



(19) 대한민국특허청(KR)

(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2016년10월27일

(11) 등록번호 10-1670036

(24) 등록일자 2016년10월21일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)

C09K 11/06 (2006.01) H05B 33/10 (2006.01)

(21) 출원번호 10-2009-0082580

(22) 출원일자 2009년09월02일

심사청구일자 2014년08월05일

(65) 공개번호 10-2010-0029040

(43) 공개일자 2010년03월15일

(30) 우선권주장

JP-P-2008-228252 2008년09월05일 일본(JP)

JP-P-2009-049170 2009년03월03일 일본(JP)

(56) 선행기술조사문현

JP2009526251 A

US20030129448 A1

JP2004171808 A

WO2007090550 A1

(73) 특허권자

가부시끼가이샤 한도오따이 에네루기 켄큐쇼

일본국 가나가와Ken 아쓰기시 하세 398

(72) 발명자

노무라 히로코

일본국 819-0161 후쿠오카Ken 후쿠오카시 니시쿠
이마주쿠히가시 3-14-5-106

카와카미 사치코

일본국 243-0036 가나가와Ken 아쓰기시 하세 398
가부시끼가이샤 한도오따이 에네루기 켄큐쇼 내
(뒷면에 계속)

(74) 대리인

황의만

전체 청구항 수 : 총 9 항

심사관 : 지무근

(54) 발명의 명칭 벤조옥사졸 유도체, 벤조옥사졸 유도체를 이용한 발광소자, 발광장치 및 전자기기

(57) 요약

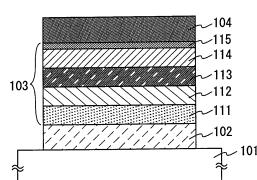
여기 에너지가 큰 물질, 특히 삼중항 여기 에너지가 큰 물질이며, 또한 바이폴라성을 가지는 신규의 벤조옥사졸 유도체를 제공하는 것을 목적으로 한다.

하기 일반식 (G1)으로 나타내어지는 벤조옥사졸 유도체를 제공한다.

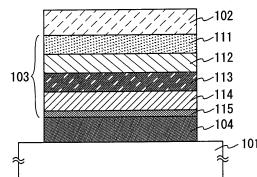
(뒷면에 계속)

대 표 도 - 도1

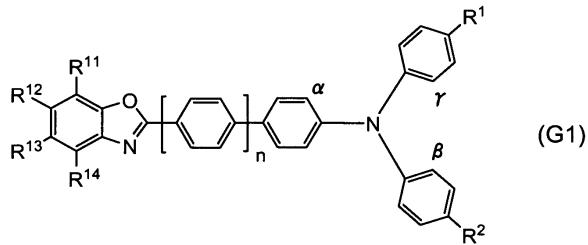
(A)



(B)



[일반식 (G1)]



(여기에서, R^1 , R^2 는 수소 원자, 탄소수 1~4의 알킬기, 치환 또는 무치환의 탄소수 6~13의 아릴기를 나타낸다. 또한, 치환기는 서로 결합하여 고리를 형성해도 좋고, 그 고리 구조는 스피로 고리 구조이어도 좋다. 또한, R^{11} ~ R^{14} 는 수소 원자, 할로겐, 탄소수 1~4의 알킬기, 무치환의 탄소수 6~10의 아릴기 중 어느 것인가를 나타낸다. 또한, α , β , γ 중 어느 둘이 결합하여 하나의 결합을 형성하여, 카르바졸 골격을 형성한다. 또한, n은 0~3이다.)

(72) 발명자

오사와 노부하루

일本国 243-0036 가나가와켄 아쓰기시 하세 398 가
부시키가이샤 한도오따이 에네루기 켄큐쇼 내

세오 사토시

일本国 243-0036 가나가와켄 아쓰기시 하세 398 가
부시키가이샤 한도오따이 에네루기 켄큐쇼 내

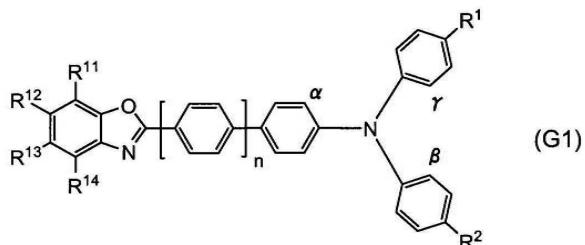
명세서

청구범위

청구항 1

일반식 (G1)으로 나타내어지는, 벤조옥사졸 유도체:

[일반식 (G1)]



(여기에서, R^1 , R^2 는 독립적으로 수소 원자, 탄소수 1~4의 알킬기, 및 치환 또는 무치환의 탄소수 6~13의 아릴기 중 어느 것을 나타내고,

$R^{11} \sim R^{14}$ 는 독립적으로 수소 원자, 할로겐, 탄소수 1~4의 알킬기, 및 무치환의 탄소수 6~10의 아릴기 중 어느 것을 나타내고,

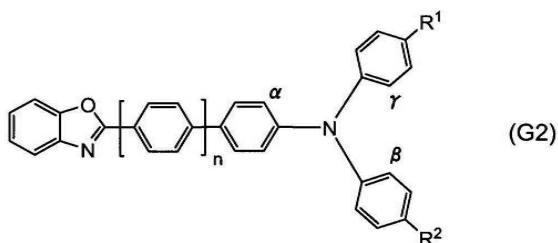
α , β , γ 중 어느 둘이 결합하여 하나의 결합을 형성하여, 카르바졸 골격을 형성하고,

n 은 1, 2 또는 3이다.)

청구항 2

일반식 (G2)로 나타내어지는, 벤조옥사졸 유도체:

[일반식 (G2)]



(여기에서, R^1 , R^2 는 독립적으로 수소 원자, 탄소수 1~4의 알킬기, 및 치환 또는 무치환의 탄소수 6~13의 아릴기 중 어느 것을 나타내고,

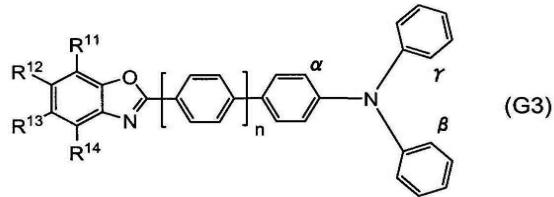
α , β , γ 중 어느 둘이 결합하여 하나의 결합을 형성하여, 카르바졸 골격을 형성하고,

n 은 1, 2 또는 3이다.)

청구항 3

일반식 (G3)로 나타내어지는, 벤조옥사졸 유도체:

[일반식 (G3)]



(여기에서, $R^{11} \sim R^{14}$ 는 독립적으로 수소 원자, 할로겐, 탄소수 1~4의 알킬기, 및 무치환의 탄소수 6~10의 아릴기 중 어느 것을 나타내고,

α , β , γ 중 어느 둘이 결합하여 하나의 결합을 형성하여, 카르바졸 골격을 형성하고,
 n 은 1, 2 또는 3이다.)

청구항 4

청구항 1 또는 청구항 2에 있어서,

R^1 , R^2 중 어느 것은 스파로 고리 구조를 가지는, 벤조옥사졸 유도체.

청구항 5

삭제

청구항 6

청구항 1 내지 청구항 3 중 어느 한 항에 있어서,

$n \leq 2$ 인, 벤조옥사졸 유도체.

청구항 7

삭제

청구항 8

삭제

청구항 9

삭제

청구항 10

청구항 2에 있어서,

상기 결합은 β 와 γ 가 결합하여 형성되고,

상기 R^1 , R^2 는 각각 수소 원자이고,

n 은 1인, 벤조옥사졸 유도체.

청구항 11

삭제

청구항 12

한 쌍의 전극 간에 일렉트로루미네스цен스층을 포함하는 발광소자로서,

상기 일렉트로루미네스цен스층은 청구항 1 내지 청구항 3 중 어느 한 항에 기재된 벤조옥사졸 유도체를 포함하는,

발광소자.

청구항 13

삭제

청구항 14

삭제

청구항 15

청구항 12에 기재된 발광소자를 포함하는, 전자기기.

청구항 16

삭제

청구항 17

삭제

청구항 18

청구항 15에 있어서,

상기 전자기기가 카메라, 디스플레이, 네비게이션 시스템, 음향 재생장치, 컴퓨터, 게임기기, 휴대형 정보 단말기, 화상 재생장치, 및 조명장치로 이루어진 군으로부터 선택되는, 전자기기.

청구항 19

삭제

청구항 20

삭제

발명의 설명

발명의 상세한 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은, 벤조옥사졸 유도체, 벤조옥사졸 유도체를 이용한 발광소자, 발광장치, 및 전자기기에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 근년, 일렉트로루미네스نس(Electroluminescence)를 이용한 발광소자의 연구개발이 활발히 진행되고 있다. 이들 발광소자의 기본적인 구성은, 한 쌍의 전극 간에 발광성 물질을 포함하는 층을 사이에 개재한 것이다. 이 소자에 전압을 인가함으로써, 발광성 물질로부터의 발광을 얻을 수 있다.

[0003] 이와 같은 발광소자는 자기 발광형이기 때문에, 액정 디스플레이에 비해 화소의 시인성(視認性)이 높고, 백라이트가 불필요하다는 등의 이점이 있어, 플랫 패널 디스플레이 소자로서 적합하다고 생각된다. 또한, 이와 같은 발광소자는 박형 경량으로 제작할 수 있다는 것도 큰 이점이다. 또한, 응답 속도가 매우 빠른 것도 특징의 하나이다.

[0004] 그리고 이를 발광소자는 막상(膜狀)으로 형성하는 것이 가능하기 때문에, 대면적의 소자를 형성함으로써, 면상

(面狀)의 발광을 용이하게 얻을 수 있다. 이것은 백열전구나 LED로 대표되는 점광원, 혹은 형광 등으로 대표되는 선광원에서는 얻기 어려운 특색이기 때문에, 조명 등에 응용할 수 있는 면광원으로서의 이용 가치도 높다.

[0005] 상기 일렉트로루미네스نس를 이용한 발광소자는 발광성의 물질이 유기 화합물인지, 무기 화합물인지에 따라 크게 나눌 수 있지만, 발광성 물질에 유기 화합물을 이용하는 경우, 발광소자에 전압을 인가함으로써, 한 쌍의 전극으로부터 전자 및 정공이 각각 발광성의 유기 화합물을 포함하는 층에 주입되어 전류가 흐른다. 그리고 그 캐리어(전자 및 정공)들이 재결합함으로써, 발광성 유기 화합물이 여기 상태를 형성하고, 그 여기 상태가 기저 상태로 복귀할 때에 발광한다.

[0006] 이와 같은 메커니즘으로부터, 이와 같은 발광소자는 전류 여기형의 발광소자라고 불린다. 또한, 유기 화합물이 형성하는 여기 상태의 종류로서는, 일중항 여기 상태와 삼중항 여기 상태가 가능하고, 일중항 여기 상태(S^*)로부터의 발광을 형광, 삼중항 여기 상태(T^*)로부터의 발광을 인광이라고 부르고 있다. 또한, 발광소자에 있어서의 그 통계적인 생성 비율은 $S^* : T^* = 1 : 3$ 이라고 생각된다.

[0007] 일중항 여기 상태를 발광으로 변환하는 화합물(이하, 형광성 화합물이라고 칭함)은 실온에서 삼중항 여기 상태로부터의 발광(인광)은 관측되지 않고, 일중항 여기 상태로부터의 발광(형광)만이 관측된다. 따라서, 형광성 화합물을 이용한 발광소자의 내부 양자 효율(주입한 캐리어에 대하여 발생하는 포톤의 비율)의 이론적 한계는 $S^* : T^* = 1 : 3$ 인 것을 근거로 25%로 되어 있다.

[0008] 한편, 삼중항 여기 상태를 발광으로 변환하는 화합물(이하, 인광성 화합물이라고 칭함)을 이용하면, 내부 양자 효율은 75~100%까지 이론상은 가능하게 된다. 즉, 형광성 화합물에 비해 3~4배의 발광 효율이 가능하게 된다. 이러한 이유로부터, 고효율의 발광소자를 실현하기 위해, 인광성 화합물을 이용한 발광소자의 개발이 근년 활발히 행해지고 있다(예를 들면, 비특허 문헌 1 참조).

[0009] 상술한 인광성 화합물을 이용하여 발광소자의 발광층을 형성하는 경우, 인광성 화합물의 농도 소광이나 삼중항-삼중항 소멸에 의한 소광을 억제하기 위해, 다른 물질로 된 매트릭스 중에 이 인광성 화합물이 분산되어 형성하는 경우가 많다. 이 때, 매트릭스가 되는 물질은 호스트 재료, 인광성 화합물과 같이 매트릭스 중에 분산되는 물질은 게스트 재료라고 불린다.

[0010] 인광성 화합물을 게스트 재료로 하는 경우, 호스트 재료에 필요하게 되는 성질은, 이 인광성 화합물보다 큰 삼중항 여기 에너지(기저 상태와 삼중항 여기 상태와의 에너지차)를 가진다. 비특허 문헌 1에서 호스트 재료로서 이용되는 CBP는, 녹색~적색의 발광을 나타내는 인광성 화합물보다 큰 삼중항 여기 에너지를 가지고 있는 것이 알려져 있고, 인광성 화합물에 대한 호스트 재료로서 널리 이용된다.

[0011] 그러나, CBP는 삼중항 여기 에너지가 큰 것에 반하여, 정공이나 전자를 받는 능력이 부족하기 때문에, 구동 전압이 높아진다고 하는 문제점이 있었다. 따라서, 큰 삼중항 여기 에너지를 가짐과 동시에, 정공·전자의 양쪽 모두를 받기 쉽고, 또한 수송할 수 있는 물질(즉, 바이폴라성을 가지는 물질)이 인광성 화합물에 대한 호스트 재료로서 요구되고 있다.

[0012] 또한, 일중항 여기 에너지(기저 상태와 일중항 여기 상태와의 에너지차)는 삼중항 여기 에너지보다 크기 때문에, 큰 삼중항 여기 에너지를 가지는 물질은 큰 일중항 여기 에너지도 가진다. 따라서, 상술한 바와 같은 큰 삼중항 여기 에너지를 가짐과 동시에, 바이폴라성을 가지는 물질은 형광성 화합물을 발광 물질로서 이용한 발광소자에 있어서도 유익하다.

[0013] [비]특허 문헌 1] M.A.Baldo 외 4명, 「Applied Physics Letters」, Vol. 75, No. 1, pp. 4~6(1999)

발명의 내용

해결 하고자하는 과제

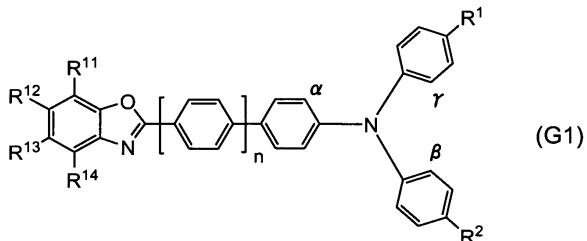
[0014] 따라서, 본 발명에서는 여기 에너지가 큰 물질, 특히 삼중항 여기 에너지가 큰 물질로서, 신규의 벤조옥사졸 유도체를 제공하는 것을 목적으로 한다. 또한, 본 발명에서는 바이폴라성을 가지는 신규의 벤조옥사졸 유도체를 제공하는 것을 목적으로 한다. 또한, 신규의 벤조옥사졸 유도체를 발광소자에 적용함으로써, 발광소자의 소자 특성을 향상시키는 것을 목적으로 한다. 또한, 소비 전력이 적고, 구동 전압이 낮은 발광장치 및 전자기기를

제공하는 것을 목적으로 한다.

과제 해결수단

[0015] 본 발명의 하나는, 하기 일반식 (G1)으로 나타내어지는 벤조옥사졸 유도체이다.

[일반식 1]



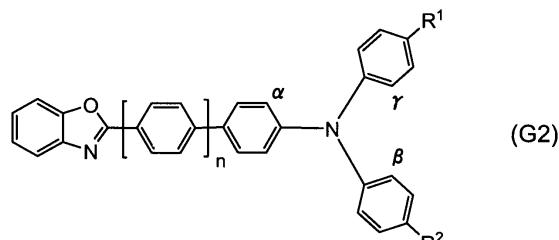
[0017]

[0018] (식 중, R^1 , R^2 는 수소 원자, 탄소수 1~4의 알킬기, 치환 또는 무치환의 탄소수 6~13의 아릴기를 나타낸다. 또한, 치환기는 서로 결합하여 고리를 형성해도 좋고, 그 고리 구조는 스피로 고리 구조이어도 좋다. 또한, R^{11} ~ R^{14} 는 수소 원자, 할로겐, 탄소수 1~4의 알킬기, 무치환의 탄소수 6~10의 아릴기 중 어느 것인가를 나타낸다. 또한, α , β , γ 중 어느 둘이 결합하여 하나의 결합을 형성하여, 카르바졸 골격을 형성한다. 또한, n 은 0~3이다.)

[0019]

또한, 본 발명의 하나는, 하기 일반식 (G2)로 나타내어지는 벤조옥사졸 유도체이다.

[일반식 2]



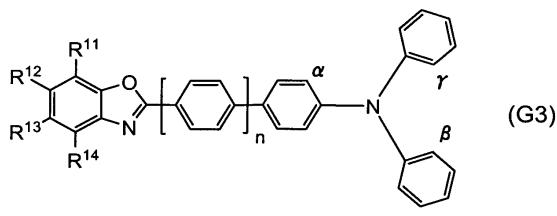
[0021]

[0022] (식 중, R^1 , R^2 는 수소 원자, 탄소수 1~4의 알킬기, 치환 또는 무치환의 탄소수 6~13의 아릴기를 나타낸다. 또한, 치환기는 서로 결합하여 고리를 형성해도 좋고, 그 고리 구조는 스피로 고리 구조이어도 좋다. 또한, α , β , γ 중 어느 둘이 결합하여 하나의 결합을 형성하여, 카르바졸 골격을 형성한다. 또한, n 은 0~3이다.)

[0023]

또한, 본 발명의 하나는, 하기 일반식 (G3)으로 나타내어지는 벤조옥사졸 유도체이다.

[일반식 3]



[0025]

[0026] (식 중, R^{11} ~ R^{14} 는 수소 원자, 할로겐, 탄소수 1~4의 알킬기, 무치환의 탄소수 6~10의 아릴기 중 어느 것인가를 나타낸다. 또한, α , β , γ 중 어느 둘이 결합하여 하나의 결합을 형성하여, 카르바졸 골격을 형성한다. 또한, n 은 0~3이다.)

[0027]

또한, 상술한 본 발명의 벤조옥사졸 유도체는 발광성을 가지기 때문에, 본 발명의 다른 구성은, 한 쌍의 전극

간에 EL층을 가지는 발광소자이며, EL층에는 상술한 벤조옥사졸 유도체를 포함하는 것을 특징으로 한다.

[0028] 또한, 본 발명의 벤조옥사졸 유도체는 큰 여기 에너지를 가진다. 또한, 정공 및 전자의 쌍방을 수송할 수 있기 때문에, EL층에 포함되는 발광층의 호스트 재료로서 최적이다. 따라서, 본 발명의 다른 구성은, 한 쌍의 전극 간에 EL층을 가지는 발광소자이며, EL층에 포함되는 발광층은 상기에 설명한 벤조옥사졸 유도체와 발광 물질을 포함하는 것을 특징으로 한다.

[0029] 특히, 본 발명의 벤조옥사졸 유도체는 큰 삼중항 여기 에너지를 가지기 때문에, 상기 발광 물질로서는 인광성 화합물이 적합하다. 이와 같은 구성으로 함으로써, 발광 효율·구동 전압이 모두 뛰어난 발광소자를 얻을 수 있다.

[0030] 또한, 본 발명의 다른 구성은, 상기에 기재된 발광소자를 이용하여 형성된 것을 특징으로 하는 발광장치이다. 또한, 발광장치를 이용하여 형성된 것을 특징으로 하는 전자기기이다.

[0031] 또한, 본 발명은 상술한 발광소자를 가지는 발광장치 및 발광장치를 가지는 전자기기도 범주에 포함한다. 본 명세서 중에서의 발광장치란, 화상 표시 디바이스, 발광 디바이스, 혹은 광원(조명장치를 포함)을 가리킨다. 또한, 발광장치에 커넥터, 예를 들면 FPC(Flexible Printed Circuit) 혹은 TAB(Tape Automated Bonding) 테이프 혹은 TCP(Tape Carrier Package)가 장착된 모듈, TAB 테이프나 TCP의 끝에 프린트 배선판이 설치된 모듈, 또는, 발광소자에 COG(Chip On Glass) 방식에 의해 IC(집적회로)가 직접 실장된 모듈도 모두 발광장치에 포함한다.

효과

[0032] 본 발명에 의해, 여기 에너지가 크고, 특히, 삼중항 여기 에너지가 큰 벤조옥사졸 유도체를 얻을 수 있다. 또한, 바이폴라성을 가지는 벤조옥사졸 유도체를 얻을 수 있다. 또한, 본 발명의 벤조옥사졸 유도체를 이용하여 발광소자를 형성함으로써, 전류 효율이 높은 발광소자를 형성할 수 있다.

[0033] 또한, 이 발광소자를 이용함으로써, 소비 전력이 적고, 구동 전압이 낮은 발광장치, 및 전자기기를 얻을 수 있다.

발명의 실시를 위한 구체적인 내용

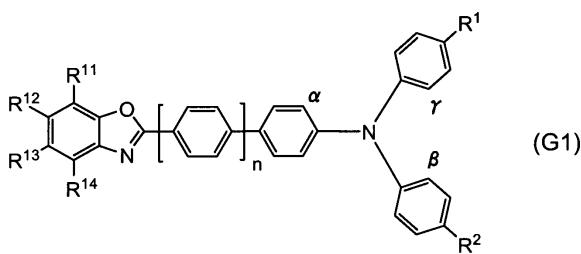
[0034] 이하, 본 발명의 실시 양태에 대하여 도면을 이용하여 상세하게 설명한다. 단, 본 발명은 이하의 설명에 한정 되는 것은 아니고, 본 발명의 취지 및 그 범위로부터 벗어남이 없이 그 형태 및 상세한 사항을 다양하게 변경할 수 있다. 따라서, 본 발명은 이하에 나타내는 실시형태의 기재 내용에 한정하여 해석되는 것은 아니다.

[0035] [실시형태 1]

[0036] 본 실시형태 1에서는 본 발명의 벤조옥사졸 유도체에 대하여 설명한다.

[0037] 본 발명의 벤조옥사졸 유도체는, 일반식 (G1)으로 나타내어지는 벤조옥사졸 유도체이다.

[0038] [일반식 (G1)]

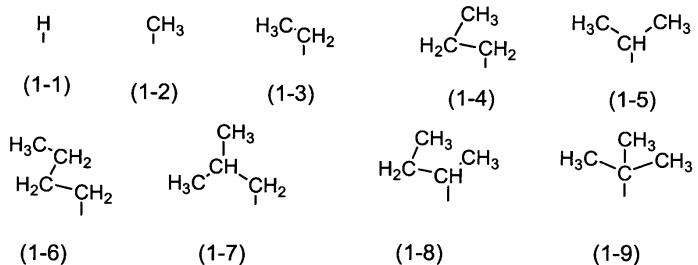


[0039] [0040] (식 중, R¹, R²는 수소 원자, 탄소수 1~4의 알킬기, 치환 또는 무치환의 탄소수 6~13의 아릴기를 나타낸다.

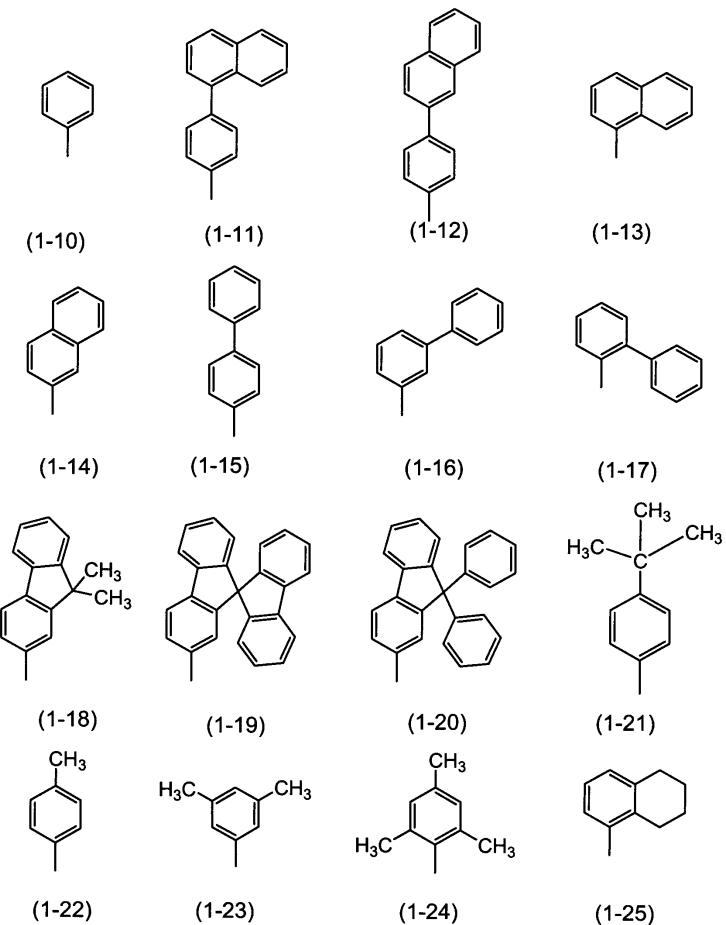
또한, 치환기는 서로 결합하여 고리를 형성해도 좋고, 그 고리 구조는 스피로 고리 구조이어도 좋다. 또한, $R^{11} \sim R^{14}$ 는 수소 원자, 할로겐, 탄소수 1~4의 알킬기, 무치환의 탄소수 6~10의 아릴기 중 어느 것인가를 나타낸다. 또한, α , β , γ 중 어느 둘이 결합하여 하나의 결합을 형성하여, 카르바졸 골격을 형성한다. 또한, n은 0~3이다.)

[0041] 또한, 일반식 (G1)에서의 R^1 , R^2 의 구체적인 구조로서는, 구조식 (1-1)~구조식 (1-25)로 나타내는 치환기를 들 수 있다.

[0042] [구조식 (1-1)~구조식 (1-25)]



[0043]

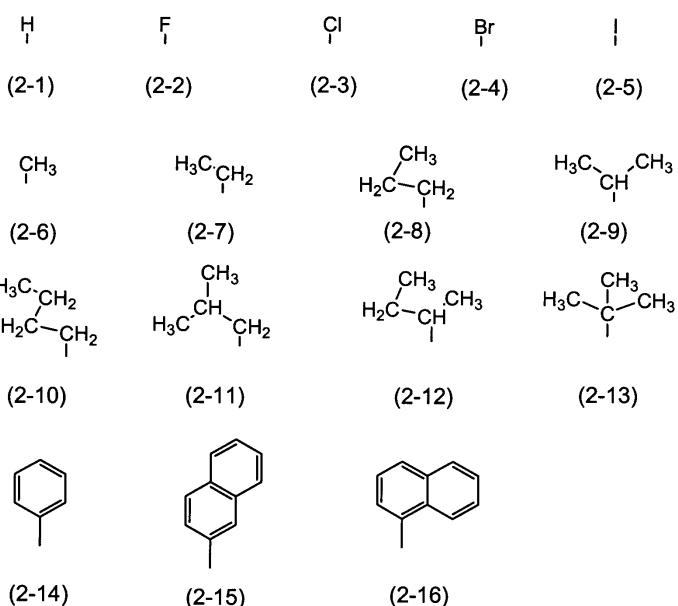


[0044]

[0045] 또한, 일반식 (G1)에서의 $R^{11} \sim R^{14}$ 의 구체적인 구조로서는, 구조식 (2-1)~구조식 (2-16)으로 나타내는 치환기를 들 수 있다.

[0046]

[구조식(2-1)~(2-16)]



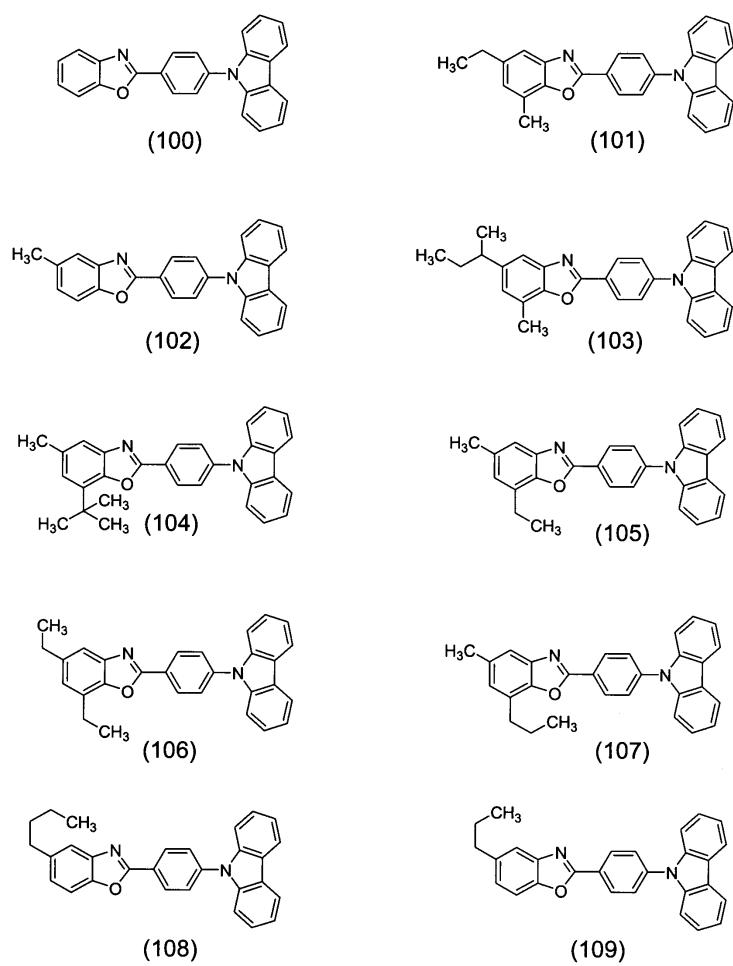
[0047]

[0048]

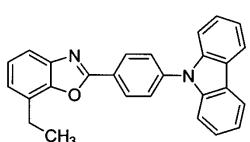
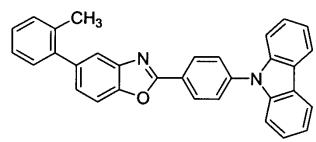
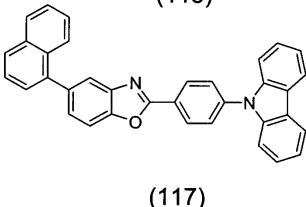
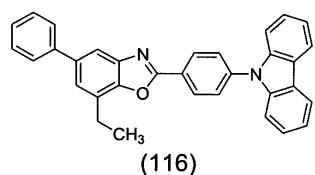
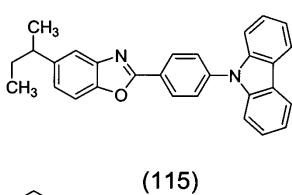
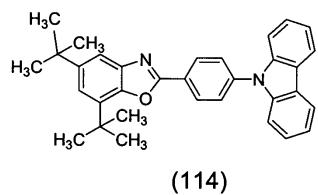
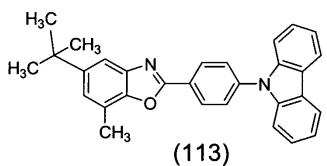
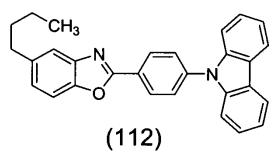
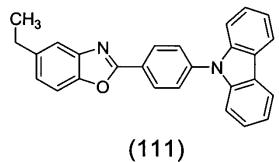
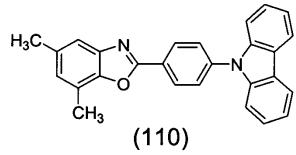
일반식 (1)로 나타내는 본 발명의 벤조옥사졸 유도체의 구체적인 예로서는, 구조식 (100)~구조식 (433)으로 나타내는 벤조옥사졸 유도체를 들 수 있다. 단, 본 발명은 이것들에 한정되는 것은 아니다.

