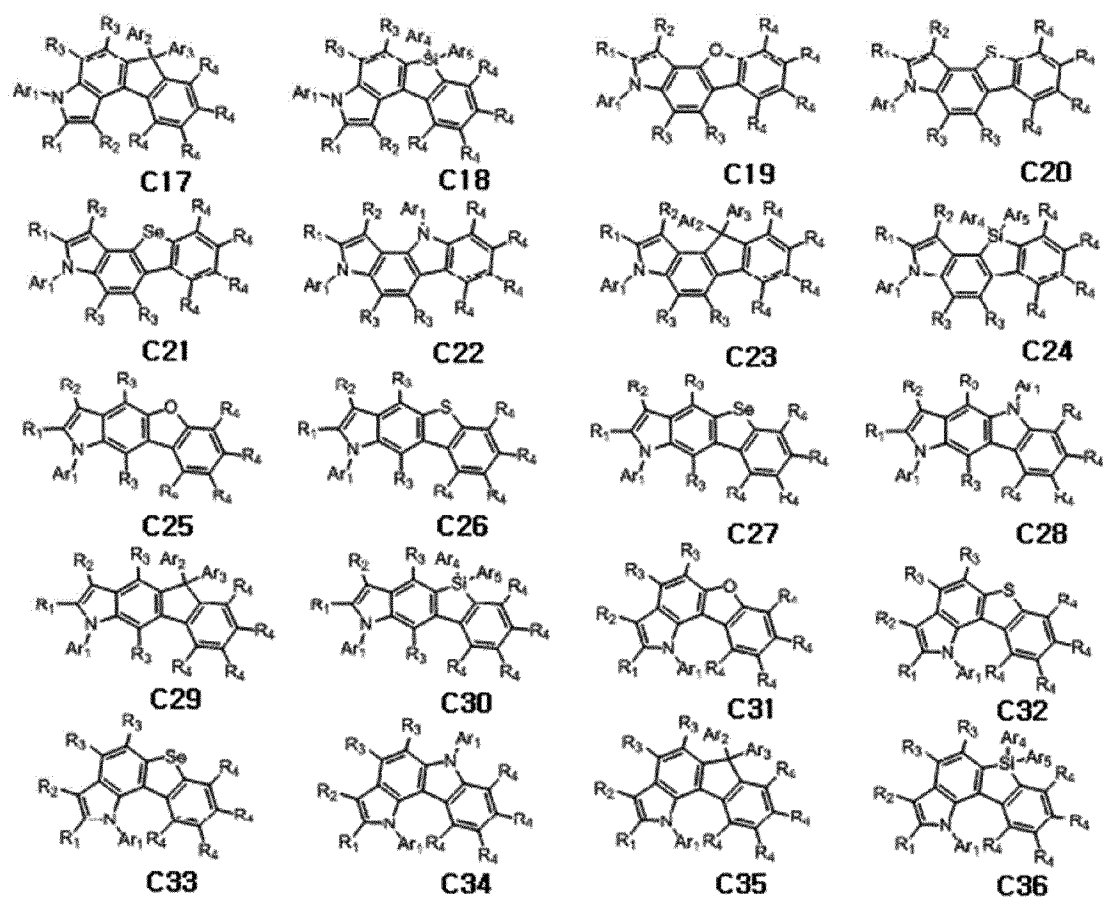
[57]

이러한, 본 발명의 제1 호스트로 사용되는 화학식 1의 화합물은 구체적으로, 하기 화학식 C1 내지 C66으로 표시되는 화합물로 이루어진 군에서 선택되는 것이 바람직하다.

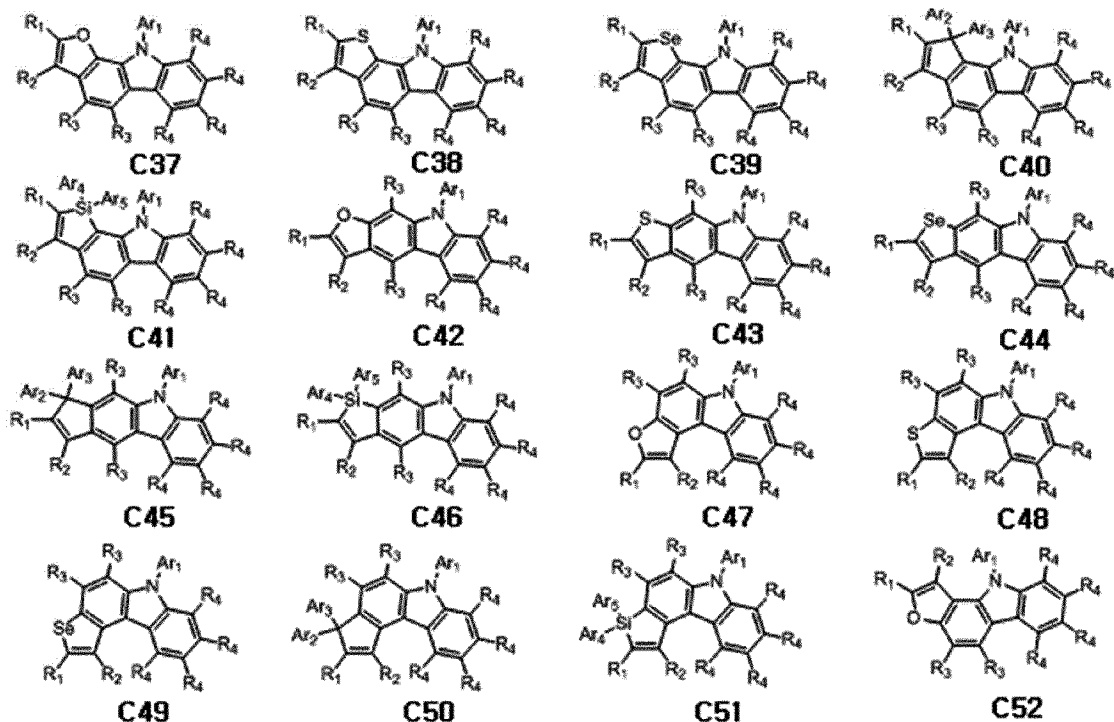
[58]



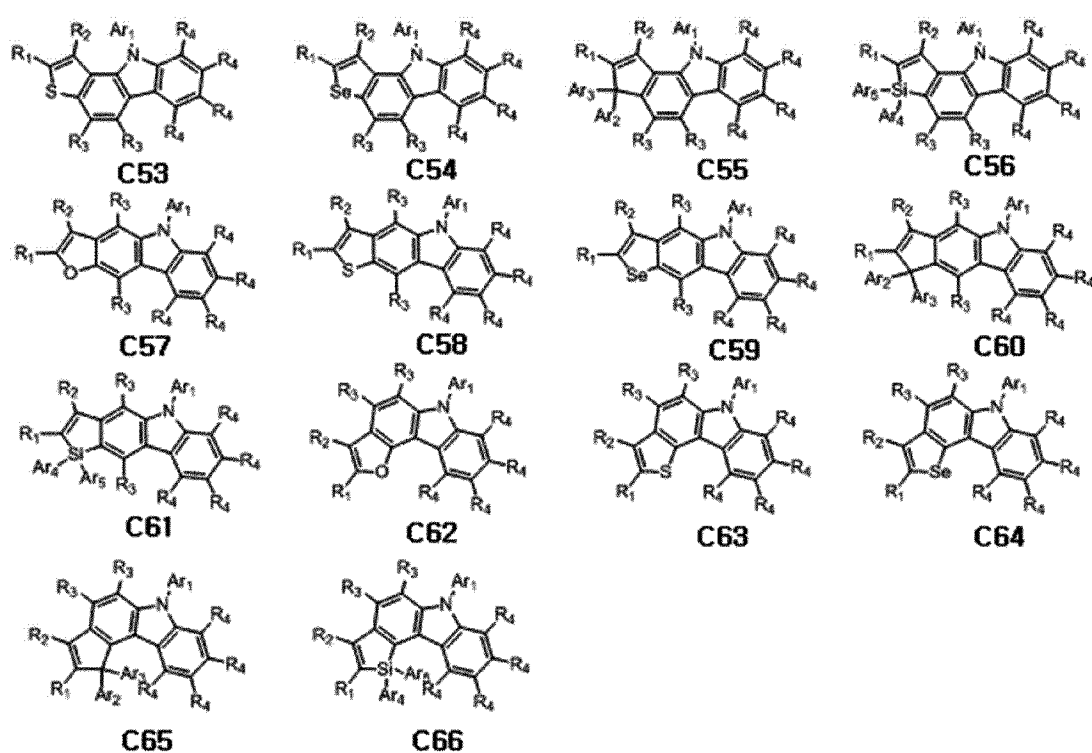
[59]



[60]



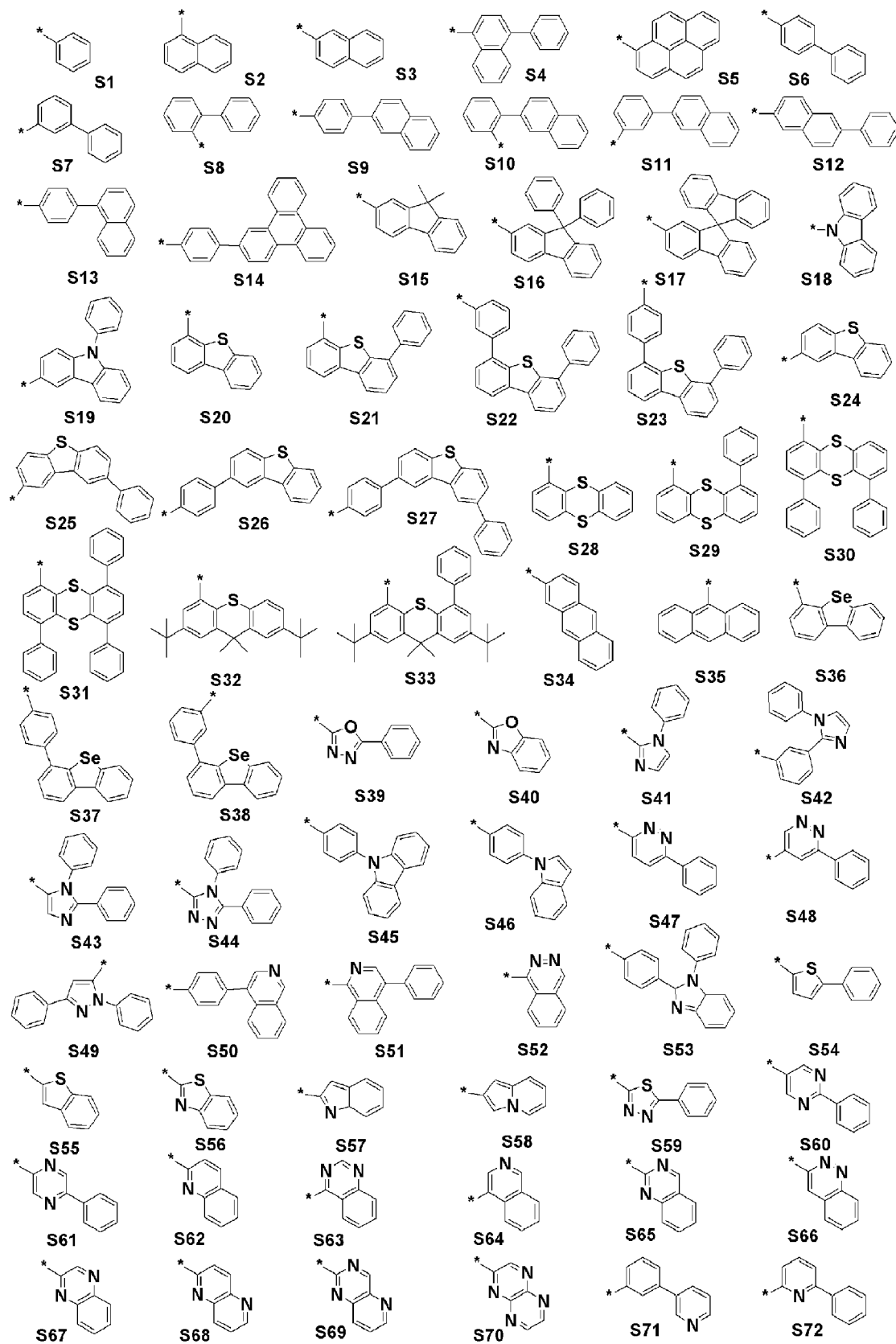
[61]



