



(19) 대한민국특허청(KR)  
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2017-0119562  
(43) 공개일자 2017년10월27일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)  
*C09K 11/06* (2006.01) *C07F 15/00* (2006.01)  
*C09K 11/02* (2006.01) *H01L 51/00* (2006.01)  
*H01L 51/50* (2006.01)

(52) CPC특허분류  
*C09K 11/06* (2013.01)  
*C07F 15/0033* (2013.01)  
(21) 출원번호 10-2016-0047762  
(22) 출원일자 2016년04월19일  
심사청구일자 2016년04월19일

(71) 출원인  
포항공과대학교 산학협력단  
경상북도 포항시 남구 청암로 77 (지곡동)  
(72) 발명자  
정운룡  
경상북도 포항시 남구 청암로 77 포항공과대학교  
신소재공학과  
신상배  
경상북도 포항시 남구 효자동길10번길 36 503호  
(74) 대리인  
이수열

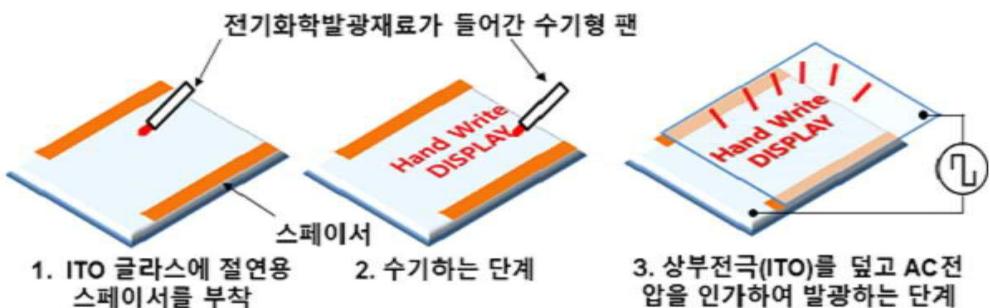
전체 청구항 수 : 총 20 항

(54) 발명의 명칭 전기화학 발광물질 젤 및 그를 이용한 수기 및 인쇄형 전기화학 발광소자의 제조방법

### (57) 요 약

본 발명은 녹색(green), 적색(red) 및 청색(blue) 중에서 선택된 어느 하나의 발광물질, 고분자 및 유기용매를 포함하는 발광물질 젤에 관한 것이다. 본 발명의 발광물질 젤은 고분자를 이용하여 점도를 조절할 수 있다. 또한, 이와 같은 발광물질 젤을 이용하여 수기 또는 인쇄로 전기화학 발광소자의 발광패턴층을 형성함으로써, 본 발명의 전기화학 발광소자는 임의의 형태로 디자인할 수 있고, 특별한 장비 없이 단시간 및 저비용으로 제조할 수 있다.

대 표 도 - 도1



(52) CPC특허분류

*C09K 11/02* (2013.01)

*H01L 51/0003* (2013.01)

*H01L 51/0004* (2013.01)

*H01L 51/0085* (2013.01)

*H01L 51/5012* (2013.01)

*C09K 2211/185* (2013.01)

---

## 명세서

### 청구범위

#### 청구항 1

녹색(green), 적색(red) 및 청색(blue) 중에서 선택된 어느 하나의 발광물질, 고분자 및 유기용매를 포함하는 발광물질 젤.

#### 청구항 2

제1항에 있어서,

상기 고분자가 폴리비닐아세테이트(polyvinyl acetate), 폴리에틸렌 글리콜(polyethylene glycol), 폴리비닐파롤리돈(polyvinyl pirrolidone) 및 폴리메틸 메타크릴레이트(polymethyl methacrylate) 중에서 선택된 1종 이상을 포함하는 것을 특징으로 하는 발광물질 젤.

#### 청구항 3

제2항에 있어서,

상기 폴리비닐아세테이트의 중량평균분자량( $M_w$ )이 50,000 내지 600,000인 것을 특징으로 하는 발광물질 젤.

#### 청구항 4

제2항에 있어서,

상기 폴리에틸렌글리콜의 수평균분자량( $M_n$ )이 1,000 내지 35,000인 것을 특징으로 하는 발광물질 젤.

#### 청구항 5

제2항에 있어서,

상기 고분자 폴리비닐파롤리돈의 중량평균분자량( $M_w$ )이 10,000 내지 1,300,000인 것을 특징으로 하는 발광물질 젤.

#### 청구항 6

제1항에 있어서,

상기 유기용매가 EMIM TFSI(1-Ethyl-3-methylimidazolium bis(trifluoromethylsulfonyl)imide), BMIM TFSI(1-Butyl-3-methylimidazolium bis(trifluoromethylsulfonyl)imide), NMP(N-Methyl-2-pyrrolidone), 에틸알코올, 에틸아세테이트 및 아세토니트릴 중에서 선택된 1종 이상을 포함하는 것을 특징으로 하는 발광물질 젤.

#### 청구항 7

제6항에 있어서,

상기 발광물질 젤이 유기용매 100 중량부에 대하여, 고분자 5 내지 20 중량부를 포함하는 것을 특징으로 하는 발광물질 젤.

#### 청구항 8

제1항에 있어서,

상기 녹색 발광물질이  $\text{Ir}(\text{diFppy})_2(\text{bpy})\text{PF}_6$ ( $\text{Ir}(2-(2',4'-\text{difluorophenyl})\text{pyridine})_2(2,2'\text{-bipyridyl})\text{PF}_6$ )인 것을 특징으로 하는 발광물질 젤.

#### 청구항 9

제1항에 있어서,

상기 적색 발광물질이  $\text{Ru}(\text{bpy})_3^{2+}$  (Tris(2,2'-bipyridyl)dichlororuthenium(II) hexahydrate) 및  $\text{Ru}(\text{bpy})_3(\text{PF}_6)_2$  (Tris(2,2'-bipyridine)ruthenium(II) hexafluorophosphate) 중에서 선택된 1종 이상을 포함하는 것을 특징으로 하는 발광물질 젤.

### 청구항 10

제1항에 있어서,

상기 청색 발광물질이 9,10-디페닐안트라센(9,10-diphenylanthracene)인 것을 특징으로 하는 발광물질 젤.

### 청구항 11

제1항에 있어서,

상기 녹색, 적색 및 청색 중에서 선택된 1종 이상의 발광물질이 상기 발광물질 젤 전체 100 wt%에 대하여, 0.1 내지 5 wt%로 포함되는 것을 특징으로 하는 발광물질 젤.