[0049]

[구조식 (100)~구조식 (433)]



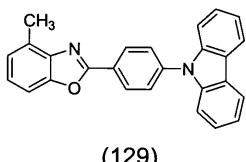
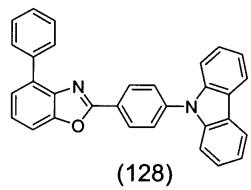
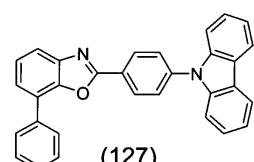
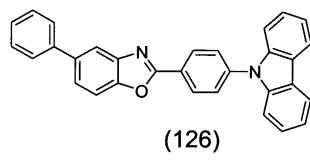
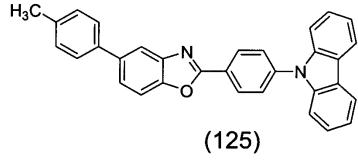
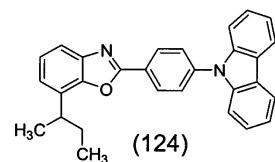
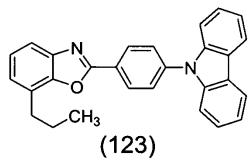
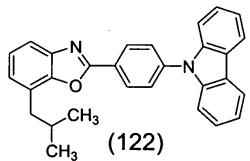
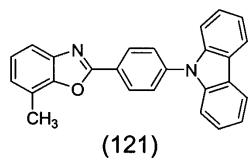
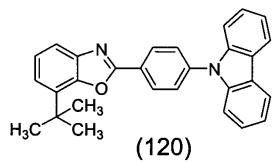
[0050]



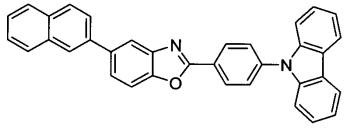
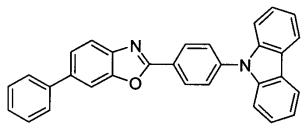
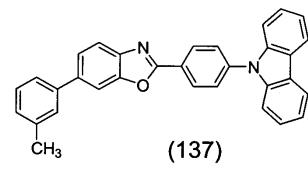
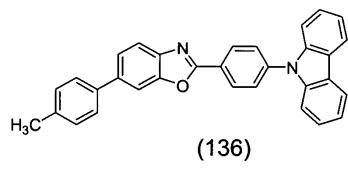
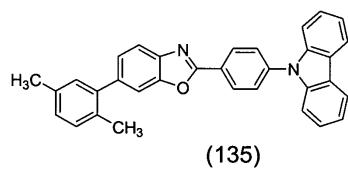
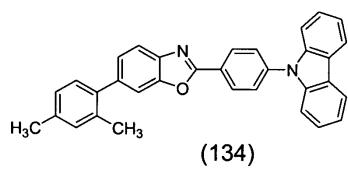
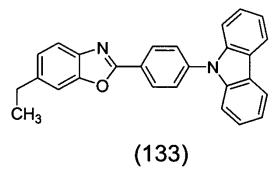
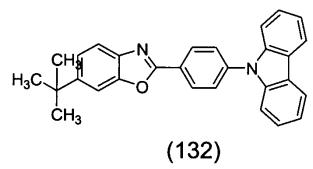
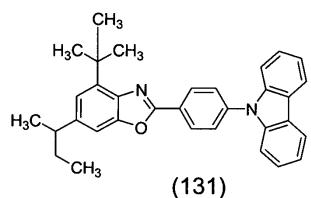
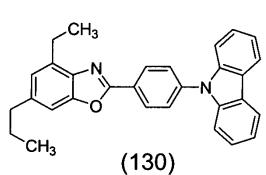
(118)

(119)

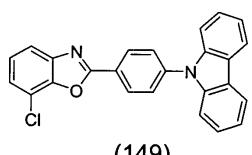
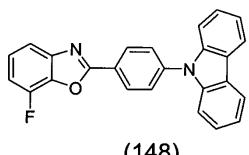
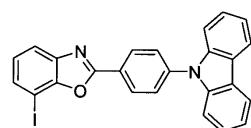
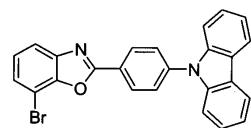
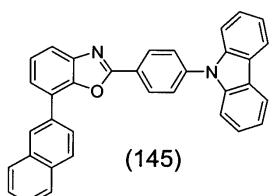
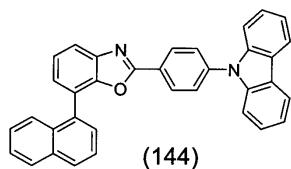
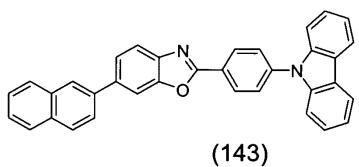
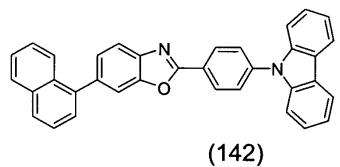
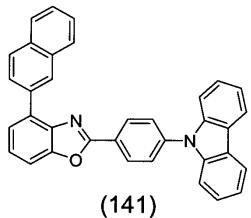
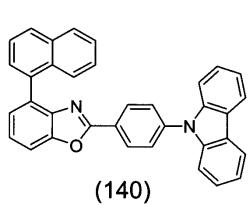
[0051]



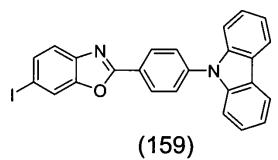
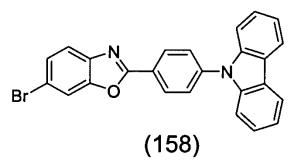
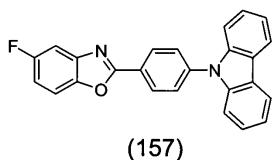
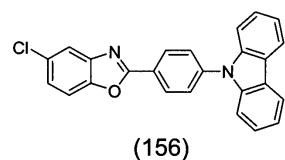
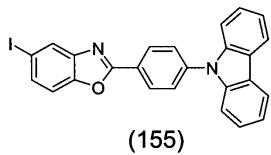
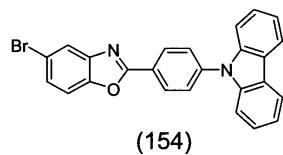
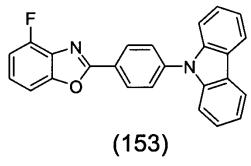
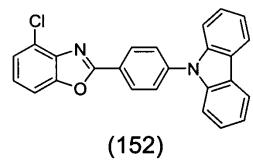
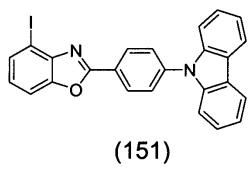
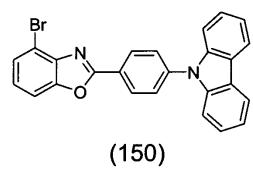
[0052]



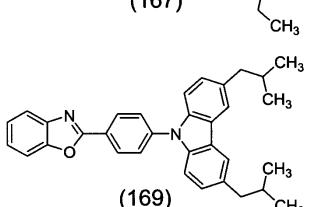
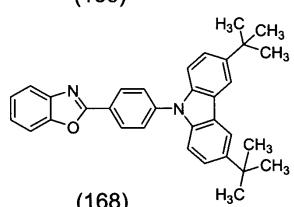
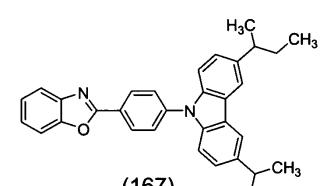
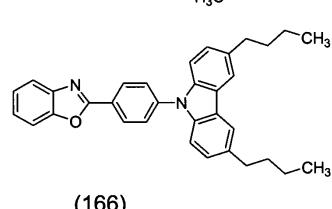
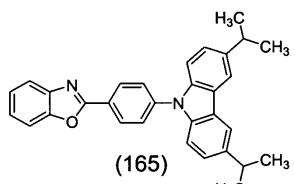
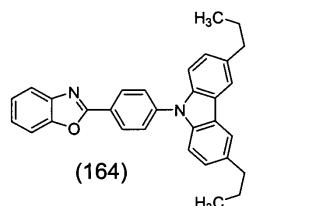
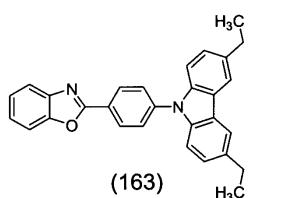
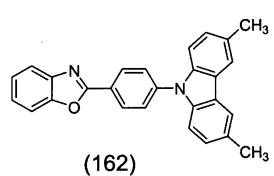
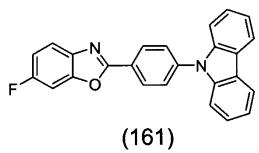
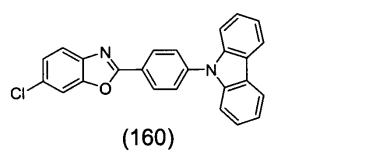
[0053]



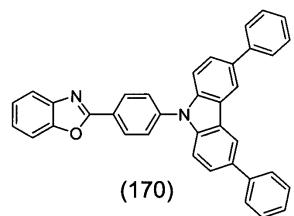
[0054]



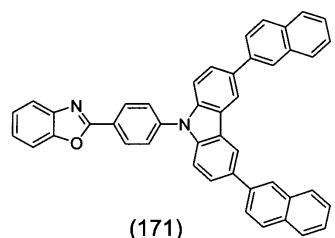
[0055]



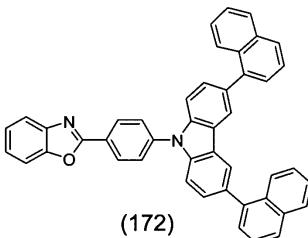
[0056]



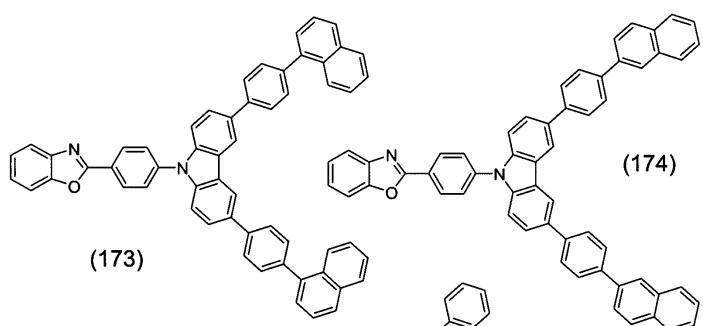
(170)



(171)

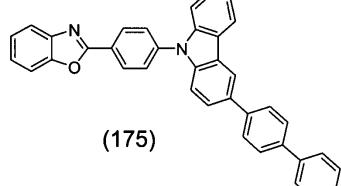


(172)



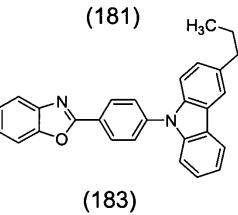
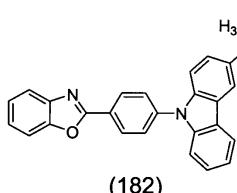
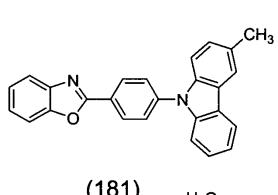
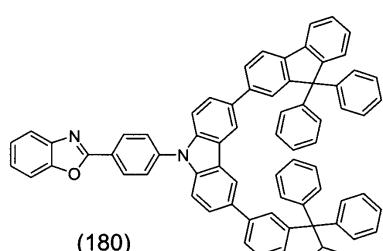
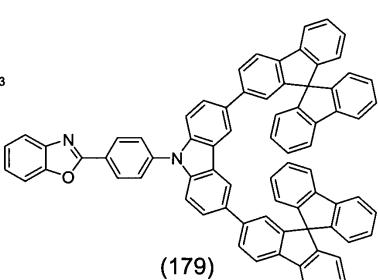
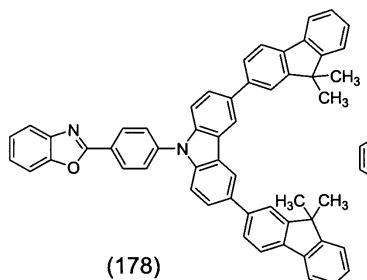
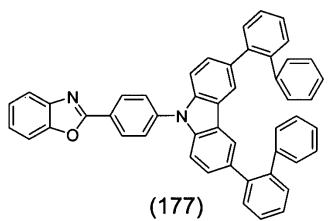
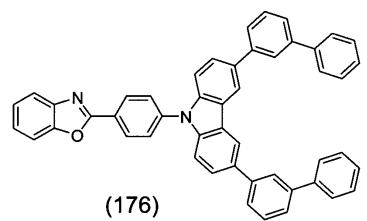
(173)

(174)

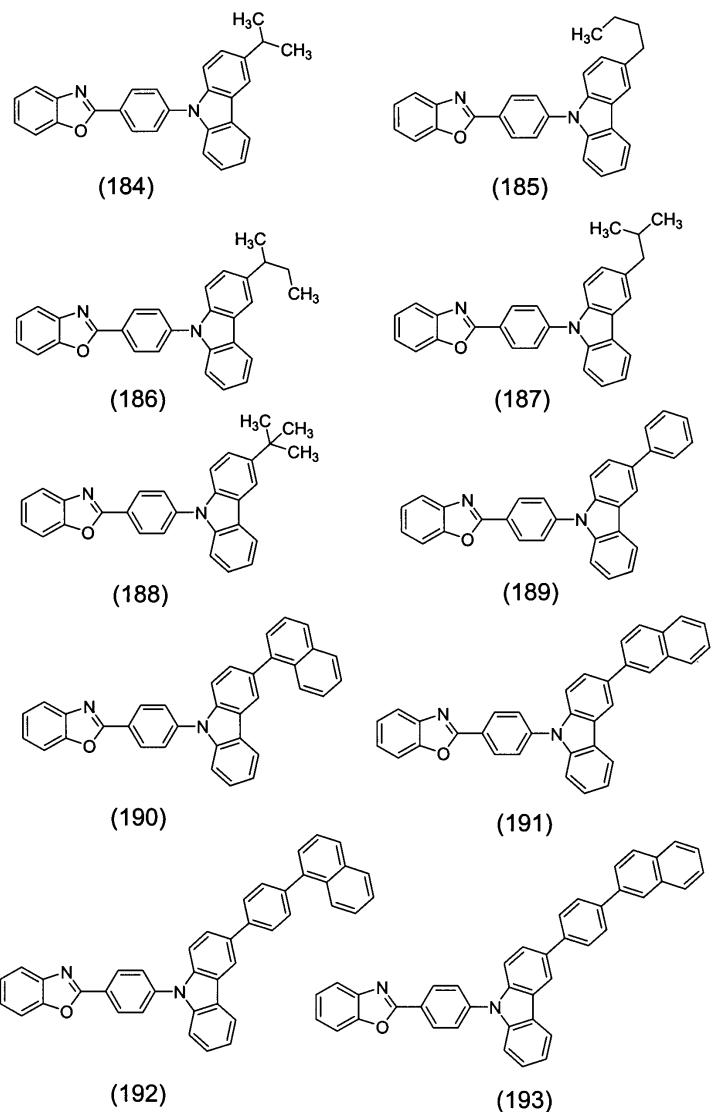


(175)

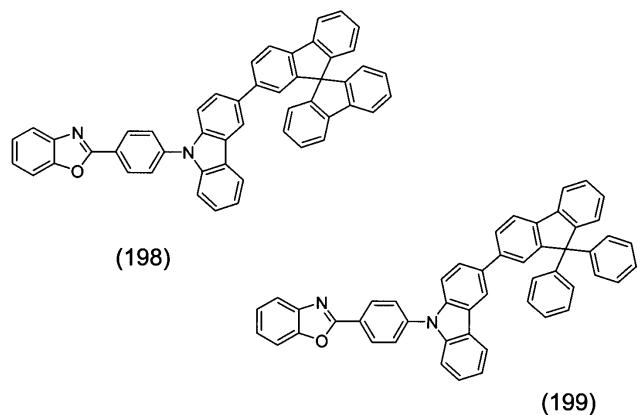
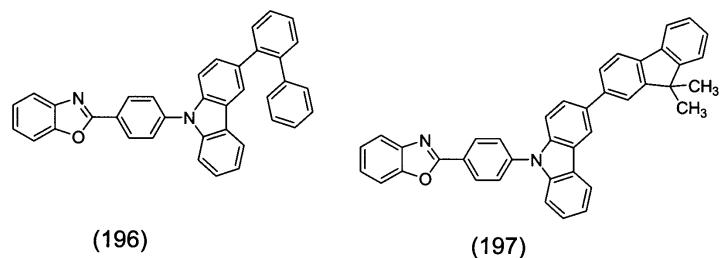
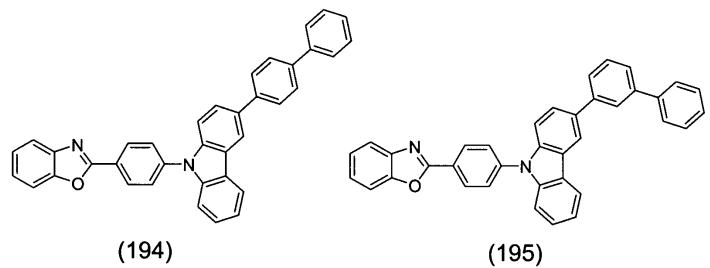
[0057]



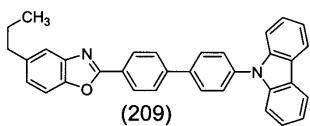
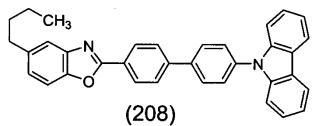
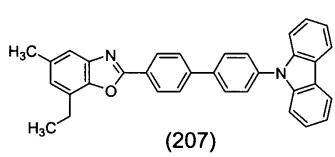
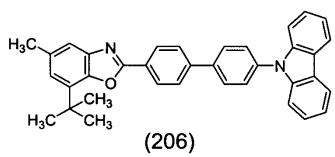
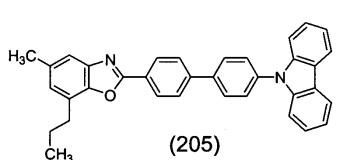
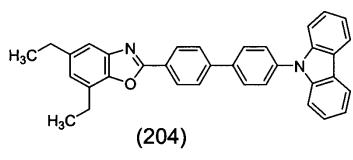
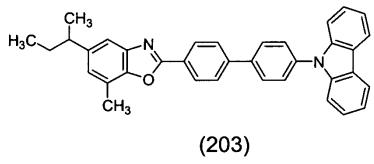
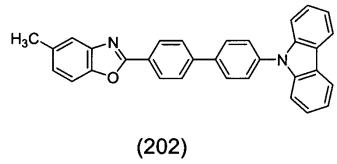
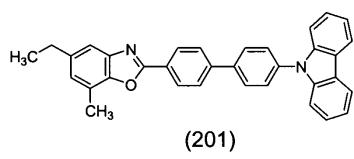
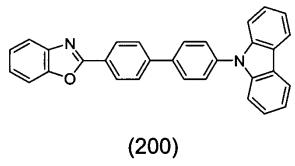
[0058]



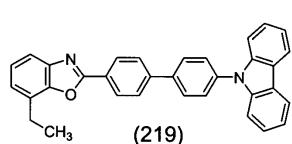
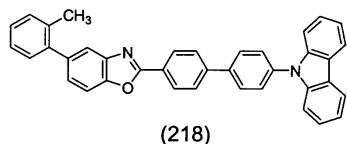
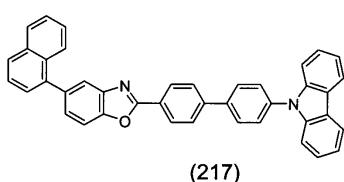
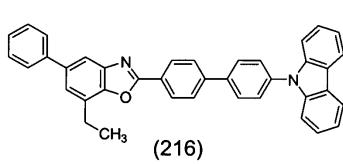
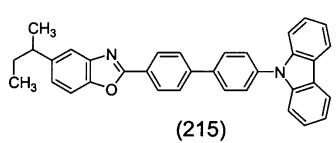
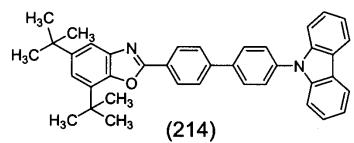
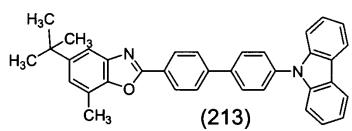
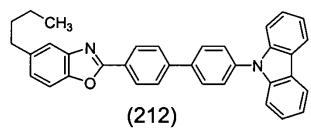
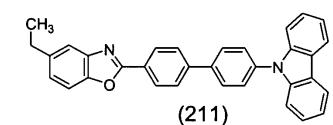
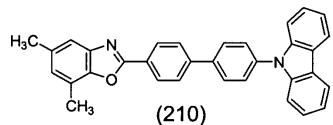
[0059]



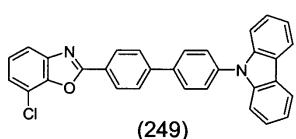
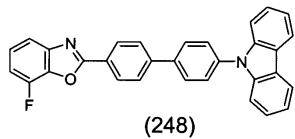
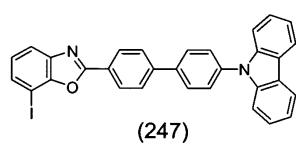
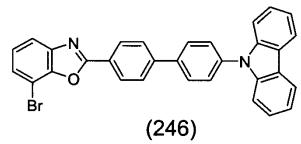
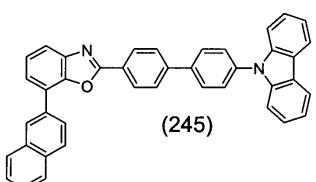
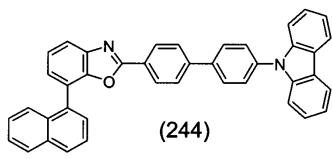
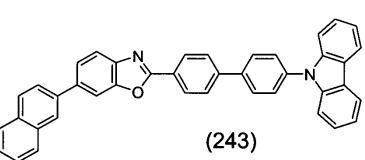
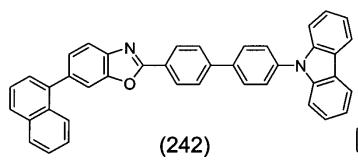
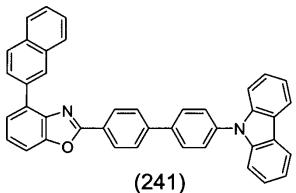
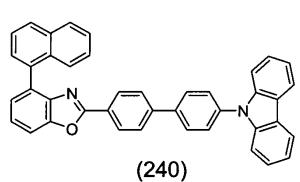
[0060]



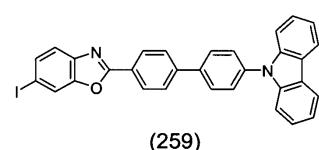
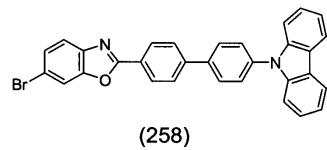
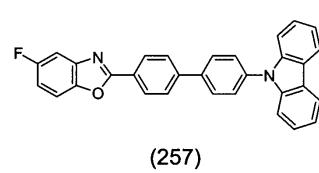
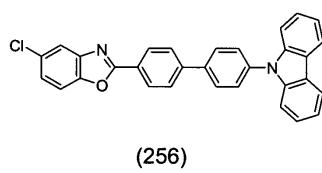
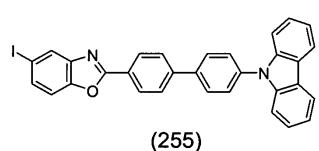
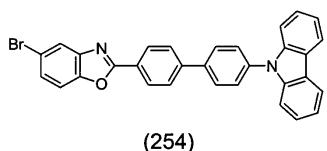
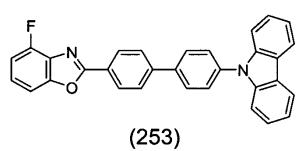
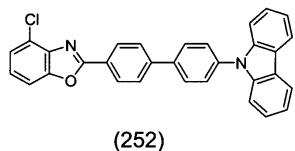
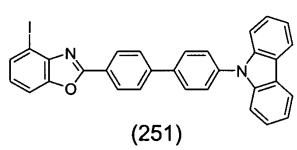
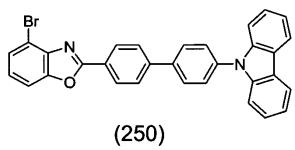
[0061]



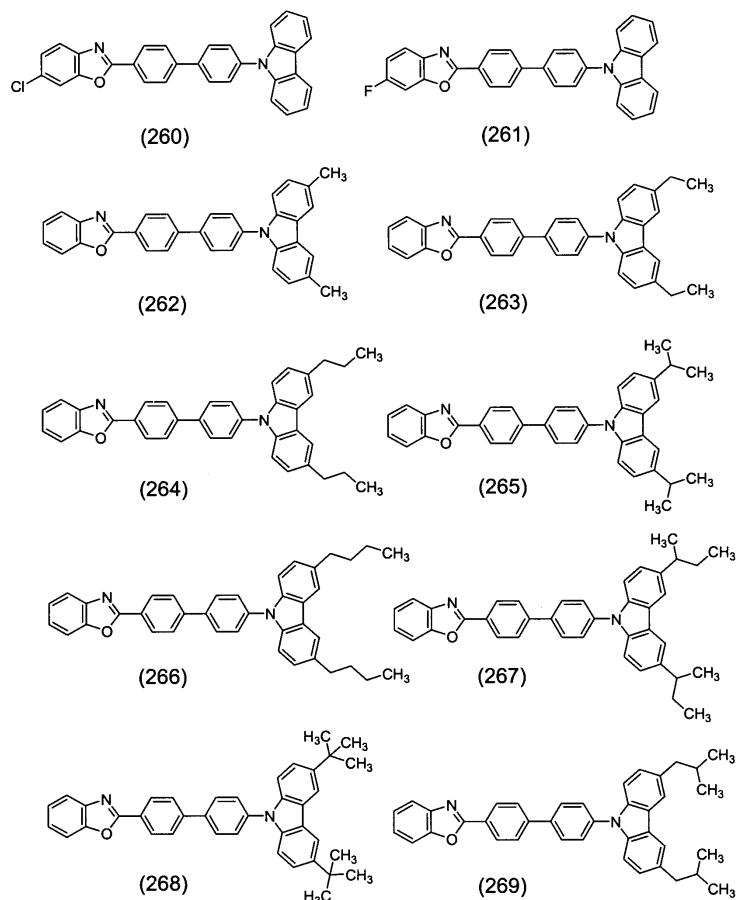
[0062]



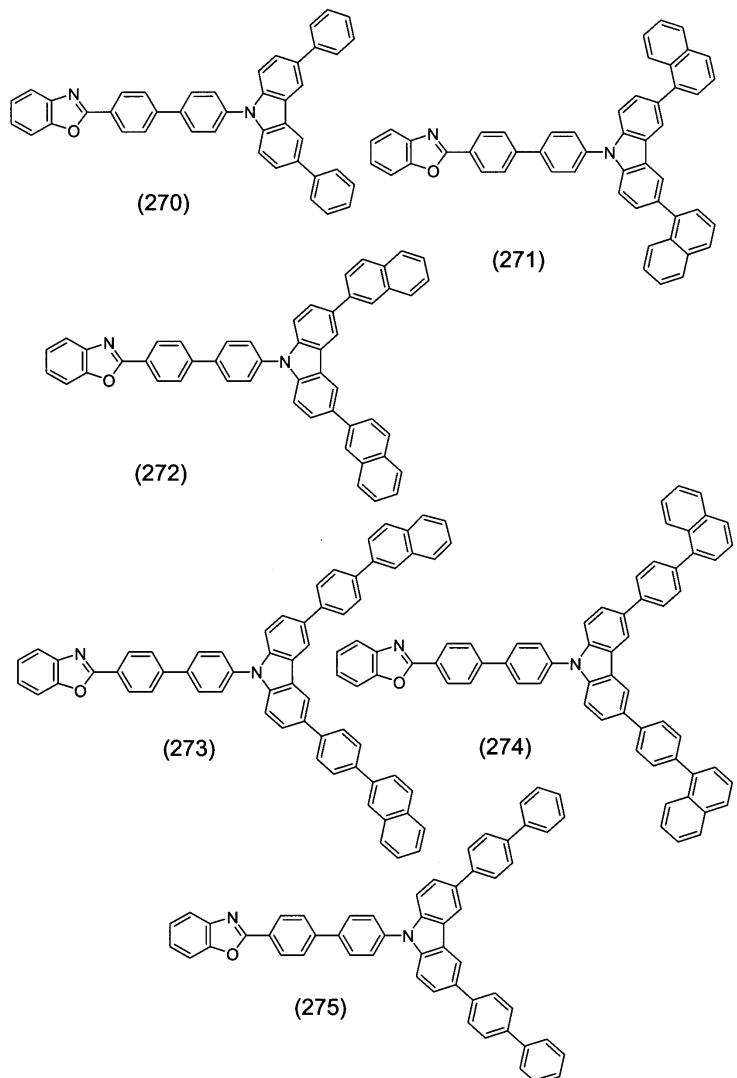
[0065]



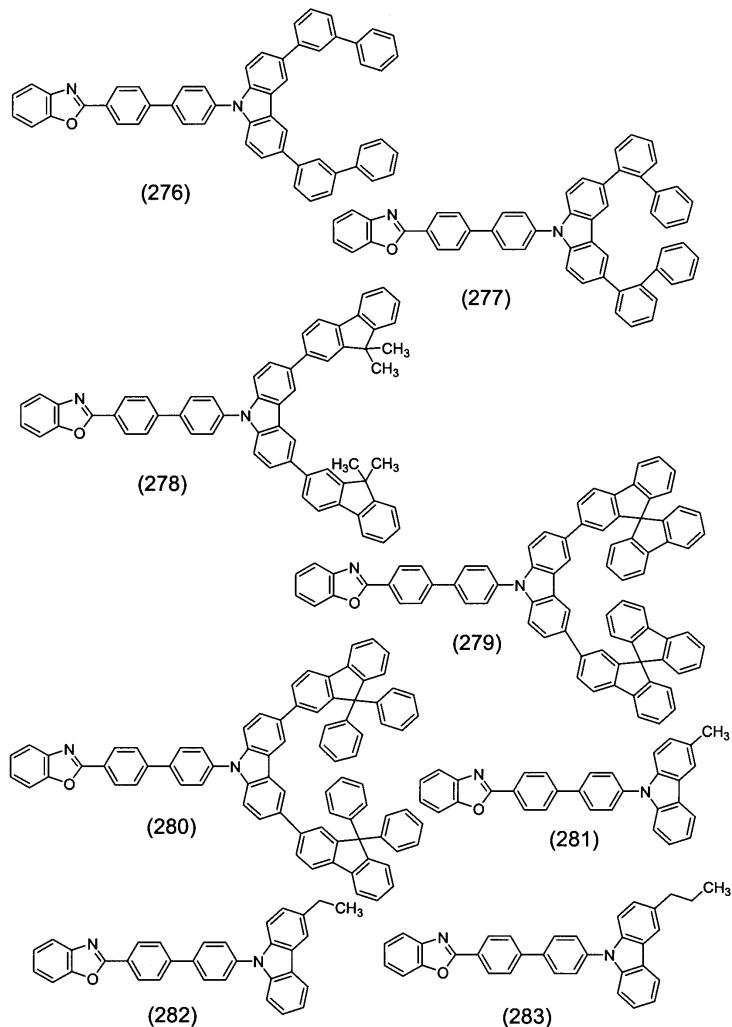
[0066]



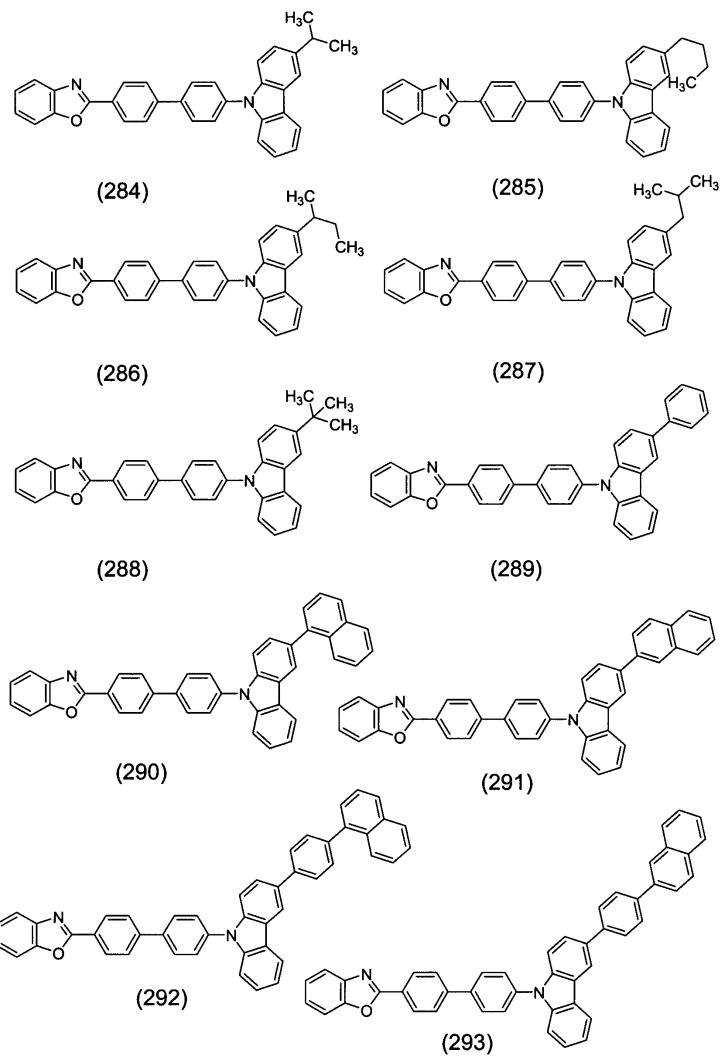
[0067]



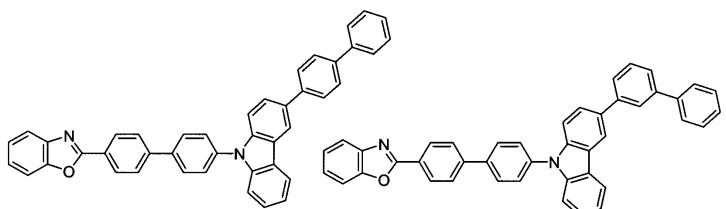
[0068]



[0069]

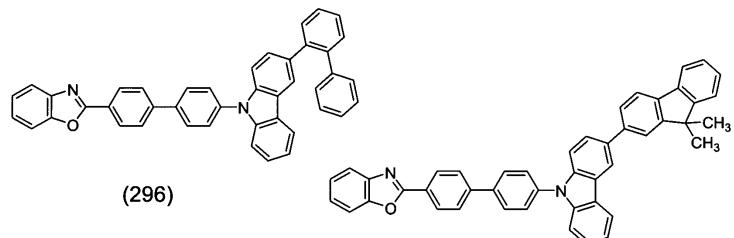


[0070]



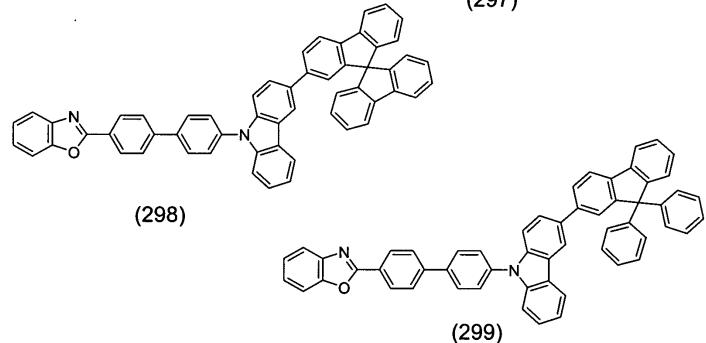
(294)

(295)



(296)

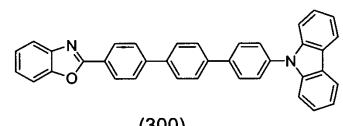
(297)



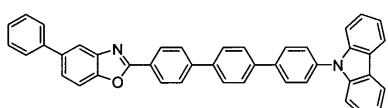
(298)

(299)

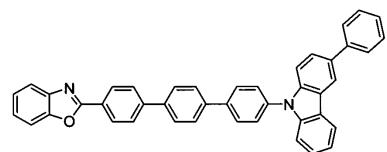
[0071]



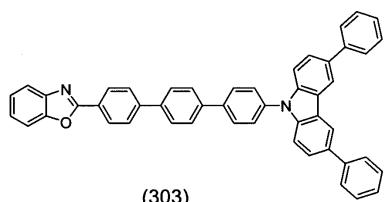
(300)



(301)

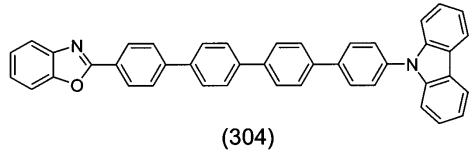


(302)

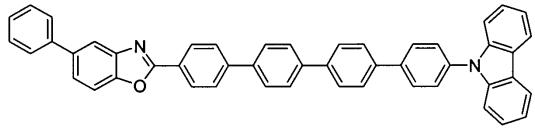


(303)

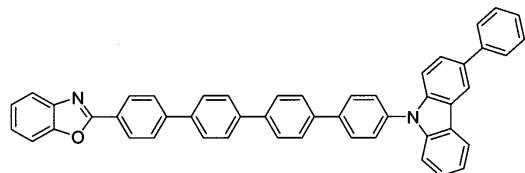
[0072]



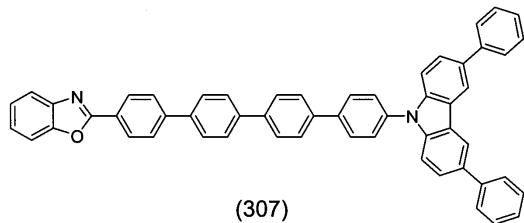
(304)



(305)

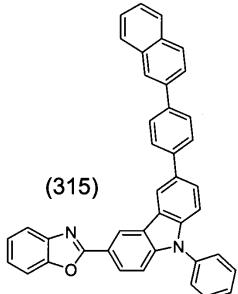
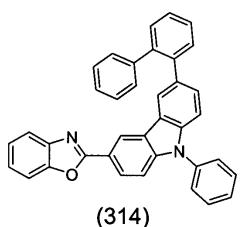
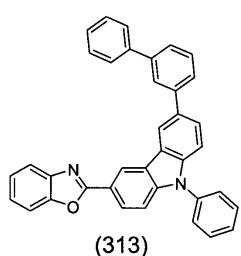
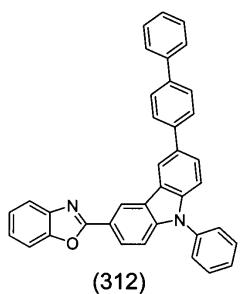
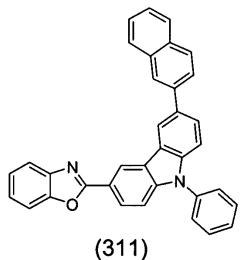
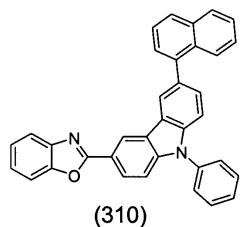
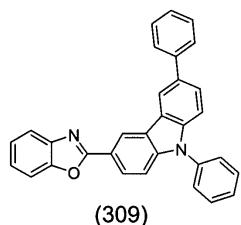
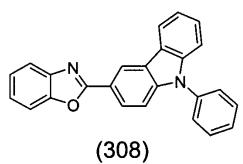


(306)

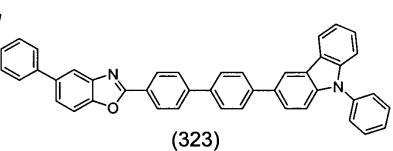
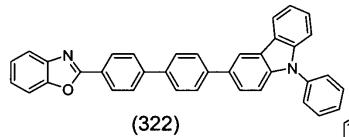
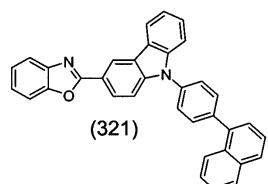
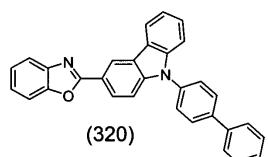
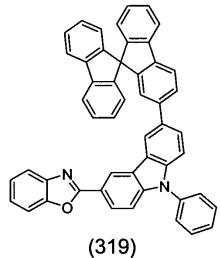
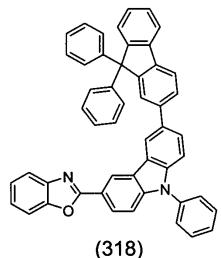
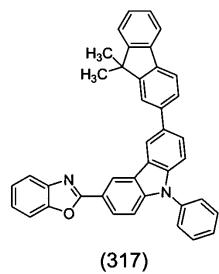
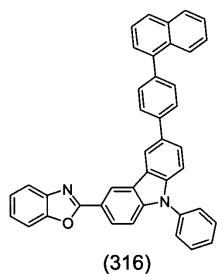


(307)

