

(12) 특허협력조약에 의하여 공개된 국제출원

(19) 세계지식재산권기구
국제사무국



(10) 국제공개번호

(43) 국제공개일
2019년 7월 25일 (25.07.2019) WIPO | PCT

WO 2019/143110 A1

- (51) 국제특허분류: SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
C07D 405/14 (2006.01) *H01L 51/00* (2006.01)
C07D 209/82 (2006.01) *C09K 11/06* (2006.01)
C07D 307/91 (2006.01) *H01L 51/50* (2006.01)
- (21) 국제출원번호: PCT/KR2019/000614
- (22) 국제출원일: 2019년 1월 15일 (15.01.2019)
- (25) 출원언어: 한국어
- (26) 공개언어: 한국어
- (30) 우선권정보: 10-2018-0005765 2018년 1월 16일 (16.01.2018) KR
 10-2018-0165794 2018년 12월 20일 (20.12.2018) KR
- (71) 출원인: 주식회사 두산 (DOOSAN CORPORATION) [KR/KR]; 04563 서울시 중구 장충단로 275, Seoul (KR).
- (72) 발명자: 이용환 (LEE, Yonghwan); 16858 경기도 용인시 수지구 수지로112번길 10 (성북동), Gyeonggi-do (KR). 엄민식 (EUM, Minsik); 16858 경기도 용인시 수지구 수지로112번길 10 (성북동), Gyeonggi-do (KR). 홍진석 (HONG, Jinseok); 16858 경기도 용인시 수지구 수지로112번길 10 (성북동), Gyeonggi-do (KR). 심재의 (SIM, Jaeyi); 16858 경기도 용인시 수지구 수지로112번길 10 (성북동), Gyeonggi-do (KR). 박정근 (PARK, Jeongkeun); 16858 경기도 용인시 수지구 수지로112번길 10 (성북동), Gyeonggi-do (KR). 손효석 (SON, Hyosuk); 16858 경기도 용인시 수지구 수지로112번길 10 (성북동), Gyeonggi-do (KR). 한송이 (HAN, Songie); 16858 경기도 용인시 수지구 수지로112번길 10 (성북동), Gyeonggi-do (KR). 박우재 (PARK, Woojae); 16858 경기도 용인시 수지구 수지로112번길 10 (성북동), Gyeonggi-do (KR).
- (74) 대리인: 윤여광 등 (YOON, Yu Kwang et al.); 03752 서울시 서대문구 경기대로 47 진양빌딩 6층 위더피플법률사무소, Seoul (KR).
- (81) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 국내 권리의 보호를 위하여): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD,

(84) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 역내 권리의 보호를 위하여): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), 유라시아 (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), 유럽 (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

공개:
— 국제조사보고서와 함께 (조약 제21조(3))



WO 2019/143110 A1

(54) Title: ORGANIC COMPOUND AND ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT USING SAME

(54) 발명의 명칭: 유기 화합물 및 이를 이용한 유기 전계 발광 소자

(57) Abstract: The present invention relates to a novel organic compound and an organic electroluminescent element using same and, more specifically, to a novel compound having excellent luminous performance and to an organic electroluminescent element having improved characteristics, such as high luminous efficiency, a low driving voltage, and a long lifespan, by containing the novel compound in one or more organic material layers.

(57) 요약서: 본 발명은 신규한 유기 화합물 및 이를 이용한 유기 전계 발광 소자에 관한 것으로, 보다 상세하게는 발광능이 우수한 신규 화합물 및 이를 하나 이상의 유기물층에 포함함으로써, 높은 발광효율, 낮은 구동전압, 긴 수명 등의 특성이 향상된 유기 전계 발광 소자에 관한 것이다.

명세서

발명의 명칭: 유기 화합물 및 이를 이용한 유기 전계 발광 소자 기술분야

- [1] 본 발명은 신규한 유기 화합물 및 이를 이용한 유기 전계 발광 소자에 관한 것으로, 보다 상세하게는 열안정성과 발광능이 우수한 신규 화합물 및 이를 하나 이상의 유기물층에 포함함으로써 발광효율, 구동 전압, 수명 등의 특성이 향상된 유기 전계 발광 소자에 관한 것이다.
- [2]
- ### 배경기술
- [3] 1950년대 Bernanose의 유기 박막 발광 관측을 시점으로 1965년 안트라센 단결정을 이용한 청색 전기발광으로 이어진 유기 전계 발광(electroluminescent) 소자에 대한 연구는 1987년 탕(Tang)에 의하여 정공층과 발광층의 기능층으로 나눈 적층구조의 유기 전계 발광 소자가 제시되었다. 이후 고효율, 고수명의 유기 전계 발광 소자를 만들기 위하여, 소자 내 각각의 특징적인 유기물 층을 도입하는 형태로 발전하여 왔으며, 이에 사용되는 특화된 물질의 개발로 이어졌다.
- [4] 유기 전계 발광 소자는 두 전극 사이에 전압을 걸어 주면 양극에서는 정공이 주입되고, 음극에서는 전자가 유기물층으로 주입된다. 주입된 정공과 전자가 만났을 때 엑시톤(exciton)이 형성되며, 이 엑시톤이 바닥상태로 떨어질 때 빛이 나게 된다. 이때 유기물층으로 사용되는 물질은 그 기능에 따라, 발광 물질, 정공 주입 물질, 정공 수송 물질, 전자 수송 물질, 전자 주입 물질 등으로 분류될 수 있다.
- [5] 유기 전계 발광 소자의 발광층 형성재료는 발광색에 따라 청색, 녹색, 적색 발광 재료로 구분될 수 있다. 그밖에, 보다 나은 천연색을 구현하기 위한 발광재료로 노란색 및 주황색 발광재료도 사용된다. 또한, 색순도의 증가와 에너지 전이를 통한 발광 효율을 증가시키기 위하여, 발광 재료로서 호스트/도판트 계를 사용할 수 있다.
- [6] 도판트 물질은 유기 물질을 사용하는 형광 도판트와 Ir, Pt 등의 중원자(heavy atoms)가 포함된 금속 착체 화합물을 사용하는 인광 도판트로 나눌 수 있다. 이러한 인광 재료의 개발은 이론적으로 형광에 비해 4배까지의 발광 효율을 향상시킬 수 있어 인광 도판트 뿐만 아니라 인광 호스트 재료들에 대해 관심이 집중되고 있다.
- [7] 현재까지 정공 주입층, 정공 수송층, 정공 차단층, 전자 수송층에 사용되는 물질로는 NPB, BCP, Alq₃ 등이 널리 알려져 있고, 발광 물질로는 안트라센 유도체들이 형광 도판트/호스트 재료로서 보고되고 있다. 특히 발광재료 중 효율 향상 측면에서 큰 장점을 가지고 있는 인광 재료로서는 Firpic, Ir(ppy)₃,

(acac)Ir(btp)₂ 등과 같은 Ir을 포함하는 금속 착체 화합물이 청색, 녹색, 적색 도판트 재료로 사용되고 있다. 현재까지는 CBP가 인광 호스트 재료로 우수한 특성을 나타내고 있다.

- [8] 그러나 종래 발광 물질들은 발광 특성 측면에서 유리한 면이 있으나, 유리전이온도가 낮고 열적 안정성이 매우 좋지 않기 때문에, 유기 전계 발광 소자에서의 수명 측면에서 만족할만한 수준이 되지 못하고 있다. 따라서, 우수한 성능을 가지는 발광 물질의 개발이 요구되고 있다.

[9]

[10] [선행기술문헌]

[11] [특허문헌]

[12] (특허문헌 1) 일본공개특허공보 제2001-160489호

[13]

발명의 상세한 설명

기술적 과제

- [14] 본 발명은 전술한 문제점을 해결하기 위해 안출된 것으로서, 보다 구체적으로 유기 전계 발광 소자에 적용할 수 있으며, 열안정성과 정공 주입능, 정공 수송능, 발광능, 전자 수송능, 전자 주입능 등이 모두 우수한 신규 유기 화합물을 제공하는 것을 목적으로 한다.

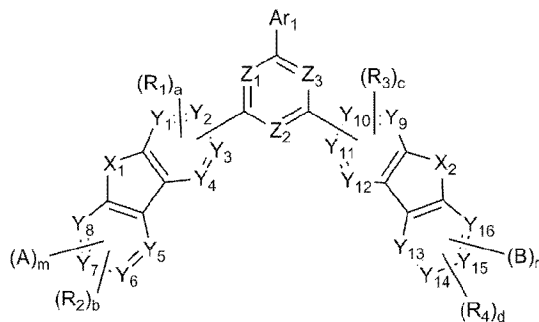
- [15] 또한, 본 발명은 전술한 신규 유기 화합물을 포함하여 열적 안정성, 낮은 구동전압과 높은 발광효율을 나타내며, 수명이 향상되는 유기 전계 발광 소자를 제공하는 것을 또 다른 목적으로 한다.

[16]

과제 해결 수단

- [17] 상기 목적을 달성하기 위하여, 본 발명은 하기 화학식 1로 표시되는 화합물을 제공한다.

[18] [화학식1]



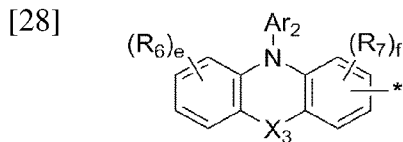
- [19] 상기 화학식 1에서,

[20] X₁ 및 X₂는 서로 동일하거나 상이하며, 각각 독립적으로 O 또는 S이고,

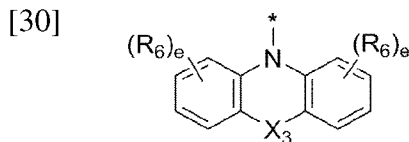
[21] Y₁ 내지 Y₁₆은 서로 동일하거나 상이하며, 각각 독립적으로 CR₈ 또는 N이고, 이때 CR₈이 복수 개인 경우 복수의 R₈은 서로 동일하거나 또는 상이하며,

- [22] Z_1 내지 Z_3 는 서로 동일하거나 상이하며, 각각 독립적으로 CR_5 또는 N이고, 이들 중 적어도 하나는 N이고,
- [23] Ar_1 은 수소, 중수소, 할로젠, 시아노기, 니트로기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알케닐기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알키닐기, $C_3\sim C_{40}$ 의 시클로알킬기 및 $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴기로 이루어진 군에서 선택되고,
- [24] 다만, Z_1 내지 Z_3 함유 환을 기준으로 상기 X_1 함유 환과 상기 X_2 함유 환은 서로 비대칭적으로 결합되며,
- [25] m 및 n 은 각각 0 내지 3의 정수이며, $m+n \geq 1$ 이고,
- [26] A 및 B는 서로 동일하거나 상이하며, 각각 독립적으로 하기 화학식 2 또는 화학식 3으로 표시되는 치환체 중 어느 하나이며;

[27] [화학식 2]



[29] [화학식 3]



- [31] 상기 화학식 2 또는 3에서,
- [32] *은 상기 화학식 1에 결합되는 부위를 의미하고,
- [33] X_3 는 단일결합이고,
- [34] Ar_2 는 $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알케닐기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알키닐기, $C_3\sim C_{40}$ 의 시클로알킬기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴기, 핵원자수 5 내지 60개의 헤테로아릴기 및 $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴아민기로 이루어진 군에서 선택되거나, 혹은 인접한 기와 결합하여 축합 고리를 형성할 수 있고,
- [35] a , c 및 f 는 각각 0 내지 3의 정수이고,
- [36] b , d 및 e 는 각각 0 내지 4의 정수이며, 이때 $b+m \leq 4$, $d+n \leq 4$ 이고,
- [37] R_1 내지 R_8 은 서로 동일하거나 상이하며, 각각 독립적으로 수소, 중수소, 할로젠, 시아노기, 니트로기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알케닐기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알키닐기, $C_3\sim C_{40}$ 의 시클로알킬기, 핵원자수 3 내지 40개의 헤테로시클로알킬기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴기, 핵원자수 5 내지 60개의 헤테로아릴기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬옥시기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴옥시기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬실릴기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴실릴기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬보론기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴보론기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴포스핀기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴포스핀옥사이드기 및 $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴아민기로 이루어진 군에서 선택되거나, 혹은 인접한 기와 결합하여 축합 고리를 형성할 수 있고, 이때 상기 R_1 내지 R_7 이 각각 복수인 경우, 이들은 서로 동일하거나 상이하고,
- [38] 상기 Ar_1 내지 Ar_2 , 및 R_1 내지 R_8 의 알킬기, 알케닐기, 알키닐기, 시클로알킬기,

헤테로시클로알킬기, 아릴기, 헤테로아릴기, 알킬옥시기, 아릴옥시기, 알킬실릴기, 아릴실릴기, 알킬보론기, 아릴보론기, 아릴포스핀기, 아릴포스핀옥사이드기 및 아릴아민기는 각각 독립적으로 중수소, 할로젠, 시아노기, 니트로기, C₂~C₄₀의 알케닐기, C₂~C₄₀의 알키닐기, C₃~C₄₀의 시클로알킬기, 핵원자수 3 내지 40개의 헤테로시클로알킬기, C₁~C₄₀의 알킬기, C₆~C₆₀의 아릴기, 핵원자수 5 내지 60개의 헤테로아릴기, C₁~C₄₀의 알킬옥시기, C₆~C₆₀의 아릴옥시기, C₁~C₄₀의 알킬실릴기, C₆~C₆₀의 아릴실릴기, C₁~C₄₀의 알킬보론기, C₆~C₆₀의 아릴보론기, C₆~C₆₀의 아릴포스핀기, C₆~C₆₀의 아릴포스핀옥사이드기 및 C₆~C₆₀의 아릴아민기로 이루어진 군에서 선택된 1종 이상의 치환기로 치환될 수 있으며, 이때 상기 치환기가 복수인 경우, 이들은 서로 동일하거나 상이할 수 있다.

[39] 또한, 본 발명은 양극, 음극 및 상기 양극과 음극 사이에 개재(介在)된 1층 이상의 유기물층을 포함하고, 상기 1층 이상의 유기물층 중 적어도 하나는 상기 화학식 1로 표시되는 화합물을 포함하는 것인 유기 전계 발광 소자를 제공한다.

[40] 여기서, 상기 화학식 1로 표시되는 화합물을 포함하는 유기물층 중 적어도 하나는 정공 주입층, 정공 수송층, 발광 보조층, 발광층, 전자 수송층 및 전자 주입층으로 이루어진 군에서 선택될 수 있으며, 발광층인 것이 바람직하다. 이때, 상기 화학식 1로 표시되는 화합물은 발광층의 인광 호스트로 사용될 수 있다.

[41]

발명의 효과

[42] 본 발명의 화학식 1로 표시되는 화합물은 열적 안정성 및 발광 특성이 우수하기 때문에 유기 전계 발광 소자의 유기물층의 재료로 사용될 수 있다.

[43] 특히, 본 발명의 화학식 1로 표시되는 화합물을 인광 호스트 재료로 사용할 경우, 종래의 호스트 재료에 비해 낮은 구동전압, 높은 효율 및 긴 수명을 갖는 유기 전계 발광 소자를 제조할 수 있고, 나아가 성능 및 수명이 향상된 풀 칼라 디스플레이 패널도 제조할 수 있다.

[44]

발명의 실시를 위한 형태

[45] 이하, 본 발명을 상세히 설명한다.

[46] <유기 화합물>

[47] 본 발명에 따른 신규 화합물은, 합질소 헤테로방향족환(예, azine)과, 이의 양측에 비(非)대칭적으로 결합된 2개의 디벤조계 모이어티(예, 디벤조퓨란 또는 디벤조티오펜)를 포함하는 코어(core)를 가지며, 상기 2개의 디벤조계 모이어티 중 적어도 하나의 페닐기에, 전자공여성을 갖는 전자주기기(electron donating group, EDG)의 일종인 카바졸(carbazole)기가 연결되는 구조를 기본 골격으로 한다.

- [48] 구체적으로, 상기 화학식 1의 화합물은 정공(hole)과 전자(electron)에 대한 양쪽성의 물리화학적 성질을 가진 디벤조계 모이어티[예, dibenzofuran (DBF), dibenzothiophene (DBT)]와, 전자흡수성이 큰 전자끌개기(EWG)인 아진기의 일종인 함질소 헤테로방향족환(예, pyridine, pyrazine, triazine)을 포함하며, 상기 디벤조계 모이어티에 적어도 하나의 카바졸기가 연결된다. 이러한 화학식 1의 화합물은 양극성(bipolar) 화합물이기 때문에, 정공과 전자의 재결합이 높아 정공 주입/수송 능력, 발광 효율, 구동 전압, 수명 특성, 내구성 등을 향상시킬 수 있다. 특히, 상기 화학식 1의 화합물을 그린 인광재료로서 적용할 경우, 우수한 발광효율 특성을 가질 뿐만 아니라 저전압 구동이 가능하여 수명 상승 효과를 나타낼 수 있으며, 열적 안정성, 높은 유리전이온도 특성 및 균일한 모폴로지(morphology)를 가져 소자 특성이 우수하다. 그리고 유기물층의 결정화 억제에도 효과가 있으므로, 상기 화합물을 포함하는 유기 전계 발광 소자의 성능 및 수명 특성이 크게 향상될 수 있다.
- [49] 또한 본 발명에서는 아진기에 결합되는 2개의 디벤조퓨란 또는 디벤조티오펜 모이어티의 결합 위치에 따라, 화합물의 평면성 및 입체성이 구현될 수 있다. 이로 인해 전자의 전달 능력이 향상되어 이러한 화합물이 적용된 소자의 구동 및 효율 증가 효과를 기대할 수 있다. 더욱이, 상기 디벤조퓨란 모이어티 또는 디벤조티오펜 모이어티는 아릴기에 비해 전자 및 정공 안정성이 뛰어나므로, 이러한 화합물이 적용된 소자의 수명 특성을 보다 향상시킬 수 있다. 특히, 본 발명에서는 아진기에 결합되는 2개의 디벤조계 모이어티가 비대칭 구조(Asymmetry)를 나타내는데, 이러한 비대칭 구조의 화합물은 대칭 구조 화합물에 비해 HOMO-LUMO 값 조절이 용이하다. 일례로, 디벤조계 모이어티를 갖는 비대칭 구조 화합물의 경우, 대칭 구조를 갖는 화합물에 비해 분자간 거리의 조절이 상대적으로 용이하다. 즉, 1,2,3,4 번 위치에 결합이 가능한 디벤조계 모이어티의 특성상 1,4번 결합에서의 트리아진의 수소와 디벤조계 모이어티 간의 구조적 장애(Steric hindrance)가 발생하여 분자간 거리가 멀어지게 되며, 이로 인해 T1 값 또한 높아지게 된다. 전술한 특성을 이용할 경우 화학 구조의 비대칭성(Asymmetry)을 통해 유기물층 재료의 HOMO-LUMO 및 T1, S1 값의 튜닝이 가능하다.
- [50] 아울러, 본 발명에서는 전자주개기(EDG)로서 비(非)융합환 형태의 카바졸기가 적어도 하나 이상 도입된다. 이러한 카바졸기는 다른 아민류 EDG에 비해 conjugation을 이루어 전기화학적으로 안정하며 deep HOMO level을 가진다. 또한 카바졸기는 열적 안정성과 전기화학적 안정성이 매우 우수하고, 높은 유리전이온도(Tg)와 우수한 캐리어 수송 능력을 갖는다. 특히 전자 및 정공 수송 이동성이 매우 우수하여, 발광층 내에서의 캐리어들의 밸런스가 매우 우수한 특성들을 나타낼 수 있다.
- [51] 한편 유기 전계 발광 소자의 인광 발광층에서, 호스트 물질은 호스트의 삼중항 에너지 값이 도펀트보다 높아야 한다. 즉, 도펀트로부터 효과적으로 인광 발광을

제공하기 위해서는 호스트의 가장 낮은 여기 상태가 도펀트의 가장 낮은 방출 상태보다 에너지가 더 높아야 한다. 상기 화학식 1로 표시되는 화합물은 높은 삼중항 에너지를 가지며, 에너지 준위가 도펀트에 비해 높게 조절될 수 있어 호스트 물질로 사용될 수 있다. 이러한 화학식 1로 표시되는 화합물은 발광층에서 생성된 엑시톤이 발광층에 인접하는 전자 수송층 또는 정공 수송층으로 확산되는 것을 방지할 수 있다. 이로 인해, 발광층 내 발광에 기여하는 엑시톤의 수가 증가됨으로써 소자의 발광 효율이 개선될 수 있고, 소자의 내구성 및 안정성이 향상되어 소자의 수명 또한 효율적으로 증가될 수 있다.

- [52] 전술한 사항들로 인해, 상기 화학식 1로 표시되는 화합물은 유기 전계 발광 소자의 인광 특성을 향상시킴과 동시에, 전자 주입/수송 능력, 발광 효율, 구동 전압, 수명 특성 등을 향상시킬 수 있다. 따라서, 본 발명에 따른 화학식 1의 화합물은 유기 전계 발광 소자의 유기물층인 정공 주입층, 정공 수송층, 발광층, 전자 수송층 및 전자 주입층 중 어느 하나의 재료로 사용될 수 있으며, 바람직하게는 발광층 재료(청색, 녹색 및/또는 적색의 인광 호스트 재료)로 사용될 수 있다. 특히, 본 발명의 화학식 1로 표시되는 화합물을 청색, 녹색 및/또는 적색의 인광 호스트 재료, 바람직하게는 인광 그린 n-type 호스트 및/또는 인광 레드 호스트로 사용시, 종래의 발광 호스트 재료(예를 들어, CBP)에 비해 낮은 구동전압, 높은 효율 및 장수명을 갖는 유기 전계 발광 소자를 제조할 수 있고, 나아가 고효율 및 장수명 특성이 향상된 풀 칼라 디스플레이 패널도 제조할 수 있다.

[53]

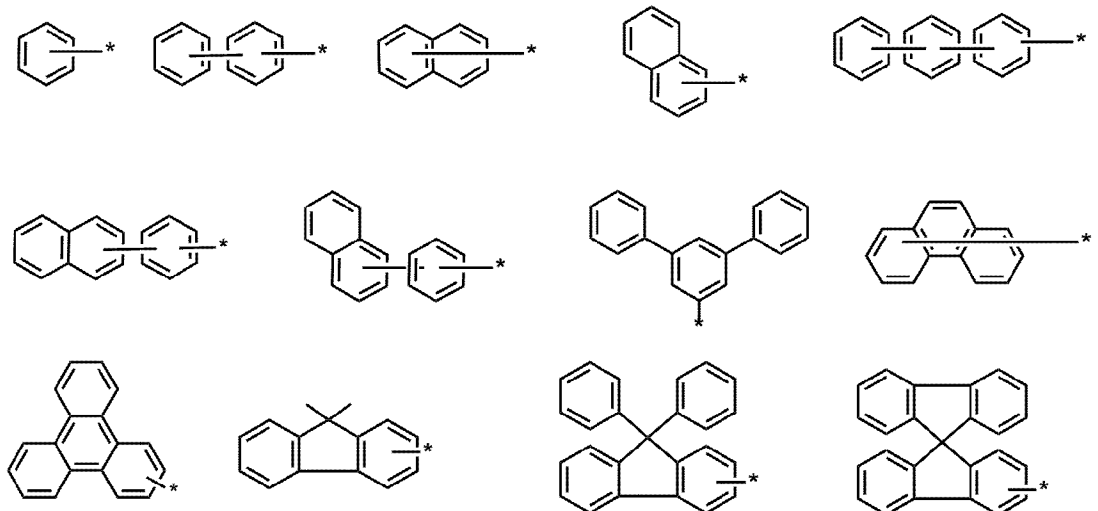
- [54] 구체적으로, 본 발명에 따른 화학식 1로 표시되는 화합물은, 아진기와 이의 양측에 비(非)대칭적으로 연결된 2개의 디벤조계 모이어티(디벤조퓨란 또는 디벤조티오펜 모이어티)를 포함하는 코어(core)로 가지며, 상기 코어 내 어느 하나의 6원 고리(예, 페닐기)에 전자주게기(EDG)의 일종인 카바졸기가 적어도 하나 이상 결합된다.

- [55] 상기 화학식 1로 표시되는 화합물에서, X_1 및 X_2 는 서로 동일하거나 상이하며, 각각 독립적으로 O 또는 S이다. 이때, O일 경우에는 디벤조퓨란 모이어티를 형성하며, S일 경우에는 디벤조티오펜 모이어티를 형성할 수 있다.

- [56] Y_1 내지 Y_{16} 은 서로 동일하거나 상이하며, 각각 독립적으로 CR_8 또는 N이다. 이때 CR_8 이 복수 개인 경우 복수의 R_8 은 서로 동일하거나 또는 상이할 수 있다. 예를 들면, Y_1 내지 Y_4 중 하나 이상이 N일 경우, 나머지는 CR_8 이고; Y_{13} 내지 Y_{16} 중 하나 이상이 N일 경우, 나머지는 CR_8 이고; Y_1 내지 Y_4 중 하나 이상이 N이며, Y_9 내지 Y_{12} 중 하나 이상이 N일 경우, 나머지는 CR_8 이고; Y_5 내지 Y_8 중 하나 이상이 N이며, Y_{13} 내지 Y_{16} 중 하나 이상이 N일 경우, 나머지는 CR_8 이고; Y_1 내지 Y_4 중 하나 이상이 N이며, Y_{13} 내지 Y_{16} 중 하나가 N일 경우, 나머지는 CR_8 이고; Y_1 내지 Y_{16} 가 모두 CR_8 일 수 있다(하기 화학식 9 내지 13 참조).

- [57] 여기서, R_8 은 수소, 중수소, 할로젠기, 시아노기, 니트로기, 아미노기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알케닐기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알키닐기, $C_3\sim C_{40}$ 의 시클로알킬기, 핵원자수 3 내지 40의 헤테로시클로알킬기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴기, 핵원자수 5 내지 60의 헤테로아릴기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬옥시기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴옥시기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬실릴기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴실릴기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬보론기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴보론기, $C_1\sim C_{40}$ 의 포스핀기, $C_1\sim C_{40}$ 의 포스핀옥사이드기 및 $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴아민기로 이루어진 군에서 선택될 수 있다. 구체적으로, R_8 은 수소, 중수소, 할로젠, 시아노기, 니트로기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알케닐기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알키닐기, $C_3\sim C_{40}$ 의 시클로알킬기, 및 $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴기로 이루어진 군에서 선택되는 것이 바람직하다.
- [58] Z_1 내지 Z_3 는 서로 동일하거나 상이하며, 각각 독립적으로 CR_5 또는 N이고, 이들 중 적어도 하나는 N이다. 바람직한 일 실시예를 들면, Z_1 내지 Z_3 는 중 1~3개가 N일 수 있으며, 예를 들면, 피리딘, 피리미딘, 트리아진일 수 있다. 보다 바람직하게는 Z_1 내지 Z_3 가 모두 N으로, 전자 끄는 특성이 큰 트리아진이다.
- [59] Ar_1 은 수소, 중수소, 할로젠, 시아노기, 니트로기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알케닐기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알키닐기, $C_3\sim C_{40}$ 의 시클로알킬기 및 $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴기로 이루어진 군에서 선택될 수 있다. 구체적으로, Ar_1 은 $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴기인 것이 바람직하며, 예컨대 페닐기, 비페닐기, 나프틸기, 트리페닐기, 안트릴기, 페난트릴기 등일 수 있다.
- [60] 본 발명의 일 구체예를 들면, Ar_1 은 하기 구조식으로 표시된 치환체 군에서 선택될 수 있다.

[61]



- [62] 이때 전술한 구조식에 표시되지 않았으나, 상기 Ar_1 은 당 분야에 공지된 치환기(예컨대, R_6 의 정의부와 동일)가 적어도 하나 이상 치환될 수 있다.
- [63] a 및 c는 각각 0 내지 3의 정수이고, b 및 d는 각각 0 내지 4의 정수이다. 이때, a 내지 d가 0일 경우에는 수소가 각각 R_1 내지 R_4 로 치환되지 않은 것을 의미하고, a 내지 d가 각각 1 이상의 정수일 경우에는 하나 이상의 수소가 각각 R_1 내지 R_4 로

치환되는 것을 의미한다.

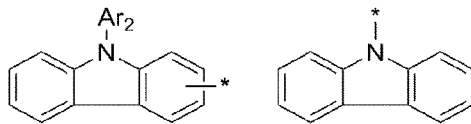
- [64] R_1 내지 R_5 는 서로 동일하거나 상이하며, 각각 독립적으로 수소, 중수소, 할로젠, 시아노기, 니트로기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알케닐기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알키닐기, $C_3\sim C_{40}$ 의 시클로알킬기, 핵원자수 3 내지 40개의 헤테로시클로알킬기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴기, 핵원자수 5 내지 60개의 헤테로아릴기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬옥시기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴옥시기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬실릴기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴실릴기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬보론기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴보론기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴포스핀기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴포스핀옥사이드기 및 $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴아민기로 이루어진 군에서 선택되거나, 혹은 인접한 기와 결합하여 축합 고리를 형성할 수 있다. 이때 R_1 내지 R_5 가 각각 복수인 경우, 이들은 서로 동일하거나 상이하다. 구체적으로, 상기 R_1 내지 R_5 는 서로 동일하거나 상이하며, 각각 독립적으로 수소, 중수소, 할로젠, 시아노기, 니트로기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알케닐기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알키닐기, $C_3\sim C_{40}$ 의 시클로알킬기 및 $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴기로 이루어진 군에서 선택되는 것이 바람직하다.
- [65] m 및 n 은 각각 0 내지 3의 정수이며, $m+n\geq 1$ 이다. 이때, m 또는 n 이 0일 경우에는 수소가 A 또는 B로 치환되지 않은 것을 의미하고, m 및 n 이 각각 1 이상의 정수일 경우에는 하나 이상의 수소가 각각 A 및 B로 치환되는 것을 의미한다. 바람직하게는, m 및 n 은 각각 0 내지 2의 정수일 수 있다. 예를 들면, $m=1, n=0$; $m=0, n=1$; $m=1, n=1$; $m=2, n=0$; $m=0, n=2$ 일 수 있다. 더욱 바람직하게는, $m=1, n=0$ 또는 $m=1, n=1$ 일 수 있다. 즉, 후술되는 A와 B는 적어도 하나 이상 존재할 수 있다.
- [66] 또한 상기 $b+m, d+n$ 은 각각 0 내지 4의 정수일 수 있다. 바람직하게는, $b+m=1$ 일 경우, $d+n=0$ 또는 $d+n=1$ 일 수 있다.
- [67] 본 발명의 화학식 1에서, A 및 B는 각각 전자를 제공하는 역할을 하는 전자공여성 치환체이다. 본 발명에서는, 전자주기기(electron donating group, EDG)의 일종으로서, 카바졸기가 적어도 하나 이상 도입될 수 있다. 구체적으로, A 및 B는 서로 동일하거나 상이하며, 각각 독립적으로 상기 화학식 2 또는 화학식 3으로 표시되는 치환체 중 어느 하나일 수 있다.
- [68] 상기 화학식 2 및 3으로 표시되는 치환체에서, X_3 는 단일결합이다.
- [69] e 는 0 내지 4의 정수이고, f 는 0 내지 3의 정수이다. 이때, e 및 f 가 각각 0일 경우에는 수소가 각각 R_6 및 R_7 으로 치환되지 않은 것을 의미하고, e 및 f 가 각각 1 이상의 정수일 경우에는 하나 이상의 수소가 각각 R_6 및 R_7 으로 치환되는 것을 의미한다.
- [70] 여기서, R_6 및 R_7 는 서로 동일하거나 상이하며, 각각 독립적으로 수소, 중수소, 할로젠, 시아노기, 니트로기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알케닐기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알키닐기, $C_3\sim C_{40}$ 의 시클로알킬기, 핵원자수 3 내지 40개의 헤테로시클로알킬기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴기, 핵원자수 5 내지 60개의 헤테로아릴기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬옥시기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴옥시기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬실릴기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴실릴기, $C_1\sim C_{40}$ 의

알킬보론기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴보론기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴포스핀기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴포스핀옥사이드기 및 $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴아민기로 이루어진 군에서 선택되거나, 혹은 인접한 기와 결합하여 축합 고리를 형성할 수 있다. 이때 R_6 및 R_7 이 복수인 경우, 이들은 서로 동일하거나 상이할 수 있다. 바람직한 일 실시예를 들면, R_6 및 R_7 는 각각 독립적으로 수소, 중수소, 할로젠, 시아노기, 니트로기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알케닐기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알키닐기, $C_3\sim C_{40}$ 의 시클로알킬기 및 $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴기로 이루어진 군에서 선택되거나, 혹은 인접한 기와 결합하여 축합 고리를 형성할 수 있다. 이때, 인접한 기로는 하나의 R_6 와 다른 하나의 R_6 , 하나의 R_6 와 하나의 Ar_2 , 하나의 R_7 과 다른 하나의 R_7 , 하나의 R_7 과 하나의 Ar_2 일 수 있다.