### 청구항 12

제1항에 있어서,

상기 발광물질 젤이 전해질을 추가로 포함하는 것을 특징으로 하는 발광물질 젤.

### 청구항 13

제12항에 있어서,

상기 전해질이 테트라부틸암모늄 과염소산염(tetrabutyl ammonium perchlorate)인 것을 특징으로 하는 발광물질 젤.

### 청구항 14

제13항에 있어서,

상기 발광물질 젤이 유기용매 100 중량부에 대하여, 전해질 2.5 내지 10 중량부를 추가로 포함하는 것을 특징으로 하는 발광물질 젤.

### 청구항 15

제1 전극;

제2 전극;

제1 전극과 제2 전극 사이에 위치하는 절연스페이서; 및

제1 전극과 제2 전극 사이에 위치하는 제1항에 따른 발광물질 젤을 포함하는 발광패턴층;을 포함하는 전기화학 발광소자.

### 청구항 16

(a) 제1 전극을 제공하는 단계;

(b) 제1 전극 상에 절연 스페이서를 위치시키는 단계;

(c) 제1 전극 상에 제1항에 따른 발광물질 젤을 수기 또는 인쇄를 사용하여 발광패턴층을 형성하는 단계; 및

(d) 상기 절연스페이서 및 발광패턴층 상에 제2 전극을 배치하는 단계;를 포함하는 전기화학 발광소자의 제조방법.

### 청구항 17

제16항에 있어서,

단계 (c)에서 주사기, 웬, 붓 및 노즐 프린터 중에서 선택된 1종 이상을 이용하여 발광패턴층을 형성하는 것을 특징으로 하는 전기화학 발광소자의 제조방법.

### 청구항 18

제16항에 있어서,

상기 절연 스페이서가 접착테이프, 접착제, 접착스프레이 및 양면접착테이프 중에서 선택된 1종 이상을 포함하는 것을 특징으로 하는 전기화학 발광소자의 제조방법.

### 청구항 19

제16항에 있어서,

상기 제1 전극과 제2 전극 사이의 이격거리가 상기 절연 스페이서의 높이에 의해 결정되고, 상기 절연 스페이서의 높이가 10 내지 500  $\mu\text{m}$ 인 것을 특징으로 하는 전기화학 발광소자의 제조방법.

### 청구항 20

제16항에 있어서,

단계 (a)에서 녹색 발광물질을 포함하는 발광물질 젤, 적색 발광물질을 포함하는 발광물질 젤 및 청색을 포함하는 발광물질 젤을 사용하여 동일한 상기 제1 전극 상에 발광패턴층을 형성하는 것을 특징으로 하는 전기화학 발광소자의 제조방법.

## 발명의 설명

### 기술 분야

[0001]

본 발명은 전기화학 발광물질 젤 및 그를 이용한 전기화학 발광소자의 제조방법에 관한 것으로, 보다 상세하게는 발광물질, 고분자 및 유기용매를 포함하는 전기화학 발광물질 젤 및 그를 이용한 전기화학 발광소자의 제조방법에에 관한 것이다.

### 배경 기술

[0002]

일반적인 발광소자인 LED(light emitting diode)와 OLED(organic light emitting diode)는 현재 디스플레이 혹은 조명용 소자로써 사용되고 있으나, 복잡한 제작 공정, 장시간, 고비용 등의 문제점이 있다. 또한 이미지 구현을 위해 복잡한 회로와 마이크로 컨트롤러가 필요하다는 점을 고려하면 단순한 글씨나 그림을 위한 디스플레이 제작 방법으로는 적합하지 않다.

[0003]

전기화학발광의 대표적인 재료로써 DPA(9,10-diphenylanthranece)는 청색발광재료로 1971년 DMF(Dimethylformamide) 용액에 TMPD(N,N,N',N'-Tetramethyl-p-phenylenediamine dihydrochloride)와 혼합한 용액을 이용한 전기화학발광이 최초로 보고되었다. 그 후 1972년  $\text{Ru}(\text{bpy})_3^{2+}$  적색 발광재료와  $\text{TBABF}_4$ (Tetrabutylammoniumtetrafluoroborate)전해질 재료를 아세토니트릴(Acetonitrile)에 혼합한 용액을 이용한 산화, 환원과정을 통한 발광현상이 보고되어 연구를 진행되어 왔으나, 2000년도 중후반 까지는 주로 면역물질 분석시험(Immunoassays) 혹은 DNA 분석 등으로 주로 응용 되어왔다. 그 후, 2009년 일본의 Dai Nippon Printing Co. LTD. 사의 N. Itoh가  $\text{Ru}(\text{d}_8-\text{bpy})_3(\text{PF}_6)_2$ 와 실리카 나노파티클(Silica nanoparticle)을 합성한 젤 형태의 전기화학발광 소자에 대한 연구를 발표 하였다. 최근 연구에서는 이리듐 복합체  $\text{Ir}(\text{diFppy})_2(\text{bpy})\text{PF}_6$ 를 고효율의 녹색 전기화학발광 재료로 구현한 연구가 발표되면서 적, 녹, 청의 삼원색 구현이 가능하게 되었다.

[0004]

그러나, 종래의 전기화학발광 소자는 고가의 장비가 필요하여 제조 비용이 비교적 높았다. 또한, 제조 공정이 간단하지 않고, 임의의 형태로 디자인할 수 없는 문제점이 있었다.

## 발명의 내용

## 해결하려는 과제

[0005] 본 발명의 목적은 상기 문제점을 해결하기 위한 것으로, 고분자를 이용하여 점도를 조절할 수 있는 발광물질 젤을 제공하는 데 있다.

[0006] 또한, 본 발명의 다른 목적은 이와 같은 발광물질 젤을 이용하여 수기 또는 인쇄로 전기화학 발광소자의 발광패턴층을 형성함으로써, 임의의 형태로 디자인할 수 있고, 특별한 장비 없이 저비용으로 제조할 수 있는 전기화학 발광소자의 제조방법을 제공하는 데 있다.

## 과제의 해결 수단

[0007] 본 발명의 일 측면에 따르면,

[0008] 녹색(green), 적색(red) 및 청색(blue) 중에서 선택된 어느 하나의 발광물질, 고분자 및 유기용매를 포함하는 발광물질 젤이 제공된다.

[0009] 상기 고분자가 폴리비닐아세테이트(polyvinyl acetate), 폴리에틸렌 글리콜(polyethylene glycol), 폴리비닐피롤리돈(polyvinyl pirrolidone) 및 폴리메틸 메타크릴레이트(polymethyl methacrylate) 중에서 선택된 1종 이상을 포함할 수 있다.

