

(12) 특허협력조약에 의하여 공개된 국제출원

(19) 세계지식재산권기구
국제사무국

(43) 국제공개일
2014년 3월 6일 (06.03.2014)



(10) 국제공개번호
WO 2014/035210 A2

- (51) 국제특허분류: 미분류
- (21) 국제출원번호: PCT/KR2013/007884
- (22) 국제출원일: 2013년 9월 2일 (02.09.2013)
- (25) 출원언어: 한국어
- (26) 공개언어: 한국어
- (30) 우선권정보:
2012-192368 2012년 8월 31일 (31.08.2012) JP
- (71) 출원인: 삼성디스플레이 주식회사 (SAMSUNG DISPLAY CO., LTD.) [KR/KR]; 경기도 용인시 기흥구 삼성 2로 95, Gyeonggi-do (KR).
- (72) 발명자: 타카다 이치노리 (TAKADA, Ichinori); 230-0027 카나가와현 요코하마시 츠루미쿠 수가사와초 2-7 주식회사 삼성 요코하마 연구소내, Kanagawa (JP). 나카즈미히로유키 (NAKAZUMI, Hiroyuki); 599-8531 오사카 사카이시 나카구 학원초 1번 1호 공립 대학 법인 오사카 부립 대학, Osaka (JP). 야기시게유키 (YAGI, Shigeyuki); 599-8531 오사카 사카이시 나카구 학원초 1번 1호 공립 대학 법인 오사카 부립 대학, Osaka (JP).
- (74) 대리인: 권혁수 (KWON, Hyuk-Soo) 등; 135-080 서울시 강남구 역삼동 875-25 테라빌 3층, Seoul (KR).

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

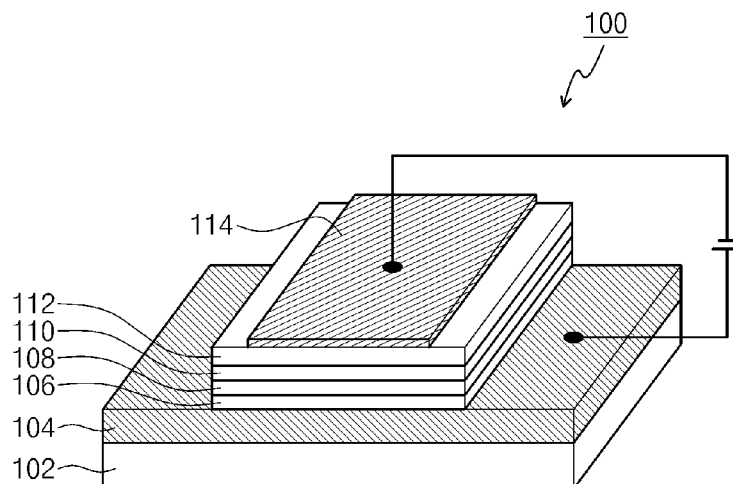
(84) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 역내 권리의 보호를 위하여): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), 유라시아 (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), 유럽 (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE,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

공개:

— 국제조사보고서 없이 공개하며 보고서 접수 후 이를 별도 공개함 (규칙 48.2(g))

(54) Title: ORGANIC LIGHT-EMITTING MATERIAL AND ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE DEVICE USING SAME

(54) 발명의 명칭: 유기 발광 재료 및 그것을 이용한 유기 일렉트로루미네스스 소자



(57) Abstract: The present invention relates to an organic EL device having improved light-emitting efficiency and a longer lifespan, and an organic light-emitting material for same.

(57) 요약서: 본 발명은 발광 효율이 향상하고, 장수명화된 유기 EL 소자, 및 그것을 실현하는 유기 발광 재료를 제공한다.

WO 2014/035210 A2

명세서

발명의 명칭: 유기 발광 재료 및 그것을 이용한 유기 일렉트로루미네센스 소자

기술분야

- [1] 본 발명은, 유기 발광 재료, 그것을 이용한 유기 EL(유기 일렉트로루미네센스) 소자에 관한 것이다.

배경기술

- [2] 최근, 발광 재료를 표시부의 발광 소자에 사용한 유기 일렉트로루미네센스 표시 장치(Organic Electroluminescence Display : 유기 EL 표시 장치)의 개발이 왕성하게 행해져 왔다. 유기 EL 표시 장치는, 액정 표시 장치 등과는 다르고, 양극 및 음극으로부터 주입된 정공 및 전자를 발광층에 있어서, 재결합시킴으로써, 발광층에서의 유기 화합물을 포함하는 발광 재료를 발광시켜 표시를 실현하는 소위 자발광형의 표시 장치이다.
- [3] 발광 소자(이하, 유기 EL 소자라 칭한다)의 발광층에 사용하는 유기 발광 재료로서, 3중항 여기 상태에서부터의 발광이 가능한 인광 발광 재료가 알려져 있다. 유기 EL 소자의 발광층에 인광 발광 재료를 사용하는 경우, 양자 효율이 대폭 향상되기 때문에, 유기 EL 소자의 발광 효율을 향상시키는 것이 가능하게 된다. 인광 발광 재료로서는, 이리듐을 비롯하여, 백금, 로듐, 루테튬 등의 중 원자를 포함하는 금속 착화합물이 주로 사용할 수 있고, 중심 금속과 리간드(ligand)와의 다양한 조합에 의한 수 많은 재료를 들 수 있지만, 특히, 페닐피리딘 유도체 등의 유기 리간드(ligand)를 갖는 이리듐 착화합물이 알려져 있다(특허문헌 1~11, 비특허문헌 1~2).
- [4] [선행기술문헌]
- [5] [특허문헌]
- [6] 1. 유럽 특허출원 공개 제1238981호 명세서
- [7] 2. 국제공개 제2004/113421호
- [8] 3. 국제공개 제2010/090362호
- [9] 4. 유럽 특허출원 공개 제2062959호 명세서
- [10] 5. 국제공개 제2010/089394호
- [11] 6. 미국 특허출원 공개 제2012/0025177호 명세서
- [12] 7. 미국 특허 제7011897호 명세서
- [13] 8. 미국 특허 제8022212호 명세서
- [14] 9. 미국 특허 제7595501호 명세서
- [15] 10. 일본국 특허 공개 2012-012608호 공보
- [16] 11. 국제공개 제2009/008099호
- [17] [비특허문헌]

- [18] 1. Jang Hyosook, Shin Chang Hwan, Kim Nam Gwang, Hwang Kyu Young, Do Youngkyu, "New Phosphorescent ppy-based Iridium Complexes Containing EL electron-withdrawing Groups" Synthetic Metals 2005, vol. 154, pp. 157 to 160.
- [19] 2. Aoki Shin, Matsuo Yasuki, Ogura Shiori, Ohwada Hiroki, Hisamatsu Yosuke, Moromizato Shinsuke, Shiro Motoo, Kitamura Masanori(Tokyo University of Science), "Regioselective Aromatic Substitution Reactions of Cyclometalated Ir(III) Complexes: Synthesis and Photochemical Properties of Substituted Ir(III) Complexes That Exhibit Blue, Green, and Red Color Luminescence Emission" Inorganic Chemistry, 2011, vol. 50, pp. 806 to 818.
- [20] 유기 EL 소자를 표시 장치에 응용함에 있어서, 유기 발광 재료에는 고효율화가 요구되고 있다. 특히, 청색 발광 재료는, 적색 발광 재료 및 녹색 발광 재료에 비해서 발광 효율이 낮기 때문에, 발광 효율의 향상이 요구되고 있다.