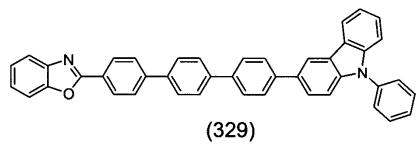
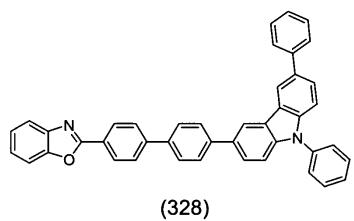
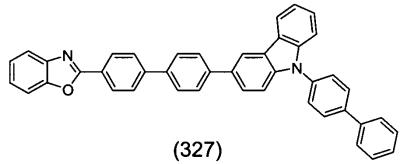
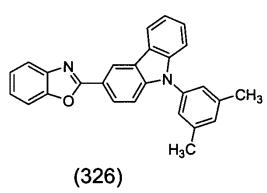
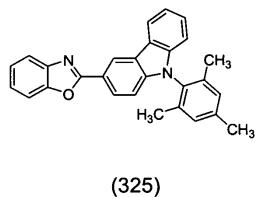
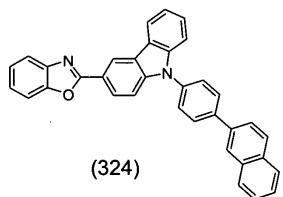
[0073]



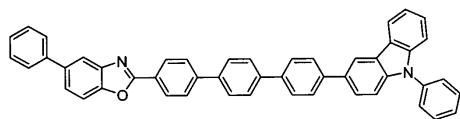
[0074]



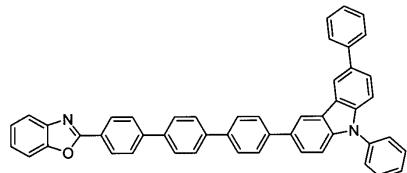
[0075]



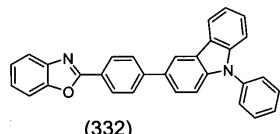
[0076]



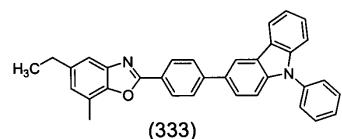
(330)



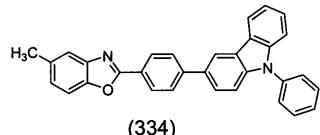
(331)



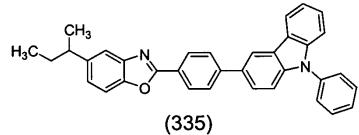
(332)



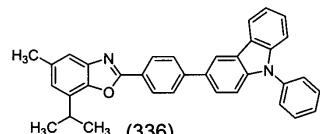
(333)



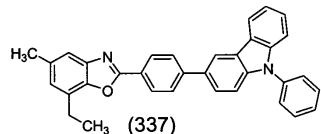
(334)



(335)

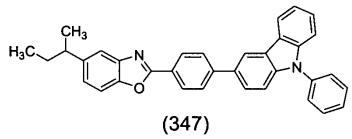
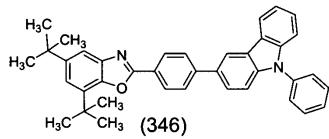
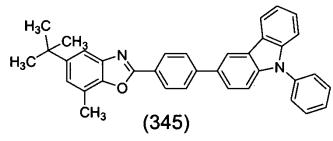
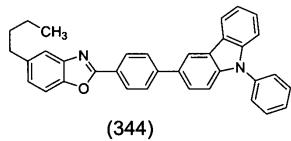
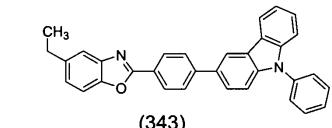
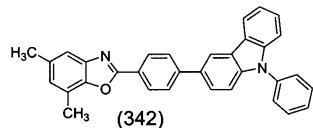
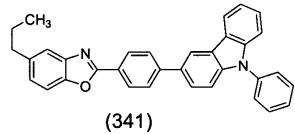
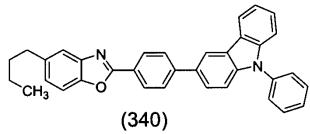
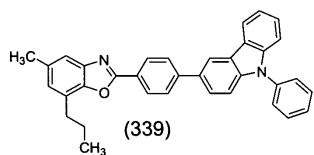
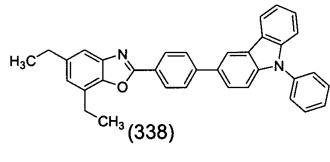


(336)

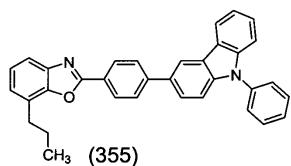
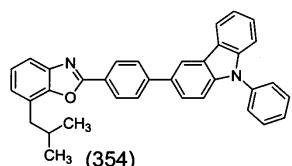
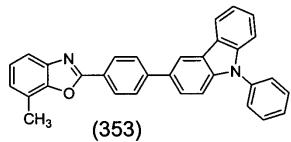
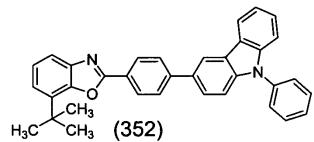
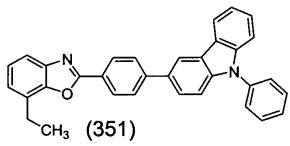
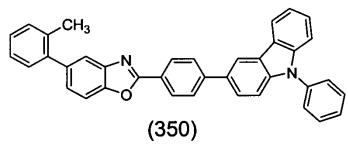
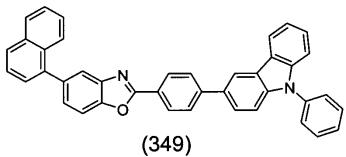
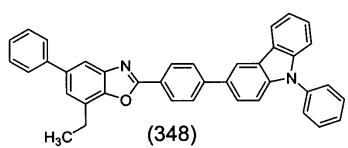


(337)

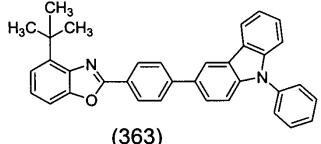
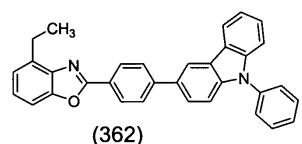
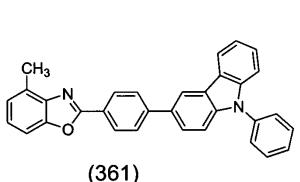
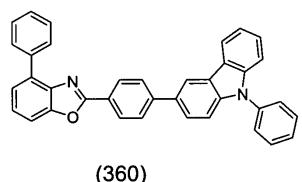
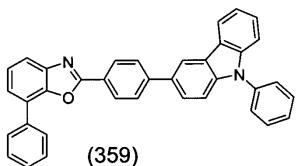
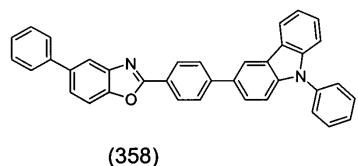
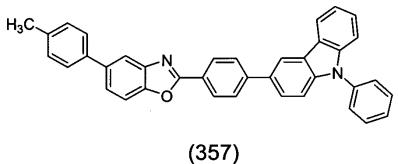
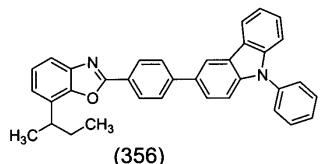
[0077]



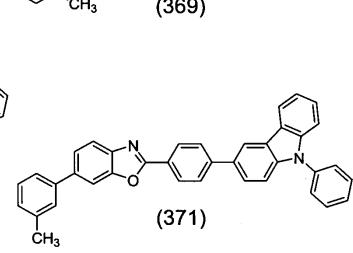
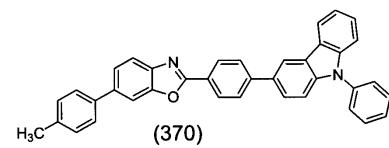
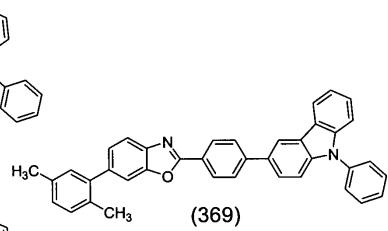
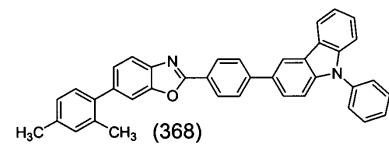
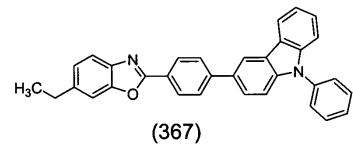
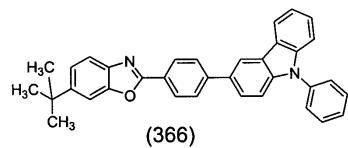
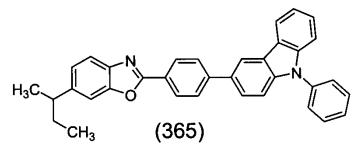
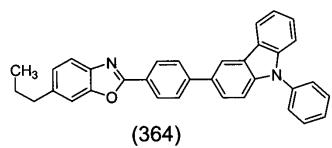
[0078]



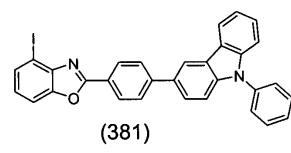
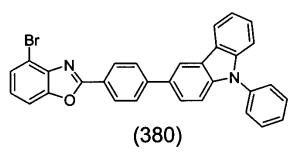
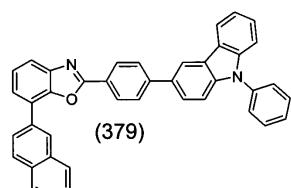
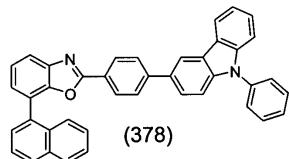
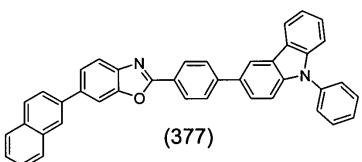
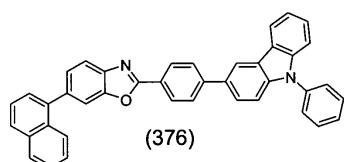
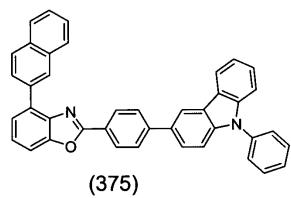
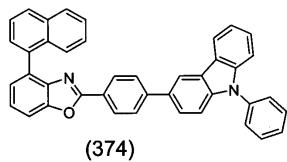
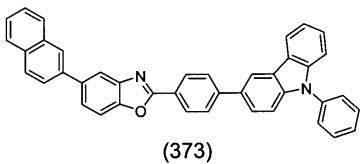
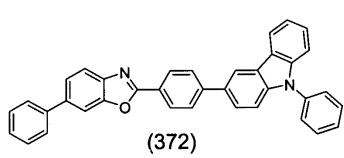
[0079]



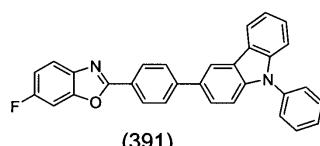
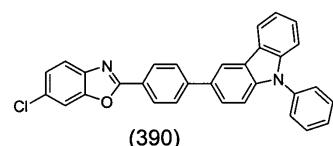
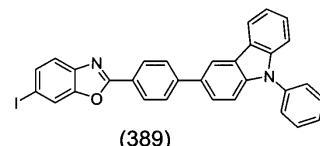
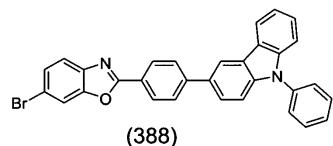
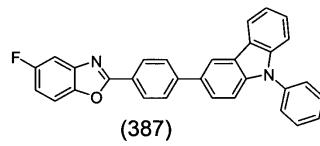
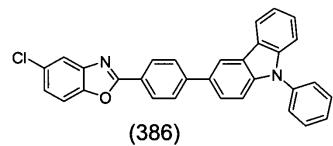
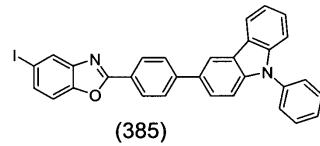
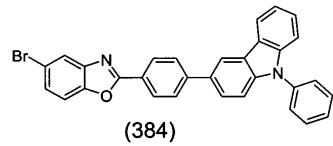
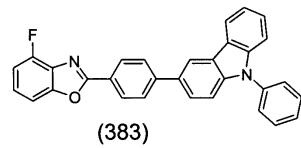
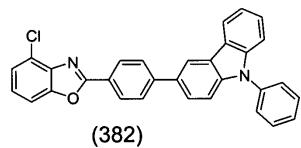
[0080]



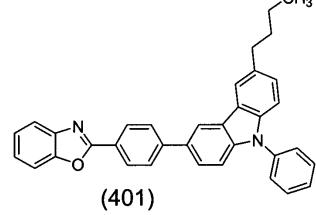
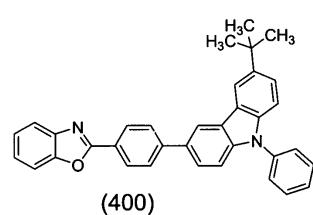
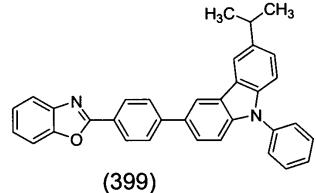
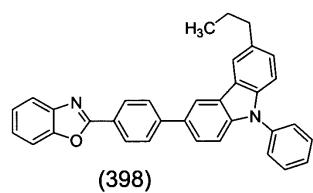
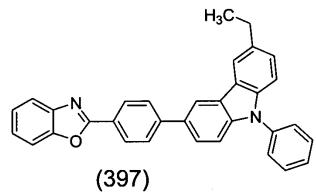
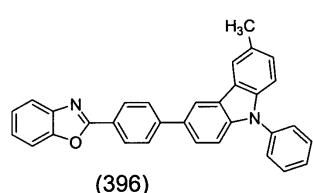
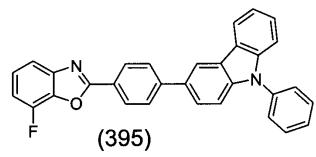
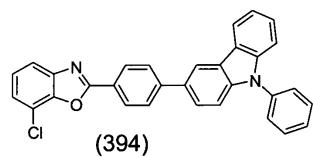
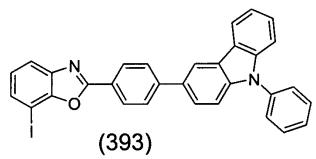
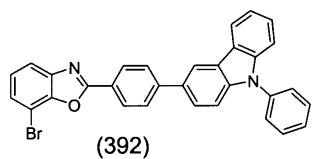
[0081]



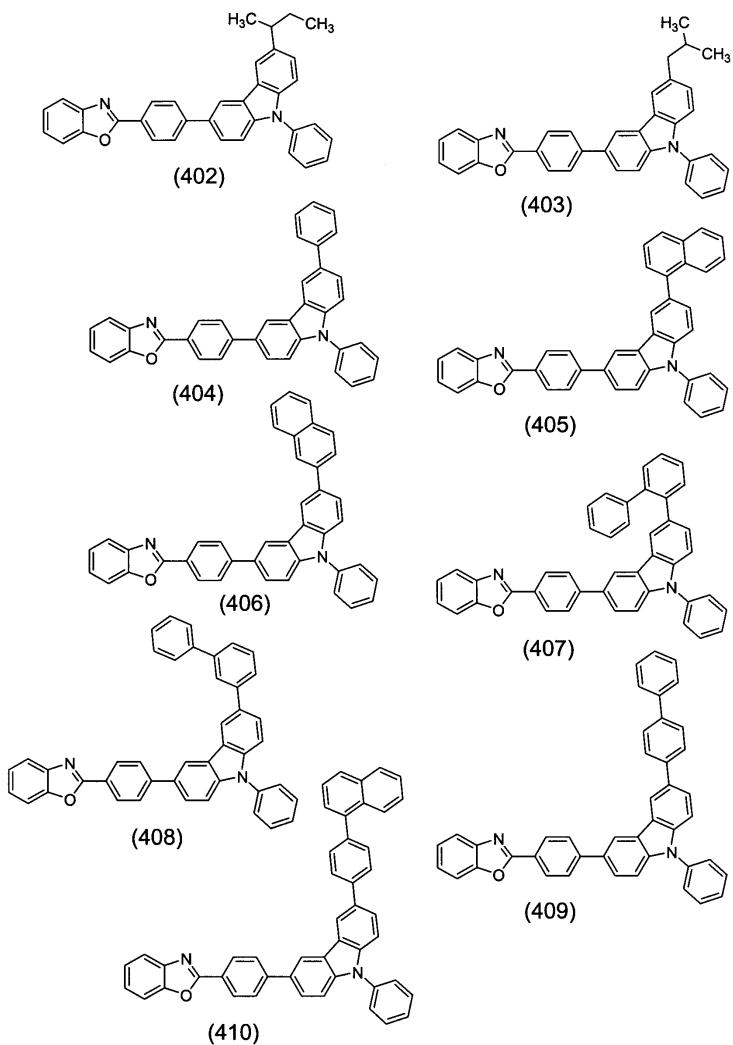
[0082]



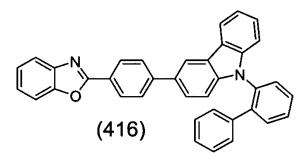
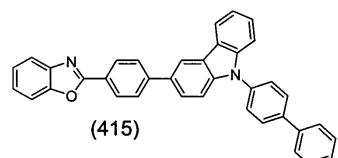
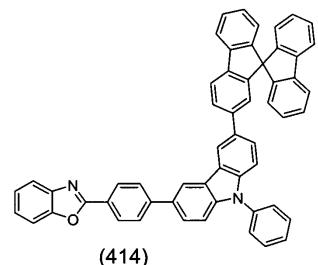
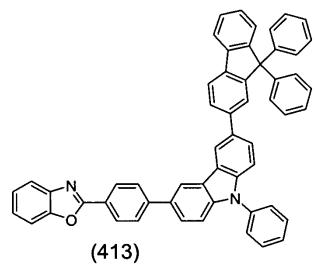
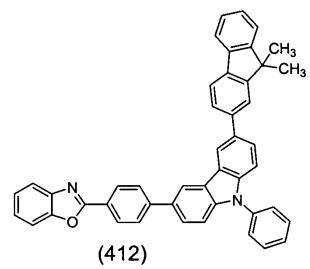
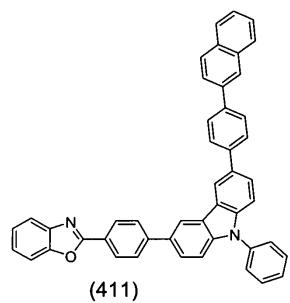
[0083]



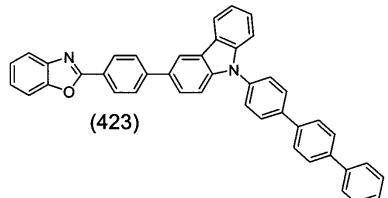
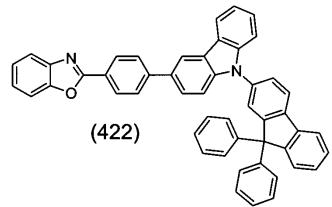
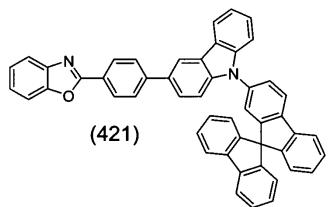
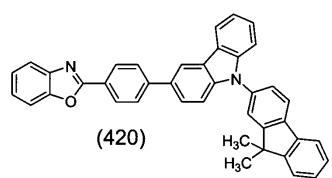
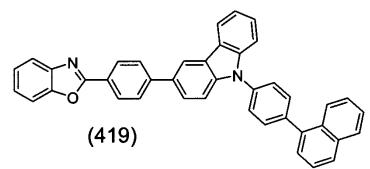
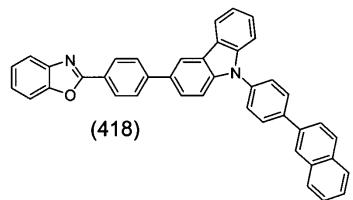
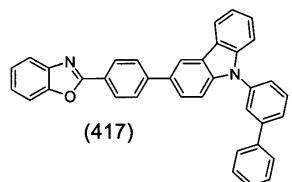
[0084]



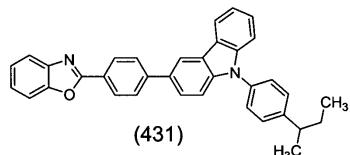
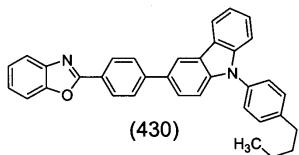
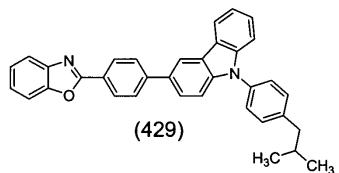
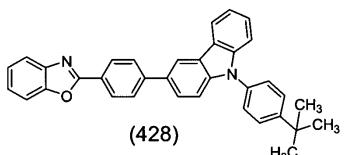
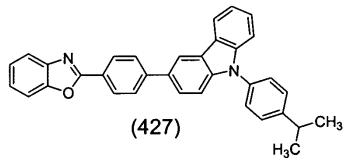
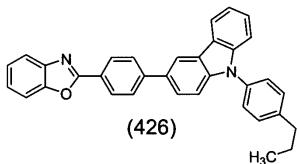
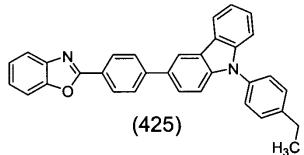
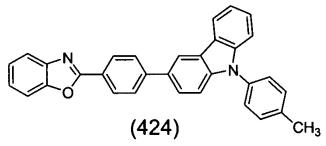
[0085]



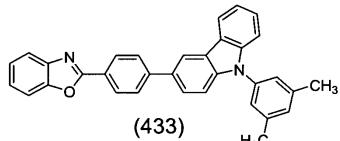
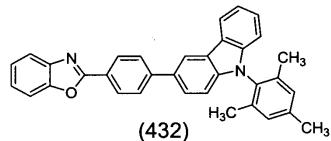
[0086]



[0087]



[0088]

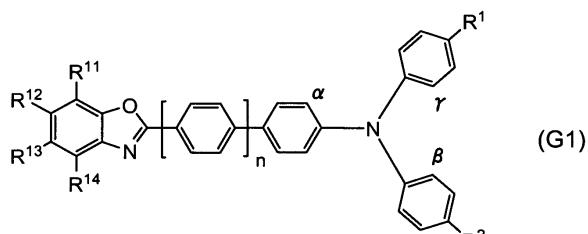


[0089]

본 발명의 벤조옥사졸 유도체의 합성 방법으로서는, 다양한 반응의 적용이 가능하다. 예를 들면, 이하에 나타내는 합성 반응을 행함으로써, 하기 일반식 (G1)으로 나타내어지는 본 발명의 벤조옥사졸 유도체를 합성할 수 있다. 또한, 본 발명의 벤조옥사졸 유도체의 합성 방법은 이하의 합성 방법에 한정되는 것은 아니다.

[0091]

[일반식 G1]



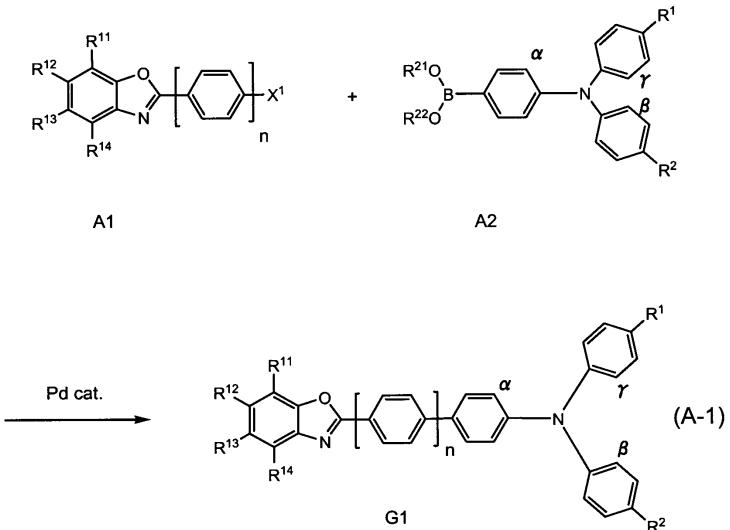
[0092]

<일반식 (G1)으로 나타내어지는 벤조옥사졸 유도체의 합성 방법 1>

일반식 (G1)으로 나타내어지는 벤조옥사졸 화합물은 합성 스킴 (A-1)과 같이 하여 합성할 수 있다. 즉, 할로겐화한 벤조옥사졸 화합물(화합물 A1)과 카르바졸 화합물의 보론산 또는, 9H-카르바졸 화합물이 유기 봉소로 치환

된 화합물(화합물 A2)을, 팔라듐 촉매를 이용한 스즈키·미야우라 반응에 의해 커플링시켜, 본 발명의 벤조옥사졸 화합물(일반식 (G1))을 얻을 수 있다.

[합성 스킴 (A-1)]



합성 스킴 (A-1)에서, X^1 은 할로젠 또는 트리플레이트기를 나타내고, 할로젠으로서는, 요오드와 브롬과 염소를 들 수 있다. 또한, $R^{11} \sim R^{14}$ 는 수소 원자, 할로젠, 탄소수 1~4의 알킬기, 무치환의 탄소수 6~10의 아릴기 중 어느 것인가를 나타낸다. 또한, n 은 0~3이다. 또한, R^1 , R^2 는 수소 원자, 탄소수 1~4의 알킬기, 치환 또는 무치환의 탄소수 6~13의 아릴기를 나타낸다. 또한, 치환기는 서로 결합하여 고리를 형성해도 좋고, 그 고리 구조는 스페로 고리 구조이어도 좋다. 또한, R^{21} , R^{22} 는 수소 원자, 탄소수 1~4의 알킬기이며, R^{21} 과 R^{22} 는 서로 결합하여 고리를 형성하여도 좋다. 또한, α , β , γ 중 어느 둘이 결합하여 하나의 결합을 형성하여, 카르바졸 골격을 형성한다.

[0098]

합성 스Kim (A-1)에서, 이용할 수 있는 팔라듐 촉매로서는, 초산팔라듐(II), 테트라카이드(트리페닐포스핀)팔라듐(0) 등을 들 수 있다. 또한, 합성 스Kim (A-1)에서, 이용할 수 있는 팔라듐 촉매의 배위자로서는, 트리(오르토-톨릴)포스핀이나, 트리페닐포스핀이나, 트리시클로헥실포스핀 등을 들 수 있다.

[0099]

합성 스킴 (A-1)에서, 이용할 수 있는 염기로서는, 나트륨 tert-부톡시드 등의 유기 염기나, 탄산칼륨 등의 무기 염기 등을 들 수 있다.

[0100]

또한, 합성 스Kim (A-1)에서, 이용할 수 있는 용매로서는, 톨루엔과 물의 혼합 용매, 톨루엔과 에탄올 등의 알코올과 물의 혼합 용매, 크실렌과 물의 혼합 용매, 크실렌과 에탄올 등의 알코올과 물의 혼합 용매, 벤젠과 물의 혼합 용매, 벤젠과 에탄올 등의 알코올과 물의 혼합 용매, 1,2-디메톡시에탄 등의 에테르류와 물의 혼합 용매 등을 들 수 있다. 또한, 톨루엔과 물, 또는, 톨루엔과 에탄올과 물의 혼합 용매가 보다 바람직하다.

[0101]

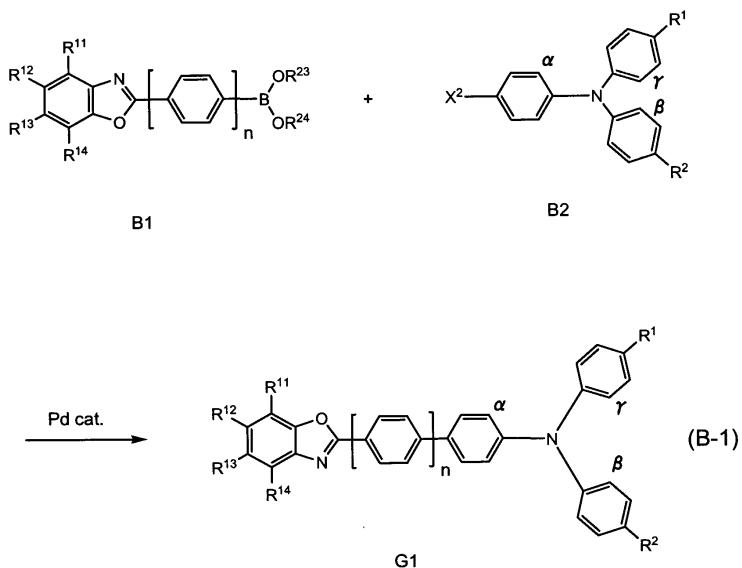
<일반식 (G1)으로 나타내어지는 화합물의 합성 방법 2>

[0102]

일반식 (G1)으로 나타내어지는 벤조옥사졸 화합물은 합성 스킵 (B-1)과 같이 합성할 수도 있다. 즉, 벤조옥사졸 화합물의 보론산 또는, 벤조옥사졸 화합물이 유기 봉소로 치환된 화합물(화합물 B1)과 할로겐화한 9H-카르바졸 화합물(화합물 B2)을, 팔라듐 촉매를 이용한 스즈키 · 미야우라 반응에 의해 커플링시켜, 본 발명의 벤조옥사졸 화합물(일반식 (G1))을 얻을 수도 있다.

[0103]

[합성 스Kim (B-1)]



[0104]

[0105] 합성 스Kim (B-1)에서, X^2 는 할로겐 또는 트리플레이트기를 나타내고, 할로겐으로서는, 요오드와 브롬과 염소를 들 수 있다. 또한, R^1 , R^2 는 수소 원자, 탄소수 1~4의 알킬기, 치환 또는 무치환의 탄소수 6~13의 아릴기를 나타낸다. 또한, 치환기는 서로 결합하여 고리를 형성해도 좋고, 그 고리 구조는 스피로 고리 구조이어도 좋다. 또한, α , β , γ 중 어느 둘이 결합하여 하나의 결합을 형성하여, 카르바졸 골격을 형성한다. 또한, $R^{11} \sim R^{14}$ 는 수소 원자, 할로겐, 탄소수 1~4의 알킬기, 무치환의 탄소수 6~10의 아릴기 중 어느 것인가를 나타낸다. 또한, R^{23} , R^{24} 는 수소 원자, 탄소수 1~4의 알킬기이며, R^{23} 과 R^{24} 는 서로 결합하여 고리를 형성하여도 좋다. 또한, n 은 0~3이다.

[0106]

합성 스Kim (B-1)에서, 이용할 수 있는 팔라듐 촉매로서는, 초산팔라듐(II), 테트라카이스(트리페닐포스핀)팔라듐(0) 등을 들 수 있다. 또한, 합성 스Kim (B-1)에서, 이용할 수 있는 팔라듐 촉매의 배위자로서는, 트리(오르토-톨릴)포스핀이나, 트리페닐포스핀이나, 트리시클로헥실포스핀 등을 들 수 있다.

[0107]

합성 스Kim (B-1)에서, 이용할 수 있는 염기로서는, 나트륨 tert-부톡시드 등의 유기 염기나, 탄산칼륨 등의 무기 염기 등을 들 수 있다.

[0108]

또한, 합성 스Kim (B-1)에서, 이용할 수 있는 용매로서는, 톨루엔과 물의 혼합 용매, 톨루엔과 에탄올 등의 알코올과 물의 혼합 용매, 크실렌과 물의 혼합 용매, 크실렌과 에탄올 등의 알코올과 물의 혼합 용매, 벤젠과 물의 혼합 용매, 벤젠과 에탄올 등의 알코올과 물의 혼합 용매, 1,2-디메톡시에탄 등의 에테르류와 물의 혼합 용매 등을 들 수 있다. 또한, 톨루엔과 물, 또는, 톨루엔과 에탄올과 물의 혼합 용매가 보다 바람직하다.

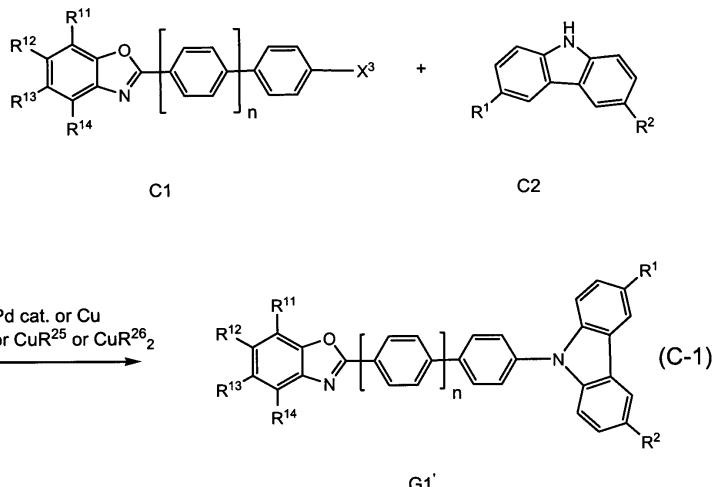
[0109]

<일반식 (G1')으로 나타내어지는 화합물의 합성 방법 3>

[0110]

일반식 (G1')로 나타내어지는 벤조옥사졸 화합물은 합성 스Kim (C-1)과 같이 하여 합성할 수 있다. 즉, 할로겐화한 벤조옥사졸 화합물(화합물 C1)과 9H-카르바졸 화합물(화합물 C2)을 염기 존재하에서 금속 촉매, 금속, 또는, 금속 화합물에 의해 커플링시킴으로써, 벤조옥사졸 화합물(일반식 (G1'))을 얻을 수 있다.

[0111] [합성 스Kim (C-1)]



[0112]

[0113] 합성 스Kim (C-1)에서, X^3 는 할로겐 또는 트리플레이트기를 나타내고, 할로겐으로서는, 요오드와 브롬을 들 수 있다. 또한, $R^{11} \sim R^{14}$ 는 수소 원자, 할로겐, 탄소수 1~4의 알킬기, 무치환의 탄소수 6~10의 아릴기 중 어느 것인가를 나타낸다. 또한, n 은 0~3이다. 또한, R^1, R^2 는 수소 원자, 탄소수 1~4의 알킬기, 치환 또는 무치환의 탄소수 6~13의 아릴기를 나타낸다. 또한, 치환기는 서로 결합하여 고리를 형성해도 좋고, 그 고리 구조는 스피로 고리 구조이어도 좋다.

[0114]

합성 스Kim (C-1)에서, 하트위그-부흐발트(Hartwig-Buchwald) 반응을 행하는 경우, 이용할 수 있는 팔라듐 촉매로서는, 비스(디벤질리덴아세톤)팔라듐(0), 초산팔라듐(II) 등을 들 수 있다. 또한, 합성 스Kim (C-1)에서, 이용할 수 있는 팔라듐 촉매의 배위자로서는, 트리(tert-부틸)포스핀이나, 트리(n-헥실)포스핀이나, 트리시클로헥실포스핀 등을 들 수 있다.

[0115]

합성 스Kim (C-1)에서, 이용할 수 있는 염기로서는, 나트륨 tert-부톡시드 등의 유기 염기나, 탄산칼륨 등의 무기 염기 등을 들 수 있다.

[0116]

또한, 합성 스Kim (C-1)에서, 이용할 수 있는 용매로서는, 톨루엔, 크실렌, 벤젠, 테트라하이드로퓨란 등을 들 수 있다.

[0117]

또한, 합성 스Kim (C-1)에서, 울만 반응을 행하는 경우에 대하여 설명한다. 합성 스Kim (C-1)에서, R^{25}, R^{26} 은 각각, 할로겐이나 아세틸기 등을 나타내고, 할로겐으로서는, 염소, 브롬, 요오드를 들 수 있다. 또한, R^{25} 가 요오드인 요오드화구리(I), 또는 R^{26} 이 아세틸기인 초산구리(II)가 바람직하다. 또한, 구리 화합물 외에 구리를 이용할 수 있다.

[0118]

합성 스Kim (C-1)에서, 이용할 수 있는 염기로서는, 탄산칼륨 등의 무기 염기를 들 수 있다.

[0119]

또한, 합성 스Kim (C-1)에서, 이용할 수 있는 용매로서는, 1,3-디메틸-3,4,5,6-테트라하이드로-2(1H)파리미디논(DMPU), 톨루엔, 크실렌, 벤젠 등을 들 수 있다. 단, 상기 이용할 수 있는 용매는 이것들에 한정되는 것은 아니다. 울만 반응에서는 반응 온도가 100°C 이상의 것이 보다 단시간에 고수율로 목적물을 얻을 수 있기 때문에, 비점(沸點)이 높은 DMPU, 크실렌을 이용하는 것이 바람직하다. 또한, 반응 온도는 150°C 이상보다 높은 온도가 더욱 바람직하기 때문에, 보다 바람직하게는 DMPU를 이용하는 것으로 한다.

[0120]

[실시형태 2]

[0121]

본 실시형태 2에서는, 실시형태 1에서 설명한 본 발명의 벤조옥사졸 유도체를 발광층에 이용하여 형성한 발광소자에 대하여 설명한다.

