



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本

(11)證書號數：TW I726036 B

(45)公告日：中華民國 110 (2021) 年 05 月 01 日

(21)申請案號：106101243

(22)申請日：中華民國 106 (2017) 年 01 月 13 日

(51)Int. Cl.：

*C07C231/02 (2006.01)**C07C233/80 (2006.01)**C07D209/86 (2006.01)**C07D401/10 (2006.01)**C09D201/00 (2006.01)**C09D7/40 (2018.01)**C09K11/06 (2006.01)**H01L51/50 (2006.01)*

(30)優先權：2016/01/14 日本

2016-005375

(71)申請人：日產化學工業股份有限公司(日本) NISSAN CHEMICAL INDUSTRIES, LTD. (JP)
日本

(72)發明人：中澤太一 NAKAZAWA, TAICHI (JP)；遠藤歲幸 ENDO, TOSHIYUKI (JP)

(74)代理人：林志剛

(56)參考文獻：

KR 2014-0128878A

WO 2015174682A1

審查人員：王嘉薇

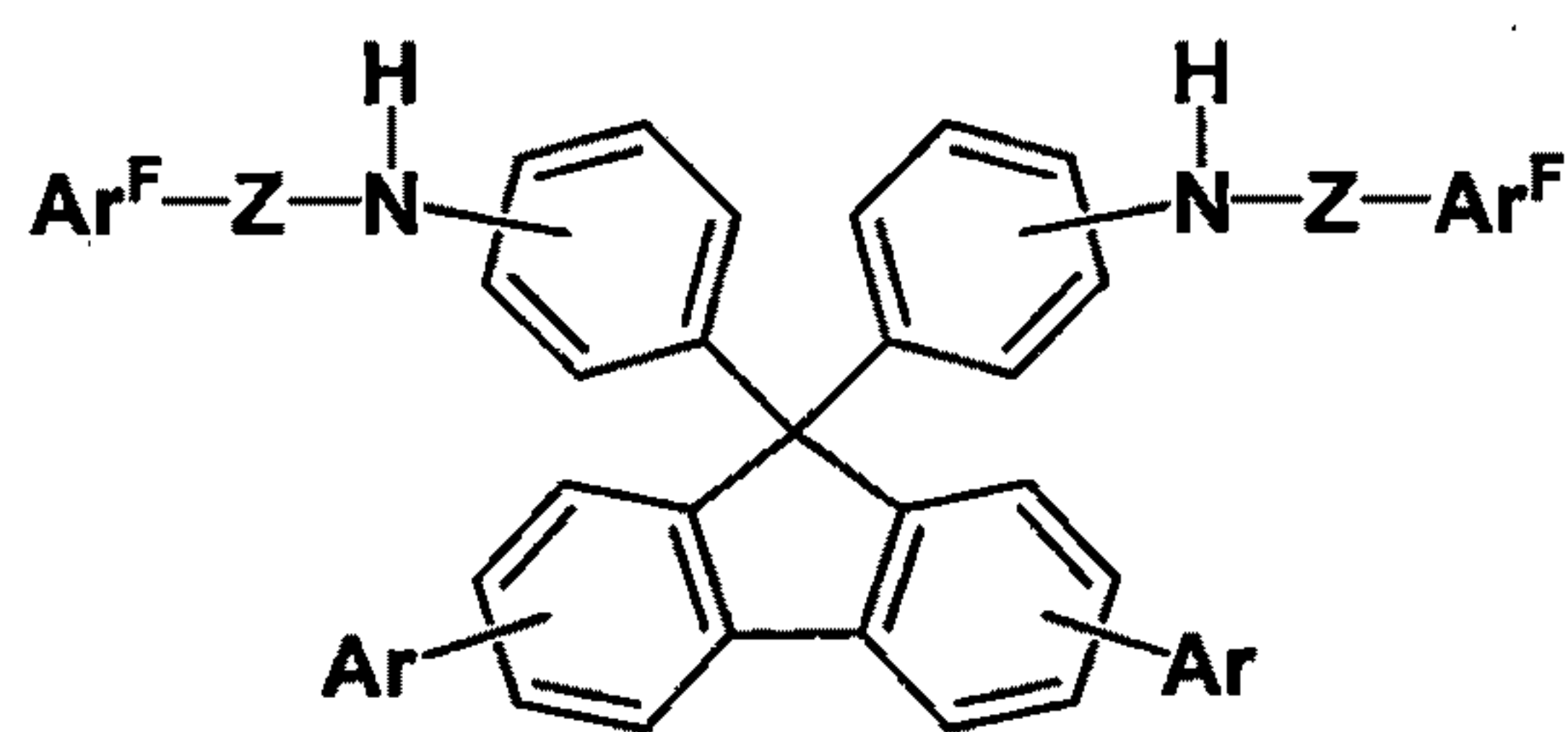
申請專利範圍項數：13 項 圖式數：0 共 81 頁

(54)名稱

含有氟原子之化合物及其利用

(57)摘要

提供下述式(1)表示之含有氟原子之化合物。

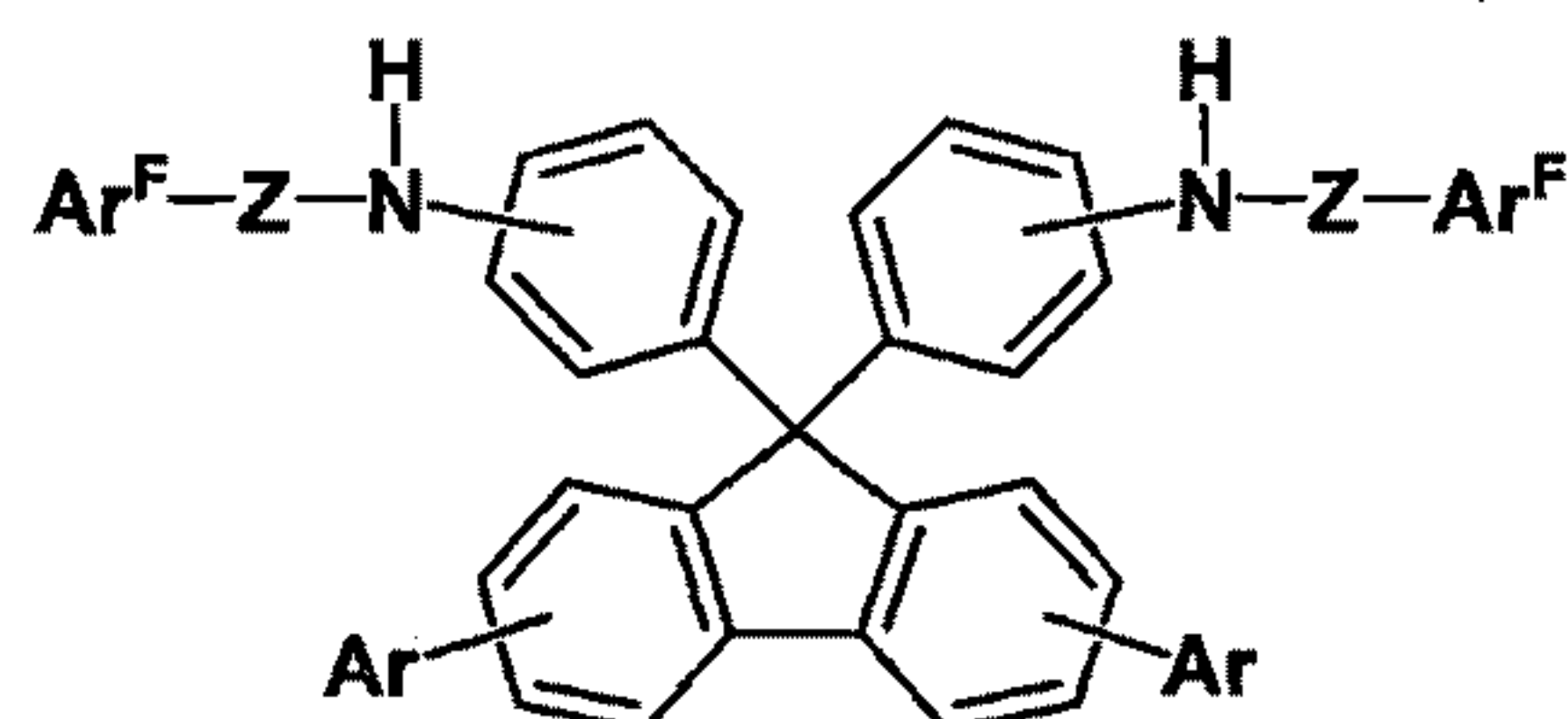


(1)

[式中，Z 表示特定之 2 價基，Ar，係分別獨立地表示特定之含有芳香環之基，Ar^F，係分別獨立地表示特定之含有氟原子之芳基]。

特徵化學式：

式(1)



(1)

發明摘要

※申請案號：106101243

※申請日：106 年 01 月 13 日

※IPC 分類：

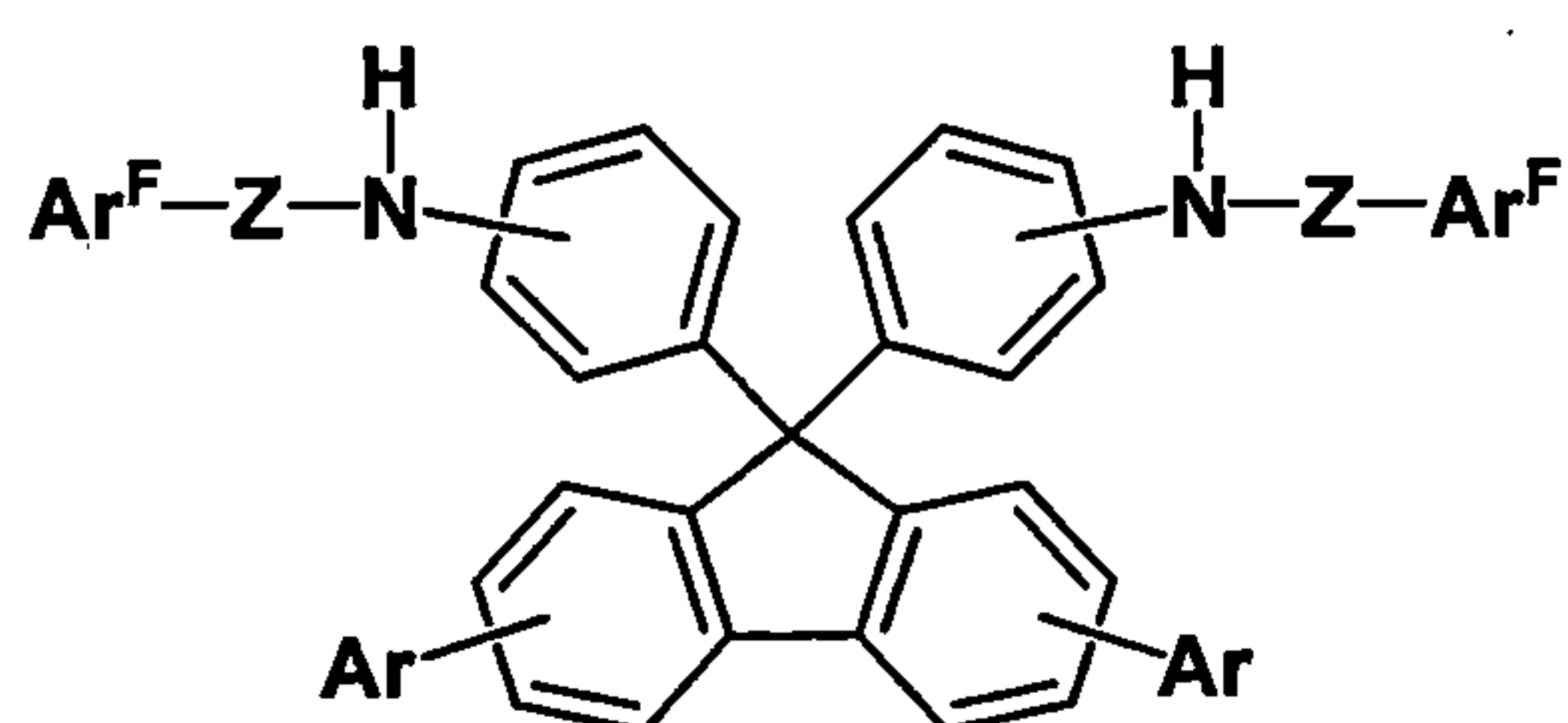
C07C 231/02 (2006.01)**C07C 233/80** (2006.01)**C07D 209/86** (2006.01)**C07D 401/10** (2006.01)**C09D 201/00** (2006.01)**C09D 7/12** (2006.01)**C09K 11/06** (2006.01)**H01L 51/50** (2006.01)

【發明名稱】(中文/英文)

含有氟原子之化合物及其利用

【中文】

提供下述式(1)表示之含有氟原子之化合物。



(1)

[式中，Z 表示特定之 2 價基，Ar，係分別獨立地表示特定之含有芳香環之基，Ar^F，係分別獨立地表示特定之含有氟原子之芳基]。

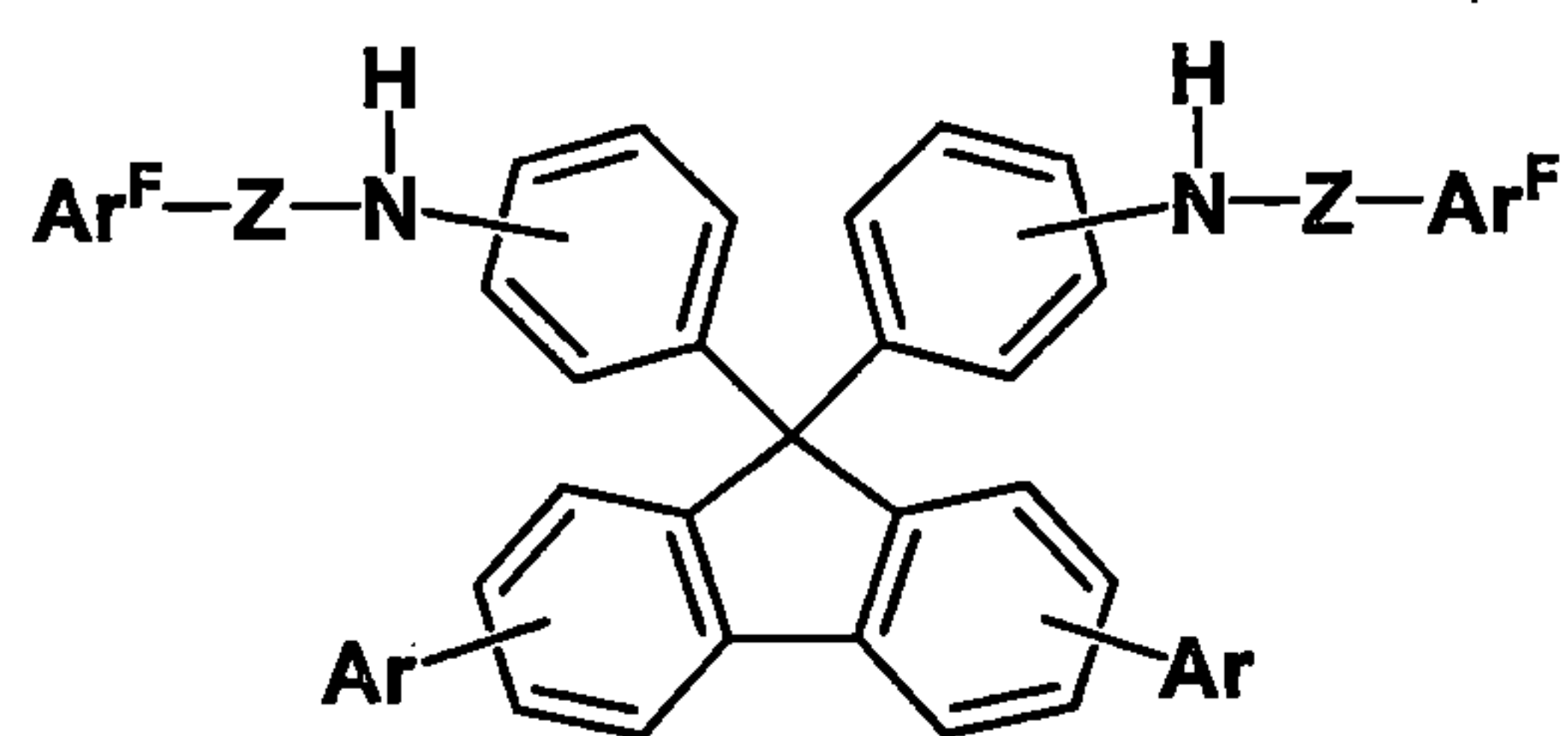
【英文】

【代表圖】

【本案指定代表圖】：無

【本代表圖之符號簡單說明】：無

【本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式】：式(1)



