



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2014년03월20일
 (11) 등록번호 10-1375360
 (24) 등록일자 2014년03월11일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
CO9K 11/06 (2006.01) *H01L 51/50* (2006.01)
 (21) 출원번호 10-2011-0090521
 (22) 출원일자 2011년09월07일
 심사청구일자 2011년09월07일
 (65) 공개번호 10-2013-0007390
 (43) 공개일자 2013년01월18일
 (30) 우선권주장
 1020110064172 2011년06월30일 대한민국(KR)
 (56) 선행기술조사문헌
 KR1020120079408 A*
 *는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자
(주)씨에스엘솔라
 경기도 성남시 중원구 갈마치로 176 (상대원동)
 (72) 발명자
김복영
 경기 용인시 수지구 상현로 30-9, 쌍용2차 218동
 601호 (상현동, 상현마을쌍용2차C단지)
안중복
 서울 도봉구 우이천로 200, 101동 1301호 (창동,
 창동금융아파트)
 (뒷면에 계속)
 (74) 대리인
최지연, 정중원, 이명택

전체 청구항 수 : 총 2 항

심사관 : 오세주

(54) 발명의 명칭 **유기발광 화합물 및 이를 이용한 유기 광소자**

(57) 요약

본 발명은 유기 광소자 및 이에 사용되는 유기발광화합물에 관한 것으로서, 보다 상세하게는 우수한 발광효율, 발광 휘도, 색순도 및 발광 수명을 구현할 수 있는 유기 발광 소자와 이에 사용되는 유기 발광 화합물 또는 태양 광 발전용 광소자 및 이에 사용되는 광화합물에 관한 것으로, 특히 티오펜 또는 아민계 유도체 및 이를 이용한 유기 광소자를 개발하여 전자수송층(ETM), 발광층(EML), 정공수송층(HTM) 등, 제1전극과 상기 제2전극 사이의 각종 유기막과 같이 다각적으로 쓰일 수 있는 물질을 개발하고, 효율 증가와 구동 전압의 감소와 같은 성능의 개선 및 OLED 재료로서의 능력을 극대화시킬 수 있다.

(72) 발명자

현승학

경기도 광주시 태봉로 61, 성원아파트 201동 4호
(태전동)

이재성

경기 수원시 장안구 경수대로976번길 22, 126동
303호 (조원동, 한일타운아파트)

박노길

경기 용인시 기흥구 동백8로 27, 1506동 1102호 (동백동, 호수마을휴먼시아)

한근희

경기 광명시 광명로 877, 109동 1305호 (광명동, 한진아파트)

특허청구의 범위

청구항 1

삭제

청구항 2

삭제

청구항 3

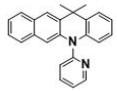
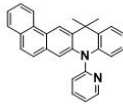
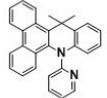
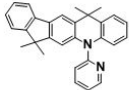
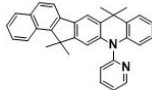
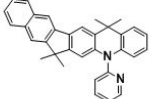
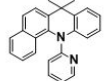
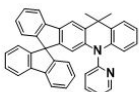
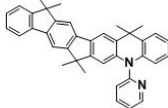
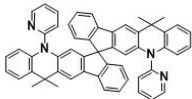
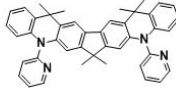
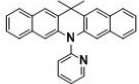
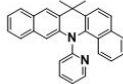
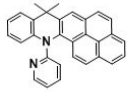
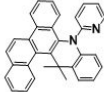
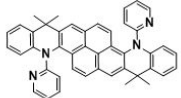
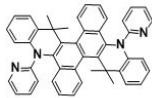
삭제

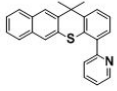
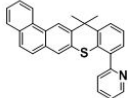
청구항 4

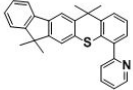
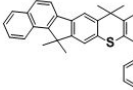
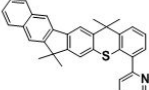
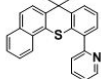
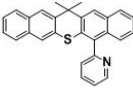
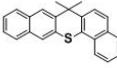
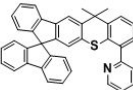
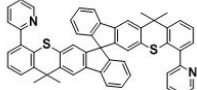
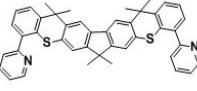
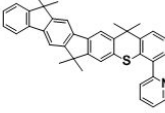
삭제

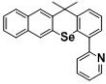
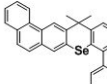
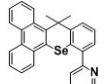
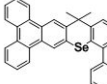
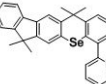
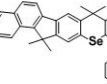
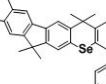
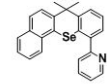
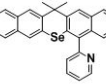
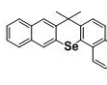
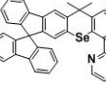
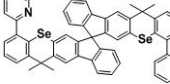
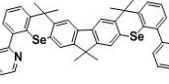
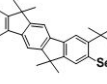
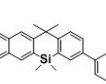
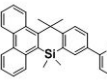
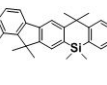
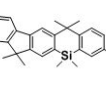
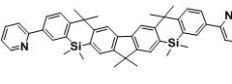
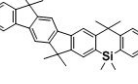
청구항 5

제1전극; 제2전극; 및 상기 제1전극과 상기 제2전극 사이에 적어도 한 층의 유기막을 포함하는 유기 광소자로서, 상기 유기막이 하기 화학식 1~3, 5~18, 65, 66, 69~78, 98~113, 115~140으로 표시되는 유기발광화합물을 포함하는 것을 특징으로 하는 유기 광소자:

1		2	
3			
5		6	
7		8	
9		10	
11		12	
13		14	
15		16	
17		18	

65		66	
----	---	----	---

69		70	
71		72	
73		74	
75		76	
77		78	

		98	
99		100	
101		102	
103		104	
105		106	
107		108	
109		110	
111		112	
113			
115		116	
117		118	

119		120	
121		122	
123		124	
125		126	
127		128	
129		130	
131		132	
133		134	
135		136	
137		138	
139		140	

청구항 6

삭제

청구항 7

삭제

청구항 8

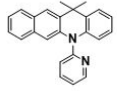
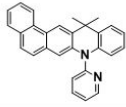
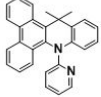
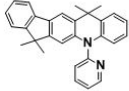
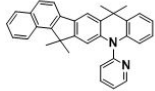
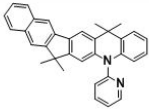
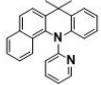
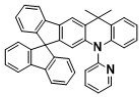
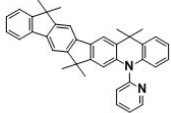
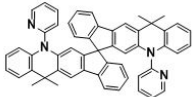
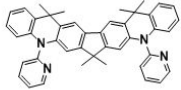
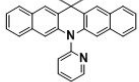
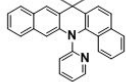
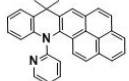
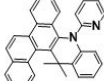
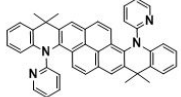
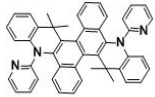
삭제

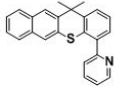
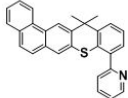
청구항 9

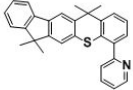
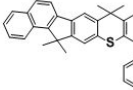
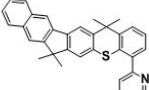
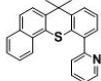
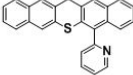
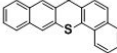
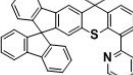
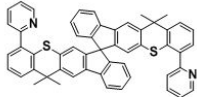
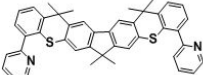
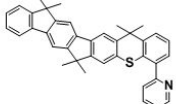
삭제

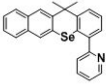
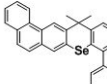
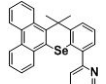
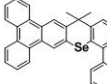
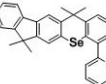
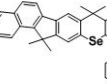
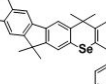
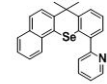
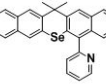
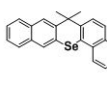
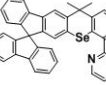
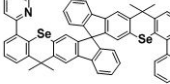
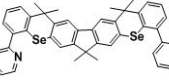
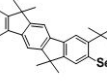
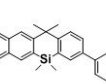
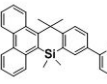
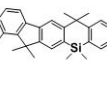
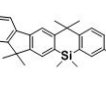
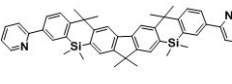
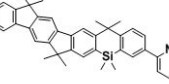
청구항 10

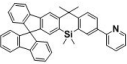
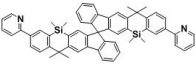




















하기 화학식 1~3, 5~18, 65, 66, 69~78, 98~113, 115~140으로 표시되는 유기발광화합물:

1		2	
3			
5		6	
7		8	
9		10	
11		12	
13		14	
15		16	
17		18	

65		66	
----	---	----	---

69		70	
71		72	
73		74	
75		76	
77		78	

		98	
99		100	
101		102	
103		104	
105		106	
107		108	
109		110	
111		112	
113			
115		116	
117		118	

119		120	
121		122	
123		124	
125		126	
127		128	
129		130	
131		132	
133		134	
135		136	
137		138	
139		140	

명세서

기술분야

[0001] 본 발명은 유기발광 화합물 및 이를 이용한 유기 광소자에 관한 것으로서, 보다 상세하게는 우수한 발광효율, 발광 휘도, 색순도 및 발광 수명을 구현할 수 있는 유기 발광 소자와 이에 사용되는 유기 발광 화합물(특히 디오렌계 또는 아민계 유도체) 또는 태양광 발전용 광소자 및 이에 사용되는 광화합물에 관한 것이다.

배경기술

[0002] 1987년 Kodak사의 Tang등이 발광층과 전자수송층으로 각각 Alq₃ 와 TPD라는 이중층 저분자 유기물 박막을 형성하여 효율과 안정성이 개선된 녹색의 발광현상을 발견한 이후로 저분자 OLED 디스플레이의 개발이 급속도로 빠르게 이루어졌다. 1980년대 후반 저분자 OLED 소자의 구조는 양극(ITO), 정공수송층 (Hole Transfer Layer, HTL) 발광층 (Emission Layer, EML), 음극(Mg:Ag)의 간단한 구조에서 출발하였다. 이후 형광소자의 경우는 CuPc같은 정공주입층(Hole Injection Layer, HIL)이 도입되었고, Cathode와 전자주입층 재료로 Al:Li이 개발되고 LiF 같은 재료가 개발되면서 구조가 복잡해지게 되었다. 이에 따라서 전기광학적인 특성도 효율과 구동전압이 혁신적으로 개선이 이루어지게 되었다.

[0003] 인광구조는 일반적으로 양극(Anode), 정공주입층, 정공수송층, 발광층, 전자수송층(Electron Transfer Layer, ETL), 전자 주입층(Electro Injection Layer, EIL), 그리고 음극(Cathode)으로 구성되어 있으며 추가로 정공저지층(Hole Blocking Layer, HBL) 층이 도입이 되었으나 반드시 꼭 필요한 층은 아닌 것으로 알려져 있다.

[0004] 발광층 물질은 크게 형광소자용 발광재료와 인광소자용 발광재료로 구분되며 다시 발광색에 따라 구분이 된다. 또 발광층 재료는 Host용 물질과 Dopant용 물질로 나누어진다. Host 또는 Dopant 물질만으로도 빛을 낼 수 있으나 자체 Quenching 현상으로 효율 및 휘도가 매우 낮아지고, 각각 분자들끼리 Self-aggregation 현상 때문에 각 분자의 고유한 특성이 아닌 Excimer 특성이 함께 나타나기 때문에 발광효율 및 소자안정성을 높이기 위해서는 Host에 Dopant를 도핑하여 발광층을 만든다.

[0005] 인광 호스트 재료로는 정공이동성과 전자이동성이 있는 양극성물질인 CBP가 Red, Green 용으로 현재까지 널리 사용되었다. 하지만 최근에는 전자수송성이 있는 Balq 또는 그것과 비슷한 종류의 Al착제 물질들이 인광 Red Host로 유용하다고 알려져 있다. 그리고 Blue 인광 Host용 재료로서 CBP의 유도체, Artsi계 물질들이 특성이 우수하다고 알려져 있다.

[0006] Host 재료에 필요한 특성으로는 먼저 전하수송 특성이 우수해야 한다. 발광층에서도 정공이나 전자를 이동시켜야 하기 때문에 적절한 이동도가 꼭 필요하다. 또 Host 재료는 에너지를 Dopant에 전달해야 되기 때문에 Host의 발광 Spectrum이 Dopant의 흡수 Spectrum과 잘 Overlap이 되어야 에너지 Transfer가 잘 일어난다. 에너지 측면에서도 Host의 Band Gap이 당연히 Dopant의 Gap 보다는 넓어야 하며 Host의 LUMO Level이 Dopant LUMO보다 높아야 한다.

[0007] 따라서, 상기와 같은 종래 기술의 문제점을 극복하고 유기 전계 발광 소자의 특성을 더욱 향상시키기 위하여, 유기 전계 발광 소자에서 전자 수송용 물질로 사용될 수 있는 보다 안정적이고 효율적인 재료에 대한 개발이 계속 요구된다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0008] 본 발명이 이루고자 하는 첫 번째 기술적 과제는 유기 광소자, 특히 유기 전계 발광소자에 적용할 수 있는 새로운 유기 광화합물을 제공하는 것이다.

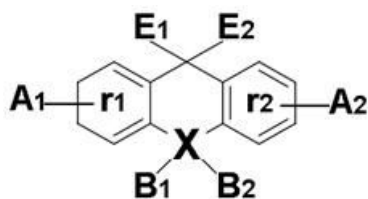
[0009] 본 발명이 이루고자 하는 두 번째 기술적 과제는 상기 신규 화합물을 포함하여 구동전압이 낮고, 발광효율, 휘도, 색순도, 열적 안정성 및 수명이 향상된 유기 전계 발광 소자 및 태양광 발전을 위한 유기 광소자를 제공하는 것이다.

[0010] 특히 인광 Host 물질로 우수한 전하수송 특성을 가지며 Dopant의 흡수 Spectrum과의 Overlap이 잘되는 티오펜계 또는 아민계 유도체를 개발하여 향상된 발광 효율과 저전압 구동 그리고 우수한 색발현률을 이끌어 낼 수 있는 유기발광 화합물을 제공하는 것을 목적으로 한다.