[0122]

본 실시형태 1에서의 발광소자는, 양극으로서 기능하는 제1 전극, 음극으로서 기능하는 제2 전극, 및 제1 전극과 제2 전극과의 사이에 형성된 EL층으로 구성되어 있다. 또한, 본 실시형태 2에서의 발광소자는, 제1 전극이

제2 전극보다 전위가 높아지도록, 각각 전압을 인가했을 때에, 발광을 얻을 수 있는 것으로 한다.

[0123] 또한, 본 실시형태 2에서의 발광소자의 EL층은, 제1 전극측으로부터 제 1 층(정공 주입층), 제 2 층(정공 수송층), 제 3 층(발광층), 제 4 층(전자 수송층), 제 5 층(전자 주입층)을 포함하는 구성으로 한다.

[0124] 본 실시형태 1에서의 발광소자의 구조를 도 1을 이용하여 설명한다. 기판(101)은 발광소자의 지지체로서 이용된다. 기판(101)으로서는, 예를 들면 유리, 석영, 플라스틱 등을 이용할 수 있다.

[0125] 또한, 상기 기판(101)은 본 발명의 발광소자를 이용하는 제품인 발광장치 혹은 전자기기 중에 잔준시켜도 좋지만, 최종 제품 중에 잔준하지 않고 발광소자의 제작 공정에서의 지지체로서의 기능만을 가지고 있어도 좋다.

[0126] 기판(101) 위에 형성되는 제1 전극(102)에는 일 함수가 큰(구체적으로는, 4.0 eV 이상) 금속, 합금, 전기 전도성 화합물, 및 이들의 혼합물 등을 이용하는 것이 바람직하다. 구체적으로는, 예를 들면, 산화인듐-산화주석(ITO: Indium Tin Oxide), 규소 혹은 산화규소를 함유한 산화인듐-산화주석, 산화인듐-산화아연(IZO: Indium Zinc Oxide), 산화텅스텐 및 산화아연을 함유한 산화인듐 등을 들 수 있다. 이 외에, 금(Au), 백금(Pt), 니켈(Ni), 텉스텐(W), 크롬(Cr), 몰리브덴(Mo), 철(Fe), 코발트(Co), 구리(Cu), 팔라듐(Pd), 티탄(Ti), 또는, 금속 재료의 질화물(예를 들면, 질화티탄) 등을 들 수 있다. 단, 본 발명에서는, 제1 전극(102)과 접하여 형성되는 EL층(103) 중 제 1 층(111)은, 제1 전극(102)의 일 함수에 관계없이 정공(홀) 주입이 용이한 복합 재료를 이용하여 형성되기 때문에, 전극 재료로서 가능한 재료(예를 들면, 금속, 합금, 전기 전도성 화합물, 및 이들의 혼합물, 그 외에, 원소 주기표의 제 1 족 또는 제 2 족에 속하는 원소도 포함한다)라면, 모든 공지의 재료를 이용할 수 있다.

[0127] 이들 재료는 통상 스퍼터링법에 의해 성막된다. 예를 들면, 산화인듐-산화아연(IZO)은 산화인듐에 대하여 1~20 wt%의 산화아연을 첨가한 타겟이나, 산화텅스텐 및 산화아연을 함유한 산화인듐은, 산화인듐에 대하여 산화텅스텐을 0.5~5 wt%, 산화아연을 0.1~1 wt% 함유한 타겟을 이용함으로써, 스퍼터링법으로 형성할 수 있다. 그 외에, 진공 증착법, 도포법, 잉크젯법, 스펀 코트법 등에 의해 제작해도 좋다.

[0128] 또한, 제1 전극(102) 위에 형성되는 EL층(103) 중, 제1 전극(102)에 접하여 형성되는 제 1 층(111)에 이용하는 재료로서, 후술하는 복합 재료를 포함하는 층을 이용한 경우에는, 제1 전극(102)에 이용하는 물질은 일 함수의 대소에 상관없이, 다양한 금속, 합금, 전기 전도성 화합물, 및 이들의 혼합물 등을 이용할 수 있다. 예를 들면, 알루미늄(Al), 은(Ag), 알루미늄을 포함하는 합금(AlSi) 등도 이용할 수 있다.

[0129] 또한, 일 함수가 작은 재료인, 원소 주기표의 제 1 족 또는 제 2 족에 속하는 원소, 즉, 리튬(Li)이나 세슘(Cs) 등의 알칼리 금속, 및 마그네슘(Mg), 칼슘(Ca), 스트론튬(Sr) 등의 알칼리토류 금속, 및 이것들을 포함하는 합금(MgAg, AlLi), 유로퓸(Eu), 이테르븀(Yb) 등의 희토류 금속 및 이것들을 포함하는 합금 등을 이용할 수도 있다.

[0130] 또한, 알칼리 금속, 알칼리토류 금속, 및 이것들을 포함하는 합금을 이용하여 제1 전극(102)을 형성하는 경우에는, 진공 증착법이나 스퍼터링법을 이용할 수 있다. 또한, 은 페이스트 등을 이용하는 경우에는, 도포법이나 잉크젯법 등을 이용할 수 있다.

[0131] 제1 전극(102) 위에 형성되는 EL층(103)에는 공지의 물질을 이용할 수 있고, 저분자계 화합물 및 고분자계 화합물 중 어느 것을 이용할 수도 있다. 또한, EL층(103)을 형성하는 물질에는, 유기 화합물로만 이루어진 것뿐만 아니라, 무기 화합물을 일부에 포함하는 구성도 포함하는 것으로 한다.

[0132] EL층(103)은 정공 주입성이 높은 물질을 포함하여 이루어지는 정공 주입층, 정공 수송성이 높은 물질을 포함하여 이루어지는 정공 수송층, 발광성 물질로 이루어지는 발광층, 전자 수송성이 높은 물질을 포함하여 이루어지는 전자 수송층, 전자 주입성이 높은 물질을 포함하여 이루어지는 전자 주입층 등을 적절히 조합하여 적층함으로써 형성된다.

[0133] 또한, 도 1(A)에 나타낸 EL층(103)은 제1 전극(102)측으로부터 제 1 층(정공 주입층)(111), 제 2 층(정공 수송층)(112), 제 3 층(발광층)(113), 제 4 층(전자 수송층)(114), 및 제 5 층(전자 주입층)(115)의 순으로 적층되어 있다.

[0134] 정공 주입층인 제 1 층(111)은 정공 주입성이 높은 물질을 포함하는 정공 주입층이다. 정공 주입성이 높은 물질로서는, 몰리브덴 산화물, 티탄 산화물, 바나듐 산화물, 레늄 산화물, 투테늄 산화물, 크롬 산화물, 지르코늄 산화물, 하프늄 산화물, 탄탈 산화물, 은 산화물, 텉스텐 산화물, 망간 산화물 등을 이용할 수 있다. 이 외,

저분자의 유기 화합물로서는, 프탈로시아닌(약칭: H₂Pc), 구리(II) 프탈로시아닌(약칭: CuPc), 바나딜 프탈로시아닌(약칭: VOPc) 등의 프탈로시아닌계의 화합물을 들 수 있다.

[0135] 또한, 저분자의 유기 화합물인 4,4',4'''-트리스(N,N-디페닐아미노)트리페닐아민(약칭: TDATA), 4,4',4'''-트리스[N-(3-메틸페닐)-N-페닐아미노]트리페닐아민(약칭: MTDATA), 4,4'-비스[N-(4-디페닐아미노페닐)-N-페닐아미노]비페닐(약칭: DPAB), 4,4'-비스[N-{4-[N'-(3-메틸페닐)-N'-페닐아미노]페닐}-N-페닐아미노]비페닐(약칭: DNTPD), 1,3,5-트리스[N-(4-디페닐아미노페닐)-N-페닐아미노]벤젠(약칭: DPA3B), 3-[N-(9-페닐카르바졸-3-일)-N-페닐아미노]-9-페닐카르바졸(약칭: PCzPCA1), 3,6-비스[N-(9-페닐카르바졸-3-일)-N-페닐아미노]-9-페닐카르바졸(약칭: PCzPCA2), 3-[N-(1-나프틸)-N-(9-페닐카르바졸-3-일)아미노]-9-페닐카르바졸(약칭: PCzPCN1) 등의 방향족 아민 화합물 등도 예로 들고 있다.

[0136] 또한, 고분자 화합물(올리고머, 덴드리머, 폴리머 등)을 이용할 수도 있다. 예를 들면, 폴리(N-비닐카르바졸)(약칭: PVK), 폴리(4-비닐트리페닐아민)(약칭: PVTPA), 폴리[N-(4-{N'-(4-(4-디페닐아미노)페닐)페닐}-N'-페닐아미노)페닐]메타크릴아미드](약칭: PTPDMA), 폴리[N,N'-비스(4-부틸페닐)-N,N'-비스(페닐)벤지딘](약칭: Poly-TPD) 등의 고분자 화합물을 들 수 있다. 또한, 폴리(3,4-에틸렌디옥시티오펜)/폴리(스티렌솔폰산)(PEDOT/PSS), 폴리아닐린/폴리(스티렌솔폰산)(PAni/PSS) 등의 산을 첨가한 고분자 화합물을 이용할 수도 있다.

[0137] 또한, 제 1 층(111)으로서, 정공 수송성이 높은 물질에 억셉터성 물질을 함유시킨 복합 재료를 이용할 수 있다. 또한, 정공 수송성이 높은 물질에 억셉터성 물질을 함유시킨 것을 이용함으로써, 전극의 일 함수에 상관없이 전극을 형성하는 재료를 선택할 수 있다. 즉, 제1 전극(102)으로서 일 함수가 큰 재료뿐만 아니라, 일 함수가 작은 재료를 이용할 수 있다. 이를 복합 재료는 정공 수송성이 높은 물질과 억셉터 물질을 공중착함으로써 형성할 수 있다. 또한, 본 명세서 중에서, 복합이란, 단지 2개의 재료를 혼합시키는 것뿐 아니라, 복수의 재료를 혼합시키는 것에 의해 재료간에서의 전하의 수수를 행할 수 있는 상태가 되는 것을 말한다.

[0138] 복합 재료에 이용하는 유기 화합물로서는, 방향족 아민 화합물, 카르바졸 유도체, 방향족 탄화수소, 고분자 화합물(올리고머, 덴드리머, 폴리머 등) 등, 다양한 화합물을 이용할 수 있다. 또한, 복합 재료에 이용하는 유기 화합물로서는, 정공 수송성이 높은 유기 화합물인 것이 바람직하다. 구체적으로는, 10⁻⁶ cm²/Vs 이상의 정공 이동도를 가지는 물질인 것이 바람직하다. 단, 전자보다 정공의 수송성이 높은 물질이라면, 이것들 이외의 것을 이용해도 좋다. 이하에서는 복합 재료에 이용할 수 있는 유기 화합물을 구체적으로 열거한다.

[0139] 복합 재료에 이용할 수 있는 유기 화합물로서는, 예를 들면, MTDATA, TDATA, DPAB, DNTPD, DPA3B, PCzPCA1, PCzPCA2, PCzPCN1, 4,4'-비스[N-(1-나프틸)-N-페닐아미노]비페닐(약칭: NPB 또는 α-NPD), N,N'-비스(3-메틸페닐)-N,N'-디페닐-[1,1'-비페닐]-4,4'-디아민(약칭: TPD) 등의 방향족 아민 화합물이나, 4,4'-디(N-카르바졸릴)비페닐(약칭: CBP), 1,3,5-트리스[4-(N-카르바졸릴)페닐]벤젠(약칭: TCPB), 9-[4-(N-카르바졸릴)]페닐-10-페닐 안트라센(약칭: CzPA), 1,4-비스[4-(N-카르바졸릴)페닐]-2,3,5,6-테트라페닐벤젠 등의 카르바졸 유도체를 들 수 있다.

[0140] 또한, 2-tert-부틸-9,10-디(2-나프틸)안트라센(약칭: t-BuDNA), 2-tert-부틸-9,10-디(1-나프틸)안트라센, 9,10-비스(3,5-디페닐페닐)안트라센(약칭: DPPA), 2-tert-부틸-9,10-비스(4-페닐페닐)안트라센(약칭: t-BuDBA), 9,10-디(2-나프틸)안트라센(약칭: DNA), 9,10-디페닐안트라센(약칭: DPAnth), 2-tert-부틸안트라센(약칭: t-BuAnth), 9,10-비스(4-메틸-1-나프틸)안트라센(약칭: DMNA), 9,10-비스[2-(1-나프틸)페닐]-2-tert-부틸-안트라센, 9,10-비스[2-(1-나프틸)페닐]안트라센, 2,3,6,7-테트라메틸-9,10-디(1-나프틸)안트라센 등의 방향족 탄화수소 화합물을 들 수 있다.

[0141] 또한, 2,3,6,7-테트라메틸-9,10-디(2-나프틸)안트라센, 9,9'-비안트릴, 10,10'-디페닐-9,9'-비안트릴, 10,10'-비스(2-페닐페닐)-9,9'-비안트릴, 10,10'-비스[(2,3,4,5,6-펜타페닐)페닐]-9,9'-비안트릴, 안트라센, 테트라센, 루브렌, 페릴렌, 2,5,8,11-테트라(tert-부틸)페릴렌, 펜타센, 코로넨, 4,4'-비스(2,2-디페닐비닐)비페닐(약칭: DPVBi), 9,10-비스[4-(2,2-디페닐비닐)페닐]안트라센(약칭: DPVPA) 등의 방향족 탄화수소 화합물도 들 수 있다.

[0142] 또한, 억셉터성 물질로서는, 7,7,8,8-테트라시아노-2,3,5,6-테트라플루오로퀴노디메탄(약칭: F₄-TCNQ), 클로라닐 등의 유기 화합물이나, 천이 금속 산화물을 들 수 있다. 또한, 원소 주기표에서의 제 4 족 내지 제 8 족에 속하는 금속의 산화물을 들 수 있다. 구체적으로는, 산화바나듐, 산화니오브, 산화탄탈, 산화크롬, 산화몰리브덴, 산화텅스텐, 산화망간, 산화레늄은 전자 수용성이 높기 때문에 바람직하다. 그 중에서도 특히, 산화몰리브덴은 대기 중에서도 안정적이고, 흡습성이 낮고, 취급하기 쉽기 때문에 바람직하다.

- [0143] 또한, 상술한 PVK, PVTPA, PTPDMA, Poly-TPD 등의 고분자 화합물과, 상술한 억셉터성 물질을 이용해 복합 재료를 형성하여, 제 1 층(111)에 이용해도 좋다.
- [0144] 정공 수송층인 제 2 층(112)은 정공 수송성이 높은 물질을 포함하는 층이다. 정공 수송성이 높은 물질로서는, 저분자의 유기 화합물로서, NPB(또는 α -NPD), TPD, 4,4'-비스[N-(9,9-디메틸플루오렌-2-일)-N-페닐아미노]비페닐(약칭: DFLDPBi), 4,4'-비스[N-(스페로-9,9'-비플루오렌-2-일)-N-페닐아미노]비페닐(약칭: BSPB) 등의 방향족 아민 화합물을 이용할 수 있다. 여기에 설명한 물질은, 주로 $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 이상의 정공 이동도를 가지는 물질이다. 단, 전자보다 정공의 수송성이 높은 물질이라면, 이것을 이용해도 좋다. 또한, 정공 수송성이 높은 물질을 포함하는 층은 단층의 것뿐만 아니라, 상기 물질로 이루어지는 층이 2층 이상 격층된 것이어도 좋다.
- [0145] 또한, 상술한 정공 수송성이 높은 물질에 억셉터성 물질을 함유시킨 복합 재료를 제 2 층(112)으로서 이용해도 좋다.
- [0146] 또한, 제 2 층(112)으로서, PVK, PVTPA, PTPDMA, Poly-TPD 등의 고분자 화합물을 이용할 수도 있다.
- [0147] 제 3 층(113)은 발광성이 높은 물질을 포함하는 발광층이다. 또한, 본 실시예에서는 본 발명의 벤조옥사졸 유도체를 발광층에 이용하는 경우에 대하여 설명한다. 또한, 본 발명의 벤조옥사졸 유도체는 단독으로 발광층에 이용하는 것이 가능할뿐만 아니라, 발광성이 높은 물질(게스트 재료)을 다른 물질(호스트 재료)에 분산시킨 구성의 발광층에서, 호스트 재료로서 이용할 수 있다.
- [0148] 실시형태 1에 나타낸 벤조옥사졸 유도체를 호스트 재료로서 이용한 경우, 게스트 재료가 형광을 발광하는 경우에는, 게스트 재료로서, 실시형태 1에 나타낸 벤조옥사졸 유도체보다 최저 공궤도 준위(LUMO 준위)가 낮고, 최고 피첨유 궤도 준위(HOMO 준위)가 높은 물질을 이용하는 것이 바람직하다. 예를 들면, 청색계의 발광재료로서, N,N'-비스[4-(9H-카르바졸-9-일)페닐]-N,N'-디페닐스틸벤-4,4'-디아민(약칭: YGA2S), 4-(9H-카르바졸-9-일)-4'-(10-페닐-9-안트릴)트리페닐아민(약칭: YGAPA) 등을 들 수 있다. 또한, 녹색계의 발광재료로서, N-(9,10-디페닐-2-안트릴)-N,9-디페닐-9H-카르바졸-3-아민(약칭: 2PCAPA), N-[9,10-비스(1,1'-비페닐-2-일)-2-안트릴]-N,9-디페닐-9H-카르바졸-3-아민(약칭: 2PCABPhA), N-(9,10-디페닐-2-안트릴)-N,N',N'-트리페닐-1,4-페닐렌디아민(약칭: 2DPAPA), N-[9,10-비스(1,1'-비페닐-2-일)-2-안트릴]-N,N',N'-트리페닐-1,4-페닐렌디아민(약칭: 2DPABPhA), N-[9,10-비스(1,1'-비페닐-2-일)]-N-[4-(9H-카르바졸-9-일)페닐]-N-페닐안트라센-2-아민(약칭: 2YGABPhA), N,N,9-트리페닐안트라센-9-아민(약칭: DPhAPhA) 등을 들 수 있다. 또한, 황색계의 발광재료로서, 루브렌, 5,12-비스(1,1'-비페닐-4-일)-6,11-디페닐테트라센(약칭: BPT) 등을 들 수 있다. 또한, 적색계의 발광재료로서, N,N,N',N'-테트라키스(4-메틸페닐)테트라센-5,11-디아민(약칭: p-mPhTD), 7,13-디페닐-N,N,N',N'-테트라키스(4-메틸페닐)아세나프토[1,2-a]플루오란텐-3,10-디아민(약칭: p-mPhAFD) 등을 들 수 있다.
- [0149] 또한, 실시형태 1에 나타낸 벤조옥사졸 유도체를 호스트 재료로서 이용한 경우, 게스트 재료가 인광을 발광하는 경우에는, 게스트 재료로서, 실시형태 1에 나타낸 벤조옥사졸 유도체보다 삼중향 여기 에너지가 작은 물질을 이용하는 것이 바람직하다. 예를 들면, 비스[2-(2'-벤조[4,5- α]티에닐)페리디나토-N,C^{3'}]이리듐(III)아세틸아세토네이트(약칭: Ir(btp)₂(acac)), 비스(1-페닐이소퀴놀리나토-N,C^{2'})이리듐(III)아세틸아세토네이트(약칭: Ir(piq)₂(acac)), (아세틸아세토나토)비스[2,3-비스(4-플루오로페닐)퀴녹살리나토]이리듐(III)(약칭: Ir(Fdpq)₂(acac)), 2,3,7,8,12,13,17,18-옥타에틸-21H,23H-포르피린 백금(II)(약칭: PtOEP) 등의 유기 금속 촉체를 들 수 있다.
- [0150] 실시형태 1에 나타낸 벤조옥사졸 유도체는 전자 수송성을 가지고 있기 때문에, 발광층에 이용함으로써, 전자 수송성이 높은 발광층으로 할 수 있다. 이와 같은 구성의 발광층은 전자 트랩성이 높은 게스트 재료를 이용한 경우, 고효율의 발광을 얻을 수 있다.
- [0151] 또한, 발광성 물질(게스트 재료)을 분산시키기 위한 물질(호스트 재료)은 복수종 이용할 수 있다. 따라서, 발광층은 실시형태 1에 나타낸 벤조옥사졸 유도체 이외에, 제2 호스트 재료를 포함하고 있어도 좋다.
- [0152] 또한, 본 발명의 벤조옥사졸 유도체는 발광성의 물질(게스트 재료), 또는 단독으로 이용할 수 있다.
- [0153] 제 4 층(114)은 전자 수송성이 높은 물질을 포함하는 전자 수송층이다. 제 4 층(114)에는, 예를 들면, 저분자

의 유기 화합물로서 Alq, Almq₃, BeBq₂, BAlq, Znq, ZnPBO, ZnBTZ 등의 금속 착체 등을 이용할 수 있다. 또한, 금속 착체 이외에도, PBD, OXD-7, TAZ, TPBI, BPhen, BCP 등의 복소 고리 화합물을 이용할 수 있다. 여기에 설명한 물질은 주로 10⁻⁶ cm²/Vs 이상의 전자 이동도를 가지는 물질이다. 또한, 정공보다 전자의 수송성이 높은 물질이라면, 상기 이외의 물질을 전자 수송층으로서 이용해도 좋다. 또한, 전자 수송층은 단층의 것뿐만 아니라, 상기 물질로 이루어지는 층이 2층 이상 적층된 것이어도 좋다.

[0154] 제 4 층(114)에는 고분자 화합물을 이용할 수도 있다. 예를 들면, 폴리[(9,9-디헥실플루오렌-2,7-디일)-co-(파리딘-3,5-디일)](약칭: PF-Py), 폴리[(9,9-디옥틸플루오렌-2,7-디일)-co-(2,2'-비파리딘-6,6'-디일)](약칭: PF-BPy) 등을 이용할 수 있다.

[0155] 또한, 제 5 층(115)은 전자 주입성이 높은 물질을 포함하는 전자 주입층이다. 제 5 층(115)에는 불화리튬(LiF), 불화세슘(CsF), 불화칼슘(CaF₂) 등과 같은 알칼리 금속, 알칼리토류 금속, 또는 그들의 화합물을 이용할 수 있다. 그 외, 전자 수송성을 가지는 물질에 알칼리 금속, 알칼리토류 금속, 또는 그들의 화합물을 함유시킨 것, 구체적으로는, Alq 중에 마그네슘(Mg)을 함유시킨 것 등을 이용해도 좋다. 또한, 이 경우에는 제2 전극(104)으로부터의 전자 주입을 보다 효율 좋게 행할 수 있다.

[0156] 제2 전극(104)에는 일 함수가 작은(구체적으로는, 3.8 eV 이하) 금속, 합금, 전기 전도성 화합물, 및 이들의 혼합물 등을 이용할 수 있다. 이와 같은 음극 재료의 구체적인 예로서는, 원소 주기표의 제 1 족, 또는, 제 2 족에 속하는 원소, 즉, 리튬(Li)이나 세슘(Cs) 등의 알칼리 금속, 및 마그네슘(Mg), 칼슘(Ca), 스트론튬(Sr) 등의 알칼리토류 금속, 및 이것들을 포함하는 합금(MgAg, AlLi), 유로퓸(Eu), 이테르븀(Yb) 등의 희토류 금속 및 이것들을 포함하는 합금 등을 들 수 있다.

[0157] 또한, 알칼리 금속, 알칼리토류 금속, 이것들을 포함하는 합금을 이용하여 제2 전극(104)을 형성하는 경우에는, 진공 증착법이나 스퍼터링법을 이용할 수 있다. 또한, 은 페이스트 등을 이용하는 경우에는, 도포법이나 잉크젯법 등을 이용할 수 있다.

[0158] 또한, 제 5 층(115)을 형성함으로써, 일 함수의 대소에 상관없이, Al, Ag, ITO, 규소 혹은 산화규소를 함유한 산화인듐-산화주석 등 다양한 도전성 재료를 이용하여 제2 전극(104)을 형성할 수 있다. 이러한 도전성 재료는 스퍼터링법이나 잉크젯법, 스핀 코트법 등을 이용하여 성막할 수 있다.

[0159] 또한, 제 1 층(정공 주입층)(111), 제 2 층(정공 수송층)(112), 제 3 층(발광층)(113), 제 4 층(전자 수송층)(114), 및 제 5 층(전자 주입층)(115)이 순차로 적층하여 형성되는 EL층(103)의 제작 방법으로서는, 건식법, 습식법을 불문하고, 다양한 방법을 이용할 수 있다. 예를 들면, 진공 증착법, 잉크젯법, 또는, 스핀 코트법 등을 이용할 수 있다. 또한, 각층마다 다른 성막 방법을 이용하여 형성해도 좋다.

[0160] 제2 전극(104)에 대해서도, 스퍼터링법이나 진공 증착법 등의 건식법뿐만 아니라, 금속 재료의 페이스트를 이용하여 졸-겔법 등의 습식법에 의해 형성할 수 있다.

[0161] 상술한 본 발명의 발광소자는, 제1 전극(102)과 제2 전극(104)과의 사이에 생긴 전위차에 의해 전류가 흘러, EL층(103)에서 정공과 전자가 재결합함으로써 발광한다. 그리고 이 발광은 제1 전극(102) 또는 제2 전극(104)의 어느 한쪽, 또는 양쪽 모두를 통하여 외부로 취출된다. 따라서, 제1 전극(102) 또는 제2 전극(104)의 어느 한쪽, 또는 양쪽 모두가 투광성을 가지는 전극이 된다.

[0162] 또한, 제1 전극(102)만이 투광성을 가지는 전극인 경우에는, 도 2(A)에 나타낸 바와 같이, EL층(103)에서 생긴 발광은 제1 전극(102)을 통하여 기판(101)측으로부터 취출된다. 또한, 제2 전극(104)만이 투광성을 가지는 전극인 경우에는, 도 2(B)에 나타낸 바와 같이, EL층(103)에서 생긴 발광이 제2 전극(104)을 통하여 기판(101)과 반대측으로부터 취출된다. 또한, 제1 전극(102) 및 제2 전극(104)이 모두 투광성을 가지는 전극인 경우에는, 도 2(C)에 나타낸 바와 같이, EL층(103)에서 생긴 발광은 제1 전극(102) 및 제2 전극(104)을 통하여, 기판(101)측 및 기판(101)과 반대측의 양쪽 모두로부터 취출된다.

[0163] 또한, 제1 전극(102)과 제2 전극(104)과의 사이에 형성되는 층의 구성은 상기의 것에 한정되는 것은 아니다. 적어도 정공 수송층인 제 2 층(112), 및 발광층인 제 3 층(113)을 가지는 구성이라면, 상기 이외의 것이어도 좋다.

[0164] 또한, 도 1(B)에 나타낸 바와 같이, 기판(101) 위에 음극으로서 기능하는 제2 전극(104), EL층(103), 양극으로서 기능하는 제1 전극(102)이 순차 적층된 구조로 해도 좋다. 또한, 이 경우의 EL층(103)은, 제2 전극(104) 위

에 제 5 층(115), 제 4 층(114), 제 3 층(113), 제 2 층(112), 제 1 층(111), 제1 전극(102)이 순차 적층된 구조가 된다.

[0165] 또한, 본 발명의 발광소자를 이용함으로써, 패시브 매트릭스형의 발광장치나, 박막 트랜지스터(TFT)에 의해 발광소자의 구동이 제어된 액티브 매트릭스형의 발광장치를 제작할 수 있다.

[0166] 또한, 액티브 매트릭스형의 발광장치를 제작하는 경우에서의 TFT의 구조는 특별히 한정되는 것은 아니다. 예를 들면, 스태거형이나 역스태거형의 TFT를 적절히 이용할 수 있다. 또한, TFT 기판에 형성되는 구동용 회로에 대해서도, N형 및 P형의 TFT로 이루어지는 것이어도 좋고, N형의 TFT 또는 P형의 TFT의 어느 한쪽만으로 이루어지는 것이어도 좋다. 또한, TFT에 이용되는 반도체막의 결정성에 대해서도 특별히 한정되지 않는다. 비정질 반도체막을 이용해도 좋고, 결정성 반도체막을 이용해도 좋다.

[0167] 본 실시형태 2에 나타낸 발광소자에서는, 바이폴라성을 가지는 본 발명의 벤조옥사졸 유도체를 이용하여 제 3 층(발광층)(113)이 형성되기 때문에, 전류 효율 등의 소자 효율을 향상시킬 수 있다.

[0168] 또한, 본 실시형태 2에서는, 실시형태 1에 나타낸 구성을 적절히 조합하여 이용할 수 있다.

[0169] [실시형태 3]

[0170] 본 실시형태 3에서는, 실시형태 2에 나타낸 발광소자의 EL층을 복수 가지는 발광소자(이하, 적층형 소자라고 한다)에 대하여, 도 3을 이용하여 설명한다. 이 발광소자는 제1 전극(301)과 제2 전극(302)과의 사이에, 복수의 EL층(제1 EL층(303), 제2 EL층(304))을 가지는 적층형 발광소자이다. 또한, 본 실시형태 3에서는 EL층이 2층인 경우에 대하여 나타내지만, 3층 이상으로 해도 좋다.

[0171] 본 실시형태 3에서, 제1 전극(301)은 양극으로서 기능하는 전극이며, 제2 전극(302)은 음극으로서 기능하는 전극이다. 또한, 제1 전극(301) 및 제2 전극(302)은 실시형태 2와 같은 구성을 이용할 수 있다. 또한, 복수의 EL층(제1 EL층(303), 제2 EL층(304))으로서는, 실시형태 2에 나타낸 EL층과 같은 구성을 이용할 수 있다. 또한, 제1 EL층(303)과 제2 EL층(304)은 같은 구성이어도 다른 구성이어도 좋고, 그 구성은 실시형태 2와 같은 것을 적용할 수 있다.

[0172] 또한, 복수의 EL층(제1 EL층(303), 제2 EL층(304))의 사이에는, 전하 발생층(305)이 형성되어 있다. 전하 발생층(305)은 제1 전극(301)과 제2 전극(302)에 전압을 인가했을 때에, 한쪽의 EL층에 전자를 주입하고, 다른 한쪽의 EL층에 정공을 주입하는 기능을 가진다. 본 실시형태 3의 경우에는 제1 전극(301)에 제2 전극(302)보다 전위가 높아지도록 전압을 인가하면, 전하 발생층(305)으로부터 제1 EL층(303)에 전자가 주입되고, 제2 EL층(304)에 정공이 주입된다.

[0173] 또한, 전하 발생층(305)은 광의 취출 효율의 점에서, 투광성을 가지는 것이 바람직하다. 또한, 전하 발생층(305)은 제1 전극(301)이나 제2 전극(302)보다 낮은 도전율이어도 기능한다.

[0174] 전하 발생층(305)은 정공 수송성이 높은 물질에 억셉터 물질이 첨가된 구성이어도, 전자 수송성이 높은 물질에 도너성 물질이 첨가된 구성이어도 좋다. 또한, 이를 양쪽 모두의 구성이 적층되어 있어도 좋다.

[0175] 정공 수송성이 높은 물질에 억셉터 물질이 첨가된 구성으로 하는 경우에, 정공 수송성이 높은 물질로서는, 예를 들면, 4,4'-비스[N-(1-나프틸)-N-페닐아미노]비페닐(약칭: NPB 또는 α-NPD)이나, N,N'-비스(3-메틸페닐)-N,N'-디페닐-[1,1'-비페닐]-4,4'-디아민(약칭: TPD), 4,4',4''-트리스(N,N-디페닐아미노)트리페닐아민(약칭: TDATA), 4,4',4'''-트리스[N-(3-메틸페닐)-N-페닐아미노]트리페닐아민(약칭: MTDATA), 4,4'-비스[N-(스피로-9,9'-비플루오レン-2-일)-N-페닐아미노]비페닐(약칭: BSPB) 등의 방향족 아민 화합물을 등을 이용할 수 있다. 여기에 설명한 물질은, 주로 $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 이상의 정공 이동도를 가지는 물질이다. 단, 전자보다 정공의 수송성이 높은 물질이라면, 상기 이외의 물질을 이용해도 상관없다.

[0176] 또한, 억셉터성 물질로서는, 7,7,8,8-테트라시아노-2,3,5,6-테트라플루오로퀴노디메탄(약칭: F₄-TCNQ), 클로라닐 등을 들 수 있다. 또한, 천이 금속 산화물을 들 수 있다. 또한, 원소 주기표에서의 제 4 족 내지 제 8 족에 속하는 금속의 산화물을 들 수 있다. 구체적으로는, 산화바나듐, 산화니오브, 산화탄탈, 산화크롬, 산화몰리브덴, 산화텅스텐, 산화망간, 산화레늄은 전자 수용성이 높기 때문에 바람직하다. 그 중에서도 특히, 산화몰리브덴은 대기 중에서도 안정적이고, 흡습성이 낮고, 취급하기 쉽기 때문에 바람직하다.

- [0177] 한편, 전자 수송성이 높은 물질에 도너성 물질이 첨가된 구조으로 하는 경우에, 전자 수송성이 높은 물질로서는, 예를 들면, 트리스(8-퀴놀리놀라토)알루미늄(약칭: Alq), 트리스(4-메틸-8-퀴놀리놀라토)알루미늄(약칭: Almq₃), 비스(10-하이드록시벤조[h]퀴놀리나토)페릴륨(약칭: BeBq₂), 비스(2-메틸-8-퀴놀리놀라토)(4-페닐페놀라토)알루미늄(약칭: BA1q) 등, 퀴놀린 골격 또는 벤조퀴놀린 골격을 가지는 금속 착체 등을 이용할 수 있다. 또한, 이 외에, 비스[2-(2-하이드록시페닐)벤즈옥사졸라토]아연(약칭: Zn(BOX)₂), 비스[2-(2-하이드록시페닐)벤조티아졸라토]아연(약칭: Zn(BTZ)₂) 등의 옥사졸계, 티아졸계 배위자를 가지는 금속 착체 등도 이용할 수 있다. 또한, 금속 착체 이외에도, 2-(4-비페닐릴)-5-(4-tert-부틸페닐)-1,3,4-옥사디아졸(약칭: PBD)이나, 1,3-비스[5-(p-tert-부틸페닐)-1,3,4-옥사디아졸-2-일]벤젠(약칭: OXD-7), 3-(4-비페닐릴)-4-페닐-5-(4-tert-부틸페닐)-1,2,4-트리아졸(약칭: TAZ), 바소페난트롤린(약칭: BPhen), 바소큐프로인(약칭: BCP) 등도 이용할 수 있다. 여기에 설명한 물질은, 주로 $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 이상의 전자 이동도를 가지는 물질이다. 또한, 정공보다 전자의 수송성이 높은 물질이라면, 상기 이외의 물질을 이용해도 상관없다.
- [0178] 또한, 도너성 물질로서는, 알칼리 금속 또는 알칼리토류 금속 또는 희토류 금속 또는 원소 주기표에서의 제 13족에 속하는 금속 및 그 산화물, 탄산염을 이용할 수 있다. 구체적으로는, 리튬(Li), 세슘(Cs), 마그네슘(Mg), 칼슘(Ca), 이테르븀(Yb), 인듐(In), 산화리튬, 탄산세슘 등을 이용하는 것이 바람직하다. 또한, 테트라티아나프타센과 같은 유기 화합물을 도너성 물질로서 이용해도 좋다.
- [0179] 또한, 상술한 재료를 이용하여 전하 발생층(305)을 형성함으로써, EL층이 적층된 경우에서의 구동 전압의 상승을 억제할 수 있다.
- [0180] 본 실시형태 3에서는, 2개의 EL층을 가지는 발광소자에 대하여 설명했지만, 마찬가지로, 3개 이상의 EL층을 적층한 발광소자에 대해서도 마찬가지로 적용하는 것이 가능하다. 본 실시형태 3에 관한 발광소자와 같이, 한 쌍의 전극 간에 복수의 EL층을 전하 발생층으로 나누어 배치함으로써, 전류 밀도를 낮게 유지한 채로, 고휘도 영역에서의 발광이 가능하고, 따라서 장수명 소자를 실현할 수 있다. 또한, 조명을 응용예로 한 경우에는, 전극 재료의 저항에 의한 전압 강하를 작게 할 수 있으므로, 대면적에서의 균일 발광이 가능하게 된다. 또한, 저전압 구동이 가능하고 소비 전력이 낮은 발광장치를 실현할 수 있다.
- [0181] 또한, 각각의 EL층의 발광색을 다른 것으로 함으로써, 발광소자 전체적으로, 소망의 색의 발광을 얻을 수 있다. 예를 들면, 2개의 EL층을 가지는 발광소자에서, 제1 EL층의 발광색과 제2 EL층의 발광색을 보색의 관계가 되도록 함으로써, 발광소자 전체적으로 백색 발광하는 발광소자를 얻는 것도 가능하다. 또한, 보색이란, 혼합하면 무채색이 되는 색끼리의 관계를 말한다. 즉, 보색의 관계에 있는 색을 발광하는 물질로부터 얻어진 광을 혼합하면, 백색 발광을 얻을 수 있다.
- [0182] 또한, 3개의 EL층을 가지는 발광소자의 경우에도 마찬가지로서, 예를 들면, 제1 EL층의 발광색이 적색이고, 제2 EL층의 발광색이 녹색이고, 제3 EL층의 발광색이 청색인 경우, 발광소자 전체적으로는 백색 발광을 얻을 수 있다.
- [0183] 또한, 본 실시형태 3에서는 실시형태 1이나 실시형태 2에 나타낸 구성을 적절히 조합하여 이용할 수 있다.
- [0184] [실시형태 4]
- [0185] 본 실시형태 4에서는 화소부에 본 발명의 발광소자를 가지는 발광장치에 대하여 도 4를 이용하여 설명한다. 또한, 도 4(A)는 발광장치를 나타낸 상면도, 도 4(B)는 도 4(A)를 A-A' 및 B-B'로 절단한 단면도이다.
- [0186] 도 4(A)에서, 접선으로 나타낸 부호 401은 구동 회로부(소스측 구동 회로), 부호 402는 화소부, 부호 403은 구동 회로부(게이트측 구동 회로)이다. 또한, 부호 404는 봉지 기판, 부호 405는 시일재며, 시일재(405)로 둘러싸인 내측은 공간(407)으로 되어 있다.
- [0187] 또한, 리드 배선(408)은 소스측 구동 회로(401) 및 게이트측 구동 회로(403)에 입력되는 신호를 전송하기 위한 배선이며, 외부 입력 단자가 되는 FPC(Flexible Printed Circuit)(409)로부터 비디오 신호, 클록 신호, 스타트 신호, 리셋 신호 등을 받는다. 또한, 여기에서는 FPC 밖에 도시하지 않았지만, 이 FPC에는 프린트 배선 기판(PWB)이 장착되어 있어도 좋다. 또한, 본 명세서에서의 발광장치에는 발광장치 본체뿐만 아니라, 거기에 FPC 혹은 PWB가 장착된 상태도 포함하는 것으로 한다.