[0010] 상기 폴리비닐아세테이트의 중량평균분자량( $M_w$ )이 50,000 내지 600,000일 수 있다.

[0011] 상기 폴리에틸렌글리콜의 수평균분자량( $M_n$ )이 1,000 내지 35,000일 수 있다.

[0012] 상기 고분자 폴리비닐피롤리돈의 중량평균분자량( $M_w$ )이 10,000 내지 1,300,000일 수 있다.

[0013] 상기 유기용매가 EMIM TFSI(1-Ethyl-3-methylimidazolium bis(trifluoromethylsulfonyl)imide), BMIM TFSI (1-Butyl-3-methylimidazolium bis(trifluoromethylsulfonyl)imide), NMP(N-Methyl-2-pyrrolidone), 에틸알코올, 에틸아세테이트 및 아세토니트릴 중에서 선택된 1종 이상을 포함할 수 있다.

[0014] 상기 발광물질 젤이 유기용매 100 중량부에 대하여, 고분자 5 내지 20 중량부를 포함할 수 있다.

[0015] 상기 녹색 발광물질이  $\text{Ir}(\text{diFppy})_2(\text{bpy})\text{PF}_6(\text{Ir}(2-(2',4'-difluorophenyl)pyridine)_2(2,2'-bipyridyl)\text{PF}_6}$ 일 수 있다.

[0016] 상기 적색 발광물질이  $\text{Ru}(\text{bpy})_3^{2+}(\text{Tris}(2,2'-bipyridyl)dichlororuthenium(II) hexahydrate)$  및  $\text{Ru}(\text{bpy})_3(\text{PF}_6)_2(\text{Tris}(2,2'-bipyridine)ruthenium(II) hexafluorophosphate)$  중에서 선택된 1종 이상을 포함할 수 있다.

[0017] 상기 청색 발광물질이 9,10-디페닐안트라센(9,10-diphenylanthracene)일 수 있다.

[0018] 상기 녹색, 적색 및 청색 중에서 선택된 1종 이상의 발광물질이 상기 발광물질 젤 전체 100 wt%에 대하여, 0.1 내지 5 wt%로 포함될 수 있다.

[0019] 상기 발광물질 젤이 전해질을 추가로 포함할 수 있다.

[0020] 상기 전해질이 테트라부틸암모늄 과염소산염(tetrabutyl ammonium perchlorate)일 수 있다.

[0021] 상기 발광물질 젤이 유기용매 100 중량부에 대하여, 전해질 2.5 내지 10 중량부를 추가로 포함할 수 있다.

[0022] 본 발명의 다른 하나의 측면에 따르면,

[0023] 제1 전극; 제2 전극; 제1 전극과 제2 전극 사이에 위치하는 절연스페이서; 및 제1 전극과 제2 전극 사이에 위치하는 제1항에 따른 발광물질 젤을 포함하는 발광패턴층;을 포함하는 전기화학 발광소자가 제공된다.

[0024] 본 발명의 다른 또 하나의 측면에 따르면,

[0025] (a) 제1 전극을 제공하는 단계; (b) 제1 전극 상에 절연 스페이서를 위치시키는 단계; (c) 제1 전극 상에 제1항에 따른 발광물질 젤을 수기 또는 인쇄를 사용하여 발광패턴층을 형성하는 단계; 및 (d) 상기 절연스페이서 및 발광패턴층 상에 제2 전극을 배치하는 단계;를 포함하는 전기화학 발광소자의 제조방법이 제공된다.

- [0026] 단계 (c)에서 주사기, 펜, 붓 및 노즐 프린터 중에서 선택된 1종 이상을 이용하여 발광패턴층을 형성할 수 있다.
- [0027] 상기 절연 스페이서가 접착테이프, 접착제, 접착스프레이 및 양면접착테이프 중에서 선택된 1종 이상을 포함할 수 있다.
- [0028] 상기 제1 전극과 제2 전극 사이의 이격거리가 상기 절연 스페이서의 높이에 의해 결정되고, 상기 절연 스페이서의 높이가 10 내지 500  $\mu\text{m}$ 일 수 있다.
- [0029] 단계 (c)에서 녹색 발광물질을 포함하는 발광물질 젤, 적색 발광물질을 포함하는 발광물질 젤 및 청색을 포함하는 발광물질 젤을 사용하여 동일한 상기 제1 전극 상에 발광패턴층을 형성할 수 있다.
- [0030] 상기 전기화학 발광소자에 인가되는 교류 주파수가 50 내지 1,000 Hz일 수 있다.

### 발명의 효과

- [0031] 본 발명의 발광물질 젤은 고분자를 이용하여 점도를 조절할 수 있다.
- [0032] 또한, 이와 같은 발광물질 젤을 이용하여 수기 또는 인쇄로 전기화학 발광소자의 발광패턴층을 형성함으로써, 본 발명의 전기화학 발광소자는 임의의 형태로 디자인할 수 있고, 특별한 장비 없이 저비용으로 제조할 수 있다.

### 도면의 간단한 설명

- [0033] 도 1은 본 발명의 전기화학 발광소자의 제조방법을 개략적으로 나타낸 것이다.
- 도 2는 실시예 1 내지 5에 따라 제조된 적색 발광물질 젤의 휘도특성 및 파장에 따른 빛의 강도를 500 Hz 주파수에서 측정하여 나타낸 것이다.
- 도 3은 실시예 6 내지 10에 따라 제조된 녹색 발광물질 젤의 휘도특성 및 파장에 따른 빛의 강도를 500 Hz 주파수에서 측정하여 나타낸 것이다.
- 도 4는 실시예 11 내지 16에 따라 제조된 청색 발광물질 젤의 휘도특성 및 파장에 따른 빛의 강도를 500 Hz 주파수에서 측정하여 나타낸 것이다.
- 도 5는 본 발명의 전기화학 발광소자의 제조과정 및 발광 사진이다.

