

	(19) 대한민국특허청(KR) (12) 공개특허공보(A)	(11) 공개번호 10-2011-0127784 (43) 공개일자 2011년11월28일
(51) Int. Cl. <i>C09K 11/06</i> (2006.01) <i>H01L 51/50</i> (2006.01) (21) 출원번호 10-2010-0047211 (22) 출원일자 2010년05월20일 심사청구일자 2010년05월20일	(71) 출원인 주식회사 두산 서울 중구 을지로6가 18-12 (72) 발명자 이은정 서울시 서대문구 연희3동 337-17 김경수 대전시 유성구 하기동 송림마을 305-1905 (74) 대리인 김기효, 조우제	

전체 청구항 수 : 총 8 항

(54) 신규 하이브리드 유기 화합물 및 이를 이용한 유기 전계 발광소자

(57) 요약

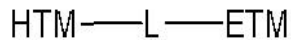
본 발명에 따른 상기 화학식 1로 표시되는 하이브리드 화합물은 안트라센 유도체로서, 소자 특성이 우수한 안트라센 모이어티(moiety)와 형광 특성이 우수한 플루오렌 등의 모이어티(moiety)가 서로 결합된 코어의 일부 탄소 에, 전자 전달 능력을 갖는 치환기(전자 수송기) 및 정공 수송 능력을 갖는 치환기(정공 수송기)가 동시에 치환되어 있고, 이때 전자 수송기 및 정공 수송기는 각각 독립적으로 N, O 및 S로 이루어진 군에서 선택된 원소를 포함하는 C₂~C₄₀의 헤테로아릴기인 것이 특징이다. 이러한 안트라센 유도체가 유기 전계 발광 소자의 전자 수송 물질 및/또는 호스트 물질로서 이용됨으로써, 유기 전계 발광 소자는 발광효율, 휘도, 열적 안정성, 구동 전압, 수명 특성이 향상될 수 있다.

특허청구의 범위

청구항 1

하기 화학식 1로 표시되는 하이브리드 화합물:

[화학식 1]



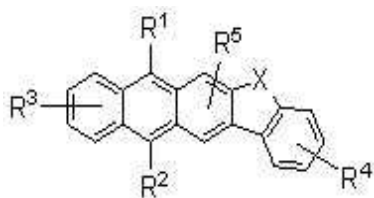
상기 화학식 1에서, 상기 L은 치환 또는 비치환된 인테노안트라센(indenoanthracene), 안트라벤조실롤(anthrabenzosilole), 나프토카르바졸(naphthocarbazole) 또는 안트라벤조퓨란(anthrabenzofuran)이며,

상기 HTM은 정공 수송기이고, 상기 ETM은 전자 수송기를 나타내는 것으로서, 상기 HTM 및 ETM은 각각 독립적으로 N, O 및 S로 이루어진 군에서 선택되는 1 이상의 원소를 포함하는 C₂~C₄₀의 헤테로아릴기이다.

청구항 2

제1항에 있어서, 상기 화학식 1로 표시되는 하이브리드 화합물은 하기 화학식 2로 표시되는 화합물인 것이 특징인 화학식 1로 표시되는 하이브리드 화합물:

[화학식 2]



상기 화학식 2에서,

상기 X는 CR⁶R⁷, NR⁶, O, S, S(=O), S(=O)₂, 및 SiR⁶R⁷으로 이루어진 군에서 선택되며,

상기 R¹ 내지 R⁷은 서로 같거나 다르고, 각각 독립적으로 수소, 중수소, C₁~C₄₀의 알킬기, C₂~C₄₀의 알케닐기, C₂~C₄₀의 알키닐기, C₃~C₄₀의 시클로알킬기, C₃~C₄₀의 헤테로시클로알킬기, C₆~C₄₀의 아릴알킬기, C₁~C₄₀의 알킬옥시기, C₅~C₄₀의 아릴옥시기, C₅~C₄₀의 아릴기 및 C₅~C₄₀의 헤테로아릴기로 이루어진 군에서 선택되거나; 또는 인접하는 기와 축합(fused) 지방족 고리, 축합 방향족 고리, 축합 헤테로지방족 고리 또는 축합 헤테로방향족 고리를 형성하는 기로서,

상기 R¹ 내지 R⁷의 상기 C₁~C₄₀의 알킬기, C₂~C₄₀의 알케닐기, C₂~C₄₀의 알키닐기, C₃~C₄₀의 시클로알킬기, C₃~C₄₀의 헤테로시클로알킬기, C₆~C₄₀의 아릴알킬기, C₁~C₄₀의 알킬옥시기, C₅~C₄₀의 아릴옥시기, C₅~C₄₀의 아릴기 및 C₅~C₄₀의 헤테로아릴기는 각각 독립적으로 중수소, 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 선택된 하나 이상의 것으로 치환되거나 또는 비치환되며,

이때 R¹ 내지 R⁴ 중 2개 이상은 각각 독립적으로 N, O 및 S로 이루어진 군에서 선택되는 1 이상의 원소를 포함하는 C₂~C₄₀의 헤테로아릴기이다.

청구항 3

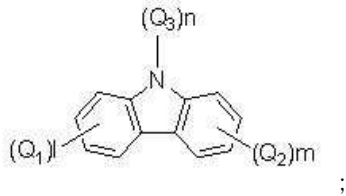
제2항에서, 상기 R¹ 내지 R⁴ 중에서 R¹ 및 R²이 각각 독립적으로 N, O 및 S로 이루어진 군에서 선택되는 1 이상의 원소를 포함하는 C₂~C₄₀의 헤테로아릴기인 것이 특징인 화학식 1로 표시되는 하이브리드 화합물.

청구항 4

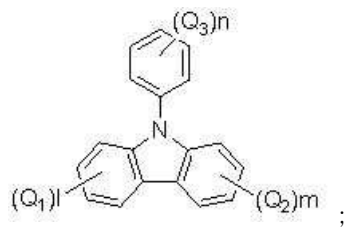
제1항 내지 제3항 중 어느 한 항에서,

상기 N, O 및 S로 이루어진 군에서 선택되는 1 이상의 원소를 포함하는 $C_2 \sim C_{40}$ 의 헤테로아릴기는 하기 화학식 3 내지 화학식 39로 이루어진 군에서 선택된 헤테로아릴기인 것이 특징인 화학식 1로 표시되는 하이브리드 화합물:

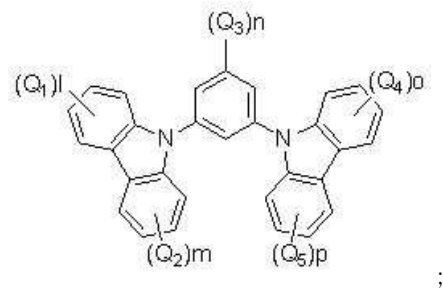
[화학식 3]



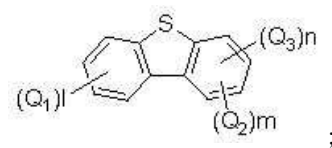
[화학식 4]



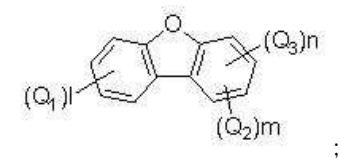
[화학식 5]



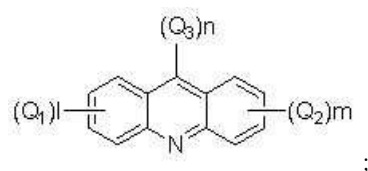
[화학식 6]



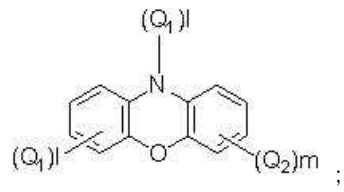
[화학식 7]



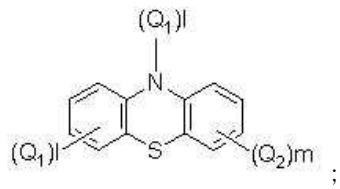
[화학식 8]



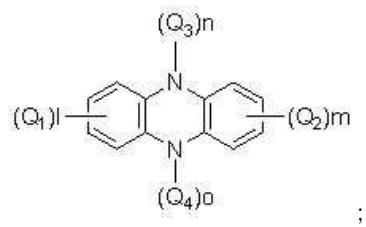
[화학식 9]



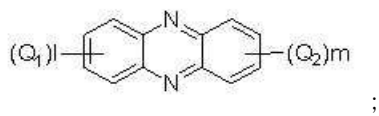
[화학식 10]



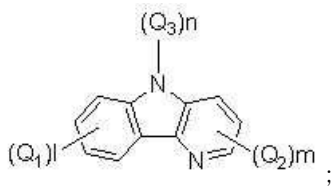
[화학식 11]



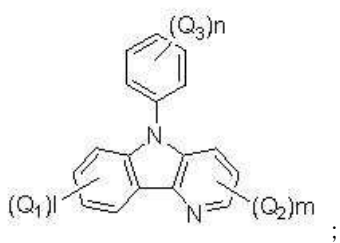
[화학식 12]



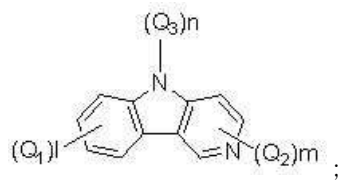
[화학식 13]



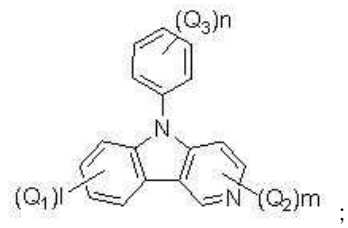
[화학식 14]



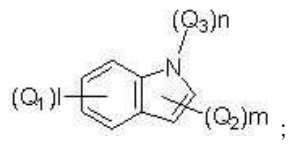
[화학식 15]



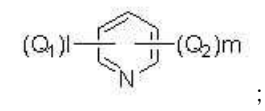
[화학식 16]



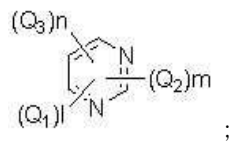
[화학식 17]



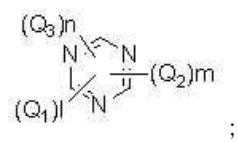
[화학식 18]



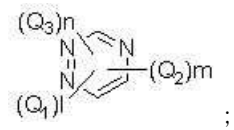
[화학식 19]



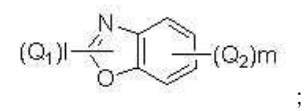
[화학식 20]



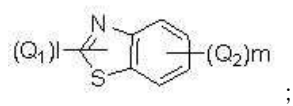
[화학식 21]



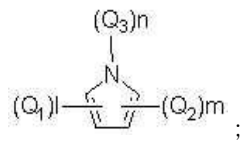
[화학식 22]



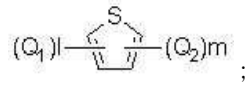
[화학식 23]



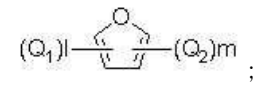
[화학식 24]



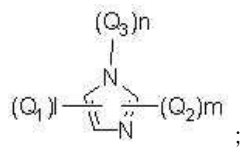
[화학식 25]



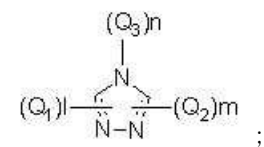
[화학식 26]



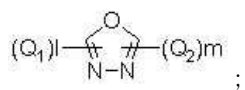
[화학식 27]



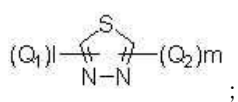
[화학식 28]



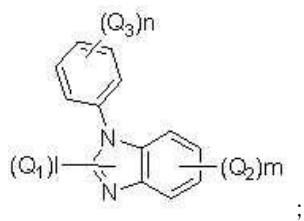
[화학식 29]



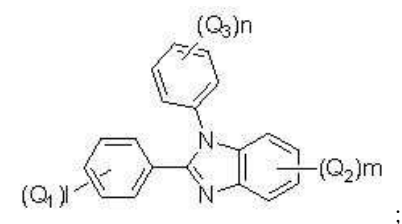
[화학식 30]



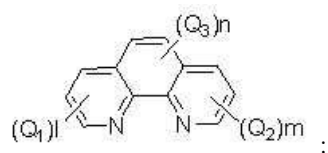
[화학식 31]



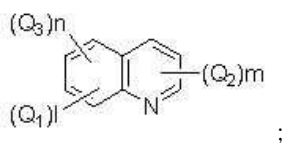
[화학식 32]



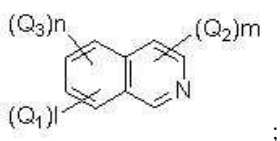
[화학식 33]



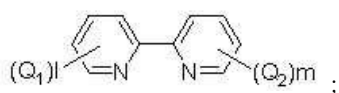
[화학식 34]



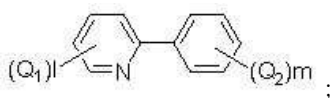
[화학식 35]



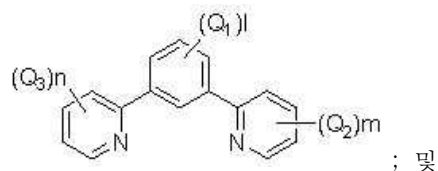
[화학식 36]



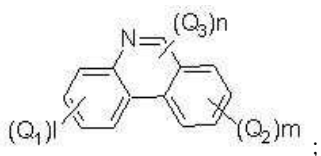
[화학식 37]



[화학식 38]



[화학식 39]



(상기 화학식 3 ~ 39에서,

상기 l, m, n, o 및 p는 각각 독립적으로 1 내지 5 범위의 정수이고;

복수의 Q¹은 서로 같거나 상이하고, 복수의 Q²는 서로 같거나 상이하며, 복수의 Q³는 서로 같거나 상이하며, 복수의 Q⁴는 서로 같거나 상이하며, 복수의 Q⁵는 서로 같거나 상이하며;

Q¹, Q², Q³, Q⁴ 및 Q⁵는 서로 같거나 상이하고, 각각 독립적으로 수소, 중수소, 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 선택되거나; 또는 인접하는 기와

축합 지방족 고리, 축합 방향족 고리, 축합 헤테로지방족 고리 또는 축합 헤테로방향족 고리를 형성하는 기이거나, 또는 연결기임).

청구항 5

(i) 양극, (ii) 음극, 및 (iii) 상기 양극과 음극 사이에 개재(介在)된 1층 이상의 유기물층을 포함하는 유기 전계 발광 소자로서,

상기 1층 이상의 유기물층 중 적어도 하나는 제1항 내지 제3항 중 어느 한 항에 기재된 화학식 1로 표시되는 하이브리드 화합물을 포함하는 것이 특징인 유기 전계 발광 소자.

청구항 6

제5항에 있어서, 상기 안드라센 유도체를 포함하는 유기물층은 전자 수송층, 발광층 또는 이들 모두인 것이 특징인 유기 전계 발광 소자.

청구항 7

제6항에 있어서, 상기 발광층에서 상기 화학식 1로 표시되는 하이브리드 화합물이 호스트로 사용되는 것이 특징인 유기 전계 발광 소자.

청구항 8

제6항에 있어서, 상기 발광층에서 상기 화학식 1로 표시되는 하이브리드 화합물이 인광 호스트로 사용되는 것이 특징인 유기 전계 발광 소자.

명세서

기술분야

[0001] 본 발명은 신규 하이브리드 유기 화합물 및 이를 포함하는 유기 전계 발광 소자에 관한 것이다.

배경기술

[0002] 일반적으로 유기 발광 현상이란 유기 물질에 전기에너지를 가했을 때 빛이 나타나는 현상을 말한다. 유기 발광 현상을 이용하는 유기 전계 발광 소자는 통상 양극(anode)과 음극(cathode) 및 이들 사이에 유기물층을 포함하는 구조를 가진다. 이러한 유기 전계 발광 소자의 구조에서 두 전극 사이에 전압을 걸어주게 되면 양극에서는 정공이, 음극에서는 전자가 각각 유기물층에 주입되게 된다. 주입된 정공과 전자가 만났을 때 엑시톤(exciton)이 형성되며, 이 엑시톤이 다시 바닥상태로 떨어질 때 빛이 나게 된다.

[0003] 유기 전계 발광 소자의 효율과 안정성을 높이기 위하여 양극과 음극 사이에 개재(介在)되는 유기물층을 단층 대신 각기 다른 물질로 구성된 다층의 구조로 제조하는 경우가 많다. 1987년 탕(Tang)에 의하여 정공층과 발광층의 기능층으로 나눈 적층구조의 유기 전계 발광 소자가 제시 되었으며, 현재 사용되는 대부분의 유기 전계 발광 소자는 기판, 양극, 양극으로 정공을 받아들이는 정공 주입층, 정공을 전달하는 정공 수송층, 정공과 전자가 재결합하여 빛을 내는 발광층, 전자를 전달하는 전자 수송층, 음극으로부터 전자를 받아들이는 전자 주입층 및 음극으로 이루어져 있다.

[0004] 이렇게 유기 전계 발광 소자가 다층으로 제작됨으로써, 정공과 전자의 이동속도가 상이하게 되기 때문에, 정공 주입층과 정공 수송층, 전자 수송층 과 전자 주입층을 적절하게 만들어 주면, 정공과 전자가 효과적으로 전달될 수 있고, 이로 인해 소자 내 정공과 전자의 균형이 이루어져 발광 효율이 향상될 수 있다.

[0005] 전자 수송 재료로서 최초 개발된 물질은 옥사디아졸 유도체(PBD)이다. 이후, 트리아졸 유도체(TAZ) 및 페난스로린 유도체(BCP)가 전자 수송성을 나타낸다고 알려졌다. 이러한 물질들 이외에, 전자 수송 재료는 유기 단분자 물질로서, 전자에 대한 안정도와 전자 이동 속도가 상대적으로 우수한 유기 금속착체들이 적절하며, 안정성이 우수하고 전자 친화도가 큰 Alq3가 가장 적절한 것으로 알려져 있으며, 이는 현재 가장 널리 사용되고 있다.

[0006] 또한, 종래 전자 주입층용 물질 및 전자 수송층용 물질로는 이미다졸기, 옥사졸기 또는 티아졸기를 가진 유기 단분자 물질들이 알려져 있다.

[0007] 예를 들어, 1996년도에 코닥사에서 공지한 TPBI는 이미다졸기를 가진 대표적인 전자 수송층용 물질로 알려져 있

다. 상기 TPBI의 구조는 벤젠의 1,3,5 치환 위치에 세 개의 N-페닐 벤즈이미다졸기를 함유하고 기능적으로는 전자를 전달하는 능력뿐 아니라 발광층에서 넘어오는 정공을 차단하는 기능도 있다. 그러나, 상기 TPBI는 실제 소자에 적용함에 있어 열적 안정성이 낮은 문제점을 갖고 있다.

[0008] 또한, 일본 공개특허공보 평11-345686호에 개시된 전자 수송용 물질들은 옥사졸기, 티아졸기를 함유하고 있는데, 이들 물질은 발광층에도 적용될 수 있다고 알려져 있다. 그러나, 상기 전자 수송용 물질들은 구동 전압, 휘도 및 소자의 수명 측면에서 실용화에 도달하지 못했다.

[0009] 이와 같은 종래 기술의 문제점을 극복하고, 유기 전계 발광 소자의 특성을 더욱 향상시키기 위하여, 유기 전계 발광 소자 내 전자 수송층용 물질로 사용될 수 있는 보다 안정적이고 효율적인 재료에 대한 개발이 필요하다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0010] 본 발명은 전술한 문제점을 해결하고자, 구동전압이 낮고, 발광효율, 휘도, 열적 안정성 및 소자 수명을 향상시킬 수 있는 신규 하이브리드 유기 화합물 및 이를 포함하는 유기 전계 발광 소자를 제공하고자 한다.

과제의 해결 수단

[0011] 본 발명은 하기 화학식 1로 표시되는 신규 하이브리드 화합물을 제공한다.

화학식 1

[0012]
$$\text{HTM} \text{---} \text{L} \text{---} \text{ETM}$$

[0013] 상기 화학식 1에서, 상기 L은 치환 또는 비치환된 인데노안트라센(indenoanthracene), 안트라벤조실롤(anthrabenzosilole), 나프토타르카바졸(naphthocarbazole) 또는 안트라벤조퓨란(anthrabenzofuran)이며,

[0014] 상기 HTM은 정공 수송기이고, 상기 ETM은 전자 수송기를 나타내는 것으로서, 상기 HTM 및 ETM은 각각 독립적으로 N, O 및 S로 이루어진 군에서 선택되는 1 이상의 원소를 포함하는 $\text{C}_2 \sim \text{C}_{40}$ 의 헤테로아릴기이다.