- [0188] 다음에, 단면 구조에 대하여 도 4(B)를 이용하여 설명한다. 소자 기판(410) 위에는 구동 회로부 및 화소부가 형성되어 있지만, 여기에서는 구동 회로부인 소스측 구동 회로(401)와 화소부(402) 중 하나의 화소가 도시되어 있다. 또한, 소스측 구동 회로(401)는 N 채널형 TFT(423)와 P 채널형 TFT(424)를 조합한 CMOS 회로가 형성된다. 또한, 구동 회로는 다양한 CMOS 회로, PMOS 회로 혹은 NMOS 회로로 형성해도 좋다. 본 실시형태에서는 기판 위에 구동 회로를 형성한 드라이버 일체형을 나타내지만, 반드시 그럴 필요는 없고, 구동 회로를 기판 위가 아니라 외부에 형성할 수도 있다.
- [0189] 또한, 화소부(402)는 스위칭용 TFT(411), 전류 제어용 TFT(412), 및 그 드레인에 전기적으로 접속된 제1 전극(413)을 포함하는 복수의 화소에 의해 형성된다. 또한, 제1 전극(413)의 단부를 덮어 절연물(414)이 형성된다.
- [0190] 또한, 피복성을 양호한 것으로 하기 위해, 절연물(414)의 상단부, 또는, 하단부에 곡률을 가지는 곡면이 형성되도록 하는 것이 바람직하다. 예를 들면, 절연물(414)의 재료로서, 포지티브형의 감광성 아크릴을 이용함으로써, 절연물(414)의 상단부에만 곡률 반경($0.2 \mu\text{m} \sim 3 \mu\text{m}$)을 가지는 곡면을 갖게 할 수 있다. 또한, 절연물(414)로서, 광의 조사에 의해 에칠퐁에 불용해성이 되는 네거티브형, 혹은 광의 조사에 의해 에칠퐁에 용해성이 되는 포지티브형의 감광성 재료를 이용할 수 있다.
- [0191] 제1 전극(413) 위에는 EL층(416), 및 제2 전극(417)이 각각 형성된다. 여기서, 제1 전극(413)에 이용하는 재료로서는, 다양한 금속, 합금, 전기 전도성 화합물, 및 이들의 혼합물을 이용할 수 있다. 또한, 구체적인 재료로서는, 실시형태 2에서 제1 전극에 이용할 수 있다고 나타낸 재료를 이용할 수 있다.
- [0192] 또한, EL층(416)은 증착 마스크를 이용한 증착법, 잉크젯법, 스판 코트법 등의 다양한 방법에 따라 형성된다. EL층(416)은 실시형태 2에 나타낸 구성을 가지고 있다. 또한, EL층(416)을 구성하는 다른 재료로서는, 저분자 화합물, 또는 고분자 화합물(올리고머, 텐드리머를 포함한다)이어도 좋다. 또한, EL층에 이용하는 재료로서는, 유기 화합물뿐만 아니라, 무기 화합물을 이용해도 좋다.
- [0193] 또한, 제2 전극(417)에 이용하는 재료로서는, 다양한 금속, 합금, 전기 전도성 화합물, 및 이들의 혼합물을 이용할 수 있다. 제2 전극(417)을 음극으로서 이용하는 경우에는, 그 중에서도, 일 함수가 작은(일 함수 3.8 eV 이하) 금속, 합금, 전기 전도성 화합물, 및 이들의 혼합물을 등을 이용하는 것이 바람직하다. 예를 들면, 원소 주기표의 제 1 족 또는 제 2 족에 속하는 원소, 즉, 리튬(Li)이나 세슘(Cs) 등의 알칼리 금속, 및 마그네슘(Mg), 칼슘(Ca), 스트론튬(Sr) 등의 알칼리토류 금속, 및 이것들을 포함하는 합금(MgAg, AlLi) 등을 들 수 있다.
- [0194] 또한, EL층(416)에서 생긴 광이 제2 전극(417)을 투과하는 구성으로 하는 경우에는 제2 전극(417)으로서 막 두께를 얇게 한 금속 박막과 투명 도전막(산화인듐-산화주석(ITO), 규소 혹은 산화규소를 함유한 산화인듐-산화주석, 산화인듐-산화아연(IZO), 산화텅스텐 및 산화아연을 함유한 산화인듐 등)과의 적층을 이용하는 것도 가능하다.
- [0195] 또한, 시일재(405)로 봉지 기판(404)을 소자 기판(410)과 부착시킴으로써, 소자 기판(410), 봉지 기판(404), 및 시일재(405)로 둘러싸인 공간(407)에 발광소자(418)가 구비된 구조로 되어 있다. 또한, 공간(407)에는 충전재가 충전되어 있고, 불활성 기체(질소나 아르곤 등)가 충전되는 경우 외에, 시일재(405)로 충전되는 경우도 있다.
- [0196] 또한, 시일재(405)에는 에폭시계 수지를 이용하는 것이 바람직하다. 또한, 이들 재료는 가능한 한 수분이나 산소를 투과하지 않는 재료인 것이 바람직하다. 또한, 봉지 기판(404)에 이용하는 재료로서, 유리 기판이나 석영 기판 외에, FRP(Fiberglass-Reinforced Plastics), PVF(폴리비닐플루오라이드), 폴리에스테르 또는 아크릴 등으로 이루어지는 플라스틱 기판을 이용할 수 있다.
- [0197] 이상과 같이 하여, 본 발명의 발광소자를 가지는 액티브 매트릭스형의 발광장치를 얻을 수 있다.
- [0198] 또한, 본 발명의 발광소자는 상술한 액티브 매트릭스형의 발광장치뿐만 아니라 패시브 매트릭스형의 발광장치에 이용할 수도 있다. 도 5에 본 발명의 발광소자를 이용한 패시브 매트릭스형의 발광장치의 사시도 및 단면도를 나타낸다. 또한, 도 5(A)는 발광장치를 나타낸 사시도, 도 5(B)는 도 5(A)를 X-Y로 절단한 단면도이다.
- [0199] 도 5에서, 기판(501) 위의 제1 전극(502)과 제2 전극(503)과의 사이에는 EL층(504)이 형성되어 있다. 제1 전극(502)의 단부는 절연층(505)으로 덮여 있다. 그리고 절연층(505) 위에는 격벽층(506)이 형성되어 있다. 격벽층(506)의 측벽은 기판면에 가까워짐에 따라, 한쪽의 측벽과 다른 한쪽의 측벽과의 간격이 좁아지는 듯한 경사를 가진다. 즉, 격벽층(506)의 단면 방향의 단면은 사다리꼴 형상이며, 바닥면(절연층(505)의 면방향과 같은

방향을 향하고, 절연층(505)과 접하는 변)이 윗면(절연층(505)의 면방향과 같은 방향을 향하고, 절연층(505)과 접하지 않는 변)보다 짧다. 이와 같이, 격벽층(506)을 형성함으로써, 정전기 등에 기인한 발광소자의 불량을 방지할 수 있다.

[0200] 이상에 의해, 본 발명의 발광소자를 가지는 패시브 매트릭스형의 발광장치를 얻을 수 있다.

[0201] 또한, 본 실시형태에서 나타낸 발광장치(액티브 매트릭스형, 패시브 매트릭스형)는 모두 본 발명의 전류 효율이 높은 발광소자를 이용하여 형성되기 때문에, 소비 전력이 저감된 발광장치를 얻을 수 있다.

[0202] 또한, 본 실시형태 4에서는 실시형태 1~3에 나타낸 구성을 적절히 조합하여 이용할 수 있다.

[0203] [실시형태 5]

[0204] 본 실시형태 5에서는 실시형태 4에 나타낸 본 발명의 발광장치를 그 일부에 포함하는 전자기기에 대하여 설명한다. 전자기기로서는, 비디오 카메라, 디지털 카메라 등의 카메라, 고글형 디스플레이, 네비게이션 시스템, 음향 재생장치(카 오디오, 오디오 컴포넌트 등), 컴퓨터, 게임기기, 휴대형 정보 단말기(모바일 컴퓨터, 휴대전화, 휴대형 게임기 또는 전자서적 등), 기록 매체를 구비한 화상 재생장치(구체적으로는, Digital Versatile Disc(DVD) 등의 기록 매체를 재생하여, 그 화상을 표시할 수 있는 표시장치를 구비한 장치) 등을 들 수 있다. 이러한 전자기기의 구체적인 예를 도 6에 나타낸다.

[0205] 도 6(A)는 본 발명에 관한 텔레비전 장치이며, 케이스(611), 지지대(612), 표시부(613), 스피커부(614), 비디오 입력 단자(615) 등을 포함한다. 이 텔레비전 장치에서, 표시부(613)에는 본 발명의 발광장치를 적용할 수 있다. 본 발명의 발광장치는 구동 전압이 낮다는 특징을 가지고 있으므로, 본 발명의 발광장치를 적용함으로써 소비 전력이 저감된 텔레비전 장치를 얻을 수 있다.

[0206] 도 6(B)는 본 발명에 관한 컴퓨터이며, 본체(621), 케이스(622), 표시부(623), 키보드(624), 외부 접속 포트(625), 포인팅 디바이스(626) 등을 포함한다. 이 컴퓨터에서, 표시부(623)에는 본 발명의 발광장치를 적용할 수 있다. 본 발명의 발광장치는 구동 전압이 낮다는 특징을 가지고 있으므로, 본 발명의 발광장치를 적용함으로써 소비 전력이 저감된 컴퓨터를 얻을 수 있다.

[0207] 도 6(C)는 본 발명에 관한 휴대전화이며, 본체(631), 케이스(632), 표시부(633), 음성 입력부(634), 음성 출력부(635), 조작 키(636), 외부 접속 포트(637), 안테나(638) 등을 포함한다. 이 휴대전화에서, 표시부(633)에는 본 발명의 발광장치를 적용할 수 있다. 본 발명의 발광장치는 구동 전압이 낮다는 특징을 가지고 있으므로, 본 발명의 발광장치를 적용함으로써 소비 전력이 저감된 휴대전화를 얻을 수 있다.

[0208] 도 6(D)는 본 발명에 관한 카메라이며, 본체(641), 표시부(642), 케이스(643), 외부 접속 포트(644), 리모콘 수신부(645), 수상부(646), 배터리(647), 음성 입력부(648), 조작 키(649), 접안부(650) 등을 포함한다. 이 카메라에서, 표시부(642)에는 본 발명의 발광장치를 적용할 수 있다. 본 발명의 발광장치는 구동 전압이 낮다는 특징을 가지고 있으므로, 본 발명의 발광장치를 적용함으로써 소비 전력이 저감된 카메라를 얻을 수 있다.

[0209] 이상과 같이, 본 발명의 발광장치의 적용 범위는 매우 넓고, 이 발광장치를 모든 분야의 전자기기에 적용하는 것이 가능하다. 본 발명의 발광장치를 이용함으로써, 소비 전력이 저감된 전자기기를 얻을 수 있다.

[0210] 또한, 본 발명의 발광장치는 조명장치로서 이용할 수도 있다. 도 7은 본 발명의 발광장치를 백라이트로서 이용한 액정표시장치의 일례이다. 도 7에 나타낸 액정표시장치는 케이스(701), 액정층(702), 백라이트(703), 케이스(704)를 가지고, 액정층(702)은 드라이버 IC(705)와 접속되어 있다. 또한, 백라이트(703)는 본 발명의 발광장치가 이용되며, 단자(706)에 의해, 전류가 공급된다.

[0211] 이와 같이 본 발명의 발광장치를 액정표시장치의 백라이트로서 이용함으로써, 저소비 전력의 백라이트를 얻을 수 있다. 또한, 본 발명의 발광장치는 면발광의 조명장치이며 대면적화도 가능하기 때문에, 백라이트의 대면적화도 가능하다. 따라서, 저소비 전력이며, 대면적화된 액정표시장치를 얻을 수 있다.

[0212] 도 8은 본 발명을 적용한 발광장치를 조명장치인 전기 스탠드로서 이용한 예이다. 도 8에 나타낸 전기 스탠드는 케이스(801)와 광원(802)을 가지고, 광원(802)으로서 본 발명의 발광장치가 이용된다. 본 발명의 발광장치는 구동 전압이 낮은 발광소자를 가지기 때문에, 저소비 전력의 전기 스탠드로서 이용하는 것이 가능하게 된다.

[0213] 도 9는 본 발명을 적용한 발광장치를 실내의 조명장치(901)로서 이용한 예이다. 본 발명의 발광장치는 대면적

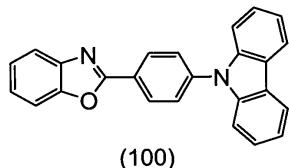
화도 가능하기 때문에, 대면적의 조명장치로서 이용할 수 있다. 또한, 본 발명의 발광장치는 구동 전압이 낮은 발광소자를 가지기 때문에, 저소비 전력의 조명장치로서 이용하는 것이 가능하게 된다. 이와 같이, 본 발명을 적용한 발광장치를 실내의 조명장치(901)로서 이용한 방에, 도 6(A)에 설명한 바와 같은 본 발명에 관한 텔레비전 장치(902)를 설치하여 공공 방송이나 영화를 감상할 수 있다.

[0214] 또한, 본 실시형태 5에서는 실시형태 1~5에 나타낸 구성을 적절히 조합하여 이용할 수 있다.

[0215] [실시예 1]

[0216] 본 실시예 1에서는 구조식 (100)으로 나타내어지는 본 발명의 벤조옥사졸 유도체인 9-[4-(벤조옥사졸-2-일)페닐]-9H-카르바졸(약칭: CzBox)의 합성 방법에 대하여 구체적으로 설명한다.

[0217] [구조식 (100)]



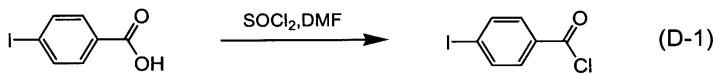
[0218]

[0219] [스텝 1: 2-(4-요오드페닐)벤조옥사졸의 합성]

[0220] (i) 4-요오드벤조일클로라이드의 합성

[0221] 4-요오드벤조일클로라이드의 합성 스킴을 (D-1)에 나타낸다.

[0222] [합성 스ქ (D-1)]



[0223]

[0224] 4-요오드 안식향산 25 g(0.10 mmol)을 200 mL의 3구 플라스크에 넣고, 염화 티오닐 70 mL, N,N-디메틸포름아미드(DMF) 3방울을 첨가했다. 이 혼합물을 질소 기류하, 80°C에서 3시간 교반했다. 교반 후, 반응 용액을 감압 증류하고 반응 용액 중의 염화티오닐을 제거하여, 담황색 유상 물질을 얻었다.

[0225]

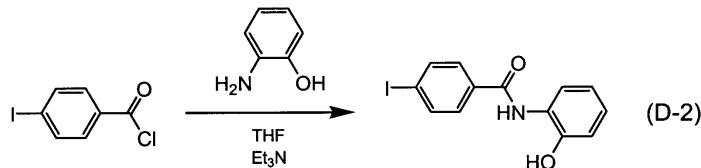
(ii) 4-요오드-N-(2-하이드록시페닐)벤즈아미드의 합성

[0226]

4-요오드-N-(2-하이드록시페닐)벤즈아미드의 합성 스ქ을 (D-2)에 나타낸다.

[0227]

[합성 스ქ (D-2)]



[0228]

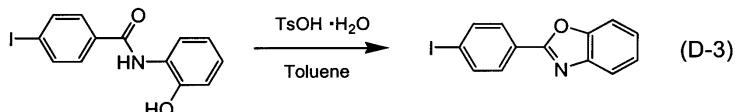
[0229] 2-아미노페놀 10 g(92 mmol), 트리에틸아민 7.0 mL를 300 mL의 3구 플라스크에 넣고, 테트라하이드로퓨란(THF) 100 mL를 첨가했다. 이 용액을 0°C에서 20분 교반했다. 교반 후, 4-요오드 안식향산 클로라이드(0.10 mol)와 테트라하이드로퓨란(약칭: THF) 100 mL의 혼합 용액을 적하했다. 이 용액을 질소 기류하, 0°C에서 5시간 교반 했다. 교반 후, 이 용액을 약 300 mL의 물에 첨가하여 초산에틸로 추출했다. 추출 후, 유기층과 추출 용액을

합하여 1 M의 염산, 포화 탄산수소나트륨 수용액, 포화 식염수의 순으로 세정했다. 세정 후, 유기층에 황산마그네슘을 첨가하여 건조시켰다. 건조 후, 이 혼합물을 셀라이트(와코 순약 공업주식회사, 카탈로그 번호: 531-16855)를 통해 흡인 여과하여 여과액을 얻었다. 얻어진 여과액을 농축하여 얻은 고체를 초산에틸과 헥산의 혼합 용매로 재결정한 결과, 분말상 백색 고체를 수량 30 g, 합성 스킴 (D-1), (D-2), 2 단계의 수율 97%로 얻었다.

[0230] (iii) 2-(4-요오드페닐)벤조옥사졸의 합성

[0231] 2-(4-요오드페닐)벤조옥사졸의 합성 스킴을 (D-3)에 나타낸다.

[0232] [합성 스킴 (D-3)]



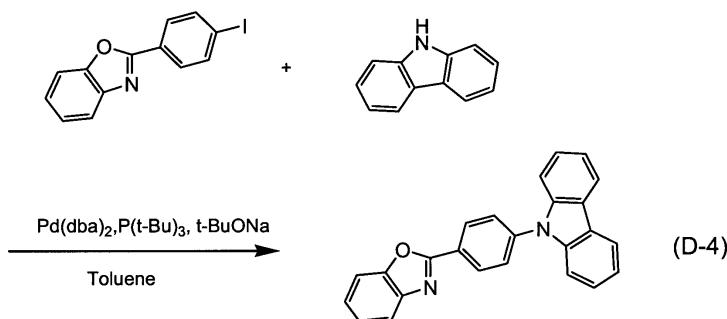
[0233]

[0234] 4-요오드-N-(2-하이드록시페닐)벤즈아미드 15 g(44 mmol), 파라-톨루엔술폰산 · 1 수화물 24 g(0.14 mol)을 300 mL의 3구 플라스크에 넣고, 이 플라스크 내를 질소 치환했다. 이 혼합물을 톨루엔 300 mL를 첨가했다. 이 혼합물을 질소 기류하, 110°C에서 4시간 교반했다. 교반 후, 반응 혼합물을 약 300 mL의 물에 첨가하고, 이 혼합물의 수중을 초산에틸로 추출했다. 추출 후, 유기층과 추출 용액을 합하여 포화 탄산수소나트륨 수용액, 포화 식염수의 순으로 세정했다. 세정 후, 유기층에 황산마그네슘을 첨가하여 건조시켰다. 건조 후, 이 혼합물을 셀라이트를 통해 흡인 여과하여 여과액을 얻었다. 얻어진 여과액을 농축하여 얻은 고체를 초산에틸과 헥산의 혼합 용매에 의해 재결정한 결과, 분말상 백색 고체를 수량 11 g, 수율 75%로 얻었다.

[0235] [스텝 2: 9-[4-(벤조옥사졸-2-일)페닐]-9H-카르바졸(약칭: CzB0x)의 합성]

[0236] 9-[4-(벤조옥사졸-2-일)페닐]-9H-카르바졸(약칭: CzB0x)의 합성 스킴을 (D-4)에 나타낸다.

[0237] [합성 스킴 (D-4)]



[0238]

[0239] 2-(4-요오드페닐)벤조옥사졸 1.5 g(4.7 mmol), 9H-카르바졸 0.78 g(4.7 mmol), 나트륨 tert-부톡시드 0.99 g(10 mmol)을 100 mL의 3구 플라스크에 넣고, 이 플라스크 내를 질소 치환했다. 이 혼합물을 톨루엔 15 mL를 첨가하고, 이 혼합물을 감압 탈기한 후, 플라스크 내를 질소 치환했다. 이 혼합물에 트리(tert-부틸)포스핀의 10% 헥산 용액 0.10 mL, 비스(디벤질리덴아세톤)팔라듐(0) 0.030 g(0.48 mmol)을 첨가하고, 질소 기류하, 110 °C에서 11시간 교반했다. 교반 후, 이 혼합물에 톨루엔을 첨가하고, 이 혼합물을 1 M 희염산, 포화 탄산수소나트륨 수용액, 포화 식염수의 순으로 세정했다. 세정 후, 유기층에 황산마그네슘을 첨가하여 건조시켰다. 건조 후, 이 혼합물을 흡인 여과하여 여과액을 얻었다. 얻어진 여과액을 셀라이트(와코 순약 공업주식회사, 카탈로그 번호: 531-16855)를 통해 흡인 여과하여 여과액을 얻었다. 얻어진 여과액을 농축하여 실리카 젤 칼럼 크로

마토그래피에 의한 정제를 행하였다. 칼럼 크로마토그래피는, 먼저, 툴루엔 : 헥산 = 1 : 1의 혼합 용매를 전개 용매로서 이용하고, 다음에 툴루엔을 전개 용매로서 이용하여 행하였다. 얻어진 분율을 농축하여 얻은 고체를 클로로포름과 메탄올의 혼합 용매로 재결정한 결과, 분말상 백색 고체를 수량 1.5 g, 수율 89%로 얻었다.

[0240] 얻어진 백색 고체 1.5 g의 승화 정제를 트레인 서브리메이션(train sublimation)법에 의해 행하였다. 승화 정제는 7.0 Pa의 감압하, 아르곤의 유량을 4 mL/min로 하여 170°C에서 18시간 행하였다. 수량 1.1 g, 수율은 72% 였다.

[0241] 상기 스텝 2를 통해 얻어진 화합물을 핵자기 공명법(NMR)에 의해 측정했다. 이하에 측정 데이터를 나타낸다.
 ^1H NMR(CDCl₃, 300 MHz) : δ = 7.29–7.55(m, 8H), 7.61–7.67(m, 1H), 7.74–7.85(m, 3H), 8.16(d, J = 7.3 Hz, 2H), 8.51(d, J = 8.3 Hz, 2H).

[0242] 또한, ^1H NMR 차트를 도 11(a), 도 11(b)에 나타낸다. 또한, 도 11(b)은 도 11(a)에서의 7 ppm에서 9 ppm의 범위를 확대하여 나타낸 차트이다. 측정 결과로부터, 상술한 구조식 (100)으로 나타내어지는 본 발명의 벤조옥사졸 유도체인 9-[4-(벤조옥사졸-2-일)페닐]-9H-카르바졸(약칭: CzB0x)이 얻어진 것을 알 수 있었다.

[0243] 또한, CzB0x(약칭)의 툴루엔 용액의 흡수 스펙트럼을 도 12(a), CzB0x(약칭)의 박막의 흡수 스펙트럼을 도 12(b)에 나타낸다. 측정에는 자외 가시 분광 광도계(일본 분광 주식회사제, V550형)를 이용했다. CzB0x(약칭)의 툴루엔 용액 중에 있어서의 흡수 스펙트럼의 측정은 CzB0x(약칭)의 툴루엔 용액을 석영 셀에 넣어 측정하고, 석영과 툴루엔의 흡수 스펙트럼을 뺏으로써 행하였다. 또한, CzB0x(약칭)의 박막의 흡수 스펙트럼은 석영 기판에 CzB0x(약칭)를 증착시켜 샘플을 제작하고, 석영의 흡수 스펙트럼 뺏으로써 측정하였다.

[0244] 도 12(a) 및 도 12(b)에서 횡축은 파장(nm), 종축은 흡수 강도(임의 단위)를 나타낸다. 툴루엔 용액의 경우에는 342 nm 부근에 흡수 피크가 관찰되고, 박막의 경우에는 346 nm 부근에 흡수 피크가 관찰되었다. 또한, CzB0x(약칭)의 툴루엔 용액(여기 파장 333 nm)의 발광 스펙트럼을 도 12(a)에 나타낸다. 또한, CzB0x(약칭)의 박막(여기 파장 345 nm)의 발광 스펙트럼을 도 12(b)에 나타낸다. 도 12(a) 및 도 12(b)에서 횡축은 파장(nm), 종축은 발광 강도(임의 단위)를 나타낸다. 최대 발광 파장은 툴루엔 용액의 경우에는 388 nm(여기 파장 333 nm), 박막의 경우에 422 nm(여기 파장 345 nm)이었다.

[0245] 또한, CzB0x(약칭)의 박막 상태에서의 이온화 포텐셜을 대기 중의 광전자 분광법(리켄 계기사제, AC-2)으로 측정한 결과, 5.88 eV였다. 그 결과, HOMO 준위가 -5.88 eV인 것을 알 수 있었다. 또한, CzB0x(약칭)의 박막의 흡수 스펙트럼의 데이터를 이용하여, 직접 천이를 가정한 Tauc 플롯으로부터 흡수단을 구하고, 그 흡수단을 광학적 에너지 갭으로서 추측한 결과, 그 에너지 갭은 3.30 eV였다. 얻어진 에너지 갭의 값과 HOMO 준위로부터 LUMO 준위를 구한 결과, -2.58 eV였다.

[0246] 또한, CzB0x(약칭)의 산화 환원 반응 특성을 측정했다. 산화 환원 반응 특성은 사이클릭 볼타메트리(CV) 측정에 의해 조사했다. 또한 측정에는 전기 화학 애널라이저(BAS(주)제, 제품번호: ALS 모델 600 A)를 이용했다.

[0247] CV 측정에서의 용액은 용매로서 탈수 디메틸포름아미드(DMF)((주)알도리치제, 99.8%, 카탈로그 번호: 22705-6)를 이용하고, 지지 전해질인 과염소산 테트라-n-부틸암모늄(n-Bu₄NClO₄)((주)도쿄화성제, 카탈로그 번호: T0836)을 100 mmol/L의 농도가 되도록 용해시켰다. 또한, 측정 대상인 CzB0x(약칭)를 2 mmol/L의 농도가 되도록 용해시켰다. 또한, 작용 전극으로서는 백금 전극(BAS(주)제, PTE 백금 전극)을, 보조 전극으로서는 백금 전극(BAS(주)제, VC-3용 Pt 카운터 전극(5 cm))을, 참조 전극으로서는 Ag/Ag⁺ 전극(BAS(주)제, RE7 비수용매계 참조 전극)을 각각 이용했다. 또한, 측정은 실온에서 행하였다.

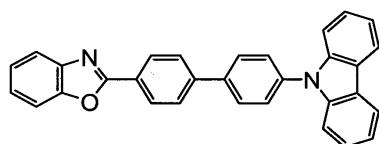
[0248] CzB0x(약칭)의 산화 반응 특성에 대해서는 다음과 같이 하여 조사했다. 참조 전극에 대한 작용 전극의 전위를 -0.27 V로부터 1.20 V까지 변화시킨 후, 1.20 V로부터 -0.27 V까지 변화시키는 주사를 1 사이클로 하여, 100 사이클을 측정했다. 또한, CzB0x(약칭)의 환원 반응 특성에 대해서는 다음과 같이 하여 조사했다. 참조 전극에 대한 작용 전극의 전위를 -1.68 V로부터 -2.45 V까지 변화시킨 후, -2.45 V로부터 -1.68 V까지 변화시키는 주사를 1 사이클로 하여, 100 사이클을 측정했다. 또한, CV 측정의 스캔 속도는 0.1 V/s로 설정했다.

[0249] 측정의 결과, 100 사이클 측정 후에도 산화 환원 반응에서, CV 곡선의 피크 위치나 피크 강도에 그다지 변화가 관찰되지 않았다. 이것으로부터, 본 발명의 벤조옥사졸 유도체인 CzB0x(약칭)는 산화 환원 반응에 대하여 매우 안정적이라는 것을 알 수 있었다.

[0250] [실시예 2]

[0251] 본 실시예 2에서는 구조식 (200)으로 나타내어지는 본 발명의 벤조옥사졸 유도체인 9-[4'-(벤조옥사졸-2-일)비페닐-4-일]-9H-카르바졸(약칭: CzPBOx)의 합성 방법에 대하여 구체적으로 설명한다.

[0252] [구조식 (200)]



(200)

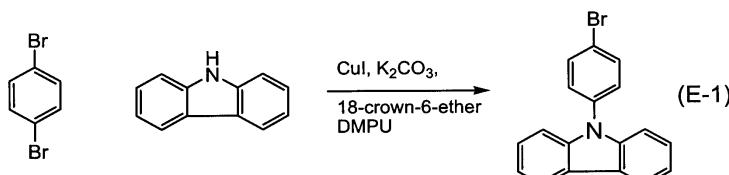
[0253]

[0254] [스텝 1: 4-(9H-카르바졸-9-일)페닐보론산의 합성]

[0255] (i) 9-(4-브로모페닐)-9H-카르바졸의 합성

[0256] 9-(4-브로모페닐)-9H-카르바졸의 합성 스킴을 (E-1)에 나타낸다.

[0257] [합성 스ქ (E-1)]



[0258]

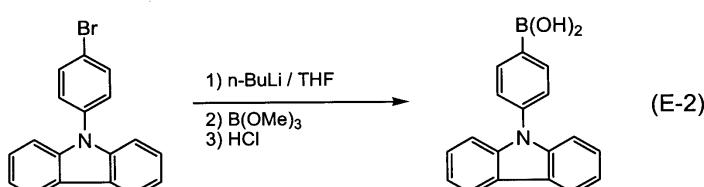
[0259] 1,4-디브로모벤젠을 56 g(240 mmol), 9H-카르바졸을 31 g(180 mmol), 요오드화구리(I)를 4.6 g(24 mmol), 18-크라운-6-에테르를 2.1 g(8.0 mmol), 탄산칼륨을 66 g(480 mmol), 1,3-디메틸-3,4,5,6-테트라하이드로-2(1H)-파리미디논(약칭: DMPU)을 8 mL, 300 mL의 3구 플라스크에 넣었다. 이 혼합물을 질소 기류하, 180°C에서 6시간 교반했다. 교반 후, 이 혼합물을 여과하고, 얻어진 여과액을 희염산, 포화 탄산수소나트륨 수용액, 포화 식염수의 순으로 세정했다. 유기층을 황산마그네슘에 의해 건조시켰다. 이 혼합물을 여과하고, 얻어진 여과액을 농축하여 얻은 화합물을 실리카 겔 칼럼 크로마토그래피(전개 용매 헥산 : 초산에틸 = 9 : 1)에 의해 정제했다. 얻어진 분율을 농축하여 얻은 화합물을 클로로포름과 헥산의 혼합 용매에 의해 재결정한 결과, 목적물인 담갈색 플레이트상의 결정을 수량 21g, 수율 35%로 얻었다.

[0260]

(ii) 4-(9H-카르바졸-9-일)페닐보론산의 합성

[0261] 4-(9H-카르바졸-9-일)페닐보론산의 합성의 합성 스ქ을 (E-2)에 나타낸다.

[0262] [합성 스ქ (E-2)]



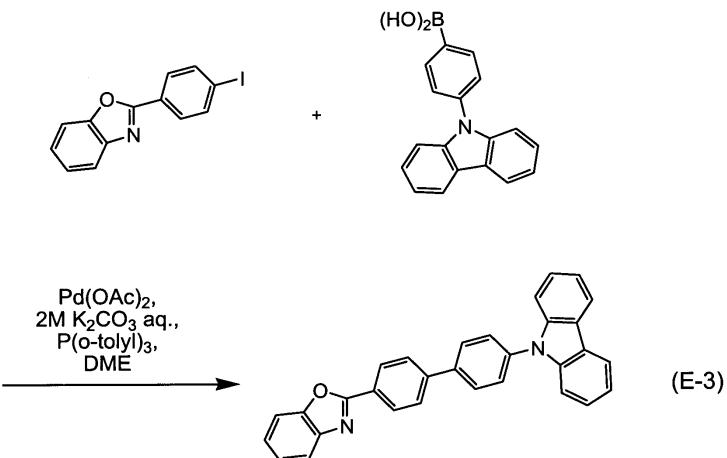
[0263]

[0264] 9-(4-브로모페닐)-9H-카르바졸-21.8 g(67.5 mmol)을 500 mL의 3구 플라스크에 넣고, 플라스크 내를 질소 치환하여, 테트라하이드로퓨란(THF) 200 mL를 첨가했다. 이 용액을 -78°C로 하고 나서, n-부틸리튬(1.52 mol/L 헥산 용액) 48.9 mL(74.3 mmol)을 적하하여, 같은 온도에서 2시간 교반했다. 그 후, 봉산트리메틸 17.4 mL(155 mmol)을 첨가하여, 같은 온도에서 1시간 교반한 후, 실온으로 복귀시키면서 24시간 교반했다. 교반 후, 이 용액에 1.0 mol/L 염산 200 mL를 첨가하여, 실온에서 1시간 교반했다. 혼합물의 유기층을 물로 세정하고, 수층을 초산에틸로 추출했다. 추출 용액을 유기층과 합하여 포화 식염수로 세정한 후, 황산마그네슘으로 건조시켰다. 건조 후, 이 혼합물을 흡인 여과하고, 여과액을 농축했다. 얻어진 잔사(殘渣)를 클로로포름과 헥산의 혼합 용매에 의해 재결정한 결과, 목적물인 4-(9H-카르바졸-9-일)페닐보론산의 백색 분말상 고체를 13 g, 수율 66%로 얻었다.

[0265] [스텝 2: 9-[4'-(벤조옥사졸-2-일)비페닐-4-일]-9H-카르바졸(약칭: CzPBOx)의 합성]

[0266] 9-[4'-(벤조옥사졸-2-일)비페닐-4-일]-9H-카르바졸(약칭: CzPBOx)의 합성 스ქ을 (E-3)에 나타낸다.

[0267] [합성 스ქ (E-3)]



[0268]

[0269] 2-(4-요오드페닐)벤조옥사졸 1.0 g(3.1 mmol), 4-(9H-카르바졸-9-일)페닐보론산 0.90 g(3.1 mmol), 트리(오르토-톨릴)포스핀 0.067 g(0.22 mmol)을 100 mL의 3구 플라스크에 넣었다. 이 혼합물에 1,2-디메톡시에탄(약칭: DME) 30 mL, 2 M 탄산칼륨 수용액 30 mL를 첨가하고, 이 혼합물을 감압 탈기한 후, 이 플라스크 내를 질소 치환했다. 이 혼합물에 초산팔라듐(II) 7.0 mg(0.031 mmol)을 첨가하고, 이 혼합물을 90°C에서 5시간 가열 교반했다. 교반 후, 이 혼합물에 톨루엔을 첨가하고, 유기층을 포화 탄산나트륨 수용액, 포화 식염수의 순으로 세정했다. 세정 후, 유기층에 황산마그네슘을 첨가하여 건조시켰다. 건조 후, 이 혼합물을 흡인 여과하여 여과액을 얻었다. 얻어진 여과액을 셀라이트(와코 순약 공업 주식회사, 카탈로그 번호: 531-16855)를 통해 흡인 여과하여 여과액을 얻었다. 얻어진 여과액을 농축하여, 실리카 젤 칼럼 크로마토그래피에 의한 정제를 행하였다. 크로마토그래피는 톨루엔을 전개 용매로서 이용함으로써 행하였다. 얻어진 분율을 농축하여 얻은 고체를 클로로포름과 메탄올의 혼합 용매로 재결정한 결과, 분말상 백색 고체를 수량 1.2 g, 수율 88%로 얻었다.