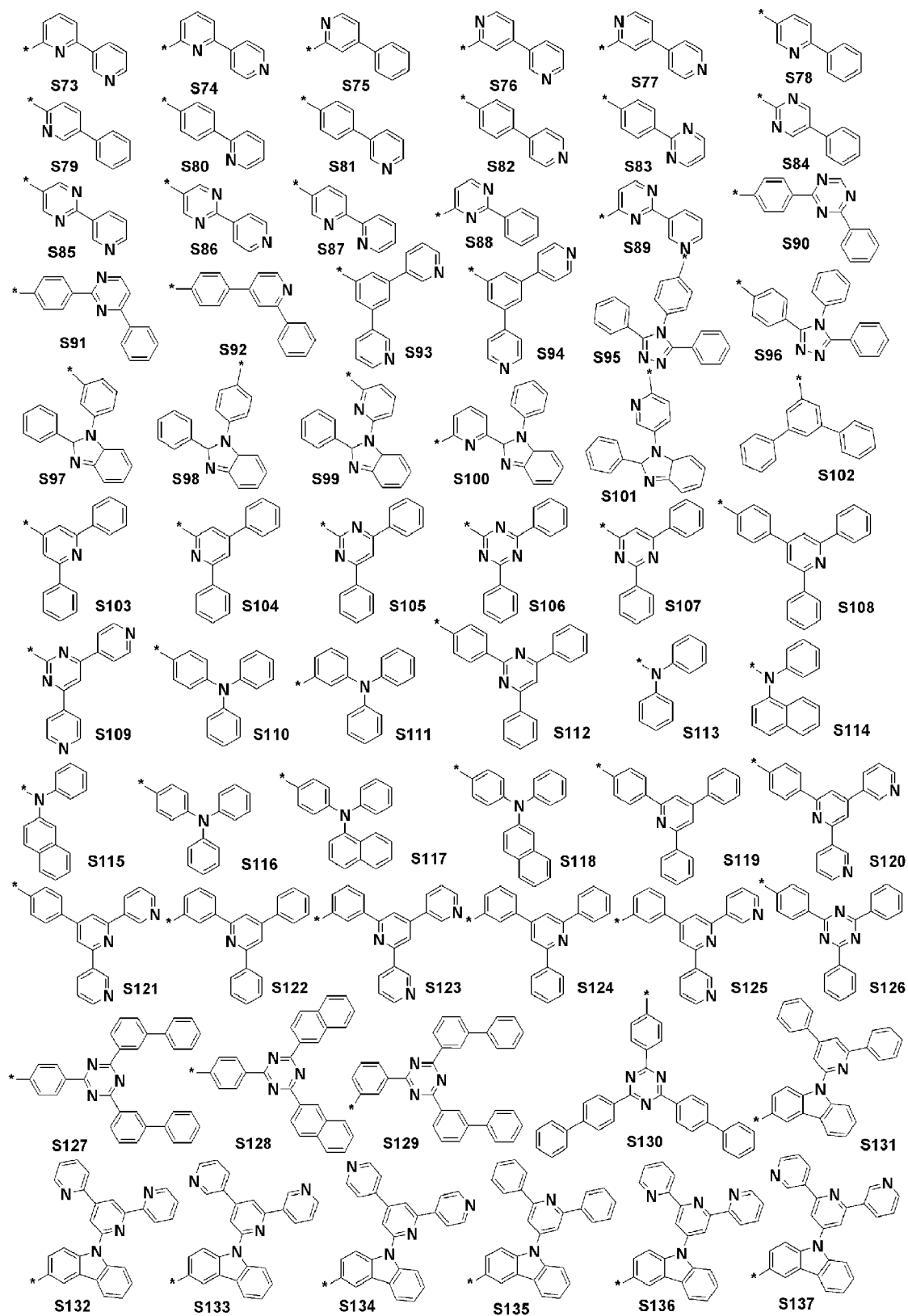
[62]

상기 화학식 C1 내지 C66에서, R_1 내지 R_4 는 상기에서 정의한 바와 같다. 또한, Ar_1 내지 Ar_5 도 상기에서 정의한 바와 같은데, 그 중에서도 $C_6 \sim C_{60}$ 의 아릴기, 핵원자수 5 내지 60의 헤테로아릴기 및 $C_6 \sim C_{60}$ 의 아릴아민기로 이루어진 군에서 선택되는 것이 바람직하다. 구체적으로, Ar_1 내지 Ar_5 는 각각 독립적으로, 하기 치환체(작용기)로 이루어진 군(S1-S206)에서 선택되는 것이 더욱 바람직하다.

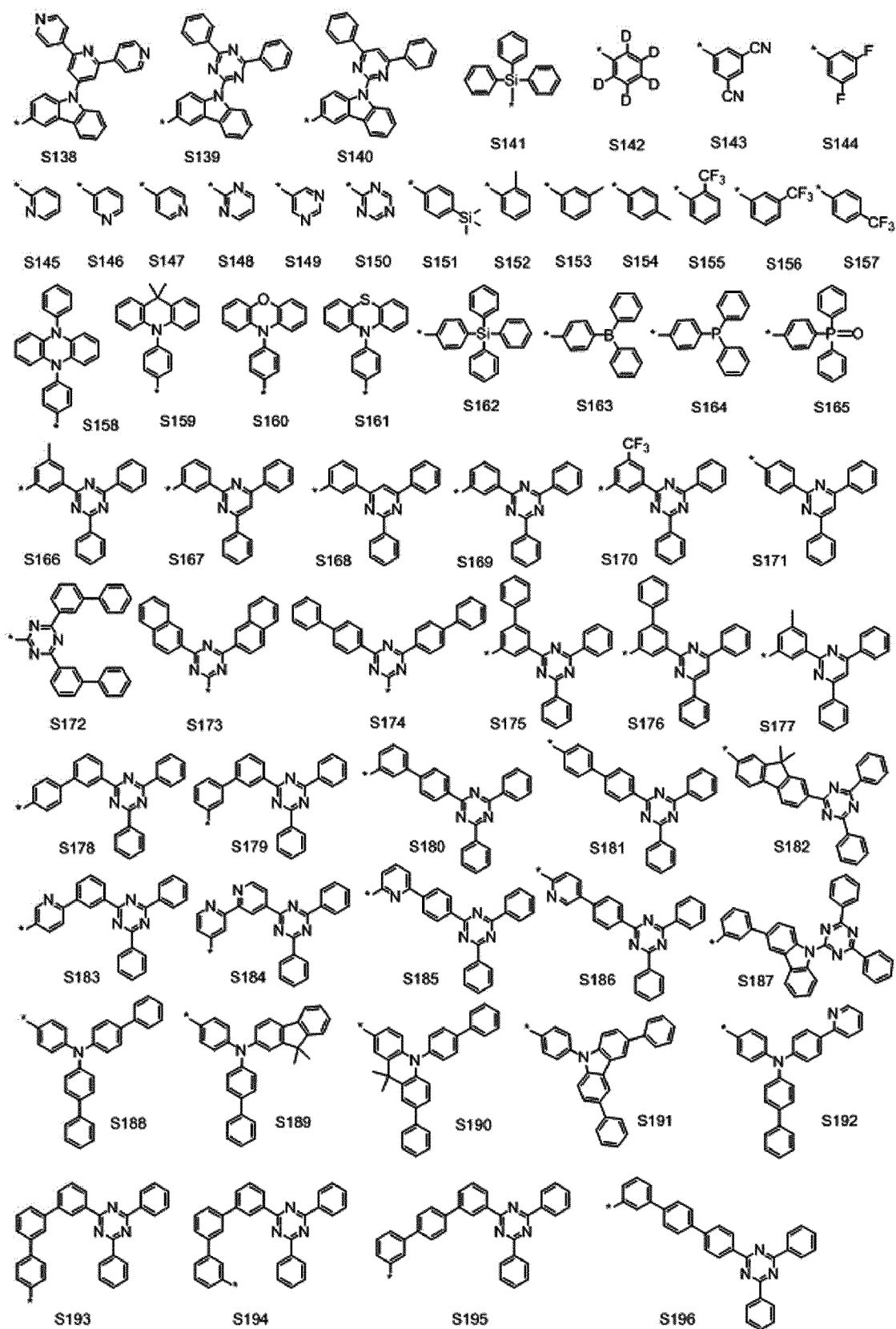
[63]



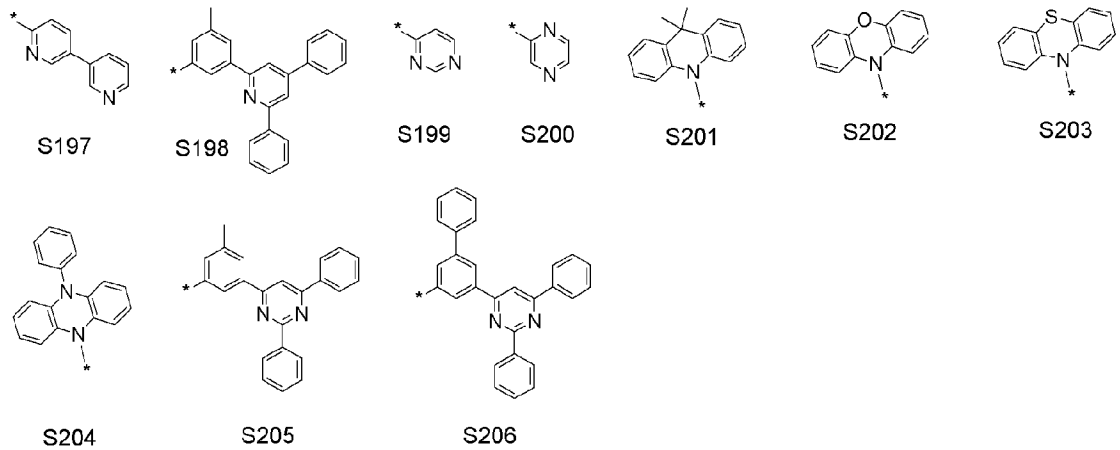
[64]



[65]



[66]



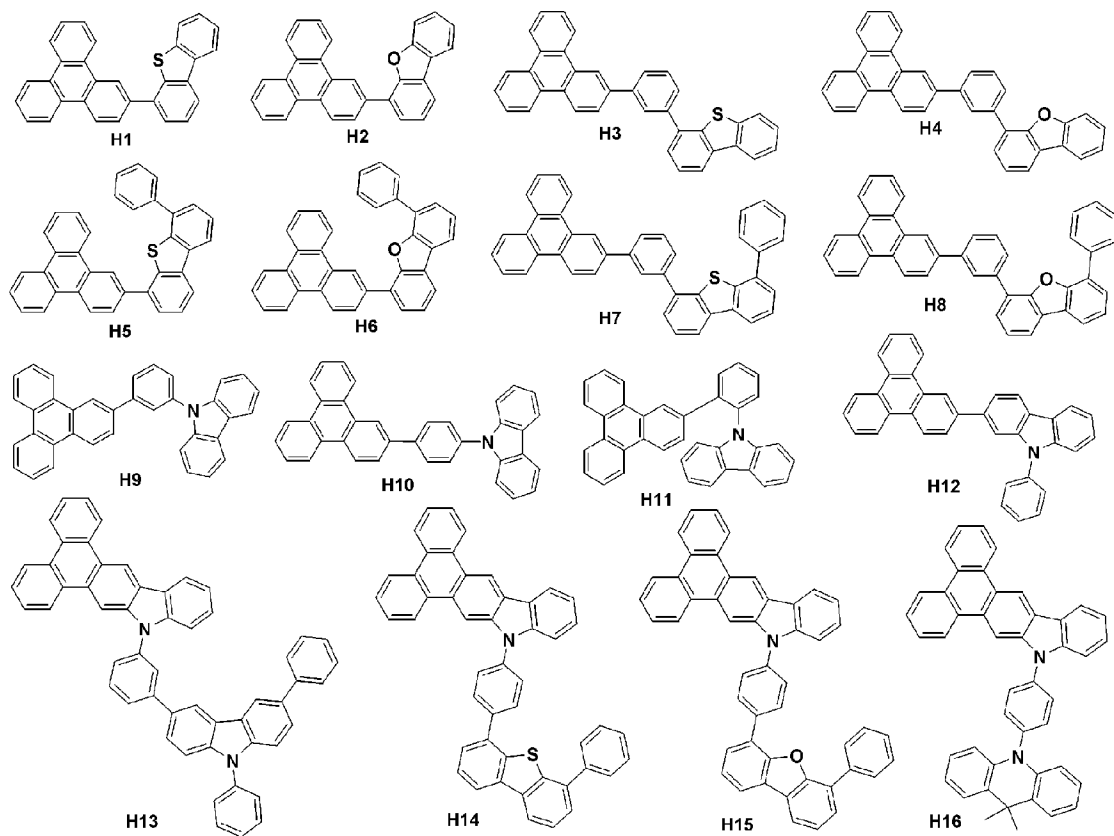
[67] 이러한 본 발명의 제1 호스트로 사용되는 화합물의 HOMO값은 -6.5eV 내지 -5.0eV의 범위를 나타내고, LUMO값은 -3.5 eV 내지 -1.5eV의 범위를 나타낸다.

[68] 본 발명의 제2 호스트로 사용되는 화합물은 상기 화학식 1로 표시되는 화합물과 HOMO-LUMO 에너지 갭이 동등 또는 그 이상이거나, LUMO값이 크다. 이때, HOMO-LUMO 에너지 갭은 HOMO값과 LUMO값의 차이를 의미한다.

