



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2019년04월11일
(11) 등록번호 10-1938433
(24) 등록일자 2019년01월08일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C09K 11/06 (2006.01) C07C 211/54 (2006.01)
C08K 5/17 (2006.01)
(21) 출원번호 10-2014-0016338
(22) 출원일자 2014년02월13일
심사청구일자 2016년11월07일
(65) 공개번호 10-2014-0103848
(43) 공개일자 2014년08월27일
(30) 우선권주장
JP-P-2013-029045 2013년02월18일 일본(JP)
(56) 선행기술조사문헌
JP2005346011 A*
JP2007192905 A*
*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자
신에쓰 가가꾸 고교 가부시끼가이샤
일본 도쿄도 지요다꾸 오테마치 2조메 6방 1고
(72) 발명자
이토, 유스케
일본 니가따켄 죠에쓰시 구비끼꾸 니시후꾸시마
28-1 신에쓰 가가꾸 고교 가부시끼가이샤 고세 기
쥬쓰 겡꾸쇼 내
기요모리, 아유무
일본 니가따켄 죠에쓰시 구비끼꾸 니시후꾸시마
28-1 신에쓰 가가꾸 고교 가부시끼가이샤 고세 기
쥬쓰 겡꾸쇼 내
(74) 대리인
장수길, 박보현

전체 청구항 수 : 총 9 항

심사관 : 송이화

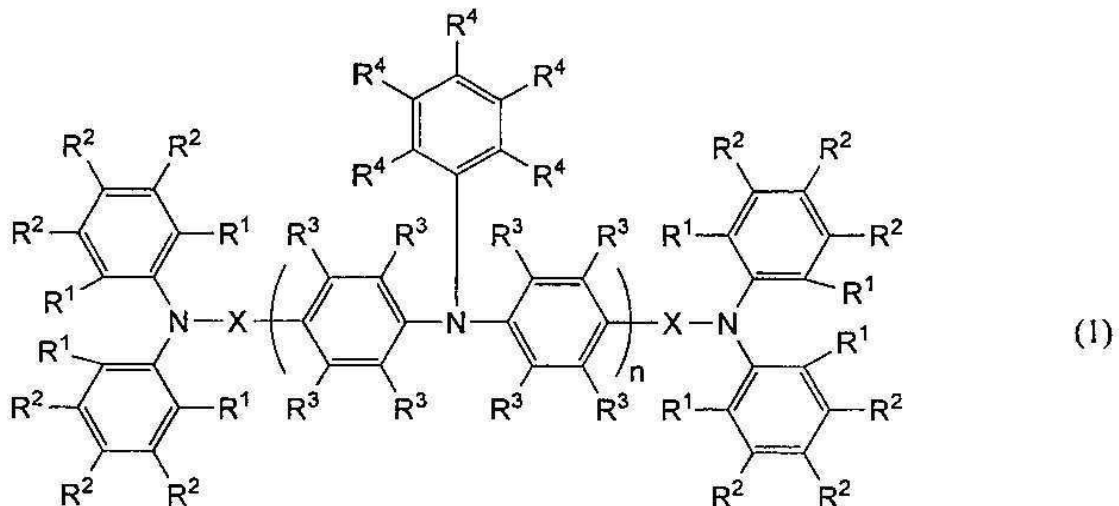
(54) 발명의 명칭 형광성 화합물, 그의 제조 방법, 및 형광성 수지 조성물

(57) 요약

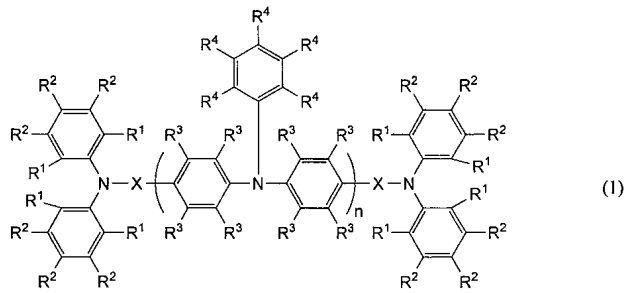
본 발명은 수지와와의 상용성이 우수하고, 간편한 방법으로 수지 조성물을 만들 수 있는 형광성 화합물, 그의 제조 방법, 및 형광성 화합물을 함유하는 형광성 수지 조성물을 제공하는 것을 목적으로 한다.

본 발명은 하기 화학식 (1)로 표시되는 형광성 화합물, 그의 제조 방법, 및 형광성 화합물을 함유하는 형광성 수 (뒷면에 계속)

대표도 - 도1



지 조성물을 제공한다.



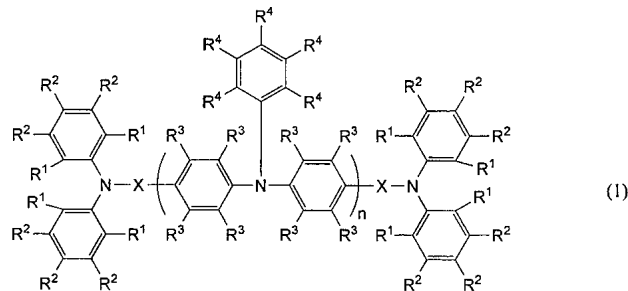
(식 (1) 중, R^1 내지 R^4 는 각각 독립적으로 탄소수 1 내지 20의 직쇄상, 분지상 또는 환상의 1가 탄화수소기, 탄소수 1 내지 20의 알콕시기, 탄소수 6 내지 20의 아릴옥시기, 할로겐 원자, 수소 원자, 아미노기, 시아노기, 아민 함유기, 실록산 함유기로부터 선택되는 치환기를 나타내고, 치환기로서 아민 함유기를 포함하지 않는 경우에는 R^1 내지 R^4 중 적어도 하나가 Sx-A-로 표시되는 실록산 함유기이고, 치환기로서 아민 함유기를 포함하는 경우에는 R^1 내지 R^4 또는 아민 함유기의 치환기 중 적어도 하나가 Sx-A-로 표시되는 실록산 함유기임)

명세서

청구범위

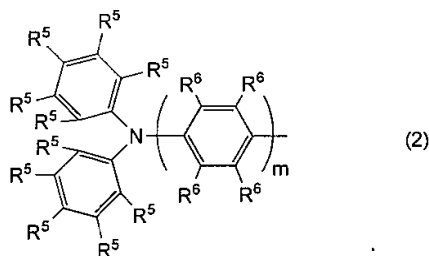
청구항 1

하기 화학식 (1)로 표시되는 형광성 화합물.



{화학식 (1) 중, R^1 내지 R^4 는 각각 독립적으로 탄소수 1 내지 20의 직쇄상, 분지상 또는 환상의 1가 탄화수소기, 탄소수 1 내지 20의 알콕시기, 탄소수 6 내지 20의 아릴옥시기, 할로젠 원자, 수소 원자, 아미노기, 시아노기, 하기 화학식 (2)로 표시되는 아민 함유기, 및 하기 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기로부터 선택되는 치환기를 나타내되, 단 R^1 이 존재하지 않고, X에 결합한 질소 원자에 대하여 오르토 위치의 탄소가 결합하여 카르바졸환 구조를 형성할 수도 있고;

치환기로서 하기 화학식 (2)로 표시되는 아민 함유기를 포함하지 않는 경우에는 R^1 내지 R^4 중 적어도 하나가 하기 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기이고, 치환기로서 하기 화학식 (2)로 표시되는 아민 함유기를 포함하는 경우에는 R^1 내지 R^6 중 적어도 하나가 하기 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기임.



(화학식 (2) 중, R^5 , R^6 는 각각 독립적으로 탄소수 1 내지 20의 직쇄상, 분지상 또는 환상의 1가 탄화수소기, 탄소수 1 내지 20의 알콕시기, 탄소수 6 내지 20의 아릴옥시기, 할로젠 원자, 수소 원자, 아미노기, 하기 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기로부터 선택

되는 치환기를 나타내고, m은 0 또는 1 임),



(화학식 (3) 중, S_x 는 규소 원자수가 2 내지 10이며, 상기 규소 원자의 적어도 하나에 탄소수 1 내지 20의 1가 탄화수소기가 결합한 직쇄상 또는 분지상의 오르가노실록사닐기를 나타냄)

X는 동일하거나 상이할 수도 있으며, 단결합, 탄소수 1 내지 20의 직쇄상, 분지상 또는 환상의 2가 탄화수소기를 나타내고, 탄소 원자의 일부가 헤테로 원자로 치환되어 있을 수도 있고;

n은 0 내지 5의 정수임}

청구항 2

제1항에 있어서, 화학식 (1)에 있어서, n 이 1, 3, 또는 5이고, R^4 중 어느 하나 이상이 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기인 형광성 화합물.

청구항 3

제1항에 있어서, 화학식 (1)에 있어서, R^2 중 적어도 하나가 화학식 (2)로 표시되는 아민 함유기이며, R^5 중 어느 하나 이상이 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기인 형광성 화합물.

청구항 4

제1항에 있어서, 화학식 (1)에 있어서, n 이 0이고, R^2 중 어느 하나 이상이 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기인 형광성 화합물.

청구항 5

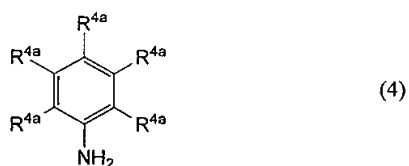
제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 기재된 형광성 화합물과 수지를 포함하여 이루어지는 형광성 수지 조성물.

청구항 6

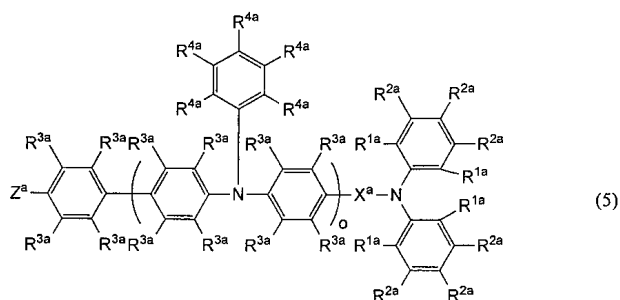
제5항에 있어서, 상기 수지가 실리콘 수지인 형광성 수지 조성물.

청구항 7

하기 화학식 (4)로 표시되는 아민 화합물과 하기 화학식 (5)로 표시되는 방향족 할로젠 화합물을 전이 금속 촉매 존재하에서 반응시키는 공정을 포함하는, 제2항에 기재된 형광성 화합물의 제조 방법.



(화학식 (4) 중, R^{4a} 는 각각 화학식 (1)에 있어서의 R^4 와 동일함)



(화학식 (5) 중, R^{1a} 내지 R^{4a} 는 각각 화학식 (1)에 있어서의 R^1 내지 R^4 와 동일하고;

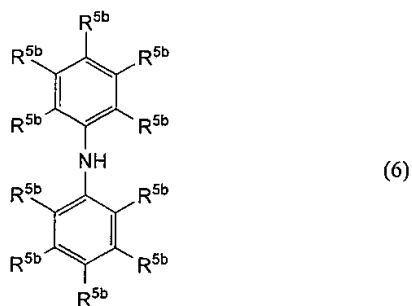
Z^a 는 할로젠 원자이고;

X^a 는 화학식 (1)에 있어서의 X 와 동일하고;

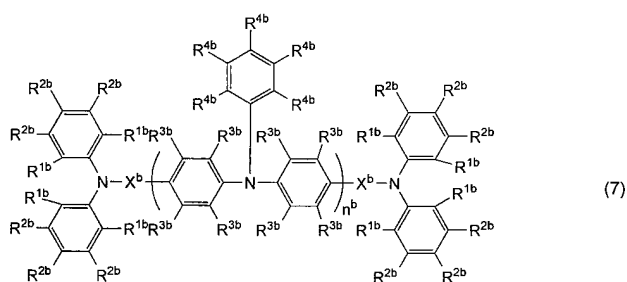
o 는 0 내지 2의 정수를 나타내고, 화학식 (1)에 있어서의 n 과 $o=(n-1)/2$ 를 만족시킴)

청구항 8

하기 화학식 (6)으로 표시되는 아민 화합물과 하기 화학식 (7)로 표시되는 방향족 할로젠 화합물을 전이 금속 촉매 존재하에서 반응시키는 공정을 포함하는, 제3항에 기재된 형광성 화합물의 제조 방법.



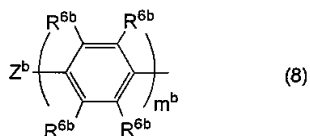
(화학식 (6) 중, R^{5b} 는 각각 화학식 (2)에 있어서의 R^5 와 동일함)



(화학식 (7) 중, R^{1b} 내지 R^{4b} 는 각각 화학식 (1)에 있어서의 R^1 내지 R^4 와 동일하고;

X^b 는 각각 화학식 (1)에 있어서의 X 와 동일하고;

n^b 는 화학식 (1)에 있어서의 n 과 동일하되, 단 R^{2b} 중 적어도 하나는 화학식 (8)로 표시되는 치환기를 나타냄)



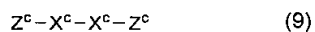
(화학식 (8) 중, R^{6b} 는 각각 화학식 (2)에 있어서의 R^6 과 동일하고;

m^b 는 화학식 (2)에 있어서의 m 과 동일하고;

Z^b 는 할로젠 원자임)

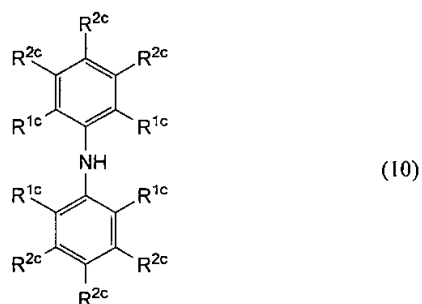
청구항 9

하기 화학식 (10)으로 표시되는 아민 화합물과 하기 화학식 (9)로 표시되는 방향족 할로젠 화합물을 전이 금속 촉매 존재하에서 반응시키는 공정을 포함하는, 제4항에 기재된 형광성 화합물의 제조 방법.



(화학식 (9) 중, X^c 는 각각 화학식 (1)에 있어서의 X 와 동일하고;

Z^c 는 할로겐 원자임)



(화학식 (10) 중, R^{1c} , R^{2c} 는 각각 화학식 (1)에 있어서의 R^1 , R^2 와 동일함)

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 신규한 형광성 화합물, 그의 제조 방법, 및 형광성 수지 조성물에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 형광성의 발색단을 갖는 유기 화합물(이하, 「형광성 화합물」이라 함)은 형광성의 무기 화합물에 비교하면 저가이기 때문에, 형광성 잉크나 형광 안료로서 종이, 섬유, 수지 등의 착색체에 사용되고 있다.