### 발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0034] 본 발명은 다양한 변환을 가할 수 있고 여러 가지 실시예를 가질 수 있는 바, 특정 실시예들을 예시하고 상세한 설명에 상세하게 설명하고자 한다. 그러나, 이는 본 발명을 특정한 실시 형태에 대해 한정하려는 것이 아니며, 본 발명의 사상 및 기술 범위에 포함되는 모든 변환, 균등물 내지 대체물을 포함하는 것으로 이해되어야 한다. 본 발명을 설명함에 있어서 관련된 공지 기술에 대한 구체적인 설명이 본 발명의 요지를 흐릴 수 있다고 판단되는 경우 그 상세한 설명을 생략한다.
- [0035] 또한, 이하에서 사용될 제1, 제2 등과 같이 서수를 포함하는 용어는 다양한 구성요소들을 설명하는데 사용될 수 있지만, 상기 구성요소들은 상기 용어들에 의해 한정되지는 않는다. 상기 용어들은 하나의 구성요소를 다른 구성요소로부터 구별하는 목적으로만 사용된다. 예를 들어, 본 발명의 권리 범위를 벗어나지 않으면서 제1 구성요소는 제2 구성요소로 명명될 수 있고, 유사하게 제2 구성요소도 제1 구성요소로 명명될 수 있다.
- [0036] 또한, 어떤 구성요소가 다른 구성요소 상에 "형성되어" 있다거나 "적층되어" 있다고 언급된 때에는, 그 다른 구성요소의 표면 상의 전면 또는 일면에 직접 부착되어 형성되어 있거나 적층되어 있을 수도 있지만, 중간에 다른 구성요소가 더 존재할 수도 있다고 이해되어야 할 것이다.
- [0037] 단수의 표현은 문맥상 명백하게 다르게 뜻하지 않는 한, 복수의 표현을 포함한다. 본 출원에서, "포함하다" 또는 "가지다" 등의 용어는 명세서상에 기재된 특징, 숫자, 단계, 동작, 구성요소, 부품 또는 이들을 조합한 것이 존재함을 지정하려는 것이지, 하나 또는 그 이상의 다른 특징들이나 숫자, 단계, 동작, 구성요소, 부품 또는 이들을 조합한 것들의 존재 또는 부가 가능성을 미리 배제하지 않는 것으로 이해되어야 한다.

- [0039] 이하, 본 발명의 발광물질 젤에 대해서 설명하도록 한다. 다만, 이는 예시로서 제시되는 것으로, 이에 의해 본 발명이 제한되지는 않으며 본 발명은 후술할 청구범위의 범주에 의해 정의될 뿐이다.
- [0041] 본 발명의 발광물질 젤은 녹색(green), 적색(red) 및 청색(blue) 중에서 선택된 어느 하나의 발광물질, 고분자 및 유기용매를 포함할 수 있다.
- [0042] 상기 고분자는 폴리비닐아세테이트(polyvinyl acetate), 폴리에틸렌 글리콜(polyethylene glycol), 폴리비닐파롤리돈(polyvinyl pyrrolidone), 폴리메틸 메타크릴레이트(polymethyl methacrylate) 등이 가능하나, 바람직하게는 폴리비닐아세테이트, 폴리에틸렌 글리콜 및 폴리비닐파롤리돈일 수 있다.
- [0043] 상기 폴리비닐아세테이트의 중량평균분자량( $M_w$ )은 50,000 내지 600,000일 수 있으며, 바람직하게는 100,000 내지 600,000, 더욱 바람직하게는 300,000 내지 600,000일 수 있고, 더욱 더 바람직하게는 약 500,000일 수 있다.
- [0044] 상기 폴리에틸렌글리콜의 수평균분자량( $M_n$ )은 1,000 내지 35,000일 수 있으며, 바람직하게는 5,000 내지 20,000, 더욱 바람직하게는 8,000 내지 15,000일 수 있고, 더욱 더 바람직하게는 약 10,000일 수 있다.
- [0045] 상기 고분자 폴리비닐파롤리돈의 중량평균분자량( $M_w$ )은 10,000 내지 1,300,000일 수 있으며, 바람직하게는 100,000 내지 1,000,000, 더욱 바람직하게는 200,000 내지 500,000일 수 있고, 더욱 더 바람직하게는 약 360,000일 수 있다.
- [0046] 상기 유기용매는 EMIM TFSI(1-Ethyl-3-methylimidazolium bis(trifluoromethylsulfonyl)imide), BMIM TFSI (1-Butyl-3-methylimidazolium bis(trifluoromethylsulfonyl)imide), NMP(N-Methyl-2-pyrrolidone), 에틸알코올, 에틸아세테이트, 아세토니트릴 등이 가능하나, 바람직하게는 EMIM TFSI 또는 NMP일 수 있다.
- [0047] 상기 발광물질 젤이 유기용매 100 중량부에 대하여, 고분자 5 내지 20 중량부를 포함할 수 있고, 바람직하게는 7 내지 18 중량부, 더욱 바람직하게는 10 내지 15 중량부 포함할 수 있다.
- [0048] 상기 녹색 발광물질은  $\text{Ir}(\text{diFppy})_2(\text{bpy})\text{PF}_6$ ( $\text{Ir}(2-(2',4'-difluorophenyl)pyridine)_2(2,2'-bipyridyl)\text{PF}_6$ )일 수 있다.
- [0049] 상기 적색 발광물질은  $\text{Ru}(\text{bpy})_3^{2+}$ (Tris(2,2'-bipyridyl)dichlororuthenium(II) hexahydrate),  $\text{Ru}(\text{bpy})_3(\text{PF}_6)_2$ (Tris(2,2'-bipyridine)ruthenium(II) hexafluorophosphate) 등이 가능하나, 바람직하게는  $\text{Ru}(\text{bpy})_3^{2+}$ 일 수 있다.
- [0050] 상기 청색 발광물질은 9,10-디페닐안트라센(9,10-diphenylanthracene)일 수 있다.
- [0051] 상기 발광물질 젤은 전해질을 추가로 포함할 수 있다.
- [0052] 상기 전해질은 테트라부틸암모늄 과염소산염(tetrabutyl ammonium perchlorate)일 수 있다.
- [0053] 상기 발광물질 젤은 유기용매 100 중량부에 대하여, 전해질 2.5 내지 10 중량부를 추가로 포함할 수 있다.
- [0055] 또한, 본 발명은 상기 발광물질 젤을 포함하는 전기화학 발광소자를 제공할 수 있다.
- [0056] 본 발명의 전기화학 발광소자는 제1 전극; 제2 전극; 제1 전극과 제2 전극 사이에 위치하는 절연스페이서; 및 제1 전극과 제2 전극 사이에 위치하는 제1항에 따른 발광물질 젤을 포함하는 발광패턴층;을 포함할 수 있다.
- [0058] 도 1은 본 발명의 전기화학 발광소자의 제조방법을 개략적으로 나타낸 것이다. 여기서, 제1 전극 및 제2 전극은 ITO로 한정하고, 발광패턴층은 수기로 형성하는 것으로 예시하였으나 본 발명이 이에 한정되지는 않는다.
- [0060] 이하, 도 1을 참조하여 본 발명의 전기화학 발광소자의 제조방법을 설명하도록 한다.