[0270] 얻어진 백색 고체 1.2 g의 승화 정제를 트레인 서브리메이션법에 의해 행하였다. 승화 정제는 7.0 Pa의 감압하, 아르곤의 유량을 4 mL/min으로 하여 220°C에서 19시간 행하였다. 수량 1.1 g, 수율은 90%였다.

[0271] 상기 스텝 2를 통해 얻어진 화합물을 핵자기 공명법(NMR)에 의해 측정했다. 이하에 측정 데이터를 나타낸다.

^1H NMR(CDCl3, 300 MHz) : δ = 7.27-7.52(m, 8H), 7.59-7.64(m, 1H), 7.69(d, J = 8.3 Hz, 2H), 7.79-7.92(m, 5H), 8.17(d, J = 7.8 Hz, 2H), 8.40(d, J = 8.3 Hz, 2H).

[0272] 또한, ^1H NMR 차트를 도 13(a), 도 13(b)에 나타낸다. 또한, 도 13(b)은 도 13(a)에서의 7 ppm로부터 8.5 ppm의 범위를 확대하여 나타낸 차트이다. 측정 결과로부터, 상술한 구조식 (200)으로 나타내어지는 본 발명의 벤조옥사졸 유도체인 9-[4'-(벤조옥사졸-2-일)비페닐-4-일]-9H-카르바졸(약칭: CzPBOx)이 얻어진 것을 알 수 있었

다.

[0273] 또한, CzPBOx(약칭)의 톨루엔 용액의 흡수 스펙트럼을 도 14(a), CzPBOx(약칭)의 박막의 흡수 스펙트럼을 도 14(b)에 나타낸다. 측정에는 자외 가시 분광 광도계(일본 분광 주식회사제, V550형)를 이용했다. CzPBOx(약칭)의 톨루엔 용액 중에서의 흡수 스펙트럼의 측정은 CzPBOx(약칭)의 톨루엔 용액을 석영 셀에 넣어 측정하고, 석영과 톨루엔의 흡수 스펙트럼을 뺏으로써 행하였다. 또한, CzPBOx(약칭)의 박막의 흡수 스펙트럼은 석영 기판에 CzPBOx(약칭)를 증착시켜 샘플을 제작하고, 석영의 흡수 스펙트럼 뺏으로써 측정하였다.

[0274] 도 14(a) 및 도 14(b)에서 횡축은 파장(nm), 종축은 흡수 강도(임의 단위)를 나타낸다. 톨루엔 용액의 경우에는 339 nm 부근에 흡수 피크가 관찰되고, 박막의 경우에는 345 nm 부근에 흡수 피크가 관찰되었다. 또한, CzPBOx(약칭)의 톨루엔 용액(여기 파장 345 nm)의 발광 스펙트럼을 도 14(a)에 나타낸다. 또한, CzPBOx(약칭)의 박막(여기 파장 363 nm)의 발광 스펙트럼을 도 14(b)에 나타낸다. 도 14(a) 및 도 14(b)에서 횡축은 파장(nm), 종축은 발광 강도(임의 단위)를 나타낸다. 최대 발광 파장은 톨루엔 용액의 경우에는 397 nm(여기 파장 345 nm), 박막의 경우에 428 nm(여기 파장 363 nm)이었다.

[0275] 또한, CzPBOx(약칭)의 박막 상태에서의 이온화 포텐셜을 대기 중의 광전자 분광법(리캔 계기사제, AC-2)으로 측정한 결과, 5.76 eV였다. 그 결과, HOMO 준위가 -5.79 eV인 것을 알 수 있었다. 또한, CzPBOx(약칭)의 박막의 흡수 스펙트럼의 데이터를 이용하여, 직접 천이를 가정한 Tauc 플롯으로부터 흡수단을 구하고, 그 흡수단을 광학적 에너지 캡으로서 추측한 결과, 그 에너지 캡은 3.32 eV였다. 얻어진 에너지 캡의 값과 HOMO 준위로부터 LUMO 준위를 구한 결과, -2.44 eV였다.

[0276] 또한, CzPBOx(약칭)의 산화 환원 반응 특성에 대해서는, 실시예 1과 같은 방법을 이용하여 측정했다. 구체적으로는, 참조 전극에 대한 작용 전극의 전위를 1.10 V로부터 0.20 V까지 변화시킨 후, 0.20 V로부터 1.10 V까지 변화시키는 주사를 1 사이클로 하여, 100 사이클 측정했다. 또한, CzB0x(약칭)의 환원 반응 특성에 대해서는 다음과 같이 하여 조사했다. 참조 전극에 대한 작용 전극의 전위를 -1.39 V로부터 -2.35 V까지 변화시킨 후, -2.35 V로부터 -1.39 V까지 변화시키는 주사를 1 사이클로 하여, 100 사이클 측정했다. 또한, CV 측정의 스캔 속도는 0.1 V/s로 설정했다.

[0277] 측정의 결과, 100 사이클 측정 후에도 산화 환원 반응에서, CV 곡선의 피크 위치나 피크 강도에 그다지 변화가 관찰되지 않았다. 이것으로부터, 본 발명의 벤조옥사졸 유도체인 CzPBOx(약칭)는 산화 환원 반응의 반복에 대하여 매우 안정적이라는 것을 알 수 있었다.

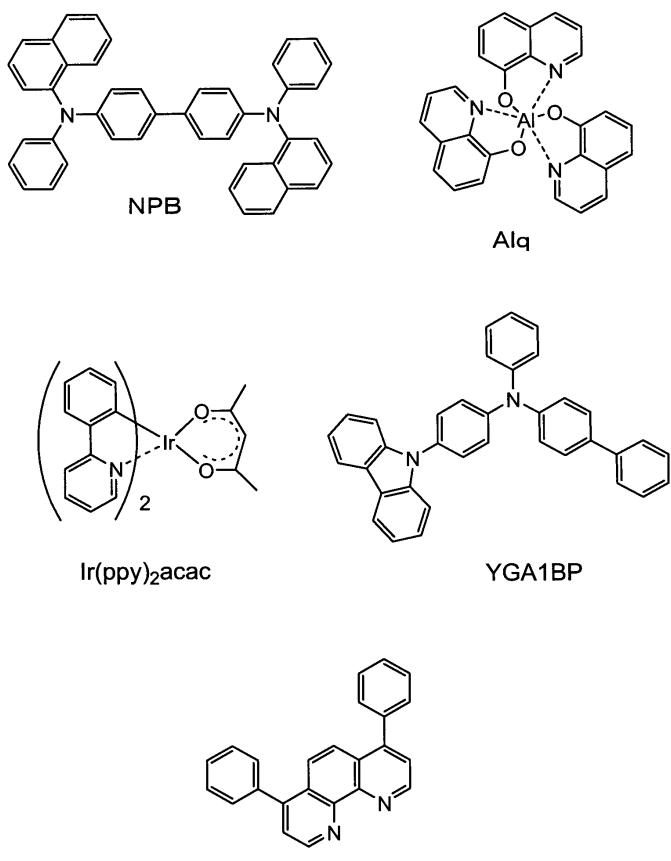
[0278] [실시예 3]

[0279] 본 실시예에서는 실시형태 1에 기재된 벤조옥사졸 유도체를 발광층의 호스트 재료로서 이용한 발광소자의 제작 방법 및 소자 특성의 측정 결과를 나타낸다. 구체적으로는, 실시예 1에서 설명한 9-[4-(벤조옥사졸-2-일)페닐]-9H-카르바졸(약칭: CzB0x)을 이용하여 형성한 발광소자 1, 실시예 2에서 설명한 9-[4'-(벤조옥사졸-2-일)비페닐-4-일]-9H-카르바졸(약칭: CzPBOx)을 이용하여 형성한 발광소자 2에 대하여 나타낸다.

[0280] 또한, 본 실시예에서의 발광소자의 소자 구조는 도 10에 나타낸 구조이며, 발광층(1513)에 상술한 본 발명의 벤조옥사졸 유도체를 이용하여 형성한 것이다. 본 실시예에서 이용하는 유기 화합물의 구조식을 이하에 나타낸다.

[0281]

[구조식 61]



[0282]

[0283]

먼저, 유리 기판인 기판(1501) 위에, 산화규소를 포함하는 산화인듐-산화주석을 스퍼터링법으로 성막하고, 제1 전극(1502)을 형성했다. 또한, 그 막 두께는 110 nm로 하고, 전극 면적은 2 mm×2 mm로 했다.

[0284]

다음에, 제1 전극(1502) 위에 복수의 층이 적층된 EL층(1503)을 형성한다. 본 실시예에서, EL층(1503)은 정공 주입층인 제 1 층(1511), 정공 수송층인 제 2 층(1512), 발광층인 제 3 층(1513), 전자 수송층인 제 4 층(1514), 전자 주입층인 제 5 층(1515)이 순차 적층된 구조를 가진다.

[0285]

제1 전극(1502)이 형성된 면이 하방이 되도록, 제1 전극(1502)이 형성된 기판(1501)을 진공 증착 장치 내에 설치된 기판 홀더에 고정하여, 10^{-4} Pa 정도까지 감압한 후, 제1 전극(1502) 위에, 4,4'-비스[N-(1-나프틸)-N-페닐아미노]비페닐(약칭: NPB)과 산화몰리브덴(VI)을 공증착함으로써, 정공 주입층인 제 1 층(1511)을 형성했다. 그 막 두께는 40 nm로 하고, NPB와 산화몰리브덴(VI)의 비율은 중량비로 4 : 1 = (NPB : 산화몰리브덴)이 되도록 증착 레이트를 조절했다. 또한, 공증착법이란, 하나의 처리실 내에서 복수의 증발원으로부터 동시에 증착을 행하는 증착법이다.

[0286]

다음에, 저항 가열을 이용한 증착법에 의해, 제 1 층(1511) 위에 정공 수송성 재료를 20 nm의 막 두께가 되도록 성막하고, 정공 수송층인 제 2 층(1512)을 형성했다. 또한, 제 2 층(1512)에는 4-(9H-카르바졸-9-일)-4'-페닐트리페닐아민(약칭: YGA1BP)을 이용했다.

[0287]

다음에, 저항 가열을 이용한 증착법에 의해, 제 2 층(1512) 위에, 발광층인 제 3 층(1513)을 형성했다. 또한, 발광소자 1을 형성하는 경우에는 9-[4-(벤조옥사졸-2-일)페닐]-9H-카르바졸(약칭: CzB0x)과 비스(2-페닐파리디나토-N,C^{2'})아리듐(III)아세틸아세토네이트(약칭: Ir(ppy)₂acac)를 공증착함으로써 제 3 층(1513)을 40 nm의 막 두께로 형성했다. 여기서, CzB0x와 Ir(ppy)₂acac와의 중량비는 1 : 0.06 (= CzB0x : Ir(ppy)₂acac)이 되도록 증착 레이트를 조절했다. 또한, 발광소자 2를 형성하는 경우에는, 9-[4'-(벤조옥사졸-2-일)비페닐-4-일]-9H-카

르바졸(약칭: CzPBOx)와 비스(2-페닐피리디나토-N,C^{2'})이리듐(III)아세틸아세토네이트(약칭: Ir(ppy)₂acac)를 공증착함으로써 제 3 층(1513)을 40 nm의 막 두께로 형성했다. 여기서, CzPBOx와 Ir(ppy)₂acac와의 중량비는 1 : 0.06(= CzPBOx : Ir(ppy)₂acac)이 되도록 증착 레이트를 조절했다.

[0288] 또한, 제 3 층(1513) 위에 저항 가열에 의한 증착법을 이용하여, 트리스(8-퀴놀리놀라토)알루미늄(III)(약칭: Alq)을 10 nm, 그 위에 바소페난트롤린(약칭: BPhen)을 20 nm의 막 두께가 되도록 성막하고, 전자 수송층인 제 4 층(1514)을 형성했다.

[0289] 제 4 층(1514) 위에, 불화리튬(LiF)을 1 nm의 막 두께가 되도록 성막함으로써, 전자 주입층인 제 5 층(1515)을 형성했다.

[0290] 마지막으로, 저항 가열에 의한 증착법을 이용하여, 알루미늄을 200 nm의 막 두께가 되도록 성막함으로써, 제 2 전극(1504)을 형성하여, 발광소자 1 및 발광소자 2를 제작했다.

[0291] 이상에 의해 염어진 발광소자 1 및 발광소자 2를 질소 분위기의 글로브 박스 내에서, 발광소자가 대기에 노출되지 않도록 봉지하는 작업을 행한 후, 이들 발광소자의 동작 특성에 대하여 측정을 행하였다. 또한, 측정은 실온(25°C로 유지된 분위기)에서 행하였다.

[0292] 발광소자 1 및 발광소자 2의 전류 밀도-휘도 특성을 도 15, 전압-휘도 특성을 도 16, 휘도-전류 효율 특성을 도 17에 각각 나타낸다. 도 15에서는 종축에 휘도(cd/m²), 횡축에 전류 밀도(mA/cm²)를 나타내고, 도 16에서는 종축에 휘도(cd/m²), 횡축에 전압(V)을 나타내고, 도 17에서는 종축에 전류 효율(cd/A), 횡축에 휘도(cd/m²)를 나타낸다.

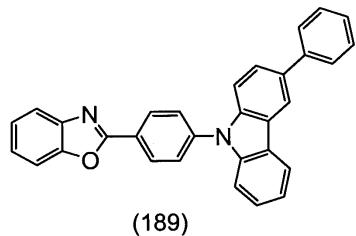
[0293] 또한, 도 17에서, 발광소자 1은 최대로 64 cd/A의 전류 효율을 나타내고, 발광소자 2는 최대로 61 cd/A의 전류 효율을 나타냈다. 따라서, 본 발명의 벤조옥사졸 유도체를 이용한 발광소자는 매우 고효율의 소자인 것을 알 수 있다.

[0294] 또한, 발광소자 1 및 발광소자 2의 발광 스펙트럼을 도 18에 나타낸다. 또한, 도 18에 나타낸 바와 같이 발광소자 1 및 발광소자 2의 어느 경우에도, 계스트 재료인 Ir(ppy)₂acac(약칭) 유래의 발광 파장이 관측되고, 호스트 재료인 본 발명의 벤조옥사졸 유도체(CzBOx(약칭)나 CzPBOx(약칭)) 유래의 발광 파장은 관측되지 않았다. 따라서, 본 발명의 벤조옥사졸 유도체는 발광소자의 발광층에서, 바이폴라성의 호스트 재료로서 기능하고 있는 것을 알 수 있었다.

[0295] [실시예 4]

[0296] 본 실시예 4에서는, 구조식 (189)로 나타내어지는 본 발명의 벤조옥사졸 유도체인 9-[4-(벤조옥사졸-2-일)페닐]-3-페닐-9H-카르바졸(약칭: CzBOxII)의 합성 방법에 대하여 구체적으로 설명한다.

[0297] [구조식 (189)]



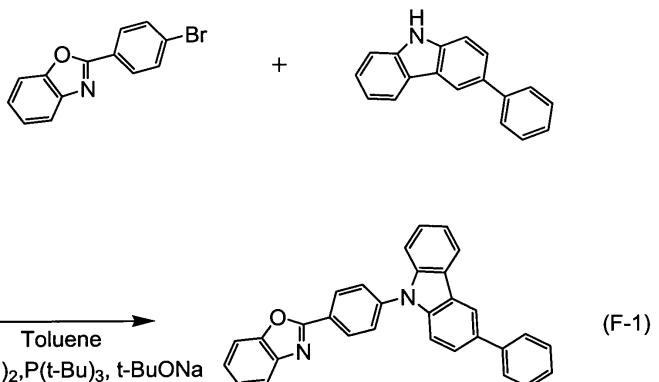
[0298]

[0299] [9-[4-(벤조옥사졸-2-일)페닐]-3-페닐-9H-카르바졸의 합성]

[0300] 9-[4-(벤조옥사졸-2-일)페닐]-3-페닐-9H-카르바졸의 합성 스킴을 (F-1)에 나타낸다.

[0301]

[합성 스Kim (F-1)]



[0302]

[0303]

2-(4-브로모페닐)벤조옥사졸 1.0 g(3.7 mmol), 3-페닐-9H-카르바졸 0.89 g(3.7 mmol), 난트륨 tert-부톡시드 0.77 g(8.0 mmol)을 100 mL의 3구 플라스크에 넣고, 이 플라스크 내를 질소 치환했다. 이 혼합물을 톨루엔 30 mL, 트리(tert-부틸)포스핀의 10% 헥산 용액 0.10 mL를 첨가하고, 이 플라스크 내를 아스피레이터에 의해 감압 함으로써, 이 혼합물을 탈기한 후, 플라스크 내를 질소 치환했다. 이 혼합물에 비스(디벤질리텐아세톤)팔라듐(0) 0.058 g(0.10 mmol)을 첨가하고, 질소 기류하, 80°C에서 15시간 교반했다. 교반 후, 이 혼합물에 톨루엔을 첨가하고, 이 혼탁액을 포화 탄산나트륨 수용액, 포화 식염수의 순으로 세정했다. 세정 후, 유기층에 황산마그네슘을 첨가하여 건조시켰다. 건조 후, 이 혼합물을 흡인 여과하여 여과액을 얻었다.

[0304]

얻어진 여과액을, 셀라이트(545)(키시다 화학제, 카탈로그 번호: 020-14815)를 통해 흡인 여과하여 여과액을 얻었다. 얻어진 여과액을 농축하여 얻은 화합물을 실리카 젤 칼럼 크로마토그래피에 의한 정제를 행하였다. 칼럼 크로마토그래피는 톨루엔을 전개 용매로서 이용하여 행하였다. 얻어진 분율을 농축하여 얻은 고체를 클로로포름과 메탄올의 혼합 용매로 재결정한 결과, 분말상 백색 고체를 수량 1.1 g, 수율 68%로 얻었다.

[0305]

또한, 얻어진 백색 고체 1.1 g의 승화 정제를 트레인 서브리메이션법에 의해 행하였다. 승화 정제는 3.0 Pa의 감압하, 아르곤의 유량을 5 mL/min으로 하여 250°C에서 15시간 행하였다. 수량 0.66 g, 수율은 60%였다.

[0306]

상기 합성 방법에 의해 얻어진 화합물을 핵자기 공명법(NMR)에 의해 측정했다. 이하에 측정 데이터를 나타낸다. ^1H NMR(CDCl_3 , 300 MHz) : δ = 7.30–7.86(m, 16 H), 8.20(d, J = 8.3 Hz, 1H), 8.36(sd, J = 2.0 Hz, 1H), 8.51(d, J = 8.8 Hz, 2H).

[0307]

또한, ^1H NMR 차트를 도 19(a), 도 19(b)에 나타낸다. 또한, 도 19(b)는 도 19(a)에서의 7.0 ppm로부터 9.0 ppm의 범위를 확대하여 나타낸 차트이다. 측정 결과로부터, 상술한 구조식 (189)로 나타내어지는 9-[4-(벤조옥사졸-2-일)페닐]-3-페닐-9H-카르바졸(약칭: CzB0xII)이 얻어진 것을 알 수 있었다.

[0308]

또한, CzB0xII(약칭)의 톨루엔 용액의 흡수 스펙트럼을 도 20(a), CzB0xII(약칭)의 박막의 흡수 스펙트럼을 도 20(b)에 나타낸다. 측정에는 자외 가시 분광 광도계(일본 분광 주식회사제, V550형)를 이용했다. CzB0xII(약칭)의 톨루엔 용액 중에서의 흡수 스펙트럼의 측정은 CzB0xII(약칭)의 톨루엔 용액을 석영 셀에 넣어 측정하고, 석영과 톨루엔의 흡수 스펙트럼을 뺏으로써 행하였다. 또한, CzB0xII(약칭)의 박막의 흡수 스펙트럼은 석영 기판에 CzB0xII(약칭)를 중착시켜 샘플을 제작하고, 석영의 흡수 스펙트럼 뺏으로써 측정하였다.

[0309]

도 20(a) 및 도 20(b)에서 횡축은 파장(nm), 종축은 흡수 강도(임의 단위)를 나타낸다. 톨루엔 용액의 경우에는 348 nm 부근에 흡수 피크가 관찰되고, 박막의 경우에는 355 nm 부근에 흡수 피크가 관찰되었다. 또한, CzB0xII(약칭)의 톨루엔 용액(여기 파장 348 nm)의 발광 스펙트럼을 도 20(a)에 나타낸다. 또한, CzB0xII(약칭)의 박막(여기 파장 365 nm)의 발광 스펙트럼을 도 20(b)에 나타낸다. 도 20(a) 및 도 20(b)에서 횡축은 파장(nm), 종축은 발광 강도(임의 단위)를 나타낸다. 최대 발광 파장은 톨루엔 용액의 경우에는 399 nm(여기 파장 348 nm), 박막의 경우에는 430 nm(여기 파장 365 nm)였다.

[0310]

또한, CzB0xII(약칭)의 박막 상태에서의 이온화 포텐셜을 대기 중의 광전자 분광법(리켄 계기사제, AC-2)으로 측정한 결과, 5.76 eV였다. 그 결과, HOMO 준위가 -5.76 eV인 것을 알 수 있었다. 또한, CzB0xII(약칭)의 박막의 흡수 스펙트럼의 데이터를 이용하여 직접 천이를 가정한 Tauc 플롯으로부터 흡수단을 구하고, 그 흡수단을 광학적 에너지 캡으로서 추측한 결과, 그 에너지 캡은 3.19 eV였다. 얻어진 에너지 캡의 값과 HOMO 준위로부터

LUMO 준위를 구한 결과, -2.57 eV였다. 따라서, CzBoxII는 큰 에너지 갭을 가지는 물질인 것을 알 수 있었다.

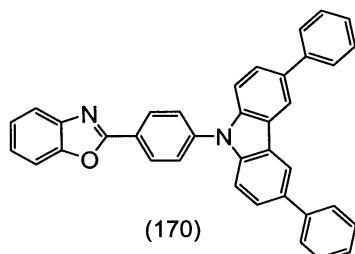
[0311] 또한, CzBoxII(약칭)의 산화 환원 반응 특성에 대해서는 실시예 1과 마찬가지의 방법을 이용하여 측정했다. 구체적으로는, 참조 전극에 대한 작용 전극의 전위를 0.055 V로부터 1.05 V까지 변화시킨 후, 1.05 V로부터 0.055 V까지 변화시키는 주사를 1 사이클로 하여, 100 사이클 측정했다. 또한, CzBoxII(약칭)의 환원 반응 특성에 대해서는 다음과 같이 하여 조사했다. 참조 전극에 대한 작용 전극의 전위를 -1.09 V로부터 -2.45 V까지 변화시킨 후, -2.45 V로부터 -1.09 V까지 변화시키는 주사를 1 사이클로 하여, 100 사이클 측정했다. 또한, CV 측정의 스캔 속도는 0.1 V/s로 설정했다.

[0312] 측정의 결과, 100 사이클 측정 후에도 산화 환원 반응에서, CV 곡선의 피크 위치나 피크 강도에 그다지 변화가 관찰되지 않았다. 이것으로부터, 본 발명의 벤조옥사졸 유도체인 CzBoxII(약칭)는 산화 환원 반응의 반복에 대하여 매우 안정적이라는 것을 알 수 있었다.

[0313] [실시예 5]

[0314] 본 실시예 5에서는 구조식 (170)으로 나타내어지는 본 발명의 벤조옥사졸 유도체인 9-[4-(벤조옥사졸-2-일)페닐]-3,6-디페닐-9H-카르바졸(약칭: CzBoxIII)의 합성 방법에 대하여 구체적으로 설명한다.

[0315] [구조식 (170)]

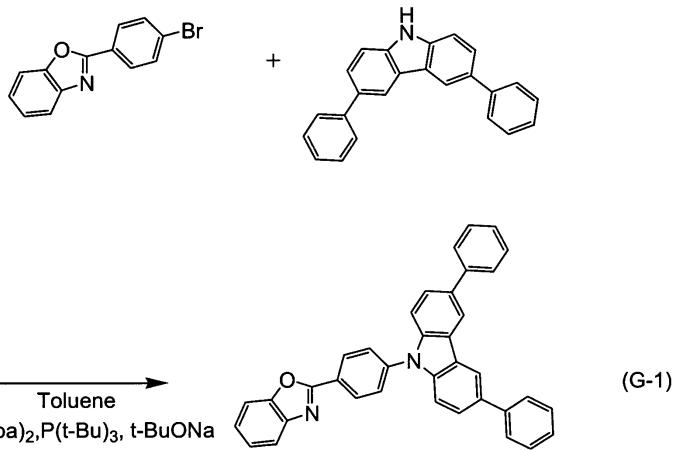


[0316]

[0317] [9-[4-(벤조옥사졸-2-일)페닐]-3,6-디페닐-9H-카르바졸의 합성]

[0318] 9-[4-(벤조옥사졸-2-일)페닐]-3,6-디페닐-9H-카르바졸의 합성 스킴을 (G-1)에 나타낸다.

[0319] [합성 스ქ (G-1)]



[0320]

[0321] 2-(4-브로모페닐)벤조옥사졸 1.0 g(3.7 mmol), 3,6-디페닐-9H-카르바졸-1.2 g(3.7 mmol), 나트륨 tert-부톡시드 0.77 g(8.0 mmol)을 100 mL의 3구 플라스크에 넣고, 이 플라스크 내를 질소 치환했다. 이 혼합물에 톨루엔

15 mL, 트리(tert-부틸)포스핀의 10% 헥산 용액 0.10 mL를 첨가하여, 이 플라스크 내를 아스파레이터에 의해 감압함으로써, 이 혼합물을 탈기한 후, 플라스크 내를 질소 치환했다. 이 혼합물에 비스(디벤질리덴아세톤)팔라듐(0) 0.030 g(0.052 mmol)을 첨가하고, 질소 기류하, 80°C에서 5시간 교반했다. 교반 후, 이 혼합물에 톨루엔을 첨가하고, 이 혼탁액을 셀라이트(545)(키시다 화학제, 카탈로그 번호: 020-14815)를 통해 흡인 여과하여 여과액을 얻었다.

[0322] 얻어진 여과액을 포화 탄산수소나트륨 수용액, 포화 식염수의 순으로 세정했다. 세정 후, 유기층에 황산마그네슘을 첨가하여 건조시켰다. 건조 후, 이 혼합물을 흡인 여과하여 여과액을 얻었다. 얻어진 여과액을 농축하여 얻은 화합물을 실리카 젤 칼럼 크로마토그래피에 의해 정제를 행하였다. 칼럼 크로마토그래피는 톨루엔을 전개 용매로서 이용하여 행하였다. 얻어진 분율을 농축하여 얻은 고체를 디클로로메탄과 에탄올의 혼합 용매로 재결정한 결과, 분말상 백색 고체를 수량 1.8 g, 수율 95%로 얻었다.

[0323] 또한, 얻어진 백색 고체 1.8 g의 승화 정제를 트레인 서브리메이션법에 의해 행하였다. 승화 정제는 4.0 Pa의 감압하, 아르곤의 유량을 5 mL/min으로 하여 280°C에서 21시간 행하였다. 수량 1.5 g, 수율은 83%였다.

[0324] 상기 합성 방법에 의해 얻어진 화합물을 핵자기 공명법(NMR)에 의해 측정했다. 이하에 측정 데이터를 나타낸다. ^1H NMR(CDCl_3 , 300 MHz) : $\delta = 7.32\text{--}7.86(\text{m}, 20 \text{ H})$, 8.41(sd, $J = 2.0 \text{ Hz}$, 2H), 8.53(d, $J = 8.8 \text{ Hz}$, 2H).

[0325] 또한, ^1H NMR 차트를 도 21(a), 도 21(b)에 나타낸다. 또한, 도 21(b)은 도 21(a)에서의 7.0 ppm로부터 9.0 ppm의 범위를 확대하여 나타낸 차트이다. 측정 결과로부터, 상술한 구조식 (170)으로 나타내어지는 9-[4-(벤조옥사졸-2-일)페닐]-3,6-디페닐-9H-카르바졸(약칭: CzB0xIII)이 얻어진 것을 알 수 있었다.

[0326] 또한, CzB0xIII(약칭)의 톨루엔 용액의 흡수 스펙트럼을 도 22(a), CzB0xIII(약칭)의 박막의 흡수 스펙트럼을 도 22(b)에 나타낸다. 측정에는 자외 가시 분광 광도계(일본 분광 주식회사제, V550형)를 이용했다. CzB0xIII(약칭)의 톨루엔 용액 중에서의 흡수 스펙트럼의 측정은 CzB0xIII(약칭)의 톨루엔 용액을 석영 셀에 넣어 측정하고, 석영과 톨루엔의 흡수 스펙트럼을 뺏으로써 행하였다. 또한, CzB0xIII(약칭)의 박막의 흡수 스펙트럼은 석영 기판에 CzB0xIII(약칭)를 증착시켜 샘플을 제작하고, 석영의 흡수 스펙트럼을 뺏으로써 측정하였다.

[0327] 도 22(a) 및 도 22(b)에서 횡축은 파장(nm), 종축은 흡수 강도(임의 단위)를 나타낸다. 톨루엔 용액의 경우에는 356 nm 부근에 흡수 피크가 관찰되고, 박막의 경우에는 362 nm 부근에 흡수 피크가 관찰되었다. 또한, CzB0xIII(약칭)의 톨루엔 용액(여기 파장 356 nm)의 발광 스펙트럼을 도 22(a)에 나타낸다. 또한, CzB0xIII(약칭)의 박막(여기 파장 365 nm)의 발광 스펙트럼을 도 22(b)에 나타낸다. 도 22(a) 및 도 22(b)에서 횡축은 파장(nm), 종축은 발광 강도(임의 단위)를 나타낸다. 최대 발광 파장은 톨루엔 용액의 경우에는 403 nm(여기 파장 356 nm), 박막의 경우에 442 nm(여기 파장 365 nm)였다.

[0328] 또한, CzB0xIII(약칭)의 박막 상태에서의 이온화 포텐셜을 대기 중의 광전자 분광법(리켄 계기사제, AC-2)으로 측정한 결과, 5.88 eV였다. 그 결과, HOMO 준위가 -5.88 eV인 것을 알 수 있었다. 또한, CzB0xIII(약칭)의 박막의 흡수 스펙트럼의 데이터를 이용하여 직접 천이를 가정한 Tauc 플롯으로부터 흡수단을 광학적 에너지 갭으로서 추측한 결과, 그 에너지 갭은 3.15 eV였다. 얻어진 에너지 갭의 값과 HOMO 준위로부터 LUMO 준위를 구한 결과, -2.73 eV였다. 따라서, CzB0xIII는 큰 에너지 갭을 가지는 물질인 것을 알 수 있었다.

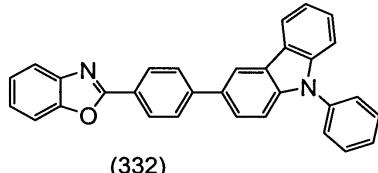
[0329] 또한, CzB0xIII(약칭)의 산화 환원 반응 특성에 대해서는 실시예 1과 같은 방법을 이용하여 측정했다. 구체적으로는, 참조 전극에 대한 작용 전극의 전위를 0.155 V로부터 1.05 V까지 변화시킨 후, 1.05 V로부터 0.155 V까지 변화시키는 주사를 1 사이클로 하여, 100 사이클을 측정했다. 또한, CzB0xIII(약칭)의 환원 반응 특성에 대해서는 다음과 같이 하여 조사했다. 참조 전극에 대한 작용 전극의 전위를 -1.04 V로부터 -2.45 V까지 변화시킨 후, -2.45 V로부터 -1.04 V까지 변화시키는 주사를 1 사이클로 하여, 100 사이클을 측정했다. 또한, CV 측정의 스캔 속도는 0.1 V/s로 설정했다.

[0330] 측정의 결과, 100 사이클 측정 후에도 산화 환원 반응에서, CV 곡선의 피크 위치나 피크 강도에 그다지 변화가 관찰되지 않았다. 이것으로부터, 본 발명의 벤조옥사졸 유도체인 CzB0xIII(약칭)는 산화 환원 반응에 대하여 매우 안정적이라는 것을 알 수 있었다.

[0331] [실시예 6]

[0332] 본 실시예 6에서는 구조식 (332)로 나타내어지는 본 발명의 벤조옥사졸 유도체인 3-(4-(벤조옥사졸-2-일)페닐)-9-페닐-9H-카르바졸(약칭: PCBOx)의 합성 방법에 대하여 구체적으로 설명한다.

[0333] [구조식 (332)]

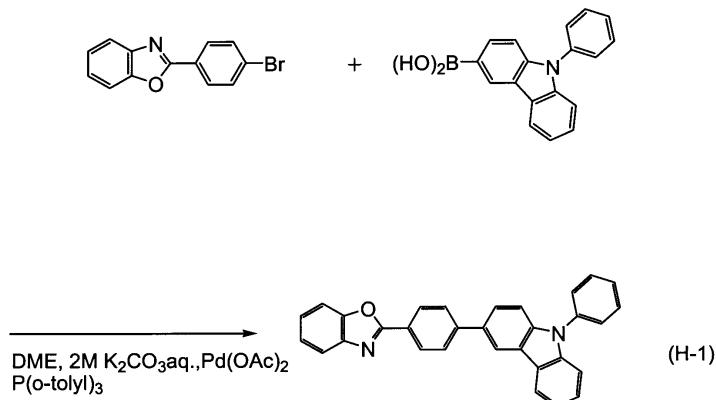


[0334]

[0335] [3-(4-(벤조옥사졸-2-일)페닐)-9-페닐-9H-카르바졸의 합성]

[0336] 3-(4-(벤조옥사졸-2-일)페닐)-9-페닐-9H-카르바졸의 합성 스킴을 (H-1)에 나타낸다.

[0337] [합성 스ქ (H-1)]



[0338]

[0339] 2-(4-브로모페닐)벤조옥사졸 0.95 g(3.5 mmol), 9-페닐-9H-카르바졸-3-보론산 1.0 g(3.5 mmol), 트리(오르토-톨릴)포스핀 0.074 g(0.24 mmol)을 100 mL의 3구 플라스크에 넣었다. 이 혼합물에 1,2-디메톡시에탄(약칭: DME) 15 mL, 2 M 탄산칼륨 수용액 5 mL를 첨가하고, 이 혼합물을 감압 탈기한 후, 이 플라스크 내를 질소 치환 했다. 이 혼합물에 초산팔라듐(II) 7.8 mg(0.035 mmol)을 첨가하고, 이 혼합물을 질소 기류하, 100°C에서 5시간 교반했다. 교반 후, 이 혼합물에 톨루엔을 첨가하고, 이 혼합물을 포화 탄산나트륨 수용액, 포화 식염수의 순으로 세정했다. 세정 후, 유기층에 황산마그네슘을 첨가하여 건조시켰다. 건조 후, 이 혼합물을 흡인 여과하여 여과액을 얻었다.

[0340]

얻어진 여과액을 셀라이트(545)(카시다 화학제, 카탈로그 번호: 020-14815)를 통해 흡인 여과하여 여과액을 얻었다. 얻어진 여과액을 농축하여 얻은 화합물을 실리카 젤 칼럼 크로마토그래피에 의해 정제를 행하였다. 칼럼 크로마토그래피는 톨루엔을 전개 용매로서 이용하여 행하였다. 얻어진 분율을 농축하여 얻은 고체를 클로로포름과 메탄올의 혼합 용매로 재결정한 결과, 분말상 담황색 고체를 수량 1.0 g, 수율 65%로 얻었다.

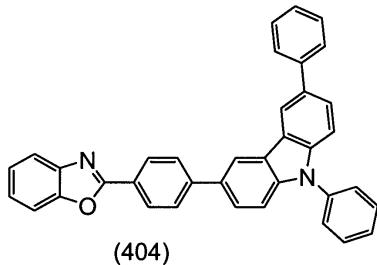
[0341]

또한, 얻어진 고체 1.0 g의 승화 정제를 트레인 서브리메이션법에 의해 행하였다. 승화 정제는 3.0 Pa의 감압 하, 아르곤의 유량을 5 mL/min으로 하여 250°C에서 16시간 행하였다. 수량 0.75 g, 수율은 75%였다.