(1)

發明專利說明書

(本說明書格式、順序，請勿任意更動)

【發明名稱】(中文/英文)

含有氟原子之化合物及其利用

【技術領域】

[0001] 本發明係關於含有氟原子之化合物及其利用。

【先前技術】

[0002] 有機電致發光(EL)元件，於顯示器或照明等領域的實用化受到期待，以低電壓驅動、高輝度、高壽命等為目的，有進行關於材料或元件構造之各種開發。

[0003] 有機 EL 元件之高功能化，係藉由功能分離之功能層的多層層合構造而實現，將前述功能層以功能別予以粗分時，係由電洞注入/傳輸層、發光層、電子注入/傳輸層 3 種。此等之中，電洞注入/傳輸層所達成之最重要的功能，係將自外部電源通過陽極所注入之電洞載子(carrier)效率良好地傳輸至發光層。又，為了使電洞載子與自陰極側所注入之電子載子於發光層內效率良好地再結合，亦要求防止電子載子自發光層流出至電洞注入/傳輸層的功能。

[0004] 有機功能層膜之形成方法，粗分為以蒸鍍法為代表的乾式製程與以旋轉塗佈法為代表的濕式製程。比

較此等製程時，濕式製程較可大面積地製造平坦性高之薄膜，於低成本化、大面積化有優越性。特別是可成為發光層之下層的共通層之電洞注入/傳輸層，係強烈期望濕式製程化之實現。

[0005] 有鑑於如此實情，本發明者等人有開發可應用於各種濕式製程，而且賦予應用於有機 EL 元件之電洞注入層時可實現優良特性之薄膜的電荷傳輸性材料、或對使用於其之有機溶劑的溶解性良好之化合物、及電荷傳輸性塗漆(專利文獻 1~4)。

[0006] 又，由於可有助於有機 EL 元件之輝度特性，故不僅電洞注入層，對電洞傳輸層等亦要求更高之均勻性(專利文獻 5)，且要求賦予平坦性優良的電荷傳輸性薄膜，進而亦可實現於其膜上以濕式製程所形成之電洞傳輸層或發光層的優良塗佈性之材料。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

[0007]

[專利文獻 1]國際公開第 2008/032616 號

[專利文獻 2]國際公開第 2008/129947 號

[專利文獻 3]國際公開第 2006/025342 號

[專利文獻 4]國際公開第 2010/058777 號

[專利文獻 5]日本特開 2008-27646 號公報

【發明內容】

[發明所欲解決之課題]

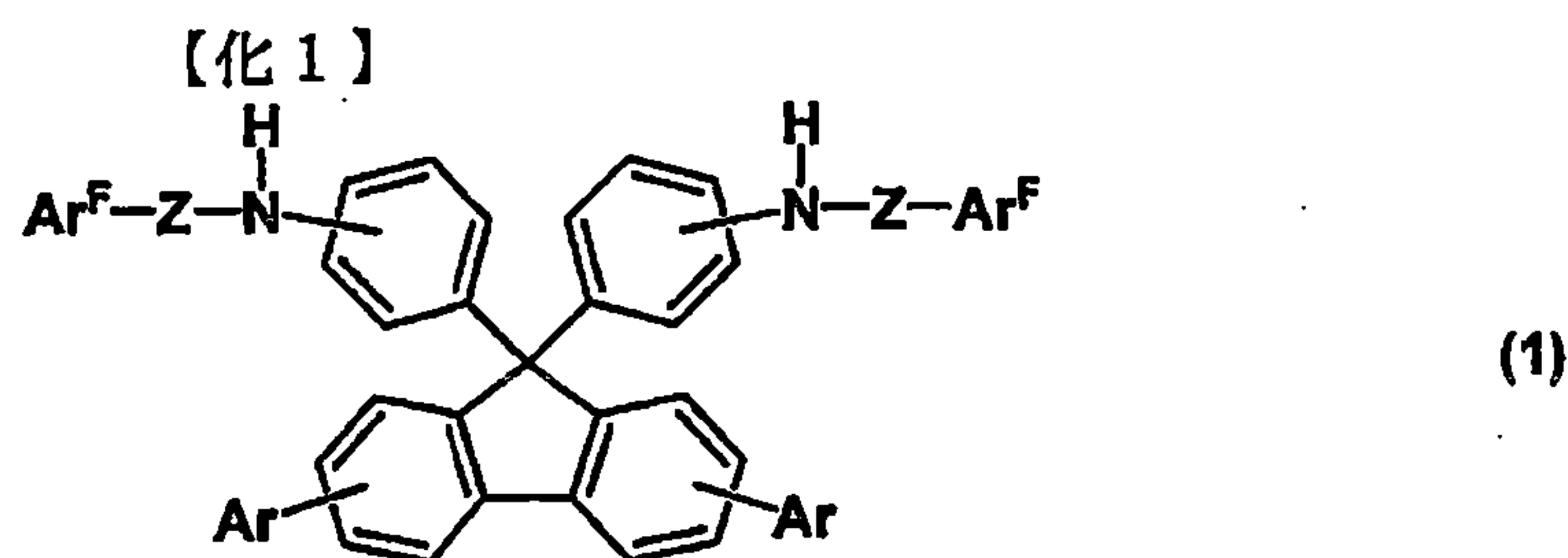
[0008] 本發明係有鑑於前述實情而為者，其目的為提供可獲得具有高電洞傳輸性及高電子阻擋性之薄膜的化合物及其利用。

[用以解決課題之手段]

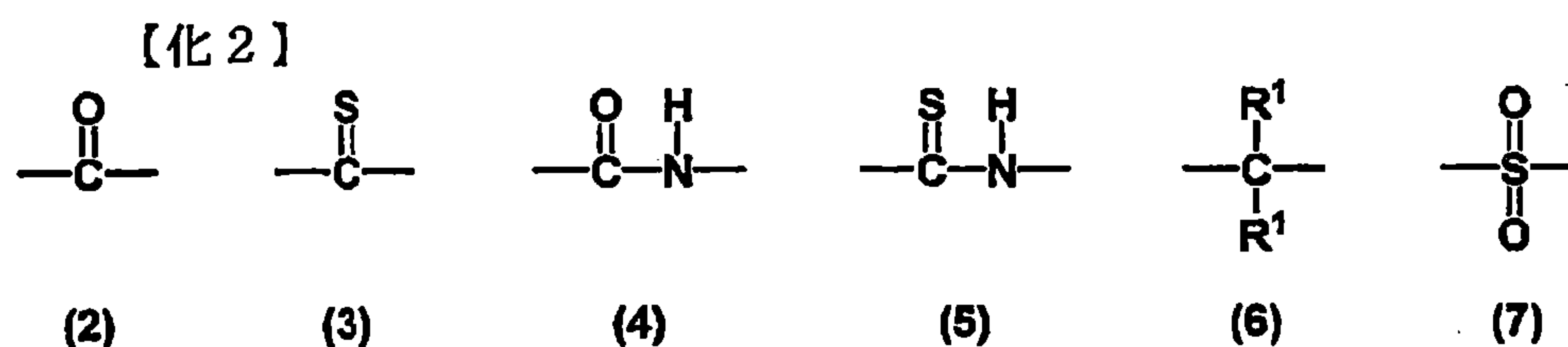
[0009] 本發明者等人，為了達成前述目的的重複努力探討的結果，發現使用特定之含有氟原子之化合物所得到的薄膜具有高的電洞傳輸性及高的電子阻擋性，而完成本發明。

[0010] 亦即，本發明係提供下述含有氟原子之化合物及其利用。

1.一種下述式(1)表示之含有氟原子之化合物；



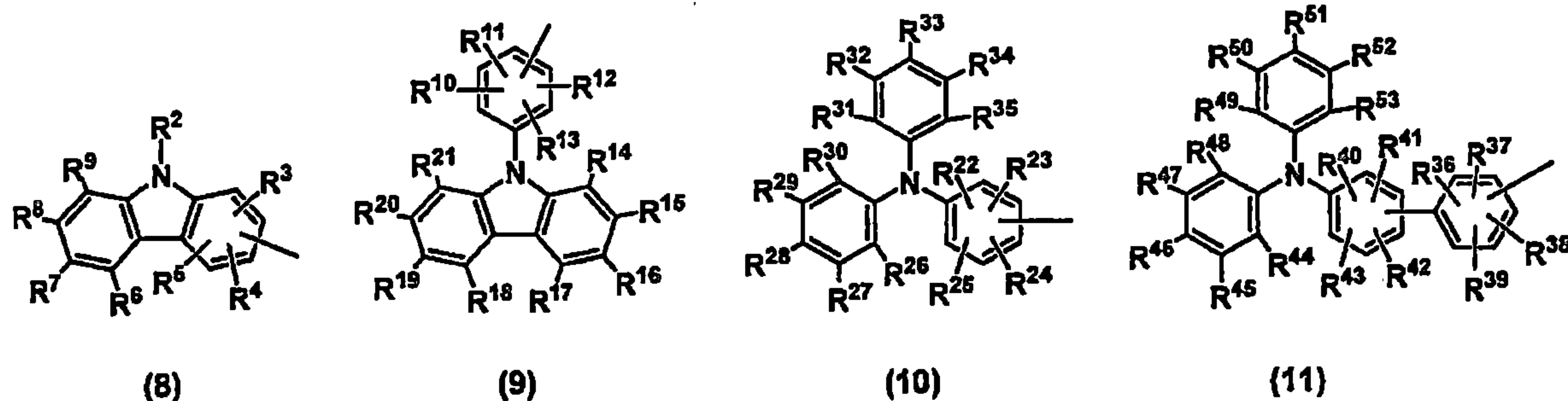
[式中，Z表示下述式(2)~(7)之任一者表示之基；



(式中， R^1 係分別獨立地表示氫原子或碳數1~20之烷基)

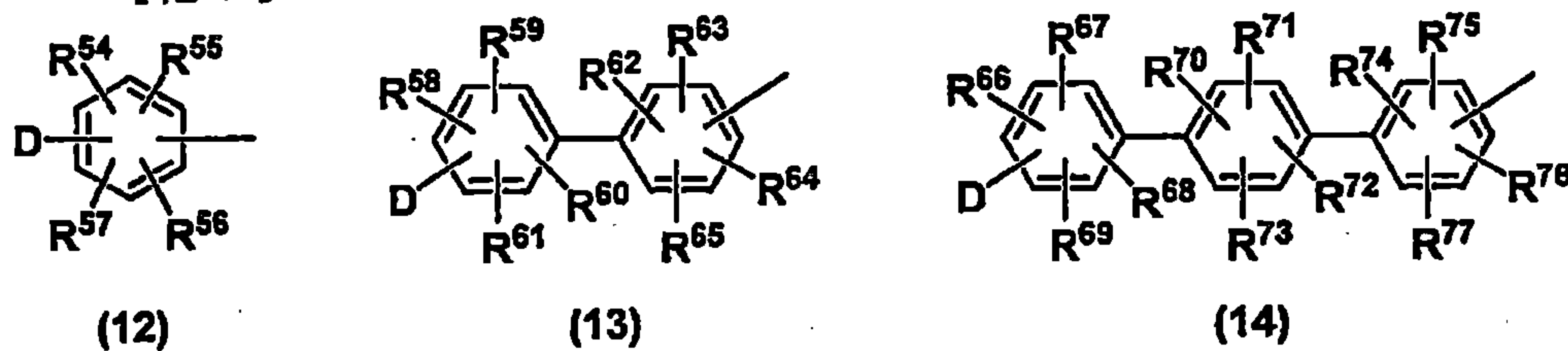
Ar係分別獨立地表示下述式(8)~(11)表示之基；

【化 3】



(式(8)中，R² 表示氫原子、碳數 1~20 之烷基；可經氰基、硝基、鹵素原子、碳數 1~20 之烷基或碳數 1~20 之鹵烷基取代之碳數 6~20 之芳基；或下述式(12)~(14)

【化 4】



表示之基，式中，D 表示各芳基分別獨立地為碳數 6~20 之芳基的二芳基胺基，式(8)~(14)中，R³~R⁷⁷ 係分別獨立地表示氫原子、氰基、硝基、鹵素原子、碳數 1~20 之烷基或碳數 1~20 之鹵烷基)；

Ar^F 係分別獨立地表示可經氰基、氯原子、溴原子、碘原子、硝基、碳數 1~20 之烷基、碳數 1~20 之氟烷基或碳數 1~20 之氟烷氧基取代的碳數 6~20 之氟芳基；經碳數 1~20 之氟烷基、碳數 3~20 之氟環烷基、碳數 4~20 之氟雙環烷基、碳數 2~20 之氟烯基或碳數 2~20 之氟炔基取代，而且可經氰基、鹵素原子或碳數 1~20 之氟烷氧基取代的碳數 6~20 之芳基]。

2.如 1 之含有氟原子之化合物，其中 Ar^F 係分別獨立地為

可經氟基、氯原子、溴原子、碘原子、硝基、碳數 1~20 之烷基、碳數 1~20 之氟烷基或碳數 1~20 之氟烷氧基取代的經 3 個以上之氟原子取代的苯基、或 2-(三氟甲基)苯基、3-(三氟甲基)苯基、4-(三氟甲基)苯基、4-乙氧基-3-(三氟甲基)苯基、3-氟-4-三氟甲基苯基、4-氟-3-三氟甲基苯基、4-氟-2-三氟甲基苯基、2-氟-5-(三氟甲基)苯基、3-氟-5-(三氟甲基)苯基、3,5-二(三氟甲基)苯基、2,4,6-三(三氟甲基)苯基、4-(五氟乙基)苯基、4-(3,3,3-三氟丙基)苯基、2,3,5,6-四氟-4-三氟甲基苯基、4-(全氟乙烯基)苯基、4-(全氟丙烯基)苯基或 4-(全氟丁烯基)苯基。