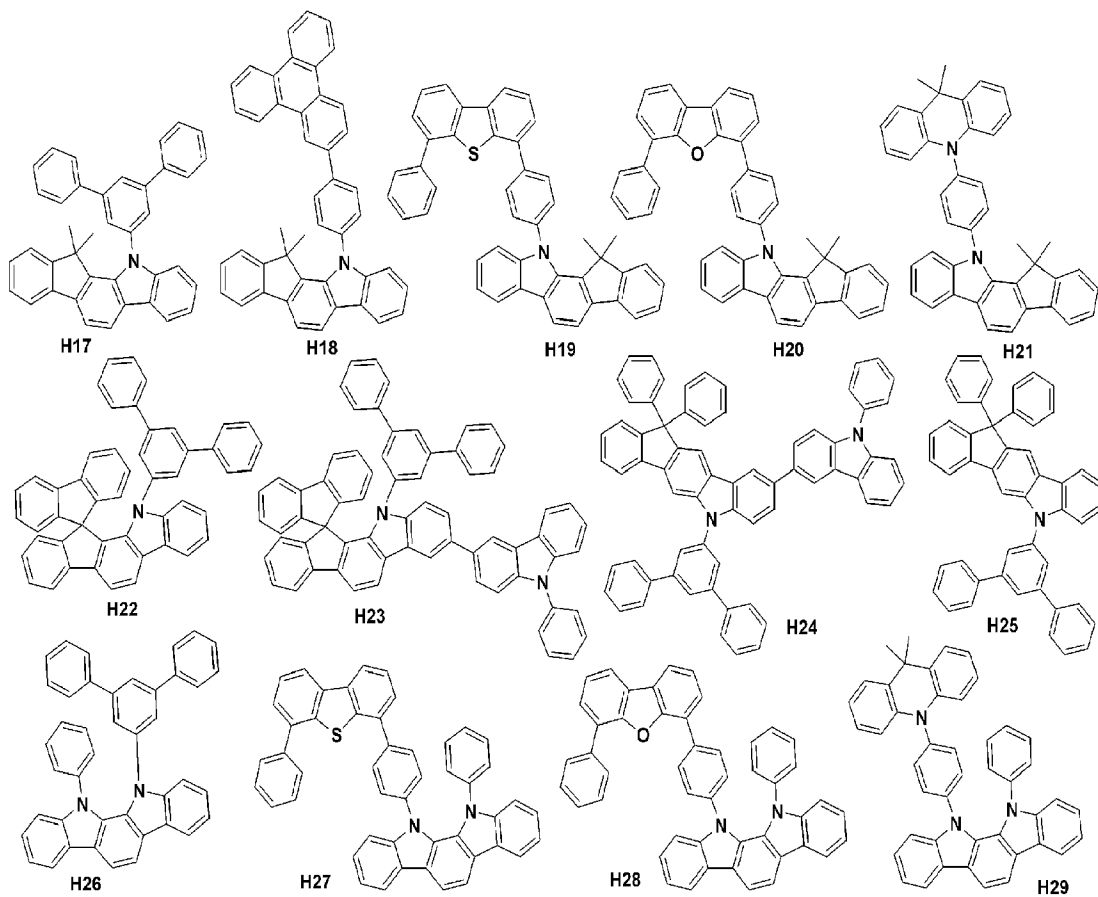
[69] 여기서, 유기 전계 발광 소자의 발광 효율, 구동 전압 및 수명 등의 특성을 고려할 때, 제2 호스트로 사용되는 화합물은 트리페닐렌, 페닐, 카바졸, 아크리딘, 인데노카바졸, 인돌로카바졸, 피롤로카바졸, 인돌로트리페닐렌, 디벤조싸이오펜 및 디벤조퓨란으로 이루어진 군에서 선택된 화합물을 모이어티(moiety)로 분자 내에 포함하는 화합물인 것이 바람직하고, 상기 화합물은 치환 또는 비치환 될 수 있다.

[70] 구체적으로, 본 발명의 제2 호스트로 사용되는 화합물은 하기 H1 내지 H54로 표시되는 화합물로 이루어진 군에서 선택되는 것이 더욱 바람직하다.

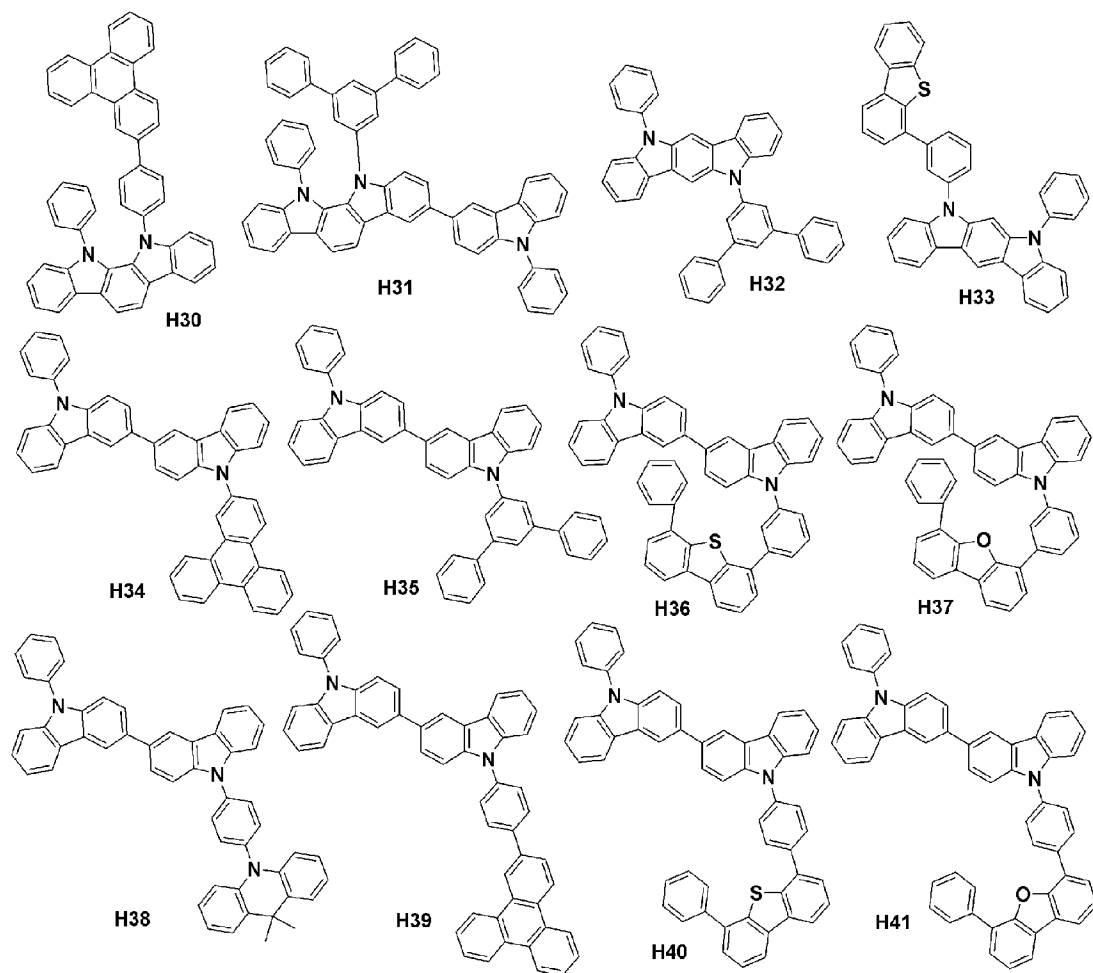
[71]



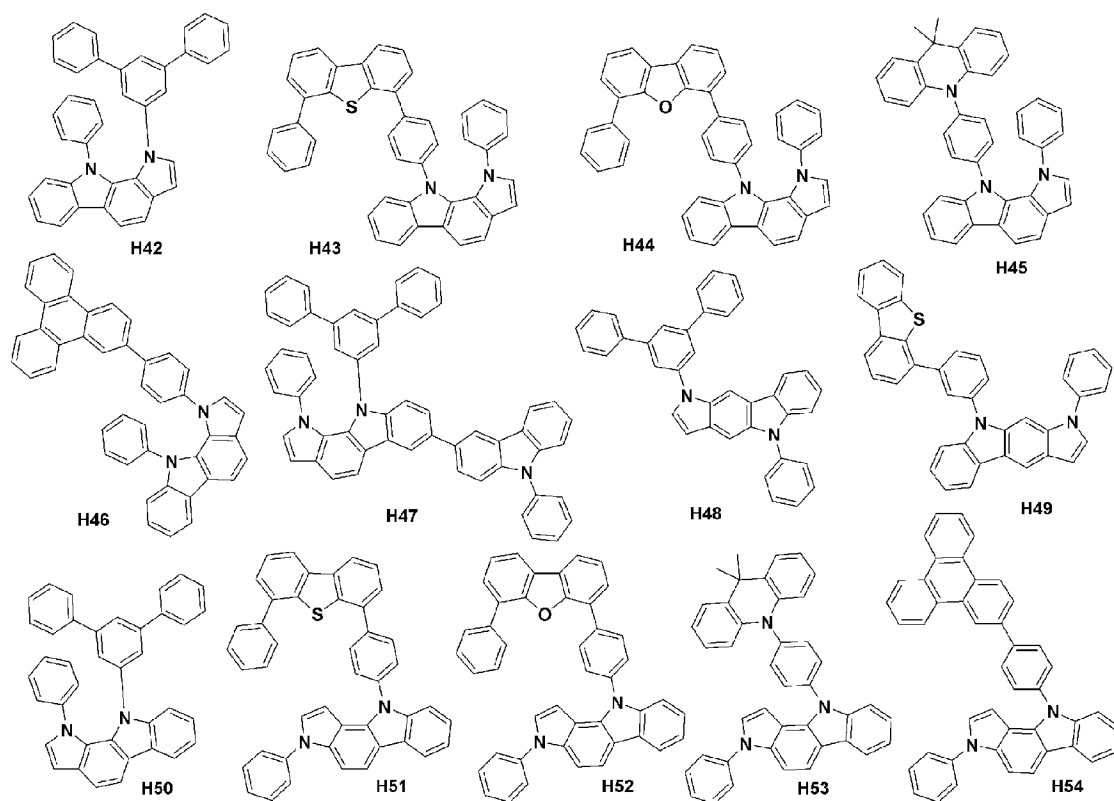
[72]



[73]



[74]

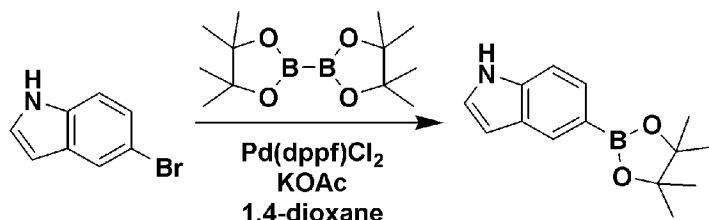


- [75] 상기 H1 내지 H54로 표시되는 화합물은 제2 호스트로 사용 가능한 예들일 뿐, 제2 호스트가 상기 화합물들로 한정되는 것은 아니다.
- [76] 이와 같이 본 발명의 유기 전계 발광 소자는 복수개의 유기물층 중 하나 이상이 상기 제1 호스트와 상기 제2 호스트를 포함하여 소자로 주입되는 정공과 전자의 균형을 맞출 수 있기 때문에 고수명을 가질 수 있다. 여기서, 유기물층 제조시 제1 호스트와 제2 호스트의 혼합비율은 특별히 한정되지 않으나, 제1 호스트와 제2 호스트를 1:99 내지 99:1의 비율로 혼합할 수 있으며, 제2 호스트의 사용 비율이 더 높은 것이 바람직하다.
- [77] 한편, 제1 호스트와 제2 호스트를 포함하는 본 발명의 유기물층은 발광층인 것이 바람직한데, 이때, 본 발명의 발광층은 제1 호스트 및 제2 호스트와 함께 도펀트도를 포함할 수 있다.
- [78] 여기서, 발광층에 포함되는 도펀트로 사용 가능한 물질은 특별히 한정되지 않으나, 이리듐(Ir)을 포함하는 금속 착체 화합물을 사용하는 것이 바람직하다.
- [79] 이러한 제1 호스트, 제2 호스트 및 도펀트를 포함하는 발광층을 제조하는 방법은 당업계에 공지된 방법이라면 특별히 한정되지 않으며, 비제한적인 예로 하기 방법들을 들 수 있다.
- [80] 첫번째 방법으로는 제1 호스트와 제2 호스트를 각각 제1 및 제2 열원에 위치시키고, 제3 열원에 도펀트를 위치시켜 동시에 열을 가해 발광층을 형성하는 공증착 방법이다. 구체적으로, 1×10^{-6} torr 이하의 진공도에서, 제1 열원에 전자이동도(Electron mobility)가 높고, 전자 주입효율이 좋은 제1 호스트를 위치시키고, 제2 열원에 정공이동도(Hole mobility)가 높고, 정공 주입효율이 좋은 제2 호스트를 위치시켜, 제3 열원의 도펀트와 초당 증발속도를 조절하여 적정비율로 공증착하는 방법이다. 이때, 공증착되는 호스트의 개수는 발광층의 특성에 따라 2개 이상이 될 수 있다. 또한, 제1 호스트, 제2 호스트 및 도펀트의 사용량은 특별히 한정되지 않으나, 제1 호스트와 제2 호스트를 70~99중량%로, 도펀트를 1~30중량%로 사용할 수 있다. 구체적으로는 제1 호스트와 제2 호스트를 80~95중량%로, 도펀트를 5~20중량%로 사용하는 것이 바람직하다.
- [81] 두번째 방식으로는 사용되는 열원의 개수를 줄이고, 형성과정을 간소화하기 위해 발광층 형성에 사용되는 제1 호스트 및 제2 호스트를 적정비율로 혼합하여 하나의 열원에 위치시키고 열을 가해 발광층을 형성하는 공증착 방법이다. 구체적으로, 1×10^{-6} torr 이하의 진공도에서 제1 열원에 혼합된 호스트(제1 호스트+제2 호스트)를 위치시키고, 제2 열원에 도펀트를 위치시켜 동시에 초당 증발속도를 조절하며 발광층을 형성시키는 방법이다. 이러한 방법은 1종 이상의 호스트를 사용할 경우 발생하는 혼합비율의 오차를 줄이고, 적은 수의 열원으로 발광층을 형성할 수 있다. 이때 제1 호스트, 제2 호스트 및 도펀트의 사용량은 특별히 한정되지 않으나, 제1 호스트와 제2 호스트를 70~99중량%로, 도펀트를 1~30중량%로 사용할 수 있다. 구체적으로는 제1 호스트와 제2 호스트를

80~95중량%로, 도펀트를 5~20중량%로 사용하는 것이 바람직하다.