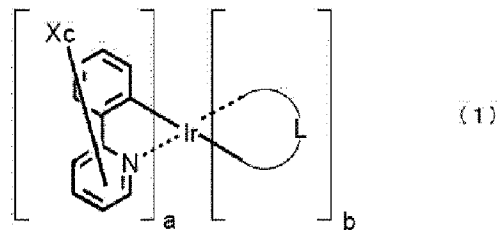
발명의 상세한 설명

기술적 과제

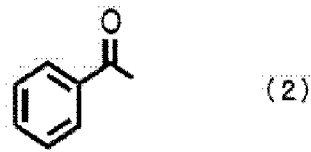
- [21] 본 발명은 상술한 과제를 감안하여 이루어진 것으로서, 발광 효율이 향상된 유기 EL 소자, 및 그것을 실현하는 발광 효율이 향상된 유기 발광 재료를 제공하는 것을 과제로 한다.

과제 해결 수단

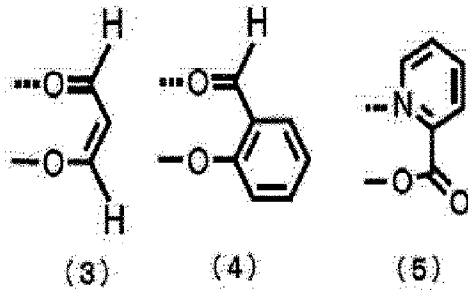
- [22] 본 발명의 일 실시 형태에 의한 유기 발광 재료는 하기 일반식(1)로 표시된다.
- [23] 화학식 1



- [24] 식(1) 중에서 X는 하기 일반식(2)로 나타낼 수 있는 페닐카르보닐기이고,
- [25] 상기 일반식(1)에 있어서 L은 하기 일반식(3) 내지 일반식(5)로 나타낼 수 있는 2 자리 리간드(ligand)로부터 어느 하나로 선택되고,
- [26] 상기 일반식(1) 내지 일반식(5)에 있어서, 임의의 위치에서 H 원자(H-), 불소 원자(F-), 트리플루오로메틸기(CF₃-), 시아노기(CN-), 니트로기(NO₂-), 탄소 수 6 이하의 알킬기, 아릴기 또는 헤테로아릴기가 임의의 수만큼 각각 독립적으로 치환되며,
- [27] 상기 일반식(1) 및 일반식(2)에 있어서 a+b=3이고, a≠0이며, c≤2이다.
- [28] 화학식 2

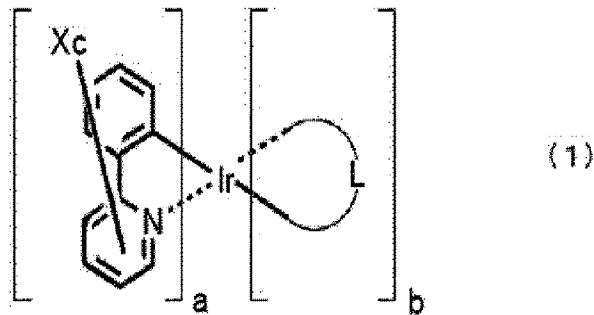


[29] 화학식 3



[30] 본 발명의 일 실시 형태에 의한 유기 EL 발광 소자는, 하기 일반식(1)로 표시되는 유기 발광 재료를 포함한다.

[31] 화학식 4



[32] 식(1) 중에서 X는 하기 일반식(2)으로 나타낼 수 있는 페닐카르보닐기이고,

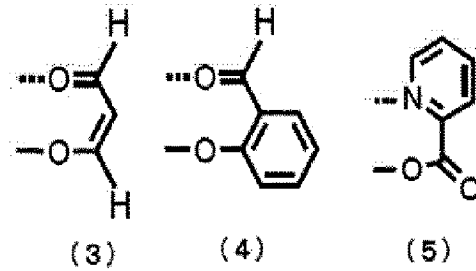
[33] 상기 일반식(1)에 있어서 L은 하기 일반식(3) 내지 일반식(5)으로 나타낼 수 있는 2 자리 리간드(ligand)로부터 어느 하나가 선택되고, 상기 일반식(1) 내지 일반식(5)에 있어서 임의의 위치에서 H 원자(H-), 불소 원자(F-), 트리플루오로메틸기(CF₃-), 시아노기(CN-), 니트로기(NO₂-) 탄소수 6 이하의 알킬기, 아릴기 또는 헤테로아릴기가 임의의 수만큼 각각 독립적으로 치환되며,

[34] 상기 일반식(1) 및 일반식(2)에 있어서 a+b=3이고, a≠0이며, c≤2이다.

[35] 화학식 5



[36] 화학식 6



발명의 효과

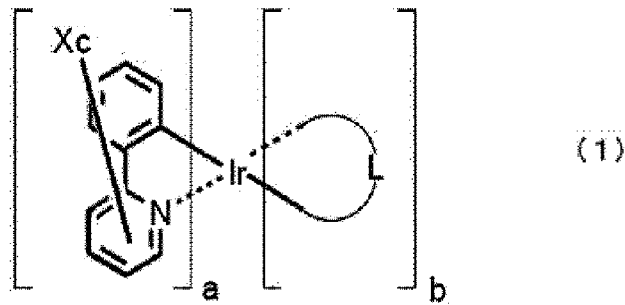
- [37] 본 발명에 따르면, 발광 효율이 향상된 유기 EL 소자 및 그것을 실현하는 발광 효율이 향상된 유기 발광 재료를 제공할 수 있다.

도면의 간단한 설명

- [38] 도 1은 유기 EL 소자의 구조의 일 예를 나타내는 개략도이다.
 [39] 도 2는 본 발명의 유기 발광 재료를 사용하여 제작된 유기 EL 소자의 개략도이다.
 [40] 도 3a는 본 발명의 유기 발광 재료를 사용하여 제작된 유기 EL 소자의 EL 스펙트럼을 나타내는 도면이고, 도 3b는 본 발명의 유기 발광 재료를 사용하여 제작된 유기 EL 소자의 EL 스펙트럼을 나타내는 도면이다.
 [41] 도 4a는 본 발명의 유기 발광 재료를 사용하여 제작된 유기 EL 소자의 전류 밀도-전압-휘도 곡선을 나타내는 도면이다.
 [42] 도 4b는 본 발명의 유기 발광 재료를 사용하여 제작된 유기 EL 소자의 전류 밀도-전압-휘도 곡선을 나타내는 도면이다.