과제의 해결 수단

[0011] 본 발명에 따른 유기발광화합물 및 이를 이용한 유기 광소자는 하기 화학식 F의 유기발광화합물을 기초로 한다:

[0012] <화학식 F>



[0013]

[0014] 상기 화학식 F에서

- [0015] 상기 X는 N, S, Se 또는 Si이고,
- [0016] X가 S 및 Se인 경우, 상기 B1 및 B2는 0(zero)이고,
- [0017] X가 N인 경우, 상기 B2는 0(zero)이고, 상기 B1은 C5~C40의 아릴기, C3~C40의 헤테로아릴기, C5~C40의 아릴옥시기, C1~C40의 알킬옥시기, C5~C40의 아릴아미노기, C5~C40의 디아릴아미노기, 실레인지, C6~C40의 아릴알킬기, C3~C40의 시클로알킬기 및 C3~C40의 헤테로시클로알킬기로 이루어진 군에서 선택되거나; 또는 인접하는 기와 축합(fused) 지방족 고리, 축합 방향족 고리, 축합 헤테로지방족 고리 또는 축합 헤테로방향족 고리를 형성하는 기이고,
- [0018] X가 Si인 경우, 상기 B1 및 B2는 각각 독립적으로 C1~C40의 알킬기, C5~C40의 아릴기, C3~C40의 헤테로아릴기, C5~C40의 아릴옥시기, C1~C40의 알킬옥시기, C5~C40의 아릴아미노기, C5~C40의 디아릴아미노기, 실레인지, C6~C40의 아릴알킬기, C3~C40의 시클로알킬기 및 C3~C40의 헤테로시클로알킬기로 이루어진 군에서 선택되거나; 또는 인접하는 기와 축합(fused) 지방족 고리, 축합 방향족 고리, 축합 헤테로지방족 고리 또는 축합 헤테로방향족 고리를 형성하는 기이고,
- [0019] 상기 E1 및 E2는 각각 독립적으로 D, F, C1~C40의 알킬기, C5~C40의 아릴기, C3~C40의 헤테로아릴기, C5~C40의 아릴옥시기, C1~C40의 알킬옥시기, C5~C40의 아릴아미노기, C5~C40의 디아릴아미노기, 실레인지, C6~C40의 아릴알킬기, C3~C40의 시클로알킬기 및 C3~C40의 헤테로시클로알킬기로 이루어진 군에서 선택되거나; 또는 인접하는 기와 축합(fused) 지방족 고리, 축합 방향족 고리, 축합 헤테로지방족 고리 또는 축합 헤테로방향족 고리를 형성하는 기이거나,
- [0020] 상기 A1은 인접한 고리 r1과 축합(fused) 지방족 고리, 축합 방향족 고리, 축합 헤테로지방족 고리 또는 축합 헤테로방향족 고리를 형성하는 기이고,
- [0021] 상기 A2는 H, D, F, C1~C40의 알킬기, C5~C40의 아릴기, C3~C40의 헤테로아릴기, C5~C40의 아릴옥시기, C1~C40의 알킬옥시기, C5~C40의 아릴아미노기, C5~C40의 디아릴아미노기, 실레인지, C6~C40의 아릴알킬기, C3~C40의 시클로알킬기 및 C3~C40의 헤테로시클로알킬기로 이루어진 군에서 선택되거나; 또는 인접하는 기와 축합(fused) 지방족 고리, 축합 방향족 고리, 축합 헤테로지방족 고리 또는 축합 헤테로방향족 고리를 형성하는 기이거나,
- [0022] 인접한 고리 r2와 축합(fused) 지방족 고리, 축합 방향족 고리, 축합 헤테로지방족 고리 또는 축합 헤테로방향족 고리를 형성하는 기이다.
- [0023] 또 본 발명에 따른 유기 광화합물 및 이를 이용한 유기 광소자는 하기 화학식 1 내지 140에 해당하는 유기 광화합물을 기초로 한다.

발명의 효과

- [0024] 본 발명에 따른 유기 광소자는 높은 발광 효율, 높은 발광 휘도, 높은 색순도 및 현저히 향상된 발광 수명을 제공한다,
- [0025] 아울러 본 발명은 이를 유기 발광 소자 및 유기 발광 화합물, 또는 태양광 발전을 위한 유기 광소자 및 광화합물을 제공하고, 무엇보다도 인광 Host 물질로 우수한 전하수송 특성을 가지며 Dopant의 흡수 Spectrum과의 Overlap이 잘되는 아민계 또는 티오펜계 유도체를 개발하여 향상된 발광 효율과 저전압 구동 그리고 우수한 색 발현률을 나타낸다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0026] 이하 본 발명을 상세히 설명하도록 한다.
- [0027] 본 발명은 다양한 변경을 가할 수 있고 여러 가지 형태를 가질 수 있는 바, 구현예(態樣, aspect)(또는 실시

예)들을 본문에 상세하게 설명하고자 한다. 그러나 이는 본 발명을 특정한 개시 형태에 대해 한정하려는 것이 아니며, 본 발명의 사상 및 기술범위에 포함되는 모든 변경, 균등물 내지 대체물을 포함하는 것으로 이해되어야 한다.

[0028] 본 명세서에서 사용한 용어는 단지 특정한 구현예(태양, 態樣, aspect)(또는 실시예)를 설명하기 위해 사용된 것으로, 본 발명을 한정하려는 의도가 아니다. 단수의 표현은 문맥상 명백하게 다르게 뜻하지 않는 한, 복수의 표현을 포함한다. 본 출원에서, ~포함하다~ 또는 ~이루어진다~ 등의 용어는 명세서 상에 기재된 특징, 숫자, 단계, 동작, 구성요소, 부분품 또는 이들을 조합한 것이 존재함을 지정하려는 것이지, 하나 또는 그 이상의 다른 특징들이나 숫자, 단계, 동작, 구성요소, 부분품 또는 이들을 조합한 것들의 존재 또는 부가 가능성을 미리 배제하지 않는 것으로 이해되어야 한다.

[0029] 다르게 정의되지 않는 한, 기술적이거나 과학적인 용어를 포함해서 여기서 사용되는 모든 용어들은 본 발명이 속하는 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자에 의해 일반적으로 이해되는 것과 동일한 의미를 가지고 있다. 일반적으로 사용되는 사전에 정의되어 있는 것과 같은 용어들은 관련 기술의 문맥 상 가지는 의미와 일치하는 의미를 가지는 것으로 해석되어야 하며, 본 출원에서 명백하게 정의하지 않는 한, 이상적이거나 과도하게 형식적인 의미로 해석되지 않는다.

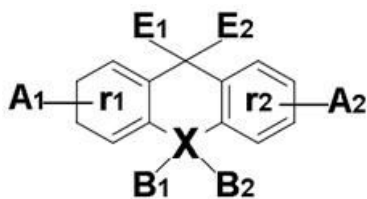
[0030] 본 발명은 아민계 또는 디오펜계 유도체, 특히 DHPA(dihydrophenanthridine)계 유도체를 개발하여 전자수송층(ETM), 발광층(EML), 정공수송층(HTM) 등, 제1전극과 상기 제2전극 사이의 각종 유기막과 같이 다각적으로 쓰일 수 있는 물질을 제시하고, 효율 증가와 구동 전압의 감소와 같은 성능의 개선 및 OLED 재료로서의 능력을 극대화시킨 물질을 개발하고자 한다.

[0031] 본 명세서에서 유기발광화합물은 유기 광소자에 사용되는 화합물이라는 의미로서 반드시 발광이 가능한 화합물로 그 범위가 한정되지 않으며, 그 적용 범위도 유기 발광층에 한정되지 않고, 전하 주입층 및 전하 수송층 등 유기 광소자를 구성하는 어느 층에나 모두 사용될 수 있다.

[0032] 또 본 명세서에서 '광화합물' 및 '광소자'라는 용어는 사전적인 또는 관습적인 정의와 무관하게 본 발명이 유기 발광 소자 및 태양광 발전을 위한 소자에 모두 적용되는 경우를 고려하여, 이를 포괄하고자 선정한 용어이다.

[0033] 본 발명의 제 1태양에 따르는 유기 광소자는, 제1전극; 제2전극; 및 상기 제1전극과 상기 제2전극 사이에 적어도 한 층의 유기막을 포함하는 유기 광소자로서, 상기 유기막이 하기 화학식 F의 유기발광화합물을 포함한다.

[0034] <화학식 F>



[0035]

[0036] 상기 화학식 F에서

[0037] 상기 X는 N, S, Se 또는 Si이고,

[0038] X가 S 및 Se인 경우, 상기 B1 및 B2는 0(zero)이고,

[0039] X가 N인 경우, 상기 B2는 0(zero)이고, 상기 B1은 C5~C40의 아릴기, C3~C40의 헤테로아릴기, C5~C40의 아릴옥시기, C1~C40의 알킬옥시기, C5~C40의 아릴아미노기, C5~C40의 디아릴아미노기, 실레인지, C6~C40의 아릴알킬기, C3~C40의 시클로알킬기 및 C3~C40의 헤테로시클로알킬기로 이루어진 군에서 선택되거나; 또는 인접하는 기와 축합(fused) 지방족 고리, 축합 방향족 고리, 축합 헤테로지방족 고리 또는 축합 헤테로방향족 고리를 형성하는 기이고,

[0040] X가 Si인 경우, 상기 B1 및 B2는 각각 독립적으로 C1~C40의 알킬기, C5~C40의 아릴기, C3~C40의 헤테로아릴기,

C5~C40의 아릴옥시기, C1~C40의 알킬옥시기, C5~C40의 아릴아미노기, C5~C40의 디아릴아미노기, 실레인기, C6~C40의 아릴알킬기, C3~C40의 시클로알킬기 및 C3~C40의 헤테로시클로알킬기로 이루어진 군에서 선택되거나; 또는 인접하는 기와 축합(fused) 지방족 고리, 축합 방향족 고리, 축합 헤테로지방족 고리 또는 축합 헤테로방향족 고리를 형성하는 기이고,

[0041] 상기 E1 및 E2는 각각 독립적으로 D, F, C1~C40의 알킬기, C5~C40의 아릴기, C3~C40의 헤테로아릴기, C5~C40의 아릴옥시기, C1~C40의 알킬옥시기, C5~C40의 아릴아미노기, C5~C40의 디아릴아미노기, 실레인기, C6~C40의 아릴알킬기, C3~C40의 시클로알킬기 및 C3~C40의 헤테로시클로알킬기로 이루어진 군에서 선택되거나; 또는 인접하는 기와 축합(fused) 지방족 고리, 축합 방향족 고리, 축합 헤테로지방족 고리 또는 축합 헤테로방향족 고리를 형성하는 기이거고,

[0042] 상기 A1은 인접한 고리 r1과 축합(fused) 지방족 고리, 축합 방향족 고리, 축합 헤테로지방족 고리 또는 축합 헤테로방향족 고리를 형성하는 기이고,

[0043] 상기 A2는 H, D, F, C1~C40의 알킬기, C5~C40의 아릴기, C3~C40의 헤테로아릴기, C5~C40의 아릴옥시기, C1~C40의 알킬옥시기, C5~C40의 아릴아미노기, C5~C40의 디아릴아미노기, 실레인기, C6~C40의 아릴알킬기, C3~C40의 시클로알킬기 및 C3~C40의 헤테로시클로알킬기로 이루어진 군에서 선택되거나; 또는 인접하는 기와 축합(fused) 지방족 고리, 축합 방향족 고리, 축합 헤테로지방족 고리 또는 축합 헤테로방향족 고리를 형성하는 기이거나,

[0044] 인접한 고리 r2와 축합(fused) 지방족 고리, 축합 방향족 고리, 축합 헤테로지방족 고리 또는 축합 헤테로방향족 고리를 형성하는 기이다.

[0045] 본 발명의 발명자는 상기 화학식 F의 유기발광화합물의 치환기에서 A1, A2, B1, B2, E1 및 E2와 X를 선택 특정한,

[0046] 다양한 유도체를 개발하여 전자수송층(ETM), 발광층(EML), 정공수송층(HTM) 등, 제1전극과 상기 제2전극 사이의 각종 유기막으로 사용될 수 있는 유기발광화합물 및

[0047] 이를 이용한 유기 광소자를 개발하고,

[0048] 유기발광소자로 활용될 경우 효율 증가와 구동 전압의 감소와 같은 성능의 개선 및 OLED 재료로서의 능력을 극대화시킬 수 있고, 특히 발광 수명이 현저히 향상됨을 발견하였으며,

[0049] 이를 태양광 발전을 위한 광소자 및 광화합물 분야에 응용 적용할 경우 우수한 발전 효율을 얻을 수 있을 것으로 기대된다.

[0050] 이하에서는 화학식 F의 유기발광화합물을 유기 발광 소자와 관련하여 설명할 것이나, 이에 의하여 본 발명이 제한 해석되어서는 안 된다.

[0051] 상기 화학식 F의 유기발광화합물은 유기 광소자 중 제1전극과 제2전극 사이에 개재된 유기막을 이루는 물질로 적합하다. 상기 화학식 F의 유기발광화합물은 유기 발광 소자의 유기막, 특히 정공수송층, 정공주입층 또는 발광층에 사용되기 적합하며 호스트 재료뿐만 아니라 도판트 재료로서도 사용된다.

[0052] 상기 B1, B2 및 A2의 일부 또는 모두는

[0053] C5~C40의 아릴기, C3~C40의 헤테로아릴기, C5~C40의 아릴옥시기, C1~C40의 알킬옥시기, C5~C40의 아릴아미노기, C5~C40의 디아릴아미노기, 실레인기, C6~C40의 아릴알킬기, C3~C40의 시클로알킬기 및 C3~C40의 헤테로시클로알킬기로 이루어진 군에서 선택되거나; 또는 인접하는 기와 축합(fused) 지방족 고리, 축합 방향족 고리, 축합 헤테로지방족 고리 또는 축합 헤테로방향족 고리를 형성하는 기인 것이 바람직하고,

- [0054] 또 상기 B1, B2 및 A2의 일부 또는 모두는
- [0055] C3~C40의 헤테로아릴기 및 C3~C40의 헤테로시클로알킬기로 이루어진 군에서 선택되거나,
- [0056] C3~C40의 헤테로아릴기 및 C3~C40의 헤테로시클로알킬기로 치환된 것이 바람직하다.

- [0057] 상기 A2, E1 및 E2의 상기 C1~C40의 알킬기, 또는
- [0058] 상기 A2, B1, B2, E1 및 E2의 C5~C40의 아릴기, C3~C40의 헤테로아릴기, C5~C40의 아릴옥시기, C1~C40의 알킬옥시기, C5~C40의 아릴아미노기, C5~C40의 디아릴아미노기, 실레인기, C6~C40의 아릴알킬기, C3~C40의 시클로알킬기 및 C3~C40의 헤테로시클로알킬기는
- [0059] 각각 독립적으로 D, F, 할로젠, 니트릴기, 니트로기, C1~C40의 알킬기, C2~C40의 알케닐기, C1~C40의 알콕시기, C1~C40의 아미노기, C3~C40의 시클로알킬기, C3~C40의 헤테로시클로알킬기, C6~C40의 아릴기 및 C5~C40의 헤테로아릴기로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상으로 치환되거나 비치환되는 것이 바람직하다.