- [82] 본 발명의 유기 전계 발광 소자에 포함되는 양극으로 사용 가능한 물질은 특별히 한정되지 않으나, 비제한적인 예로 바나듐, 크롬, 구리, 아연, 금 등의 금속 또는 이들의 합금; 아연산화물, 인듐산화물, 인듐 주석 산화물(ITO), 인듐 아연 산화물(IZO) 등의 금속 산화물; ZnO:Al, SnO₂:Sb 등의 금속과 산화물의 조합; 폴리티오펜, 폴리(3-메틸티오펜), 폴리[3,4-(에틸렌-1,2-디옥시)티오펜](PEDT), 폴리피롤, 폴리아닐린 등의 전도성 고분자; 및 카본블랙 등을 들 수 있다.
- [83] 본 발명의 유기 전계 발광 소자에 포함되는 음극으로 사용 가능한 물질은 특별히 한정되지 않으나, 비제한적인 예로 마그네슘, 칼슘, 나트륨, 칼륨, 타이타늄, 인듐, 이트륨, 리튬, 가돌리늄, 알루미늄, 은, 주석, 납 등의 금속 또는 이들의 합금 및 LiF/Al, LiO₂/Al 등의 다층 구조 물질 등을 들 수 있다.
- [84] 이러한 본 발명의 유기 전계 발광 소자의 구조는 특별히 한정되지 않으나, 비제한적인 예로 기관, 양극, 유기물층(정공주입층->정공수송층->발광층->전자수송층) 및 음극이 순차적으로 적층된 구조일 수 있다. 이때, 상기 정공주입층, 정공수송층, 발광층, 전자수송층 및 전자주입층 중 하나 이상은 상기 화학식 1로 표시되는 화합물을 제1 호스트로 포함할 수 있다.
- [85] 한편, 상기 전자수송층 위에는 전자주입층이 추가로 적층될 수 있다. 또한, 본 발명에 따른 유기 전계 발광 소자의 구조는 양극 및 음극과 유기물층 계면에 절연층 또는 접착층이 삽입된 구조일 수 있다.
- [86] 본 발명의 유기 전계 발광 소자는 상기 유기물층 중 1층 이상(예컨대, 발광층)이 상기 제1 호스트와 제2 호스트를 포함하도록 형성하는 것을 제외하고는, 당업계에 알려져 있는 물질 및 방법을 이용하여 다른 유기물층을 형성할 수 있다.
- [87] 한편, 본 발명의 유기 전계 발광 소자 제조시 사용되는 기관은 특별히 한정되지 않으나, 비제한적인 예로 실리콘 웨이퍼, 석영, 유리판, 금속판, 플라스틱 필름 등을 들 수 있다.
- [88]
- [89] 이하 본 발명을 실시예를 통하여 상세히 설명하나, 하기 실시예는 본 발명을 예시하는 것일 뿐, 본 발명이 하기 실시예에 의해 한정되는 것은 아니다.
- [90]
- [91] [준비예 1] IC-1의 합성
- [92] <단계 1> 5-(4,4,5,5-tetramethyl-1,3,2-dioxaborolan-2-yl)-1H-indole의 합성

[93]

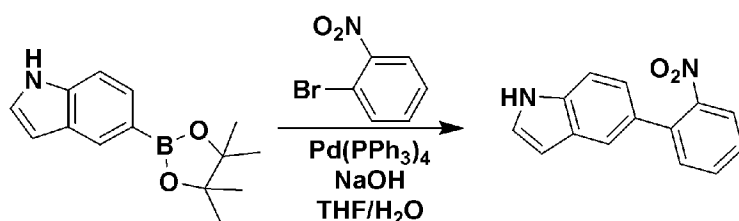


[94] 질소 기류 하에서 5-bromo-1H-indole (25 g, 0.128 mol), 4,4,4',4',5,5,5',5'-octamethyl-2,2'-bi(1,3,2-dioxaborolane) (48.58 g, 0.191 mol), Pd(dppf)Cl₂ (5.2 g, 5 mol), KOAc (37.55 g, 0.383 mol) 및 1,4-dioxane (500 ml)를 혼합하고 130°C에서 12시간 동안 교반하였다. 반응이 종결된 후 에틸아세테이트로 추출한 다음 MgSO₄로 수분을 제거하고, 컬럼크로마토그래피 (Hexane:EA = 10:1 (v/v))로 정제하여 5-(4,4,5,5-tetramethyl-1,3,2-dioxaborolan-2-yl)-1H-indole (22.32 g, 수율 72 %)을 얻었다.

[95] ¹H-NMR: δ 1.24 (s, 12H), 6.45 (d, 1H), 7.27 (d, 1H), 7.42 (d, 1H), 7.52 (d, 1H), 7.95 (s, 1H), 8.21 (s, 1H)

[96] <단계 2> 5-(2-nitrophenyl)-1H-indole의 합성

[97]



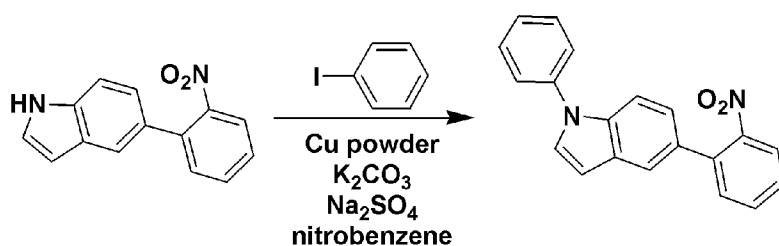
[98] 질소 기류 하에서 1-bromo-2-nitrobenzene (15.23 g, 75.41 mmol)과 상기 <단계 1>에서 얻은 5-(4,4,5,5-tetramethyl-1,3,2-dioxaborolan-2-yl)-1H-indole (22 g, 90.49 mmol), NaOH (9.05 g, 226.24 mmol) 및 THF/H₂O(400 ml/200 ml)를 혼합한 다음, 40°C에서 Pd(PPh₃)₄(4.36 g, 5 mol%)를 넣고 80°C에서 12시간 동안 교반하였다.

[99] 반응 종결 후 메틸렌클로라이드로 추출하고 MgSO₄를 넣고 여과하였다. 얻어진 유기층에서 용매를 제거한 후 컬럼 크로마토그래피 (Hexane:EA = 3:1 (v/v))로 정제하여 5-(2-nitrophenyl)-1H-indole (11.32 g, 수율 63%)을 얻었다.

[100] ¹H-NMR: δ 6.47 (d, 1H), 7.25 (d, 1H), 7.44 (d, 1H), 7.53 (d, 1H), 7.65 (t, 1H), 7.86 (t, 1H), 7.95 (s, 1H), 8.00 (d, 1H), 8.09 (t, 1H), 8.20 (s, 1H)

[101] <단계 3> 5-(2-nitrophenyl)-1-phenyl-1H-indole의 합성

[102]



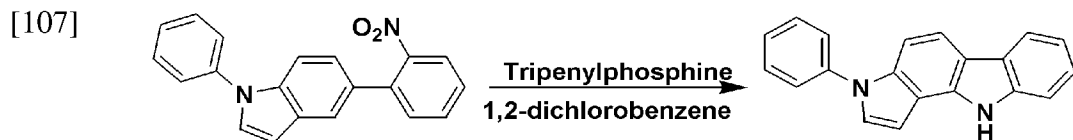
[103] 질소 기류 하에서 상기 <단계 2>에서 얻은 5-(2-nitrophenyl)-1H-indole (11 g, 46.17 mmol), iodobenzene (14.13 g, 69.26 mmol), Cu powder (0.29 g, 4.62 mmol), K₂

CO₃ (6.38 g, 46.17 mmol), Na₂SO₄ (6.56 g, 46.17 mmol), nitrobenzene (200 ml)를 혼합하고 190°C에서 12시간 동안 교반하였다.

- [104] 반응 종결 후 nitrobenzene을 제거하고 메틸렌클로라이드로 유기층을 분리하여 MgSO₄를 사용하여 물을 제거하였다. 물이 제거된 유기층에서 용매를 제거한 후 컬럼 크로마토그래피 (Hexane:MC = 3:1 (v/v))로 정제하여 5-(2-nitrophenyl)-1-phenyl-1H-indole (10.30 g, 수율 71%)을 얻었다.

- [105] ¹H-NMR: δ 6.48 (d, 1H), 7.26 (d, 1H), 7.45 (m, 3H), 7.55 (m, 4H), 7.63 (t, 1H), 7.84 (t, 1H), 7.93 (s, 1H), 8.01 (d, 1H), 8.11 (t, 1H)

- [106] <단계 4> IC-1의 합성



- [108] 질소 기류 하에서 상기 <단계 3>에서 얻은 5-(2-nitrophenyl)-1-phenyl-1H-indole (5 g, 15.91 mmol), triphenylphosphine (10.43 g, 39.77 mmol) 및 1,2-dichlorobenzene (50 ml)를 혼합하고 12시간 동안 교반하였다.

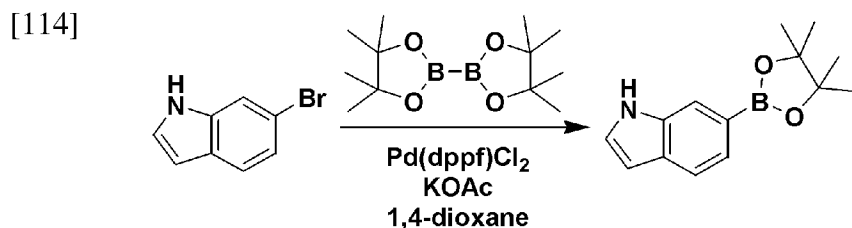
- [109] 반응 종료 후 1,2-dichlorobenzene를 제거하고 디클로로메탄으로 추출하였다. 얻어진 유기층에 대해 MgSO₄로 물을 제거하고, 컬럼크로마토그래피 (Hexane:MC=3:1 (v/v))로 정제하여 IC-1 (2.38 g, 수율 53%)을 얻었다.

- [110] ¹H-NMR: δ 6.99 (d, 1H), 7.12 (t, 1H), 7.27 (t, 1H), 7.32 (d, 1H), 7.41 (t, 1H), 7.50 (d, 1H), 7.60 (m, 5H), 7.85 (d, 1H), 8.02 (d, 1H), 10.59 (s, 1H)

[111]

- [112] [준비예 2] IC-2의 합성

- [113] <단계 1> 6-(4,4,5,5-tetramethyl-1,3,2-dioxaborolan-2-yl)-1H-indole의 합성

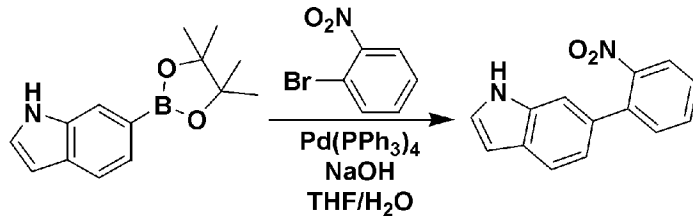


- [115] 5-bromo-1H-indole 대신 6-bromo-1H-indole를 사용하는 것을 제외하고는 상기 준비예 1의 <단계 1>과 동일한 과정을 수행하여 6-(4,4,5,5-tetramethyl-1,3,2-dioxaborolan-2-yl)-1H-indole을 얻었다.

- [116] ¹H-NMR: δ 1.25 (s, 12H), 6.52 (d, 1H), 7.16 (d, 1H), 7.21 (d, 1H), 7.49 (d, 1H), 7.53 (s, 1H), 8.15 (s, 1H)

- [117] <단계 2> 6-(2-nitrophenyl)-1H-indole의 합성

[118]

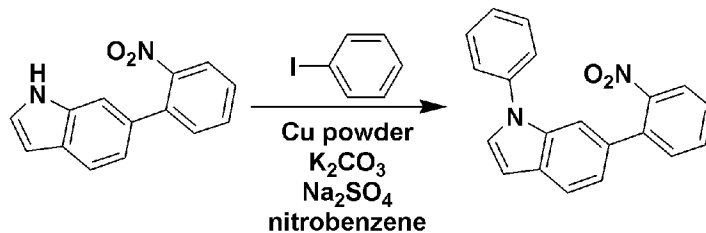


- [119] 5-(4,4,5,5-tetramethyl-1,3,2-dioxaborolan-2-yl)-1H-indole 대신
6-(4,4,5,5-tetramethyl-1,3,2-dioxaborolan-2-yl)-1H-indole를 사용하는 것을
제외하고는 상기 준비에 1의 <단계 2>와 동일한 과정을 수행하여
6-(2-nitrophenyl)-1H-indole을 얻었다.