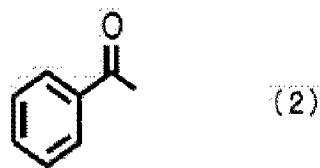
발명의 실시를 위한 최선의 형태

- [43] 본원 발명자는 상술한 과제를 검토한 결과, 이리듐(Ir)을 중심 금속으로 하는 금속 착화합물에 있어서, 페닐카르보닐 치환기를 갖는 Ir(III) 금속 착화합물을 유기 EL 소자의 발광층에 있어서의 청색계 발광 재료로서 사용하는 것에 착안하고, 유기 EL 소자의 발광 효율을 향상시킬 수 있는 것을 확인하였다. 이하, 본원 발명자가 착안한 페닐카르보닐 치환기를 갖는 Ir(III) 금속 착화합물에 대해서 설명한다. 또한, 본 발명의 페닐카르보닐 치환기를 갖는 Ir(III) 금속 착화합물은 이하의 실시예에 한정되는 것이 아니라, 여러 가지의 변형을 행하는 것이 가능하다.
- [44] 본 발명의 청색계 유기 발광 재료는, 이하의 일반식(1)로 표시되는 화합물로 이루어진다.
- [45] 화학식 7



[46] 단, 이상의 일반식(1)에 있어서, X는 이하의 일반식(2)에 나타내는 1가의 페닐카르보닐기이다.

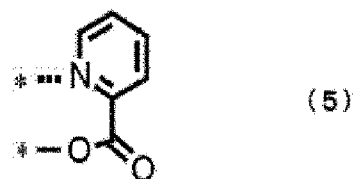
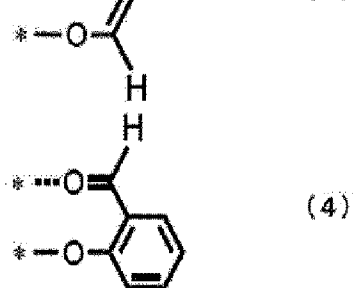
[47] 화학식 8



[48] 일반식(1)에 있어서, X는, Ir(III)에 배위되는 페닐기 및 피리딘 고리의 파라 위치 중 어느 한 쪽에 치환될 수 있으며, 페닐기 및 피리딘 고리의 파라 위치 양 쪽에 치환될 수 있다.

[49] 또한, 이상의 일반식(1)에 있어서, L은 이하의 일반식(3), (4) 및 (5)에 나타내는 2자리 리간드(ligand)로부터 1개가 선택된다.

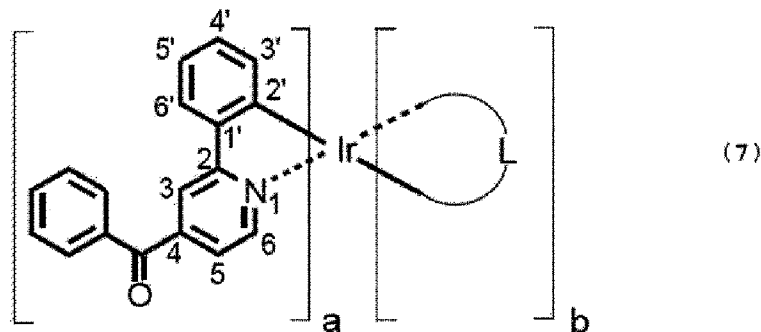
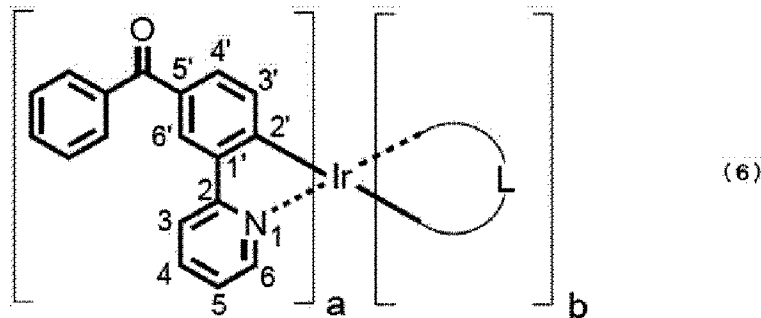
[50] 화학식 9



[51] 또한, 이상의 일반식(1) 내지 (5)에 있어서, 임의의 위치에서 H 원자(H-), 불소 원자(F-), 트리플루오로메틸기(CF₃-), 시아노기(CN-), 니트로기(NO₂-), 탄소 수 6 이하의 알킬기, 아릴기 또는 헤테로아릴기가 임의의 수만큼 각각 독립적으로

치환된다.

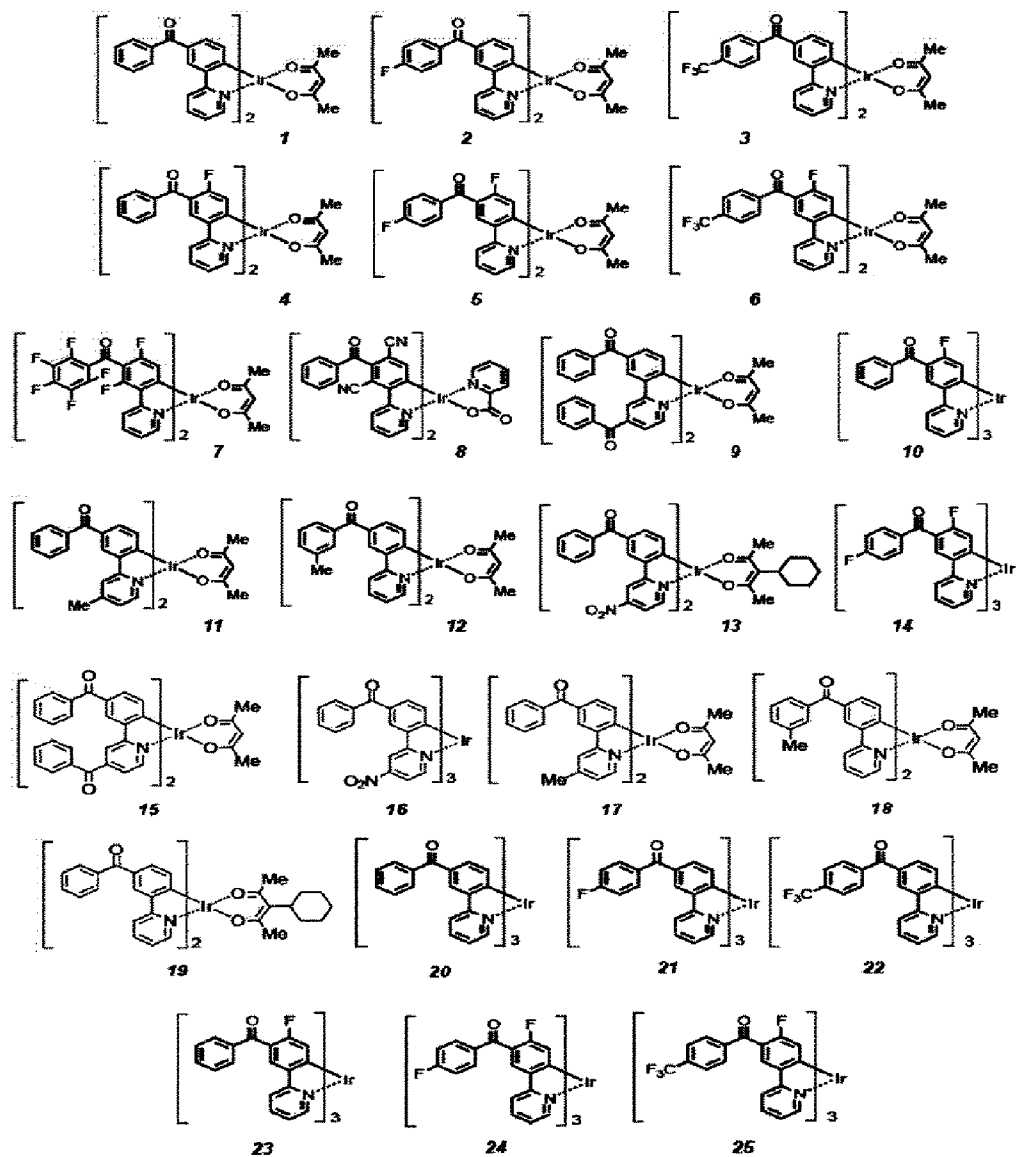
- [52] 이상의 일반식(1) 및 (2)에 있어서 $a \sim c$ 는, $a+b=3$, $a \neq 0$, $c \leq 2$ 을 충족시키는 자연수이다. 또한, 이상의 일반식 (2)~(5)에 있어서 *은 결합 위치를 나타낸다.
- [53] 본 발명의 청색계 유기 발광 재료는, 중심 금속 Ir(III)에 배위되는 페닐피리딘의 파라 위치(페닐기 상의 5' 위치 또는 피리딘 고리 상의 4 위치)에 페닐카르보닐 치환기를 갖는 것을 특징으로 한다. 즉, 본 발명의 유기 발광 재료는 이하의 일반식 (6) 또는 (7)로 나타내지는 기본 구조를 갖는 것을 특징으로 하는 Ir(III) 금속 착화합물이다.
- [54] 화학식 10