3.如 1 或 2 之含有氟原子之化合物，其中 Ar^F 為相同之基。

4.如 1~3 中任一項之含有氟原子之化合物，其中 Z 為式 (2)表示之基。

5.如 1~4 中任一項之含有氟原子之化合物，其中 R^2 為苯基。

6.如 1~5 中任一項之含有氟原子之化合物，其中 $\text{R}^3 \sim \text{R}^{77}$ 為氫原子。

7.一種電荷傳輸性物質，其係由如 1~6 中任一項之含有氟原子之化合物所構成。

8.一種電荷傳輸性塗漆，其含有如 7 之電荷傳輸性物質及有機溶劑。

9.如 8 之電荷傳輸性塗漆，其進一步含有不含有氟原子之電荷傳輸性物質。

10.如 8 或 9 之電荷傳輸性塗漆，其進一步含有摻雜劑。

11.一種電荷傳輸性薄膜，其係使用如 8~10 中任一項之電荷傳輸性塗漆所製作。

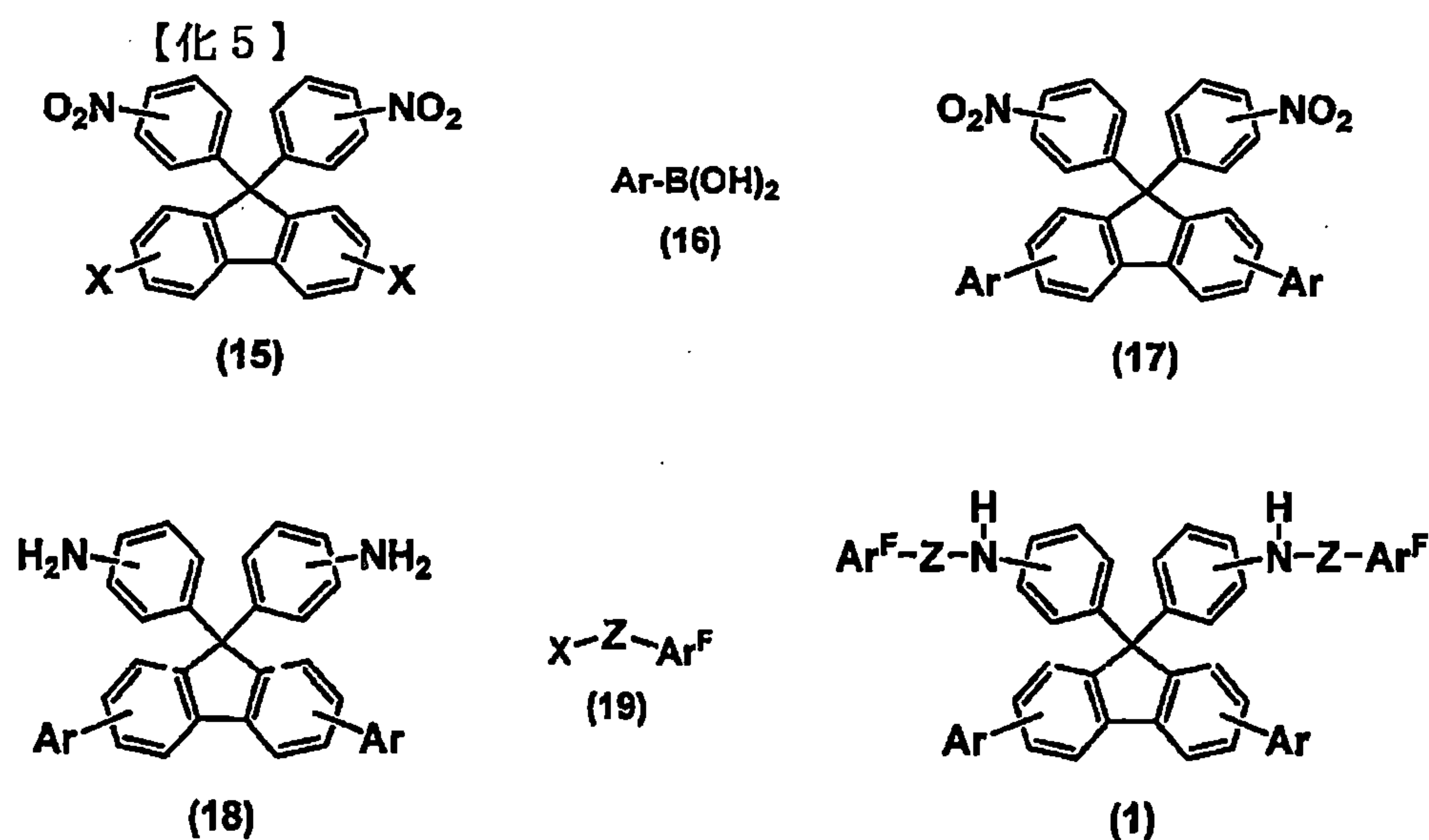
12.一種有機 EL 元件，其具備如 11 之電荷傳輸性薄膜。

13.一種下述式(1)表示之含有氟原子之化合物之製造方法，其包含

使式(15)表示之化合物及式(16)表示之化合物反應而得到式(17)表示之中間體之步驟、

將式(17)表示之中間體還原而得到式(18)表示之中間體之步驟、及

使式(18)表示之中間體與式(19)表示之鹵化物反應之步驟；



(式中，Z、Ar、 Ar^{F} 係與前述相同；X 表示鹵素原子或擬鹵素基)。

[發明之效果]

[0011] 使用本發明之含有氟原子之化合物所得到之

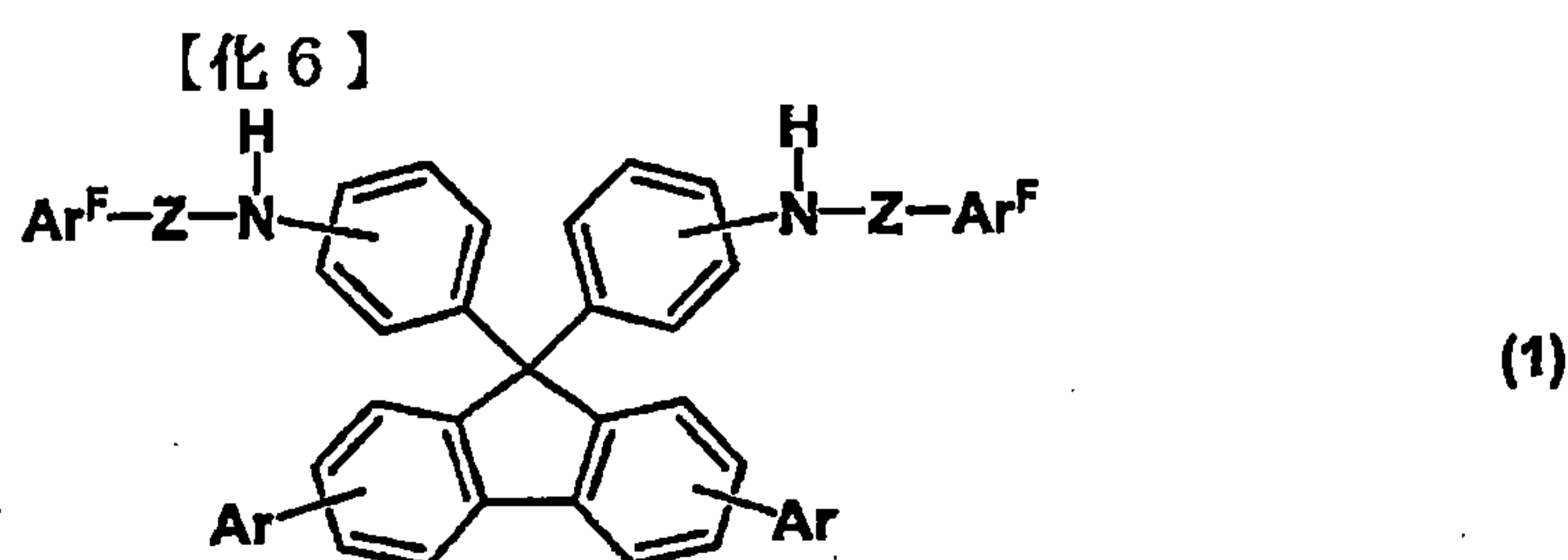
薄膜，具有高的電洞傳輸性及高的電子阻擋性。因而，可適合地使用作為以有機 EL 元件為首的電子裝置用薄膜。特別地，藉由應用該薄膜於有機 EL 元件之電洞注入層、電洞傳輸層、電洞注入傳輸層，可得到輝度特性優良的有機 EL 元件。又，含有本發明之含有氟原子之化合物的電荷傳輸性塗漆，即使使用旋轉塗佈法或狹縫塗佈法等可大面積地成膜的各種濕式製程，亦可再現性良好地製造電荷傳輸性優良的薄膜，進而會保持該表面之上層材料所使用的溶劑之高的塗覆性，亦可充分對應於近年來之有機 EL 元件領域中的進展。