- [0060] 또 상기 A2, E1 및 E2의 상기 C1~C40의 알킬기, 또는
- [0061] 상기 A2, B1, B2, E1 및 E2의 C5~C40의 아릴기, C3~C40의 헤테로아릴기, C5~C40의 아릴옥시기, C1~C40의 알킬옥시기, C5~C40의 아릴아미노기, C5~C40의 디아릴아미노기, 실레인기, C6~C40의 아릴알킬기, C3~C40의 시클로알킬기 및 C3~C40의 헤테로시클로알킬기나,
- [0062] 상기 A1의 지방족 고리, 방향족 고리, 헤테로지방족 고리 또는 헤테로방향족에 도입되는 치환기 중에서
- [0063] C1~C40의 알킬기, C5~C40의 아릴옥시기, C2~C40의 알케닐기, C1~C40의 알콕시기, C1~C40의 아미노기, C3~C40의 시클로알킬기, C3~C40의 헤테로시클로알킬기, C6~C40의 아릴기, C3~C40의 헤테로아릴기, 실레인기는
- [0064] 각각 독립적으로 D, F, 할로젠, 니트릴기, 니트로기, C1~C40의 알킬기, C2~C40의 알케닐기, C1~C40의 알콕시기, C1~C40의 아미노기, C3~C40의 시클로알킬기, C3~C40의 헤테로시클로알킬기, C6~C40의 아릴기 및 C5~C40의 헤테로아릴기로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상의 제2치환기로 추가적으로 치환되거나; 또는 인접하는 기와 축합 지방족 고리, 축합 방향족 고리, 축합 헤테로지방족 고리 또는 축합 헤테로방향족 고리를 형성하거나 스피로 결합을 하는 것이 바람직하다.

- [0065] 나아가 상기 A2, E1 및 E2의 상기 C1~C40의 알킬기, 또는
- [0066] 상기 A2, B1, B2, E1 및 E2의 C5~C40의 아릴기, C3~C40의 헤테로아릴기, C5~C40의 아릴옥시기, C1~C40의 알킬옥시기, C5~C40의 아릴아미노기, C5~C40의 디아릴아미노기, 실레인기, C6~C40의 아릴알킬기, C3~C40의 시클로알킬기 및 C3~C40의 헤테로시클로알킬기나,
- [0067] 상기 A1의 지방족 고리, 방향족 고리, 헤테로지방족 고리 또는 헤테로방향족에 도입되는 치환기는
- [0068] D, F, 페닐기, 톨일기, 비페닐기, 펜타레닐기, 인데닐기, 나프틸기, 비페닐레닐기, 안트라세닐기, 벤조안트라세닐기, 아즈레닐기, 헵타레닐기, 아세나프틸레닐기, 페나레닐기, 메틸안트릴기, 페난트레닐기, 트리페닐레닐기, 피레닐기, 크리세닐기, 피세닐기, 페릴레닐기, 클로로페릴레닐기, 펜타페닐기, 펜타세닐기, 테트라페닐레닐기, 헥사페닐기, 헥사세닐기, 루비세닐기, 코로네닐기, 트리나프틸레닐기, 헵타페닐기, 헵타세닐기, 플루오레닐기, 피란트레닐기, 오바레닐기, 카르바졸릴기, 디벤조퓨라닐기, 디벤조티오페닐기, 티오페닐기, 인돌일기, 푸리닐기, 벤즈이미다졸일기, 퀴놀리닐기, 벤조티오페닐기, 파라티아지닐기, 피롤일기, 피라졸릴기, 이미다졸릴기, 이미다졸리닐기, 옥사졸릴기, 티아졸릴기, 트리아졸릴기, 테트라졸릴기, 옥사디아졸릴기, 피리디닐기, 피리다지닐기, 피리미디닐기, 피라지닐기, 티안트레닐기(thianthrenyl), 사이클로펜틸기, 사이클로헥실기, 옥시라닐기, 피롤리디닐기, 피라졸리디닐기, 이미다졸리디닐기, 피페리디닐기, 피페라지닐기, 모르폴리닐기, 디(C6~C50아릴)아미노기, 실레인기 및 이들의 유도체로 이루어진 군으로부터 선택된 것이 바람직하다.

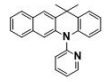
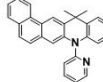
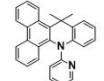
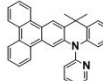
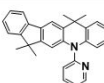
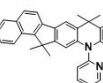
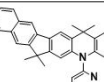
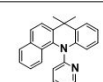
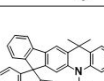
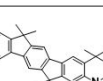
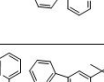
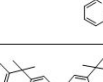
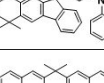
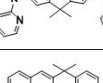
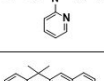
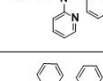
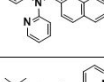
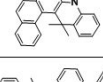
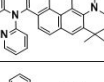
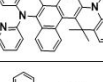
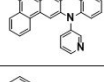
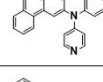
[0069] 상기 아릴기는 방향족 고리 시스템을 갖는 1가 그룹으로서, 2 이상의 고리시스템을 포함할 수 있으며, 상기 2이상의 고리 시스템은 서로 결합 또는 축합된 형태로 존재할 수 있다. 상기 헤테로아릴기는 상기 아릴기 중 하나 이상의 탄소가 N, O, S, P, Si 및 Se로 이루어진 군으로부터 선택된 하나 이상으로 치환된 그룹을 가리킨다.

[0070] 한편, 사이클로알킬기는 고리 시스템을 갖는 알킬기를 가리키며, 상기 헤테로사이클로알킬기는 상기 사이클로알킬기 중 하나 이상의 탄소가 N, O, S, P, Si 및 Se로 이루어진 군으로부터 선택된 하나 이상으로 치환된 그룹을 가리킨다.

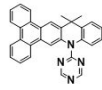
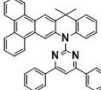
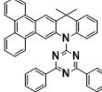
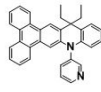
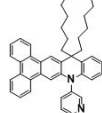
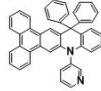
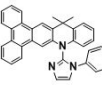
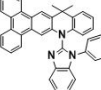
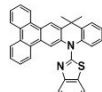
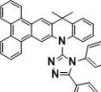
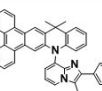
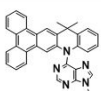
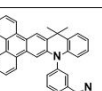
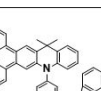
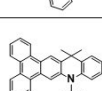
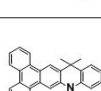
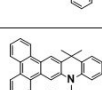
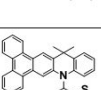
[0071] 상기 아릴기 및 헤테로아릴기의 하나 이상의 수소가 치환될 경우, 이들의 치환기는 C1-C50알킬기; C1-C50알콕시기; 비치환 또는 C1-C50알킬기 또는 C1-C50알콕시기로 치환된 C6-C50아릴기; 비치환 또는 C1-C50알킬기 또는 C1-C50알콕시기로 치환된 C2-C50헤테로아릴기; 비치환 또는 C1-C50알킬기 또는 C1-C50알콕시기로 치환된 C5-C50 사이클로알킬기 및 비치환 또는 C1-C20알킬기 또는 C1-C20알콕시기로 치환된 C5-C50헤테로사이클로알킬기, 또는 실레인기로 표시되는 그룹으로 이루어진 군으로부터 선택된 하나 이상일 수 있다.

[0072] 본 발명의 제 1태양에 따르는 유기 광소자는, 제1전극; 제2전극; 및 상기 제1전극과 상기 제2전극 사이에 적어도 한 층의 유기막을 포함하는 유기 광소자이다.

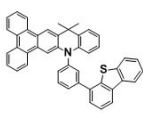
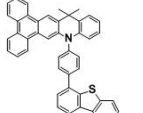
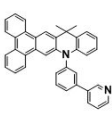
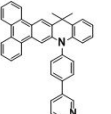
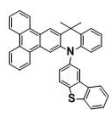
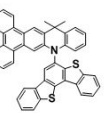
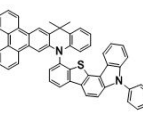
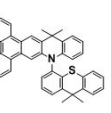
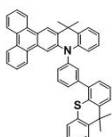
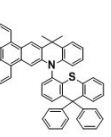
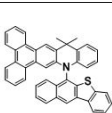
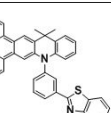
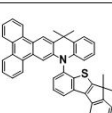
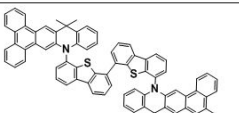
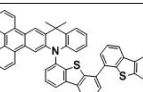
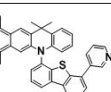
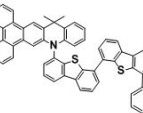
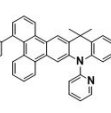
[0073] 본 발명의 유기 광소자에 사용되는 유기발광화합물은 하기 화학식 1 내지 140의 구조(이하 화학식들에서 '화학식'은 생략하고 숫자만 기재함)를 가질 수 있으나 이에 한정되는 것은 아니다:

1		2	
3		4	
5		6	
7		8	
9		10	
11		12	
13		14	
15		16	
17		18	
19		20	
21		22	

[0074]

23		24	
25		26	
27		28	
29		30	
31		32	
33		34	
35		36	
37		38	
39		40	

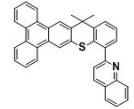
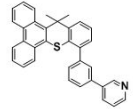
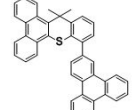
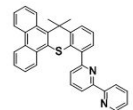
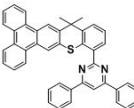
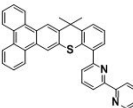
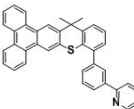
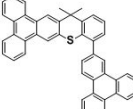
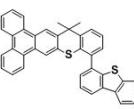
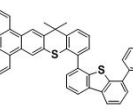
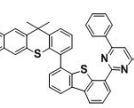
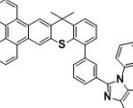
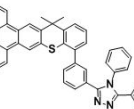
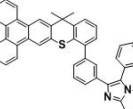
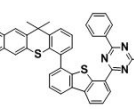
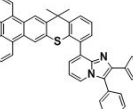
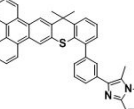
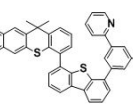
[0075]

41		42	
43		44	
45		46	
47		48	
49		50	
51		52	
53		54	
55		56	
57		58	

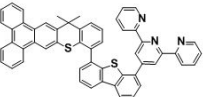

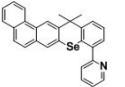

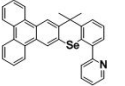
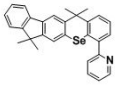
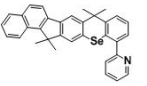
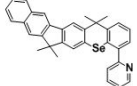
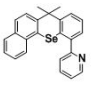
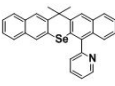
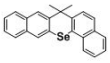
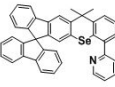
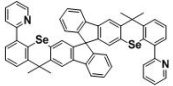
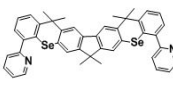
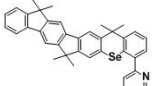
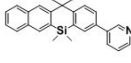
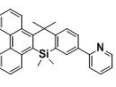
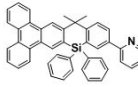
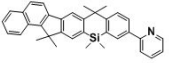
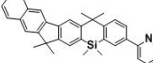
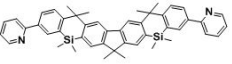
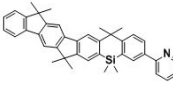
[0076]

59		60	
61		62	
63		64	
65		66	
67		68	
69		70	
71		72	
73		74	
75		76	
77		78	

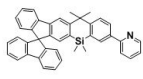
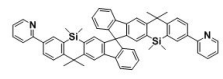
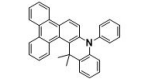
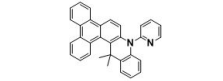
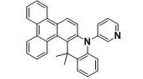
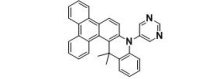
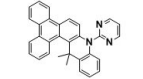
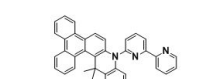
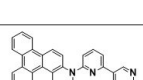
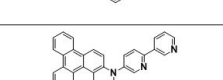
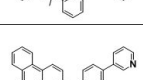
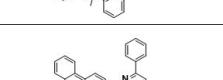
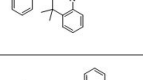
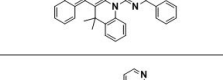
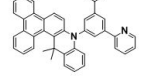
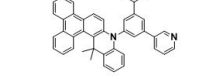
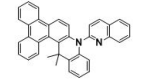
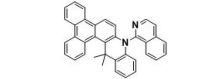
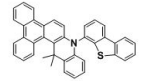
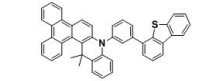
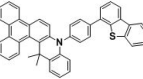
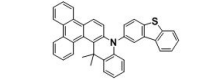
[0077]

79		80	
81		82	
83		84	
85		86	
87		88	
89		90	
91		92	
93		94	
95		96	

[0078]

97		98	
99		100	
101		102	
103		104	
105		106	
107		108	
109		110	
111		112	
113		114	
115		116	
117		118	

[0079]

119		120	
121		122	
123		124	
125		126	
127		128	
129		130	
131		132	
133		134	
135		136	
137		138	
139		140	

[0080]

[0081]

상기 화학식 F의 화합물로 표시되는 본 발명에 따른 유기발광화합물은 통상의 합성 방법을 이용하여 합성될 수 있으며, 상기 화합물의 보다 상세한 합성 경로는 하기 합성예의 반응식들을 참조한다. 상기 화학식 F의 화합물은 유기 광소자의 유기막, 특히 정공수송층, 정공주입층 또는 발광층에 사용되기 적합하다. 본 발명을 따르는 유기 발광 소자의 구조는 매우 다양하다. 상기 제1전극과 제2전극 사이에 정공주입층, 정공수송층, 정공저지층, 전자저지층, 전자수송층 및 전자주입층으로 이루어진 균으로부터 선택된 하나 이상의 층을 더 포함할 수 있다.

[0082]

보다 구체적으로, 본 발명을 따르는 유기 발광 소자의 구현에는

[0083]

먼저, 유기 발광 소자는 제1전극/정공주입층/발광층/전자수송층/전자주입층/제2전극으로 이루어진 구조를 가질 수 있고,

[0084]

또 유기 발광 소자는 제1전극/정공주입층/정공수송층/발광층/전자수송층/전자주입층/제2전극으로 이루어진 구조를 가질 수 있으며,

[0085]

나아가 유기 발광 소자는 제1전극/정공주입층/정공수송층/발광층/정공저지층/전자수송층/전자주입층/제2전극의 구조를 가질 수 있다.

[0086]

이때, 상기 정공수송층, 정공주입층 및 발광층 중 하나 이상은 본 발명을 따르는 화합물을 포함할 수 있다.

[0087]

본 발명을 따르는 유기 광소자의 발광층은 적색, 녹색, 청색 또는 백색을 포함하는 인광 또는 형광 도펀트를 포함할 수 있다. 이 중, 상기 인광 도펀트는 Ir, Pt, Os, Ti, Zr, Hf, Eu, Tb 및 Tm으로 이루어진 균으로부터 선

택된 하나 이상의 원소를 포함하는 유기금속화합물일 수 있다. 또한, 본 발명에 따르는 화합물은 발광층에서 형광 도펀트로도 사용될 수 있다.