[0003] 착색제는 염료와 안료의 2종으로 크게 나눌 수 있다. 안료는 발색단을 갖는 분자의 응집체이고, 입경이 크다. 이에 비하여 염료는 용매나 수지 등의 매체에 용해시키는 것이 가능한 발색단 함유 분자이다. 일반적으로 안료로 착색한 재료는 염료로 착색한 재료에 비해 착색제의 입경이 크기 때문에, 투명성이나 명도, 채도에 있어서 떨어진다.

[0004] 형광 태그와 같이 분자 사이에서 화학 반응을 행하게 하는 경우를 제외하면, 일반적으로 형광성 화합물은 안료로서 사용되는 경우가 많다. 안료는 일반적으로 내광성이 높기 때문에, 내광성을 향상시키는 것이 가능하다는 것이 그 이유 중 하나이다. 염료는 저극성의 매체에 대한 용해도가 낮다는 것도 다른 이유로서 들 수 있다.

[0005] 상기한 이유에 의해, 형광성 화합물에 의해 수지의 착색을 행할 때, 아크릴 수지나 폴리에스테르 수지와 같은 비교적 극성이 높은 수지의 경우에는 염료를 이용하여 행하는 것도 가능하지만, 폴리올레핀 수지나 실리콘 수지와 같은 극성이 낮은 수지의 경우에는 염료의 용해성이 낮기 때문에 필연적으로 안료를 이용하게 된다. 안료를 이용하여 착색하는 경우, 투명한 수지 조성물을 얻기 위해서는, 안료를 수지 중에서 광의 파장보다 작은 크기로 미세하게 깨뜨리면서 균일하게 분산시킬 필요가 있다. 그러나, 이는 많은 에너지와 시간을 소비하는 공정이다.

[0006] 극성이 낮은 수지와 형광성 화합물의 상용성을 향상시키는 방법으로서, 수지에 형광성 화합물을 결합시키는 방법이 있다. 예를 들면, 특허문헌 1(일본 특허 공개 제2007-169535호 공보)에는 아미노 실리콘 수지와 형광성 화합물을 결합시킨 실리콘 수지가 기재되어 있다.

[0007] 형광성 화합물로서 이용되는 화합물은 수 많이 알려져 있지만, 예를 들면 트리아릴아민 유도체는 고휘도, 고발광 효율의 발광을 얻을 수 있기 때문에, 유기 전계 발광 소자의 발광 재료로서 유용하다(특허문헌 2: 일본 특허 공개 (소)58-65440호 공보, 특허문헌 3: 일본 특허 제3412348호 공보). 그러나, 특허문헌 2나 특허문헌 3에 나타나 있는 화합물은 유기 용매에 대한 용해성 및 수지와 상용성이 부족하다. 그래서 특허문헌 4(일본 특허 제3897879호)에는 트리아릴아민 유도체를 알콕시실릴기로 변성함으로써 유기 용매에 대한 용해성을 향상시킨 화합물이 나타나 있다.

[0008] 또한, 특허문헌 5(일본 특허 공개 제2007-63273호 공보)에는 실록사닐기를 스페이서로 하여 2분자의 트리아릴아민을 연결함으로써, 유기 용매에 대한 용해성을 향상시킨 화합물이 예로 들어져 있다.

선행기술문헌

특허문헌

[0009] (특허문헌 0001) 일본 특허 공개 제2007-169535호 공보

(특허문헌 0002) 일본 특허 공개 (소)58-65440호 공보

(특허문헌 0003) 일본 특허 제3412348호 공보

(특허문헌 0004) 일본 특허 제3897879호 공보

(특허문헌 0005) 일본 특허 공개 제2007-63273호 공보

발명의 내용

해결하려는 과제

[0010] 그러나, 상기한 종래 기술을 더욱 발전시킬 필요성이 존재한다. 예를 들면, 특허문헌 1에 개시된 방법에서는 미반응된 형광성 화합물의 완전한 제거가 곤란하고, 보존 중이나 사용 중에 이것이 응집되어 석출되기 때문에 외관이나 광학 특성이 변화되어 바람직하지 않다. 또한, 고분자이기 때문에, 분자량 분포를 갖고 있고, 분자마다의 화학 구조가 불균일하기 때문에 형광성 화합물을 수지 내부에서 균일하게 분산한 상태로 하기가 어렵다. 또한, 분자 내에 복수의 형광성 치환기가 근접하여 존재하고 있는 경우, 엑시머 발광에 의해 색조가 변화될 가능성도 있다.

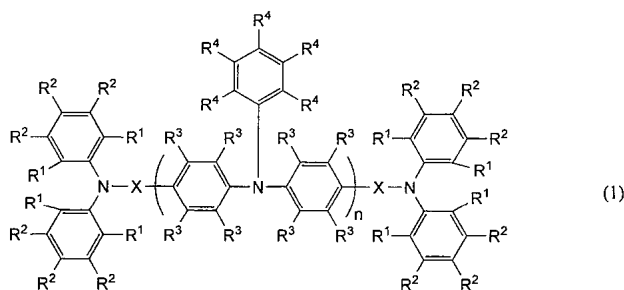
[0011] 또한, 특허문헌 2나 특허문헌 3을 개량한 특허문헌 4에 개시된 방법은, 알콕시실릴기가 반응성이고, 가수분해 및 탈수 축합하기 때문에, 취급이나 보존시에 안정성이 부족한 문제가 있었다.

[0012] 특허문헌 5에 개시된 방법에서는 유기 용제에 대한 용해성은 향상되지만, 지방족 탄화수소나 실리콘 수지와 같은 극성이 낮은 용매나 수지에 대한 용해성은 거의 개선되지 않고, 이들 용매나 수지 중에서 염료나 형광 재료로서 이용하기는 어렵다.

과제의 해결 수단

[0013] 본 발명은 상기 사정을 감안하여 이루어진 것으로, 유기 용매에 대한 용해성, 및 수지 또는 예비 중합체나 단량체와의 상용성, 특히는 실리콘 수지와와의 상용성이 우수하고, 간편한 방법으로 수지 조성물을 만들 수 있는 형광성 화합물, 이것을 함유하는 형광성 수지 조성물, 및 그의 제조 방법을 제공하는 것을 목적으로 한다.

[0014] 즉, 본 발명은 하기 화학식 (1)로 표시되는 형광성 화합물을 제공한다.

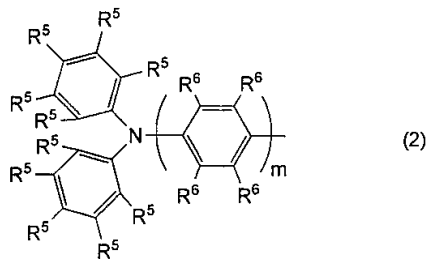


[0015]

[0016] {화학식 (1) 중, R¹ 내지 R⁴는 각각 독립적으로 탄소수 1 내지 20의 직쇄상, 분지상 또는 환상의 1가 탄화수소기, 탄소수 1 내지 20의 알콕시기, 탄소수 6 내지 20의 아릴옥시기, 할로젠 원자, 수소 원자, 아미노기, 시아노기, 하기 화학식 (2)로 표시되는 아민 함유기, 및 하기 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기로부터 선택되는 치환기를 나타내되, 단 R¹이 존재하지 않고, X에 결합한 질소 원자에 대하여 오르토 위치의 탄소와 결합하여 카르바졸화 구조를 형성할 수도 있고;

[0017] 치환기로서 화학식 (2)로 표시되는 아민 함유기를 포함하지 않는 경우에는 R¹ 내지 R⁴ 중 적어도 하나가 하기 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기이고, 치환기로서 화학식 (2)로 표시되는 아민 함유기를 포함하는 경우에

는 R^1 내지 R^6 중 적어도 하나가 하기 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기임.



[0018]

[0019]

(화학식 (2) 중, R^5 , R^6 은 각각 독립적으로 탄소수 1 내지 20의 직쇄상, 분지상 또는 환상의 1가 탄화수소기, 탄소수 1 내지 20의 알콕시기, 탄소수 6 내지 20의 아릴옥시기, 할로겐 원자, 수소 원자, 아미노기, 하기 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기로부터 선택되는 치환기를 나타내고,

[0020]

m 은 0 또는 1임)

[0021]



[0022]

(화학식 (3) 중, S_x 는 규소 원자수가 2 내지 10이며, 상기 규소 원자의 적어도 하나에 탄소수 1 내지 20의 1가 탄화수소기가 결합한 직쇄상, 분지상 또는 환상의 오르가노실록사닐기를 나타내고;

[0023]

A 는 단결합, 또는 1개 이상의 $-O-$, $-S-$, $-NR^0-$ 또는 이들의 조합을 포함할 수도 있는 탄소수 1 내지 20의 직쇄상, 분지상 또는 환상의 2가 탄화수소기를 나타내되, 단 A 가 환상의 2가 탄화수소기인 경우를 제외하고 산소 원자, 황 원자 및 질소 원자의 헤테로 원자끼리는 인접하지 않고, R^0 은 탄소수 1 내지 20의 1가 탄화수소기임)

[0024]

X 는 동일하거나 상이할 수도 있으며, 단결합, 탄소수 1 내지 20의 직쇄상, 분지상 또는 환상의 2가 탄화수소기를 나타내고, 탄소 원자의 일부가 헤테로 원자로 치환되어 있을 수도 있고;

[0025]

n 은 0 내지 5의 정수임}

[0026]

바람직한 실시 형태로서는, 화학식 (1)에 있어서, n 이 1, 3, 또는 5이고, R^4 중 어느 하나 이상이 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기인 형광성 화합물을 들 수 있다.

[0027]

별도의 바람직한 실시 형태로서는, 화학식 (1)에 있어서, R^2 중 적어도 하나가 화학식 (2)로 표시되는 아민 함유기이며, R^5 중 어느 하나 이상이 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기인 형광성 화합물을 들 수 있다.

[0028]

또 별도의 바람직한 실시 형태로서는, 화학식 (1)에 있어서, n 이 0이고, R^2 중 어느 하나 이상이 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기인 형광성 화합물을 들 수 있다.

[0029]

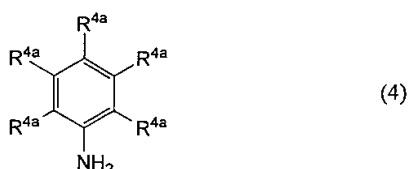
본 발명은, 별도의 실시 형태에 따르면, 상기 어느 하나에 기재된 형광성 화합물과 수지를 포함하여 이루어지는 형광성 수지 조성물이다.

[0030]

바람직한 실시 형태로서는, 상기 수지가 실리콘 수지이다.

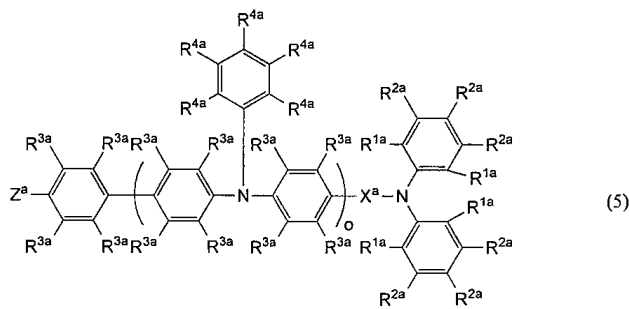
[0031]

본 발명은, 별도의 국면에 따르면, 하기 화학식 (4)로 표시되는 아민 화합물과 하기 화학식 (5)로 표시되는 방향족 할로겐 화합물을 전이 금속 촉매 존재하에서 반응시키는 공정을 포함하는 형광성 화합물의 제조 방법으로서, 화학식 (1)에 있어서 n 이 1, 3, 또는 5이고, R^4 중 어느 하나 이상이 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기인 형광성 화합물의 제조 방법이다.



[0032]

[0033] (화학식 (4) 중, R^{4a} 는 각각 화학식 (1)의 R^4 와 동일함)



[0034]

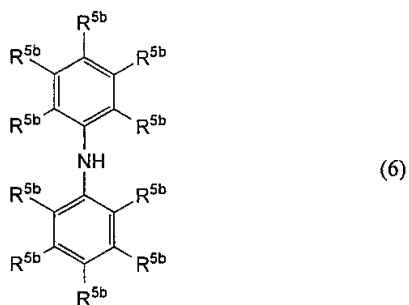
[0035] (화학식 (5) 중, R^{1a} 내지 R^{4a} 는 각각 화학식 (1)에 있어서의 R^1 내지 R^4 와 동일하고;

[0036] Z^a 는 할로젠 원자이고;

[0037] X^a 는 화학식 (1)에 있어서의 X 와 동일하고;

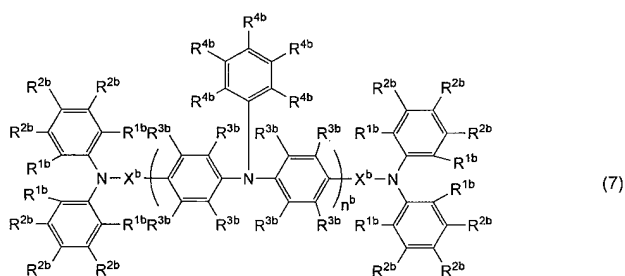
[0038] o 는 0 내지 2의 정수를 나타내고, 화학식 (1) 중에 있어서의 n 과, $o=(n-1)/2$ 를 만족시킴).

[0039] 본 발명은, 또 별도의 국면에 따르면, 하기 화학식 (6)으로 표시되는 아민 화합물과 하기 화학식 (7)로 표시되는 방향족 할로젠 화합물을 전이 금속 촉매 존재하에서 반응시키는 공정을 포함하는 형광성 화합물의 제조 방법으로서, 화학식 (1)에 있어서 R^2 중 적어도 하나가 화학식 (2)로 표시되는 아민 함유기이며, R^5 중 어느 하나 이상이 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기인 형광성 화합물의 제조 방법이다.



[0040]

[0041] (화학식 (6) 중, R^{5b} 는 각각 화학식 (2)의 R^5 와 동일함)

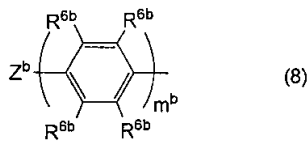


[0042]

[0043] (화학식 (7) 중, R^{1b} 내지 R^{4b} 는 각각 화학식 (1)에 있어서의 R^1 내지 R^4 와 동일하고;

[0044] X^b 는 각각 화학식 (1)에 있어서의 X 와 동일하고;

[0045] n^b 는 화학식 (1)에 있어서의 n 과 동일함)



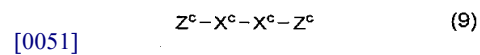
[0046] .