[0015] 또한, 본 발명은 (i) 양극, (ii) 음극, 및 (iii) 상기 양극과 음극 사이에 개재(介在)된 1층 이상의 유기물층을 포함하는 유기 전계 발광 소자로서, 상기 1층 이상의 유기물층 중 적어도 하나는 전술한 화학식 1로 표시되는 신규 하이브리드 화합물을 포함하는 것이 특징인 유기 전계 발광 소자를 제공한다.

발명의 효과

[0016] 본 발명에 따라 상기 화학식 1로 표시되는 신규 하이브리드 화합물을 유기 전계 발광 소자의 전자 수송 물질 및/또는 호스트 물질로 이용하는 경우, 상기 화합물 내에 정공 수송기와 전자 수송기를 동시에 도입된 하이브리드 화합물이 캐리어 수송을 조절하여 빠른 정공의 수송성을 조절하고 charge 밸런스를 개선해 재결합 효율이 향상되므로, 종래의 전자 수송 물질 및/또는 호스트 물질에 비해 유기 전계 발광 소자의 발광효율, 휘도, 열적 안정성, 구동 전압, 수명 특성이 향상될 수 있다.

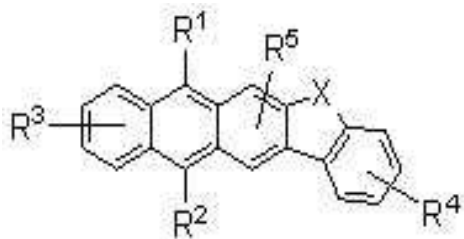
발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0017] 이하, 본 발명에 대하여 자세히 설명한다.

[0018] 본 발명에 따른 상기 화학식 1로 표시되는 신규 하이브리드 화합물은 안트라센 유도체로서, 소자 특성이 우수한 안트라센 모이어티(moiety)와 형광 특성이 우수한 플루오렌 등의 모이어티(moiety)가 서로 결합된 코어의 일부 탄소에, 전자 전달 능력을 갖는 치환기(전자 수송기) 및 정공 수송 능력을 갖는 치환기(정공 수송기)가 동시에 치환되어 있고, 이때 전자 수송기 및 정공 수송기는 각각 독립적으로 N, O 및 S로 이루어진 군에서 선택된 원소를 포함하는 $\text{C}_2 \sim \text{C}_{40}$ 의 헤테로아릴기인 것이 특징이다. 이러한 하이브리드 화합물이 유기 전계 발광 소자의 전자 수송 물질 및/또는 호스트 물질로서 이용됨으로써, 유기 전계 발광 소자는 발광효율, 휘도, 열적 안정성, 구동 전압, 수명 특성이 향상될 수 있다.

[0019] 본 발명에 따른 상기 화학식 1로 표시되는 하이브리드 화합물은 하기 화학식 2로 표시되는 화합물일 수 있다.

화학식 2



[0020]

[0021] 상기 화학식 2에서,

[0022] 상기 X는 CR⁶R⁷, NR⁶, O, S, S(=O), S(=O)₂, 및 SiR⁶R⁷으로 이루어진 군에서 선택되며,

[0023] 상기 R¹ 내지 R⁷은 서로 같거나 다르고, 각각 독립적으로 수소, 중수소, C₁~C₄₀의 알킬기, C₂~C₄₀의 알케닐기, C₂~C₄₀의 알키닐기, C₃~C₄₀의 시클로알킬기, C₃~C₄₀의 헤테로시클로알킬기, C₆~C₄₀의 아릴알킬기, C₁~C₄₀의 알킬옥시기, C₅~C₄₀의 아릴옥시기, C₅~C₄₀의 아릴기 및 C₅~C₄₀의 헤테로아릴기로 이루어진 군에서 선택되거나; 또는 인접하는 기와 축합(fused) 지방족 고리, 축합 방향족 고리, 축합 헤테로지방족 고리 또는 축합 헤테로방향족 고리를 형성하는 기이다.

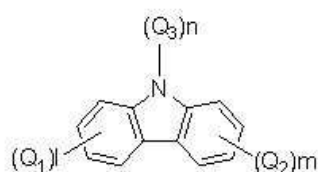
[0024] 또한, 상기 R¹ 내지 R⁷의 상기 C₁~C₄₀의 알킬기, C₂~C₄₀의 알케닐기, C₂~C₄₀의 알키닐기, C₃~C₄₀의 시클로알킬기, C₃~C₄₀의 헤테로시클로알킬기, C₆~C₄₀의 아릴알킬기, C₁~C₄₀의 알킬옥시기, C₅~C₄₀의 아릴옥시기, C₅~C₄₀의 아릴기 및 C₅~C₄₀의 헤테로아릴기는 각각 독립적으로 중수소, 할로젠, 니트릴기, 니트로기, C₁~C₄₀의 알킬기, C₂~C₄₀의 알케닐기, C₁~C₄₀의 알콕시기, C₁~C₄₀의 아미노기, C₃~C₄₀의 시클로알킬기, C₃~C₄₀의 헤테로시클로알킬기, C₆~C₄₀의 아릴기 및 C₅~C₄₀의 헤테로아릴기로 이루어진 군에서 선택된 하나 이상의 것으로 치환되거나 또는 비치환될 수 있다.

[0025] 다만, 상기 R¹ 내지 R⁴ 중 2개 이상은 각각 독립적으로 N, O 및 S로 이루어진 군에서 선택되는 1 이상의 원소를 포함하는 C₂~C₄₀의 헤테로아릴기이다.

[0026] 본 발명의 일례에 따르면, 상기 R¹ 내지 R⁴ 중 R¹ 및 R²는 각각 독립적으로 N, O 및 S로 이루어진 군에서 선택되는 1 이상의 원소를 포함하는 C₂~C₄₀의 헤테로아릴기일 수 있다.

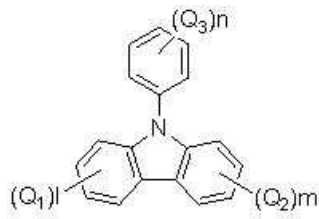
[0027] 상기 N, O 및 S로 이루어진 군에서 선택되는 1 이상의 원소를 포함하는 C₂~C₄₀의 헤테로아릴기의 예로는 하기 화학식 3 내지 화학식 39로 표시되는 작용기들이 있는데, 이에 제한되지 않는다:

화학식 3

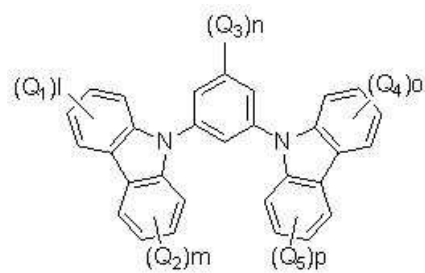


[0028]

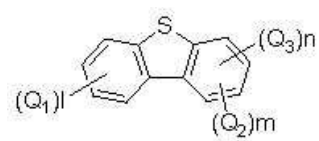
화학식 4



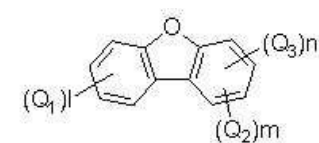
화학식 5



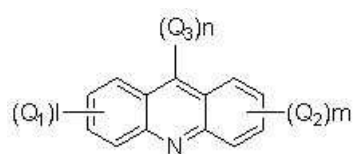
화학식 6



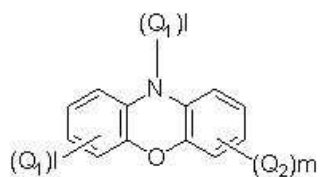
화학식 7



화학식 8

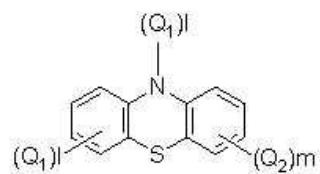


화학식 9



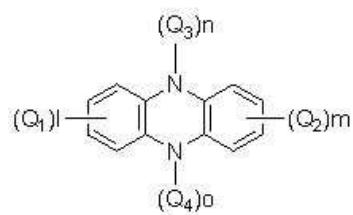
[0034]

화학식 10



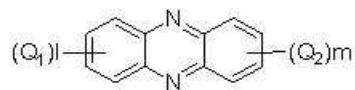
[0035]

화학식 11



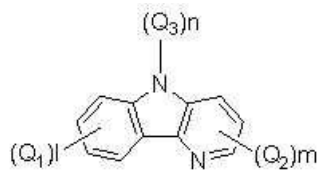
[0036]

화학식 12



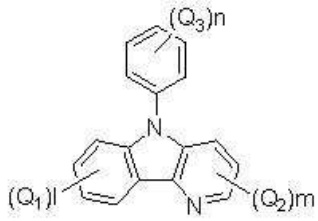
[0037]

화학식 13



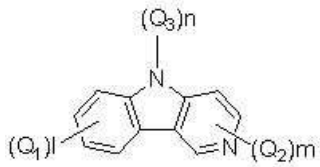
[0038]

화학식 14



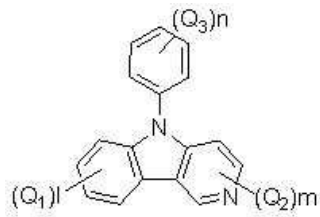
[0039]

화학식 15



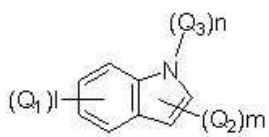
[0040]

화학식 16



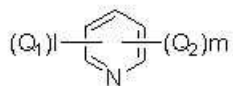
[0041]

화학식 17



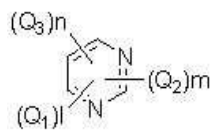
[0042]

화학식 18



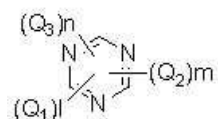
[0043]

화학식 19



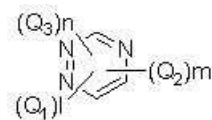
[0044]

화학식 20



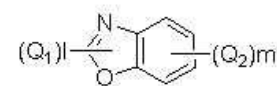
[0045]

화학식 21



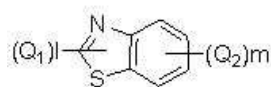
[0046]

화학식 22



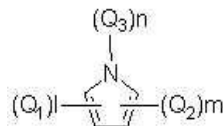
[0047]

화학식 23



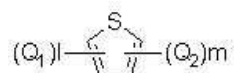
[0048]

화학식 24



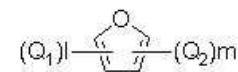
[0049]

화학식 25



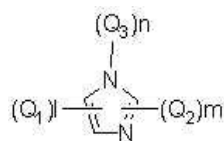
[0050]

화학식 26



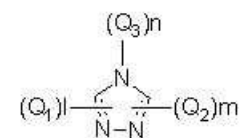
[0051]

화학식 27



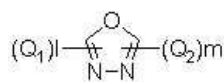
[0052]

화학식 28



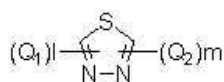
[0053]

화학식 29



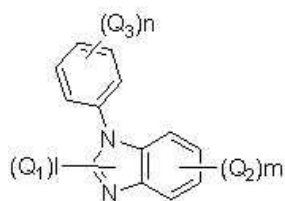
[0054]

화학식 30



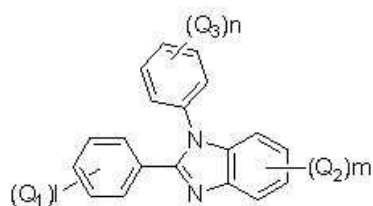
[0055]

화학식 31



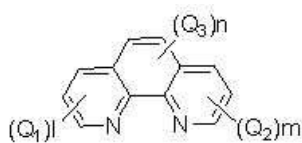
[0056]

화학식 32



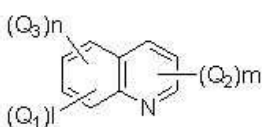
[0057]

화학식 33



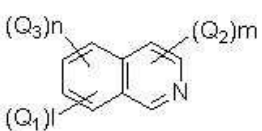
[0058]

화학식 34



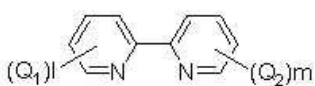
[0059]

화학식 35



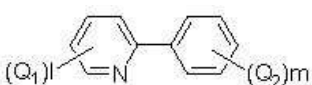
[0060]

화학식 36



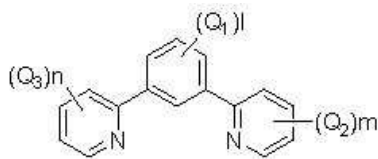
[0061]

화학식 37

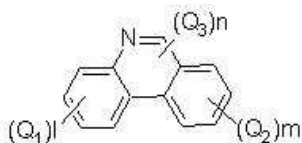


[0062]

화학식 38



화학식 39



상기 화학식 3 내지 화학식 39에서,

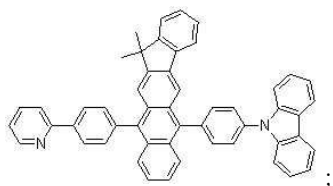
상기 l, m, n, o 및 p는 각각 독립적으로 1 내지 5 범위의 정수이고;

복수의 Q^1 은 서로 같거나 상이하고, 복수의 Q^2 는 서로 같거나 상이하며, 복수의 Q^3 는 서로 같거나 상이하며, 복수의 Q^4 는 서로 같거나 상이하며, 복수의 Q^5 는 서로 같거나 상이하며;

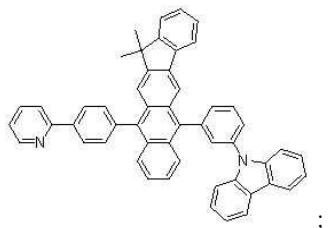
Q^1 , Q^2 , Q^3 , Q^4 및 Q^5 는 서로 같거나 상이하고, 각각 독립적으로 수소, 중수소, 할로젠, 니트릴기, 니트로기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알케닐기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알콕시기, $C_1\sim C_{40}$ 의 아미노기, $C_3\sim C_{40}$ 의 시클로알킬기, $C_3\sim C_{40}$ 의 헤테로시클로알킬기, $C_6\sim C_{40}$ 의 아릴기 및 $C_5\sim C_{40}$ 의 헤테로아릴기로 이루어진 군에서 선택되거나; 또는 인접하는 기와 축합 지방족 고리, 축합 방향족 고리, 축합 헤테로지방족 고리 또는 축합 헤테로방향족 고리를 형성하는 기이거나, 또는 연결기일 수 있다.

본 발명에 따른 화학식 1로 표시되는 하이브리드 화합물의 대표적인 예로는 다음과 같은 것들이 있는데, 이에 한정되는 것은 아니다:

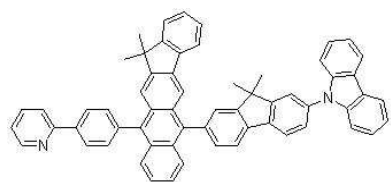
[화학식 1-001]



[화학식 1-002]

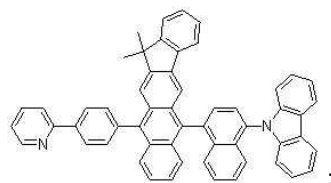


[화학식 1-003]



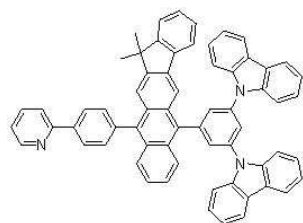
[0075] ;

[0076] [화학식 1-004]



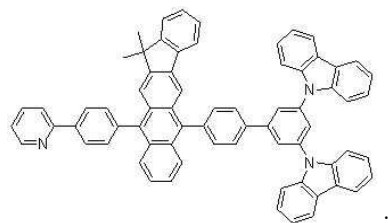
[0077] ;

[0078] [화학식 1-005]



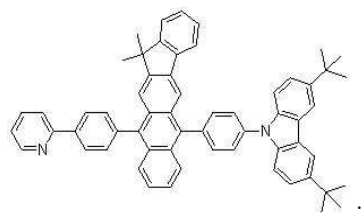
[0079] ;

[0080] [화학식 1-006]



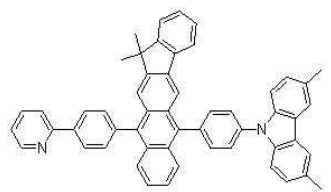
[0081] ;

[0082] [화학식 1-007]



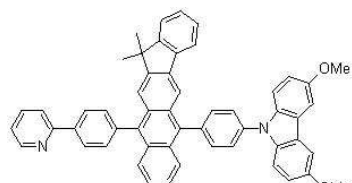
[0083] ;

[0084] [화학식 1-008]



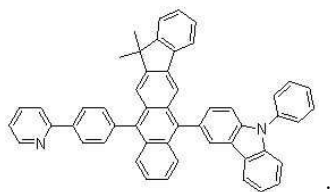
[0085] ;

[0086] [화학식 1-009]



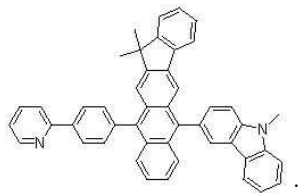
[0087] ;(여기서, Me는 메틸기임)

[0088] [화학식 1-010]



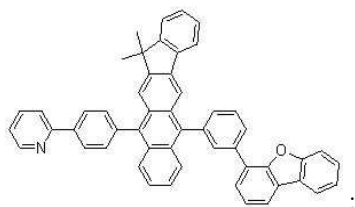
[0089] ;

[0090] [화학식 1-011]



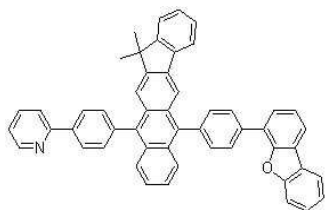
[0091] ;

[0092] [화학식 1-012]



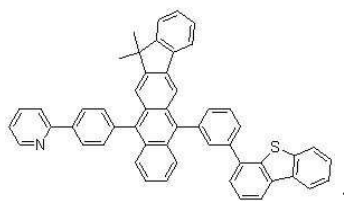
[0093] ;

[0094] [화학식 1-013]



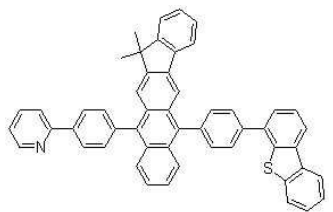
[0095] ;

[0096] [화학식 1-014]



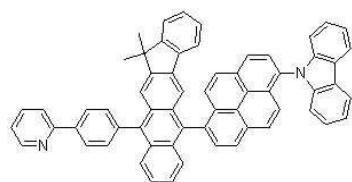
[0097] ;

[0098] [화학식 1-015]



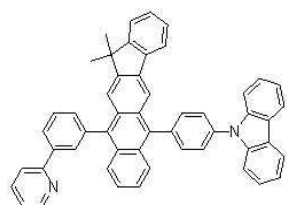
[0099] ;

[0100] [화학식 1-016]



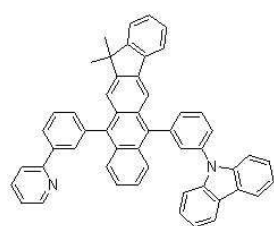
[0101] ;

[0102] [화학식 2-001]



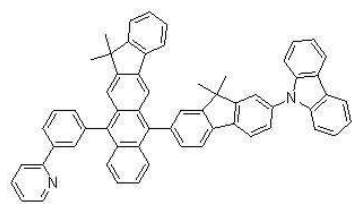
[0103] ;

[0104] [화학식 2-002]



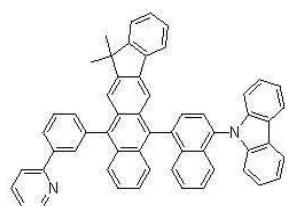
[0105] ;

[0106] [화학식 2-003]



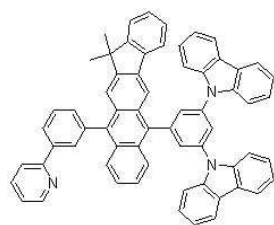
[0107] ;

[0108] [화학식 2-004]