- [0061] 먼저, 제1 전극을 제공한다(단계 a).
- [0062] 다음으로, 제1 전극 상에 절연 스페이서를 위치시킨다(단계 b).
- [0063] 상기 절연 스페이서는 접착테이프, 접착제, 접착스프레이, 양면접착테이프 등이 가능하며, 바람직하게는 접착테이프 일 수 있다.
- [0064] 상기 절연 스페이서는 폴리이미드, 폴리에틸렌테레프탈레이트, 폴리염화비닐 등을 포함할 수 있고, 바람직하게는 폴리이미드를 포함할 수 있다.
- [0065] 다음으로, 제1 전극 상에 제1항에 따른 발광물질 젤을 수기 또는 인쇄를 사용하여 발광패턴층을 형성한다(단계 c).
- [0066] 좀 더 상세히 설명하면, 상기 발광패턴층은 상기 발광물질 젤과 주사기, 펜, 붓, 노즐프린터 등을 이용하여 형성할 수 있어, 임의의 형태로 디자인이 가능할 수 있으며, 구체적으로는 문자, 도형, 패턴화된 형상 또는 그림 등이 될 수 있으며 이에 제한되는 것은 아니다. 또한, 한 시간 이상의 장시간 유기용매 건조 공정, 전극 패터닝 공정 등이 필요 없어 수분 이내의 간단한 공정으로 발광패턴층 형성이 가능할 수 있다.
- [0067] 다음으로, 상기 절연스페이서 및 발광패턴층 상에 제2 전극을 배치한다(단계 d).
- [0068] 상기 제1 전극과 제2 전극 사이의 이격거리는 상기 절연 스페이서의 높이에 의해 결정될 수 있으며, 상기 절연 스페이서의 높이는 10 내지 500  $\mu\text{m}$ 일 수 있고, 바람직하게는 25 내지 400  $\mu\text{m}$ , 더욱 바람직하게는 50 내지 100  $\mu\text{m}$ 일 수 있다.
- [0069] 상기 전기화학 발광소자의 구동을 위한 교류 주파수는 50 내지 1,000 Hz일 수 있으며, 바람직하게는 100 내지 900 Hz, 더욱 바람직하게는 200 내지 700 Hz일 수 있다.
- [0070] 상기 전기화학 발광소자에 인가되는 교류전압은 발광면적의 크기에 따라 4 내지 12 Vpp일 수 있고, 바람직하게는 2 x 2 mm 크기에서 4 내지 6 Vpp 일 수 있다.

#### [0072] [실시예]

- [0073] 이하, 실시예를 통하여 본 발명을 더욱 구체적으로 설명한다. 그러나, 이는 예시를 위한 것으로서 이에 의하여 본 발명의 범위가 한정되는 것이 아니다.

#### [0075] 실시예 1: 적색 발광물질 젤의 제조

- [0076] EMIM TFSI(1-Ethyl-3-methylimidazolium bis(trifluoromethylsulfonyl)imide, Sigma Aldrich 사), 폴리비닐아세테이트(PVAc, polyvinyl acetate, 중량평균분자량: 500,000, Sigma Aldrich 사) 및 에틸알코올(Ethyl alcohol, Sigma Aldrich 사)을 10:1:1의 비율로 혼합한 후, 적색 발광물질  $\text{Ru}(\text{bpy})_3^{2+}$ (Tris(2,2'-bipyridyl)dichlororuthenium(II) hexahydrate, Sigma Aldrich 사)를 전체 적색 발광물질 젤의 1 wt%가 되도록 첨가한 후 60°C의 열을 가하여 용해하여 적색 발광물질 젤을 제조하였다.

#### [0078] 실시예 2: 적색 발광물질 젤의 제조

- [0079] 적색 발광물질을 전체 적색 발광물질 젤의 1 wt%가 아닌 2 wt%가 되도록 첨가한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방법으로 적색 발광물질 젤을 제조하였다.

#### [0081] 실시예 3: 적색 발광물질 젤의 제조

- [0082] 적색 발광물질을 전체 적색 발광물질 젤의 1 wt%가 아닌 3 wt%가 되도록 첨가한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방법으로 적색 발광물질 젤을 제조하였다.

[0084] 실시예 4: 적색 발광물질 젤의 제조

적색 발광물질을 전체 적색 발광물질 젤의 1 wt%가 아닌 4 wt%가 되도록 첨가한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방법으로 적색 발광물질 젤을 제조하였다.

[0087] 실시예 5: 적색 발광물질 젤의 제조

적색 발광물질을 전체 적색 발광물질 젤의 1 wt%가 아닌 5 wt%가 되도록 첨가한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 방법으로 적색 발광물질 젤을 제조하였다.

[0090] 실시예 6: 녹색 발광물질 젤의 제조

EMIM TFSI, 폴리비닐아세테이트, 폴리에틸렌 글리콜(Polyethylene glycol, 수평균분자량: 10,000, Sigma Aldrich 사), 테트라부틸암모늄 과염소산염(TBAP, tetrabutyl ammonium perchlorate, Sigma Aldrich 사) 및 에틸아세테이트(ethyl acetate, Sigma Aldrich 사)를 10:1:1:1:2의 비율로 혼합한 후, 녹색 발광물질 이리듐복합체( $\text{Ir}(\text{diFppy})_2(\text{bpy})\text{PF}_6$ )를 전체 녹색 발광물질 젤의 1 wt%가 되도록 첨가한 후 60°C의 열을 가하여 용해하여 녹색 발광물질 젤을 제조하였다.

상기 녹색 발광물질 이리듐복합체( $\text{Ir}(\text{diFppy})_2(\text{bpy})\text{PF}_6$ )를 제조하기 위해, Iridium(III) chloride hydrate( $\text{IrCl}_3\text{xH}_2\text{O}$ , Sigma Aldrich사)와 2-(2,4-Difluorophenyl)pyridine(Sigma Aldrich사)를 1:2 몰수 비율로 4:1 비율의 2-ethoxyethanol(Sigma Aldrich사)과 물을 용매로 하여 녹인 후 환류장치에서 120°C의 온도로 24시간 동안 반응 시켜 반응 용액을 제조하였다. 상기 반응 용액에서 용매를 제거한 침전물과 2,2'-Bipyridyl(Sigma Aldrich사)을 에틸렌글리콜을 용매로 1:2의 몰수비율로 넣은 후 환류장치에서 150°C의 온도에서 20시간 동안 반응 시켜 주었다. 이어서, 6배 몰수이상의  $\text{NH}_4\text{PF}_6$ 가 녹아있는 물에 첨가하여 침전물을 얻은 후 건조하여 녹색 발광물질 이리듐복합체를 얻었다.