[120] $^1\text{H-NMR}$: δ 6.57 (d, 1H), 7.07 (d, 1H), 7.24 (d, 1H), 7.35 (s, 1H), 7.43 (t, 1H), 7.50 (d, 1H), 7.58 (t, 1H), 7.66 (d, 1H), 7.78 (d, 1H), 8.19 (s, 1H)

[121] <단계 3> 6-(2-nitrophenyl)-1-phenyl-1H-indole의 합성

[122]

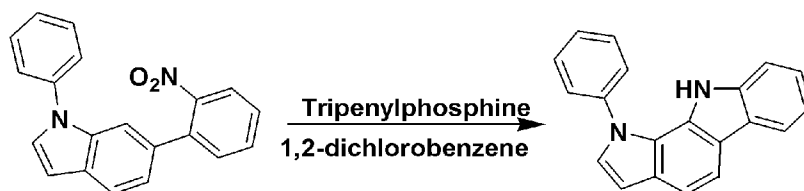


- [123] 5-(2-nitrophenyl)-1H-indole 대신 6-(2-nitrophenyl)-1H-indole를 사용하는 것을
제외하고는 상기 준비에 1의 <단계 3>과 동일한 과정을 수행하여
6-(2-nitrophenyl)-1-phenyl-1H-indole을 얻었다.

[124] $^1\text{H-NMR}$: δ 6.81 (d, 1H), 7.12 (t, 1H), 7.22 (t, 1H), 7.35 (s, 1H), 7.43 (d, 1H), 7.51 (m, 3H), 7.56 (m, 2H), 7.62 (m, 2H), 7.85 (d, 1H), 8.02 (d, 1H)

[125] <단계 4> IC-2의 합성

[126]



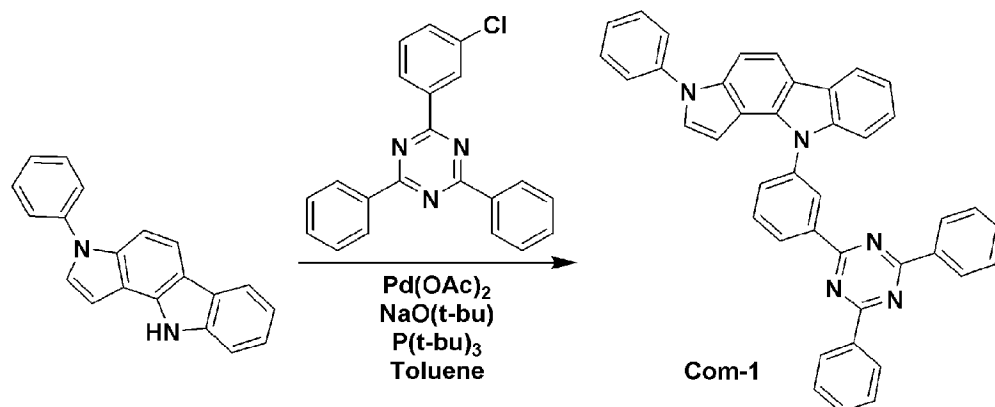
- [127] 5-(2-nitrophenyl)-1-phenyl-1H-indole 대신 6-(2-nitrophenyl)-1-phenyl-1H-indole를
사용하는 것을 제외하고는 상기 준비에 1의 <단계 4>과 동일한 과정을 수행하여
IC-2을 얻었다.

[128] $^1\text{H-NMR}$: δ 6.80 (d, 1H), 7.11 (t, 1H), 7.23 (t, 1H), 7.42 (d, 1H), 7.50 (m, 3H), 7.57 (m, 2H), 7.63 (m, 2H), 7.86 (d, 1H), 8.03 (d, 1H), 9.81 (s, 1H)

[129]

[130] [합성예 1] Com-1의 합성

[131]



[132] 질소 기류 하에서 IC-1 (3 g, 10.63 mmol), 2-(3-chlorophenyl)-4,6-diphenyl-1,3,5-triazine (4.38 g, 12.75 mmol), Pd(OAc)_2 (0.12 g, 5 mol%), NaO(t-bu) (2.04 g, 21.25 mmol), P(t-bu)_3 (0.21 g, 1.06 mmol) 및 Toluene (100 ml)을 혼합하고 110°C에서 12시간 동안 교반하였다.

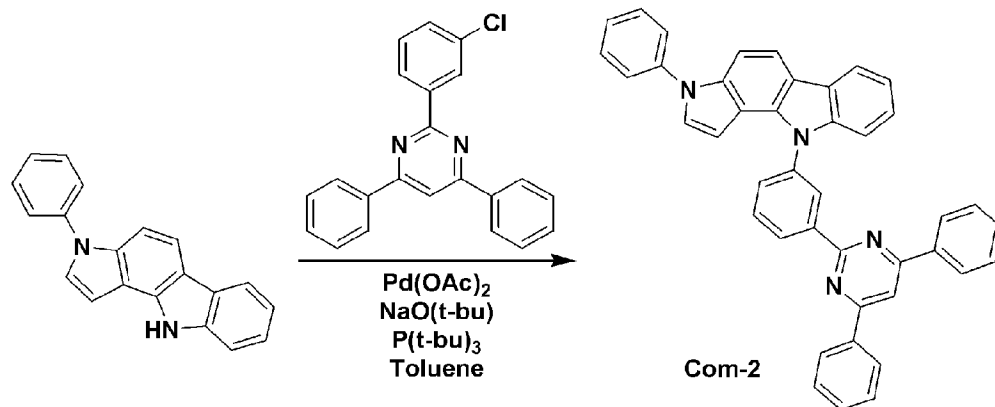
[133] 반응이 종결된 후 에틸아세테이트로 추출한 다음 MgSO_4 로 수분을 제거하고, 컬럼크로마토그래피 (Hexane:EA = 2:1 (v/v))로 정제하여 목적 화합물인 Com-1 (4.89 g, 수율 78 %)을 얻었다.

[134] GC-Mass (이론치: 589.23 g/mol, 측정치: 589 g/mol)

[135]

[136] [합성예 2] Com-2의 합성

[137]



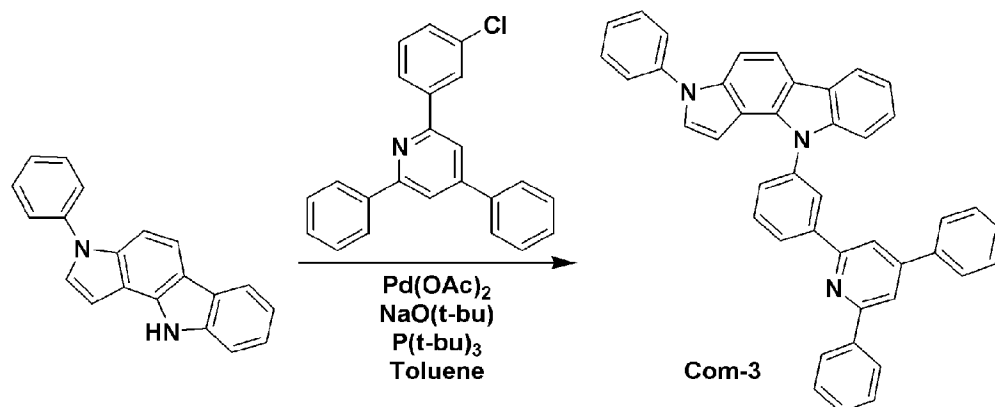
[138] 2-(3-chlorophenyl)-4,6-diphenyl-1,3,5-triazine 대신 2-(3-chlorophenyl)-4,6-diphenylpyrimidine (4.36 g, 12.75 mmol)을 사용한 것을 제외하고는 상기 합성예 1과 동일한 과정을 수행하여 목적 화합물인 Com-2 (4.68 g, 수율 75 %)를 얻었다.

[139] GC-Mass (이론치: 588.23 g/mol, 측정치: 588 g/mol)

[140]

[141] [합성예 3] Com-3의 합성

[142]



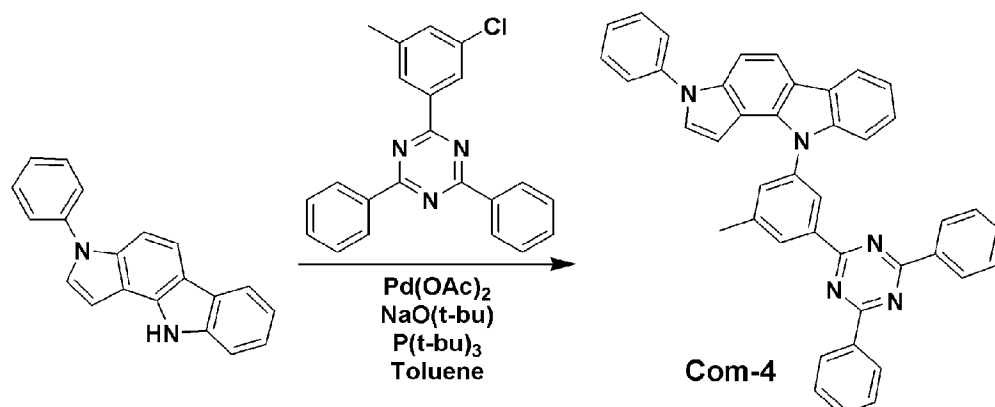
[143] 2-(3-chlorophenyl)-4,6-diphenyl-1,3,5-triazine 대신
 2-(3-chlorophenyl)-4,6-diphenylpyridine (4.34 g, 12.75 mmol)을 사용한 것을
 제외하고는 상기 합성에 1과 동일한 과정을 수행하여 목적 화합물인 Com-3 (4.36
 g, 수율 70 %)를 얻었다.

[144] GC-Mass (이론치: 587.23 g/mol, 측정치: 587 g/mol)

[145]

[146] [합성 예 4] Com-4의 합성

[147]



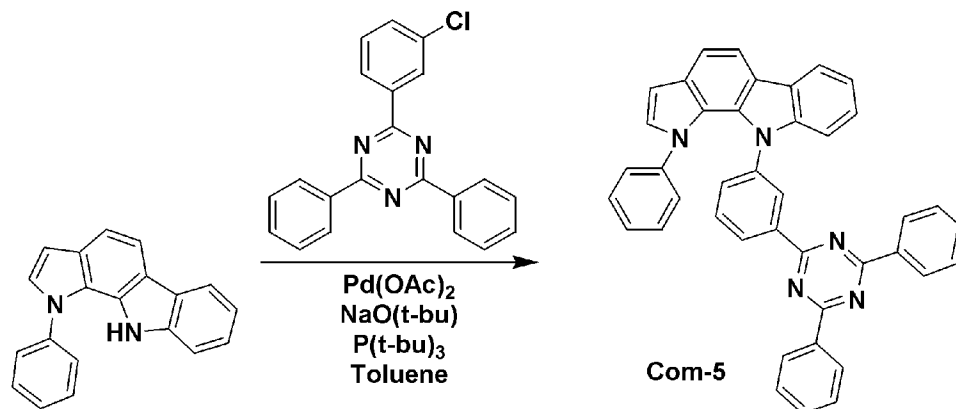
[148] 2-(3-chlorophenyl)-4,6-diphenyl-1,3,5-triazine 대신
 2-(3-chloro-5-methylphenyl)-4,6-diphenyl-1,3,5-triazine (4.55 g, 12.75 mmol)을
 사용한 것을 제외하고는 상기 합성에 1과 동일한 과정을 수행하여 목적
 화합물인 Com-4 (4.81 g, 수율 75 %)를 얻었다.

[149] GC-Mass (이론치: 603.24 g/mol, 측정치: 603 g/mol)

[150]

[151] [합성 예 5] Com-5의 합성

[152]



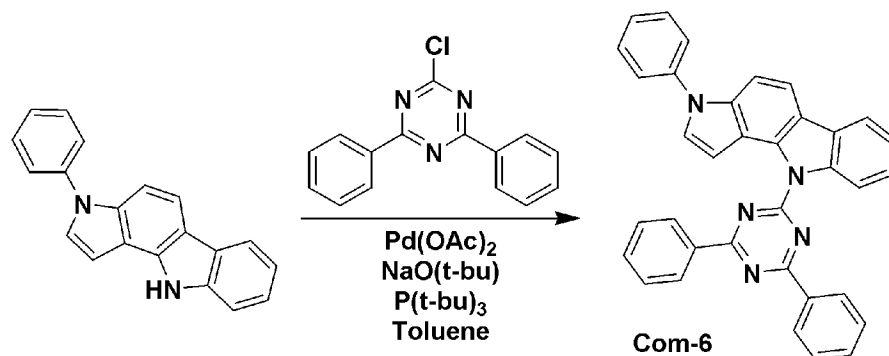
[153] IC-1 대신 IC-2 (3 g, 10.63 mmol)를 사용한 것을 제외하고는 상기 합성에 1과 동일한 과정을 수행하여 목적 화합물인 Com-5 (4.81 g, 수율 75 %)를 얻었다.