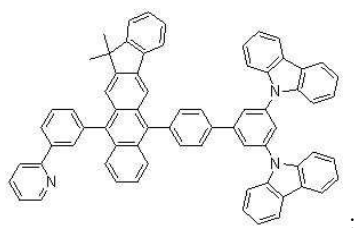
[0109] ;

[0110] [화학식 2-005]



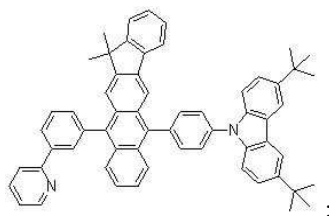
[0111] ;

[0112] [화학식 2-006]



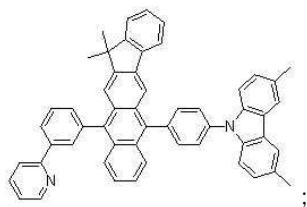
[0113] ;

[0114] [화학식 2-007]



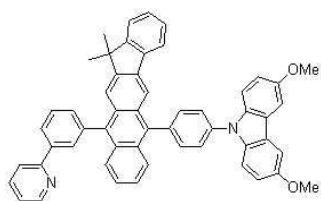
[0115] ;

[0116] [화학식 2-008]



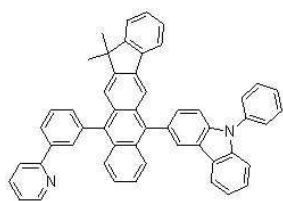
[0117] ;

[0118] [화학식 2-009]



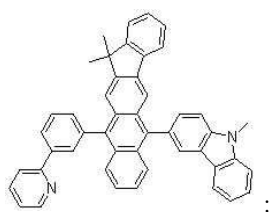
[0119] ; (여기서, Me는 메틸기임)

[0120] [화학식 2-010]



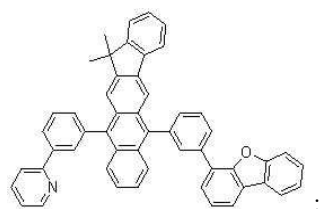
[0121] ;

[0122] [화학식 2-011]



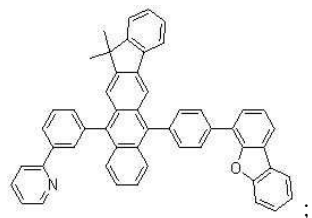
[0123] ;

[0124] [화학식 2-012]



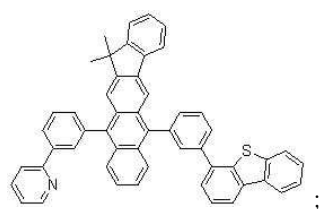
[0125] ;

[0126] [화학식 2-013]



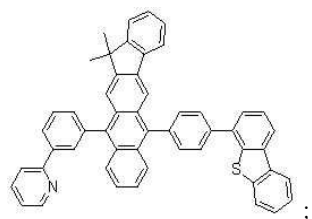
[0127] ;

[0128] [화학식 2-014]



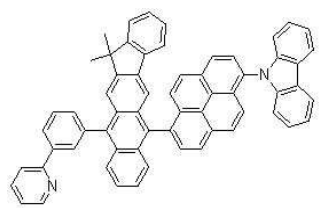
[0129] ;

[0130] [화학식 2-015]



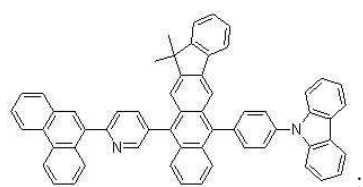
[0131] ;

[0132] [화학식 2-016]



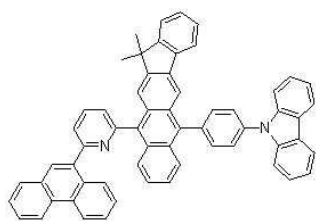
[0133] ;

[0134] [화학식 3-001]



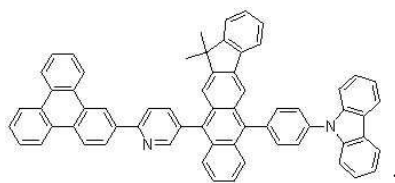
[0135] ;

[0136] [화학식 3-002]



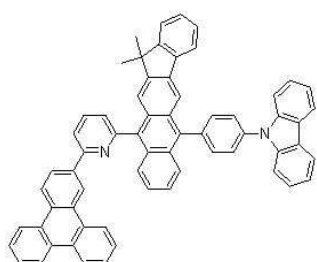
[0137] ;

[0138] [화학식 3-003]



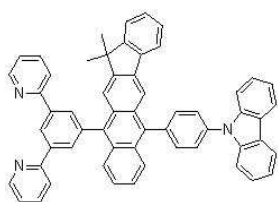
[0139] ;

[0140] [화학식 3-004]



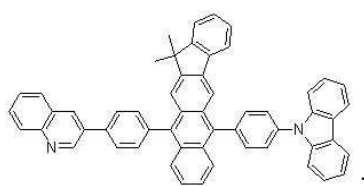
[0141] ;

[0142] [화학식 3-005]



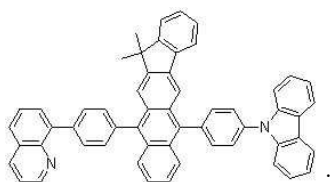
[0143] ;

[0144] [화학식 3-006]



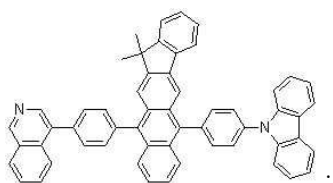
[0145] ;

[0146] [화학식 3-007]



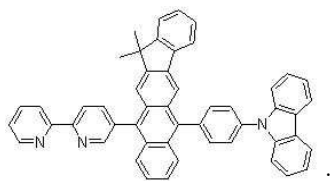
[0147] ;

[0148] [화학식 3-008]



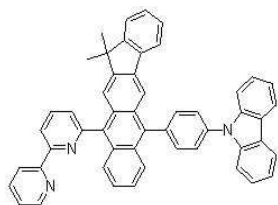
[0149] ;

[0150] [화학식 3-009]



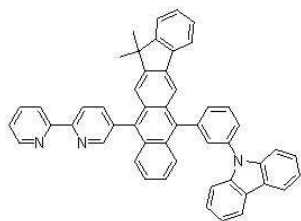
[0151] ;

[0152] [화학식 3-010]



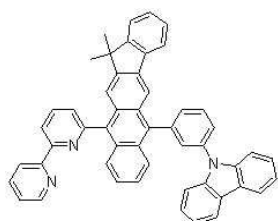
[0153] ;

[0154] [화학식 3-011]



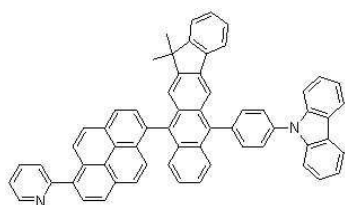
[0155] ;

[0156] [화학식 3-012]



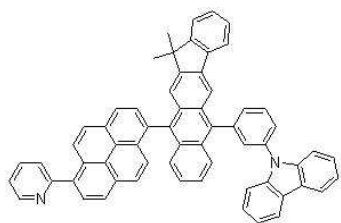
[0157] ;

[0158] [화학식 3-013]



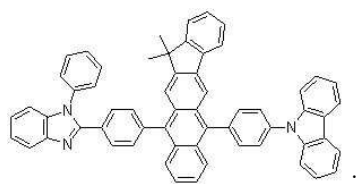
[0159] ;

[0160] [화학식 3-014]



[0161] ;

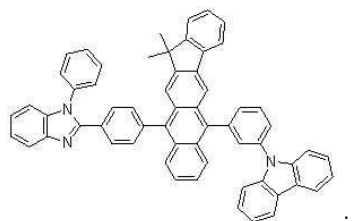
[0162] [화학식 4-001]



[0163]

[0164]

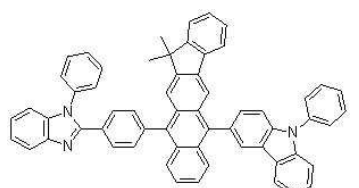
[화학식 4-002]



[0165]

[0166]

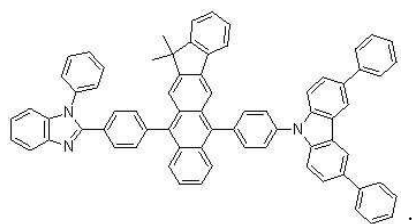
[화학식 4-003]



[0167]

[0168]

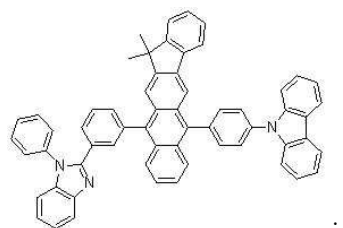
[화학식 4-004]



[0169]

[0170]

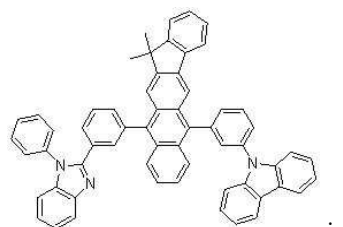
[화학식 4-005]



[0171]

[0172]

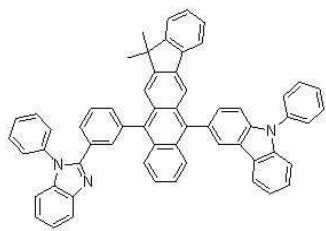
[화학식 4-006]



[0173]

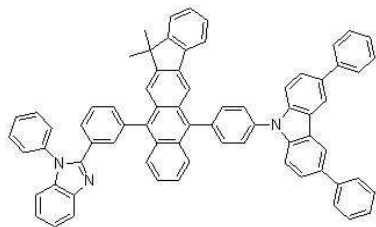
[0174]

[화학식 4-007]



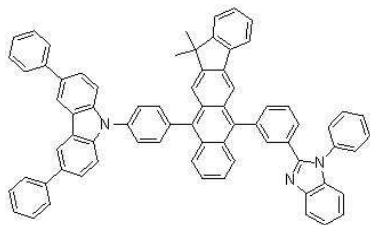
[0175] ;

[0176] [화학식 4-008]



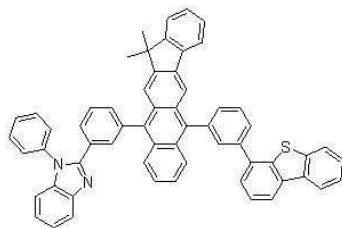
[0177] ;

[0178] [화학식 4-009]



[0179] ; 및

[0180] [화학식 4-010]



[0181]

[0182] 한편, 본 발명은 전술한 화학식 1로 표시되는 하이브리드 화합물을 포함하는 유기 전계 발광 소자를 제공한다.

[0183] 본 발명에 따른 유기 전계 발광 소자는 (i) 양극, (ii) 음극, 및 (iii) 상기 양극과 음극 사이에 개재(介在)된 1층 이상의 유기물층을 포함하는 유기 전계 발광 소자로서, 상기 1층 이상의 유기물층 중 적어도 하나는 상기 화학식 1로 표시되는 하이브리드 화합물을 포함하는 것이 특징이다.

[0184] 본 발명에 따른 유기 전계 발광 소자에서, 상기 화학식 1로 표시되는 화합물을 포함하는 유기물층은 전자 수송층, 발광층 및 이들의 조합으로 이루어진 군에서 선택된 층일 수 있다.

[0185] 상기 화학식 1로 표시되는 하이브리드 화합물이 전자 수송층에 포함되는 경우, 단독으로 사용하는 것도 가능하고, 당업계에 알려진 통상적인 전자 수송 물질과 혼합하여 사용될 수도 있다. 상기 통상적인 전자 수송 물질의 비제한적인 예로는 Alq3 [aluminum tris(8-hydroxyquinoline)], Liq [8-quinolinololithium], PBD [2-(biphenyl-4-yl)-5-(4-tert-butylphenyl)-1,3,4-oxadiazole], TAZ [3-(biphenyl-4-yl)-5-(4-tert-butylphenyl)-4-phenyl-1H-1,2,4-triazole], Bphen [4,7-diphenyl-1,10-phenanthroline], TPBI [1,3,5-tris(1-phenyl-1H-benzo[d]imidazol-2-yl)benzene] 등이 있다.

[0186] 또한, 상기 화학식 1로 표시되는 하이브리드 화합물이 발광층에 포함되는 경우, 도펀트(dopant)와 결합할 수 있는 호스트(host) 재료로 사용될 수 있다.

[0187] 한편, 본 발명에 따른 유기 전계 발광 소자에서, 본 발명의 화학식 1로 표시되는 화합물을 포함하는 유기물층 이외의 유기물층은 정공 주입층, 정공 수송층, 발광층, 전자 수송층 및/또는 전자 주입층일 수 있다.

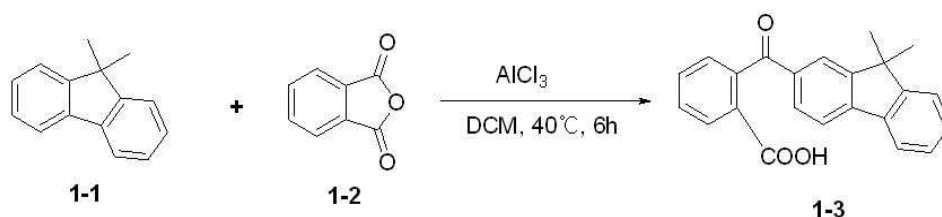
- [0188] 본 발명에 따른 유기 전계 발광 소자 구조의 비제한적인 예를 들면, 기관, 양극, 정공 주입층, 정공 수송층, 발광층, 전자 수송층 및 음극이 순차적으로 적층된 것일 수 있으며, 이때 상기 전자 수송층 및 발광층 중 하나 이상은 상기 화학식 1로 표시되는 하이브리드 화합물을 포함하는 것이다. 상기 전자 수송층 위에는 전자 주입층이 위치할 수도 있다.
- [0189] 또한, 본 발명에 따른 유기 전계 발광 소자는 전술한 바와 같이 양극, 1층 이상의 유기물층 및 음극이 순차적으로 적층된 구조뿐만 아니라, 전극과 유기물층 계면에 절연층 또는 접착층이 삽입될 수 있다.
- [0190] 본 발명에 따른 유기 전계 발광 소자에 있어서, 상기 화학식 1로 표시되는 하이브리드 화합물을 포함하는 상기 유기물층은 진공 증착법이나 용액 도포법에 의하여 형성될 수 있다. 상기 용액 도포법의 예로는 스핀 코팅, 딥 코팅, 닥터 블레이딩, 잉크젯 프린팅 또는 열 전사법 등이 있으나, 이들에만 한정되지 않는다.
- [0191] 본 발명에 따른 유기 전계 발광 소자는 하나 이상의 유기물층 중 1층 이상을 본 발명의 화학식 1로 표시되는 하이브리드 화합물을 포함하도록 형성하는 것을 제외하고는 당 기술 분야에 알려져 있는 재료 및 방법을 이용하여 유기물층 및 전극을 형성함으로써 제조될 수 있다.
- [0192] 예컨대, 기관으로는 실리콘 웨이퍼, 석영 또는 유리판, 금속판, 플라스틱 필름이나 시트 등이 사용될 수 있다.
- [0193] 양극 물질로는 바나듐, 크롬, 구리, 아연, 금과 같은 금속 또는 이들의 합금; 아연산화물, 인듐산화물, 인듐 주석 산화물(ITO), 인듐 아연 산화물(IZO)과 같은 금속 산화물; ZnO:Al 또는 SnO₂:Sb와 같은 금속과 산화물의 조합; 폴리티오펜, 폴리(3-메틸티오펜), 폴리[3,4-(에틸렌-1,2-디옥시)티오펜](PEDT), 폴리피롤 및 폴리아닐린과 같은 전도성 고분자; 또는 카본블랙 등이 있으나, 이들에만 한정되는 것은 아니다.
- [0194] 음극 물질로는 마그네슘, 칼슘, 나트륨, 칼륨, 타이타늄, 인듐, 이트륨, 리튬, 가돌리늄, 알루미늄, 은, 주석, 또는 납과 같은 금속 또는 이들의 합금; LiF/Al 또는 LiO₂/Al과 같은 다층 구조 물질 등이 있으나, 이들에만 한정되는 것은 아니다.
- [0195] 이외에 정공 주입층, 정공 수송층, 전자 주입층 등의 물질들은 특별히 한정되는 것은 아니며, 당업계에 알려진 통상의 물질이 사용될 수 있다.

[0196] 이하 본 발명을 실시예를 통하여 상세히 설명하면 다음과 같다. 단, 하기 실시예는 본 발명을 예시하는 것일 뿐 본 발명이 하기 실시예에 의해 한정되는 것은 아니다.

[0197] <실시예 1-1> 화학식 1-001로 표시되는 화합물의 합성

[0198] <합성예 1-1> 화학식 1-3로 표시되는 화합물의 제조

[0199] [반응식 1-1]



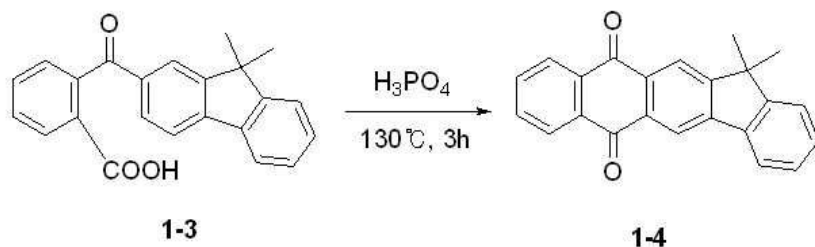
[0200]

[0201] 상기 화학식 1-1로 표시되는 화합물(9,9-dimethylfluorene) 20 g과 상기 화학식 1-2로 표시되는 화합물(phthalic anhydride) 23 g을, 디클로로메탄(dichloromethane, DCM) 700 mL를 첨가하여 상온에서 교반하다가 0℃에서 염화 알루미늄(AlCl₃) 20.5 g을 천천히 첨가하였다. 이후, 반응이 안정화되면 반응물을 상온에서 6 시간 동안 교반하고 반응 종료 후 0℃ 하에서 반응물에 증류수를 서서히 첨가한 다음 과량의 디클로로메탄으로 추출하고 증류수로 여러 번 씻어 주었다. 상기 농축물을 컬럼 크로마토그래피로 정제한 후 디클로로메탄(DCM)에 녹여 n-헥산에서 침전시켜 생성된 고체를 여과(filter)하였다. 여과로 얻은 고체를 감압 건조하여 화학식 1-3으로 표시되는 화합물 27 g (수율: 76 %)을 얻었다.

[0202] ¹H NMR: 8.44 (t, 2H), 8.23 (d, 1H), 7.96 (m, 5H), 7.72 (m, 5H), 7.55(t, 1H), 1.67 (s, 6H)

[0203] <합성예 1-2> 화학식 1-4로 표시되는 화합물의 제조

[0204] [반응식 1-2]



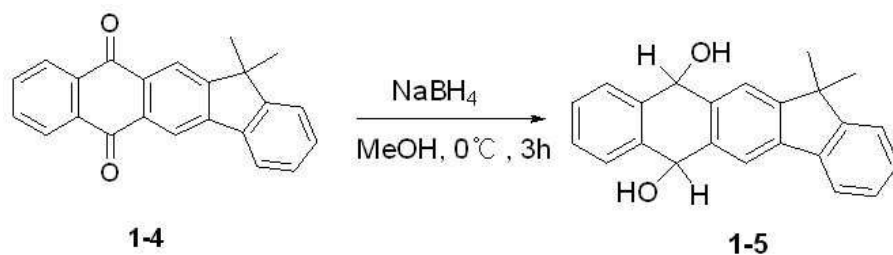
[0205]

[0206] 상기 합성예 1-1에서 얻은 화학식 1-3으로 표시되는 화합물 27 g을, 폴리인산(H_3PO_4) 50 mL에 첨가하였다. 반응물을 130 °C의 온도에서 3 시간 동안 가열 교반한 다음 상온으로 내린 후, 여기에 얼음물 400 mL를 넣어 생성된 고체를 여과한 후 메탄올로 여러 번 세척하였다. 여과로 얻은 고체를 감압 건조하여 화학식 1-4로 표시되는 화합물 19 g (수율: 74%)을 얻었다.

