



(19) 대한민국특허청(KR)

(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2021년06월15일

(11) 등록번호 10-2265675

(24) 등록일자 2021년06월10일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C07F 15/00 (2006.01) *C07C 211/65* (2006.01)
C09K 11/06 (2006.01) *H01L 51/50* (2006.01)

(21) 출원번호 10-2014-0057345
 (22) 출원일자 2014년05월13일
 심사청구일자 2019년05월09일

(65) 공개번호 10-2014-0136380
 (43) 공개일자 2014년11월28일

(30) 우선권주장
 JP-P-2013-106142 2013년05월20일 일본(JP)

(56) 선행기술조사문헌
 KR1020060027323 A
 JP2008081582 A
 JP2008010653 A*

*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자
 가부시키가이샤 한도오파이 에네루기 켄큐쇼
 일본국 가나가와켄 아쓰기시 하세 398

(72) 발명자
 이노우에 히데코
 일본국 243-0036 가나가와켄 아쓰기시 하세 398
 가부시키가이샤 한도오파이 에네루기 켄큐쇼 내
 야마구치 토모야
 일본국 243-0036 가나가와켄 아쓰기시 하세 398
 가부시키가이샤 한도오파이 에네루기 켄큐쇼 내
 (뒷면에 계속)

(74) 대리인
 황의만

전체 청구항 수 : 총 9 항

심사관 : 김지은

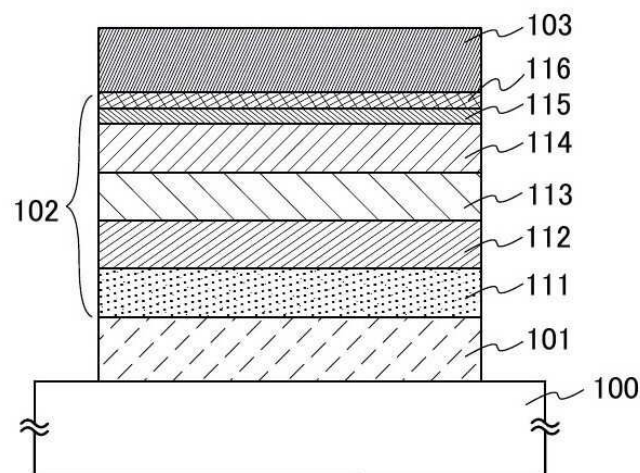
(54) 발명의 명칭 유기 금속 착체, 발광 소자, 발광 장치, 전자기기, 및 조명 장치

(57) 요약

본 발명은 인광성의 유기 금속 착체를 갖는 발광 소자를 제공한다. 상기 유기 금속 착체는 황록색~주황색의 파장역에 인광 발광을 나타내고, 높은 발광 효율, 및 높은 신뢰성을 가진다. 따라서, 인광 발광을 나타내는 유기 금속 착체를 제공한다.

피리미딘 고리의 3위치의 질소가 금속에 배위하고, 피리미딘 고리의 4위치에 카바졸 골격을 가지고, 카바졸 골격이 금속과 결합한 유기 금속 착체를 발광 중심으로 한다. 또한, 상기 금속이 제 9 족 원소 또는 제 10 족 원소인 것이 바람직하고, 더욱 바람직하게는 상기 금속이 이리듐이다.

대표도 - 도1



(72) 발명자

세오 히로미

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

타카하시 타츠요시

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

세오 사토시

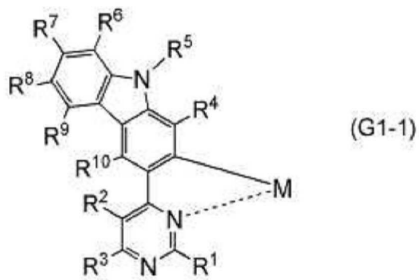
일본국 243-0036 가나가와켄 아쓰기시 하세 398 가
부시키가이샤 한도오파이 에네루기 켄큐쇼 내

명세서

청구범위

청구항 1

식(G1-1)으로 나타내어지는 구조를 포함하는 화합물.

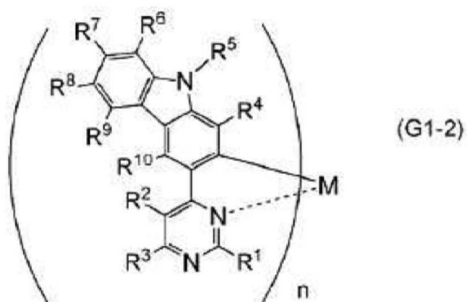


(식 중, $R^1 \sim R^{10}$ 은 각각 독립적으로 수소, 탄소수 1~6의 알킬기, 및 비치환된 탄소수 6~10의 아릴기 중 어느 하나를 나타낸다. 또한, M은 이리듐을 나타낸다.)

청구항 2

제 1 항에 있어서,

상기 화합물은 식(G1-2)으로 나타내어지고,

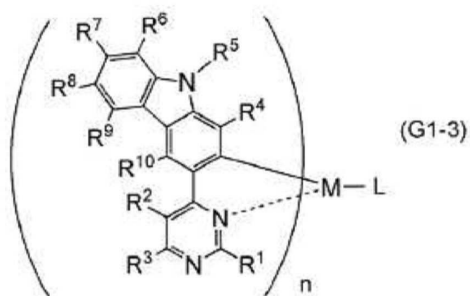


식 중, $n = 3$ 인, 화합물.

청구항 3

제 1 항에 있어서,

상기 화합물은 식(G1-3)으로 나타내어지고,



식 중, $n = 2$ 이고,

L은 모노 음이온성의 배위자를 나타내는, 화합물.

청구항 4

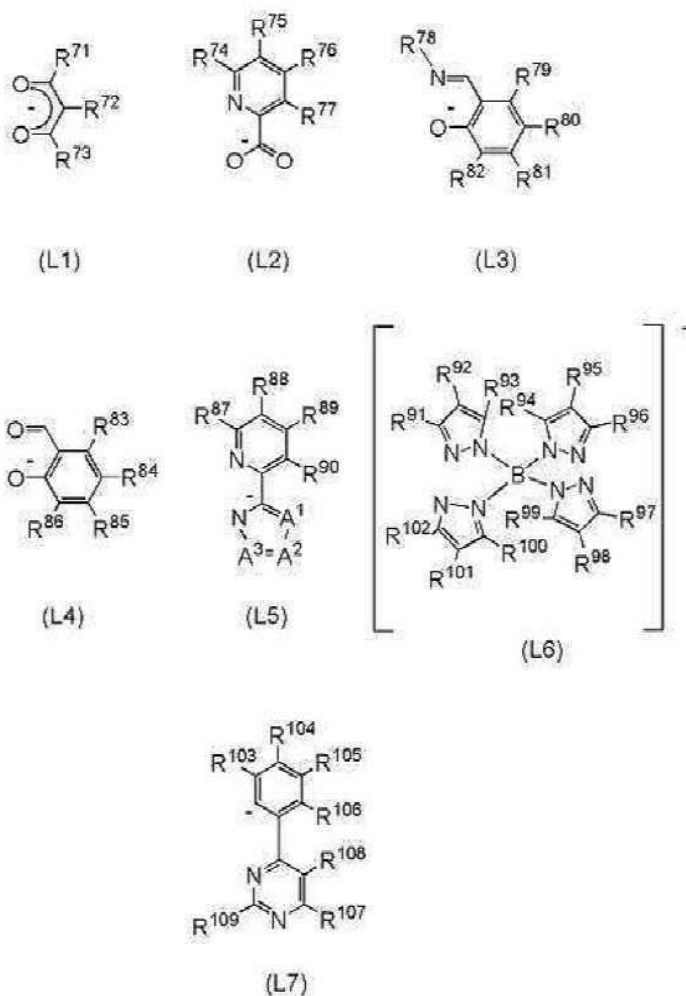
제 3 항에 있어서,

상기 모노 음이온성의 배위자는 베타-다이케톤 구조를 갖는 모노 음이온성의 2좌 킬레이트 배위자, 카복실기를 갖는 모노 음이온성의 2좌 킬레이트 배위자, 페놀성 수산기를 갖는 모노 음이온성의 2좌 킬레이트 배위자, 또는 2개의 배위 원소가 모두 질소인 모노 음이온성의 2좌 킬레이트 배위자로 이루어지는 그룹으로부터 선택된 것인, 화합물.

청구항 5

제 4 항에 있어서,

상기 모노 음이온성의 배위자는 식(L1) 내지 식(L7)으로 이루어지는 그룹으로부터 선택된 것이고,



식 중, $R^{71} \sim R^{109}$ 는 각각 독립적으로 수소, 비치환된 탄소수 1~6의 알킬기, 할로젠기, 비닐기, 비치환된 탄소수 1~6의 할로 알킬기, 비치환된 탄소수 1~6의 알콕시기, 및 비치환된 탄소수 1~6의 알킬티오기 중 어느 하나를 나타내고,

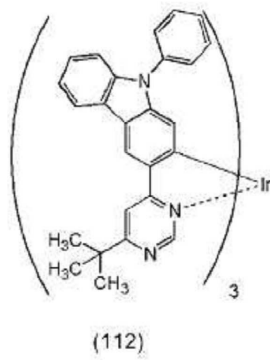
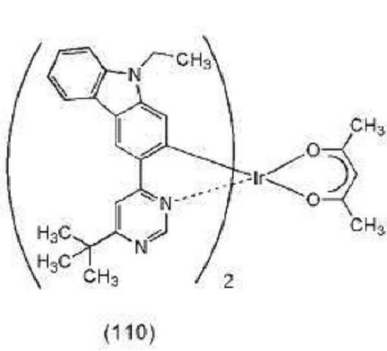
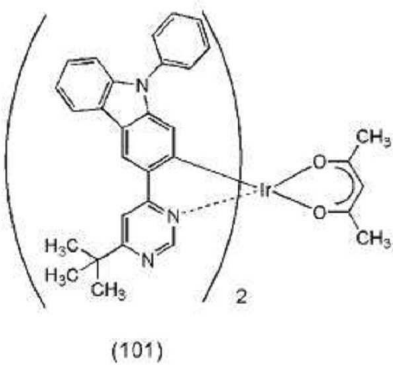
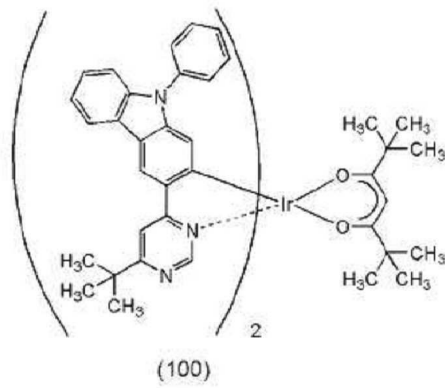
$A^1 \sim A^3$ 은 각각 독립적으로 질소, 또는 수소와 결합된 탄소, 또는 치환기 R과 결합된 탄소를 나타내고,

상기 치환기 R은 탄소수 1~6의 알킬기, 할로젠기, 탄소수 1~6의 할로 알킬기, 및 페닐기 중 어느 하나를 나타내는, 화합물.

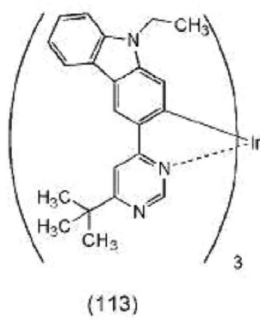
청구항 6

제 1 항에 있어서,

상기 화합물은 식(100), 식(101), 식(110), 식(112), 및 식(113)으로부터 선택되는, 화합물.



, 및



청구항 7

발광 장치에 있어서,

한 쌍의 전극 사이에, 제 1 항 내지 제 3 항 중 어느 한 항에 따른 화합물을 포함하는 발광층을 포함하는, 발광 장치.

청구항 8

제 7 항에 따른 발광 장치를 포함하는 전자기기.

청구항 9

제 7 항에 따른 발광 장치를 포함하는 조명 장치.

청구항 10

삭제

청구항 11

삭제

청구항 12

삭제

청구항 13

삭제

청구항 14

삭제

청구항 15

삭제

청구항 16

삭제

청구항 17

삭제

청구항 18

삭제

청구항 19

삭제

청구항 20

삭제

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 유기 금속 착체, 발광 소자, 발광 장치, 전자기기, 및 조명 장치에 관한 것이다.

배경 기술

- [0002] 근년, 일렉트로루미네선스(EL : Electro Luminescence)를 이용한 발광 소자의 연구 개발이 활발히 행해지고 있다. 이들 발광 소자의 기본적인 구성은 한쌍의 전극 사이에 발광 물질을 포함하는 층을 사이에 끼운 것이다. 이 소자에 전압을 인가함으로써, 발광 물질로부터의 발광을 얻을 수 있다.
- [0003] 이러한 발광 소자는 자기 발광형이기 때문에, 액정 디스플레이에 비해 화소의 시인성이 높고, 백 라이트가 불필요하다는 등의 이점이 있어, 플랫 패널 디스플레이 소자로서 적합하다고 생각되고 있다. 또한, 이러한 발광 소자는 박형 경량으로 제작할 수 있는 것도 큰 이점이다. 또한 응답 속도가 매우 빠른 것도 특징의 하나이다.
- [0004] 그리고, 이러한 발광 소자는 막 형상으로 형성하는 것이 가능하기 때문에, 면 형상으로 발광을 얻을 수 있다. 따라서, 대면적의 소자를 용이하게 형성할 수 있다. 이것은 백열 전구나 LED로 대표되는 점 광원, 혹은 형광등으로 대표되는 선 광원에서는 얻기 어려운 특색이기 때문에, 조명 등에 응용할 수 있는 면 광원으로서의 이용 가치도 높다.
- [0005] 그 일렉트로루미네선스를 이용한 발광 소자는 발광 물질이 유기 화합물인지, 무기 화합물인지에 따라 크게 나눌 수 있다. 발광 물질에 유기 화합물을 이용하여 한쌍의 전극 사이에 상기 유기 화합물을 포함하는 층을 제공하는 유기 EL 소자의 경우, 발광 소자에 전압을 인가함으로써, 음극으로부터 전자가, 양극으로부터 정공(홀)이 각각 발광성의 유기 화합물을 포함하는 층에 주입되어 전류가 흐른다. 그리고, 주입한 전자 및 정공이 유기 화합물을 여기 상태에 이르게 하여 여기된 유기 화합물로부터 발광을 얻는 것이다.
- [0006] 유기 화합물이 형성하는 여기 상태의 종류로서는, 일중항 여기 상태와 삼중항 여기 상태가 가능하고, 일중항 여기 상태(S^*)로부터의 발광이 형광, 삼중항 여기 상태(T^*)로부터의 발광이 인광이라고 불린다. 또한, 발광 소자에서의 통계적인 생성 비율은 $S^* : T^* = 1 : 3$ 이라고 생각되고 있다.
- [0007] 일중항 여기 에너지를 발광으로 변환하는 화합물(이하, 형광성 화합물이라 칭함)에서는 실온에서 삼중항 여기 상태로부터의 발광(인광)은 관측되지 않고, 일중항 여기 상태로부터의 발광(형광)만이 관측된다. 따라서, 형광성 화합물을 이용한 발광 소자에서의 내부 양자 효율(주입한 캐리어에 대하여 발생하는 포톤의 비율)의 이론적 한계는 $S^* : T^* = 1 : 3$ 인 것을 기초로 25%로 되어 있다.
- [0008] 한편, 삼중항 여기 에너지를 발광으로 변환하는 화합물(이하, 인광성 화합물이라고 칭함)을 이용하면, 삼중항 여기 상태로부터의 발광(인광)이 관측된다. 또한, 인광성 화합물은 항간 교차(일중항 여기 상태에서부터 삼중항 여기 상태로의 전이)가 일어나기 쉽기 때문에, 내부 양자 효율은 이론상 100%까지 가능하게 된다. 즉, 형광성 화합물보다 높은 발광 효율이 가능하게 된다. 이러한 이유로, 고효율의 발광 소자를 구현하기 위해, 인광성 화합물을 이용한 발광 소자의 개발이 근년 활발히 행해지고 있다.
- [0009] 상술한 인광성 화합물을 이용하여 발광 소자의 발광층을 형성하는 경우, 인광성 화합물의 농도 소광이나 삼중항-삼중항 소멸로 인한 소광을 억제하기 위해, 다른 화합물로 이루어지는 매트릭스 내에 이 인광성 화합물이 분산되도록 하여 형성되는 경우가 많다. 이때, 매트릭스가 되는 화합물은 호스트 재료, 인광성 화합물과 같이 매트릭스 내에 분산되는 화합물은 게스트 재료(도펀트)라고 불린다.
- [0010] 게스트 재료(도펀트)로서는, 그 인광 양자 수율의 높이 때문에, 특히 이리듐(Ir) 등을 중심 금속으로 하는 유기 금속 착체가 주목받고 있다. 이리듐을 중심 금속으로 하는 인광성의 유기 금속 착체로서, 예를 들면, 4위치에 아릴기를 갖는 피리미딘의 3위치의 질소가 금속에 배위하고, 상기 피리미딘의 2위치, 5위치, 및 6위치 중 어느 하나에 알킬기 또는 아릴기를 가지고, 상기 피리미딘의 4위치의 아릴기가 금속과 결합함으로써 오르토 메탈화한 구조를 갖는 인광성 유기 금속 이리듐 착체를 포함하는 발광 장치가 개시되어 있다(예를 들면, 특허문헌 1 참조).

선행기술문헌

특허문헌

- [0011] (특허문헌 0001) 일본국 특개 2012-238854호 공보

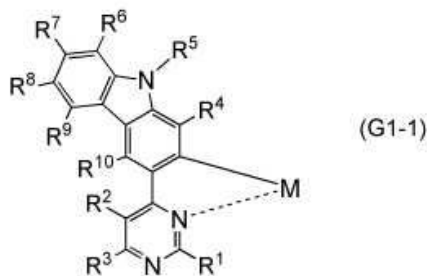
발명의 내용

해결하려는 과제

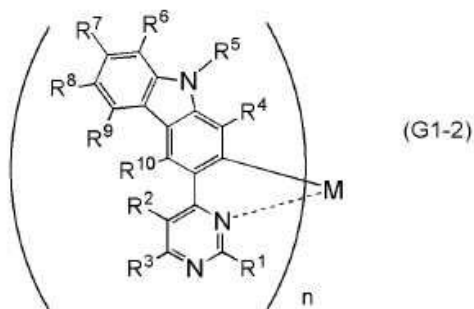
- [0012] 특허문헌 1에서 보고된 바와 같이, 인광성 화합물의 게스트 재료의 개발은 활발히 행해지고 있다. 그러나, 발광 소자로서 봤을 때, 발광 효율, 신뢰성, 발광 특성, 합성 효율, 또는 비용의 면에서 개선의 여지가 남아 있어, 보다 뛰어난 발광 소자의 개발이 요구되고 있다.
- [0013] 상기 문제를 감안하여, 본 발명의 일 양태는 인광성의 유기 금속 착체를 갖는 발광 소자를 제공하는 것을 목적의 하나로 한다. 이 유기 금속 착체는 황록색~주황색의 파장역에 인광 발광을 나타내고, 높은 발광 효율, 및 높은 신뢰성을 가진다. 따라서, 본 발명의 다른 일 양태는 상기 인광 발광을 나타내는 유기 금속 착체를 제공하는 것을 목적의 하나로 한다.
- [0014] 또한, 본 발명의 다른 일 양태는 상기 발광 소자를 갖는 발광 장치, 전자기기, 및 조명 장치를 제공하는 것을 목적의 하나로 한다.

과제의 해결 수단

- [0015] 본 발명의 일 양태는 피리미딘 고리의 3위치의 질소가 금속에 배위하고, 피리미딘 고리의 4위치에 카바졸 골격을 포함하고, 카바졸 골격이 금속과 결합한 유기 금속 착체를 발광 중심으로 하는 것을 특징으로 하는 발광 소자이다.
- [0016] 또한, 상기 구성에서, 금속이 제 9 족 원소 또는 제 10 족 원소인 것이 바람직하다. 금속은 이리듐, 백금, 팔라듐, 또는 로듐 중에서 선택되는 것이 바람직하다. 또한, 금속이 이리듐인 것이 더욱 바람직하다.
- [0017] 또한, 본 발명의 다른 일 양태는, 일반식(G1-1)으로 나타내어지는 구조를 갖는 유기 금속 착체이다.
- [0018] [일반식(G1-1)]



- [0019]
- [0020] 일반식(G1-1)에 있어서, $R^1 \sim R^{10}$ 은 각각 독립적으로 수소, 탄소수 1~6의 알킬기, 혹은 치환 또는 비치환된 탄소수 6~10의 아릴기 중 어느 하나를 나타낸다. 또한, M은 제 9 족 원소 또는 제 10 족 원소의 금속을 나타낸다.
- [0021] 또한, 본 발명의 다른 일 양태는, 일반식(G1-2)으로 나타내어지는 구조를 갖는 유기 금속 착체이다.
- [0022] [일반식(G1-2)]

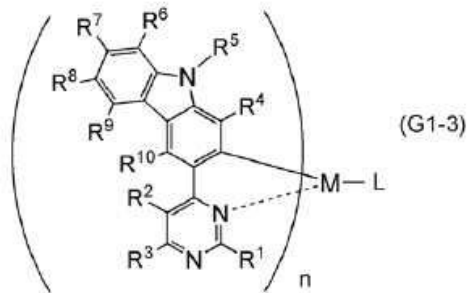


- [0023]
- [0024] 일반식(G1-2)에 있어서, $R^1 \sim R^{10}$ 은 각각 독립적으로 수소, 탄소수 1~6의 알킬기, 혹은 치환 또는 비치환된 탄소수 6~10의 아릴기 중 어느 하나를 나타낸다. 또한, M은 제 9 족 원소 또는 제 10 족 원소의 금속을 나타낸다.

또한, 상기 M이 제 9 족 원소일 때 $n = 3$ 이고, 제 10 족 원소일 때 $n = 2$ 이다.

[0025] 또한, 본 발명의 다른 일 양태는, 일반식(G1-3)으로 나타내어지는 구조를 갖는 유기 금속 착체이다.

[0026] [일반식(G1-3)]



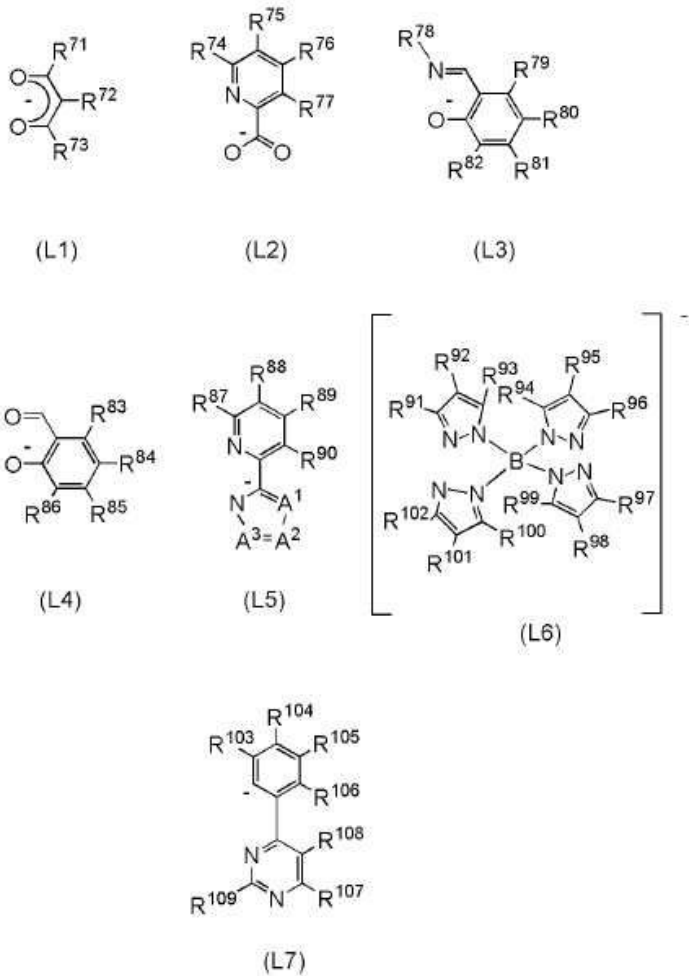
[0027]

[0028] 일반식(G1-3)에 있어서, $R^1 \sim R^{10}$ 은 각각 독립적으로 수소, 탄소수 1~6의 알킬기, 혹은 치환 또는 비치환된 탄소수 6~10의 아릴기 중 어느 하나를 나타낸다. 또한, M은 제 9 족 원소 또는 제 10 족 원소의 금속을 나타낸다. 또한, 상기 M이 제 9 족 원소일 때 $n = 2$ 이고, 제 10 족 원소일 때 $n = 1$ 이다. 또한, L은 모노 음이온성의 배위자를 나타낸다.

[0029] 또한, 상기 구성에서, 모노 음이온성의 배위자는 베타-다이케톤 구조를 갖는 모노 음이온성의 2좌 킬레이트 배위자, 카복실기를 갖는 모노 음이온성의 2좌 킬레이트 배위자, 페놀성 수산기를 갖는 모노 음이온성의 2좌 킬레이트 배위자, 또는 2개의 배위 원소가 모두 질소인 모노 음이온성의 2좌 킬레이트 배위자인 것이 바람직하다.

[0030] 또한, 상기 구성에서, 모노 음이온성의 배위자는 일반식(L1) 내지 일반식(L7) 중 어느 하나인 것이 바람직하다.

[0031] [일반식(L1) 내지 일반식(L7)]



[0032]

[0033] 일반식(L1) 내지 일반식(L7)에 있어서, R⁷¹~R¹⁰⁹는 각각 독립적으로 수소, 치환 또는 비치환된 탄소수 1~6의 알킬기, 할로젠기, 비닐기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1~6의 할로 알킬기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1~6의 알콕시기, 또는 치환 또는 비치환된 탄소수 1~6의 알킬티오기를 나타낸다. 또한, A¹~A³은 각각 독립적으로 질소, 수소, 또는 치환기 R과 결합하는 탄소를 나타내고, 상기 치환기 R은 탄소수 1~6의 알킬기, 할로젠기, 탄소수 1~6의 할로 알킬기, 또는 페닐기를 나타낸다.

[0034]

또한, 상기 일반식(G1-1)~일반식(G1-3)으로 나타내는 유기 금속 착체는 제 9 족 원소 또는 제 10 족 원소의 금속과 배위자가 금속-탄소 결합을 가지고 있기 때문에, 배위자의 피리미딘 고리로의 전하의 이동(MLCT(Metal to Ligand Charge Transfer) 전이)이 일어나기 쉬워진다. 이와 같이, MLCT 전이가 일어나기 쉬워지기 때문에, 인광 발광과 같은 금지 전이(forbidden transition)가 발생되기 쉬워질 뿐만 아니라, 삼중항 여기의 수명도 짧아져, 상기 유기 금속 착체의 발광 효율을 높이는 효과를 얻을 수 있다.

[0035]

또한, 상기 발광 소자를 이용한 발광 장치, 전자기기, 및 조명 장치도 본 발명의 범주에 포함하는 것으로 한다. 또한, 본 명세서 내에서 발광 장치는 화상 표시 디바이스 및 광원을 포함한다. 또한, 패널에 커넥터, 예를 들면 FPC(Flexible Printed Circuit) 또는 TAB(Tape Automated Bonding) 테이프 또는 TCP(Tape Carrier Package)가 부착된 모듈, TCP의 끝에 프린트 배선판이 제공된 모듈, 또는 발광 소자에 COG(Chip On Glass) 방식에 의해 IC(집적회로)가 직접 실장된 모듈도 모두 발광 장치에 포함하는 것으로 한다.

발명의 효과

[0036]

본 발명의 일 양태에 따라 인광성의 유기 금속 착체를 갖는 발광 소자를 제공할 수 있다. 또한, 본 발명의 일 양태에 따라 황록색~주황색의 파장역에 인광 발광을 나타내고, 높은 발광 효율, 및 높은 신뢰성을 갖는 유기 금속 착체를 제공할 수 있다.

도면의 간단한 설명

[0037]

- 도 1은 본 발명의 일 양태의 발광 소자를 설명하는 도면.
- 도 2는 본 발명의 일 양태의 발광 소자를 설명하는 도면.
- 도 3은 본 발명의 일 양태의 발광 소자를 설명하는 도면.
- 도 4는 본 발명의 일 양태의 발광 장치를 설명하는 도면.
- 도 5는 본 발명의 일 양태의 발광 장치를 설명하는 도면.
- 도 6은 본 발명의 일 양태의 전자기기를 설명하는 도면.
- 도 7은 본 발명의 일 양태의 전자기기를 설명하는 도면.
- 도 8은 본 발명의 일 양태의 조명 장치를 설명하는 도면.
- 도 9는 실시예 1에서 합성한 유기 금속 착체의 $^1\text{H-NMR}$ 차트를 나타내는 도면.
- 도 10은 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{dpm})$ 의 다이클로로메테인 용액에서의 자외·가시 흡수 스펙트럼 및 발광 스펙트럼을 나타내는 도면.
- 도 11은 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{dpm})$ 의 LC/MS 측정 결과를 나타내는 도면.
- 도 12는 실시예 2에서 합성한 유기 금속 착체의 $^1\text{H-NMR}$ 차트를 나타내는 도면.
- 도 13은 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{acac})$ 의 다이클로로메테인 용액에서의 자외·가시 흡수 스펙트럼 및 발광 스펙트럼을 나타내는 도면.
- 도 14는 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{acac})$ 의 LC/MS 측정 결과를 나타내는 도면.
- 도 15는 실시예 3에서 합성한 유기 금속 착체의 $^1\text{H-NMR}$ 차트를 나타내는 도면.
- 도 16은 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_3$ 의 다이클로로메테인 용액에서의 자외·가시 흡수 스펙트럼 및 발광 스펙트럼을 나타내는 도면.
- 도 17은 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_3$ 의 LC/MS 측정 결과를 나타내는 도면.
- 도 18은 실시예 4에서 합성한 유기 금속 착체의 $^1\text{H-NMR}$ 차트를 나타내는 도면.
- 도 19는 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체 $\text{Ir}(\text{tBueczpm})_2(\text{acac})$ 의 다이클로로메테인 용액에서의 자외·가시 흡수 스펙트럼 및 발광 스펙트럼을 나타내는 도면.
- 도 20은 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체 $\text{Ir}(\text{tBueczpm})_2(\text{acac})$ 의 LC/MS 측정 결과를 나타내는 도면.
- 도 21은 실시예 5에서 합성한 유기 금속 착체의 $^1\text{H-NMR}$ 차트를 나타내는 도면.
- 도 22는 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체 $\text{Ir}(\text{tBueczpm})_3$ 의 다이클로로메테인 용액에서의 자외·가시 흡수 스펙트럼 및 발광 스펙트럼을 나타내는 도면.
- 도 23은 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체 $\text{Ir}(\text{tBueczpm})_3$ 의 LC/MS 측정 결과를 나타내는 도면.
- 도 24는 실시예 6 및 실시예 7의 발광 소자를 설명하는 도면.
- 도 25는 발광 소자 1 내지 5의 휘도-전류 효율 특성 및 전압-전류 특성을 나타내는 도면.
- 도 26은 발광 소자 1 내지 5의 전압-휘도 특성 및 휘도-외부 양자 효율 특성을 나타내는 도면.
- 도 27은 발광 소자 1 내지 5의 발광 스펙트럼을 나타내는 도면.
- 도 28은 발광 소자 1 내지 5의 시간-정규화 휘도 특성을 나타내는 도면.

도 29는 발광 소자 6의 휘도-전류 효율 특성 및 전압-전류 특성을 나타내는 도면.

도 30은 발광 소자 6의 전압-휘도 특성 및 휘도-외부 양자 효율 특성을 나타내는 도면.

도 31은 발광 소자 6의 발광 스펙트럼을 나타내는 도면.

도 32는 발광 소자 6의 시간-정규화 휘도 특성을 나타내는 도면.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0038] 이하, 본 발명의 실시의 양태에 대하여 도면을 이용하여 상세하게 설명한다. 단, 본 발명은 이하의 설명으로 한정되지 않으며, 본 발명의 취지 및 그 범위로부터 벗어나지 않고 그 형태 및 상세한 사항을 다양하게 변경할 수 있다는 것은 당업자라면 용이하게 이해할 수 있을 것이다. 따라서, 본 발명은 이하에 나타내는 실시형태의 기재 내용에 한정하여 해석되는 것은 아니다.
- [0039] (실시형태 1)
- [0040] 본 실시형태에서는, 한쌍의 전극 사이에 EL층을 가지고, EL층에 유기 금속 착체를 포함하는 발광 소자에 대하여, 도 1을 이용하여 설명한다.
- [0041] 본 실시형태에 나타내는 발광 소자는 도 1에 나타내는 바와 같이 한쌍의 전극(제 1 전극(101)과 제 2 전극(103)) 사이에 발광층(113)을 포함하는 EL층(102)이 끼워져 있고, EL층(102)은 발광층(113) 외에 정공(또는 홀) 주입층(111), 정공(또는 홀) 수송층(112), 전자 수송층(114), 전자 주입층(115), 전하 발생층(116) 등을 포함하여 형성된다. 또한, 본 실시형태에서는 제 1 전극(101)을 양극으로서 이용하고, 제 2 전극(103)을 음극으로서 이용한다. 또한, 제 1 전극(101)은 기판(100) 위에 형성되어 있다. 또한, 발광층(113)에는 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체가 포함되어 있다.
- [0042] 이러한 발광 소자에 대해서 전압을 인가함으로써, 제 1 전극(101)측으로부터 주입된 정공과 제 2 전극(103)측으로부터 주입된 전자가 발광층(113)에서 재결합하여, 발광층(113)에 포함된 유기 금속 착체를 여기 상태로 한다. 그리고, 여기 상태의 유기 금속 착체가 기저 상태로 돌아올 때에 발광한다. 이와 같이, 본 발명의 일 양태에서, 유기 금속 착체는 발광 소자에서의 발광 물질로서 기능한다.
- [0043] 또한, EL층(102)에서 정공 주입층(111)은 정공 수송성이 높은 물질과 엑셉터성 물질을 포함하는 층이고, 엑셉터성 물질에 의해 정공 수송성이 높은 물질로부터 전자가 추출됨으로써 정공(홀)이 발생한다. 따라서, 정공 주입층(111)으로부터 정공 수송층(112)을 통하여 발광층(113)에 정공이 주입된다.
- [0044] 또한, 전하 발생층(116)은 정공 수송성이 높은 물질과 엑셉터성 물질을 포함하는 층이다. 엑셉터성 물질에 의해 정공 수송성이 높은 물질로부터 전자가 추출되기 때문에, 추출된 전자가 전자 주입성을 갖는 전자 주입층(115)으로부터 전자 수송층(114)을 통하여 발광층(113)에 주입된다. 또한, 도 1에 나타내는 발광 소자에서 발광 소자가 전하 발생층(116)을 갖는 구조에 대하여 예시했지만, 이것에 한정되는 것은 아니다. 예를 들면, 발광 소자는 전하 발생층(116)을 갖지 않는 구조로 해도 좋다.
- [0045] 이하에 본 실시형태에 나타내는 발광 소자를 제작하는 구체적인 예에 대하여 설명한다.
- [0046] 기판(100)은 발광 소자의 지지체로서 이용된다. 기판(100)으로서, 예를 들어, 유리, 석영, 또는 플라스틱 등을 이용할 수 있다. 또한, 가요성 기판을 이용해도 좋다. 가요성 기판이란, 굽힐 수 있는(flexible) 기판으로서, 예를 들면, 폴리카보네이트, 폴리아릴레이트, 폴리에테르설폰으로 이루어진 플라스틱 기판 등을 들 수 있다. 또한, 필름(폴리프로필렌, 폴리에스터, 폴리불화 비닐, 폴리염화 비닐 등으로 이루어짐), 무기 증착 필름 등을 이용할 수도 있다. 또한, 발광 소자의 제작 공정에서 지지체로서 기능하는 것이라면, 이것들 이외의 것이어도 좋다.
- [0047] 제 1 전극(101), 및 제 2 전극(103)에는 금속, 합금, 전기 전도성 화합물, 및 이들의 혼합물 등을 이용할 수 있다. 구체적으로는, 산화 인듐-산화 주석(ITO: Indium Tin Oxide), 실리콘 또는 산화 실리콘을 함유한 산화 인듐-산화 주석, 산화 인듐-산화 아연, 산화 텅스텐 및 산화 아연을 함유한 산화 인듐, 금(Au), 백금(Pt), 니켈(Ni), 텅스텐(W), 크롬(Cr), 몰리브덴(Mo), 철(Fe), 코발트(Co), 구리(Cu), 팔라듐(Pd), 티탄(Ti) 외에, 원소 주기표의 제 1 족 또는 제 2 족에 속하는 원소, 즉 리튬(Li)이나 세슘(Cs) 등의 알칼리 금속, 및 칼슘(Ca), 스트론튬(Sr) 등의 알칼리 토류 금속, 및 마그네슘(Mg), 및 이것들을 포함하는 합금(MgAg, AlLi), 유로퓸(Eu), 이테르븀(Yb) 등의 희토류 금속 및 이것들을 포함하는 합금, 그 외, 그래핀 등을 이용할 수 있다. 또한, 제 1 전

극(101) 및 제 2 전극(103)은 예를 들면 스퍼터링법이나 증착법(진공 증착법을 포함함) 등에 의해 형성할 수 있다.

[0048] 정공 주입층(111), 정공 수송층(112), 및 전하 발생층(116)에 이용하는 정공 수송성이 높은 물질로서는, 예를 들면, π 전자 과잉형 복소 방향족 화합물(예를 들면 카바졸 유도체나 인돌 유도체)이나 방향족 아민 화합물이 바람직하고, 예를 들면, 4,4'-비스[N-(1-나프틸)-N-페닐아미노]바이페닐(약칭: NPB), N,N'-비스(3-메틸페닐)-N,N'-다이페닐-[1,1'-바이페닐]-4,4'-다이아민(약칭: TPD), 4,4'-비스[N-(스파이로-9,9'-바이플루오렌-2-일)-N-페닐아미노]바이페닐(약칭: BSPB), 4-페닐-4'-(9-페닐플루오렌-9-일)트라이페닐아민(약칭: BPAFLP), 4-페닐-3'-(9-페닐플루오렌-9-일)트라이페닐아민(약칭: mBPAFLP), 4-페닐-4'-(9-페닐-9H-카바졸-3-일)트라이페닐아민(약칭: PCBA1BP), 4,4'-다이페닐-4'-(9-페닐-9H-카바졸-3-일)트라이페닐아민(약칭: PCBBi1BP), 4-(1-나프틸)-4'-(9-페닐-9H-카바졸-3-일)트라이페닐아민(약칭: PCBANB), 4,4'-다이(1-나프틸)-4'-(9-페닐-9H-카바졸-3-일)트라이페닐아민(약칭: PCBNBB), 9,9-다이메틸-N-페닐-N-[4-(9-페닐-9H-카바졸-3-일)페닐]-플루오렌-2-아민(약칭: PCBAF), N-페닐-N-[4-(9-페닐-9H-카바졸-3-일)페닐]-스파이로-9,9'-바이플루오렌-2-아민(약칭: PCBASF) 등의 방향족 아민 골격을 갖는 화합물이나, 1,3-비스(N-카바졸릴)벤젠(약칭: mCP), 4,4'-다이(N-카바졸릴)바이페닐(약칭: CBP), 3,6-비스(3,5-다이페닐페닐)-9-페닐-카바졸(약칭: CzTP), 3,3'-비스(9-페닐-9H-카바졸)(약칭: PCCP) 등의 카바졸 골격을 갖는 화합물이나, 4,4',4'-(벤젠-1,3,5-트라이일)트라이(다이벤조티오펜)(약칭: DBT3P-II), 2,8-다이페닐-4-[4-(9-페닐-9H-플루오렌-9-일)페닐]다이벤조티오펜(약칭: DBTFLP-III), 4-[4-(9-페닐-9H-플루오렌-9-일)페닐]-6-페닐다이벤조티오펜(약칭: DBTFLP-IV) 등의 티오펜 골격을 갖는 화합물이나, 4,4',4'-(벤젠-1,3,5-트라이일)트라이(다이벤조퓨란)(약칭: DBF3P-II), 4-{3-[3-(9-페닐-9H-플루오렌-9-일)페닐]페닐}다이벤조퓨란(약칭: mmDBFFLBi-II) 등의 퓨란 골격을 갖는 화합물을 들 수 있다. 상술한 것 중에서도, 방향족 아민 골격을 갖는 화합물이나 카바졸 골격을 갖는 화합물은 신뢰성이 양호하고, 정공 수송성이 높으며, 구동 전압의 저감에도 기여하기 때문에 바람직하다.

[0049] 또한, 정공 주입층(111), 정공 수송층(112), 및 전하 발생층(116)에 이용하는 정공 수송성이 높은 물질로서는, 폴리(N-비닐카바졸)(약칭: PVK), 폴리(4-비닐트라이페닐아민)(약칭: PVTPA), 폴리[N-(4-(N'-[4-(4-다이페닐아미노)페닐]페닐-N'-페닐아미노)페닐]메타크릴아마이드(약칭: PTPDMA), 폴리[N,N'-비스(4-부틸페닐)-N,N'-비스(페닐)벤지딘](약칭: Poly-TPD) 등의 고분자 화합물을 이용할 수도 있다.

[0050] 또한, 정공 주입층(111), 정공 수송층(112), 및 전하 발생층(116)에 이용하는 재료로서는, 상기 정공 수송성이 높은 물질과 엑셉터성을 갖는 물질의 혼합층을 이용해도 좋다. 이 경우, 캐리어 주입성이 양호해져 바람직하다. 이용하는 엑셉터성 물질로서는, 전이 금속 산화물, 예를 들면, 원소 주기표의 제 4 족 내지 제 8 족에 속하는 금속의 산화물을 들 수 있다. 구체적으로는, 산화 몰리브덴이 특히 바람직하다.

[0051] 발광층(113)은 게스트 재료로서 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체를 발광 물질로서 포함하고, 이 유기 금속 착체보다 삼중항 여기 에너지가 큰 물질을 호스트 재료로서 이용하여 형성되는 층이다.

[0052] 또한, 발광층(113)은 상기 게스트 재료와 상기 호스트 재료 외에, 어시스트 재료를 포함하는 구성으로 해도 좋다. 게스트 재료로서는, 예를 들어, 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체를 이용하고, 호스트 재료로서는, 예를 들어, 전자 수송성 재료를 이용하고, 어시스트 재료로서는 정공 수송성 재료를 이용할 수 있다.

[0053] 상기 발광층(113)에서 호스트 재료로서 이용할 수 있는 전자 수송성 재료로서는 합질소 복소 방향족 화합물과 같은 π 전자 부족형 복소 방향족 화합물이 바람직하고, 예를 들면, 2-(4-바이페닐일)-5-(4-tert-부틸페닐)-1,3,4-옥사다이아졸(약칭: PBD), 3-(4-바이페닐일)-4-페닐-5-(4-tert-부틸페닐)-1,2,4-트리아졸(약칭: TAZ), 1,3-비스[5-(p-tert-부틸페닐)-1,3,4-옥사다이아졸-2-일]벤젠(약칭: OXD-7), 9-[4-(5-페닐-1,3,4-옥사다이아졸-2-일)페닐]-9H-카바졸(약칭: CO11), 2,2',2''-(1,3,5-벤젠트라이일)트리스(1-페닐-1H-벤즈이미다졸)(약칭: TPBI), 2-[3-(다이벤조티오펜-4-일)페닐]-1-페닐-1H-벤즈이미다졸(약칭: mDBTBIm-II) 등의 폴리아졸 골격을 갖는 복소 고리 화합물(옥사다이아졸 유도체, 이미다졸 유도체, 트리아졸 유도체 등)이나, 2-[3-(다이벤조티오펜-4-일)페닐]다이벤조[f,h]퀴놀살린(약칭: 2mDBTPDBq-II), 2-[3'-(다이벤조티오펜-4-일)바이페닐-3-일]다이벤조[f,h]퀴놀살린(약칭: 2mDBTBPDq-II), 2-[3'-(9H-카바졸-9-일)바이페닐-3-일]다이벤조[f,h]퀴놀살린(약칭: 2mCzBPDBq), 4,6-비스[3-(페난트롤렌-9-일)페닐]피리미딘(약칭: 4,6mPnP2Pm), 4,6-비스[3-(4-다이벤조티에닐)페닐]피리미딘(약칭: 4,6mDBTP2Pm-II) 등의 다이아진 골격을 갖는 복소 고리 화합물(피라진 유도체, 피리미딘 유도체, 피리다진 유도체, 퀴놀살린 유도체, 및 다이벤조퀴놀살린 유도체 등)이나, 3,5-비스(9H-카바졸-9-일)페닐]피리딘(약칭: 35DCzPPy), 1,3,5-트라이[3-(3-피리딜)페닐]벤젠(약칭: TmPyPB) 등의 피리딘 골격을 갖는 복소 고리 화합물(피리딘 유도체, 퀴놀라인 유도체, 다이벤조퀴놀라인 유도체 등)을 들 수 있다. 상술한 것 중에서,

다이하진 골격을 갖는 복소 고리 화합물이나 피리딘 골격을 갖는 복소 고리 화합물은 신뢰성이 양호하여 바람직하다. 특히, 다이하진(피리미딘이나 피라진) 골격을 갖는 복소 고리 화합물은 전자 수송성이 높고, 구동 전압의 저감에도 기여한다.