[154] GC-Mass (이론치: 589.23 g/mol, 측정치: 589 g/mol)

[155]

[156] [합성예 6] Com-6의 합성

[157]



[158] 2-(3-chlorophenyl)-4,6-diphenyl-1,3,5-triazine 대신

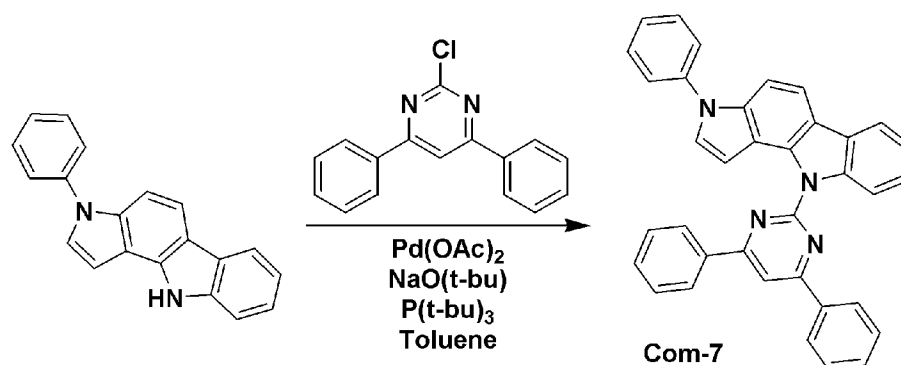
2-chloro-4,6-diphenyl-1,3,5-triazine (3.40 g, 12.75 mmol)을 사용한 것을 제외하고는 상기 합성에 1과 동일한 과정을 수행하여 목적 화합물인 Com-6 (3.98 g, 수율 73 %)를 얻었다.

[159] GC-Mass (이론치: 513.20 g/mol, 측정치: 513 g/mol)

[160]

[161] [합성예 7] Com-7의 합성

[162]



[163] 2-(3-chlorophenyl)-4,6-diphenyl-1,3,5-triazine 대신

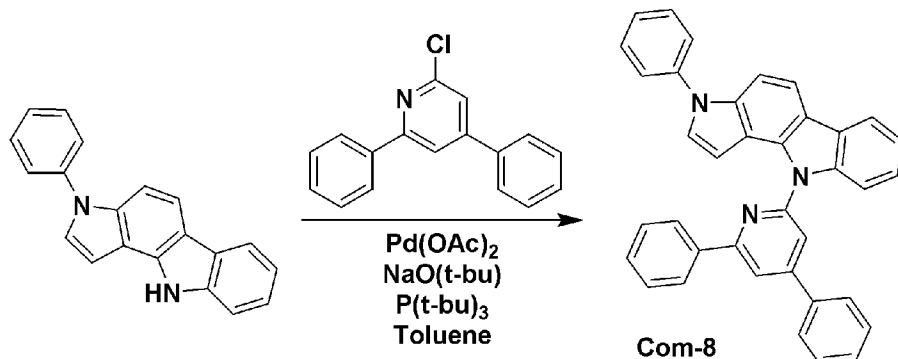
2-chloro-4,6-diphenylpyrimidine (3.40 g, 12.75 mmol)을 사용한 것을 제외하고는 상기 합성에 1과 동일한 과정을 수행하여 목적 화합물인 Com-7 (3.81 g, 수율 70 %)를 얻었다.

[164] GC-Mass (이론치: 512.20 g/mol, 측정치: 512 g/mol)

[165]

[166] [합성예 8] Com-8의 합성

[167]



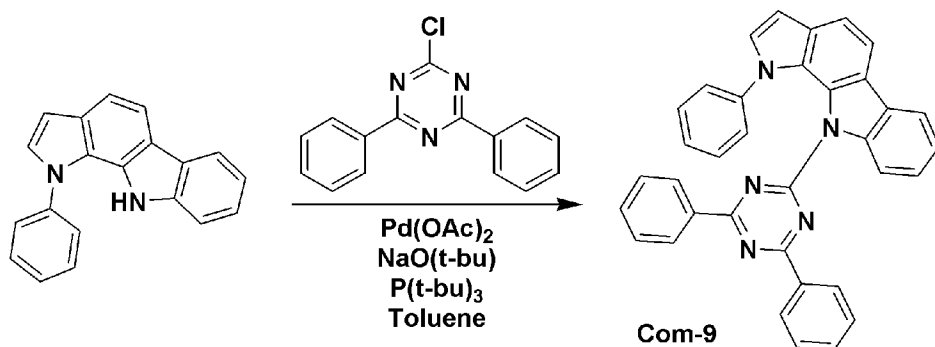
[168] 2-(3-chlorophenyl)-4,6-diphenyl-1,3,5-triazine 대신 2-chloro-4,6-diphenylpyridine (3.38 g, 12.75 mmol)을 사용한 것을 제외하고는 상기 합성에 1과 동일한 과정을 수행하여 목적 화합물인 Com-8 (4.07 g, 수율 75 %)를 얻었다.

[169] GC-Mass (이론치: 511.20 g/mol, 측정치: 511 g/mol)

[170]

[171] [합성예 9] Com-9의 합성

[172]



[173] IC-1 대신 IC-2 (3 g, 10.63 mmol)를 사용하고, 2-(3-chlorophenyl)-4,6-diphenyl-1,3,5-triazine 대신 2-chloro-4,6-diphenyl-1,3,5-triazine (3.38 g, 12.75 mmol)을 사용한 것을 제외하고는 상기 합성에 1과 동일한 과정을 수행하여 목적 화합물인 Com-9 (3.92 g, 수율 72 %)를 얻었다.

[174] GC-Mass (이론치: 513.20 g/mol, 측정치: 513 g/mol)

[175]

[176] [실시예 1 내지 9] 유기 전계 발광 소자의 제조

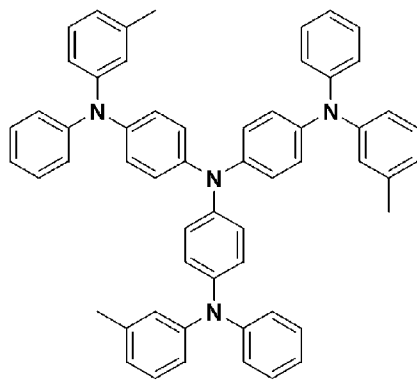
[177] ITO(Indium tin oxide)가 1500Å 두께로 박막 코팅된 유리 기판을 증류수로 초음파 세척하였다. 증류수 세척이 끝나면, 이소프로필 알코올, 아세톤, 메탄올

등의 용제로 초음파 세척을 하고 건조시킨 후 UV OZONE 세정기(Power sonic 405, 화신테크)로 이송시킨 다음, UV를 이용하여 상기 기판을 5분간 세정하고 진공 증착기로 기판을 이송하였다.

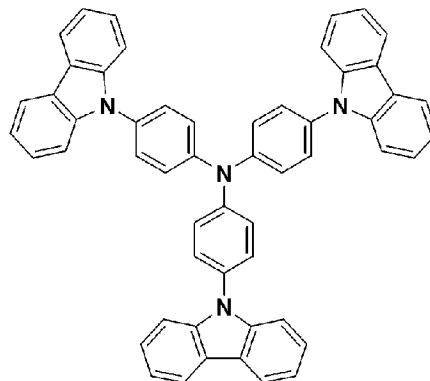
- [178] 상기와 같이 준비된 ITO 투명 기판 위에, Com-1을 제 1호스트로, 상기 H1, H3, H9, H13, H18, H30, H34, H46, H51로 표시되는 화합물을 각각 제 2호스트로 이용하여, m-MTDATA(60 nm) / TCTA(80 nm) / 90%의 제1 호스트와 제2 호스트 + 10 % Ir(ppy)₃(300nm) / BCP(10 nm) / Alq₃(30 nm) / LiF(1 nm) / Al(200 nm) 순으로 적층하여 유기 전계 발광 소자를 제작하였다.

- [179] 이때, 사용된 m-MTDATA, TCTA, Ir(ppy)₃, BCP 및 Com-1의 구조는 하기와 같으며, 제1 호스트와 제2 호스트의 혼합비율은 3:7로 하였다.

[180]

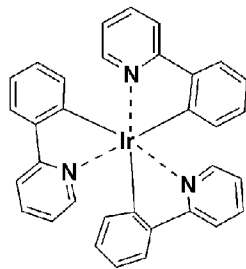


m-MTDATA

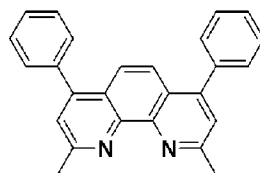


TCTA

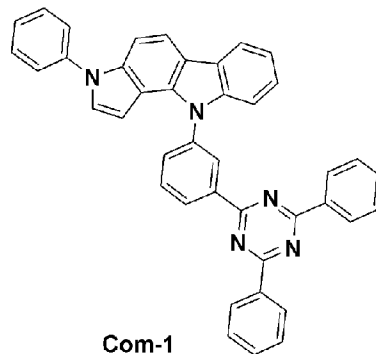
[181]



Ir(ppy)₃



BCP



Com-1

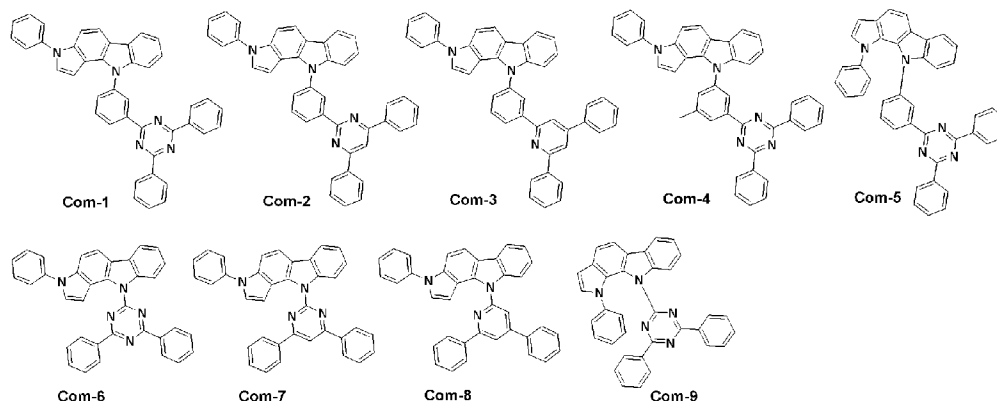
[182]

[실시예 10 내지 18] 유기 전계 발광 소자의 제조

- [183] 실시예 1과 같이 준비된 ITO 투명 기판 위에, 하기 Com-1 내지 Com-9를 제1 호스트로, 상기 H54로 표시되는 화합물을 제2 호스트로 이용하여, m-MTDATA(60 nm) / TCTA(80 nm) / 90%의 제1 호스트와 제2 호스트 + 10 % Ir(ppy)₃(300nm) / BCP(10 nm) / Alq₃(30 nm) / LiF(1 nm) / Al(200 nm) 순으로 적층하여 유기 전계 발광 소자를 제작하였다.

- [185] 이때, 사용된 Com-1 내지 Com-9의 구조는 하기와 같으며, m-MTDATA, TCTA, Ir(ppy)₃, BCP의 구조는 상기 실시예 1과 같고, 제1 호스트와 제2 호스트의 혼합비율은 3:7로 하였다.

[186]



[187]

[188] [실시예 19 내지 27] 유기 전계 발광 소자의 제조

[189] 실시예 1과 같이 준비된 ITO 투명 기판 위에, 상기 Com-1을 제1 호스트로, 상기 H43로 표시되는 화합물을 제2 호스트로 이용하여, m-MTDATA(60 nm) / TCTA(80 nm) / 90%의 제1 호스트와 제2 호스트 + 10 % Ir(ppy)₃(300nm) / BCP(10 nm) / Alq₃(30 nm) / LiF(1 nm) / Al(200 nm) 순으로 적층하여 유기 전계 발광 소자를 제작하였다.

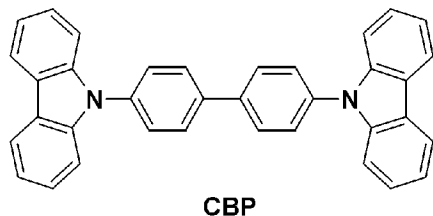
[190] 이때, 사용된 m-MTDATA, TCTA, Ir(ppy)₃, BCP 및 Com-1의 구조는 상기 실시예 1과 같고, 제1 호스트와 제2 호스트의 혼합비율은 하기 표 2와 같이 조정하였다.

[191]

[192] [비교예 1] 유기 전계 발광 소자의 제조

[193] 발광층 형성시 90%의 CBP + 10 % Ir(ppy)₃를 사용하는 것을 제외하고는 실시예 1과 동일하게 수행하여 유기 전계 발광 소자를 제작하였다. 이때, 사용된 CBP의 구조는 하기와 같다.

[194]



[195]

[196] [비교예 2] 유기 전계 발광 소자의 제조

[197] 발광층 형성시 90%의 제1 호스트(Com-1) + 10 % Ir(ppy)₃를 사용하는 것을 제외하고는 실시예 1과 동일하게 수행하여 유기 전계 발광 소자를 제작하였다.

[198]

[199] [실험예 1] HOMO와 LUMO 측정

[200] 당업계에 공지된 방법으로 제1 호스트로 사용된 Com-1과 제2 호스트로 사용된 H1, H3의 HOMO값 및 LUMO값을 측정하였고, 그 결과를 하기 표 1에 나타내었다.