- [0088] 이하, 본 발명을 따르는 유기 광소자의 제조 방법을 유기 광소자를 참조하여, 살펴보기로 한다. 먼저 기관 상부에 높은 일함수를 갖는 제1전극용 물질을 증착법 또는 스퍼터링법 등에 의해 형성하여 제1전극을 형성한다. 상기 제1전극은 애노드(Anode)일 수 있다. 여기에서 기관으로는 통상적인 유기 광소자에서 사용되는 기관을 사용하는데 기계적 강도, 열적 안정성, 투명성, 표면 평활성, 취급용이성 및 방수성이 우수한 유리 기관 또는 투명 플라스틱 기관이 바람직하다. 제1전극용 물질로는 투명하고 전도성이 우수한 산화인듐주석(ITO), 산화인듐아연(IZO), 산화주석(SnO₂), 산화아연(ZnO) 등을 사용한다.
- [0089] 다음으로, 상기 제1전극 상부에 진공증착법, 스펀코팅법, 캐스트법, LB법 등과 같은 다양한 방법을 이용하여 정공주입층(HIL)을 형성할 수 있다.
- [0090] 진공증착법에 의하여 정공주입층을 형성하는 경우, 그 증착 조건은 정공주입층의 재료로서 사용하는 화합물, 목적으로 하는 정공주입층의 구조 및 열적 특성 등에 따라 다르지만, 일반적으로 증착온도 100 내지 500℃, 진공도 10⁻⁵ 내지 10⁻³ torr, 증착속도 0.01 내지 100Å/sec, 막 두께는 통상 100Å 내지 1μm 범위에서 적절히 선택하는 것이 바람직하다.
- [0091] 스펀코팅법에 의하여 정공주입층을 형성하는 경우, 그 코팅 조건은 정공주입층의 재료로서 사용하는 화합물, 목적으로 하는 정공주입층의 구조 및 열적 특성에 따라 상이하지만, 약 2000rpm 내지 5000rpm의 코팅 속도, 코팅 후 용매 제거를 위한 열처리 온도는 약 80℃ 내지 200℃의 온도 범위에서 적절히 선택하는 것이 바람직하다.
- [0092] 상기 정공주입층 물질은 전술한 바와 같은 화학식 a를 갖는 화합물일 수 있다.
- [0093] 또는, 예를 들어, 미국특허 제4,356,429호에 개시된 구리프탈로시아닌 등의 프탈로시아닌 화합물 또는 Advanced Material, 6, p.677(1994)에 기재되어 있는 스타버스트형 아민 유도체류인 TCTA, m-MTDATA, m-MTDAPB, 2-TNATA(4,4',4"-tris(N-(2-naphtyl)-N-phenylamino)triphenylamine; 4,4',4"-트리스(N-(나프틸)-N-페닐아미노)트리페닐아민), 용해성이 있는 전도성 고분자인 Pani/DBSA (Polyaniline/Dodecylbenzenesulfonic acid: 폴리아닐린/도데실벤젠술포산) 또는 PEDOT/PSS (Poly(3,4-ethylenedioxythiophene)/Poly(4-styrenesulfonate): 폴리(3,4-에틸렌디옥시티오펜)/폴리(4-스티렌술포네이트)), PANI/CSA (Polyaniline/Camphor sulfonic acid: 폴리아닐린/캄퍼술포산) 또는 PANI/PSS
- [0094] (Polyaniline)/Poly(4-styrenesulfonate): 폴리아닐린)/폴리(4-스티렌술포네이트)) 등과 같은 공지된 정공주입 물질을 사용할 수 있다.
- [0095] 상기 정공주입층의 두께는 약 100Å 내지 10000Å, 바람직하게는 100Å 내지 1000Å일 수 있다. 상기 정공주입층의 두께가 100Å 미만인 경우, 정공주입 특성이 저하될 수 있으며, 상기 정공주입층의 두께가 10000Å를 초과하는 경우, 구동전압이 상승할 수 있기 때문이다.
- [0096] 다르게는, 상기 정공주입층은 진공기상증착법에 의해 형성할 수 있다. 구체적인 증착조건은 사용하는 화합물에 따라 다르지만, 일반적인 정공주입층의 형성과 거의 동일한 조건범위 중에서 선택된다. 예를 들어 DNTPD(N,N-bis-[4-(di-m-tolylamino)phenyl]-N,N'-diphenylbiphenyl-4,4'-diamine) 등이 사용될 수 있다.
- [0097] 다음으로 상기 정공주입층 상부에 진공증착법, 스펀코팅법, 캐스트법, LB법 등과 같은 다양한 방법을 이용하여 정공수송층(HTL)을 형성할 수 있다. 진공증착법 및 스펀코팅법에 의하여 정공수송층을 형성하는 경우, 그 증착조건 및 코팅조건은 사용하는 화합물에 따라 다르지만, 일반적으로 정공주입층의 형성과 거의 동일한 조건범위 중에서 선택된다.
- [0098] 상기 정공수송층 물질은 전술한 바와 같은 화학식 a의 화합물을 포함할 수 있다. 또는, 예를 들어, N-페닐카르바졸, 폴리비닐카르바졸 등의 카르바졸 유도체, N,N'-비스(3-메틸페닐)-N,N'-디페닐-[1,1'-비페닐]-4,4'-디아민(TPD), N,N'-디(나프탈렌-1-일)-N,N'-디페닐 벤지딘(α-NPD) 등의 방향족 축합환을 가지는 통상적인 아민 유도체 등과 같은 공지된 정공수송 물질을 사용할 수 있다. 상기 정공수송층의 두께는 약 50Å 내지 1000Å, 바람직하게는 100Å 내지 600Å일 수 있다. 상기 정공수송층의 두께가 50Å 미만인 경우, 정공수송 특성이 저하될 수 있으며, 상기 정공수송층의 두께가 1000Å를 초과하는 경우, 구동전압이 상승할 수 있기 때문이다.
- [0099] 다음으로 상기 정공수송층 상부에 진공증착법, 스펀코팅법, 캐스트법, LB법 등과 같은 방법을 이용하여 발광층

(EML)을 형성할 수 있다. 진공증착법 및 스펀코팅법에 의해 발광층을 형성하는 경우, 그 증착조건은 사용하는 화합물에 따라 다르지만, 일반적으로 정공주입층의 형성과 거의 동일한 조건범위 중에서 선택된다.

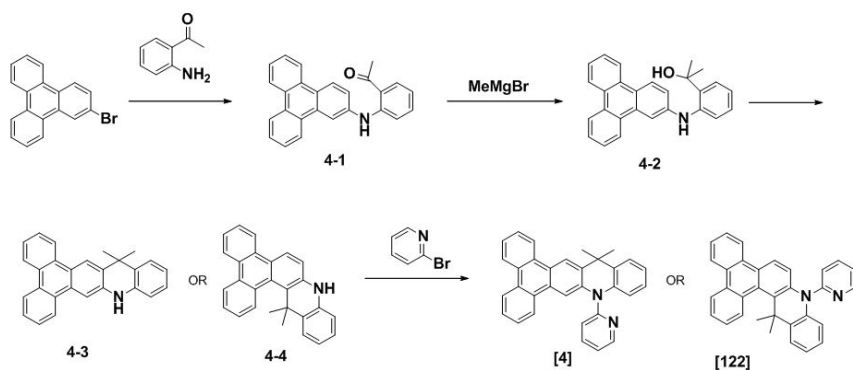
- [0100] 상기 발광층은 전술한 바와 같이 본 발명을 따르는 화학식 a의 화합물을 포함할 수 있다. 이 때, 화학식 a의 화합물은 적합한 공지의 호스트 재료와 함께 사용될 수 있거나, 공지의 도펀트 재료와 함께 사용될 수 있다.
- [0101] 상기 화학식 a의 화합물을 단독으로 사용하는 것도 가능하다. 호스트 재료의 경우, 예를 들면, Alq3(tris(8-hydroxy-quinolate)aluminium) 또는 CBP(4,4'-N,N'-디카바졸-비페닐), 또는 PVK(폴리(n-비닐카바졸)) 등을 사용할 수 있다.
- [0102] 도펀트 재료의 경우, 형광 도펀트로서는 이데미츠사(Idemitsu사)에서 구입 가능한 IDE102, IDE105 및 하야시바라사에서 구입 가능한 C545T 등을 사용할 수 있으며, 인광 도펀트로서는 적색 인광 도펀트 PtOEP, UDC사의 RD61, 녹색 인광 도펀트 Ir(PPy)3(PPy=2-phenylpyridine), 청색 인광 도펀트인 F2Irpic, UDC사의 적색 인광 도펀트 RD 61 등을 사용할 수 있다. MQD(N-methylquinacridone), 쿠마린(Coumarine)유도체 등도 사용할 수 있다.
- [0103] 도핑 농도는 특별히 제한 되지 않으나 통상적으로 호스트100 중량부를 기준으로 하여 상기 도펀트의 함량은 0.01 ~ 15 중량부이다. 상기 발광층의 두께는 약 100Å 내지 1000Å, 바람직하게는 200Å 내지 600Å일 수 있다.
- [0104] 상기 발광층의 두께가 100Å 미만인 경우, 발광 특성이 저하될 수 있으며, 상기 발광층의 두께가 1000Å를 초과하는 경우, 구동전압이 상승할 수 있기 때문이다.
- [0105] 발광층에 발광 화합물이 인광 도펀트와 함께 사용할 경우에는 삼중항 여기자 또는 정공이 전자수송층으로 확산 되는 현상을 방지하기 위하여, 상기 발광층 상부에 진공증착법, 스펀코팅법, 캐스트법, LB법 등과 같은 방법을 이용하여 정공저지층(HBL)을 형성할 수 있다. 진공증착법 및 스펀코팅법에 의해 정공저지층을 형성하는 경우, 그 조건은 사용하는 화합물에 따라 다르지만, 일반적으로 정공주입층의 형성과 거의 동일한 조건범위 중에서 선택된다. 사용가능한 공지의 정공저지재료, 예를 들면 옥사디아졸 유도체나 트리아졸 유도체, 페난트롤린 유도체, BCP 등을 들 수 있다.
- [0106] 상기 정공저지층의 두께는 약 50Å 내지 1000Å, 바람직하게는 100Å 내지 300Å일 수 있다. 상기 정공저지층의 두께가 50Å 미만인 경우, 정공저지 특성이 저하될 수 있으며, 상기 정공저지층의 두께가 1000Å를 초과하는 경우, 구동전압이 상승할 수 있기 때문이다. 상기 정공저지층이 생략될 경우 도 1b에 도시된 구조를 가지는 유기발광 소자가 얻어진다.
- [0107] 다음으로 전자수송층(ETL)을 진공증착법, 또는 스펀코팅법, 캐스트법 등의 다양한 방법을 이용하여 형성한다.
- [0108] 진공증착법 및 스펀코팅법에 의해 전자수송층을 형성하는 경우, 그 조건은 사용하는 화합물에 따라 다르지만, 일반적으로 정공주입층의 형성과 거의 동일한 조건범위 중에서 선택된다. 상기 전자수송층 재료는 전자주입전극(Cathode)로부터 주입된 전자를 안정하게 수송하는 기능을 하는 것으로서 퀴놀린 유도체, 특히 트리스(8-퀴놀리노레이트)알루미늄(Alq3), TAZ, Balq, PBD등과 같은 공지의 재료를 사용할 수도 있다.
- [0109] 상기 전자수송층의 두께는 약 100Å 내지 1000Å, 바람직하게는 200Å 내지 500Å일 수 있다. 상기 전자수송층의 두께가 100Å 미만인 경우, 전자수송 특성이 저하될 수 있으며, 상기 전자수송층의 두께가 1000Å를 초과하는 경우, 구동전압이 상승할 수 있기 때문이다.
- [0110] 또한 전자수송층 상부에 음극으로부터 전자의 주입을 용이하게 하는 기능을 가지는 물질인 전자주입층(EIL)이 적층될 수 있으며 이는 특별히 재료를 제한하지 않는다.
- [0111] 전자 주입층으로서 LiF, NaCl, CsF, Li2O, BaO 등과 같은 전자주입층 형성 재료로서 공지된 임의의 물질을 이용할 수 있다. 상기 전자주입층의 증착조건은 사용하는 화합물에 따라 다르지만, 일반적으로 정공주입층의 형성과 거의 동일한 조건범위 중에서 선택된다.
- [0112] 상기 전자주입층의 두께는 약 1Å 내지 100Å, 바람직하게는 5Å 내지 50Å일 수 있다. 상기 전자주입층의 두께가 1Å 미만인 경우, 전자주입 특성이 저하될 수 있으며, 상기 전자주입층의 두께가 100Å를 초과하는 경우, 구동전압이 상승할 수 있기 때문이다.
- [0113] 마지막으로 전자주입층 상부에 진공증착법이나 스퍼터링법 등의 방법을 이용하여 제2전극을 형성할 수 있다.

[0114] 상기 제2전극은 캐소드(Cathode)로 사용될 수 있다. 상기 제2전극 형성용 금속으로는 낮은 일함수를 가지는 금속, 합금, 전기전도성 화합물 및 이들의 혼합물을 사용할 수 있다. 구체적인 예로서는 리튬(Li), 마그네슘(Mg), 알루미늄(Al), 알루미늄-리튬(Al-Li), 칼슘(Ca), 마그네슘-인듐(Mg-In), 마그네슘-은(Mg-Ag)등을 들 수 있다. 또한 전면 발광소자를 얻기 위하여 ITO, IZO를 사용한 투과형 캐소드를 사용할 수도 있다.

[0115] 본 발명의 다른 구현예에 따르는 유기 전계 발광 화합물은 상기 화학식 a로 표현될 수 있으며, 보다 구체적으로는 상기 화학식 1 내지 140으로 표현될 수 있다. 상기 화합물들에 대한 구체적인 내용은 상술한 유기 발광 소자에 대하여 설명한 부분과 동일하다.

[0116] 이하에서, 본 발명의 반응예 및 비교예를 구체적으로 예시하지만, 본 발명이 하기의 합성예 및 실시예로 한정되는 것은 아니다. 이하의 반응예에서 중간체 화합물은 최종 생성물의 번호에 일련번호를 추가하는 방식으로 표기한다. 예를 들어, 화합물 1은 화합물 [1] 로 상기 화합물의 중간체 화합물은 [1-1] 등으로 표기한다. 본 명세서에서 화합물의 번호는 화학식의 번호로서 표기한다. 예를 들어, 화학식 1로 표시되는 화합물은 화합물 1로 표기한다.

[0117] [반응 예 1] 화합물 [4]의 제조



[0118]

[0119] 중간체 화합물 [4-1]의 제조

[0120] 반응플라스크에 2-브로모트리페닐렌 100g(0.327mol), 구리분말 20.8g(0.327mol), 탄산칼륨 45.2g(0.327mol), 페닐에테르 1L를 넣고 질소분위기, 180℃ 에서 24시간동안 교반한다. 반응종결 후 반응액을 규조토를 이용해 여과한다. 여고액에 메탄올 3L를 가해 고체화시킨다. 고체를 여과하고 컬럼크로마토그래프로 분리정제하여 노란색 고체의 중간체화합물 [4-1] 65g(55%)을 제조하였다.