[0094] 실시예 7: 녹색 발광물질 젤의 제조

녹색 발광물질을 전체 녹색 발광물질 젤의 1 wt%가 아닌 2 wt%가 되도록 첨가한 것을 제외하고는 실시예 6과 동일한 방법으로 녹색 발광물질 젤을 제조하였다.

[0097] 실시예 8: 녹색 발광물질 젤의 제조

녹색 발광물질을 전체 녹색 발광물질 젤의 1 wt%가 아닌 3 wt%가 되도록 첨가한 것을 제외하고는 실시예 6과 동일한 방법으로 녹색 발광물질 젤을 제조하였다.

[0100] 실시예 9: 녹색 발광물질 젤의 제조

녹색 발광물질을 전체 녹색 발광물질 젤의 1 wt%가 아닌 4 wt%가 되도록 첨가한 것을 제외하고는 실시예 6과 동일한 방법으로 녹색 발광물질 젤을 제조하였다.

[0103] 실시예 10: 녹색 발광물질 젤의 제조

녹색 발광물질을 전체 녹색 발광물질 젤의 1 wt%가 아닌 5 wt%가 되도록 첨가한 것을 제외하고는 실시예 6과 동일한 방법으로 녹색 발광물질 젤을 제조하였다.

[0106] 실시예 11: 청색 발광물질 젤의 제조

폴리비닐아세테이트, 폴리비닐파롤리돈(PVP, polyvinyl pirrolidone, 중량평균분자량: 360,000, Sigma Aldrich

사), 테트라부틸암모늄 과염소산염 및 노말메틸피로리돈(NMP, N-Methyl-2-pyrrolidone, Sigma Aldrich 사)을 1:1:1:10의 비율로 혼합한 후, 청색 발광물질 9,10-디페닐안트라센(DPA, 9,10-diphenylanthracene, Sigma Aldrich 사)을 전체 청색 발광물질 젤의 1 wt%가 되도록 첨가한 후 60°C의 열을 가하여 용해하여 청색 발광물질 젤을 제조하였다.

[0109] 실시예 12: 청색 발광물질 젤의 제조

청색 발광물질을 전체 청색 발광물질 젤의 1 wt%가 아닌 2 wt%가 되도록 첨가한 것을 제외하고는 실시예 11과 동일한 방법으로 청색 발광물질 젤을 제조하였다.

[0112] 실시예 13: 청색 발광물질 젤의 제조

청색 발광물질을 전체 청색 발광물질 젤의 1 wt%가 아닌 2.5 wt%가 되도록 첨가한 것을 제외하고는 실시예 11과 동일한 방법으로 청색 발광물질 젤을 제조하였다.

[0115] 실시예 14: 청색 발광물질 젤의 제조

청색 발광물질을 전체 청색 발광물질 젤의 1 wt%가 아닌 3 wt%가 되도록 첨가한 것을 제외하고는 실시예 11과 동일한 방법으로 청색 발광물질 젤을 제조하였다.

[0118] 실시예 15: 청색 발광물질 젤의 제조

청색 발광물질을 전체 청색 발광물질 젤의 1 wt%가 아닌 3.5 wt%가 되도록 첨가한 것을 제외하고는 실시예 11과 동일한 방법으로 청색 발광물질 젤을 제조하였다.

[0121] 실시예 16: 청색 발광물질 젤의 제조

청색 발광물질을 전체 청색 발광물질 젤의 1 wt%가 아닌 4 wt%가 되도록 첨가한 것을 제외하고는 실시예 11과 동일한 방법으로 청색 발광물질 젤을 제조하였다.

[0124] 소자 실시예 1: 전기화학 발광소자의 제조

제1 전극인 ITO 상에 높이가 60 $\mu$ m인 폴리이미드 테이프를 부착하여 스페이서가 부착된 제1 전극을 제조하였다. 상기 스페이서가 부착된 제1 전극 상에 실시예 5에 따라 제조된 적색 발광물질 젤(적색 발광물질 5 wt%)을 이용하여 노즐 프린터로 발광패턴층을 형성하여 발광패턴층이 형성된 제1 전극을 제조하였다. 상기 발광패턴층이 형성된 제1 전극 상에 제2 전극인 ITO를 배치하여 전기화학 발광소자를 제조하였다.

[0127] 소자 실시예 2: 전기화학 발광소자의 제조

실시예 5에 따라 제조된 적색 발광물질 젤 대신에 실시예 8에 따라 제조된 녹색 발광물질 젤(녹색 발광물질 3 wt%)을 사용한 것을 제외하고는 소자 실시예 1과 동일한 방법으로 전기화학 발광소자를 제조하였다.

[0130] 소자 실시예 3: 전기화학 발광소자의 제조

실시예 5에 따라 제조된 적색 발광물질 젤 대신에 실시예 16에 따라 제조된 청색 발광물질 젤(청색 발광물질 4 wt%)을 사용한 것을 제외하고는 소자 실시예 1과 동일한 방법으로 전기화학 발광소자를 제조하였다.

[0133] 소자 실시예 4: 전기화학 발광소자의 제조

[0134] 노즐 프린터 대신에 실시예 5에 따라 제조된 적색 발광물질 젤(적색 발광물질 5 wt%)이 담긴 주사기를 이용하여 수기로 발광패턴층을 형성한 것을 제외하고는 소자 실시예 1과 동일한 방법으로 전기화학 발광소자를 제조하였다.

[0136] 소자 실시예 5: 전기화학 발광소자의 제조

[0137] 실시예 5에 따라 제조된 적색 발광물질 젤 대신에 실시예 8에 따라 제조된 녹색 발광물질 젤(녹색 발광물질 3 wt%)을 사용한 것을 제외하고는 소자 실시예 4와 동일한 방법으로 전기화학 발광소자를 제조하였다.

[0139] 소자 실시예 6: 전기화학 발광소자의 제조

[0140] 실시예 5에 따라 제조된 적색 발광물질 젤 대신에 실시예 16에 따라 제조된 청색 발광물질 젤(청색 발광물질 4 wt%)을 사용한 것을 제외하고는 소자 실시예 4와 동일한 방법으로 전기화학 발광소자를 제조하였다.