[0054] 또한, 발광층(113)에서 어시스트 재료로서 이용할 수 있는 정공 수송성 재료로서는, 정공 주입층(111), 정공 수송층(112), 및 전하 발생층(116)에 이용할 수 있는 정공 수송성이 높은 물질을 이용하면 좋다.

[0055] 또한, 이러한 전자 수송성 재료 및 정공 수송성 재료는 청색의 영역에 흡수 스펙트럼을 갖지 않는 것이 바람직하다. 구체적으로는, 흡수 스펙트럼의 흡수단이 440 nm 이하인 것이 바람직하다.

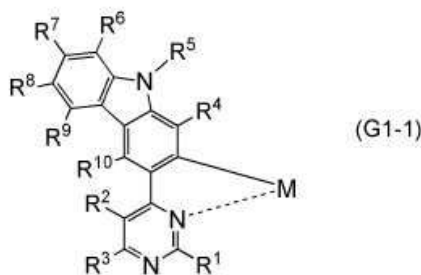
[0056] 여기서, 발광층(113)에서 게스트 재료로서 이용하는 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체에 대하여, 이하 상세하게 설명을 행한다.

[0057] 본 발명의 일 양태는, 피리미딘 고리의 3위치의 질소가 금속에 배위하고, 상기 피리미딘 고리의 4위치에 카바졸 골격을 가지고, 상기 카바졸 골격은 금속과 결합한 유기 금속 착체를 발광 중심으로 하는 유기 금속 착체이다.

[0058] 또한, 상기 구성에서, 금속이 제 9 족 원소 또는 제 10 족 원소인 것이 바람직하다. 금속은 이리듐, 백금, 팔라듐, 또는 로듐 중에서 선택되는 것이 바람직하다. 또한, 이 제 9 족 원소 또는 제 10 족 원소가 이리듐인 것이 더욱 바람직하다.

[0059] 즉, 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체는 일반식(G1-1)으로 나타내어지는 구조를 갖는 구성이다.

[0060] [일반식(G1-1)]

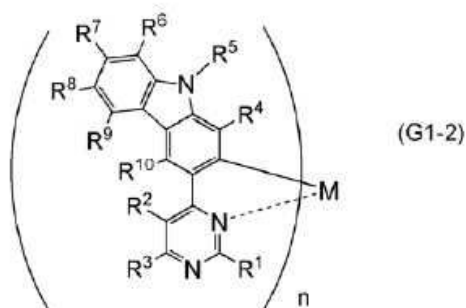


[0061]

[0062] 일반식(G1-1) 중, $R^1 \sim R^{10}$ 은 각각 독립적으로 수소, 탄소수 1~6의 알킬기, 혹은 치환 또는 비치환된 탄소수 6~10의 아릴기 중 어느 하나를 나타낸다. 또한, M은 제 9 족 원소 또는 제 10 족 원소의 금속을 나타낸다.

[0063] 또한, 상술한 일반식(G1-1)으로 나타내어지는 구조를 갖는 유기 금속 착체는 구체적으로, 일반식(G1-2) 및/또는 일반식(G1-3)으로 나타내어진다. 또한, 일반식(G1-1)으로 나타내어지는 구조를 갖는 유기 금속 착체, 및 일반식(G1-2) 및 일반식(G1-3)으로 나타내어지는 구조를 갖는 유기 금속 착체는 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체이다.

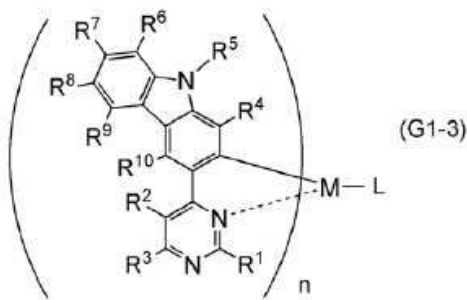
[0064] [일반식(G1-2)]



[0065]

[0066] 일반식(G1-2) 중, $R^1 \sim R^{10}$ 은 각각 독립적으로 수소, 탄소수 1~6의 알킬기, 혹은 치환 또는 비치환된 탄소수 6~10의 아릴기 중 어느 하나를 나타낸다. 또한, M은 제 9 족 원소 또는 제 10 족 원소의 금속을 나타낸다. 또한, M이 제 9 족 원소일 때 $n = 3$ 이고, 제 10 족 원소일 때 $n = 2$ 이다.

[0067] [일반식(G1-3)]



[0068]

[0069] 일반식(G1-3) 중, $R^1 \sim R^{10}$ 은 각각 독립적으로 수소, 탄소수 1~6의 알킬기, 혹은 치환 또는 비치환된 탄소수 6~10의 아릴기 중 어느 하나를 나타낸다. 또한, M은 제 9 족 원소 또는 제 10 족 원소의 금속을 나타낸다. 또한, M이 제 9 족 원소일 때 $n = 2$ 이고, 제 10 족 원소일 때 $n = 1$ 이다. 또한, L은 모노 음이온성의 배위자를 나타낸다.

[0070] 상기 일반식(G1-1)~일반식(G1-3)으로 나타내는 유기 금속 착체는 제 9 족 원소 또는 제 10 족 원소와 배위자가 금속-탄소 결합을 가지고 있기 때문에, 배위자의 피리미딘 고리로의 전하의 이동(MLCT 전이)이 일어나기 쉬워진다. 이와 같이, MLCT 전이가 일어나기 쉬워지기 때문에, 인광 발광과 같은 금지 전이가 발생되기 쉬워질 뿐만 아니라, 삼중항 여기 수명도 짧아져, 이 유기 금속 착체의 발광 효율을 높이는 효과를 얻을 수 있다.

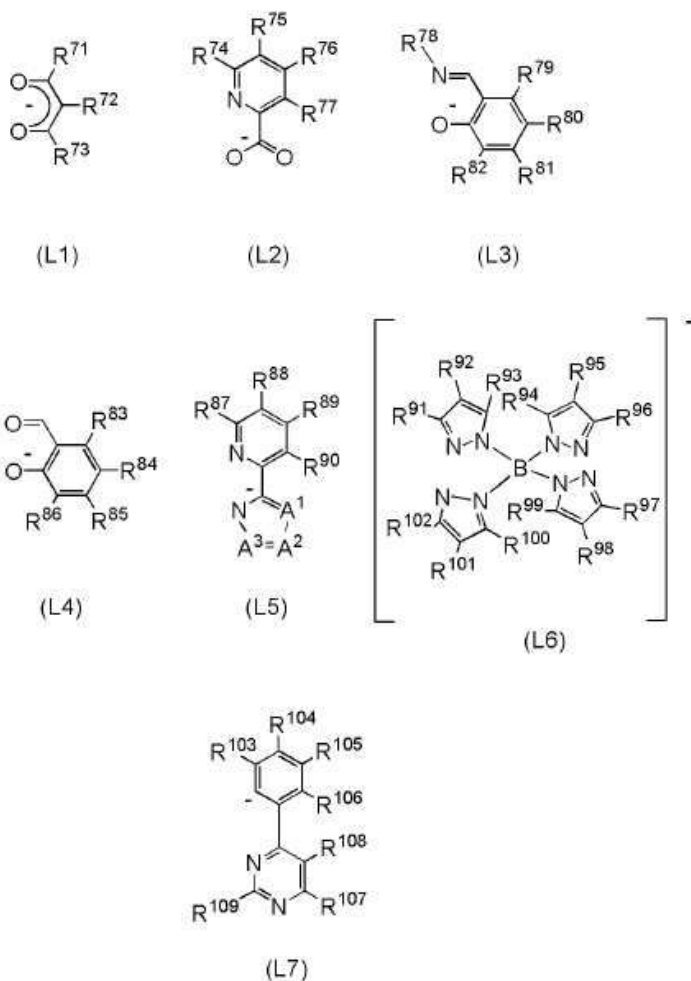
[0071] 또한, 상기 일반식(G1-1)~일반식(G1-3)으로 나타내어지는 유기 금속 착체는 피리미딘 고리에 제 9 족 원소 또는 제 10 족 원소의 금속 이온이 배위하여 오르토 메탈화하고, 벌키 구조(또는, 부피가 큰 구조)를 형성하기 때문에, 농도 소광을 억제할 수 있다.

[0072] 또한, 상기 일반식(G1-1)~일반식(G1-3)으로 나타내어지는 유기 금속 착체는 피리미딘 고리의 4위치에 카바졸 골격을 포함하는 치환기를 가지고 있다. 이와 같이, 오르토 메탈 착체에 보여지는 MLCT 전이의 HOMO에 영향을 주는 함질소 방향 고리와 홀 트랩성이 뛰어난 카바졸 골격이 결합된 구조로 함으로써, EL 재료로서 전기적으로 안정된 물질을 얻을 수 있다.

[0073] 또한, 상기 일반식(G1-3) 중에서 모노 음이온성의 배위자(L)는 베타-다이케톤 구조를 갖는 모노 음이온성의 2좌 킬레이트 배위자, 카복실기를 갖는 모노 음이온성의 2좌 킬레이트 배위자, 페놀성 수산기를 갖는 모노 음이온성의 2좌 킬레이트 배위자, 또는 2개의 배위 원소가 모두 질소인 모노 음이온성의 2좌 킬레이트 배위자인 것이 바람직하다. 특히, 베타-다이케톤 구조를 갖는 모노 음이온성의 2좌 킬레이트 배위자의 경우, 베타-다이케톤 구조를 가짐으로써, 유기 금속 착체의 유기 용매에 대한 용해성이 높아져, 정제가 용이하게 되므로 바람직하다. 또한, 베타-다이케톤 구조를 가짐으로써, 발광 효율이 높은 유기 금속 착체를 얻을 수 있기 때문에 바람직하다. 또한, 베타-다이케톤 구조를 가짐으로써 승화성이 높아져, 증착 성능이 뛰어나다는 이점이 있다.

[0074] 또한, 상기 일반식(G1-3) 중에서 모노 음이온성의 배위자(L)는 일반식(L1)~일반식(L7)으로 나타내어지는 것 중 어느 하나인 것이 바람직하다. 이들 배위자는 배위 능력이 높고, 또한, 저렴하게 입수할 수 있기 때문에 유용하다.

[0075] [일반식(L1)~일반식(L7)]

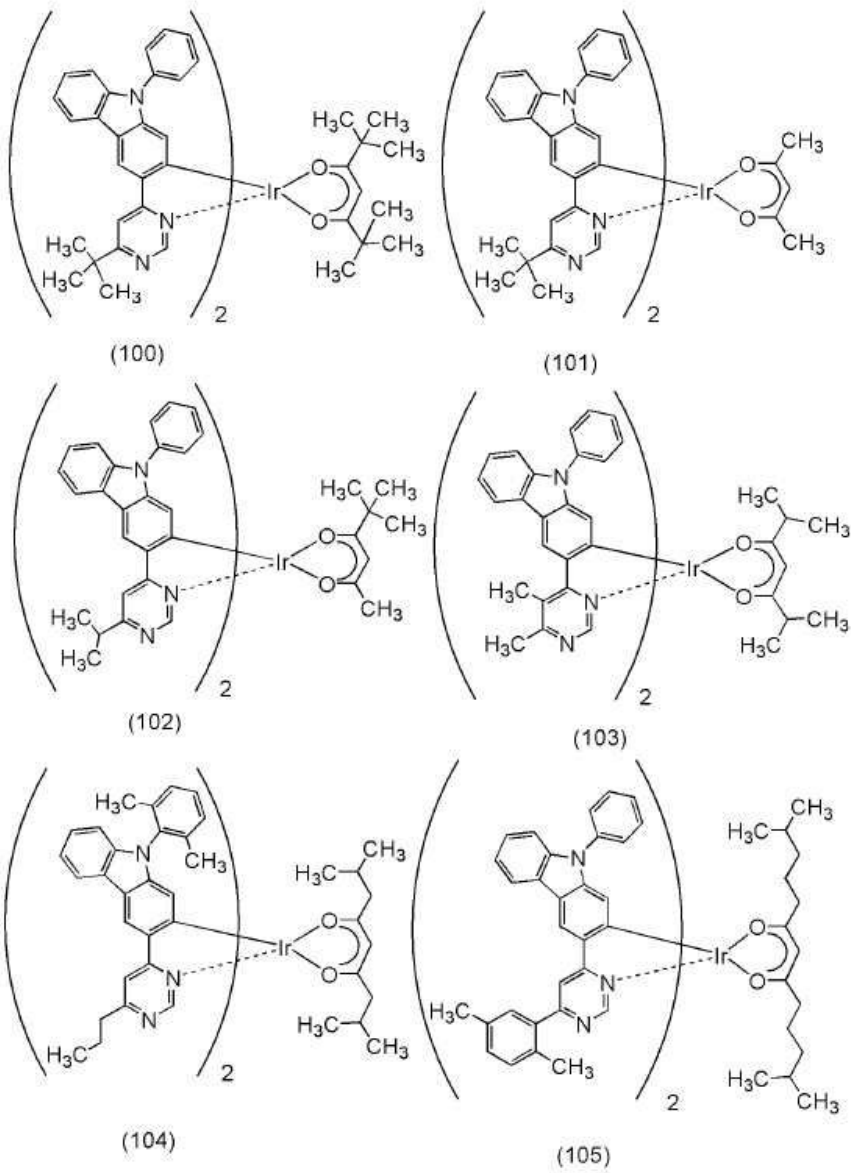


[0076]

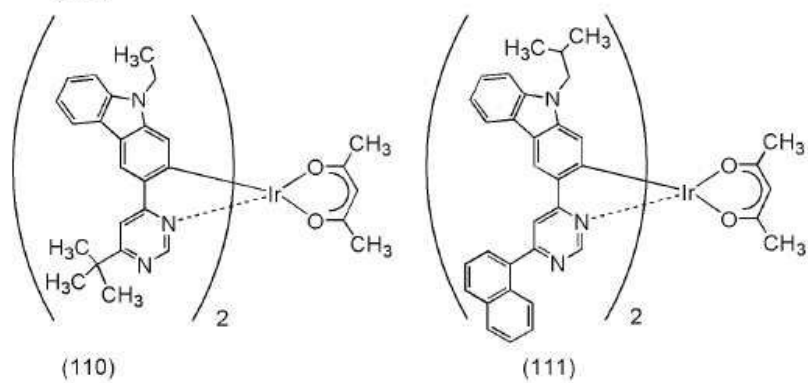
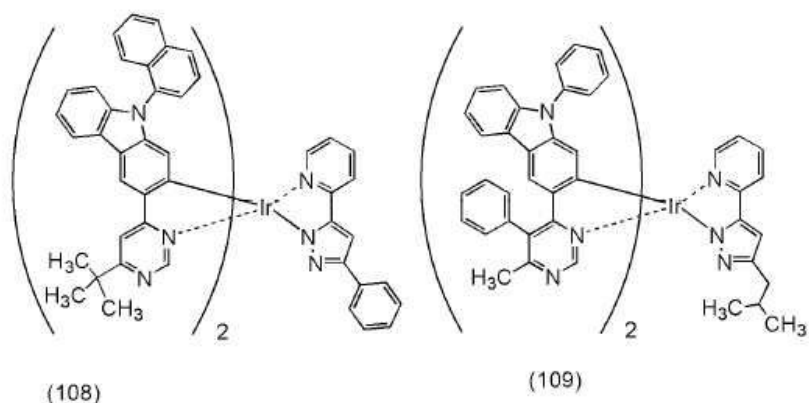
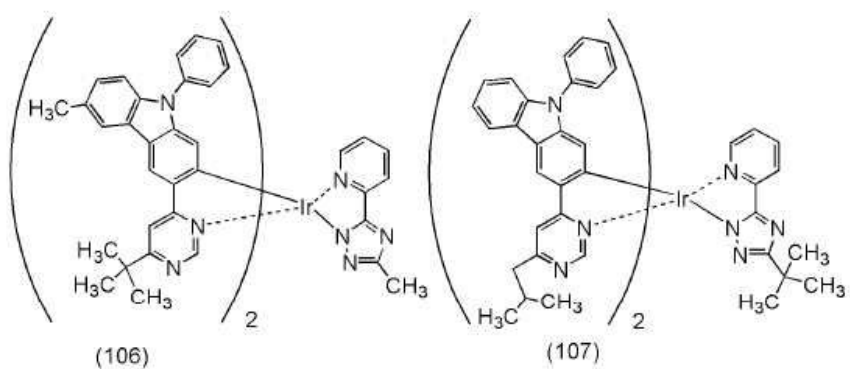
[0077] 일반식(L1)~일반식(L7)에 있어서, $R^{71} \sim R^{109}$ 는 각각 독립적으로 수소, 치환 또는 비치환된 탄소수 1~6의 알킬기, 할로젠기, 비닐기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1~6의 할로 알킬기, 치환 또는 비치환된 탄소수 1~6의 알콕시기, 또는 치환 또는 비치환된 탄소수 1~6의 알킬티오기를 나타낸다. 또한, $A^1 \sim A^3$ 은 각각 독립적으로 질소, 수소, 또는 치환기 R과 결합하는 탄소를 나타내고, 치환기 R은 탄소수 1~6의 알킬기, 할로젠기, 탄소수 1~6의 할로 알킬기, 또는 페닐기를 나타낸다.

[0078] 또한, 상술한 일반식(G1-1)~일반식(G1-3)으로 나타내어지는 유기 금속 착체로서는, 구조식(100)~구조식(117)으로 나타내어지는 유기 금속 착체를 들 수 있다. 단, 본 발명은 이것에 한정되는 것은 아니다.

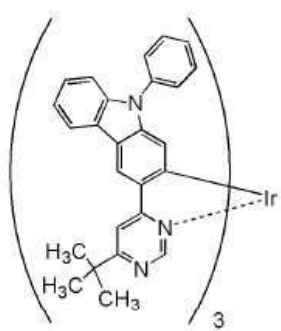
[0079] [구조식(100)~구조식(117)]



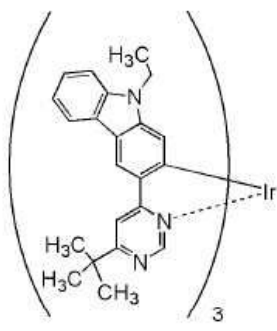
[0080]



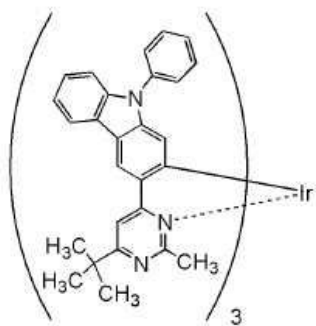
[0081]



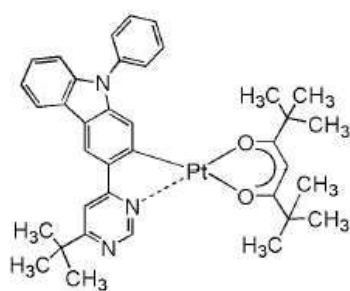
(112)



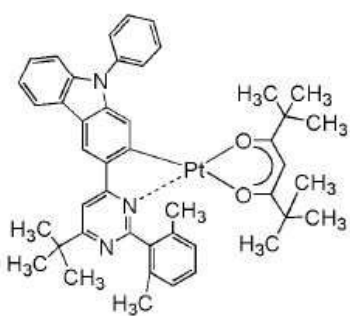
(113)



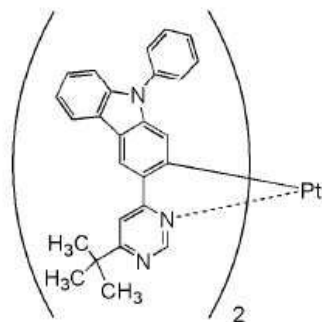
(114)



(115)



(116)



(117)

[0082]

[0083]

또한, 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체의 합성 방법으로서, 다양한 반응을 적용할 수 있다. 여기서, 일반식(G0)으로 나타내어지는 구조를 갖는 유기 금속 착체, 및 일반식(G1-2)으로 나타내어지는 구조를 갖는 유기 금속 착체의 합성 방법에 대하여, 이하 설명을 행한다.

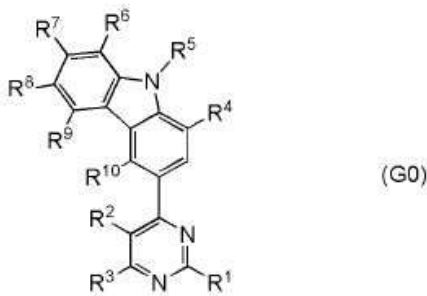
[0084]

《일반식(G0)으로 나타내어지는 카바졸-3-일-피리미딘 유도체의 합성법》

[0085]

하기 일반식(G0)으로 나타내어지는 카바졸-3-일-피리미딘 유도체는 이하와 같이 간단한 합성 스킴(a-1) 또는 합성 스킴(a-2)에 의해 합성할 수 있다.

[0086] [일반식(G0)]

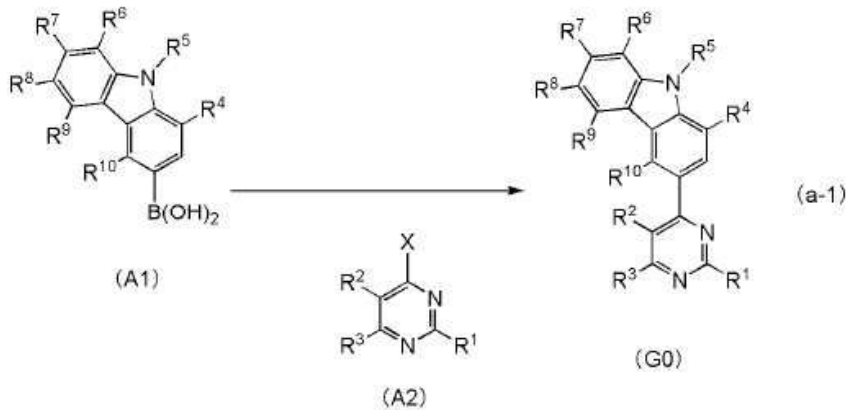


[0087]

[0088] 일반식(G0)에 있어서, $R^1 \sim R^{10}$ 은 각각 독립적으로 수소, 탄소수 1~6의 알킬기, 혹은 치환 또는 비치환된 탄소수 6~10의 아릴기 중 어느 하나를 나타낸다.

[0089] 예를 들면, 일반식(G0)으로 나타내어지는 카바졸-3-일-피리미딘 유도체는 하기 합성 스킴(a-1)에 나타내는 바와 같이, 카바졸-3-일-보론산 화합물(A1)과 할로젠화 피리미딘 화합물(A2)을 커플링함으로써 얻어진다.

[0090] [합성 스킴(a-1)]

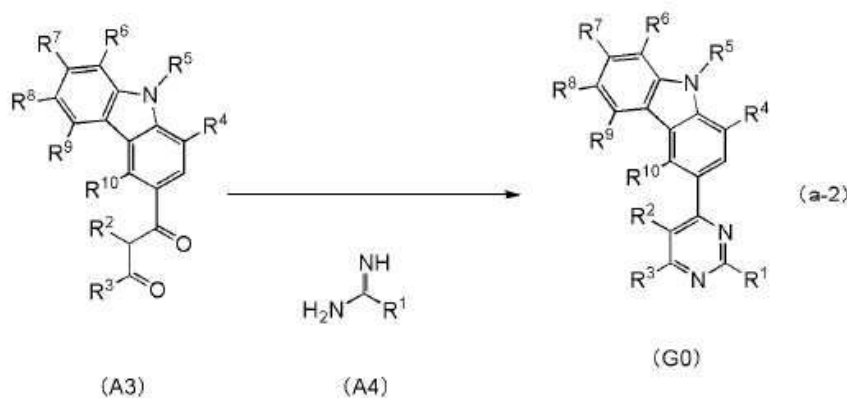


[0091]

[0092] 합성 스킴(a-1)에 있어서, X는 할로젠을 나타내고, $R^1 \sim R^{10}$ 은 각각 독립적으로 수소, 탄소수 1~6의 알킬기, 혹은 치환 또는 비치환된 탄소수 6~10의 아릴기 중 어느 하나를 나타낸다.

[0093] 또한, 일반식(G0)으로 나타내어지는 카바졸-3-일-피리미딘 유도체는 하기 합성 스킴(a-2)에 나타내는 바와 같이, 카바졸의 1,3-다이케톤(A3)과 아미딘(A4)을 반응시킴으로써 얻어진다.

[0094] [합성 스킴(a-2)]



[0095]

[0096] 합성 스킴(a-2)에 있어서, $R^1 \sim R^{10}$ 은 각각 독립적으로 수소, 탄소수 1~6의 알킬기, 혹은 치환 또는 비치환된 탄

소수 6~10의 아릴기 중 어느 하나를 나타낸다.

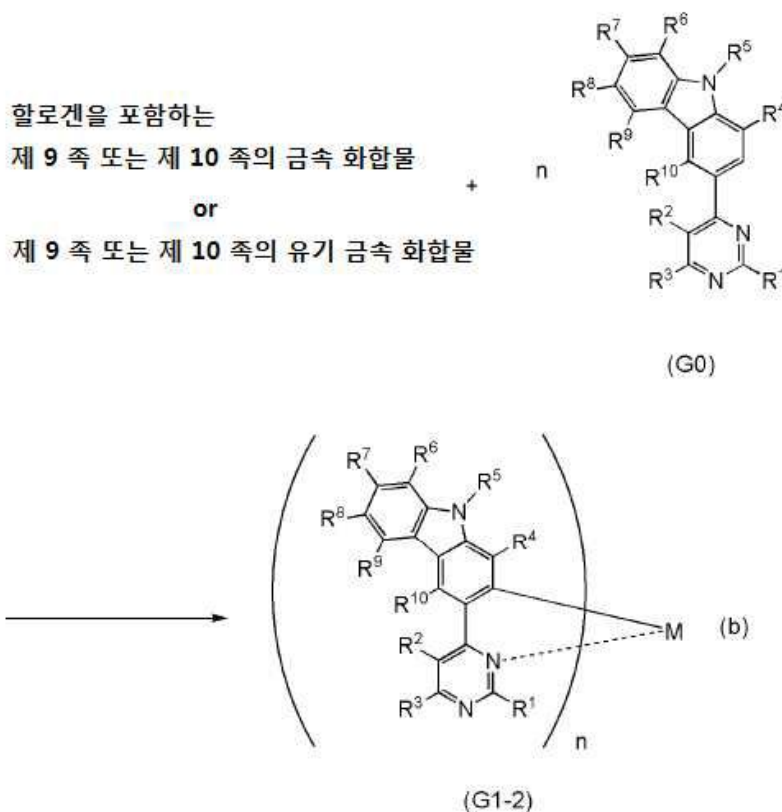
[0097] 또한, 일반식(G0)에 있어서, R^1 이 수소인 경우, 비특허문헌(H. Brederick, R. Gompper, G. Morlock, "Chemische Berichte", 90,942(1957))에 개시되어 있는 바와 같이, 카바졸의 1,3-다이케톤(A3)과 폼아미드를 산촉매 존재 하에서 가열하여 반응시킴으로써 얻어진다.

[0098] 또한, 상술한 화합물(A1)~화합물(A4)은 다양한 종류가 시판되고 있거나, 또는 합성 가능하기 때문에, 일반식(G0)으로 나타내어지는 카바졸-3-일-피리미딘 유도체는 수많은 종류를 합성할 수 있다. 따라서, 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체는 그 배위자의 배리에이션이 풍부하다는 특징이 있다.

[0099] <<일반식(G1-2)으로 나타내어지는 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체의 합성 방법>>

[0100] 먼저, 하기 합성 스킴(b)에 나타내는 바와 같이, 일반식(G0)으로 나타내어지는 카바졸-3-일-피리미딘 유도체와, 할로젠을 포함하는 제 9 족 또는 제 10 족의 금속 화합물(염화 로듐 수화물, 염화 팔라듐, 염화 이리듐 수화물, 헥사클로로이리듐산 암모늄, 테트라 클로로 백금산 칼륨 등), 혹은 제 9 족 또는 제 10 족의 유기 금속 착체 화합물(아세틸아세토네이트 착체, 다이에틸설파이드 착체 등)을 혼합한 후, 가열함으로써, 일반식(G1-2)으로 나타내어지는 구조를 갖는 유기 금속 착체를 얻을 수 있다. 또한, 이 가열 공정은 일반식(G0)으로 나타내어지는 카바졸-3-일-피리미딘 유도체와, 할로젠을 포함하는 제 9 족 또는 제 10 족의 금속 화합물, 혹은 제 9 족 또는 제 10 족의 유기 금속 착체 화합물을 알코올계 용매(글리세롤, 에틸렌 글리콜, 2-메톡시에탄올, 2-에톡시에탄올 등)에 용해한 후에 행하여도 좋다.

[0101] [합성 스킴(b)]



[0102]

[0103] 합성 스킴(b)에 있어서, $R^1 \sim R^{10}$ 은 각각 독립적으로 수소, 탄소수 1~6의 알킬기, 혹은 치환 또는 비치환된 탄소수 6~10의 아릴기 중 어느 하나를 나타낸다. 또한, M은 제 9 족 원소 또는 제 10 족 원소를 나타낸다. 또한, M이 제 9 족 원소일 때 $n = 3$ 이고, M이 제 10 족 원소일 때 $n = 2$ 이다.

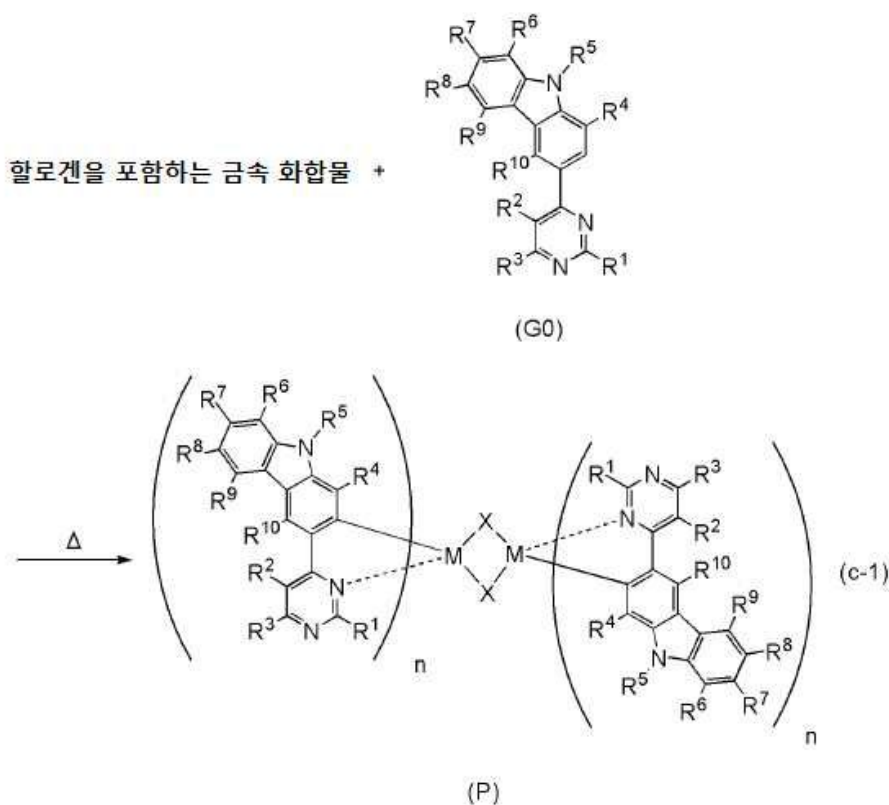
[0104] 또한, 본 발명의 일 양태에서는, 카바졸-3-일-피리미딘 유도체를 배위자로 하는 오르토 메탈 착체를 얻기 위해, 피리미딘의 6위치(즉 R^3)에 치환기가 결합되는 것이 바람직하다. 특히 R^3 으로서 치환 또는 비치환된 탄소수 1~6의 알킬기, 또는 치환 또는 비치환된 탄소수 6~10의 아릴기를 이용한다. 이로 인하여, R^3 으로서 수소를 이용

한 경우와 비교하여, 합성 스킴(b)에서의 수율을 높일 수 있다.

[0105] 《일반식(G1-3)으로 나타내어지는 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체의 합성 방법》

[0106] 먼저, 하기 합성 스킴(c-1)으로 나타내는 바와 같이, 일반식(G0)으로 나타내어지는 카바졸-3-일-피리미딘 유도체와, 할로젠을 포함하는 금속 화합물(염화 팔라듐, 염화 이리듐, 브롬화 이리듐, 아이오딘화 이리듐, 테트라클로로 백금산 칼륨 등)을 무용매, 또는 알코올계 용매(글리세롤, 에틸렌 글리콜, 2-메톡시에탄올, 2-에톡시에탄올 등) 단독, 또는 알코올계 용매 1 종류 이상과 물의 혼합 용매를 이용하여, 불활성 가스 분위기에서 가열함으로써, 할로젠으로 가교된 구조를 갖는 유기 금속 착체의 일종이며, 신규 물질인 복합 착체(P)를 얻을 수 있다. 가열 수단으로서 특별히 한정은 없고, 오일 베스(oil bath), 샌드 베스(sand bath), 또는 알루미늄 블록(aluminum block)을 이용해도 좋다. 또한, 마이크로파를 가열 수단으로서 이용할 수도 있다.

[0107] [합성 스킴(c-1)]

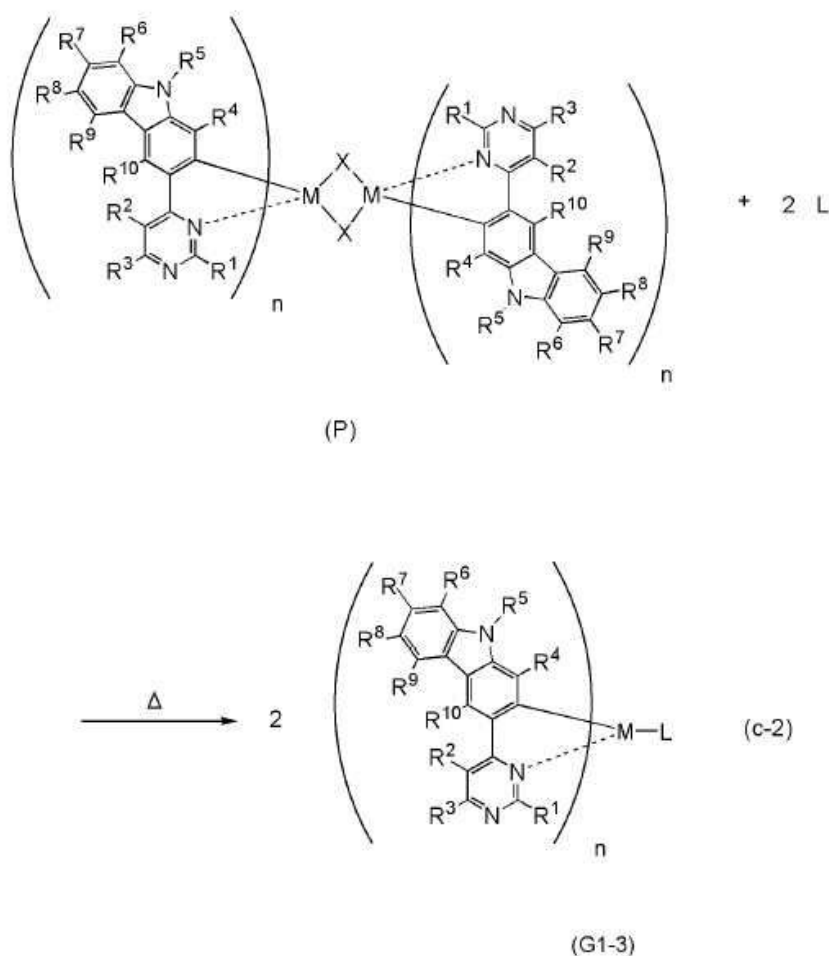


[0108]

[0109] 합성 스킴(c-1)에 있어서, X는 할로젠을 나타내고, R¹~R¹⁰은 각각 독립적으로 수소, 탄소수 1~6의 알킬기, 혹은 치환 또는 비치환된 탄소수 6~10의 아릴기 중 어느 하나를 나타낸다. 또한, M은 제 9 족 원소 또는 제 10 족 원소의 금속을 나타낸다. 또한, M이 제 9 족 원소일 때 n = 2이고, 제 10 족 원소일 때 n = 1이다.

[0110] 또한, 하기 합성 스킴(c-2)에 나타내는 바와 같이, 상술한 합성 스킴(c-1)에서 얻어진 복합 착체(P)와 모노 음이온성의 배위자의 원료 HL를 불활성 가스 분위기에서 반응시킴으로써, HL의 프로톤(proton)이 이탈하여 L이 중심 금속 M에 배위하고, 일반식(G1-3)으로 나타내어지는 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체를 얻을 수 있다. 가열 수단으로서 특별히 한정은 없고, 오일 베스(oil bath), 샌드 베스(sand bath), 또는 알루미늄 블록(aluminum block)을 이용해도 좋다. 또한, 마이크로파를 가열 수단으로서 이용하는 것도 가능하다.

[0111] [합성 스킴(c-2)]



[0112]

[0113] 합성 스킴(c-2)에 있어서, L은 모노 음이온성의 배위자를 나타내고, X는 할로젠을 나타내고, R¹~R¹⁰은 각각 독립적으로 수소, 탄소수 1~6의 알킬기, 혹은 치환 또는 비치환된 탄소수 6~10의 아릴기 중 어느 하나를 나타낸다. 또한, M은 제 9 족 원소 또는 제 10 족 원소의 금속을 나타낸다. 또한, M이 제 9 족 원소일 때 n = 2이고, 제 10 족 원소일 때 n = 1이다.

[0114] 이와 같이, 본 발명의 일 양태에 있어서는, 피리미딘 유도체를 배위자로 하는 오르토 메탈 착체를 얻기 위해, 피리미딘 고리의 4위치에 치환기가 결합된다. 특히 상기 치환기로서 카바졸 골격을 이용한다. 이 때문에, 피리미딘 고리의 4위치에 수소를 이용한 경우와 비교하여, 합성 스킴(c-1)에서 생성한 할로젠으로 가교된 복핵 금속 착체가 합성 스킴(c-2)으로 나타내어지는 반응 중에 분해되어 버리는 것을 억제하여, 비약적으로 높은 수율을 얻을 수 있다.

[0115] 이상에 의해, 본 실시형태의 유기 금속 착체를 합성할 수 있다.

[0116] 또한, 발광층(113)에 있어서, 호스트 재료와 상술한 유기 금속 착체인 게스트 재료를 포함하여 형성함으로써, 발광층(113)으로부터 발광 효율이 높은 인광 발광을 얻을 수 있다.

[0117] 이상에 의해, 발광층(113)을 형성할 수 있다.

[0118] 다음에, 발광층(113) 위에 제공되는 전자 수송층(114)은 전자 수송성이 높은 물질을 포함하는 층이다. 전자 수송층(114)에는 Alq₃, 트리스(4-메틸-8-퀴놀리놀라토)알루미늄(약칭 : Almq₃), 비스(10-하이드록시다이벤조[h]퀴놀리나토)베릴륨(약칭 : BeBq₂), BAlq, Zn(BOX)₂, 비스[2-(2-하이드록시페닐)벤조티아졸라토]아연(약칭 : Zn(BTZ)₂) 등의 금속 착체를 이용할 수 있다. 또한, 2-(4-바이페닐일)-5-(4-tert-부틸페닐)-1,3,4-옥사다이아졸(약칭 : PBD), 1,3-비스[5-(p-tert-부틸페닐)-1,3,4-옥사다이아졸-2-일]벤젠(약칭 : OXD-7), 3-(4-tert-부틸페닐)-4-페닐-5-(4-바이페닐일)-1,2,4-트리아아졸(약칭 : TAZ), 3-(4-tert-부틸페닐)-4-(4-에틸페닐)-5-(4-바이페닐일)-

1,2,4-트리아졸(약칭 : p-EtTAZ), 바소페난트롤린(약칭 : BPhen), 바소큐프로인(약칭 : BCP), 4,4'-비스(5-메틸벤즈옥사졸-2-일)스틸벤(약칭 : BzOs) 등의 복소 방향족 화합물도 이용할 수 있다. 또한, 폴리(2,5-피리딘-다이일)(약칭 : PPy), 폴리[(9,9-다이헥실플루오렌-2,7-다이일)-co-(피리딘-3,5-다이일)](약칭 : PF-Py), 폴리[(9,9-다이옥틸플루오렌-2,7-다이일)-co-(2,2'-바이피리딘-6,6'-다이일)](약칭 : PF-BPy)과 같은 고분자 화합물을 이용할 수도 있다. 여기에 설명한 물질은, 주로 $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 이상의 전자 이동도를 갖는 물질이다. 또한, 정공보다 전자의 수송성이 높은 물질이라면, 상기 이외의 물질을 전자 수송층으로서 이용해도 좋다.

[0119] 또한, 전자 수송층(114)은 단층의 것뿐만 아니라, 상기 물질로 이루어지는 층이 2층 이상 적층된 것으로 해도 좋다.

[0120] 전자 주입층(115)은 전자 주입성이 높은 물질을 포함하는 층이다. 전자 주입층(115)에는, 불화 리튬(LiF), 불화 세슘(CsF), 불화 칼슘(CaF₂), 리튬 산화물(LiOx) 등과 같은 알칼리 금속, 알칼리 토류 금속, 또는 그들의 화합물을 이용할 수 있다. 또한, 불화 에르븀(ErF₃)과 같은 희토류 금속 화합물을 이용할 수 있다. 또한, 상술한 전자 수송층(114)을 구성하는 물질을 이용할 수도 있다.

[0121] 또는, 전자 주입층(115)에, 유기 화합물과 전자 공여체(도너)를 혼합하여 이루어지는 복합 재료를 이용해도 좋다. 이러한 복합 재료는 전자 공여체에 의해 유기 화합물에 전자가 발생되기 때문에, 전자 주입성 및 전자 수송성이 뛰어나다. 이 경우, 유기 화합물로서는 발생한 전자의 수송이 뛰어난 재료인 것이 바람직하고, 구체적으로는, 예를 들면 상술한 전자 수송층(114)을 구성하는 물질(금속 착체나 복소 방향족 화합물 등)을 이용할 수 있다. 전자 공여체로서는 유기 화합물에 대하여 전자 공여성을 나타내는 물질이면 좋다. 구체적으로는, 알칼리 금속이나 알칼리 토류 금속이나 희토류 금속이 바람직하고, 리튬, 세슘, 마그네슘, 칼슘, 에르븀, 이테르븀 등을 들 수 있다. 또한, 알칼리 금속 산화물이나 알칼리 토류 금속 산화물이 바람직하고, 리튬 산화물, 칼슘 산화물, 바륨 산화물 등을 들 수 있다. 또한, 산화 마그네슘과 같은 루이스 염기를 이용할 수도 있다. 또한, 테트라티아폴발렌(약칭 : TTF) 등의 유기 화합물을 이용할 수도 있다.

[0122] 또한, 상술한 정공 주입층(111), 정공 수송층(112), 발광층(113), 전자 수송층(114), 전자 주입층(115), 및 전하 발생층(116)은 각각, 증착법(진공 증착법을 포함함), 잉크젯법, 도포법 등의 방법으로 형성할 수 있다.

[0123] 또한, 상술한 발광 소자는 제 1 전극(101) 및 제 2 전극(103) 사이에 생긴 전위차에 의해 전류가 흘러, EL층(102)에서 정공과 전자가 재결합함으로써 발광한다. 그리고, 이 발광은 제 1 전극(101), 및 제 2 전극(103) 중 어느 한쪽 또는 양쪽 모두를 통하여 외부로 추출된다. 따라서, 제 1 전극(101) 및 제 2 전극(103) 중 어느 한쪽, 또는 양쪽 모두가 투광성을 갖는 전극이 된다.