【實施方式】

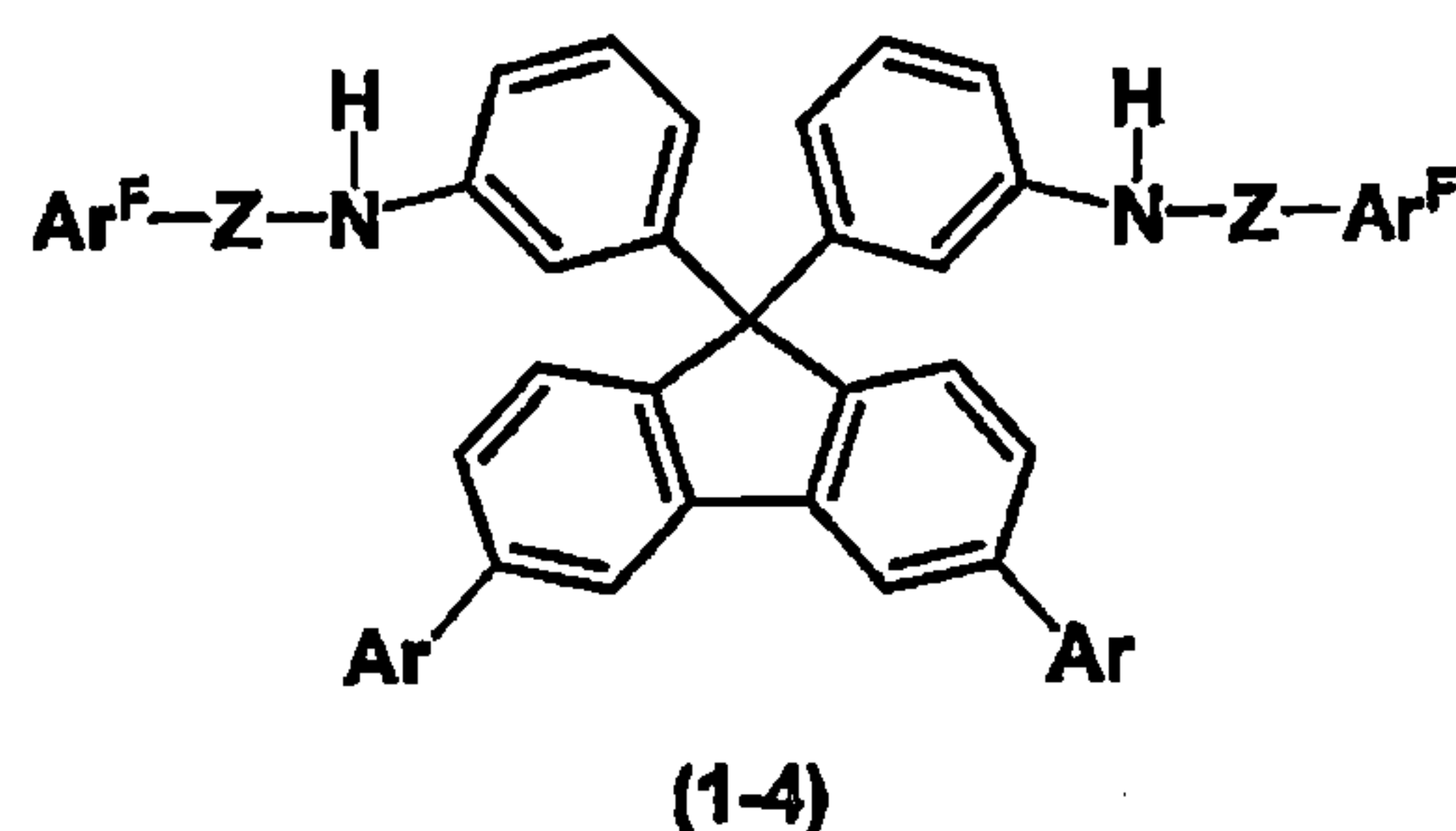
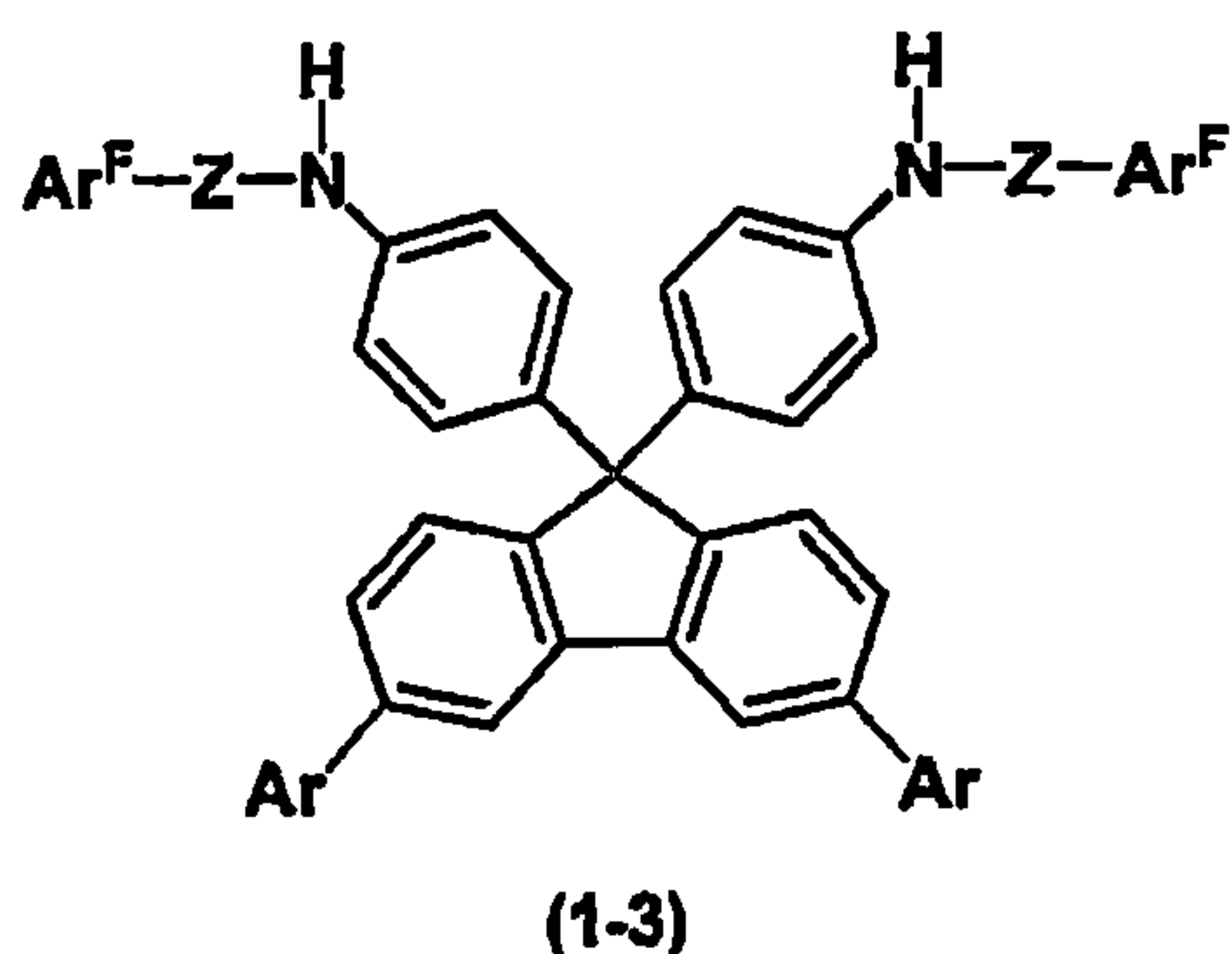
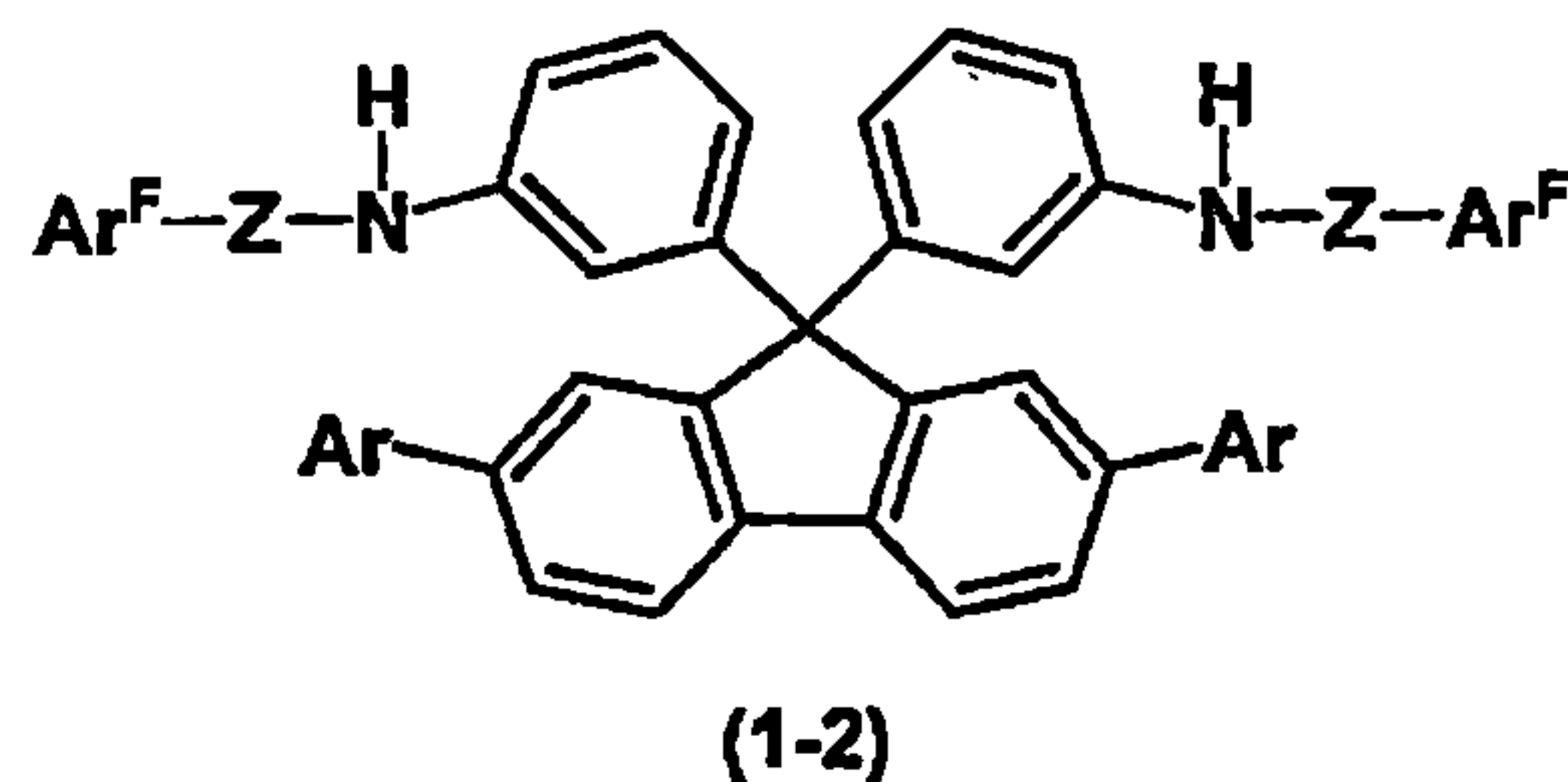
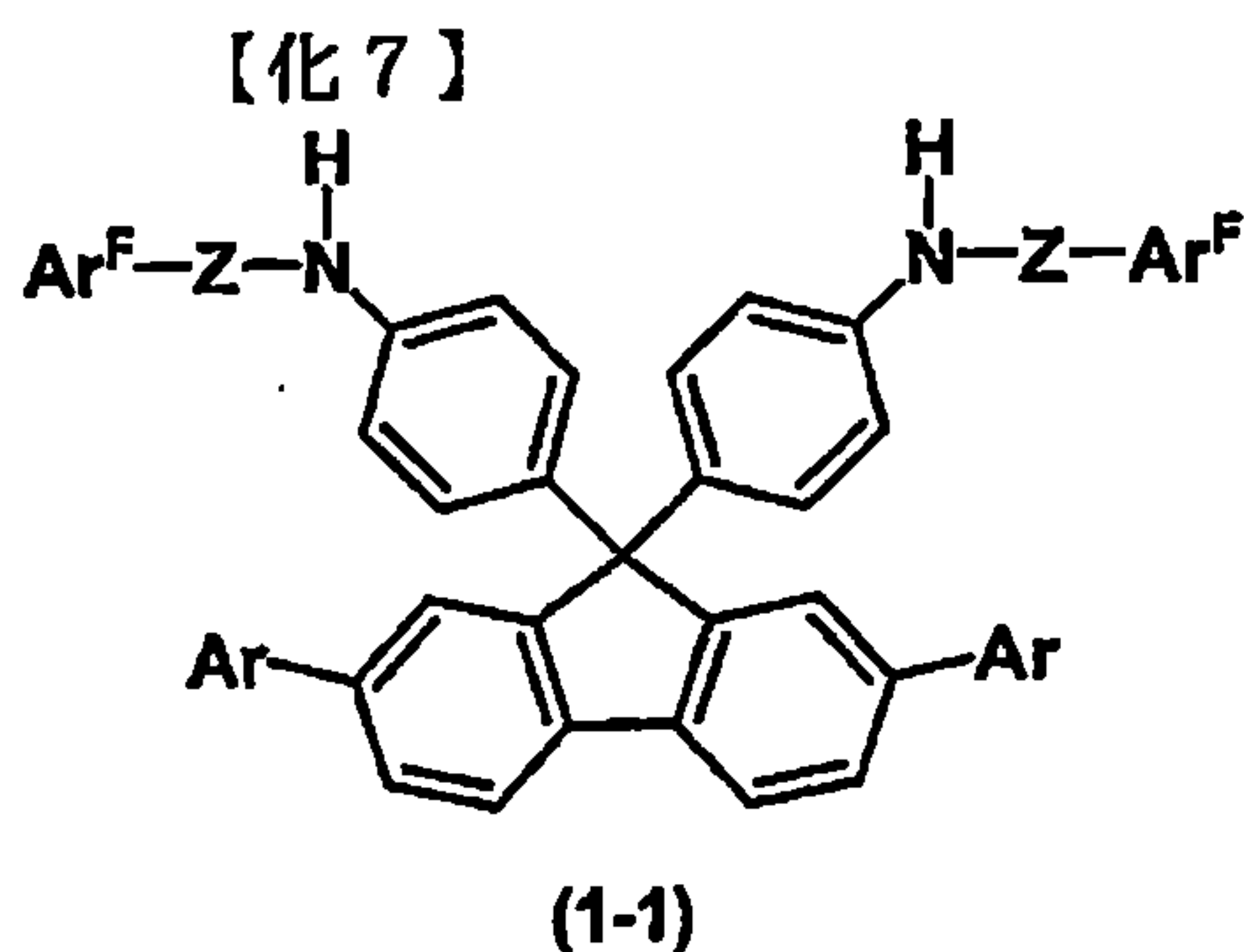
[0012]

[含有氟原子之化合物]

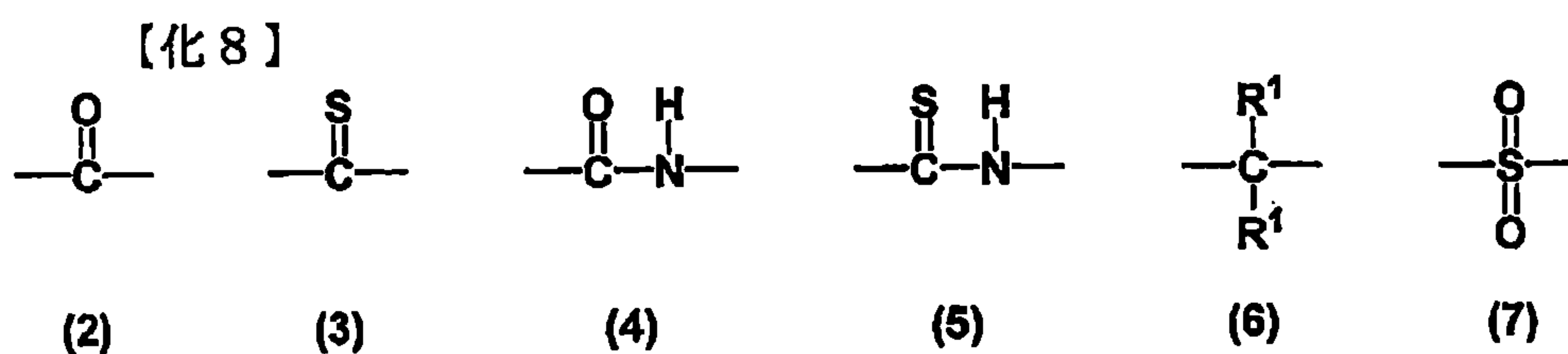
本發明之含有氟原子之化合物，為下述式(1)表示者。



[0013] 式(1)表示之含有氟原子之化合物，可列舉以下所示者，但不限定於此等。



[0014] 式(1)中，Z 表示以下述式(2)~(7)之任一者表示之基。再者，Z 為式(4)或(5)表示之基時，該基中所含有的碳原子，係鄰接於式(1)中之氮原子。



[0015] 式(2)~(7)中， R^1 係分別獨立地表示氫原子或碳數 1~20 之烷基，較佳為氫原子。

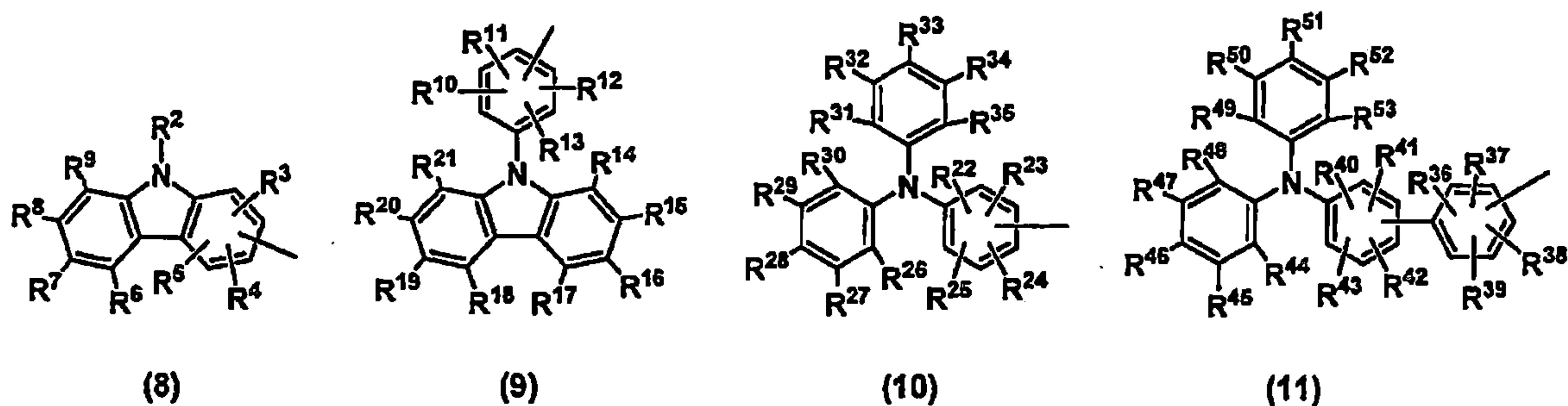
[0016] 前述碳數 1~20 之烷基，係直鏈狀、分支狀、環狀的任意者均可，其具體例子可列舉甲基、乙基、n-丙基、異丙基、n-丁基、異丁基、sec-丁基、tert-丁基、n-戊基、n-己基、n-庚基、n-辛基、n-壬基、n-癸基等之碳數 1~20 之直鏈狀或分支狀烷基；環丙基、環丁

基、環戊基、環己基、環庚基、環辛基、環壬基、環癸基、雙環丁基、雙環戊基、雙環己基、雙環庚基、雙環辛基、雙環壬基、雙環癸基等之碳數 3~20 之環狀烷基。

[0017] Z 較佳為式(2)、(3)、(4)、(5)或(6)表示之基；更佳為式(2)、(4)或(6)表示之基；又更佳為式(2)表示之基。

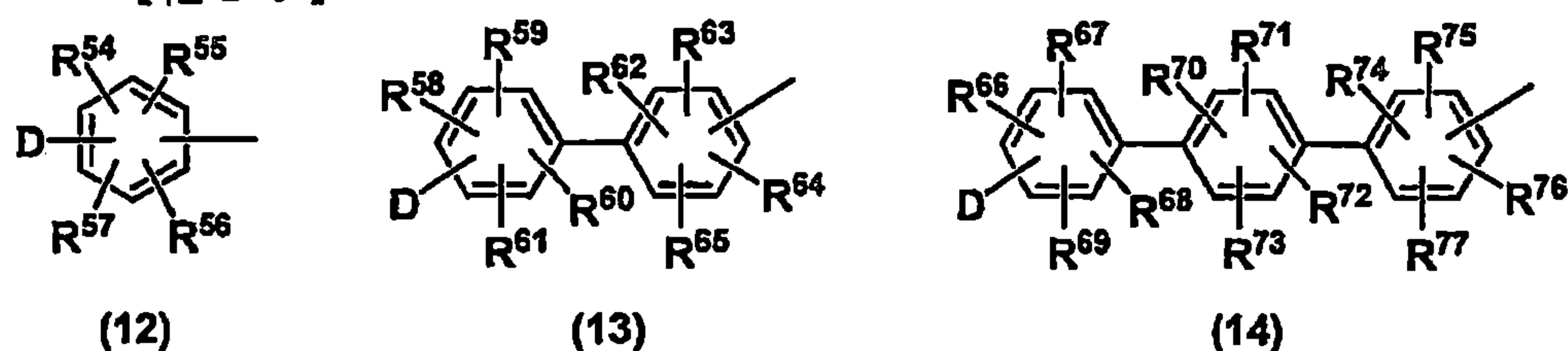
[0018] 式(1)中，Ar 係分別獨立地表示下述式(8)~(11)表示之基。

【化 9】



[0019] 式(8)中，R² 表示氫原子、碳數 1~20 之烷基；可經氰基、硝基、鹵素原子、碳數 1~20 之烷基或碳數 1~20 之鹵烷基取代之碳數 6~20 之芳基；或下述式(12)~(14)表示之基。