[71] 상기 화학식 2 또는 3으로 표시되는 치환체에서, Ar_2 는 $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알케닐기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알키닐기, $C_3\sim C_{40}$ 의 시클로알킬기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴기, 핵원자수 5 내지 60개의 헤테로아릴기 및 $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴아민기로 이루어진 군에서 선택되거나, 혹은 인접한 기(예, R_6 , R_7)와 결합하여 축합 고리를 형성할 수 있다. 구체적으로, 상기 Ar_2 는 $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴기, 핵원자수 5 내지 60개의 헤테로아릴기 및 $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴아민기로 이루어진 군에서 선택되는 것이 바람직하다.

[72] 본 발명의 일 구체예를 들면, A 및 B는 서로 동일하거나 또는 상이하며, 각각 독립적으로 하기 구조식으로 표시되는 치환체 군 중에서 선택된 어느 하나일 수 있다.

[73]



[74] 상기 화학식에서,

[75] *은 상기 화학식 1에 결합되는 부위를 의미하고,

[76] 상기 Ar_2 는 화학식 1에서 정의한 바와 같다. 또한 구체적으로 표시되지 않았으나, 전술한 구조식은 당 분야에 공지된 치환기(예컨대, R_6 의 정의부와 동일)가 적어도 하나 이상 치환될 수 있다.

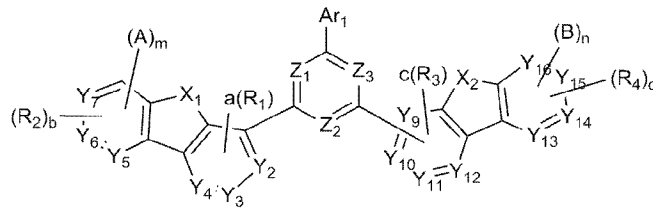
[77] 전술한 화학식 1에서, Ar_1 내지 Ar_2 , 및 R_1 내지 R_8 의 알킬기, 알케닐기, 알키닐기, 시클로알킬기, 헤테로시클로알킬기, 아릴기, 헤테로아릴기, 알킬옥시기, 아릴옥시기, 알킬실릴기, 아릴실릴기, 알킬보론기, 아릴보론기, 아릴포스핀기, 아릴포스핀옥사이드기 및 아릴아민기는 각각 독립적으로 중수소, 할로젠, 시아노기, 니트로기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알케닐기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알키닐기, $C_3\sim C_{40}$ 의 시클로알킬기, 핵원자수 3 내지 40개의 헤테로시클로알킬기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴기, 핵원자수 5 내지 60개의 헤테로아릴기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬옥시기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴옥시기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬실릴기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴실릴기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬보론기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴보론기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴포스핀기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴포스핀옥사이드기 및 $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴아민기로 이루어진 군에서 선택된 1종 이상의 치환기로 치환될 수 있으며, 이때 상기 치환기가 복수인 경우, 이들은

서로 동일하거나 상이할 수 있다.

- [78] 한편 본 발명에 따라 화학식 1로 표시되는 화합물은, EWG 특성을 갖는 함질소 헤테로환(예, Z₁~Z₃ 함유 환)에 결합되는 2개의 디벤조계 모이어티(예, X₁ 함유 환 및 X₂ 함유 환)의 탄소 결합위치에 따라 서로 비대칭적인(Asymmetric) 구조를 이루게 된다. 구체적으로, Z₁ 내지 Z₃ 함유 환에 연결되는 상기 X₁ 함유 환의 Y₁~Y₄ 중 하나의 결합위치와, 상기 X₂ 함유 환의 Y₉~Y₁₂ 중 하나의 결합위치가 서로 비대칭 구조를 나타낸다. 일례로, 아진기(예, Z₁~Z₃ 함유 환)에 결합되는 X₁ 함유 환의 탄소위치가 Y₁ 일 경우, 상기 아진기에 결합되는 X₂ 함유 환의 탄소위치는 Y₉을 제외한 Y₁₀ 내지 Y₁₂ 중 어느 하나일 수 있다(하기 화학식 4 참조). 이와 같이 함질소 헤테로환에 각각 연결되는 2개의 디벤조계 모이어티의 탄소 결합위치를 보다 구체화하면, 하기 화학식 4 내지 7 중 어느 하나로 표시될 수 있다.

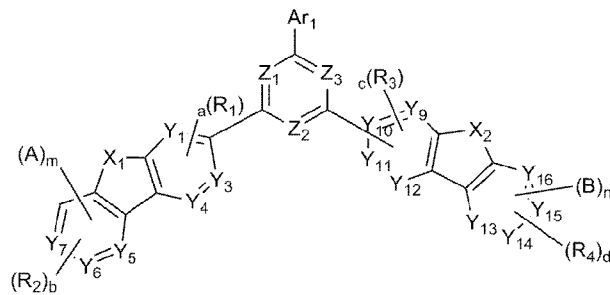
[79] [화학식 4]

[80]



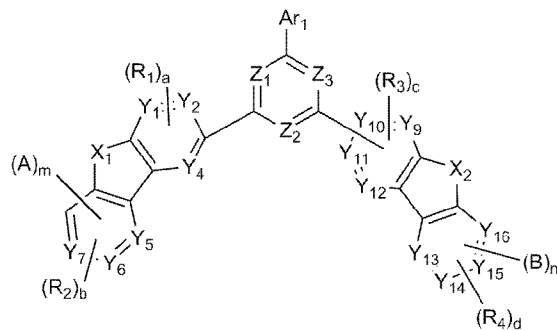
[81] [화학식 5]

[82]



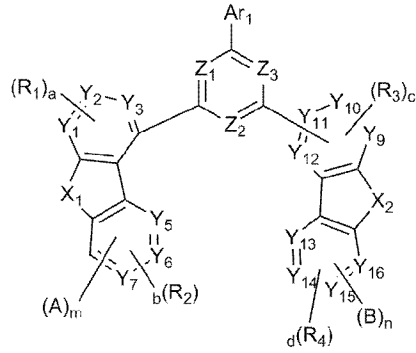
[83] [화학식 6]

[84]



[85] [화학식 7]

[86]



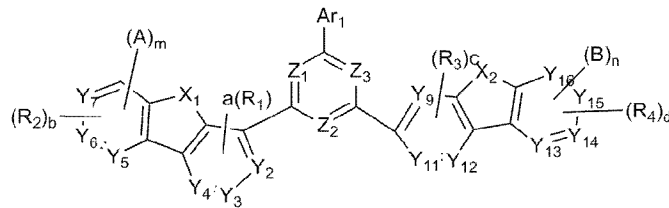
[87] 상기 화학식 4 내지 7에서,

[88] 상기 화학식 4의 Z₁ 내지 Z₃ 함유환은 Y₁₀ 내지 Y₁₂ 중 어느 하나와 결합되며(단, Z₁ 내지 Z₃ 함유환이 Y₉와 결합되는 것은 제외됨),[89] 상기 화학식 5의 Z₁ 내지 Z₃ 함유환은 Y₉, Y₁₁ 내지 Y₁₂ 중 어느 하나와 결합되며(단, Z₁ 내지 Z₃ 함유환이 Y₁₀와 결합되는 것은 제외됨),[90] 상기 화학식 6의 Z₁ 내지 Z₃ 함유환은 Y₉, Y₁₀ 및 Y₁₂ 중 어느 하나와 결합되며(단, Z₁ 내지 Z₃ 함유환이 Y₁₁와 결합되는 것은 제외됨),[91] 상기 화학식 7의 Z₁ 내지 Z₃ 함유환은 Y₉ 내지 Y₁₁ 중 어느 하나와 결합되며(단, Z₁ 내지 Z₃ 함유환이 Y₁₂와 결합되는 것은 제외됨),[92] X₁, X₂, Y₁ 내지 Y₁₆, Z₁ 내지 Z₃, Ar₁, m, n, A, B, a 내지 d, R₁ 내지 R₄는 각각 상기 화학식 1에서 정의한 바와 같다.

[93] 본 발명의 일 구체예를 들면, 상기 화학식 4로 표시되는 화합물은 각각 화학식 4a 내지 화학식 4c 중 어느 하나로 보다 구체화될 수 있다.

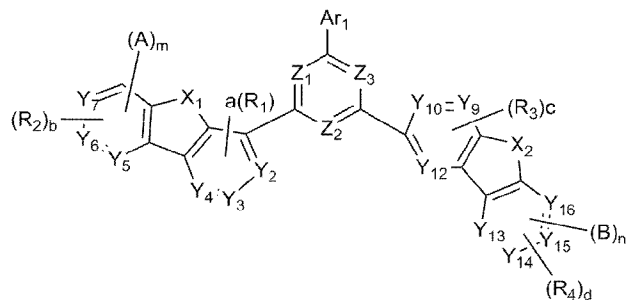
[94] [화학식 4a]

[95]



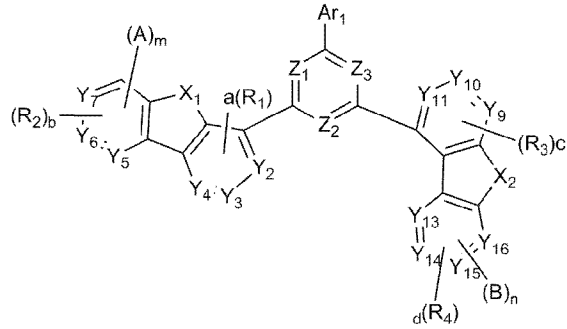
[96] [화학식 4b]

[97]



[98] [화학식 4c]

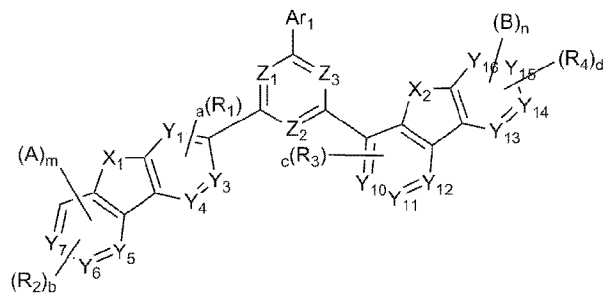
[99]



[100] 본 발명의 다른 일 구체예를 들면, 상기 화학식 5로 표시되는 화합물은 각각 화학식 5a 내지 화학식 5c 중 어느 하나로 보다 구체화될 수 있다.

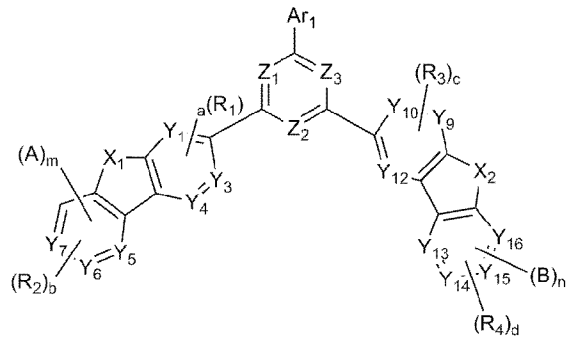
[101] [화학식 5a]

[102]



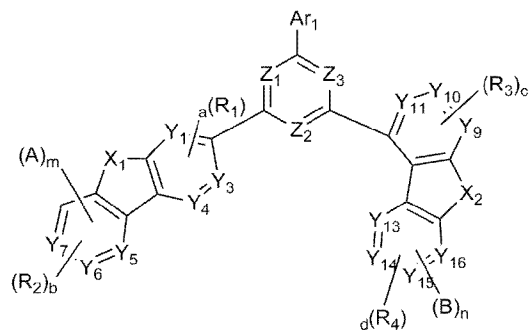
[103] [화학식 5b]

[104]



[105] [화학식 5c]

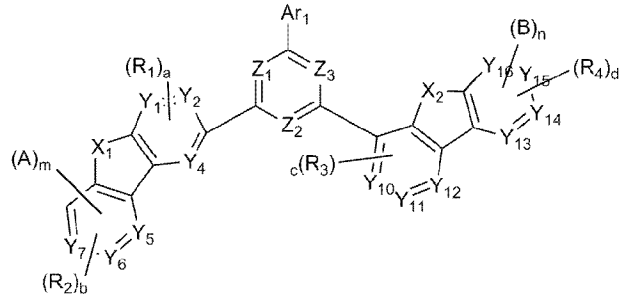
[106]



[107] 본 발명의 또 다른 일 구체예를 들면, 상기 화학식 6으로 표시되는 화합물은 각각 화학식 6a 내지 화학식 6c 중 어느 하나로 보다 구체화될 수 있다.

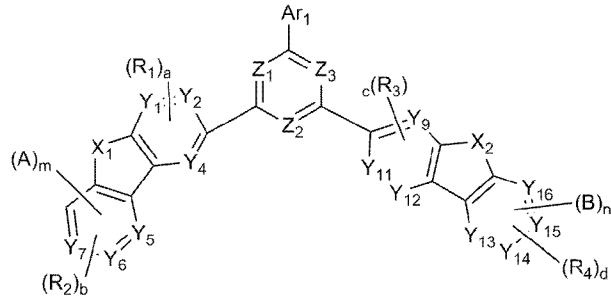
[108] [화학식 6a]

[109]



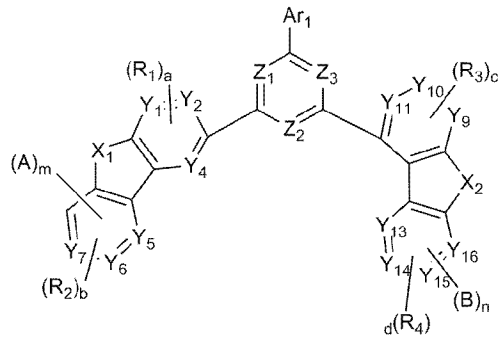
[110] [화학식 6b]

[111]



[112] [화학식 6c]

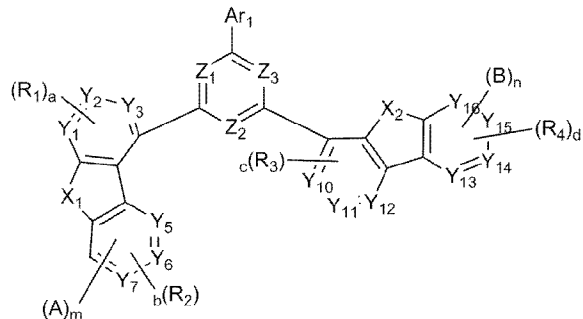
[113]



[114] 본 발명의 또 다른 일 구체예를 들면, 상기 화학식 7로 표시되는 화합물은 각각 화학식 7a 내지 화학식 7c 중 어느 하나로 보다 구체화될 수 있다.

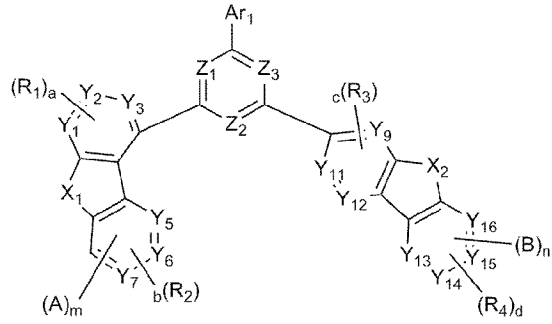
[115] [화학식 7a]

[116]



[117] [화학식 7b]

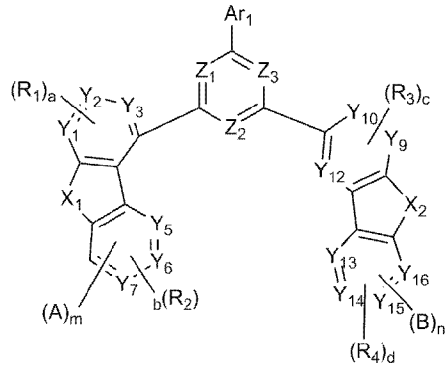
[118]



[119]

[화학식 7c]

[120]



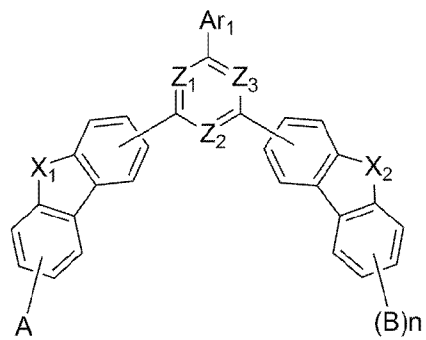
[121]

또한 상기 화학식 1로 표시되는 화합물에서, 디벤조계 모이어티, 일레로 디벤조퓨란 또는 디벤조티오펜 모이어티를 보다 구체화하면, 하기 화학식 8 내지 12 중 어느 하나로 표시될 수 있다.

[122]

[화학식 8]

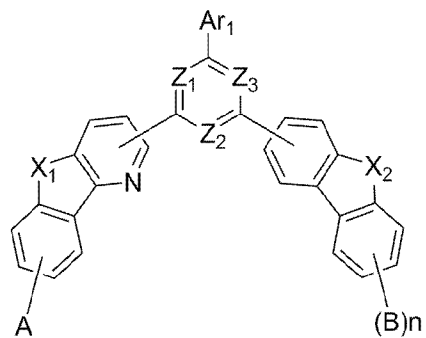
[123]



[124]

[화학식 9]

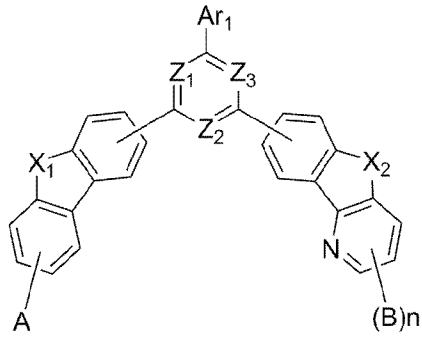
[125]



[126]

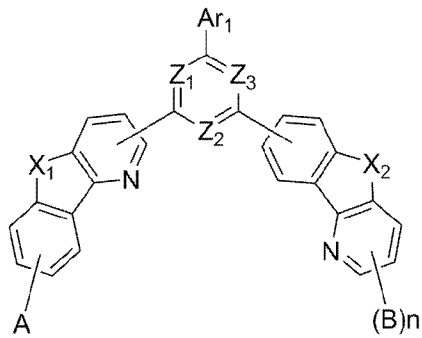
[화학식 10]

[127]



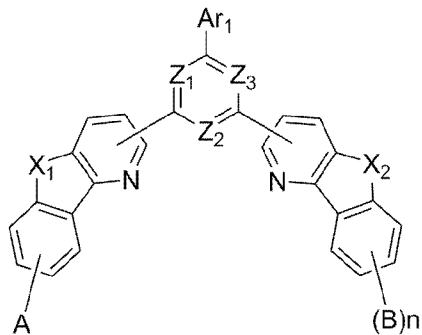
[128] [화학식 11]

[129]



[130] [화학식 12]

[131]

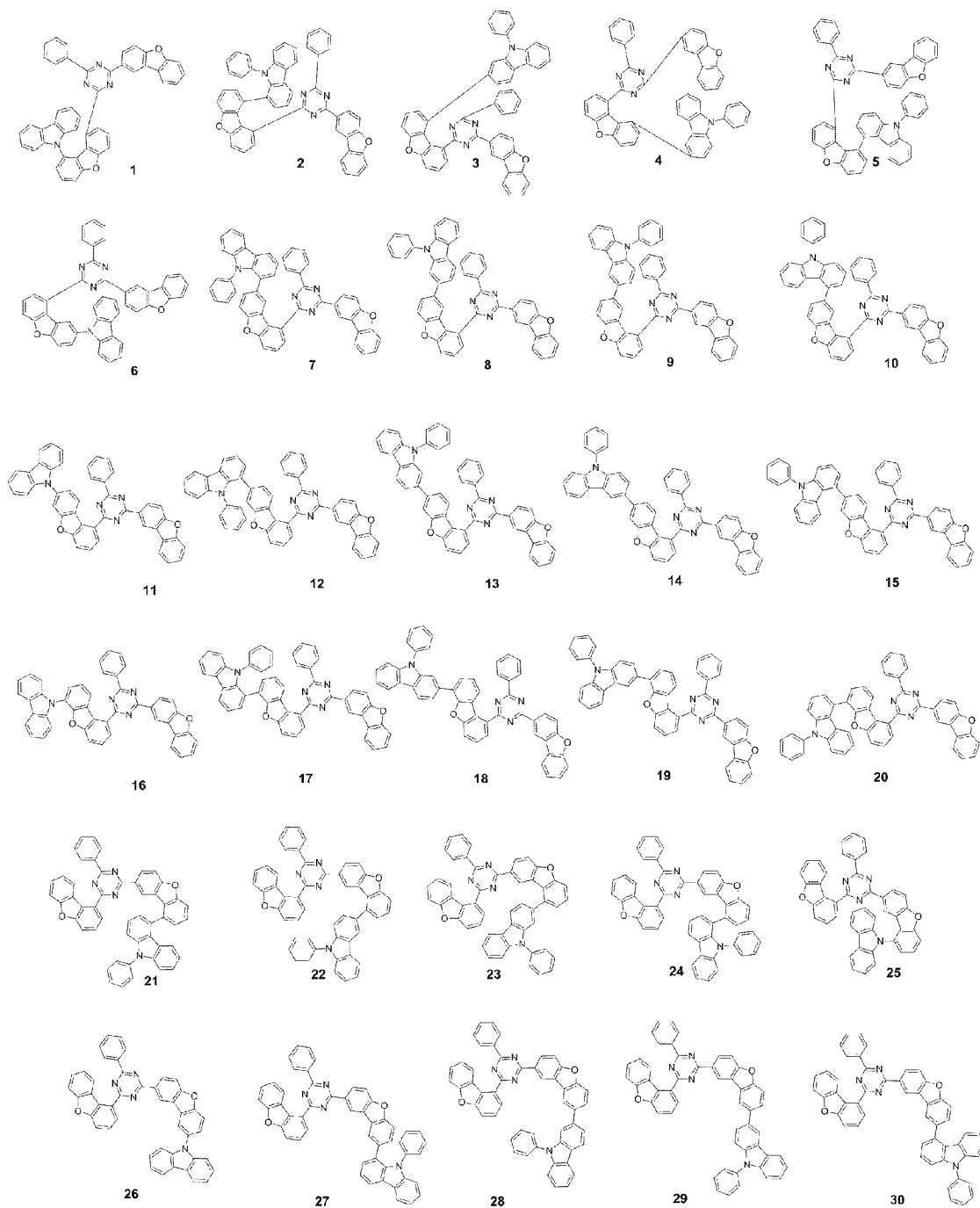


[132] 상기 화학식 8 내지 12에서,

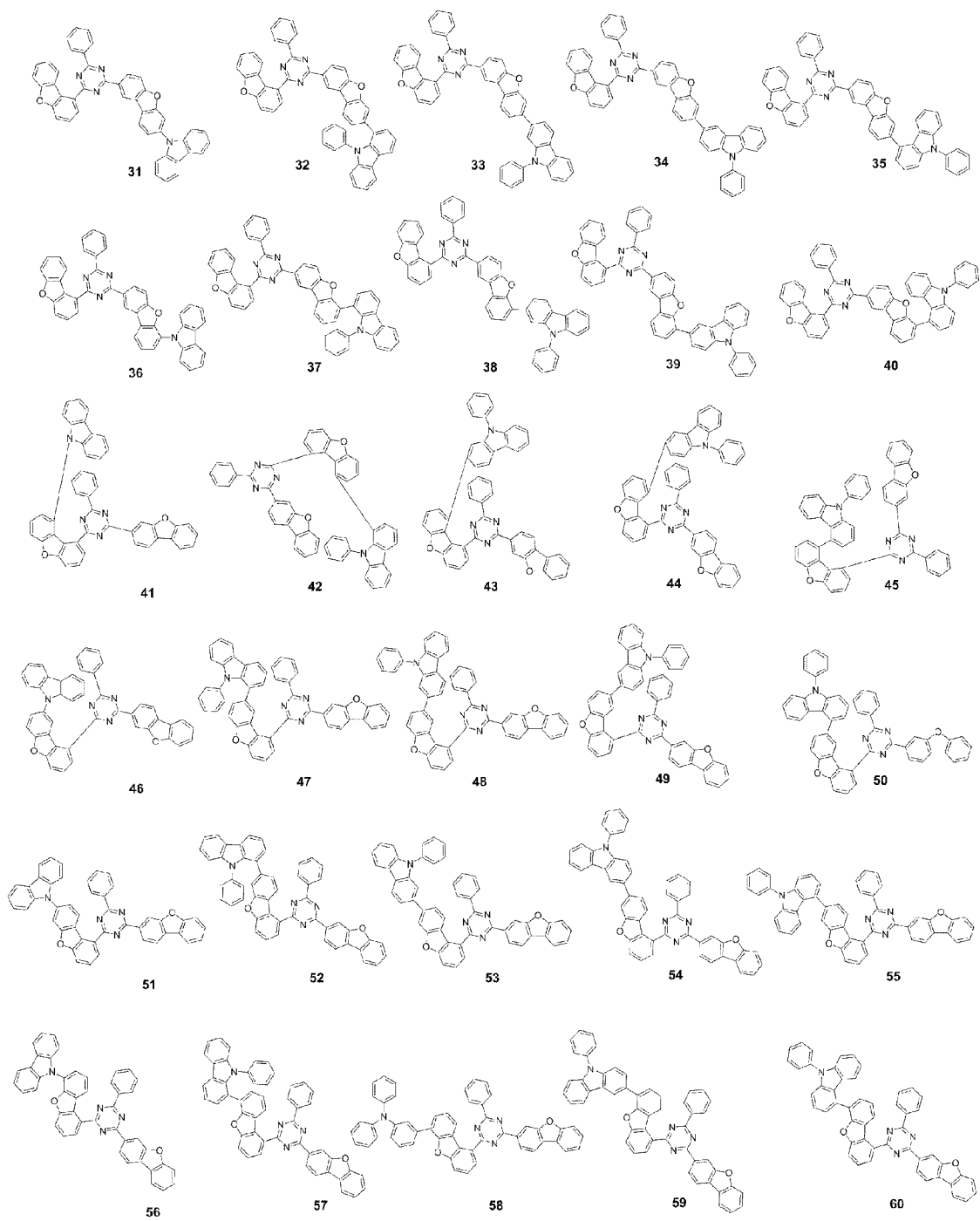
[133] X_1 , X_2 , Z_1 내지 Z_3 , Ar_1 , n , A , B 는 각각 상기 화학식 1에서 정의한 바와 같다.[134] 상기 화학식 8 및 화학식 12 중 어느 하나로 표시되는 화합물의 보다 구체적인 일례를 들면, X_1 및 X_2 는 각각 독립적으로 O 또는 S이고, Z_1 내지 Z_3 는 각각 독립적으로 CR_5 또는 N이되, 이들 모두가 N이며, Ar_1 은 C_6 ~ C_{60} 의 아릴기이다.[135] 또한 상기 아진기(예, Z_1 ~ Z_3 함유 환)에 결합되는 X_1 함유 환의 탄소 위치와 X_2 함유 환의 탄소 위치는 서로 비대칭 구조를 이루게 되며, 상기 A와 B 중 적어도 하나는, 카바졸기일 수 있다.

[136] 이상에서 설명한 본 발명에 따른 화학식 1로 표시되는 화합물은 하기 예시되는 화합물 1 내지 500 중 어느 하나로 표시되는 화합물로 보다 구체화될 수 있다. 그러나, 본 발명의 화학식 1로 표시되는 화합물이 하기 예시된 것들에 의해 한정되는 것은 아니다.