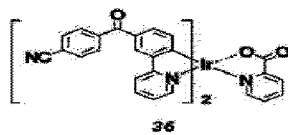
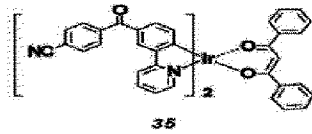
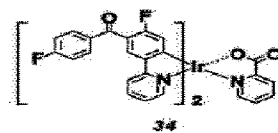
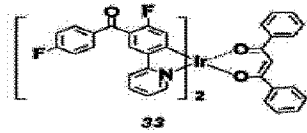
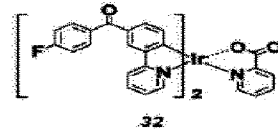
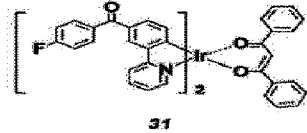
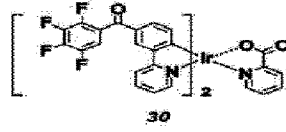
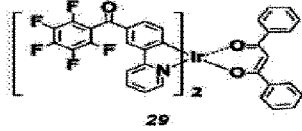
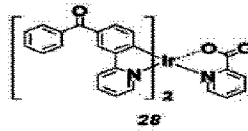
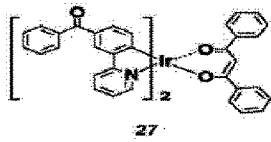
- [55] 이상의 일반식 (6) 및 (7)에 있어서, L은 이상의 (3)~(5)에 나타낸 2 자리 리간드(ligand) 중의 하나로 선택된다. 일반식 (6) 및 (7)에 나타내는 바와 같이, 본 발명의 유기 발광 재료에 있어서, 중심 금속 Ir(III)에 배위되어 있는 페닐피리딘의 페닐기 상의 5' 위치 또는 피리딘 고리 상의 4 위치 중의 어느 한 쪽에 페닐카르보닐기가 치환되어 있지만, 본 발명의 유기 발광 재료는 이것들에 한정되지 않고, 일반식 (6)에 있어서, 페닐기 상의 5' 위치 뿐만 아니라, 중심 금속 Ir(III)에 배위되어 있는 피리딘 고리 상의 4 위치(Ir에 대해 파라 위치)에도 페닐카르보닐기가 치환될 수 있으며, 일반식 (7)에 있어서, 피리딘 고리 상의 4 위치 뿐만 아니라, 중심 금속 Ir(III)에 배위되어 있는 페닐기 상의 5' 위치(Ir에 대해 파라 위치)에도 페닐카르보닐기가 치환될 수 있다. 일반식 (6) 및 (7)로 나타내지는 기본 구조를 갖는 화합물에 있어서, 중심 금속 Ir(III)에 대해, 보조 리간드(ligand)(일반식 (1)에 기재의 L에 해당하는 리간드(ligand))가 2 개의 배위 위치에 있어서 양쪽이 N 원자인 금속 착화합물은 불안정하기 때문에, 본 발명의

유기 발광 재료로서 적절하지 않다.

- [56] 페닐피리딘이 배워된 Ir(III) 착화합물의 발색광은 녹색을 나타내지만, 본 발명에 있어서는, 중심 금속 Ir(III)에 배워된 페닐피리딘의 파라 위치(페닐기 상의 5' 위치 및/또는 피리딘 고리 상의 4 위치)에 전자 흡인성의 카르보닐 치환기를 도입함으로써, Ir(III) 금속 착화합물의 발색광을 청색 ~청록색으로 시프트시켰다. 또한, 본 발명에서는, Ir(III)에 배워된 페닐피리딘의 파라 위치(페닐기 상의 5' 위치 및/또는 피리딘 고리 상의 4 위치)에 치환된 카르보닐기에 페닐기를 도입하였다. 중심 금속 Ir(III)에 배워된 페닐피리딘의 파라 위치(페닐기 상의 5' 위치 및/또는 피리딘 고리 상의 4 위치)에 페닐카르보닐 치환기를 갖는 Ir(III) 착화합물은, 향상된 발광 효율을 나타낸다.
- [57] Ir(III)에 배워된 페닐피리딘의 파라 위치(페닐기 상의 5' 위치 및/또는 피리딘 고리 상의 4 위치)에 페닐카르보닐 치환기를 갖는 본 발명의 유기 발광 재료의 구체예에 대해서 이하에 나타내지만, 본 발명은 이것에 한정되는 것은 아니다.
- [58] 화학식 11

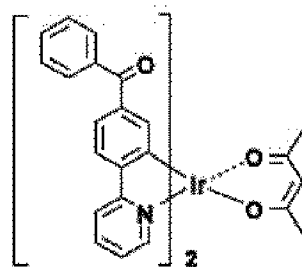


[59] 화학식 12

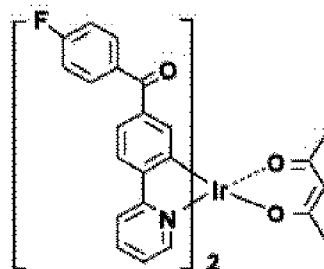


[60] 이상에서 설명한 화합물 1, 2, 4, 5에 관한 물성, 및 비교 화합물로서, 이하의 구조식으로 나타내지는 비교 화합물 1~3의 물성을 이하의 표 1에 나타낸다.