[0207] 1H NMR: 8.29 (t, 3H), 8.09 (s, 2H), 7.85 (d, 2H), 7.72 (m, 2H), 1.67 (s, 6H)

[0208] <합성예 1-3> 화학식 1-5로 표시되는 화합물의 제조

[0209] [반응식 1-3]

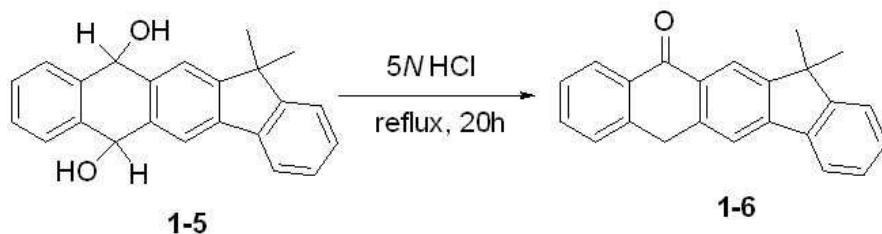


[0210]

[0211] 상기 합성예 1-2에서 얻은 화학식 1-4로 표시되는 화합물 64 g을, 메탄올(MeOH) 2 L에 첨가한 후 분산시켰다. 상기 반응 용액에 sodium borohydride($NaBH_4$) 30 g을 0 °C 하에서 세 번으로 나누어 천천히 첨가하였다. 이후, 반응 용액을 0 °C 하에서 3 시간 동안 교반한 후 물 3 L를 넣고, 생성된 고체를 여과하였다. 여과하여 얻은 고체를 과량의 물로 여러 번 세척한 후 자연 건조하여 화학식 1-5로 표시되는 화합물 115 g을 얻었다.

[0212] <합성예 1-4> 반응식 1-4의 화학식 1-6으로 표시되는 화합물의 제조

[0213] [반응식 1-4]

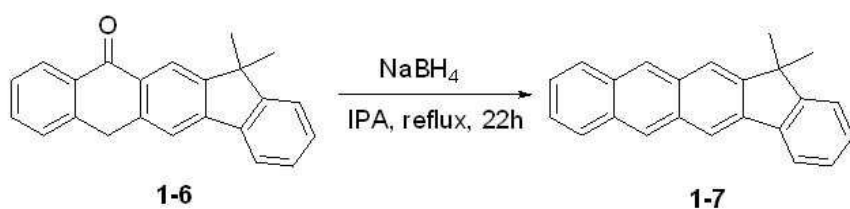


[0214]

[0215] 상기 합성예 1-3에서 얻은 화학식 1-5로 표시되는 화합물 115 g을, 5 N의 HCl 300 mL에 분산시킨 다음, 20 시간 동안 환류 교반하였다. 상온으로 내린 다음, 상기 반응 용액에 물을 첨가하여 고체를 생성한 후, 생성된 고체를 여과하였다. 이후, 여과로 얻은 고체를 과량의 물로 충분히 세척한 후 감압 건조하여 화학식 1-6으로 표시되는 화합물 60.3 g (수율: 98.5 %)을 얻었다.

[0216] <합성예 1-5> 화학식 1-7로 표시되는 화합물의 제조

[0217] [반응식 1-5]



[0218]

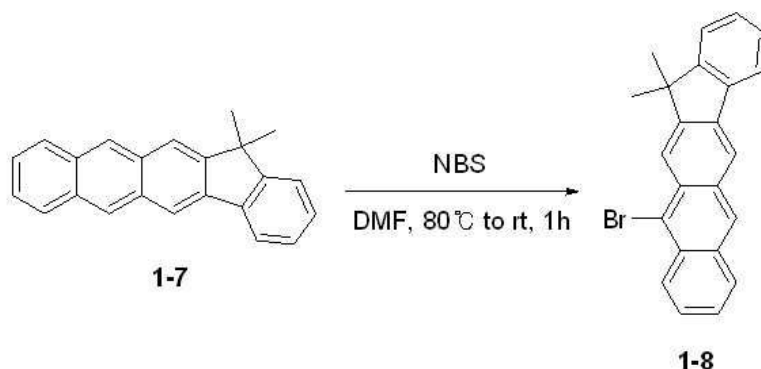
[0219] 상기 합성에 1-4에서 얻은 화학식 1-6으로 표시되는 화합물 60.3 g을, 이소프로판올 1.5 L에 분산시킨 후, sodium borohydride 36.7 g을 첨가하였다. 상기 반응 용액을 22 시간 동안 환류 교반시킨 후 상온으로 냉각시킨 다음, 생성된 붉은색의 반응물을 물 2 L에 넣고 교반하였다. 생성된 고체를 여과한 후, 여과로 얻은 고체를 과량의 물로 충분히 세척하여 황토색 고체를 얻었다. 생성된 황토색 고체를 컬럼 크로마토그래피를 통해 정제하여 밝은 연두색의 고체인 화학식 1-7로 표시되는 화합물 27.9 g (수율: 48.7 %)을 얻었다.

[0220] ^1H NMR (500MHz, THF- d_8) 8.49 (s, 1H), 8.43 (s, 1H), 8.34 (s, 1H), 8.03 (s, 1H), 7.98 (dd, 2H), 7.95 (m, 1H), 7.50 (m, 1H), 7.40 (m, 2H), 7.35 (m, 2H), 1.60 (s, 6H)

[0221] Mass: $[\text{M}+1]^+$ 294

[0222] <합성에 1-6> 화학식 1-8로 표시되는 화합물의 제조

[0223] [반응식 1-6]



[0224]

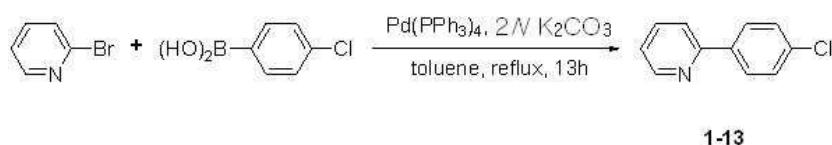
[0225] 상기 합성에 1-5에서 얻은 화학식 1-7로 표시되는 화합물 27.9 g을 디메틸포름아미드(dimethylformamide, DMF) 400 mL에 용해시켜 얻은 용액에, N-bromosuccinimide(NBS) 18.5 g을 첨가하여 반응 용액을 얻었다. 이후, 상기 반응 용액을 상온에서 1 시간 동안 교반한 다음, 물 1 L에 넣어 고체를 얻은 후, 생성된 고체를 여과하였다. 여과시킨 고체를 물과 메탄올로 충분히 세척한 후, 감압 건조하여 연노랑색의 고체인 화학식 1-8로 표시되는 화합물 33.3 g (수율: 94.2 %)을 얻었다.

[0226] ^1H NMR (500MHz, THF- d_8) 8.83 (s, 1H), 8.53 (s, 1H), 8.48 (d, 1H), 8.08 (s, 1H), 8.06 (t, 1H), 8.03 (d, 1H), 7.59 (m, 1H), 7.53 (m, 1H), 7.49 (m, 1H), 7.40 (m, 2H), 1.62 (s, 6H)

[0227] Mass: $[\text{M}+1]^+$ 372

[0228] <합성에 1-7> 반응식 1의 화학식 1-13으로 표시되는 화합물의 제조

[0229] [반응식 1-7]



[0230]

[0231] 2-bromopyridine 13 mL와 4-chlorophenylboronic acid 25.2 g을, 톨루엔 1 L에 용해시킨 후, 여기에

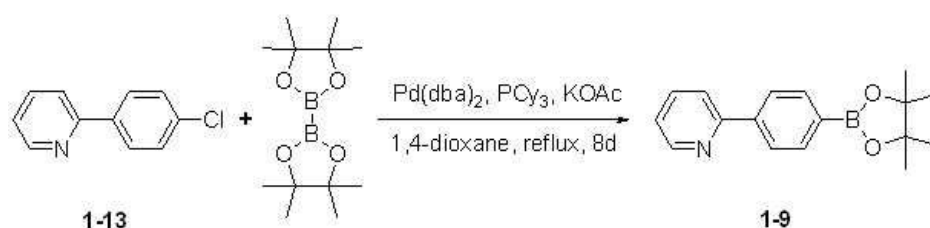
tetrakis(triphenylphosphine)palladium(0) [Pd(PPh₃)₄] 4.7 g과 2 N의 탄산칼륨(K₂CO₃) 300 mL를 첨가하였다. 반응물을 22 시간 동안 환류 교반한 후 상온으로 냉각시켜 유기물 층과 물 층으로 분리하였다. 이후, 상기 유기물 층을, 물과 포화 염화나트륨 용액으로 세척한 다음, 무수 황산나트륨으로 건조하여 농축하고, 이후 컬럼 크로마토그래피(n-헥산; n-헥산/디클로로메탄=9/1; 및 n-헥산/초산에틸=10/1)를 통해 정제한 후 건조하여 흰색의 고체인 화학식 1-13으로 표시되는 화합물 19.6 g (수율: 77.0%)을 얻었다.

[0232] ¹H NMR (500MHz, THF-d₈) 8.62 (d, 1H), 8.11 (dd, 2H), 7.86 (d, 1H), 7.77 (td, 1H), 7.44 (dd, 2H), 7.23 (m, 1H)

[0233] Mass: [M+1]⁺ 189

[0234] <합성예 1-8> 화학식 1-9로 표시되는 화합물의 제조

[0235] [반응식 1-8]



[0236]

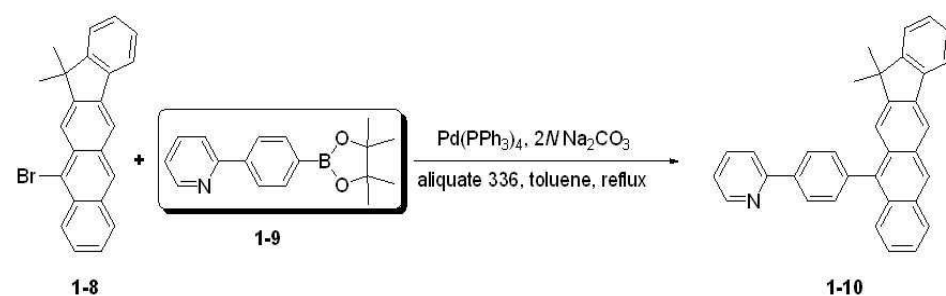
[0237] 상기 합성예 1-7에서 얻은 화학식 1-13으로 표시되는 화합물 15.3 g을, bis(pinacolato)diboron 24.6 g과 함께 1,4-디옥산(1,4-dioxane) 400 mL에 분산시킨 다음, 여기에 bis(dibenzylideneacetone) palladium(0) [Pd(dba)₂] 2.8 g, tricyclohexylphosphine (PCy₃) 5.4 g과 초산칼륨(KOAc) 23.8 g을 첨가하고, 환류 교반하여 반응 용액을 얻었다. 상온으로 냉각시킨 후, 상기 반응 용액에 증류수 400 mL를 넣고 교반시킨 다음, 디클로로메탄 400 mL를 첨가하여 유기물 층과 물 층으로 분리시켰다. 물 층과 분리된 유기물 층을 과량의 포화 염화나트륨 용액으로 세척한 후, 무수 황산나트륨으로 건조하여 농축하고, 이후 컬럼 크로마토그래피(n-헥산; n-헥산/초산에틸=10/1)를 통해 정제하여 연한 노란색의 고체인 화학식 1-9로 표시되는 화합물 13.2 g (수율: 58.1 %)을 얻었다.

[0238] ¹H NMR (500MHz, THF-d₈) 8.63 (dt, 1H), 8.10 (d, 2H), 7.89 (d, 1H), 7.82 (d, 2H), 7.76 (td, 1H), 7.22 (m, 1H)

[0239] Mass: [M+1]⁺ 281

[0240] <합성예 1-9> 화학식 1-10으로 표시되는 화합물의 제조

[0241] [반응식 1-9]



[0242]

[0243] 상기 합성예 1-6에서 얻은 화학식 1-8로 표시되는 화합물 14.5 g과 상기 합성예 1-8에서 얻은 화학식 1-9로 표시되는 화합물 13.1 g을, 톨루엔 400 mL에 용해시킨 다음, 여기에 tetrakis(triphenylphosphine)palladium(0)[Pd(PPh₃)₄] 1.4 g, 2 N의 탄산나트륨(Na₂CO₃) 100 mL와 aliquat 336 1.8 mL를 첨가하여 반응물을 얻었다. 이 반응물을 22 시간 동안 환류 교반한 후, 상온으로 냉각시켜 유기물 층과 물 층으로 분리하였다. 물 층과 분리된 유기물 층을, 물과 포화 염화나트륨 용액으로 세척한 후, 무수 황산나트륨으로 건조하여 농축하였다. 이후, 상기 농축물을 컬럼 크로마토그래피(n-헥산; n-헥산/초산에틸=10/1)를

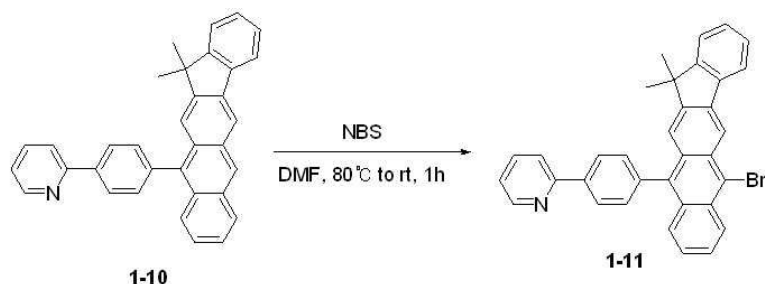
통해 정제하고, 이후 탁한 노란색의 고체인 디클로로메탄에 용해시킨 다음, 메탄올에서 고체화하여 연한 노란색의 고체인 화학식 1-10으로 표시되는 화합물 13.3 g(수율: 76.5%)을 얻었다.

[0244] ^1H NMR (500MHz, THF- d_8) 8.73 (d, 1H), 8.55 (s, 1H), 8.44 (d, 2H), 8.07 (m, 4H), 7.87 (td, 1H), 7.66 (dd, 2H), 7.58 (d, 2H), 7.48 (d, 1H), 7.42 (t, 1H), 7.31 (m, 3H), 7.22 (t, 1H), 1.65 (s, 6H)

[0245] Mass: $[M+1]^+$ 448

[0246] <합성예 1-10> 화학식 1-11로 표시되는 화합물의 제조

[0247] [반응식 1-10]



[0248]

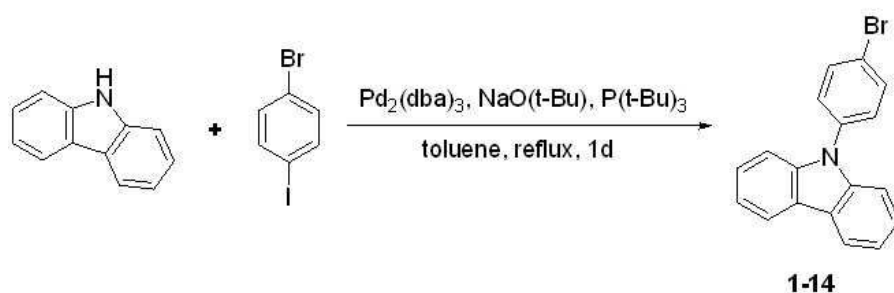
[0249] 상기 합성예 1-9에서 얻은 화학식 1-11로 표시되는 화합물 13.3 g을 디메틸포름아미드(DMF) 150 mL에 분산시킨 후 80 °C의 온도에서 용해시킨 다음, N-bromosuccinimide 5.8 g을 40 °C의 온도에서 첨가하여 반응물을 얻었다. 이후, 반응물을 상온에서 1 시간 동안 교반한 후 물 300 mL에 넣고 다시 교반하여 고체를 얻은 다음, 생성된 고체를 여과하였다. 얻은 고체를 과량의 디클로로메탄으로 추출한 후 포화 티오황산나트륨 수용액과 포화 염화나트륨 용액으로 세척하고, 이후 무수 황산나트륨으로 건조하여 농축하였다. 상기 농축물을 디클로로메탄에 용해시킨 다음 메탄올에서 고체화한 후 건조하여 겨자색의 고체인 화학식 1-11로 표시되는 화합물 13.9 g (수율: 88.7%)을 얻었다.

[0250] ^1H NMR (500MHz, THF- d_8) 8.74 (d, 1H), 8.66 (s, 1H), 8.60 (d, 1H), 8.46 (d, 2H), 8.09 (d, 1H), 8.02 (s, 1H), 7.88 (td, 1H), 7.71 (d, 1H), 7.65 (d, 1H), 7.58 (m, 3H), 7.51 (d, 1H), 7.39 (t, 1H), 7.32 (m, 2H), 7.24 (t, 1H), 1.65 (s, 6H)

[0251] Mass: $[M]^+$ 525

[0252] <합성예 1-11> 화학식 1-14로 표시되는 화합물의 제조

[0253] [반응식 1-11]



[0254]

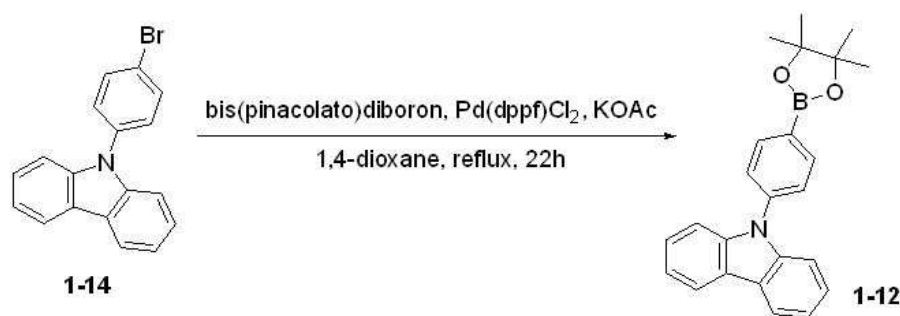
[0255] Carbazole 40 g과 1-bromo-4-iodobenzene 81.2 g을 톨루엔에 용해시킨 다음, 여기에 tris(dibenzylideneacetone)dipalladium(0) $[\text{Pd}_2(\text{dba})_3]$ 6.6 g, hexane에 용해된 50 wt%의 tri-tert-butylphosphine $[\text{P}(\text{t-Bu})_3]$ 12 mL와 sodium tert-butoxide $[\text{NaO}(\text{t-Bu})]$ 57.5 g을 첨가한 후 환류 교반하였다. 상기 반응물을 상온으로 냉각한 다음 celite 545를 이용하여 여과하고, 이후 과량의 디클로로메탄으로 충분히 세척한 다음, 이 여액을 농축하였다. 상기 농축물을 컬럼 크로마토그래피(n-헥산; n-헥산/디클로로메탄=9/1)를 통해 정제하여 반짝이는 흰색의 고체인 화학식 1-14로 표시되는 화합물 33.4 g(수율: 43.3 %)을 얻었다.

[0256] ^1H NMR (500MHz, THF- d_8) 8.13 (d, 2H), 7.80 (dd, 2H), 7.55 (dd, 2H), 7.37 (m, 4H), 7.24 (m, 2H)

[0257] Mass: $[M]^+$ 321

[0258] <합성예 1-12> 화학식 1-12로 표시되는 화합물의 제조

[0259] [반응식 1-12]



[0260]

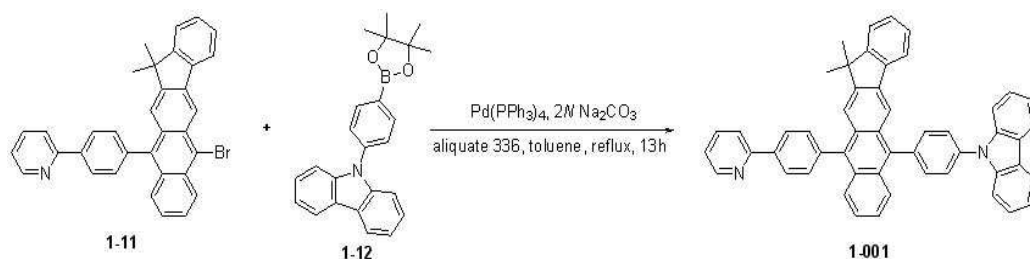
[0261] 상기 합성예 1-11에서 얻은 화학식 1-14로 표시되는 화합물 33.4 g과 bis(pinacolato)diboron 31.6 g을 1,4-디옥산 400 mL에 분산시키고, 여기에 [1,1'-bis(diphenylphosphino)ferrocene]dichloropalladium(II)[Pd(dppf)Cl₂] 2.3 g과 초산칼륨 30.5 g을 첨가한 후 환류 교반하였다. 상온으로 냉각시킨 반응물에 증류수 400 mL를 첨가하여 교반시킨 후, 여기에 디클로로메탄 400 mL를 첨가하여 유기물 층과 물 층으로 분리하였다. 물 층과 분리된 유기물 층을 포화 염화나트륨 용액으로 세척한 후 무수 황산나트륨으로 건조하여 농축하고, 이후 컬럼 크로마토그래피 (n-헥산; n-헥산/디클로로메탄=9/1 ~ 4/1)를 통해 정제하여 흰색의 고체인 화학식 1-12로 표시되는 화합물 32.4 g (수율: 84.5 %)을 얻었다.