- [0342] 상기 합성 방법에 의해 얻어진 화합물을 핵자기 공명법(NMR)에 의해 측정했다. 이하에 측정 데이터를 나타낸다. ^1H NMR(CDCl_3 , 300 MHz) : $\delta = 7.29\text{--}7.74(\text{m}, 13 \text{ H})$, $7.78\text{--}7.82(\text{m}, 1\text{H})$, $7.89(\text{d}, J = 9.3 \text{ Hz}, 2\text{H})$, $8.22(\text{d}, J = 6.8 \text{ Hz}, 1\text{H})$, $8.36(\text{d}, J = 8.3 \text{ Hz}, 2\text{H})$, $8.44(\text{sd}, J = 1.5\text{Hz}, 1\text{H})$.
- [0343] 또한, ^1H NMR 차트를 도 23(a), 도 23(b)에 나타낸다. 또한, 도 23(b)은 도 23(a)에서의 7.0 ppm로부터 9.0 ppm의 범위를 확대하여 나타낸 차트이다. 측정 결과로부터, 상술한 구조식 (332)로 나타내어지는 3-(4-(벤조옥사졸-2-일)페닐)-9-페닐-9H-카르바졸(약칭: PCBOx)이 얻어진 것을 알 수 있었다.
- [0344] 또한, PCBOx(약칭)의 톨루엔 용액의 흡수 스펙트럼을 도 24(a), PCBOx(약칭)의 박막의 흡수 스펙트럼을 도 24(b)에 나타낸다. 측정에는 자외 가시 분광 광도계(일본 분광 주식회사제, V550형)를 이용했다. PCBOx(약칭)의 톨루엔 용액 중에서의 흡수 스펙트럼의 측정은 PCBOx(약칭)의 톨루엔 용액을 석영 셀에 넣어 측정하고, 석영과 톤루엔의 흡수 스펙트럼을 뺄셈으로써 행하였다. 또한, PCBOx(약칭)의 박막의 흡수 스펙트럼은 석영 기판에 PCBOx(약칭)를 증착시켜 샘플을 제작하고, 석영의 흡수 스펙트럼 뺄셈으로써 측정하였다.
- [0345] 도 24(a) 및 도 24(b)에서 횡축은 파장(nm), 종축은 흡수 강도(임의 단위)를 나타낸다. 톤루엔 용액의 경우에는 338 nm 부근에 흡수 피크가 관찰되고, 박막의 경우에는 344 nm 부근에 흡수 피크가 관찰되었다. 또한, PCBOx(약칭)의 톤루엔 용액(여기 파장 338 nm)의 발광 스펙트럼을 도 24(a)에 나타낸다. 또한, PCBOx(약칭)의 박막(여기 파장 334 nm)의 발광 스펙트럼을 도 24(b)에 나타낸다. 도 24(a) 및 도 24(b)에서 횡축은 파장(nm), 종축은 발광 강도(임의 단위)를 나타낸다. 최대 발광 파장은 톤루엔 용액의 경우에는 392 nm, 411 nm(여기 파장 338 nm), 박막의 경우에 444 nm(여기 파장 334 nm)였다.
- [0346] 또한, PCBOx(약칭)의 박막 상태에서의 이온화 포텐셜을 대기 중의 광전자 분광법(리켄 계기사제, AC-2)으로 측정한 결과, 5.58 eV였다. 그 결과, HOMO 준위가 -5.58 eV인 것을 알 수 있었다. 또한, PCBOx(약칭)의 박막의 흡수 스펙트럼의 데이터를 이용하여 직접 천이를 가정한 Tauc 플롯으로부터 흡수단을 구하고, 그 흡수단을 광학적 에너지 캡으로서 추측한 결과, 그 에너지 캡은 3.20 eV였다. 얻어진 에너지 캡의 값과 HOMO 준위로부터 LUMO 준위를 구한 결과, -2.38 eV였다. 따라서, PCBOx는 큰 에너지 캡을 가지는 물질인 것을 알 수 있었다.
- [0347] 또한, PCBOx(약칭)의 산화 환원 반응 특성에 대해서는 실시예 1과 같은 방법을 이용하여 측정했다. 구체적으로는, 참조 전극에 대한 작용 전극의 전위를 0.064 V로부터 1.07 V까지 변화시킨 후, 1.07 V로부터 0.064 V까지 변화시키는 주사를 1 사이클로 하여, 100 사이클 측정했다. 또한, PCBOx(약칭)의 환원 반응 특성에 대해서는 다음과 같이 하여 조사했다. 참조 전극에 대한 작용 전극의 전위를 -1.41 V로부터 -2.45 V까지 변화시킨 후, -2.45 V로부터 -1.41 V까지 변화시키는 주사를 1 사이클로 하여, 100 사이클 측정했다. 또한, CV 측정의 스캔 속도는 0.1 V/s로 설정했다.
- [0348] 측정의 결과, 100 사이클 측정 후에도 산화 환원 반응에서, CV 곡선의 피크 위치나 피크 강도에 그다지 변화가 관찰되지 않았다. 이것으로부터, 본 발명의 벤조옥사졸 유도체인 PCBOx(약칭)는 산화 환원 반응의 반복에 대하여 매우 안정적이라는 것을 알 수 있었다.
- [0349] [실시예 7]
- [0350] 본 실시예 7에서는 구조식 (404)로 나타내어지는 본 발명의 벤조옥사졸 유도체인 3-(4-(벤조옥사졸-2-일)페닐)-6,9-디페닐-9H-카르바졸(약칭: PCBOxII)의 합성 방법에 대하여 구체적으로 설명한다.

[0351]

[구조식 (404)]

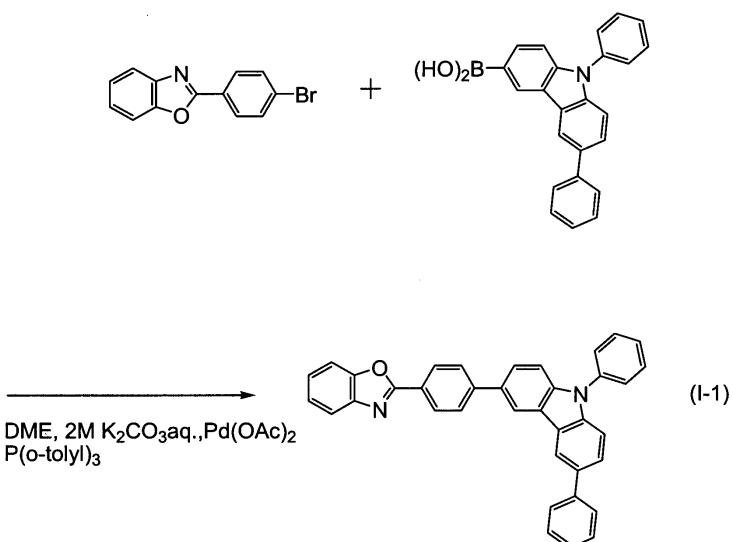


[0352]

[0353] [3-(4-(벤조옥사졸-2-일)페닐)-6,9-디페닐-9H-카르바졸의 합성]

[0354] 3-(4-(벤조옥사졸-2-일)페닐)-6,9-디페닐-9H-카르바졸의 합성 스킴을 (I-1)에 나타낸다.

[0355] [합성 스ქ (I-1)]



[0356]

2-(4-브로모페닐)벤조옥사졸 0.75 g(2.8 mmol), 6,9-디페닐-9H-카르바졸-3-보론산 1.0 g(2.8 mmol), 트리(오르토-톨릴)포스핀 0.060 g(0.20 mmol)을 100 mL의 3구 플라스크에 넣었다. 이 혼합물을 1,2-디에톡시에탄(약칭: DME) 15 mL, 2 M 탄산칼륨 수용액 5 mL를 첨가하여, 이 혼합물을 감압 탈기한 후, 이 플라스크 내를 질소 치환했다. 이 혼합물에 초산팔라듐(II) 6.2 mg(0.028 mmol)을 첨가하고, 이 혼합물을 90°C에서 3시간 가열 교반했다. 교반 후, 이 혼합물에 클로로포름을 첨가하고, 이 혼합물을 포화 탄산나트륨 수용액, 포화 식염수의 순으로 세정했다. 세정 후, 유기층에 황산마그네슘을 첨가하여 건조시켰다. 건조 후, 이 혼합물을 흡인 여과하여 여과액을 얻었다. 얻어진 여과액을 셀라이트(545)(키시다 화학제, 카탈로그 번호: 020-14815)를 통해 흡인 여과하여 여과액을 얻었다.

[0358]

얻어진 여과액을 농축하여 얻은 화합물을 실리카 젤 칼럼 크로마토그래피에 의해 정제를 행하였다. 칼럼 크로마토그래피는 툴루엔을 전개 용매로서 이용하여 행하였다. 얻어진 분율을 농축하여 얻은 고체를 클로로포름과 메탄올의 혼합 용매로 재결정한 결과, 분말상 백색 고체를 수량 1.1 g, 수율 77%로 얻었다.

[0359]

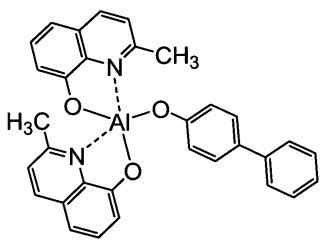
또한, 얻어진 백색 고체 1.1 g의 승화 정제를 트레인 서브리메이션법에 의해 행하였다. 승화 정제는 2.6 Pa의 감압하, 아르곤의 유량을 5 mL/min으로 하여 270°C에서 14시간 행하였다. 수량 1.0 g, 수율은 91%였다.

[0360]

상기 합성 방법에 의해 얻어진 화합물을 핵자기 공명법(NMR)에 의해 측정했다. 이하에 측정 데이터를 나타낸다. ^1H NMR(CDCl_3 , 300 MHz) : δ = 7.32-7.82(m, 18H), 7.89(d, J = 8.3 Hz, 2H), 8.36(d, J = 8.8 Hz, 2H), 8.43(sd, J = 1.5Hz, 1H), 8.48(sd, J = 1.5Hz, 1H).

- [0361] 또한, ^1H NMR 차트를 도 25(a), 도 25(b)에 나타낸다. 또한, 도 25(b)는 도 25(a)에서의 7.0 ppm로부터 9.0 ppm의 범위를 확대하여 나타낸 차트이다. 측정 결과로부터, 상술한 구조식 (404)로 나타내어지는 3-(4-(벤조옥사졸-2-일)페닐)-6,9-디페닐-9H-카르바졸(약칭: PCBOxII)이 얻어진 것을 알 수 있었다.
- [0362] 또한, PCBOxII(약칭)의 툴루엔 용액의 흡수 스펙트럼을 도 26(a), PCBOxII(약칭)의 박막의 흡수 스펙트럼을 도 26(b)에 나타낸다. 측정에는 자외 가시 분광 광도계(일본 분광 주식회사제, V550형)를 이용했다. PCBOxII(약칭)의 툴루엔 용액 중에서의 흡수 스펙트럼의 측정은 PCBOxII(약칭)의 툴루엔 용액을 석영 셀에 넣어 측정하고, 석영과 툴루엔의 흡수 스펙트럼을 뺀으로써 행하였다. 또한, PCBOxII(약칭)의 박막의 흡수 스펙트럼은 석영 기판에 PCBOxII(약칭)를 증착시켜 샘플을 제작하고, 석영의 흡수 스펙트럼 뺀으로써 측정하였다.
- [0363] 도 26(a) 및 도 26(b)에서 횡축은 파장(nm), 종축은 흡수 강도(임의 단위)를 나타낸다. 툴루엔 용액의 경우에는 341 nm 부근에 흡수 피크가 관찰되고, 박막의 경우에는 352 nm 부근에 흡수 피크가 관찰되었다. 또한, PCBOxII(약칭)의 툴루엔 용액(여기 파장 341 nm)의 발광 스펙트럼을 도 26(a)에 나타낸다. 또한, PCBOxII(약칭)의 박막(여기 파장 369 nm)의 발광 스펙트럼을 도 26(b)에 나타낸다. 도 26(a) 및 도 26(b)에서 횡축은 파장(nm), 종축은 발광 강도(임의 단위)를 나타낸다. 최대 발광 파장은 툴루엔 용액의 경우에는 393 nm, 415 nm(여기 파장 341 nm), 박막의 경우에 444 nm(여기 파장 369 nm)였다.
- [0364] 또한, PCBOxII(약칭)의 박막 상태에서의 이온화 포텐셜을 대기 중의 광전자 분광법(리켄 계기사제, AC-2)으로 측정한 결과, 5.64 eV였다. 그 결과, HOMO 준위가 -5.64 eV인 것을 알 수 있었다. 또한, PCBOxII(약칭)의 박막의 흡수 스펙트럼의 데이터를 이용하여 직접 천이를 가정한 Tauc 플롯으로부터 흡수단을 구하고, 그 흡수단을 광학적 에너지 갭으로서 추측한 결과, 그 에너지 갭은 3.12 eV였다. 얻어진 에너지 갭의 값과 HOMO 준위로부터 LUMO 준위를 구한 결과, -2.52 eV였다. 따라서, PCBOxII는 큰 에너지 갭을 가지는 물질인 것을 알 수 있었다.
- [0365] 또한, PCBOxII(약칭)의 산화 환원 반응 특성에 대해서는 실시예 1와 마찬가지의 방법을 이용하여 측정했다. 구체적으로는, 참조 전극에 대한 작용 전극의 전위를 0.036 V로부터 1.02 V까지 변화시킨 후, 1.02 V로부터 0.036 V까지 변화시키는 주사를 1 사이클로 하여, 100 사이클 측정했다. 또한, PCBOxII(약칭)의 환원 반응 특성에 대해서는 다음과 같이 하여 조사했다. 참조 전극에 대한 작용 전극의 전위를 -1.36 V로부터 -2.45 V까지 변화시킨 후, -2.45 V로부터 -1.36 V까지 변화시키는 주사를 1 사이클로 하여, 100 사이클 측정했다. 또한, CV 측정의 스캔 속도는 0.1 V/s로 설정했다.
- [0366] 측정의 결과, 100 사이클 측정 후에도 산화 환원 반응에서, CV 곡선의 피크 위치나 피크 강도에 그다지 변화가 관찰되지 않았다. 이것으로부터, 본 발명의 벤조옥사졸 유도체인 PCBOxII(약칭)는 산화 환원 반응의 반복에 대하여 매우 안정적이라는 것을 알 수 있었다.
- [0367] [실시예 8]
- [0368] 본 실시예에서는 실시형태 1에 기재된 벤조옥사졸 유도체를 발광층의 호스트 재료로서 이용한 발광소자의 제작 방법 및 소자 특성의 측정 결과를 나타낸다. 구체적으로는, 실시예 4에 설명한 9-[4-(벤조옥사졸-2-일)페닐]-3-페닐-9H-카르바졸(약칭: CzBOxII)을 이용하여 형성한 발광소자 3, 실시예 5에 설명한 9-[4-(벤조옥사졸-2-일)페닐]-3,6-디페닐-9H-카르바졸(약칭: CzBOxIII)을 이용하여 형성한 발광소자 4에 대하여 나타낸다.
- [0369] 또한, 본 실시예에서의 발광소자의 소자 구조는 도 10에 나타낸 구조이며, 발광층(1513)에 상술한 본 발명의 일양태인 벤조옥사졸 유도체를 이용하여 형성한 것이다. 본 실시예에서 이용하는 유기 화합물 중, 실시예 3에 나타내지 않은 유기 화합물의 구조식을 이하에 나타낸다.

[0370] [구조식 70]



BA1q

[0371]

[0372] 먼저, 유리 기판(1501) 위에, 산화규소를 포함하는 산화인듐-산화주석을 스퍼터링법으로 성막하여, 제1 전극(1502)을 형성했다. 또한, 그 막 두께는 110 nm로 하고, 전극 면적은 2 mm×2 mm로 했다.

[0373]

[0373] 다음에, 제1 전극(1502) 위에 복수의 층이 적층된 EL층(1503)을 형성한다. 본 실시예에서, EL층(1503)은 정공 주입층인 제 1 층(1511), 정공 수송층인 제 2 층(1512), 발광층인 제 3 층(1513), 전자 수송층인 제 4 층(1514), 전자 주입층인 제 5 층(1515)이 순차 적층된 구조를 가진다.

[0374]

[0374] 제1 전극(1502)이 형성된 면이 하방이 되도록, 제1 전극(1502)이 형성된 기판(1501)을 진공 증착 장치 내에 설치된 기판 홀더에 고정하고, 10⁻⁴ Pa 정도까지 감압한 후, 제1 전극(1502) 위에, 4,4'-비스[N-(1-나프틸)-N-페닐아미노]비페닐(약칭: NPB)과 산화몰리브덴(VI)을 공증착함으로써, 정공 주입층인 제 1 층(1511)을 형성했다. 그 막 두께는 40 nm로 하고, NPB와 산화몰리브덴(VI)의 비율은 중량비로 4 : 1 = (NPB : 산화몰리브덴)이 되도록 증착 레이트를 조절했다. 또한, 공증착법이란, 하나의 처리실 내에서 복수의 증발원으로부터 동시에 증착을 행하는 증착법이다.

[0375]

[0375] 다음에, 저항 가열을 이용한 증착법에 의해, 제 1 층(1511) 위에 정공 수송성 재료를 20 nm의 막 두께가 되도록 성막하고, 정공 수송층인 제 2 층(1512)을 형성했다. 또한, 제 2 층(1512)에는 4-(9H-카르바졸-9-일)-4'-페닐트리페닐아민(약칭: YGA1BP)을 이용했다.

[0376]

[0376] 다음에, 저항 가열을 이용한 증착법에 의해, 제 2 층(1512) 위에, 발광층인 제 3 층(1513)을 형성했다. 또한, 발광소자 3를 형성하는 경우에는, 9-[4-(벤조옥사졸-2-일)페닐]-3-페닐-9H-카르바졸(약칭: CzB0xII)과 비스(2-페닐페리디나토-N,C^{2'})이리듐(III)아세틸아세토네이트(약칭: Ir(ppy)₂acac)를 공증착함으로써 제 3 층(1513)을 40 nm의 막 두께로 형성했다. 여기서, CzB0xII와 Ir(ppy)₂acac와의 중량비는 1 : 0.06(= CzB0xII : Ir(ppy)₂acac)이 되도록 증착 레이트를 조절했다. 또한, 발광소자 4를 형성하는 경우에는, 9-[4-(벤조옥사졸-2-일)페닐]-3,6-디페닐-9H-카르바졸(약칭: CzB0xIII)과 비스(2-페닐페리디나토-N,C^{2'})이리듐(III)아세틸아세토네이트(약칭: Ir(ppy)₂acac)를 공증착함으로써 제 3 층(1513)을 40 nm의 막 두께로 형성했다. 여기서, CzB0xIII와 Ir(ppy)₂acac와의 중량비는 1 : 0.06(= CzB0xIII : Ir(ppy)₂acac)이 되도록 증착 레이트를 조절했다.

[0377]

[0377] 또한, 제 3 층(1513) 위에 저항 가열에 의한 증착법을 이용하여, 비스(2-메틸-8-퀴놀리놀라토)(4-페닐페놀라토)알루미늄(약칭: BA1q)을 10 nm, 그 위에 바소페난트롤린(약칭: BPhen)을 20 nm의 막 두께가 되도록 성막하고, 전자 수송층인 제 4 층(1514)을 형성했다.

[0378]

[0378] 제 4 층(1514) 위에, 불화리튬(LiF)을 1 nm의 막 두께가 되도록 성막함으로써, 전자 주입층인 제 5 층(1515)을 형성했다.

[0379]

[0379] 마지막으로, 저항 가열에 의한 증착법을 이용하여, 알루미늄을 200 nm의 막 두께가 되도록 성막함으로써, 제2 전극(1504)을 형성하여, 발광소자 3 및 발광소자 4를 제작했다.

[0380]

[0380] 이상에 의해 얻어진 발광소자 3 및 발광소자 4를 질소 분위기의 글로브 박스 내에서, 발광소자가 대기에 노출되지 않도록 봉지하는 작업을 행한 후, 이들 발광소자의 동작 특성에 대하여 측정을 행하였다. 또한, 측정은 실온(25°C로 유지된 분위기)에서 행하였다.

- [0381] 발광소자 3 및 발광소자 4의 전류 밀도-휘도 특성을 도 27, 전압-휘도 특성을 도 28, 휘도-전류 효율 특성을 도 29에 각각 나타낸다. 도 27에서는 종축에 휘도(cd/m²), 횡축에 전류 밀도(mA/cm²)를 나타내고, 도 28에서는 종축에 휘도(cd/m²), 횡축에 전압(V)을 나타내고, 도 29에서는 종축에 전류 효율(cd/A), 횡축에 휘도(cd/m²)를 나타낸다.
- [0382] 또한, 도 29에서, 발광소자 3은 최대로 60 cd/A의 전류 효율을 나타내고, 발광소자 4는 최대로 69 cd/A의 전류 효율을 나타냈다. 따라서, 본 발명의 벤조옥사졸 유도체를 이용한 발광소자는 매우 고효율의 소자인 것을 알 수 있다.
- [0383] 또한, 발광소자 3 및 발광소자 4의 발광 스펙트럼을 도 30에 나타낸다. 또한, 도 30에 나타낸 바와 같이 발광 소자 3 및 발광소자 4의 어느 경우에도, 게스트 재료인 Ir(ppy)₂acac(약칭) 유래의 발광 파장이 관측되고, 호스트 재료인 본 발명의 벤조옥사졸 유도체(CzB0xII(약칭)나 CzB0xIII(약칭)) 유래의 발광 파장은 관측되지 않았다. 따라서 본 발명의 벤조옥사졸 유도체는 발광소자의 발광층에서, 바이폴라성의 호스트 재료로서 기능하고 있다는 것을 알 수 있었다.
- [0384] [실시예 9]
- [0385] 본 실시예에서는 실시형태 1에 기재된 벤조옥사졸 유도체를 발광층의 호스트 재료로서 이용한 발광소자의 제작 방법 및 소자 특성의 측정 결과를 나타낸다. 구체적으로는, 실시예 6에 설명한 3-(4-(벤조옥사졸-2-일)페닐)-9-페닐-9H-카르바졸(약칭: PCBOx)을 이용하여 형성한 발광소자 5에 대하여 나타낸다.
- [0386] 또한, 본 실시예에서의 발광소자의 소자 구조는 도 10에 나타낸 구조이며, 발광층(1513)에 상술한 본 발명의 일양태인 벤조옥사졸 유도체를 이용하여 형성한 것이다. 본 실시예에서 이용하는 유기 화합물은 실시예 3 및 실시예 8에 나타낸 유기 화합물과 같으므로, 구조식의 열거는 생략하기로 한다.
- [0387] 먼저, 유리 기판인 기판(1501) 위에, 산화규소를 포함하는 산화인듐-산화주석을 스퍼터링법으로 성막하여, 제1 전극(1502)을 형성했다. 또한, 그 막 두께는 110 nm로 하고, 전극 면적은 2 mm×2 mm로 했다.
- [0388] 다음에, 제1 전극(1502) 위에 복수의 층이 적층된 EL층(1503)을 형성한다. 본 실시예에서, EL층(1503)은 정공 주입층인 제 1 층(1511), 정공 수송층인 제 2 층(1512), 발광층인 제 3 층(1513), 전자 수송층인 제 4 층(1514), 전자 주입층인 제 5 층(1515)이 순차로 적층된 구조를 가진다.
- [0389] 제1 전극(1502)이 형성된 면이 하방이 되도록, 제1 전극(1502)이 형성된 기판(1501)을 진공 증착 장치 내에 설치된 기판 홀더에 고정하여, 10⁻⁴ Pa 정도까지 감압한 후, 제1 전극(1502) 위에, 4,4'-비스[N-(1-나프틸)-N-페닐아미노]비페닐(약칭: NPB)과 산화몰리브덴(VI)을 공증착함으로써, 정공 주입층인 제 1 층(1511)을 형성했다. 그 막 두께는 40 nm로 하고, NPB와 산화몰리브덴(VI)의 비율은 중량비로 4 : 1 = (NPB : 산화몰리브덴)이 되도록 증착 레이트를 조절했다. 또한, 공증착법이란, 하나의 처리실 내에서 복수의 증발원으로부터 동시에 증착을 행하는 증착법이다.
- [0390] 다음에, 저항 가열을 이용한 증착법에 의해, 제 1 층(1511) 위에 정공 수송성 재료를 20 nm의 막 두께가 되도록 성막하고, 정공 수송층인 제 2 층(1512)을 형성했다. 또한, 제 2 층(1512)에는, 4-(9H-카르바졸-9-일)-4'-페닐트리페닐아민(약칭: YGA1BP)을 이용했다.
- [0391] 다음에, 저항 가열을 이용한 증착법에 의해, 제 2 층(1512) 위에, 발광층인 제 3 층(1513)을 형성했다. 또한, 발광소자 5를 형성하는 경우에는 3-(4-(벤조옥사졸-2-일)페닐)-9-페닐-9H-카르바졸(약칭: PCBOx)과 비스(2-페닐피리디나토 N,C^{2'})이리듐(III)아세틸아세토네이트(약칭: Ir(ppy)₂acac)를 공증착함으로써 제 3 층(1513)을 40 nm의 막 두께로 형성했다. 여기서, PCBOx와 Ir(ppy)₂acac와의 중량비는 1 : 0.06(= PCBOx : Ir(ppy)₂acac)이 되도록 증착 레이트를 조절했다.
- [0392] 또한, 제 3 층(1513) 위에 저항 가열에 의한 증착법을 이용하여, 비스(2-메틸-8-퀴놀리놀라토)(4-페닐페놀라토)알루미늄(약칭: BA1q)을 10 nm, 그 위에 바소페난트롤린(약칭: BPhen)을 20 nm의 막 두께가 되도록 성막하여, 전자 수송층인 제 4 층(1514)을 형성했다.
- [0393] 제 4 층(1514) 위에, 불화리튬(LiF)을 1 nm의 막 두께가 되도록 성막함으로써, 전자 주입층인 제 5 층(1515)을

형성했다.

- [0394] 마지막으로, 저항 가열에 의한 증착법을 이용하여 알루미늄을 200 nm의 막 두께가 되도록 성막함으로써, 제2 전극(1504)을 형성하여, 발광소자 5를 제작했다.
- [0395] 이상에 의해 얻어진 발광소자 5를 질소 분위기의 글로브 박스 내에서, 발광소자가 대기에 노출되지 않도록 봉지하는 작업을 행한 후, 이 발광소자의 동작 특성에 대하여 측정을 행했다. 또한, 측정은 실온(25°C로 유지된 분위기)에서 행하였다.
- [0396] 발광소자 5의 전류 밀도-휘도 특성을 도 31, 전압-휘도 특성을 도 32, 휘도-전류 효율 특성을 도 33에 각각 나타낸다. 도 31에서는 종축에 휘도(cd/m²), 횡축에 전류 밀도(mA/cm²)를 나타내고, 도 32에서는 종축에 휘도(cd/m²), 횡축에 전압(V)을 나타내고, 도 33에서는 종축에 전류 효율(cd/A), 횡축에 휘도(cd/m²)를 나타낸다.
- [0397] 또한, 도 33에서, 발광소자 5는 최대로 49 cd/A의 전류 효율을 나타냈다. 따라서, 본 발명의 벤조옥사졸 유도체를 이용한 발광소자는 매우 고효율의 소자라는 것을 알 수 있다.
- [0398] 또한, 발광소자 5의 발광 스펙트럼을 도 34에 나타낸다. 또한, 도 34에 나타낸 바와 같이, 발광소자 5의 경우에도, 게스트 재료인 Ir(ppy)₂acac(약칭) 유래의 발광 파장이 관측되고, 호스트 재료인 본 발명의 벤조옥사졸 유도체(PCzBox(약칭)) 유래의 발광 파장은 관측되지 않았다. 따라서, 본 발명의 벤조옥사졸 유도체는 발광소자의 발광층에서, 바이폴라성의 호스트 재료로서 기능하는 것을 알 수 있었다.

도면의 간단한 설명

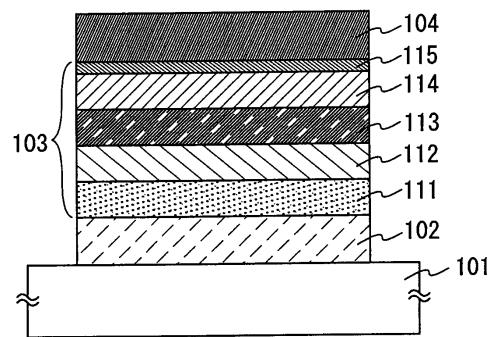
- [0399] 도 1은 실시형태 2에서의 발광소자의 적층 구조를 나타낸 도면.
- [0400] 도 2는 실시형태 2에서의 발광소자의 발광의 양태를 나타낸 도면.
- [0401] 도 3는 실시형태 3에서의 발광소자의 적층 구조를 나타낸 도면.
- [0402] 도 4는 실시형태 4에서의 액티브 매트릭스형의 발광장치를 나타낸 도면.
- [0403] 도 5는 실시형태 4에서의 패시브 매트릭스형의 발광장치를 나타낸 도면.
- [0404] 도 6는 실시형태 5에서의 전자기기를 나타낸 도면.
- [0405] 도 7은 본 발명의 발광장치를 백라이트로서 이용한 액정표시장치를 나타낸 도면.
- [0406] 도 8은 본 발명의 발광장치를 이용한 전기 스탠드를 나타낸 도면.
- [0407] 도 9는 본 발명의 발광장치를 이용한 실내 조명장치를 나타낸 도면.
- [0408] 도 10은 실시예 3에 있어서의 발광소자의 소자 구조를 나타낸 도면.
- [0409] 도 11은 CzB0x(약칭)의 NMR 차트를 나타낸 도면.
- [0410] 도 12는 CzB0x(약칭)의 흡수 스펙트럼 및 발광 스펙트럼을 나타낸 도면.
- [0411] 도 13은 CzPBOx(약칭)의 NMR 차트를 나타낸 도면.
- [0412] 도 14는 CzPBOx(약칭)의 흡수 스펙트럼 및 발광 스펙트럼을 나타낸 도면.
- [0413] 도 15는 발광소자 1 및 발광소자 2의 전류 밀도-휘도 특성을 나타낸 도면.
- [0414] 도 16는 발광소자 1 및 발광소자 2의 전압-휘도 특성을 나타낸 도면.
- [0415] 도 17은 발광소자 1 및 발광소자 2의 휘도-전류 효율 특성을 나타낸 도면.
- [0416] 도 18은 발광소자 1 및 발광소자 2의 발광 스펙트럼을 나타낸 도면.
- [0417] 도 19는 CzB0xII(약칭)의 NMR 차트를 나타낸 도면.
- [0418] 도 20은 CzB0xII(약칭)의 흡수 스펙트럼 및 발광 스펙트럼을 나타낸 도면.

- [0419] 도 21은 CzB0xIII(약칭)의 NMR 차트를 나타낸 도면.
- [0420] 도 22는 CzB0xIII(약칭)의 흡수 스펙트럼 및 발광 스펙트럼을 나타낸 도면.
- [0421] 도 23은 PCB0x(약칭)의 NMR 차트를 나타낸 도면.
- [0422] 도 24는 PCB0x(약칭)의 흡수 스펙트럼 및 발광 스펙트럼을 나타낸 도면.
- [0423] 도 25는 PCB0xII(약칭)의 NMR 차트를 나타낸 도면.
- [0424] 도 26는 PCB0xII(약칭)의 흡수 스펙트럼 및 발광 스펙트럼을 나타낸 도면.
- [0425] 도 27은 발광소자 3 및 발광소자 4의 전류 밀도-휘도 특성을 나타낸 도면.
- [0426] 도 28은 발광소자 3 및 발광소자 4의 전압-휘도 특성을 나타낸 도면.
- [0427] 도 29는 발광소자 3 및 발광소자 4의 휘도-전류 효율 특성을 나타낸 도면.
- [0428] 도 30은 발광소자 3 및 발광소자 4의 발광 스펙트럼을 나타낸 도면.
- [0429] 도 31은 발광소자 5의 전류 밀도-휘도 특성을 나타낸 도면.
- [0430] 도 32는 발광소자 5의 전압-휘도 특성을 나타낸 도면.
- [0431] 도 33는 발광소자 5의 휘도-전류 효율 특성을 나타낸 도면.
- [0432] 도 34는 발광소자 5의 발광 스펙트럼을 나타낸 도면.

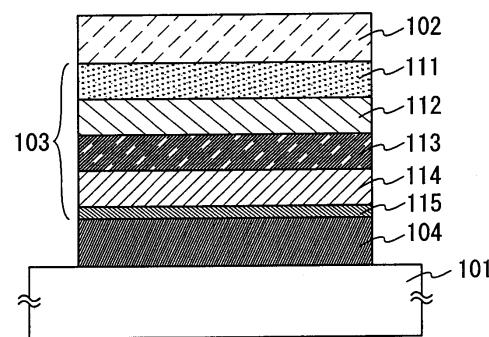
도면

도면1

(A)

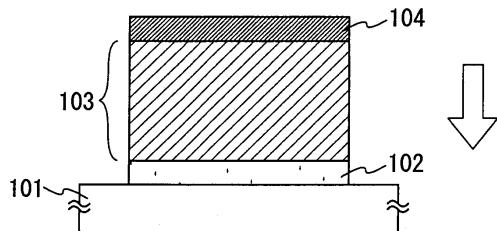


(B)

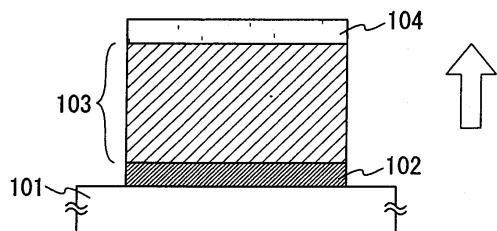


도면2

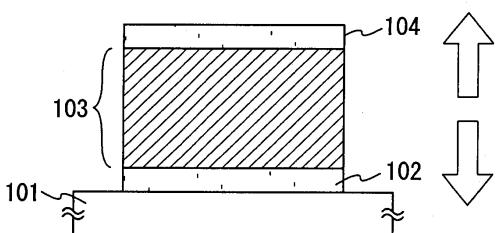
(A)



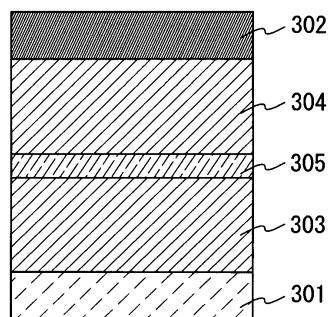
(B)



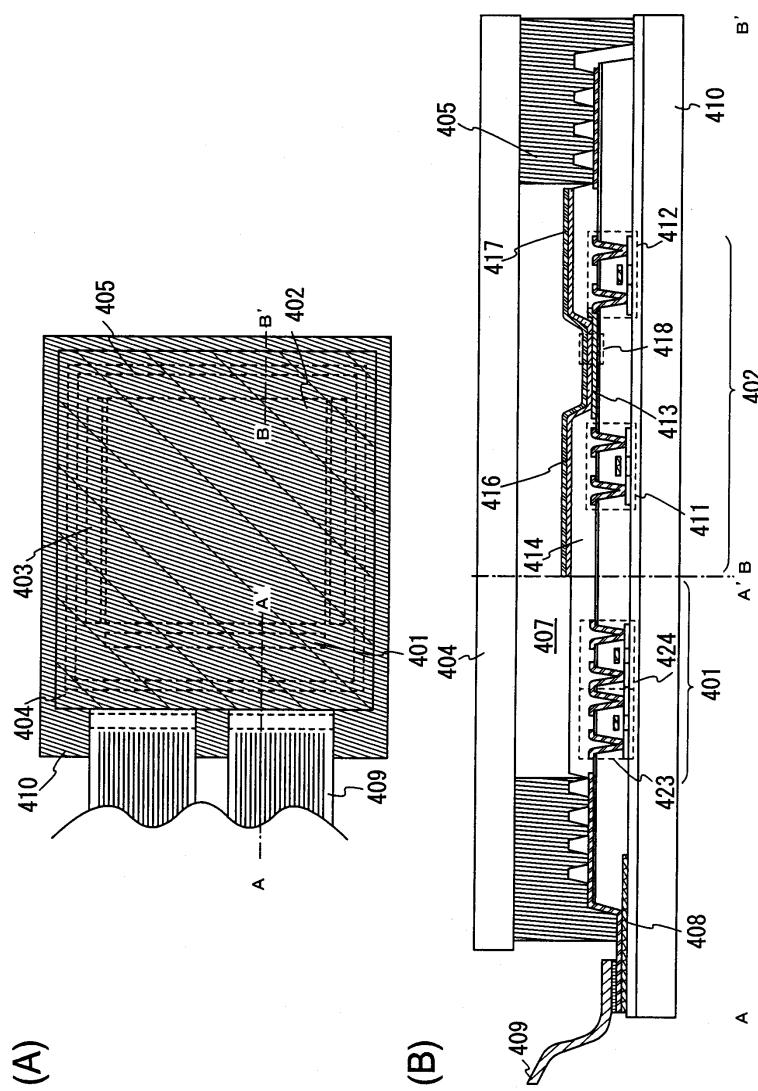
(C)