[0047] (화학식 (8) 중, R^{6b} 는 각각 화학식 (2)에 있어서의 R^6 과 동일하고;

[0048] m^b 는 화학식 (2)에 있어서의 m 과 동일하고;

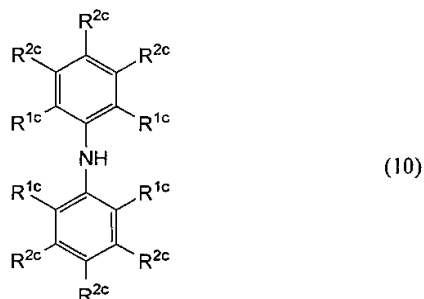
[0049] Z^b 는 할로젠 원자이되, 단 R^{2b} 중 적어도 하나는 화학식 (8)로 표시되는 치환기를 나타냄)

[0050] 본 발명은, 또 별도의 국면에 따르면, 하기 화학식 (10)으로 표시되는 아민 화합물과 하기 화학식 (9)로 표시되는 방향족 할로젠 화합물을 전이 금속 촉매 존재하에서 반응시키는 공정을 포함하는 형광성 화합물의 제조 방법으로서, 화학식 (1)에 있어서 n 이 0이고, R^2 중 어느 하나 이상이 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기인 형광성 화합물의 제조 방법이다.



[0052] (화학식 (9) 중, X^c 는 각각 화학식 (1)에 있어서의 X 와 동일하고;

[0053] Z^c 는 할로젠 원자임)



[0054] .

[0055] (화학식 (10) 중, R^{1c} , R^{2c} 는 각각 화학식 (1)에 있어서의 R^1 , R^2 와 동일함)

발명의 효과

[0056] 본 발명에 따른 형광성 화합물은 유기 용매에 대한 용해성 및 저극성 수지에 대한 상용성이 우수하며, 형광성 화합물로서 충분한 형광 특성을 구비하고 있다. 또한, 본 발명의 형광성 화합물을 이용하여 간편한 방법으로 형광성 수지 조성물을 제조할 수 있다. 또한, 본 발명에 따른 형광성 수지 조성물은 투명성이나 명도, 채도가 우수하고, 특히는 형광 잉크나 파장 변환 재료, 색소 레이저 등과 같은 용도에 있어서 바람직하게 이용할 수 있다.

도면의 간단한 설명

도 1은 하기 화학식 (1)로 표시되는 형광성 화합물을 나타낸다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0057] 이하, 본 발명을 실시 형태를 참조하여 설명한다.

[0058] [형광성 화합물]

[0059] 본 발명은 일 실시 형태에 따르면 형광성 화합물이다. 본 실시 형태에 의한 형광성 화합물은 상기 화학식 (1)

로 표시된다.

- [0060] 화학식 (1) 중, R^1 내지 R^4 는 동일하거나 상이할 수도 있으며, 탄소수 1 내지 20, 바람직하게는 탄소수 1 내지 12의 직쇄상, 분지상 또는 환상의 1가 탄화수소기; 탄소수 1 내지 20, 바람직하게는 탄소수 1 내지 12의 알콕시기; 탄소수 6 내지 20, 바람직하게는 탄소수 6 내지 12의 아릴옥시기; 할로젠 원자, 수소 원자, 아미노기, 시아노기, 상기 화학식 (2)로 표시되는 아민 함유기, 및 상기 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기로부터 선택되는 치환기를 나타낸다. 단, R^1 이 존재하지 않고, 질소 원자에 대하여 오르토 위치의 탄소가 결합하여 카르바졸 환 구조를 형성할 수도 있다.
- [0061] 화학식 (1)에 있어서, 화학식 (2)로 표시되는 아민 함유기를 치환기로서 포함하지 않는 경우에는, R^1 내지 R^4 중 적어도 하나가 상기 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기이다. 한편, 화학식 (1)에 있어서, 치환기로서 상기 화학식 (2)로 표시되는 아민 함유기를 포함하는 경우에는, R^1 내지 R^6 중 적어도 하나가 상기 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기이다.
- [0062] R^1 내지 R^4 를 구성할 수도 있는 상기 1가 탄화수소기의 구체예로서는 메틸기, 에틸기, 프로필기, 부틸기, 헥실기, 헵틸기, 옥틸기, 노닐기, 데실기, 운데실기, 도데실기, 테트라데실기, 헥사데실기, 옥타데실기, 이코실기 등의 직쇄상 포화 탄화수소기, 이소프로필기, 이소부틸기, sec-부틸기, tert-부틸기, 펜틸기, 시클로펜틸기, 이소펜틸기, 2-펜틸기, 3-펜틸기, tert-펜틸기 등의 분지상 포화 탄화수소기, 시클로헥실기, 시클로헵틸기 등의 환상 포화 탄화수소기; 비닐기, 알릴기, 프로페닐기, 1-메틸프로페닐기, 부테닐기, 펜테닐기, 헥세닐기, 헵테닐기, 옥테닐기, 노네닐기, 데세닐기, 운데세닐기, 옥타데세닐기 등의 알케닐기, 에티닐기, 프로피닐기 등의 알키닐기 등의 불포화 탄화수소기; 페닐기, 나프틸기, 벤질기, 페네틸기, 페닐프로필기, 2-메틸페닐기, 3-메틸페닐기, 4-메틸페닐기, 2,4-디메틸페닐기, 3,5-디메틸페닐기, 3,5-디-tert-부틸페닐기, 비페닐기 등의 아릴기, 아르알킬기 등의 방향족 탄화수소기를 들 수 있다.
- [0063] 이들 중에서도, 특히 메틸기, 에틸기, 프로필기, 이소프로필기, 부틸기, 이소부틸기, sec-부틸기, tert-부틸기, 펜틸기, 헥실기, 헵틸기, 옥틸기, 노닐기, 데실기, 운데실기, 도데실기, 비닐기, 알릴기, 페닐기가 바람직하다.
- [0064] 상기 알콕시기의 예로서는 메톡시기, 에톡시기, 부톡시기, tert-부톡시기, 헥실옥시기 등을 들 수 있다.
- [0065] 상기 아릴옥시기의 예로서는 페녹시기, p-메틸페녹시기, 나프톡시기 등을 들 수 있다.
- [0066] 상기 할로젠 원자의 예로서는 불소, 염소, 브롬, 요오드를 들 수 있다.
- [0067] 상기 아미노기의 예로서는 디메틸아미노기, 디에틸아미노기 등을 들 수 있다.
- [0068] 상기 화학식 (2) 중, R^5 , R^6 는 동일하거나 상이할 수도 있으며, 탄소수 1 내지 20, 바람직하게는 탄소수 1 내지 12의 직쇄상, 분지상 또는 환상의 1가 탄화수소기; 탄소수 1 내지 20, 바람직하게는 탄소수 1 내지 12의 알콕시기; 탄소수 6 내지 20, 바람직하게는 탄소수 6 내지 12의 아릴옥시기; 할로젠 원자, 수소 원자, 아미노기, 상기 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기로부터 선택되는 치환기를 나타낸다. m은 0 또는 1이다.
- [0069] R^5 , R^6 를 구성할 수도 있는 1가 탄화수소기, 알콕시기, 아릴옥시기, 할로젠 원자, 아미노기의 구체예는 화학식 (1)의 R^1 내지 R^4 에 대하여 설명한 것과 마찬가지이다.
- [0070] 상기 화학식 (3) 중, S_x 는 규소 원자수 2 내지 10, 바람직하게는 2 내지 8, 더욱 바람직하게는 내열성의 면에서 2 내지 6이며, 상기 규소 원자의 적어도 하나에 탄소수가 1 내지 20, 바람직하게는 1 내지 10, 더욱 바람직하게는 1 내지 6의 1가 탄화수소기가 결합한 직쇄상, 분지상 또는 환상의 오르가노실록사닐기를 나타낸다. 규소 원자의 수가 많은 쪽이 유기 용매에 대한 용해성은 향상되지만, 내열성이 저하되는 경우가 있다.
- [0071] 규소 원자에 결합하는 1가 탄화수소기의 구체예로서는 메틸기, 에틸기, 프로필기, 이소프로필기, 부틸기, sec-부틸기, tert-부틸기 등의 알킬기; 시클로헥실기 등의 시클로알킬기; 페닐기, 톨릴기, 나프틸기 등의 아릴기; 비닐기, 알릴기, 프로페닐기, 부테닐기 등의 알케닐기; 벤질기, 페네틸기 등의 아르알킬기 등을 들 수 있다. 규소 원자에 결합하는 1가 탄화수소기는 S_x 중, 예를 들면 1 내지 10개이고, 바람직하게는 1 내지 8개이고, 더욱 바람직하게는 1 내지 6개이다.
- [0072] S_x 의 구체예로서는 펜타메틸디실록산-1-일기, 3,3,3-트리에틸-1,1-디메틸디실록산-1-일기, 펜타에틸디실록산-1-

일기, 3-비닐-1,1,3,3-테트라메틸디실록산-1-일기, 3-벤질-1,1,3,3-테트라메틸디실록산-1-일기, 3-tert-부틸-1,1,3,3-테트라메틸디실록산-1-일기, 3,3,3-트리이소프로필-1,1-디메틸디실록산-1-일기, 3-페닐-1,1,3,3-테트라메틸디실록산-1-일기, 1,1-디페닐-3,3,3-트리메틸디실록산-1-일기, 3,3-디페닐-1,1,3-트리메틸디실록산-1-일기, 3,3,3-트리페닐-1,1-디메틸디실록산-1-일기, 3-메틸-1,1,3,3-테트라페닐디실록산-1-일기, 펜타페닐디실록산-1-일기, 1-시클로헥실-1,3,3,3-테트라메틸디실록산-1-일기, 헵타메틸트리실록산-1-일기, 5-페닐-1,1,3,3,5,5-헥사메틸트리실록산-1-일기, 5,5-디페닐-1,1,3,3,5-펜타메틸트리실록산-1-일기, 5,5,5-트리페닐-1,1,3,3-테트라메틸트리실록산-1-일기, 3,3,5-트리페닐-1,1,5,5-테트라메틸트리실록산-1-일기, 헵타페닐트리실록산-1-일기, 노나메틸테트라실록산-1-일기, 7,7,7-트리페닐-1,1,3,3,5,5-헥사메틸테트라실록산-1-일기, 5,5,7,7,7-펜타페닐-1,1,3,3-테트라메틸테트라실록산-1-일기, 3,3,5,5,7,7,7-헵타페닐-1,1-디메틸테트라실록산-1-일기, 노나페닐테트라실록산-1-일기, 운데카메틸펜타실록산-1-일기, 9,9,9-트리페닐-1,1,3,3,5,5,7,7-옥타메틸펜타실록산-1-일기, 7,7,9,9,9-펜타페닐-1,1,3,3,5,5-헥사메틸펜타실록산-1-일기, 5,5,7,7,9,9,9-헵타페닐-1,1,3,3-테트라메틸펜타실록산-1-일기, 3,3,5,5,7,7,9,9,9-데카페닐-1,1-디메틸펜타실록산-1-일기, 운데카페닐펜타실록산-1-일기, 트리데카메틸헥사실록산-1-일기, 펜타데카메틸헵타실록산-1-일기, 헵타데카메틸옥타실록산-1-일기, 노나데카메틸노나실록산-1-일기, 헨이코사메틸데카실록산-1-일기 등의 직쇄상 오르가노실록사닐기; 1-트리메틸실록시-1,3,3,3-테트라메틸디실록산-1-일기, 1-페닐디메틸실록시-1,3,3,3-테트라메틸디실록산-1-일기, 1-페닐디메틸실록시-3-페닐-1,3,3-테트라메틸디실록산-1-일기, 1-페닐디메틸실록시-1,3-디페닐-3,3-디메틸디실록산-1-일기, 1,1,5,5-테트라페닐-1,3,5-트리메틸트리실록산-3-일기, 1,1,1,5,5,5-헥사페닐-3-메틸트리실록산-3-일기, 1-트리메틸실록시-1,3,3,5,5,5-헥사메틸트리실록산-1-일기, 1-펜타메틸디실록사닐옥시-1,3,3,5,5,5-헥사메틸트리실록산-1-일기, 1-트리메틸실록시-1,3,3,5,5,7,7,7-옥타메틸테트라실록산-1-일기, 1,1-비스(트리메틸실록시)-3,3,3-트리메틸디실록산-1-일기, 1-트리페닐실록시-1,3,3,3-테트라페닐디실록산-1-일기, 1-트리페닐실록시-1,3,3,5,5,5-헥사페닐트리실록산-1-일기, 1-펜타페닐디실록사닐옥시-1,3,3,5,5,5-헥사페닐트리실록산-1-일기, 1-트리페닐실록시-3,5,5,7,7,9,9-옥타페닐테트라실록산-1-일기, 1,1-비스(트리페닐실록시)-3,3,3-트리페닐디실록산-1-일기 등의 분지상 오르가노실록사닐기; 1,3,3,5,5,7,7-헵타메틸시클로테트라실록산-1-일기, 1,3,5,7-테트라메틸-3,5,7-트리비닐시클로테트라실록산-1-일기, 1,3,3,5,5,7,7-헵타페닐시클로테트라실록산-1-일기, 1,3,5,7-테트라페닐-3,5,7-트리비닐시클로테트라실록산-1-일기 등의 환상 오르가노실록사닐기 등을 들 수 있다.

[0073] 이들 중에서도 특히 펜타메틸디실록산-1-일기, 헵타메틸트리실록산-1-일기, 노나메틸테트라실록산-1-일기, 운데카메틸펜타실록산-1-일기, 1-트리메틸실록시-1,3,3,3-테트라메틸디실록산-1-일기, 1,3,3,5,5,7,7-헵타메틸시클로테트라실록산-1-일기, 펜타페닐디실록산-1-일기, 헵타페닐트리실록산-1-일기, 노나페닐테트라실록산-1-일기, 운데카페닐펜타실록산-1-일기, 1-트리페닐실록시-1,3,3,3-테트라페닐디실록산-1-일기, 1,3,3,5,5,7,7-헵타페닐시클로테트라실록산-1-일기가 Sx로서 바람직하다. 합성 상 용이하다는 관점에서이다.

[0074] 상기 화학식 (3) 중, A는 단결합, 또는 1개 이상의 -O-, -S-, -NR⁰- 또는 이들의 조합을 포함할 수도 있는 탄소수 1 내지 20, 바람직하게는 탄소수 1 내지 12의 직쇄상, 분지상 또는 환상의 2가 탄화수소기를 나타낸다. 단, 환상의 2가 탄화수소기의 경우를 제외하고 산소 원자, 황 원자 및 질소 원자의 헤테로 원자끼리는 인접하지 않는다. R⁰은 탄소수 1 내지 20의 1가 탄화수소기이다.