[0124] 상기에 설명한 발광 소자는 유기 금속 착체에 기초한 인광 발광을 얻을 수 있기 때문에, 형광성 화합물을 이용한 발광 소자와 비교하여, 고효율의 발광 소자를 구현할 수 있다.

[0125] 또한, 본 실시형태에 나타내는 구성은 다른 실시형태에 나타내는 구성과 적절히 조합하여 이용할 수 있는 것으로 한다.

[0126] (실시형태 2)

[0127] 본 실시형태에서는, 한쌍의 전극 사이에 EL층을 가지고, EL층에 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체와, 다른 2종류 이상의 유기 화합물을 발광층에 이용한 발광 소자에 대하여, 도 2를 이용하여 설명한다.

[0128] 본 실시형태에 나타내는 발광 소자는 도 2에 나타내는 바와 같이 한쌍의 전극(제 1 전극(201) 및 제 2 전극(202)) 사이에 EL층(203)을 포함하는 구조이다. 또한, EL층(203)에는 적어도 발광층(204)을 포함하고, 그 외, 정공 주입층, 정공 수송층, 전자 수송층, 전자 주입층, 전하 발생층 등이 포함되어 있어도 좋다. 또한, 도 2에서, 제 1 전극(201)과 EL층(203) 사이의 영역, 및 제 2 전극(202)과 EL층(203) 사이의 영역에는, 상술한 정공 주입층, 정공 수송층, 전자 수송층, 전자 주입층, 전하 발생층 등을 적절히 형성하는 구성으로 할 수 있다. 또한, 정공 주입층, 정공 수송층, 전자 수송층, 전자 주입층, 전하 발생층에는 실시형태 1에 나타낸 물질을 이용할 수 있다. 또한, 본 실시형태에서는 제 1 전극(201)을 양극으로서 이용하고, 제 2 전극(202)을 음극으로서 이용한다.

[0129] 본 실시형태에 나타내는 발광층(204)은 실시형태 1에 나타낸 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체를 이용한 인광성 화합물(205)과, 제 1 유기 화합물(206), 및 제 2 유기 화합물(207)이 포함되어 있다. 또한, 인광성 화합물(205)은 발광층(204)에서의 게스트 재료이다. 또한, 제 1 유기 화합물(206), 및 제 2 유기 화합물(207) 중

발광층(204)에 포함되는 비율이 높은 것이 발광층(204)에서의 호스트 재료이다.

- [0130] 발광층(204)에 있어서, 상기 게스트 재료를 호스트 재료에 분산시킨 구성으로 함으로써, 발광층의 결정화를 억제할 수 있다. 또한, 게스트 재료의 농도가 높은 것에 기인한 농도 소광을 억제하여, 발광 소자의 발광 효율을 높게 할 수 있다.
- [0131] 또한, 제 1 유기 화합물(206), 및 제 2 유기 화합물(207)의 각각의 삼중항 여기 에너지의 준위(T_1 준위)는 인광성 화합물(205)의 T_1 준위보다 높은 것이 바람직하다. 제 1 유기 화합물(206)(또는 제 2 유기 화합물(207))의 T_1 준위가 인광성 화합물(205)의 T_1 준위보다 낮으면 발광에 기여하는 인광성 화합물(205)의 삼중항 여기 에너지가 제 1 유기 화합물(206)(또는 제 2 유기 화합물(207))에 의해 소광(퀀칭(quenching))되어, 발광 효율의 저하를 초래하기 때문이다.
- [0132] 여기서, 호스트 재료로부터 게스트 재료로의 에너지 이동 효율을 높이기 위해, 분자 간의 이동 기구로서 알려져 있는 펄스기 기구(쌍극자-쌍극자 상호 작용) 및 텍스터 기구(전자 교환 상호 작용)를 고려하여, 호스트 재료의 발광 스펙트럼(일중항 여기 상태에서부터의 에너지 이동을 논하는 경우는 형광 스펙트럼, 삼중항 여기 상태에서부터의 에너지 이동을 논하는 경우는 인광 스펙트럼)과 게스트 재료의 흡수 스펙트럼(보다 상세하게는, 가장 장파장(저에너지)측의 흡수대에서의 스펙트럼)의 중첩이 커지는 것이 바람직하다. 그러나 일반적인 인광성의 게스트 재료의 경우, 호스트 재료의 형광 스펙트럼을 게스트 재료의 가장 장파장(저에너지)측의 흡수대에서의 흡수 스펙트럼과 중첩시키는 것은 곤란하다. 왜냐하면, 그렇게 하게 되면, 호스트 재료의 인광 스펙트럼은 형광 스펙트럼보다 장파장(저에너지)측에 위치하기 때문에, 호스트 재료의 T_1 준위가 인광성 화합물의 T_1 준위를 밀돌게 되어, 상술한 퀀칭의 문제가 생겨 버리기 때문이다. 한편, 퀀칭의 문제를 회피하기 위해, 호스트 재료의 T_1 준위가 인광성 화합물의 T_1 준위를 웃돌도록 설계하면, 이번에는 호스트 재료의 형광 스펙트럼이 단파장(고에너지)측으로 시프트하기 때문에, 그 형광 스펙트럼은 게스트 재료의 가장 장파장(저에너지)측의 흡수대에서의 흡수 스펙트럼과 중첩되지 않게 된다. 따라서, 일반적으로, 호스트 재료의 형광 스펙트럼을 게스트 재료의 가장 장파장(저에너지)측의 흡수대에서의 흡수 스펙트럼과 중첩하여, 호스트 재료의 일중항 여기 상태에서부터의 에너지 이동을 최대한으로 높이는 것은 어렵다.
- [0133] 따라서 본 실시형태에서는 제 1 유기 화합물(206), 및 제 2 유기 화합물(207)은 여기 착체를 형성하는 조합인 것이 바람직하다. 이 경우, 발광층(204)에서의 캐리어(전자 및 홀)의 재결합 시에 제 1 유기 화합물(206)과 제 2 유기 화합물(207)은 여기 착체(엑시플렉스(exciplex)라고도 함)를 형성한다. 이것에 의해, 발광층(204)에서 제 1 유기 화합물(206)의 형광 스펙트럼 및 제 2 유기 화합물(207)의 형광 스펙트럼은 보다 장파장측에 위치하는 여기 착체의 발광 스펙트럼으로 변환된다. 그리고, 여기 착체의 발광 스펙트럼과 게스트 재료의 흡수 스펙트럼의 중첩이 커지도록, 제 1 유기 화합물과 제 2 유기 화합물을 선택하면, 일중항 여기 상태에서부터의 에너지 이동을 최대한으로 높일 수 있다. 또한, 삼중항 여기 상태에 관해서도, 호스트 재료가 아니라 여기 착체로부터의 에너지 이동이 생긴다고 생각된다.
- [0134] 인광성 화합물(205)로서는, 실시형태 1에 설명한 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체를 이용한다. 또한, 제 1 유기 화합물(206), 및 제 2 유기 화합물(207)로서는, 전자를 받기 쉬운 화합물(전자 트랩성 화합물)과, 홀을 받기 쉬운 화합물(정공 트랩성 화합물)을 조합하는 것이 바람직하다.
- [0135] 홀을 받기 쉬운 화합물로서는, 예를 들면, 4-페닐-4'-(9-페닐-9H-카바졸-3-일)트라이페닐아민(약칭: PCBA1BP), 3-[N-(1-나프틸)-N-(9-페닐카바졸-3-일)아미노]-9-페닐카바졸(약칭: PCzPCN1), 4,4',4''-트리스[N-(1-나프틸)-N-페닐아미노]트라이페닐아민(약칭: 1'-TNATA), 2,7-비스[N-(4-다이페닐아미노페닐)-N-페닐아미노]-스파이로-9,9'-바이플루오렌(약칭: DPA2SF), N,N'-비스(9-페닐카바졸-3-일)-N,N'-다이페닐벤젠-1,3-다이아민(약칭: PCA2B), N-(9,9-다이메틸-2-다이페닐아미노-9H-플루오렌-7-일)다이페닐아민(약칭: DPNF), 4-페닐다이페닐-(9-페닐-9H-카바졸-3-일)아민(약칭: PCA1BP), N,N',N''-트라이페닐-N,N',N''-트리스(9-페닐카바졸-3-일)벤젠-1,3,5-트리아민(약칭: PCA3B), 2-[N-(9-페닐카바졸-3-일)-N-페닐아미노]스파이로-9,9'-바이플루오렌(약칭: PCASF), 2-[N-(4-다이페닐아미노페닐)-N-페닐아미노]-스파이로-9,9'-바이플루오렌(약칭: DPASF), N,N-다이(바이페닐-4-일)-N-(9-페닐-9H-카바졸-3-일)아민(약칭: PCzBBA1), N,N'-비스[4-(카바졸-9-일)페닐]-N,N'-다이페닐-9,9-다이메틸플루오렌-2,7-다이아민(약칭: YGA2F), 4,4'-비스[N-(3-메틸페닐)-N-페닐아미노]바이페닐(약칭: TPD), 4,4'-비스[N-(4-다이페닐아미노페닐)-N-페닐아미노]바이페닐(약칭: DPAB), N-(9,9-다이메틸-9H-플루오렌-2-일)-N-{9,9-다이메틸-2-[N'-페닐-N'-(9,9-다이메틸-9H-플루오렌-2-일)아미노]-9H-플루오렌-7-일}페닐아민(약칭: DFL ADFL), 3-[N-(9-페닐카바졸-3-일)-N-페닐아미노]-9-페닐카바졸(약칭: PCzPCA1), 3-[N-(4-다이페닐아미노페닐)-

N-페닐아미노]-9-페닐카바졸(약칭: PCzDPA1), 3,6-비스[N-(4-다이페닐아미노페닐)-N-페닐아미노]-9-페닐카바졸(약칭: PCzDPA2), 4,4'-비스(N-{4-[N'-(3-메틸페닐)-N'-페닐아미노]페닐}-N-페닐아미노)바이페닐(약칭: DNTPD), 3,6-비스[N-(4-다이페닐아미노페닐)-N-(1-나프틸)아미노]-9-페닐카바졸(약칭: PCzTPN2), 3,6-비스[N-(9-페닐카바졸-3-일)-N-페닐아미노]-9-페닐카바졸(약칭: PCzPCA2)을 들 수 있다.

- [0136] 상술한 제 1 유기 화합물(206) 및 제 2 유기 화합물(207)은 여기 착체를 형성할 수 있는 조합의 일레이며, 여기 착체의 발광 스펙트럼이 인광성 화합물(205)의 흡수 스펙트럼과 중첩되고, 여기 착체의 발광 스펙트럼의 피크가 인광성 화합물(205)의 흡수 스펙트럼의 피크보다 장파장이면 좋다.
- [0137] 또한, 전자를 받기 쉬운 화합물과 holes 받기 쉬운 화합물로 제 1 유기 화합물(206)과 제 2 유기 화합물(207)을 구성하는 경우, 그 혼합비에 의해 캐리어 밸런스를 제어할 수 있다. 구체적으로는, 제 1 유기 화합물: 제 2 유기 화합물 = 1:9~9:1(중량비)의 범위가 바람직하다.
- [0138] 본 실시형태에 설명한 발광 소자는 여기 착체의 발광 스펙트럼과 인광성 화합물의 흡수 스펙트럼의 중첩을 이용한 에너지 이동에 의해, 에너지 이동 효율을 높일 수 있기 때문에, 외부 양자 효율이 높은 발광 소자를 구현할 수 있다.
- [0139] 또한, 본 발명에 포함되는 다른 구성으로서 인광성 화합물(205)(게스트 재료) 외의 2 종류의 유기 화합물로서 정공 트랩성의 호스트 재료, 및 전자 트랩성의 호스트 재료를 이용하여 발광층(204)을 형성하고, 2 종류의 호스트 재료 중에 존재하는 게스트 분자에 정공과 전자를 인도하여, 게스트 분자를 여기 상태로 하는 현상(즉, Guest Coupled with Complementary Hosts: GCCH)이 얻어지도록 발광층(204)을 형성하는 구성도 가능하다.
- [0140] 이때, 정공 트랩성의 호스트 재료, 및 전자 트랩성의 호스트 재료로서는 각각 상술한 정공을 받기 쉬운 화합물, 및 전자를 받기 쉬운 화합물을 이용할 수 있다.
- [0141] 또한, 본 실시형태에 나타내는 구성은 다른 실시형태에 나타내는 구성과 적절히 조합하여 이용할 수 있는 것으로 한다.
- [0142] (실시형태 3)
- [0143] 본 실시형태에서는, 본 발명의 일 양태로서 전하 발생층을 사이에 끼우고 EL층을 복수 갖는 구조의 발광 소자(이하, 탠덤형 발광 소자라고 함)에 대하여 설명한다.
- [0144] 본 실시형태에 나타내는 발광 소자는 도 3의 (A)에 도시한 바와 같이 한쌍의 전극(제 1 전극(301) 및 제 2 전극(304)) 사이에, 복수의 EL층(제 1 EL층(302(1)), 제 2 EL층(302(2)))을 갖는 탠덤형 발광 소자이다.
- [0145] 본 실시형태에서 제 1 전극(301)은 양극으로서 기능하는 전극이며, 제 2 전극(304)은 음극으로서 기능하는 전극이다. 또한, 제 1 전극(301) 및 제 2 전극(304)은 실시형태 1과 같은 구성을 이용할 수 있다. 또한, 복수의 EL층(제 1 EL층(302(1)), 제 2 EL층(302(2)))은 실시형태 1 또는 실시형태 2에 설명한 EL층과 같은 구성이어도 좋지만, 어느 하나가 같은 구성이어도 좋다. 즉, 제 1 EL층(302(1))과 제 2 EL층(302(2))은 같은 구성이어도 다른 구성이어도 좋고, 그 구성은 실시형태 1 또는 실시형태 2와 같은 것을 적용할 수 있다.
- [0146] 또한, 복수의 EL층(제 1 EL층(302(1)), 제 2 EL층(302(2)))의 사이에는 전하 발생층(305)이 제공되어 있다. 전하 발생층(305)은 제 1 전극(301)과 제 2 전극(304)에 전압을 인가했을 때에, 한쪽의 EL층에 전자를 주입하고, 다른 한쪽의 EL층에 정공을 주입하는 기능을 가진다. 본 실시형태의 경우에는, 제 1 전극(301)에 제 2 전극(304)보다 전위가 높아지도록 전압을 인가하면, 전하 발생층(305)으로부터 제 1 EL층(302(1))에 전자가 주입되고, 제 2 EL층(302(2))에 정공이 주입된다.
- [0147] 또한, 전하 발생층(305)은 광의 추출 효율의 점에서, 가시광에 대하여 투광성을 갖는(구체적으로는, 전하 발생층(305)에 대한 가시광의 투과율이 40% 이상) 것이 바람직하다. 또한, 전하 발생층(305)은 제 1 전극(301)이나 제 2 전극(304)보다 낮은 도전율일 때에도 기능한다.
- [0148] 전하 발생층(305)은 정공 수송성이 높은 유기 화합물에 전자 수용체(억셉터)가 첨가된 구성이어도, 전자 수송성이 높은 유기 화합물에 전자 공여체(도너)가 첨가된 구성이어도 좋다. 또한, 이들 양쪽 모두의 구성이 적층되어 있어도 좋다.
- [0149] 정공 수송성이 높은 유기 화합물에 전자 수용체가 첨가된 구성으로 하는 경우에, 정공 수송성이 높은 유기 화합물로서는 예를 들면, NPB, TPD, TDATA, MTDATA, 또는 4,4'-비스[N-(스파이로-9,9'-바이플루오렌-2-일)-N-페닐아미노]바이페닐(약칭: BSPB) 등의 방향족 아민 화합물 등을 이용할 수 있다. 여기에 설명한 물질은, 주로 10^{-6}

cm^2/Vs 이상의 정공 이동도를 갖는 물질이다. 단, 전자보다 정공의 수송성이 높은 유기 화합물이면, 상기 이외의 물질을 이용해도 상관없다.

[0150] 또한, 전자 수송체로서는, 7,7,8,8-테트라사이아노-2,3,5,6-테트라플루오로퀴노다이메테인(약칭 : F₄-TCNQ), 클로라닐 등을 들 수 있다. 또한, 전이 금속 산화물을 들 수 있다. 또 원소 주기표의 제 4 족 내지 제 8 족에 속하는 금속의 산화물을 들 수 있다. 구체적으로는, 산화 바나듐, 산화 니오브, 산화 탄탈, 산화 크로뮴, 산화 몰리브덴, 산화 텅스텐, 산화 망간, 산화 레늄은 전자 수용성이 높기 때문에 바람직하다. 그 중에서도 특히, 산화 몰리브덴은 대기 중에서도 안정적이고, 흡습성이 낮고, 취급하기 쉽기 때문에 바람직하다.

[0151] 한편, 전자 수송성이 높은 유기 화합물에 전자 공여체가 첨가된 구성으로 하는 경우에, 전자 수송성이 높은 유기 화합물로서는, 예를 들면, Alq, Almq₃, BeBq₂, BA1q 등 퀴놀라인 골격 또는 벤조퀴놀라인 골격을 갖는 금속 착체 등을 이용할 수 있다. 또한, 이 외, Zn(BOX)₂, Zn(BTZ)₂ 등의 옥사졸계, 티아졸계 배위자를 갖는 금속 착체 등도 이용할 수 있다. 또한, 금속 착체 이외에도, PBD, OXD-7, TAZ, BPhen, 또는 BCP 등도 이용할 수 있다. 여기에 설명한 물질은 주로 $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 이상의 전자 이동도를 갖는 물질이다. 또한, 제 2 피리미딘 골격을 포함하는 유기 화합물을 이용해도 좋다. 또한, 정공보다 전자의 수송성이 높은 유기 화합물이면, 상기 이외의 물질을 이용해도 상관없다.

[0152] 또한, 전자 공여체로서는, 알칼리 금속 또는 알칼리 토류 금속 또는 희토류 금속 또는 원소 주기표의 제 13 족에 속하는 금속 및 그 산화물, 탄산염을 이용할 수 있다. 구체적으로는, 리튬(Li), 세슘(Cs), 마그네슘(Mg), 칼슘(Ca), 이테르븀(Yb), 인듐(In), 산화 리튬, 탄산 세슘 등을 이용하는 것이 바람직하다. 또한, 테트라티아나프타센과 같은 유기 화합물을 전자 공여체로서 이용해도 좋다.

[0153] 또한, 상술한 재료를 이용하여 전하 발생층(305)을 형성함으로써, EL층이 적층된 경우의 구동 전압의 상승을 억제할 수 있다.

[0154] 도 3의 (A)에 도시한 발광 소자에서는 EL층을 2층 갖는 발광 소자에 대하여 설명했지만, 도 3의 (B)에 나타내는 바와 같이, n층(단, n은 3 이상)의 EL층을 적층한 발광 소자에 대해서도 마찬가지로 적용하는 것이 가능하다. 본 실시형태에 따른 발광 소자와 같이, 한쌍의 전극 사이에 복수의 EL층을 갖는 경우, EL층과 EL층의 사이에 전하 발생층을 배치함으로써, 전류 밀도를 낮게 유지한 채로 고휘도 영역에서의 발광이 가능하다. 전류 밀도를 낮게 유지할 수 있기 때문에, 장수명 소자를 구현할 수 있다. 또한, 조명을 응용으로 한 경우에는 전극 재료의 저항에 의한 전압 강하를 작게 할 수 있으므로, 대면적에서의 균일 발광이 가능하게 된다. 또한, 저전압 구동이 가능하여 소비 전력이 낮은 발광 장치를 구현할 수 있다.

[0155] 또한, 각각의 EL층의 발광색을 다르게 함으로써, 발광 소자 전체적으로, 원하는 색의 발광을 얻을 수 있다. 예를 들면, 2개의 EL층을 갖는 발광 소자에 있어서, 제 1 EL층의 발광색과 제 2 EL층의 발광색을 보색의 관계가 되도록 함으로써, 발광 소자 전체적으로 백색 발광하는 발광 소자를 얻는 것도 가능하다. 또한, 보색이란, 혼합하면 무채색이 되는 색들 간의 관계를 말한다. 즉, 보색의 관계에 있는 색을 발광하는 물질로부터 얻어진 광과 혼합하면, 백색 발광을 얻을 수 있다.

[0156] 또한, 3개의 EL층을 갖는 발광 소자의 경우에도 마찬가지로, 예를 들면, 제 1 EL층의 발광색이 적색이고, 제 2 EL층의 발광색이 녹색이고, 제 3 EL층의 발광색이 청색인 경우, 발광 소자 전체적으로는, 백색 발광을 얻을 수 있다.

[0157] 또한, 본 실시형태에 나타내는 구성은 다른 실시형태에 나타낸 구성과 적절히 조합하여 이용할 수 있다.

[0158] (실시형태 4)

[0159] 본 실시형태에서는, EL층에 유기 금속 착체를 포함하는 발광 소자를 이용한 발광 장치에 대하여, 도 4를 이용하여 설명한다.

[0160] 본 실시형태에 나타내는 발광 장치는 한쌍의 전극 사이에서의 광의 공진 효과를 이용한 미소 광 공진기(마이크로 캐비티) 구조를 가지고 있고, 도 4에 나타내는 바와 같이 한쌍의 전극(반사 전극(451) 및 반투과·반반사 전극(452)) 사이에 적어도 EL층(455)을 갖는 구조인 발광 소자를 복수 가지고 있다. 또한, EL층(455)은 적어도 발광 영역이 되는 제 1 발광층(454B), 제 2 발광층(454G), 및 제 3 발광층(454R)을 가지고, 그 외, 정공 주입층, 정공 수송층, 전자 수송층, 전자 주입층, 전하 발생층 등이 포함되어 있어도 좋다. 또한, 제 1 발광층(454B), 제 2 발광층(454G), 및 제 3 발광층(454R) 중 적어도 하나의 층에는 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착

체가 포함되어 있다.

- [0161] 본 실시형태에서는, 도 4에 나타내는 바와 같이 구조가 다른 발광 소자(제 1 발광 소자(450R), 제 2 발광 소자(450G), 제 3 발광 소자(450B))를 가진 발광 장치에 대하여 설명한다.
- [0162] 제 1 발광 소자(450R)는 반사 전극(451) 위에 제 1 투명 도전층(453a), EL층(455), 반투과·반반사 전극(452)이 순차 적층된 구조를 가진다. 또한, 제 2 발광 소자(450G)는 반사 전극(451) 위에 제 2 투명 도전층(453b), EL층(455), 반투과·반반사 전극(452)이 순차 적층된 구조를 가진다. 또한, 제 3 발광 소자(450B)는 반사 전극(451) 위에 EL층(455)과 반투과·반반사 전극(452)이 순차 적층된 구조를 가진다.
- [0163] 또한, 상기 발광 소자(제 1 발광 소자(450R), 제 2 발광 소자(450G), 및 제 3 발광 소자(450B))에 있어서, 반사 전극(451), EL층(455), 반투과·반반사 전극(452)은 공통이다.
- [0164] 또한, EL층(455)은 제 1 발광층(454B), 제 2 발광층(454G), 및 제 3 발광층(454R)을 포함한 구조이다. 또한, 제 1 발광층(454B)은 420 nm 이상 480 nm 이하의 파장 영역에 피크를 갖는 광(λ_B)을 발광하고, 제 2 발광층(454G)은 500 nm 이상 550 nm 이하의 파장 영역에 피크를 갖는 광(λ_G)을 발광하고, 제 3 발광층(454R)은 600 nm 이상 760 nm 이하의 파장 영역에 피크를 갖는 광(λ_R)을 발광한다. 이것에 의해, 어느 발광 소자(제 1 발광 소자(450R), 제 2 발광 소자(450G), 제 3 발광 소자(450B))에서도, 제 1 발광층(454B), 제 2 발광층(454G), 및 제 3 발광층(454R)으로부터의 발광이 서로 중첩된, 즉 가시광 영역에 걸친 넓은 광을 발광시킬 수 있다. 또한, 상기에서 파장의 길이는 $\lambda_B < \lambda_G < \lambda_R$ 가 되는 관계이다.
- [0165] 본 실시형태에 나타내는 각 발광 소자는 각각 반사 전극(451)과 반투과·반반사 전극(452) 사이에 EL층(455)을 사이에 끼우고 이루어지는 구조를 갖고, EL층(455)에 포함되는 각 발광층으로부터 전(全)방향으로 사출되는 발광은 미소 광 공진기(마이크로 캐비티)로서의 기능을 갖는 반사 전극(451)과 반투과·반반사 전극(452)에 의해 공진된다. 또한, 반사 전극(451)은 반사성을 갖는 도전성 재료에 의해 형성되고, 그 막에 대한 가시광의 반사율이 40%~100%, 바람직하게는 70%~100%이며, 그 저항율이 $1 \times 10^{-2} \Omega \text{cm}$ 이하의 막인 것으로 한다. 또한, 반투과·반반사 전극(452)은 반사성을 갖는 도전성 재료와 광투과성을 갖는 도전성 재료에 의해 형성되고, 그 막에 대한 가시광의 반사율이 20%~80%, 바람직하게는 40%~70%이며, 그 저항율이 $1 \times 10^{-2} \Omega \text{cm}$ 이하의 막인 것으로 한다.
- [0166] 또한, 본 실시형태에서는, 각 발광 소자에서 제 1 발광 소자(450R)와 제 2 발광 소자(450G)에 각각 제공된 투명 도전층(제 1 투명 도전층(453a), 제 2 투명 도전층(453b))의 두께를 바꿈으로써, 발광 소자마다 반사 전극(451)과 반투과·반반사 전극(452) 사이의 광학적 거리를 바꾸고 있다. 즉, 각 발광 소자의 각 발광층으로부터 발광하는 넓은 광은 반사 전극(451)과 반투과·반반사 전극(452) 사이에서, 공진하는 파장의 광을 강하게 하고, 공진하지 않는 파장의 광을 감쇠시킬 수 있기 때문에, 소자마다 반사 전극(451)과 반투과·반반사 전극(452) 사이의 광학적 거리를 바꿈으로써, 다른 파장의 광을 추출할 수 있다.
- [0167] 또한, 광학적 거리(광로 길이라고도 함)란, 실제 거리에 굴절률을 곱한 것이고, 본 실시형태에서는, 실제 막 두께에 $n(\text{굴절률})$ 을 곱한 것을 나타낸다. 즉, 광학적 거리 = 실제 막 두께 $\times n(\text{굴절률})$ 이다.
- [0168] 또한, 제 1 발광 소자(450R)에서는 반사 전극(451)으로부터 반투과·반반사 전극(452)까지의 광학적 거리를 $m\lambda_R/2$ (단, m 은 1 이상의 자연수), 제 2 발광 소자(450G)에서는 반사 전극(451)으로부터 반투과·반반사 전극(452)까지의 광학적 거리를 $m\lambda_G/2$ (단, m 은 1 이상의 자연수), 제 3 발광 소자(450B)에서는 반사 전극(451)으로부터 반투과·반반사 전극(452)까지의 광학적 거리를 $m\lambda_B/2$ (단, m 은 1 이상의 자연수)로 하고 있다.
- [0169] 이상으로부터, 제 1 발광 소자(450R)로부터는 주로 EL층(455)에 포함되는 제 3 발광층(454R)에서 발광한 광(λ_R)이 추출되고, 제 2 발광 소자(450G)로부터는 주로 EL층(455)에 포함되는 제 2 발광층(454G)에서 발광한 광(λ_G)이 추출되고, 제 3 발광 소자(450B)로부터는 주로 EL층(455)에 포함되는 제 1 발광층(454B)에서 발광한 광(λ_B)이 추출된다. 또한, 각 발광 소자로부터 추출되는 광은 반투과·반반사 전극(452)측으로부터 각각 사출된다.
- [0170] 또한, 상기 구성에서, 반사 전극(451)으로부터 반투과·반반사 전극(452)까지의 광학적 거리는 엄밀하게는 반사 전극(451)에서의 반사 영역으로부터 반투과·반반사 전극(452)에서의 반사 영역까지의 거리이다. 그러나, 반사 전극(451)이나 반투과·반반사 전극(452)에서의 반사 영역의 위치를 엄밀하게 결정하는 것은 곤란하기 때문에,

반사 전극(451)과 반투과·반반사 전극(452)의 임의의 위치를 반사 영역이라고 가정함으로써 충분히 상술한 효과를 얻을 수 있는 것으로 한다.

[0171] 다음에, 제 1 발광 소자(450R)에서, 제 3 발광층(454R)으로부터의 발광 중, 반사 전극(451)에 의해 반사되어 돌아온 광(제 1 반사광)은 제 3 발광층(454R)으로부터 반투과·반반사 전극(452)에 직접 입사하는 광(제 1 입사광)과 간섭을 일으키기 때문에, 반사 전극(451)과 제 3 발광층(454R)의 광학적 거리를 $(2n_R-1)\lambda_R/4$ (단, n_R 은 1 이상의 자연수)로 조절한다. 광학적 거리를 조절함으로써, 제 1 반사광과 제 1 입사광의 위상을 맞추어 제 3 발광층(454R)으로부터의 발광을 증폭시킬 수 있다.

[0172] 또한, 반사 전극(451)과 제 3 발광층(454R)의 광학적 거리는 엄밀하게는 반사 전극(451)에서의 반사 영역과 제 3 발광층(454R)에서의 발광 영역의 광학적 거리라고 할 수 있다. 그러나, 반사 전극(451)에서의 반사 영역이나 제 3 발광층(454R)에서의 발광 영역의 위치를 엄밀하게 결정하는 것은 곤란하기 때문에, 반사 전극(451)과 제 3 발광층(454R)의 임의의 위치를 각각 반사 영역, 발광 영역이라고 가정함으로써 충분히 상술한 효과를 얻을 수 있는 것으로 한다.

[0173] 다음에, 제 2 발광 소자(450G)에서, 제 2 발광층(454G)으로부터의 발광 중, 반사 전극(451)에 의해 반사되어 돌아온 광(제 2 반사광)은 제 2 발광층(454G)으로부터 반투과·반반사 전극(452)에 직접 입사하는 광(제 2 입사광)과 간섭을 일으키기 때문에, 반사 전극(451)과 제 2 발광층(454G)의 광학적 거리를 $(2n_G-1)\lambda_G/4$ (단, n_G 은 1 이상의 자연수)로 조절한다. 광학적 거리를 조절함으로써, 제 2 반사광과 제 2 입사광의 위상을 맞추어 제 2 발광층(454G)으로부터의 발광을 증폭시킬 수 있다.

[0174] 또한, 반사 전극(451)과 제 2 발광층(454G)의 광학적 거리는 엄밀하게는 반사 전극(451)에서의 반사 영역과 제 2 발광층(454G)에서의 발광 영역의 광학적 거리라고 할 수 있다. 그러나, 반사 전극(451)에서의 반사 영역이나 제 2 발광층(454G)에서의 발광 영역의 위치를 엄밀하게 결정하는 것은 곤란하기 때문에, 반사 전극(451)과 제 2 발광층(454G)의 임의의 위치를 각각 반사 영역, 발광 영역이라고 가정함으로써 충분히 상술한 효과를 얻을 수 있는 것으로 한다.

[0175] 다음에, 제 3 발광 소자(450B)에서, 제 1 발광층(454B)으로부터의 발광 중, 반사 전극(451)에 의해 반사되어 돌아온 광(제 3 반사광)은 제 1 발광층(454B)으로부터 반투과·반반사 전극(452)에 직접 입사하는 광(제 3 입사광)과 간섭을 일으키기 때문에, 반사 전극(451)과 제 1 발광층(454B)의 광학적 거리를 $(2n_B-1)\lambda_B/4$ (단, n_B 은 1 이상의 자연수)로 조절한다. 광학적 거리를 조절함으로써, 제 3 반사광과 제 3 입사광의 위상을 맞추어 제 1 발광층(454B)으로부터의 발광을 증폭시킬 수 있다.

[0176] 또한, 반사 전극(451)과 제 1 발광층(454B)의 광학적 거리는 엄밀하게는 반사 전극(451)에서의 반사 영역과 제 1 발광층(454B)에서의 발광 영역의 광학적 거리라고 할 수 있다. 그러나, 반사 전극(451)에서의 반사 영역이나 제 1 발광층(454B)에서의 발광 영역의 위치를 엄밀하게 결정하는 것은 곤란하기 때문에, 반사 전극(451)과 제 1 발광층(454B)의 임의의 위치를 각각 반사 영역, 발광 영역이라고 가정함으로써 충분히 상술한 효과를 얻을 수 있는 것으로 한다.

[0177] 또한, 상기 구성에서, 어느 발광 소자도 EL층에 복수의 발광층을 갖는 구조를 가지고 있지만, 본 발명은 이것에 한정되는 것은 아니고, 예를 들면, 실시형태 3에 설명한 탠덤형(적층형) 발광 소자의 구성과 조합하여, 하나의 발광 소자에 전하 발생층을 사이에 끼우고 복수의 EL층을 제공하여 각각의 EL층에 단수 또는 복수의 발광층을 형성하는 구성으로 해도 좋다.

[0178] 본 실시형태에 설명한 발광 장치는 마이크로 캐비티 구조를 가지고 있고, 같은 EL층을 가지고 있어도 발광 소자마다 다른 파장의 광을 추출할 수 있기 때문에 RGB의 분할 도포가 불필요해진다. 따라서, 고정세화를 구현하는 것이 용이하다는 등의 이유로 풀 컬러화를 구현하는데 유리하다. 또한, 특정 파장의 정면 방향의 발광 강도를 강하게 하는 것이 가능하게 되기 때문에, 저소비 전력화를 도모할 수 있다. 이 구성은 3색 이상의 화소를 이용한 컬러 디스플레이(화상 표시 장치)에 적용하는 경우에 특히 유용하지만, 조명 등의 용도에 이용해도 좋다.

[0179] 또한, 본 실시형태에 나타내는 구성은 다른 실시형태에 나타내는 구성과 적절히 조합하여 이용할 수 있는 것으로 한다.

[0180] (실시형태 5)

[0181] 본 실시형태에서는, 본 발명의 일 양태인 발광 소자를 이용한 발광 장치에 대하여, 도 5를 이용하여 설명한다.

- [0182] 본 발명의 일 양태인 발광 소자를 이용한 발광 장치는 패시브 매트릭스형의 발광 장치이어도 액티브 매트릭스형의 발광 장치이어도 좋다. 또한, 본 실시형태에 나타내는 발광 장치에는 다른 실시형태에 설명한 발광 소자를 적용하는 것이 가능하다.
- [0183] 본 실시형태에서는 본 발명의 일 양태인 발광 소자를 이용한 발광 장치로서 액티브 매트릭스형의 발광 장치에 대하여 도 5를 이용하여 설명한다.
- [0184] 또한, 도 5의 (A)는 발광 장치를 나타내는 상면도이며, 도 5의 (B)는 도 5의 (A)의 섹션 X-Y의 단면도에 상당한다. 본 실시형태에 따른 액티브 매트릭스형의 발광 장치는 소자 기관(501) 위에 제공된 화소부(502), 구동 회로부(소스선 구동 회로)(503), 및 구동 회로부(게이트선 구동 회로)(504)를 가진다. 화소부(502), 구동 회로부(503), 및 구동 회로부(504)는 실재(505)에 의해, 소자 기관(501)과 밀봉 기관(506)의 사이에 밀봉되어 있다.
- [0185] 또한, 소자 기관(501) 위에는 구동 회로부(503), 및 구동 회로부(504)에 외부로부터의 신호(예를 들면, 비디오 신호, 클럭 신호, 스타트 신호, 또는 리셋 신호 등)나 전위를 전달하는 외부 입력 단자를 접속하기 위한 리드 배선(507)이 제공된다. 여기에서는, 외부 입력 단자로서 FPC(508)를 형성하는 예를 나타낸다. 또한, 여기에서는 FPC밖에 도시하지 않았지만, 이 FPC에는 프린트 배선 기관(PWB)이 장착되어 있어도 좋다. 본 명세서의 발광 장치에는 발광 장치 본체뿐만 아니라, 거기에 FPC 혹은 PWB가 장착된 상태도 포함하는 것으로 한다.
- [0186] 다음에, 단면 구조에 대하여 도 5의 (B)를 이용하여 설명한다. 소자 기관(501) 위에는 구동 회로부 및 화소부가 형성되어 있지만, 여기에서는, 소스선 구동 회로인 구동 회로부(503)와 화소부(502)가 도시되어 있다.
- [0187] 구동 회로부(503)는 n채널형 TFT(509)와 p채널형 TFT(510)를 조합한 CMOS 회로가 형성되는 예를 나타낸다. 또한, 구동 회로부를 형성하는 회로는 다양한 CMOS 회로, PMOS 회로, 또는 NMOS 회로로 형성해도 좋다. 또한, 본 실시형태에서는 기관 위에 구동 회로를 형성한 드라이버 일체형을 나타내지만, 반드시 그럴 필요는 없고, 기관 위가 아니라 외부에 구동 회로를 형성할 수도 있다.
- [0188] 또한, 화소부(502)는 스위칭용 TFT(511), 전류 제어용 TFT(512), 전류 제어용 TFT(512)의 배선(소스 전극 또는 드레인 전극)에 전기적으로 접속된 제 1 전극(513)을 포함하는 복수의 화소에 의해 형성된다. 또한, 제 1 전극(513)의 단부(端部)를 덮도록 절연물(514)이 형성되어 있다. 여기에서는, 포지티브형의 감광성 아크릴 수지를 이용하여 형성한다. 또한, 본 실시형태에서는 제 1 전극(513)을 양극으로서 이용하고, 제 2 전극(516)을 음극으로서 이용한다.
- [0189] 또한, 상층에 적층 형성되는 막의 피복성을 양호한 것으로 하기 위해, 절연물(514)의 상단부 또는 하단부에 곡률을 갖는 곡면이 형성되도록 하는 것이 바람직하다. 예를 들면, 절연물(514)의 재료로서 포지티브형의 감광성 아크릴 수지를 이용한 경우, 절연물(514)의 상단부에 곡률 반경($0.2\mu\text{m} \sim 3\mu\text{m}$)을 갖는 곡면을 갖게 하는 것이 바람직하다. 또한, 절연물(514)로서 네거티브형의 감광성 수지, 또는 포지티브형의 감광성 수지를 사용할 수 있고, 유기 화합물에 한정되지 않고, 무기 화합물, 예를 들면, 산화 실리콘, 산화 질화 실리콘 등을 사용할 수 있다.
- [0190] 제 1 전극(513) 위에는 EL층(515) 및 제 2 전극(516)이 적층 형성되어 있다. EL층(515)은 적어도 발광층이 제공되어 있고, 발광층에는 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체가 포함되어 있다. 또한, EL층(515)에는 발광층 외에 정공 주입층, 정공 수송층, 전자 수송층, 전자 주입층, 전하 발생층 등을 적절히 제공할 수 있다.
- [0191] 또한, 제 1 전극(513), EL층(515), 및 제 2 전극(516)의 적층 구조로 발광 소자(517)가 형성되어 있다. 제 1 전극(513), EL층(515) 및 제 2 전극(516)에 이용하는 재료로서는, 실시형태 1에 설명하는 재료를 이용할 수 있다. 또한, 여기에서는 도시하지 않았지만, 제 2 전극(516)은 외부 입력 단자인 FPC(508)에 전기적으로 접속되어 있다.
- [0192] 또한, 도 5의 (B)에 나타내는 단면도에서는 발광 소자(517)를 하나만 도시하고 있지만, 화소부(502)에서 복수의 발광 소자가 매트릭스 형상으로 배치되어 있는 것으로 한다. 화소부(502)에는 3 종류(R, G, B)의 발광이 얻어지는 발광 소자를 각각 선택적으로 형성하여, 풀 컬러 표시 가능한 발광 장치를 형성할 수 있다. 또한, 컬러 필터와 조합시킴으로써 풀 컬러 표시 가능한 발광 장치로 해도 좋다.
- [0193] 또한, 실재(505)로 밀봉 기관(506)을 소자 기관(501)과 부착시킴으로써, 소자 기관(501), 밀봉 기관(506), 및 실재(505)로 둘러싸인 공간(518)에 발광 소자(517)가 구비된 구조로 되어 있다. 또한, 공간(518)에는 불활성 기체(질소나 아르곤 등)가 충전되는 경우 외에, 실재(505)로 충전되는 구성도 포함하는 것으로 한다.
- [0194] 또한, 실재(505)에는 에폭시계 수지를 이용하는 것이 바람직하다. 또한, 이들 재료는 가능한 한 수분이나 산소

를 투과하지 않는 재료인 것이 바람직하다. 또한, 밀봉 기관(506)에 이용하는 재료로서 유리 기관이나 석영 기관 외에, FRP(Fiber Reinforced Plastics), PVF(폴리비닐플루오라이드), 폴리에스터 또는 아크릴 등으로 이루어지는 플라스틱 기관을 이용할 수 있다.

[0195] 이상과 같이 하여, 액티브 매트릭스형의 발광 장치를 얻을 수 있다.

[0196] 또한, 본 실시형태에 나타내는 구성은, 다른 실시형태에 나타난 구성을 적절히 조합하여 이용할 수 있다.

[0197] (실시형태 6)

[0198] 본 실시형태에서는, 상기 실시형태에 나타내는 본 발명의 일 양태의 발광 장치를 그 일부에 포함하는 전자기기에 대하여 설명한다. 전자기기로서는, 디지털 비디오 카메라, 디지털 카메라 등의 카메라, 고글형 디스플레이, 네비게이션 시스템, 음향 재생 장치(카 오디오, 오디오 컴포넌트 등), 컴퓨터, 게임기기, 휴대 정보 단말기(모바일 컴퓨터, 태블릿형 단말, 휴대전화, 휴대형 게임기 또는 전자 서적 등), 기록 매체를 구비한 화상 재생 장치(구체적으로는, Digital Versatile Disc(DVD) 등의 기록 매체를 재생하고, 그 화상을 표시할 수 있는 표시 장치를 구비한 장치) 등을 들 수 있다. 이러한 전자기기의 구체적인 예를 도 6, 및 도 7에 나타낸다.

[0199] 도 6의 (A)는 본 발명의 일 양태에 따른 텔레비전 장치이며, 하우징(611), 지지대(612), 표시부(613), 스피커부(614), 비디오 입력 단자(615) 등을 포함한다. 이 텔레비전 장치에서 표시부(613)에는 본 발명의 일 양태의 발광 장치를 적용할 수 있다. 본 발명의 일 양태의 발광 장치는 저구동 전압으로 높은 전류 효율을 얻을 수 있기 때문에, 본 발명의 일 양태의 발광 장치를 적용함으로써, 소비 전력이 저감된 텔레비전 장치를 얻을 수 있다.

[0200] 도 6의 (B)는 본 발명의 일 양태에 따른 컴퓨터이며, 본체(621), 하우징(622), 표시부(623), 키보드(624), 외부 접속 포트(625), 포인팅 디바이스(626) 등을 포함한다. 이 컴퓨터에서, 표시부(623)에는 본 발명의 일 양태의 발광 장치를 적용할 수 있다. 본 발명의 일 양태의 발광 장치는 저구동 전압으로 높은 전류 효율을 얻을 수 있기 때문에, 본 발명의 일 양태의 발광 장치를 적용함으로써, 소비 전력이 저감된 컴퓨터를 얻을 수 있다.

[0201] 도 6의 (C)는 본 발명의 일 양태에 따른 휴대전화이며, 본체(631), 하우징(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 일 양태의 발광 장치를 적용할 수 있다. 본 발명의 일 양태의 발광 장치는 저구동 전압으로 높은 전류 효율을 얻을 수 있기 때문에, 본 발명의 일 양태의 발광 장치를 적용함으로써, 소비 전력이 저감된 휴대전화를 얻을 수 있다.

[0202] 도 6의 (D)는 본 발명의 일 양태에 따른 디지털 비디오 카메라이며, 본체(641), 표시부(642), 하우징(643), 외부 접속 포트(644), 리모콘 수신부(645), 수상부(646), 배터리(647), 음성 입력부(648), 조작 키(649), 집안부(650) 등을 포함한다. 이 디지털 비디오 카메라에서, 표시부(642)에는 본 발명의 일 양태의 발광 장치를 적용할 수 있다. 본 발명의 일 양태의 발광 장치는 저구동 전압으로 높은 전류 효율을 얻을 수 있기 때문에, 본 발명의 일 양태의 발광 장치를 적용함으로써, 소비 전력이 저감된 카메라를 얻을 수 있다.

[0203] 도 7은 태블릿형 단말의 일례를 나타내고, 도 7의 (A-1) 내지 도 7의 (A-3)은 태블릿형 단말(5000)을 나타내고, 도 7의 (B)는 태블릿형 단말(6000)을 나타낸다.