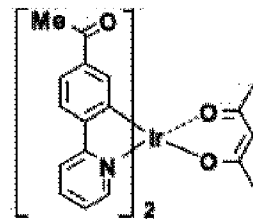
[61] 화학식 13



비교화합물 1



비교화합물 2



비교화합물 3

[62] 표 1

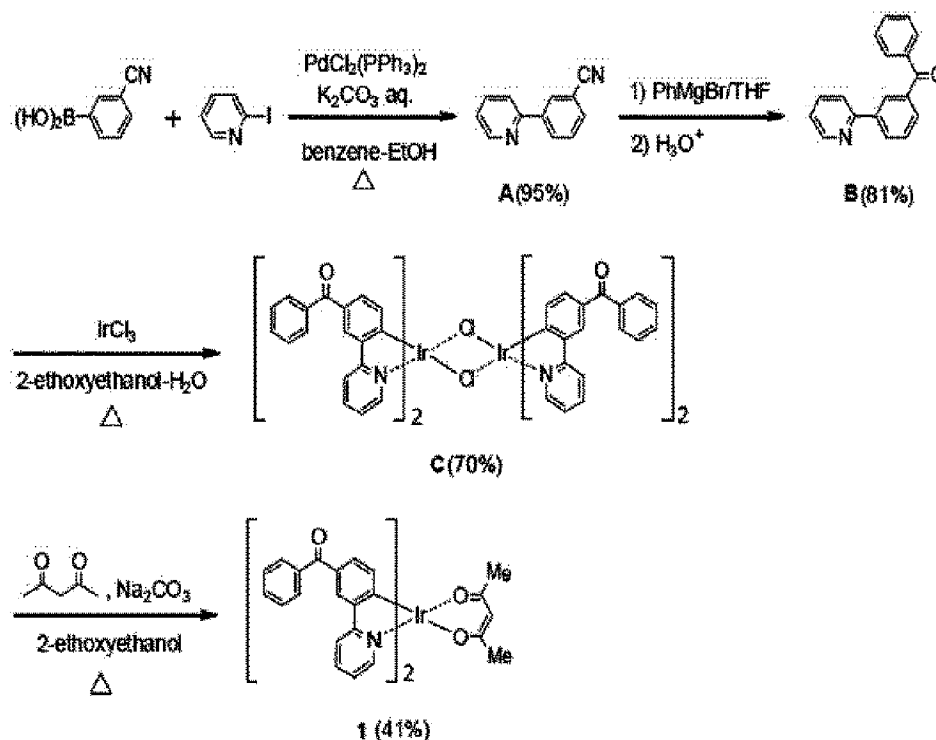
[Table 1]

화합물	$\lambda_{\text{PL}}/\text{nm}$	Φ_{PL}
1	502	0.716
2	202	0.711
4	485	0.457
5	484	0.430
비교 화합물 1	607	0.081
비교 화합물 2	608	0.061
비교 화합물 3	589	0.130

- [63] 표 1에 있어서, λ_{PL} 은 화합물로부터 발생하는 광의 파장(nm)을 나타내고, Φ_{PL} 은 형광 양자 수율을 의미한다. 단, 여기에서는 용매로서 디클로로메탄을 사용하였다. 본 발명의 화합물 1, 2, 4, 5의 형광 양자 수율은, 각각, 0.716, 0.711, 0.457, 0.430이고, 모두 0.4 이상의 수치를 나타냈다. 이것들의 형광 양자 수율이, 비교 화합물 1, 비교 화합물 2 및 비교 화합물 3보다도 높은 것은, 이상의 표 1로부터 명확하다. 따라서, Ir(III)에 배위된 페닐피리딘의 파라 위치(페닐기 상의 5' 위치 및/또는 피리딘 고리 상의 4 위치)에 페닐카르보닐 치환기를 갖는 것을 특징으로 하는 본 발명의 유기 발광 재료인 화합물 1, 2, 4, 5의 발광 효율은, 상기 특징을 갖지 않는 Ir(III) 착화합물에 비해, 발광 효율이 향상된다.

발명의 실시를 위한 형태

- [64] 본 발명의 유기 발광 재료에 대해서, 상술의 화합물 1의 합성법의 예를 이하에서 설명한다. 단, 이하에 설명하는 합성법은 하나의 예이고, 본 발명을 한정하는 것은 아니다.
- [65] 화학식 14



- [66] 우선, 3-시아노-페닐붕산(0.268g, 1.83mmol), 2-요오드피리딘(0.25g, 1.22mmol), $(\text{PPh}_3)_2\text{PdCl}_2$ (0.0689g, 0.0982mmol), 및 탄산 칼륨(1.69g, 12.3mmol)의 혼합물을, 냉각 관을 장착한 100mL 3구 플라스크(3 lip eggplant flask)에 넣고, 질소 분위기로 치환한 후, 벤젠(5mL), 물(5mL), 에탄올(2mL)을 순차적으로 첨가한 후, 질소 분위기 하에서 교반하면서, 24 시간 동안 가열하면서 환류시켰다. 냉각 후, 반응 혼합물을 회전 증류기(rotary evaporator)로 농축한 후, 남은 고체-액체 혼합물에 염화메틸렌(100mL)을 첨가하여 분액 깔대기 속에서 흔든 후, 물 층을 제거하였다. 유기층을 물(50mLx2) 및 포화 식염수(100mL)로 세정하고, 무수황산 마그네슘으로 건조시킨 후, 회전 증류기를 사용하여 용매를 증류하여 제거시켰다. 잔류물을 실리카겔 컬럼 크로마토그래피(silica gel column chromatography) (전개 용매:염화메틸렌)로 정제함으로써, 화합물A(2-(3-시아노페닐)피리딘)을 백색 고체로서 수량 0.210g, 수율 95%로 얻었다.

- [67] 계속하여, 냉각관을 장착한 100mL 3구 플라스크에, 화합물A(0.366g, 2.03mmol)을 건조시킨 THF(4mL)에 용해시키고, 질소 치환한 후에 브롬화페닐마그네슘(0.5M in THF, 12mL)을 실온에서 교반하면서, 조금씩 적하하였다. 그 후, 반응 혼합물을 5 시간 동안 가열하면서 환류시켰다. 냉각 후, 1M 황산 수용액을 첨가하여 반응액을 산성으로 만들고, 실온에서 2 시간 동안 교반하였다. 그 후, 포화 염화수소 나트륨 수용액(30mL)으로 중화시키고, 회전 증류기로 반응 혼합물을 농축하였다. 남은 수용액에 염화메틸렌(100mL)을 첨가하여 분액 깔대기 속에서 흔든 후, 물 층을 제거하였다. 유기 층을

물(50mL×2) 및 포화 식염수(100mL)로 세정하고, 무수황산 마그네슘으로 건조시킨 후, 회전 증류기를 이용하여 용매를 증류시켜 제거하였다. 잔류물을 실리카겔 컬럼 크로마토그래피(전개 용매:초산 에틸/헥산=1/3)로 정제함으로써 화합물B(페닐(3-(피리딘-2-일)페닐)메타논)을 아이보리 색의 유상 액체로서 수량 0.424g, 수율 81%로 얻었다.

[68] 계속하여, 화합물B(0.188g, 1.05mmol)와 염화 이리듐(0.154g, 0.487mmol)의 혼합물을, 2-에톡시에탄올(14mL)과 물(5mL)의 혼합 용매 속에서, 질소 분위기 하에서 교반하면서, 17시간 동안 가열하면서 환류시켰다. 냉각 후, 물(100mL)에 반응 혼합물을 가하고, 석출된 고체를 흡인 여과에 의해 분리하였다. 얻어진 고체를 소량의 에탄올과 헥산으로 세정하고, 감압 하에서 건조시키고, 화합물C(μ -클로로 가교 이리듐 2 핵 착물)을 황색 고체로서 수량 0.215g, 수율 70%로 얻었다. 화합물C은, 대부분의 용제에 대하여 난용성이므로, 새로운 정제는 행하지 않고, 조제 생성물(crude product)인 채로 다음 반응에 사용하였다.