【化 10】

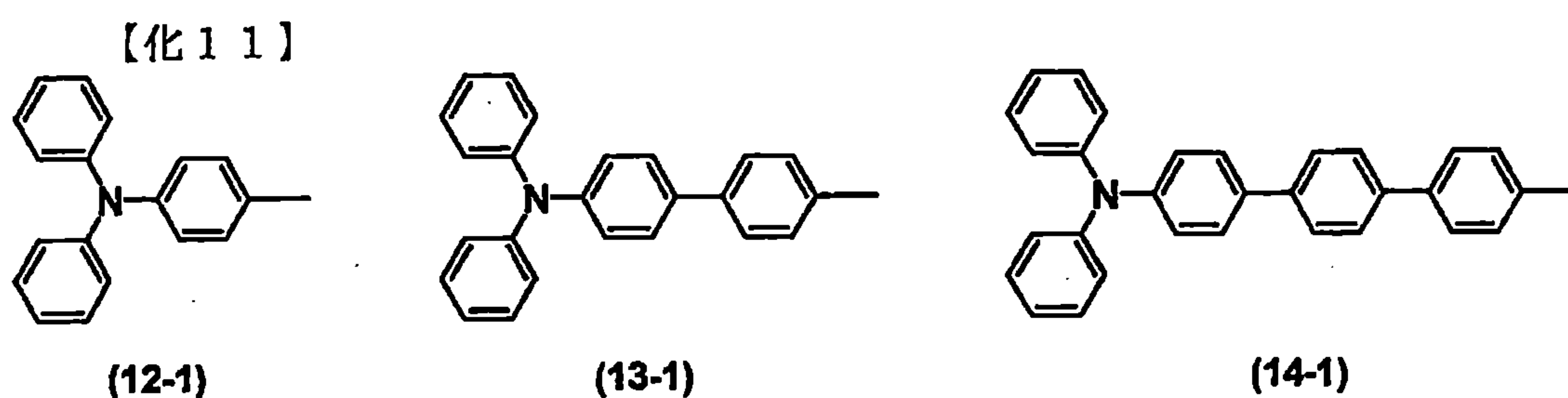


(式中，D，係表示各芳基分別獨立地為碳數 6~20 之芳基的二芳基胺基。R⁵⁴~R⁷⁷ 係如後述)。

[0020] 前述碳數 1~20 之烷基，可列舉與前述為相

同者。前述碳數 6~20 之芳基，可列舉苯基、1-萘基、2-萘基、1-蒽基、2-蒽基、9-蒽基、1-菲基、2-菲基、3-菲基、4-菲基、9-菲基等。前述二芳基胺基，可列舉二苯基胺基、二萘基胺基、二蒽基胺基、N-苯基-N-萘基胺基、N-苯基-N-蒽基胺基、N-萘基-N-蒽基胺基等。

[0021] 式(12)~(14)表示之基，較佳為下述式(12-1)~(14-1)等表示者。



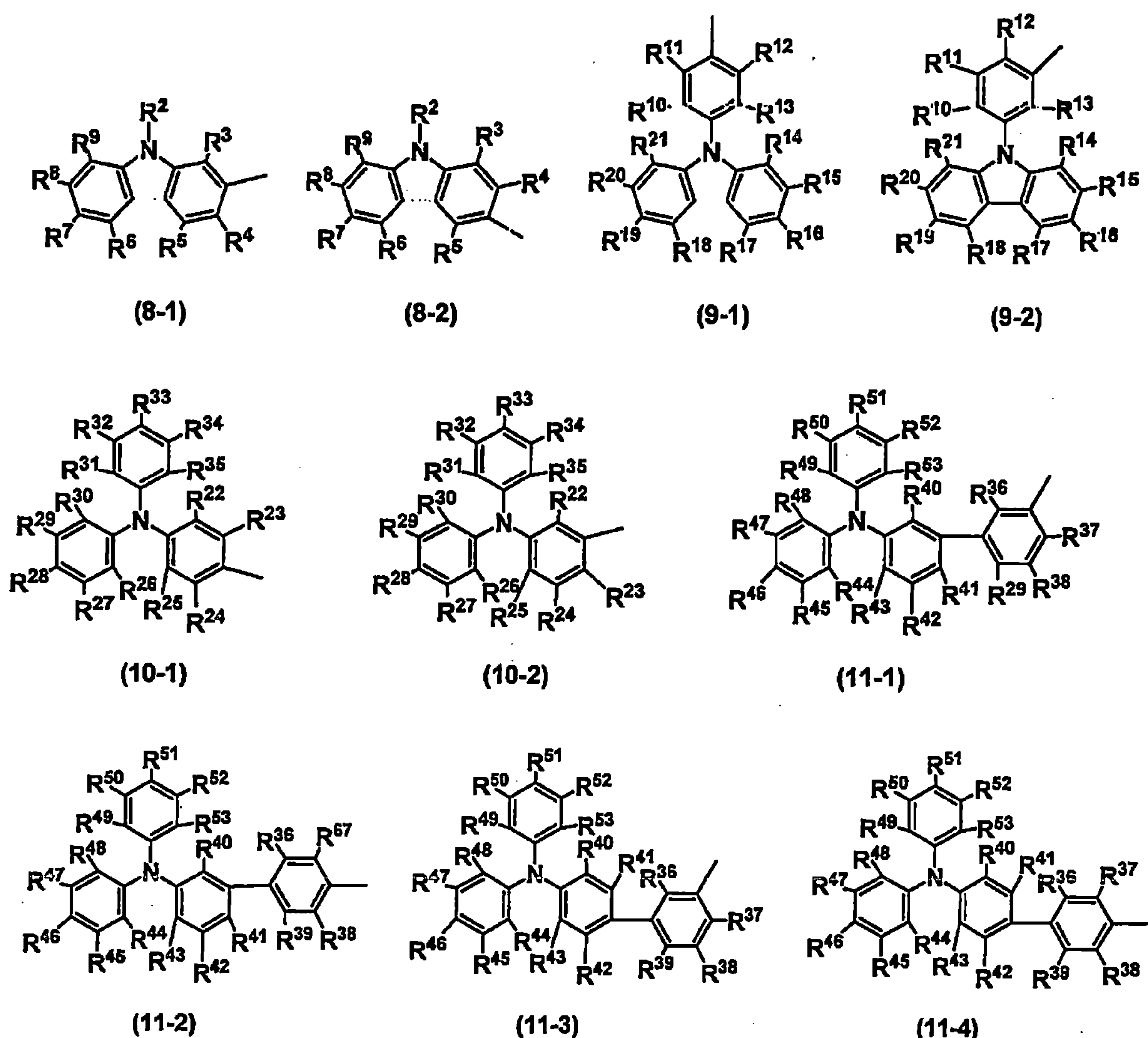
[0022] 此等之中， R^2 較佳為氫原子、苯基、1-萘基、2-萘基、1-蒽基、2-蒽基、9-蒽基、1-菲基、2-菲基、3-菲基、4-菲基、9-菲基、式(12-1)表示之基、式(13-1)表示之基等；更佳為式(12-1)表示之基、式(13-1)表示之基、苯基；又更佳為苯基。

[0023] 式(8)~(14)中， $R^3 \sim R^{77}$ 係分別獨立地表示氫原子、氰基、硝基、鹵素原子、碳數 1~20 之烷基或碳數 1~20 之鹵烷基。前述碳數 1~20 之烷基，可列舉與前述為相同者。前述鹵素原子，可列舉氟原子、氯原子、溴原子、碘原子等。前述鹵烷基，可列舉前述烷基之氫原子的一部分或全部被前述鹵素原子取代者。此等之中， $R^3 \sim R^{77}$ ，較佳為氫原子、氰基、硝基、鹵素原子、碳數 1~10 之烷基或碳數 1~10 之鹵烷基；更佳為氫原子、氰基、硝

基、鹵素原子、三氟甲基；；又更佳係全部為氫原子。

[0024] 式(8)~(11)表示之基，可列舉以下所示者，但不限定於此等。

【化12】



(式中， $R^2 \sim R^{53}$ 係與前述相同)。

[0025] 式(1)中， Ar^F 係分別獨立地表示可經氰基、氯原子、溴原子、碘原子、硝基、碳數 1~20 之烷基、碳數 1~20 之氟烷基或碳數 1~20 之氟烷氧基取代的碳數 6~20 之氟芳基；經碳數 1~20 之氟烷基、碳數 3~20 之氟環烷基、碳數 4~20 之氟雙環烷基、碳數 2~20 之氟烯

基或碳數 2~20 之氟炔基取代，而且可經氟基、鹵素原子或碳數 1~20 之氟烷氧基取代的碳數 6~20 之芳基。

[0026] 前述氟芳基，只要為碳原子上之至少 1 個氫原子被氟原子取代之芳基，則無特殊限定，可列舉例如 2-氟苯基、3-氟苯基、4-氟苯基、2,3-二氟苯基、2,4-二氟苯基、2,5-二氟苯基、2,6-二氟苯基、3,4-二氟苯基、3,5-二氟苯基、2,3,4-三氟苯基、2,3,5-三氟苯基、2,3,6-三氟苯基、2,4,5-三氟苯基、2,4,6-三氟苯基、3,4,5-三氟苯基、2,3,4,5-四氟苯基、2,3,4,6-四氟苯基、2,3,5,6-四氟苯基、五氟苯基、2-氟-1-萘基、3-氟-1-萘基、4-氟-1-萘基、6-氟-1-萘基、7-氟-1-萘基、8-氟-1-萘基、4,5-二氟-1-萘基、5,7-二氟-1-萘基、5,8-二氟-1-萘基、5,6,7,8-四氟-1-萘基、七氟-1-萘基、1-氟-2-萘基、5-氟-2-萘基、6-氟-2-萘基、7-氟-2-萘基、5,7-二氟-2-萘基、七氟-2-萘基、10-氟-9-蒽基、九氟-1-蒽基、九氟-2-蒽基、九氟-9-蒽基、9-氟-1-菲基、1-氟-9-菲基、2-氟-9-菲基、九氟-1-菲基、九氟-2-菲基、九氟-3-菲基、九氟-9-菲基等。

[0027] 作為前述氟芳基，當考慮到前述含有氟原子之化合物對有機溶劑之溶解性、前述含有氟原子之化合物之原料的獲得容易性等之平衡時，較佳為可經氟基、氯原子、溴原子、碘原子、硝基、碳數 1~20 之烷基、碳數 1~20 之氟烷基或碳數 1~20 之氟烷氧基取代的經 3 個以上之氟原子取代的苯基。

[0028] 前述經碳數 1~20 之氟烷基、碳數 3~20 之

氟環烷基、碳數 4~20 之氟雙環烷基、碳數 2~20 之氟烯基或碳數 2~20 之氟炔基取代，而且可經氟基、鹵素原子或碳數 1~20 之氟烷氧基取代的碳數 6~20 之芳基(以下，方便上亦稱為經取代之芳基)，只要為碳原子上之至少 1 個氫原子被碳數 1~20 之氟烷基、碳數 3~20 之氟環烷基、碳數 4~20 之氟雙環烷基、碳數 2~20 之氟烯基或碳數 2~20 之氟炔基取代的芳基，則無特殊限定，可列舉例如 2-(三氟甲基)苯基、3-(三氟甲基)苯基、4-(三氟甲基)苯基、4-乙氧基-3-(三氟甲基)苯基、3-氟-4-三氟甲基苯基、4-氟-3-三氟甲基苯基、4-氟-2-三氟甲基苯基、2-氟-5-(三氟甲基)苯基、3-氟-5-(三氟甲基)苯基、3,5-二(三氟甲基)苯基、2,4,6-三(三氟甲基)苯基、4-(五氟乙基)苯基、4-(3,3,3-三氟丙基)苯基、2,3,5,6-四氟-4-三氟甲基苯基、4-(全氟乙烯基)苯基、4-(全氟丙烯基)苯基、4-(全氟丁烯基)苯基等。

[0029] 作為前述經取代之芳基，當考慮到前述含有氟原子之化合物對有機溶劑之溶解性、前述含有氟原子之化合物之原料的獲得容易性等之平衡時，較佳為經碳數 3~20 之氟環烷基、碳數 4~20 之氟雙環烷基、碳數 2~20 之氟烯基或碳數 2~20 之氟炔基取代，而且可經氟基、鹵素原子或碳數 1~20 之氟烷氧基取代之苯基(以下，方便上，亦稱為經取代之苯基)；更佳為經 1~3 個三氟甲基取代之苯基；又更佳為 p-三氟甲基苯基。

[0030] 前述氟烷基，只要為碳原子上之至少 1 個氫

原子被氟原子取代的直鏈狀或分支狀之烷基，則無特殊限定，可列舉例如氟甲基、二氟甲基、三氟甲基、1-氟乙基、2-氟乙基、1,2-二氟乙基、1,1-二氟乙基、2,2-二氟乙基、1,1,2-三氟乙基、1,2,2-三氟乙基、2,2,2-三氟乙基、1,1,2,2-四氟乙基、1,2,2,2-四氟乙基、1,1,2,2,2-五氟乙基、1-氟丙基、2-氟丙基、3-氟丙基、1,1-二氟丙基、1,2-二氟丙基、1,3-二氟丙基、2,2-二氟丙基、2,3-二氟丙基、3,3-二氟丙基、1,1,2-三氟丙基、1,1,3-三氟丙基、1,2,3-三氟丙基、1,3,3-三氟丙基、2,2,3-三氟丙基、2,3,3-三氟丙基、3,3,3-三氟丙基、1,1,2,2-四氟丙基、1,1,2,3-四氟丙基、1,2,2,3-四氟丙基、1,3,3,3-四氟丙基、2,2,3,3-四氟丙基、2,3,3,3-四氟丙基、1,1,2,2,3-五氟丙基、1,2,2,3,3-五氟丙基、1,1,3,3,3-五氟丙基、1,2,3,3,3-五氟丙基、2,2,3,3,3-五氟丙基、七氟丙基等。

[0031] 作為前述氟烷氧基，只要為碳原子上之至少 1 個氫原子被氟原子取代的烷氧基，則無特殊限定，可列舉例如氟甲氧基、二氟甲氧基、三氟甲氧基、1-氟乙氧基、2-氟乙氧基、1,2-二氟乙氧基、1,1-二氟乙氧基、2,2-二氟乙氧基、1,1,2-三氟乙氧基、1,2,2-三氟乙氧基、2,2,2-三氟乙氧基、1,1,2,2-四氟乙氧基、1,2,2,2-四氟乙氧基、1,1,2,2,2-五氟乙氧基、1-氟丙氧基、2-氟丙氧基、3-氟丙氧基、1,1-二氟丙氧基、1,2-二氟丙氧基、1,3-二氟丙氧基、2,2-二氟丙氧基、2,3-二氟丙氧基、3,3-二氟丙氧基、1,1,2-三氟丙氧基、1,1,3-三氟丙氧基、1,2,3-三氟丙氧

基、1,3,3-三氟丙氧基、2,2,3-三氟丙氧基、2,3,3-三氟丙氧基、3,3,3-三氟丙氧基、1,1,2,2-四氟丙氧基、1,1,2,3-四氟丙氧基、1,2,2,3-四氟丙氧基、1,3,3,3-四氟丙氧基、2,2,3,3-四氟丙氧基、2,3,3,3-四氟丙氧基、1,1,2,2,3-五氟丙氧基、1,2,2,3,3-五氟丙氧基、1,1,3,3,3-五氟丙氧基、1,2,3,3,3-五氟丙氧基、2,2,3,3,3-五氟丙氧基、七氟丙氧基等。

[0032] 前述氟環烷基，只要為碳原子上之至少 1 個氫原子被氟原子取代的環烷基，則無特殊限定，可列舉例如 1-氟環丙基、2-氟環丙基、2,2-二氟環丙基、2,2,3,3-四氟環丙基、五氟環丙基、2,2-二氟環丁基、2,2,3,3-四氟環丁基、2,2,3,3,4,4-六氟環丁基、七氟環丁基、1-氟環戊基、3-氟環戊基、3,3-二氟環戊基、3,3,4,4-四氟環戊基、九氟環戊基、1-氟環己基、2-氟環己基、4-氟環己基、4,4-二氟環己基、2,2,3,3-四氟環己基、2,3,4,5,6-五氟環己基、十一氟環己基等。