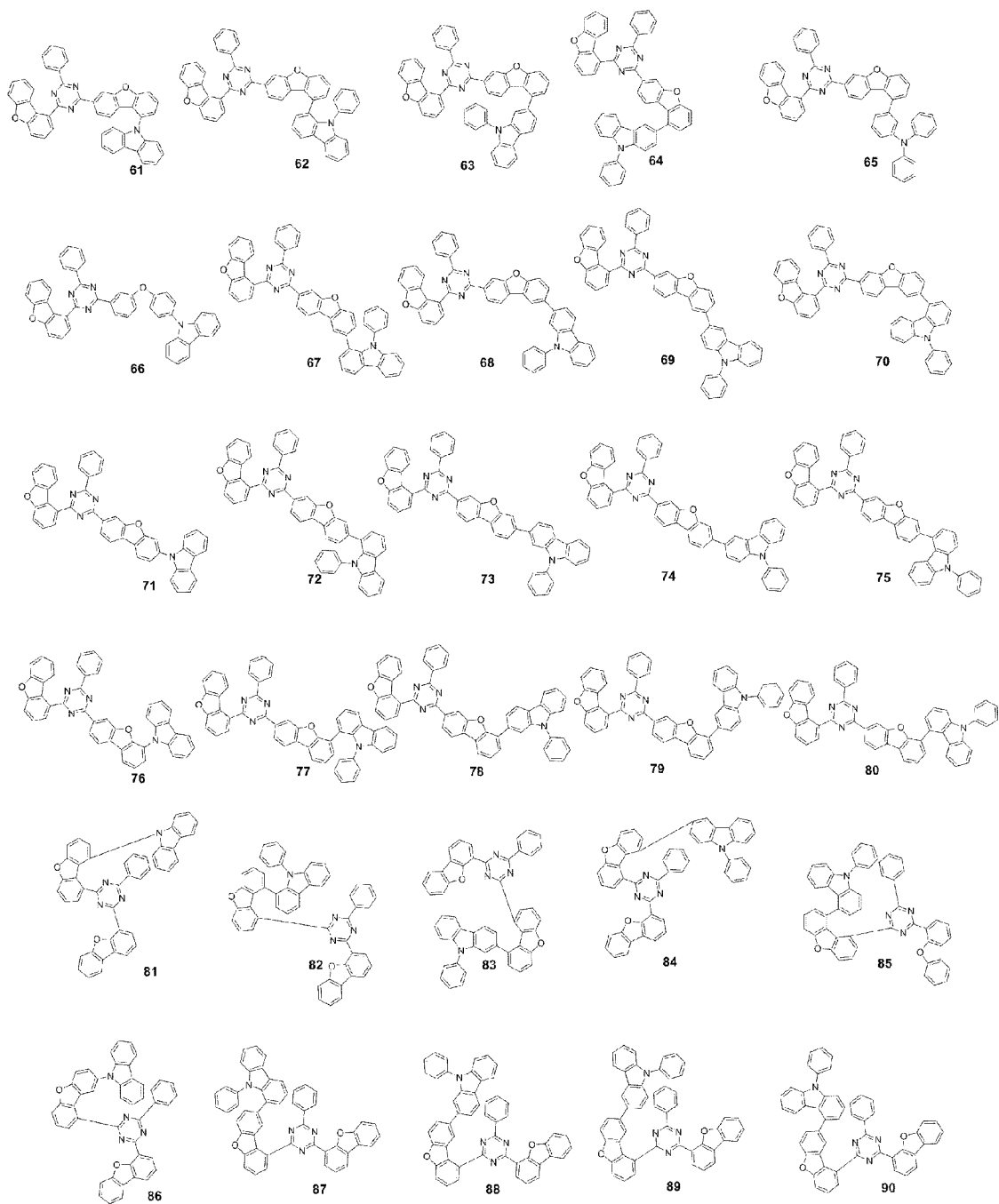
[137]



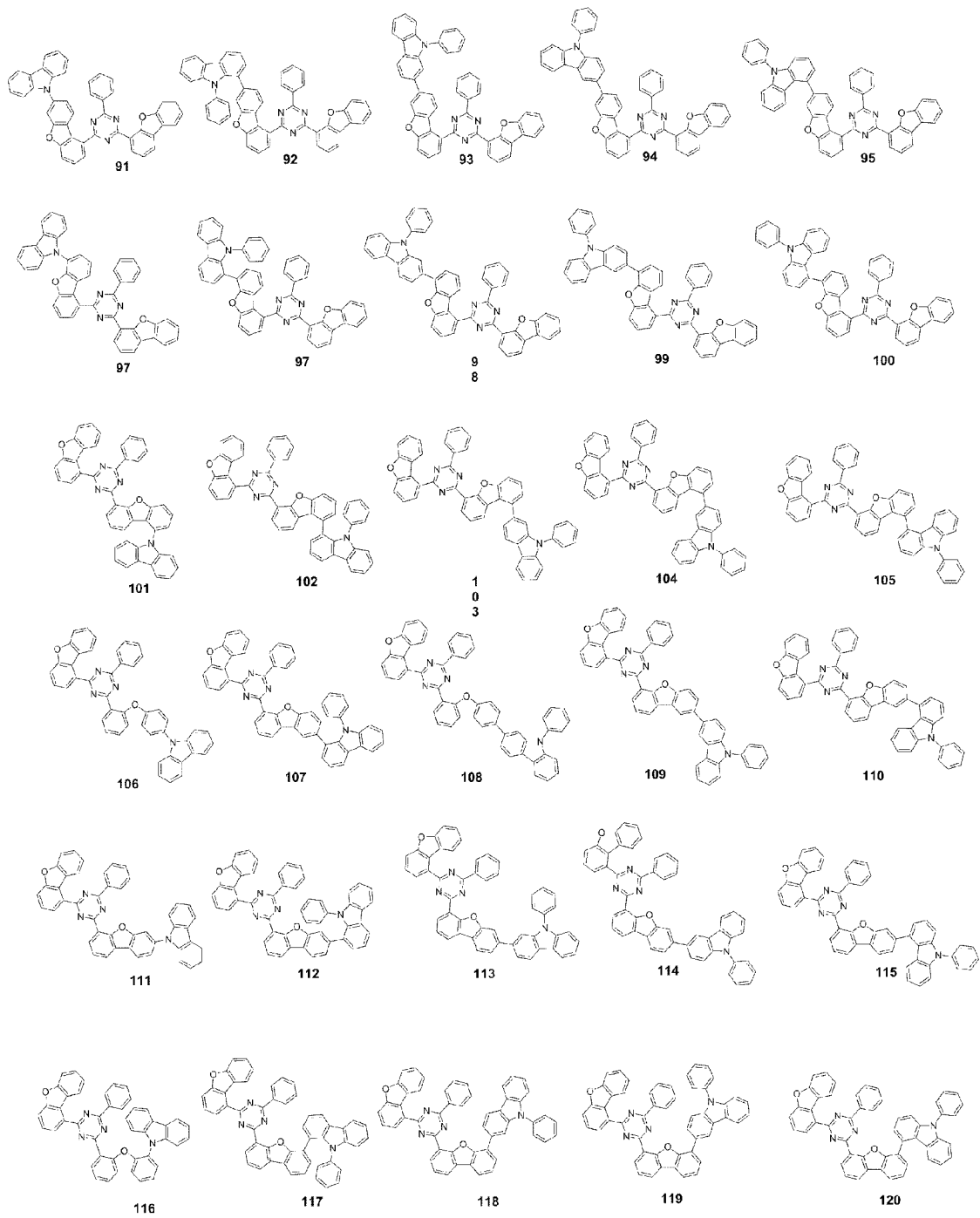
[138]



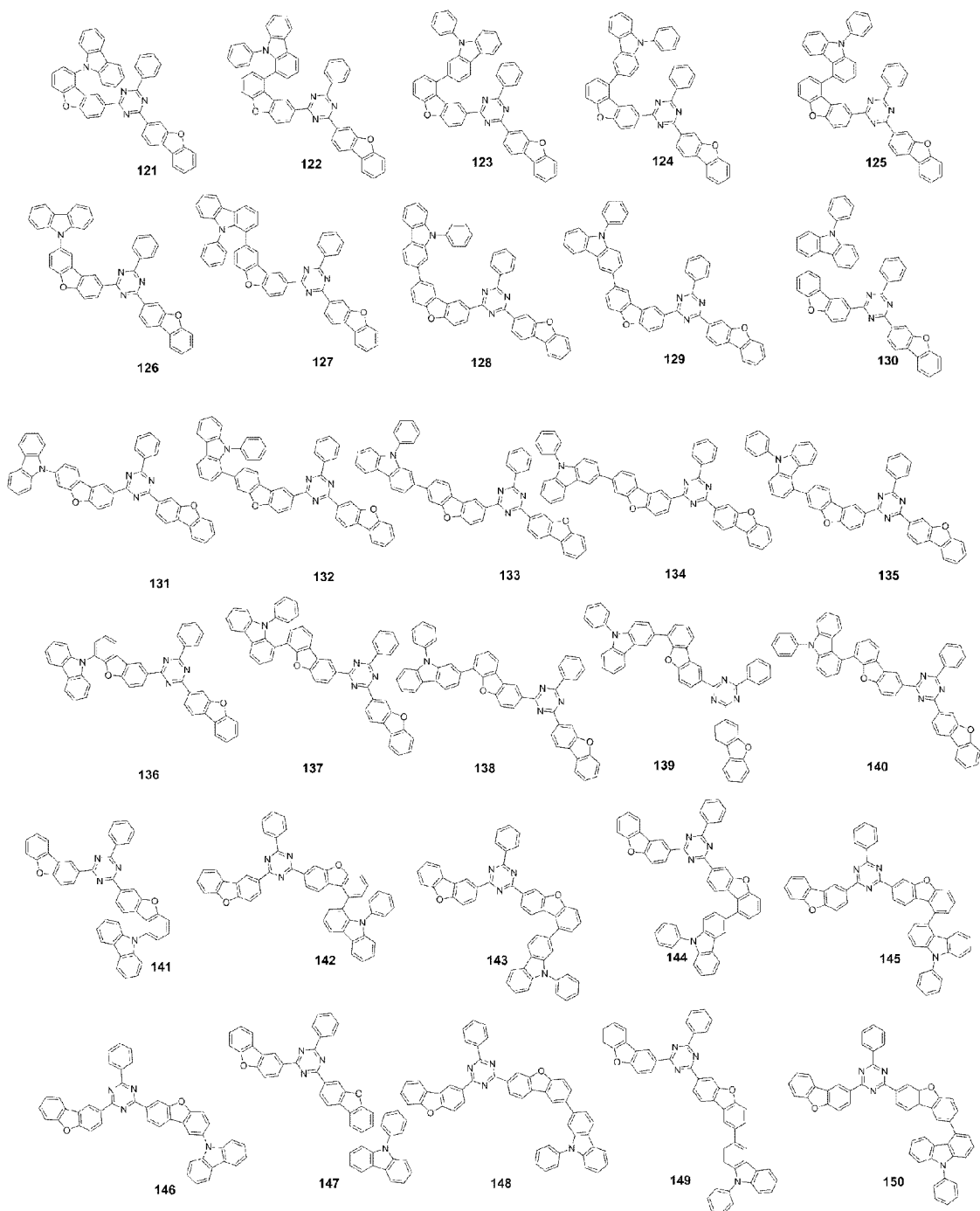
[139]



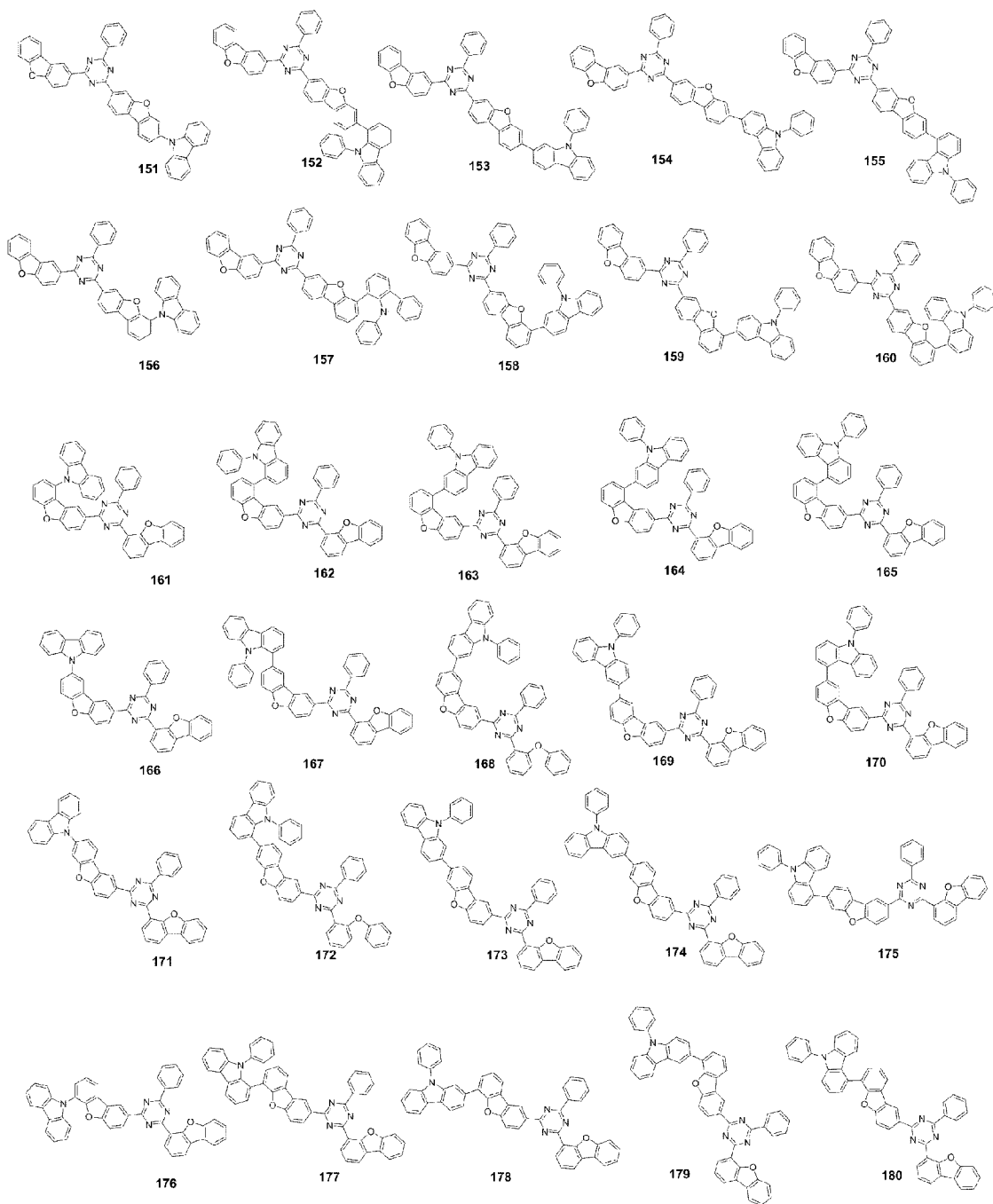
[140]



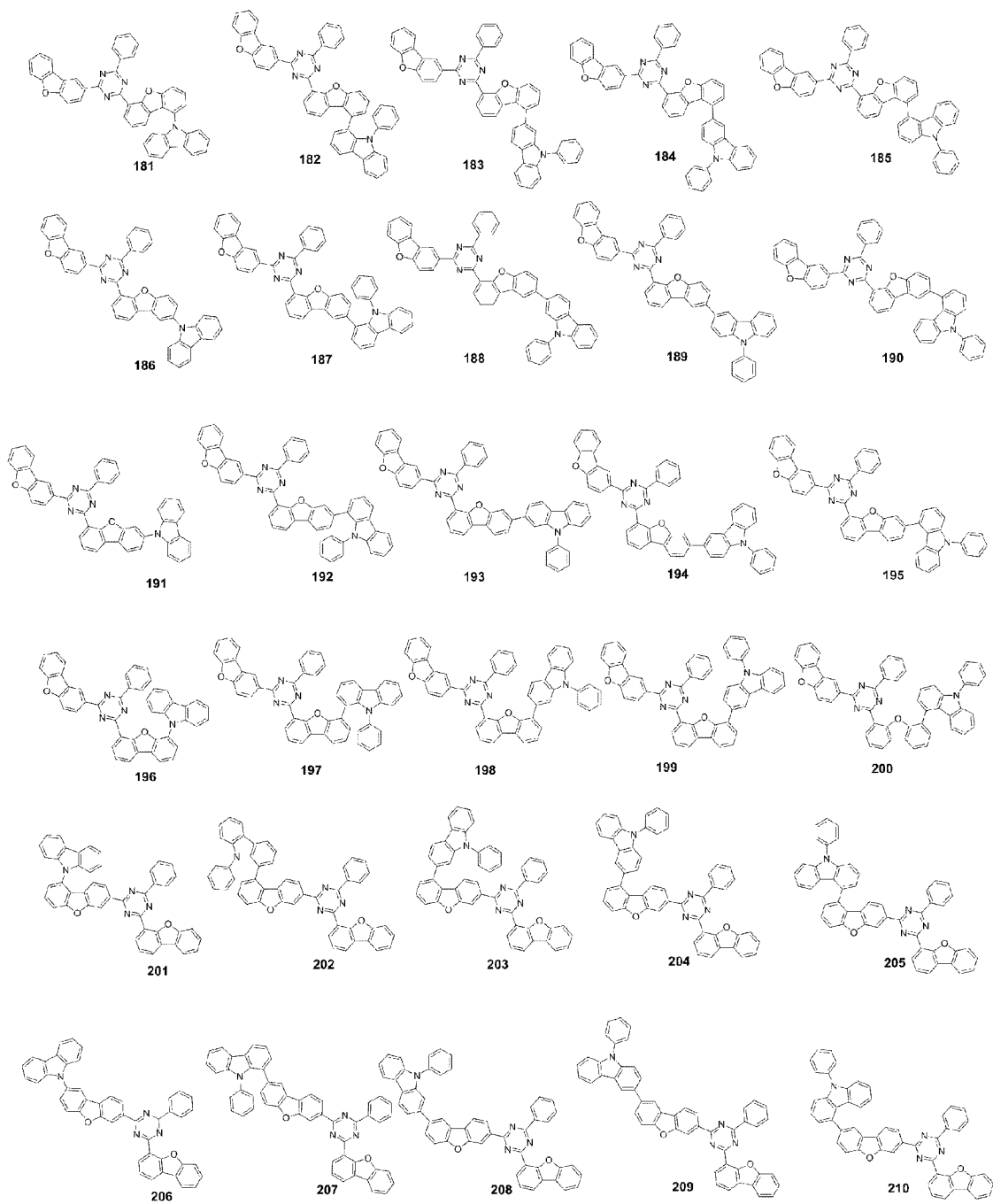
[141]



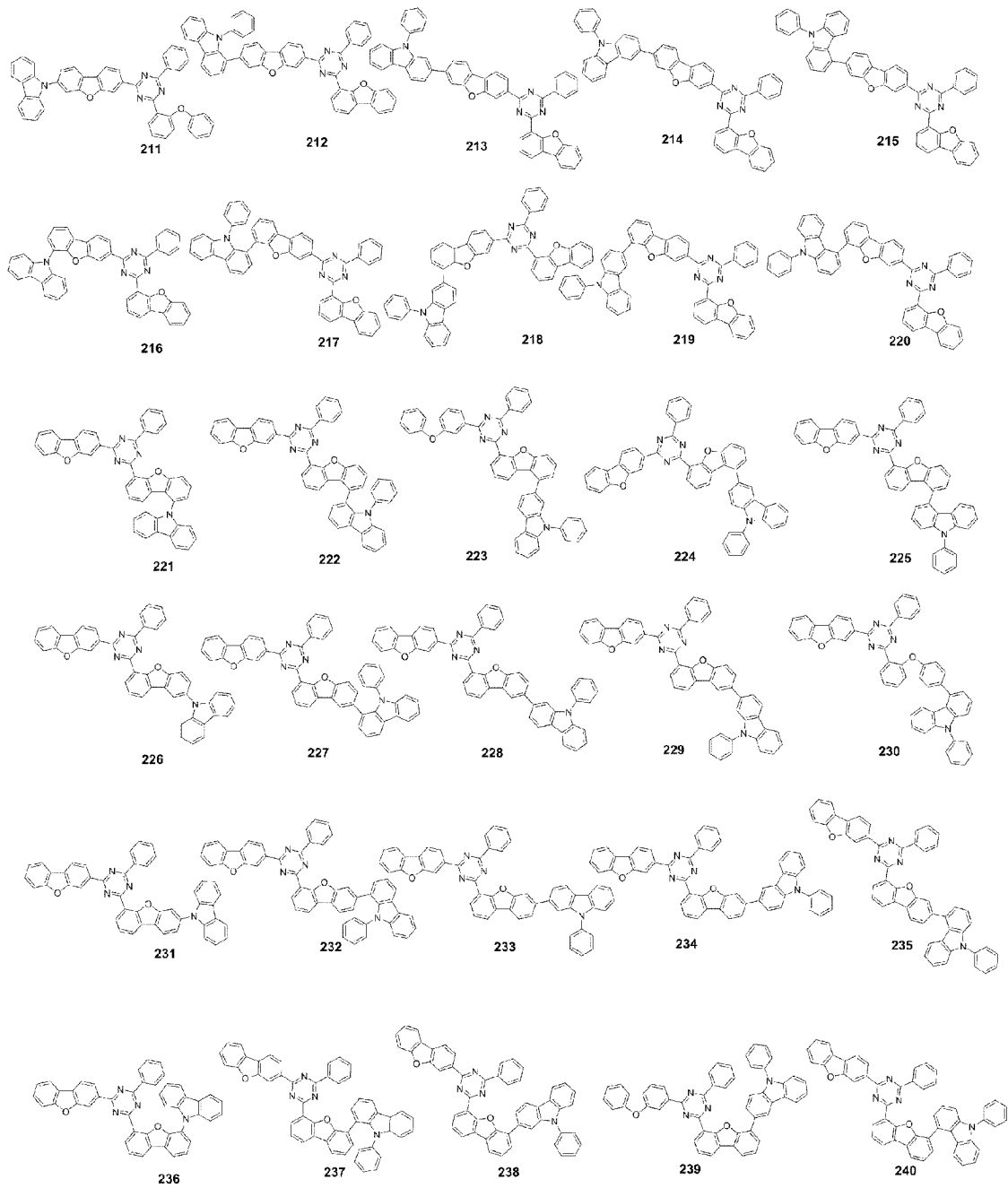
[142]



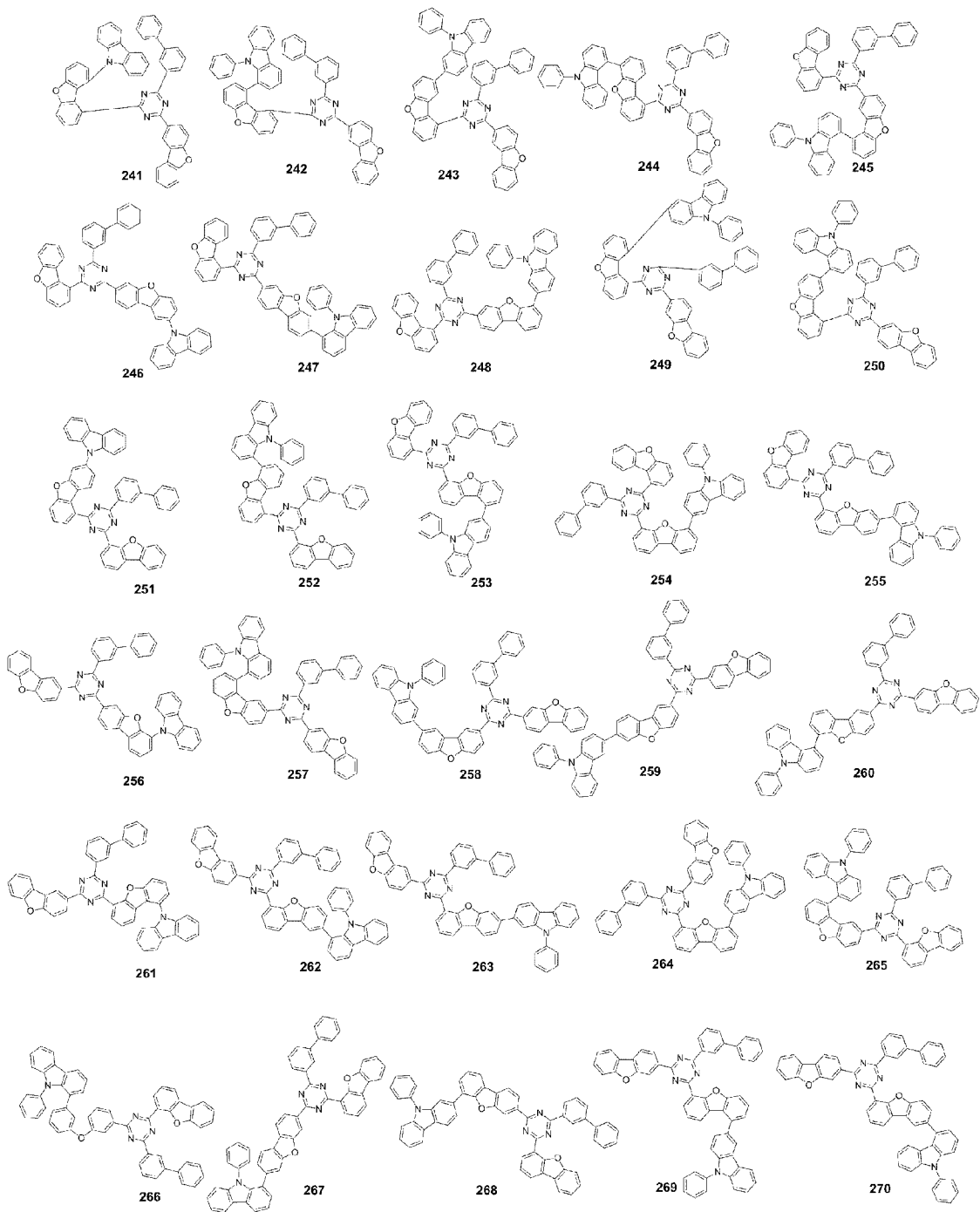
[143]



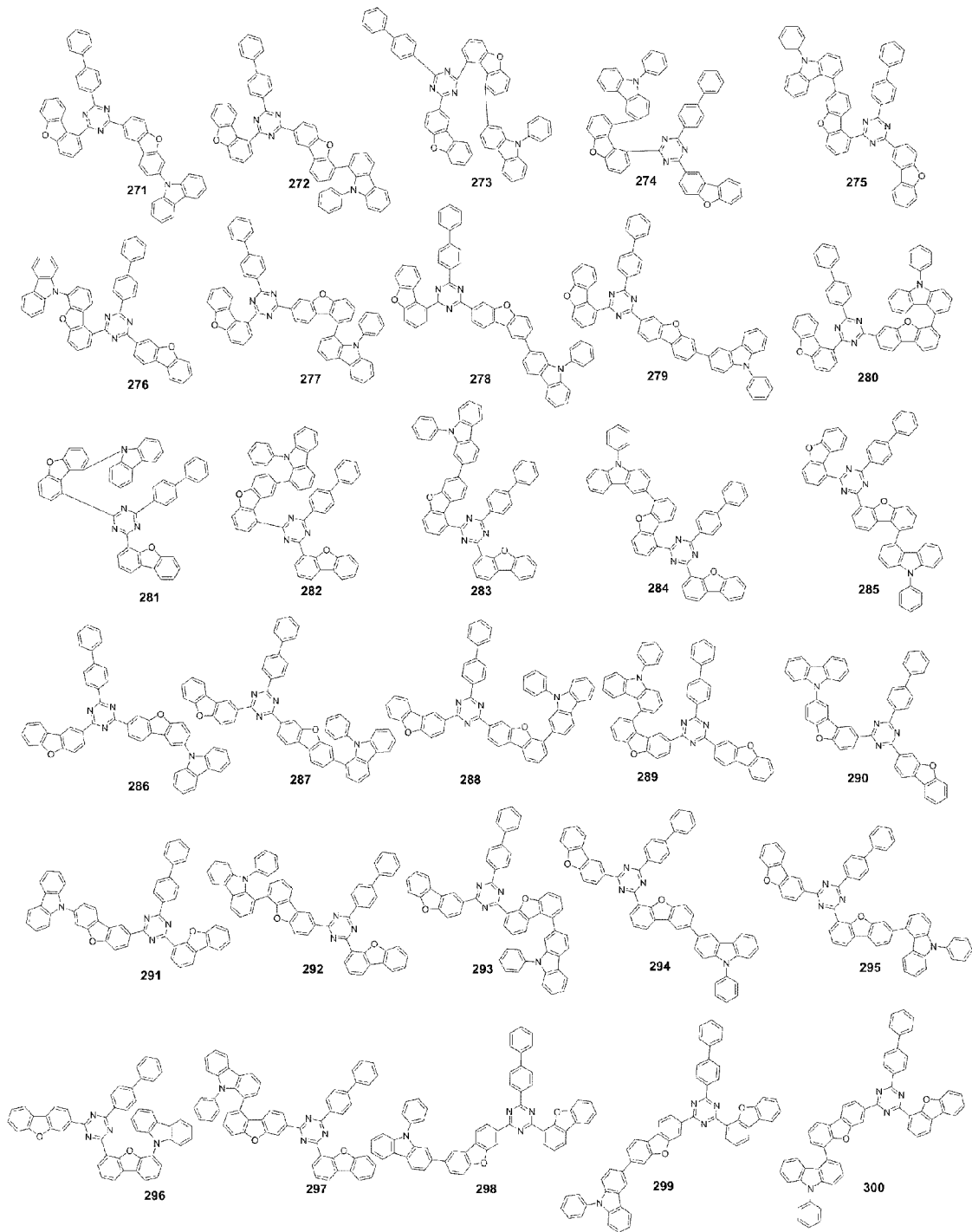
[144]



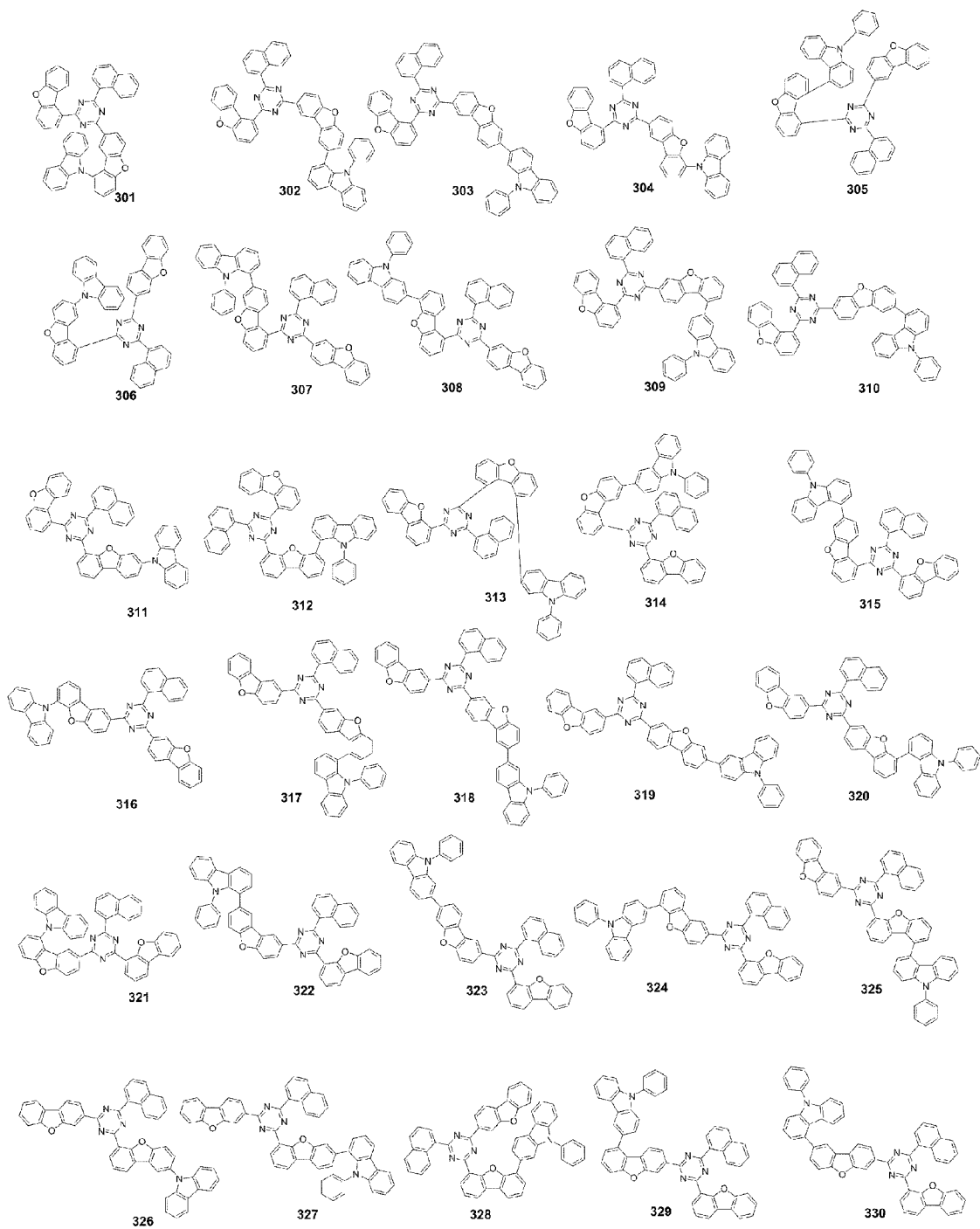
[145]