도면3

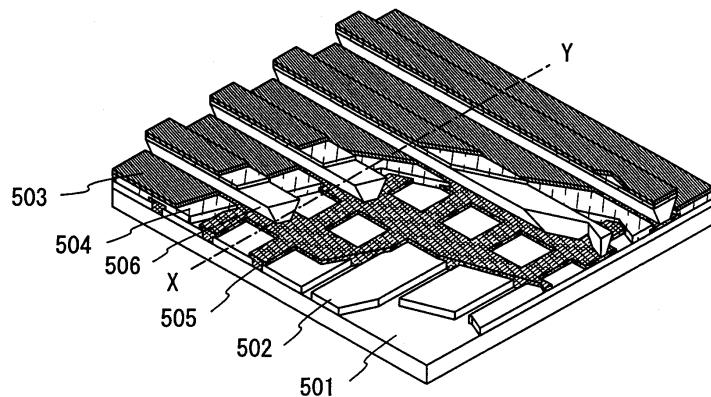


도면4

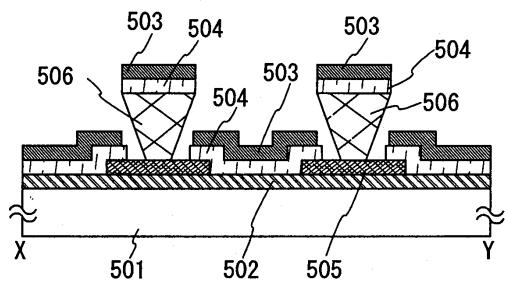


도면5

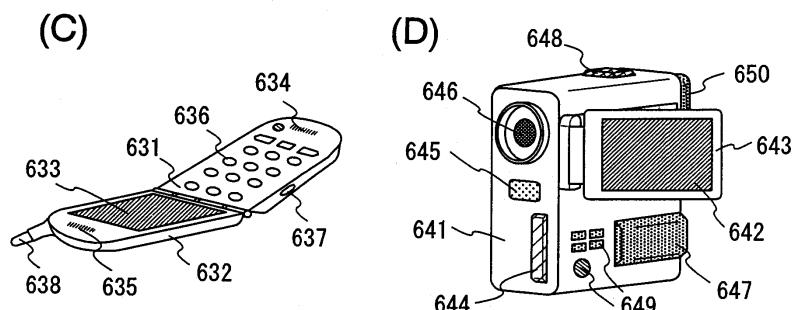
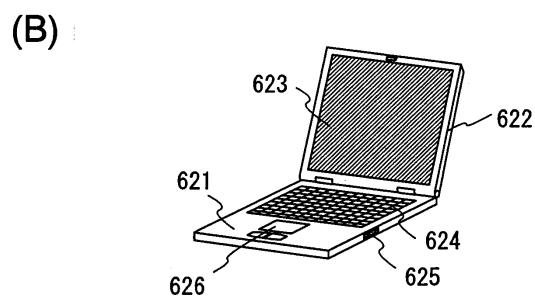
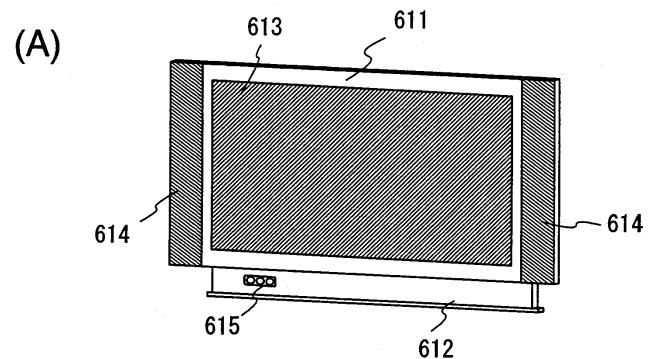
(A)



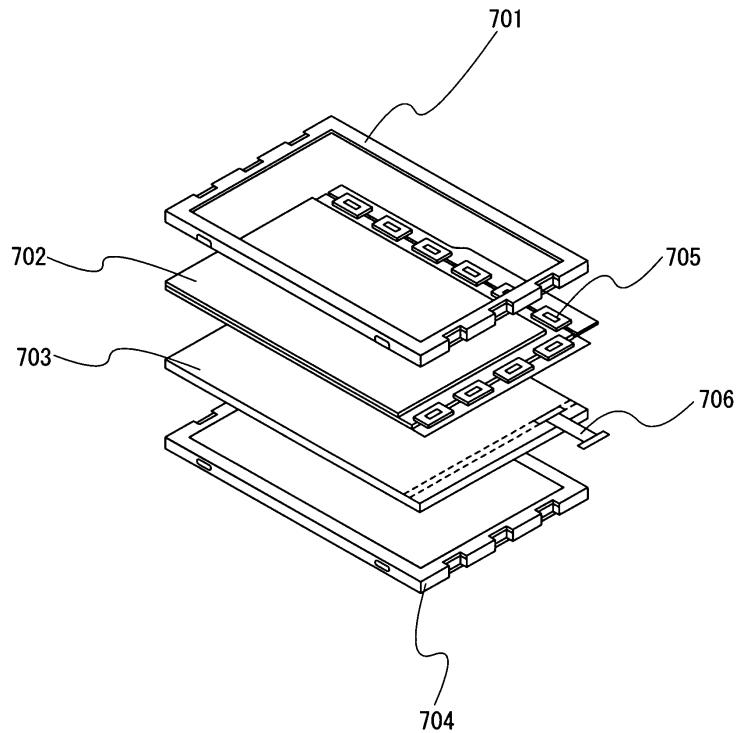
(B)



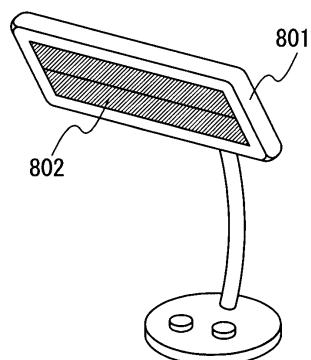
도면6



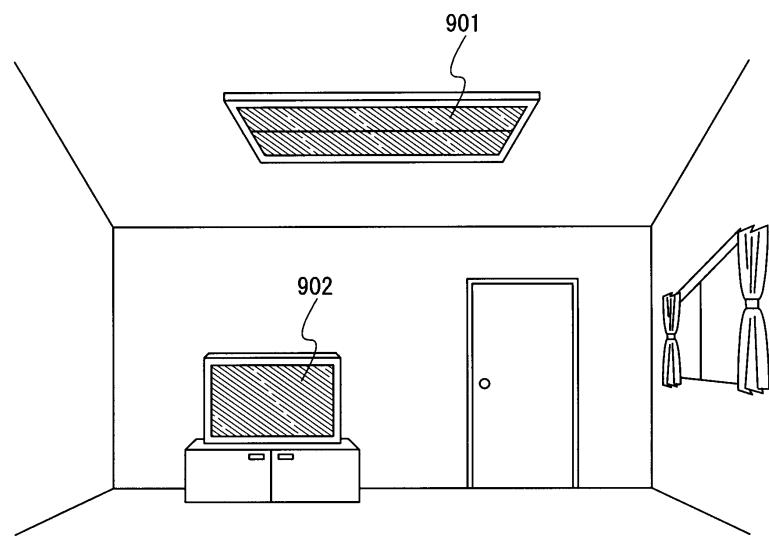
도면7



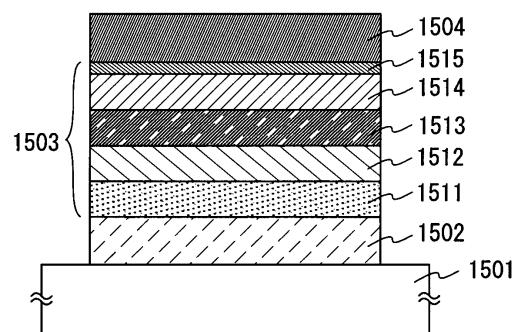
도면8



도면9

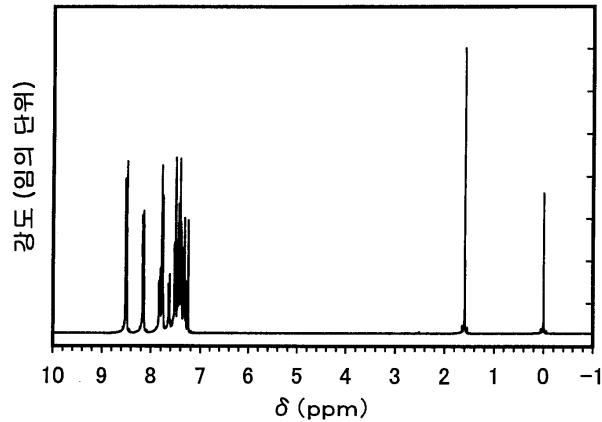


도면10

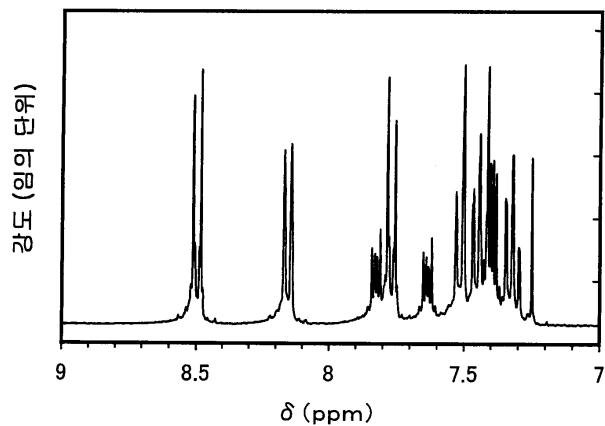


도면11

(A)

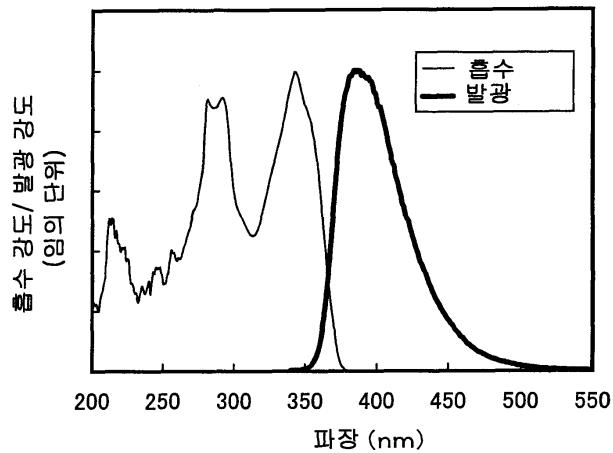


(B)

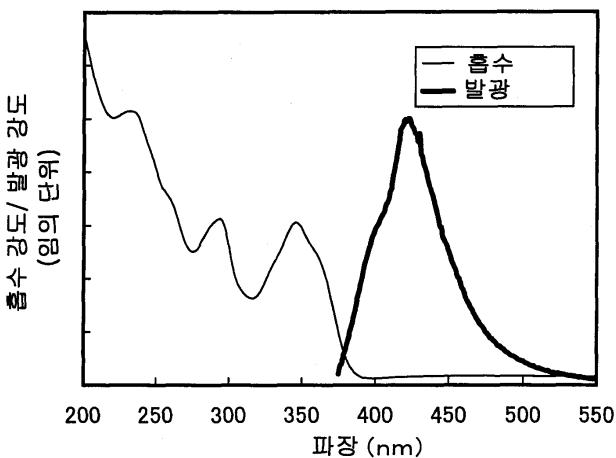


도면12

(A)

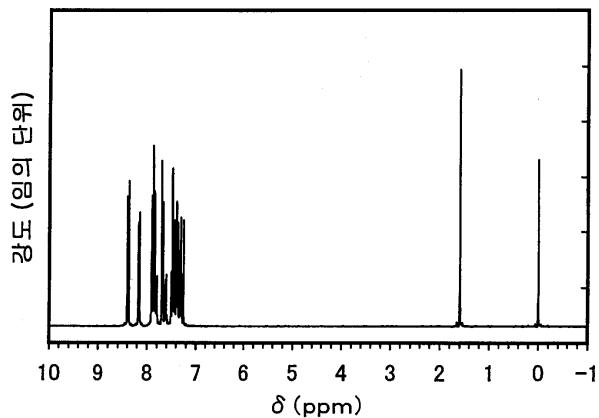


(B)

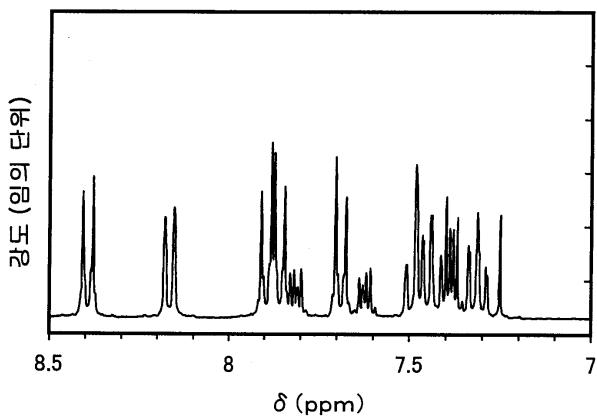


도면13

(A)

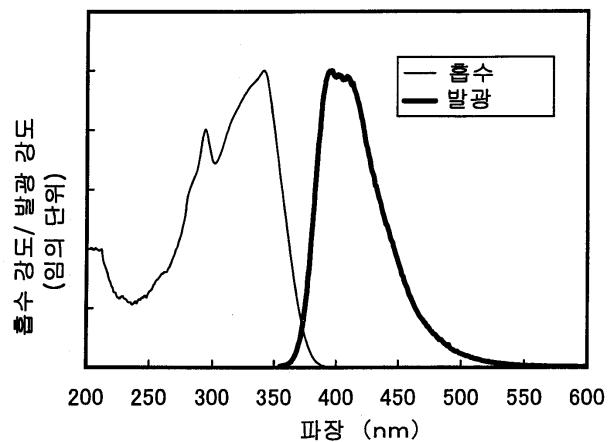


(B)

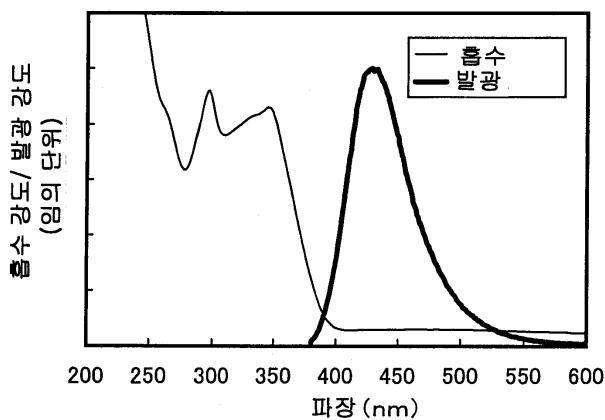


도면14

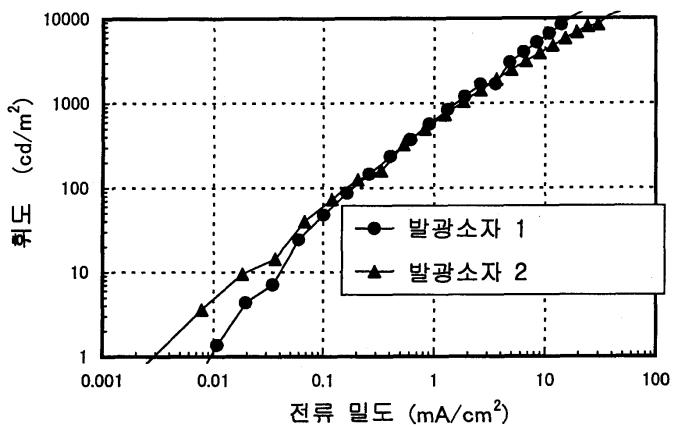
(A)



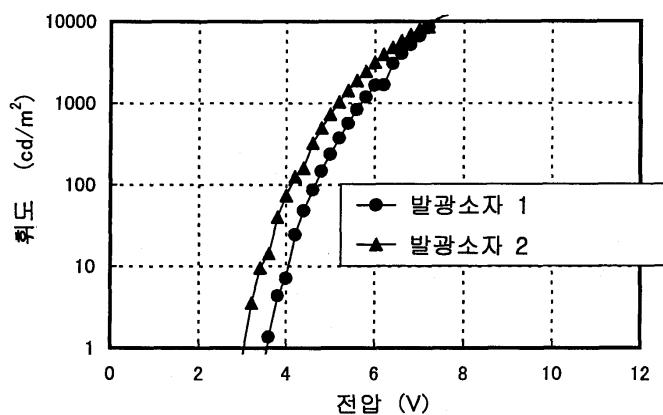
(B)



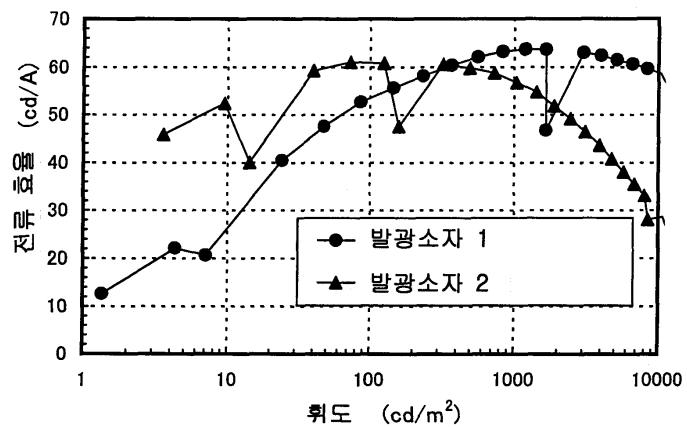
도면15



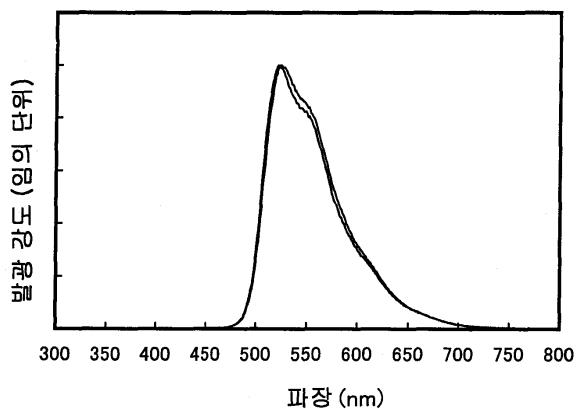
도면16



도면17

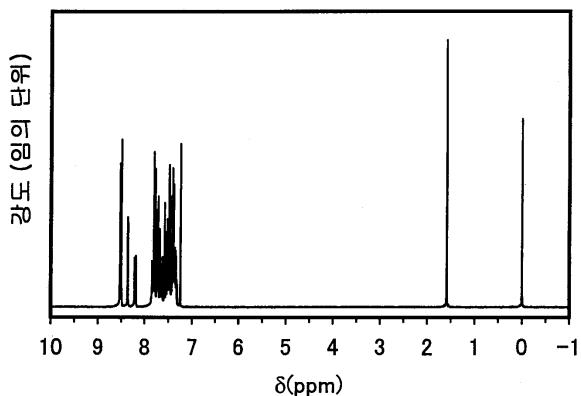


도면18

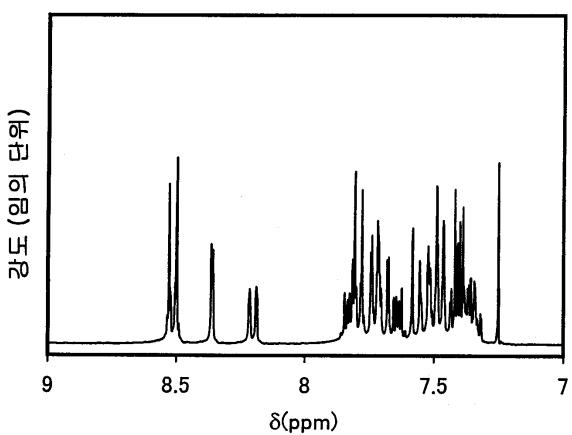


도면19

(A)

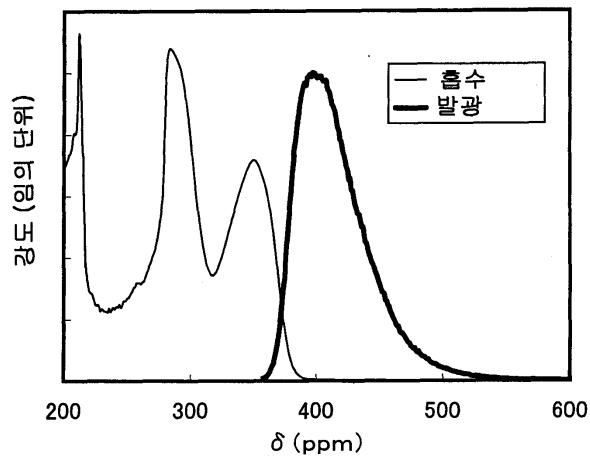


(B)

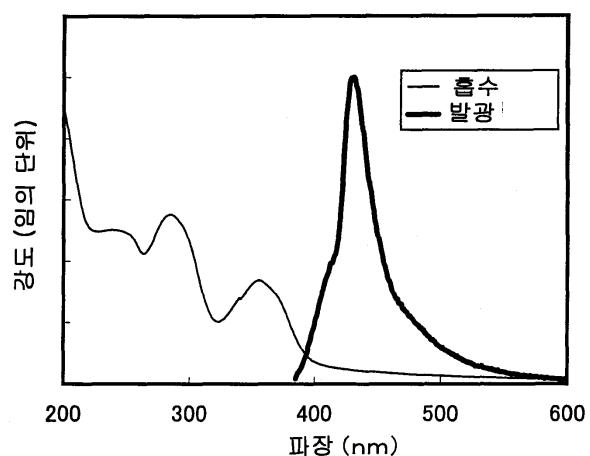


도면20

(A)

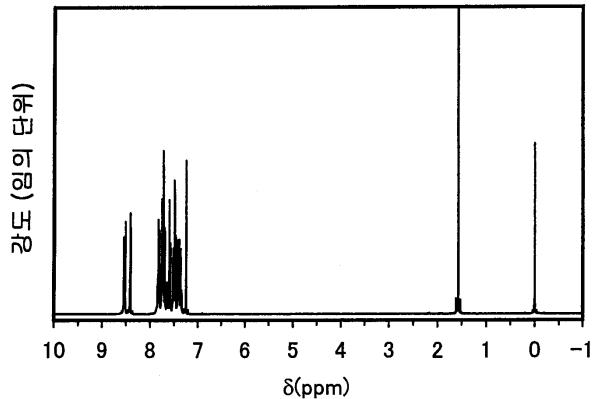


(B)

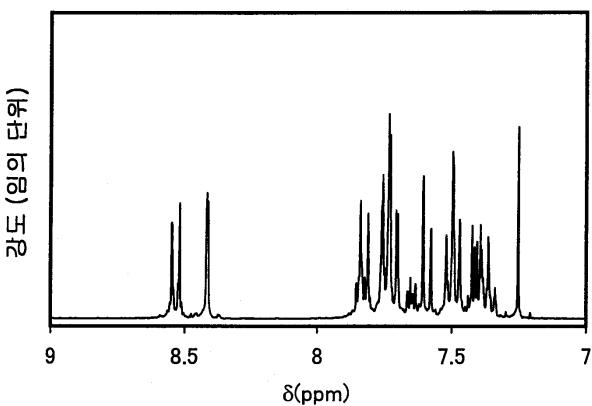


도면21

(A)

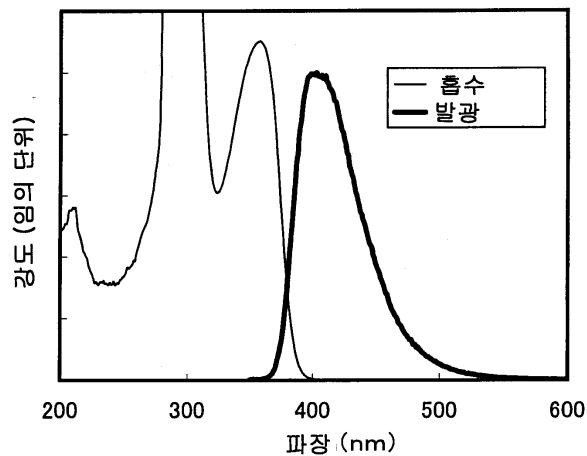


(B)

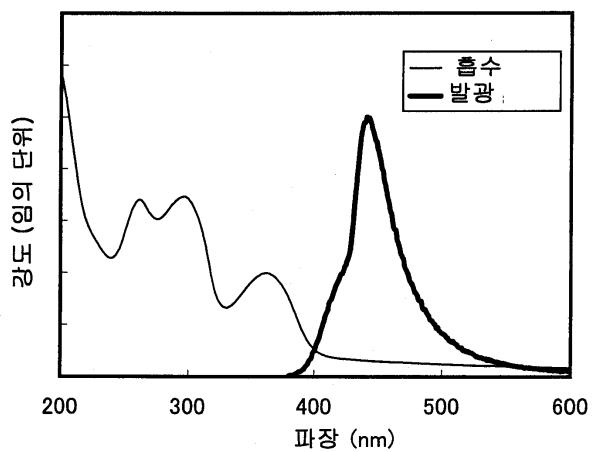


도면22

(A)

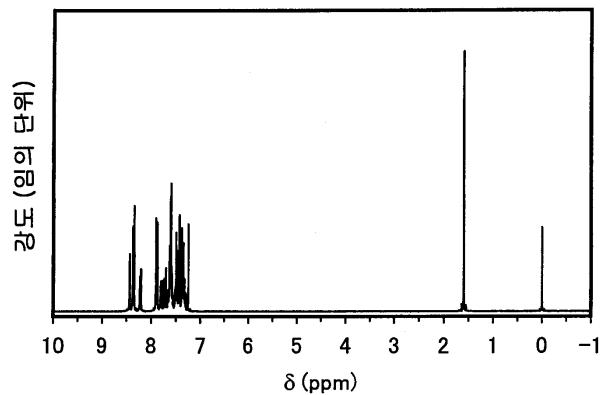


(B)

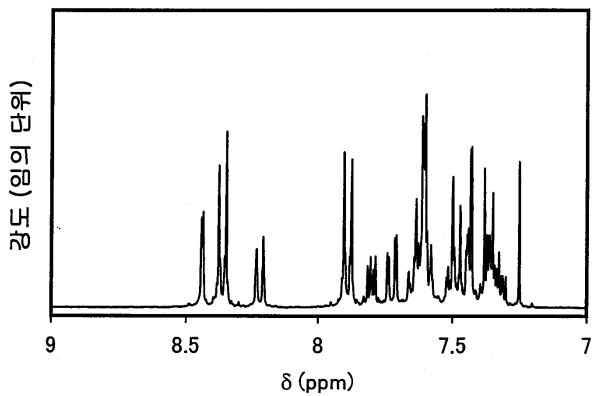


도면23

(A)

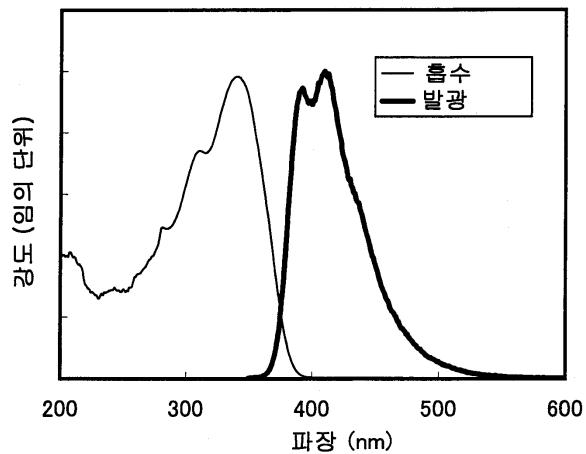


(B)

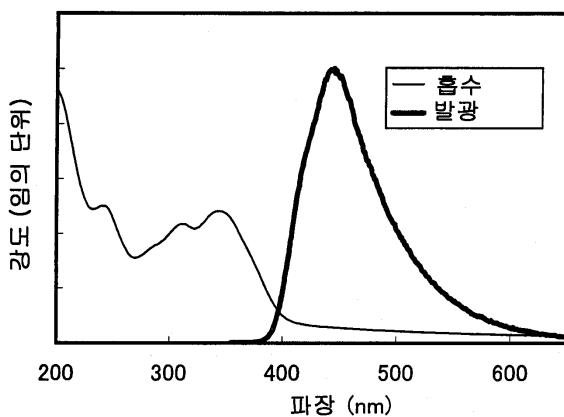


도면24

(A)

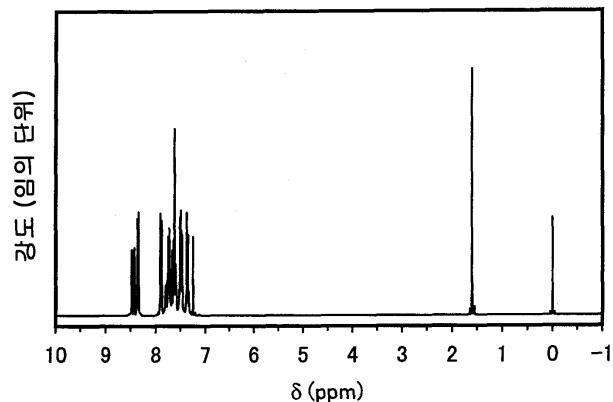


(B)

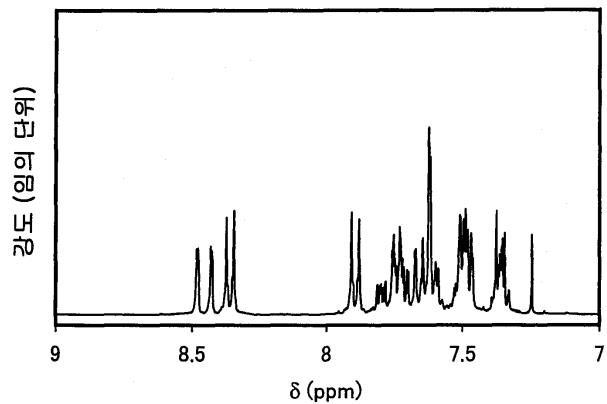


도면25

(A)

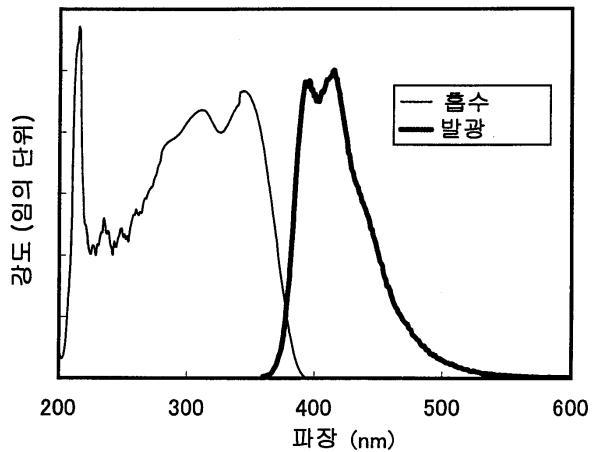


(B)

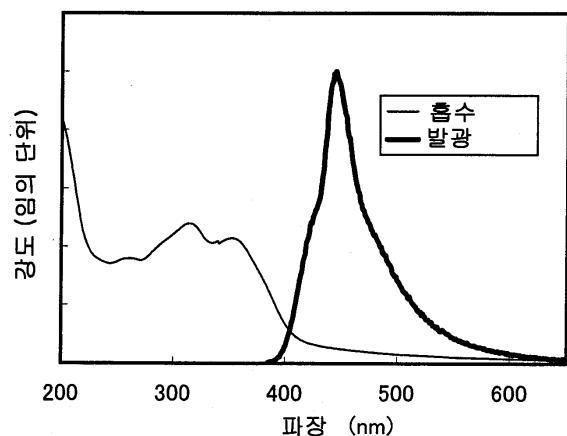


도면26

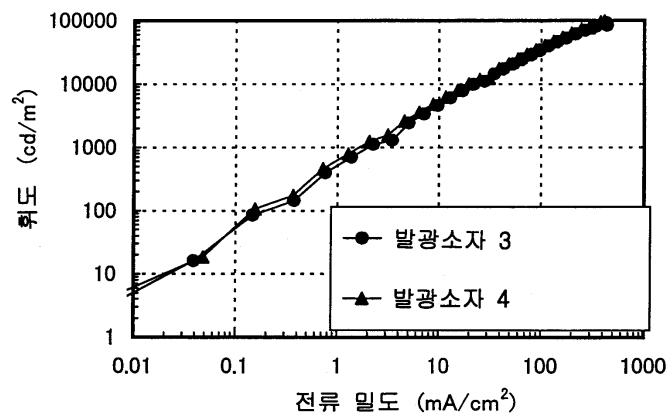
(A)



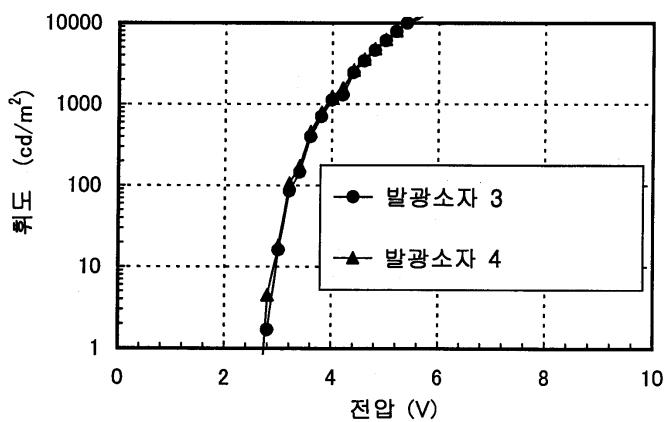
(B)



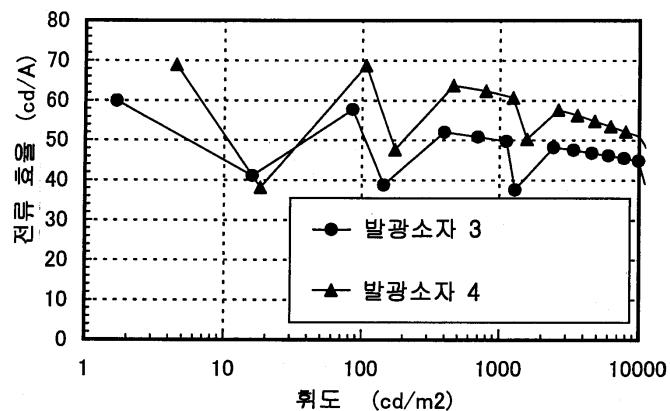
도면27



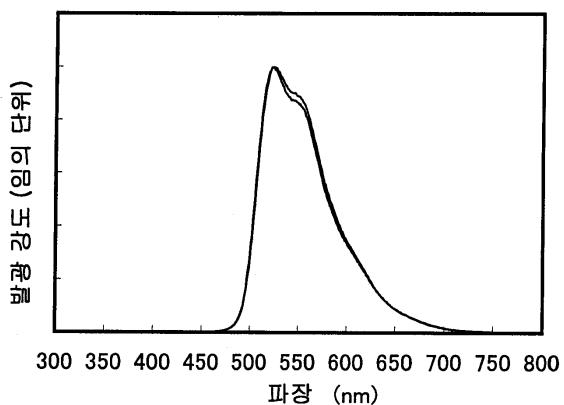
도면28



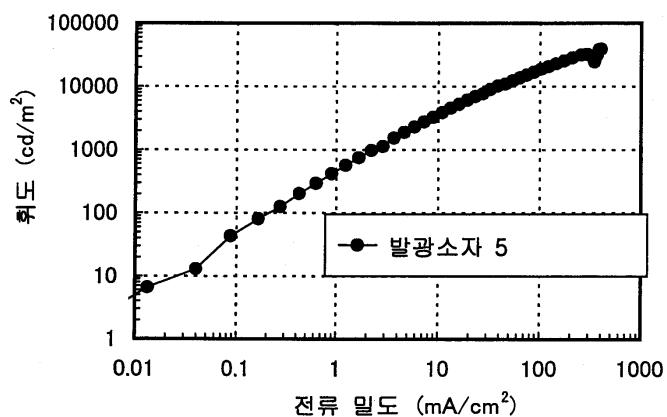
도면29



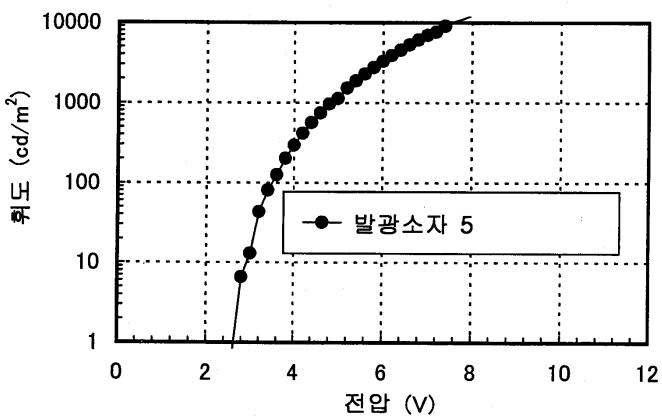
도면30



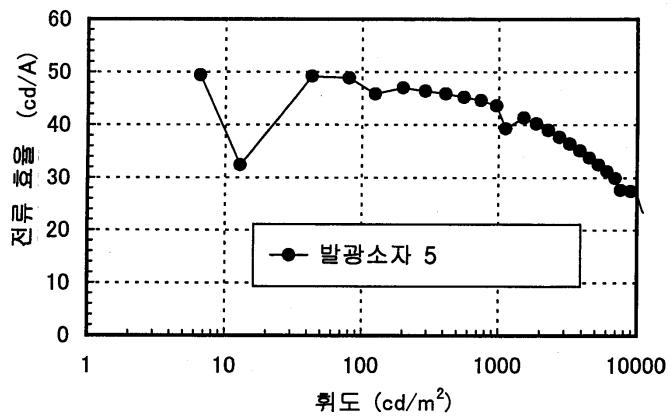
도면31



도면32



도면33



도면34