[0262] ¹H NMR (500MHz, THF-d₈) 8.13 (d, 2H), 8.02 (d, 2H), 7.61 (d, 2H), 7.42 (d, 2H), 7.36 (td, 2H), 7.23 (td, 2H), 1.38 (s, 12H)

[0263] Mass: [M+]⁺ 369

[0264] <합성예 1-13: 화학식 1-001로 표시되는 화합물의 제조

[0265] [반응식 1-13]



[0266]

[0267] 상기 합성예 1-11에서 얻은 화학식 1-11로 표시되는 화합물 13.9 g과 상기 합성예 1-12에서 얻은 화학식 1-12로 표시되는 11.7 g을 톨루엔 200 mL에 용해시킨 다음, 여기에 tetrakis(triphenylphosphine)palladium(0)[Pd(PPh₃)₄] 0.9 g, 2 N의 탄산나트륨 60mL, 및 Aliquat 336 1.2 mL를 첨가한 후 13 시간 동안 환류 교반하였다. 상온으로 냉각시킨 반응물을 유기물 층과 물 층으로 분리한 후, 상기 유기물층을 물과 포화 염화나트륨 용액으로 세척한 다음 무수 황산나트륨으로 건조하여 농축하였다. 농축물을 컬럼 크로마토그래피(n-헥산; n-헥산/디클로로메탄=9/1; n-헥산/초산에틸=10/1; 클로로포름)를 통해 정제한 후 n-헥산에서 침전시키고 여과하여 얻은 노란색의 고체인 상기 화학식 1-001으로 표시되는 화합물 11.8 g (수율: 64.9 %)을 얻었다.

[0268] ¹H NMR (500MHz, THF-d₈) 8.75 (d, 1H), 8.49 (d, 2H), 8.22 (d, 2H), 8.11 (d, 2H), 7.96 (d, 2H), 7.86 (m, 6H), 7.77 (d, 2H), 7.72 (d, 2H), 7.67 (d, 2H), 7.48 (m, 3H), 7.39 (m, 2H), 7.30 (m, 4H), 7.23 (t, 1H), 1.51 (s, 6H)

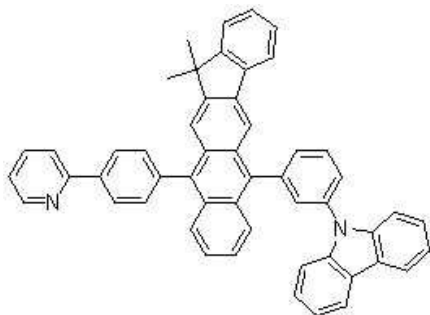
[0269] Mass: 689,

[0270] Elemental Analysis: C, 90.67; H, 5.27; N, 4.07

[0271] <실시예 1-2> 화학식 1-002로 표시되는 화합물의 제조

[0272] 상기 합성에 1-11에서 사용된 1-bromo-4-iodobenzene 81.2 g 대신에 1-bromo-3-iodobenzene 81.2 g을 사용하고, 이때 얻은 화합물을 상기 합성에 1-12에서 사용된 화학식 1-14로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 1-002로 표시되는 화합물 12.4 g (수율: 68.2 %)을 얻었다.

[0273] [화학식 1-002]



[0274]

[0275] ¹H NMR (500MHz, THF-d₈) 8.74 (d, 1H), 8.47 (m, 2H), 8.15 (d, 2H), 8.09 (m, 2H), 7.98 (t, 1H), 7.89 (m, 3H), 7.82 (m, 2H), 7.75 (d, 1H), 7.66 (m, 5H), 7.61 (d, 1H), 7.47 (d, 1H), 7.38 (t, 3H), 7.31 (m, 3H), 7.24 (m, 3H), 1.58 (s, 3H), 1.52 (s, 3H)

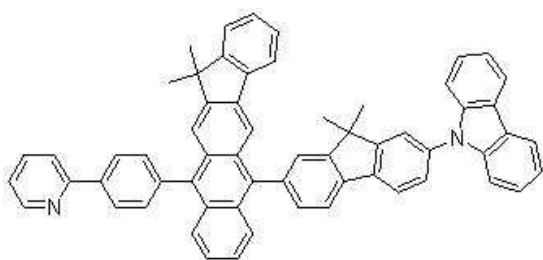
[0276] Mass: 689,

[0277] Elemental Analysis: C, 90.67; H, 5.27; N, 4.07

[0278] <실시예 1-3> 화학식 1-003으로 표시되는 화합물의 제조

[0279] 상기 합성에 1-11에서 사용된 1-bromo-4-iodobenzene 81.2 g 대신에 2,7-dibromo-9,9-dimethylfluorene 101.1 g을 사용하고, 이때 얻은 화합물을 상기 합성에 1-12에서 사용된 화학식 1-14로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 1-003으로 표시되는 화합물 9.1 g (수율: 43.2 %)을 얻었다.

[0280] [화학식 1-003]



[0281]

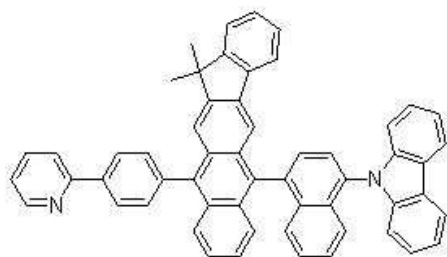
[0282] Mass: 805,

[0283] Elemental Analysis: C, 91.01; H, 5.51; N, 3.48

[0284] <실시예 1-4> 화학식 1-004로 표시되는 화합물의 제조

[0285] 상기 합성에 1-11에서 사용된 1-bromo-4-iodobenzene 81.2 g 대신에 1,4-dibromonaphthalene 82.1 g을 사용하고, 이때 얻은 화합물을 상기 합성에 1-12에서 사용된 화학식 1-14로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 1-004로 표시되는 화합물 11.9 g (수율: 61.1 %)을 얻었다.

[0286] [화학식 1-004]



[0287]

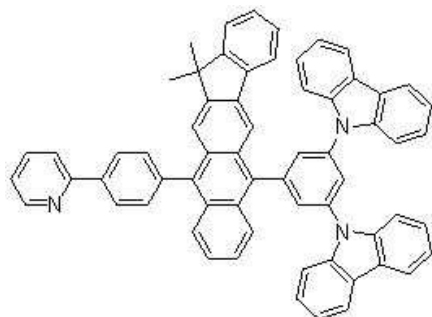
[0288] Mass: 739,

[0289] Elemental Analysis: C, 91.03; H, 5.18; N, 3.79

[0290] <실시예 1-5> 화학식 1-005로 표시되는 화합물의 제조

[0291] 상기 합성에 1-11에서 사용된 1-bromo-4-iodobenzene 81.2 g 대신에 1,3,5-tribromobenzene 37.7 g을 사용하고, 이때 얻은 화합물을 상기 합성에 1-12에서 사용된 화학식 1-14로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 1-005로 표시되는 화합물 8.5 g (수율: 37.9 %)을 얻었다.

[0292] [화학식 1-005]



[0293]

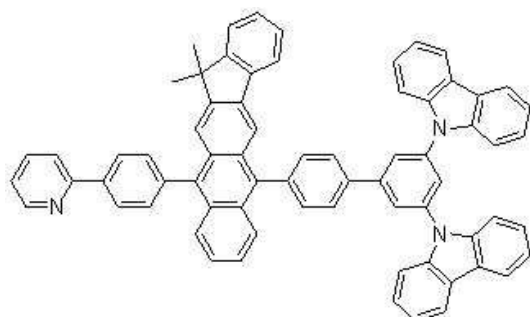
[0294] Mass: 854,

[0295] Elemental Analysis: C, 90.01; H, 5.07; N, 4.92

[0296] <실시예 1-6> 화학식 1-006으로 표시되는 화합물의 제조

[0297] 상기 합성에 1-11에서 사용된 1-bromo-4-iodobenzene 81.2 g 대신에 3,4',5-tribromobiphenyl 46.8 g을 사용하고, 이때 얻은 화합물을 상기 합성에 1-12에서 사용된 화학식 1-14로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 1-006으로 표시되는 화합물 6.9 g (수율: 28.4 %)을 얻었다.

[0298] [화학식 1-006]



[0299]

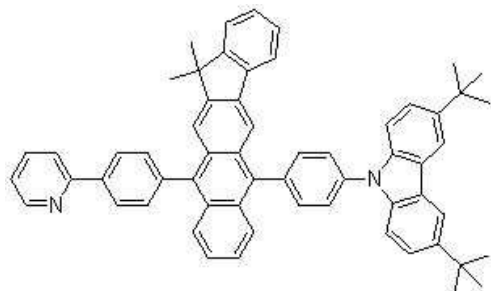
[0300] Mass: 930,

[0301] Elemental Analysis: C, 90.39; H, 5.09; N, 4.52

[0302] <실시예 1-7> 화학식 1-007로 표시되는 화합물의 제조

[0303] 상기 합성에 1-11에서 사용된 Carbazole 40 g 대신에 3,6-di-tert-butyl-9H-carbazole 66.8 g을 사용하고, 이때 얻은 화합물을 상기 합성에 1-12에서 사용된 화학식 1-14로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 1-007로 표시되는 화합물 14.6 g (수율: 69.1 %)을 얻었다.

[0304] [화학식 1-007]



[0305]

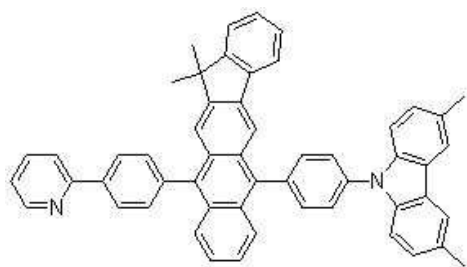
[0306] Mass: 801,

[0307] Elemental Analysis: C, 89.96; H, 6.54; N, 3.50

[0308] <실시예 1-8> 화학식 1-008로 표시되는 화합물의 제조

[0309] 상기 합성에 1-11에서 사용된 Carbazole 40 g 대신에 3,6-dimethyl-9H-carbazole 46.7 g을 사용하고, 이때 얻은 화합물을 상기 합성에 1-12에서 사용된 화학식 1-14로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 1-008로 표시되는 화합물 13.3 g (수율: 70.4 %)을 얻었다.

[0310] [화학식 1-008]



[0311]

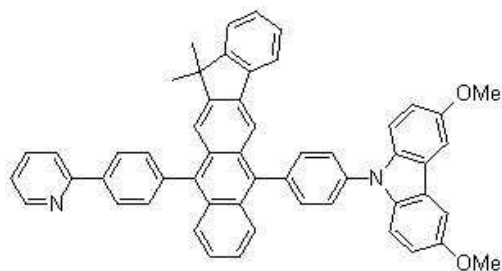
[0312] Mass: 717,

[0313] Elemental Analysis: C, 90.47; H, 5.62; N, 3.91

[0314] <실시예 1-9> 화학식 1-009로 표시되는 화합물의 제조

[0315] 상기 합성에 1-11에서 사용된 Carbazole 40 g 대신에 3,6-dimethoxy-9H-carbazole 54.4 g을 사용하고, 이때 얻은 화합물을 상기 합성에 1-12에서 사용된 화학식 1-14로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 1-009로 표시되는 화합물 11.6 g (수율: 58.9 %)을 얻었다(하기 화학식 1-009에서, Me는 메틸기임).

[0316] [화학식 1-009]



[0317]

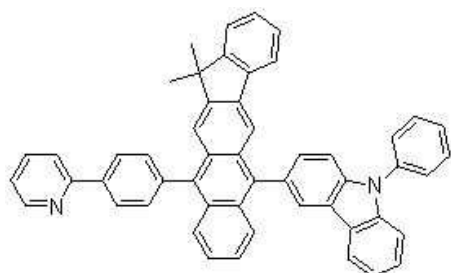
[0318] Mass: 749,

[0319] Elemental Analysis: C, 86.60; H, 5.38; N, 3.74; O, 4.27

[0320] <실시예 1-10> 화학식 1-010으로 표시되는 화합물의 제조

[0321] 상기 합성에 1-12에서 사용된 화학식 1-14로 표시되는 화합물 대신에 3-bromo-9-phenyl-9H-carbazole 33.4 g을 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 1-010로 표시되는 화합물 9.7 g (수율: 53.5 %)을 얻었다.

[0322] [화학식 1-010]



[0323]

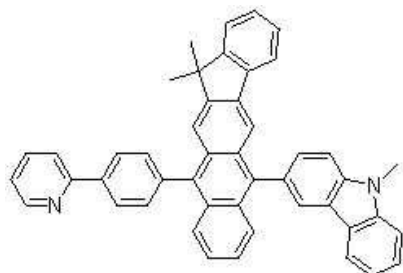
[0324] Mass: 689,

[0325] Elemental Analysis: C, 90.67; H, 5.27; N, 4.07

[0326] <실시예 1-11> 화학식 1-011로 표시되는 화합물의 제조

[0327] 상기 합성에 1-12에서 사용된 화학식 1-14로 표시되는 화합물 대신에 3-bromo-9-methyl-9H-carbazole 26.7 g을 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 1-011로 표시되는 화합물 7.8 g (수율: 47.2 %)을 얻었다.

[0328] [화학식 1-011]



[0329]

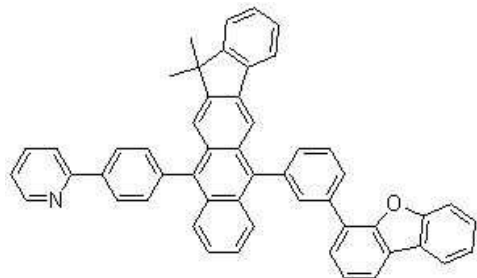
[0330] Mass: 627,

[0331] Elemental Analysis: C, 90.06; H, 5.47; N, 4.47

[0332] <실시예 1-12> 화학식 1-012로 표시되는 화합물의 제조

[0333] 상기 합성에 1-12에서 사용된 화학식 1-14로 표시되는 화합물 대신에 4-(3-bromophenyl)dibenzo[b,d]furan 33.5 g을 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 1-012로 표시되는 화합물 12.9 g (수율: 71.2 %)을 얻었다.

[0334] [화학식 1-012]



[0335]

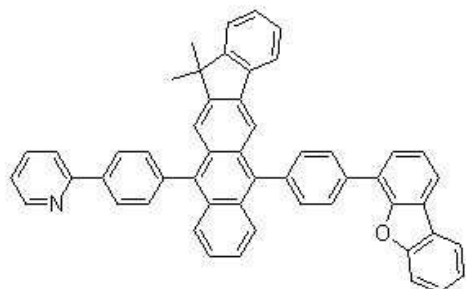
[0336] Mass: 690,

[0337] Elemental Analysis: C, 90.54; H, 5.11; N, 2.03; O, 2.32

[0338] <실시예 1-13> 화학식 1-013으로 표시되는 화합물의 제조

[0339] 상기 합성에 1-12에서 사용된 화학식 1-14로 표시되는 화합물 대신에 4-(4-bromophenyl)dibenzo[b,d]furan 33.5 g을 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 1-013으로 표시되는 화합물 11.1 g (수율: 61.2%)을 얻었다.

[0340] [화학식 1-013]



[0341]

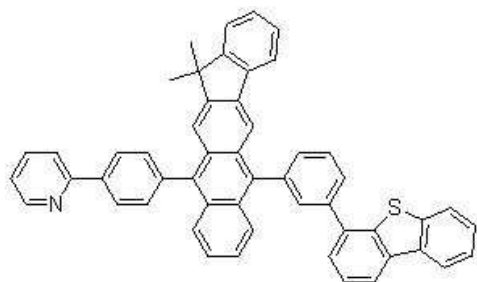
[0342] Mass: 690,

[0343] Elemental Analysis: C, 90.54; H, 5.11; N, 2.03; O, 2.32

[0344] <실시예 1-14> 화학식 1-014로 표시되는 화합물의 제조

[0345] 상기 합성에 1-12에서 사용된 화학식 1-14로 표시되는 화합물 대신에 4-(3-bromophenyl)dibenzo[b,d]thiophene 35.2 g을 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 1-014로 표시되는 화합물 10.9 g (수율: 59.2 %)을 얻었다.

[0346] [화학식 1-014]



[0347]

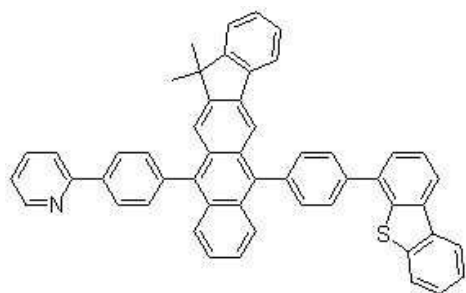
[0348] Mass: 706,

[0349] Elemental Analysis: C, 88.48; H, 5.00; N, 1.98; S, 4.54

[0350] <실시예 1-15> 화학식 1-008으로 표시되는 화합물의 제조

[0351] 상기 합성에 1-12에서 사용된 화학식 1-14로 표시되는 화합물 대신에 4-(4-bromophenyl)dibenzo[b,d]thiophene 35.2 g을 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 1-015로 표시되는 화합물 10.5 g (수율: 56.3 %)을 얻었다.

[0352] [화학식 1-015]



[0353]

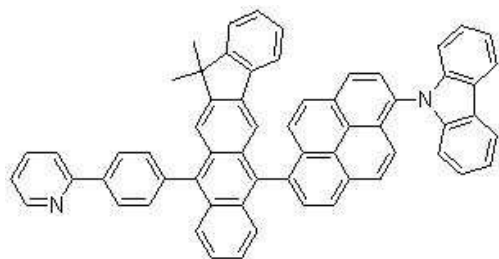
[0354] Mass: 706,

[0355] Elemental Analysis: C, 88.48; H, 5.00; N, 1.98; S, 4.54

[0356] <실시예 1-16> 화학식 1-016으로 표시되는 화합물의 제조

[0357] 상기 합성에 1-11에서 사용된 1-bromo-4-iodobenzene 81.2 g 대신에 1,6-dibromopyrene 129.2 g을 사용하고, 이때 얻은 화합물을 상기 합성에 1-12에서 사용된 화학식 1-14로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 1-016으로 표시되는 화합물 9.2 g (수율: 43.1 %)을 얻었다.]

[0358] [화학식 1-016]



[0359]

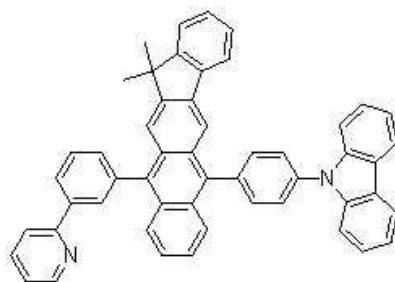
[0360] Mass: 813,

[0361] Elemental Analysis: C, 91.60; H, 4.96; N, 3.45

[0362] <실시예 2-1> 화학식 2-001로 표시되는 화합물의 제조

[0363] 상기 합성에 1-7에서 사용된 4-chlorophenylboronic acid 25.2 g 대신에 3-chlorophenylboronic acid 25.2 g을 사용하고, 이때 얻은 화합물을 상기 합성에 1-8에서 사용된 화학식 1-13으로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 2-001로 표시되는 화합물 13.9 g (수율: 76.4 %)을 얻었다.