[0142] [시험예]

[0144] 시험예 1: 광학특성 측정

[0145] 실시예 1 내지 5에 따라 제조된 적색 발광물질 젤의 휘도특성(a) 및 파장에 따른 빛의 강도 및 소자 실시예 1에 따라 제조된 전기화학 발광소자(b)를 500 Hz 주파수에서 측정하여 도 2에 나타내었고, 실시예 6 내지 10에 따라 제조된 녹색 발광물질 젤의 휘도특성(a) 및 파장에 따른 빛의 강도 및 소자 실시예 2에 따라 제조된 전기화학 발광소자(b)를 500 Hz 주파수에서 측정하여 도 3에 나타내었고, 실시예 11 내지 16에 따라 제조된 청색 발광물질 젤의 휘도특성(a) 및 파장에 따른 빛의 강도 및 소자 실시예 3에 따라 제조된 전기화학 발광소자(b)를 500 Hz 주파수에서 측정하여 도 4에 나타내었다.

[0146] 도 2 내지 4를 참조하면, 적색 발광물질 젤은 실시예 5에 따라 제조된 적색 발광물질 젤(5 wt%)이  $162 \text{ cd/m}^2$  의 최대 휘도를 갖는 것으로 나타났다. 녹색 발광물질 젤은 실시예 8에 따라 제조된 녹색 발광물질 젤(3 wt%)이  $38.5 \text{ cd/m}^2$  의 최대 휘도를 갖는 것을 알 수 있었다. 청색 발광물질 젤은 실시예 16에 따라 제조된 청색 발광물질 젤(4 wt%)이  $16.9 \text{ cd/m}^2$  의 최대 휘도를 갖는 것으로 나타났다.

[0147] 따라서, 본 발명의 적색, 녹색 및 청색 발광물질 젤은 우수한 광학 특성을 갖는 것을 알 수 있었다.

[0149] 시험예 2: 전기화학 발광소자 제조 확인

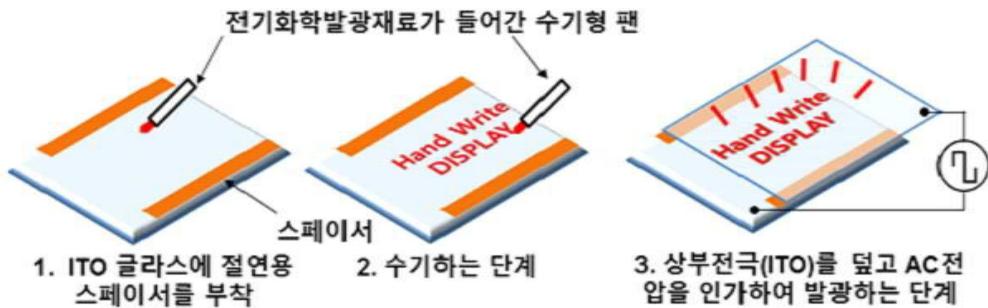
[0150] 소자 실시예 4 내지 6에 따라 제조된 전기화학 발광소자의 사진을 도 5에 나타내었고, 실시예 5에 따라 제조된 적색 발광물질 젤, 실시예 8에 따라 제조된 녹색 발광물질 젤 및 실시예 16에 따라 제조된 청색 발광물질 젤을 수기로 하나의 전기화학 발광소자에 구현한 사진을 도 5에 나타내었다.

[0151] 도 5를 참조하면, 본 발명의 전기화학 발광소자의 발광패턴층은 수기로 쉽게 임의의 형태로 디자인할 수 있으며, 발광특성 또한 우수한 것을 확인할 수 있었다.

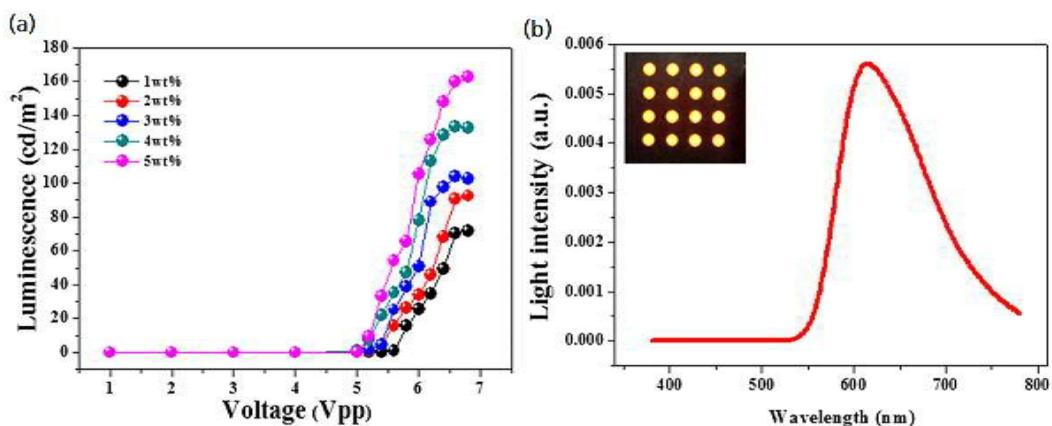
[0153] 이상, 본 발명의 바람직한 실시예를 들어 상세하게 설명하였으나, 본 발명은 상기 실시예에 한정되지 않으며, 본 발명의 기술적 사상의 범위 내에서 당 분야에 통상의 지식을 가진 자에 의하여 여러 가지 변형이 가능하다.