[0121] 중간체 화합물[4-2]의 제조

[0122] 반응플라스크에 중간체화합물 [4-1] 65g(0.179mol), 무수테트라히드로푸란 1L을 넣고 상온교반시킨다. 0℃, 질소분위기에서 메틸마그네슘브로마이드(3.0M) 179mL(0.537mol)를 천천히 적가시키고 상온으로 승온하여12시간 동안 교반시킨다. 반응이 종료되면 반응액을 1N 염산 수용액에 붓고 에틸아세테이트로 추출한다. 유기층 분리 후 컬럼크로마토그래프로 분리정제하여 흰색고체의 중간체화합물 [4-2] 51g(75%)을 제조하였다.

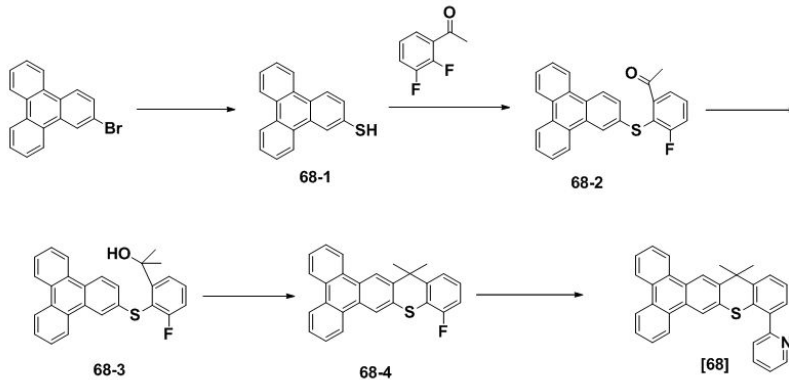
[0123] 중간체 화합물[4-3], [4-4]의 제조

[0124] 반응플라스크에 중간체 화합물[4-2] 50g(0.132mol)을 디클로로메탄 700mL로 교반하여 녹인다. 질소분위기에서 메탄술폰산 25.8mL(0.397mol)을 넣고 상온교반한다. 반응종결 후 상수에 반응액을 천천히 넣어 교반 후 에틸아세테이트로 추출한다. 유기층 분리 후 컬럼크로마토그래프로 분리정제하여 노란색고체의 중간체화합물 [4-3] 25g(52%) 과 [4-4] 20g(42%)을 제조하였다.

[0126] 화합물 [4]의 제조

[0127] 중간체 화합물 [4-3] 5.0g(13.91mmol), 2-브로모피리딘 2.64g(16.69mmol), 팔라듐(II) 아세테이트 62mg(0.278mmol), 포타슘 t-부톡사이드 2.00g(20.87mmol), 50% 트리-t-부틸포스핀 0.27mL(0.556mmol), 톨루엔 100mL 반응 플라스크에 투입한다. 질소 분위기에서 3시간동안 환류교반시켰다. 반응 종료 후 메탄올 200mL를 첨가하여 결정화 시킨다. 고체를 실리카겔 크로마토그래프로 분리정제하여 흰색고체의 목적화합물 [1] 3.8g(63%)을 제조하였다.

[0128] [반응 예 2] 화합물 [68]의 제조



[0129]

[0130] 중간체 화합물 [68-1]의 제조

[0131] 반응 플라스크에 2-브로모트리페닐렌 100g(0.325mol), 소듐 티오설페이트 128.7g(0.813mol), 세슘카보네이트 211.8g(0.65mol), 트리스(디벤질리디아세톤)디팔라듐 2.98g(3.25mmol), 2-디시클로헥실포스포노-2',4',6'-트리이소프로필비페닐 6.2g(13.0mmol)을 투입하고 터트-부탄올 200mL, 톨루엔 300mL, 정제수 11.7mL 를 가하여 알곤 분위기, 80℃에서 24시간 동안 교반한다. 상온으로 냉각후 고체를 여과한다. 고체를 아연 319g(4.88mol), 10% 염산 얼음물 수용액 2.5L 로 1시간 동안 교반한다. 반응액을 에틸아세테이트로 추출한다. 유기층을 무수황산 마그네슘으로 건조 후 여과한다. 컬럼크로마토그래프로 분리정제하여 중간체화합물 [68-1] 50g (59%)을 제조하였다.

[0132] 중간체 화합물 [68-2]의 제조

[0133] 1L 반응플라스크에 중간체 화합물 [68-1] 50.0g (0.192mol)과 탄산칼륨 39.8g (0.288mol)을 질소 분위기에서 N,N-디메틸포름아미드 500mL로 교반한다. 상온에서 1-9(2,3-디플로로페닐)에탄온 36g(0.230mol)을 투입하고 승온하여 100℃에서 12시간 동안 교반한다. 상온으로 냉각하고 반응액을 포화 염화암모늄 수용액 1L 에 부어 에틸아세테이트 1.5L 로 유기층을 분리한다. 유기층을 무수황산 마그네슘으로 건조하여 여과한다. 여과액은 감압 농축하여 디클로로메탄과 헥산으로 재결정화하여 중간체 화합물 [68-2] 42.0g (55%)을 제조하였다.

[0135] 중간체 화합물 [68-3]의 제조

[0136] 중간체 화합물 [4-2]의 제조예와 동일한 방법으로 중간체 화합물 [68-3] 42.0g(0.106mol), 메틸 마그네슘 브로마이드를 사용하여 무색 오일의 중간체 화합물 [68-3] 35.0g(80%)을 제조하였다.

[0137] 중간체 화합물 [68-4]의 제조

[0138] 중간체 화합물 [4-3]의 제조예와 동일한 방법으로 중간체 화합물[68-3] 35g(84.84mmol), 메탄술폰산 을 사용하여 중간체 화합물 [68-4] 28g(84%) 을 제조하였다.

[0139] 화합물 [68]의 제조

[0140] 화합물 [4]의 제조예와 동일한 방법으로 중간체 화합물 [68-4] 5.0g(12.67mmol), 2-브로모피리딘 2.40g(15.2mmol), 팔라듐(II) 아세테이트 57mg(0.253mmol), 포타슘 t-부톡시드 1.83g(19.00mmol), 50% 트리-t-부틸포스핀 0.25mL(0.506mmol), 톨루엔 100mL 를 사용하여 흰색고체의 목적화합물 [68] 3.1g(54%)을 제조하였다.

[0141] 상기 반응예 1과 2의 방법에 따라 1 내지 140의 화합물을 제조하였으며, 하기 [제1군(群) 표]에 그 결과를 나타내었다.

[0142] [제1군(群) 표]

화합물 번호	¹ H NMR (300 MHz, CDCl ₃) (δ)	MS/FAB (M ⁺)
1	8.07(d, 1H), 7.83~7.78(m, 2H), 7.68(d, 1H), 7.53~7.49(m, 2H), 7.31~7.29(m, 2H), 7.05~6.92(m, 2H), 6.81~6.49(m, 4H), 1.75(s, 6H)	336
2	8.90(d, 1H), 8.52(s, 1H), 8.11~8.08(m, 2H), 7.86~7.57(m, 5H), 7.25(d, 1H), 7.05~7.02(m, 2H), 6.75~6.53(m, 4H), 1.76(s, 6H)	386
3	8.87(d, 2H), 8.09~7.65(m, 8H), 7.06~7.02(m, 2H), 6.74~6.58(m, 4H), 1.76(s, 6H)	388
4	8.89(d, 2H), 8.11~7.68(m, 10H), 7.06~7.01(m, 2H), 6.74~6.56(m, 4H), 1.75(s, 6H)	436
5	8.09(d, 1H), 7.88(d, 1H), 7.58~7.55(m, 2H), 7.47(s, 1H), 7.37~7.29(m, 2H), 7.04~7.01(m, 2H), 6.73~6.54(m, 5H), 1.74(s, 12H)	402
6	8.16~7.89(m, 4H), 7.58~7.54(m, 2H), 7.48(s, 1H), 7.37~7.28(m, 2H), 7.04~7.00(m, 2H), 6.73~6.56(m, 5H), 1.89(s, 6H), 1.76(s, 6H)	452
7	8.14~7.90(m, 4H), 7.58~7.55(m, 2H), 7.47(s, 1H), 7.36~7.28(m, 2H), 7.05~7.01(m, 2H), 6.77~6.57(m, 5H), 1.90(s, 6H), 1.73(s, 6H)	452
8	8.06~7.78(m, 4H), 7.54~7.49(m, 2H), 7.31~7.28(m, 2H), 7.05~6.95(m, 2H), 6.81~6.52(m, 4H), 1.75(s, 6H)	336
9	8.02~7.58(m, 6H), 7.48(s, 1H), 7.37~7.01(m, 10H), 7.14~6.57(m, 5H), 1.74(s, 6H)	524
10	8.06(d, 1H), 7.87(d, 1H), 7.77~7.70(m, 3H), 7.54~7.29(m, 4H), 7.05~7.02(m, 2H), 6.78~6.55(m, 5H), 1.76(s, 18H)	518
11	8.05~7.83(m, 4H), 7.54~7.42(m, 6H), 7.28~7.23(m, 4H), 7.04~7.01(m, 4H), 6.74~6.55(m, 10H), 1.73(s, 12H)	732
12	8.05(d, 2H), 7.53~7.47(m, 4H), 7.05~7.02(m, 4H), 6.74~6.54(m, 10H), 1.71(s, 18H)	610
13	8.07~8.06(d, 1H), 7.85~7.68(m, 6H), 7.55~7.30(m, 7H), 6.70~7.62(m, 2H), 1.83(s, 6H)	386
14	8.07~8.03(m, 3H), 7.85~7.68(m, 3H), 7.55~7.30(m, 7H), 6.91~6.62(m, 3H), 1.83(s, 6H)	386
15	8.12~8.07(m, 2H), 7.88~7.65(m, 8H), 7.05~7.02(m, 2H), 6.73~6.60(m, 4H), 1.78(s, 6H)	410
16	8.94~8.92(m, 2H), 8.12~8.07(m, 3H), 7.88~7.72(m, 6H), 7.55~7.54(t, 1H), 7.02~7.00(m, 2H), 6.73~6.62(m, 4H), 1.84(s, 6H)	436

[0143]

17	8.07~8.06(m, H), 7.71~7.55(m, 8H), 7.05~7.01(m, 4H), 6.73~6.55(m, 8H), 1.78(s, 12H)	618
18	8.93~8.92(m, 2H), 8.12~8.07(m, 4H), 7.88~7.81(m, 4H), 7.55~7.54(m, 2H), 7.02~7.01(m, 4H), 6.73~6.62(m, 8H), 1.84(s, 12H)	644
19	8.93~8.92(m, 2H), 8.12~8.04(m, 5H), 7.88~7.74(m, 5H), 7.36~7.27(m, 2H), 7.05~7.02(m, 2H), 6.73~6.58(m, 2H), 1.78(s, 6H)	436
20	8.93~8.92(m, 2H), 8.46~8.45(d, 2H), 8.12~8.05(m, 3H), 7.88~7.74(m, 5H), 7.05~6.99(m, 4H), 6.73~6.55(m, 2H), 1.78(s, 6H)	436
21	8.93~8.92(m, 2H), 8.43~8.40(d, 2H), 8.12~8.05(m, 3H), 7.88~7.74(m, 5H), 7.05~6.93(m, 3H), 6.73~6.55(m, 2H), 1.77(s, 6H)	437
22	8.93~8.92(m, 2H), 8.46~8.45(d, 2H), 8.12~8.05(m, 3H), 7.88~7.74(m, 5H), 7.05~6.93(m, 3H), 6.73~6.55(m, 2H), 1.77(s, 6H)	633
23	8.93~8.92(m, 2H), 8.47(s, 2H), 8.12~8.05(m, 3H), 7.88~7.74(m, 5H), 7.05~7.02(m, 2H), 6.73~6.55(m, 2H), 1.77(s, 6H)	438
24	8.93~8.92(m, 2H), 8.12~8.05(m, 3H), 7.88~7.74(m, 10h), 7.51~7.41(m, 6H), 7.05~7.02(m, 2H), 6.73~6.55(m, 2H), 1.77(s, 6H)	589
25	8.93(d, 2H), 8.29~8.25(m, 4H), 8.12(d, 2H), 8.05(s, 1H), 7.88~7.83(m, 4H), 7.74(s, 1H), 7.50~7.42(m, 6H), 7.05~7.01(m, 2H), 6.73(t, 1H), 6.55(d, 1H), 1.78(s, 6H)	590
26	8.93(d, 2H), 8.11~8.04(m, 5H), 7.86~7.79(m, 5H), 7.33~7.28(m, 2H), 7.05~7.02(m, 2H), 6.73(t, 1H), 6.54(d, 1H), 1.91(dd, 4H), 0.90(t, 6H)	464
27	8.94(d, 2H), 8.12~8.05(m, 5H), 7.85~7.78(m, 5H), 7.34~7.30(m, 2H), 7.06~7.02(m, 2H), 6.72(t, 1H), 6.55(d, 1H), 1.87(t, 4H), 1.32~1.28(m, 16H), 0.88(t, 6H)	576
28	8.93(d, 2H), 8.10~8.03(m, 5H), 7.87~7.82(m, 4H), 7.67(s, 1H), 7.37~7.29(m, 8H), 7.08~7.01(m, 6H), 6.69(t, 1H), 6.51(d, 1H)	560
29	8.93(d, 2H), 8.11~8.06(m, 3H), 7.89~7.83(m, 4H), 7.74(s, 1H), 7.58~7.47(m, 6H), 7.16(d, 1H), 7.06~7.02(m, 2H), 6.74(t, 1H), 6.55(d, 1H), 1.78(s, 6H)	501
30	8.94(d, 2H), 8.56(d, 1H), 8.12~8.07(m, 3H), 7.88~7.82(m, 4H), 8.06(s, 1H), 7.58~7.47(m, 6H), 7.23~7.20(m, 2H), 7.05~7.01(m, 2H), 6.73(t, 1H), 6.55(d, 1H), 1.78(s, 6H)	551
31	8.92(d, 2H), 8.17~8.13(m, 3H), 8.06~8.02(m, 2H), 7.87~7.82(m, 4H), 7.74(s, 1H), 7.55~7.52(m, 2H), 7.05~7.02(m, 2H), 6.73(t, 1H), 6.54(d, 1H), 1.78(s, 6H)	492

[0144]