[0364] [화학식 2-001]



[0365]

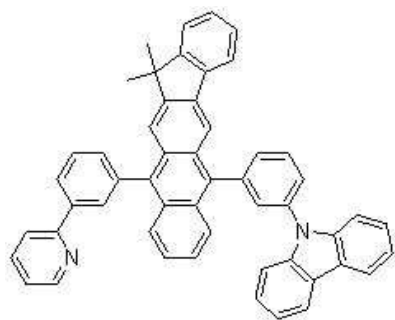
[0366] Mass: 689,

[0367] Elemental Analysis: C, 90.67; H, 5.27; N, 4.07

[0368] <실시예 2-2> 화학식 2-002로 표시되는 화합물의 제조

[0369] 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 2-002로 표시되는 화합물 12.1 g (수율: 66.5 %)을 얻었다.

[0370] [화학식 2-002]



[0371]

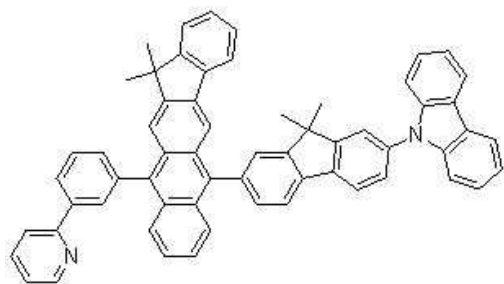
[0372] Mass: 689,

[0373] Elemental Analysis: C, 90.67; H, 5.27; N, 4.07

[0374] <실시예 2-3> 화학식 2-003으로 표시되는 화합물의 제조

[0375] 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 2-003으로 표시되는 화합물 10.4 g (수율: 49.2 %)을 얻었다.

[0376] [화학식 2-003]



[0377]

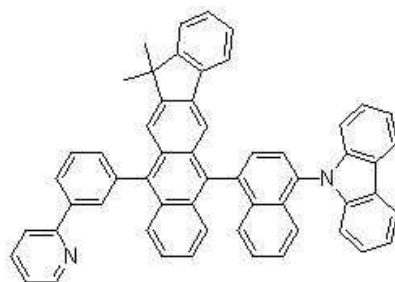
[0378] Mass: 805,

[0379] Elemental Analysis: C, 91.01; H, 5.51; N, 3.48

[0380] <실시예 2-4> 화학식 2-004로 표시되는 화합물의 제조

[0381] 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 2-004로 표시되는 화합물 11 g (수율: 56.4 %)을 얻었다.

[0382] [화학식 2-004]



[0383]

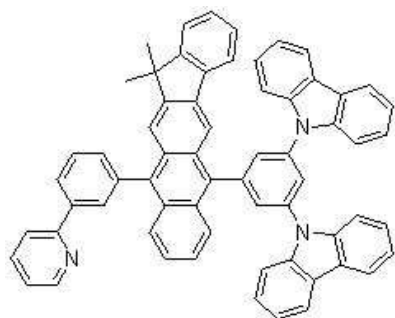
[0384] Mass: 739,

[0385] Elemental Analysis: C, 91.03; H, 5.18; N, 3.79

[0386] <실시예 2-5> 화학식 2-005로 표시되는 화합물의 제조

[0387] 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 2-005로 표시되는 화합물 9.5 g (수율: 42.2 %)을 얻었다.

[0388] [화학식 2-005]



[0389]

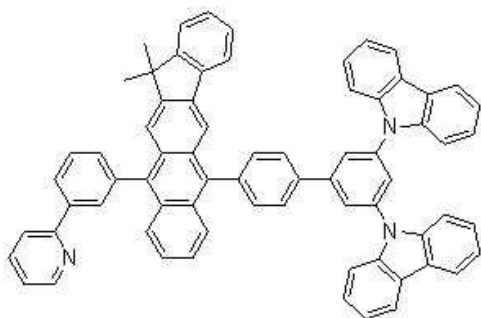
[0390] Mass: 854,

[0391] Elemental Analysis: C, 90.01; H, 5.07; N, 4.92

[0392] <실시예 2-6> 화학식 2-006으로 표시되는 화합물의 제조

[0393] 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 2-006으로 표시되는 화합물 6.1 g (수율: 25.1 %)을 얻었다.

[0394] [화학식 2-006]



[0395]

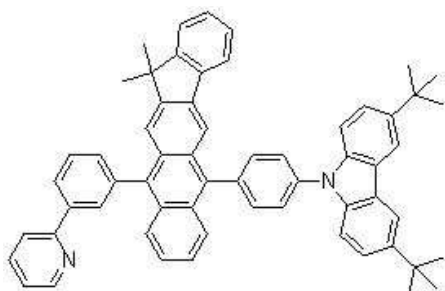
[0396] Mass: 930,

[0397] Elemental Analysis: C, 90.39; H, 5.09; N, 4.52

[0398] <실시예 2-7> 화학식 2-007로 표시되는 화합물의 제조

[0399] 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 2-007로 표시되는 화합물 12.7 g (수율: 60.1 %)을 얻었다.

[0400] [화학식 2-007]



[0401]

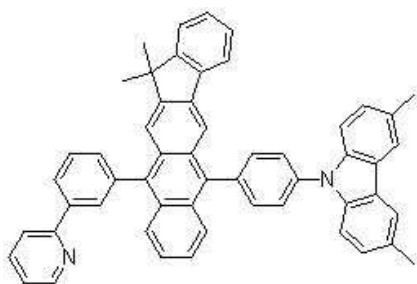
[0402] Mass: 801,

[0403] Elemental Analysis: C, 89.96; H, 6.54; N, 3.50

[0404] <실시예 2-8> 화학식 2-008로 표시되는 화합물의 제조

[0405] 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 2-008로 표시되는 화합물 12.3 g (수율: 65.3 %)을 얻었다.

[0406] [화학식 2-008]



[0407]

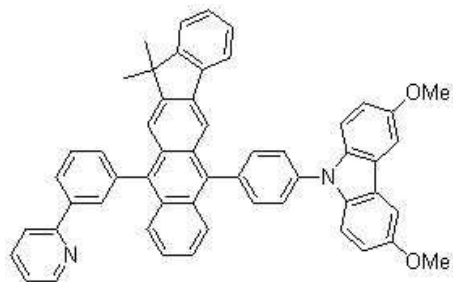
[0408] Mass: 717,

[0409] Elemental Analysis: C, 90.47; H, 5.62; N, 3.91

[0410] <실시예 2-9> 화학식 2-009로 표시되는 화합물의 제조

[0411] 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 2-009로 표시되는 화합물 12.3 g (수율: 62.7 %)을 얻었다(하기 화학식 2-009에서, Me는 메틸기임).

[0412] [화학식 2-009]



[0413]

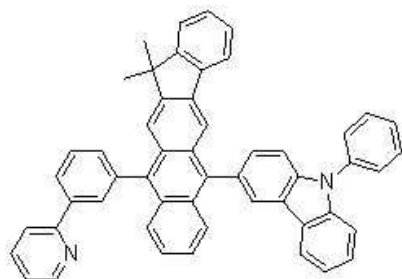
[0414] Mass: 749,

[0415] Elemental Analysis: C, 86.60; H, 5.38; N, 3.74; O, 4.27

[0416] <실시예 2-10> 화학식 2-010으로 표시되는 화합물의 제조

[0417] 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 2-010으로 표시되는 화합물 11.9 g (수율: 65.6 %)을 얻었다.

[0418] [화학식 2-010]



[0419]

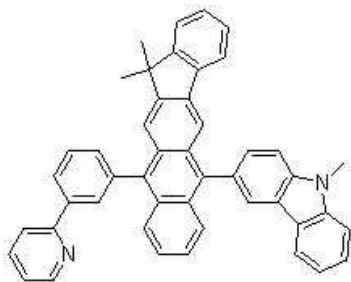
[0420] Mass: 689,

[0421] Elemental Analysis: C, 90.67; H, 5.27; N, 4.07

[0422] <실시예 2-11> 화학식 2-011로 표시되는 화합물의 제조

[0423] 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 2-011로 표시되는 화합물 8.5 g (수율: 51.4 %)을 얻었다.

[0424] [화학식 2-011]



[0425]

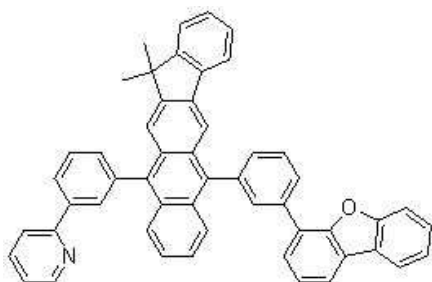
[0426] Mass: 627,

[0427] Elemental Analysis: C, 90.06; H, 5.47; N, 4.47

[0428] <실시예 2-12> 화학식 2-012로 표시되는 화합물의 제조

[0429] 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 2-012로 표시되는 화합물 10.7 g (수율: 59.1 %)을 얻었다.

[0430] [화학식 2-012]



[0431]

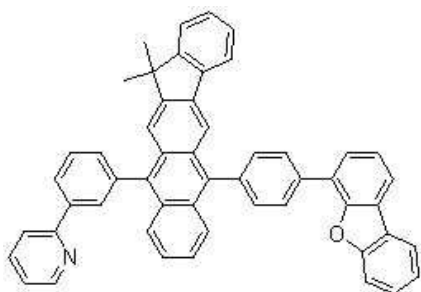
[0432] Mass: 690,

[0433] Elemental Analysis: C, 90.54; H, 5.11; N, 2.03; O, 2.32

[0434] <실시예 2-13> 화학식 2-013으로 표시되는 화합물의 제조

[0435] 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 2-013으로 표시되는 화합물 7.4 g (수율: 40.8 %)을 얻었다.

[0436] [화학식 2-013]



[0437]

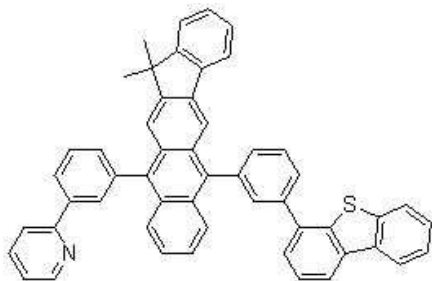
[0438] Mass: 690,

[0439] Elemental Analysis: C, 90.54; H, 5.11; N, 2.03; O, 2.32

[0440] <실시예 2-14> 화학식 2-014로 표시되는 화합물의 제조

[0441] 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 2-014로 표시되는 화합물 11.7 g (수율: 63.5 %)을 얻었다.

[0442] [화학식 2-014]



[0443]

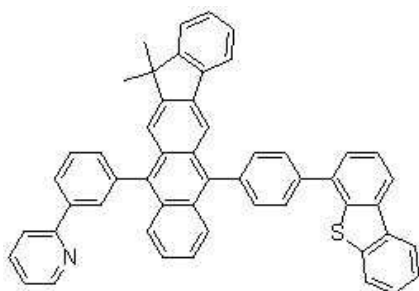
[0444] Mass: 706,

[0445] Elemental Analysis: C, 88.48; H, 5.00; N, 1.98; S, 4.54

[0446] <실시예 2-15> 화학식 2-015로 표시되는 화합물의 제조

[0447] 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 2-015로 표시되는 화합물 13.1 g (수율: 70.2 %)을 얻었다.

[0448] [화학식 2-015]



[0449]

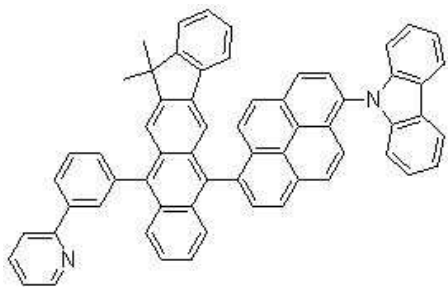
[0450] Mass: 706,

[0451] Elemental Analysis: C, 88.48; H, 5.00; N, 1.98; S, 4.54

[0452] <실시예 2-16> 화학식 2-016으로 표시되는 화합물의 제조

[0453] 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 2-016으로 표시되는 화합물 11.9 g (수율: 55.7 %)을 얻었다.

[0454] [화학식 2-016]



[0455]

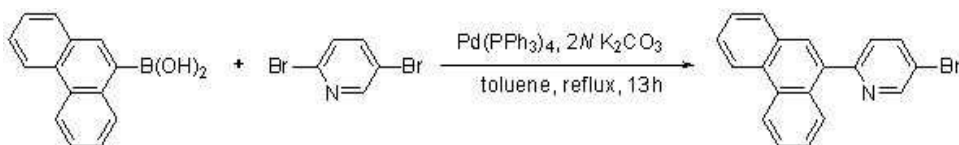
[0456] Mass: 813,

[0457] Elemental Analysis: C, 91.60; H, 4.96; N, 3.45

[0458] <실시예 3-1> 화학식 3-001로 표시되는 화합물의 제조

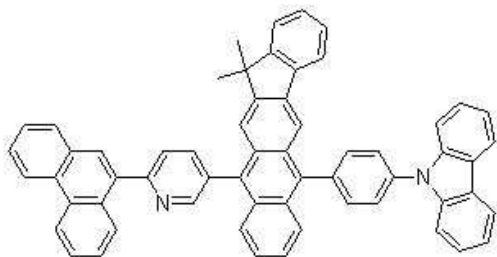
[0459] 상기 합성에 1-7에서 사용된 2-bromopyridine 13 mL 대신에 2,5-dibromopyridine 31.8 g을 사용하고, 4-chlorophenylboronic acid 25.2 g 대신에 phenanthren-9-ylboronic acid 35.8 g을 사용하여 화합물을 얻었고 (하기 반응식 1-14 참조), 이때 얻은 화합물을 상기 합성에 1-8에서 사용된 화학식 1-13으로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 3-001로 표시되는 화합물 15.6 g (수율: 75.3 %)을 얻었다.

[0460] [반응식 1-14]



[0461]

[0462] [화학식 3-001]



[0463]

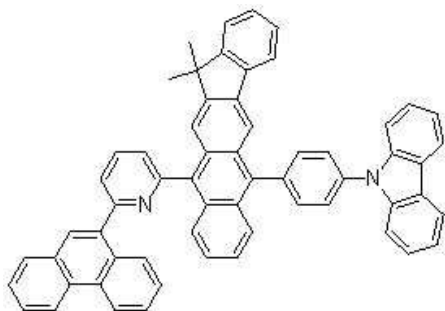
[0464] Mass: 789,

[0465] Elemental Analysis: C, 91.34; H, 5.11; N, 3.55

[0466] <실시예 3-2> 화학식 3-002로 표시되는 화합물의 제조

[0467] 상기 합성에 1-7에서 사용된 2-bromopyridine 13 mL 대신에 2,6-dibromopyridine 31.8 g을 사용하고, 4-chlorophenylboronic acid 25.2 g 대신에 phenanthren-9-ylboronic acid 35.8 g을 사용하여 얻은 화합물을 상기 합성에 1-8에서 사용된 화학식 1-13으로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 3-002로 표시되는 화합물 12.3 g (수율: 59.3 %)을 얻었다.

[0468] [화학식 3-002]



[0469]

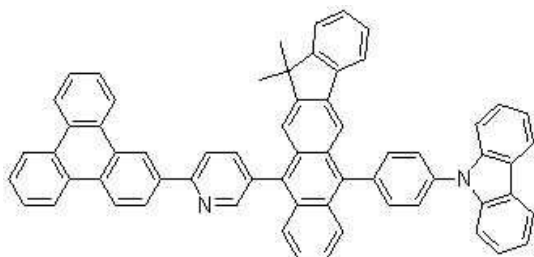
[0470] Mass: 789,

[0471] Elemental Analysis: C, 91.34; H, 5.11; N, 3.55

[0472] <실시예 3-3> 화학식 3-003으로 표시되는 화합물의 제조

[0473] 상기 합성에 1-7에서 사용된 2-bromopyridine 13 mL 대신에 2,5-dibromopyridine 31.8 g을 사용하고, 4-chlorophenylboronic acid 25.2 g 대신에 triphenylen-2-ylboronic acid 43.9 g을 사용하여 얻은 화합물을 상기 합성에 1-8에서 사용된 화학식 1-13으로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 3-003으로 표시되는 화합물 10.9 g (수율: 49.6 %)을 얻었다.

[0474] [화학식 3-003]



[0475]

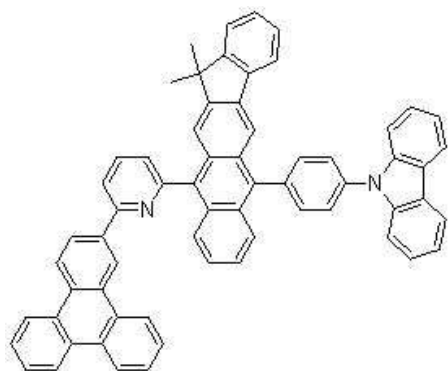
[0476] Mass: 838,

[0477] Elemental Analysis: C, 91.62; H, 5.05; N, 3.34

[0478] <실시예 3-4> 화학식 3-004로 표시되는 화합물의 제조

[0479] 상기 합성에 1-7에서 사용된 2-bromopyridine 13 mL 대신에 2,6-dibromopyridine 31.8 g을 사용하고, 4-chlorophenylboronic acid 25.2 g 대신에 triphenylen-2-ylboronic acid 43.9 g 을 사용하여 얻은 화합물을 상기 합성에 1-8에서 사용된 화학식 1-13으로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 3-004로 표시되는 화합물 11.9 g (수율: 54.2 %)을 얻었다.

[0480] [화학식 3-004]



[0481]

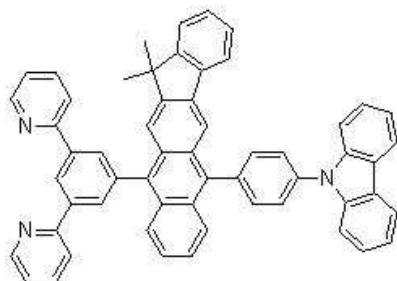
[0482] Mass: 838,

[0483] Elemental Analysis: C, 91.62; H, 5.05; N, 3.34

[0484] <실시예 3-5> 화학식 3-001로 표시되는 화합물의 제조

[0485] 상기 합성에 1-7에서 사용된 2-bromopyridine 13 mL 대신에 1,3,5-tribromobenzene 42.3 g을 사용하고, 4-chlorophenylboronic acid 25.2 g 대신에 2-(tributylstannyl)pyridine 87 mL를 사용하며, 여기에 tetrakis(triphenylphosphine)palladium(0) [Pd(PPh₃)₄]을 4.7 g 대신에 9.4 g 사용하되, 2 N의 탄산칼륨 300 mL를 첨가하지 않고 얻은 화합물을 상기 합성에 1-8에서 사용된 화학식 1-13으로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 3-005로 표시되는 화합물 12.7 g (수율: 63.1 %)을 얻었다.

[0486] [화학식 3-005]



[0487]

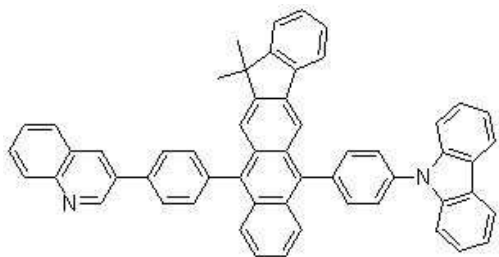
[0488] Exact Mass: 766,

[0489] Elemental Analysis: C, 89.38; H, 5.13; N, 5.49

[0490] <실시예 3-6> 화학식 3-006으로 표시되는 화합물의 제조

[0491] 상기 합성에 1-7에서 사용된 2-bromopyridine 13 mL 대신에 1-bromo-4-iodobenzene 38 g을 사용하고, 4-chlorophenylboronic acid 25.2 g 대신에 3-quinolineboronic acid 23.2g을 사용하여 얻은 화합물을 상기 합성에 1-8에서 사용된 화학식 1-13으로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 3-006으로 표시되는 화합물 13.3 g (수율: 68.2 %)을 얻었다.

[0492] [화학식 3-006]



[0493]

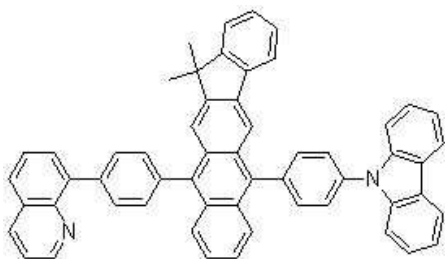
[0494] Mass: 739,

[0495] Elemental Analysis: C, 91.03; H, 5.18; N, 3.79

[0496] <실시예 3-7> 화학식 3-007로 표시되는 화합물의 제조

[0497] 상기 합성에 1-7에서 사용된 2-bromopyridine 13 mL 대신에 1-bromo-4-iodobenzene 38 g을 사용하고, 4-chlorophenylboronic acid 25.2 g 대신에 8-quinolineboronic acid 23.2 g을 사용하여 얻은 화합물을 상기 합성에 1-8에서 사용된 화학식 1-13으로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 3-007로 표시되는 화합물 15.1 g (수율: 77.4 %)을 얻었다.