[201] 표 1

[Table 1]

	화합물	HOMO	LUMO	HOMO-LUMO 에너지 갭 (Band Gap)
제1 호스트	Com-1	-5.39	-1.86	3.53
제2 호스트	H1	-5.82	-2.29	3.53
	H3	-5.80	-2.03	3.77

[202] 상기 표 1을 살펴보면, 본 발명의 제2 호스트로 사용된 화합물의 HOMO-LUMO 에너지 갭은 제1 호스트로 사용된 화합물의 HOMO-LUMO 에너지 갭과 동등하거나 큰 것을 확인할 수 있었다.

[203]

[204] [실험예 2]

[205] 상기 실시예 1 내지 27 및 비교예 1, 2에서 제조된 각각의 유기 전계 발광 소자에 대하여 전류밀도 10mA/cm²에서의 구동전압과 전류효율을 측정하였고, 그 결과를 하기 표 2에 나타내었다.

[206] 표 2

[Table 2]

샘플	호스트 사용비율	구동 전압 (V)	전류 효율 (cd/A)
실시예 1	30% Com-1 + 70% H1	6.50	42.9
실시예 2	30% Com-1 + 70% H3	6.45	42.8
실시예 3	30% Com-1 + 70% H9	6.45	42.8
실시예 4	30% Com-1 + 70% H13	6.40	42.9
실시예 5	30% Com-1 + 70% H18	6.50	42.5
실시예 6	30% Com-1 + 70% H30	6.55	42.6
실시예 7	30% Com-1 + 70% H34	6.55	42.5
실시예 8	30% Com-1 + 70% H46	6.40	42.9
실시예 9	30% Com-1 + 70% H51	6.45	43.0
실시예 10	30% Com-1 + 70% H54	5.90	42.7
실시예 11	30% Com-2 + 70% H54	5.95	42.9
실시예 12	30% Com-3 + 70% H54	5.95	42.5
실시예 13	30% Com-4 + 70% H54	5.90	43.2
실시예 14	30% Com-5 + 70% H54	5.90	43.0
실시예 15	30% Com-6 + 70% H54	5.95	42.9
실시예 16	30% Com-7 + 70% H54	5.95	43.1
실시예 17	30% Com-8 + 70% H54	6.00	43.3
실시예 18	30% Com-9 + 70% H54	6.05	43.0
실시예 19	10% Com-1 + 90% H43	6.15	42.8
실시예 20	20% Com-1 + 80% H43	6.10	42.9
실시예 21	30% Com-1 + 70% H43	6.00	43.0
실시예 22	40% Com-1 + 60% H43	6.20	43.2
실시예 23	50% Com-1 + 50% H43	6.10	43.0
실시예 24	60% Com-1 + 40% H43	6.15	42.7
실시예 25	70% Com-1 + 30% H43	6.25	42.5
실시예 26	80% Com-1 + 20% H43	6.20	42.3
실시예 27	90% Com-1 + 10% H43	6.25	42.4
비교예 1	100% CBP	6.93	38.2
비교예 2	100% Com-1	6.55	41.0

- [207] 상기 표 2을 살펴보면, 제1 호스트와 제2 호스트를 포함하는 발광층을 사용한 본 발명의 유기 전계 발광 소자(실시에 1 내지 27)는 종래 CBP 또는 Com-1을 단독호스트 물질로 포함하는 발광층을 사용한 유기 전계 발광 소자(비교예 1 및 비교예 2)보다 전류효율 및 구동전압 면에서 우수한 성능을 나타내는 것을 확인할 수 있었다.

산업상 이용가능성

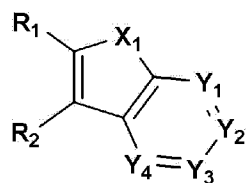
- [208] 본 발명의 유기 전계 발광 소자는 제1 호스트와 제2 호스트를 포함하는 유기물층을 포함하며, 상기 제1 호스트로써 상기 화학식 1로 표시되는 화합물이 사용되기 때문에 구동전압, 발광효율 및 수명 등이 향상될 수 있다. 따라서, 본 발명의 유기 전계 발광 소자를 사용하여 디스플레이 패널을 제조할 경우 성능 및 수명이 향상된 디스플레이 패널을 제공할 수 있다.

청구범위

[청구항 1]

양극; 음극; 및 상기 양극과 음극 사이에 개재(介在)된 1층 이상의 유기물층을 포함하며,
상기 1층 이상의 유기물층 중 적어도 하나는 제1 호스트와 제2 호스트를 포함하고,
상기 제1 호스트는 하기 화학식 1로 표시되는 화합물이며,
상기 제2 호스트는 하기 화학식 1로 표시되는 화합물보다 HOMO-LUMO 에너지 갭이 동등 이상이거나 LUMO값이 큰 화합물인 것을 특징으로 하는 유기 전계 발광 소자.

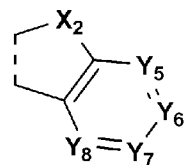
[화학식 1]



상기 화학식 1에서,

Y_1 내지 Y_4 는 각각 독립적으로, N 또는 CR_3 이고, Y_1 과 Y_2 , Y_2 와 Y_3 또는 Y_3 와 Y_4 중 하나는 하기 화학식 2로 표시되는 축합 고리를 형성하며,

[화학식 2]



상기 화학식 2에서,

점선은 상기 화학식 1의 화합물과 축합이 이루어지는 부위를 의미하며, Y_5 내지 Y_8 는 각각 독립적으로, N 또는 CR_4 이고,

상기 X_1 및 X_2 는 각각 독립적으로, O, S, Se, $N(Ar_1)$, $C(Ar_2)(Ar_3)$ 및 $Si(Ar_4)(Ar_5)$ 로 이루어진 군에서 선택되고, 이때, X_1 및 X_2 중에서 적어도 하나는 $N(Ar_1)$ 이며,

상기 R_1 내지 R_4 및 Ar_1 내지 Ar_5 는 각각 독립적으로, 수소, 중수소, 할로젠기, 시아노기, 니트로기, 아미노기, $C_1 \sim C_{40}$ 의 알킬기, $C_2 \sim C_{40}$ 의 알케닐기, $C_2 \sim C_{40}$ 의 알키닐기, $C_3 \sim C_{40}$ 의 시클로알킬기, 핵원자수 3 내지 40의 헤테로시클로알킬기, $C_6 \sim C_{60}$ 의 아릴기, 핵원자수 5 내지 60의 헤테로아릴기, $C_1 \sim C_{40}$ 의 알킬옥시기, $C_6 \sim C_{60}$ 의 아릴옥시기, $C_1 \sim C_{40}$ 의 알킬실릴기, $C_6 \sim C_{60}$ 의 아릴실릴기, $C_1 \sim C_{40}$ 의 알킬보론기, $C_6 \sim C_{60}$ 의 아릴보론기, $C_6 \sim C_{60}$ 의 아릴포스핀기, $C_6 \sim C_{60}$ 의 아릴포스핀옥사이드기 및 $C_6 \sim C_{60}$ 의 아릴아민기로 이루어진

군에서 선택되고,

상기 R_1 내지 R_4 는 인접한 기와 결합하여 축합 고리를 형성할 수 있으며,

상기 R_1 내지 R_4 및 Ar_1 내지 Ar_5 의 알킬기, 알케닐기, 알키닐기,

시클로알킬기, 헤테로시클로알킬기, 아릴기, 헤테로아릴기,

알킬옥시기, 아릴옥시기, 알킬실릴기, 아릴실릴기, 알킬보론기,

아릴보론기, 아릴포스핀기, 아릴포스핀옥사이드기 및

아릴아민기는 각각 독립적으로, 중수소, 할로젠기, 시아노기,

니트로기, 아미노기, $C_1 \sim C_{40}$ 의 알킬기, $C_2 \sim C_{40}$ 의 알케닐기, $C_2 \sim C_{40}$ 의

알키닐기, $C_3 \sim C_{40}$ 의 시클로알킬기, 핵원자수 3 내지 40의

헤테로시클로알킬기, $C_6 \sim C_{40}$ 의 아릴기, 핵원자수 5 내지 40의

헤테로아릴기, $C_1 \sim C_{40}$ 의 알킬옥시기, $C_6 \sim C_{60}$ 의 아릴옥시기, $C_1 \sim C_{40}$

의 알킬실릴기, $C_6 \sim C_{60}$ 의 아릴실릴기, $C_1 \sim C_{40}$ 의 알킬보론기, $C_6 \sim C_{60}$

의 아릴보론기, $C_6 \sim C_{60}$ 의 아릴포스핀기, $C_6 \sim C_{60}$ 의

아릴포스핀옥사이드기 및 $C_6 \sim C_{60}$ 의 아릴아민기로 이루어진

군에서 선택된 1종 이상으로 치환 또는 비치환될 수 있다.

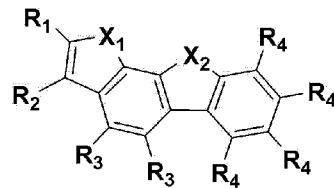
[청구항 2]

제1항에 있어서,

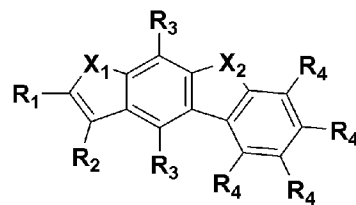
상기 화학식 1로 표시되는 화합물은 하기 화학식 1a 내지 1f로

표시되는 화합물로 이루어진 군에서 선택되는 것을 특징으로 하는
유기 전계 발광 소자.

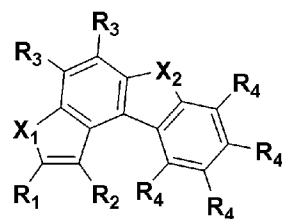
[화학식 1a]



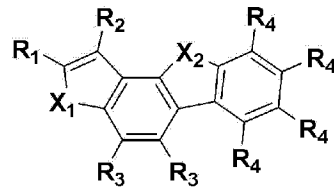
[화학식 1b]



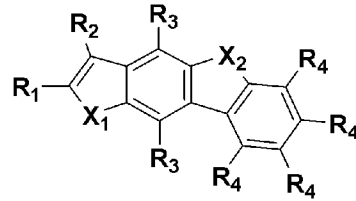
[화학식 1c]



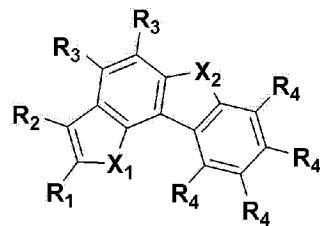
[화학식 1d]



[화학식 1e]



[화학식 1f]



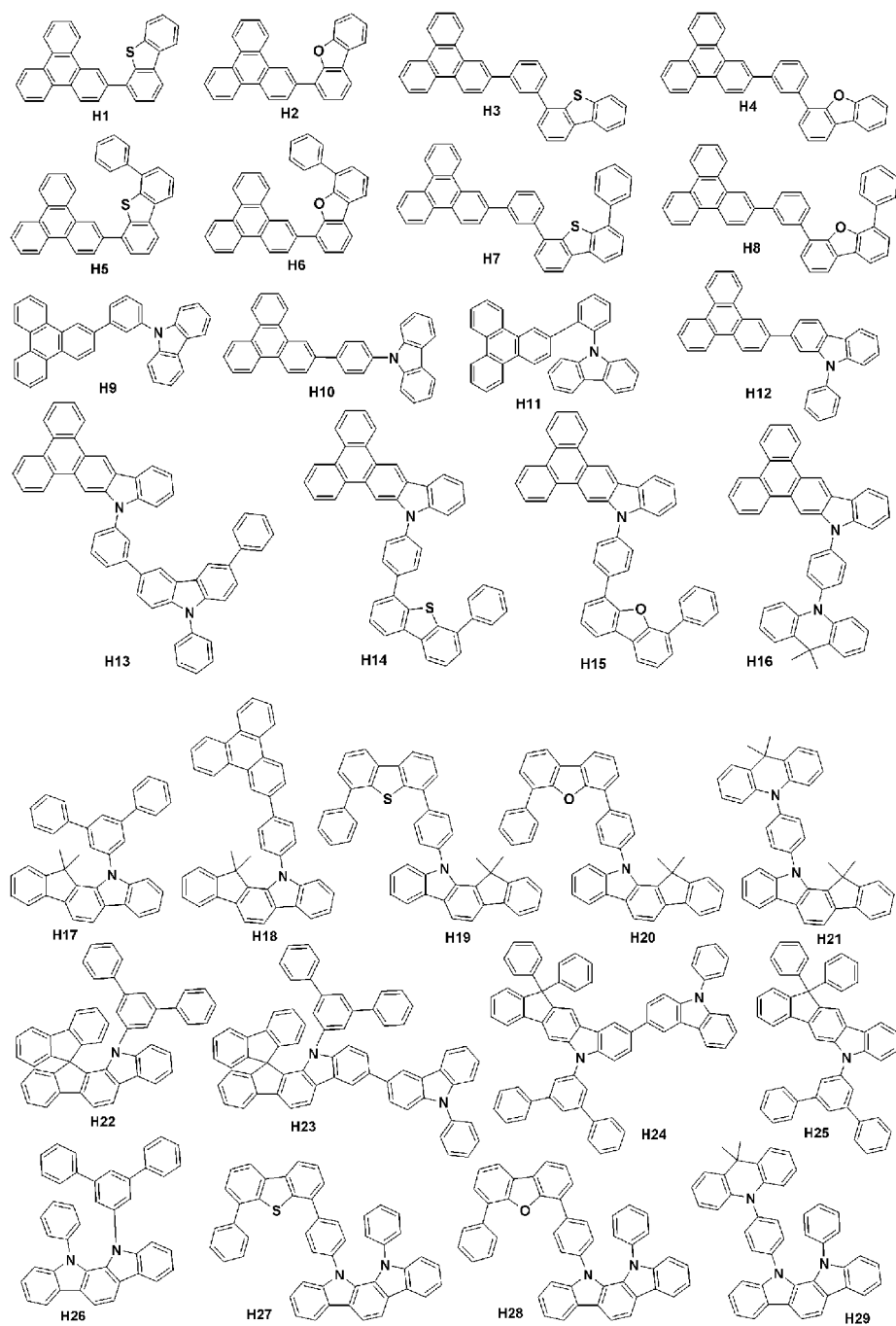
상기 화학식 1a 내지 1f에서, X_1 , X_2 및 R_1 내지 R_4 는 상기에서 정의한 바와 같으며, 복수개의 R_3 는 서로 동일하거나 상이하고, 복수개의 R_4 도 서로 동일하거나 상이하다.