32	8.93(d, 2H), 8.27~8.25(m, 2H), 8.12(d, 2H), 8.05(s, 1H), 7.88~7.83(m, 4H), 7.74(s, 1H), 7.57~7.43(m, 8H), 7.06~7.02(m, 2H), 6.73(t, 1H), 6.55(d, 1H), 1.78(s, 6H)	578
33	8.92(d, 2H), 8.12(d, 3H), 8.05(s, 1H), 7.87~7.75(m, 7H), 7.50~7.41(m, 8H), 7.05~7.02(m, 2H), 6.88(t, 1H), 6.73(t, 1H), 6.55~6.53(m, 2H), 1.78(s, 6H)	627
34	8.93(d, 2H), 8.68(s, 1H), 8.16~8.12(m, 3H), 8.04(s, 1H), 7.88~7.82(m, 4H), 7.74(s, 1H), 7.57~7.46(m, 5H), 7.05~7.01(m, 2H), 6.73(t, 1H), 6.55(d, 1H), 1.78(s, 6H)	553
35	8.92(d, 2H), 8.56(d, 1H), 8.11~8.07(m, 3H), 7.89~7.83(m, 4H), 7.74(s, 1H), 7.58~7.45(m, 8H), 7.23~7.21(m, 2H), 7.04~7.01(m, 2H), 6.89(s, 1H), 6.73(t, 1H), 6.58~6.55(m, 2H), 1.78(s, 6H)	627
36	8.93(d, 2H), 8.28(d, 2H), 8.11~8.06(m, 3H), 7.88~7.83(m, 4H), 7.74(s, 1H), 7.57~7.42(m, 10H), 7.05~7.01(m, 2H), 6.89(s, 1H), 6.73(t, 1H), 6.58~6.55(m, 2H), 1.78(s, 6H)	654
37	8.83(d, 2H), 8.12(d, 1H), 8.02(d, 2H), 7.95(s, 1H), 7.84~7.59(m, 8H), 7.47(d, 1H), 7.27~7.26(m, 1H), 7.05~7.02(m, 2H), 6.73~6.72(m, 1H), 6.55(d, 1H), 1.68(s, 6H)	486
38	8.83(d, 2H), 8.18(d, 1H), 8.07~8.02(m, 3H), 8.05(s, 1H), 7.74(s, 1H), 7.47~7.41(m, 3H), 7.05~6.99(m, 3H), 6.73~6.72(m, 1H), 6.55(d, 1H), 1.68(s, 6H)	486
39	8.83(d, 2H), 8.39(s, 1H), 8.06~8.02(m, 3H), 7.95(s, 1H), 7.88~7.82(m, 6H), 7.74(s, 1H), 7.58~7.57(m, 1H), 7.05~7.02(m, 2H), 6.73~6.72(m, 1H), 6.55(d, 1H), 1.68(s, 6H)	487
40	8.83(d, 2H), 8.35(d, 1H), 8.02(d, 2H), 7.95(s, 1H), 7.98~7.82(m, 6H), 7.74(s, 1H), 7.52~7.50(m, 2H), 7.27~7.26(m, 1H), 7.05~7.02(m, 2H), 6.86(d, 1H), 6.73~6.72(m, 1H), 6.55(d, 1H), 1.68(s, 6H)	541
41	8.83(d, 2H), 8.35~8.31(m, 2H), 8.10(d, 1H), 8.02(d, 2H), 7.95(s, 1H), 7.98~7.82(m, 5H), 7.74(s, 1H), 7.58~7.44(m, 4H), 7.05~7.02(m, 2H), 6.89~6.88(m, 2H), 6.73~6.72(m, 1H), 6.59~6.55(m, 2H), 1.68(s, 6H)	617
42	8.83(d, 2H), 8.35~8.31(m, 2H), 8.10(d, 1H), 8.02(d, 2H), 7.98~7.82(m, 6H), 7.74(s, 1H), 7.58~7.50(m, 5H), 7.05~7.02(m, 2H), 6.73~6.69(m, 3H), 6.55(d, 1H), 1.68(s, 6H)	617

[0145]

43	9.14(s, 1H), 8.83(d, 2H), 8.60(d, 1H), 8.32(d, 1H), 8.02(d, 2H), 7.95(s, 1H), 7.88~7.82(m, 4H), 7.74(s, 1H), 7.57~7.56(m, 1H), 7.44~7.43(m, 1H), 7.05~7.02(m, 2H), 6.89~6.88(m, 2H), 6.73~6.72(m, 1H), 6.59~6.55(m, 2H), 1.68(s, 6H)	512
44	9.14(s, 1H), 8.83(d, 2H), 8.60(d, 1H), 8.32(d, 1H), 8.02(d, 2H), 7.95(s, 1H), 7.88~7.82(m, 4H), 7.74(s, 1H), 7.57~7.54(m, 3H), 7.05~7.02(m, 2H), 6.73~6.69(m, 3H), 6.55(d, 1H), 1.68(s, 6H)	512
45	8.83(d, 2H), 8.35(d, 1H), 8.02(d, 2H), 7.95(s, 1H), 7.88~7.82(m, 5H), 7.74~7.73(m, 2H), 7.52~7.50(m, 2H), 7.40(s, 1H), 7.05~7.02(m, 2H), 6.86(d, 1H), 6.73~6.72(m, 1H), 6.55(d, 1H), 1.68(s, 6H)	541
46	8.83(d, 2H), 8.35~8.33(m, 2H), 8.02(d, 2H), 7.95(s, 1H), 7.88~7.82(m, 6H), 7.74(s, 1H), 7.52~7.50(m, 4H), 7.40(s, 1H), 7.05~7.02(m, 2H), 6.73~6.72(m, 1H), 6.55(d, 1H), 1.68(s, 6H)	647
47	8.83(d, 2H), 8.45(d, 1H), 8.12~8.05(m, 4H), 7.94~7.81(m, 6H), 7.74(s, 1H), 7.58~7.45(m, 5H), 7.33~7.25(m, 4H), 7.05~7.02(m, 2H), 6.86(d, 1H), 6.73~6.72(m, 1H), 6.55(d, 1H), 1.68(s, 6H)	706
48	8.83(d, 2H), 8.02(d, 2H), 7.95(s, 1H), 7.88~7.82(m, 4H), 7.74~7.69(m, 2H), 7.34~7.33(m, 1H), 7.11~7.02(m, 4H), 6.86~6.85(m, 1H), 6.73~6.72(m, 1H), 6.55(d, 1H), 6.46(d, 1H), 6.25(d, 1H), 1.68(s, 6H), 1.62(s, 6H)	583
49	8.95(d, 2H), 8.14~7.71(m, 9H), 7.46~7.07(m, 9H), 6.89~6.61(m, 5H), 1.81(s, 6H), 1.74(s, 6H)	659
50	8.95(d, 2H), 8.14~7.67(m, 9H), 7.35~6.75(m, 17H), 6.57~6.26(m, 3H), 1.81(s, 6H)	707
51	8.95(d, 2H), 8.47~7.74(m, 12H), 7.57~7.04(m, 7H), 6.75 ~6.57(m, 2H), 1.81(s, 6H)	591
52	8.95(d, 2H), 8.19~7.76(m, 10H), 7.55~7.41(m, 4H), 7.07 ~6.57(m, 6H), 1.81(s, 6H)	568
53	8.95(d, 2H), 8.14~7.73(m, 10H), 7.38~6.57(m, 9H), 1.81(s, 6H), 1.74(s, 6H)	607
54	8.95(m, 4H), 8.43~8.07(m, 10H), 7.89~7.59(m, 14H), 7.29~6.57(m, 12H), 1.81(s, 12H)	1080
55	8.95(m, 2H), 8.47~8.43(m, 3H), 8.22~7.76(m, 12H), 7.59~7.29(m, 5H), 7.07~6.57(m, 5H), 1.81(s, 6H)	723
56	9.26(s, 1H), 8.95(m, 2H), 8.72~8.07(m, 7H), 7.89~7.59(m, 8H), 7.29~6.57(m, 6H), 1.81(s, 6H)	618

[0146]

57	9.26(s, 1H), 8.95(m, 2H), 8.72~8.07(m, 11H), 7.89~7.59(m, 10H), 7.29~6.57(m, 6H), 1.81(s, 6H)	801
58	8.95(d, 1H), 8.57(s, 1H), 8.14~7.43(m, 13H), 7.26~6.57(m, 7H), 1.81(s, 6H)	512
59	8.95(d, 1H), 8.57(s, 1H), 8.18~7.81(m, 10H), 7.57~7.26(m, 8H), 7.07~6.57(m, 6H), 1.81(s, 6H)	588
60	8.95(d, 1H), 8.57(s, 1H), 8.16~7.81(m, 8H), 7.57~7.26(m, 10H), 7.07~6.57(m, 6H), 1.81(s, 6H)	588
61	8.83(d, 1H), 8.45(s, 1H), 8.21(s, 1H), 8.02~7.97(m, 2H), 7.78~7.69(m, 6H), 7.45~7.31(m, 12H), 7.14(s, 1H), 6.95~6.92(m, 2H), 6.63~6.45(m, 4H), 1.68(s, 6H)	664
62	.45(m, 2H), 8.21(s, 1H), 7.97(m, 2H), 7.69(m, 4H), 7.45~7.41(m, 10H), 7.31(m, 3H), 7.14(m, 2H), 6.95~6.92(m, 4H), 6.63~6.45(m, 8H), 1.68(s, 12H)	873
63	8.73(s, 1H), 8.45(s, 1H), 8.35~8.31(m, 2H), 8.21(s, 1H), 8.10~8.08(m, 2H), 7.97~7.88(m, 3H), 7.69(m, 4H), 7.48~7.31(m, 15H), 7.14(s, 1H), 6.95~6.92(m, 2H), 6.63~6.45(m, 4H), 1.68(s, 6H)	847
64	8.73(s, 1H), 8.45(s, 1H), 8.22(s, 1H), 8.02~7.97(m, 6H), 7.69~7.67(m, 5H), 7.53~7.31(m, 19H), 7.19~7.14(m, 2H), 6.95~6.92(m, 2H), 6.63~6.52(m, 4H), 1.68(s, 6H)	906
65	8.40(d, 1H), 7.91~7.82(m, 3H), 7.48~7.41(m, 4H), 7.16~7.10(m, 3H), 7.02(d, 1H), 6.90(t, 1H), 1.68(s, 6H)	353
66	8.83(d, 1H), 8.50(s, 1H), 8.40(d, 1H), 8.02(d, 1H), 7.88~7.72(m, 4H), 7.61(m, 2H), 7.41(t, 1H), 7.16~7.02(m, 3H), 6.90(t, 1H), 1.68(s, 6H)	403
67	8.83(m, 2H), 8.40(d, 1H), 8.02(m, 2H), 7.82~7.72(m, 5H), 7.41(t, 1H), 7.16~7.02(m, 3H), 6.90(t, 1H), 1.68(s, 6H)	403
68	8.83(m, 2H), 8.69(s, 1H), 8.40(d, 1H), 8.02(m, 2H), 7.82~7.69(m, 6H), 7.41(t, 1H), 7.16~7.02(m, 3H), 6.90(t, 1H), 1.68(s, 6H)	453
69	8.40(d, 1H), 7.82~7.77(m, 2H), 7.45~7.41(m, 3H), 7.31~7.28(m, 2H), 7.18~7.10(m, 3H), 7.02(d, 1H), 6.90(t, 1H), 1.68(s, 12H)	419
70	8.40(d, 1H), 8.08(d, 1H), 7.95~7.82(m, 3H), 7.72(d, 1H), 7.63(s, 1H), 7.45~7.37(m, 4H), 7.16~7.10(m, 2H), 7.02(d, 1H), 6.90(t, 1H), 1.75(s, 6H), 1.62(s, 6H)	469
71	8.40(d, 1H), 8.18(s, 1H), 7.91~7.82(m, 3H), 7.63(s, 1H), 7.48~7.37(m, 5H), 7.16~7.10(m, 2H), 7.02(d, 1H), 6.90(t, 1H), 1.68(s, 6H), 1.62(s, 6H)	469

[0147]

72	.40(d, 1H), 7.99~7.95(m, 2H), 7.82(d, 1H), 7.66(d, 1H), 7.44~7.41 (m, 3H), 7.16~7.10(m, 2H), 7.02(d, 1H), 6.90(t, 1H), 6.78(d, 1H), 1.68(s, 6H)	353
73	8.46~8.40(m, 2H), 7.95~7.87(m, 3H), 7.71(m, 1H), 7.48~7.41 (m, 6H), 7.16(m, 2H), 6.90(m, 1H), 1.74(s, 6H)	403
74	7.99~7.87(m, 4H), 7.66(m, 1H), 7.48~7.41(m, 5H), 7.16(m, 1H), 6.78(m, 1H), 1.74(s, 6H)	326
75	8.40(m, 1H), 7.82~7.77(m, 2H), 7.65(m, 2H), 7.45~7.41(m, 3H), 7.31~7.02(m, 12H), 6.90(m, 1H), 1.62(s, 6H)	541
76	8.40(m, 2H), 7.82(m, 2H), 7.71(m, 2H), 7.41~7.35(m, 6H), 7.21~7.10(m, 10H), 7.02(m, 2H), 6.90(m, 2H), 1.62(s, 12H)	767
77	8.40(m, 2H), 7.82(m, 2H), 7.41(m, 4H), 7.31(s, 2H), 7.16~7.10(m, 4H), 7.02(m, 2H), 6.90(m, 2H), 1.62(s, 18H)	644
78	8.40(m, 1H), 7.82~7.77(m, 2H), 7.67(s, 1H), 7.63(s, 1H), 7.59(s, 1H), 7.45~7.37(m, 3H), 7.28(m, 1H), 7.18~7.10(m, 3H), 7.02(m, 1H), 6.90(m, 1H), 1.62(s, 18H)	535
79	8.83(m, 2H), 8.69(s, 1H), 8.02~7.96(m, 4H), 7.82~7.68(m, 8H), 7.50(m, 1H), 7.25(d, 1H), 7.10(t, 1H), 7.02(m, 1H), 1.68(s, 6H)	503
80	9.14(m, 1H), 8.60(m, 1H), 8.32(m, 1H), 7.71(d, 2H), 7.60(m, 1H), 7.47(m, 2H), 7.38~7.35(m, 3H), 7.11(t, 1H), 7.00(m, 1H), 6.34(d, 2H), 6.06(d, 2H), 5.56(m, 2H), 2.76(m, 2H), 1.59(s, 6H)	481
81	9.05(m, 1H), 8.83(m, 2H), 8.08~8.02(m, 3H), 7.94(m, 1H), 7.78~7.71 (m, 6H), 7.35(m, 1H), 7.11(t, 1H), 7.00(m, 1H), 6.34(d, 2H), 6.06(d, 2H), 5.56(m, 2H), 2.76(m, 2H), 1.59(s, 6H)	554
82	9.20(m, 1H), 8.80(m, 1H), 8.43(m, 1H), 7.86(m, 1H), 7.71(d, 2H), 7.60~7.53(m, 2H), 7.14~7.04(m, 3H), 6.90(m, 1H), 6.34(d, 2H), 6.06(d, 2H), 5.56(m, 2H), 2.76(m, 2H), 1.59(s, 6H)	482
83	8.83(m, 2H), 8.69(s, 1H), 8.13(s, 1H), 8.02(m, 2H), 7.78~7.69 (m, 9H), 7.41~7.31(m, 7H), 7.07(t, 1H), 6.96(m, 1H), 1.68(s, 6H)	606
84	9.20(m, 1H), 8.83~8.80(m, 3H), 8.69(s, 1H), 8.43(m, 1H), 8.02 (m, 2H), 7.82~7.69(m, 6H), 7.60~7.53(m, 2H), 7.10~7.02(m, 3H), 6.90(m, 1H), 1.68(s, 6H)	530
85	8.73(d, 2H), 8.59(s, 1H), 8.30(d, 1H), 8.16~8.11(m, 2H), 8.10(d, 2H), 7.78~7.69(m, 5H), 7.50~7.41(m, 3H), 7.31(d, 1H), 7.16(d, 1H), 7.07(t, 1H), 6.96~6.90(m, 2H), 1.67(s, 6H)	529