[0204] 도 7의 (A-1) 내지 도 7의 (A-3)에 나타내는 태블릿형 단말(5000)에서, 도 7의 (A-1)은 정면도를, 도 7의 (A-2)는 측면도를, 도 7의 (A-3)은 배면도를 각각 나타낸다. 또한, 도 7의 (B)에 나타내는 태블릿형 단말(6000)에서는 정면도를 나타낸다.

[0205] 태블릿형 단말(5000)은 하우징(5001), 표시부(5003), 전원 버튼(5005), 전면 카메라(5007), 배면 카메라(5009), 제 1 외부 접속 단자(5011), 및 제 2 외부 접속 단자(5013) 등에 의해 구성되어 있다.

[0206] 또한, 표시부(5003)는 하우징(5001)에 조립되어 있고, 터치 패널로서도 이용할 수 있다. 예를 들면, 표시부(5003) 위에 아이콘(5015) 등을 표시시켜, 메일이나, 스케줄 관리와 같은 작업을 행할 수 있다. 또한, 하우징(5001)에는 정면측에 전면 카메라(5007)가 조립되어 있어, 사용자측의 영상을 촬영할 수 있다. 또한, 하우징(5001)에는 배면측에 배면 카메라(5009)가 조립되어 있어, 사용자와 반대측의 영상을 촬영할 수 있다. 또한, 하우징(5001)에는 제 1 외부 접속 단자(5011), 및 제 2 외부 접속 단자(5013)가 구비되어 있다. 예를 들어, 제 1 외부 접속 단자(5011)에 의해 이어폰 등에 음성을 출력하고, 제 2 외부 접속 단자(5013)에 의해 데이터의 이동 등을 행할 수 있다.

[0207] 다음에, 도 7의 (B)에 나타내는 태블릿형 단말(6000)은 제 1 하우징(6001), 제 2 하우징(6003), 힌지부(6005),

제 1 표시부(6007), 제 2 표시부(6009), 전원 버튼(6011), 제 1 카메라(6013), 제 2 카메라(6015) 등에 의해 구성되어 있다.

[0208] 또한, 제 1 표시부(6007)는 제 1 하우징(6001)에 조립되어 있고, 제 2 표시부(6009)는 제 2 하우징(6003)에 조립되어 있다. 제 1 표시부(6007), 및 제 2 표시부(6009)는 예를 들면, 제 1 표시부(6007)를 표시용 패널로서 사용하고, 제 2 표시부(6009)를 터치 패널로 한다. 제 1 표시부(6007)에 표시된 텍스트 아이콘(6017)을 확인하고, 제 2 표시부(6009)에 표시시킨 아이콘(6019), 또는 키보드(6021)(실제로는 제 2 표시부(6009)에 표시된 키보드 화상)를 이용하여, 화상의 선택, 또는 문자의 입력 등을 행할 수 있다. 물론, 제 1 표시부(6007)가 터치 패널이고, 제 2 표시부(6009)가 표시용 패널로 하는 구성이나, 제 1 표시부(6007), 및 제 2 표시부(6009) 모두 터치 패널로 하는 구성으로 해도 좋다.

[0209] 또한, 제 1 하우징(6001)과 제 2 하우징(6003)은 힌지부(6005)에 의해 접속되어 있고, 제 1 하우징(6001)과 제 2 하우징(6003)을 개폐할 수 있다. 이러한 구성으로 함으로써, 태블릿형 단말(6000)을 휴대할 때, 제 1 하우징(6001)에 조립된 표시부(6007)와 제 2 하우징(6003)에 조립된 표시부(6009)를 맞춤으로써, 표시부(6007), 및 표시부(6009)의 표면(예를 들면, 플라스틱 기판 등)을 보호할 수 있으므로 적합하다.

[0210] 또한, 제 1 하우징(6001)과 제 2 하우징(6003)은 힌지부(6005)에 의해 분리할 수 있는 구성으로 해도 좋다(소위 컨버터블형). 이러한 구성으로 함으로써, 예를 들면, 제 1 하우징(6001)을 세로로 놓고, 제 2 하우징(6003)을 가로로 놓아 사용하는 등과 같이 사용 범위가 넓어지므로 적합하다.

[0211] 또한, 제 1 카메라(6013), 및 제 2 카메라(6015)에 의해, 3D 화상의 촬영을 행할 수도 있다.

[0212] 또한, 태블릿형 단말(5000), 및 태블릿형 단말(6000)은 무선으로 정보를 송수신할 수 있는 구성으로 해도 좋다. 예를 들면, 무선에 의해, 인터넷 등에 접속하고, 원하는 정보를 구입하여, 다운로드하는 구성으로 하는 것도 가능하다.

[0213] 또한, 태블릿형 단말(5000), 및 태블릿형 단말(6000)은 다양한 정보(정지 화면, 동영상, 텍스트 화상 등)를 표시하는 기능, 캘린더, 날짜 또는 시각 등을 표시부에 표시하는 기능, 표시부에 표시한 정보를 터치 입력 조작 또는 편집하는 터치 입력 기능, 다양한 소프트웨어(프로그램)에 의해 처리를 제어하는 기능 등을 가질 수 있다. 또한, 외광의 광량에 따라 표시의 휘도를 최적으로 할 수 있는 광 센서나, 자이로스코프, 가속도 센서의 기울기를 검출하는 센서 등과 같은 검출 장치를 내장시켜도 좋다.

[0214] 상기 태블릿형 단말(5000)의 표시부(5003), 태블릿형 단말(6000)의 제 1 표시부(6007), 또는/및 제 2 표시부(6009)에는 본 발명의 일 양태의 발광 장치를 적용할 수 있다. 본 발명의 일 양태의 발광 장치는 저구동 전압으로 높은 발광 효율을 얻을 수 있기 때문에, 소비 전력이 저감된 태블릿형 단말을 얻을 수 있다.

[0215] 이상과 같이, 본 발명의 일 양태의 발광 장치의 적용 범위는 매우 넓고, 이 발광 장치를 모든 분야의 전자기기에 적용하는 것이 가능하다. 본 발명의 일 양태의 발광 장치를 이용함으로써, 소비 전력이 저감된 전자기기를 얻을 수 있다.

[0216] 또한, 본 발명의 일 양태의 발광 장치는, 조명 장치로서 이용할 수도 있다. 도 8의 (A)는 본 발명의 일 양태의 발광 장치를 백 라이트로서 이용한 액정 표시 장치의 일례이다. 도 8의 (A)에 나타난 액정 표시 장치는 하우징(701), 액정층(702), 백 라이트(703), 하우징(704)을 가지고, 액정층(702)은 드라이버 IC(705)와 접속된다. 또한, 백 라이트(703)는 본 발명의 일 양태의 발광 장치가 이용되고, 단자(706)에 의해 전류가 공급된다.

[0217] 이와 같이 본 발명의 일 양태의 발광 장치를 액정 표시 장치의 백 라이트로서 이용함으로써, 저소비 전력의 백 라이트를 얻을 수 있다. 또한, 본 발명의 일 양태의 발광 장치는 면 발광의 조명 장치이며 대면적화도 가능하기 때문에, 백 라이트의 대면적화도 가능하다. 따라서, 저소비 전력이며, 대면적화된 액정 표시 장치를 얻을 수 있다.

[0218] 다음에, 도 8의 (B)는 본 발명의 일 양태의 발광 장치를 조명 장치인 전기 스탠드로서 이용한 예이다. 도 8의 (B)에 나타내는 전기 스탠드는 하우징(801)과 광원(802)을 가지고, 광원(802)으로서 본 발명의 일 양태의 발광 장치가 이용되고 있다. 저구동 전압으로 높은 전류 효율을 얻을 수 있기 때문에, 본 발명의 일 양태의 발광 장치를 적용함으로써, 저소비 전력의 전기 스탠드를 얻는 것이 가능하게 된다.

[0219] 다음에, 도 8(C)은 본 발명의 일 양태의 발광 장치를 실내의 조명 장치(901)로서 이용한 예이다. 본 발명의 일 양태의 발광 장치는 대면적화도 가능하기 때문에, 대면적의 조명 장치로서 이용할 수 있다. 또한, 본 발명의 일 양태의 발광 장치는 저구동 전압으로 높은 전류 효율을 얻을 수 있기 때문에, 본 발명의 일 양태의 발광 장

치를 적용함으로써, 저소비 전력의 조명 장치를 얻는 것이 가능하게 된다. 이와 같이, 본 발명의 일 양태의 발광 장치를 실내의 조명 장치(901)로서 이용한 방에, 도 6의 (A)에 설명한 것과 같은 본 발명의 일 양태의 텔레비전 장치(902)를 설치하여 공공 방송이나 영화를 감상할 수 있다.

[0220] 또한, 본 실시형태는 다른 실시형태와 적절히 조합하는 것이 가능하다.

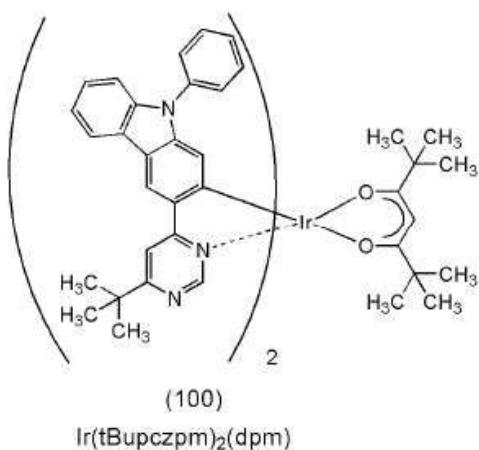
[0221] [실시예 1]

[0222] <<합성에 1>>

[0223] 본 합성에 1에서는, 실시형태 1의 구조식(100)으로 나타내어지는 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체, 비스[3-(6-tert-부틸-4-피리미디닐-κN3)-9-페닐-9H-카바졸-2-일-κC](2,2,6,6-테트라메틸-3,5-헵탄디오나토-κ²O,O') 이리듐(III)(약칭 : Ir(tBupczpm)₂(dpm))의 합성예를 구체적으로 예시한다.

[0224] <구조식(100)으로 나타내는 Ir(tBupczpm)₂(dpm)의 합성법>

[0225] 먼저, 하기 구조식(100)으로 나타내는 Ir(tBupczpm)₂(dpm)의 합성법의 일례에 대하여 설명한다.

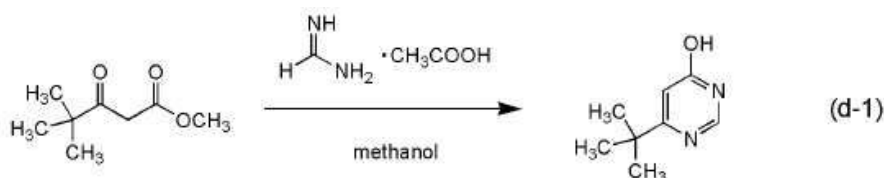


[0226]

[0227] <스텝 1; 4-tert-부틸-6-하이드록시피리미딘의 합성>

[0228] 먼저, 100 mL의 3구 플라스크에 폼아마이딘 초산염 7.2 g, 나트륨 메톡사이드 7.5 g, 메탄올 70 mL를 넣고, 이 혼합 용액에 4,4-다이메틸옥소발레르산 메틸 10 g을 첨가하여 실온에서 24시간 교반했다. 소정 시간 경과 후, 이 혼합 용액에 물 17 mL와 초산 7.2 mL의 혼합 용액을 첨가하여 실온에서 교반했다. 이 혼합물을 농축하고, 얻어진 잔사(殘渣)를 물에 용해하여 초산 에틸로 추출했다. 얻어진 추출 용액을 포화 식염수로 세정하고, 유기층에 무수 황산 마그네슘을 첨가하여 건조시켰다. 황산 마그네슘을 자연 여과로 제거하고, 여과액을 농축하여 고체를 얻었다. 이 고체를 초산 에틸로 세정하여, 4-tert-부틸-6-하이드록시피리미딘을 얻었다(백색 분말, 수율 49%). 스텝 1의 합성 스킴을 하기 (d-1)에 나타낸다.

[0229] [합성 스킴(d-1)]



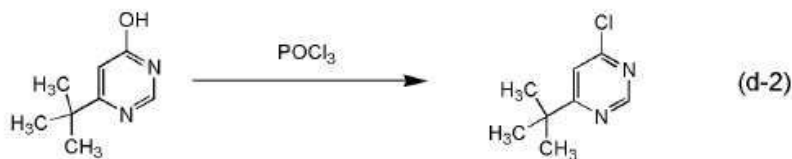
[0230]

[0231] <스텝 2; 4-tert-부틸-6-클로로피리미딘의 합성>

[0232] 다음에, 50 mL의 3구 플라스크에 상기 스텝 1에서 얻은 4-tert-부틸-6-하이드록시피리미딘 4.7 g, 염화 포스포릴 14 mL를 넣고, 1.5시간 가열 환류했다. 환류 후, 감압 하에서 염화 포스포릴을 증류 제거했다. 얻어진 잔사를 다이클로로메테인에 용해하고, 물, 포화 탄산 수소 나트륨 수용액으로 세정했다. 얻어진 유기층에 무수 황산 마그네슘을 첨가하여 건조시켰다. 황산 마그네슘을 자연 여과로 제거하고, 여과액을 농축했다. 얻어진

잔사를 헥산 : 초산 에틸 = 10 : 1을 전개 용매로 하는 실리카 겔 칼럼 크로마토그래피에 의해 정제하여, 4-tert-부틸-6-클로로피리미딘을 얻었다(백색 분말, 수율 78%). 스텝 2의 합성 스킴을 하기 (d-2)에 나타낸다.

[0233] [합성 스킴(d-2)]

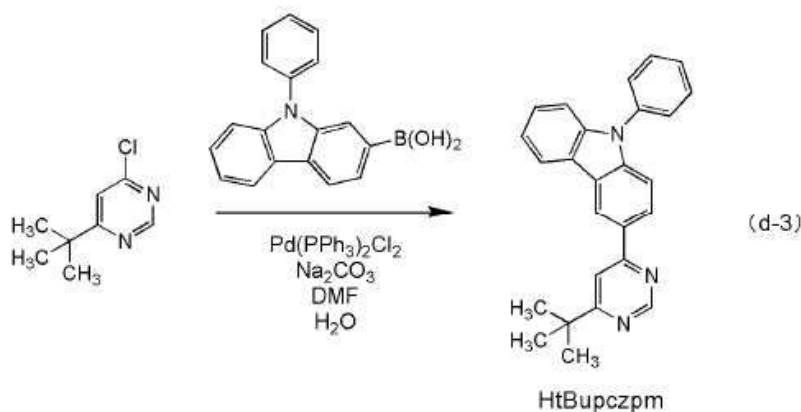


[0234]

[0235] <스텝 3 ; 4-tert-부틸-6-(9-페닐-9H-카바졸-3-일)피리미딘(약칭 : HtBupczpm)의 합성>

[0236] 다음에, 환류관을 붙인 가지형 플라스크에 상기 스텝 2에서 얻은 4-tert-부틸-6-클로로피리미딘 1.00 g과 9-페닐-9H-카바졸-3-일보론산 3.44 g, 탄산 나트륨 1.32 g, 비스(트라이페닐포스핀)팔라듐(II)다이클로라이드(약칭 : $\text{PdCl}_2(\text{PPh}_3)_2$) 0.050 g, 물 20 mL, DMF 20 mL를 넣고, 내부를 아르곤 치환했다. 이 플라스크에 마이크로파(2.45GHz, 100 W)를 60분간 조사하여 가열했다. 그 후 이 용액에 물을 첨가하여 다이클로로메테인으로 유기층을 추출했다. 얻어진 유기층을 물, 포화 식염수로 세정하고, 황산 마그네슘으로 건조했다. 건조한 후의 용액을 여과하여, 황산 마그네슘을 제거했다. 이 용액의 용매를 증류 제거한 후, 얻어진 잔사를 헥산 : 초산 에틸 = 2 : 1을 전개 용매로 하는 플래시 칼럼 크로마토그래피로 정제하여, 목적 물질인 피리미딘 유도체 HtBupczpm을 얻었다(백색 분말, 수율 95%). 또한, 마이크로파의 조사는 마이크로파 합성 장치(CEM사(CEM Corporation) 제조, Discover)를 이용했다. 스텝 3의 합성 스킴을 하기 (d-3)에 나타낸다.

[0237] [합성 스킴(d-3)]

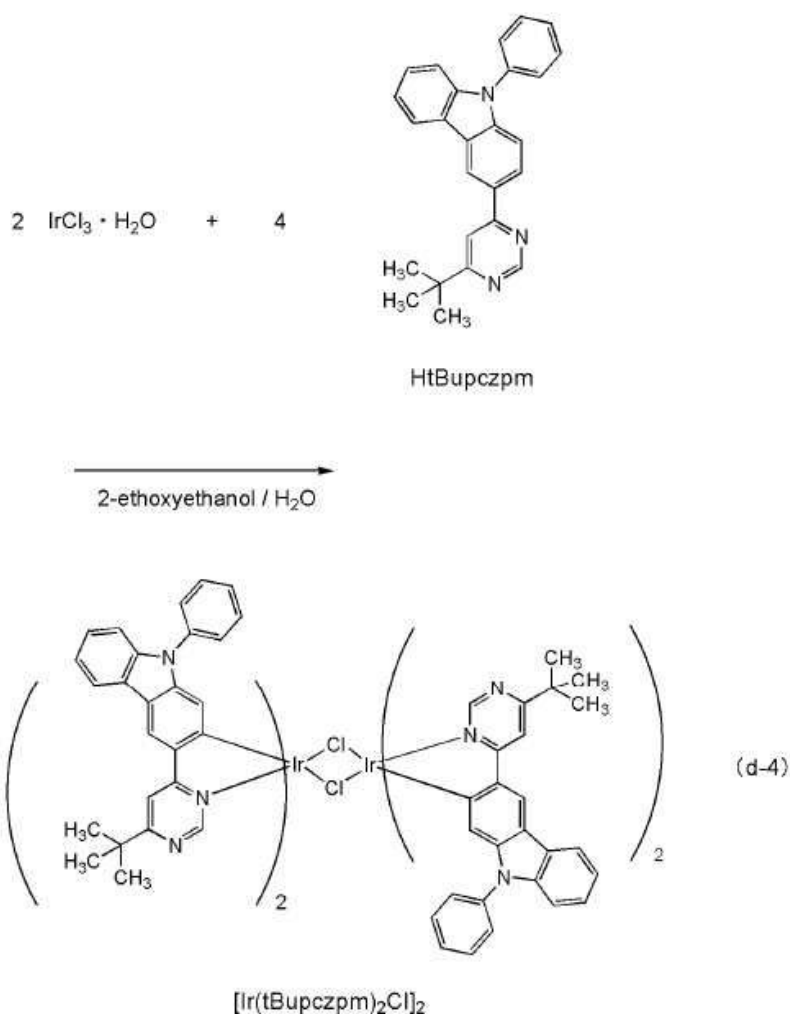


[0238]

[0239] <스텝 4 ; 다이-μ-클로로-테트라키스[3-(6-tert-부틸-4-피리미디닐-κN3)-9-페닐-9H-카바졸-2-일-κC]다이이리듐(III)(약칭 : $[\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2\text{Cl}]_2$)의 합성>

[0240] 다음에, 환류관을 붙인 가지형 플라스크에 2-에톡시에탄올 30 mL와 물 10 mL, 상기 스텝 3에서 얻은 HtBupczpm(약칭) 2.10 g, 염화 이리듐 수화물($\text{IrCl}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$)(Sigma-Aldrich사(Sigma-Aldrich Corporation) 제조) 0.80 g을 넣고, 플라스크 내를 아르곤 치환했다. 그 후, 마이크로파(2.45 GHz, 100 W)를 1시간 조사하여 반응시켰다. 용매를 증류 제거한 후, 얻어진 잔사를 에탄올로 흡인 여과, 세정하여, 복핵 착체 $[\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2\text{Cl}]_2$ 를 얻었다(녹색 분말, 수율 72%). 또한, 스텝 4의 합성 스킴을 하기 (d-4)에 나타낸다.

[0241] [합성 스킴(d-4)]

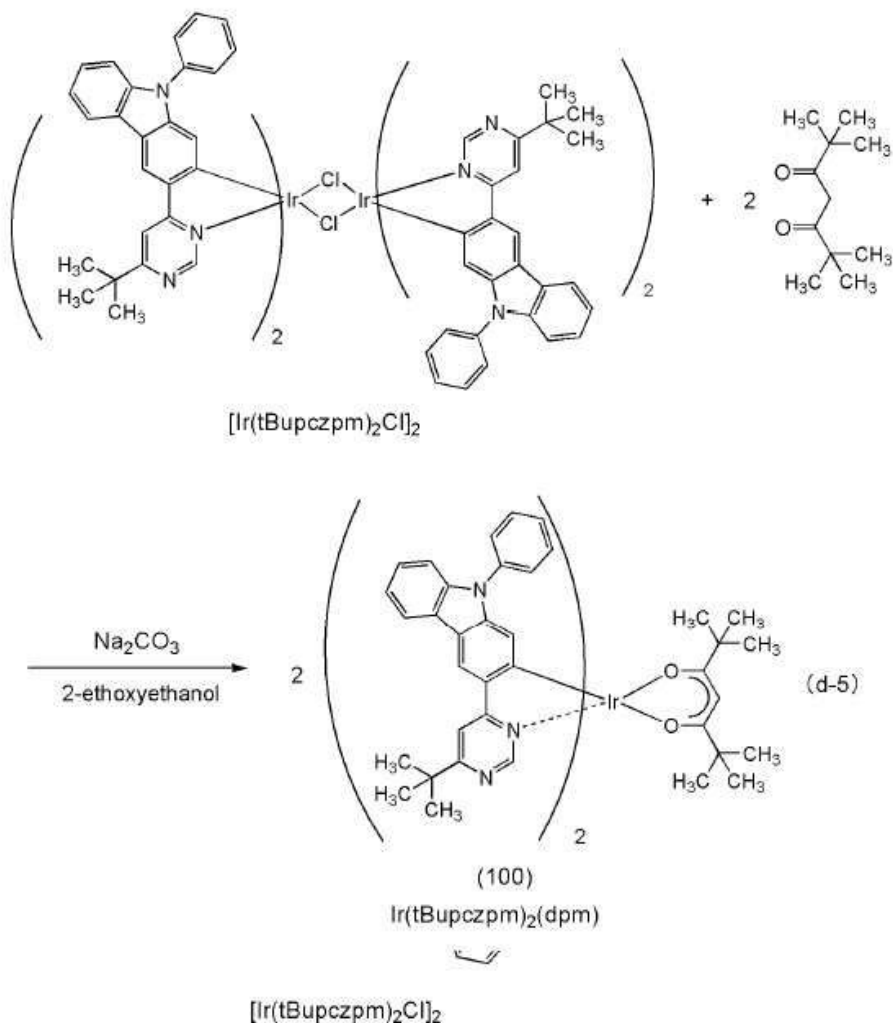


[0242]

[0243] <스텝 5 ; Ir(tBupczpm)₂(dpm)의 합성>

[0244] 또한, 환류관을 붙인 가지형 플라스크에 2-에톡시에탄올 30 mL, 상기 스텝 4에서 얻은 복핵 착체 [Ir(tBupczpm)₂Cl]₂ 0.93 g, 다이피칼로일메테인(약칭 : Hdpm) 0.26 g, 탄산 나트륨 0.50 g을 넣고, 플라스크 내를 아르곤 치환했다. 그 후, 마이크로파(2.45 GHz, 200 W)를 60분간 조사하여 가열했다. 여기서, Hdpm 0.26 g을 더 첨가하고, 플라스크에 마이크로파(2.45 GHz, 200 W)를 60분간 조사하여 가열했다. 용매를 증류 제거하고, 얻어진 잔사를 에탄올로 흡인 여과했다. 얻어진 고체를 물, 에탄올로 세정했다. 얻어진 고체를 다이클로로메테인에 녹여, 셀라이트, 알루미나, 셀라이트의 순으로 적층한 여과 보조제를 통하여 여과한 후, 다이클로로메테인과 에탄올의 혼합 용매로 재결정했다. 얻어진 고체를 헥산 : 초산 에틸 = 5 : 1을 전개 용매로 하는 플래시 칼럼 크로마토그래피에 의해 정제한 후, 다이클로로메테인과 에탄올의 혼합 용매로 재결정하여, 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체 Ir(tBupczpm)₂(dpm)을 황등색 분말로 얻었다(수율 21%). 스텝 5의 합성 스킴을 하기 (d-5)에 나타낸다.

[0245] [합성 스킴(d-5)]



[0246]

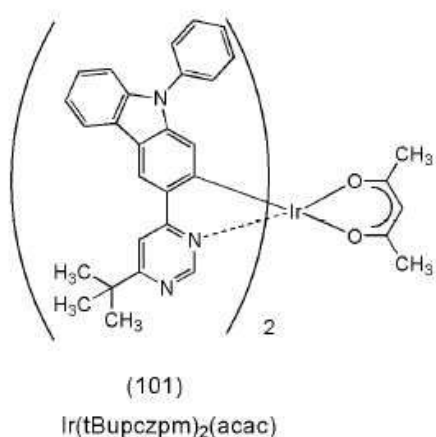
[0247] 또한, 상기 스텝 5에서 얻어진 황등색 분말의 핵자기 공명 분광법($^1\text{H-NMR}$)에 의한 분석 결과를 하기에 나타낸다. 또한, $^1\text{H-NMR}$ 차트를 도 9에 나타낸다. 이것으로부터, 본 합성예 1에서 상술한 구조식(100)으로 나타내어지는 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체 $\text{Ir(tBupczpm)}_2\text{(dpm)}$ 이 얻어진 것을 알 수 있었다.

[0248] $^1\text{H-NMR}$. δ (DMSO-d_6) : 0.87(s, 18H), 1.45(s, 18H), 5.58(s, 1H), 6.19(s, 2H), 7.18(d, 2H), 7.21(t, 2H), 7.28-7.30(m, 6H), 7.39(t, 2H), 7.50(t, 4H), 8.14(d, 2H), 8.23(s, 2H), 8.71(s, 2H), 8.94(s, 2H).

[0249] 다음에, $\text{Ir(tBupczpm)}_2\text{(dpm)}$ 의 다이클로로메테인 용액의 자외 가시 흡수 스펙트럼(이하, 간단히 "흡수 스펙트럼"이라고 함) 및 발광 스펙트럼을 측정했다. 흡수 스펙트럼의 측정에는 자외 가시 분광 광도계((주)일본 분광(Japan Spectroscopy Corporation) 제조, V550형)를 이용하고, 다이클로로메테인 용액(0.059 m mol/L)을 석영 셀에 넣어 실온에서 측정을 행하였다. 또한, 발광 스펙트럼의 측정에는 형광 광도계((주)하마마츠 포토닉스사(Hamamatsu Photonics Corporation) 제조, FS920)를 이용하고, 탈기한 다이클로로메테인 용액(0.059 m mol/L)을 석영 셀에 넣어 실온에서 측정을 행하였다. 얻어진 흡수 스펙트럼 및 발광 스펙트럼의 측정 결과도 도 10에 나타낸다. 가로축은 파장, 세로축은 흡수 강도 및 발광 강도를 나타낸다. 또한, 도 10에서 2개의 실선이 도시되어 있는데, 가는 실선은 흡수 스펙트럼을 나타내고, 굵은 실선은 발광 스펙트럼을 나타낸다. 또한, 도 10에 나타내는 흡수 스펙트럼은 다이클로로메테인 용액(0.059 m mol/L)을 석영 셀에 넣고 측정한 흡수 스펙트럼으로부터 다이클로로메테인만을 석영 셀에 넣고 측정한 흡수 스펙트럼을 뺀 결과를 나타낸다.

[0250] 도 10에 나타내는 바와 같이, 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체 $\text{Ir(tBupczpm)}_2\text{(dpm)}$ 은 549 nm에 발광 피크를 가지고 있고, 다이클로로메테인 용액으로부터는 황녹색의 발광이 관측되었다.

- [0251] 다음에, 본 실시예에서 얻어진 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{dpm})$ 을 액체 크로마토그래피 질량 분석(Liquid Chromatography Mass Spectrometry, 약칭 : LC/MS 분석)에 의해 분석했다.
- [0252] LC/MS 분석에서는 LC(액체 크로마토그래피) 분리를 워터스사(Waters Corporation) 제조, Acquity UPLC에 의해, MS 분석(질량 분석)을 워터스사 제조, Xevo G2 Tof MS에 의해 행하였다. LC 분리에서 이용한 칼럼은 Acquity UPLC BEH C8(2.1×100mm, 1.7 μm), 칼럼 온도는 40℃로 했다. 이동상은 이동상 A를 아세트나이트릴, 이동상 B를 0.1% 폼산 수용액으로 했다. 또한, 샘플은 임의의 농도의 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{dpm})$ 을 클로로폼에 용해하고, 아세트나이트릴로 희석하여 조정하고, 주입량은 5.0 μL 로 했다.
- [0253] LC 분리에는 이동상의 조성을 변화시키는 경사법(gradient method)을 이용하고, 측정 개시 후 0분에서 1분까지가 이동상 A : 이동상 B = 85 : 15, 그 후 조성을 변화시켜, 10분에서의 이동상 A와 이동상 B의 비가 이동상 A : 이동상 B = 95 : 5가 되도록 했다. 조성은 연속적으로 변화시켰다.
- [0254] MS 분석에서는, 일렉트로스프레이 이온화법(ElectroSpray Ionization, 약칭 : ESI)에 의한 이온화를 행하고, 캐필러리 전압(capillary voltage)을 3.0 kV, 샘플 콘 전압을 30 V, 검출을 포지티브 모드에서 행하였다. 또한, 측정하는 질량 범위는 $m/z = 100 \sim 1300$ 으로 했다.
- [0255] 이상의 조건 하에서 분리, 이온화된 $m/z = 1129.48$ 의 성분을 충돌실(collusion cell) 내에서 아르곤 가스에 충돌시켜 프로덕트 이온에 해리시켰다. 아르곤에 충돌시킬 때의 에너지(collusion energy)는 70 eV로 했다. 해리시킨 프로덕트 이온을 비행 시간(TOF)형 MS로 검출한 결과를 도 11에 나타낸다.
- [0256] 도 11의 결과로부터, 구조식(100)으로 나타내어지는 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체, $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{dpm})$ 은 주로 $m/z = 945.33$ 부근, $m/z = 362.17$ 부근에서 프로덕트 이온이 검출되는 것을 알 수 있었다. 또한, 도 11에 나타내는 결과는 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{dpm})$ 에 유래하는 특징적인 결과를 나타내는 것이기 때문에, 혼합물 중에 포함되는 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{dpm})$ 을 분류하는데 있어서 중요한 데이터라고 할 수 있다.
- [0257] 또한, $m/z = 945.33$ 부근의 프로덕트 이온은 구조식(100)의 화합물에서의 다이피발로일메테인이 이탈한 상태의 양이온(cation)이라고 추정되며, 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체의 특징의 하나이다.
- [0258] [실시예 2]
- [0259] <<합성예 2>>
- [0260] 본 합성예 2에서는, 실시형태 1의 구조식(101)으로 나타내어지는 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체, 비스[3-(6-tert-부틸-4-피리미디닐- κN3)-9-페닐-9H-카바졸-2-일- κC](2,4-펜탄디오나토- $\kappa^2\text{O},\text{O}'$)이리듐(III)(약칭 : $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{acac})$)의 합성예를 구체적으로 예시한다.
- [0261] <구조식(101)으로 나타내는 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{acac})$ 의 합성법>
- [0262] 먼저, 하기 구조식(101)으로 나타내는 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{acac})$ 의 합성법의 일례에 대하여 설명한다.

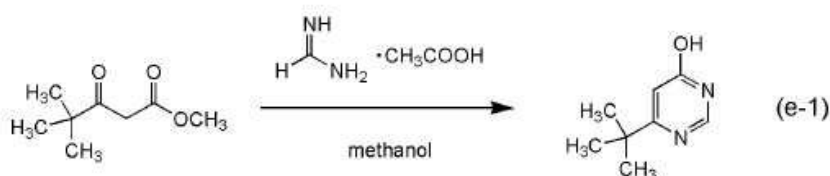


[0263]

[0264] <스텝 1; 4-tert-부틸-6-하이드록시피리미딘의 합성>

[0265] 먼저, 100 mL의 3구 플라스크에 폼아마이드인 초산염 7.2 g, 나트륨 메톡사이드 7.5 g, 메탄올 70 mL를 넣고, 이 혼합 용액에 4,4-다이메틸옥소발레르산 메틸 10 g을 첨가하여 실온에서 24시간 교반했다. 소정 시간 경과 후, 이 혼합 용액에 물 17 mL와 초산 7.2 mL의 혼합 용액을 첨가하여 실온에서 교반했다. 이 혼합물을 농축하고, 얻어진 잔사를 물에 용해하여, 초산 에틸로 추출했다. 얻어진 추출 용액을 포화 식염수로 세정하고, 유기층에 무수 황산 마그네슘을 첨가하여 건조시켰다. 황산 마그네슘을 자연 여과로 제거하고, 여과액을 농축하여 고체를 얻었다. 이 고체를 초산 에틸로 세정하여, 4-tert-부틸-6-하이드록시피리미딘을 얻었다(백색 분말, 수율 49%). 스텝 1의 합성 스킴을 하기 (e-1)에 나타낸다.

[0266] [합성 스킴(e-1)]

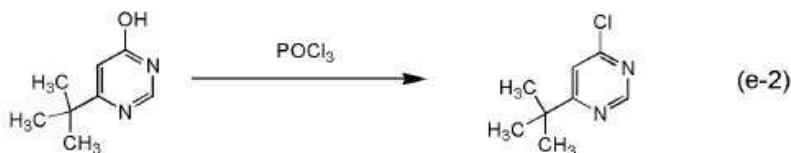


[0267]

[0268] <스텝 2; 4-tert-부틸-6-클로로피리미딘의 합성>

[0269] 다음에, 50 mL의 3구 플라스크에 상기 스텝 1에서 얻은 4-tert-부틸-6-하이드록시피리미딘 4.7 g, 염화 포스포릴 14 mL를 넣고, 1.5시간 가열 환류했다. 환류 후, 감압 하에서 염화 포스포릴을 증류 제거했다. 얻어진 잔사를 다이클로로메테인에 용해하고, 물, 포화 탄산 수소 나트륨 수용액으로 세정했다. 얻어진 유기층에 무수 황산 마그네슘을 첨가하여 건조시켰다. 황산 마그네슘을 자연 여과로 제거하고, 여과액을 농축했다. 얻어진 잔사를 헥산 : 초산 에틸 = 10 : 1을 전개 용매로 하는 실리카 겔 칼럼 크로마토그래피에 의해 정제하여, 4-tert-부틸-6-클로로피리미딘을 얻었다(백색 분말, 수율 78%). 스텝 2의 합성 스킴을 하기 (e-2)에 나타낸다.

[0270] [합성 스킴(e-2)]

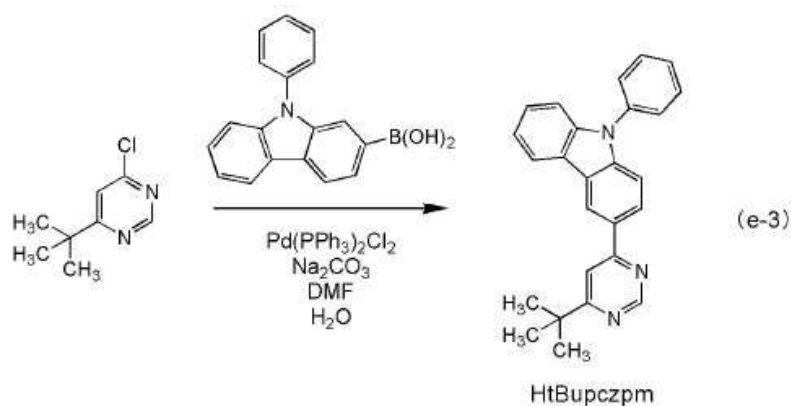


[0271]

[0272] <스텝 3; 4-tert-부틸-6-(9-페닐-9H-카바졸-3-일)피리미딘(약칭 : HtBupczpm)의 합성>

[0273] 다음에, 환류관을 붙인 가지형 플라스크에 상기 스텝 2에서 얻은 4-tert-부틸-6-클로로피리미딘 1.00 g과 9-페닐-9H-카바졸-3-일보론산 3.44 g, 탄산 나트륨 1.32 g, 비스(트라이페닐포스핀)팔라듐(II)다이클로라이드(약칭 : PdCl₂(PPh₃)₂) 0.050 g, 물 20 mL, DMF 20 mL를 넣고, 내부부를 아르곤 치환했다. 이 플라스크에 마이크로파(2.45GHz, 100 W)를 60분간 조사하여 가열했다. 그 후 이 용액에 물을 첨가하여 다이클로로메테인으로 유기층을 추출했다. 얻어진 유기층을 물, 포화 식염수로 세정하고, 황산 마그네슘으로 건조했다. 건조한 후의 용액을 여과하여, 황산 마그네슘을 제거했다. 이 용액의 용매를 증류 제거한 후, 얻어진 잔사를 헥산 : 초산 에틸 = 2 : 1을 전개 용매로 하는 플래시 칼럼 크로마토그래피로 정제하여, 목적 물질인 피리미딘 유도체 HtBupczpm을 얻었다(백색 분말, 수율 95%). 또한, 마이크로파의 조사는 마이크로파 합성 장치(CEM사 제조, Discover)를 이용했다. 스텝 3의 합성 스킴을 하기 (e-3)에 나타낸다.

[0274] [합성 스킴(e-3)]

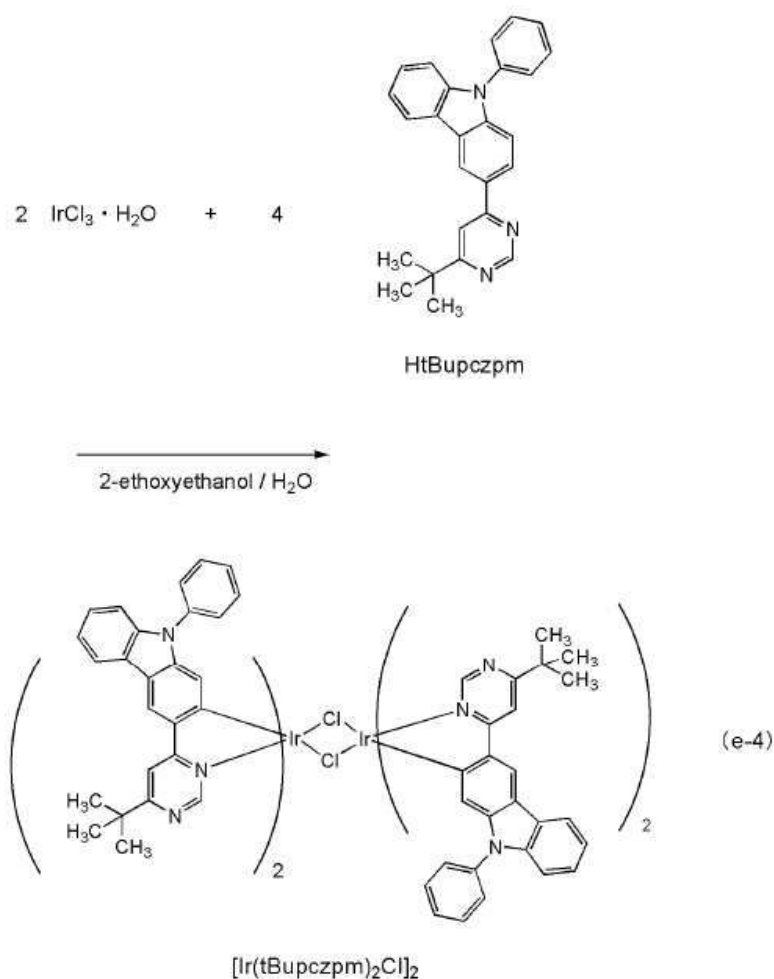


[0275]

[0276] <스텝 4 ; 다이- μ -클로로-테트라키스[3-(6-tert-부틸-4-피리미디닐- κ N3)-9-페닐-9H-카바졸-2-일- κ C]다이이리듐(III)(약칭 : $[\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2\text{Cl}]_2$)의 합성>

[0277] 다음에, 환류관을 붙인 가지형 플라스크에 2-에톡시에탄올 30 mL와 물 10 mL, 상기 스텝 3에서 얻은 HtBupczpm (약칭) 2.10 g, 염화 이리듐 수화물($\text{IrCl}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$)(Sigma-Aldrich사 제조) 0.80 g을 넣고, 플라스크 내를 아르곤 치환했다. 그 후, 마이크로파(2.45 GHz, 100 W)를 1시간 조사하여 반응시켰다. 용매를 증류 제거한 후, 얻어진 잔사를 에탄올로 흡인 여과, 세정하여, 복핵 착체 $[\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2\text{Cl}]_2$ 를 얻었다(녹색 분말, 수율 72%). 스텝 4의 합성 스킴을 하기 (e-4)에 나타낸다.

[0278] [합성 스킴(e-4)]

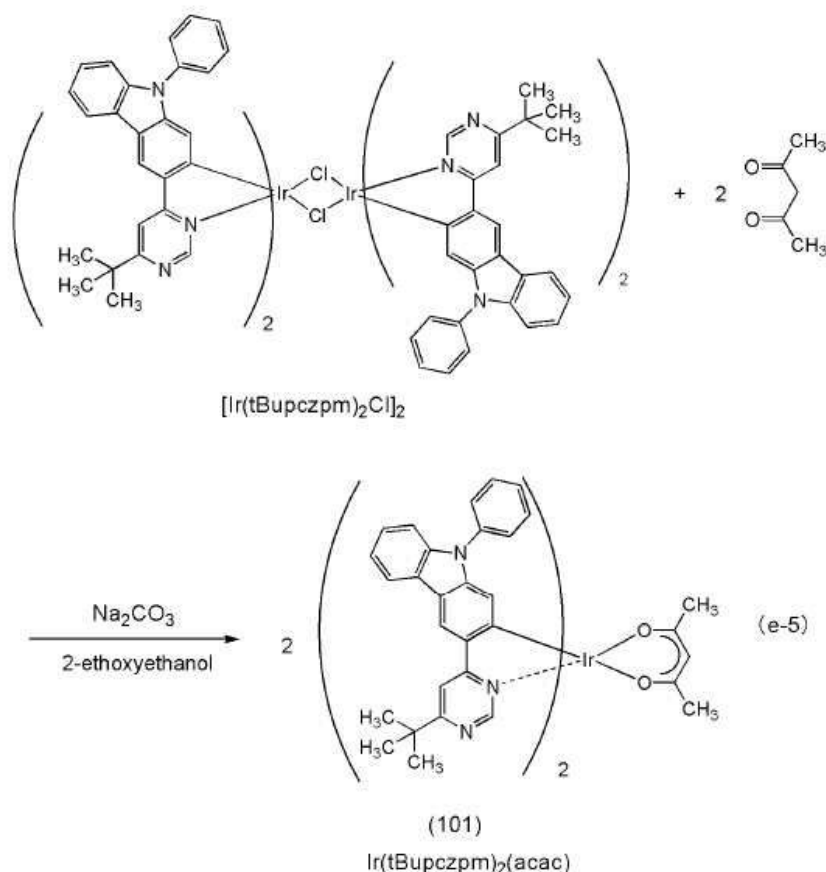


[0279]

[0280] <스텝 5 ; Ir(tBupczpm)₂(acac)의 합성>

[0281] 또한, 환류관을 붙인 가지형 플라스크에 2-에톡시에탄올 30 mL, 상기 스텝 4에서 얻은 복핵 착체 [Ir(tBupczpm)₂Cl]₂ 0.99 g, 아세틸아세톤(약칭 : Hacac) 0.15 g, 탄산 나트륨 0.53 g을 넣고, 플라스크 내를 아르곤 치환했다. 그 후, 마이크로파(2.45 GHz, 120 W)를 60분간 조사하여 가열했다. 여기서, Hacac 0.15 g을 더 첨가하고, 플라스크에 마이크로파(2.45 GHz, 120 W)를 60분간 조사하여 가열했다. 용매를 증류 제거하여, 얻어진 잔사를 에탄올로 흡인 여과했다. 얻어진 고체를 물, 에탄올로 세정했다. 얻어진 고체를 다이클로로메테인에 녹여, 셀라이트, 알루미나, 셀라이트의 순으로 적층한 여과 보조제를 통해 여과했다. 얻어진 고체를 다이클로로메테인 : 초산 에틸 = 10 : 1을 전개 용매로 하는 플래시 칼럼 크로마토그래피에 의해 여과액을 농축하여 정제한 후, 다이클로로메테인과 에탄올의 혼합 용매로 재결정하여, 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체 Ir(tBupczpm)₂(acac)를 황색 분말로서 얻었다(수율 22%). 스텝 5의 합성 스킴을 하기 (e-5)에 나타낸다.