[0075] R⁰은 탄소수 1 내지 20, 바람직하게는 탄소수 1 내지 12의 1가 탄화수소기이며, 구체적으로는 메틸기, 에틸기, 프로필기, 부틸기, 헥실기, 펜틸기, 옥틸기, 데실기, 도데실기, 테트라데실기, 헥사데실기, 옥타데실기, 이코실기 등의 직쇄상의 포화 탄화수소기, 이소프로필기, 이소부틸기, sec-부틸기, tert-부틸기, 이소펜틸기; 2-펜틸기, 3-펜틸기, tert-펜틸기 등의 분지상의 포화 탄화수소기; 시클로헥실기, 시클로펜틸기 등의 환상 알킬기 등의 포화 탄화수소기; 비닐기, 알릴기, 프로페닐기, 1-메틸프로페닐기, 부테닐기, 펜테닐기, 헥세닐기, 헵테닐기, 옥테닐기, 노네닐기, 데세닐기, 운데세닐기, 옥타데세닐기 등의 알케닐기; 알킬기 등의 불포화 탄화수소기; 페닐기, 나프틸기, 벤질기, 페네틸기, 페닐프로필기, 2-메틸페닐기, 3-메틸페닐기, 4-메틸페닐기, 2,4-디메틸페닐기, 3,5-디메틸페닐기, 3,5-디-tert-부틸페닐기 등의 아릴기, 아르알킬기 등의 방향족 탄화수소기를 들 수 있다. 이들 중에서도, 특히 메틸기, 에틸기, 프로필기, 이소프로필기, 부틸기, 이소부틸기, sec-부틸기, tert-부틸기, 펜틸기, 헥실기, 옥틸기, 데실기, 도데실기, 비닐기, 알릴기, 페닐기가 바람직하다. 화학식 (3) 중에 복수의 R⁰기가 포함되는 경우에는, 복수의 R⁰기는 동일하거나 상이할 수도 있다.

[0076] A로 표시되는 치환기의 구체예로서는 단결합; 메틸렌기, 1,2-에탄디일기, 1,1-에탄디일기, 1,2-에텐디일기, 1,1-에텐디일기, 1,3-프로판디일기, 1,2-프로판디일기, 2-메틸-1,3-프로판디일기, 1,3-부탄디일기, 1,4-부탄디

일기, 1,5-펜탄디일기, 1,6-헥산디일기, 1,4-시클로헥산디일기, 1,7-헵탄디일기, 1,8-옥탄디일기, 1,9-노난디일기, 1,10-데칸디일기, 1,11-운데칸디일기, 1,12-도데칸디일기, 1,13-트리데칸디일기, 1,14-테트라데칸디일기, 1,15-펜타데칸디일기, 1,16-헥사데칸디일기, 1,17-헵타데칸디일기, 1,18-옥타데칸디일기, 1,19-노나데칸디일기, 1,20-이코산디일기 등의 직쇄상, 분지상 또는 환상의 지방족 2가 탄화수소기; 1,3-벤젠디일기, 1,4-벤젠디일기, 2-메틸-1,4-벤젠디일기, 3-메틸-1,4-벤젠디일기, 2,5-디메틸-1,4-벤젠디일기, 1,8-나프탈렌디일기, 2,7-나프탈렌디일기, 1,4-안트라센디일기, 1,5-안트라센디일기, 2,6-안트라센디일기, 9,10-안트라센디일, 1,6-피렌디일기, 1,8-피렌디일기, 2,7-피렌디일기, 4,9-피렌디일기, 4-에틸벤젠-1,2'-디일기, 4-프로필벤젠-1,3'-디일기 등의 방향족 2가 탄화수소기; 2-옥사-1,3-프로판디일기, 3-옥사-1,5-펜탄디일기, 3-옥사-2-메틸-1,5-펜탄디일기, 3-옥사-1,6-헥산디일기, 3-옥사-2-메틸-1,5-헥산디일기, 3-옥사-2-메틸-1,6-헥산디일기, 3,6-디옥사-1,8-옥탄디일기, 3,7-디옥사-1,9-노난디일기, 3-메틸-3-아자-1,5-펜탄디일기, 3-메틸-3-아자-1,6-헥산디일기, 3-페닐-3-아자-1,6-헥산디일기, 3-메틸-3-아자-7-옥사-1,9-노난디일기, 3-티아-1,5-펜탄디일기, 3,6-디티아-1,8-옥탄디일기, 2,5-푸란디일기, 2,5-티오펜디일기, 1,2,4-옥사디아졸-3,5-디일기, 1,3,4-옥사디아졸-2,5-디일기, 1,2,4-티아디아졸-3,5-디일기, 1,3,4-티아디아졸-2,5-디일기 등의 헤테로 원자를 포함하는 2가 탄화수소기 등을 들 수 있다.

[0077] 이들 중에서도, 특히 단결합, 메틸렌기, 1,2-에탄디일기, 1,3-프로판디일기, 2-메틸-1,3-프로판디일기, 1,4-부탄디일기, 1,5-펜탄디일기, 1,6-헥산디일기, 1,7-헵탄디일기, 1,8-옥탄디일기, 1,9-노난디일기, 1,10-데칸디일기, 1,11-운데칸디일기가 A로 표시되는 치환기로서 바람직하다. 보다 높은 용해성을 부여할 수 있다는 관점에서이다.

[0078] 화학식 (3) 중, Sx, A는 임의의 조합이 가능하다. Sx가 운데카메틸펜타실록산-1-일기인 경우에 대하여 예시하면, 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기의 구체예로서는 운데카메틸펜타실록산-1-일기 등의 실록사닐기; 운데카메틸펜타실록산-1-일메틸기, 2-(운데카메틸펜타실록산-1-일)에틸기, 1-(운데카메틸펜타실록산-1-일)에틸기, 2-(운데카메틸펜타실록산-1-일)에테닐기, 3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로필기, 2-메틸-3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로필기, 4-(운데카메틸펜타실록산-1-일)부틸기, 5-(운데카메틸펜타실록산-1-일)펜틸기, 6-(운데카메틸펜타실록산-1-일)헥실기, 7-(운데카메틸펜타실록산-1-일)헵틸기, 8-(운데카메틸펜타실록산-1-일)옥틸기, 9-(운데카메틸펜타실록산-1-일)노닐기, 10-(운데카메틸펜타실록산-1-일)데실기, 11-(운데카메틸펜타실록산-1-일)운데실기, 12-(운데카메틸펜타실록산-1-일)도데실기, 14-(운데카메틸펜타실록산-1-일)테트라데실기, 16-(운데카메틸펜타실록산-1-일)헥사데실기, 18-(운데카메틸펜타실록산-1-일)옥타데실기, 20-(운데카메틸펜타실록산-1-일)이코실기, 4-(운데카메틸펜타실록산-1-일)페닐기, 3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)페닐기, 4-[2-(운데카메틸펜타실록산-1-일)에틸]페닐기, 4-[3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로필]페닐기, 4-[2-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로필]페닐기, 2-{2-(운데카메틸펜타실록산-1-일)에톡시}에틸기, 3-{2-(운데카메틸펜타실록산-1-일)에톡시}프로필기, 2-{3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로폭시}에틸기, 2-{3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로폭시}프로필기, 2-{2-{3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로폭시}에톡시}에틸기, 2-{2-{3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로폭시}프로폭시}에틸기, 2-{2-{3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로폭시}프로폭시}프로필기 등의 치환 탄화수소기; (운데카메틸펜타실록산-1-일)메톡시기, 2-(운데카메틸펜타실록산-1-일)에톡시기, 3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로폭시기, 2-메틸-3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로폭시기, 3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)부톡시기, 4-(운데카메틸펜타실록산-1-일)부톡시기, 4-(운데카메틸펜타실록산-1-일)페녹시기, 2-{2-(운데카메틸펜타실록산-1-일)에톡시}에톡시기, 3-{2-(운데카메틸펜타실록산-1-일)에톡시}프로폭시기, 2-{3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로폭시}에톡시기, 2-{3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로폭시}프로폭시기, 2-{2-{3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로폭시}에톡시}에톡시기, 2-{2-{3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로폭시}프로폭시}에톡시기, 2-{2-{3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로폭시}프로폭시}프로폭시기, 2-[N-메틸-N-{3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로필}아미노]에톡시기, 2-[N-메틸-N-{3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로필}아미노]에톡시기, 1-메틸-2-[N-메틸-N-{3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로필}아미노]에톡시기, 2-{2-(운데카메틸펜타실록산-1-일)에틸술과닐}에톡시기 등의 치환 오르가녹시기; (운데카메틸펜타실록산-1-일)메톡시카르보닐기, 2-(운데카메틸펜타실록산-1-일)에톡시카르보닐기, 3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로폭시카르보닐기, 2-메틸-3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로폭시카르보닐기, 3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)부톡시카르보닐기, 4-(운데카메틸펜타실록산-1-일)페녹시카르보닐기, 2-{2-(운데카메틸펜타실록산-1-일)에톡시}에톡시카르보닐기, 3-{2-(운데카메틸펜타실록산-1-일)에톡시}프로폭시카르보닐기, 2-{3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로폭시}에톡시카르보닐기, 2-{3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로폭시}프로폭시카르보닐기, 2-{2-{3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로폭시}에톡시}에톡시카르보닐기, 2-{2-{3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로폭시}프로폭시}에톡시카르보닐기, 2-[N-메틸-N-{3-(운데카

메틸펜타실록산-1-일)프로필}아미노]에톡시카르보닐기, 2-[N-메틸-N-{3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로필}아미노]에톡시카르보닐기, 1-메틸-2-[N-메틸-N-{3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로필}아미노]에톡시카르보닐기, 2-{2-(운데카메틸펜타실록산-1-일)에틸술폰}에톡시카르보닐기 등의 치환 오르가녹시카르보닐기; (운데카메틸펜타실록산-1-일)아세톡시기, 3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로피오닐옥시기, 2-메틸-3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로피오닐옥시기, 5-(운데카메틸펜타실록산-1-일)펜타노일옥시기, 6-(운데카메틸펜타실록산-1-일)헥사노일옥시기, 11-(운데카메틸펜타실록산-1-일)운데카노일옥시기, 4-(운데카메틸펜타실록산-1-일)벤조일옥시기, {2-(운데카메틸펜타실록산-1-일)에톡시}아세틸기, 3-{2-(운데카메틸펜타실록산-1-일)에톡시}프로피오닐옥시기, {3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로폭시}아세톡시기, 3-{3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로폭시}프로피오닐옥시기, {2-{3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로폭시}에톡시}아세톡시기, {2-{3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로폭시}프로폭시}아세톡시기, 3-[N-메틸-N-{3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로필}아미노]프로피오닐옥시기, 3-[N-메틸-N-{3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로필}아미노]프로피오닐옥시기 등의 치환 아실옥시기를 들 수 있다.

[0079]

화학식 (3)으로 표시되는 기로서는, 상기 Sx의 바람직한 예와 상기 A의 바람직한 예를 조합하여 얻어지는 기가 바람직하다. 특히, 펜타메틸디실록산-1-일기, 헵타메틸트리실록산-1-일기, 노나메틸테트라실록산-1-일기, 운데카메틸펜타실록산-1-일기, 1-트리메틸실록시-1,3,3,3-테트라메틸디실록산-1-일기, 1,3,3,5,5,7,7-헵타메틸시클로테트라실록산-1-일기, 펜타페닐디실록산-1-일기, 헵타페닐트리실록산-1-일기, 노나페닐테트라실록산-1-일기, 운데카페닐펜타실록산-1-일기, 1-트리페닐실록시-1,3,3,3-테트라페닐디실록산-1-일기, 1,3,3,5,5,7,7-헵타페닐시클로테트라실록산-1-일기, 3-(펜타메틸디실록산-1-일)프로필기, 3-(헵타메틸트리실록산-1-일)프로필기, 3-(노나메틸테트라실록산-1-일)프로필기, 3-(운데카메틸펜타실록산-1-일)프로필기, 3-(1-트리메틸실록시-1,3,3,3-테트라메틸디실록산-1-일)프로필기, 3-(1,3,3,5,5,7,7-헵타메틸시클로테트라실록산-1-일)프로필기, 3-(펜타페닐디실록산-1-일)프로필기, 3-(헵타페닐트리실록산-1-일)프로필기, 3-(노나페닐테트라실록산-1-일)프로필기, 3-(운데카페닐펜타실록산-1-일)프로필기, 3-(1-트리페닐실록시-1,3,3,3-테트라페닐디실록산-1-일)프로필기, 3-(1,3,3,5,5,7,7-헵타페닐시클로테트라실록산-1-일)프로필기, 4-(펜타메틸디실록산-1-일)부틸기, 4-(헵타메틸트리실록산-1-일)부틸기, 3-(노나메틸테트라실록산-1-일)부틸기, 4-(운데카메틸펜타실록산-1-일)부틸기, 4-(1-트리메틸실록시-1,3,3,3-테트라메틸디실록산-1-일)부틸기, 4-(1,3,3,5,5,7,7-헵타메틸시클로테트라실록산-1-일)부틸기, 4-(펜타페닐디실록산-1-일)부틸기, 4-(헵타페닐트리실록산-1-일)부틸기, 3-(노나페닐테트라실록산-1-일)부틸기, 4-(운데카페닐펜타실록산-1-일)부틸기, 4-(1-트리페닐실록시-1,3,3,3-테트라페닐디실록산-1-일)부틸기, 4-(1,3,3,5,5,7,7-헵타페닐시클로테트라실록산-1-일)부틸기, 5-(펜타메틸디실록산-1-일)펜틸기, 5-(헵타메틸트리실록산-1-일)펜틸기, 5-(노나메틸테트라실록산-1-일)펜틸기, 5-(운데카메틸펜타실록산-1-일)펜틸기, 5-(1-트리메틸실록시-1,3,3,3-테트라메틸디실록산-1-일)펜틸기, 5-(1,3,3,5,5,7,7-헵타메틸시클로테트라실록산-1-일)펜틸기, 5-(펜타페닐디실록산-1-일)펜틸기, 5-(헵타페닐트리실록산-1-일)펜틸기, 5-(노나페닐테트라실록산-1-일)펜틸기, 5-(운데카페닐펜타실록산-1-일)펜틸기, 5-(1-트리페닐실록시-1,3,3,3-테트라페닐디실록산-1-일)펜틸기, 5-(1,3,3,5,5,7,7-헵타페닐시클로테트라실록산-1-일)펜틸기, 6-(펜타메틸디실록산-1-일)헥실기, 6-(헵타메틸트리실록산-1-일)헥실기, 6-(노나메틸테트라실록산-1-일)헥실기, 6-(운데카메틸펜타실록산-1-일)헥실기, 6-(1-트리메틸실록시-1,3,3,3-테트라메틸디실록산-1-일)헥실기, 6-(1,3,3,5,5,7,7-헵타메틸시클로테트라실록산-1-일)헥실기, 6-(펜타페닐디실록산-1-일)헥실기, 6-(헵타페닐트리실록산-1-일)헥실기, 6-(노나페닐테트라실록산-1-일)헥실기, 6-(운데카페닐펜타실록산-1-일)헥실기, 6-(1-트리페닐실록시-1,3,3,3-테트라페닐디실록산-1-일)헥실기, 6-(1,3,3,5,5,7,7-헵타페닐시클로테트라실록산-1-일)헥실기, 7-(펜타메틸디실록산-1-일)헵틸기, 7-(헵타메틸트리실록산-1-일)헵틸기, 7-(노나메틸테트라실록산-1-일)헵틸기, 7-(운데카메틸펜타실록산-1-일)헵틸기, 7-(1-트리메틸실록시-1,3,3,3-테트라메틸디실록산-1-일)헵틸기, 7-(1,3,3,5,5,7,7-헵타메틸시클로테트라실록산-1-일)헵틸기, 7-(펜타페닐디실록산-1-일)헵틸기, 7-(헵타페닐트리실록산-1-일)헵틸기, 7-(노나페닐테트라실록산-1-일)헵틸기, 7-(운데카페닐펜타실록산-1-일)헵틸기, 7-(1-트리페닐실록시-1,3,3,3-테트라페닐디실록산-1-일)헵틸기, 7-(1,3,3,5,5,7,7-헵타페닐시클로테트라실록산-1-일)헵틸기, 8-(펜타메틸디실록산-1-일)옥틸기, 8-(헵타메틸트리실록산-1-일)옥틸기, 8-(노나메틸테트라실록산-1-일)옥틸기, 8-(운데카메틸펜타실록산-1-일)옥틸기, 8-(1-트리메틸실록시-1,3,3,3-테트라메틸디실록산-1-일)옥틸기, 8-(1,3,3,5,5,7,7-헵타메틸시클로테트라실록산-1-일)옥틸기, 8-(펜타페닐디실록산-1-일)옥틸기, 8-(헵타페닐트리실록산-1-일)옥틸기, 8-(노나페닐테트라실록산-1-일)옥틸기, 8-(운데카페닐펜타실록산-1-일)옥틸기, 8-(1-트리페닐실록시-1,3,3,3-테트라페닐디실록산-1-일)옥틸기, 8-(1,3,3,5,5,7,7-헵타페닐시클로테트라실록산-1-일)옥틸기, 9-(펜타메틸디실록산-1-일)노닐기, 9-(헵타메틸트리실록산-1-일)노닐기, 9-(노나메틸테트라실록산-1-일)노닐기, 9-(운데카메틸펜타실록산-1-일)노닐기, 9-(1-트리메틸실록시-1,3,3,3-테트라메틸디실록산-1-일)노닐기, 9-(1,3,3,5,5,7,7-헵타메틸시클로테트라실록산-1-일)노닐기