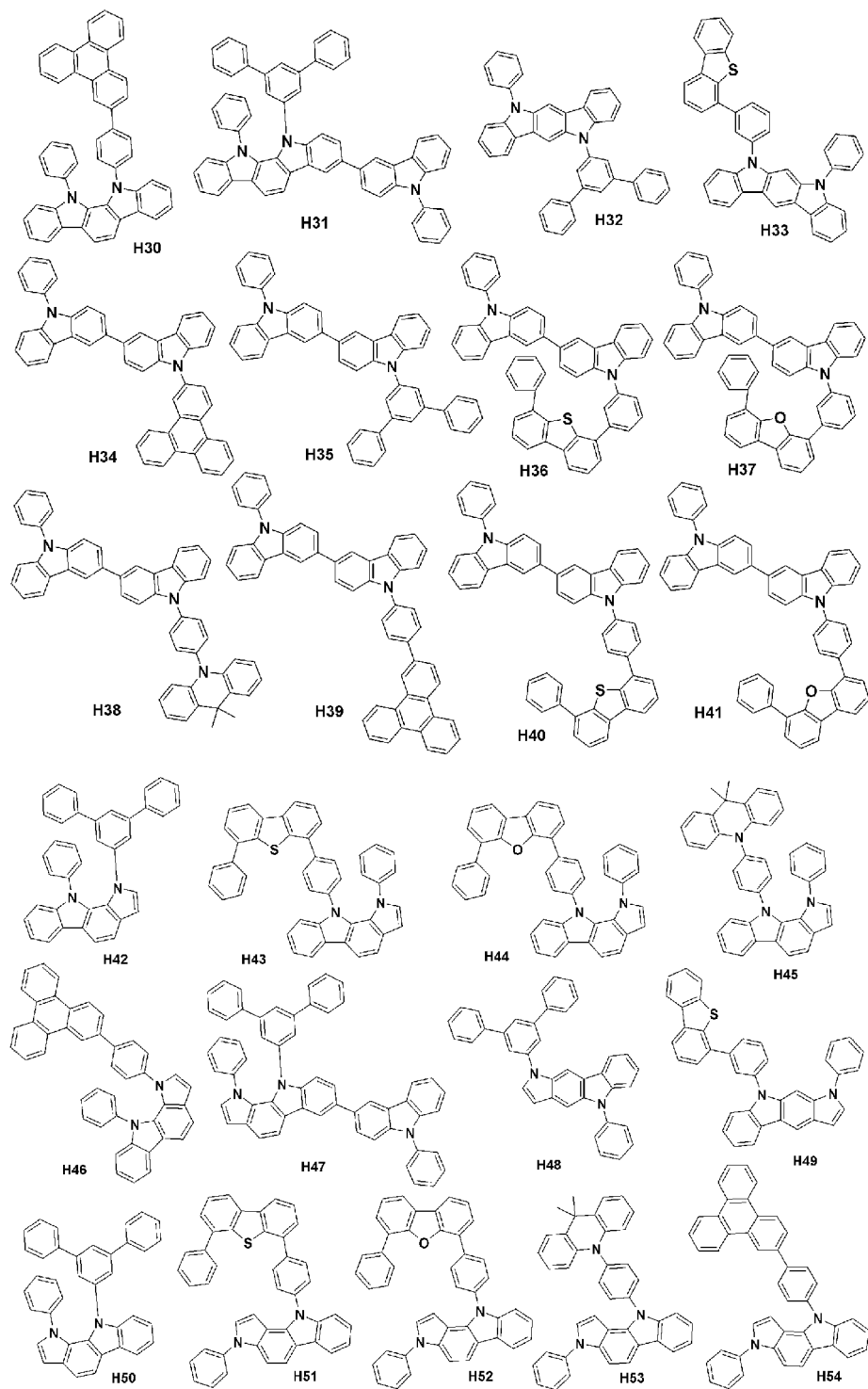
[청구항 3]

제1항에 있어서,
상기 제2 호스트는 트리페닐렌, 페닐, 카바졸, 아크리딘, 인데노카바졸, 인돌로카바졸, 피롤로카바졸, 인돌로트리페닐렌, 디벤조싸이오펜 및 디벤조푸란으로 이루어진 군에서 선택된 화합물을 모이어티로 포함하는 화합물인 것을 특징으로 하는 유기 전계 발광 소자.

[청구항 4]

제1항에 있어서,
상기 제2 호스트는 하기 H1 내지 H54로 표시되는 화합물로 이루어진 군에서 선택되는 것을 특징으로 하는 유기 전계 발광 소자.





[청구항 5]

제1항에 있어서,
상기 제1 호스트와 제2 호스트를 포함하는 유기물층은 발광층인
것을 특징으로 하는 유기 전계 발광 소자.

[청구항 6]

제5항에 있어서,
상기 발광층은 도펀트를 포함하고,
상기 도펀트는 금속 착체 화합물인 것을 특징으로 하는 유기 전계
발광 소자.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/KR2014/001503**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER*****C09K 11/06(2006.01)i, H01L 51/50(2006.01)i***

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C09K 11/06; C07D 487/04; H01L 51/54; H01L 51/50

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Korean Utility models and applications for Utility models: IPC as above

Japanese Utility models and applications for Utility models: IPC as above

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

eKOMPASS (KIPO internal) & Keywords: organic electroluminescence device, first host, second host, HOMO, LUMO

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	KR 10-2011-0134885 A (NIPPON STEEL & SUMIKIN CHEMICAL CO., LTD.) 15 December 2011 See [0009]-[0054], [0106]-[0146]	1-6
A	KR 10-2011-0048838 A (CHEIL INDUSTRIES INC.) 12 May 2011 See claims 1 to 14	1-6
A	KR 10-2010-0105099 A (ROHM AND HAAS ELECTRONIC MATERIALS KOREA LTD.) 29 September 2010 See claims 1 to 10	1-6
A	KR 10-2011-0104022 A (E.I. DU PONT DE NEMOURS AND COMPANY) 21 September 2011 See claims 1 to 15	1-6



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date

“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

27 JUNE 2014 (27.06.2014)

Date of mailing of the international search report

27 JUNE 2014 (27.06.2014)

Name and mailing address of the ISA/KR

Korean Intellectual Property Office
Government Complex-Daejeon, 189 Sconsa-ro, Daejeon 302-701,
Republic of Korea

Facsimile No. 82-42-472-7140

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/KR2014/001503

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member	Publication date
KR 10-2011-0134885 A	15/12/2011	CN 102326273 A	18/01/2012
		CN 102326273 B	12/03/2014
		EP 2403028 A1	04/01/2012
		JP 05-433677 B2	05/03/2014
		TW 201100518 A	01/01/2011
		US 2012-0001158 A1	05/01/2012
		WO 2010-098246 A1	02/09/2010
KR 10-2011-0048838 A	12/05/2011	US 2012-0273764 A1	01/11/2012
		WO 2011-055933 A2	12/05/2011
		WO 2011-055933 A3	29/09/2011
		WO 2011-055933 A9	12/05/2011
KR 10-2010-0105099 A	29/09/2010	CN 102482571 A	30/05/2012
		JP 2012-520872 A	10/09/2012
		TW 201105768 A	16/02/2011
		WO 2010-107244 A2	23/09/2010
		WO 2010-107244 A3	09/12/2010
KR 10-2011-0104022 A	21/09/2011	CN 102239230 A	09/11/2011
		EP 2376593 A2	19/10/2011
		JP 2012-512275 A	31/05/2012
		US 2011-0037056 A1	17/02/2011
		WO 2010-068865 A2	17/06/2010
		WO 2010-068865 A3	16/09/2010

A. 발명이 속하는 기술분류(국제특허분류(IPC)) C09K 11/06(2006.01)i, H01L 51/50(2006.01)i		
B. 조사된 분야 조사된 최소문헌(국제특허분류를 기재) C09K 11/06; C07D 487/04; H01L 51/54; H01L 51/50 조사된 기술분야에 속하는 최소문헌 이외의 문헌 한국등록실용신안공보 및 한국공개실용신안공보: 조사된 최소문헌란에 기재된 IPC 일본등록실용신안공보 및 일본공개실용신안공보: 조사된 최소문헌란에 기재된 IPC 국제조사에 이용된 전산 데이터베이스(데이터베이스의 명칭 및 검색어(해당하는 경우)) eKOMPASS(특허청 내부 검색시스템) & 키워드: 유기전계발광소자, 제1호스트, 제2호스트, HOMO, LUMO		
C. 관련 문헌		
카테고리*	인용문헌명 및 관련 구절(해당하는 경우)의 기재	관련 청구항
X	KR 10-2011-0134885 A (신닛테츠가가쿠 가부시기가이샤) 2011.12.15 [0009]-[0054], [0106]-[0146] 참조	1-6
A	KR 10-2011-0048838 A (제일모직주식회사) 2011.05.12 청구항 1 내지 14 참조	1-6
A	KR 10-2010-0105099 A (다우어드밴스드디스플레이머티리얼 유한회사) 2010.09.29 청구항 1 내지 10 참조	1-6
A	KR 10-2011-0104022 A (이 아이 듀폰 디 네모아 앤드 캄파니) 2011.09.21 청구항 1 내지 15 참조	1-6
☐ 추가 문헌이 C(계속)에 기재되어 있습니다. ☒ 대응특허에 관한 별지를 참조하십시오.		
* 인용된 문헌의 특별 카테고리: “A” 특별히 관련이 없는 것으로 보이는 일반적인 기술수준을 정의한 문헌 “E” 국제출원일보다 빠른 출원일 또는 우선일을 가지나 국제출원일 이후에 공개된 선출원 또는 특허 문헌 “L” 우선권 주장에 의문을 제기하는 문헌 또는 다른 인용문헌의 공개일 또는 다른 특별한 이유(이유를 명시)를 밝히기 위하여 인용된 문헌 “O” 구두 개시, 사용, 전시 또는 기타 수단을 언급하고 있는 문헌 “P” 우선일 이후에 공개되었으나 국제출원일 이전에 공개된 문헌 “T” 국제출원일 또는 우선일 후에 공개된 문헌으로, 출원과 상충하지 않으며 발명의 기초가 되는 원리나 이론을 이해하기 위해 인용된 문헌 “X” 특별한 관련이 있는 문헌. 해당 문헌 하나만으로 청구된 발명의 신규성 또는 진보성이 없는 것으로 본다. “Y” 특별한 관련이 있는 문헌. 해당 문헌이 하나 이상의 다른 문헌과 조합하는 경우로 그 조합이 당업자에게 자명한 경우 청구된 발명은 진보성이 없는 것으로 본다. “&” 동일한 대응특허문헌에 속하는 문헌		
국제조사의 실제 완료일 2014년 06월 27일 (27.06.2014)		국제조사보고서 발송일 2014년 06월 27일 (27.06.2014)
ISA/KR의 명칭 및 우편주소  대한민국 특허청 (302-701) 대전광역시 서구 청사로 189, 4동 (둔산동, 정부대전청사) 팩스 번호 +82-42-472-7140		심사관 오세주 전화번호 +82-42-481-5596 

국제조사보고서에서 인용된 특허문헌	공개일	대응특허문헌	공개일
KR 10-2011-0134885 A	2011/12/15	CN 102326273 A CN 102326273 B EP 2403028 A1 JP 05-433677 B2 TW 201100518 A US 2012-0001158 A1 WO 2010-098246 A1	2012/01/18 2014/03/12 2012/01/04 2014/03/05 2011/01/01 2012/01/05 2010/09/02
KR 10-2011-0048838 A	2011/05/12	US 2012-0273764 A1 WO 2011-055933 A2 WO 2011-055933 A3 WO 2011-055933 A9	2012/11/01 2011/05/12 2011/09/29 2011/05/12
KR 10-2010-0105099 A	2010/09/29	CN 102482571 A JP 2012-520872 A TW 201105768 A WO 2010-107244 A2 WO 2010-107244 A3	2012/05/30 2012/09/10 2011/02/16 2010/09/23 2010/12/09
KR 10-2011-0104022 A	2011/09/21	CN 102239230 A EP 2376593 A2 JP 2012-512275 A US 2011-0037056 A1 WO 2010-068865 A2 WO 2010-068865 A3	2011/11/09 2011/10/19 2012/05/31 2011/02/17 2010/06/17 2010/09/16