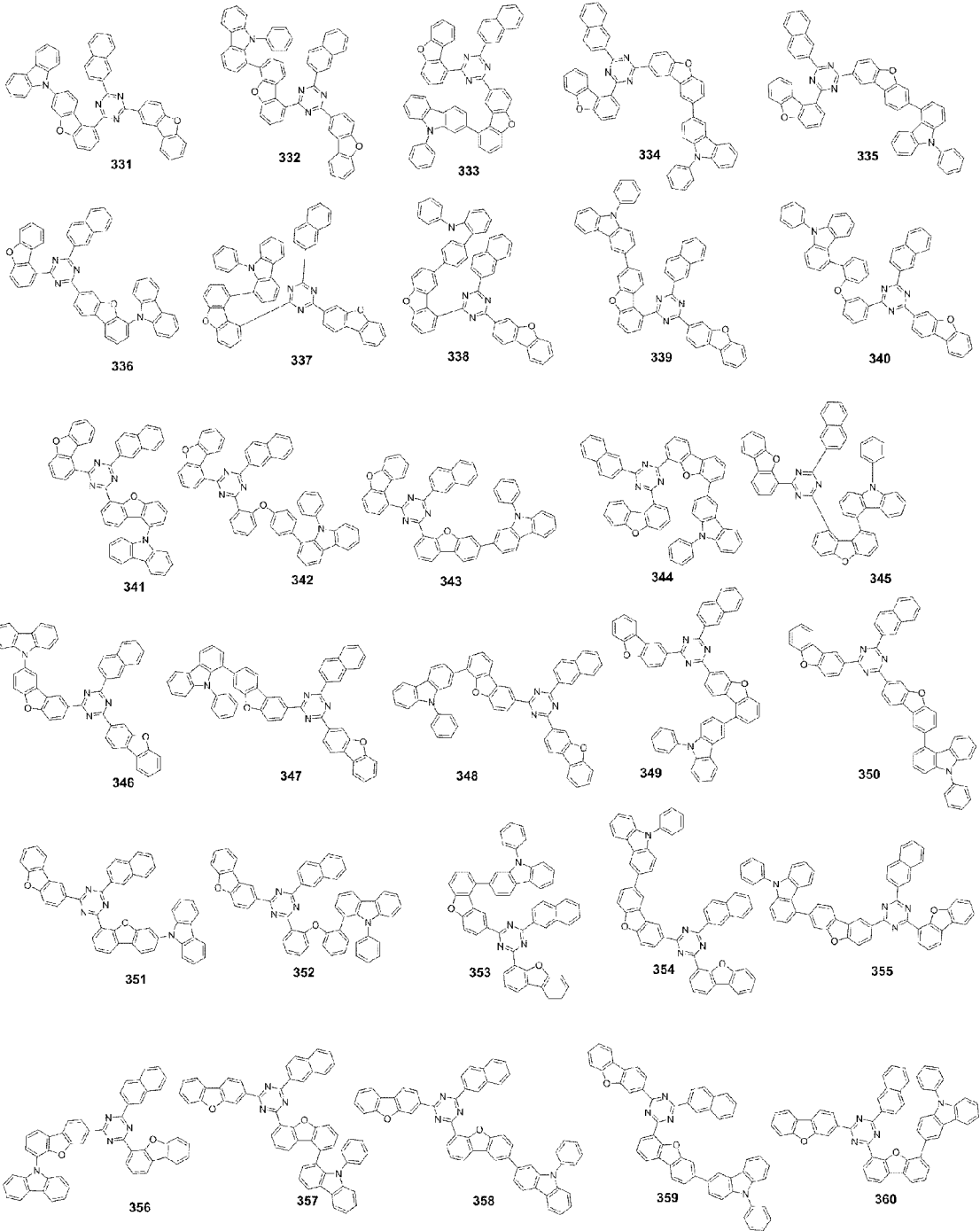
[146]



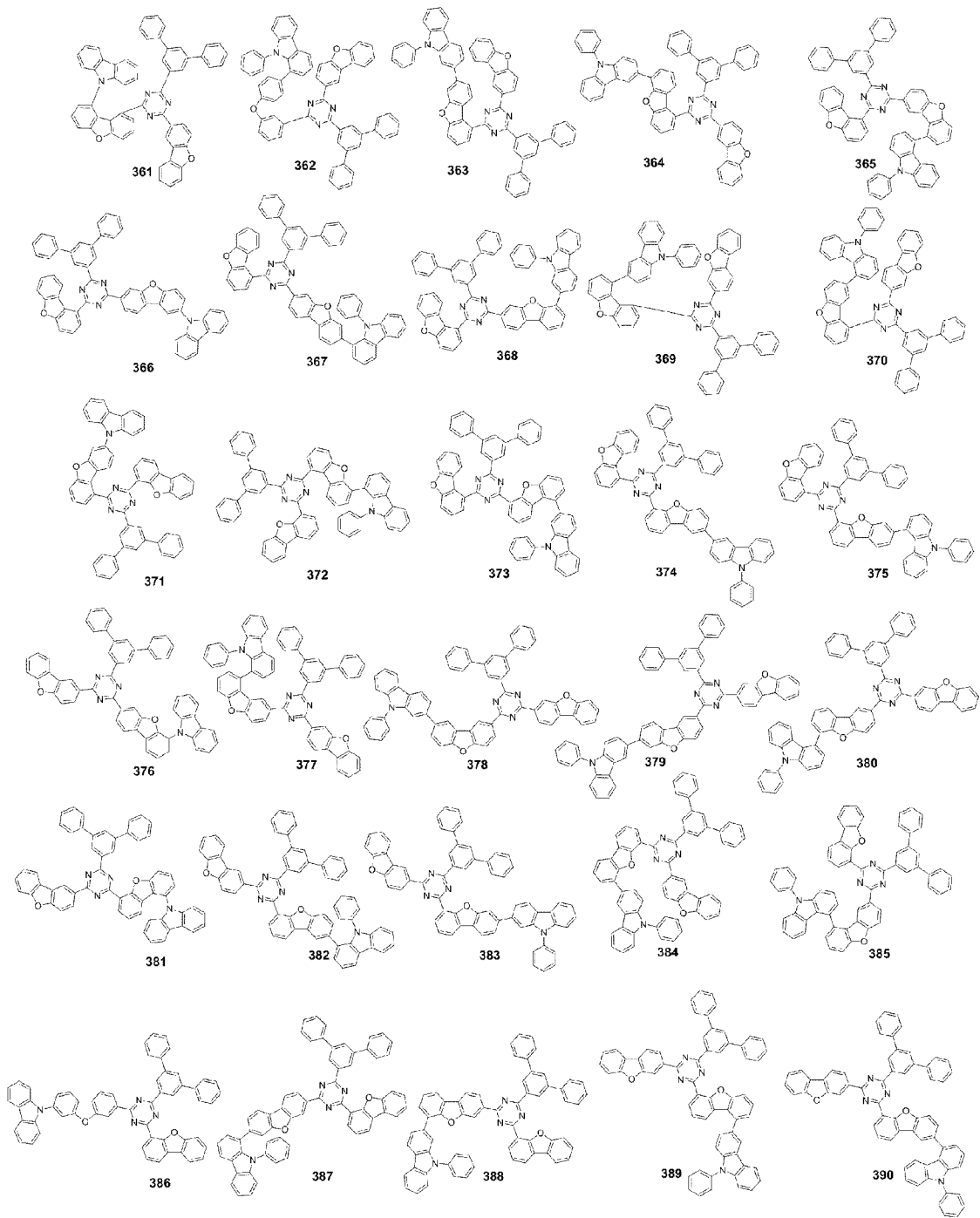
[147]



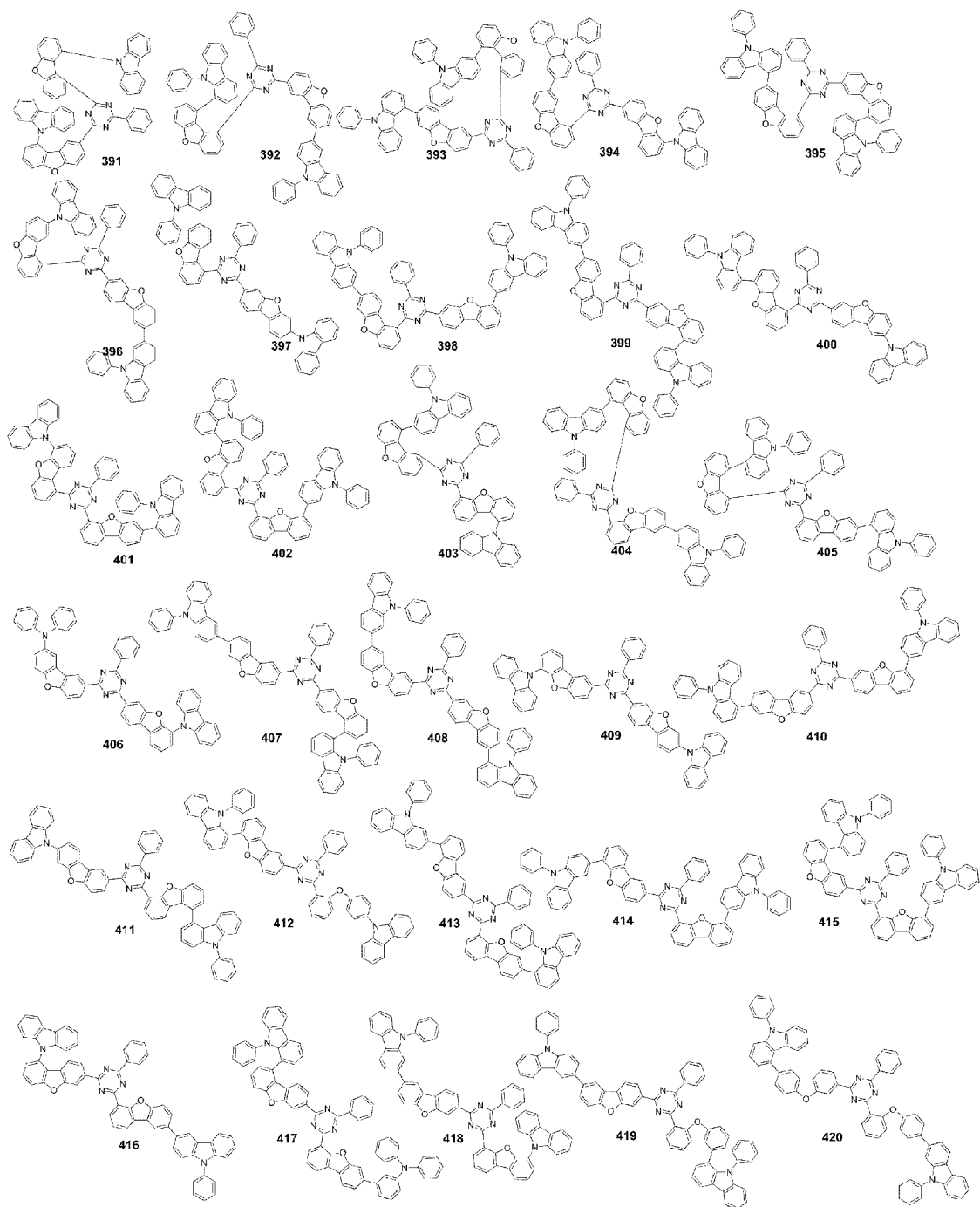
[148]



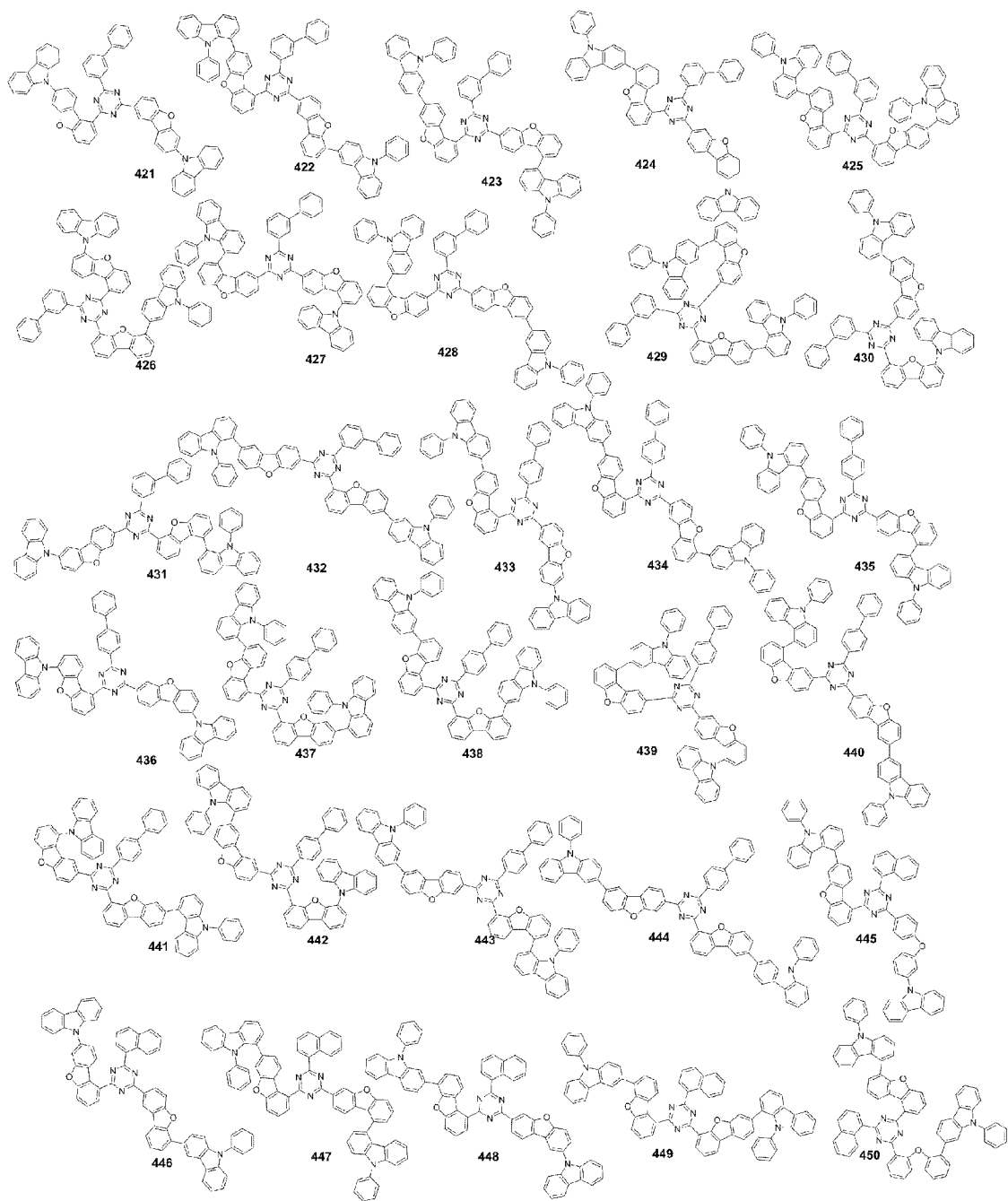
[149]



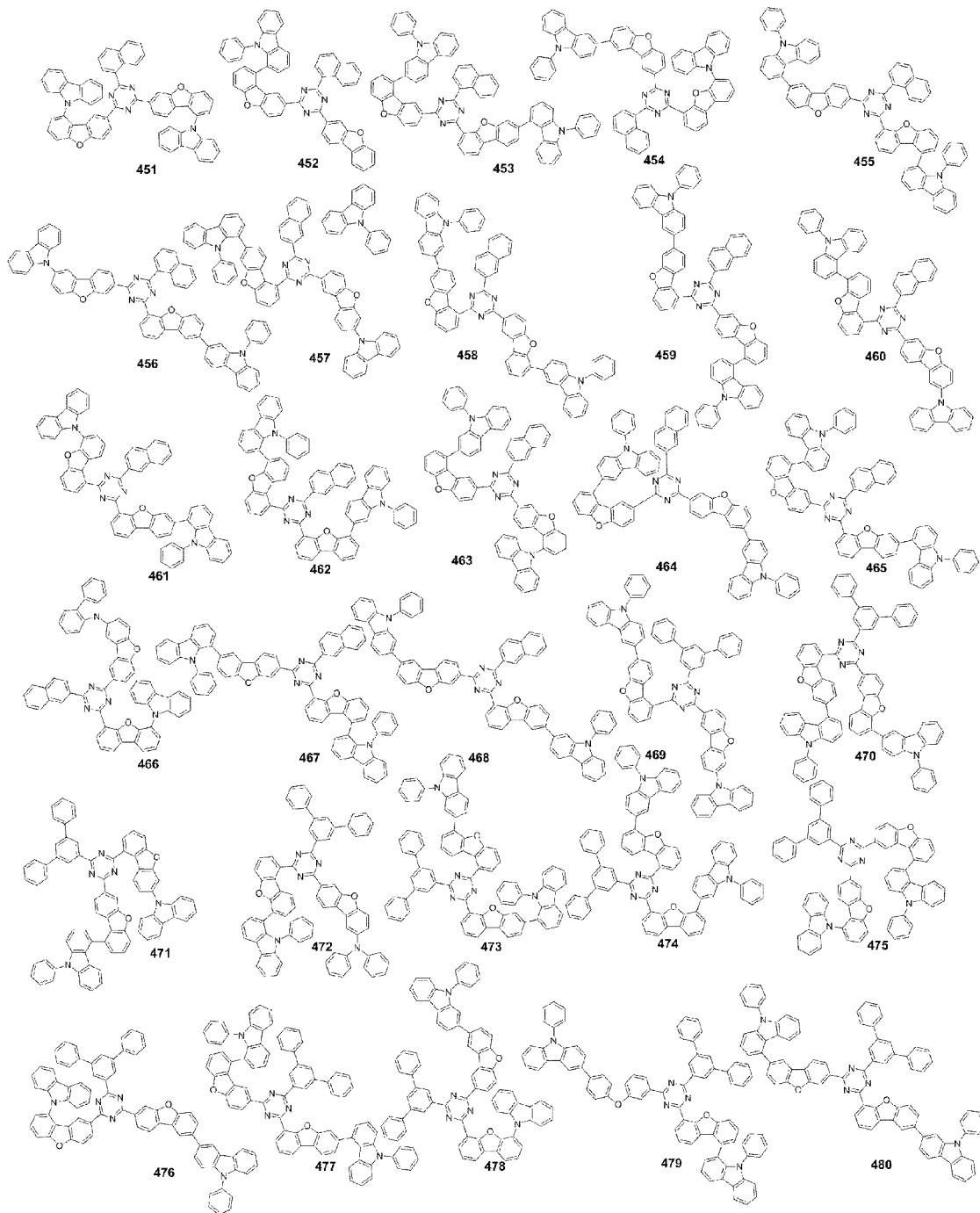
[150]



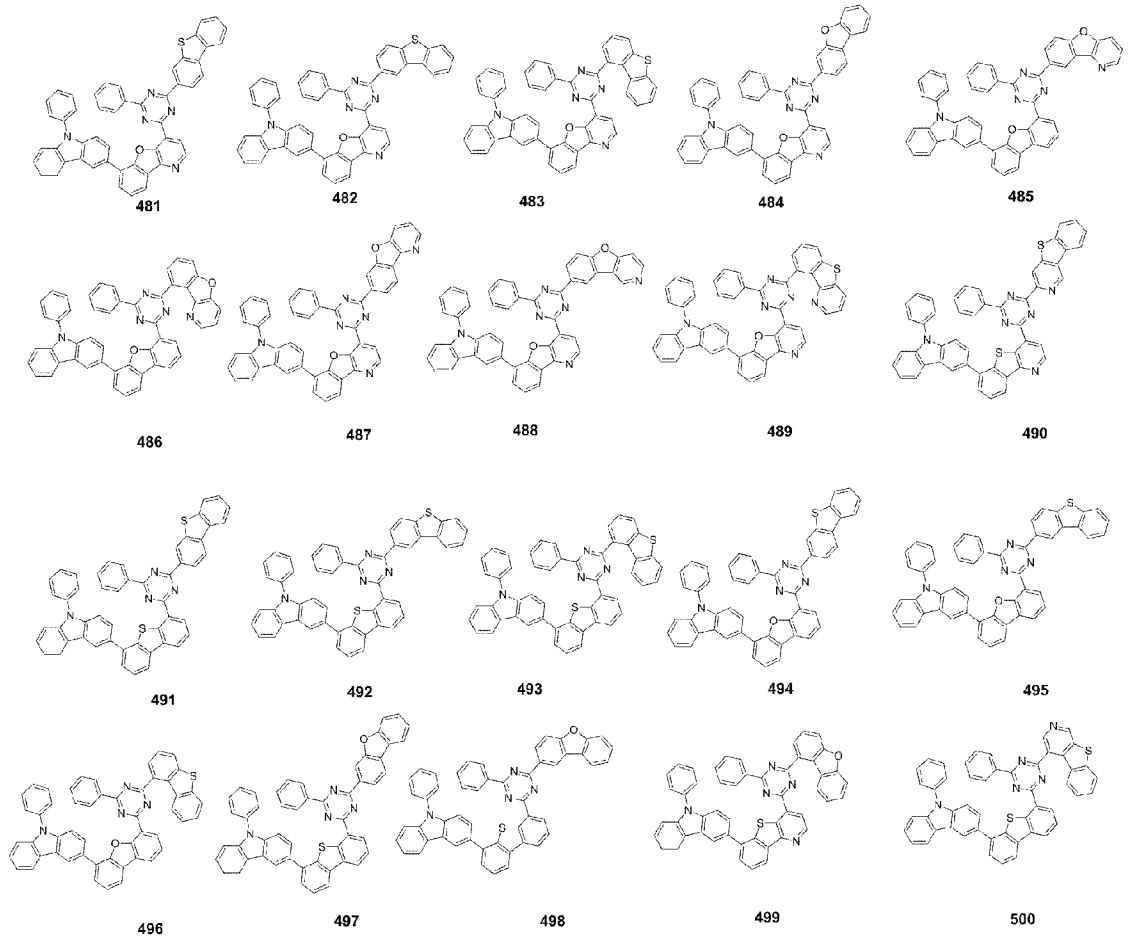
[151]



[152]



[153]



[154] 본 발명에서 "알킬"은 탄소수 1 내지 40개의 직쇄 또는 측쇄의 포화 탄화수소에서 유래되는 1개의 치환기를 의미한다. 이러한 알킬의 예로는 메틸, 에틸, 프로필, 이소부틸, sec-부틸, 펜틸, iso-아밀, 헥실 등을 들 수 있으나, 이에 한정되지는 않는다.

[155] 본 발명에서 "알케닐(alkenyl)"은 탄소-탄소 이중 결합을 1개 이상 가진 탄소수 2 내지 40개의 직쇄 또는 측쇄의 불포화 탄화수소에서 유래되는 1개의 치환기를 의미한다. 이러한 알케닐의 예로는 비닐(vinyl), 알릴(allyl), 이소프로펜일(isopropenyl), 2-부텐일(2-butenyl) 등을 들 수 있으나, 이에 한정되지는 않는다.

[156] 본 발명에서 "알키닐(alkynyl)"은 탄소-탄소 삼중 결합을 1개 이상 가진 탄소수 2 내지 40개의 직쇄 또는 측쇄의 불포화 탄화수소에서 유래되는 1개의 치환기를 의미한다. 이러한 알키닐의 예로는 에티닐(ethynyl), 2-프로파닐(2-propynyl) 등을 들 수 있으나, 이에 한정되지는 않는다.

[157] 본 발명에서 "시클로알킬"은 탄소수 3 내지 40개의 모노사이클릭 또는 폴리사이클릭 비-방향족 탄화수소로부터 유래된 1개의 치환기를 의미한다. 이러한 사이클로알킬의 예로는 사이클로프로필, 사이클로펜틸, 사이클로헥실, 노르보닐(norbornyl), 아다만틴(adamantine) 등을 들 수 있으나, 이에 한정되지는 않는다.

- [158] 본 발명에서 "헤테로시클로알킬"은 핵원자수 3 내지 40개의 비-방향족 탄화수소로부터 유래된 1개의 치환기를 의미하며, 고리 중 하나 이상의 탄소, 바람직하게는 1 내지 3개의 탄소가 N, O, S 또는 Se와 같은 헤테로 원자로 치환된다. 이러한 헤테로시클로알킬의 예로는 모르폴린, 피페라진 등을 들 수 있으나, 이에 한정되지는 않는다.
- [159] 본 발명에서 "아릴"은 단독 고리 또는 2 이상의 고리가 조합된 탄소수 6 내지 60개의 방향족 탄화수소로부터 유래된 1개의 치환기를 의미한다. 또한, 2 이상의 고리가 서로 단순 부착(pendant)되거나 축합된 형태도 포함될 수 있다. 이러한 아릴의 예로는 페닐, 나프틸, 페난트릴, 안트릴 등을 들 수 있으나, 이에 한정되지는 않는다.
- [160] 본 발명에서 "헤테로아릴"은 핵원자수 5 내지 60개의 모노헤테로사이클릭 또는 폴리헤테로사이클릭 방향족 탄화수소로부터 유래된 1개의 치환기를 의미한다. 이때, 고리 중 하나 이상의 탄소, 바람직하게는 1 내지 3개의 탄소가 N, O, S 또는 Se와 같은 헤테로원자로 치환된다. 또한, 2 이상의 고리가 서로 단순 부착(pendant)되거나 축합된 형태도 포함될 수 있고, 나아가 아릴기와의 축합된 형태도 포함될 수 있다. 이러한 헤테로아릴의 예로는 피리디닐, 피라지닐, 피리미디닐, 피리다지닐, 트리아지닐과 같은 6-원 모노사이클릭 고리, 페녹사티에닐(phenoxathienyl), 인돌리지닐(indoliziny), 인돌릴(indolyl), 퓨리닐(puriny), 퀴놀릴(quinoly), 벤조티아졸(benzothiazole), 카바졸릴(carbazoly)과 같은 폴리사이클릭 고리 및 2-퓨라닐, N-이미다졸릴, 2-이속사졸릴, 2-피리디닐, 2-피리미디닐 등을 들 수 있으나, 이에 한정되지는 않는다.
- [161] 본 발명에서 "알킬옥시"는 R'O-로 표시되는 1개의 치환기로, 상기 R'는 탄소수 1 내지 40개의 알킬을 의미한다. 이러한 알킬옥시는 직쇄(linear), 측쇄(branched) 또는 사이클릭(cyclic) 구조를 포함할 수 있다. 이러한 알킬옥시의 예로는 메톡시, 에톡시, n-프로폭시, 1-프로폭시, t-부톡시, n-부톡시, 펜톡시 등을 들 수 있으나, 이에 한정되지는 않는다.
- [162] 본 발명에서 "아릴옥시"는 RO-로 표시되는 1개의 치환기로, 상기 R은 탄소수 6 내지 60개의 아릴을 의미한다. 이러한 아릴옥시의 예로는 페닐옥시, 나프틸옥시, 디페닐옥시 등을 들 수 있으나, 이에 한정되지는 않는다.
- [163] 본 발명에서 "알킬실릴"은 탄소수 1 내지 40개의 알킬로 치환된 실릴이고, "아릴실릴"은 탄소수 6 내지 60개의 아릴로 치환된 실릴을 의미한다.
- [164] 본 발명에서 "알킬보론"은 탄소수 1 내지 40개의 알킬로 치환된 보론이고, "아릴보론"은 탄소수 6 내지 60개의 아릴로 치환된 보론을 의미한다.
- [165] 본 발명에서 "아릴포스핀"은 탄소수 6 내지 60개의 아릴로 치환된 포스핀을 의미하고, "아릴포스핀옥사이드기"는 탄소수 6 내지 60개의 아릴로 치환된 포스핀이 O를 포함하는 것을 의미한다.
- [166] 본 발명에서 "축합 고리"는 축합 지방족 고리, 축합 방향족 고리, 축합

헤테로지방족 고리, 축합 헤테로방향족 고리 또는 이들의 조합된 형태를 의미한다.

[167] 본 발명에서 "아릴아민"은 탄소수 6 내지 60개의 아릴로 치환된 아민을 의미한다.

[168] 이와 같은 본 발명의 화학식 1로 표시되는 화합물은 당 분야에 공지된 방법에 따라 제한 없이 제조될 수 있다. 일례로, 하기 실시예의 합성과정을 참고하여 다양하게 합성할 수 있다.

[169]

[170] <유기 전계 발광 소자>

[171] 본 발명은 상기 화학식 1로 표시되는 화합물을 포함하는 유기 전계 발광 소자를 제공한다.

[172] 보다 구체적으로, 본 발명에 따른 유기 전계 발광 소자는 양극(anode), 음극(cathode) 및 상기 양극과 음극 사이에 개재(介在)된 1층 이상의 유기물층을 포함하며, 상기 1층 이상의 유기물층 중 적어도 하나는 상기 화학식 1로 표시되는 화합물을 포함한다. 이때, 상기 화합물은 단독으로 사용되거나, 또는 2 이상이 혼합되어 사용될 수 있다.

[173] 상기 1층 이상의 유기물층은 정공 주입층, 정공 수송층, 발광 보조층, 발광층, 전자 수송층 및 전자 주입층 중 어느 하나 이상일 수 있고, 이 중에서 적어도 하나의 유기물층은 상기 화학식 1로 표시되는 화합물을 포함할 수 있다. 구체적으로, 상기 화학식 1의 화합물을 포함하는 유기물층은 발광층인 것이 바람직하다.

[174] 본 발명의 유기 전계 발광 소자의 발광층은 호스트 재료(바람직하게는, 인광 호스트 재료)를 포함할 수 있다. 또한, 본 발명의 유기 전계 발광 소자의 발광층은 상기 화학식 1의 화합물 이외의 화합물을 호스트로 포함할 수 있다.

[175] 이러한 본 발명의 유기 전계 발광 소자의 구조는 특별히 한정되지 않으나, 비제한적인 예로 기판, 양극, 정공 주입층, 정공 수송층, 발광 보조층, 발광층, 전자 수송층, 전자 주입층 및 음극이 순차적으로 적층된 구조일 수 있다. 이때, 상기 정공 주입층, 정공 수송층, 발광 보조층, 발광층, 전자 수송층 및 전자 주입층 중 하나 이상은 상기 화학식 1로 표시되는 화합물을 포함할 수 있고, 바람직하게는 발광층이 상기 화학식 1로 표시되는 화합물을 포함할 수 있다. 또한, 본 발명의 유기 전계 발광 소자의 구조는 전극과 유기물층 계면에 절연층 또는 접착층이 삽입된 구조일 수 있다.

[176] 한편, 본 발명의 유기 전계 발광 소자는 상기 유기물층 중 1층 이상이 상기 화학식 1로 표시되는 화합물을 포함하는 것을 제외하고는, 당업계에 공지된 재료 및 방법으로 유기물층 및 전극을 형성하여 제조할 수 있다.

[177] 상기 유기물층은 진공 증착법이나 용액 도포법에 의하여 형성될 수 있다. 상기 용액 도포법의 예로는 스핀 코팅, 딥코팅, 닥터 블레이딩, 잉크젯 프린팅 또는 열전사법 등이 있으나, 이에 한정되지는 않는다.

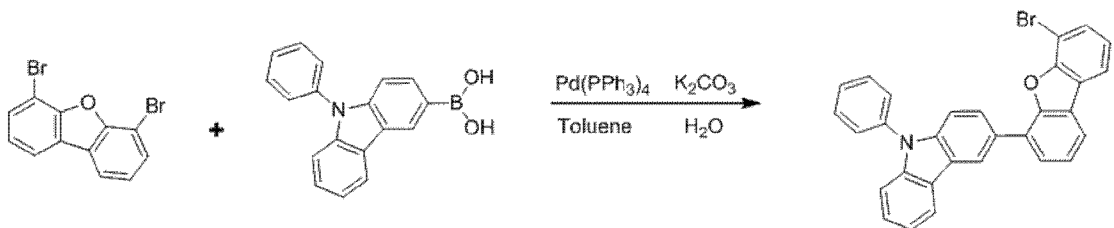
- [178] 본 발명의 유기 전계 발광 소자 제조시 사용되는 기판은 특별히 한정되지 않으나, 실리콘 웨이퍼, 석영, 유리판, 금속판, 플라스틱 필름 및 시트 등을 사용할 수 있다.
- [179] 또한, 양극 물질로는 바나듐, 크롬, 구리, 아연, 금과 같은 금속 또는 이들의 합금; 아연산화물, 인듐산화물, 인듐 주석 산화물(ITO), 인듐 아연 산화물(IZO)과 같은 금속 산화물; ZnO:Al 또는 SnO₂:Sb와 같은 금속과 산화물의 조합; 폴리티오펜, 폴리(3-메틸티오펜), 폴리[3,4-(에틸렌-1,2-디옥시)티오펜](PEDT), 폴리피롤 또는 폴리아닐린과 같은 전도성 고분자; 및 카본블랙 등을 들 수 있으나, 이에 한정되지는 않는다.
- [180] 또한, 음극 물질로는 마그네슘, 칼슘, 나트륨, 칼륨, 타이타늄, 인듐, 이트륨, 리튬, 가돌리늄, 알루미늄, 은, 주석, 또는 납과 같은 금속 또는 이들의 합금; 및 LiF/Al 또는 LiO₂/Al과 같은 다층 구조 물질 등을 들 수 있으나, 이에 한정되지는 않는다.
- [181] 또한, 정공 주입층, 정공 수송층, 전자 주입층 및 전자 수송층은 특별히 한정되는 것은 아니며, 당 업계에 알려진 통상의 물질을 사용할 수 있다.
- [182] 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.