[0033] 前述氟雙環烷基，只要為碳原子上之至少 1 個氫原子被氟原子取代的雙環烷基，則無特殊限定，可列舉例如 3-氟雙環[1.1.0]丁烷-1-基、2,2,4,4-四氟雙環[1.1.0]丁烷-1-基、五氟雙環[1.1.0]丁烷-1-基、3-氟雙環[1.1.1]戊烷-1-基、2,2,4,4,5-五氟雙環[1.1.1]戊烷-1-基、2,2,4,4,5,5-六氟雙環[1.1.1]戊烷-1-基、5-氟雙環[3.1.0]己烷-6-基、6-氟雙環[3.1.0]己烷-6-基、6,6-二氟雙環[3.1.0]己烷-2-基、2,2,3,3,5,5,6,6-八氟雙環[2.2.0]己烷-1-基、1-

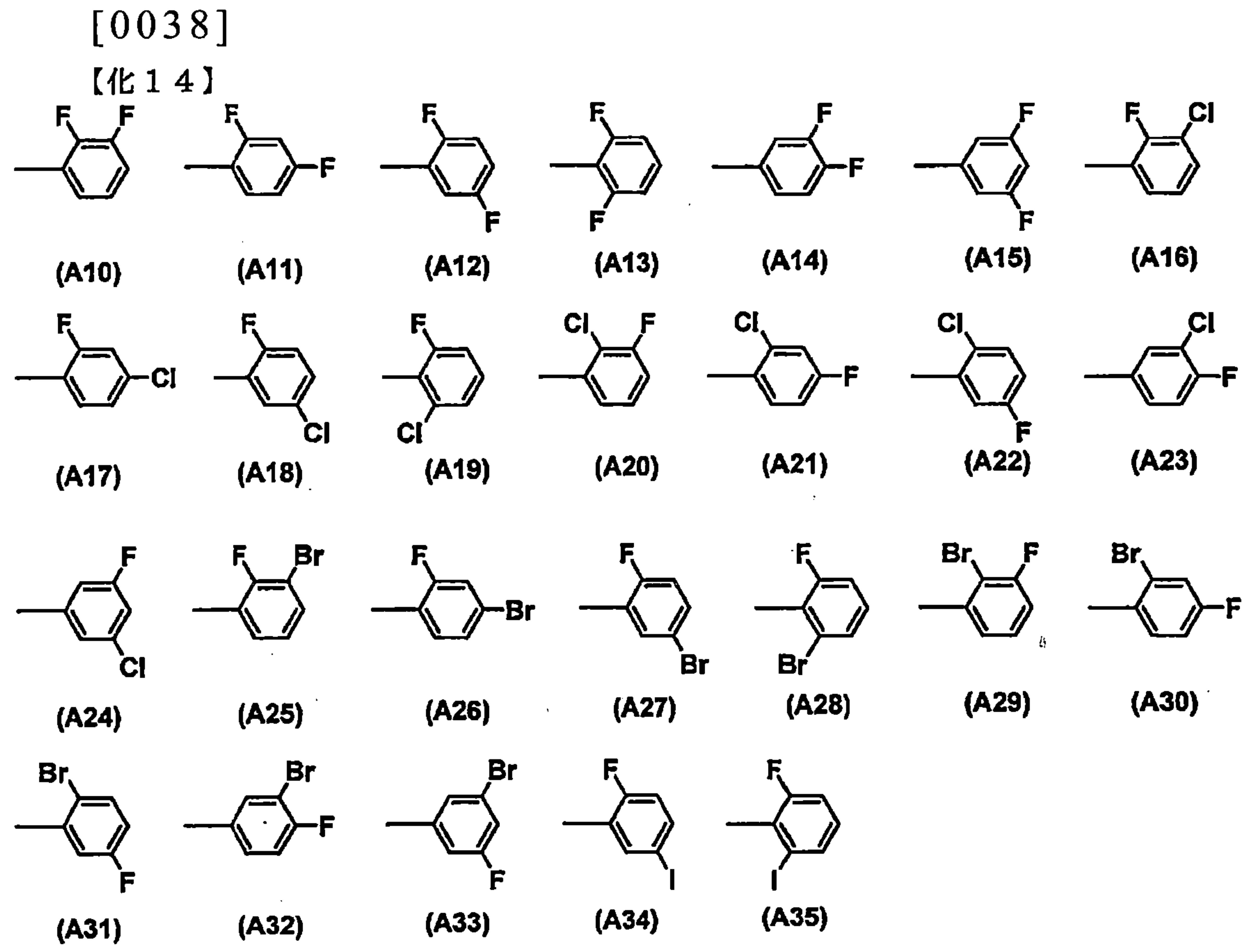
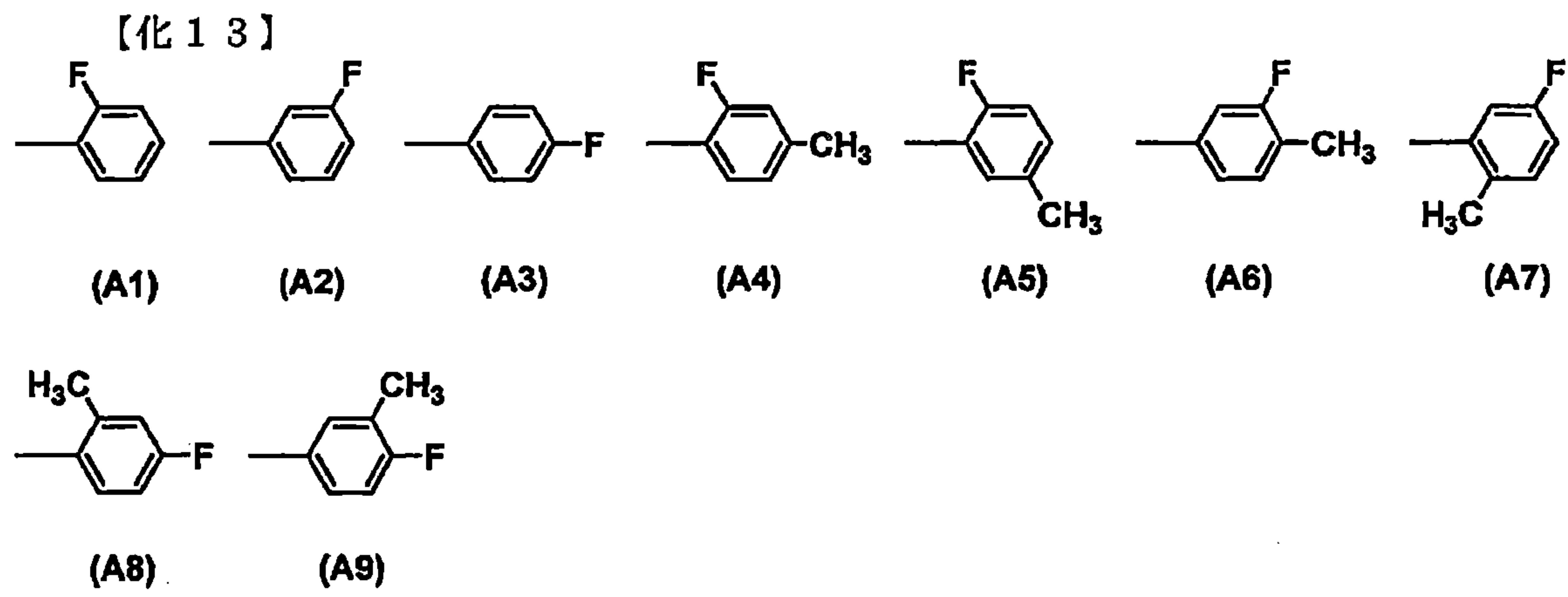
氟雙環[2.2.1]庚烷-2-基、3-氟雙環[2.2.1]庚烷-2-基、4-氟雙環[2.2.1]庚烷-1-基、5-氟雙環[3.1.1]庚烷-1-基、1,3,3,4,5,5,6,6,7,7-十氟雙環[2.2.1]庚烷-2-基、十一氟雙環[2.2.1]庚烷-2-基、3-氟雙環[2.2.2]辛烷-1-基、4-氟雙環[2.2.2]辛烷-1-基等。

[0034] 前述氟烯基，只要為碳原子上之至少 1 個氫原子被氟原子取代的烯基，則無特殊限定，可列舉例如 1-氟乙烯基、2-氟乙烯基、1,2-二氟乙烯基、1,2,2-三氟乙烯基、2,3,3-三氟-1-丙烯基、3,3,3-三氟-1-丙烯基、2,3,3,3-四氟-1-丙烯基、五氟-1-丙烯基、1-氟-2-丙烯基、1,1-二氟-2-丙烯基、2,3-二氟-2-丙烯基、3,3-二氟-2-丙烯基、2,3,3-三氟-2-丙烯基、1,2,3,3-四氟-2-丙烯基、五氟-2-丙烯基等。

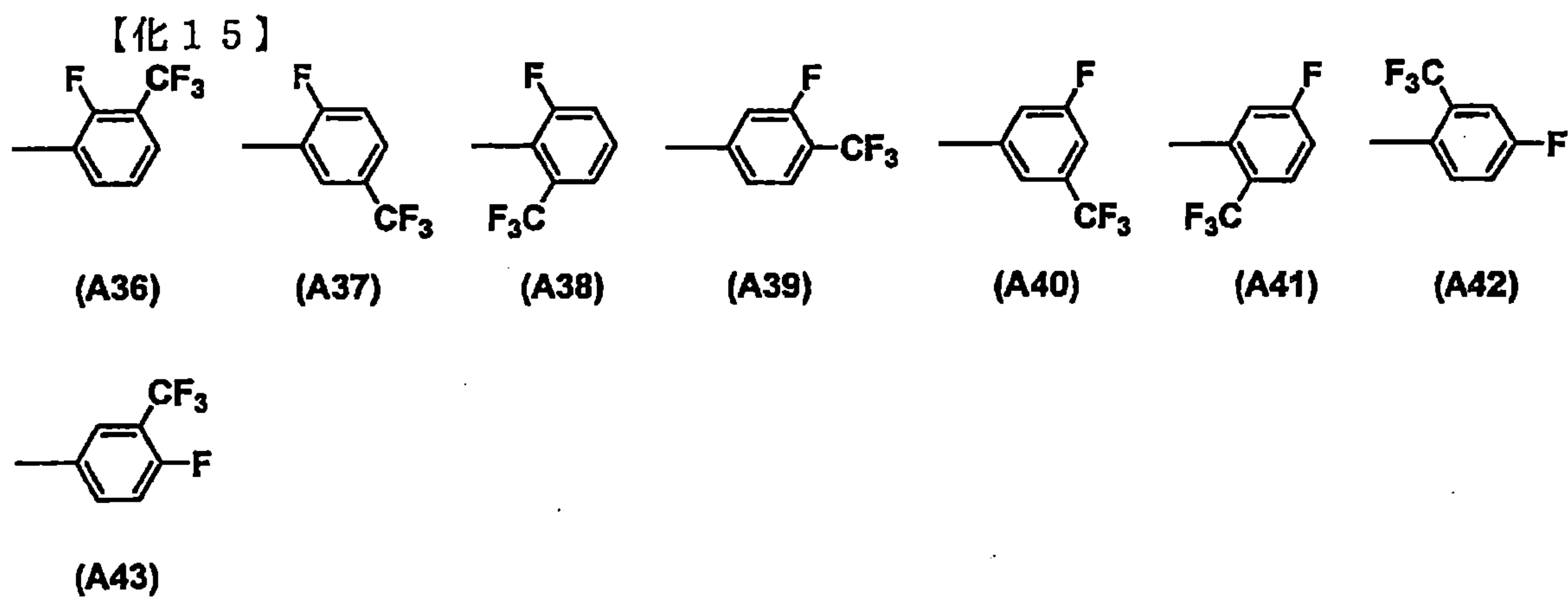
[0035] 前述氟炔基，只要為碳原子上之至少 1 個氫原子被氟原子取代的炔基，則無特殊限定，可列舉例如氟乙炔基、3-氟-1-丙炔基、3,3-二氟-1-丙炔基、3,3,3-三氟-1-丙炔基、1-氟-2-丙炔基、1,1-二氟-2-丙炔基等。

[0036] 此等之中， Ar^{F} 尤以前述可經取代之碳數 6～20 之氟芳基或前述經取代之芳基為佳；更佳為前述可經取代之氟苯基或前述經取代之苯基；又更佳為前述可經取代之三氟苯基、前述可經取代之四氟苯基、前述可經取代之五氟苯基或經 1～3 個三氟甲基取代之苯基。又，由該含有氟原子之化合物的合成容易性之觀點而言， Ar^{F} ，較佳為相同之基。

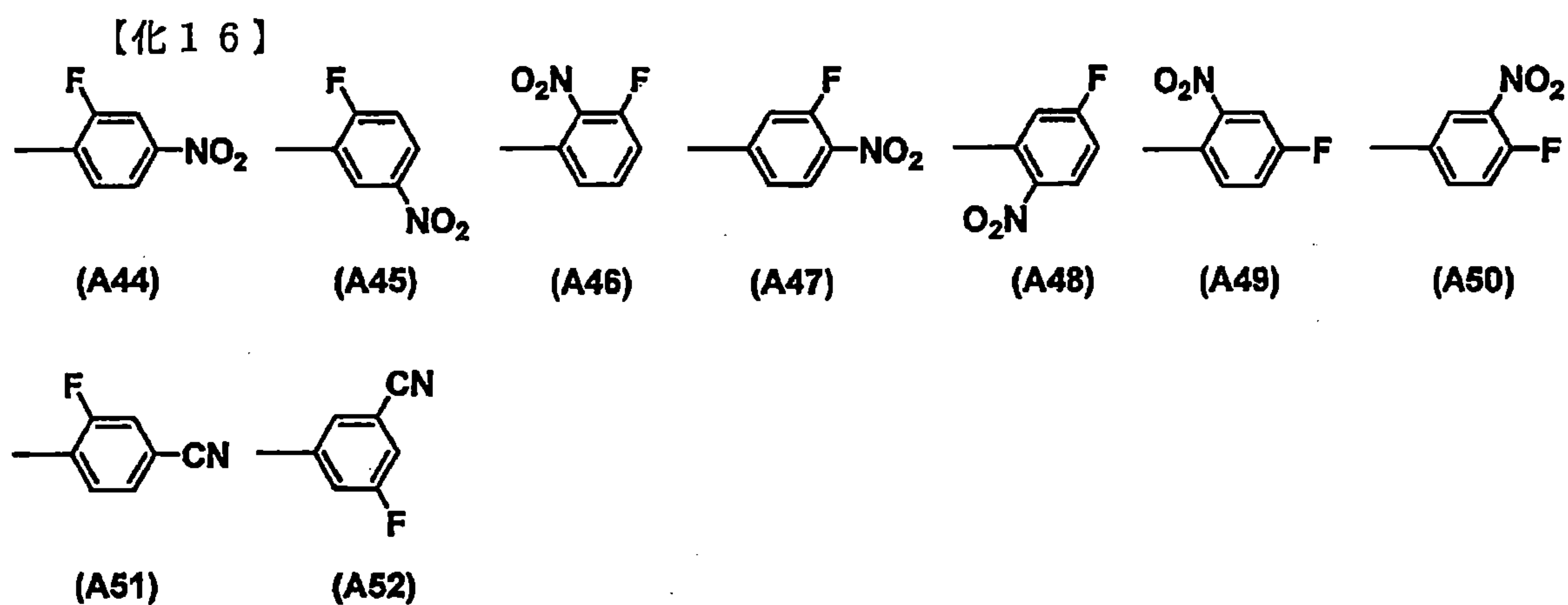
[0037] 以下，列舉適合作為 Ar^{F} 之基的具體例子，
但不限定於此等。