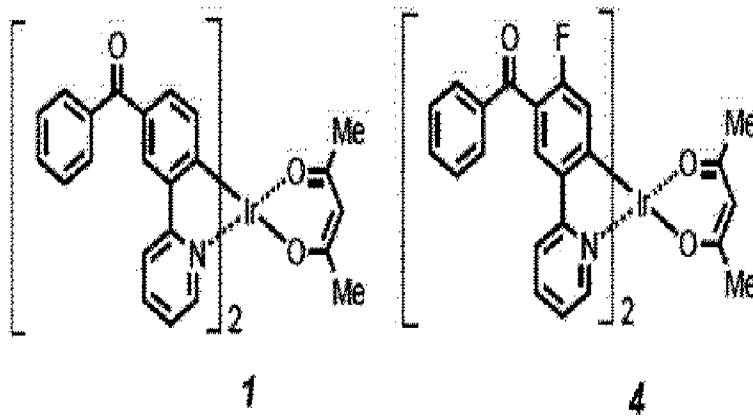
[69] 그 다음에, 화합물C(0.195g, 0.134mmol), 아세틸 아세톤(0.0401g, 0.400mmol) 및 탄산 나트륨(0.118g, 1.17mmol)의 혼합물을 2-에톡시에탄올(30mL) 속에서 질소 분위기 하에서 교반하면서, 2 시간 동안 가열하면서 환류시켰다. 냉각 후, 반응 용매를 회전 증류기에서 증류하여 제거하고, 잔류물에 염화메틸렌(50mL)을 첨가하였다. 그 후, 얻어진 혼합물을 분액 깔대기 속에서, 물(50mL×2) 및 포화 식염수(100mL)로 세정하고, 무수황산 나트륨으로 건조시킨 후, 회전 증류기를 이용하여 용매를 증류시켜 제거하였다. 잔류물을 알루미늄 컬럼 크로마토그래피(전개 용매:염화메틸렌/헥산=3/1)로 정제하여, 황색 고체인 화합물 1을 수량 0.0873g, 수율 41%로 얻었다.

[70] Ir(III)에 배위되는 페닐피리딘의 파라 위치(페닐기 상의 5' 위치 및/또는 피리딘 고리 상의 4 위치)에 페닐카르보닐 치환기를 갖는 본 발명의 유기 발광 재료는, 유기 EL 소자의 발광층에 사용할 수 있다. 유기 EL 소자는, 예를 들면, 도 1에 나타내는 바와 같은 구조를 가질 수 있으나, 이것에 한정되는 것은 아니다. 도 1에 나타내는 유기 EL 발광 소자(100)는, 유리 기판(102), 유리 기판(102) 상에 배치된 양극(104), 양극(104) 상에 배치된 정공 주입층(106), 정공 주입층(106) 상에 배치된 정공 수송층(108), 정공 수송층(108) 상에 배치된 발광층(110), 발광층(110) 상에 배치된 전자 수송층(112), 및 전자 수송층(112) 상에 배치된 음극(114)을 포함할 수 있다. 여기에서, 전자 수송층(112)은, 전자 주입층으로서도 기능하는 것으로 한다. 각 층의 재료로서는, 공지된 재료를 사용할 수 있다. 또한, 각 층을 구성하는 재료에 따라서, 상기 각층에 있어서 임의의 층을 생략할 수 있으며, 또한, 상기 각 층과는 다른 층을 추가할 수 있다. 본 발명의 유기 발광 재료를 유기 EL 소자의 발광층에 사용하면, 유기 EL 소자의 발광 효율을 향상시키는 것이 가능해진다. 한편, 본 발명의 유기 발광 재료의 사용은, 유기 EL 소자의 발광층에 한정되는 것은 아니다.

[71] 이하, 본 발명의 유기 발광 재료로서, 상술한 화합물 1 및 화합물 4를 발광층에

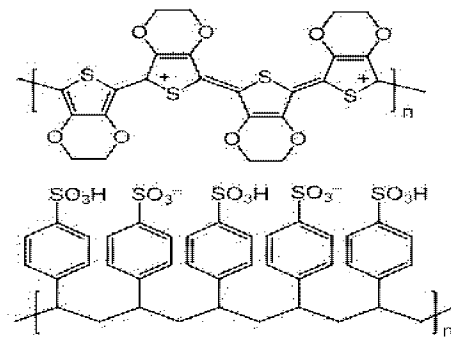
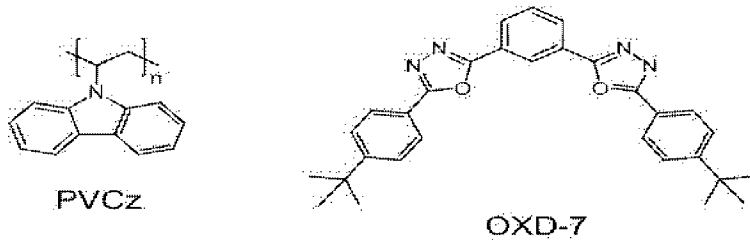
사용한 유기 EL 소자를 설명한다.

[72] 화학식 15



[73] 유기 EL 소자의 제작은 다음과 같은 순서로 행하였다. 먼저, 미리 패터닝하여 세정 처리를 실시한 ITO-유리 기판(산요 진공 공업사 제품, ITO막 두께150nm)에, 오존을 이용하여 표면 처리를 행하였다. 오존 처리 후, 바로, 정공 주입 재료로서 폴리(3,4-에틸렌디옥시티오펜):폴리(스티렌-4-술포네이트)(PEDOT:PSS, Heraeus Clevios사 제품 P CH 8000, 막 두께40nm)을 스핀 코팅법에 의해 ITO 상에 성막하고, 110°C에서 1 시간 동안 소성하였다. 그 다음에, 탈수 톨루엔(와코 준야쿠 공업사 제품)에 전자 수송 재료로서 2-(4-비페닐릴)-5-(4-tert-부틸페닐)-1,3,4-옥사디아졸(통칭, OXD-7)을, 발광 재료로서 Ir(III) 착물인 화합물 1 또는 화합물 4를, 정공 수송성 호스트 재료로서 폴리(9-비닐카르바졸)(이하, PVCz)을 용해시킨 발광층 잉크를 스핀 코팅법에 의해 성막하고(100nm), 80°C에서 1시간 동안 소성시켰다. 또한, 발광 면적이 0.10 cm²이 되는 새도우 마스크를 사용하여 전자 주입 재료로서 불화세슘(1.0nm) 및 음극으로서 알루미늄(250nm)을 순차적으로 진공 증착법을 이용하여 적층하여, 유기 EL 소자(200)을 제작하였다. 얻어진 유기 EL 소자(200)은 UV 경화성 수지를 사용하여 건조재와 함께 캐비티 유리 속에 밀봉하였다. 또한, 발광층의 조성으로는, PVCz:OXD-7:Ir 착물을 약 10:3.0:1.2(wt/wt/wt)로 하였다.