[183]

[184] **[준비예 1] C1의 합성**

[185] <단계 1> 3-(6-bromodibenzo[b,d]furan-1-yl)-9-phenyl-9H-carbazole의 합성

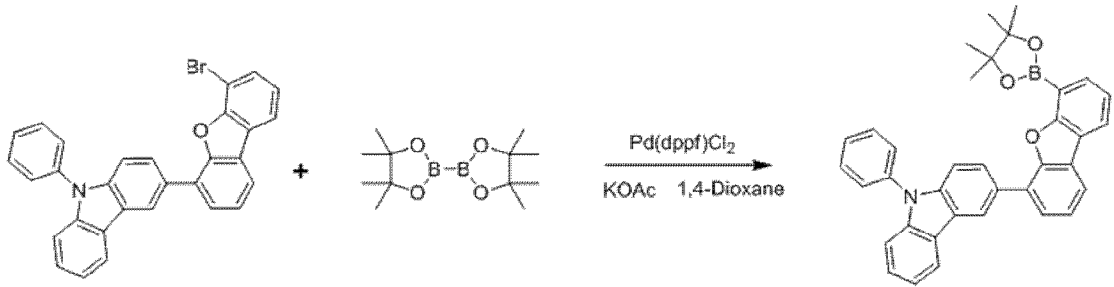
[186]



- [187] 4,6-dibromodibenzo[b,d]furan (40.0 g, 122.7 mmol)와 (9-phenyl-9H-carbazol-3-yl)boronic acid (35.2 g, 122.7 mmol) 및 Pd(PPh₃)₄ (2.8 g, 2.5 mmol), K₂CO₃ (40.7 g, 294.5 mmol)를 toluene 300 ml과 H₂O 150 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성물을 추출하고, 용매 제거 후 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 재결정하여 목적 화합물인 3-(6-bromodibenzo[b,d]furan-1-yl)-9-phenyl-9H-carbazole (44.9 g, 수율 75%)을 얻었다.

[188] <단계 2> C1의 합성

[189]



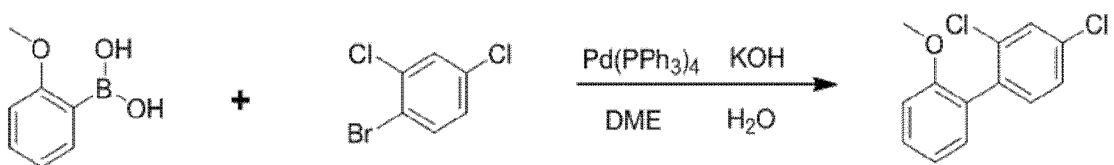
[190] 3-(6-bromodibenzo[b,d]furan-1-yl)-9-phenyl-9H-carbazole (16.8 g, 34.3 mmol)와 Pd(dppf)Cl₂ (0.5 g, 0.7 mmol), potassium acetate (5.1 g, 51.5 mmol) 및 4,4,4',4',5,5,5',5'-octamethyl-2,2'-bi(1,3,2-dioxaborolane) (11.3 g, 44.6 mmol)을 1,4-Dioxane 150 ml에 넣고 110°C에서 5시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 메틸렌클로라이드로 추출하고 MgSO₄를 넣고 필터하였다. 필터된 유기층의 용매를 제거한 후 컬럼크로마토그래피를 이용하여 목적 화합물인 C1 (15.8 g, 수율 86 %)을 얻었다.

[191]

[192] [준비예 2] C2의 합성

[193] <단계 1> 2,4-dichloro-2'-methoxy-1,1'-biphenyl의 합성

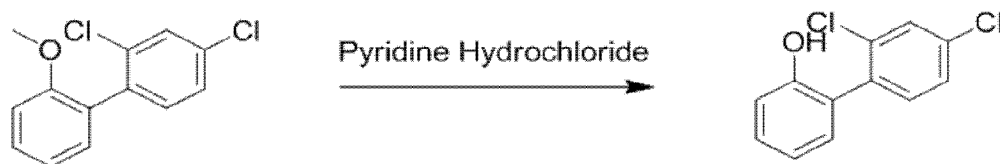
[194]



[195] 2-methoxyphenyl boronic acid (18.5 g, 121.7 mmol)와 1-bromo-2,4-dichlorobenzene (25.0 g, 110.7 mmol), Pd(PPh₃)₄ (6.4 g, 5.5 mmol) 및 KOH (11.1 g, 276.7 mmol)를 DME 300 ml와 H₂O 150 ml에 넣고 85°C에서 12시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 메틸렌클로라이드로 추출하고 MgSO₄를 넣고 필터하였다. 필터된 유기층의 용매를 제거한 후 컬럼크로마토그래피를 이용하여 목적 화합물인 2,4-dichloro-2'-methoxy-1,1'-biphenyl (23.5 g, 수율 84 %)을 얻었다.

[196] <단계 2> 2',4'-dichloro-[1,1'-biphenyl]-2-ol의 합성

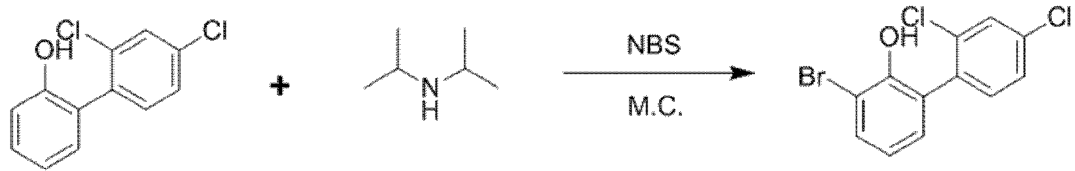
[197]



[198] 2,4-dichloro-2'-methoxy-1,1'-biphenyl (17.0 g, 67.2 mmol)과 pyridine hydrochloride (38.8 g, 335.8 mmol)를 혼합하고 190°C에서 12시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 증류수와 메틸렌클로라이드로 추출하고 MgSO₄를 넣고 필터하였다. 필터된 유기층의 용매를 제거한 후 컬럼크로마토그래피를 이용하여 목적 화합물인 2',4'-dichloro-[1,1'-biphenyl]-2-ol (12.8 g, 수율 80 %)을 얻었다.

[199] <단계 3> 3-bromo-2',4'-dichloro-[1,1'-biphenyl]-2-ol의 합성

[200]



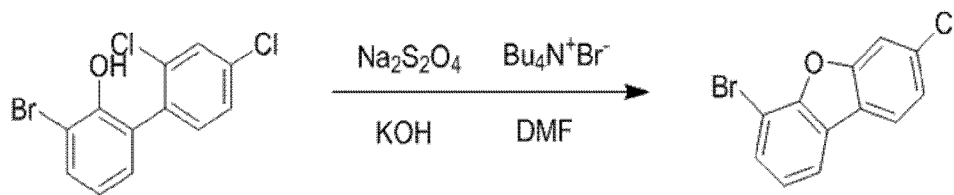
[201]

2,4'-dichloro-[1,1'-biphenyl]-2-ol (13.5 g, 56.5 mmol)과 Diisopropylamine (1.2 mL, 8.5 mmol)을 메틸렌클로라이드 혼합물 150 ml에 NBS (11.1 g, 62.1 mmol)을 천천히 넣고 40°C에서 12시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 메틸렌클로라이드와 Sodium thiosulfate 수용액으로 추출하고 MgSO₄를 넣고 필터하였다. 필터된 유기층의 용매를 제거한 후 컬럼크로마토그래피를 이용하여 목적 화합물인 3-bromo-2,4'-dichloro-[1,1'-biphenyl]-2-ol (13.5 g, 수율 75%)을 얻었다.

[202]

<단계 4> 6-bromo-3-chlorodibenzo[b,d]furan의 합성

[203]



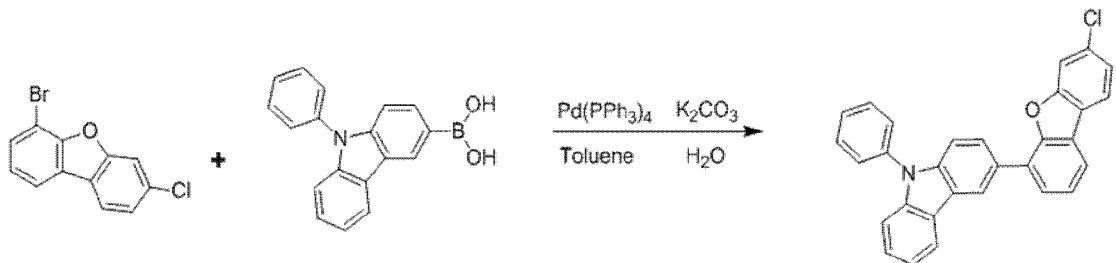
[204]

3-bromo-2,4'-dichloro-[1,1'-biphenyl]-2-ol (18.0 g, 56.6 mmol)와 sodium hydrosulfite (1.8 g, 5.7 mmol), KOH (12.7 g, 226.4 mmol) 및 tetrabutylammonium bromide (2.0 g, 11.3 mmol)를 DMF 200 ml에 넣고 155°C에서 5시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 증류수를 넣고, 생성된 고체를 필터한다. 메틸렌클로라이드로 추출하고 용매를 제거한 후 컬럼크로마토그래피를 이용하여 목적 화합물인 6-bromo-3-chlorodibenzo[b,d]furan (14.2 g, 수율 89%)을 얻었다.

[205]

<단계 5> 3-(7-chlorodibenzo[b,d]furan-4-yl)-9-phenyl-9H-carbazole의 합성

[206]

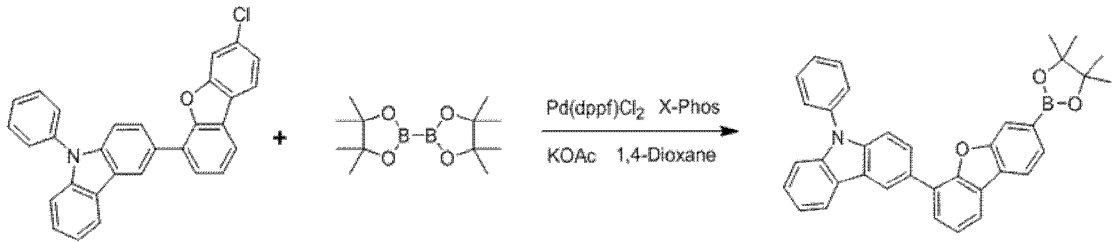


[207]

(9-phenyl-9H-carbazol-3-yl)boronic acid (12.9 g, 44.9 mmol)와 6-bromo-3-chlorodibenzo[b,d]furan (11.5 g, 40.9 mmol) 및 Pd(PPh₃)₄ (1.4 g, 1.2 mmol), K₂CO₃ (13.6 g, 98.0 mmol)를 toluene 150 ml과 H₂O 75 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성된 고체는 필터하였다. 필터된 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 재결정하여 목적 화합물인 3-(7-chlorodibenzo[b,d]furan-4-yl)-9-phenyl-9H-carbazole (13.8 g, 수율 76%)을 얻었다.

[208] <단계 6> C2의 합성

[209]



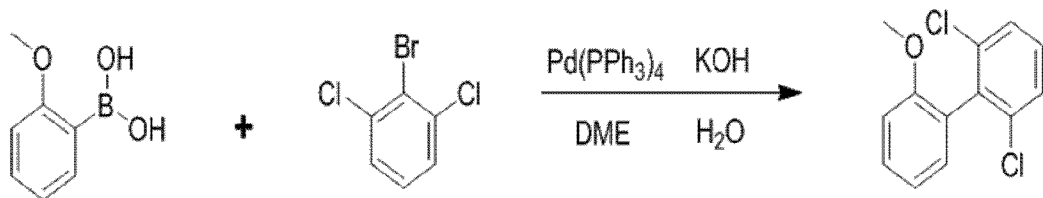
[210] 3-(7-chlorodibenzo[b,d]furan-4-yl)-9-phenyl-9H-carbazole (8.3 g, 18.7 mmol)와 Pd(dppf)Cl₂ (0.6 g, 0.8 mmol), potassium acetate (3.7 g, 37.5 mmol), 4,4,4',4',5,5,5',5'-octamethyl-2,2'-bi(1,3,2-dioxaborolane) (6.2 g, 24.4 mmol) 및 X-Phos (1.8 g, 3.8 mmol)을 1,4-Dioxane 80 ml에 넣고 110°C에서 5시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 메틸렌클로라이드로 추출하고 MgSO₄를 넣고 필터하였다. 필터된 유기층의 용매를 제거한 후 컬럼크로마토그래피를 이용하여 목적 화합물인 C2 (8.5 g, 수율 85%)을 얻었다.

[211]

[212] [준비예 3] C3의 합성

[213] <단계 1> 2,6-dichloro-2'-methoxy-1,1'-biphenyl의 합성

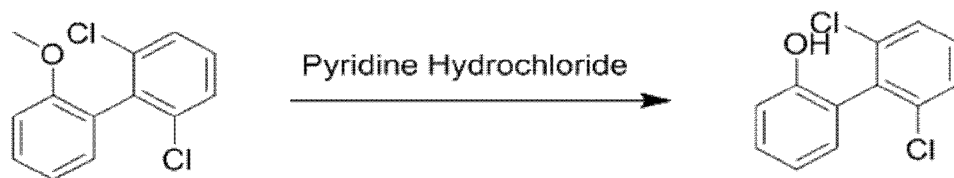
[214]



[215] 2-methoxyphenyl boronic acid (18.5 g, 121.7 mmol)와 1-bromo-2,4-dichlorobenzene (25.0 g, 110.7 mmol), Pd(PPh₃)₄ (6.4 g, 5.5 mmol) 및 KOH (11.1 g, 276.7 mmol)를 DME 300 ml와 H₂O 150 ml에 넣고 85°C에서 12시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 메틸렌클로라이드로 추출하고 MgSO₄를 넣고 필터하였다. 필터된 유기층의 용매를 제거한 후 컬럼크로마토그래피를 이용하여 목적 화합물인 2,6-dichloro-2'-methoxy-1,1'-biphenyl (24.6 g, 수율 88%)을 얻었다.

[216] <단계 2> 2',6'-dichloro-[1,1'-biphenyl]-2-ol의 합성

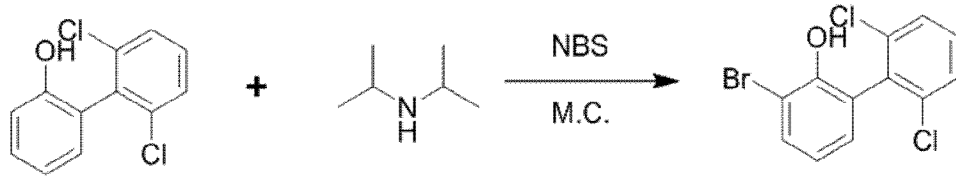
[217]



[218] 2,6-dichloro-2'-methoxy-1,1'-biphenyl (22.5 g, 88.9 mmol)과 pyridine hydrochloride (41.1 g, 355.56 mmol)를 혼합하고 190°C에서 12시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 증류수와 메틸렌클로라이드로 추출하고 MgSO₄를 넣고 필터하였다. 필터된 유기층의 용매를 제거한 후 컬럼크로마토그래피를 이용하여 목적 화합물인 2',6'-dichloro-[1,1'-biphenyl]-2-ol (17.4 g, 수율 82%)을 얻었다.

[219] <단계 3> 3-bromo-2',6'-dichloro-[1,1'-biphenyl]-2-ol의 합성

[220]



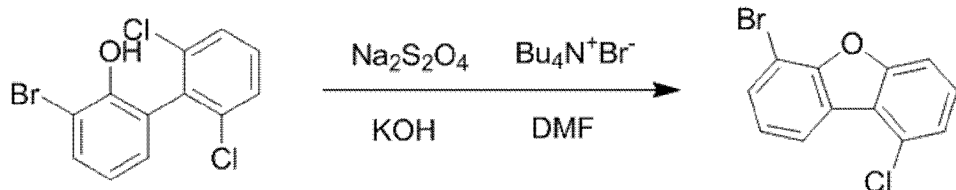
[221]

2',6'-dichloro-[1,1'-biphenyl]-2-ol (16.6 g, 69.4 mmol)과 Diisopropylamine (1.5 mL, 10.4 mmol)을 메틸렌클로라이드 혼합물 200 ml에 NBS (13.6 g, 76.4 mmol)을 천천히 넣고 40°C에서 12시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 메틸렌클로라이드와 Sodium thiosulfate 수용액으로 추출하고 MgSO₄를 넣고 필터하였다. 필터된 유기층의 용매를 제거한 후 컬럼크로마토그래피를 이용하여 목적 화합물인 3-bromo-2',6'-dichloro-[1,1'-biphenyl]-2-ol (17.0 g, 수율 77%)을 얻었다.

[222]

<단계 4> 6-bromo-1-chlorodibenzo[b,d]furan의 합성

[223]



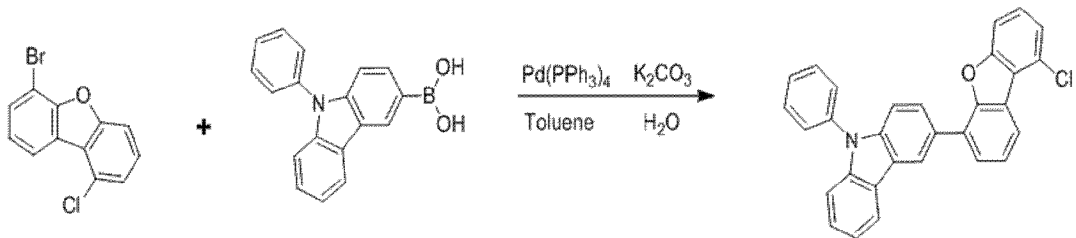
[224]

3-bromo-2',6'-dichloro-[1,1'-biphenyl]-2-ol (33.0 g, 103.8 mmol)와 sodium hydrosulfite (3.3 g, 10.4 mmol), KOH (23.3 g, 415.1 mmol) 및 tetrabutylammonium bromide (3.6 g, 20.8 mmol)를 DMF 200 ml에 넣고 155°C에서 5시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 증류수를 넣고, 생성된 고체를 필터한다. 메틸렌클로라이드로 추출하고 용매를 제거한 후 컬럼크로마토그래피를 이용하여 목적 화합물인 6-bromo-1-chlorodibenzo[b,d]furan (24.8 g, 수율 85%)을 얻었다.

[225]

<단계 5> 3-(9-chlorodibenzo[b,d]furan-4-yl)-9-phenyl-9H-carbazole의 합성

[226]



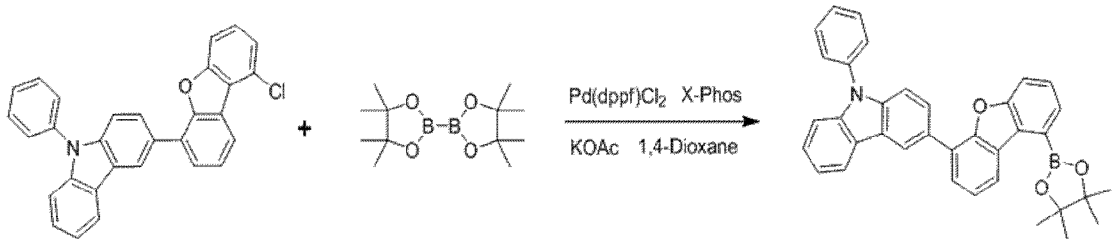
[227]

(9-phenyl-9H-carbazol-3-yl)boronic acid (14.6 g, 50.8 mmol)와 6-bromo-1-chlorodibenzo[b,d]furan (13.0 g, 46.8 mmol) 및 Pd(PPh₃)₄ (1.6 g, 1.4 mmol), K₂CO₃ (15.3 g, 110.8 mmol)를 toluene 150 ml과 H₂O 75 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성된 고체는 필터하였다. 필터된 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 재결정하여 목적 화합물인 3-(9-chlorodibenzo[b,d]furan-4-yl)-9-phenyl-9H-carbazole (15.2 g, 수율 74%)을 얻었다.

[228]

<단계 6> C3의 합성

[229]

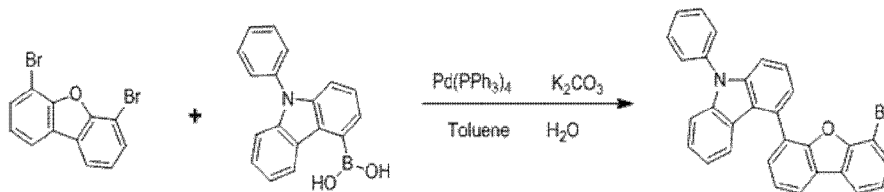


[230] 3-(9-chlorodibenzo[b,d]furan-4-yl)-9-phenyl-9H-carbazole (15.1 g, 34.0 mmol)와 Pd(dppf)Cl₂ (1.0 g, 1.36 mmol), potassium acetate (6.7 g, 68.0 mmol), 4,4,4',4',5,5,5',5'-octamethyl-2,2'-bi(1,3,2-dioxaborolane) (11.2 g, 44.2 mmol) 및 X-Phos (3.2 g, 6.8 mmol)을 1,4-Dioxane 80 ml에 넣고 110°C에서 5시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 메틸렌클로라이드로 추출하고 MgSO₄를 넣고 필터하였다. 필터된 유기층의 용매를 제거한 후 컬럼크로마토그래피를 이용하여 목적 화합물인 C3 (14.6 g, 수율 80%)을 얻었다.

[231]

[232] **[준비예 4] C4의 합성**[233] <단계 1> 4-(6-bromodibenzo[b,d]furan-4-yl)-9-phenyl-9H-carbazole의 합성

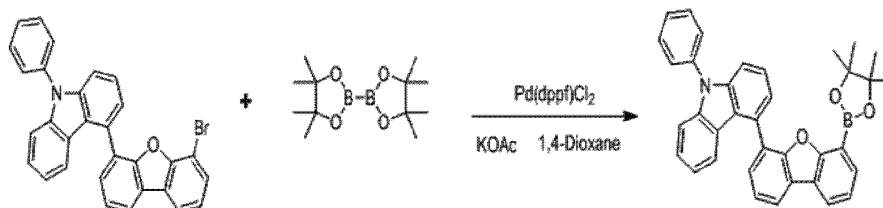
[234]



[235] 4,6-dibromodibenzo[b,d]furan (40.0 g, 122.7 mmol)와 (9-phenyl-9H-carbazol-3-yl)boronic acid (35.2 g, 122.7 mmol) 및 Pd(PPh₃)₄ (2.8 g, 2.5 mmol), K₂CO₃ (40.7 g, 294.5 mmol)를 toluene 300 ml과 H₂O 150 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성물을 추출하고, 용매 제거 후 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 재결정하여 목적 화합물인 4-(6-bromodibenzo[b,d]furan-4-yl)-9-phenyl-9H-carbazole (38.4 g, 수율 64%)을 얻었다.

[236] <단계 2> C4의 합성

[237]



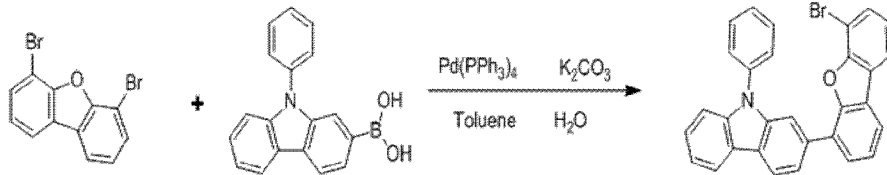
[238] 4-(6-bromodibenzo[b,d]furan-4-yl)-9-phenyl-9H-carbazole (20.0 g, 41.0 mmol)와 Pd(dppf)Cl₂ (0.6 g, 0.8 mmol), potassium acetate (6.0 g, 61.4 mmol) 및 4,4,4',4',5,5,5',5'-octamethyl-2,2'-bi(1,3,2-dioxaborolane) (13.5 g, 53.2 mmol)을

1,4-Dioxane 150 ml에 넣고 110°C에서 5시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 메틸렌클로라이드로 추출하고 MgSO₄를 넣고 필터하였다. 필터된 유기층의 용매를 제거한 후 컬럼크로마토그래피를 이용하여 목적 화합물인 C4 (18.2 g, 수율 83 %)을 얻었다.

[239]

[240] **[준비예 5] C5의 합성**[241] <단계 1> 2-(6-bromodibenzo[b,d]furan-4-yl)-9-phenyl-9H-carbazole의 합성

[242]

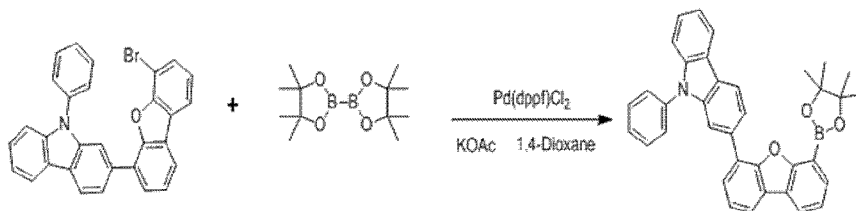


[243]

4,6-dibromodibenzo[b,d]furan (40.0 g, 122.7 mmol)와 (9-phenyl-9H-carbazol-3-yl)boronic acid (35.2 g, 122.7 mmol) 및 Pd(PPh₃)₄ (2.8 g, 2.5 mmol), K₂CO₃ (40.7 g, 294.5 mmol)를 toluene 300 ml과 H₂O 150 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성물을 추출하고, 용매 제거 후 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 재결정하여 목적 화합물인 2-(6-bromodibenzo[b,d]furan-4-yl)-9-phenyl-9H-carbazole (50.3 g, 수율 84 %)을 얻었다.

[244] <단계 2> C5의 합성

[245]



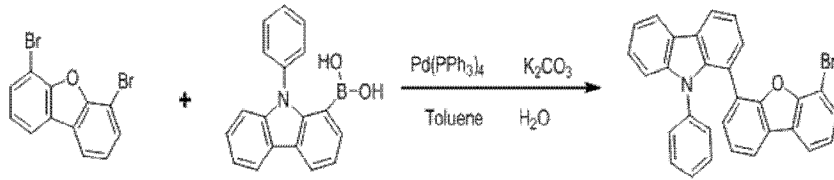
[246]

2-(6-bromodibenzo[b,d]furan-4-yl)-9-phenyl-9H-carbazole (20.0 g, 41.0 mmol)와 Pd(dppf)Cl₂ (0.6 g, 0.8 mmol), potassium acetate (6.0 g, 61.4 mmol) 및 4,4,4',4',5,5,5',5'-octamethyl-2,2'-bi(1,3,2-dioxaborolane) (13.5 g, 53.2 mmol)을 1,4-Dioxane 150 ml에 넣고 110°C에서 5시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 메틸렌클로라이드로 추출하고 MgSO₄를 넣고 필터하였다. 필터된 유기층의 용매를 제거한 후 컬럼크로마토그래피를 이용하여 목적 화합물인 C5 (18.6 g, 수율 85 %)을 얻었다.

[247]

[248] **[준비예 6] C6의 합성**[249] <단계 1> 1-(6-bromodibenzo[b,d]furan-4-yl)-9-phenyl-9H-carbazole의 합성

[250]



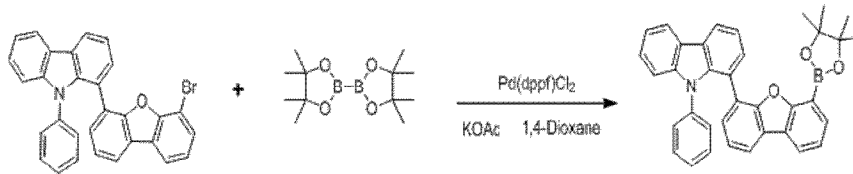
[251]

4,6-dibromodibenzo[b,d]furan (40.0 g, 122.7 mmol)와 (9-phenyl-9H-carbazol-3-yl)boronic acid (35.2 g, 122.7 mmol) 및 Pd(PPh₃)₄ (2.8 g, 2.5 mmol), K₂CO₃ (40.7 g, 294.5 mmol)를 toluene 300 ml과 H₂O 150 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성물을 추출하고, 용매 제거 후 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 재결정하여 목적 화합물인 1-(6-bromodibenzo[b,d]furan-4-yl)-9-phenyl-9H-carbazole (34.8 g, 수율 58 %)을 얻었다.

[252]

<단계 2> C6의 합성

[253]



[254]

1-(6-bromodibenzo[b,d]furan-4-yl)-9-phenyl-9H-carbazole (20.0 g, 41.0 mmol)와 Pd(dppf)Cl₂ (0.6 g, 0.8 mmol), potassium acetate (6.0 g, 61.4 mmol) 및 4,4,4',4',5,5,5',5'-octamethyl-2,2'-bi(1,3,2-dioxaborolane) (13.5 g, 53.2 mmol)을 1,4-Dioxane 150 ml에 넣고 110°C에서 5시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 메틸렌클로라이드로 추출하고 MgSO₄를 넣고 필터하였다. 필터된 유기층의 용매를 제거한 후 컬럼크로마토그래피를 이용하여 목적 화합물인 C6 (17.8 g, 수율 81 %)을 얻었다.

[255]

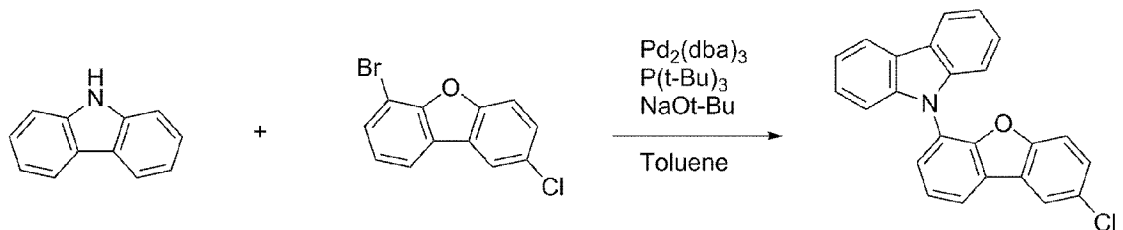
[256]

[준비예 7] C7의 합성

[257]

<단계 1> 9-(8-chlorodibenzo[b,d]furan-4-yl)-9H-carbazole의 합성

[258]



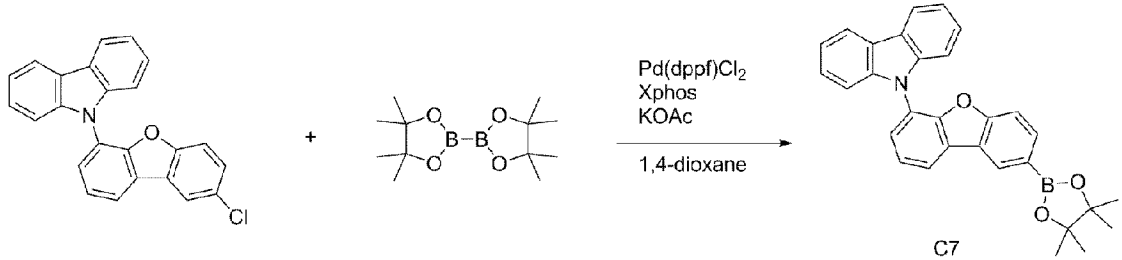
[259]

9H-carbazole (10.3 g, 61.4 mmol)와 6-bromo-2-chlorodibenzo[b,d]furan (17.3 g, 61.4 mmol) 및 Pd₂(dba)₃ (1.7 g, 1.8 mmol), sodium tert-butoxide (8.8 g, 92.0 mmol)와 toluene 150 ml을 넣고, Tri-tert-butylphosphine (0.9 mL, 3.7 mmol)를 첨가한 후 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성물을 추출하고, 용매 제거

후 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 컬럼크로마토그래피를 이용하여 목적 화합물인 9-(8-chlorodibenzo[b,d]furan-4-yl)-9H-carbazole (11.51 g, 수율 51%)을 얻었다.