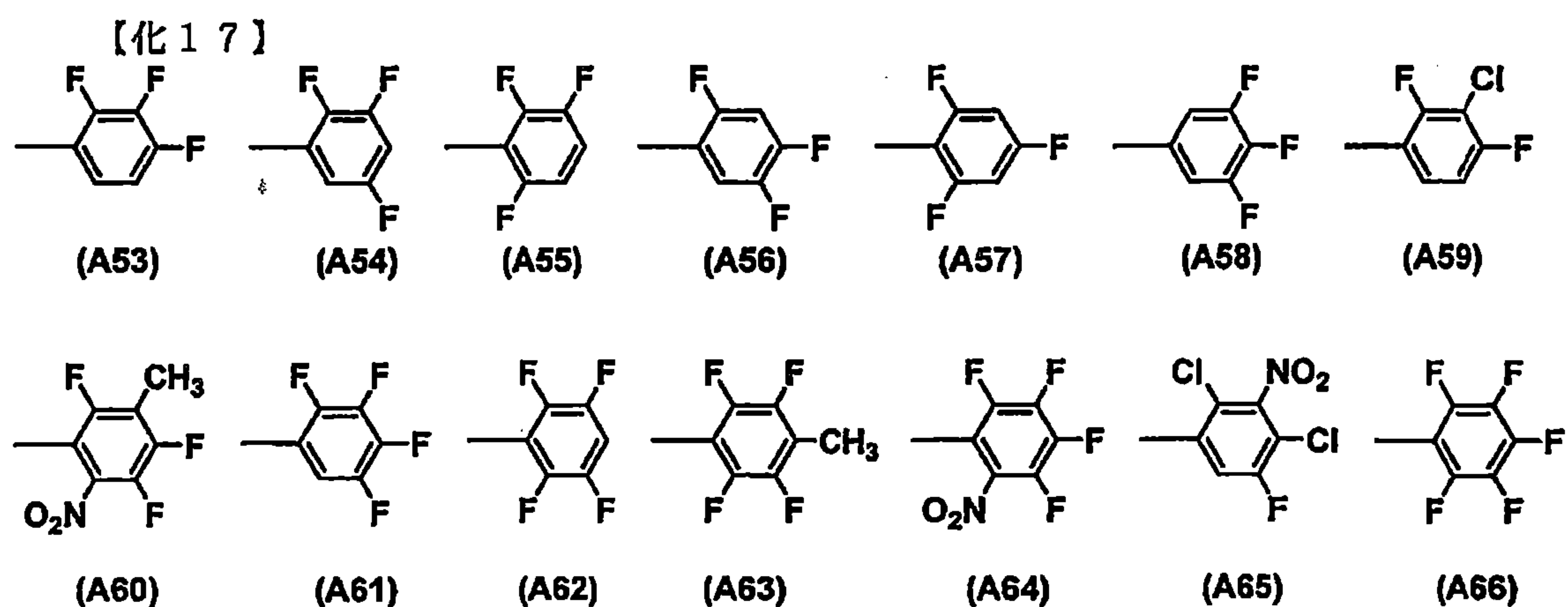
[0039]



[0040]

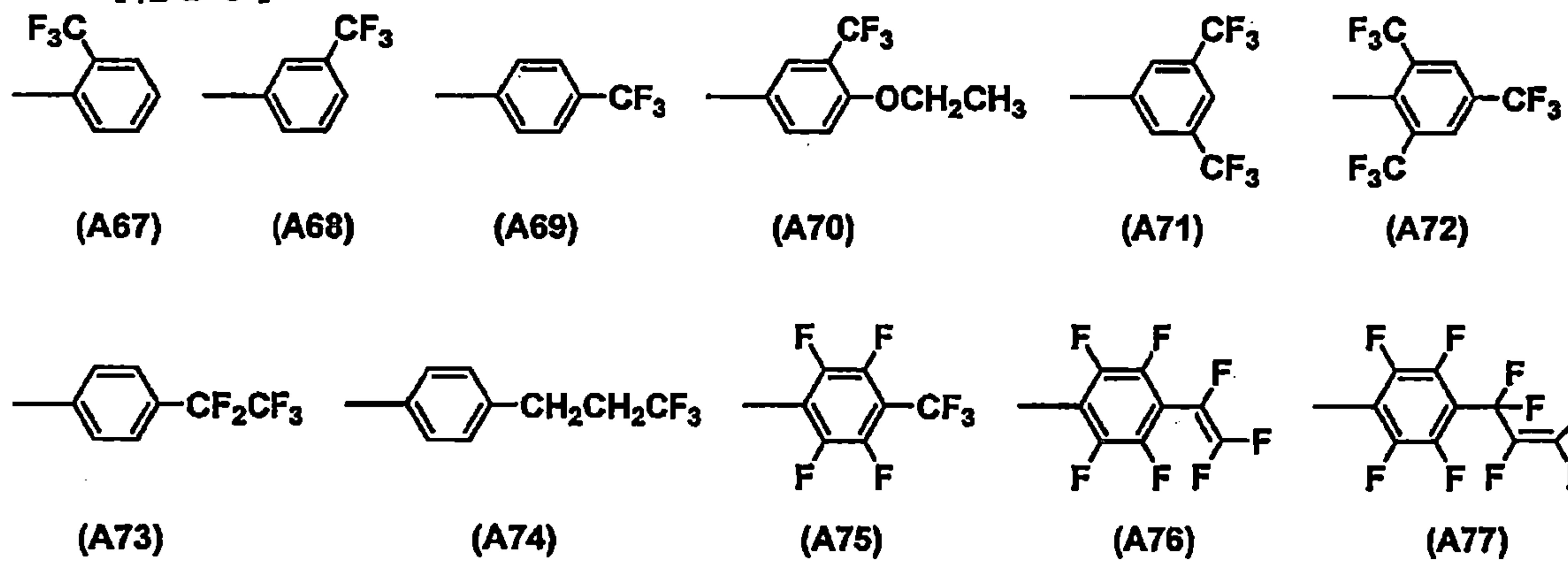


[0041]



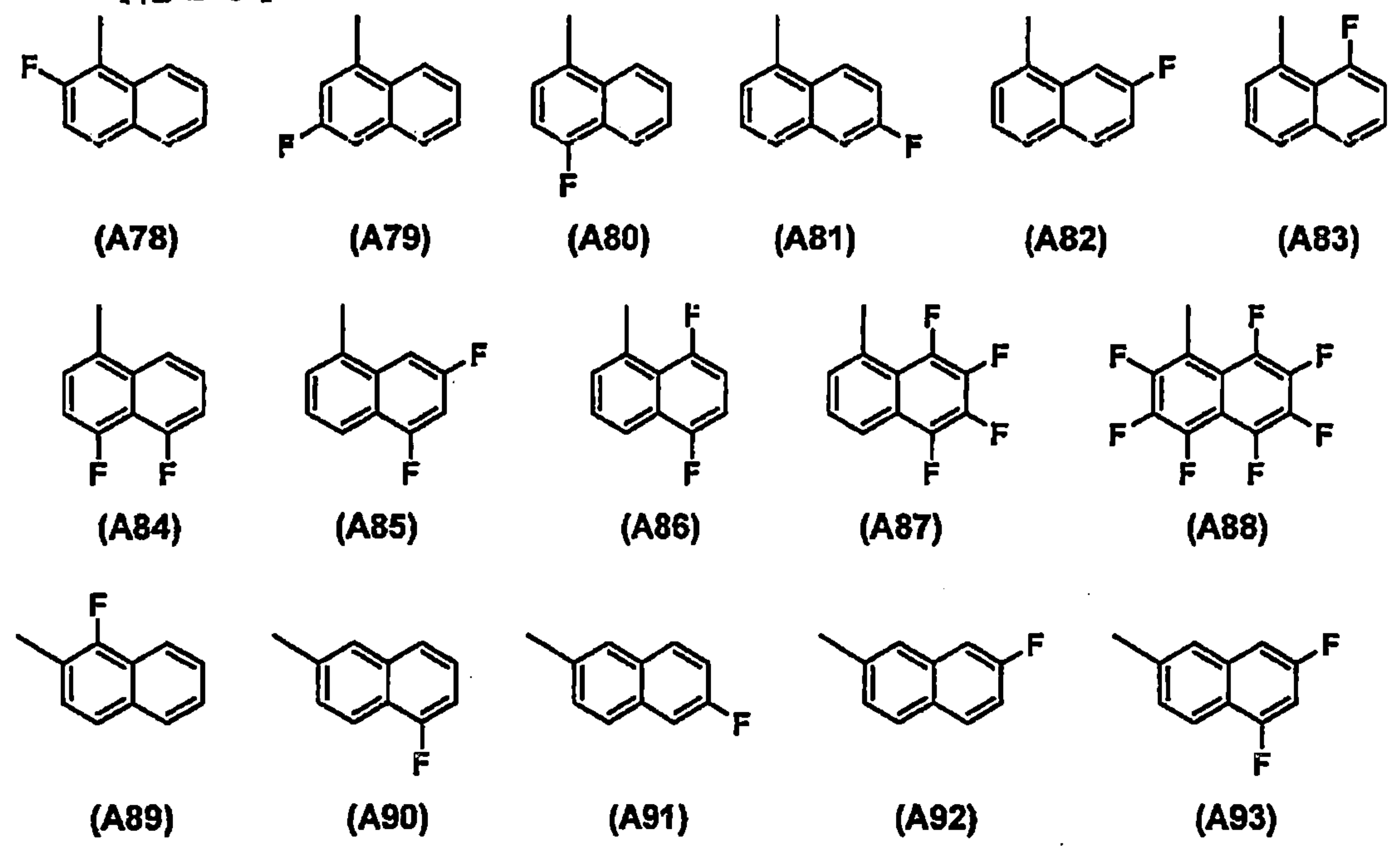
[0042]

【化 1 8】

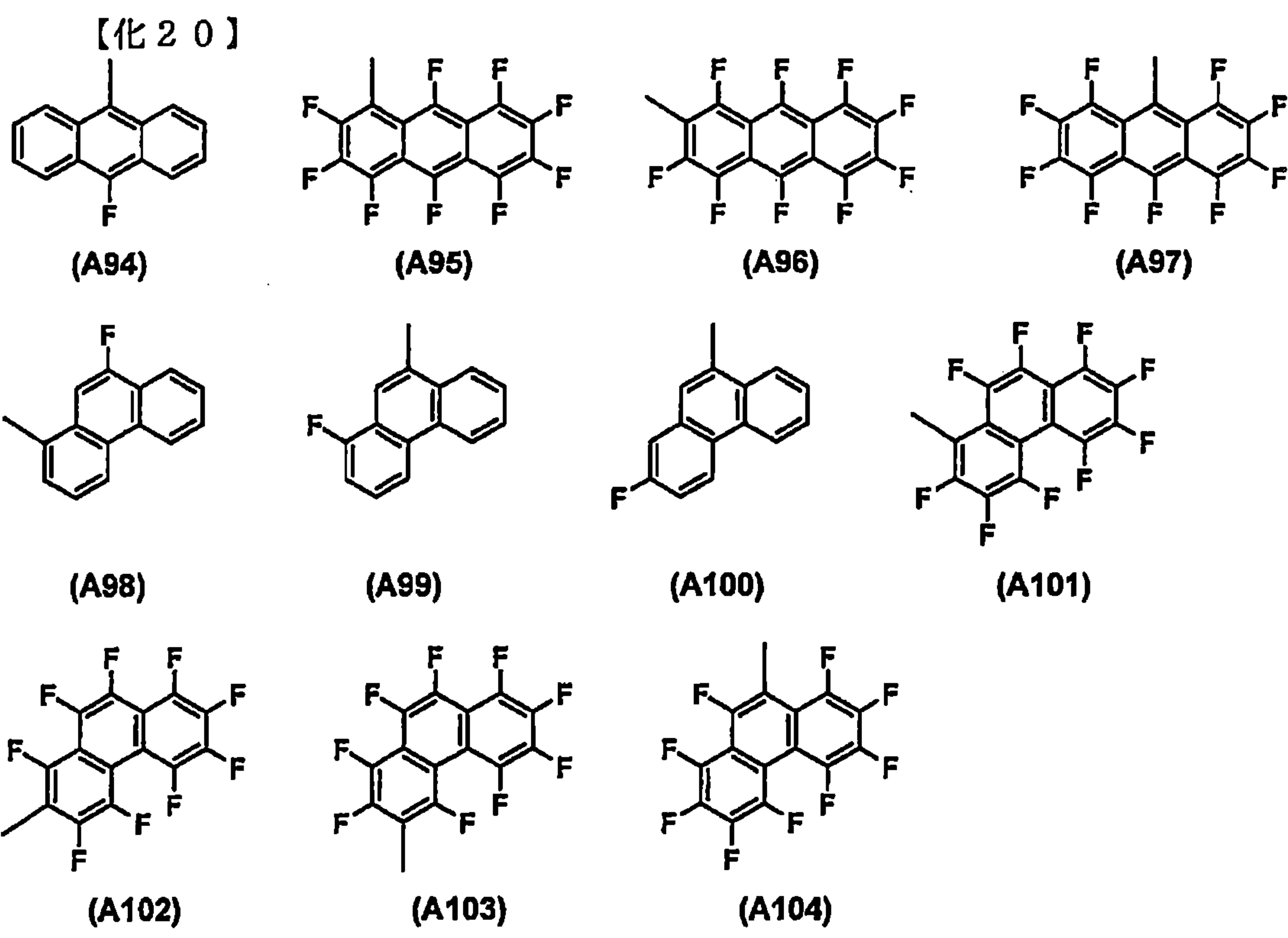


[0043]