닐기, 9-(펜타페닐디실록산-1-일)노닐기, 9-(헵타페닐트리실록산-1-일)노닐기, 9-(노나페닐테트라실록산-1-일)노닐기, 9-(운데카페닐펜타실록산-1-일)노닐기, 9-(1-트리페닐실록시-1,3,3,3-테트라페닐디실록산-1-일)노닐기, 9-(1,3,3,5,5,7,7-헵타페닐시클로테트라실록산-1-일)노닐기, 10-(펜타메틸디실록산-1-일)데실기, 10-(헵타메틸트리실록산-1-일)데실기, 10-(노나메틸테트라실록산-1-일)데실기, 10-(운데카메틸펜타실록산-1-일)데실기, 10-(1-트리메틸실록시-1,3,3,3-테트라메틸디실록산-1-일)데실기, 10-(1,3,3,5,5,7,7-헵타메틸시클로테트라실록산-1-일)데실기, 10-(펜타페닐디실록산-1-일)데실기, 10-(헵타페닐트리실록산-1-일)데실기, 10-(노나페닐테트라실록산-1-일)데실기, 10-(운데카페닐펜타실록산-1-일)데실기, 10-(1-트리페닐실록시-1,3,3,3-테트라페닐디실록산-1-일)데실기, 10-(1,3,3,5,5,7,7-헵타페닐시클로테트라실록산-1-일)데실기, 11-(펜타메틸디실록산-1-일)운데실기, 11-(헵타메틸트리실록산-1-일)운데실기, 11-(노나메틸테트라실록산-1-일)운데실기, 11-(운데카메틸펜타실록산-1-일)운데실기, 11-(1-트리메틸실록시-1,3,3,3-테트라메틸디실록산-1-일)운데실기, 11-(1,3,3,5,5,7,7-헵타메틸시클로테트라실록산-1-일)운데실기, 11-(펜타페닐디실록산-1-일)운데실기, 11-(헵타페닐트리실록산-1-일)운데실기, 11-(노나페닐테트라실록산-1-일)운데실기, 11-(운데카페닐펜타실록산-1-일)운데실기, 11-(1-트리페닐실록시-1,3,3,3-테트라페닐디실록산-1-일)운데실기, 11-(1,3,3,5,5,7,7-헵타페닐시클로테트라실록산-1-일)운데실기가 보다 바람직하다.

[0080] 화학식 (1)에 있어서, X는 동일하거나 상이할 수도 있으며, 단결합, 탄소수 1 내지 20의 직쇄상, 분지상 또는 환상의 2가 탄화수소기를 나타낸다. 탄소 원자의 일부가 헤테로 원자로 치환되어 있을 수도 있다. 이 경우, 2가 탄화수소기에 있어서 치환 헤테로 원자와 탄소 원자의 합계수가 1 내지 20이 된다.

[0081] X의 구체예로서는 단결합; 메틸렌기, 1,2-에탄디일기, 1,1-에탄디일기, 1,2-에텐디일기, 1,1-에텐디일기, 1,3-프로판디일기, 1,2-프로판디일기, 2-메틸-1,3-프로판디일기, 1,3-부탄디일기, 1,4-부탄디일기, 1,5-펜탄디일기, 1,6-헥산디일기, 1,4-시클로헥산디일기, 1,7-헵탄디일기, 1,8-옥탄디일기, 1,9-노난디일기, 1,10-데칸디일기, 1,11-운데칸디일기, 1,12-도데칸디일기, 1,13-트리데칸디일기, 1,14-테트라데칸디일기, 1,15-펜타데칸디일기, 1,16-헥사데칸디일기, 1,17-헵타데칸디일기, 1,18-옥타데칸디일기, 1,19-노나데칸디일기, 1,20-이코산디일기 등의 직쇄상, 분지상 또는 환상의 지방족 2가 탄화수소기; 1,3-벤젠디일기, 1,4-벤젠디일기, 2-메틸-1,4-벤젠디일기, 3-메틸-1,4-벤젠디일기, 2,5-디메틸-1,4-벤젠디일기, 1,8-나프탈렌디일기, 2,7-나프탈렌디일기, 1,4-안트라센디일기, 1,5-안트라센디일기, 2,6-안트라센디일기, 9,10-안트라센디일, 1,6-피렌디일기, 1,8-피렌디일기, 2,7-피렌디일기, 4,9-피렌디일기, 4-에틸벤젠-1,2'-디일기, 4-프로필벤젠-1,3'-디일기 등의 방향족 2가 탄화수소기; 2-옥사-1,3-프로판디일기, 3-옥사-1,5-펜탄디일기, 3-옥사-2-메틸-1,5-펜탄디일기, 3-옥사-1,6-헥산디일기, 3-옥사-2-메틸-1,5-헥산디일기, 3-옥사-2-메틸-1,6-헥산디일기, 3,6-디옥사-1,8-옥탄디일기, 3,7-디옥사-1,9-노난디일기, 3-메틸-3-아자-1,5-펜탄디일기, 3-메틸-3-아자-1,6-헥산디일기, 3-페닐-3-아자-1,6-헥산디일기, 3-메틸-3-아자-7-옥사-1,9-노난디일기, 3-티아-1,5-펜탄디일기, 3,6-디티아-1,8-옥탄디일기, 2,5-푸란디일기, 2,5-티오펜디일기, 1,2,4-옥사디아졸-3,5-디일기, 1,3,4-옥사디아졸-2,5-디일기, 1,2,4-티아디아졸-3,5-디일기, 1,3,4-티아디아졸-2,5-디일기 등의 헤테로 원자를 포함하는 2가 탄화수소기를 들 수 있다.

[0082] 이들 중에서도, 특히 단결합, 1,3-벤젠디일기, 1,4-벤젠디일기, 2-메틸-1,4-벤젠디일기, 3-메틸-1,4-벤젠디일기, 2,5-디메틸-1,4-벤젠디일기, 1,8-나프탈렌디일기, 2,7-나프탈렌디일기, 1,4-안트라센디일기, 1,5-안트라센디일기, 2,6-안트라센디일기, 9,10-안트라센디일기가 X로서 바람직하다. 합성 상 용이하다는 관점에서이다.

[0083] 본 발명의 상기 화학식 (1)로 표시되는 형광성 화합물은 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기를 포함하는 것을 특징으로 한다. 여기서, 실록산 함유기의 실록산 부분은 구조가 명확하게 규정되어 있고, 분자량 분포를 갖는 실록산 혼합물이 아니다. 따라서, 화학식 (1)로 표시되는 화합물도, 혼합물이 아니라 단일 화합물이다. 형광성 화합물을 이용하여 조성물을 제조할 때에는, 형광 발색단의 몰 농도가 조성물의 형광 특성을 결정하는 중요한 인자이다. 따라서, 몰 농도를 정확하게 결정하기 위해서, 화학식 (1)로 표시되는 형광성 화합물은 단일 화합물인 것이 바람직하다.

[0084] 본 발명에 따른 상기 화학식 (1)로 표시되는 형광성 화합물은, 형광 특성을 최대로 발휘시키기 위해서 가능한 한 고순도로 정제되어 있는 것이 바람직하다. 상술한 바와 같이, 화학식 (1)로 표시되는 본 발명의 형광성 화합물은 단일 화합물이기 때문에, 고순도까지 정제하는 것이 가능하다. 정제 방법으로서, 예를 들면 통상의 유기 화합물과 마찬가지로 재결정이나 정식, 승화, 용매에 의한 세정, 실리카 겔 칼럼 크로마토그래피, 겔 여과 크로마토그래피, 분취 액체 크로마토그래피 등의 방법을 들 수 있다. 본 발명의 형광성 화합물의 순도는, 액체 크로마토그래피법으로 정제하는 경우에는 95% 이상으로 하는 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 98% 이상, 더

옥 바람직하게는 99% 이상이다. 불순물을 많이 포함하는 경우에는, 화학식 (1)로 표시되는 형광성 화합물 자체의 형광 특성이 저하되는 경우가 있다. 또한, 이와 같은 형광성 화합물을 이용하여 형광성 수지 조성물을 제조할 때에, 형광성 수지 조성물에 흐림이 생기는 경우가 있기 때문에 조성물로서도 형광 특성이 저하되는 경우가 있다.

[0085] 액체 크로마토그래피법에 의한 순도 결정은 순상, 역상 중 어느 조건이어도 가능하다. 순상에서는 예를 들면 GL 사이언스사 제조 이너트실(Inertsil)(등록상표) 디올(Diol) 칼럼을, 역상에서는 예를 들면 워터즈사 제조 엑스브릿지(XBridge)(등록상표) C18 칼럼을 사용할 수 있다. 또한, 크기 배제 크로마토그래피도 유효한 방법이며, 예를 들면 도소(주) 제조 TSK-GEL 슈퍼(Super)HZ2000 칼럼을 사용할 수 있다.

[0086] 다음으로, 본 발명에 따른 상기 화학식 (1)로 표시되는 형광성 화합물의 제조 방법에 대하여 설명한다. 본 발명의 형광성 화합물은 트리아릴아민 유도체이고, 여러 가지 방법으로 제조할 수 있다. 예를 들면, 실록산 함유기를 포함하지 않는 트리아릴아민 유도체를 공지된 방법에 의해 제조한 후에, 실록산 함유기를 도입하는 방법을 들 수 있다. 또는, 실록산 함유기를 결합시킨 방향족 할로겐화물이나 방향족 아민을 제조하여 이것을 빌딩 블록으로서 사용하여 트리아릴아민 유도체를 구축하는 방법을 들 수 있다. 후자 중에서도 실록산 함유기를 결합시킨 방향족 아민 유도체와 방향족 할로겐화물을 전이 금속 촉매 존재하에서 반응시키는 방향족 아미노화 반응에 의해 제조하는 방법이 바람직하다.

[0087] [제1 제조 방법]

[0088] 본 발명의 화학식 (1)로 표시되는 화합물의 제조 방법은 실록산 함유기의 위치에 따라 여러 가지 조합이 생각된다. 우선, 화학식 (1)에 있어서, n 이 1, 3, 또는 5이고, R^4 중 어느 하나가 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기인 경우의 형광성 화합물의 제조 방법에 대하여 설명한다. 이러한 특징을 갖는 형광성 화합물의 제조 방법을, 본 명세서에 있어서 「제1 제조 방법」이라고 지칭한다.

[0089] 제1 제조 방법은 상기 화학식 (4)로 표시되는 아민 화합물과 상기 화학식 (5)로 표시되는 방향족 할로겐 화합물을 전이 금속 촉매 존재하에서 반응시키는 공정을 포함한다.

[0090] 상기 화학식 (4) 중, R^{4a} 는 각각 화학식 (1)의 R^4 와 동일하다. 따라서, 제조 목적물인 화학식 (1)로 표시되는 형광성 화합물에 있어서, 실록산 함유기를 도입하는 개소에 대응하는 R^{4a} 는 실록산 함유기일 필요가 있다. 또한, 제조 목적물인 화학식 (1)로 표시되는 형광성 화합물에 있어서 복수의 상이한 종류의 R^4 가 존재하는 경우에는, 출발 물질의 화학식 (4)로 표시되는 아민 화합물에 있어서 복수의 상이한 종류의 R^4 에 대응시키도록 R^{4a} 를 결정한다.

[0091] 화학식 (4)로 표시되는 아민 화합물은 통상법에 따라 당업자가 적절하게 합성할 수 있다.

[0092] 상기 화학식 (5) 중, R^{1a} 내지 R^{4a} 는 각각 화학식 (1)의 R^1 내지 R^4 와 동일하다. 여기서에서도, 목적물인 화학식 (1)로 표시되는 형광성 화합물에 있어서 복수의 상이한 종류의 R^1 내지 R^4 가 존재하는 경우에는, 출발 물질의 화학식 (5)로 표시되는 아민 화합물에 있어서 복수의 상이한 종류의 R^1 내지 R^4 에 대응시키도록 R^{1a} 내지 R^{4a} 를 결정한다. Z^a 는 할로겐 원자이며, 예를 들면 Cl, Br, I, 바람직하게는 Br, I이다. X^a 는 화학식 (1)로 정의한 X와 동일한 치환기를 나타낸다.