[0282] [합성 스킴(e-5)]



[0283]

[0284] 또한, 상기 스텝 5에서 얻어진 황색 분말의 핵자기 공명 분광법($^1\text{H-NMR}$)에 의한 분석 결과를 하기에 나타낸다. 또한, $^1\text{H-NMR}$ 차트를 도 12에 나타낸다. 이것으로부터, 본 합성에 2에서 상술한 구조식(101)으로 나타내어지는 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{acac})$ 가 얻어진 것을 알 수 있었다.

[0285] $^1\text{H-NMR}$. δ (DMSO-d_6) : 1.46(s, 18H), 1.75(s, 6H), 5.32(s, 1H), 6.07(s, 2H), 7.14(d, 2H), 7.20(t, 2H), 7.27-7.30(m, 6H), 7.40(t, 2H), 7.51(t, 4H), 8.14(d, 2H), 8.23(s, 2H), 8.83(s, 2H), 8.92(s, 2H).

[0286] 다음에, $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{acac})$ 의 다이클로로메테인 용액의 자외 가시 흡수 스펙트럼(흡수 스펙트럼) 및 발광 스펙트럼을 측정했다. 흡수 스펙트럼 및 발광 스펙트럼의 측정에 대해서는, 실시예 1과 같은 장치 및 같은 방법으로 했다. 얻어진 흡수 스펙트럼 및 발광 스펙트럼의 측정 결과를 도 13에 나타낸다. 가로축은 파장, 세로축은 흡수 강도 및 발광 강도를 나타낸다. 또한, 도 13에서 2개의 실선이 도시되어 있는데, 가는 실선은 흡수 스펙트럼을 나타내고, 굵은 실선은 발광 스펙트럼을 나타낸다. 또한, 도 13에 나타내는 흡수 스펙트럼은 다이클로로메테인 용액(0.064 m mol/L)을 석영 셀에 넣고 측정한 흡수 스펙트럼으로부터 다이클로로메테인만을 석영 셀에 넣고 측정한 흡수 스펙트럼을 뺀 결과를 나타낸다.

[0287] 도 13에 나타낸 바와 같이, 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{acac})$ 는 539 nm에 발광 피크를 가지고 있고, 다이클로로메테인 용액으로부터는 황녹색의 발광이 관측되었다.

[0288] 다음에, 본 실시예에서 얻어진 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{acac})$ 를 LC/MS 분석에 의해 분석했다.

[0289] LC/MS 분석에서는 실시예 1과 같은 측정 장치 및 같은 측정 방법을 이용했다. 또한, 샘플은 임의의 농도의 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{acac})$ 를 클로로폼에 용해하고, 아세트나이트릴로 희석하여 조정하고, 주입량은 5.0 μL 로 했다.

[0290] LC 분리에는 이동상의 조성을 변화시키는 경사법을 이용하고, 측정 개시 후 0분에서 1분까지가 이동상 A : 이동상 B = 75 : 25, 그 후 조성을 변화시켜, 10분에서의 이동상 A와 이동상 B와의 비가 이동상 A : 이동상 B = 95 : 5

가 되도록 했다. 조성은 연속적으로 변화시켰다. MS 분석에서는 ESI에 의한 이온화를 행하고, 캐필러리 전압을 3.0 kV, 샘플 콘 전압을 30 V, 검출을 포지티브 모드에서 행하였다. 또한, 측정하는 질량 범위는 $m/z = 100 \sim 1200$ 으로 했다.

[0291] 이상의 조건 하에서 분리, 이온화된 $m/z = 1044.40$ 의 성분을 충돌실(collision cell) 내에서 아르곤 가스에 충돌시켜 프로덕트 이온에 해리시켰다. 아르곤에 충돌시킬 때의 에너지(collision energy)는 30 eV로 했다. 해리시킨 프로덕트 이온을 비행 시간(TOF)형 MS로 검출한 결과를 도 14에 나타낸다.

[0292] 도 14의 결과로부터, 구조식(101)으로 나타내어지는 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체, $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{acac})$ 는 주로 $m/z = 945.35$ 부근에 프로덕트 이온이 검출되는 것을 알 수 있었다. 또한, 도 14에 나타내는 결과는 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{acac})$ 에 유래하는 특징적인 결과를 나타내는 것이므로, 혼합물 중에 포함되는 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{acac})$ 를 분류하는데 있어서 중요한 데이터라고 할 수 있다.

[0293] 또한, $m/z = 945.35$ 부근의 프로덕트 이온은 구조식(101)의 화합물에서의 아세틸아세톤이 이탈한 상태의 양이온이라고 추정되고, 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체의 특징의 하나이다.

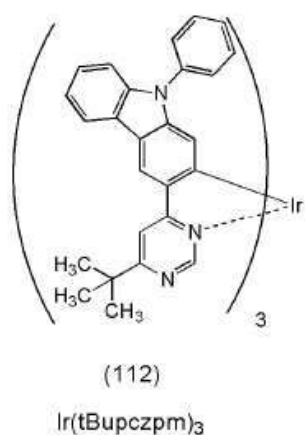
[0294] [실시예 3]

[0295] <<합성예 3>>

[0296] 본 합성예 3에서는, 실시형태 1의 구조식(112)으로 나타내어지는 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체, 트리스[3-(6-tert-부틸-4-피리미딘- κ N3)-9-페닐-9H-카바졸-2-일- κ C]}이리듐(III)(약칭: $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_3$)의 합성예를 구체적으로 예시한다.

[0297] <구조식(112)으로 나타내는 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_3$ 의 합성법>

[0298] 먼저, 하기 구조식(112)으로 나타내는 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_3$ 의 합성법의 일례에 대하여 설명한다.

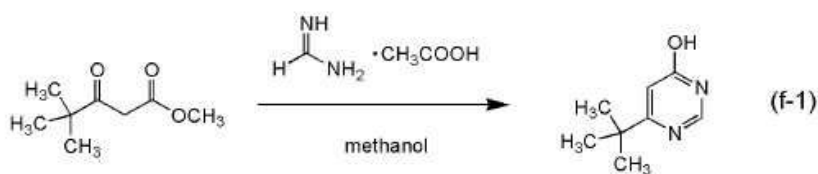


[0299]

[0300] <스텝 1; 4-tert-부틸-6-하이드록시피리미딘의 합성>

[0301] 먼저, 100 mL의 3구 플라스크에 폼아마이딘 초산염 7.2 g, 나트륨 메톡사이드 7.5 g, 메탄올 70 mL를 넣고, 이 혼합 용액에 4,4-다이메틸옥소발레르산 메틸 10 g을 첨가하여 실온에서 24시간 교반했다. 소정 시간 경과 후, 이 혼합 용액에 물 17 mL와 초산 7.2 mL의 혼합 용액을 첨가하여 실온에서 교반했다. 이 혼합물을 농축하고, 얻어진 잔사를 물에 용해하여, 초산 에틸로 추출했다. 얻어진 추출 용액을 포화 식염수로 세정하고, 유기층에 무수 황산 마그네슘을 첨가하여 건조시켰다. 황산 마그네슘을 자연 여과로 제거하고, 여과액을 농축하여 고체를 얻었다. 이 고체를 초산 에틸로 세정하여, 4-tert-부틸-6-하이드록시피리미딘을 얻었다(백색 분말, 수율 49%). 스텝 1의 합성 스킴을 하기 (f-1)에 나타낸다.

[0302] [합성 스킴(f-1)]

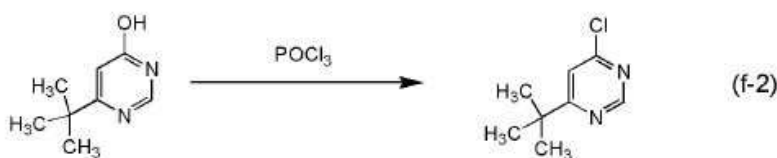


[0303]

[0304] <스텝 2 ; 4-tert-부틸-6-클로로피리미딘의 합성>

[0305] 다음에, 50 mL의 3구 플라스크에 상기 스텝 1에서 얻은 4-tert-부틸-6-하이드록시피리미딘 4.7 g, 염화 포스포릴 14 mL를 넣고, 1.5시간 가열 환류했다. 환류 후, 감압 하에서 염화 포스포릴을 증류 제거했다. 얻어진 잔사를 다이클로로메테인에 용해하고, 물, 포화 탄산 수소 나트륨 수용액으로 세정했다. 얻어진 유기층에 무수 황산 마그네슘을 첨가하여 건조시켰다. 황산 마그네슘을 자연 여과로 제거하고, 여과액을 농축했다. 얻어진 잔사를 헥산 : 초산 에틸 = 10 : 1을 전개 용매로 하는 실리카 겔 칼럼 크로마토그래피에 의해 정제하여, 4-tert-부틸-6-클로로피리미딘을 얻었다(백색 분말, 수율 78%). 스텝 2의 합성 스킴을 하기 (f-2)에 나타낸다.

[0306] [합성 스킴(f-2)]

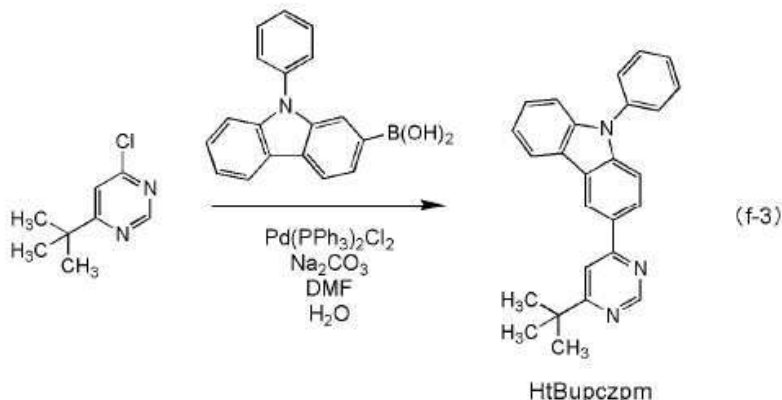


[0307]

[0308] <스텝 3 ; 4-tert-부틸-6-(9-페닐-9H-카바졸-3-일)피리미딘(약칭 : HtBupczpm)의 합성>

[0309] 다음에, 환류관을 붙인 가지형 플라스크에 상기 스텝 2에서 얻은 4-tert-부틸-6-클로로피리미딘 1.00 g과 9-페닐-9H-카바졸-3-일보론산 3.44 g, 탄산 나트륨 1.32 g, 비스(트라이페닐포스핀)팔라듐(II)다이클로라이드(약칭 : PdCl₂(PPh₃)₂) 0.050 g, 물 20 mL, DMF 20 mL를 넣고, 내부부를 아르곤 치환했다. 이 플라스크에 마이크로파(2.45GHz, 100 W)를 60분간 조사하여 가열했다. 그 후 이 용액에 물을 첨가하여 다이클로로메테인으로 유기층을 추출했다. 얻어진 유기층을 물, 포화 식염수로 세정하고, 황산 마그네슘으로 건조했다. 건조한 후의 용액을 여과하여, 황산 마그네슘을 제거했다. 이 용액의 용매를 증류 제거한 후, 얻어진 잔사를 헥산 : 초산 에틸 = 2 : 1을 전개 용매로 하는 플래시 칼럼 크로마토그래피로 정제하고, 목적 물질인 피리미딘 유도체 HtBupczpm을 얻었다(백색 분말, 수율 95%). 또한, 마이크로파의 조사는 마이크로파 합성 장치(CEM사 제조, Discover)를 이용했다. 스텝 3의 합성 스킴을 하기 (f-3)에 나타낸다.

[0310] [합성 스킴(f-3)]

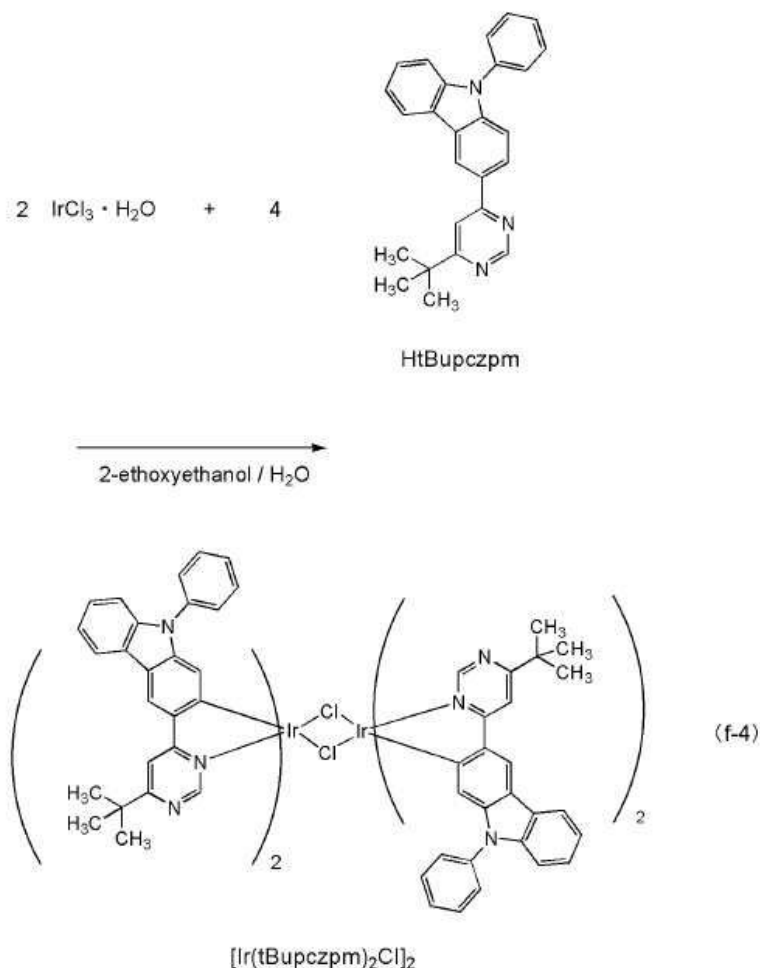


[0311]

[0312] <스텝 4 ; 다이-μ-클로로-테트라키스[3-(6-tert-부틸-4-피리미디닐-κN3)-9-페닐-9H-카바졸-2-일-κC]다이리듐(III)(약칭 : [Ir(tBupczpm)₂Cl]₂)의 합성>

[0313] 다음에, 환류관을 붙인 가지형 플라스크에 2-에톡시에탄올 30 mL와 물 10 mL, 상기 스텝 3에서 얻은 HtBupczpm 2.10 g, 염화 이리듐 수화물($\text{IrCl}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$) (Sigma-Aldrich사 제조) 0.80 g을 넣고, 플라스크 내를 아르곤 치환했다. 그 후, 마이크로파(2.45 GHz, 100 W)를 1시간 조사하여 반응시켰다. 용매를 증류 제거한 후, 얻어진 잔사를 에탄올로 흡인 여과, 세정하여, 복핵 착체 $[\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2\text{Cl}]_2$ 를 얻었다(녹색 분말, 수율 72%). 또한, 스텝 4의 합성 스킴을 하기 (f-4)에 나타낸다.

[0314] [합성 스킴(f-4)]

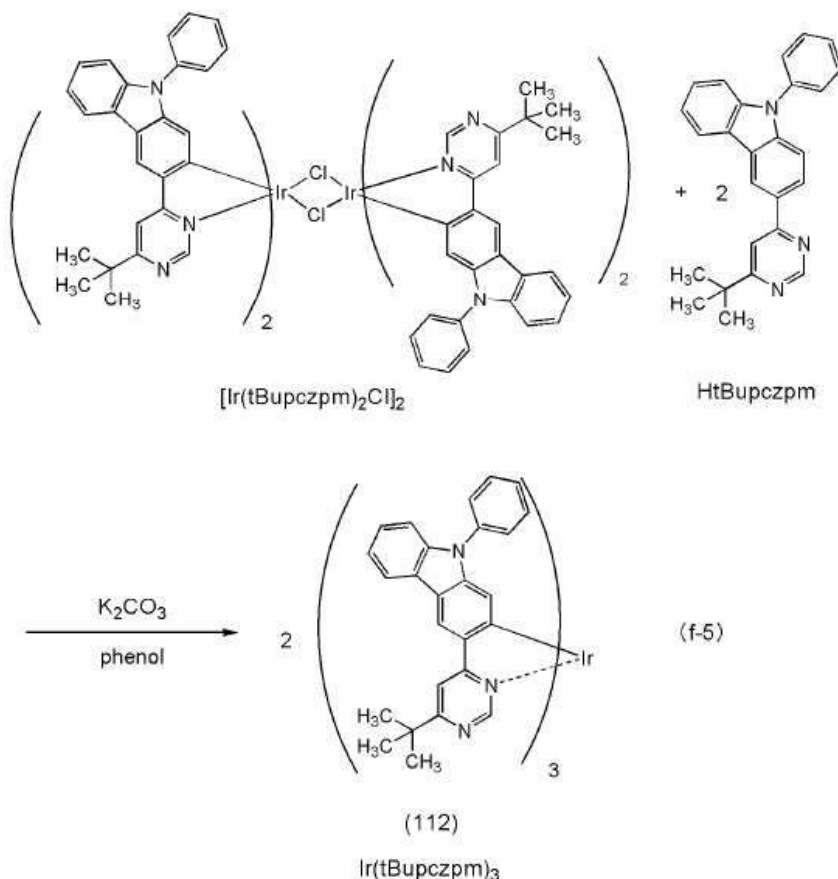


[0315]

[0316] <스텝 5 ; $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_3$ 의 합성>

[0317] 또한, 환류관을 붙인 100 mL의 3구 플라스크에 페놀 10 g, 상기 스텝 4에서 얻은 복핵 착체 $[\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2\text{Cl}]_2$ 1.07 g, HtBupczpm 1.06 g, 탄산 칼륨 0.77 g을 넣고, 플라스크 내를 질소 치환했다. 그 후, 185°C에서 9시간 가열하여 반응시켰다. 얻어진 잔사를 메탄올 중에서 초음파로 조사하고, 흡인 여과했다. 얻어진 고체를 다이클로로메테인에 용해시키고, 물, 포화 식염수로 세정했다. 얻어진 유기층을 황산 마그네슘으로 건조시키고, 건조한 후의 용액을 여과하여, 황산 마그네슘을 제거했다. 이 용액의 용매를 증류 제거한 후, 얻어진 잔사를 다이클로로메테인에 용해시키고, 셀라이트/알루미나/셀라이트로 여과한 후, 다이클로로메테인과 에탄올의 혼합 용매로 재결정하여, 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_3$ 을 황색 분말로 얻었다(수율 74%). 스텝 5의 합성 스킴을 하기 (f-5)에 나타낸다.

[0318] [합성 스킴 (f-5)]



[0319]

[0320] 또한, 상기 스텝 5에서 얻어진 황색 분말의 핵자기 공명 분광법($^1\text{H-NMR}$)에 의한 분석 결과를 하기에 나타낸다. 또한, $^1\text{H-NMR}$ 차트를 도 15에 나타낸다. 이것으로부터, 본 합성에 3에서 상술한 구조식(112)으로 나타내어지는 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체 Ir(tBupczpm)_3 가 얻어진 것을 알 수 있었다.

[0321] $^1\text{H-NMR}$. δ (CD_2Cl_2) : 1.39(s, 27H), 6.41(t, 3H), 6.50(s, 3H), 6.67(t, 6H), 6.93(d, 6H), 7.27(t, 3H), 7.32-7.37(m, 6H), 7.93(s, 3H), 8.10(d, 3H), 8.50(s, 3H), 8.54(s, 3H).

[0322] 다음에, Ir(tBupczpm)_3 의 다이클로로메테인 용액의 자외 가시 흡수 스펙트럼(흡수 스펙트럼) 및 발광 스펙트럼을 측정했다. 흡수 스펙트럼 및 발광 스펙트럼의 측정에 대해서는, 실시예 1과 같은 장치 및 같은 방법으로 했다. 얻어진 흡수 스펙트럼 및 발광 스펙트럼의 측정 결과를 도 16에 나타낸다. 가로축은 파장, 세로축은 흡수 강도 및 발광 강도를 나타낸다. 또한, 도 16에서 2개의 실선이 도시되어 있는데, 가는 실선은 흡수 스펙트럼을 나타내고, 굵은 실선은 발광 스펙트럼을 나타낸다. 도 16에 나타내는 흡수 스펙트럼은 다이클로로메테인 용액(0.055 mmol/L)을 석영 셀에 넣고 측정한 흡수 스펙트럼으로부터 다이클로로메테인만을 석영 셀에 넣고 측정한 흡수 스펙트럼을 뺀 결과를 나타낸다.

[0323] 도 16에 나타낸 바와 같이, 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체 Ir(tBupczpm)_3 은 534 nm에 발광 피크를 가지며, 다이클로로메테인 용액으로부터는 녹색의 발광이 관측되었다.

[0324] 다음에, 본 실시예에서 얻어진 Ir(tBupczpm)_3 을 LC/MS 분석에 의해 분석했다.

[0325] LC/MS 분석에서는 실시예 1과 같은 측정 장치 및 같은 측정 방법을 이용했다. 또한, 샘플은 임의의 농도의 Ir(tBupczpm)_3 을 클로로폼에 용해하고, 아세트나이트릴로 희석하여 조정하고, 주입량은 $5.0 \mu\text{L}$ 로 했다.

[0326] LC 분리에는 이동상의 조성을 변화시키는 경사법을 이용하고, 측정 개시 후 0분에서 1분까지가 이동상 A : 이동상 B = 70 : 30, 그 후 조성을 변화시켜, 10분에서의 이동상 A와 이동상 B와의 비가 이동상 A : 이동상 B = 95 : 5

가 되도록 했다. 조성은 연속적으로 변화시켰다. MS 분석에서는 ESI에 의한 이온화를 행하고, 캐필러리 전압을 3.0 kV, 샘플 콘 전압을 30 V, 검출을 포지티브 모드에서 행하였다. 또한, 측정하는 질량 범위는 $m/z = 100 \sim 1500$ 으로 했다.

[0327] 이상의 조건 하에서 분리, 이온화된 $m/z = 1321.51$ 의 성분을 충돌실(collusion cell) 내에서 아르곤 가스에 충돌시켜 프로덕트 이온에 해리시켰다. 아르곤에 충돌시킬 때의 에너지(collusion energy)는 70 eV로 했다. 해리시킨 프로덕트 이온을 비행 시간(TOF)형 MS로 검출한 결과를 도 17에 나타낸다.

[0328] 도 17의 결과로부터, 구조식(112)으로 나타내어지는 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체, $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_3$ 은 주로 $m/z = 945.33$ 부근, $m/z = 362.17$ 부근에 프로덕트 이온이 검출되는 것을 알 수 있었다. 또한, 도 17에 나타내는 결과는 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_3$ 에 유래하는 특징적인 결과를 나타내는 것이므로, 혼합물 중에 포함되는 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_3$ 을 분류하는데 있어서 중요한 데이터라고 할 수 있다.

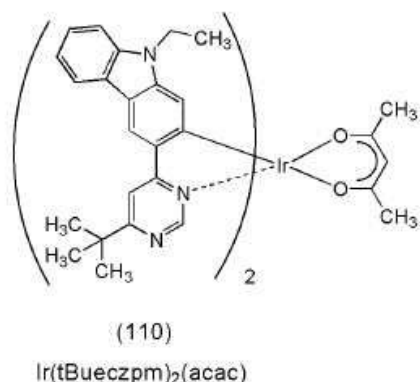
[0329] [실시에 4]

[0330] <합성에 4>

[0331] 본 합성에 4에서는 실시형태 1의 구조식(110)으로 나타내어지는 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체, 비스[3-(6-tert-부틸-4-피리미딜-κN3)-9-에틸-9H-카바졸-2-일-κC](2,4-펜탄디오나토-κ²O,O')이리듐(III)(약칭: $\text{Ir}(\text{tBueczpm})_2(\text{acac})$)의 합성예를 구체적으로 예시한다.

[0332] <구조식(110)으로 나타내는 $\text{Ir}(\text{tBueczpm})_2(\text{acac})$ 의 합성법>

[0333] 먼저, 하기 구조식(110)으로 나타내는 $\text{Ir}(\text{tBueczpm})_2(\text{acac})$ 의 합성법의 일례에 대하여 설명한다.

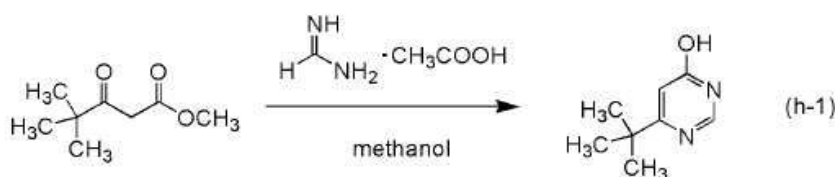


[0334]

[0335] <스텝 1: 4-tert-부틸-6-하이드록시피리미딘의 합성>

[0336] 먼저, 100 mL의 3구 플라스크에 폼아마이딘 초산염 7.2 g, 나트륨 메톡사이드 7.5 g, 메탄올 70 mL를 넣고, 이 혼합 용액에 4,4-다이메틸옥소발레르산 메틸 10 g을 첨가하여 실온에서 24시간 교반했다. 소정 시간 경과 후, 이 혼합 용액에 물 17 mL와 초산 7.2 mL의 혼합 용액을 첨가하여 실온에서 교반했다. 이 혼합물을 농축하고, 얻어진 잔사를 물에 용해하여, 초산 에틸로 추출했다. 얻어진 추출 용액을 포화 식염수로 세정하고, 유기층에 무수 황산 마그네슘을 첨가하여 건조시켰다. 황산 마그네슘을 자연 여과로 제거하고, 여과액을 농축하여 고체를 얻었다. 이 고체를 초산 에틸로 세정하고, 4-tert-부틸-6-하이드록시피리미딘을 얻었다(백색 분말, 수율 49%). 스텝 1의 합성 스킴을 하기 (h-1)에 나타낸다.

[0337] [합성 스킴(h-1)]

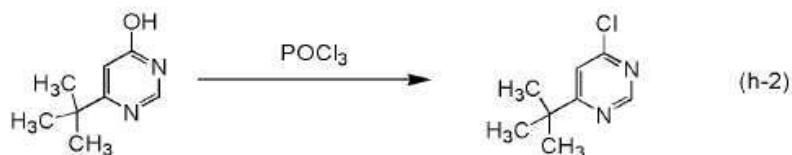


[0338]

[0339] <스텝 2 ; 4-tert-부틸-6-클로로피리미딘의 합성>

[0340] 다음에, 50 mL의 3구 플라스크에 상기 스텝 1에서 얻은 4-tert-부틸-6-하이드록시피리미딘 4.7 g, 염화 포스포릴 14 mL를 넣고, 1.5시간 가열 환류했다. 환류 후, 감압 하에서 염화 포스포릴을 증류 제거했다. 얻어진 잔사를 다이클로로메테인에 용해하고, 물, 포화 탄산 수소 나트륨 수용액으로 세정했다. 얻어진 유기층에 무수 황산 마그네슘을 첨가하여 건조시켰다. 황산 마그네슘을 자연 여과로 제거하고, 여과액을 농축했다. 얻어진 잔사를 헥산 : 초산 에틸 = 10 : 1을 전개 용매로 하는 실리카 겔 칼럼 크로마토그래피에 의해 정제하여, 4-tert-부틸-6-클로로피리미딘을 얻었다(백색 분말, 수율 78%). 스텝 2의 합성 스킴을 하기 (h-2)에 나타낸다.

[0341] [합성 스킴(h-2)]

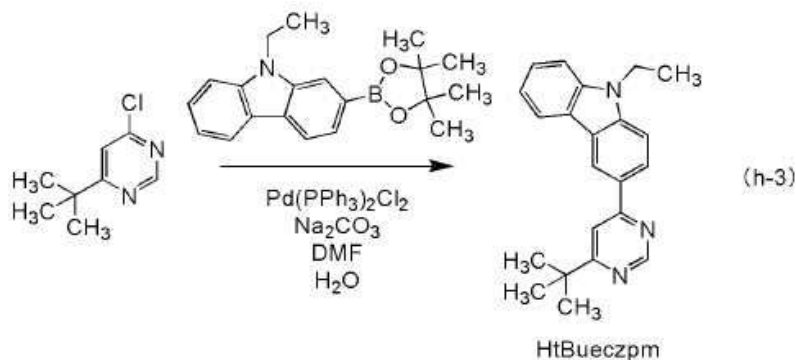


[0342]

[0343] <스텝 3 ; 4-tert-부틸-6-(9-에틸-9H-카바졸-3-일)피리미딘(약칭 : HtBueczpm)의 합성>

[0344] 다음에, 환류관을 붙인 100 mL의 둥근 바닥 플라스크에 상기 스텝 2에서 얻은 4-tert-부틸-6-클로로피리미딘 2.21 g과 9-에틸-9H-카바졸-3-보론산 피나콜 에스터 4.97 g, 1M 초산 칼륨 수용액 20 mL, 1M 탄산 나트륨 수용액 20 mL, 아세토나이트릴 50 mL를 넣고, 플라스크 내를 아르곤 치환했다. 이 혼합물에 테트라키스(트라이페닐 포스핀)팔라듐(0) 0.78 g을 첨가하고, 플라스크에 마이크로파(2.45GHz, 400 W)를 2시간 조사하여 가열했다. 그 후, 이 용액에 물을 첨가하여 다이클로로메테인으로 유기층을 추출했다. 얻어진 유기층을 물, 포화 식염수로 세정하고, 황산 마그네슘으로 건조했다. 건조한 후의 용액을 여과하여, 황산 마그네슘을 제거했다. 이 용액의 용매를 증류 제거한 후, 톨루엔 : 초산 에틸 = 4 : 1을 전개 용매로 하는 실리카 겔 칼럼 크로마토그래피로 얻어진 잔사를 정제하여, 목적 물질인 피리미딘 유도체 HtBueczpm을 얻었다(담황색 분말, 수율 71%). 또한, 마이크로파의 조사는 마이크로파 합성 장치(MILESTONE사(MILESTONE Inc.) 제조, MicroSYNTH)를 이용했다. 스텝 3의 합성 스킴을 하기 (h-3)에 나타낸다.

[0345] [합성 스킴(h-3)]

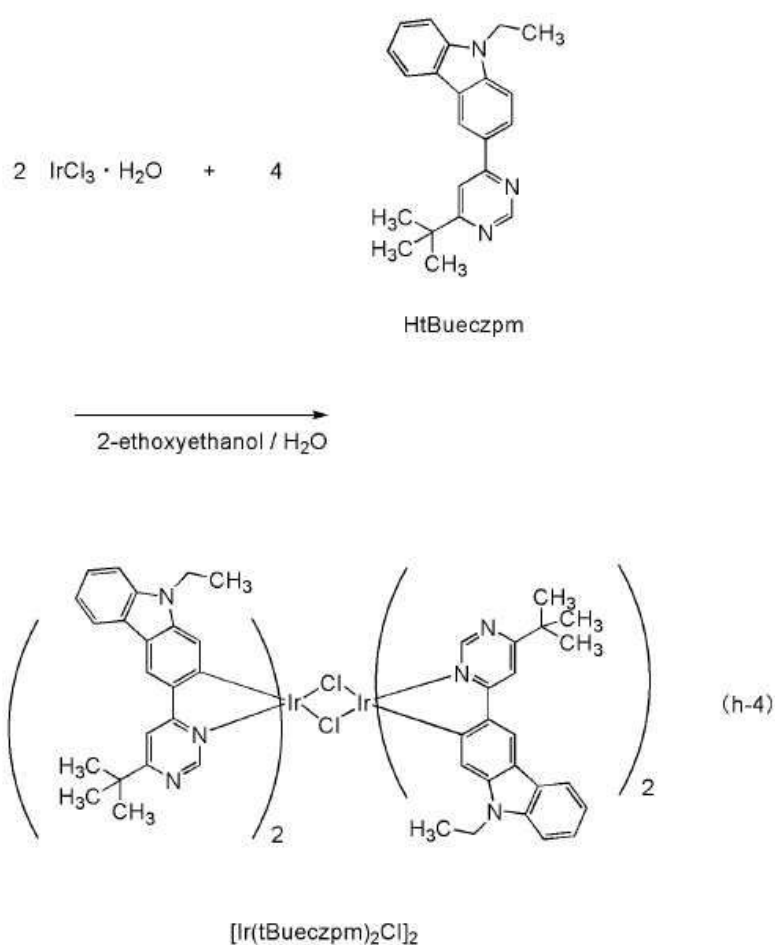


[0346]

[0347] <스텝 4 ; 다이-μ-클로로-테트라키스[3-(6-tert-부틸-4-피리미디닐-κN3)-9-에틸-9H-카바졸-2-일-κC]다이이리듐(III)(약칭 : [Ir(tBueczpm)2Cl]2)의 합성>

[0348] 다음에, 환류관을 붙인 가지형 플라스크에 2-에톡시에탄올 30 mL와 물 10 mL, 상기 스텝 3에서 얻은 HtBueczpm 1.96 g, 염화 이리듐 수화물(IrCl3 · H2O)(Sigma-Aldrich사 제조) 0.90 g을 넣고, 플라스크 내를 아르곤 치환했다. 그 후, 마이크로파(2.45 GHz, 100 W)를 1시간 조사하여 반응시켰다. 용매를 증류 제거한 후, 얻어진 잔사를 에탄올로 흡인 여과, 세정하여, 복핵 착체 [Ir(tBueczpm)2Cl]2를 얻었다(갈색 분말, 수율 68%). 또한, 스텝 4의 합성 스킴을 하기 (h-4)에 나타낸다.

[0349] [합성 스킴(h-4)]

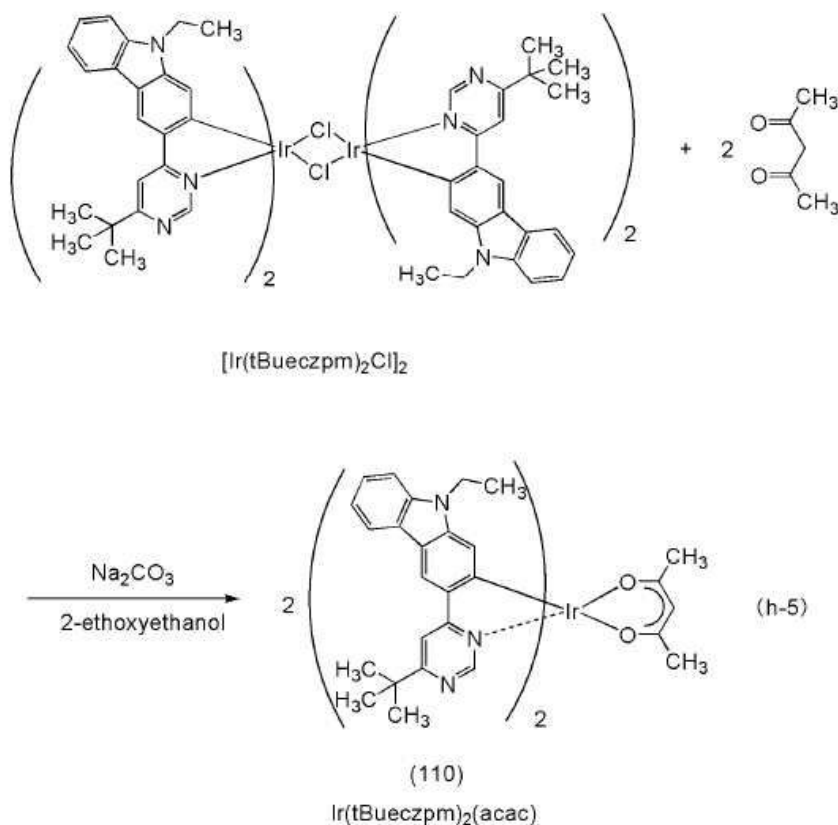


[0350]

[0351] <스텝 5 ; Ir(tBueczpm)₂(acac)의 합성>

[0352] 또한, 환류관을 붙인 가지형 플라스크에 2-에톡시에탄올 20 mL, 상기 스텝 4에서 얻은 복핵 착체 $[\text{Ir}(\text{tBueczpm})_2\text{Cl}]_2$ 0.88 g, 아세틸아세톤(약칭 : Hacac) 0.15 g, 탄산 나트륨 0.53 g을 넣고, 플라스크 내를 아르곤 치환했다. 그 후, 마이크로파(2.45 GHz, 120 W)를 60분간 조사하여 가열했다. 용매를 증류 제거하여, 얻어진 잔사를 에탄올로 흡인 여과했다. 얻어진 고체를 물, 에탄올로 세정했다. 얻어진 고체를 다이클로로메테인에 녹여, 셀라이트, 알루미나, 셀라이트의 순으로 적층한 여과 보조제를 통해 여과한 후, 다이클로로메테인과 에탄올의 혼합 용매로 재결정하여, 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체 $\text{Ir}(\text{tBueczpm})_2(\text{acac})$ 를 황등색 분말로 얻었다(수율 42%). 스텝 5의 합성 스킴을 하기 (h-5)에 나타낸다.

[0353] [합성 스킴(h-5)]



[0354]

[0355] 또한, 상기 스텝 5에서 얻어진 황등색 분말의 핵자기 공명 분광법(¹H-NMR)에 의한 분석 결과를 하기에 나타낸다. 또한, ¹H-NMR 차트를 도 18에 나타낸다. 이것으로부터, 본 합성에 4에서 상술한 구조식(110)으로 나타내어지는 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체 Ir(tBueczpm)₂(acac)가 얻어진 것을 알 수 있었다.

[0356]

¹H-NMR. δ (CDCl₃) : 1.16(t, 6H), 1.58(s, 18H), 1.84(s, 6H), 3.90-3.96(m, 4H), 5.32(s, 1H), 6.14(s, 2H), 7.09(t, 2H), 7.15(d, 2H), 7.29(t, 2H), 7.90(s, 2H), 7.96(d, 2H), 8.35(s, 2H), 9.13(s, 2H).

[0357]

다음에, Ir(tBueczpm)₂(acac)의 다이클로로메테인 용액의 자외 가시 흡수 스펙트럼(흡수 스펙트럼) 및 발광 스펙트럼을 측정했다. 흡수 스펙트럼 및 발광 스펙트럼의 측정에 대해서는, 실시예 1과 같은 장치 및 같은 방법으로 했다. 얻어진 흡수 스펙트럼 및 발광 스펙트럼의 측정 결과를 도 19에 나타낸다. 가로축은 파장, 세로축은 흡수 강도 및 발광 강도를 나타낸다. 또한, 도 19에서 2개의 실선이 도시되어 있는데, 가는 실선은 흡수 스펙트럼을 나타내고, 굵은 실선은 발광 스펙트럼을 나타낸다. 도 19에 나타내는 흡수 스펙트럼은 다이클로로메테인 용액(0.070 m mol/L)을 석영 셀에 넣고 측정한 흡수 스펙트럼으로부터 다이클로로메테인만을 석영 셀에 넣고 측정한 흡수 스펙트럼을 뺀 결과를 나타낸다.

[0358]

도 19에 나타낸 바와 같이, 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체 Ir(tBueczpm)₂(acac)는 540 nm에 발광 피크를 가지며, 다이클로로메테인 용액으로부터는 황등색의 발광이 관측되었다.

[0359]

다음에, 본 실시예에서 얻어진 Ir(tBueczpm)₂(acac)를 LC/MS 분석에 의해 분석했다.

[0360]

LC/MS 분석에서는 실시예 1과 같은 측정 장치 및 같은 측정 방법을 이용했다. 또한, 샘플은 임의의 농도의 Ir(tBueczpm)₂(acac)를 클로로폼에 용해하고, 아세트나이트릴로 희석하여 조정하고, 주입량은 5.0 μL로 했다.

[0361]

LC 분리에는 이동상의 조성을 변화시키는 경사법을 이용하고, 측정 개시 후 0분에서 1분까지가 이동상 A : 이동상 B = 70 : 30, 그 후 조성을 변화시켜, 10분에서의 이동상 A와 이동상 B와의 비가 이동상 A : 이동상 B = 95 : 5가 되도록 했다. 조성은 연속적으로 변화시켰다. MS 분석에서는 ESI에 의한 이온화를 행하고, 캐필러리 전압을 3.0 kV, 샘플 콘 전압을 30 V, 검출을 포지티브 모드에서 행하였다. 또한, 측정하는 질량 범위는 m/z = 100

~1200으로 했다.

[0362] 이상의 조건 하에서 분리, 이온화된 $m/z = 948.37$ 의 성분을 충돌실(collision cell) 내에서 아르곤 가스에 충돌시켜 프로덕트 이온에 해리시켰다. 아르곤에 충돌시킬 때의 에너지(collision energy)는 30 eV로 했다. 해리시킨 프로덕트 이온을 비행 시간(TOF)형 MS로 검출한 결과를 도 20에 나타낸다.

[0363] 도 20의 결과로부터, 구조식(110)으로 나타내어지는 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체, $\text{Ir}(\text{tBueczpm})_2(\text{acac})$ 는 주로 $m/z = 849.33$ 부근에 프로덕트 이온이 검출되는 것을 알 수 있었다. 또한, 도 20에 나타내는 결과는 $\text{Ir}(\text{tBueczpm})_2(\text{acac})$ 에 유래하는 특징적인 결과를 나타내는 것이므로, 혼합물 중에 포함되는 $\text{Ir}(\text{tBueczpm})_2(\text{acac})$ 를 분류하는데 있어서 중요한 데이터라고 할 수 있다.

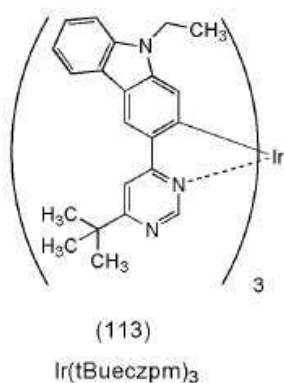
[0364] [실시예 5]

[0365] <<합성예 5>>

[0366] 본 합성예 5에서는, 실시형태 1의 구조식(113)으로 나타내어지는 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체, 트리스[3-(6-tert-부틸-4-피리미디닐- κ N3)-9-에틸-9H-카바졸-2-일- κ C]이리듐(III)(약칭: $\text{Ir}(\text{tBueczpm})_3$)의 합성예를 구체적으로 예시한다.

[0367] <구조식(113)으로 나타내는 $\text{Ir}(\text{tBueczpm})_3$ 의 합성법>

[0368] 먼저, 하기 구조식(113)으로 나타내는 $\text{Ir}(\text{tBueczpm})_3$ 의 합성법의 일례에 대하여 설명한다.

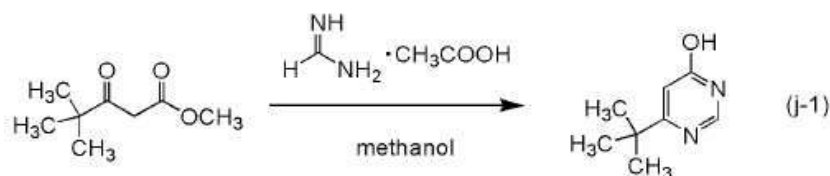


[0369]

[0370] <스텝 1; 4-tert-부틸-6-하이드록시피리미딘의 합성>

[0371] 먼저, 100 mL의 3구 플라스크에 폼아마이딘 초산염 7.2 g, 나트륨 메톡사이드 7.5 g, 메탄올 70 mL를 넣고, 이 혼합 용액에 4,4-다이메틸옥소발레르산 메틸 10 g을 첨가하여 실온에서 24시간 교반했다. 소정 시간 경과 후, 이 혼합 용액에 물 17 mL와 초산 7.2 mL의 혼합 용액을 첨가하여 실온에서 교반했다. 이 혼합물을 농축하고, 얻어진 잔사를 물에 용해하여, 초산 에틸로 추출했다. 얻어진 추출 용액을 포화 식염수로 세정하고, 유기층에 무수 황산 마그네슘을 첨가하여 건조시켰다. 황산 마그네슘을 자연 여과로 제거하고, 여과액을 농축하여 고체를 얻었다. 이 고체를 초산 에틸로 세정하고, 4-tert-부틸-6-하이드록시피리미딘을 얻었다(백색 분말, 수율 49%). 스텝 1의 합성 스킴을 하기 (j-1)에 나타낸다.