[0148]

86	8.95(s, 1H), 8.73(d, 4H), 8.69(s, 1H), 8.08~7.94(m, 6H), 7.78~7.69(m, 9H), 7.31(d, 1H), 7.07(t, 1H), 6.96(d, 1H), 1.67(s, 6H)	602
87	8.73(d, 2H), 8.59(s, 1H), 8.35~8.31(d, 2H), 8.10(d, 1H), 8.02(d, 2H), 7.88(d, 1H), 7.78~7.69(m, 5H), 7.48~7.40(m, 3H), 7.31(d, 1H), 7.07(t, 1H), 6.96(d, 1H), 1.67(s, 6H)	558
88	9.04(s, 1H), 8.73(d, 2H), 8.59(s, 1H), 8.50(d, 1H), 8.32~8.31(m, 3H), 8.10~8.02(m, 4H), 7.78~7.69(m, 5H), 7.48~7.47(m, 3H), 7.31(d, 1H), 7.07(t, 1H), 6.96(d, 1H), 1.67(s, 6H)	635
89	8.93(d, 2H), 8.59(s, 1H), 8.31(d, 2H), 8.13~8.02(m, 4H), 7.78~7.69(m, 10H), 7.48~7.31(m, 9H), 7.07(t, 1H), 6.96(d, 1H), 1.67(s, 6H)	789
90	8.73(d, 2H), 8.69(s, 1H), 8.46(d, 1H), 8.14(d, 1H), 8.02(d, 2H), 7.78~7.69(m, 5H), 7.60(s, 1H), 7.49~7.31(m, 9H), 7.12~7.07(m, 3H), 6.96(d, 1H), 1.67(s, 6H)	644
91	8.73(d, 2H), 8.69(s, 1H), 8.18~8.14(m, 3H), 8.02(d, 2H), 7.78~7.69(m, 5H), 7.60(s, 1H), 7.48~7.31(m, 11H), 7.07(t, 1H), 6.96(d, 1H), 1.67(s, 6H)	671
92	8.73(d, 2H), 8.69(s, 1H), 8.38(d, 1H), 8.02(d, 2H), 7.78~7.69(m, 9H), 7.47~7.31(m, 7H), 7.11~7.07(m, 2H), 6.96(d, 1H), 6.76(t, 1H), 1.67(s, 6H)	644
93	8.73(d, 2H), 8.69(s, 1H), 8.31(d, 2H), 8.18~8.10(m, 5H), 8.02(d, 2H), 7.78~7.69(m, 6H), 7.48~7.31(m, 9H), 7.07(t, 1H), 6.96(d, 1H), 1.67(s, 6H)	790
94	8.73(d, 2H), 8.69(s, 1H), 8.34(d, 1H), 8.02(d, 2H), 7.78~7.69(m, 7H), 7.41~7.31(m, 9H), 7.15~7.07(m, 2H), 6.96(d, 1H), 6.82(t, 1H), 1.67(s, 6H)	644
95	8.73(d, 2H), 8.69(s, 1H), 8.38(d, 1H), 8.02(d, 2H), 7.78~7.69(m, 7H), 7.47~7.31(m, 4H), 7.11~7.07(m, 2H), 6.96(d, 1H), 6.76(t, 1H), 2.15(s, 3H), 1.67(s, 6H)	582
96	8.73(d, 2H), 8.69(s, 1H), 8.58(s, 1H), 8.40(d, 2H), 8.31(d, 2H), 8.13~8.10(m, 4H), 8.02(d, 2H), 7.78~7.69(m, 5H), 7.48~7.31(m, 5H), 7.16(d, 2H), 7.07(t, 1H), 6.96~6.90(m 3H), 1.67(s, 6H)	789
97	9.20(m, 2H), 9.05(s, 2H), 8.83(m, 2H), 8.69(s, 1H), 8.43(m, 2H), 8.31(m, 2H), 8.10~8.02(m, 4H), 7.78~7.69(m, 5H), 7.60(m, 2H), 7.48(m, 2H), 7.31(m, 1H), 7.07~6.95(m, 4H), 1.68(s, 6H)	790

[0149]

98	8.40(m, 1H), 8.02(m, 1H), 7.91~7.87(m, 2H), 7.78(m, 1H), 7.63(m, 1H), 7.48~7.36(m, 4H), 7.22~7.16(m, 2H), 6.90(m, 1H), 1.68(s, 6H)	400
99	8.80(m, 1H), 8.70(s, 1H), 8.40(m, 1H), 8.02~8.00(m, 2H), 7.90(s, 1H), 7.80~7.70(m, 2H), 7.60(s, 2H), 7.41~7.36(m, 2H), 7.22~7.16(m, 2H), 6.90(m, 1H), 1.68(s, 6H)	450
100	8.40(m, 1H), 8.02(m, 1H), 7.71(m, 2H), 7.41~7.36(m, 2H), 7.22~7.16(m, 2H), 6.90(m, 1H), 6.34(m, 2H), 6.06(m, 2H), 5.56(m, 2H), 2.76(m, 2H), 1.59(s, 6H)	452
101	8.83~8.80(m, 2H), 8.70(s, 1H), 8.40(m, 1H), 8.02~8.00(m, 3H), 7.90(s, 1H), 7.80~7.72(m, 4H), 7.41~7.36(m, 2H), 7.22~7.16(m, 2H), 6.90(m, 1H), 1.68(s, 6H)	500
102	8.40(m, 1H), 8.02(m, 1H), 7.77(m, 1H), 7.41~7.36(m, 3H), 7.24~7.16(m, 4H), 7.07(m, 1H), 6.97~6.90(m, 2H), 1.62(s, 12H)	466
103	8.40(m, 1H), 8.15~7.88(m, 4H), 7.72(d, 1H), 7.62(s, 1H), 7.44~7.36(m, 4H), 7.22~7.16(m, 3H), 6.90(m, 1H), 1.75(s, 6H), 1.62(s, 6H)	516
104	8.40(m, 1H), 8.18(m, 1H), 8.02(m, 1H), 7.91~7.87(m, 2H), 7.62(s, 1H), 7.48~7.36(m, 5H), 7.22~7.16(m, 3H), 6.90(m, 1H), 1.68(s, 6H), 1.62(s, 6H)	516
105	8.40(m, 1H), 8.02~7.92(m, 4H), 7.44~7.36(m, 4H), 7.22~7.16(m, 2H), 6.98~6.90(m, 2H), 1.68(s, 6H)	400
106	8.43~8.40(m, 2H), 7.96~7.85(m, 4H), 7.44~7.40(m, 5H), 7.30(m, 2H), 7.16(m, 1H), 6.90(m, 1H), 2.91(m, 2H), 1.74(s, 6H)	385
107	7.99~7.87(m, 5H), 7.78(s, 1H), 7.63(s, 1H), 7.48~7.41(m, 4H), 6.98(d, 1H), 1.74(s, 6H)	373
108	8.40(m, 1H), 8.02(m, 1H), 7.77(m, 1H), 7.65(m, 2H), 7.41~7.36(m, 3H), 7.25~7.00(m, 13H), 1.62(s, 6H)	588
109	8.40(d, 2H), 7.70(d, 4H), 7.60(s, 2H), 7.44~7.28(m, 6H), 7.32(s, 2H), 7.21~7.10(m, 8H), 6.94(t, 2H), 1.57(s, 12H)	860
110	8.40(d, 2H), 7.72(d, 2H), 7.61(s, 2H), 7.44~7.39(m, 6H), 7.21(t, 2H), 7.08(d, 2H), 6.94(t, 2H), 1.57(s, 18H)	738
111	8.40(d, 1H), 7.79(s, 1H), 7.74~7.67(m, 3H), 7.59(s, 1H), 7.45~7.38(m, 4H), 7.28(t, 1H), 7.21~7.18(m, 2H), 7.10(d, 1H), 6.94(t, 1H), 1.57~1.57(s, 18H)	582
112	8.71(s, 1H), 8.60(d, 2H), 7.87(d, 1H), 7.79(s, 1H), 7.58~7.34(m, 8H), 7.19(d, 1H), 1.63(s, 6H), 0.56(s, 6H)	379

[0150]

113	8.83(d, 2H), 8.40(d, 1H), 8.14~8.09(m, 2H), 8.02(d, 2H), 7.78~7.72(m, 4H), 7.44~7.41(m, 2H), 7.22(d, 1H), 6.94(t, 1H), 1.70(s, 6H), 0.56(s, 6H)	431
114	8.83~8.80(m, 3H), 8.40(d, 1H), 8.22(s, 1H), 8.14~8.09(m, 2H), 8.02(d, 2H), 7.78~7.72(m, 4H), 7.44~7.22(m, 13H), 6.94(t, 1H), 1.63(s, 6H)	603
115	8.40(d, 1H), 8.17~8.09(m, 3H), 7.93(s, 1H), 7.83(d, 1H), 7.71(s, 1H), 7.47~7.22(m, 7H), 6.94(t, 1H), 1.70(s, 6H), 1.57(s, 6H), 0.56(s, 6H)	495
116	8.40(d, 1H), 8.14~8.09(m, 2H), 8.02(s, 1H), 7.93(s, 1H), 7.73~7.71(s, 2H), 7.54~7.41(m, 6H), 7.22(d, 1H), 6.94(t, 1H), 1.63(s, 6H), 1.57(s, 6H), 0.56(s, 6H)	495
117	8.40(d, 2H), 8.14~8.09(m, 4H), 7.71(s, 2H), 7.65(s, 2H), 7.44~7.41(m, 4H), 7.22(d, 2H), 6.94(t, 2H), 1.57(s, 18H), 0.56(s, 12H)	697
118	8.40(d, 1H), 8.14~8.09(m, 2H), 7.93(s, 1H), 7.74~7.71(m, 2H), 7.67(s, 1H), 7.59(s, 1H), 7.45~7.41(m, 3H), 7.28~7.18(m, 3H), 6.94(t, 1H), 1.57(s, 18H), 0.56(s, 6H)	561
119	8.40(d, 1H), 8.14~8.09(m, 2H), 7.74(d, 2H), 7.62~7.59(m, 2H), 7.45~7.41(m, 5H), 7.28~7.06(m, 8H), 6.94(t, 1H), 1.57(s, 6H), 0.56(s, 6H)	567
120	8.40(d, 2H), 8.14~8.09(m, 4H), 7.68~7.65(m, 4H), 7.55(s, 2H), 7.44~7.35(m, 6H), 7.22~7.12(m, 6H), 6.94(t, 2H), 1.57(s, 12H), 0.56(s, 12H)	819

[0151]

121	8.83(m, 2H), 8.02(m, 2H), 7.78~7.72(m, 4H), 7.59(d, 1H), 7.10(m, 2H), 6.92~6.84(m, 3H), 6.71~6.63(m, 2H), 6.53(m, 2H), 6.45(d, 1H), 1.75(s, 6H)	435
122	8.83(m, 2H), 8.02~7.97(m, 3H), 7.78~7.72(m, 4H), 7.59(d, 1H), 7.45(t, 1H), 6.95~6.92(m, 3H), 6.63~6.45(m, 4H), 1.75(s, 6H)	436
123	8.83(m, 2H), 8.02~7.94(m, 4H), 7.78~7.72(m, 4H), 7.59(d, 1H), 7.26(t, 1H), 7.17(d, 1H), 6.95~6.84(m, 3H), 6.63(t, 1H), 6.45(d, 1H), 1.75(s, 6H)	436
124	8.83~8.80(m, 3H), 8.40(s, 2H), 8.02(m, 2H), 7.78~7.72(m, 4H), 7.59(d, 1H), 6.95~6.84(m, 3H), 6.63(t, 1H), 6.45(d, 1H), 1.75(s, 6H)	437
125	8.83(m, 2H), 8.35(m, 2H), 8.02(m, 2H), 7.78~7.72(m, 4H), 7.59(d, 1H), 6.95~6.83(m, 4H), 6.63(t, 1H), 6.45(d, 1H), 1.75(s, 6H)	437
126	9.32(d, 1H), 8.95(d, 2H), 8.54~8.14(m, 4H), 7.89~7.73(m, 6H), 7.29~6.46(m, 8H), 1.95(s, 6H)	513
127	9.77(s, 1H), 8.95~8.78(m, 4H), 8.14~7.43(m, 9H), 7.07~6.56(m, 7H), 1.95(s, 6H)	513
128	9.77(s, 1H), 8.95~8.78(m, 4H), 8.14~7.62(m, 10H), 7.18~6.57(m, 6H), 1.95(s, 6H)	513
129	9.26(d, 1H), 8.95~8.44(m, 4H), 8.14~7.56(m, 10H), 7.07~6.57(m, 7H), 1.95(s, 6H)	512
130	8.95(d, 2H), 8.14~7.43(m, 18H), 7.07~6.57(m, 5H), 1.95(s, 6H)	589
131	8.83(m, 2H), 8.40(m, 2H), 8.02~7.98(m, 3H), 7.78~7.72(m, 4H), 7.59(m, 1H), 7.41(m, 2H), 7.32(m, 2H), 7.16(m, 2H), 6.95~6.84(m, 5H), 6.63(m, 1H), 6.45(m, 1H), 1.75(s, 6H)	589
132	9.14(m, 2H), 8.83(m, 2H), 8.60(m, 2H), 8.32(m, 2H), 8.02(m, 2H), 7.78~7.72(m, 4H), 7.59(d, 1H), 7.47(t, 2H), 6.96~6.84(m, 4H), 6.75(m, 2H), 6.63(m, 1H), 6.45(m, 1H), 1.75(s, 6H)	589
133	8.83(m, 2H), 8.12(m, 1H), 8.02(m, 2H), 7.84~7.59(m, 8H), 7.47(d, 1H), 7.27(m, 1H), 6.95~6.84(m, 3H), 6.63(m, 1H), 6.45(m, 1H), 1.75(s, 6H)	486
134	8.83(m, 2H), 8.18(d, 1H), 8.07~8.02(m, 3H), 7.78~7.72(m, 4H), 7.59(d, 1H), 7.47(m, 1H), 7.37~7.31(m, 2H), 6.95~6.84(m, 4H), 6.63(m, 1H), 6.45(m, 1H), 1.75(s, 6H)	486

[0152]