[260] <단계 2> C7의 합성

[261]



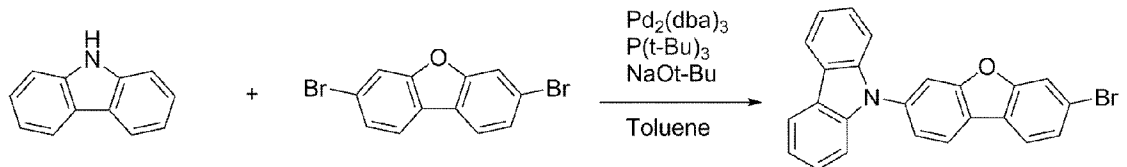
[262] 9-(8-chlorodibenzo[b,d]furan-4-yl)-9H-carbazole (6.9 g, 18.7 mmol)와 Pd(dppf)Cl₂ (0.6 g, 0.8 mmol), potassium acetate (3.7 g, 37.5 mmol), 4,4,4',4',5,5,5',5'-octamethyl-2,2'-bi(1,3,2-dioxaborolane) (6.2 g, 24.4 mmol) 및 X-Phos (1.8 g, 3.8 mmol)을 1,4-Dioxane 80 ml에 넣고 110°C에서 5시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 메틸렌클로라이드로 추출하고 MgSO₄를 넣고 필터하였다. 필터된 유기층의 용매를 제거한 후 컬럼크로마토그래피를 이용하여 목적 화합물인 C7 (7.3 g, 수율 85%)을 얻었다.

[263]

[264] [준비예 8] C8의 합성

[265] <단계 1> 9-(7-bromodibenzo[b,d]furan-3-yl)-9H-carbazole의 합성

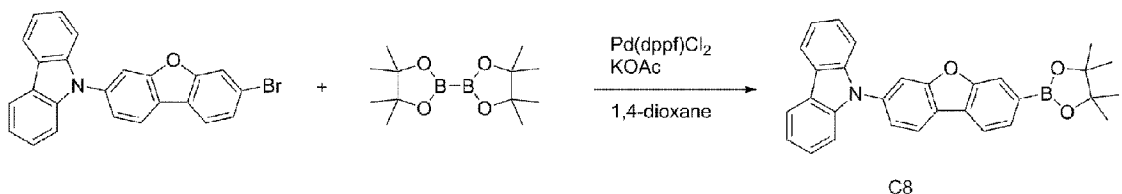
[266]



[267] 9H-carbazole (10.3 g, 61.4 mmol)와 3,7-dibromodibenzo[b,d]furan (20.0 g, 61.4 mmol) 및 Pd₂(dba)₃ (1.7 g, 1.8 mmol), sodium tert-butoxide (8.8 g, 92.0 mmol)와 toluene 150 ml을 넣고, Tri-tert-butylphosphine (0.9 mL, 3.7 mmol)를 첨가한 후 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성물을 추출하고, 용매 제거 후 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 컬럼크로마토그래피를 이용하여 목적 화합물인 9-(7-bromodibenzo[b,d]furan-3-yl)-9H-carbazole (13.16 g, 수율 52%)을 얻었다.

[268] <단계 2> C8의 합성

[269]



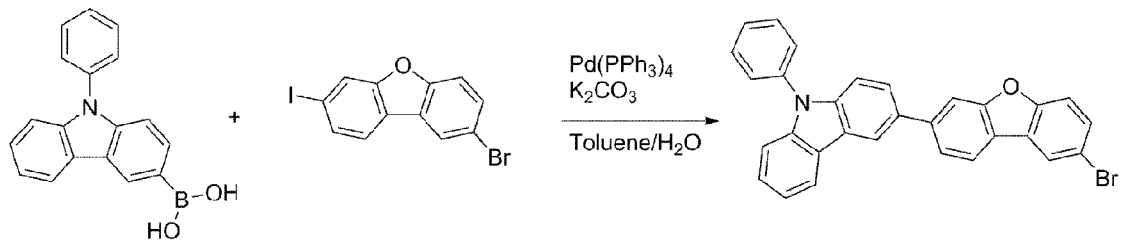
[270] 9-(7-bromodibenzo[b,d]furan-3-yl)-9H-carbazole (8.2 g, 19.8 mmol)와 Pd(dppf)Cl₂

(0.3 g, 0.4 mmol), potassium acetate (2.9 g, 29.7 mmol) 및 4,4,4',4',5,5,5',5'-octamethyl-2,2'-bi(1,3,2-dioxaborolane) (6.5 g, 25.8 mmol)을 1,4-Dioxane 60 ml에 넣고 110°C에서 5시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 메틸렌클로라이드로 추출하고 MgSO₄를 넣고 필터하였다. 필터된 유기층의 용매를 제거한 후 컬럼크로마토그래피를 이용하여 목적 화합물인 C8 (7.3 g, 수율 80 %)을 얻었다.

[271]

[272] **[준비예 9] C9의 합성**[273] **<단계 1> 3-(8-bromodibenzo[b,d]furan-3-yl)-9-phenyl-9H-carbazole의 합성**

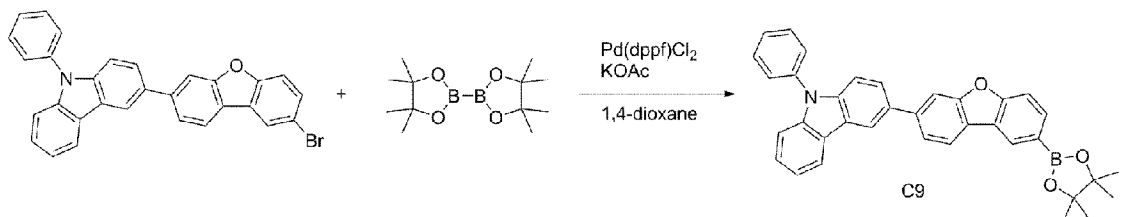
[274]



[275] (9-phenyl-9H-carbazol-3-yl)boronic acid (17.6 g, 61.4 mmol)와 2-bromo-7-iododibenzo[b,d]furan (22.9 g, 61.4 mmol) 및 Pd(PPh₃)₄ (1.4 g, 1.2 mmol), K₂CO₃ (20.4 g, 147.2 mmol)를 toluene 150 ml과 H₂O 75 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성물을 추출하고, 용매 제거 후 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 재결정하여 목적 화합물인 3-(8-bromodibenzo[b,d]furan-3-yl)-9-phenyl-9H-carbazole (22.2 g, 수율 74 %)을 얻었다.

[276] **<단계 2> C9의 합성**

[277]

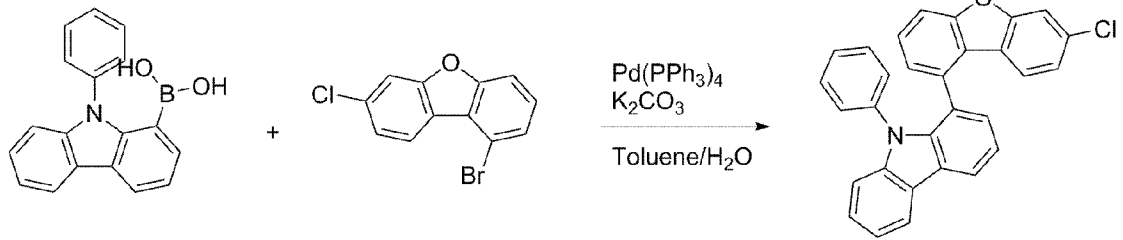


[278] 3-(8-bromodibenzo[b,d]furan-3-yl)-9-phenyl-9H-carbazole (9.4 g, 19.2 mmol)와 Pd(dppf)Cl₂ (0.3 g, 0.4 mmol), potassium acetate (2.8 g, 28.8 mmol) 및 4,4,4',4',5,5,5',5'-octamethyl-2,2'-bi(1,3,2-dioxaborolane) (6.3 g, 25.0 mmol)을 1,4-Dioxane 60 ml에 넣고 110°C에서 5시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 메틸렌클로라이드로 추출하고 MgSO₄를 넣고 필터하였다. 필터된 유기층의 용매를 제거한 후 컬럼크로마토그래피를 이용하여 목적 화합물인 C9 (7.8 g, 수율 76 %)을 얻었다.

[279]

[280] **[준비예 10] C10의 합성**[281] **<단계 1> 1-(7-chlorodibenzo[b,d]furan-1-yl)-9-phenyl-9H-carbazole의 합성**

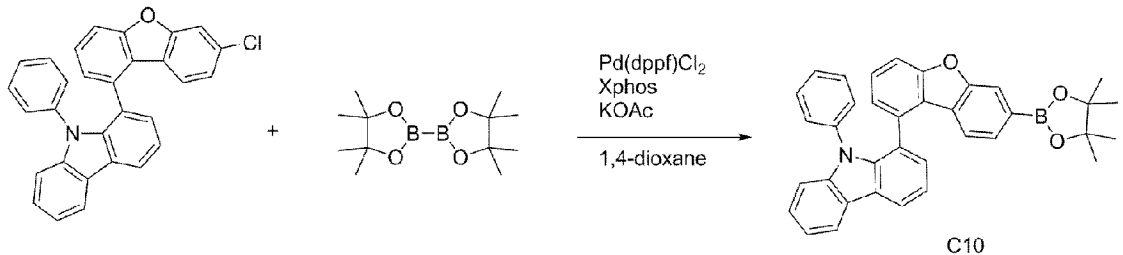
[282]



[283] (9-phenyl-9H-carbazol-1-yl)boronic acid (17.6 g, 61.4 mmol)와 1-bromo-7-chlorodibenzo[b,d]furan (17.3 g, 61.4 mmol) 및 Pd(PPh₃)₄ (1.4 g, 1.2 mmol), K₂CO₃ (20.4 g, 147.2 mmol)를 toluene 150 ml과 H₂O 75 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성물을 추출하고, 용매 제거 후 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 재결정하여 목적 화합물인 1-(7-chlorodibenzo[b,d]furan-1-yl)-9-phenyl-9H-carbazole (19.9 g, 수율 73 %)을 얻었다.

[284] <단계 2> C10의 합성

[285]



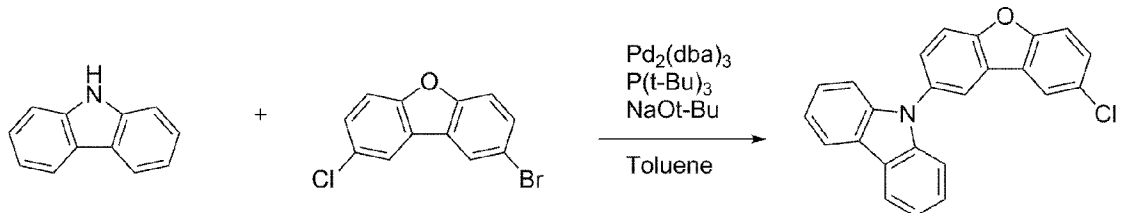
[286] 1-(7-chlorodibenzo[b,d]furan-1-yl)-9-phenyl-9H-carbazole (8.3 g, 18.7 mmol)와 Pd(dppf)Cl₂ (0.6 g, 0.8 mmol), potassium acetate (3.7 g, 37.5 mmol), 4,4,4',4',5,5,5',5'-octamethyl-2,2'-bi(1,3,2-dioxaborolane) (6.2 g, 24.4 mmol) 및 X-Phos (1.8 g, 3.8 mmol)을 1,4-Dioxane 80 ml에 넣고 110°C에서 5시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 메틸렌클로라이드로 추출하고 MgSO₄를 넣고 필터하였다. 필터된 유기층의 용매를 제거한 후 컬럼크로마토그래피를 이용하여 목적 화합물인 C12 (6.8 g, 수율 68 %)을 얻었다.

[287]

[288] [준비예 11] C11의 합성

[289] <단계 1> 9-(8-chlorodibenzo[b,d]furan-2-yl)-9H-carbazole의 합성

[290]

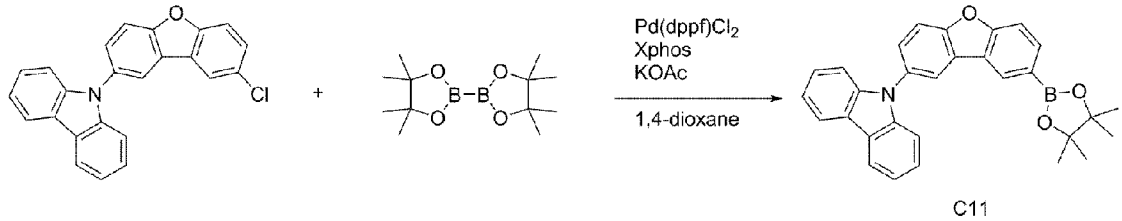


[291] 9H-carbazole (10.3 g, 61.4 mmol)와 2-bromo-8-chlorodibenzo[b,d]furan (17.3 g, 61.4 mmol) 및 Pd₂(dba)₃ (1.7 g, 1.8 mmol), sodium tert-butoxide (8.8 g, 92.0 mmol)와 toluene 150 ml을 넣고, Tri-tert-butylphosphine (0.9 mL, 3.7 mmol)를 첨가한 후

110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성물을 추출하고, 용매 제거 후 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 컬럼크로마토그래피를 이용하여 목적 화합물인 9-(8-chlorodibenzo[b,d]furan-2-yl)-9H-carbazole (12.0 g, 수율 53%)을 얻었다.

[292] <단계 2> C11의 합성

[293]



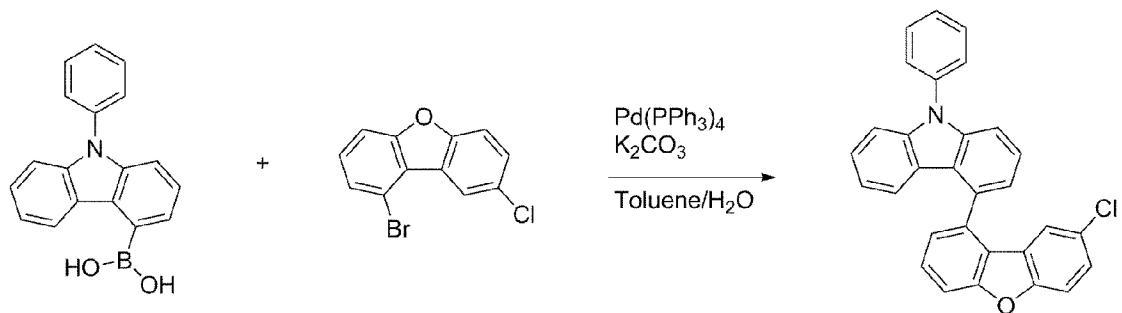
[294] 9-(8-chlorodibenzo[b,d]furan-2-yl)-9H-carbazole (6.9 g, 18.7 mmol)와 Pd(dppf)Cl₂ (0.6 g, 0.8 mmol), potassium acetate (3.7 g, 37.5 mmol), 4,4,4',4',5,5,5',5'-octamethyl-2,2'-bi(1,3,2-dioxaborolane) (6.2 g, 24.4 mmol) 및 X-Phos (1.8 g, 3.8 mmol)을 1,4-Dioxane 80 ml에 넣고 110°C에서 5시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 메틸렌클로라이드로 추출하고 MgSO₄를 넣고 필터하였다. 필터된 유기층의 용매를 제거한 후 컬럼크로마토그래피를 이용하여 목적 화합물인 C11 (6.0 g, 수율 70%)을 얻었다.

[295]

[296] [준비예 12] C12의 합성

[297] <단계 1> 4-(8-chlorodibenzo[b,d]furan-1-yl)-9-phenyl-9H-carbazole의 합성

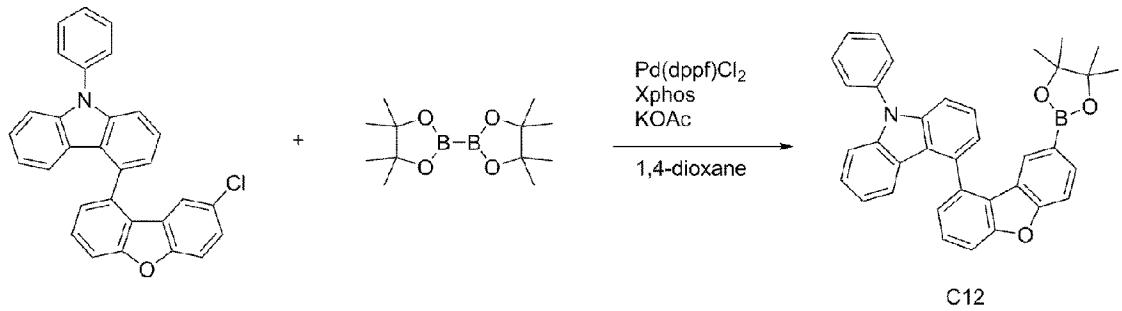
[298]



[299] (9-phenyl-9H-carbazol-4-yl)boronic acid (17.6 g, 61.4 mmol)와 1-bromo-8-chlorodibenzo[b,d]furan (17.3 g, 61.4 mmol) 및 Pd(PPh₃)₄ (1.4 g, 1.2 mmol), K₂CO₃ (20.4 g, 147.2 mmol)를 toluene 150 ml과 H₂O 75 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성물을 추출하고, 용매 제거 후 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 재결정하여 목적 화합물인 4-(8-chlorodibenzo[b,d]furan-1-yl)-9-phenyl-9H-carbazole (19.6 g, 수율 72%)을 얻었다.

[300] <단계 2> C12의 합성

[301]



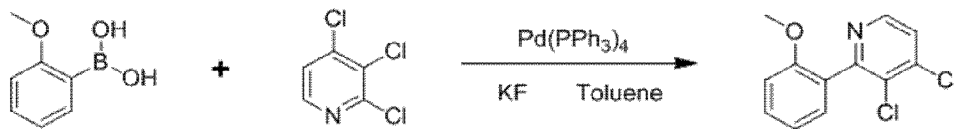
[302] 4-(8-chlorodibenzo[b,d]furan-1-yl)-9-phenyl-9H-carbazole (8.3 g, 18.7 mmol)와 Pd(dppf)Cl₂ (0.6 g, 0.8 mmol), potassium acetate (3.7 g, 37.5 mmol), 4,4,4',4',5,5,5',5'-octamethyl-2,2'-bi(1,3,2-dioxaborolane) (6.2 g, 24.4 mmol) 및 X-Phos (1.8 g, 3.8 mmol)을 1,4-Dioxane 80 ml에 넣고 110°C에서 5시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 메틸렌클로라이드로 추출하고 MgSO₄를 넣고 필터하였다. 필터된 유기층의 용매를 제거한 후 컬럼크로마토그래피를 이용하여 목적 화합물인 C12 (6.9 g, 수율 69%)을 얻었다.

[303]

[304] [준비예 13] C13의 합성

[305] <단계 1> 3,4-dichloro-2-(2-methoxyphenyl)pyridine의 합성

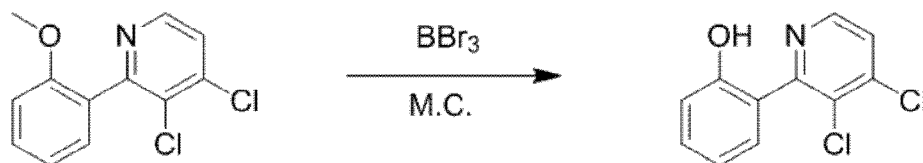
[306]



[307] 상온에서 2,3,4-trichloropyridine (100.0 g, 548.1 mmol), 2-methoxyphenyl boronic acid (87.5 g, 141.7 mmol)을 2-neck flask에 넣는다. Pd(PPh₃)₄ (19.0 g, 16.4mmol)과 KF (47.8 g, 822.2 mmol)을 첨가한다. Toluene 1100 ml 첨가 후 100 °C에서 5시간 교반한다. 반응 종결 후 용액을 실리카 필터 한다. 용매 제거 후 컬럼크로마토그래피(MC:Hexane=1:1)로 정제 후 연녹색의 고체 화합물 3,4-dichloro-2-(2-methoxyphenyl)pyridine (124.0 g, 수율 89%)을 얻었다.

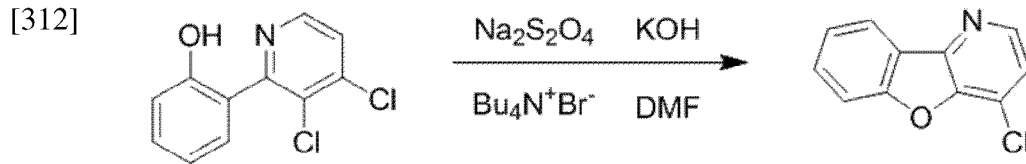
[308] <단계 2> 2-(3,4-dichloropyridin-2-yl)phenol의 합성

[309]



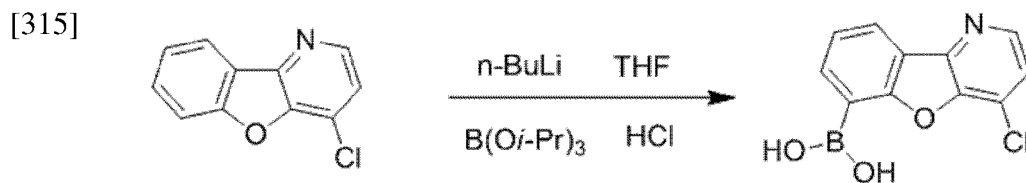
[310] 3,4-dichloro-2-(2-methoxyphenyl)pyridine (40.0 g, 157.4 mmol)을 메틸렌클로라이드 400 ml에 녹여 2-neck flask에 넣는다. Ice bath에서 0 °C 조건을 유지한다. BBr₃ (22.7 ml, 236.1 mmol)을 천천히 첨가한다. 반응 종료 후 0 °C의 증류수 400 ml를 천천히 첨가한다. 반응물을 메틸렌클로라이드로 추출하고 실리카 필터 한다. 용매 제거 후 흰색 고체 화합물 2-(3,4-dichloropyridin-2-yl)phenol (31.4g, 수율 83%)을 얻었다.

[311] <단계 3> 4-chlorobenzofuro[3,2-b]pyridine의 합성



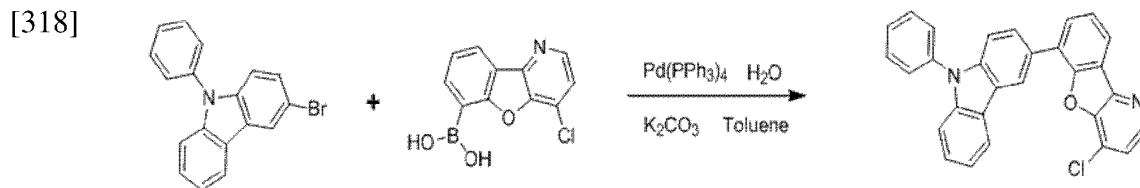
[313] 2-(3,4-dichloropyridin-2-yl)phenol (23.0 g, 95.8 mmol)과 KOH (21.5 g, 383.2 mmol) sodium hydrosulfite (3.1 g, 9.6 mmol)을 2-neck flask에 넣는다. DMF 180 ml 첨가 후 tetrabutylammonium bromide (3.3 g, 19.2 mmol)을 넣는다. 155 °C 조건에서 2시간 교반한다. 반응 종료 후 증류수 400 ml를 천천히 첨가한다. 반응물을 메틸렌클로라이드로 추출하고 실리카 필터 한다. 용매 제거 후 흰색 고체 4-chlorobenzofuro[3,2-b]pyridine (13.8 g, 수율 71 %)을 얻었다.

[314] <단계 4> (4-chlorobenzofuro[3,2-b]pyridin-6-yl)boronic acid의 합성



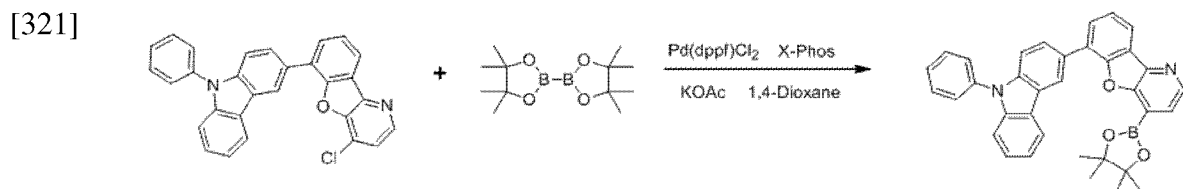
[316] 4-chlorobenzofuro[3,2-b]pyridine (30.0 g, 147.3 mmol)과 THF 300 ml 첨가 후 -78 °C 에서 n-butyllithium (70.7 ml, 176.8 mmol)을 넣는다. 2시간 후 -78 °C 에서 Triisopropyl borate (70.7 ml, 176.8 mmol)를 넣은 후 2시간이 지나고 HCl 을 첨가한다. 반응물을 메틸렌클로라이드로 추출하고 용매 제거 후 흰색 고체 (4-chlorobenzofuro[3,2-b]pyridin-6-yl)boronic acid (26.7 g, 수율 66 %)을 얻었다.

[317] <단계 5> 4-chloro-6-(9-phenyl-9H-carbazol-3-yl)benzofuro[3,2-b]pyridine의 합성



[319] (4-chlorobenzofuro[3,2-b]pyridin-6-yl)boronic acid (13.4 g, 48.9 mmol)와 3-bromo-9-phenyl-9H-carbazole (15.0 g, 46.6 mmol) 및 Pd(PPh₃)₄ (1.6 g, 1.4 mmol), K₂CO₃ (15.4 g, 111.7 mmol)를 toluene 150 ml과 H₂O 75 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성된 고체는 필터하였다. 필터된 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 재결정하여 목적 화합물인 4-chloro-6-(9-phenyl-9H-carbazol-3-yl)benzofuro[3,2-b]pyridine (17.0 g, 수율 82 %)을 얻었다.

[320] <단계 6> C13의 합성

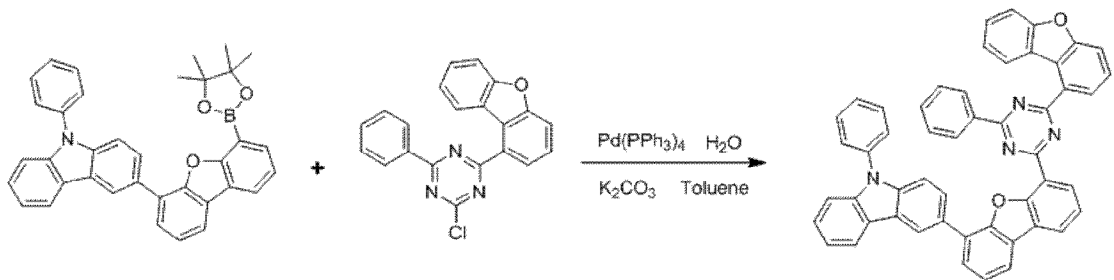


[322] 4-chloro-6-(9-phenyl-9H-carbazol-3-yl)benzofuro[3,2-b]pyridine (15.0 g, 33.7 mmol)와 Pd(dppf)Cl₂ (1.0 g, 1.3 mmol), potassium acetate (6.6 g, 67.4 mmol), 4,4,4',4',5,5,5',5'-octamethyl-2,2'-bi(1,3,2-dioxaborolane) (10.3 g, 40.5 mmol) 및 X-Phos (3.2 g, 6.7 mmol)을 1,4-Dioxane 250 ml에 넣고 110°C에서 5시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 메틸렌클로라이드로 추출하고 MgSO₄를 넣고 필터하였다. 필터된 유기층의 용매를 제거한 후 컬럼크로마토그래피를 이용하여 목적 화합물인 C13 (15.9 g, 수율 88 %)을 얻었다.

[323]

[324] [합성예 1] 119 의 합성

[325]



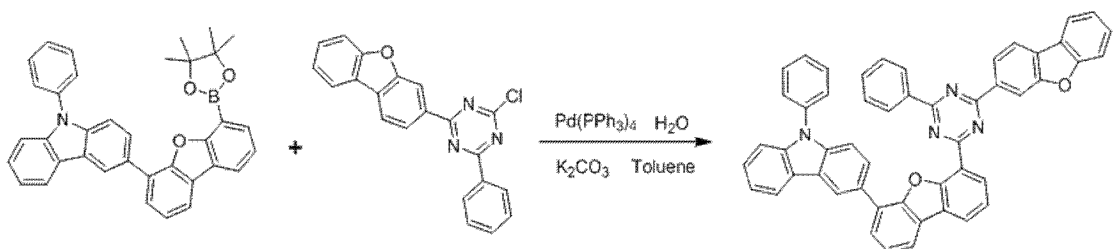
[326] C1 (6.0 g, 11.2 mmol)와 2-chloro-4-(dibenzo[b,d]furan-1-yl)-6-phenyl-1,3,5-triazine (4.0 g, 11.2 mmol) 및 Pd(PPh₃)₄ (0.3 g, 0.2 mmol), K₂CO₃ (3.7 g, 26.9 mmol)를 toluene 30 ml과 H₂O 15 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성된 고체는 필터하였다. 필터된 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 재결정하여 목적 화합물 119 (7.0 g, 수율 85 %)을 얻었다.

[327] [LCMS] : 731

[328]

[329] [합성예 2] 239 의 합성

[330]



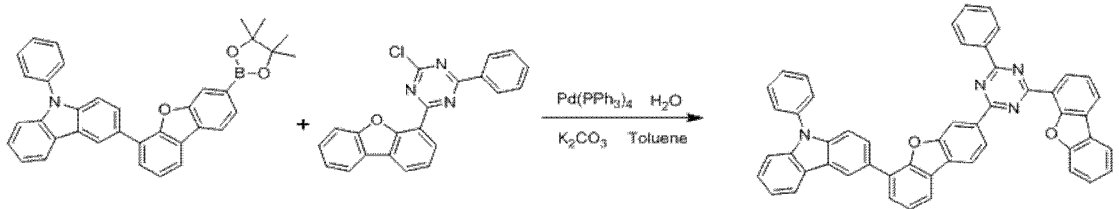
[331] C1 (6.0 g, 11.2 mmol)와 2-chloro-4-(dibenzo[b,d]furan-3-yl)-6-phenyl-1,3,5-triazine (4.0 g, 11.2 mmol) 및 Pd(PPh₃)₄ (0.3 g, 0.2 mmol), K₂CO₃ (3.7 g, 26.9 mmol)를 toluene 30 ml과 H₂O 15 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성된 고체는 필터하였다. 필터된 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 재결정하여 목적 화합물 239 (6.9 g, 수율 84 %)을 얻었다.