[0093] o 는 0 내지 2의 정수를 나타내며, 화학식 (1) 중의 n 과, $o=(n-1)/2$ 를 만족시킨다. 즉, 본 실시 형태에 의한 제조 방법으로 제조한 경우에는, 1분자의 화학식 (4)로 표시되는 아민 화합물과, 2분자의 화학식 (5)로 표시되는 방향족 할로겐 화합물이 반응하여 화학식 (1)로 표시되는 형광성 화합물을 제조할 수 있다.

[0094] 상기 화학식 (5)로 표시되는 방향족 할로겐 화합물은 통상법에 따라 당업자가 적절하게 합성함으로써 준비할 수 있다.

[0095] 다음으로, 화학식 (4)로 표시되는 아민 화합물과 화학식 (5)로 표시되는 방향족 할로겐 화합물을 전이 금속 촉매 존재하에서 반응시키는 공정에 있어서, 사용하는 전이 금속 촉매로서는 팔라듐 촉매, 루테튬 촉매, 로듐 촉매, 백금 촉매, 코발트 촉매, 니켈 촉매를 들 수 있다. 이들 전이 금속 촉매 중에서도, 팔라듐 촉매를 이용하는 것이 바람직하다.

- [0096] 팔라듐 촉매의 구체예로서는 디- μ -클로로비스[(η -알릴)팔라듐(II)], 아세트산팔라듐, 트리스(디벤질리텐아세톤)디팔라듐(0), 비스(벤조니트릴)디클로로팔라듐(II), 트랜스-디클로로비스(트리페닐포스핀)팔라듐(II), 디클로로(η -시클로옥타-1,5-디엔)팔라듐(II), 트랜스-디- μ -브로모-비스[o-(디메틸포스피노)-3,5-디메틸벤질]디팔라듐(II), 트랜스-디- μ -클로로-비스[o-(디메틸포스피노)-3,5-디메틸벤질]디팔라듐(II), 트랜스-디- μ -요오도-비스[o-(디메틸포스피노)-3,5-디메틸벤질]디팔라듐(II), 트랜스-디- μ -아세테이트-비스[o-(t-부틸-o-톨릴포스피노)벤질]디팔라듐(II), 트랜스-디- μ -아세테이트-비스[o-(디-t-부틸포스피노)벤질]디팔라듐(II), 트랜스-디- μ -아세테이트-비스[o-(디-o-톨릴포스피노)벤질]디팔라듐(II) 등을 들 수 있다.
- [0097] 전이 금속 촉매의 사용량은 특별히 한정되지 않지만, 화학식 (4)로 표시되는 아민 화합물 1몰에 대하여 0.000001 내지 0.01몰의 범위로 하는 것이 바람직하고, 0.00001 내지 0.001몰의 범위로 하는 것이 더욱 바람직하다.
- [0098] 상기 제1 제조 방법에서는, 반응을 행할 때에 배위자를 첨가할 수도 있다. 이러한 배위자의 예로서는 1,1'-비스(디페닐포스피노)페로센, 2-(디-tert-부틸포스피노-2'-메틸비페닐, 2-(디-tert-부틸포스피노)비페닐, 트리페닐포스핀, 트리-o-톨릴포스핀, 트리부틸포스핀, 트리-tert-부틸포스핀, 트리스클로헥실포스핀, 디-tert-부틸포스피노비페닐, 디시클로헥실포스피노비페닐, 아인산트리페닐 등의 인 화합물을 들 수 있다. 이들 배위자의 사용량은, 촉매로서 첨가하는 전이 금속 원자에 대하여 0.5 내지 2당량으로 하는 것이 바람직하고, 0.8 내지 1.5당량으로 하는 것이 보다 바람직하다. 배위자의 첨가는 전이 금속 촉매의 첨가와 동시에 실시할 수 있다.
- [0099] 제1 제조 방법에서는, 반응을 행할 때에 염기를 첨가하는 것이 바람직하다. 염기로서는 수산화나트륨, 수산화칼륨, 탄산나트륨, 탄산칼륨, 탄산세슘, 탄산수소나트륨, 탄산수소칼륨 등의 무기염, 나트륨메톡사이드, 칼륨메톡사이드, 나트륨에톡사이드, 칼륨에톡사이드 등의 금속 알콕사이드, 메틸아민, 디에틸아민, 트리에틸아민, 피리딘 등의 유기 염기를 들 수 있다. 염기의 사용량은 화학식 (4)로 표시되는 아민 화합물 1몰에 대하여 0.1 내지 10몰로 하는 것이 바람직하고, 1 내지 3몰로 하는 것이 보다 바람직하다. 염기의 첨가는 촉매나 배위자와 동시에 첨가하는 것이 바람직하다.
- [0100] 화학식 (4)로 표시되는 아민 화합물과 화학식 (5)로 표시되는 방향족 할로젠 화합물의 반응시의 배합비는 특별히 한정되지 않다. 반응성, 생산성의 점에서는, 화학식 (4)로 표시되는 아민 화합물 1몰에 대하여 화학식 (5)로 표시되는 방향족 할로젠 화합물은 1.5 내지 4몰로 하는 것이 바람직하고, 2.0 내지 3.0몰로 하는 것이 보다 바람직하다.
- [0101] 제1 제조 방법에 있어서의 반응 온도는 0 내지 300℃로 하는 것이 바람직하고, 80 내지 150℃로 하는 것이 보다 바람직하다. 반응 시간은 0.1 내지 20시간으로 하는 것이 바람직하고, 1 내지 3시간으로 하는 것이 보다 바람직하다. 그러나, 반응 온도 및 반응 시간은 당업자가 적절하게 이것을 결정할 수 있으며, 상기 범위로 한정되지 않는다.
- [0102] 반응 용매로서는 에테르계나 탄화수소계 용매, 비양성자성 극성 용매를 사용할 수 있다. 구체적으로는 펜탄, 헥산, 디에틸에테르, 테트라히드로푸란, 디옥산, 톨루엔, 크실렌, 메시틸렌, 아세토니트릴, N,N-디메틸포름아미드, N,N-디메틸아세트아미드 또는 이들의 혼합 용매 등을 들 수 있다. 이들 중에서도, 특히 톨루엔, 크실렌, 메시틸렌을 이용하는 것이 바람직하다.
- [0103] 상기 제조 방법에 의해 제조된 화학식 (1)로 표시되는 형광성 화합물은 상술한 정제 방법에 의해 정제할 수 있다.
- [0104] [제2 제조 방법]
- [0105] 다음으로, 화학식 (1)에 있어서, R^2 중 적어도 하나가 화학식 (2)로 표시되는 아민 함유기이며, R^5 중 어느 하나 이상이 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기인 경우의 형광성 화합물의 제조 방법에 대하여 설명한다. 이러한 특징을 갖는 형광성 화합물의 제조 방법을, 본 명세서에 있어서 「제2 제조 방법」이라고 지칭한다.
- [0106] 제2 제조 방법은 상기 화학식 (6)으로 표시되는 아민 화합물과 상기 화학식 (7)로 표시되는 방향족 할로젠 화합물을 전이 금속 촉매 존재하에서 반응시키는 공정을 포함한다.
- [0107] 화학식 (6) 중, R^{5b} 는 화학식 (2)에 있어서의 R^5 와 동일하고, R^{5b} 중 어느 하나가 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기이다. 따라서, 제조 목적물인 화학식 (1)로 표시되는 형광성 화합물에 있어서, 실록산 함유기를 도입하는 개소에 대응하는 R^{5b} 는 실록산 함유기일 필요가 있다. 또한, 제조 목적물인 화학식 (2)에 있어서 복수의

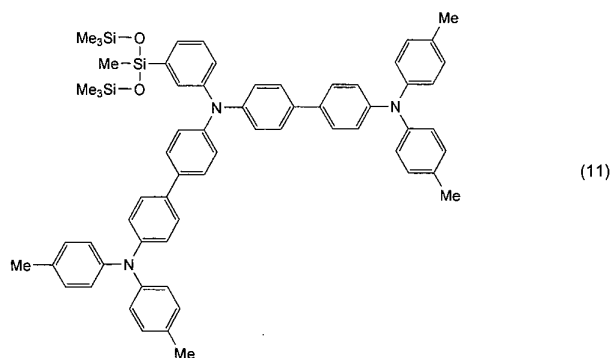
상이한 종류의 R^5 가 존재하는 경우에는, 출발 물질의 화학식 (6)으로 표시되는 아민 화합물에 있어서 복수의 상이한 종류의 R^5 에 대응시키도록 R^{5b} 를 결정한다.

- [0108] 화학식 (6)으로 표시되는 아민 화합물은 통상법에 따라 당업자가 적절하게 합성함으로써 준비할 수 있다.
- [0109] 화학식 (7) 중, R^{1b} 내지 R^{4b} 는 화학식 (1)에 있어서의 R^1 내지 R^4 와 동일하다. 여기에서도, 목적물인 화학식 (1)로 표시되는 형광성 화합물에 있어서 복수의 상이한 종류의 R^1 내지 R^4 가 존재하는 경우에는, 출발 물질의 화학식 (7)로 표시되는 방향족 할로젠 화합물에 있어서 복수의 상이한 종류의 R^1 내지 R^4 에 대응시키도록 R^{1b} 내지 R^{4b} 를 결정한다. 단, R^{2b} 중 적어도 하나는 화학식 (8)로 표시되는 치환기를 나타낸다. 여기에서도, 목적물인 화학식 (1)로 표시되는 형광성 화합물에 있어서, 화학식 (2)로 표시되는 아민 함유기가 도입되는 R^2 에 대응하는 R^{2b} 가 화학식 (8)로 표시되는 치환기일 필요가 있다. X^b 는 화학식 (1)에 있어서의 X 와 동일하다. n^b 는 화학식 (1)에 있어서의 n 과 동일하다.
- [0110] 화학식 (8) 중, R^{6b} 는 화학식 (2)에 있어서의 R^6 과 동일하다. 제조 목적물인 화학식 (2)에 있어서 복수의 상이한 종류의 R^6 이 존재하는 경우에는, 출발 물질의 화학식 (8)에 있어서 복수의 상이한 종류의 R^6 에 대응시키도록 R^{6b} 를 결정한다. m^b 는 화학식 (2)에 있어서의 m 과 동일하다. Z^b 는 할로젠 원자이고, 예를 들면 Cl, Br, I, 바람직하게는 Br, I이다.
- [0111] 상기 화학식 (7)로 표시되는 방향족 할로젠 화합물은 통상법에 따라 당업자가 적절하게 합성함으로써 준비할 수 있다.
- [0112] 제2 제조 방법에 있어서도 상기 출발 물질을 제외하고, 제1 제조 방법과 대강 동일한 조건으로 동일하게 하여 반응을 실시할 수 있다. 화학식 (6)으로 표시되는 아민 화합물과 화학식 (7)로 표시되는 방향족 할로젠 화합물을 전이 금속 촉매 존재하에서 반응시키는 공정에서는, 상기 제1 제조 방법에 있어서 설명한 것과 마찬가지로 전이 금속 촉매를 이용할 수 있다. 또한, 그의 사용량은 화학식 (7)로 표시되는 방향족 할로젠 화합물 1몰에 대하여 0.000001 내지 0.01몰로 하는 것이 바람직하고, 0.00001 내지 0.001몰의 범위로 하는 것이 더욱 바람직하다.
- [0113] 제2 제조 방법에 있어서도, 상기 제1 제조 방법에 있어서 설명한 것과 마찬가지로 배위자를 사용할 수 있다. 그의 사용량에 대해서도, 상기 제1 제조 방법에 있어서 설명한 것과 마찬가지로, 촉매로서 첨가한 화합물의 전이 금속 원자에 대하여 0.5 내지 2당량으로 하는 것이 바람직하고, 0.8 내지 1.5당량으로 하는 것이 더욱 바람직하다.
- [0114] 제2 제조 방법에 있어서도, 화학식 (6)으로 표시되는 아민 화합물과 화학식 (7)로 표시되는 방향족 할로젠 화합물을 전이 금속 촉매 존재하에서 반응시키는 공정에서는, 부가적으로 염기를 첨가하는 것이 바람직하다. 염기로서는, 상기 제1 제조 방법에 있어서 설명한 것과 마찬가지로 것을 이용할 수 있다. 염기의 사용량은 화학식 (7)의 화합물 1몰에 대하여 0.1 내지 10몰로 하는 것이 바람직하고, 1 내지 3몰로 하는 것이 보다 바람직하다. 염기의 첨가는, 상기 제1 제조 방법에 있어서 설명한 것과 마찬가지로 시점에서 행할 수 있다.
- [0115] 화학식 (6)으로 표시되는 아민 화합물과 화학식 (7)로 표시되는 방향족 할로젠 화합물의 배합비는 특별히 한정되지 않는다. 반응성, 생산성의 점에서는, 화학식 (7)로 표시되는 방향족 할로젠 화합물 1몰에 대하여, 화학식 (6)으로 표시되는 아민 화합물은 1.5 내지 4몰로 하는 것이 바람직하고, 2.0 내지 3.0몰로 하는 것이 더욱 바람직하다.
- [0116] 제2 제조 방법에 있어서의 반응 온도도 또한 0 내지 300℃로 하는 것이 바람직하고, 80 내지 150℃로 하는 것이 보다 바람직하다. 반응 시간은 0.1 내지 20시간으로 하는 것이 바람직하고, 1 내지 3시간으로 하는 것이 보다 바람직하다. 그러나, 반응 온도 및 반응 시간은 당업자가 적절하게 이것을 결정할 수 있으며, 상기 범위로 한정되지 않는다. 반응 용매로서는, 상기 제1 제조 방법에 있어서 설명한 것과 마찬가지로 것을 이용할 수 있다.
- [0117] 제2 제조 방법에 의해 제조된 화학식 (1)로 표시되는 형광성 화합물은 상술한 정제 방법에 의해 정제할 수 있다.
- [0118] [제3 제조 방법]