[0372] [합성 스킴(j-1)]

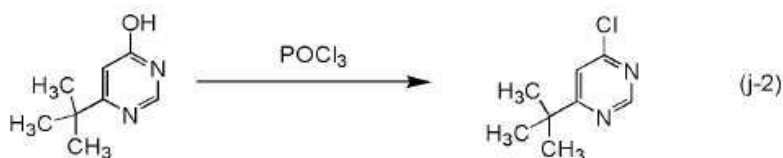


[0373]

[0374] <스텝 2; 4-tert-부틸-6-클로로피리미딘의 합성>

[0375] 다음에, 50 mL의 3구 플라스크에 상기 스텝 1에서 얻은 4-tert-부틸-6-하이드록시피리미딘 4.7 g, 염화 포스포릴 14 mL를 넣고, 1.5시간 가열 환류했다. 환류 후, 감압 하에서 염화 포스포릴을 증류 제거했다. 얻어진 잔사를 다이클로로메테인에 용해하고, 물, 포화 탄산 수소 나트륨 수용액으로 세정했다. 얻어진 유기층에 무수 황산 마그네슘을 첨가하여 건조시켰다. 황산 마그네슘을 자연 여과로 제거하고, 여과액을 농축했다. 얻어진 잔사를 헥산 : 초산 에틸 = 10 : 1을 전개 용매로 하는 실리카 겔 칼럼 크로마토그래피에 의해 정제하고, 4-tert-부틸-6-클로로피리미딘을 얻었다(백색 분말, 수율 78%). 스텝 2의 합성 스킴을 하기 (j-2)에 나타낸다.

[0376] [합성 스킴(j-2)]

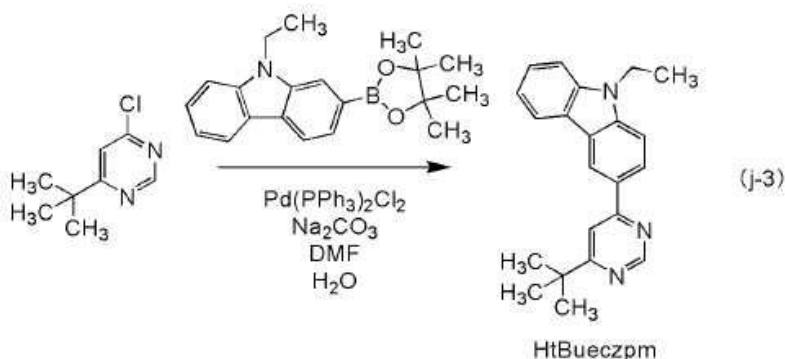


[0377]

[0378] <스텝 3 ; 4-tert-부틸-6-(9-에틸-9H-카바졸-3-일)피리미딘 (약칭 : HtBueczpm)의 합성>

[0379] 다음에, 환류관을 붙인 100 mL의 둥근 바닥 플라스크에 상기 스텝 2에서 얻은 4-tert-부틸-6-클로로피리미딘 2.21 g과 9-에틸-9H-카바졸-3-보론산 피나콜 에스터 4.97 g, 1M 초산 칼륨 수용액 20 mL, 1M 탄산 나트륨 수용액 20 mL, 아세트나이트릴 50 mL를 넣고 플라스크 내를 아르곤 치환했다. 이 혼합물에 테트라키스(트라이페닐 포스핀)팔라듐(0) 0.78 g을 첨가하고, 플라스크에 마이크로파(2.45GHz, 400 W)를 2시간 조사하여 가열했다. 그 후 이 용액에 물을 첨가하여 다이클로로메테인으로 유기층을 추출했다. 얻어진 유기층을 물, 포화 식염수로 세정하고, 황산 마그네슘으로 건조했다. 건조한 후의 용액을 여과하여, 황산 마그네슘을 제거했다. 이 용액의 용매를 증류 제거한 후, 얻어진 잔사를 톨루엔 : 초산 에틸 = 4 : 1을 전개 용매로 하는 실리카 겔 칼럼 크로마토그래피로 정제하고, 목적 물질인 피리미딘 유도체 HtBueczpm을 얻었다(담황색 분말, 수율 71%). 또한, 마이크로파의 조사는 마이크로파 합성 장치(MILESTONE사 제조, MicroSYNTH)를 이용했다. 스텝 3의 합성 스킴을 하기 (j-3)에 나타낸다.

[0380] [합성 스킴(j-3)]

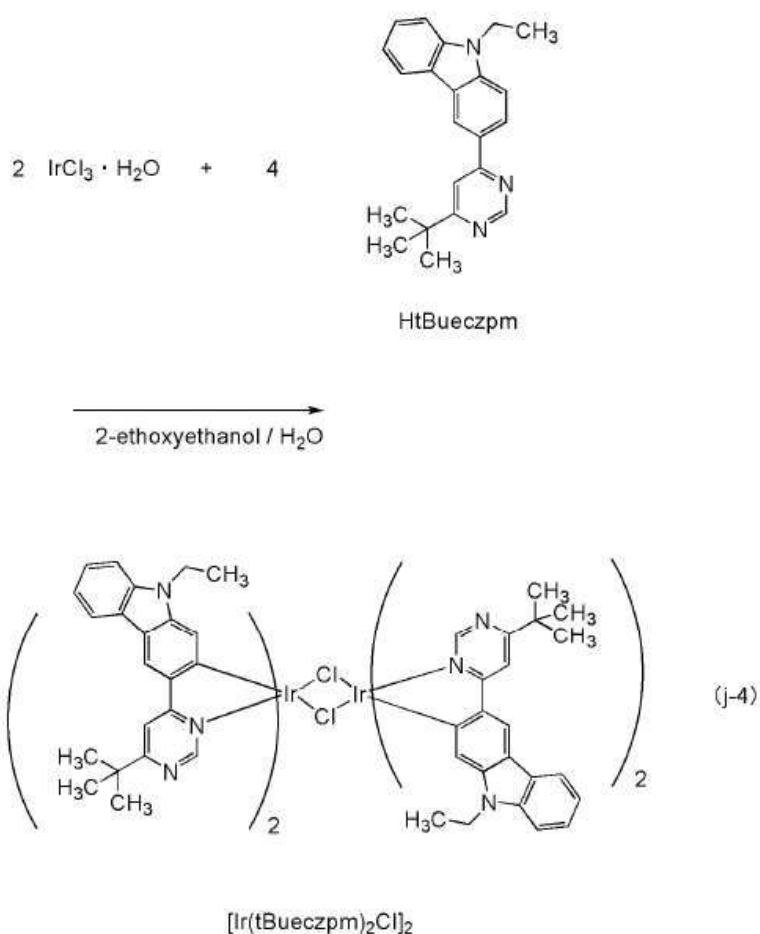


[0381]

[0382] <스텝 4 ; 다이-μ-클로로-테트라키스[3-(6-tert-부틸-4-피리미디닐-κN3)-9-에틸-9H-카바졸-2-일-κC]다이이리듐(III)(약칭 : [Ir(tBueczpm)2Cl]2)의 합성>

[0383] 다음에, 환류관을 붙인 가지형 플라스크에 2-에톡시에탄올 30 mL와 물 10 mL, 상기 스텝 3에서 얻은 HtBueczpm 1.96 g, 염화 이리듐 수화물(IrCl3·H2O)(Sigma-Aldrich사 제조) 0.90 g을 넣고, 플라스크 내를 아르곤 치환했다. 그 후, 마이크로파(2.45 GHz, 100 W)를 1시간 조사하여 반응시켰다. 용매를 증류 제거한 후, 얻어진 잔사를 에탄올로 흡인 여과, 세정하여, 복핵 착체 [Ir(tBueczpm)2Cl]2를 얻었다(갈색 분말, 수율 68%). 또한, 스텝 4의 합성 스킴을 하기 (j-4)에 나타낸다.

[0384] [합성 스킴(j-4)]

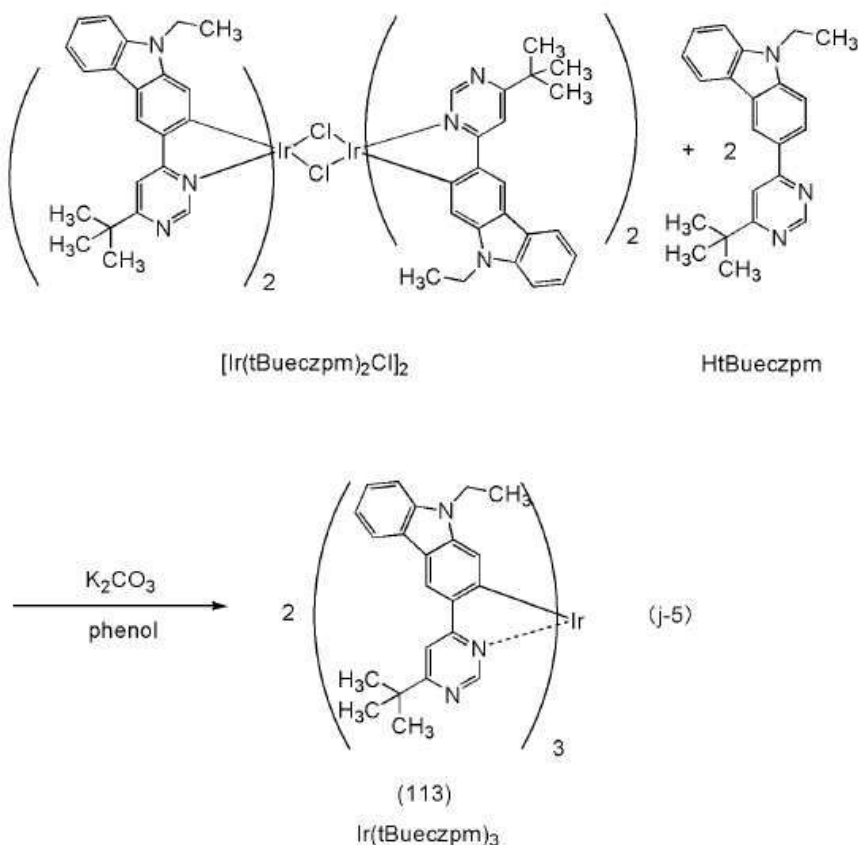


[0385]

[0386] <스텝 5 ; Ir(tBueczpm)₃의 합성>

[0387] 또한, 환류관을 붙인 200 mL의 3구 플라스크에 페놀 8 g, 상기 스텝 4에서 얻은 복핵 착체 $[\text{Ir}(\text{tBueczpm})_2\text{Cl}]_2$ 0.89 g, HtBueczpm 0.82 g, 탄산 칼륨 0.69 g을 넣고, 플라스크 내를 질소 치환했다. 그 후, 185℃에서 9시간 가열하여 반응시켰다. 얻어진 잔사를 메탄올 중에서 초음파로 조사하고, 흡인 여과했다. 얻어진 고체를 다이클로로메테인에 용해시키고, 물, 포화 식염수로 세정했다. 얻어진 유기층을 황산 마그네슘으로 건조시키고, 건조한 후의 용액을 여과하여, 황산 마그네슘을 제거했다. 이 용액의 용매를 증류 제거한 후, 다이클로로메테인에 얻어진 잔사를 용해시켜, 셀라이트/알루미나/셀라이트로 여과한 후, 다이클로로메테인과 에탄올의 혼합 용매로 재결정하여, 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체 $\text{Ir}(\text{tBueczpm})_3$ 을 황색 분말로서 얻었다(수율 59%). 스텝 5의 합성 스킴을 하기 (j-5)에 나타낸다.

[0388] [합성 스킴(j-5)]



[0389]

[0390] 또한, 상기 스텝 5에서 얻어진 황색 분말의 핵자기 공명 분광법(¹H-NMR)에 의한 분석 결과를 하기에 나타낸다. 또한, ¹H-NMR 차트를 도 21에 나타낸다. 이것으로부터, 본 합성에 5에서 상술한 구조식(113)으로 나타내어지는 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체 Ir(tBueczpm)₃이 얻어진 것을 알 수 있었다.

[0391] ¹H-NMR. δ (CDCl₃) : 1.03(t, 9H), 1.41(s, 27H), 3.70-3.78(m, 3H), 3.82-3.89(m, 3H), 6.91(s, 3H), 7.17-7.22(m, 6H), 7.37(t, 3H), 7.89(s, 3H), 8.11(d, 3H), 8.32(s, 3H), 8.52(s, 3H).

[0392] 다음에, Ir(tBueczpm)₃의 다이클로로메테인 용액의 자외 가시 흡수 스펙트럼(이하, 간단히 "흡수 스펙트럼"이라고 함) 및 발광 스펙트럼을 측정했다. 흡수 스펙트럼 및 발광 스펙트럼의 측정에 대해서는, 실시예 1과 같은 장치 및 같은 방법으로 했다. 얻어진 흡수 스펙트럼 및 발광 스펙트럼의 측정 결과를 도 22에 나타낸다. 가로축은 파장, 세로축은 흡수 강도 및 발광 강도를 나타낸다. 또한, 도 22에서 2개의 실선이 도시되어 있는데, 가는 실선은 흡수 스펙트럼을 나타내고, 굵은 실선은 발광 스펙트럼을 나타낸다. 도 22에 나타내는 흡수 스펙트럼은 다이클로로메테인 용액(0.059 m mol/L)을 석영 셀에 넣고 측정한 흡수 스펙트럼으로부터 다이클로로메테인만을 석영 셀에 넣고 측정한 흡수 스펙트럼을 뺀 결과를 나타낸다.

[0393] 도 22에 나타낸 바와 같이, 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체 Ir(tBueczpm)₃은 532 nm에 발광 피크를 가지며, 다이클로로메테인 용액으로부터는 녹색의 발광이 관측되었다.

[0394] 다음에, 본 실시예에서 얻어진 Ir(tBueczpm)₃을 LC/MS 분석에 의해 분석했다.

[0395] LC/MS 분석에서는 실시예 1과 같은 측정 장치 및 같은 측정 방법을 이용했다. 또한, 샘플은 임의의 농도의 Ir(tBueczpm)₃(약칭)을 클로로폼에 용해하고, 아세트나이트릴로 희석하여 조정하고, 주입량은 5.0 μL로 했다.

[0396] LC 분리로서는 실시예 1과 같은 방법을 이용했다. MS 분석으로서 ESI에 의한 이온화를 행하고, 캐필러리 전압을 3.0 kV, 샘플 콘 전압을 30 V, 검출을 포지티브 모드에서 행하였다. 또한, 측정하는 질량 범위는 m/z =

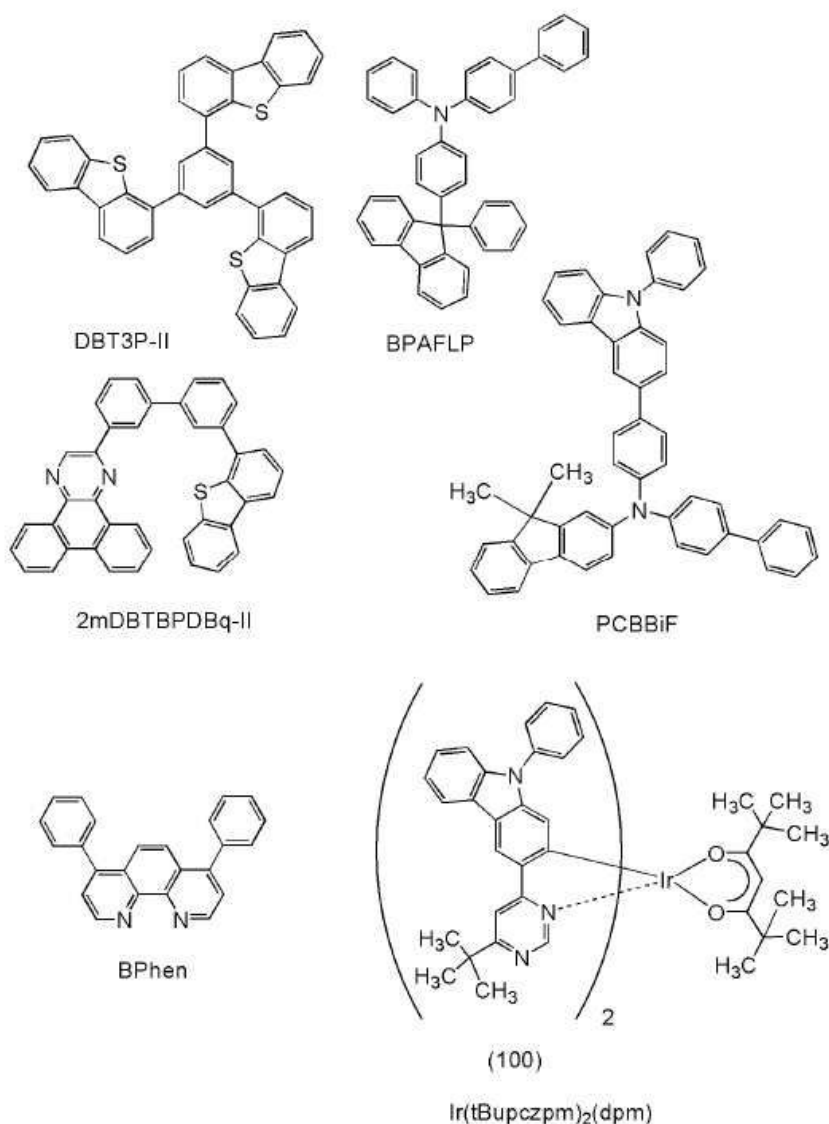
100~1200으로 했다.

[0397] 이상의 조건 하에서 분리, 이온화된 $m/z = 1178.51$ 의 성분을 충돌실(collision cell) 내에서 아르곤 가스에 충돌시켜 프로덕트 이온에 해리시켰다. 아르곤에 충돌시킬 때의 에너지(collision energy)는 70 eV로 했다. 해리시킨 프로덕트 이온을 비행 시간(TOF)형 MS로 검출한 결과를 도 23에 나타낸다.

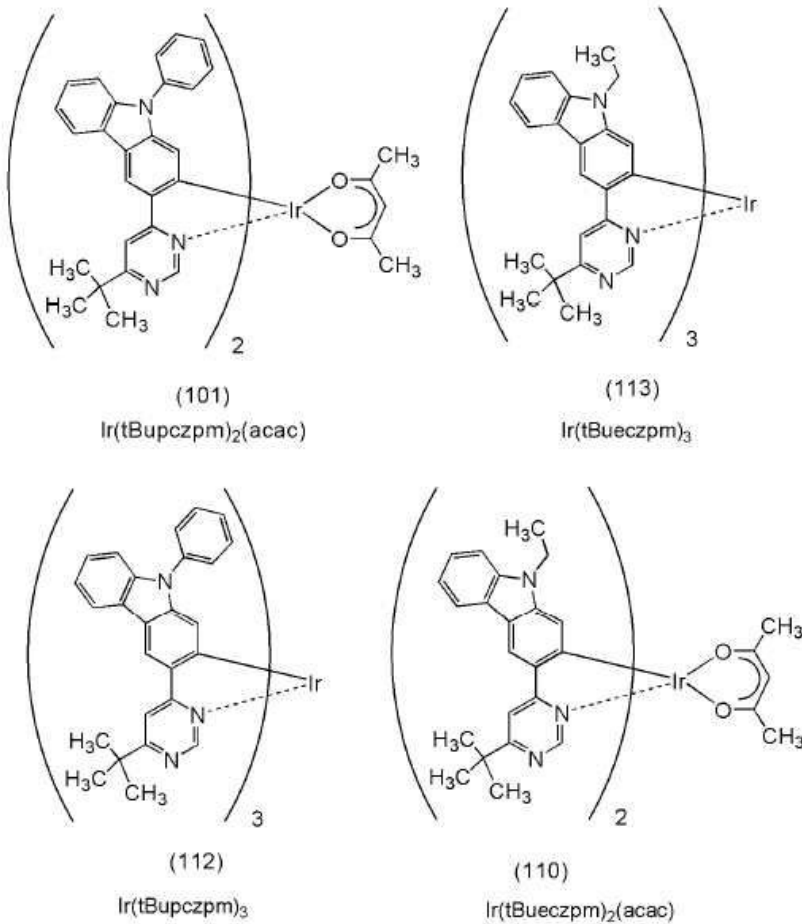
[0398] 도 23의 결과로부터, 구조식(113)으로 나타내어지는 본 발명의 일 양태인 유기 금속 착체 $\text{Ir}(\text{tBueczpm})_2(\text{acac})$ 는 주로 $m/z = 849.33$ 부근, $m/z = 516.11$ 부근, $m/z = 314.16$ 부근에 프로덕트 이온이 검출되는 것을 알 수 있었다. 또한, 도 23에 나타내는 결과는 $\text{Ir}(\text{tBueczpm})_3$ 에 유래하는 특징적인 결과를 나타내는 것이므로, 혼합물 중에 포함되는 $\text{Ir}(\text{tBueczpm})_3$ 을 분류하는데 있어서 중요한 데이터라고 할 수 있다.

[0399] [실시예 6]

[0400] 본 실시예에서는, 본 발명의 일 양태의 발광 소자(발광 소자 1 내지 5)에 대하여, 도 24의 (A)를 이용하여 설명한다. 또한, 본 실시예에 이용하는 재료의 화학식을 이하에 나타낸다.



[0401]



[0402]

[0403]

[0404]

[0405]

이하에, 본 실시예의 발광 소자 1의 제작 방법을 나타낸다.

(발광 소자 1)

먼저, 기판(1100) 위에 실리콘, 또는 산화 실리콘을 함유한 산화 인듐-산화 주석 화합물(ITO-SiO_2 , 이하 ITS0라고 약기함)을 스퍼터링법으로 성막하고, 제 1 전극(1101)을 형성했다. 또한, 이용한 타겟의 조성은 $\text{In}_2\text{O}_3 : \text{SnO}_2 : \text{SiO}_2 = 85 : 10 : 5$ [중량%]로 했다. 또한, 제 1 전극(1101)의 막 두께는 110 nm로 하고, 전극 면적은 $2 \text{ mm} \times 2 \text{ mm}$ 로 했다. 여기서, 제 1 전극(1101)은 발광 소자의 양극으로서 기능하는 전극이다.

[0406]

다음에, 기판(1100) 위에 발광 소자를 형성하기 위한 전 처리로서 기판 표면을 물로 세정하고, 200°C 에서 1시간 소성한 후, UV 오존 처리를 370초 행하였다.

[0407]

그 후, 10^{-4} Pa 정도까지 내부가 감압된 진공 증착 장치에 기판을 도입하여, 진공 증착 장치 내의 가열실에서, 170°C 에서 30분간의 진공 소성을 행한 후, 기판(1100)을 30분 정도 방랭했다.

[0408]

다음에, 제 1 전극(1101)이 형성된 면이 하방이 되도록, 제 1 전극(1101)이 형성된 기판(1100)을 진공 증착 장치 내에 설치된 기판 홀더에 고정하고, 10^{-4} Pa 정도까지 감압한 후, 제 1 전극(1101) 위에, 4,4',4''-(벤젠-1,3,5-트라이일)트라이(다이벤조티오펜)(약칭: DBT3P-II)과 산화 몰리브덴을 공증착함으로써, 정공 주입층(1111)을 형성했다. 그 막 두께는 20 nm로 하고, DBT3P-II(약칭)와 산화 몰리브덴의 비율은 중량비로 4 : 2(= DBT3P-II : 산화 몰리브덴)가 되도록 조절했다.

[0409]

다음에, 정공 주입층(1111) 위에, 4-페닐-4'-(9-페닐플루오렌-9-일)트라이페닐아민(약칭: BPAFLP)을 20 nm의 막 두께가 되도록 성막하여, 정공 수송층(1112)을 형성했다.

[0410]

또한, 2-[3'-(다이벤조티오펜-4-일)바이페닐-3-일]다이벤조[f,h]퀴녹살린(약칭: 2mDBTBPDQ-II), N-(1,1'-바이페닐-4-일)-N-[4-(9-페닐-9H-카바졸-3-일)페닐]-9,9-다이메틸-9H-플루오렌-2-아민(약칭: PCBBiF), 및 실시예 1에서 합성한 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{dpm})$ 을 공증착하여, 정공 수송층(1112) 위에 발광층(1113)을 형성했다. 여기서,

2mDBTPDBq-II, PCBBiF, 및 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{dpm})$ 의 중량비는 $0.8 : 0.2 : 0.05 (= 2\text{mDBTPDBq-II} : \text{PCBBiF} : \text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{dpm}))$ 가 되도록 조절했다. 또한, 발광층(1113)의 막 두께는 40 nm로 했다.

- [0411] 또한, 발광 소자 1의 발광층(1113)에서 2mDBTPDBq-II는 호스트 재료이고, PCBBiF는 어시스트 재료이고, $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{dpm})$ 은 게스트 재료(도펀트)이다. 또한, $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{dpm})$ 은 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체이다.
- [0412] 다음에, 발광층(1113) 위에 2mDBTPDBq-II를 막 두께 10 nm가 되도록 성막하여, 전자 수송층(1114)을 형성했다.
- [0413] 다음에, 전자 수송층(1114) 위에 바소페난트롤린(약칭 : BPhen)을 막 두께 15 nm가 되도록 성막하여, 제 1 전자 주입층(1115a)을 형성했다.
- [0414] 또한, 제 1 전자 주입층(1115a) 위에, 불화 리튬(LiF)을 1 nm의 막 두께로 증착하여, 제 2 전자 주입층(1115b)을 형성했다.
- [0415] 마지막으로, 음극으로서 기능하는 제 2 전극(1103)으로서 알루미늄을 200 nm의 막 두께가 되도록 증착함으로써, 본 실시예의 발광 소자 1을 제작했다.
- [0416] (발광 소자 2)
- [0417] 발광 소자 2는 발광 소자 1과 비교하여 발광층(1113), 전자 수송층(1114), 및 제 1 전자 주입층(1115a)이 다르다. 구체적으로는 이하와 같다.
- [0418] 발광 소자 2의 발광층(1113)은 2mDBTPDBq-II, PCBBiF, 및 실시예 2에서 합성한 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{acac})$ 를 공증착했다. 또한, 2mDBTPDBq-II, PCBBiF, 및 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{acac})$ 의 중량비는 $0.8 : 0.2 : 0.05 (= 2\text{mDBTPDBq-II} : \text{PCBBiF} : \text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{acac}))$ 가 되도록 조절했다. 또한, 발광층(1113)의 막 두께는 40 nm로 했다.
- [0419] 또한, 발광 소자 2의 발광층(1113)에서, 2mDBTPDBq-II는 호스트 재료이고, PCBBiF는 어시스트 재료이고, $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{acac})$ 는 게스트 재료(도펀트)이다. 또한, $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_2(\text{acac})$ 는 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체이다.
- [0420] 발광 소자 2의 전자 수송층(1114)은 막 두께 15 nm의 2mDBTPDBq-II를 이용했다.
- [0421] 발광 소자 2의 제 1 전자 주입층(1115a)은 막 두께 10 nm의 BPhen를 이용했다.
- [0422] (발광 소자 3)
- [0423] 발광 소자 3은 발광 소자 1과 비교하여 발광층(1113), 전자 수송층(1114), 및 제 1 전자 주입층(1115a)이 다르다. 구체적으로는 이하와 같다.
- [0424] 발광 소자 3의 발광층(1113)은 2mDBTPDBq-II, PCBBiF, 및 실시예 4에서 합성한 $\text{Ir}(\text{tBueczpm})_2(\text{acac})$ 를 공증착했다. 또한, 2mDBTPDBq-II, PCBBiF, 및 $\text{Ir}(\text{tBueczpm})_2(\text{acac})$ 의 중량비는 $0.8 : 0.2 : 0.025 (= 2\text{mDBTPDBq-II} : \text{PCBBiF} : \text{Ir}(\text{tBueczpm})_2(\text{acac}))$ 가 되도록 조절했다. 또한, 발광층(1113)의 막 두께는 40 nm로 했다.
- [0425] 또한, 발광 소자 3의 발광층(1113)에서, 2mDBTPDBq-II는 호스트 재료이고, PCBBiF는 어시스트 재료이고, $\text{Ir}(\text{tBueczpm})_2(\text{acac})$ 는 게스트 재료(도펀트)이다. 또한, $\text{Ir}(\text{tBueczpm})_2(\text{acac})$ 는 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체이다.
- [0426] 발광 소자 3의 전자 수송층(1114)은 막 두께 15 nm의 2mDBTPDBq-II를 이용했다.
- [0427] 발광 소자 3의 제 1 전자 주입층(1115a)은 막 두께 10 nm의 BPhen를 이용했다.
- [0428] (발광 소자 4)
- [0429] 발광 소자 4는 발광 소자 1과 비교하여 발광층(1113), 전자 수송층(1114), 및 제 1 전자 주입층(1115a)이 다르다. 구체적으로는 이하와 같다.
- [0430] 발광 소자 4의 발광층(1113)은 2mDBTPDBq-II, PCBBiF, 및 실시예 5에서 합성한 $\text{Ir}(\text{tBueczpm})_3$ 을 공증착했다. 또한, 2mDBTPDBq-II, PCBBiF, 및 $\text{Ir}(\text{tBueczpm})_3$ 의 중량비는 $0.8 : 0.2 : 0.025 (= 2\text{mDBTPDBq-II} : \text{PCBBiF} :$

$\text{Ir}(\text{tBueczpm})_3$ 가 되도록 조절했다. 또한, 발광층(1113)의 막 두께는 40 nm로 했다.

- [0431] 또한, 발광 소자 4의 발광층(1113)에서, 2mDBTPDBq-II는 호스트 재료이고, PCBBiF는 어시스트 재료이고, $\text{Ir}(\text{tBueczpm})_3$ 은 게스트 재료(도펀트)이다. 또한, $\text{Ir}(\text{tBueczpm})_3$ 은 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체이다.
- [0432] 발광 소자 4의 전자 수송층(1114)은 막 두께 15 nm의 2mDBTPDBq-II(약칭)를 이용했다.
- [0433] 발광 소자 4의 제 1 전자 주입층(1115a)은 막 두께 10 nm의 BPhen를 이용했다.
- [0434] (발광 소자 5)
- [0435] 발광 소자 5는 발광 소자 1과 비교하여 발광층(1113), 전자 수송층(1114), 및 제 1 전자 주입층(1115a)이 다르다. 구체적으로는 이하와 같다.
- [0436] 발광 소자 5의 발광층(1113)은 2mDBTPDBq-II, 및 실시예 3에서 합성한 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_3$ 을 공증착했다. 또한, 2mDBTPDBq-II, 및 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_3$ 의 중량비는 1 : 0.05(= 2mDBTPDBq-II : $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_3$)가 되도록 조절했다. 또한, 발광층(1113)의 막 두께는 40 nm로 했다.
- [0437] 또한, 발광 소자 5의 발광층(1113)에서, 2mDBTPDBq-II는 호스트 재료이고, $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_3$ 은 게스트 재료(도펀트)이다. 또한, $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_3$ 은 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체이다. 이와 같이, 발광 소자 5의 발광층(1113)은 발광 소자 1 내지 4와 달리, 어시스트 재료인 PCBBiF를 이용하지 않는 구성이다.
- [0438] 발광 소자 5의 전자 수송층(1114)은 막 두께 15 nm의 2mDBTPDBq-II를 이용했다.
- [0439] 발광 소자 5의 제 1 전자 주입층(1115a)은 막 두께 10 nm의 BPhen를 이용했다.
- [0440] 또한, 발광 소자 2 내지 5의 기타 구성(제 1 전극(1101), 정공 주입층(1111), 정공 수송층(1112), 제 2 전자 주입층(1115b), 및 제 2 전극(1103))에 대해서는, 발광 소자 1과 같은 구성이기 때문에, 앞의 기재를 원용할 수 있다.
- [0441] 이상에 의해 얻어진 발광 소자 1 내지 5의 소자 구조를 표 1에 나타낸다.

표 1

	양극	정공 주입층	정공 수송층	발광층	전자 수송층	제 1 전자 주입층	제 2 전자 주입층	음극
발광소자 1	ITO 110nm	DBT3P-II:MoO _x (=4:2) 20nm	BPAFLP 20nm	하기 참조	2mDBTBPDBq-II 10nm	BPhen 15nm	LiF 1nm	Al 200nm
발광소자 2	ITO 110nm	DBT3P-II:MoO _x (=4:2) 20nm	BPAFLP 20nm	하기 참조	2mDBTBPDBq-II 15nm	BPhen 10nm	LiF 1nm	Al 200nm
발광소자 3	ITO 110nm	DBT3P-II:MoO _x (=4:2) 20nm	BPAFLP 20nm	하기 참조	2mDBTBPDBq-II 15nm	BPhen 10nm	LiF 1nm	Al 200nm
발광소자 4	ITO 110nm	DBT3P-II:MoO _x (=4:2) 20nm	BPAFLP 20nm	하기 참조	2mDBTBPDBq-II 15nm	BPhen 10nm	LiF 1nm	Al 200nm
발광소자 5	ITO 110nm	DBT3P-II:MoO _x (=4:2) 20nm	BPAFLP 20nm	하기 참조	2mDBTBPDBq-II 15nm	BPhen 10nm	LiF 1nm	Al 200nm

발광소자 1	2mDBTBPDBq-II:PCBBiF:Ir(tBupczpm) ₂ (dpm) (=0.8:0.2:0.05) 40nm
발광소자 2	2mDBTBPDBq-II:PCBBiF:Ir(tBupczpm) ₂ (acac) (=0.8:0.2:0.05) 40nm
발광소자 3	2mDBTBPDBq-II:PCBBiF:Ir(tBueczpm) ₂ (acac) (=0.8:0.2:0.025) 40nm
발광소자 4	2mDBTBPDBq-II:PCBBiF:Ir(tBueczpm) ₃ (=0.8:0.2:0.025) 40nm
발광소자 5	2mDBTBPDBq-II:Ir(tBupczpm) ₃ (=1:0.05) 40nm

[0442]

[0443]

다음에, 질소 분위기의 글로브 박스 내에서, 발광 소자 1 내지 5가 대기에 노출되지 않도록 밀봉하는 작업(구체적으로, 실재를 소자의 주위에 도포하고, 밀봉시에 80℃에서 1시간 열처리)을 행하였다. 그 후, 발광 소자 1 내지 5의 동작 특성에 대하여 측정을 행하였다. 또한, 측정은 실온(25℃로 유지된 분위기)에서 행하였다.

[0444]

발광 소자 1 내지 5의 휘도-전류 효율 특성을 도 25의 (A)에 나타낸다. 도 25의 (A)에서 가로축은 휘도(cd/m²)를, 세로축은 전류 효율(cd/A)을 각각 나타낸다. 또한, 발광 소자 1 내지 5의 전압-전류 특성을 도 25의 (B)에 나타낸다. 도 25의 (B)에서 가로축은 전압(V)을, 세로축은 전류(mA)를 각각 나타낸다. 또한, 발광 소자 1 내지 5의 전압-휘도 특성을 도 26의 (A)에 나타낸다. 도 26의 (A)에서 가로축은 전압(V)을, 세로축은 휘도(cd/m²)를 각각 나타낸다. 또한, 발광 소자 1 내지 5의 휘도-외부 양자 효율 특성을 도 26의 (B)에 나타낸다. 도 26의 (B)에서 가로축은 휘도(cd/m²)를, 세로축은 외부 양자 효율(%)을 각각 나타낸다.

[0445]

도 25 및 도 26으로부터, 발광 소자 1 내지 5는 저구동 전압, 저소비 전력, 및 고효율의 발광 소자인 것을 알 수 있었다.

[0446]

다음에, 발광 소자 1 내지 5의 휘도 1000 cd/m² 부근일 때의 전압(V), 전류 밀도(mA/cm²), CIE 색도 좌표(x, y), 휘도(cd/m²), 전류 효율(cd/A), 외부 양자 효율(%)을 표 2에 나타낸다.

표 2

	전압 (V)	전류 밀도 (mA/cm ²)	색도 x	색도 y	휘도 (cd/m ²)	전류 효율 (cd/A)	외부 양자효율(%)
발광소자 1	2.9	1.1	0.41	0.58	1087	102	26
발광소자 2	2.8	0.8	0.40	0.59	723	88	23
발광소자 3	3.1	1.1	0.41	0.58	939	88	23
발광소자 4	3.2	1.3	0.37	0.61	932	71	13
발광소자 5	3.0	0.9	0.36	0.62	836	93	18

[0447]

[0448]

또한, 발광 소자 1 내지 5의 전류 밀도를 2.5 mA/cm²로 했을 때의 발광 스펙트럼을 도 27에 나타낸다. 도 27에 나타난 바와 같이, 발광 소자 1의 발광 스펙트럼은 545 nm에 피크를 가지고, 발광 소자 2의 발광 스펙트럼은 543 nm에 피크를 가지고, 발광 소자 3의 발광 스펙트럼은 548 nm에 피크를 가지고, 발광 소자 4의 발광 스펙트럼은 532 nm에 피크를 가지고, 발광 소자 5의 발광 스펙트럼은 534 nm에 피크를 가진다. 또한, 도 27에서, 발광 소자 1 내지 5의 발광 스펙트럼은 실질적으로 중첩되어 있다.

[0449]

또한, 표 2에 나타난 바와 같이, 휘도가 1087 cd/m²에서의 발광 소자 1의 전압은 2.9 V이고, 전류 밀도는 1.1 mA/cm²이고, 전류 효율은 102 cd/A이고, 외부 양자 효율은 26%였다. 또한, 휘도가 723 cd/m²에서의 발광 소자 2의 전압은 2.8 V이고, 전류 밀도는 0.8 mA/cm²이고, 전류 효율은 88 cd/A이고, 외부 양자 효율은 23%였다. 또한, 휘도가 939 cd/m²에서의 발광 소자 3의 전압은 3.1 V이고, 전류 밀도는 1.1 mA/cm²이고, 전류 효율은 88 cd/A이고, 외부 양자 효율은 23%였다. 또한, 휘도가 932 cd/m²에서의 발광 소자 4의 전압은 3.2 V이고, 전류 밀도는 1.3 mA/cm²이고, 전류 효율은 71 cd/A이고, 외부 양자 효율은 13%였다. 또한, 휘도가 836 cd/m²에서의 발광 소자 5의 전압은 3.0 V이고, 전류 밀도는 0.9 mA/cm²이고, 전류 효율은 93 cd/A이고, 외부 양자 효율은 18%였다.

[0450]

또한, 표 2에 나타난 바와 같이, 발광 소자 1의 휘도가 1087 cd/m²일 때의 CIE 색도 좌표는 (x, y) = (0.41, 0.58)이고, 발광 소자 2의 휘도가 723 cd/m²일 때의 CIE 색도 좌표는 (x, y) = (0.40, 0.59)이고, 발광 소자 3의 휘도가 939 cd/m²일 때의 CIE 색도 좌표는 (x, y) = (0.41, 0.58)이고, 발광 소자 4의 휘도가 932 cd/m²일 때의 CIE 색도 좌표는 (x, y) = (0.37, 0.61)이고, 발광 소자 5의 휘도가 836 cd/m²일 때의 CIE 색도 좌표는 (x, y) = (0.36, 0.62)였다. 이러한 것로부터, 발광 소자 1 내지 5는 도펀트에 유래한 발광이 얻어진다는 것을 알 수 있었다.

[0451]

이상과 같이, 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체를 발광층으로서 이용한 발광 소자 1 내지 5는 녹색의 과장 영역의 광을 효율적으로 발광시킬 수 있었다. 따라서, 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체는 녹색의 과장 영역에서 발광하는 게스트 재료로서 적합하다는 것을 알 수 있었다.

[0452]

다음에, 상기 발광 소자 1 내지 5에 대하여, 신뢰성 시험의 평가를 행하였다. 신뢰성 시험의 결과를 도 28에 나타낸다.

[0453]

신뢰성 시험의 측정 방법으로서, 초기 휘도를 5000 cd/m²로 설정하고, 전류 밀도가 일정한 조건에서 발광 소자 1 내지 5를 구동했다. 가로축은 소자의 구동 시간(h)을, 세로축은 초기 휘도를 100%로 했을 때의 정규화 휘도(%)를 나타낸다. 도 28로부터, 발광 소자 1의 187시간 경과 후의 정규화 휘도는 88%였다. 또한, 발광 소자 2의 317시간 경과 후의 정규화 휘도는 77%였다. 또한, 발광 소자 3의 137시간 경과 후의 정규화 휘도는 83%였다. 또한, 발광 소자 4의 137시간 경과 후의 정규화 휘도는 77%였다. 또한, 발광 소자 5의 237시간 경과 후의

정규화 휘도는 82%였다.

- [0454] 도 28의 결과로부터, 본 발명의 일 양태인 발광 소자 1 내지 5는 장수명의 발광 소자인 것을 알 수 있었다.
- [0455] [실시예 7]
- [0456] 본 실시예에서는 본 발명의 일 양태의 발광 소자(발광 소자 6)에 대하여, 도 24의 (B)를 이용하여 설명한다. 또한, 본 실시예에 이용한 재료에 대해서는, 실시예 6과 같은 재료이기 때문에, 이용한 재료의 화학식은 실시예 6을 인용할 수 있다.
- [0457] 이하에, 본 실시예의 발광 소자 6의 제작 방법을 나타낸다.
- [0458] (발광 소자 6)
- [0459] 먼저, 기판(1100) 위에, 실리콘, 또는 산화 실리콘을 함유한 산화 인듐-산화 주석 화합물(ITSO)을 스퍼터링법으로 성막하여, 제 1 전극(1101)을 형성했다. 또한, 이용한 타겟의 조성은 실시예 3과 같다. 또한, 제 1 전극(1101)의 막 두께는 110 nm로 하고, 전극 면적은 2 mm×2 mm로 했다. 여기서, 제 1 전극(1101)은 발광 소자의 양극으로서 기능하는 전극이다.
- [0460] 다음에, 기판(1100) 위에 발광 소자를 형성하기 위한 전 처리로서 기판 표면을 물로 세정하고, 200℃에서 1시간 소성한 후, UV 오존 처리를 370초 행하였다.
- [0461] 그 후, 10^{-4} Pa 정도까지 내부가 감압된 진공 증착 장치에 기판을 도입하고, 진공 증착 장치 내의 가열실에서, 170℃에서 30분간의 진공 소성을 행한 후, 기판(1100)을 30분 정도 방랭했다.
- [0462] 다음에, 제 1 전극(1101)이 형성된 면이 하방이 되도록, 제 1 전극(1101)이 형성된 기판(1100)을 진공 증착 장치 내에 설치된 기판 홀더에 고정하고, 10^{-4} Pa 정도까지 감압한 후, 제 1 전극(1101) 위에 DBT3P-II와 산화 몰리브덴을 공증착함으로써, 정공 주입층(1111)을 형성했다. 그 막 두께는 20 nm로 하고, DBT3P-II와 산화 몰리브덴의 비율은 중량비로 4 : 2(= DBT3P-II : 산화 몰리브덴)가 되도록 조절했다.
- [0463] 다음에, 정공 주입층(1111) 위에 BPAFLP를 20 nm의 막 두께가 되도록 성막하여, 정공 수송층(1112)을 형성했다.
- [0464] 또한, 2mDBTBPDq-II, PCBBiF, 및 실시예 3에서 합성한 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_3$ 을 공증착하여, 정공 수송층(1112) 위에 제 1 발광층(1113a)을 형성했다. 여기서, 2mDBTBPDq-II, PCBBiF, 및 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_3$ 의 중량비는 0.7 : 0.3 : 0.05(= 2mDBTBPDq-II : PCBBiF : $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_3$)가 되도록 조절했다. 또한, 제 1 발광층(1113a)의 막 두께는 20 nm로 했다.
- [0465] 또한, 발광 소자 6의 제 1 발광층(1113a)에서, 2mDBTBPDq-II는 호스트 재료이고, PCBBiF는 어시스트 재료이고, $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_3$ 은 게스트 재료(도펀트)이다. 또한, $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_3$ 은 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체이다.
- [0466] 다음에, 제 1 발광층(1113a) 위에 2mDBTBPDq-II, PCBBiF, 및 실시예 5에서 합성한 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_3$ 을 공증착하여, 제 2 발광층(1113b)을 형성했다. 여기서, 2mDBTBPDq-II, PCBBiF, 및 $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_3$ 의 중량비는 0.8 : 0.2 : 0.05(= 2mDBTBPDq-II : PCBBiF : $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_3$)가 되도록 조절했다. 또한, 제 2 발광층(1113b)의 막 두께는 20 nm로 했다.
- [0467] 또한, 발광 소자 6의 제 2 발광층(1113b)에서, 2mDBTBPDq-II는 호스트 재료이고, PCBBiF는 어시스트 재료이고, $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_3$ 은 게스트 재료(도펀트)이다. 또한, $\text{Ir}(\text{tBupczpm})_3$ 은 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체이다.
- [0468] 다음에, 제 2 발광층(1113b) 위에 2mDBTBPDq-II를 막 두께 25 nm가 되도록 성막하여, 전자 수송층(1114)을 형성했다.
- [0469] 다음에, 전자 수송층(1114) 위에 BPhen를 막 두께 10 nm가 되도록 성막하여, 제 1 전자 주입층(1115a)을 형성했다.
- [0470] 또한, 제 1 전자 주입층(1115a) 위에, 불화 리튬(LiF)을 1 nm의 막 두께로 증착하여, 제 2 전자 주입층(1115b)을 형성했다.
- [0471] 마지막으로, 음극으로서 기능하는 제 2 전극(1103)으로서 알루미늄을 200 nm의 막 두께가 되도록 증착함으로써,

본 실시예의 발광 소자 6을 제작했다.