[332] [LCMS] : 731

[333]

[334] [합성예 3] 219 의 합성

[335]



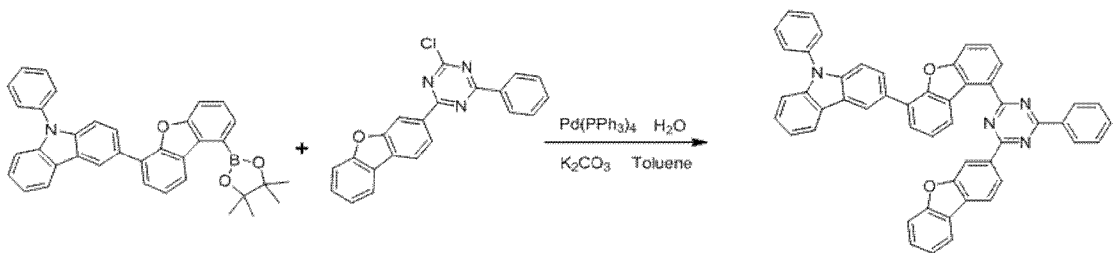
[336] C2 (6.0 g, 11.2 mmol)와 2-chloro-4-(dibenzo[b,d]furan-4-yl)-6-phenyl-1,3,5-triazine (4.0 g, 11.2 mmol) 및 Pd(PPh₃)₄ (0.3 g, 0.2 mmol), K₂CO₃ (3.7 g, 26.9 mmol)를 toluene 30 ml과 H₂O 15 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성된 고체는 필터하였다. 필터된 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 재결정하여 목적 화합물 219 (7.0 g, 수율 85 %)을 얻었다.

[337] [LCMS] : 731

[338]

[339] [합성예 4] 59 의 합성

[340]



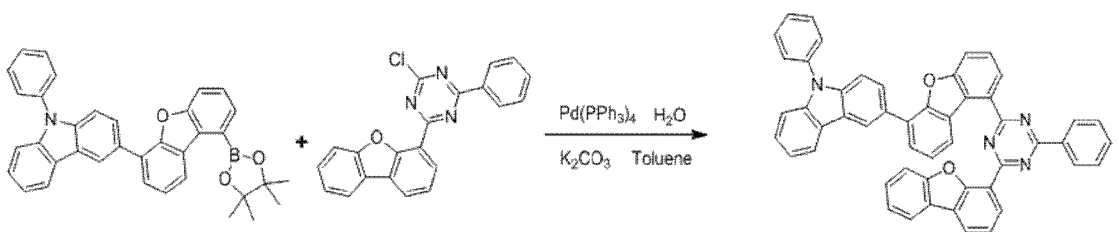
[341] C3 (6.0 g, 11.2 mmol)와 2-chloro-4-(dibenzo[b,d]furan-3-yl)-6-phenyl-1,3,5-triazine (4.0 g, 11.2 mmol) 및 Pd(PPh₃)₄ (0.3 g, 0.2 mmol), K₂CO₃ (3.7 g, 26.9 mmol)를 toluene 30 ml과 H₂O 15 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성된 고체는 필터하였다. 필터된 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 재결정하여 목적 화합물 59 (6.4 g, 수율 78 %)을 얻었다.

[342] [LCMS] : 731

[343]

[344] [합성예 5] 99 의 합성

[345]



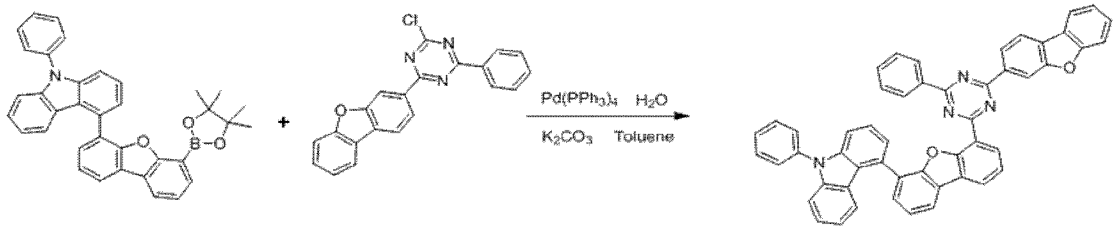
[346] C3 (6.0 g, 11.2 mmol)와 2-chloro-4-(dibenzo[b,d]furan-4-yl)-6-phenyl-1,3,5-triazine (4.0 g, 11.2 mmol) 및 Pd(PPh₃)₄ (0.3 g, 0.2 mmol), K₂CO₃ (3.7 g, 26.9 mmol)를 toluene 30 ml과 H₂O 15 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성된 고체는 필터하였다. 필터된 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 재결정하여 목적 화합물인 99 (6.0 g, 수율 73 %)을 얻었다.

[347] [LCMS] : 731

[348]

[349] [합성예 6] 240 의 합성

[350]



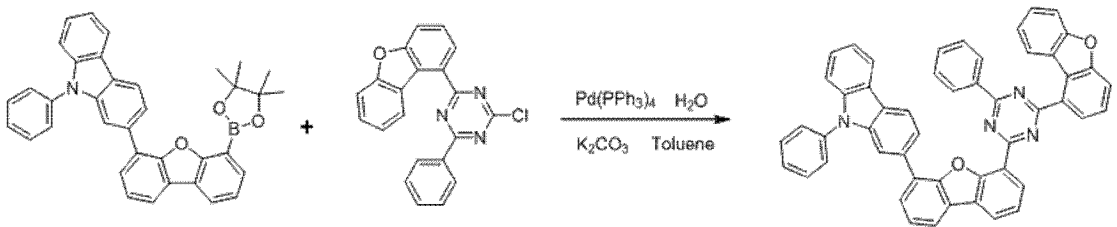
[351] C4 (6.0 g, 11.2 mmol)와 2-chloro-4-(dibenzo[b,d]furan-3-yl)-6-phenyl-1,3,5-triazine (4.0 g, 11.2 mmol) 및 Pd(PPh₃)₄ (0.3 g, 0.2 mmol), K₂CO₃ (3.7 g, 26.9 mmol)를 toluene 30 ml과 H₂O 15 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성된 고체는 필터하였다. 필터된 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 재결정하여 목적 화합물 240 (6.7 g, 수율 82 %)을 얻었다.

[352] [LCMS] : 731

[353]

[354] [합성예 7] 118 의 합성

[355]



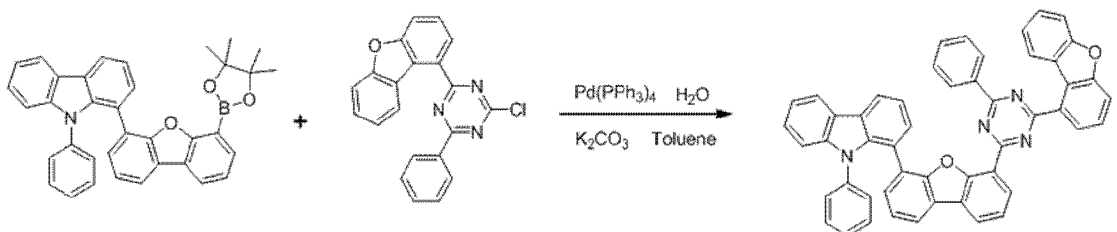
[356] C5 (6.0 g, 11.2 mmol)와 2-chloro-4-(dibenzo[b,d]furan-1-yl)-6-phenyl-1,3,5-triazine (4.0 g, 11.2 mmol) 및 Pd(PPh₃)₄ (0.3 g, 0.2 mmol), K₂CO₃ (3.7 g, 26.9 mmol)를 toluene 30 ml과 H₂O 15 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성된 고체는 필터하였다. 필터된 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 재결정하여 목적 화합물 118 (6.9 g, 수율 84 %)을 얻었다.

[357] [LCMS] : 731

[358]

[359] [합성예 8] 117 의 합성

[360]



[361] C6 (6.0 g, 11.2 mmol)와 2-chloro-4-(dibenzo[b,d]furan-1-yl)-6-phenyl-1,3,5-triazine (4.0 g, 11.2 mmol) 및 Pd(PPh₃)₄ (0.3 g, 0.2 mmol), K₂CO₃ (3.7 g, 26.9 mmol)를 toluene 30 ml과 H₂O 15 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성된 고체는 필터하였다. 필터된 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후

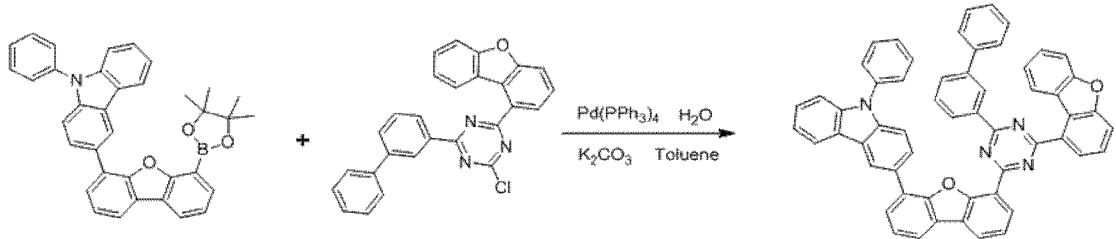
재결정하여 목적 화합물 117 (6.5 g, 수율 79 %)을 얻었다.

[362] [LCMS] : 731

[363]

[364] [합성예 9] 254 의 합성

[365]



[366] C1 (6.0 g, 11.2 mmol)와

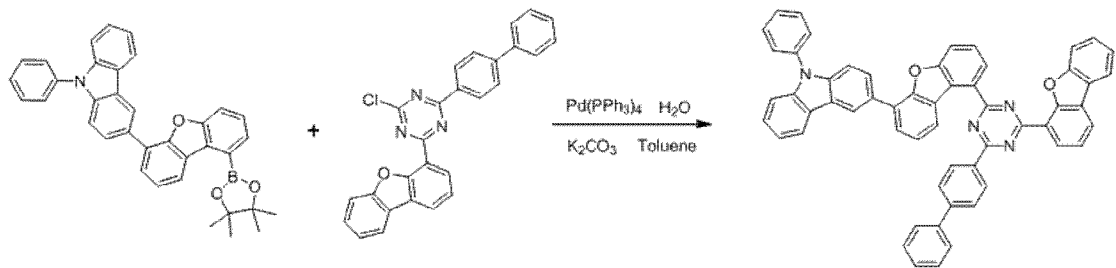
2-([1,1'-biphenyl]-3-yl)-4-chloro-6-(dibenzo[b,d]furan-1-yl)-1,3,5-triazine (4.9 g, 11.2 mmol) 및 Pd(PPh₃)₄ (0.3 g, 0.2 mmol), K₂CO₃ (3.7 g, 26.9 mmol)를 toluene 30 ml과 H₂O 15 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성된 고체는 필터하였다. 필터된 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 재결정하여 목적 화합물 254 (7.2 g, 수율 80 %)을 얻었다.

[367] [LCMS] : 807

[368]

[369] [합성예 10] 284 의 합성

[370]



[371] C3 (6.0 g, 11.2 mmol)와

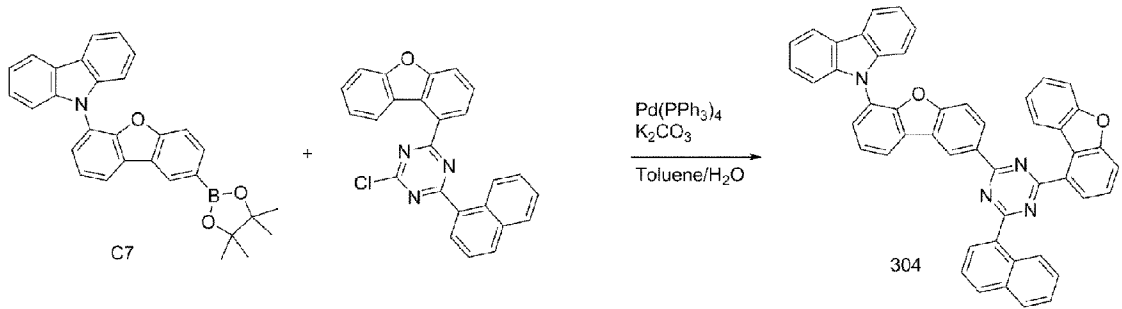
2-([1,1'-biphenyl]-4-yl)-4-chloro-6-(dibenzo[b,d]furan-4-yl)-1,3,5-triazine (4.9 g, 11.2 mmol) 및 Pd(PPh₃)₄ (0.3 g, 0.2 mmol), K₂CO₃ (3.7 g, 26.9 mmol)를 toluene 30 ml과 H₂O 15 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성된 고체는 필터하였다. 필터된 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 재결정하여 목적 화합물 284 (6.1 g, 수율 67 %)을 얻었다.

[372] [LCMS] : 807

[373]

[374] [합성예 11] 304 의 합성

[375]



[376]

C7 (5.1 g, 11.2 mmol)와 2-chloro-4-(dibenzo[b,d]furan-1-yl)-6-(naphthalen-1-yl)-1,3,5-triazine (4.6 g, 11.2 mmol) 및 Pd(PPh₃)₄ (0.3 g, 0.2 mmol), K₂CO₃ (3.7 g, 26.9 mmol)를 toluene 30 ml과 H₂O 15 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성된 고체는 필터하였다. 필터된 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 재결정하여 목적 화합물 304 (6.6 g, 수율 84 %)을 얻었다.

[377]

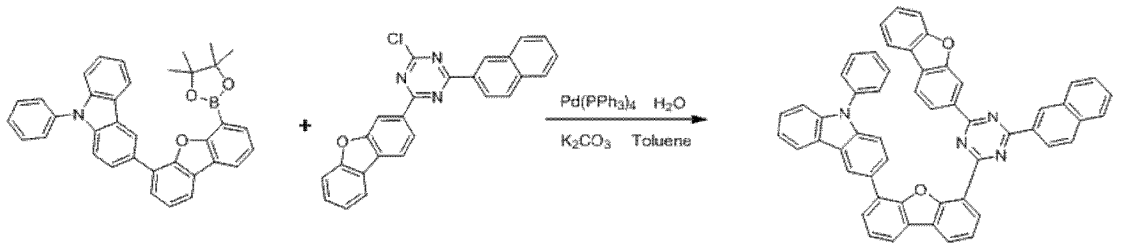
[LCMS] : 705

[378]

[379]

[합성예 12] 360 의 합성

[380]



[381]

C1 (6.0 g, 11.2 mmol)와 2-chloro-4-(dibenzo[b,d]furan-3-yl)-6-(naphthalen-2-yl)-1,3,5-triazine (4.9 g, 11.2 mmol) 및 Pd(PPh₃)₄ (0.3 g, 0.2 mmol), K₂CO₃ (3.7 g, 26.9 mmol)를 toluene 30 ml과 H₂O 15 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성된 고체는 필터하였다. 필터된 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 재결정하여 목적 화합물 360 (7.3 g, 수율 83 %)을 얻었다.

[382]

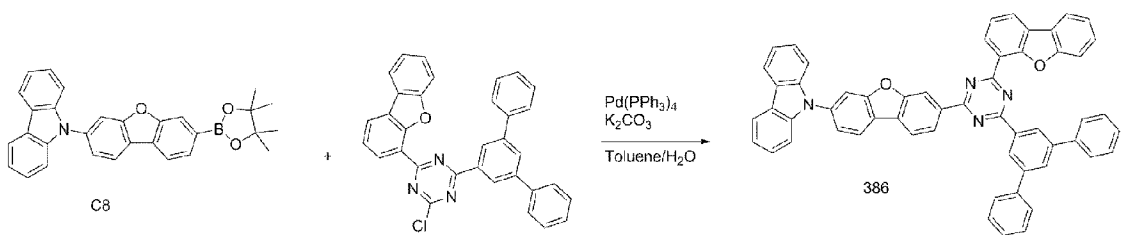
[LCMS] : 781

[383]

[384]

[합성예 13] 386 의 합성

[385]



[386]

C8 (5.1 g, 11.2 mmol)와 2-([1,1':3',1''-terphenyl]-5'-yl)-4-chloro-6-(dibenzo[b,d]furan-4-yl)-1,3,5-triazine (5.7

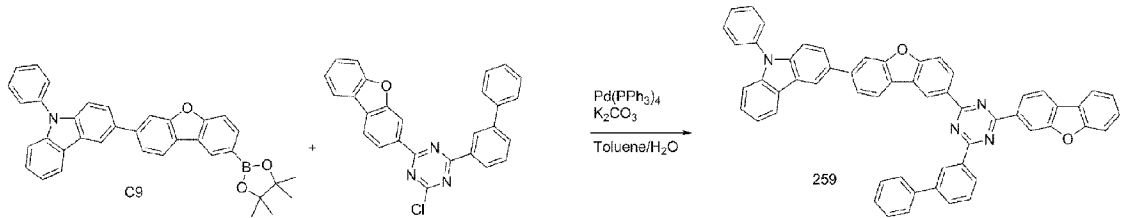
g, 11.2 mmol) 및 $\text{Pd}(\text{PPh}_3)_4$ (0.3 g, 0.2 mmol), K_2CO_3 (3.7 g, 26.9 mmol)를 toluene 60 ml과 H_2O 15 ml에 넣고 110°C 에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성된 고체는 필터하였다. 필터된 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 재결정하여 목적 화합물 386 (6.4 g, 수율 71 %)을 얻었다.

[387] [LCMS] : 807

[388]

[389] [합성예 14] 259 의 합성

[390]



[391] C9 (6.0 g, 11.2 mmol)와

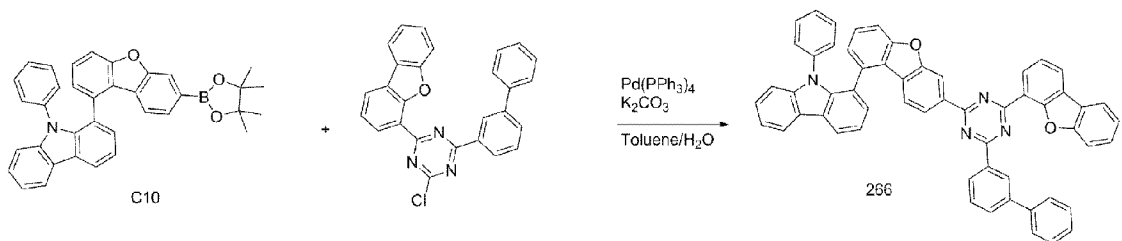
2-([1,1'-biphenyl]-3-yl)-4-chloro-6-(dibenzo[b,d]furan-3-yl)-1,3,5-triazine (4.9 g, 11.2 mmol) 및 $\text{Pd}(\text{PPh}_3)_4$ (0.3 g, 0.2 mmol), K_2CO_3 (3.7 g, 26.9 mmol)를 toluene 60 ml과 H_2O 15 ml에 넣고 110°C 에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성된 고체는 필터하였다. 필터된 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 재결정하여 목적 화합물 259 (6.3 g, 수율 70 %)을 얻었다.

[392] [LCMS] : 807

[393]

[394] [합성예 15] 266 의 합성

[395]



[396] C10 (6.0 g, 11.2 mmol)와

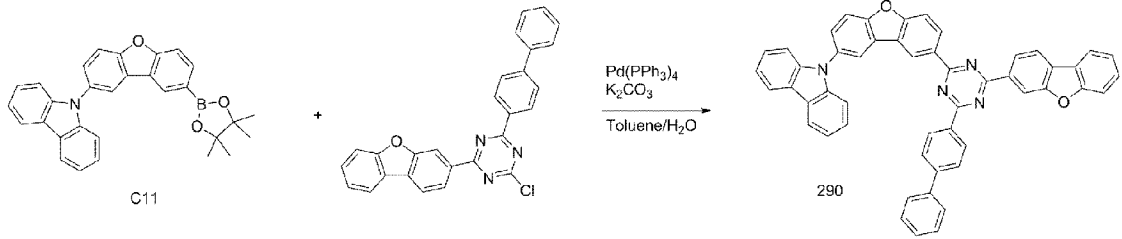
2-([1,1'-biphenyl]-3-yl)-4-chloro-6-(dibenzo[b,d]furan-4-yl)-1,3,5-triazine 및 $\text{Pd}(\text{PPh}_3)_4$ (0.3 g, 0.2 mmol), K_2CO_3 (3.7 g, 26.9 mmol)를 toluene 60 ml과 H_2O 15 ml에 넣고 110°C 에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성된 고체는 필터하였다. 필터된 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 재결정하여 목적 화합물 266 (6.2 g, 수율 69 %)을 얻었다.

[397] [LCMS] : 807

[398]

[399] [합성예 16] 290 의 합성

[400]



[401] C11 (5.1 g, 11.2 mmol)와

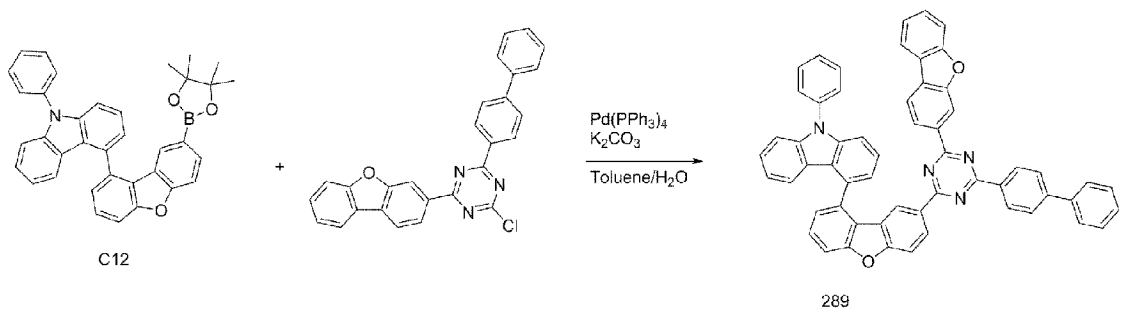
2-([1,1'-biphenyl]-4-yl)-4-chloro-6-(dibenzo[b,d]furan-3-yl)-1,3,5-triazine (4.9 g, 11.2 mmol) 및 Pd(PPh₃)₄ (0.3 g, 0.2 mmol), K₂CO₃ (3.7 g, 26.9 mmol)를 toluene 60 ml과 H₂O 15 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성된 고체는 필터하였다. 필터된 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 재결정하여 목적 화합물 290 (5.6 g, 수율 68 %)을 얻었다.

[402] [LCMS] : 731

[403]

[404] [합성예 17] 289 의 합성

[405]



[406] C12 (6.0 g, 11.2 mmol)와

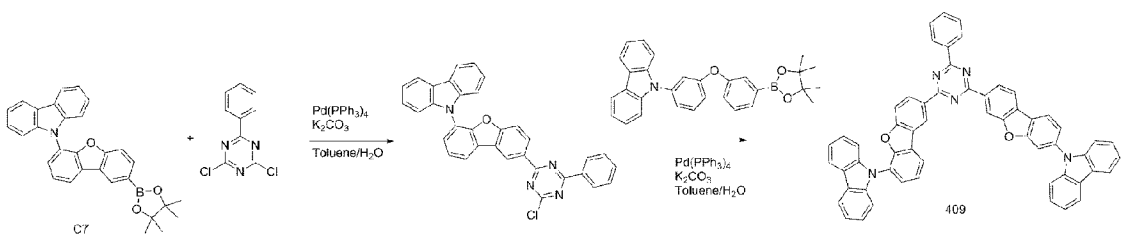
2-([1,1'-biphenyl]-4-yl)-4-chloro-6-(dibenzo[b,d]furan-3-yl)-1,3,5-triazine (4.9 g, 11.2 mmol) 및 Pd(PPh₃)₄ (0.3 g, 0.2 mmol), K₂CO₃ (3.7 g, 26.9 mmol)를 toluene 60 ml과 H₂O 15 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 생성된 고체는 필터하였다. 필터된 고체를 toluene에 녹여 silica 필터를 한 후 재결정하여 목적 화합물 289 (6.0 g, 수율 67 %)을 얻었다.

[407] [LCMS] : 807

[408]

[409] [합성예 18] 409 의 합성

[410]



[411] C7 (4.6 g, 10 mmol)와 2,4-dichloro-6-phenyl-1,3,5-triazine (2.3 g, 10 mmol) 및 Pd(PPh₃)₄ (0.3 g, 0.2 mmol), K₂CO₃ (3.7 g, 26.9 mmol)를 toluene 60 ml과 H₂O 15

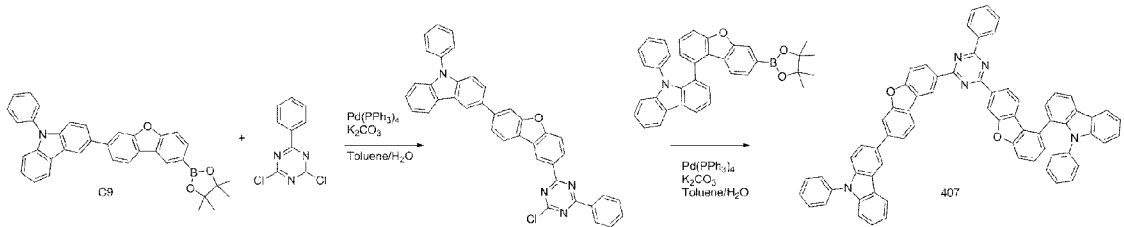
ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 메틸렌클로라이드로 추출한 다음 MgSO₄를 넣고 여과하였다. 얻어진 유기층에서 용매를 제거하고 컬럼크로마토그래피를 이용하여 고체를 얻었다. 여기에 C8 (4.6 g, 10 mmol) 을 첨가 후 Pd(PPh₃)₄ (0.3 g, 0.2 mmol), K₂CO₃ (3.7 g, 26.9 mmol)를 toluene 60 ml과 H₂O 15 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 위와 동일한 방법으로 정제하여 목적 화합물 409 (5.3 g, 수율 65 %)을 얻었다.

[412] [LCMS] : 820

[413]

[414] [합성예 19] 407 의 합성

[415]



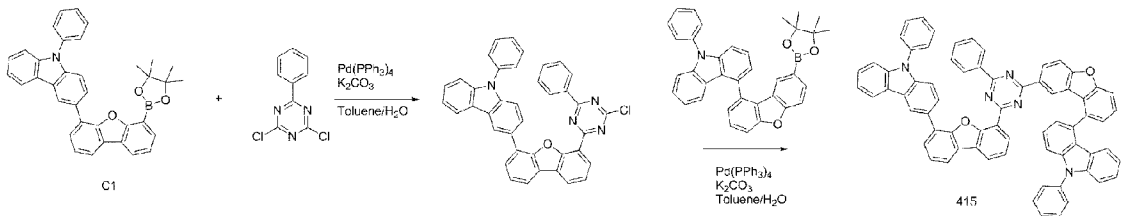
C9 (5.3 g, 10 mmol)와 2,4-dichloro-6-phenyl-1,3,5-triazine (2.3 g, 10 mmol) 및 Pd(PPh₃)₄ (0.3 g, 0.2 mmol), K₂CO₃ (3.7 g, 26.9 mmol)를 toluene 60 ml과 H₂O 15 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 메틸렌클로라이드로 추출한 다음 MgSO₄를 넣고 여과하였다. 얻어진 유기층에서 용매를 제거하고 컬럼크로마토그래피를 이용하여 고체를 얻었다. 여기에 C10 (5.3 g, 10 mmol) 을 첨가 후 Pd(PPh₃)₄ (0.3 g, 0.2 mmol), K₂CO₃ (3.7 g, 26.9 mmol)를 toluene 60 ml과 H₂O 15 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 위와 동일한 방법으로 정제하여 목적 화합물 407 (6.2 g, 수율 64 %)을 얻었다.

[416] [LCMS] : 972

[417]

[418] [합성예 20] 415 의 합성

[419]



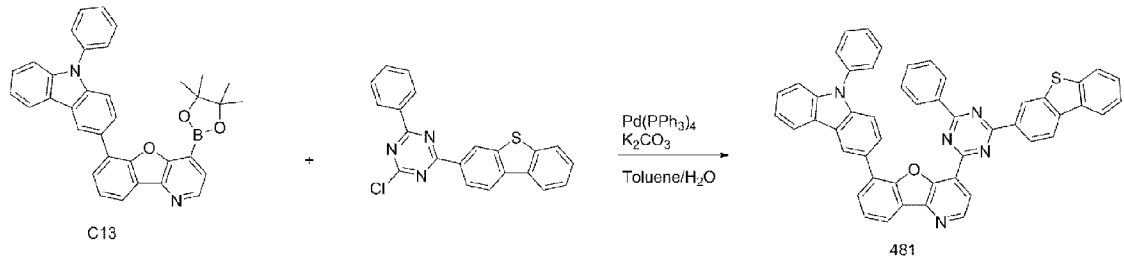
C1 (5.3 g, 10 mmol)와 2,4-dichloro-6-phenyl-1,3,5-triazine (2.3 g, 10 mmol) 및 Pd(PPh₃)₄ (0.3 g, 0.2 mmol), K₂CO₃ (3.7 g, 26.9 mmol)를 toluene 60 ml과 H₂O 15 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 메틸렌클로라이드로 추출한 다음 MgSO₄를 넣고 여과하였다. 얻어진 유기층에서 용매를 제거하고 컬럼크로마토그래피를 이용하여 고체를 얻었다. 여기에 C12 (5.3 g, 10 mmol) 을 첨가 후 Pd(PPh₃)₄ (0.3 g, 0.2 mmol), K₂CO₃ (3.7 g, 26.9 mmol)를 toluene 60 ml과 H₂O 15 ml에 넣고 110°C에서 8시간 동안 교반하였다. 위와 동일한 방법으로 정제하여 목적 화합물 415 (6.1 g, 수율 63 %)을 얻었다.

[421] [LCMS] : 972

[422]

[423] [합성예 21] 481 의 합성

[424]



[425] C13 (5.36 g, 10 mmol),

2-chloro-4-(dibenzo[b,d]thiophen-3-yl)-6-phenyl-1,3,5-triazine (3.73 g, 10 mmol), Pd(PPh₃)₄ (0.34 g, 0.3 mmol), K₂CO₃ (2.76 g, 20 mmol)를 Toluene 100 ml/H₂O 25 ml에 넣고 100°C에서 8시간 동안 교반하였다. 반응 종결 후 메틸렌클로라이드로 추출하고 MgSO₄를 넣고 필터하였다. 필터 된 유기층의 용매를 제거한 후 컬럼크로마토그래피를 이용하여 목적 화합물인 481 (4.63 g, 수율 62 %)을 얻었다.

[426] [LCMS] : 747

[427]

[428] [실시예 1 내지 21] 녹색 유기 전계 발광 소자의 제작

[429] 상기 합성예 1 내지 21에서 합성된 화합물을 통상적으로 알려진 방법으로 고순도 승화정제를 한 후 아래의 과정에 따라 녹색 유기 전계 발광 소자를 제작하였다.

[430] 먼저, 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 UV OZONE 세정기 (Power sonic 405, 화신테크)로 이송시킨 다음 UV를 이용하여 상기 기판을 5분간 세정하고 진공 증착기로 기판을 이송하였다.

[431] 이렇게 준비된 ITO 투명 전극 위에 m-MTDATA (60 nm)/TCTA (80 nm)/ 90%의 상기 합성예 화합물 + 10%의 Ir(ppy)₃ (30 nm)/BCP (10 nm)/Alq₃ (30 nm)/LiF (1 nm)/Al (200 nm) 순으로 적층하여 유기 전계 발광 소자를 제작하였다.

[432]

[433] [비교예 1] 녹색 유기 전계 발광 소자의 제작

[434] 발광층 형성시 발광 호스트 물질로서 화합물 119 대신 CBP를 사용한 것을 제외하고는, 상기 실시예 1과 동일한 과정으로 녹색 유기 전계 발광 소자를 제작하였다.

[435]

[436] [비교예 2] 녹색 유기 전계 발광 소자의 제작

[437] 발광층 형성시 발광 호스트 물질로서 화합물 119 대신 화합물 I을 사용한 것을

제외하고는, 상기 실시예 1과 동일한 과정으로 녹색 유기 전계 발광 소자를 제작하였다.