- [0119] 화학식 (1)에 있어서, n 이 0이고, R^2 중 어느 하나 이상이 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기인 경우의 형광성 화합물의 제조 방법에 대하여 설명한다. 이러한 특징을 갖는 형광성 화합물의 제조 방법을, 본 명세서에 있어서 「제3 제조 방법」이라고 지칭한다.
- [0120] 제3 제조 방법은 상기 화학식 (10)으로 표시되는 아민 화합물과 상기 화학식 (9)로 표시되는 방향족 할로젠 화합물을 전이 금속 촉매 존재하에서 반응시키는 공정을 포함한다.
- [0121] 화학식 (9) 중, X^c 은 각각 화학식 (1)에 있어서의 X 와 동일하고, Z^c 는 할로젠 원자이고, 예를 들면 Cl , Br , I , 바람직하게는 Br , I 이다. 상기 화학식 (9)로 표시되는 방향족 할로젠 화합물은 통상법에 따라 당업자가 적절하게 합성함으로써 준비할 수 있다.
- [0122] 화학식 (10) 중, R^{1c} , R^{2c} 는 각각 화학식 (1)에 있어서의 R^1 , R^2 와 동일하고, 목적물인 화학식 (1)로 표시되는 형광성 화합물에 있어서 복수의 상이한 종류의 R^1 , R^2 가 존재하는 경우에는, 출발 물질의 화학식 (10)으로 표시되는 아민 화합물에 있어서 복수의 상이한 종류의 R^1 , R^2 에 대응시키도록 R^{1c} , R^{2c} 를 결정한다. 또한, 제조 목적물인 화학식 (1)로 표시되는 형광성 화합물에 있어서 실록산 함유기가 도입되어 있는 개소에 대응하는, 출발 물질의 화학식 (10)에 있어서의 R^{2c} 는 실록산 함유기일 필요가 있다. 화학식 (10)으로 표시되는 아민 화합물은 통상법에 따라 당업자가 적절하게 합성함으로써 준비할 수 있다.
- [0123] 제3 제조 방법에 있어서도, 상기 출발 물질을 제외하고, 제1 제조 방법 또는 제2 제조 방법과 대강 동일한 조건으로 동일하게 하여 반응을 실시할 수 있다. 제3 제조 방법에서 이용하는 전이 금속 촉매의 사용 방법 및 사용량, 배위자의 사용 방법 및 사용량, 염기의 사용 방법 및 사용량, 용매, 반응 조건 등은 제1 제조 방법 또는 제2 제조 방법과 마찬가지로 실시할 수 있다. 또한, 제3 제조 방법에 의해 제조된 화학식 (1)로 표시되는 형광성 화합물은 상술한 정제 방법에 의해 정제할 수 있다.
- [0124] [형광성 수지 조성물]
- [0125] 다음으로, 본 발명의 별도의 실시 형태에 의한 형광성 수지 조성물에 대하여 설명한다. 본 실시 형태에 의한 형광성 수지 조성물은 본 발명의 형광성 화합물과 수지를 포함하여 이루어진다.
- [0126] 본 발명의 형광성 화합물에 대해서는, 상기 실시 형태에 있어서 화학식 (1)로 표시하여 설명한 바와 같다. 본 실시 형태에 의한 형광성 수지 조성물은 화학식 (1)로 표시된 형광성 화합물의 1종만을 포함할 수도 있고, 2종 이상을 포함할 수도 있다. 또한, 화학식 (1)로 표시된 형광성 화합물을 적어도 1종 포함하고 있으면, 화학식 (1) 이외의 구조를 갖는 형광성 화합물을 포함할 수도 있다.
- [0127] 형광성 수지 조성물에 있어서 매트릭스가 되는 수지는 특정한 수지로 한정되지 않지만, 예를 들면 폴리에틸렌, 폴리프로필렌, 폴리스티렌, 시클로올레핀 중합체, 폴리아크릴레이트, 폴리염화비닐, 폴리카보네이트, 폴리에스테르, 폴리아미드, 폴리이미드, 폴리비닐알코올, 실리콘 수지, 에틸렌-비닐알코올 공중합 수지, 에틸렌-아세트산 비닐 공중합 수지, ABS 수지, 에폭시 수지, 페놀 수지, 멜라민 수지, 폴리우레탄 등의 열가소성 또는 열경화성 수지, 천연 고무, 니트릴 고무, 우레탄 고무, EPDM, 스티렌부타디엔 고무, 불소 고무, 실리콘 고무 등의 엘라스토머 등을 들 수 있다. 특히는 실리콘 오일, 실리콘 고무, 실리콘 레진, 실리콘 겔 등의 실리콘 수지가 바람직하다.
- [0128] 본 발명의 형광성 수지 조성물은 액체, 고체, 고무, 겔 등 중 어느 상태일 수도 있다. 형광성 수지 조성물의 상태는 매트릭스 수지의 상태에 따라 또는 후술하는 임의 성분에서 당업자가 적절하게 조절할 수 있다. 또한, 본 발명의 형광성 수지 조성물 중에서는, 형광성 화합물은 응집하지 않고 균일하게 분산되어 있는 것이 바람직하다. 형광성 화합물을 균일하게 분산하기 위해서는, 형광성 수지 조성물의 제조 방법에 있어서 가열하거나 또는 균일해질 때까지 천천히 교반하는 공정을 포함하는 것이 바람직하다.
- [0129] 본 발명의 형광성 수지 조성물에 있어서, 형광성 화합물의 함유량은 임의이지만, 통상 조성물 전체를 100%로 하였을 때에, 예를 들면 0.001 내지 10질량%, 바람직하게는 0.01 내지 5질량%, 보다 바람직하게는 0.1 내지 5질량%이다. 매트릭스 수지에 상용하는 범위에서 형광성 화합물의 함유량을 결정하는 것이 바람직하다. 따라서, 형광성 수지 조성물에 있어서 형광성 화합물의 함유량은 형광성 화합물의 성질이나 매트릭스 수지의 성질에 따르지만, 형광성 화합물의 함유량이 너무 많으면 농도 소광에 의해 형광 강도가 저하되는 경우가 있고, 함유량이 너무 적으면 형광 강도가 충분하지 않게 되는 경우가 있다.

- [0130] 본 실시 형태에 따른 형광성 수지 조성물에는 형광성 화합물과 수지 이외에 임의 성분을 포함하고 있을 수도 있다. 임의 성분으로서는, 예를 들면 물, 메탄올, 에탄올, 헥산, 이소옥탄, 데칸, 톨루엔, 크실렌, 디메틸포름아미드, 디메틸아세트아미드, 메틸피롤리돈, 디메틸술폰 등 용매, 실리카겔, 산화티탄, 산화아연, 카본, 수산화마그네슘 등의 충전제, 실란 커플링제나 테트라메톡시실란, 테트라에톡시실란, 헥사메틸디실록산, 데카메틸시클로펜타실록산 등의 규소 화합물, 아조비스이소부티로니트릴이나 과산화벤조일 등의 라디칼 중합 개시제, 2-히드록시-2-메틸프로피오페논, 디페닐요도늄헥사플루오로포스페이트 등의 광 중합 개시제, 염화백금산, 백금(0)디비닐테트라메틸디실록산 착체, 벤질리덴디클로로비스(트리시클로헥실포스핀)루테튬 등의 금속 화합물, 유리 섬유나 탄소 섬유 등의 섬유, 벤조페논 유도체나 힌더드아민 화합물 등의 자외선 흡수제 및 광 안정제, 프탈산에스테르나 아디프산에스테르 등의 가소제, 인산에스테르 등의 난연제 등을 들 수 있다.
- [0131] 이들 임의 성분의 함유량은 조성물의 발광 특성을 방해하지 않는 범위에서 임의로 결정할 수 있다. 통상, 형광성 수지 조성물 전체의 질량에 대하여 0.01 내지 80질량% 범위의 임의 성분을 포함할 수도 있지만, 이 범위로 한정되지 않는다.
- [0132] 다음으로, 본 실시 형태에 의한 형광성 수지 조성물을 제조 방법의 관점에서 설명한다. 형광성 수지 조성물의 제조 방법은 형광성 화합물과 수지를 혼합하는 공정을 포함하여 이루어진다. 형광성 화합물과 수지를 혼합하는 공정으로서는, 예를 들면 수지와 형광성 화합물을 혼련하여 분산시키는 것을 들 수 있다. 그 외에는, 액상의 수지 단량체나 예비 중합체에 형광성 화합물을 미리 혼합 용해시키고 나서 부가 중합 또는 축중합시키는 방법이나, 수지 바니시에 형광성 화합물을 용해시키는 방법 등을 들 수 있다. 어느 방법이나 당업자이면 통상법에 따라 실시할 수 있다.
- [0133] 본 실시 형태에 따른 형광성 수지 조성물에 있어서는, 구성 성분인 형광성 화합물과 수지의 상용성이 높고, 수지 자체의 투명성을 손상시키지 않고 착색된 형광성 수지 조성물로 되어 있다. 그 때문에, 형광 잉크나 파장 변환 재료, 색소 레이저 등의 여러 용도에 있어서 넓게 이용할 수 있다.
- [0134] [실시에]
- [0135] 다음으로, 본 발명을 실시예 및 비교예에 의해 더욱 구체적으로 설명하지만, 본 발명은 이하의 실시예에 의해 전혀 한정되지 않는다. 이하의 구조식 중, Me는 메틸기를 나타낸다.
- [0136] [실시에 1] N,N-비스[4'-(N',N'-디-4-톨릴아미노)비페닐-4-일]-3-(1-트리메틸실록시-1,3,3,3-테트라메틸디실록산-1-일)아닐린(화합물 1)의 합성
- [0137] 100ml의 3구 플라스크에 환류 냉각기, 교반기를 부착하고, 내부를 질소 치환하였다. 이 플라스크에 4'-(N,N-디-4-톨릴아미노)-4-브로모비페닐 921.1mg(2.15mmol), 3-(1-트리메틸실록시-1,3,3,3-테트라메틸디실록산-1-일)아닐린 315.5mg(1.09mmol), 나트륨-tert-부톡시드 460.6mg(4.79mmol), 1,1-비스(디페닐포스피노)페로센 82.1mg(0.15mmol), 트리스(디벤질리덴아세톤)(클로로포름)디팔라듐(0) 77.1mg(0.074mmol)과 메시틸렌 8ml를 투입하고, 115℃에서 1.5시간 교반하였다. 얻어진 용액을 감압 농축하고, 물과 톨루엔을 첨가한 후, 분액 조작에 의해 유기층을 추출하였다. 얻어진 용액을 황산마그네슘에 의해 건조하고, 회전 증발기로 감압 농축한 후, 실리카 겔 칼럼 크로마토그래피 및 분취 액체 크로마토그래피에 의해 정제하여 담황색 고체 704.9mg을 얻었다.
- [0138] 상기 고체의 NMR 스펙트럼 및 MALDI-TOFMS 스펙트럼을 측정한 결과, N,N-비스[4'-(N',N'-디-4-톨릴아미노)비페닐-4-일]-3-(1-트리메틸실록시-1,3,3,3-테트라메틸디실록산-1-일)아닐린인 것이 확인되었다.
- $^1\text{H-NMR}$ (600MHz, δ in CDCl_3) : 0.03 (s, 18H), 0.23 (s, 3H), 2.32 (s, 12H), 7.01-7.10 (m, 20H), 7.12-7.29 (m, 7H), 7.32 (br s, 1H), 7.39-7.46 (m, 8H)
- [0139] MALDI-TOFMS m/z : 1007.4 (M^+)

[0140] 실시예 1에서 제조된 화합물 1의 구조를 하기 화학식 (11)에 나타낸다.



[0141]

[0142] 화합물 1의 자외 가시 흡수 스펙트럼 및 형광 스펙트럼을 에탄올 중에서 측정하였다. 최장 흡수 극대 파장은 359nm, 물 흡광 계수는 6.50×10^4 이고, 최대 형광 파장은 410nm(여기 파장: 359nm)였다.

[0143] [실시예 2] N,N'-비스[페닐-3-(1-트리메틸실록시-1,3,3,3-테트라메틸디실록산-1-일)페닐아미노비페닐-4'-일]-N,N'-디페닐벤지딘(화합물 2)의 합성

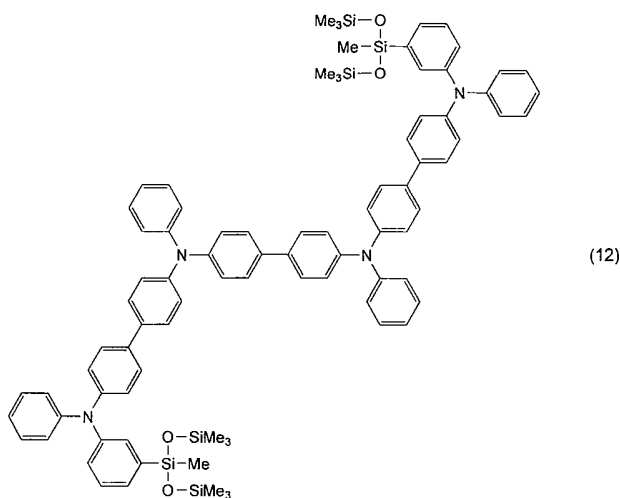
[0144] 100ml의 3구 플라스크에 환류 냉각기, 교반기를 부착하고, 내부를 질소 치환하였다. 이 플라스크에 N,N'-비스(4'-브로모비페닐-4-일)-N,N'-디페닐벤지딘 386.2mg(0.48mmol), 페닐-3-(1-트리메틸실록시-1,3,3,3-테트라메틸디실록산-1-일)아민 409.4mg(1.05mmol), 나트륨-tert-부톡시드 214.4mg(2.23mmol), 1,1-비스(디페닐포스포노)페로센 61.9mg(0.11mmol), 트리스(디벤질리텐아세톤)(클로로포름)디팔라듐(0) 50.1mg(0.048mmol)과 메시틸렌 8ml를 투입하고, 110℃에서 3.5시간 교반하였다. 얻어진 용액을 감압 농축하고, 물과 톨루엔을 첨가한 후, 분액 조작에 의해 유기층을 추출하였다. 얻어진 용액을 황산마그네슘에 의해 건조하고, 회전 증발기로 감압 농축한 후, 실리카 겔 칼럼 크로마토그래피 및 분취 액체 크로마토그래피에 의해 정제하여 담황색 고체 437.4mg을 얻었다.

[0145] 상기 고체의 NMR 스펙트럼 및 MALDI-TOFMS 스펙트럼을 측정한 결과, N,N'-비스[페닐-3-(1-트리메틸실록시-1,3,3,3-테트라메틸디실록산-1-일)페닐아미노비페닐-4'-일]-N,N'-디페닐벤지딘인 것이 확인되었다.

$^1\text{H-NMR}$ (600MHz, δ in CDCl_3) : 0.03 (s, 36H), 0.22 (s, 6H), 6.98-7.32 (m, 40H), 7.42-7.50 (m, 12H)

[0146] MALDI-TOFMS m/z : 1415.6 (M^+)

[0147] 실시예 2에서 제조된 화합물 2의 구조를 하기 화학식 (12)에 나타낸다.