## 도면

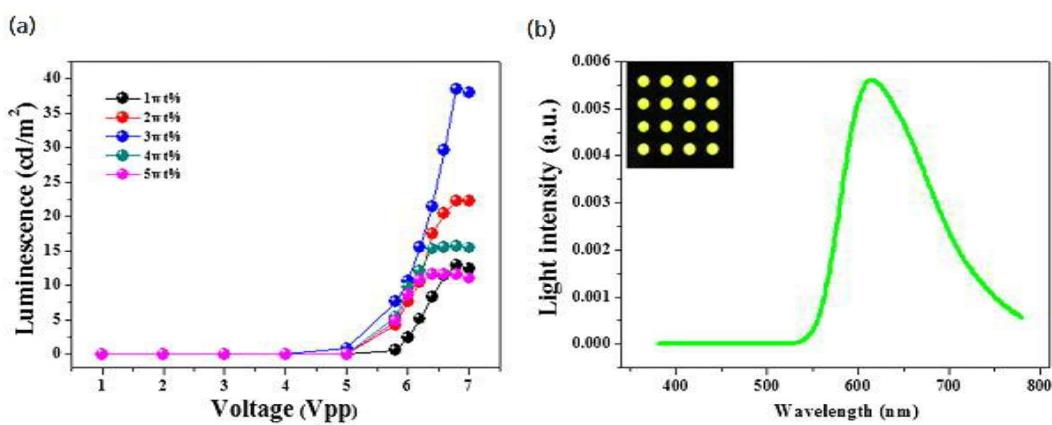
## 도면1



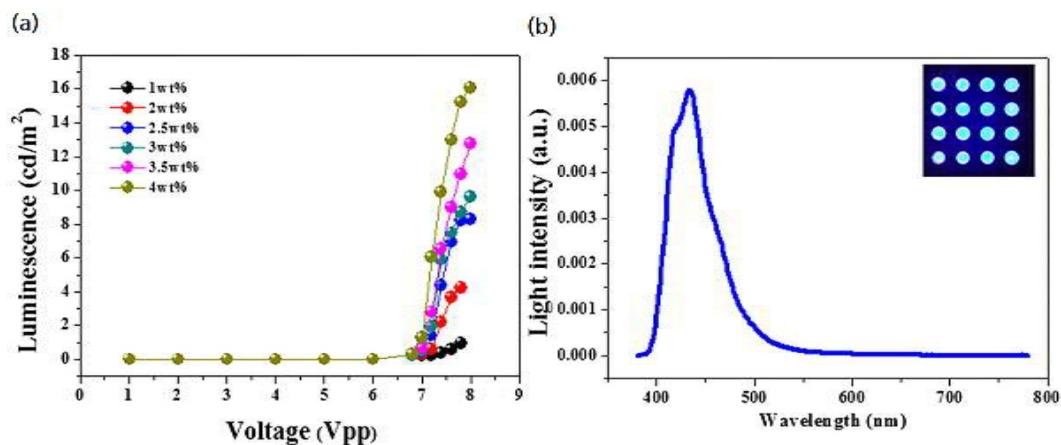
## 도면2



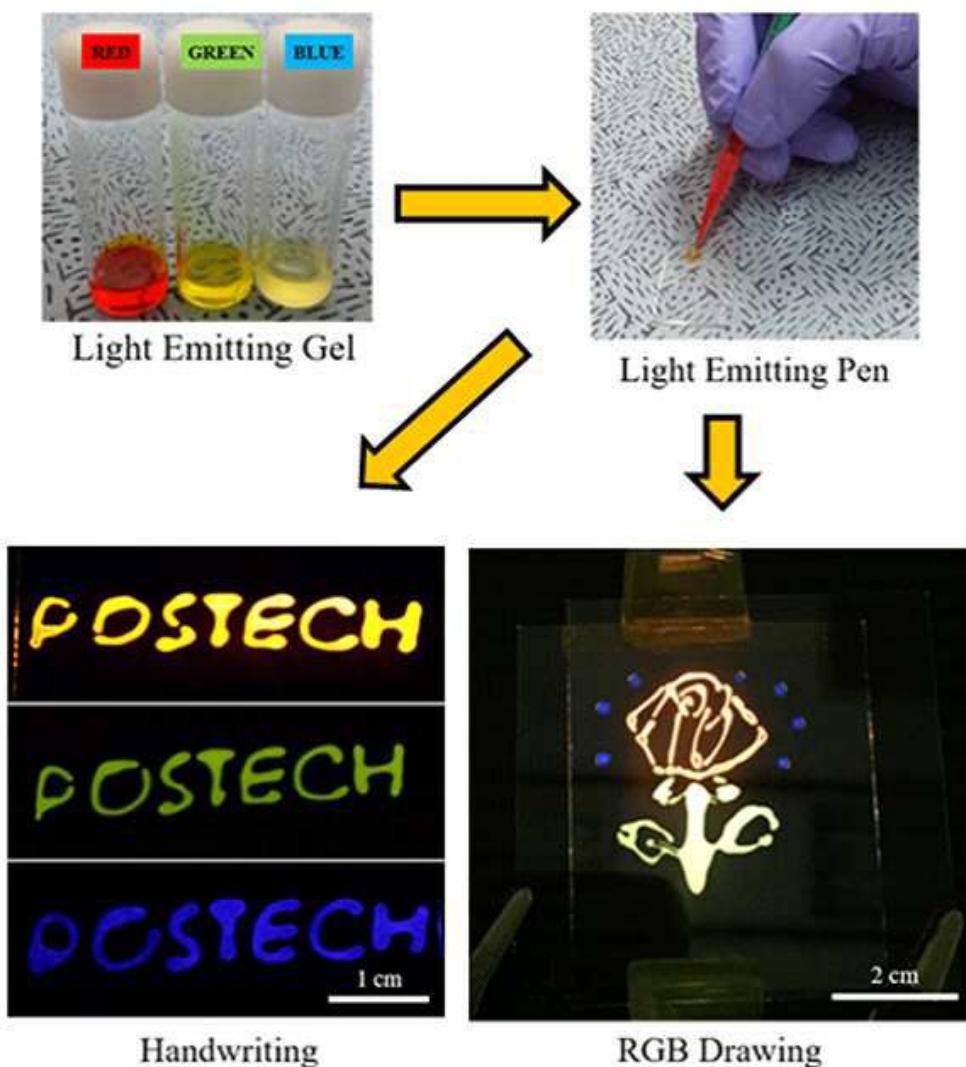
## 도면3



## 도면4



## 도면5



专利名称(译)	标题 : 电化学发光材料凝胶和使用其制造手工和印刷电化学发光器件的方法		
公开(公告)号	<a href="#">KR1020170119562A</a>	公开(公告)日	2017-10-27
申请号	KR1020160047762	申请日	2016-04-19
[标]申请(专利权)人(译)	浦项工科大学校产学协力团		
申请(专利权)人(译)	科学浦项科技大学的学术合作		
[标]发明人	JEONG UNYONG 정운룡 SHIN SANG BAIE 신상배		
发明人	정운룡 신상배		
IPC分类号	C09K11/06 C07F15/00 C09K11/02 H01L51/00 H01L51/50		
CPC分类号	C09K11/06 C09K11/02 C09K2211/185 C07F15/0033 H01L51/0085 H01L51/5012 H01L51/0003 H01L51/0004		
代理人(译)	Yisuyeol		
外部链接	<a href="#">Espacenet</a>		

### 摘要(译)

发光材料凝胶本发明涉及一种发光材料凝胶，其包含选自绿色，红色和蓝色的发光材料，聚合物和有机溶剂中的任何一种。本发明的发光材料凝胶可以使用聚合物控制粘度。此外，通过手工形成电化学发光器件的发光图案层或使用这种发光物质凝胶印刷，本发明的电化学发光器件可以以任意形式设计，并且可以在短时间内以低成本制造。可以制造。