이상에 의해 얻어진 발광 소자 6의 소자 구조를 표 3에 나타낸다.

표 3

	양극	정공 주입층	정공 수송층	제 1 발광층	제 2 발광층	전자 수송층	제 1 전자 주입층	제 2 전자 주입층	음극
발광소자 6	ITO 110nm	DBT3P-II:MoOx (=4:2) 20nm	BPAFLP 20nm	하기 참조	하기 참조	2mDBTBPDq-II 25nm	BPhen 10nm	LiF 1nm	Al 200nm
발광소자 6	2mDBTBPDq-II:PCBBiF:Ir(tBupczpm) ₃ (=0.7:0.3:0.05) 20nm				2mDBTBPDq-II:PCBBiF:Ir(tBupczpm) ₃ (=0.8:0.2:0.05) 20nm				

다음에, 질소 분위기의 글로브 박스 내에서, 발광 소자 6이 대기에 노출되지 않도록 밀봉하는 작업(구체적으로, 실재를 소자의 주위에 도포하고, 밀봉 시에 80℃에서 1시간 열처리)을 행하였다. 그 후, 발광 소자 6의 동작 특성에 대하여 측정을 행하였다. 또한, 측정은 실온(25℃로 유지된 분위기)에서 행하였다.

발광 소자 6의 휘도-전류 효율 특성을 도 29의 (A)에 나타낸다. 도 29의 (A)에서 가로축은 휘도(cd/m²)를, 세로축은 전류 효율(cd/A)을 각각 나타낸다. 또한, 발광 소자 6의 전압-전류 특성을 도 29의 (B)에 나타낸다. 도 29의 (B)에서 가로축은 전압(V)을, 세로축은 전류(mA)를 각각 나타낸다. 또한, 발광 소자 6의 전압-휘도 특성을 도 30의 (A)에 나타낸다. 도 30의 (A)에서, 가로축은 전압(V)을, 세로축은 휘도(cd/m²)를 각각 나타낸다. 또한, 발광 소자 6의 휘도-외부 양자 효율 특성을 도 30의 (B)에 나타낸다. 도 30의 (B)에서 가로축은 휘도(cd/m²)를, 세로축은 외부 양자 효율(%)을 각각 나타낸다.

도 29 및 도 30으로부터, 발광 소자 6은 저구동 전압, 저소비 전력, 및 고효율의 발광 소자인 것을 알 수 있었다.

다음에, 발광 소자 6의 휘도 1000 cd/m² 부근일 때의 전압(V), 전류 밀도(mA/cm²), CIE 색도 좌표(x, y), 휘도(cd/m²), 전류 효율(cd/A), 외부 양자 효율(%)을 표 4에 나타낸다.

표 4

	전압 (V)	전류 밀도 (mA/cm ²)	색도x	색도y	휘도 (cd/m ²)	전류 효율 (cd/A)	외부 양자 효율(%)
발광소자 6	3.0	1.3	0.37	0.62	1058	84	22

또한, 발광 소자 6의 전류 밀도를 2.5 mA/cm²로 했을 때의 발광 스펙트럼을 도 31에 나타낸다. 도 31에 나타낸 바와 같이, 발광 소자 6의 발광 스펙트럼은 534 nm에 피크를 가진다.

또한, 표 4에 나타낸 바와 같이, 휘도가 1058 cd/m²에서의 발광 소자 6의 전압은 3.0 V이고, 전류 밀도는 1.3 mA/cm²이고, 전류 효율은 84 cd/A이고, 외부 양자 효율은 22%였다.

또한, 표 4에 나타낸 바와 같이, 발광 소자 6의 휘도가 1058 cd/m²일 때의 CIE 색도 좌표는 (x, y) = (0.37, 0.62)였다. 이러한 것으로부터, 발광 소자 6은 도펀트에 유래한 발광이 얻어지는 것을 알 수 있었다.

이상과 같이, 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체를 발광층으로서 이용한 발광 소자 6은 녹색의 파장 영역의 광을 효율적으로 발광시킬 수 있었다. 따라서, 본 발명의 일 양태의 유기 금속 착체는 녹색의 파장역에서 발광하는 게스트 재료로서 적합하다는 것을 알 수 있었다.

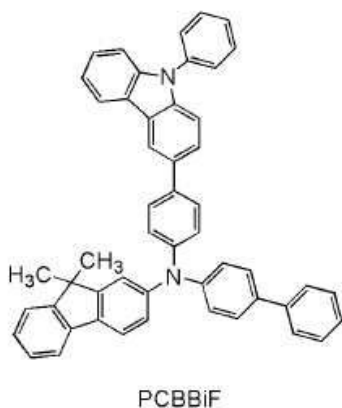
[0483] 다음에, 상기 발광 소자 6에 대하여, 신뢰성 시험의 평가를 행하였다. 신뢰성 시험의 결과를 도 32에 나타낸다.

[0484] 신뢰성 시험의 측정 방법으로는, 초기 휘도를 5000 cd/m^2 로 설정하고, 전류 밀도가 일정한 조건에서 발광 소자 6을 구동했다. 가로축은 소자의 구동 시간(h)을, 세로축은 초기 휘도를 100%로 했을 때의 정규화 휘도(%)를 나타낸다. 도 32로부터 발광 소자 6의 473시간 경과 후의 정규화 휘도는 90%였다.

[0485] 도 32의 결과로부터, 본 발명의 일 양태인 발광 소자 6은 장수명의 발광 소자인 것을 알 수 있었다.

[0486] (참고예)

[0487] 실시예 6 및 실시예 7에 이용한 하기에 나타내는 PCBBiF의 합성 방법에 대하여 설명한다.

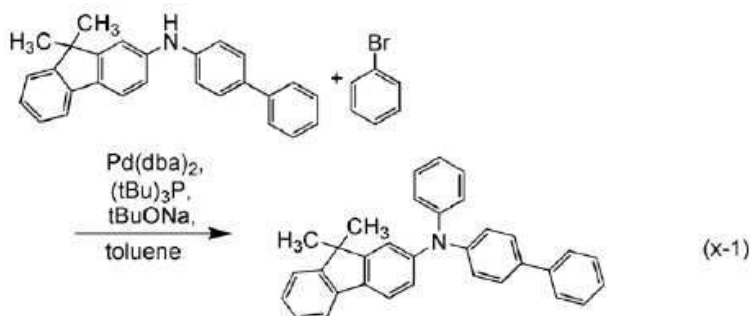


[0488]

[0489] <스텝 1 : N-(1,1'-바이페닐-4-일)-9,9-다이메틸-N-페닐-9H-플루오렌-2-아민의 합성>

[0490] 스텝 1의 합성 스킴을 (x-1)에 나타낸다.

[0491] [합성 스킴(x-1)]



[0492]

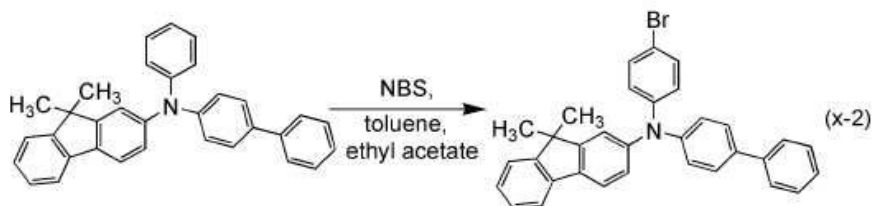
[0493] 1 L의 3구 플라스크에 N-(1,1'-바이페닐-4-일)-9,9-다이메틸-9H-플루오렌-2-아민 45 g(0.13 mol), 나트륨 tert-부톡사이드 36 g(0.38 mol), 브로모 벤젠 21 g(0.13 mol), 및 톨루엔 500 mL를 넣었다. 이 혼합물을 감압하면서 교반함으로써 탈기하고, 탈기 후, 플라스크 내를 질소 치환했다. 그 후, 비스(다이벤질리덴아세톤)팔라듐(0) 0.8 g(1.4 mmol)과 트라이(tert-부틸)포스핀(10 wt% 헥산 용액) 12 mL(5.9 mmol)를 첨가했다.

[0494] 이 혼합물을 질소 기류 하, 90℃에서 2시간 교반했다. 그 후, 혼합물을 실온까지 식히고 나서, 흡인 여과에 의해 고체를 여과하여 분리했다. 얻어진 여과액을 농축하여, 갈색 용액 약 200 mL를 얻었다. 이 갈색 용액을 톨루엔과 혼합하고 나서, 얻어진 용액을 셀라이트(와코 순약 공업 주식회사(Wako Pure Chemical Industries, Ltd.) 제조, 카탈로그 번호 : 531-16855, 이하에 기재하는 셀라이트에 대해서도 마찬가지로이지만 반복 기재는 생략함), 알루미늄, 플로리실(와코 순약 공업 주식회사, 카탈로그 번호 : 540-00135, 이하에 기재하는 플로리실에 대해서도 마찬가지로이지만 반복 기재는 생략함)를 이용하여 정제했다. 얻어진 여과액을 농축하여 담황색 용액을 얻었다. 이 담황색 용액을 헥산으로 재결정한 결과, 목적 물질인 담황색 분말을 수량 52 g, 수율 95%로 얻었다.

[0495] <스텝 2 : N-(1,1'-바이페닐-4-일)-N-(4-브로모페닐)-9,9-다이메틸-9H-플루오렌-2-아민의 합성>

[0496] 스텝 2의 합성 스킴을 (x-2)에 나타낸다.

[0497] [합성 스킴(x-2)]



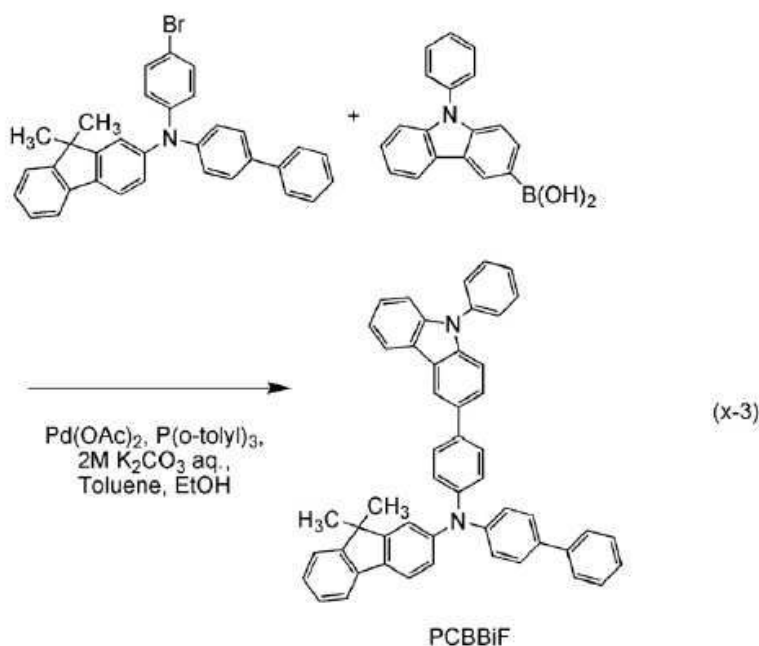
[0498]

[0499] 1 L의 마이어 플라스크에 N-(1,1'-바이페닐-4-일)-9,9-다이메틸-N-페닐-9H-플루오렌-2-아민 45 g(0.10 mol)을 넣고, 톨루엔 225 mL를 첨가하여 가열하면서 교반하여 용해했다. 이 용액을 실온까지 방랭한 후, 초산 에틸 225 mL를 첨가하여, N-브로모 숙신산 이미드(약칭 : NBS) 18 g(0.10 mol)을 첨가하여, 2.5시간 실온에서 교반했다. 교반 종료 후, 이 혼합물을 포화 탄산 수소 나트륨 수용액으로 3회, 포화 식염수로 1회 세정했다. 얻어진 유기층에 황산 마그네슘을 첨가하여 2시간 정치(靜置)하고, 건조했다. 이 혼합물을 자연 여과하여 황산 마그네슘을 제거하고, 얻어진 여과액을 농축한 결과, 황색 용액을 얻었다. 이 황색 용액을 톨루엔과 혼합하고, 이 용액을 셀라이트, 알루미나, 플로리실을 이용하여 정제했다. 얻어진 용액을 농축하여 담황색 고체를 얻었다. 이 담황색 고체를 톨루엔/에탄올에서 재결정한 결과, 목적 물질인 백색 분말을 수량 47 g, 수율 89%로 얻었다.

[0500] <스텝 3 : PCBBiF의 합성>

[0501] 스텝 3의 합성 스킴을 (x-3)에 나타낸다.

[0502] [합성 스킴(x-3)]



[0503]

[0504] 1 L의 3구 플라스크에 N-(1,1'-바이페닐-4-일)-N-(4-브로모페닐)-9,9-다이메틸-9H-플루오렌-2-아민 41 g(80 mmol), 9-페닐-9H-카바졸-3-보론산 25 g(88 mmol)을 넣고, 톨루엔 240 mL와 에탄올 80 mL와 탄산 칼륨 수용액 (2.0 mol/L) 120 mL를 첨가하고, 이 혼합물을 감압하면서 교반함으로써 탈기하고, 탈기 후, 플라스크 내를 질소 치환했다. 또한, 초산 팔라듐(II) 27 mg(0.12 mmol), 트라이(오르토-톨릴)포스핀 154 mg(0.5 mmol)을 첨가하고, 재차, 감압하면서 교반하여 탈기하고, 탈기 후, 플라스크 내를 질소 치환했다. 이 혼합물을 질소 기류 하, 110℃에서 1.5시간 교반했다.

[0505] 그 후, 교반하면서 실온까지 방랭한 후, 이 혼합물의 수층을 톨루엔으로 2회 추출했다. 얻어진 추출액과 유기층을 합하면서, 물로 2회, 포화 식염수로 2회 세정했다. 이 용액에 황산 마그네슘을 첨가하여 정치하고, 건조했다. 이 혼합물을 자연 여과하여 황산 마그네슘을 제거하고, 얻어진 여과액을 농축하여 갈색 용액을 얻었다.

이 갈색 용액을 톨루엔과 혼합하고 나서, 얻어진 용액을 셀라이트, 알루미나, 플로리실을 통해 정제했다. 얻어진 여과액을 농축하여 담황색 고체를 얻었다. 이 담황색 고체를 초산 에틸/에탄올을 이용하여 재결정한 결과, 목적 물질인 담황색 분말을 수량 46 g, 수율 88%로 얻었다.

[0506] 얻어진 담황색 분말 38 g을 트레인 서블리메이션법(train sublimation method)에 의해 승화 정제했다. 승화 정제는 압력 3.7 Pa, 아르곤 유량 15 mL/min의 조건으로, 담황색 분말을 345℃에서 가열하여 행하였다. 승화 정제 후, 목적 물질인 담황색 고체를 수량 31 g, 회수율 83%로 얻었다.

[0507] 핵자기 공명 분광법($^1\text{H-NMR}$)에 의해, 이 화합물이 목적 물질인 PCBBiF인 것을 확인했다.

[0508] 얻어진 담황색 고체의 $^1\text{H-NMR}$ 데이터를 이하에 나타낸다.

[0509] $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3, 500 \text{ MHz}) : \delta = 1.45(\text{s}, 6\text{H}), 7.18(\text{d}, J = 8.0 \text{ Hz}, 1\text{H}), 7.27\text{--}7.32(\text{m}, 8\text{H}), 7.40\text{--}7.50(\text{m}, 7\text{H}), 7.52\text{--}7.53(\text{m}, 2\text{H}), 7.59\text{--}7.68(\text{m}, 12\text{H}), 8.19(\text{d}, J = 8.0 \text{ Hz}, 1\text{H}), 8.36(\text{d}, J = 1.1 \text{ Hz}, 1\text{H}).$

부호의 설명

[0510] 100 : 기판
101 : 전극
102 : EL층
103 : 전극
111 : 정공 주입층
112 : 정공 수송층
113 : 발광층
114 : 전자 수송층
115 : 전자 주입층
116 : 전하 발생층
201 : 전극
202 : 전극
203 : EL층
204 : 발광층
205 : 인광성 화합물
206 : 유기 화합물
207 : 유기 화합물
301 : 전극
302 : EL층
304 : 전극
305 : 전하 발생층
450B : 발광 소자
450G : 발광 소자
450R : 발광 소자
451 : 반사 전극

452 : 반투과 · 반반사 전극
 453a : 투명 도전층
 453b : 투명 도전층
 454B : 제 1 발광층
 454G : 제 2 발광층
 454R : 제 3 발광층
 455 : EL층
 501 : 소자 기관
 502 : 화소부
 503 : 구동 회로부
 504 : 구동 회로부
 505 : 실재
 506 : 밀봉 기관
 507 : 배선
 509 : n채널형 TFT
 510 : p채널형 TFT
 511 : 스위칭용 TFT
 512 : 전류 제어용 TFT
 513 : 전극
 514 : 절연물
 515 : EL층
 516 : 전극
 517 : 발광 소자
 518 : 공간
 611 : 하우징
 612 : 지지대
 613 : 표시부
 614 : 스피커부
 615 : 비디오 입력 단자
 621 : 본체
 622 : 하우징
 623 : 표시부
 624 : 키보드
 625 : 외부 접속 포트
 626 : 포인팅 디바이스
 631 : 본체

632 : 하우징
633 : 표시부
634 : 음성 입력부
635 : 음성 출력부
636 : 조작 키
637 : 외부 접속 포트
638 : 안테나
641 : 본체
642 : 표시부
643 : 하우징
644 : 외부 접속 포트
645 : 리모콘 수신부
646 : 수상부
647 : 배터리
648 : 음성 입력부
649 : 조작 키
650 : 접안부
701 : 하우징
702 : 액정층
703 : 백 라이트
704 : 하우징
705 : 드라이버 IC
706 : 단자
801 : 하우징
802 : 광원
901 : 조명 장치
902 : TV 장치
1100 : 기판
1101 : 전극
1103 : 전극
1111 : 정공 주입층
1112 : 정공 수송층
1113 : 발광층
1113a : 제 1 발광층
1113b : 제 2 발광층
1114 : 전자 수송층

1115a : 제 1 전자 주입층

1115b : 제 2 전자 주입층

5000 : 태블릿형 단말

5001 : 하우징

5003 : 표시부

5005 : 전원 버튼

5007 : 전면 카메라

5009 : 배면 카메라

5011 : 외부 접속 단자

5013 : 외부 접속 단자

5015 : 아이콘

6000 : 태블릿형 단말

6001 : 하우징

6003 : 하우징

6005 : 힌지부

6007 : 표시부

6009 : 표시부

6011 : 전원 버튼

6013 : 카메라

6015 : 카메라

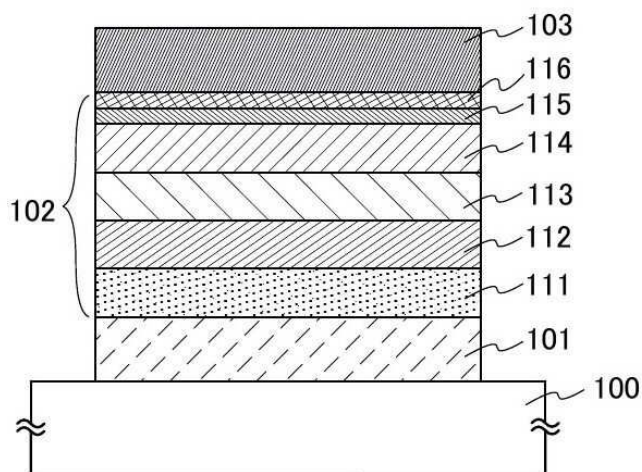
6017 : 텍스트 아이콘

6019 : 아이콘

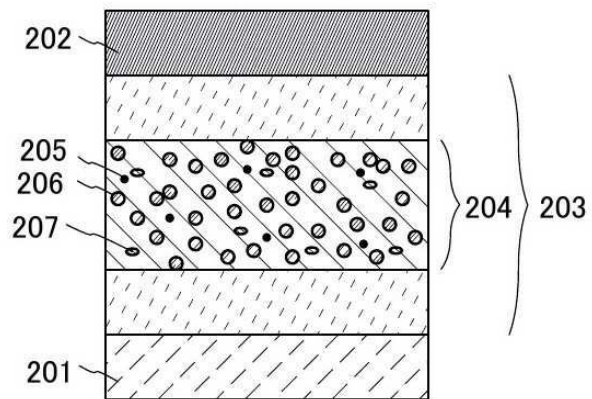
6021 : 키보드

도면

도면1

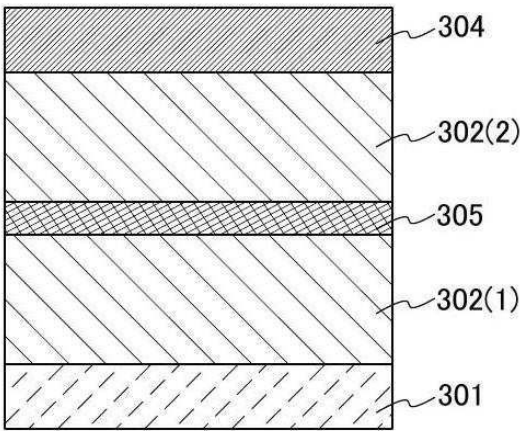


도면2

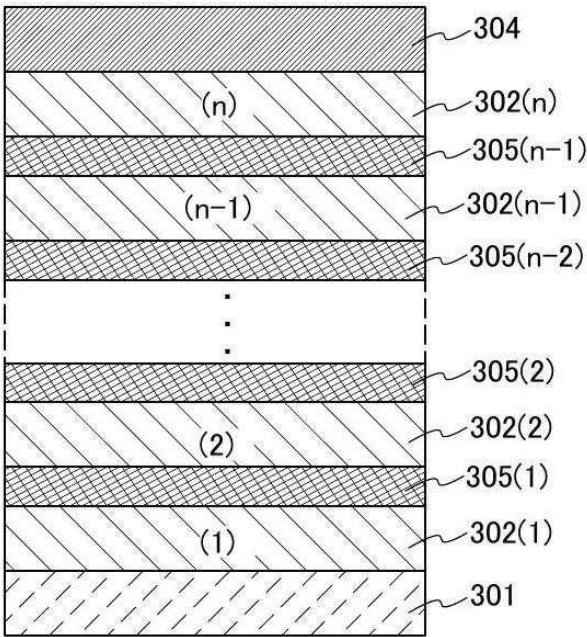


도면3

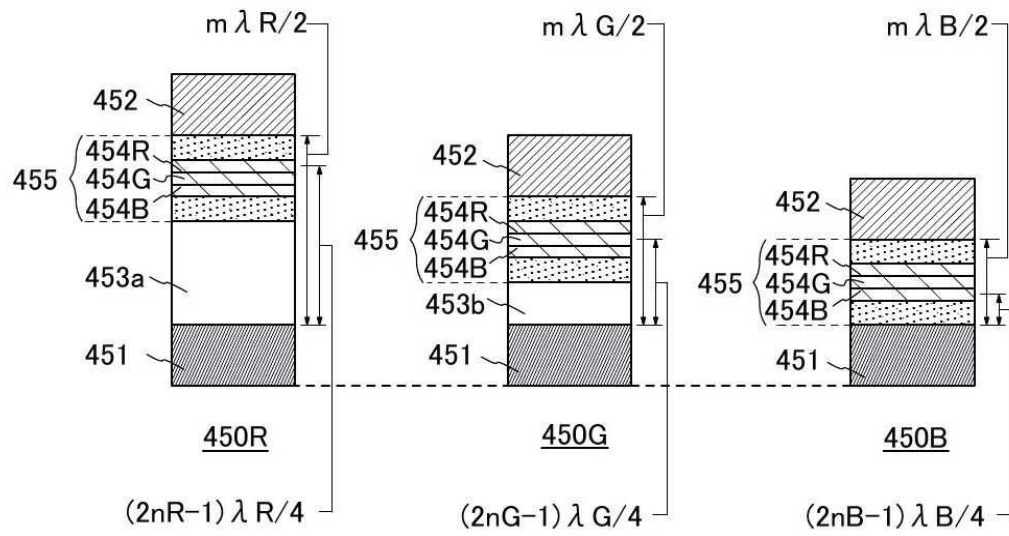
(A)



(B)

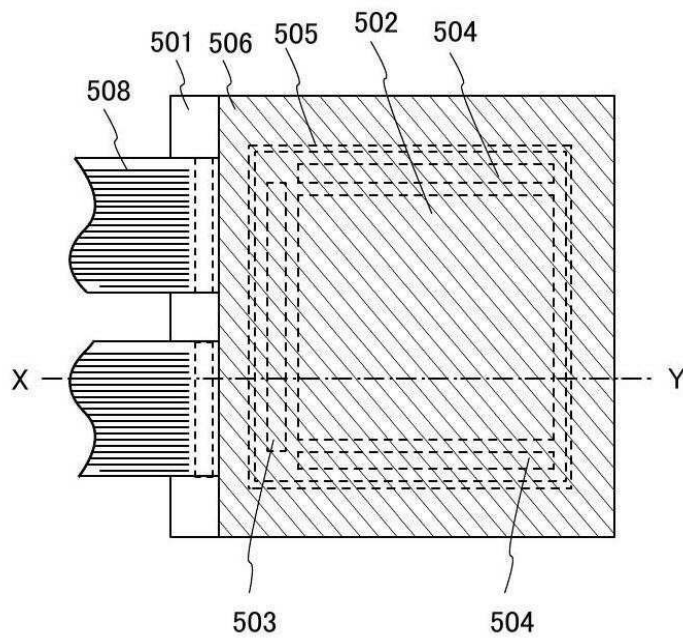


도면4

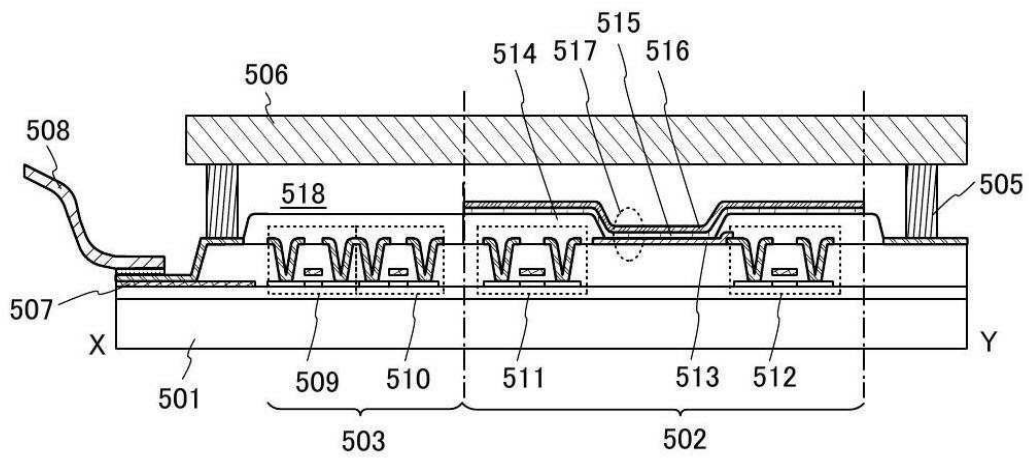


도면5

(A)

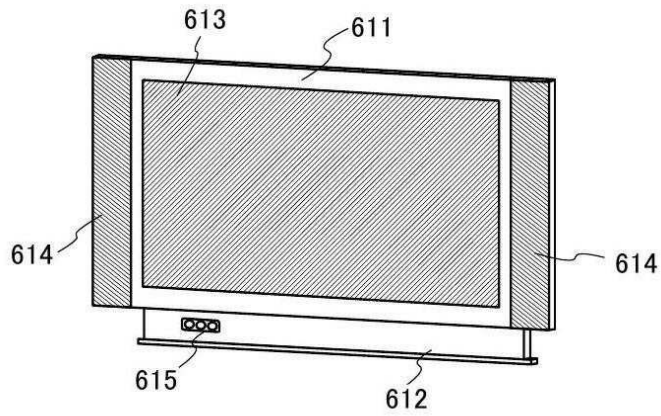


(B)

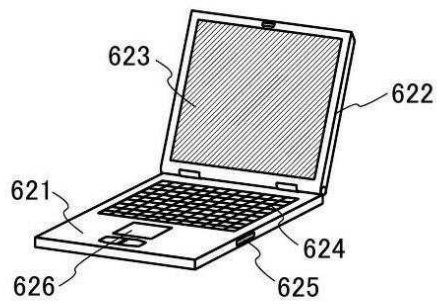


도면6

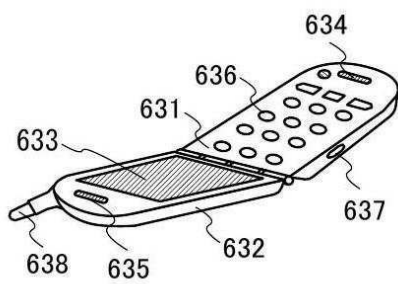
(A)



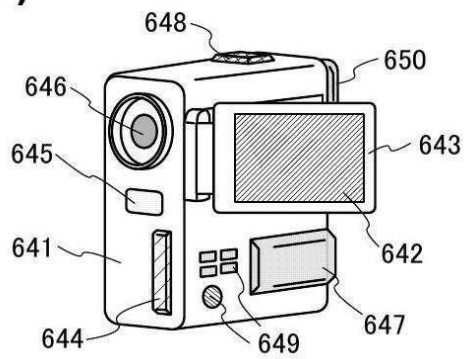
(B)



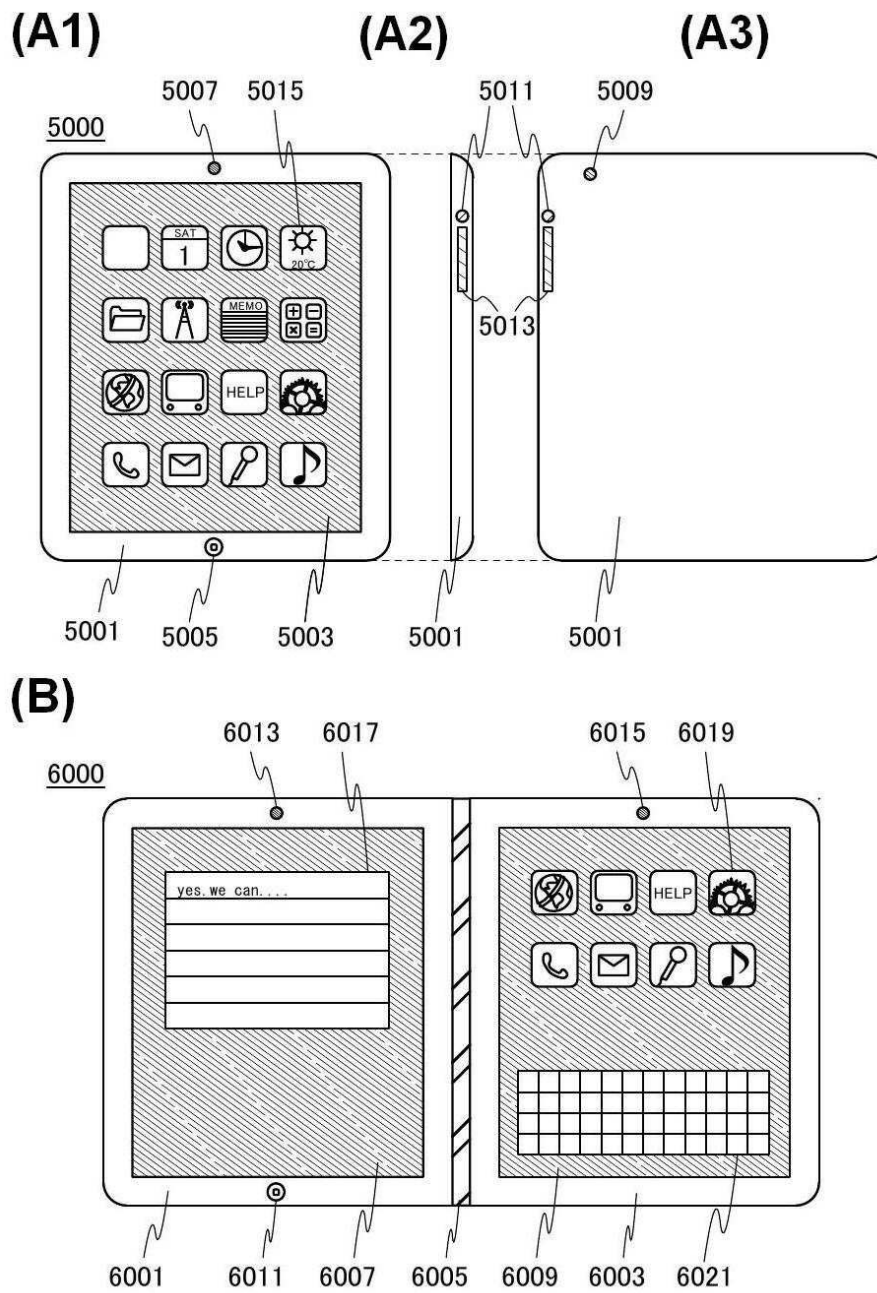
(C)



(D)

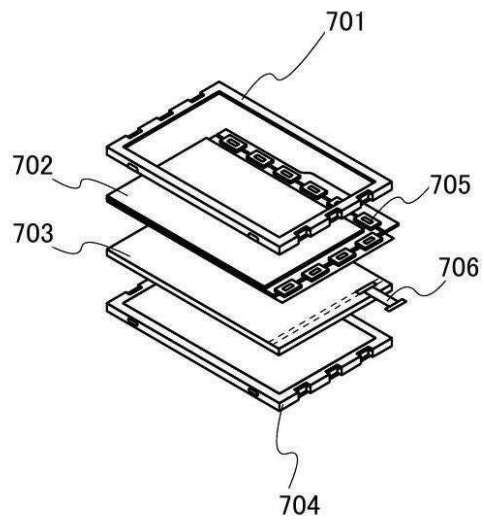


도면7

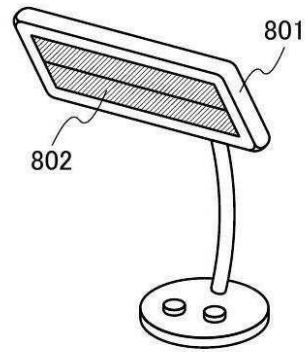


도면8

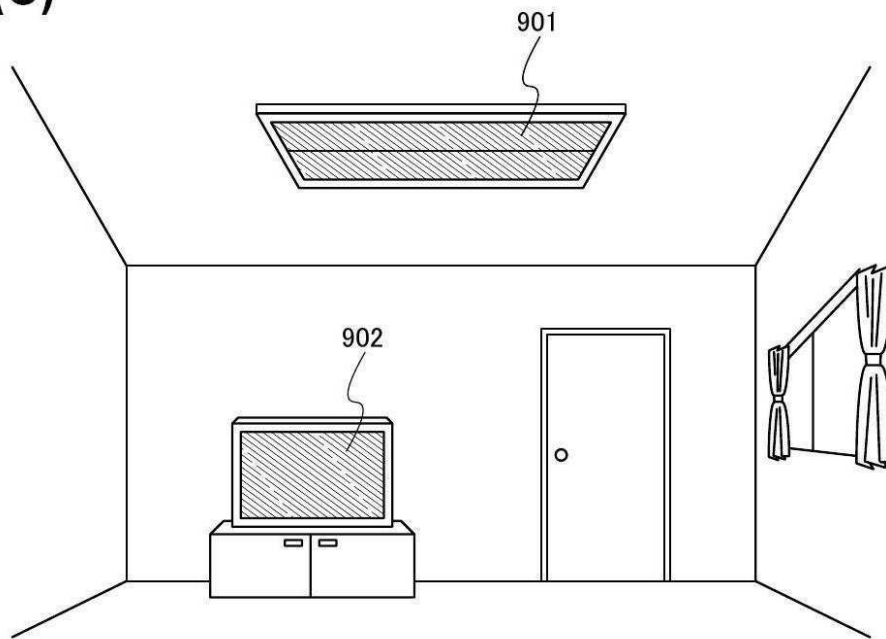
(A)



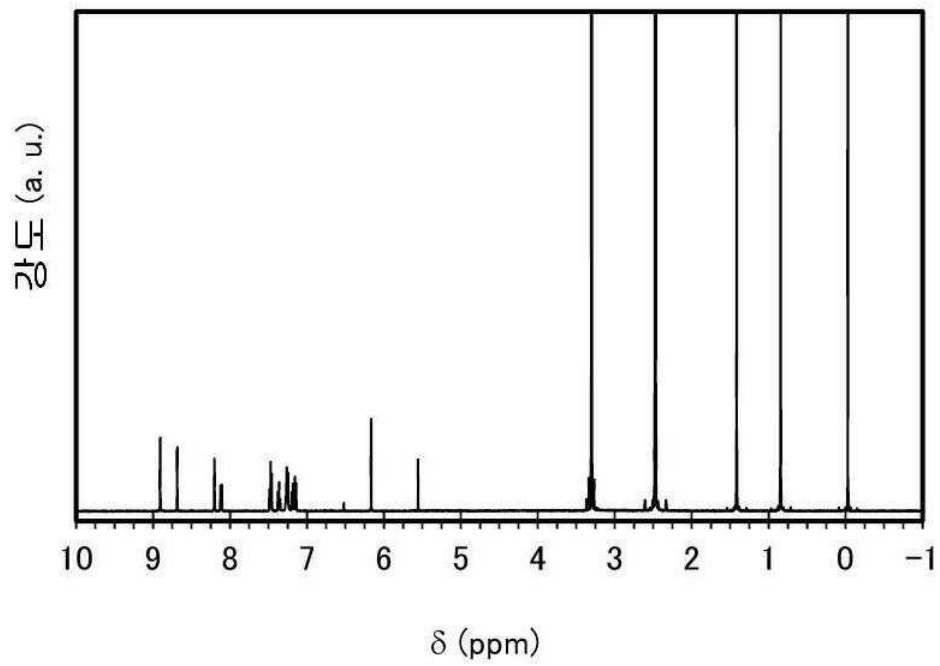
(B)



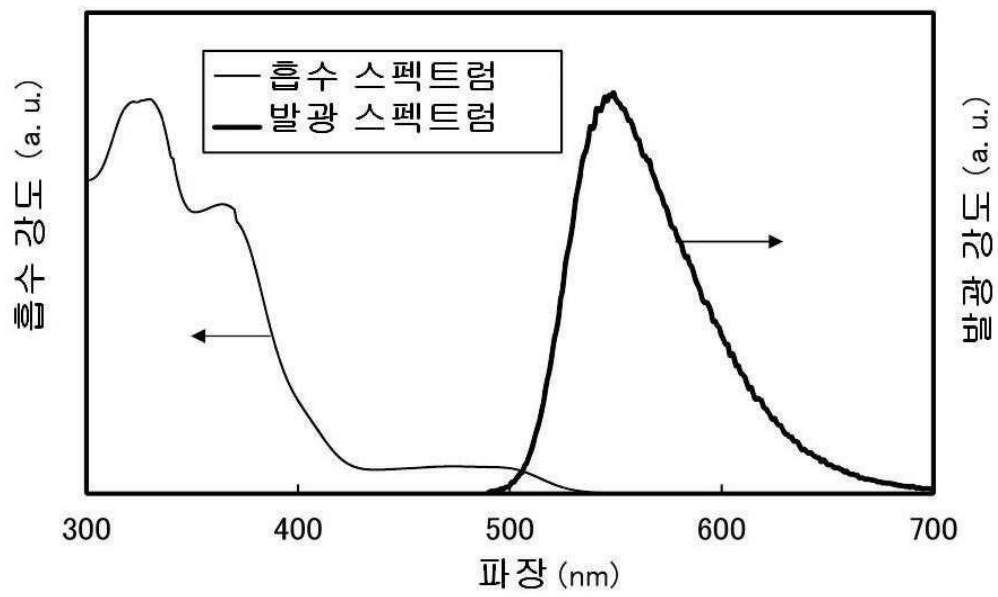
(C)