[0498] [화학식 3-007]



[0499]

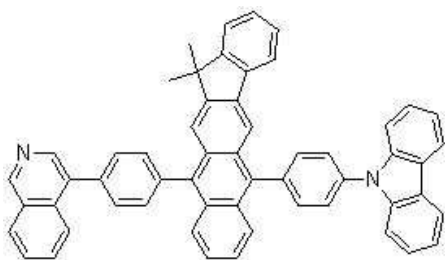
[0500] Mass: 739,

[0501] Elemental Analysis: C, 91.03; H, 5.18; N, 3.79

[0502] <실시예 3-8> 화학식 3-008로 표시되는 화합물의 제조

[0503] 상기 합성에 1-7에서 사용된 2-bromopyridine 13 mL 대신에 1-bromo-4-iodobenzene 38 g을 사용하고, 4-chlorophenylboronic acid 25.2 g 대신에 4-isoquinolineboronic acid 23.2 g을 사용하여 얻은 화합물을 상기 합성에 1-8에서 사용된 화학식 1-13으로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 3-008로 표시되는 화합물 13.5 g (수율: 69.2 %)을 얻었다.

[0504] [화학식 3-008]



[0505]

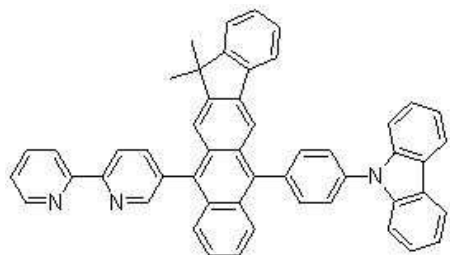
[0506] Mass: 739,

[0507] Elemental Analysis: C, 91.03; H, 5.18; N, 3.79

[0508] <실시예 3-9> 화학식 3-009로 표시되는 화합물의 제조

[0509] 상기 합성에 1-9에서 사용된 화합물 1-9 13.1 g 대신에 2,2'-bipyridin-5-ylboronic acid 9.3 g을 사용하여 얻은 화합물을 상기 합성에 1-10에서 사용된 화학식 1-10으로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 3-009로 표시되는 화합물 8.5 g (수율: 47.1 %)을 얻었다.

[0510] [화학식 3-009]



[0511]

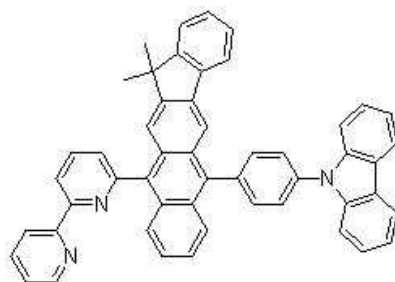
[0512] Mass: 690,

[0513] Elemental Analysis: C, 88.79; H, 5.11; N, 6.09

[0514] <실시예 3-10> 화학식 3-010으로 표시되는 화합물의 제조

[0515] 상기 합성에 1-9에서 사용된 화합물 1-9 13.1 g 대신에 2,2'-bipyridin-6-ylboronic acid 9.3 g을 사용하여 얻은 화합물을 상기 합성에 1-10에서 사용된 화학식 1-10으로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 3-010으로 표시되는 화합물 9.6 g (수율: 53.2 %)을 얻었다.

[0516] [화학식 3-010]



[0517]

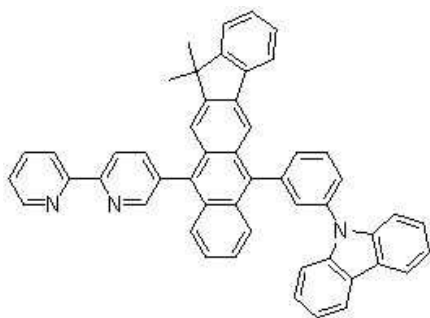
[0518] Mass: 690,

[0519] Elemental Analysis: C, 88.79; H, 5.11; N, 6.09

[0520] <실시예 3-11> 화학식 3-011로 표시되는 화합물의 제조

[0521] 상기 합성에 1-9에서 사용된 화합물 1-9 13.1 g 대신에 2,2'-bipyridin-5-ylboronic acid 9.3 g을 사용하여 얻은 화합물을 상기 합성에 1-10에서 사용된 화학식 1-10으로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것과, 상기 합성에 1-11에서 사용된 1-bromo-4-iodobenzene 81.2 g 대신에 1-bromo-3-iodobenzene 81.2 g을 사용하여 얻은 화합물을 상기 합성에 1-12에서 사용된 화학식 1-14로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 3-011로 표시되는 화합물 12.2 g (수율: 67.6 %)을 얻었다.

[0522] [화학식 3-011]



[0523]

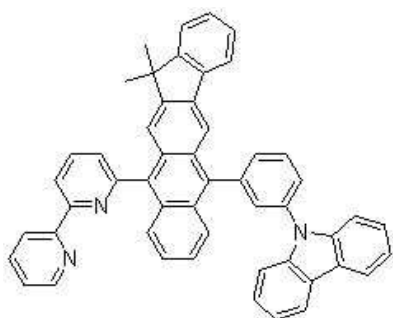
[0524] Mass: 690,

[0525] Elemental Analysis: C, 88.79; H, 5.11; N, 6.09

[0526] <실시예 3-12> 화학식 3-012로 표시되는 화합물의 제조

[0527] 상기 합성에 1-9에서 사용된 화합물 1-9 13.1 g 대신에 2,2'-bipyridin-6-ylboronic acid 9.3 g을 사용하여 얻은 화합물을 상기 합성에 1-10에서 사용된 화학식 1-10으로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것과, 상기 합성에 1-11에서 사용된 1-bromo-4-iodobenzene 81.2 g 대신에 1-bromo-3-iodobenzene 81.2 g을 사용하여 얻은 화합물을 상기 합성에 1-12에서 사용된 화학식 1-14로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 3-012로 표시되는 화합물 11.6 g (수율: 64.3 %)을 얻었다.

[0528] [화학식 3-012]



[0529]

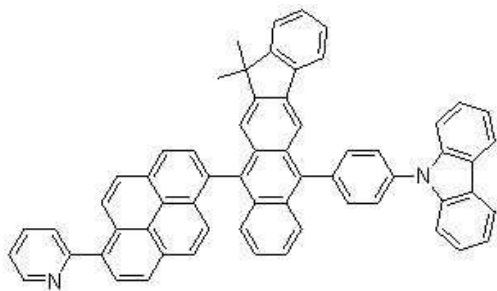
[0530] Mass: 690,

[0531] Elemental Analysis: C, 88.79; H, 5.11; N, 6.09

[0532] <실시예 3-13> 화학식 3-013으로 표시되는 화합물의 제조

[0533] 상기 합성에 1-7에서 사용된 4-chlorophenylboronic acid 25.2 g 대신에 pyrene-1,6-diylidiboronic acid 38.9 g을 사용하여 얻은 화합물을 상기 합성에 1-9에서 사용된 화학식 1-9로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 3-013으로 표시되는 화합물 10.8 g (수율: 50.5 %)을 얻었다.

[0534] [화학식 3-013]



[0535]

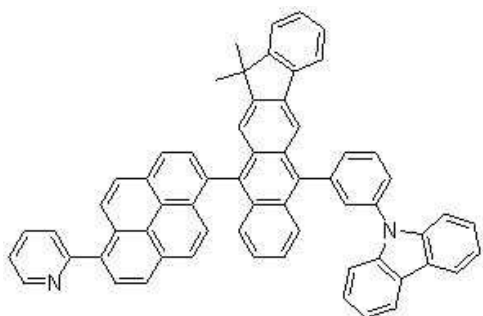
[0536] Mass: 813,

[0537] Elemental Analysis: C, 91.60; H, 4.96; N, 3.45

[0538] <실시예 3-14> 화학식 3-014으로 표시되는 화합물의 제조

[0539] 상기 합성에 1-7에서 사용된 4-chlorophenylboronic acid 25.2 g 대신에 pyrene-1,6-diylidiboronic acid 38.9 g을 사용하여 얻은 화합물을 상기 합성에 1-9에서 사용된 화학식 1-9로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것과, 상기 합성에 1-11에서 사용된 1-bromo-4-iodobenzene 81.2 g 대신에 1-bromo-3-iodobenzene 81.2 g을 사용하여 얻은 화합물을 상기 합성에 1-12에서 사용된 화학식 1-14로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 1-1과 동일한 방법으로 수행하여 연한 노란색의 고체인 하기 화학식 3-014으로 표시되는 화합물 9.1 g (수율: 42.6 %)을 얻었다.

[0540] [화학식 3-014]



[0541]

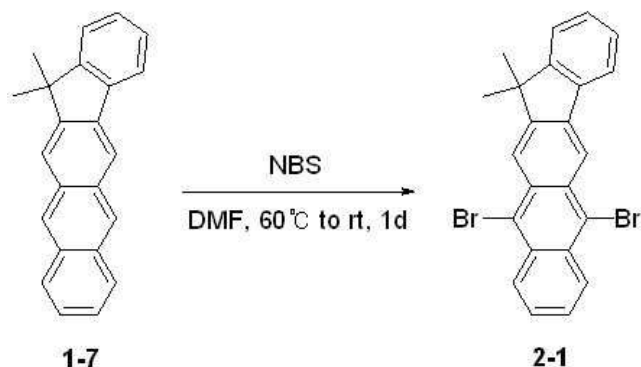
[0542] Mass: 813,

[0543] Elemental Analysis: C, 91.60; H, 4.96; N, 3.45

[0544] <실시예 4-1> 화학식 4-001로 표시되는 화합물의 제조

[0545] <합성예 4-1> 화학식 2-1로 표시되는 화합물의 제조

[0546] [반응식 2-1]

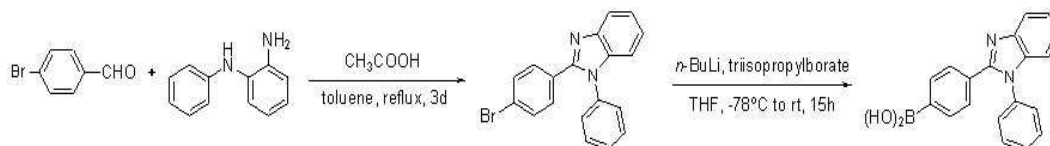


[0547]

[0548] 상기 합성에 1-5에서 얻은 화학식 1-7로 표시되는 화합물 30 g을 디메틸포름아미드(dimethylformamide, DMF) 500 mL에 첨가해 얻은 용액을 60 °C로 가온하여 완전히 용해시키고, 상온에서 N-bromosuccinimide(NBS) 41.7 g을 첨가하여 하루 동안 교반하였다. 이 반응물을 물 1 L에 넣어 고체를 얻은 후, 생성된 고체를 여과하였다. 여과시킨 고체를 물과 메탄올로 충분히 세척한 후 감압 건조하여 연노랑색의 고체인 화학식 2-1로 표시되는 화합물 38.1 g (수율: 82.7 %)을 얻었다.

[0549] <합성에 4-2> 화학식 2-2로 표시되는 화합물의 제조

[0550] [반응식 2-2]

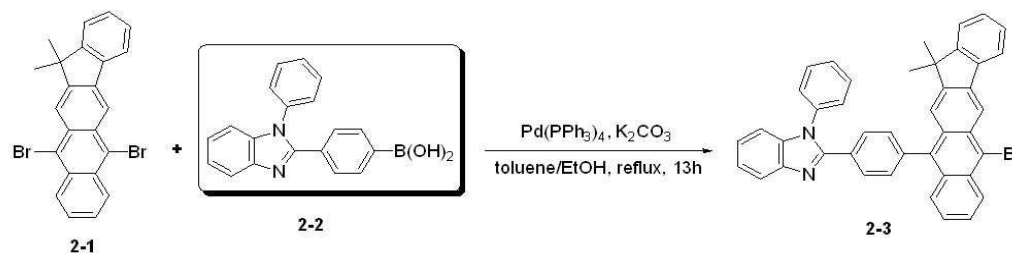


[0551]

[0552] 상기 반응식 2-2에 따라 4-bromobenzaldehyde 66g과 N-phenyl-1,2-phenylene-diamine 65.7을 반응시켜 4-(1-phenyl-1H-benzo[d]imidazol-2-yl)phenylboronic acid(이하, 화학식 2-2로 표시되는 화합물) 19.5 g을 얻었다.

[0553] <합성에 4-3> 화학식 2-3으로 표시되는 화합물의 제조

[0554] [반응식 2-3]

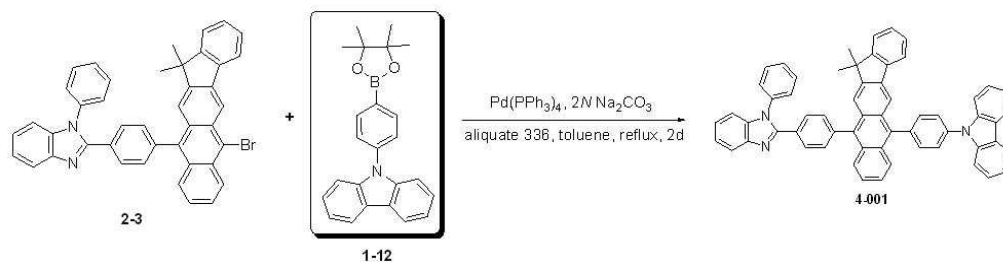


[0555]

[0556] 상기 합성에 2-1에서 얻은 화학식 2-1로 표시되는 화합물 28 g과 상기 화학식 2-2로 표시되는 화합물 19.5 g을, 톨루엔 600 mL 및 에틸 알코올(EtOH) 200 mL에 용해시킨 다음, 여기에 tetrakis(triphenylphosphine)palladium(0)[Pd(PPh₃)₄] 2.1 g, 6 N의 탄산나트륨(Na₂CO₃) 50 mL를 첨가하여 반응물을 얻었다. 이 반응물을 13 시간 동안 환류 교반한 후, 상온으로 냉각시켜 유기물 층과 물 층으로 분리하였다. 물 층과 분리된 유기물 층을, 물과 포화 염화나트륨 용액으로 세척한 후, 무수 황산나트륨으로 건조하여 농축하였다. 이후, 상기 농축물을 컬럼 크로마토그래피(n-헥산; n-헥산/초산에틸=8/1 ~ 2/1)를 통해 정제하고, 이후 탁한 노랑색의 고체인 디클로로메탄에 용해시킨 다음, 메탄올에서 고체화하여 연한 노랑색의 고체인 화학식 2-3으로 표시되는 화합물 24.6 g(수율: 61.8 %)을 얻었다.

[0557] <합성에 4-4 > 화학식 4-001로 표시되는 화합물의 제조

[0558] [반응식 2-4]



[0559]

[0560] 상기 합성에 4-3에서 얻은 화학식 2-3으로 표시되는 화합물 24.5 g과 상기 합성에 1-12에서 얻은 화학식 1-12로 표시되는 16.9 g을 톨루엔 300 mL에 용해시킨 다음, 여기에 tetrakis(triphenylphosphine)palladium(0) [Pd(PPh₃)₄] 2 g, 2 N의 탄산나트륨 100 mL, 및 aliquat 336 1.7 mL를 첨가한 후 2일 동안 환류 교반하였다. 상온으로 냉각시킨 반응물을 유기물 층과 물 층으로 분리한 후, 상기 유기물층을 물과 포화 염화나트륨 용액으로 세척한 다음 무수 황산나트륨으로 건조하여 농축하였다. 농축물을 컬럼 크로마토그래피(n-헥산; n-헥산/디클로로메탄=9/1; n-헥산/초산에틸=6/1)를 통해 정제한 후 n-헥산에서 침전시키고 여과하여 연한 노란색의 고체인 상기 화학식 4-001으로 표시되는 화합물 22.1 g(수율: 72.0 %)을 얻었다.

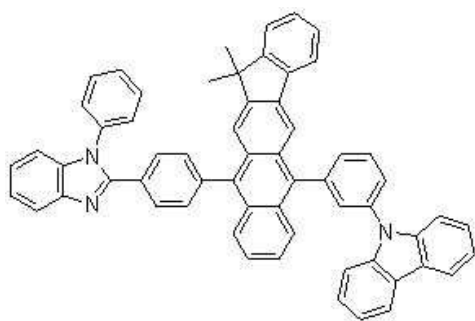
[0561] Mass: 804,

[0562] Elemental Analysis: C, 89.63; H, 5.14; N, 5.23

[0563] <실시예 4-2> 화학식 4-002로 표시되는 화합물의 제조

[0564] 상기 합성에 1-11에서 사용된 1-bromo-4-iodobenzene 81.2 g 대신에 1-bromo-3-iodobenzene 81.2 g을 사용하는 것을 제외하고는, 상기 합성에 1-11에서와 동일한 방법으로 수행하여 화합물 A를 얻었다. 이후, 상기 화합물 A를 상기 합성에 1-12에서 사용된 화학식 1-14로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 합성에 1-12과 동일한 방법으로 수행하여 화합물 B를 얻은 다음, 상기 화합물 B를 상기 합성에 4-4에서 사용된 화학식 1-12로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 상기 합성에 4-4와 동일하게 수행하여 하기 화학식 4-002로 표시되는 화합물 19.6 g(수율: 63.8 %)을 얻었다.

[0565] [화학식 4-002]



[0566]

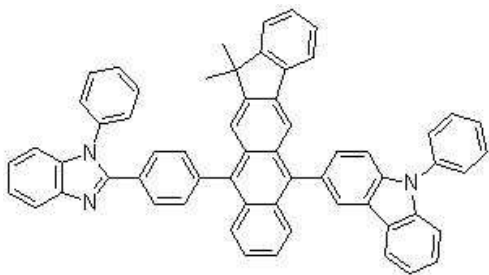
[0567] Mass: 804,

[0568] Elemental Analysis: C, 89.63; H, 5.14; N, 5.23

[0569] <실시예 4-3> 화학식 4-003으로 표시되는 화합물의 제조

[0570] 상기 합성에 1-12에서 사용된 화학식 1-14로 표시되는 화합물 대신에 3-bromo-9-phenyl-9H-carbazole 33.4 g을 사용하는 것을 제외하고는, 상기 합성에 1-12와 동일한 방법으로 수행하여 얻은 화합물을 상기 합성에 4-4에서 사용된 화학식 1-12로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 상기 합성에 4-4와 동일하게 수행하여 하기 화학식 4-003으로 표시되는 화합물 23.9 g(수율: 77.9 %)을 얻었다.

[0571] [화학식 4-003]



[0572]

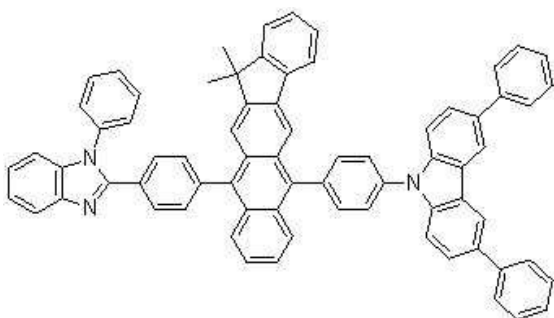
[0573] Mass: 804,

[0574] Elemental Analysis: C, 89.63; H, 5.14; N, 5.23

[0575] **<실시예 4-4> 화학식 4-004로 표시되는 화합물의 제조**

[0576] 상기 합성에 1-12에서 사용된 화학식 1-14로 표시되는 화합물 대신에 9-(4-bromophenyl)-3,6-diphenyl-9H-carbazole 49.2 g을 사용하는 것을 제외하고는, 합성에 1-12과 동일한 방법으로 수행하여 얻은 화합물을 상기 합성에 4-4에서 사용된 화학식 1-12로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 상기 합성에 4-4와 동일하게 수행하여 하기 화학식 4-004로 표시되는 화합물 18.9 g(수율: 51.8 %)을 얻었다.