[74] 화학식 16



PEDOT:PSS

- [75] 제작된 유기 EL 소자(200)의 개략도를 도 2에 나타내었다. 제작된 유기 EL 소자(200)은, 양극(201), 양극(201) 상에 배치된 정공 주입층(203), 정공 주입층(203) 상에 배치된 발광층(205), 발광층(205) 상에 배치된 전자 주입층(207) 및 전자 주입층(207) 상에 배치된 음극(209)을 포함한다. 여기에서는, 발광층(205)은, 정공 수송층 및 전자 수송층으로서의 기능을 겸하고 있다.
- [76] 제작된 유기 EL 소자(200)의 EL 스펙트럼을 도 3a 및 도 3b에 각각 나타내었다. 도 3a는, 화합물 1을 발광층(205)으로 사용한 유기 EL 소자(200)의 EL 스펙트럼을 나타내고, 도 3b는, 화합물 4를 발광층(205)으로 사용한 유기 EL 소자(200)의 EL 스펙트럼을 나타내었다. 또한, 이것들의 EL 스펙트럼은, 유기 EL 소자(200)의 최대 휘도 시에 측정하였다. 또한, 제작된 유기 EL 소자(200)의 전류 밀도-전압-휘도 곡선(J-V-L 곡선)을 도 4a 및 도 4b에 나타내었다. 도 4a는, 화합물 1을 발광층(205)로 사용한 유기 EL 소자(200)의 J-V-L 곡선을 나타내고, 도 4b는, 화합물 4을 발광층(205)로 사용한 유기 EL 소자(200)의 J-V-L 곡선을 나타내었다.
- [77] 또한, 제작된 유기 EL 소자(200)의 소자 성능을 이하의 표 2에 나타낸다.
- [78] 표 2

[Table 2]

화합물	$V_{\text{turn-on}}^a$	$L^b(\text{cdm}^{-2})$	$\eta_{\text{ext}}^b(\%)$	$\eta_i^b(\text{cdA}^{-1})$	$\eta_p^b(\text{lmW}^{-1})$	CIE(x,y)	$\lambda_{\text{EL}}(\text{nm})$
1	4.0	8210[14.5]	2.44[10.0]	7.67[10.0]	2.81[7.5]	(0.27,0.60)	507
4	4.5	6090[14.5]	2.13[10.0]	5.70[10.0]	2.07[8.0]	(0.21,0.50)	485

- [79] ^a 1 cd m⁻² 발광시의 전압이다.
- [80] ^b 각 효율의 최대치($\square$ 내는 그 값을 나타낼 때의 전압(V)를 나타낸다.
- [81] 한편, 제작된 유기 EL 소자(200)의 전계 발광 특성의 평가에는, 하마마쓰 호토닉스사 제품 C9920-11 휘도 배향 특성 측정 장치를 사용하였다.

[82]

산업상 이용가능성

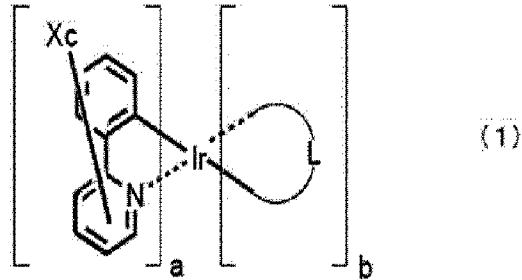
- [83] 이상에 있어서는, 본 발명의 유기 발광 재료를 유기 EL 소자의 발광층에 이용한 예를 설명하였지만, 본 발명의 유기 발광 재료의 이용은 유기 EL 소자에 한정되지 않고, 그 밖의 발광 소자 또는 발광 장치에 이용되어도 좋다.

청구범위

[청구항 1]

하기 일반식(1)로 표시되는 유기 발광 재료.

[화학식 1]

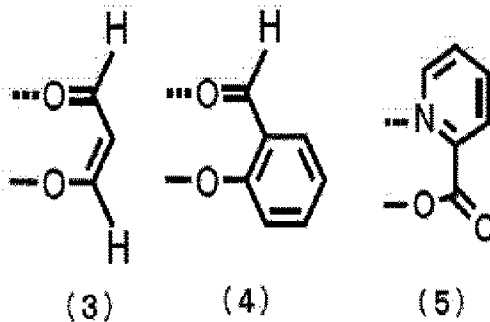


식(1) 중에서 X는 하기 일반식(2)로 나타낼 수 있는 페닐카르보닐기이고, 상기 일반식(1)에 있어서 L은 하기 일반식(3) 내지 일반식(5)로 표시되는 2자리 리간드(ligand)로부터 어느 하나가 선택되고, 상기 일반식(1) 내지 일반식(5) 중에서 임의의 위치에서 수소 원자(H-), 불소 원자(F-), 트리플루오로메틸기(CF₃-), 시아노기(CN-), 니트로기(NO₂-), 탄소수 6 이하의 알킬기, 아릴기, 또는 헤테로아릴기가 임의의 수만큼 각각 독립적으로 치환되고, 상기 일반식(1) 및 일반식(2)에 있어서 a+b=3이고, a≠0이며, c≤2이다.

[화학식 2]



[화학식 3]



[청구항 2]

제 1 항에 있어서,
상기 페닐카르보닐기는, 상기 식(1)에 있어서, Ir에 배위된 페닐피리딘의 파라 위치에 치환되는 것을 특징으로 하는 유기

발광 재료.

[청구항 3]

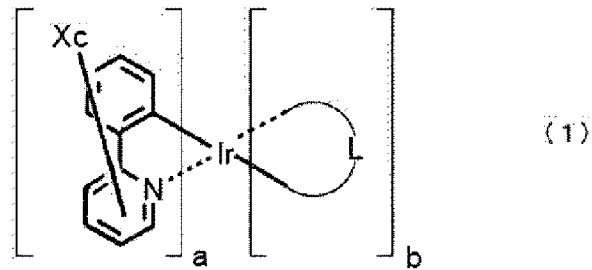
제 1 항 또는 제 2 항에 있어서,

형광 양자 수율이 0.4 이상인 것을 특징으로 하는 유기 발광 재료.

[청구항 4]

하기 일반식(1)로 나타내지는 유기 발광 재료를 포함하는 유기 EL 소자.

[화학식 4]



[식(1) 중에서 X는 하기 일반식(2)로 나타낼 수 있는

페닐카르보닐기이고,

상기 일반식(1)에 있어서 L은 하기 일반식(3) 내지 일반식(5)로

나타내지는 2자리 리간드(ligand)로부터 어느 하나가 선택되고,

상기 일반식(1) 내지 일반식(5)에 있어서 임의의 위치에서 수소

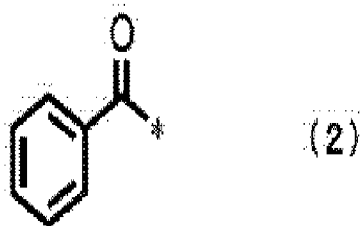
원자(H-), 불소 원자(F-), 트리플루오로메틸기(CF₃-),

시아노기(CN-), 니트로기(NO₂-), 탄소수 6 이하의 알킬기, 아릴기,

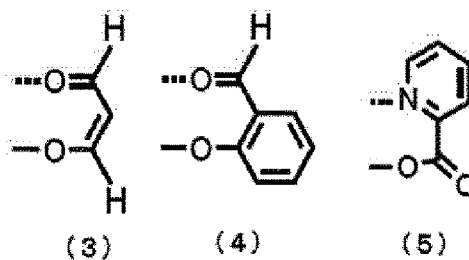
또는 헤테로아릴기가 임의의 수만큼 각각 독립적으로 치환되고,

상기 일반식(1) 및 일반식(2) 중에서 a+b=3이고, a≠0이며, c≤2이다.