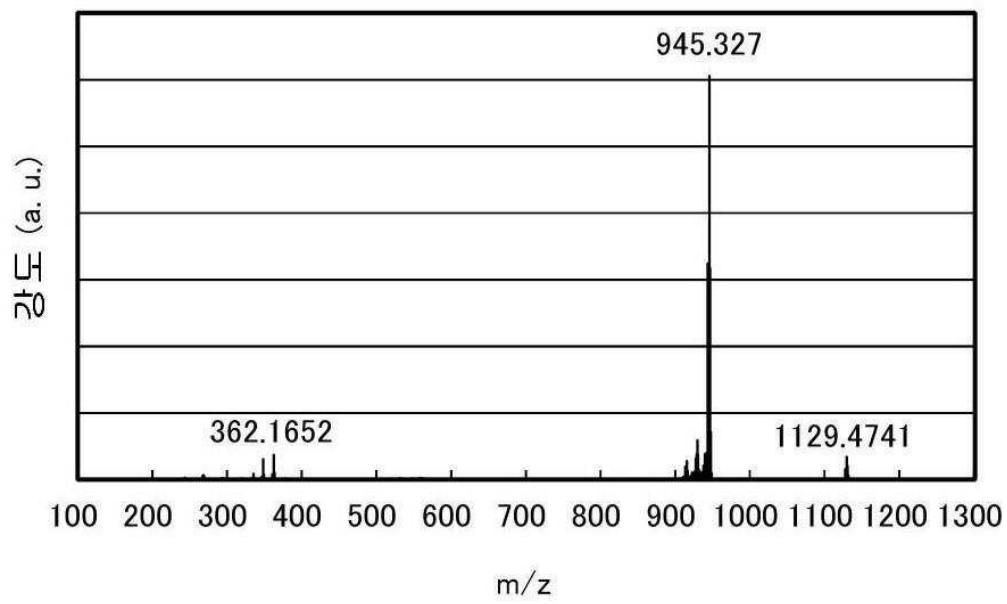
도면9



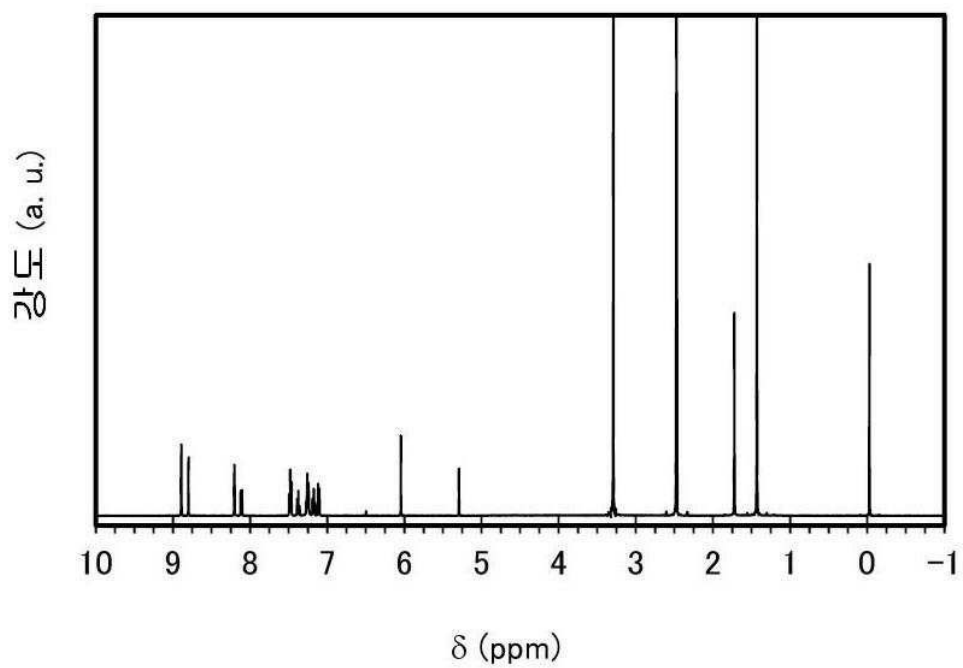
도면10



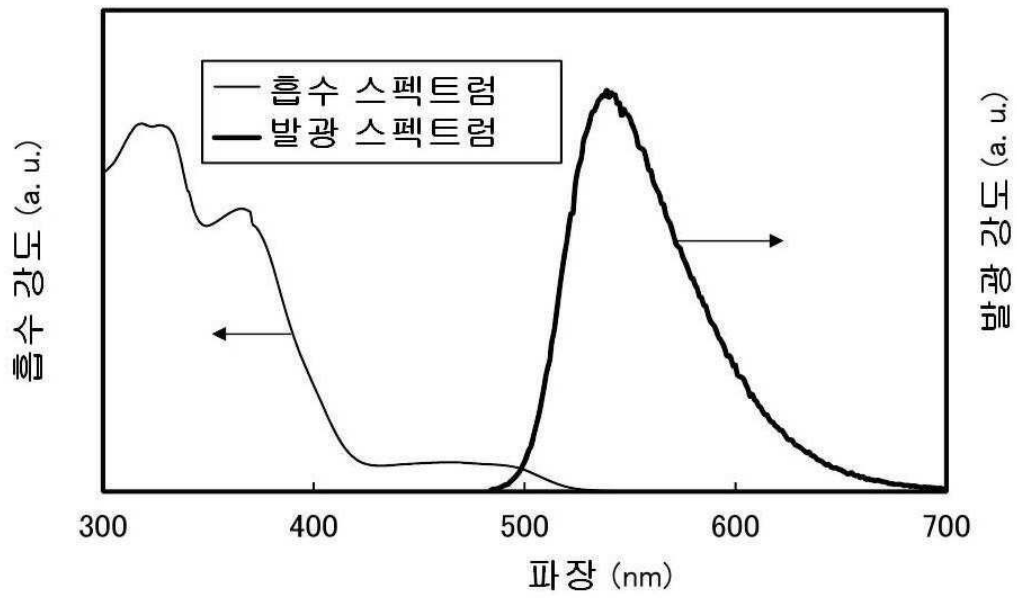
도면11



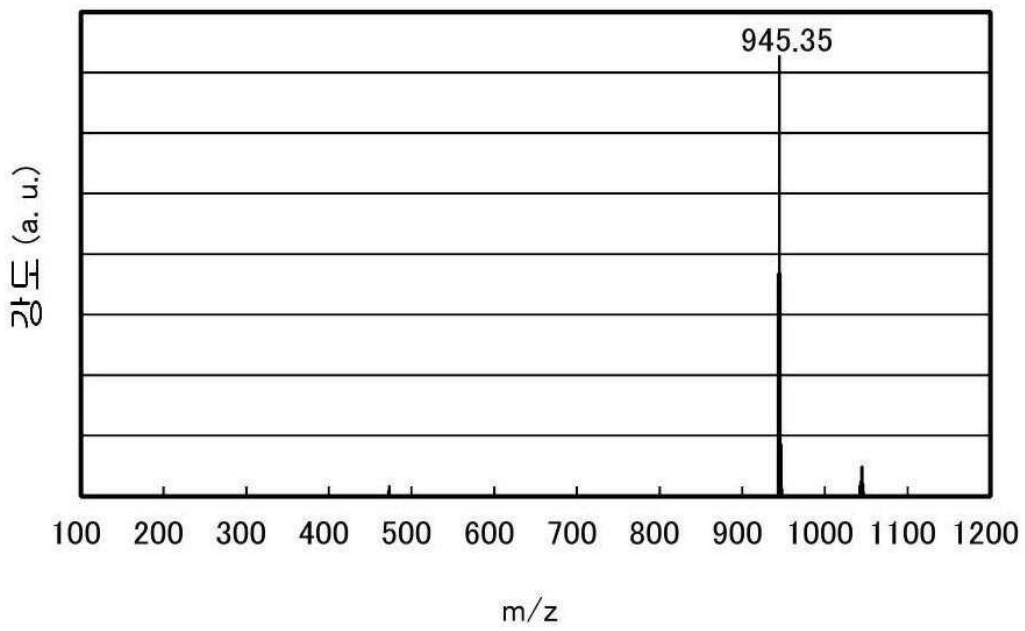
도면12



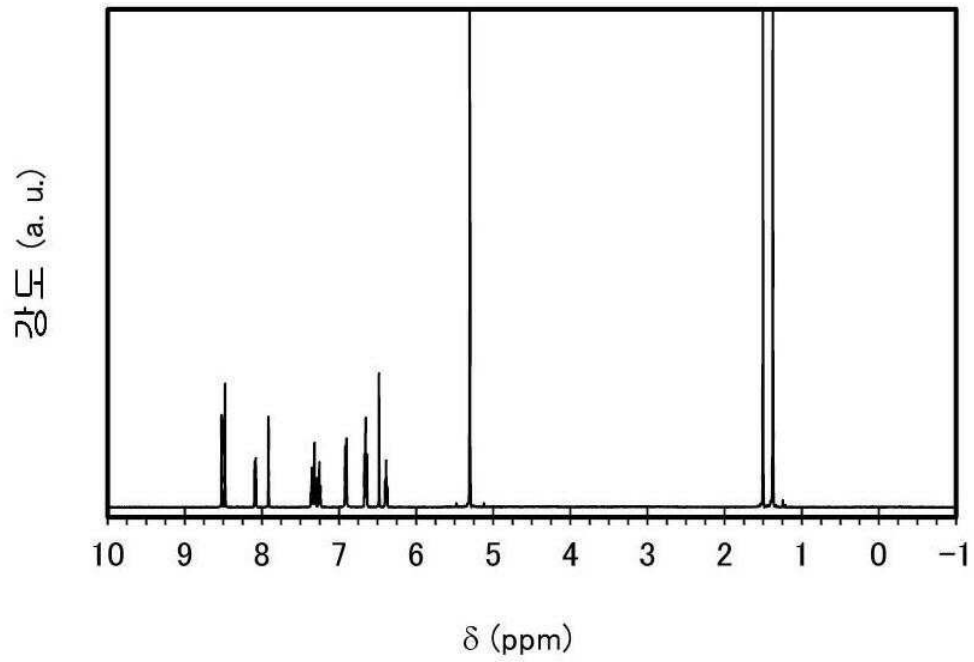
도면13



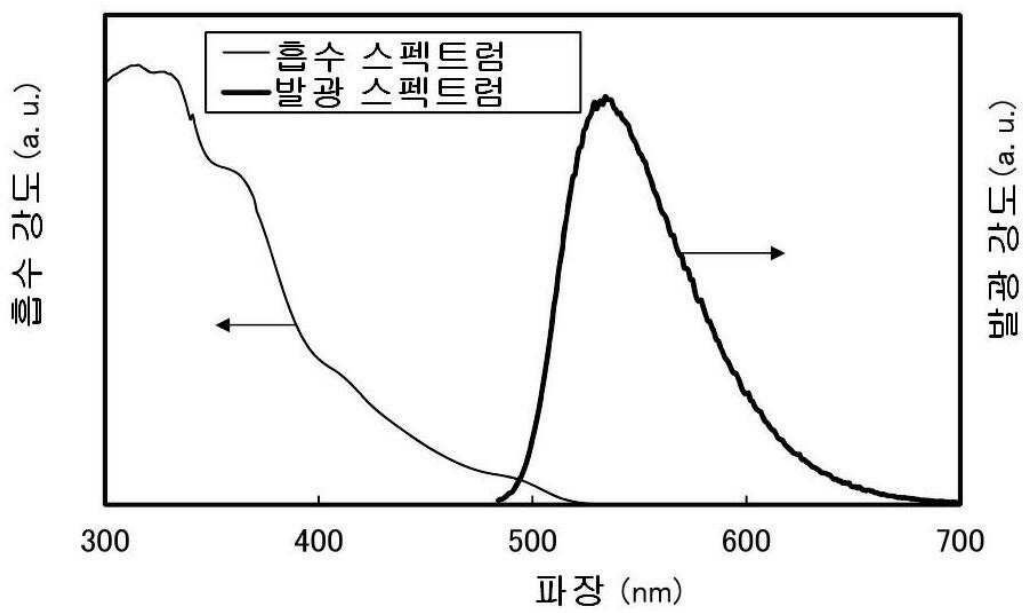
도면14



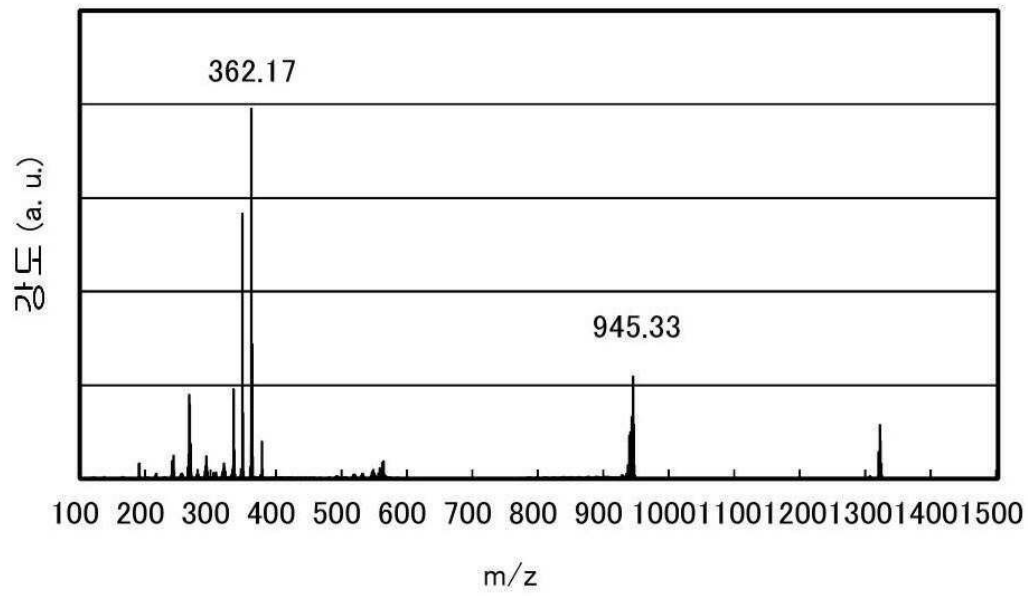
도면15



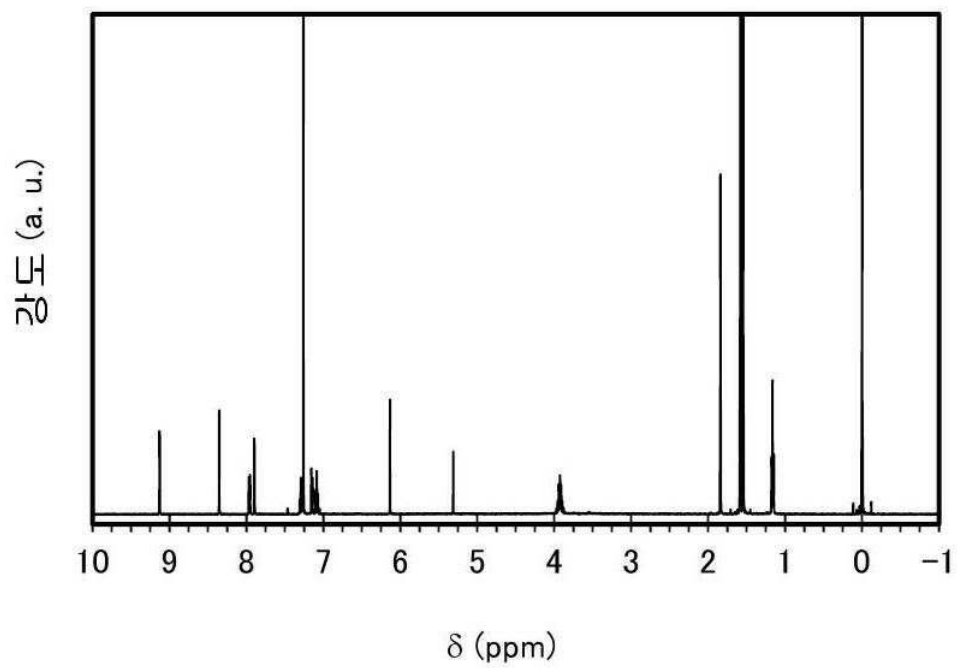
도면16



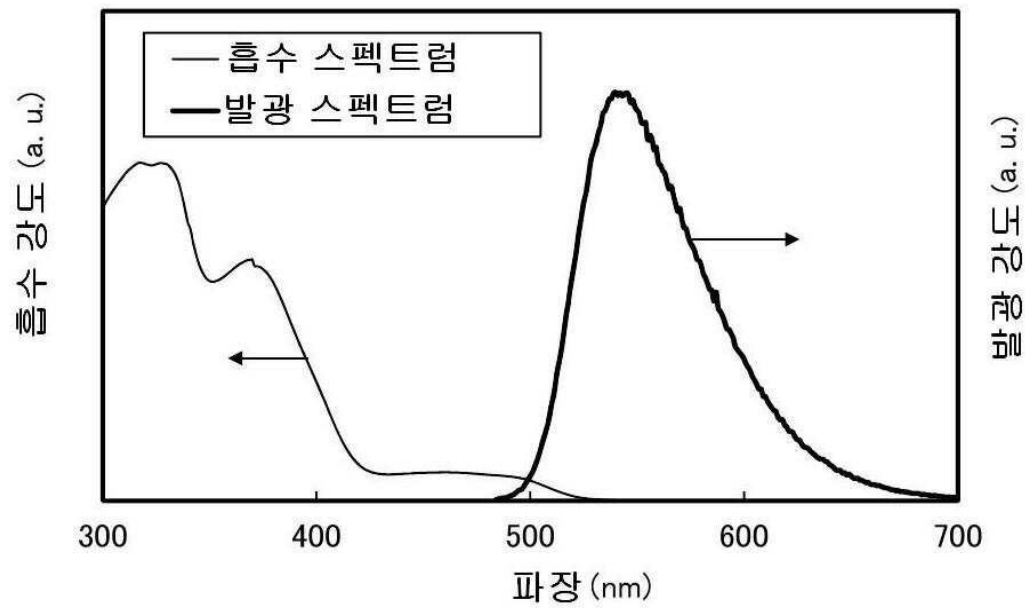
도면17



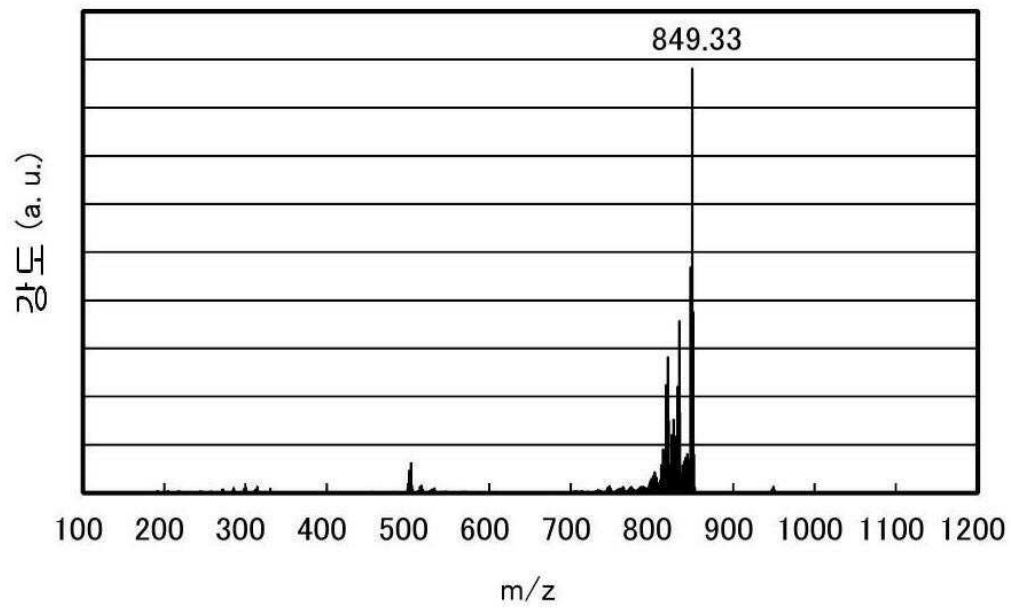
도면18



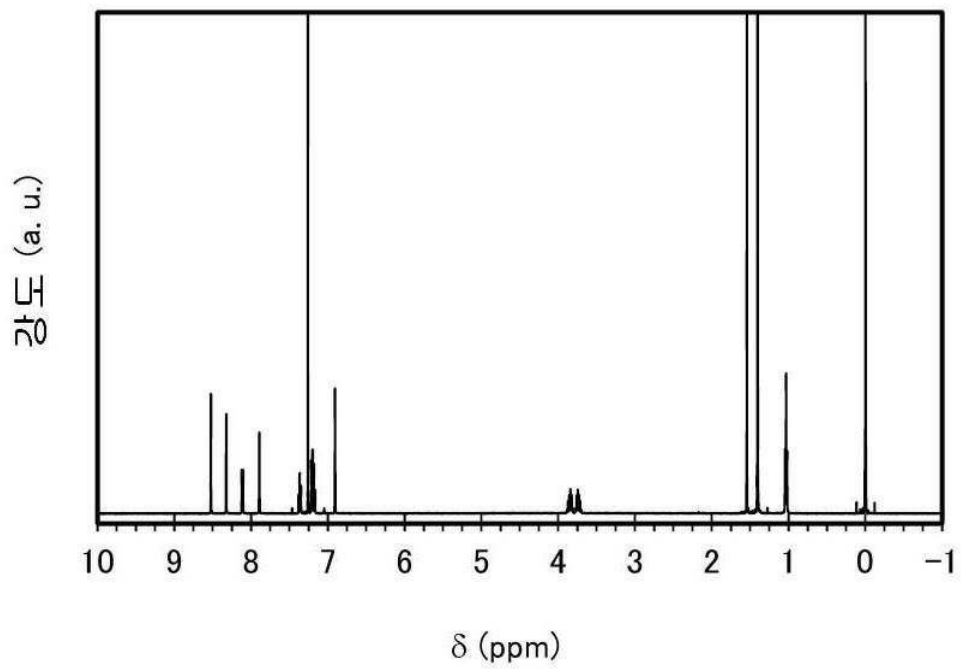
도면19



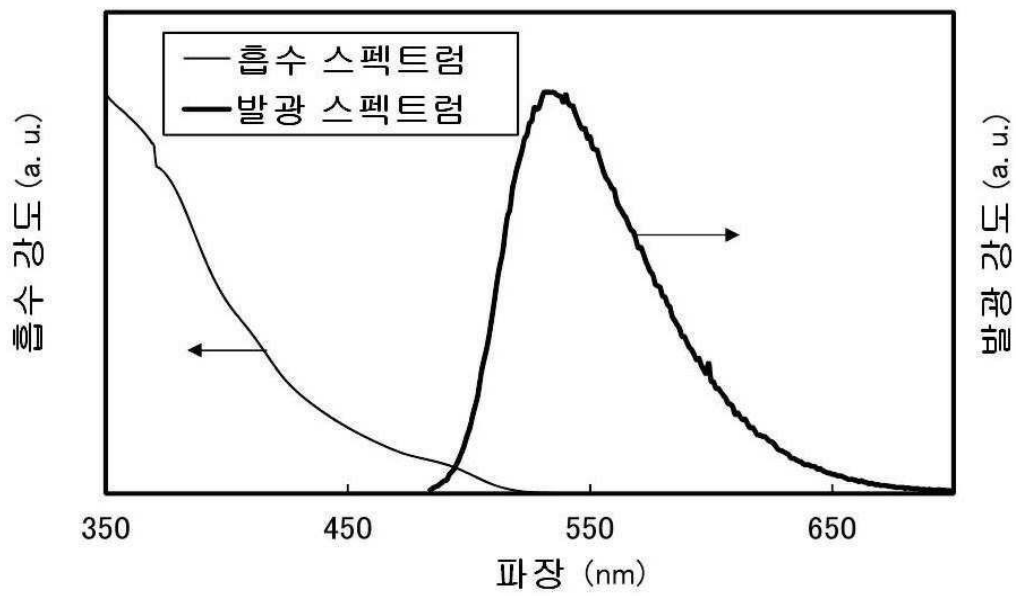
도면20



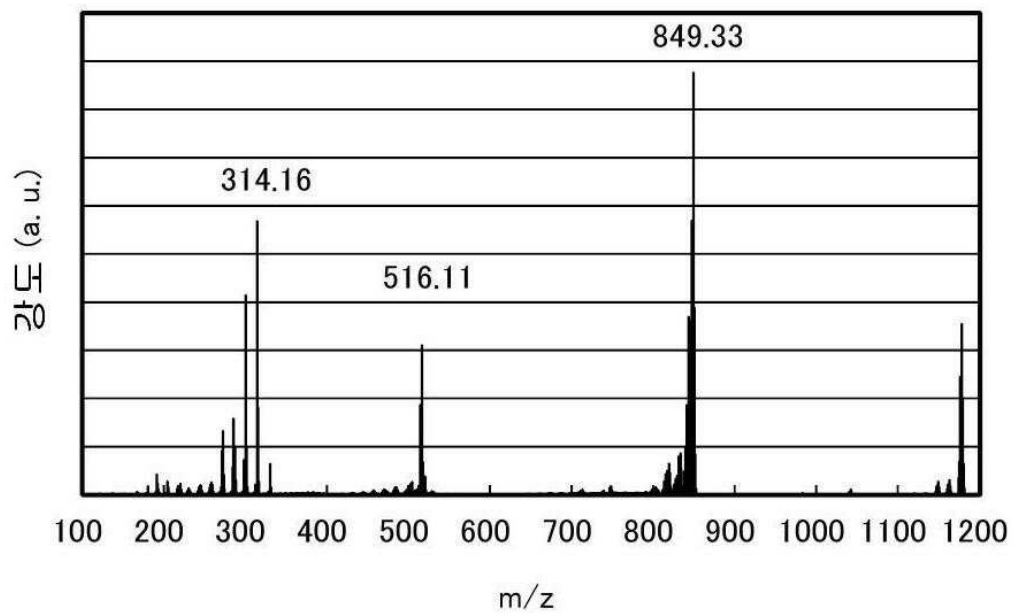
도면21



도면22

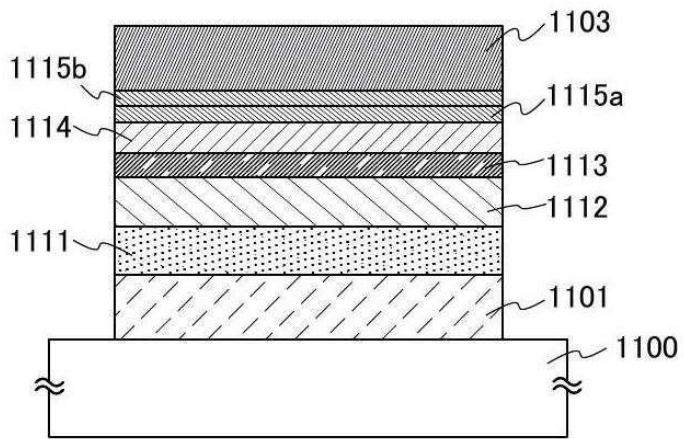


도면23

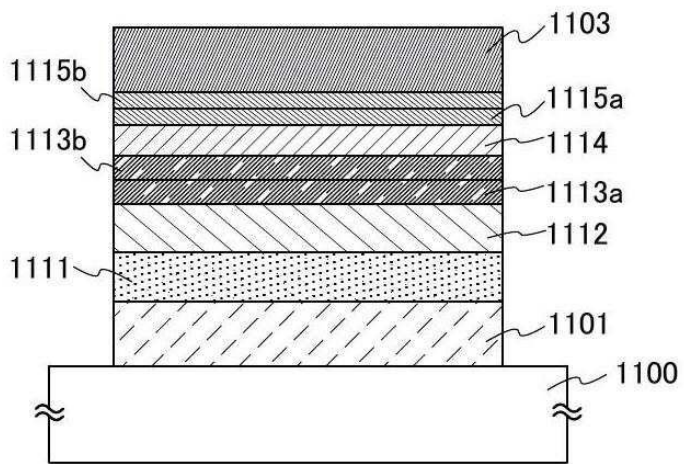


도면24

(A)

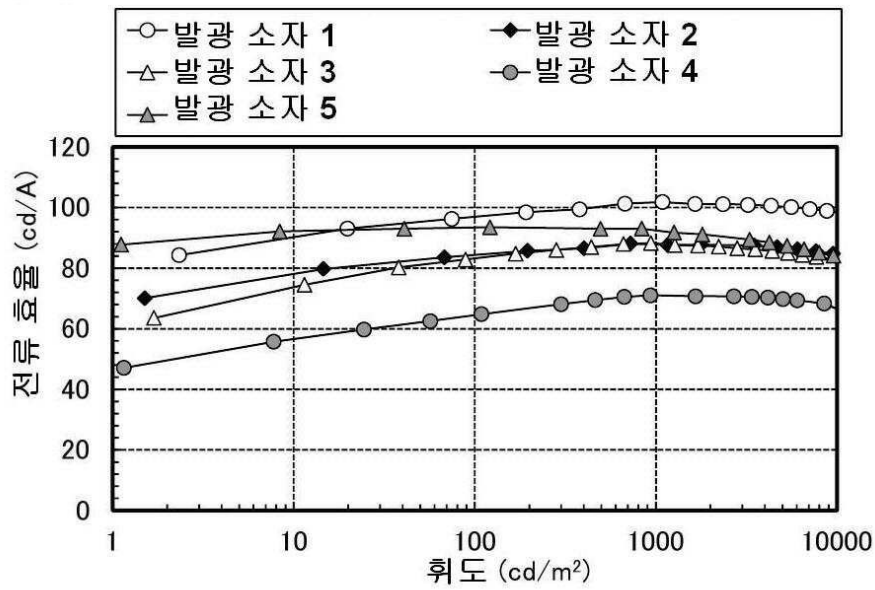


(B)

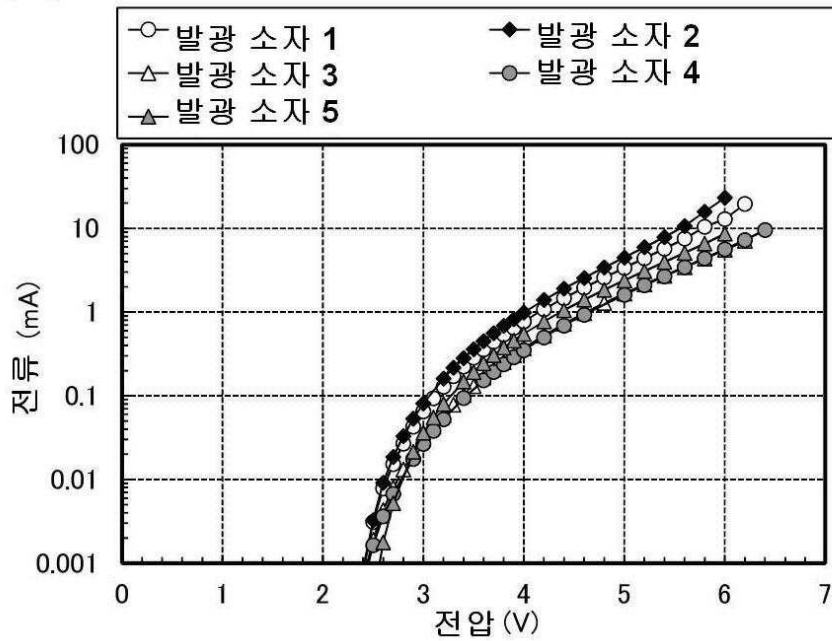


도면25

(A)

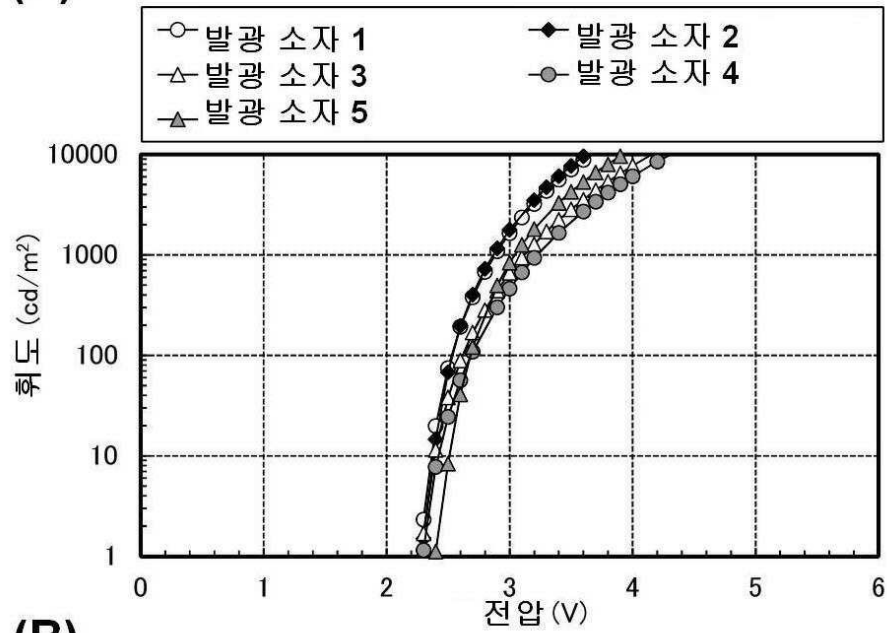


(B)

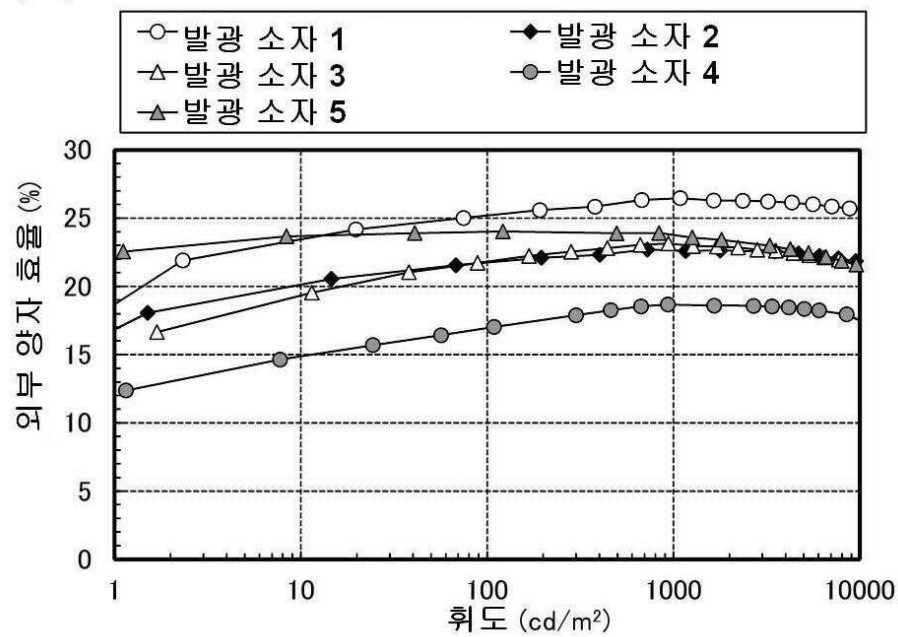


도면26

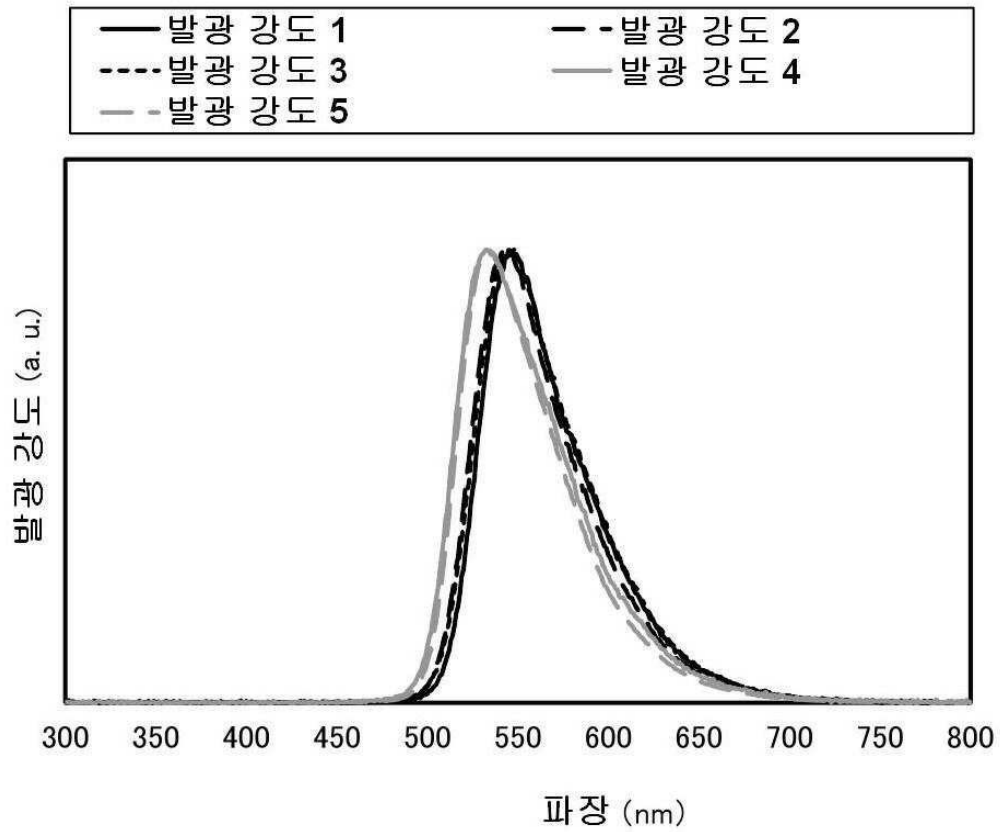
(A)



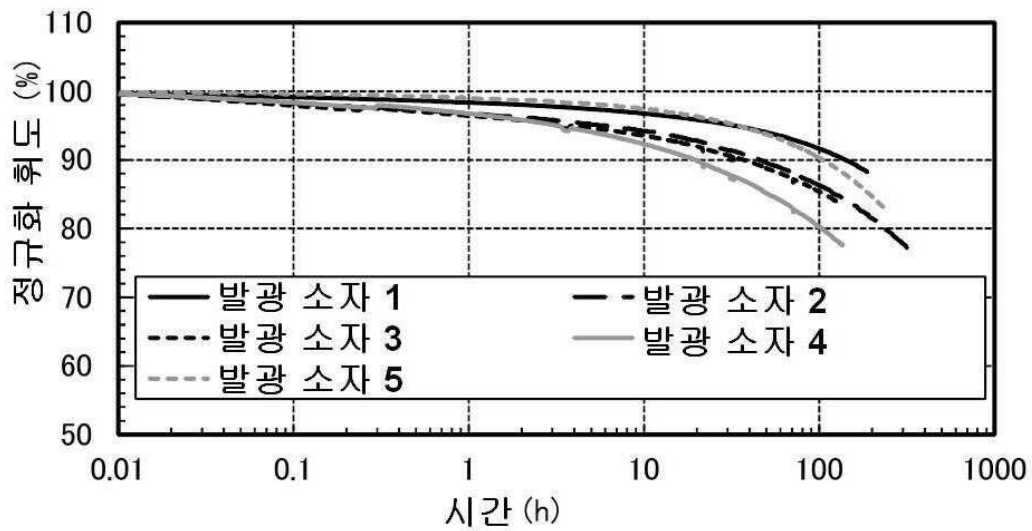
(B)



도면27

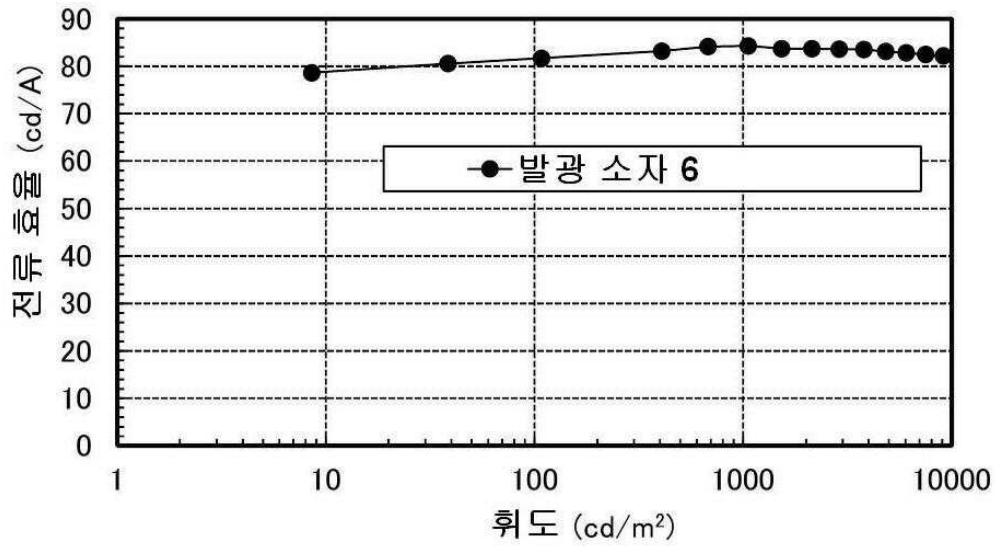


도면28

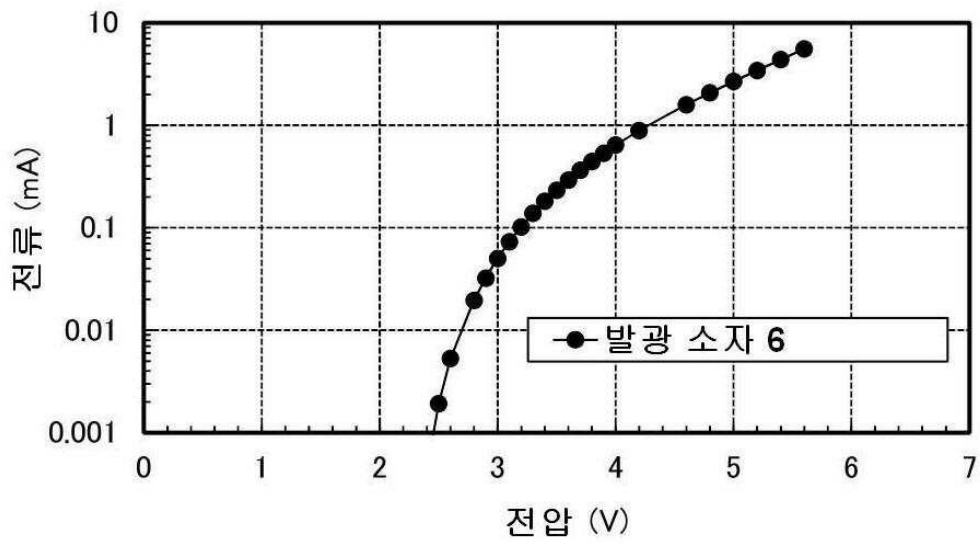


도면29

(A)

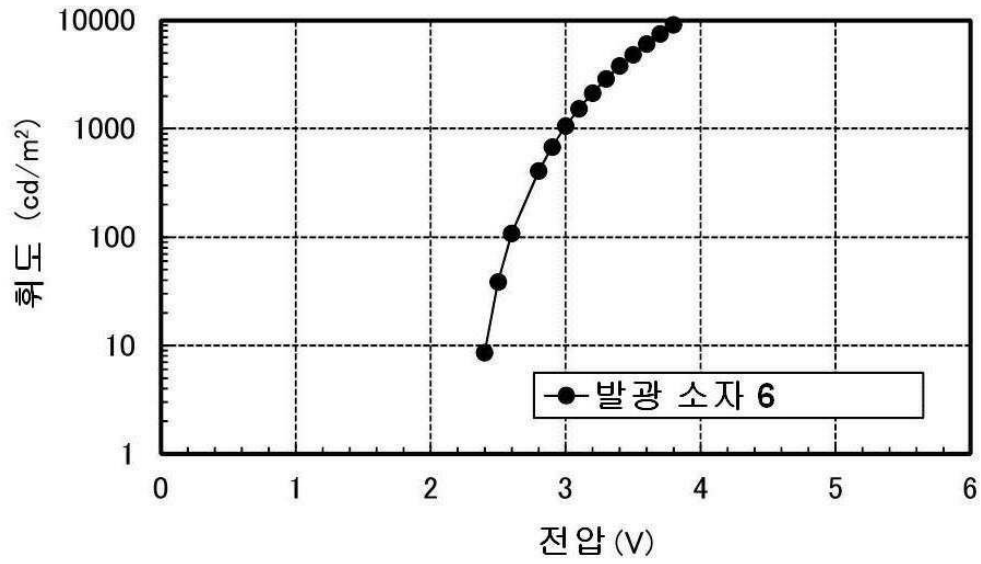


(B)

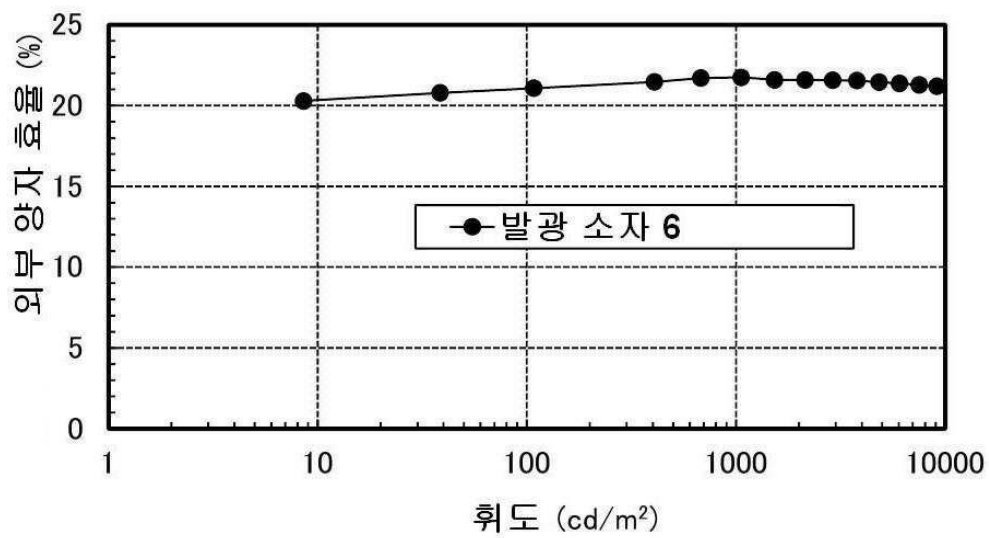


도면30

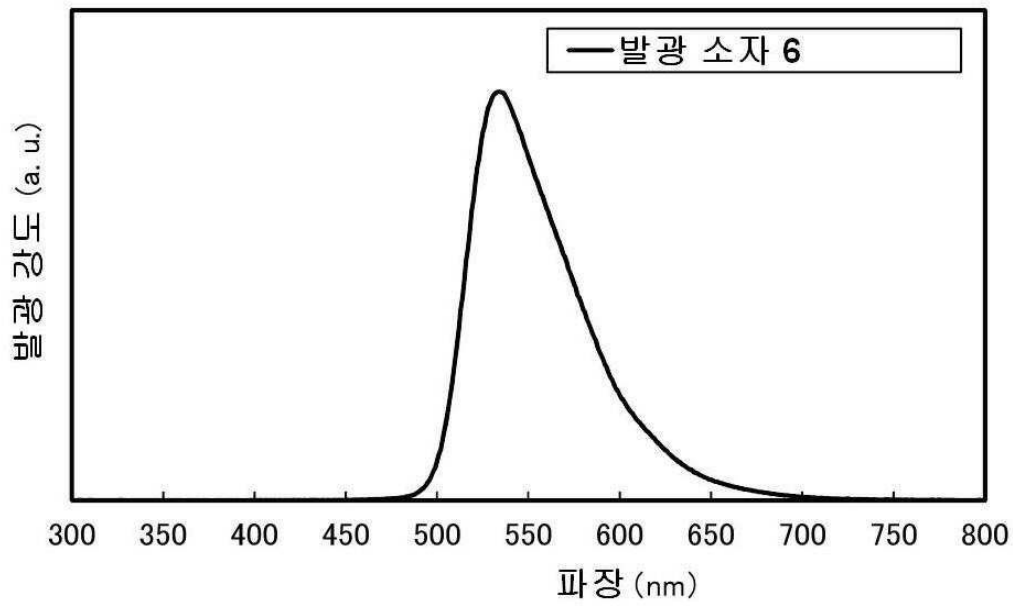
(A)



(B)



도면31



도면32