[0577] [화학식 4-004]



[0578]

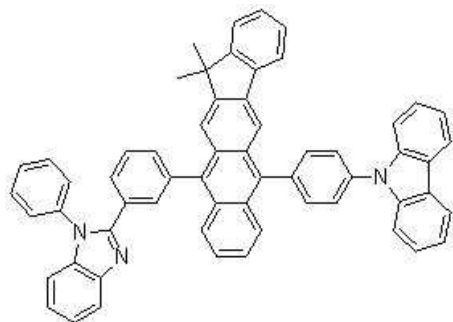
[0579] Mass: 956,

[0580] Elemental Analysis: C, 90.44; H, 5.17; N, 4.39

[0581] **<실시예 4-5> 화학식 4-005로 표시되는 화합물의 제조**

[0582] 상기 합성에 4-3에서 사용된 화학식 2-2로 표시되는 화합물 19.5 g 대신에 3-(1-phenyl-1H-benzo[d]imidazol-2-yl)phenylboronic acid 19.5 g을 사용하는 것을 제외하고는, 상기 합성에 4-3과 동일하게 수행하여 얻은 화합물을 상기 합성에 4-4에서 사용된 화학식 2-3으로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는 상기 합성에 4-4와 동일하게 수행하여 하기 화학식 4-005로 표시되는 화합물 20.6 g(수율: 67.1 %)을 얻었다.

[0583] [화학식 4-005]



[0584]

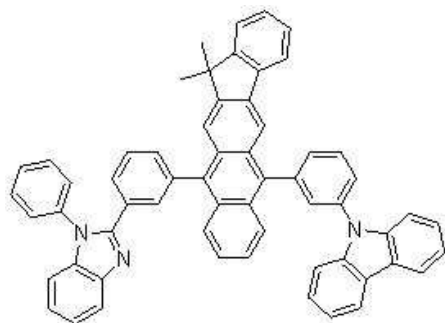
[0585] Mass: 804,

[0586] Elemental Analysis: C, 89.63; H, 5.14; N, 5.23

[0587] **<실시예 4-6> 화학식 4-006으로 표시되는 화합물의 제조**

[0588] 상기 합성예 4-3에서 사용된 화학식 2-2로 표시되는 화합물 19.5 g 대신에 3-(1-phenyl-1H-benzo[d]imidazol-2-yl)phenylboronic acid 19.5 g을 사용하는 것을 제외하고는, 상기 합성예 4-3과 동일하게 수행하여 얻은 화합물을 상기 합성예 4-4에서 사용된 화학식 2-3으로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것과, 상기 합성예 1-11에서 사용된 1-bromo-4-iodobenzene 81.2 g 대신에 1-bromo-3-iodobenzene 81.2 g을 사용하는 것을 제외하고는 상기 합성예 1-11에서와 동일한 방법으로 수행하여 얻은 화합물을 화학식 1-12로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 상기 합성예 4-4와 동일하게 수행하여 하기 화학식 4-006으로 표시되는 화합물 23.5 g (수율: 76.5 %)을 얻었다.

[0589] [화학식 4-006]



[0590]

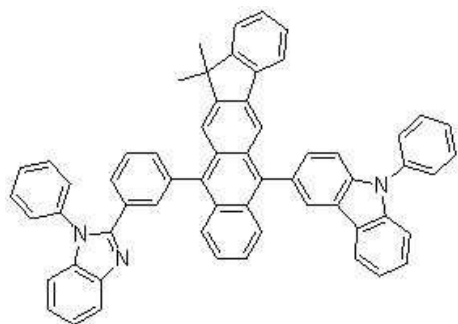
[0591] Mass: 804,

[0592] Elemental Analysis: C, 89.63; H, 5.14; N, 5.23

[0593] **<실시예 4-7> 화학식 4-007로 표시되는 화합물의 제조**

[0594] 상기 합성예 4-3에서 사용된 화학식 2-2로 표시되는 화합물 대신에 3-(1-phenyl-1H-benzo[d]imidazol-2-yl)phenylboronic acid 19.5 g을 사용하는 것을 제외하고는, 상기 합성예 4-3과 동일하게 수행하여 얻은 화합물을 상기 합성예 4-4에서 사용된 화학식 2-3으로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것과, 상기 합성예 1-12에서 사용된 화학식 1-14로 표시되는 화합물 대신에 3-bromo-9-phenyl-9H-carbazole 33.4 g을 사용하는 것을 제외하고는, 상기 합성예 1-12와 동일한 방법으로 수행하여 얻은 화합물을 상기 합성예 4-4에서 사용된 화학식 1-12로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는 상기 합성예 4-4과 동일하게 수행하여 하기 화학식 4-007로 표시되는 화합물 24.8 g(수율: 80.6 %)을 얻었다.

[0595] [화학식 4-007]



[0596]

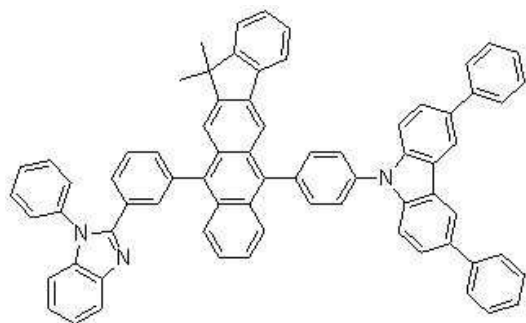
[0597] Mass: 804,

[0598] Elemental Analysis: C, 89.63; H, 5.14; N, 5.23

[0599] **<실시예 4-8> 화학식 4-008로 표시되는 화합물의 제조**

[0600] 상기 합성에 4-3에서 사용된 화학식 2-2로 표시되는 화합물 대신에 3-(1-phenyl-1H-benzo[d]imidazol-2-yl)phenylboronic acid 19.5 g을 사용하는 것을 제외하고는, 상기 합성에 4-3과 동일하게 수행하여 얻은 화합물을 상기 합성에 4-4에서 사용된 화학식 2-3으로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것과, 상기 합성에 1-12에서 사용된 화학식 1-14로 표시되는 화합물 대신에 9-(4-bromophenyl)-3,6-diphenyl-9H-carbazole 49.2 g을 사용하는 것을 제외하고는, 상기 합성에 1-12와 동일한 방법으로 수행하여 얻은 화합물을 상기 합성에 4-4에서 사용된 화학식 1-12로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것을 제외하고는, 상기 합성에 4-4와 동일하게 수행하여 하기 화학식 4-008로 표시되는 화합물 17.7 g(수율: 48.5 %)을 얻었다.

[0601] [화학식 4-008]



[0602]

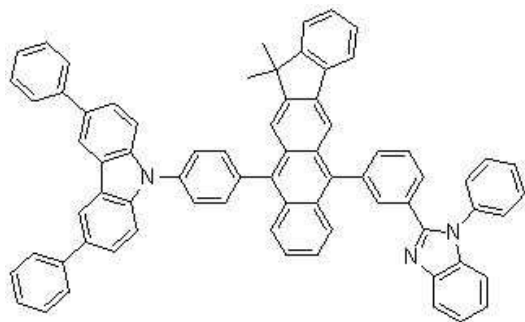
[0603] Mass: 956,

[0604] Elemental Analysis: C, 90.44; H, 5.17; N, 4.39

[0605] **<실시예 4-9> 화학식 4-009로 표시되는 화합물의 제조**

[0606] 상기 합성에 4-3에서 사용된 화학식 2-2로 표시되는 화합물 대신에 4-(3,6-diphenyl-9H-carbazol-9-yl)phenylboronic acid 27.2 g을 사용하는 것을 제외하고는, 상기 합성에 4-3과 동일하게 수행하여 얻은 화합물을 상기 합성에 4-4에서 사용된 화학식 2-3으로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것과, 상기 합성에 4-4에서 사용된 화학식 1-12로 표시되는 화합물 대신에 3-(1-phenyl-1H-benzo[d]imidazol-2-yl)phenylboronic acid를 사용하는 것을 제외하고는, 상기 합성에 4-4와 동일하게 수행하여 하기 화학식 4-009로 표시되는 화합물 14.8 g(수율: 40.5 %)을 얻었다.

[0607] [화학식 4-009]



[0608]

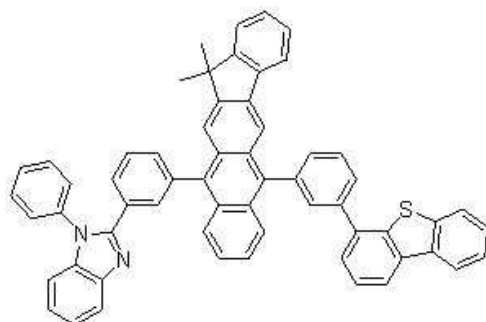
[0609] Mass: 956,

[0610] Elemental Analysis: C, 90.44; H, 5.17; N, 4.39

[0611] **<실시예 4-10> 화학식 4-010으로 표시되는 화합물의 제조**

[0612] 상기 합성에 4-3에서 사용된 화학식 2-2로 표시되는 화합물 대신에 3-(1-phenyl-1H-benzo[d]imidazol-2-yl)phenylboronic acid 19.5 g을 사용하는 것을 제외하고는, 상기 합성에 4-3과 동일하게 수행하여 얻은 화합물을 상기 합성에 4-4에서 사용된 화학식 2-3으로 표시되는 화합물 대신에 사용하는 것과, 상기 합성에 4-4에서 사용된 화학식 1-12로 표시되는 화합물 대신에 3-(dibenzo[b,d]thiophen-4-yl)phenylboronic acid를 사용하는 것을 제외하고는, 상기 합성에 4-4와 동일하게 수행하여 하기 화학식 4-010으로 표시되는 화합물 18.3 g(수율: 36.0 %)을 얻었다.

[0613] [화학식 4-010]



[0614]

[0615] Mass: 821,

[0616] Elemental Analysis: C, 87.77; H, 4.91; N, 3.41; S, 3.91

[0617] **<실시예 5-1> 유기 발광 소자 제조**

[0618] 다음과 같은 방법으로 유기 발광 소자를 제조하였다.

[0619] ITO (Indium tin oxide)가 1500Å 두께로 박막 코팅된 유리 기판을 증류수 초음파로 세척하였다. 증류수 세척이 끝나면 이소프로필 알코올, 아세톤, 메탄올 등의 용제로 초음파 세척을 하고 건조시킨 후 플라즈마 세정기로 이송시킨 다음 산소 플라즈마를 이용하여 상기 기판을 5분간 세정한 후 진공 증착기로 기판을 이송하였다.

[0620] 이렇게 준비된 ITO 투명 전극(양극) 위에 제품명 DS-205 (두산社)를 800 ㎞의 두께로 진공 증착하여 정공 주입층을 형성하였다. 이후, 상기 정공 주입층 위에 정공 이송 물질인 NPB (*N*, *N*-di(naphthalene-1-yl)-*N*, *N*-diphenylbenzidine)를 150 ㎞의 두께로 진공 증착하여 정공 수송층을 형성하였다.

[0621] 그 위에 호스트 물질로서 ADN (9,10-di(naphthalen-2-yl)anthracene)을 사용하고, 도판트 물질로서 DS-405 (두산社)를 5 % 도핑하여 300 ㎞ 두께로 증착하여 발광층을 형성하였다. 상기 발광층 위에 전자 수송 물질인 실시예 1-1에서 합성된 화학식 1-001로 표시되는 화합물을 250 ㎞의 두께로 증착하여 전자 수송층을 형성하였다.

이후, 상기 전자 수송층 위에 전자 주입 물질인 LiF를 10 ㎚ 두께로 증착하여 전자 주입층을 형성한 다음, 이 위에 알루미늄(Al)을 2,000 ㎚ 두께로 증착하여 음극을 형성하였다.

[0622] <실시예 5-2> ~ <실시예 5-15>

[0624] 전자 수송층의 형성시 전자 수송 물질로서 화학식 1-001로 표시되는 화합물 (실시예 1-1) 대신에, 화학식 1-002로 표시되는 화합물(실시예 1-2), 화학식 1-003으로 표시되는 화합물(실시예 1-3), 화학식 1-008로 표시되는 화합물(실시예 1-8), 화학식 1-010로 표시되는 화합물(실시예 1-10), 화학식 2-001로 표시되는 화합물(실시예 2-1), 화학식 2-002로 표시되는 화합물(실시예 2-1), 화학식 2-013으로 표시되는 화합물(실시예 2-13), 화학식 2-016으로 표시되는 화합물(실시예 2-16), 화학식 3-001로 표시되는 화합물(실시예 3-1), 화학식 3-004로 표시되는 화합물(실시예 3-4), 화학식 4-002로 표시되는 화합물(실시예 4-2), 화학식 4-007로 표시되는 화합물(실시예 4-7), 화학식 4-009로 표시되는 화합물(실시예 4-9) 및 화학식 4-010으로 표시되는 화합물(실시예 4-10)을 각각 사용한 것을 제외하고는, 실시예 5-1과 동일한 방법으로 수행하여 유기 발광 소자를 제조하였다.

[0625] <비교예 1> 유기 발광 소자의 제조

[0626] 전자 수송층의 형성시 전자 수송 물질로서 화학식 1-001로 표시되는 화합물 (실시예 1-1) 대신에 Alq3 (aluminum tris(8-hydroxyquinoline))을 사용한 것을 제외하고는, 실시예 5-1과 동일한 방법으로 유기 발광 소자를 제조하였다.

[0627] <실험예>

[0628] 실시예 5-1 내지 실시예 5-15, 및 비교예 1에서 각각 제작된 유기 발광 소자에 대하여 전류밀도 10mA/cm²에서의 발광 효율을 측정하였고, 그 결과를 하기 표 1에 나타내었다.

표 1

구분	전자 수송 물질	구동 전압 (V)	발광 효율 (cd/A)
실시예 5-1	화학식 1-001	4.9	8.3
실시예 5-2	화학식 1-002	4.6	6.4
실시예 5-3	화학식 1-003	5.5	6.8
실시예 5-4	화학식 1-008	5.2	7.1
실시예 5-5	화학식 1-010	5.2	7.5
실시예 5-6	화학식 2-001	4.8	6.8
실시예 5-7	화학식 2-002	5.1	6.7
실시예 5-8	화학식 2-013	5.6	6.5
실시예 5-9	화학식 2-016	4.9	6.6
실시예 5-10	화학식 3-001	5.4	6.6
실시예 5-11	화학식 3-004	5.3	7.1
실시예 5-12	화학식 4-002	4.8	6.6
실시예 5-13	화학식 4-007	4.6	7.8
실시예 5-14	화학식 4-009	5.1	5.8
실시예 5-15	화학식 4-010	5.2	7.9
비교예 1	Alq3	5.7	6

[0630] 상기 표 1에서 알 수 있는 바와 같이, 전자 수송 물질로서 본 발명에 따른 화합물을 사용한 유기 발광 소자(실시예 5-1 내지 실시예 5-15)가 종래 Alq3을 사용한 유기 발광 소자(비교예 1)보다 구동 전압 및 발광 효율 면에서 월등히 우수하며, 특히 고효율 청색 소자 구동이 가능한 것을 확인할 수 있었다.

[0631] <실시예 6-1> 유기 발광 소자 제조

[0632] 다음과 같은 방법으로 유기 발광 소자를 제조하였다.

[0633] ITO (Indium tin oxide)가 1500Å 두께로 박막 코팅된 유리 기판을 증류수 초음파로 세척하였다. 증류수 세척

이 끝나면 이소프로필 알코올, 아세톤, 메탄올 등의 용제로 초음파 세척을 하고 건조시킨 후 플라즈마 세정기로 이송시킨 다음 산소 플라즈마를 이용하여 상기 기판을 5분간 세정한 후 진공 증착기로 기판을 이송하였다.

[0634] 이렇게 준비된 ITO 투명 전극(양극) 위에 제품명 DS-205 (두산社)를 800 ㎚의 두께로 진공 증착하여 정공 주입층을 형성하고, 그 위에 정공 이송 물질인 NPB (*N, N*-di(naphthalene-1-yl)-*N, N*-diphenylbenzidine)를 150 ㎚의 두께로 증착하여 정공 수송층을 형성하였다.

[0635] 그 위에 인광 호스트 물질로서 실시예 1-1에서 합성된 화학식 1-001로 표시되는 화합물을 사용하고, 도판트 물질로서 Ir(ppy)₃를 10 % 도핑하여 300 ㎚ 두께로 증착하여 발광층을 형성하였다. 상기 발광층 위에 정공 저지 물질로서 BCP (2,9-dimethyl-4,7-diphenyl-1,10-phenanthroline)를 100 ㎚의 두께로 증착하여 정공 저지층을 형성하고, 전자 수송 물질로서 Alq3 (aluminum tris(8-hydroxyquinoline))을 200 ㎚의 두께로 증착하여 전자 수송층을 형성하였다. 상기 전자 수송층 위에 전자 주입 물질인 LiF를 10 ㎚의 두께로 증착하여 전자 주입층을 형성한 다음, 이 위에 Al을 2,000 ㎚의 두께로 증착하여 음극을 형성하였다.

[0636] <실시예 6-2> 유기 발광 소자 제조

[0637] 발광층의 형성시 인광 호스트 물질로서 화학식 1-001로 표시되는 화합물(실시예 1-1) 대신에 화학식 1-002로 표시되는 화합물(실시예 1-2)을 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 6-1과 동일한 방법으로 유기 발광 소자를 제조하였다.

[0638] <비교예 2> 유기 발광 소자의 제조

[0639] 발광층의 형성시 인광 호스트 물질로서 화학식 1-001로 표시되는 화합물(실시예 1-1) 대신에 CBP (4,4'-di(9H-carbazol-9-yl)biphenyl)를 사용하는 것을 제외하고는, 실시예 6-1과 동일한 방법으로 유기 발광 소자를 제조하였다.

[0640] <실험예 2>

[0641] 실시예 6-1 및 실시예 6-2와, 비교예 1에서 각각 제작된 유기 발광 소자에 대하여 전류밀도 10mA/cm²에서의 발광 효율을 측정하였고, 그 결과를 하기 표 2에 나타내었다.

표 2

구분	인광 호스트 물질	구동 전압 (V)	발광 효율 (cd/A)
실시예 6-1	화학식 1-001	6.2	42.1
실시예 6-2	화학식 1-002	5.9	39.7
비교예 2	CBP	6.9	35.2

[0643] 상기 표 2에서 알 수 있는 바와 같이, 호스트 물질로서 본 발명에 따른 화합물을 사용한 유기 발광 소자(실시예 6-1 및 실시예 6-2)는 종래 CBP를 사용한 유기 발광 소자(비교예 2)보다 구동 전압 및 발광 효율 면에서 월등히 우수하다는 것을 확인할 수 있었다.

[0644] 이상을 통해 본 발명의 바람직한 실시예에 대하여 설명하였지만, 본 발명은 이에 한정되는 것이 아니고 특허청 구범위와 발명의 상세한 설명의 범위 안에서 여러 가지로 변형하여 실시하는 것이 가능하고 이 또한 본 발명의 범위에 속하는 것은 당연하다.

专利名称(译)	新型杂化有机化合物和包含其的有机电致发光器件		
公开(公告)号	KR101319734B1	公开(公告)日	2013-10-17
申请号	KR1020100047211	申请日	2010-05-20
[标]申请(专利权)人(译)	株式会社斗山		
申请(专利权)人(译)	斗山公司		
当前申请(专利权)人(译)	斗山公司		
[标]发明人	LEE EUN JUNG 이은정 KIM KYOUNG SOO 김경수		
发明人	이은정 김경수		
IPC分类号	C09K11/06 H01L51/50		
CPC分类号	H01L51/0067 C09K11/06 C09K2211/1011 C09K2211/1029 C09K2211/1044 C09K2211/1088 C09K2211/1092 H01L51/0054 H01L51/0055 H01L51/0058 H01L51/0072 H01L51/0073 H01L51/0074 H01L51/5012 H01L51/5048 H05B33/14		
其他公开文献	KR1020110127784A		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

根据本发明，化学式1表示的杂化化合物是蒽衍生物，其中具有电子传输能力的取代基（电子传输基团）和具有空穴传输能力的取代基（空穴传输基团）同时进行。替代核的一部分碳，其中具有优异元素特征的蒽部分和具有优异荧光特性的芴部分等彼此键合，其中电子传输基团和空穴传输基团各自为含有选自N，O和S的元素的独立C2-C40杂芳基。使用上述蒽衍生物作为电子传输材料和/或主体材料的有机电致发光器件改善了发光性能效率，亮度，热稳定性，驱动电压特性和寿命特性ereof。