[화학식 5]



[화학식 6]



[청구항 5]

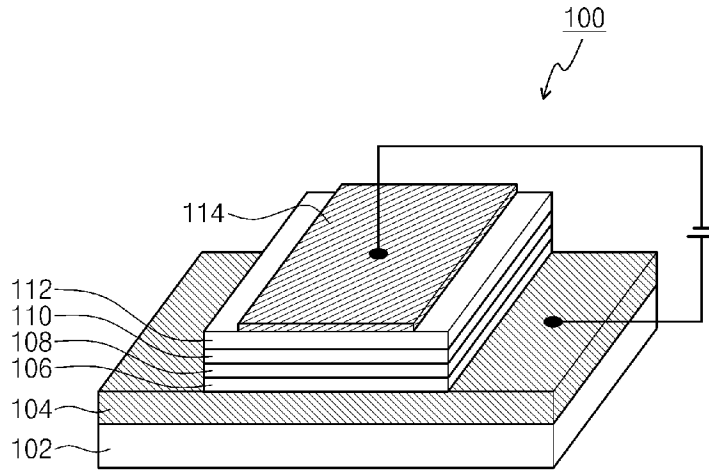
제 4 항에 있어서,

상기 페닐카르보닐기는, 상기 식(1)에 있어서, Ir에 배위된 페닐피리딘의 파라 위치에 치환되는 것을 특징으로 하는 유기 EL 소자.

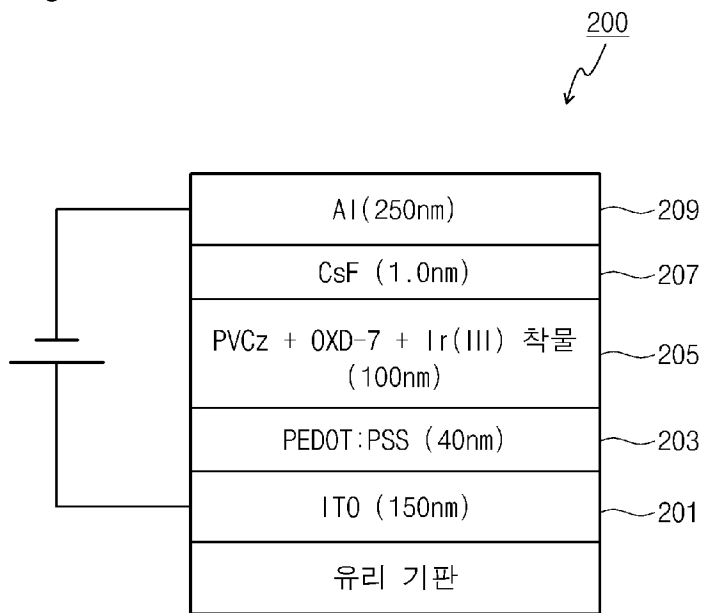
[청구항 6]

제 4 항 또는 제 5 항에 있어서,
상기 유기 발광 재료의 형광 양자 수율이 0.4 이상인 것을 특징으로 하는 유기 EL 소자.

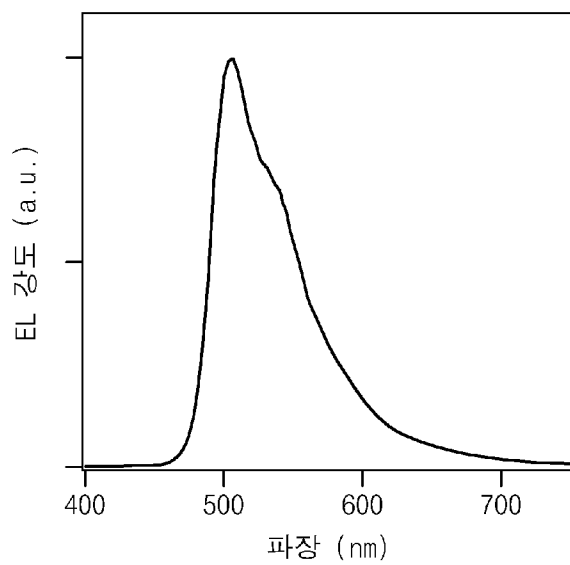
[Fig. 1]



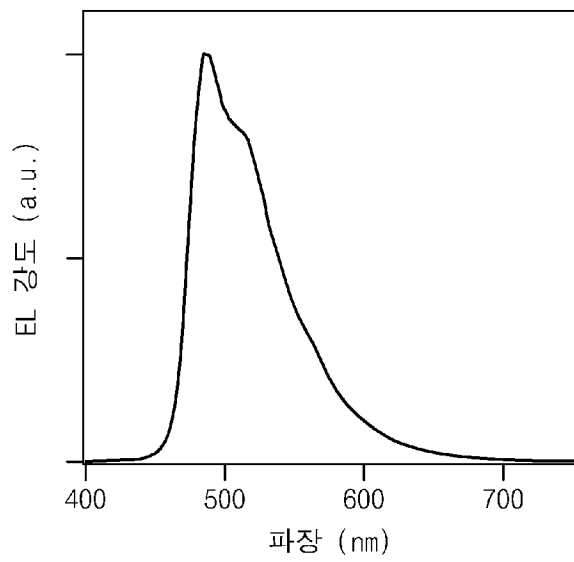
[Fig. 2]



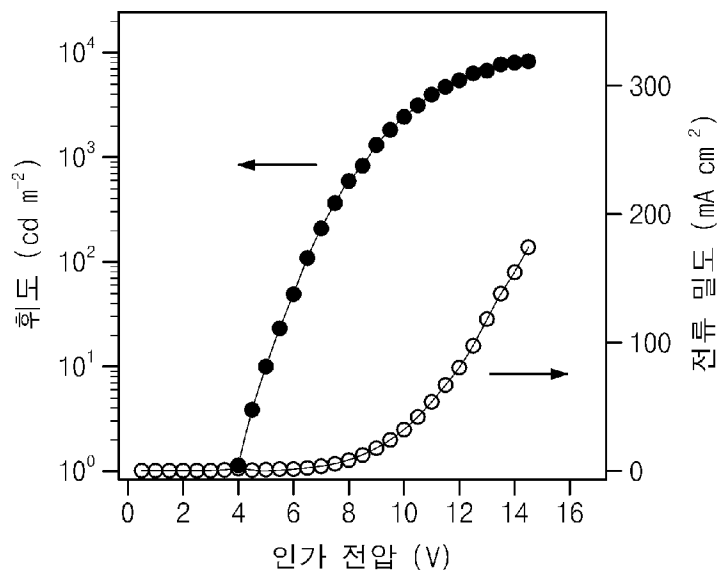
[Fig. 3a]



[Fig. 3b]



[Fig. 4a]



[Fig. 4b]