[438]

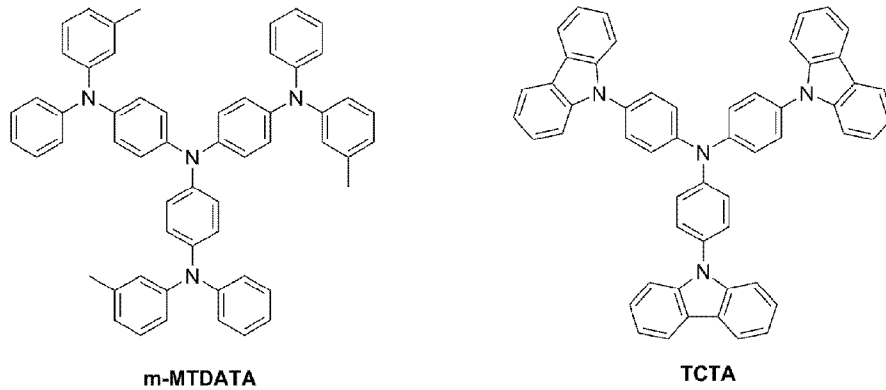
[439] **[비교예 3] 녹색 유기 전계 발광 소자의 제작**

[440] 발광층 형성시 발광 호스트 물질로서 화합물 119 대신 화합물 II를 사용한 것을 제외하고는, 상기 실시예 1과 동일한 과정으로 녹색 유기 전계 발광 소자를 제작하였다.

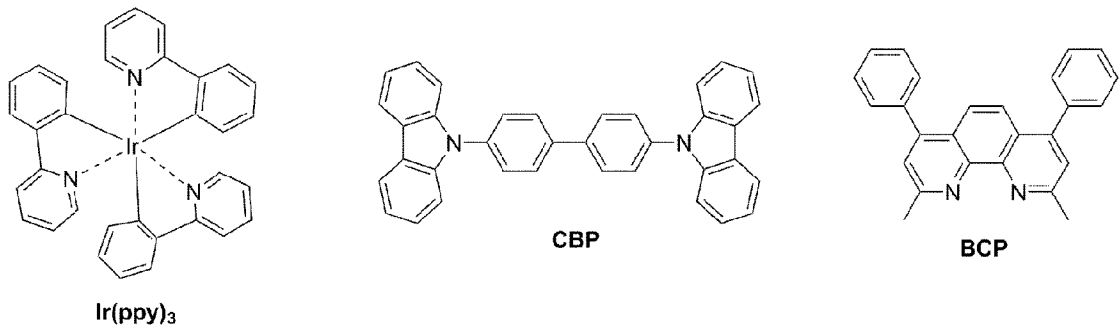
[441]

[442] 참고로, 실시예 1 내지 21, 및 비교예 1 내지 3에서 사용된 m-MTDATA, TCTA, Ir(ppy)₃, CBP, BCP, 화합물 I 및 화합물 II의 구조는 각각 하기와 같다.

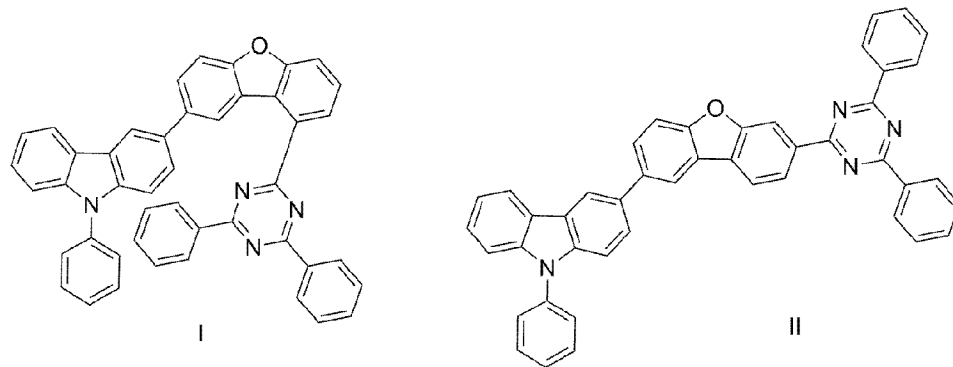
[443]



[444]



[445]



[446]

[447] **[평가예 1]**

[448] 실시예 1 내지 21, 비교예 1 내지 3에서 제작한 각각의 녹색 유기 전계 발광 소자에 대하여 전류밀도 10 mA/cm²에서의 구동전압, 전류효율 및 발광피크를

측정하고, 그 결과를 하기 표 1에 나타내었다.

[449] [표1]

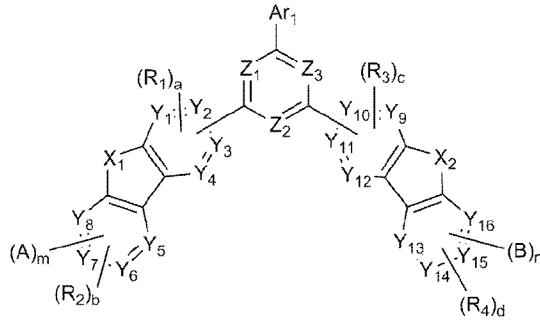
샘플	호스트	구동전압(V)	발광피크(nm)	전류효율(cd/A)
실시예 1	119	4.62	516	55.5
실시예 2	239	4.55	516	62.1
실시예 3	219	5.46	516	42.1
실시예 4	59	5.33	516	43.0
실시예 5	99	4.95	516	51.2
실시예 6	240	5.01	516	53.1
실시예 7	118	4.88	516	48.2
실시예 8	117	4.58	516	40.2
실시예 9	254	5.11	516	55.5
실시예 10	284	4.76	516	42.1
실시예 11	304	4.54	516	58.0
실시예 12	360	4.99	516	52.7
실시예 13	386	5.01	516	55.5
실시예 14	259	4.21	516	56.3
실시예 15	266	5.46	516	49.6
실시예 16	290	4.87	516	47.2
실시예 17	289	5.21	516	53.1
실시예 18	409	4.77	516	52.1
실시예 19	407	4.56	516	53.3
실시예 20	415	4.99	516	47.7
실시예 21	481	4.89	516	56.6
비교예 1	CBP	6.93	516	38.2
비교예 2	화합물 I	5.67	516	42.1
비교예 3	화합물 II	5.55	516	41.2

[450] 상기 표 1에 나타낸 바와 같이, 본 발명에 따른 화합물을 발광층에 적용한 실시예 1 내지 21의 녹색 유기전계 발광소자는, 종래 CBP, 화합물 I 및 화합물 II를 발광층에 적용한 비교예 1 내지 3의 녹색 유기전계 발광소자에 비해 전류효율 및 구동전압 면에서 보다 우수한 성능을 나타내는 것을 알 수 있었다.

청구범위

[청구항 1] 하기 화학식 1로 표시되는 화합물:

[화학식 1]



상기 화학식 1에서,

X_1 및 X_2 는 서로 동일하거나 상이하며, 각각 독립적으로 O 또는 S이고, Y_1 내지 Y_{16} 은 서로 동일하거나 상이하며, 각각 독립적으로 CR_8 또는 N이고, 이때 CR_8 이 복수 개인 경우 복수의 R_8 은 서로 동일하거나 또는 상이하며,

Z_1 내지 Z_3 는 서로 동일하거나 상이하며, 각각 독립적으로 CR_5 또는 N이고, 이들 중 적어도 하나는 N이고,

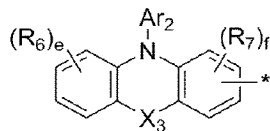
Ar_1 은 수소, 중수소, 할로젠, 시아노기, 니트로기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알케닐기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알키닐기, $C_3\sim C_{40}$ 의 시클로알킬기 및 $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴기로 이루어진 군에서 선택되고,

다만, Z_1 내지 Z_3 함유 환을 기준으로 상기 X_1 함유 환과 상기 X_2 함유 환은 서로 비대칭적으로 결합되며,

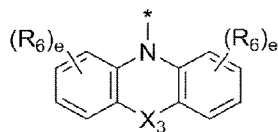
m 및 n 은 각각 0 내지 3의 정수이며, $m+n \geq 1$ 이고,

A 및 B는 서로 동일하거나 상이하며, 각각 독립적으로 하기 화학식 2 또는 화학식 3으로 표시되는 치환체 중 어느 하나이며;

[화학식 2]



[화학식 3]



상기 화학식 2 또는 3에서,

*은 상기 화학식 1에 결합되는 부위를 의미하고,

X_3 는 단일결합이고,

Ar_2 는 $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알케닐기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알키닐기, $C_3\sim C_{40}$ 의

시클로알킬기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴기, 핵원자수 5 내지 60개의 헤테로아릴기 및 $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴아민기로 이루어진 군에서 선택되거나, 혹은 인접한 기와 결합하여 축합 고리를 형성할 수 있고,

a, c 및 f는 각각 0 내지 3의 정수이고,

b, d 및 e는 각각 0 내지 4의 정수이며, 이때 $b+m\leq 4$, $d+n\leq 4$ 이고,

R_1 내지 R_8 은 서로 동일하거나 상이하며, 각각 독립적으로 수소, 중수소, 할로젠, 시아노기, 니트로기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알케닐기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알키닐기, $C_3\sim C_{40}$ 의 시클로알킬기, 핵원자수 3 내지 40개의 헤테로시클로알킬기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴기, 핵원자수 5 내지 60개의 헤테로아릴기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬옥시기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴옥시기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬실릴기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴실릴기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬보론기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴보론기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴포스핀기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴포스핀옥사이드기 및 $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴아민기로 이루어진 군에서 선택되거나, 혹은 인접한 기와 결합하여 축합 고리를 형성할 수 있고, 이때 상기 R_1 내지 R_7 이 각각 복수인 경우, 이들은 서로 동일하거나 상이하고,

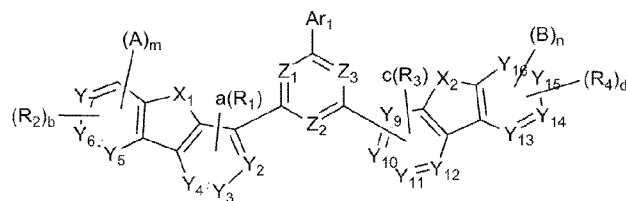
상기 Ar_1 내지 Ar_2 , 및 R_1 내지 R_8 의 알킬기, 알케닐기, 알키닐기, 시클로알킬기, 헤테로시클로알킬기, 아릴기, 헤테로아릴기, 알킬옥시기, 아릴옥시기, 알킬실릴기, 아릴실릴기, 알킬보론기, 아릴보론기, 아릴포스핀기, 아릴포스핀옥사이드기 및 아릴아민기는 각각 독립적으로 중수소, 할로젠, 시아노기, 니트로기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알케닐기, $C_2\sim C_{40}$ 의 알키닐기, $C_3\sim C_{40}$ 의 시클로알킬기, 핵원자수 3 내지 40개의 헤테로시클로알킬기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴기, 핵원자수 5 내지 60개의 헤테로아릴기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬옥시기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴옥시기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬실릴기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴실릴기, $C_1\sim C_{40}$ 의 알킬보론기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴보론기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴포스핀기, $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴포스핀옥사이드기 및 $C_6\sim C_{60}$ 의 아릴아민기로 이루어진 군에서 선택된 1종 이상의 치환기로 치환될 수 있으며, 이때 상기 치환기가 복수인 경우, 이들은 서로 동일하거나 상이할 수 있다.

[청구항 2]

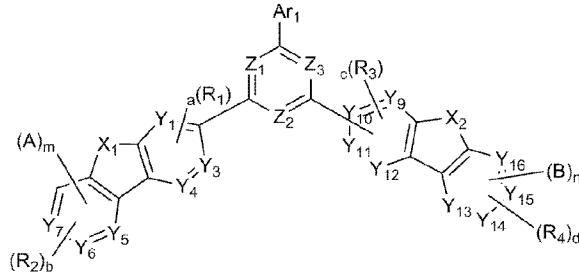
제1항에 있어서,

상기 화학식 1로 표시되는 화합물은 하기 화학식 4 내지 화학식 7 중 어느 하나로 표시되는 화합물:

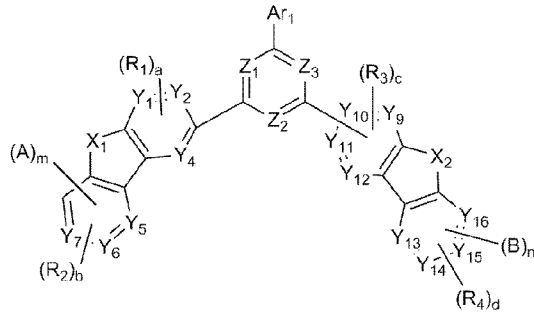
[화학식 4]



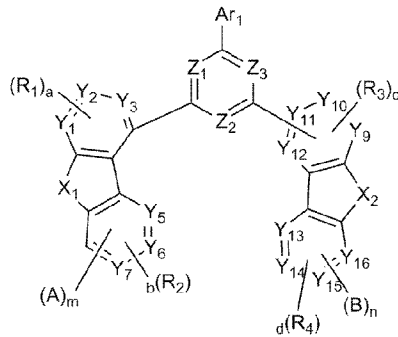
[화학식 5]



[화학식 6]



[화학식 7]



상기 화학식 4 내지 7에서,

상기 화학식 4의 Z_1 내지 Z_3 함유환은 Y_{10} 내지 Y_{12} 중 어느 하나와 결합되며(단, Z_1 내지 Z_3 함유환이 Y_9 과 결합되는 것은 제외됨),

상기 화학식 5의 Z_1 내지 Z_3 함유환은 Y_9, Y_{11} 내지 Y_{12} 중 어느 하나와 결합되며(단, Z_1 내지 Z_3 함유환이 Y_{10} 과 결합되는 것은 제외됨),

상기 화학식 6의 Z_1 내지 Z_3 함유환은 Y_9, Y_{10} 및 Y_{12} 중 어느 하나와 결합되며(단, Z_1 내지 Z_3 함유환이 Y_{11} 과 결합되는 것은 제외됨),

상기 화학식 7의 Z_1 내지 Z_3 함유환은 Y_9 내지 Y_{11} 중 어느 하나와 결합되며(단, Z_1 내지 Z_3 함유환이 Y_{12} 와 결합되는 것은 제외됨),

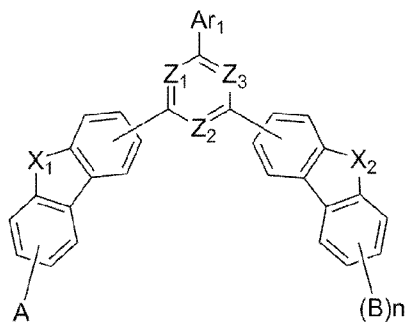
X_1, X_2, Y_1 내지 Y_{16}, Z_1 내지 Z_3, Ar_1, m, n, A, B, a 내지 d, R_1 내지 R_4 는 각각 제1항에서 정의한 바와 같다.

[청구항 3]

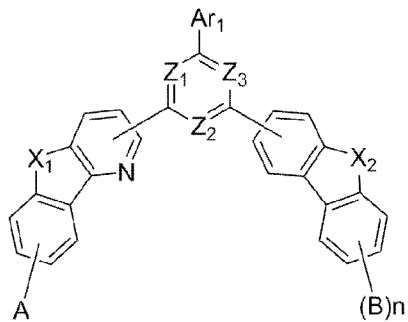
제1항에 있어서,

상기 화학식 1로 표시되는 화합물은 하기 화학식 8 내지 12 중 어느 하나로 표시되는 화합물.

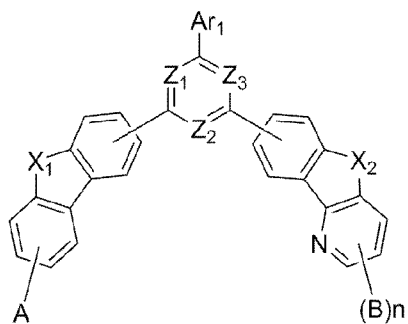
[화학식 8]



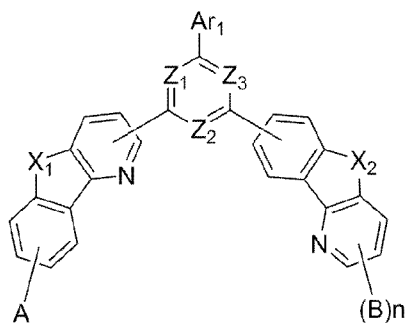
[화학식 9]



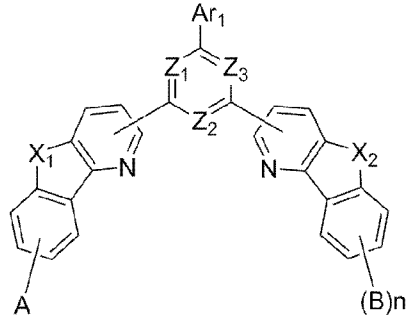
[화학식 10]



[화학식 11]



[화학식 12]



상기 화학식 8 내지 12에서,

X_1 , X_2 , Z_1 내지 Z_3 , Ar_1 , n , A , B 는 각각 제1항에서 정의한 바와 같다.

[청구항 4]

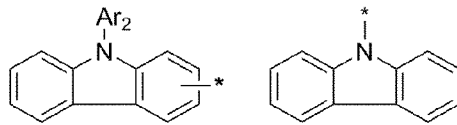
제1항에 있어서,

상기 Z_1 내지 Z_3 는 모두 N인 화합물.

[청구항 5]

제1항에 있어서,

상기 A 및 B 는 서로 동일하거나 상이하며, 각각 독립적으로 하기 구조식으로 표시되는 치환체 군에서 선택되는 어느 하나인 화합물.



상기 화학식에서,

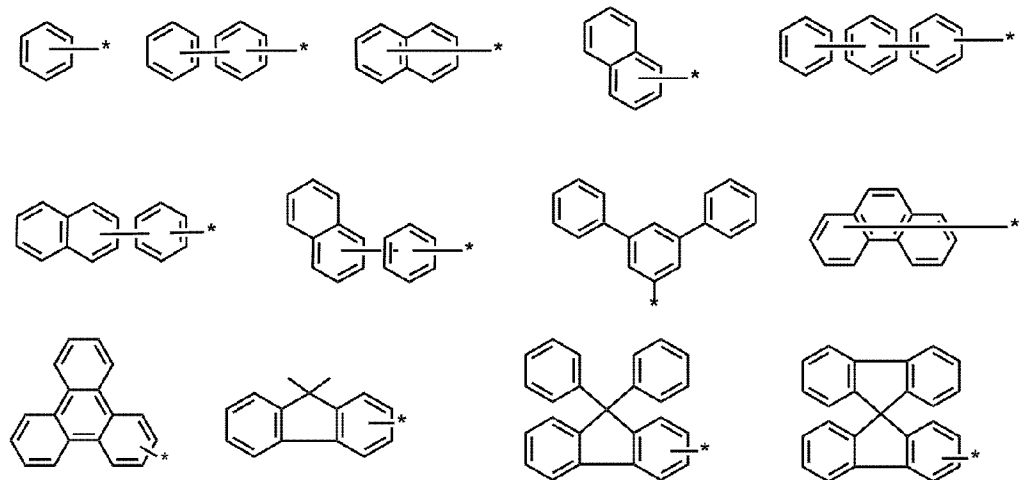
*은 상기 화학식 1에 결합되는 부위를 의미하고,

Ar_2 는 제1항에서 정의한 바와 같다.

[청구항 6]

제1항에 있어서,

상기 Ar_1 은 하기 구조식으로 표시된 치환체 군에서 선택되는 어느 하나인 화합물.



[청구항 7]

제1항에 있어서,

상기 R_1 내지 R_5 및 R_8 는 서로 동일하거나 상이하며, 각각 독립적으로 수소, 중수소, 할로젠, 시아노기, 니트로기, C_1 ~ C_{40} 의 알킬기, C_2 ~ C_{40} 의 알케닐기, C_2 ~ C_{40} 의 알키닐기, C_3 ~ C_{40} 의 시클로알킬기 및 C_6 ~ C_{60} 의

아릴기로 이루어진 군에서 선택되고,
 상기 R₆ 및 R₇은 서로 동일하거나 상이하며, 각각 독립적으로 수소,
 중수소, 할로젠, 시아노기, 니트로기, C₁~C₄₀의 알킬기, C₂~C₄₀의 알케닐기,
 C₂~C₄₀의 알키닐기, C₃~C₄₀의 시클로알킬기, C₆~C₆₀의 아릴기 및 핵원자수
 5 내지 60의 헤테로아릴기로 이루어진 군에서 선택되거나, 혹은 인접한
 기와 결합하여 축합 고리를 형성하는 화합물.

- [청구항 8] 양극, 음극 및 상기 양극과 음극 사이에 개재(介在)된 1층 이상의
 유기물층을 포함하고,
 상기 1층 이상의 유기물층 중 적어도 하나는 제1항 내지 제7항 중 어느 한
 항에 기재된 화합물을 포함하는 것인 유기 전계 발광 소자.
- [청구항 9] 제8항에 있어서,
 상기 화합물을 포함하는 유기물층은 정공 주입층, 정공 수송층, 발광
 보조층, 발광층, 전자 수송층 및 전자 주입층으로 이루어진 군에서
 선택되는 것인 유기 전계 발광 소자.
- [청구항 10] 제9항에 있어서,
 상기 화합물을 포함하는 유기물층은 인광 발광층인 유기 전계 발광 소자.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/KR2019/000614

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C07D 405/14(2006.01)i, C07D 209/82(2006.01)i, C07D 307/91(2006.01)i, H01L 51/00(2006.01)i, C09K 11/06(2006.01)i, H01L 51/50(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C07D 405/14; C07D 209/82; C07D 333/76; C07D 403/10; C07D 403/14; C07D 409/14; C07D 487/06; C09K 11/06; H01L 51/50; C07D 307/91; H01L 51/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Korean utility models and applications for utility models: IPC as above

Japanese utility models and applications for utility models: IPC as above

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

eKOMPASS (KIPO internal), STN (Registry, Caplus) & Keywords: nitrogenous heteroaromatic ring, dibenzofuran, dibenzothiophene, organic electroluminescent device, phosphorescence luminous layer

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	KR 10-2016-0028524 A (MERCK PATENT GMBH.) 11 March 2016 See claims 1, 13, 14; paragraphs [0175]-[0177], [0318].	1-10
X	KR 10-2017-0113321 A (LG CHEM, LTD.) 12 October 2017 See claims 1, 5-8.	1-10
X	KR 10-2017-0067671 A (HEESUNG MATERIAL LTD.) 16 June 2017 See claims 1, 5, 9, 10; compounds 2-16.	1-10
X	KR 10-2017-0053590 A (HEESUNG MATERIAL LTD.) 16 May 2017 See claims 1, 4, 8, 9; compounds 4-16.	1-10
A	WO 2013-069242 A1 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) 16 May 2013 See the entire document.	1-10
A	WO 2008-072596 A1 (KONICA MINOLTA HOLDINGS, INC.) 19 June 2008 See the entire document.	1-10



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date

“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

“&” document member of the same patent family


Date of the actual completion of the international search

29 APRIL 2019 (29.04.2019)

Date of mailing of the international search report

29 APRIL 2019 (29.04.2019)

Name and mailing address of the ISA/KR

 Korean Intellectual Property Office
Government Complex Daejeon Building 4, 189, Cheongsa-ro, Seo-gu,
Daejeon, 35208, Republic of Korea

Facsimile No. +82-42-481-8578

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/KR2019/000614

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member	Publication date
KR 10-2016-0028524 A	11/03/2016	CN 106459018 A	22/02/2017
		EP 3140302 A1	15/03/2017
		JP 2017-514878 A	08/06/2017
		KR 10-1730779 B1	26/04/2017
		TW 201609675 A	16/03/2016
		US 2017-0186965 A1	29/06/2017
		WO 2015-169412 A1	12/11/2015
KR 10-2017-0113321 A	12/10/2017	KR 10-1891917 B1	28/08/2018
KR 10-2017-0067671 A	16/06/2017	CN 108368088 A	03/08/2018
		EP 3392246 A1	24/10/2018
		JP 2019-505478 A	28/02/2019
		TW 201730184 A	01/09/2017
		US 2018-0287072 A1	04/10/2018
		WO 2017-099490 A1	15/06/2017
KR 10-2017-0053590 A	16/05/2017	KR 10-1830709 B1	21/02/2018
		TW 201722939 A	01/07/2017
		WO 2017-078494 A1	11/05/2017
WO 2013-069242 A1	16/05/2013	CN 103635471 A	12/03/2014
		KR 10-2014-0090133 A	16/07/2014
		TW 201335152 A	01/09/2013
		US 2014-0231772 A1	21/08/2014
WO 2008-072596 A1	19/06/2008	EP 2101365 A1	16/09/2009
		EP 2101365 B1	04/07/2018
		EP 2437326 A2	04/04/2012
		EP 2437326 A3	13/11/2013
		JP 2013-021365 A	31/01/2013
		JP 2013-048261 A	07/03/2013
		JP 2015-043460 A	05/03/2015
		JP 5493357 B2	14/05/2014
		JP 5626303 B2	19/11/2014
		JP 5742811 B2	01/07/2015
		JP 5930002 B2	08/06/2016
		US 0109800 B2	23/10/2018
		US 2010-0084966 A1	08/04/2010
		US 2012-0007498 A1	12/01/2012
		US 2013-0328031 A1	12/12/2013
		US 2013-0328032 A1	12/12/2013
		US 2015-0162550 A1	11/06/2015
US 2017-0054092 A1	23/02/2017		
US 8541112 B2	24/09/2013		
US 9048434 B2	02/06/2015		
US 9293715 B2	22/03/2016		
US 9590188 B2	07/03/2017		
US 9627630 B2	18/04/2017		

A. 발명이 속하는 기술분류(국제특허분류(IPC)) C07D 405/14(2006.01)i, C07D 209/82(2006.01)i, C07D 307/91(2006.01)i, H01L 51/00(2006.01)i, C09K 11/06(2006.01)i, H01L 51/50(2006.01)i		
B. 조사된 분야 조사된 최소문헌(국제특허분류를 기재) C07D 405/14; C07D 209/82; C07D 333/76; C07D 403/10; C07D 403/14; C07D 409/14; C07D 487/06; C09K 11/06; H01L 51/50; C07D 307/91; H01L 51/00 조사된 기술분야에 속하는 최소문헌 이외의 문헌 한국등록실용신안공보 및 한국공개실용신안공보: 조사된 최소문헌란에 기재된 IPC 일본등록실용신안공보 및 일본공개실용신안공보: 조사된 최소문헌란에 기재된 IPC		
국제조사에 이용된 전산 데이터베이스(데이터베이스의 명칭 및 검색어(해당하는 경우)) eKOMPASS(특허청 내부 검색시스템), STN(Registry, Caplus) & 키워드: 합질소 헤테로방향족환, 디벤조퓨란, 디벤조티오펜, 유기 전계 발광 소자, 인광 발광층		
C. 관련 문헌		
카테고리*	인용문헌명 및 관련 구절(해당하는 경우)의 기재	관련 청구항
X	KR 10-2016-0028524 A (메르크 파텐트 게엠베하) 2016.03.11 청구항 1, 13, 14; 단락 [0175]-[0177], [0318] 참조.	1-10
X	KR 10-2017-0113321 A (주식회사 엘지화학) 2017.10.12 청구항 1, 5-8 참조.	1-10
X	KR 10-2017-0067671 A (희성소재 (주)) 2017.06.16 청구항 1, 5, 9, 10; 화합물 2-16 참조.	1-10
X	KR 10-2017-0053590 A (희성소재 (주)) 2017.05.16 청구항 1, 4, 8, 9; 화합물 4-16 참조.	1-10
A	WO 2013-069242 A1 (IDEMITSU KOSAN CO.,LTD.) 2013.05.16 전체 문헌 참조.	1-10
A	WO 2008-072596 A1 (KONICA MINOLTA HOLDINGS, INC.) 2008.06.19 전체 문헌 참조.	1-10
<input type="checkbox"/> 추가 문헌이 C(계속)에 기재되어 있습니다. <input checked="" type="checkbox"/> 대응특허에 관한 별지를 참조하십시오.		
* 인용된 문헌의 특별 카테고리: “A” 특별히 관련이 없는 것으로 보이는 일반적인 기술수준을 정의한 문헌 “E” 국제출원일보다 빠른 출원일 또는 우선일을 가지나 국제출원일 이후에 공개된 선출원 또는 특허 문헌 “L” 우선권 주장에 의문을 제기하는 문헌 또는 다른 인용문헌의 공개일 또는 다른 특별한 이유(이유를 명시)를 밝히기 위하여 인용된 문헌 “O” 구두 개시, 사용, 전시 또는 기타 수단을 언급하고 있는 문헌 “P” 우선일 이후에 공개되었으나 국제출원일 이전에 공개된 문헌 “T” 국제출원일 또는 우선일 후에 공개된 문헌으로, 출원과 상충하지 않으며 발명의 기초가 되는 원리나 이론을 이해하기 위해 인용된 문헌 “X” 특별한 관련이 있는 문헌. 해당 문헌 하나만으로 청구된 발명의 신규성 또는 진보성이 없는 것으로 본다. “Y” 특별한 관련이 있는 문헌. 해당 문헌이 하나 이상의 다른 문헌과 조합하는 경우로 그 조합이 당업자에게 자명한 경우 청구된 발명은 진보성이 없는 것으로 본다. “&” 동일한 대응특허문헌에 속하는 문헌		
국제조사의 실제 완료일 2019년 04월 29일 (29.04.2019)	국제조사보고서 발송일 2019년 04월 29일 (29.04.2019)	
ISA/KR의 명칭 및 우편주소 대한민국 특허청 (35208) 대전광역시 서구 청사로 189, 4동 (둔산동, 정부대전청사) 팩스 번호 +82-42-481-8578	심사관 감유림 전화번호 +82-42-481-3516	

국제조사보고서에서 인용된 특허문헌	공개일	대응특허문헌	공개일
KR 10-2016-0028524 A	2016/03/11	CN 106459018 A	2017/02/22
		EP 3140302 A1	2017/03/15
		JP 2017-514878 A	2017/06/08
		KR 10-1730779 B1	2017/04/26
		TW 201609675 A	2016/03/16
		US 2017-0186965 A1	2017/06/29
		WO 2015-169412 A1	2015/11/12
KR 10-2017-0113321 A	2017/10/12	KR 10-1891917 B1	2018/08/28
KR 10-2017-0067671 A	2017/06/16	CN 108368088 A	2018/08/03
		EP 3392246 A1	2018/10/24
		JP 2019-505478 A	2019/02/28
		TW 201730184 A	2017/09/01
		US 2018-0287072 A1	2018/10/04
		WO 2017-099490 A1	2017/06/15
KR 10-2017-0053590 A	2017/05/16	KR 10-1830709 B1	2018/02/21
		TW 201722939 A	2017/07/01
		WO 2017-078494 A1	2017/05/11
WO 2013-069242 A1	2013/05/16	CN 103635471 A	2014/03/12
		KR 10-2014-0090133 A	2014/07/16
		TW 201335152 A	2013/09/01
		US 2014-0231772 A1	2014/08/21
WO 2008-072596 A1	2008/06/19	EP 2101365 A1	2009/09/16
		EP 2101365 B1	2018/07/04
		EP 2437326 A2	2012/04/04
		EP 2437326 A3	2013/11/13
		JP 2013-021365 A	2013/01/31
		JP 2013-048261 A	2013/03/07
		JP 2015-043460 A	2015/03/05
		JP 5493357 B2	2014/05/14
		JP 5626303 B2	2014/11/19
		JP 5742811 B2	2015/07/01
		JP 5930002 B2	2016/06/08
		US 0109800 B2	2018/10/23
		US 2010-0084966 A1	2010/04/08
		US 2012-0007498 A1	2012/01/12
		US 2013-0328031 A1	2013/12/12
		US 2013-0328032 A1	2013/12/12
		US 2015-0162550 A1	2015/06/11
		US 2017-0054092 A1	2017/02/23
		US 8541112 B2	2013/09/24
		US 9048434 B2	2015/06/02
		US 9293715 B2	2016/03/22
		US 9590188 B2	2017/03/07
		US 9627630 B2	2017/04/18