135	8.83(m, 2H), 8.35(m, 1H), 8.02(m, 2H), 7.88(m, 1H), 7.78~7.71(m, 5H), 7.59(d, 1H), 7.42~7.40(m, 2H), 7.17(t, 1H), 6.95~6.84(m, 3H), 6.76(m, 1H), 6.63(m, 1H), 6.45(m, 1H), 1.75(s, 6H)	541
136	8.83(d, 2H), 8.35~8.31(m, 2H), 8.10(d, 1H), 8.02(d, 2H), 7.88(d, 1H), 7.78~7.72(m, 4H), 7.59(d, 1H), 7.48~7.34(m, 4H), 6.95~6.79(m, 4H), 6.78(t, 1H), 6.63~6.45(m, 3H), 1.75(s, 6H)	617
137	8.83(d, 2H), 8.35~8.31(m, 2H), 8.10(d, 1H), 8.02(d, 2H), 7.88(d, 1H), 7.78~7.72(m, 4H), 7.59(d, 1H), 7.48~7.40(m, 5H), 6.95~6.92(m, 2H), 6.84(d, 1H), 6.63~6.59(m, 3H), 6.45(d, 1H), 1.75(s, 6H)	617
138	8.83(d, 2H), 8.35(d, 1H), 8.02(d, 2H), 7.88(d, 1H), 7.78~7.72(m, 4H), 7.63~7.59(m, 2H), 7.42~7.40(m, 2H), 7.30(s, 1H), 6.95~6.92(m, 2H), 6.84(d, 1H), 6.76(d, 1H), 6.63(t, 1H), 6.45(d, 1H), 1.75(s, 6H)	541
139	8.83(d, 2H), 8.35(d, 2H), 8.02(d, 2H), 7.88(d, 2H), 7.78~7.72(m, 4H), 7.59(d, 1H), 7.42~7.40(m, 4H), 7.30(s, 1H), 6.95~6.92(m, 2H), 6.84(d, 1H), 6.63(t, 1H), 6.45(d, 1H), 1.75(s, 6H)	647
140	8.83(d, 2H), 8.08~8.02(m, 3H), 7.91(d, 1H), 7.78~7.72(m, 4H), 7.59(d, 1H), 7.43(d, 2H), 7.34~7.29(m, 2H), 6.95~6.92(m, 2H), 6.84(d, 1H), 6.79(s, 1H), 6.63(t, 1H), 6.49~6.45(m, 2H), 1.75(s, 6H)	568

[0153]

[0154] 비교예 1

[0155] 하기 화학식 a로 표시되는 화합물 a를 인광 녹색 호스트로 사용하고, 하기 화학식 c로 표시되는 화합물을 인광 녹색 도판트로 사용하고, 2-TNATA(4,4',4''-tris(N-naphthalen-2-yl)-N-phenylamino)-triphenylamine)을 정공주입층 물질로 사용하고, α-NPD(N,N'-di(naphthalene-1-yl)-N,N'-diphenylbenzidine)을 정공수송층 물질로 사용하여, 다음과 같은 구조를 갖는 유기발광소자를 제작하였다: ITO/2-TNATA(80nm)/α-NPD(30nm)/화합물a+화합물c(30nm)/Alq3(30nm)/LiF(0.5nm)/ Al(60nm).

[0156] 애노드는 코닝(Corning)사의 15Ω/cm² (1000Å) ITO 유리 기판을 50mm x 50mm x 0.7mm크기로 잘라서 아세톤 이소프로필 알콜과 순수물 속에서 각 15분 동안 초음파 세정한 후, 30분 동안 UV 오존 세정하여 사용하였다. 상기 기판 상부에 2-TANATA를 진공 증착하여 80nm 두께의 정공주입층을 형성하였다. 상기 정공주입층 상부에, α-NPD를 진공 증착하여 30nm 두께의 정공수송층을 형성하였다. 상기 정공수송층 상부에 화학식 a로 표시되는 화합물 a 및 화학식 c로 표시되는 화합물 c(8% 도핑)를 진공 증착하여 30nm두께의 발광층을 형성하였다. 이후, 상기 발광층 상부에 Alq3 화합물을 30nm의 두께로 진공증착하여 전자수송층을 형성하였다. 상기 전자수송층 상부에 LiF 0.5nm(전자주입층)과 Al 60nm(캐소드)를 순차적으로 진공증착하여, 표 3에 표시된 바와 같은 유기발광소자를 제조하였다. 이를 비교샘플 1이라고 한다.

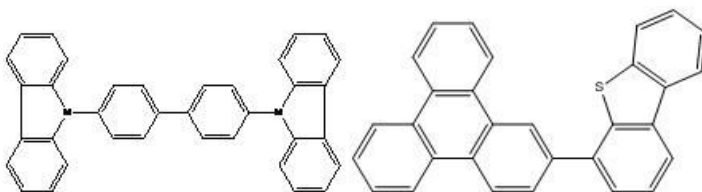
[0157] 비교예 2

[0158] 하기 화학식 b로 표시되는 화합물 b를 인광 녹색 호스트로 사용하고, 하기 화학식 c로 표시되는 화합물 c를 인광 녹색 도판트로 사용하고, 2-TNATA(4,4',4''-tris(N-naphthalen-2-yl)-N-phenylamino)-triphenylamine)을 정공주입층 물질로 사용하고, α-NPD(N,N'-di(naphthalene-1-yl)-N,N'-diphenylbenzidine)을 정공수송층 물질로 사용하여, 다음과 같은 구조를 갖는 유기발광소자를 제작하였다: ITO/2-TNATA(80nm)/α-NPD(30nm)/화합물b+화합물c(30nm)/Alq3(30nm)/LiF(0.5nm)/ Al(60nm).

[0159] 애노드는 코닝(Corning)사의 15Ω/cm² (1000Å) ITO 유리 기판을 50mm x 50mm x 0.7mm크기로 잘라서 아세톤 이소프로필 알콜과 순수물 속에서 각 15분 동안 초음파 세정한 후, 30분 동안 UV 오존 세정하여 사용하였다. 상기 기판 상부에 2-TANATA를 진공 증착하여 80nm 두께의 정공주입층을 형성하였다. 상기 정공주입층 상부에, α-NPD를 진공 증착하여 30nm 두께의 정공수송층을 형성하였다. 상기 정공수송층 상부에 화학식 a로 표시되는 화합물 b 및 화학식 c로 표시되는 화합물 c(8% 도핑)를 진공 증착하여 30nm두께의 발광층을 형성하였다. 이후, 상기 발광층 상부에 Alq3 화합물을 30nm의 두께로 진공증착하여 전자수송층을 형성하였다. 상기 전자수송층 상부에 LiF 0.5nm(전자주입층)과 Al 60nm(캐소드)를 순차적으로 진공증착하여, 표 3에 표시된 바와 같은 유기발광소자를 제조하였다. 이를 비교샘플 2이라고 한다.

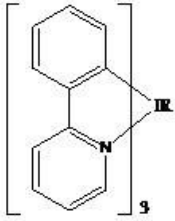
[0160] <화학식 a>

<화학식 b>



[0161]

[0162] <화학식 c>



[0163]

[0164] 실시예 1~183

[0165] 상기 비교예 1 중, 발광층 인광 호스트 화합물로서 화합물 a 대신 상기 합성예에 개시된 화학식 1~120으로 표시되는 화합물 1~120을 발광층 인광 녹색 호스트 화합물로 각각 이용한 것을 제외하고는 상기 비교예 1과 동일한 방법으로 ITO/2-TNATA(80nm)/ α -NPD(30nm)/[인광 녹색 호스트 화합물 1~120 중 하나+화합물 b(8%)](30nm)/Alq3(30nm)/LiF(0.5nm)/Al(60nm)의 구조를 갖는 유기발광소자를 제조하였다. 이를 각각 샘플 1 내지 140이라고 한다.

[0166] 평가예 1: 비교샘플 1, 2 및 샘플 1~120의 발광 특성 평가

[0167] 비교샘플 1, 2 및 샘플 1~120에 대하여, Keithley SMU 235, PR650를 이용하여 발광휘도, 발광효율, 발광피크를 각각 평가하여, 그 결과를 하기 [제2군(群) 표]에 나타내었다. 상기 샘플들은 516~524nm 범위에서 녹색 발광피크값을 보여주었다

[0168] [제2군(群) 표]

샘플 No.	호스트 화합물 No.	도관트 화합물 No.	휘도 [cd/m ²]	효율 [cd/A]	발광피크 [nm]
비교샘플 1	a	c	2321	23.2	516
비교샘플 2	b	c	2613	26.1	520
1	1	c	2399	23.99	517
2	2	c	2934	29.34	516
3	3	c	2953	29.53	517
4	4	c	2652	26.52	523
5	5	c	2473	24.73	523
6	6	c	2322	23.22	517
7	7	c	2351	23.51	519
8	8	c	2332	23.32	524
9	9	c	3028	30.28	519
10	10	c	2391	23.91	518
11	11	c	2855	28.55	518
12	12	c	2892	28.92	524
13	13	c	2325	23.25	517
14	14	c	2880	28.8	520
15	15	c	2154	21.54	518
16	16	c	2413	24.13	522
17	17	c	2694	26.94	521
18	18	c	2150	21.5	523

[0169]

19	19	c	2913	29.13	521
20	20	c	2730	27.3	520
21	21	c	2248	22.48	516
22	22	c	2489	24.89	516
23	23	c	2971	29.71	524
24	24	c	2274	22.74	521
25	25	c	2943	29.43	519
26	26	c	2749	27.49	519
27	27	c	2799	27.99	518
28	28	c	2411	24.11	522
29	29	c	2328	23.28	518
30	30	c	2580	25.8	520
31	31	c	2279	22.79	518
32	32	c	2609	26.09	517
33	33	c	2463	24.63	522
34	34	c	2174	21.74	521
35	35	c	2506	25.06	518
36	36	c	2440	24.4	524
37	37	c	2539	25.39	519
38	38	c	2892	28.92	523
39	39	c	2950	29.5	524
40	40	c	2737	27.37	524
41	41	c	2392	23.92	523
42	42	c	2900	29	519
43	43	c	2299	22.99	518
44	44	c	2569	25.69	523
45	45	c	2822	28.22	520

[0170]

46	46	c	3046	30.46	517
47	47	c	2290	22.9	517
48	48	c	2735	27.35	524
49	49	c	2359	23.59	523
50	50	c	2631	26.31	524
51	51	c	2611	26.11	519
52	52	c	2844	28.44	522
53	53	c	3138	31.38	522
54	54	c	2467	24.67	517
55	55	c	3116	31.16	523
56	56	c	2536	25.36	519
57	57	c	2207	22.07	519
58	58	c	2759	27.59	522
59	59	c	2544	25.44	520
60	60	c	2659	26.59	524
61	61	c	2362	23.62	521
62	62	c	3003	30.03	519
63	63	c	2577	25.77	518
64	64	c	2838	28.38	523
65	65	c	2813	28.13	520
66	66	c	2452	24.52	518
67	67	c	2945	29.45	517
68	68	c	2113	21.13	521
69	69	c	2331	23.31	517
70	70	c	2348	23.48	524
71	71	c	2419	24.19	517
72	72	c	2378	23.78	519

[0171]

73	73	c	2296	22.96	521
74	74	c	2780	27.8	520
75	75	c	3041	30.41	518
76	76	c	2332	23.32	523
77	77	c	2712	27.12	518
78	78	c	2841	28.41	518
79	79	c	2107	21.07	520
80	80	c	2700	27	516
81	81	c	3109	31.09	520
82	82	c	2357	23.57	520
83	83	c	2424	24.24	516
84	84	c	2146	21.46	516
85	85	c	2722	27.22	516
86	86	c	2315	23.15	524
87	87	c	2331	23.31	517
88	88	c	2638	26.38	516
89	89	c	3176	31.76	524
90	90	c	2936	29.36	517
91	91	c	3085	30.85	520
92	92	c	2948	29.48	523
93	93	c	2443	24.43	521
94	94	c	2364	23.64	517
95	95	c	2248	22.48	519
96	96	c	2411	24.11	521
97	97	c	2808	28.08	523
98	98	c	3027	30.27	519
99	99	c	2699	26.99	524

[0172]

100	100	c	2837	28.37	523
101	101	c	3156	31.56	521
102	102	c	3059	30.59	524
103	103	c	2159	21.59	517
104	104	c	3006	30.06	522
105	105	c	2668	26.68	519
106	106	c	2741	27.41	521
107	107	c	2220	22.2	524
108	108	c	2282	22.82	516
109	109	c	2941	29.41	516
110	110	c	3123	31.23	523
111	111	c	2558	25.58	524
112	112	c	3160	31.6	522
113	113	c	2931	29.31	523
114	114	c	3144	31.44	520
115	115	c	2154	21.54	517
116	116	c	3097	30.97	518
117	117	c	2920	29.2	519
118	118	c	3082	30.82	519
119	119	c	2392	23.92	524
120	120	c	2154	21.54	518

[0173]

121	121	c	3156	31.56	521
122	122	c	3059	30.59	524
123	123	c	4159	41.59	517
124	124	c	3606	36.06	522
125	125	c	3668	36.68	519
126	126	c	2741	27.41	521
127	127	c	2220	22.2	524
128	128	c	4282	42.82	516
129	129	c	2941	29.41	516
130	130	c	3123	31.23	523
131	131	c	4558	45.58	524
132	132	c	3160	31.6	522
133	133	c	2931	29.31	523
134	134	c	3144	31.44	520
135	135	c	2154	21.54	517
136	136	c	3097	30.97	518
137	137	c	2920	29.2	519
138	138	c	3082	30.82	519
139	139	c	2392	23.92	524
140	140	c	4154	41.54	518

[0174]

















[0175] 상기 [제2군(群) 표]에 보여 지는 바와 같이 샘플 1 내지 140은 비교샘플 1, 2에 비하여 향상된 발광 특성을 나타내었다.

[0176] 이상의 설명에서 통상의 공지된 기술을 생략되어 있으나, 당업자라면 용이하게 이를 추측 및 추론하고 재현할 수 있다.

专利名称(译)	有机发光化合物和使用其的有机光子器件		
公开(公告)号	KR101375360B1	公开(公告)日	2014-03-20
申请号	KR1020110090521	申请日	2011-09-07
申请(专利权)人(译)	氛围有限公司凯		
当前申请(专利权)人(译)	氛围有限公司凯		
[标]发明人	KIM BOK YOUNG 김복영 AHN JUNG BOK 안중복 HYUN SEUNG HAK 현승학 LEE JEA SUNG 이재성 PARK NO GIL 박노길 HAN KEUN HEE 한근희		
发明人	김복영 안중복 현승학 이재성 박노길 한근희		
IPC分类号	C09K11/06 H01L51/50		
CPC分类号	C07D333/72 C07F7/0807 H01L51/0067 H01L51/0072 H01L51/0074 H01L51/0094 Y02E10/549		
代理人(译)	一个 李明博译		
优先权	1020110064172 2011-06-30 KR		
其他公开文献	KR1020130007390A		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

用途：提供有机光化合物和使用其的有机光装置，以提供高发光效率，高发光效率和高发光亮度。组成：有机光化合物包括第一电极，第二电极，在第一电极和第二电极之间的一个或多个有机薄膜的有机层。有机层包括化学式F的有机发光化合物。在化学式F中，X表示N，S，Se或Si。E1和E2选自D，F，C1-40烷基，C5-40芳基，C3-40杂芳基，C5-40芳氧基，C1-40烷氧基，C5-40芳氨基，C5-40二芳基氨基，硅烷基，C6-40芳基烷基，C3-40环烷基和C3-40杂环烷基。

1		2	
3			
5		6	
7		8	
9		10	
11		12	
13		14	
15		16	
17		18	