[0148]

[0149] 화합물 2의 자외 가시 흡수 스펙트럼 및 형광 스펙트럼을 에탄올 중에서 측정하였다. 최장 흡수 극대 파장은 359nm, 물 흡광 계수는 7.88×10^4 이고, 최대 형광 파장은 410nm(여기 파장: 359nm)였다.

[0150] [실시예 3] N,N'-비스[4'-(N'-페닐-N'-4'-디페닐아미노비페닐-4-일)비페닐-4-일]-3-(1-트리메틸실록시-1,3,3,3-

테트라메틸디실록산-1-일)아닐린(화합물 3)의 합성

[0151] 100ml의 3구 플라스크에 환류 냉각기, 교반기를 부착하고, 내부를 질소 치환하였다. 이 플라스크에 N-(4'-브로모비페닐-4-일)-N',N',N'-트리페닐벤지딘 665.8mg(1.03mmol), 페닐-3-(1-트리메틸실록시-1,3,3,3-테트라메틸디실록산-1-일)아민 108.4mg(0.45mmol), 나트륨-tert-부톡시드 211.5mg(2.20mmol), 트리-tert-부틸포스핀 21.0mg(0.10mmol), 트리스(디벤질리덴아세톤)(클로로포름)디팔라뒀(0) 42.1mg(0.041mmol)과 메시틸렌 5ml를 투입하고, 120℃에서 3.5시간 교반하였다. 얻어진 용액을 감압 농축하고, 물과 톨루엔을 첨가한 후, 분액 조작에 의해 유기층을 추출하였다. 얻어진 용액을 황산마그네슘에 의해 건조하고, 회전 증발기로 감압 농축한 후, 실리카 겔 칼럼 크로마토그래피 및 분취 액체 크로마토그래피에 의해 정제하여 담황색 고체 353.2mg을 얻었다.

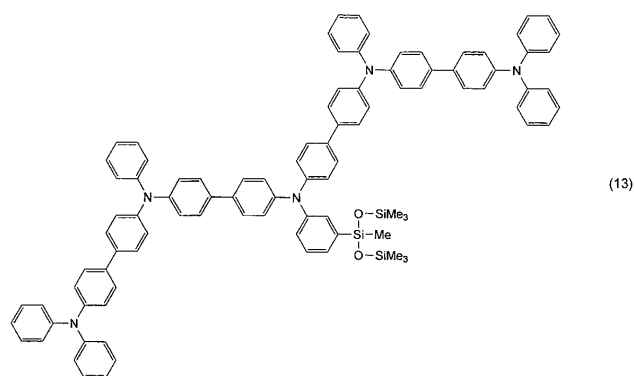
[0152] 상기 고체의 NMR 스펙트럼 및 MALDI-TOFMS 스펙트럼을 측정한 결과, N,N-비스[4'-(N'-페닐-N'-4'-디페닐아미노비페닐-4-일)비페닐-4-일]-3-(1-트리메틸실록시-1,3,3,3-테트라메틸디실록산-1-일)아닐린인 것이 확인되었다.

[0153] $^1\text{H-NMR}$ (600MHz, δ in CDCl_3) : 0.03 (s, 18H), 0.23 (s, 3H), 7.00-7.07 (m, 28H), 7.09-7.23 (m, 2

8H), 7.24-7.32 (m, 16H), 7.43-7.51 (m, 16H)

[0154] MALDI-TOFMS m/z : 1437.6 (M^+)

[0155] 실시예 3에서 제조된 화합물 3의 구조를 하기 화학식 (13)에 나타낸다.



[0156]

[0157] 화합물 3의 자외 가시 흡수 스펙트럼 및 형광 스펙트럼을 테트라히드로푸란 중에서 측정하였다. 최장 흡수 극대 파장은 363nm, 물 흡광 계수는 2.65×10^4 이고, 최대 형광 파장은 413nm(여기 파장: 363nm)였다.

[0158] [실시예 4] N,N-비스[4'-(N'-페닐-N'-4'-디페닐아미노비페닐-4-일)비페닐-4-일]-3-(펜타메틸디실록산-1-일)아닐린(화합물 4)의 합성

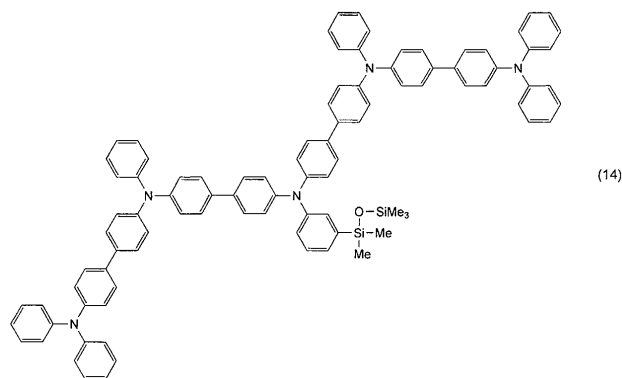
[0159] 100ml의 3구 플라스크에 환류 냉각기, 교반기를 부착하고, 내부를 질소 치환하였다. 이 플라스크에 N-(4'-브로모비페닐-4-일)-N',N',N'-트리페닐벤지딘 583.2mg(0.90mmol), 페닐-3-(펜타메틸디실록산-1-일)아민 118.7mg(0.41mmol), 나트륨-tert-부톡시드 203.6mg(2.12mmol), 트리-tert-부틸포스핀 14.0mg(0.069mmol), 트리스(디벤질리덴아세톤)(클로로포름)디팔라뒀(0) 31.4mg(0.030mmol)과 메시틸렌 5ml를 투입하고, 125℃에서 1.5시간 교반하였다. 얻어진 용액을 감압 농축하고, 물과 톨루엔을 첨가한 후, 분액 조작에 의해 유기층을 추출하였다. 얻어진 용액을 황산마그네슘에 의해 건조하고, 회전 증발기로 감압 농축한 후, 실리카 겔 칼럼 크로마토그래피 및 분취 액체 크로마토그래피에 의해 정제하여 담황색 고체 308.1mg을 얻었다.

[0160] 상기 고체의 NMR 스펙트럼 및 MALDI-TOFMS 스펙트럼을 측정한 결과, N,N-비스[4'-(N'-페닐-N'-4'-디페닐아미노비페닐-4-일)비페닐-4-일]-3-(펜타메틸디실록산-1-일)아닐린인 것이 확인되었다.

[0161] $^1\text{H-NMR}$ (600MHz, δ in CDCl_3) : 0.02 (s, 9H), 0.28 (s, 6H), 7.11-7.24 (m, 28H), 7.25-7.32 (m, 14H), 7.35-7.37 (m, 1H), 7.44-7.52 (m, 16H)

MALDI-TOFMS m/z : 1364.7 (M^+)

[0162] 실시예 4에서 제조된 화합물 4의 구조를 하기 화학식 (14)에 나타낸다.



[0163]

[0164] 화합물 4의 자외 흡수 스펙트럼 및 형광 스펙트럼을 테트라히드로푸란 중에서 측정하였다. 최장 흡수 극대 파장은 363nm, 물 흡광 계수는 2.83×10^4 이고, 최대 형광 파장은 413nm(여기 파장: 363nm)였다.

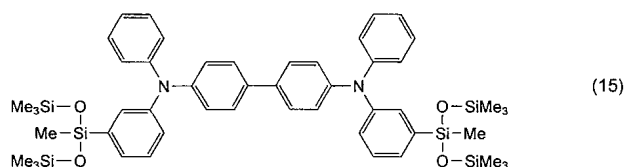
[0165] [실시예 5] N,N'-디페닐-N,N'-디-[3-(1-트리메틸실록시-1,3,3,3-테트라메틸디실록산-1-일)페닐]-벤지딘의 합성

[0166] 100ml의 3구 플라스크에 환류 냉각기, 교반기를 부착하고, 내부를 질소 치환하였다. 이 플라스크에 4,4'-디브로모비페닐 71.3mg(0.23mmol), 페닐-3-(1-트리메틸실록시-1,3,3,3-테트라메틸디실록산-1-일)페닐아민 197.3mg(0.51mmol), 나트륨-tert-부톡시드 150.8mg(0.63mmol), 트리-tert-부틸포스핀 7.5mg(0.037mmol), 트리스(디벤질리덴아세톤)(클로로포름)디팔라듬(0) 24.8mg(0.024mmol)과 메시틸렌 3ml를 투입하고, 110℃에서 7시간 교반하였다. 얻어진 용액을 감압 농축하고, 물과 톨루엔을 첨가한 후, 분액 조작에 의해 유기층을 추출하였다. 얻어진 용액을 황산마그네슘에 의해 건조하고, 회전 증발기로 감압 농축한 후, 실리카 겔 칼럼 크로마토그래피 및 분취 액체 크로마토그래피에 의해 정제하여 무색 액체 332.0mg을 얻었다.

[0167] 상기 액체의 MALDI-TOFMS 스펙트럼을 측정한 결과, N,N'-디페닐-N,N'-디-[3-(1-트리메틸실록시-1,3,3,3-테트라메틸디실록산-1-일)페닐]-벤지딘인 것이 확인되었다.

[0168] MALDI-TOFMS m/z : 929.5 (M^+)

[0169] 실시예 5에서 제조된 화합물 5의 구조를 하기 화학식 (15)에 나타낸다.



[0170]

[0171] [실시예 6] 화합물 1을 함유하는 실리콘 수지 조성물의 제조

[0172] 유리 바이알 중에서 실시예 1에서 제조한 화합물 1을 10.1mg 칭량하고, 투명 실리콘 수지 SIM-360 주재(신에쓰가가꾸고교(주) 제조)를 실온하에서 교반하면서 소량씩 첨가하였다. 용액이 투명졌을 때에 용해되었다고 판단하여, 용해도를 계산하면 1mmol/L였다. 이 혼합물에 주재에 대하여 10질량%의 경화제를 첨가하여 혼합하고, 탈포 후에 150℃에서 30분 가열하여 경화시켜 형광성의 실리콘 수지 조성물을 얻었다. 또한, 화합물 1의 농도는 상기한 농도 이하에서 임의로 변경하는 것이 가능하였다.

[0173] [실시예 7] 화합물 2를 함유하는 실리콘 수지 조성물의 제조

[0174] 실시예 6과 마찬가지로 하여 화합물 2의 SIM-360 주재에 대한 용해도를 측정한 결과, 0.5mmol/L였다. 이 혼합물에 주재에 대하여 10질량%의 경화제를 첨가하여 혼합하고, 탈포 후에 150℃에서 30분 가열하여 경화시켜 형광성의 실리콘 수지 조성물을 얻었다. 또한, 화합물 2의 농도는 상기한 농도 이하에서 임의로 변경하는 것이 가능하였다.

[0175] [실시예 8] 화합물 3을 함유하는 실리콘 수지 조성물의 제조

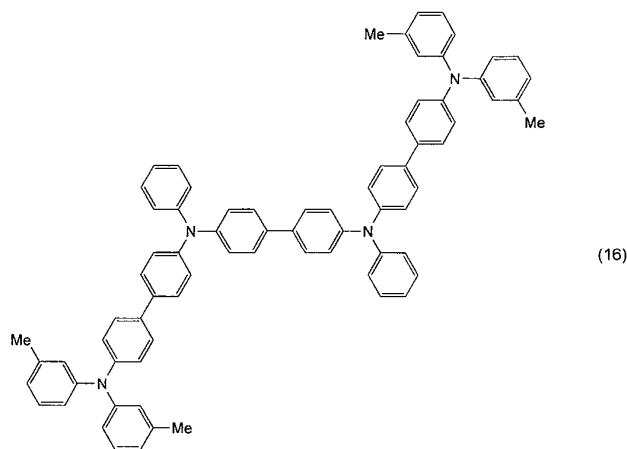
[0176] 실시예 6과 마찬가지로 하여 화합물 3의 SIM-360 주제에 대한 용해도를 측정한 결과, 0.1mmol/L였다. 이 혼합물에 주제에 대하여 10질량%의 경화제를 첨가하여 혼합하고, 탈포 후에 150℃에서 30분 가열하여 경화시켜 형광성의 실리콘 수지 조성물을 얻었다. 또한, 화합물 3의 농도는 상기한 농도 이하에서 임의로 변경하는 것이 가능하였다.

[0177] [실시예 9] 화합물 4를 함유하는 실리콘 수지 조성물의 제조

[0178] 실시예 6과 마찬가지로 하여 화합물 4의 SIM-360 주제에 대한 용해도를 측정한 결과, 0.1mmol/L였다. 이 혼합물에 주제에 대하여 10질량%의 경화제를 첨가하여 혼합하고, 탈포 후에 150℃에서 30분 가열하여 경화시켜 형광성의 실리콘 수지 조성물을 얻었다. 또한, 화합물 4의 농도는 상기한 농도 이하에서 임의로 변경하는 것이 가능하였다.

[0179] [비교예 1] 화합물 6의 실리콘 수지에 대한 용해도 측정

[0180] 본 비교예 1에서 사용한 화합물 6의 구조를 하기 화학식 (16)에 나타낸다. 실시예 6과 마찬가지로 하여 화합물 6의 SIM-360 주제에 대한 용해도를 측정한 결과, 백탁 상태가 되어 전혀 용해되지 않았다.



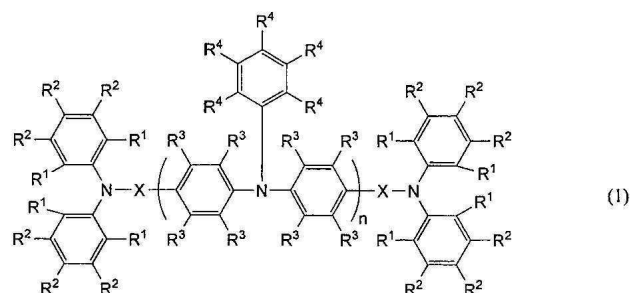
[0181]

산업상 이용가능성

[0182] 본 발명의 형광성 화합물은, 예를 들면 실리콘 수지와 같은 저극성의 수지를, 투명성을 손상시키지 않고 착색하는 것이 가능해지기 때문에 고투명성의 형광성 수지 조성물이 얻어지고, 유용성이 높다. 형광 잉크나 파장 변환 재료, 색소 레이저 등에 사용할 수 있다. 또한, 본 발명의 형광성 화합물은 트리아릴아민 골격을 갖고 있기 때문에, 유기 전계 발광 소자 등의 유기 전자 디바이스에 있어서 전하 수송성 화합물이나 발광 화합물로서 사용하는 것이 가능하다.

도면

도면1



【심사관 직권보정사항】

【직권보정 1】

【보정항목】 청구범위

【보정세부항목】 청구항 제 1항

【변경전】

하기 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기로부터 선택 되는 치환기를 나타내고

【변경후】

하기 화학식 (3)으로 표시되는 실록산 함유기로부터 선택 되는 치환기를 나타내고, m은 0 또는 1 임)