【化 1 9】



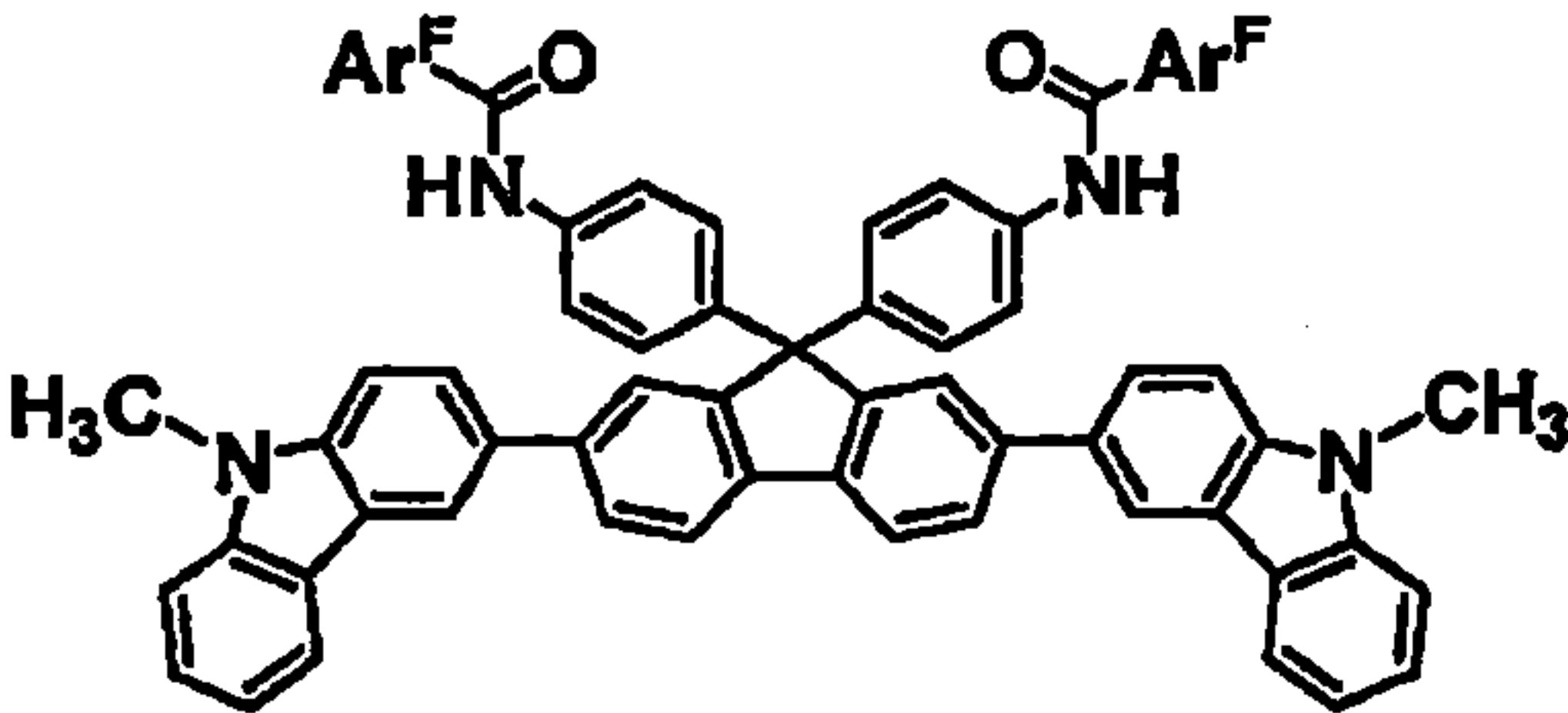
[0044]



[0045] 以下，列舉式(1)表示之含有氟原子之化合物的具體例子，但不限定於此等。

[0046]

【表 1】



(B1)

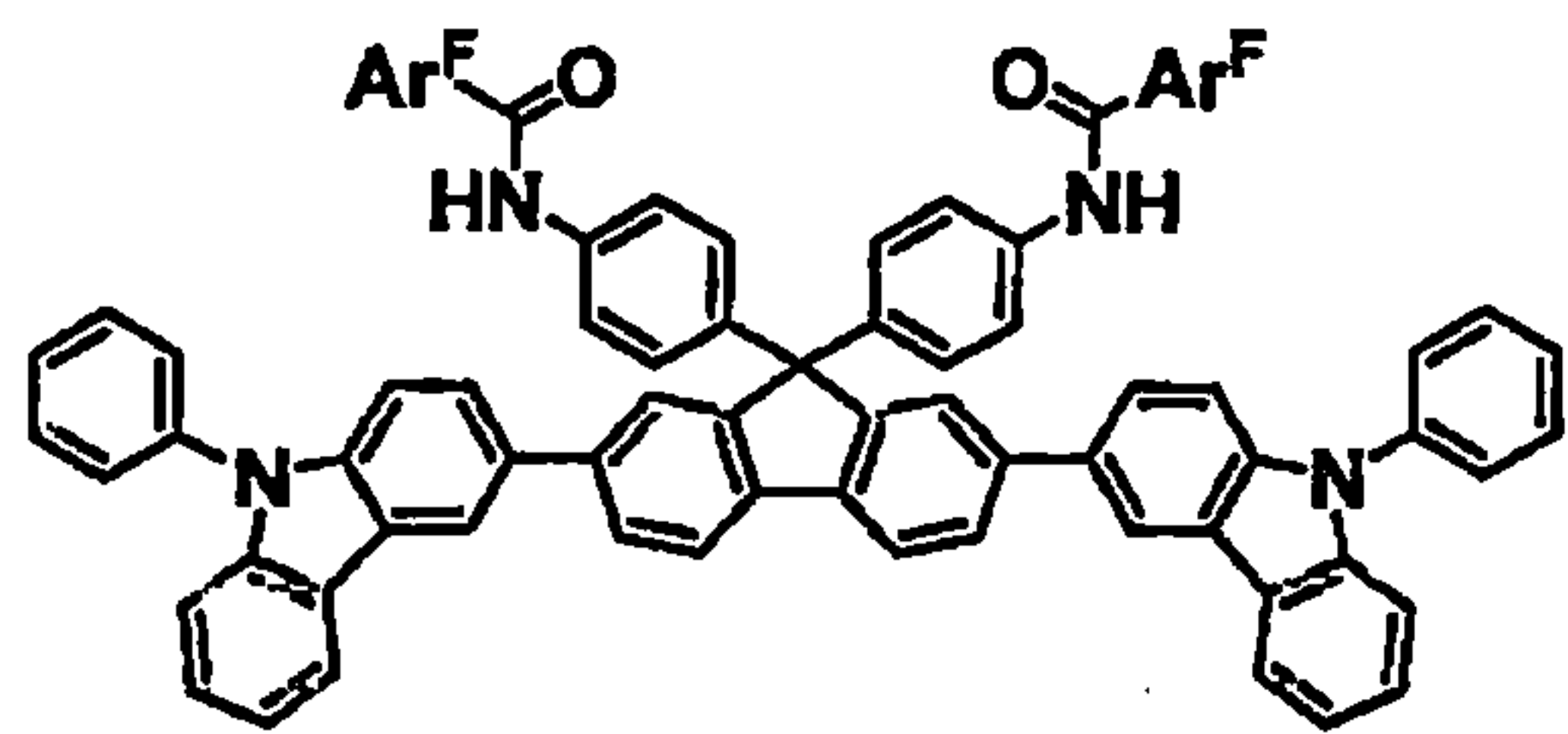
化合物	Ar ^F
(B1-1)	(A1)
(B1-2)	(A2)
(B1-3)	(A3)
(B1-4)	(A4)
(B1-5)	(A5)
(B1-6)	(A6)
(B1-7)	(A7)
(B1-8)	(A8)
(B1-9)	(A9)
(B1-10)	(A10)
(B1-11)	(A11)
(B1-12)	(A12)
(B1-13)	(A13)
(B1-14)	(A14)
(B1-15)	(A15)
(B1-16)	(A16)
(B1-17)	(A17)
(B1-18)	(A18)
(B1-19)	(A19)
(B1-20)	(A20)
(B1-21)	(A21)
(B1-22)	(A22)
(B1-23)	(A23)
(B1-24)	(A24)
(B1-25)	(A25)
(B1-26)	(A26)
(B1-27)	(A27)
(B1-28)	(A28)
(B1-29)	(A29)
(B1-30)	(A30)
(B1-31)	(A31)
(B1-32)	(A32)
(B1-33)	(A33)
(B1-34)	(A34)
(B1-35)	(A35)

化合物	Ar ^F
(B1-36)	(A36)
(B1-37)	(A37)
(B1-38)	(A38)
(B1-39)	(A39)
(B1-40)	(A40)
(B1-41)	(A41)
(B1-42)	(A42)
(B1-43)	(A43)
(B1-44)	(A44)
(B1-45)	(A45)
(B1-46)	(A46)
(B1-47)	(A47)
(B1-48)	(A48)
(B1-49)	(A49)
(B1-50)	(A50)
(B1-51)	(A51)
(B1-52)	(A52)
(B1-53)	(A53)
(B1-54)	(A54)
(B1-55)	(A55)
(B1-56)	(A56)
(B1-57)	(A57)
(B1-58)	(A58)
(B1-59)	(A59)
(B1-60)	(A60)
(B1-61)	(A61)
(B1-62)	(A62)
(B1-63)	(A63)
(B1-64)	(A64)
(B1-65)	(A65)
(B1-66)	(A66)
(B1-67)	(A67)
(B1-68)	(A68)
(B1-69)	(A69)
(B1-70)	(A70)

化合物	Ar ^F
(B1-71)	(A71)
(B1-72)	(A72)
(B1-73)	(A73)
(B1-74)	(A74)
(B1-75)	(A75)
(B1-76)	(A76)
(B1-77)	(A77)
(B1-78)	(A78)
(B1-79)	(A79)
(B1-80)	(A80)
(B1-81)	(A81)
(B1-82)	(A82)
(B1-83)	(A83)
(B1-84)	(A84)
(B1-85)	(A85)
(B1-86)	(A86)
(B1-87)	(A87)
(B1-88)	(A88)
(B1-89)	(A89)
(B1-90)	(A90)
(B1-91)	(A91)
(B1-92)	(A92)
(B1-93)	(A93)
(B1-94)	(A94)
(B1-95)	(A95)
(B1-96)	(A96)
(B1-97)	(A97)
(B1-98)	(A98)
(B1-99)	(A99)
(B1-100)	(A100)
(B1-101)	(A101)
(B1-102)	(A102)
(B1-103)	(A103)
(B1-104)	(A104)

[0047]

【表 2】



(B2)

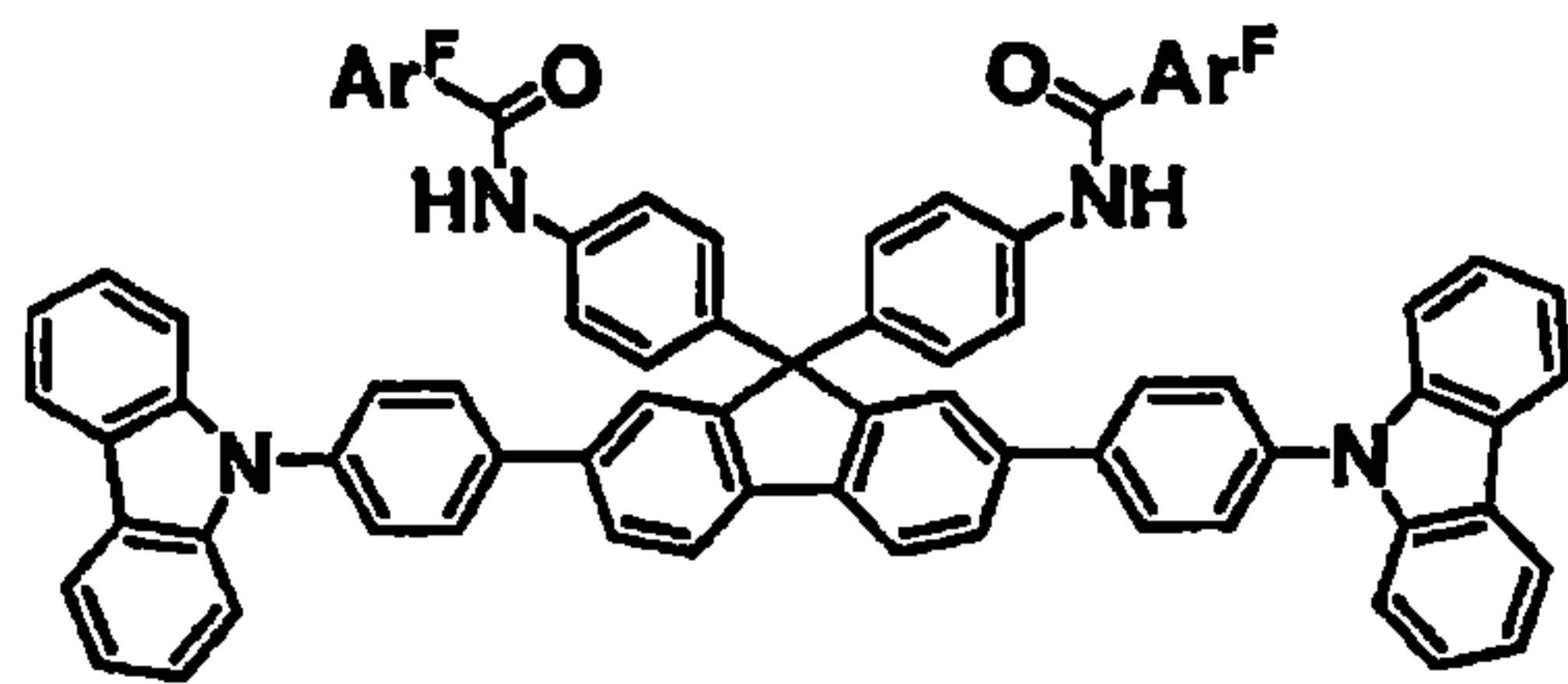
化合物	Ar ^F
(B2-1)	(A1)
(B2-2)	(A2)
(B2-3)	(A3)
(B2-4)	(A4)
(B2-5)	(A5)
(B2-6)	(A6)
(B2-7)	(A7)
(B2-8)	(A8)
(B2-9)	(A9)
(B2-10)	(A10)
(B2-11)	(A11)
(B2-12)	(A12)
(B2-13)	(A13)
(B2-14)	(A14)
(B2-15)	(A15)
(B2-16)	(A16)
(B2-17)	(A17)
(B2-18)	(A18)
(B2-19)	(A19)
(B2-20)	(A20)
(B2-21)	(A21)
(B2-22)	(A22)
(B2-23)	(A23)
(B2-24)	(A24)
(B2-25)	(A25)
(B2-26)	(A26)
(B2-27)	(A27)
(B2-28)	(A28)
(B2-29)	(A29)
(B2-30)	(A30)
(B2-31)	(A31)
(B2-32)	(A32)
(B2-33)	(A33)
(B2-34)	(A34)
(B2-35)	(A35)

化合物	Ar ^F
(B2-36)	(A36)
(B2-37)	(A37)
(B2-38)	(A38)
(B2-39)	(A39)
(B2-40)	(A40)
(B2-41)	(A41)
(B2-42)	(A42)
(B2-43)	(A43)
(B2-44)	(A44)
(B2-45)	(A45)
(B2-46)	(A46)
(B2-47)	(A47)
(B2-48)	(A48)
(B2-49)	(A49)
(B2-50)	(A50)
(B2-51)	(A51)
(B2-52)	(A52)
(B2-53)	(A53)
(B2-54)	(A54)
(B2-55)	(A55)
(B2-56)	(A56)
(B2-57)	(A57)
(B2-58)	(A58)
(B2-59)	(A59)
(B2-60)	(A60)
(B2-61)	(A61)
(B2-62)	(A62)
(B2-63)	(A63)
(B2-64)	(A64)
(B2-65)	(A65)
(B2-66)	(A66)
(B2-67)	(A67)
(B2-68)	(A68)
(B2-69)	(A69)
(B2-70)	(A70)

化合物	Ar ^F
(B2-71)	(A71)
(B2-72)	(A72)
(B2-73)	(A73)
(B2-74)	(A74)
(B2-75)	(A75)
(B2-76)	(A76)
(B2-77)	(A77)
(B2-78)	(A78)
(B2-79)	(A79)
(B2-80)	(A80)
(B2-81)	(A81)
(B2-82)	(A82)
(B2-83)	(A83)
(B2-84)	(A84)
(B2-85)	(A85)
(B2-86)	(A86)
(B2-87)	(A87)
(B2-88)	(A88)
(B2-89)	(A89)
(B2-90)	(A90)
(B2-91)	(A91)
(B2-92)	(A92)
(B2-93)	(A93)
(B2-94)	(A94)
(B2-95)	(A95)
(B2-96)	(A96)
(B2-97)	(A97)
(B2-98)	(A98)
(B2-99)	(A99)
(B2-100)	(A100)
(B2-101)	(A101)
(B2-102)	(A102)
(B2-103)	(A103)
(B2-104)	(A104)

[0048]

【表 3】



(B3)

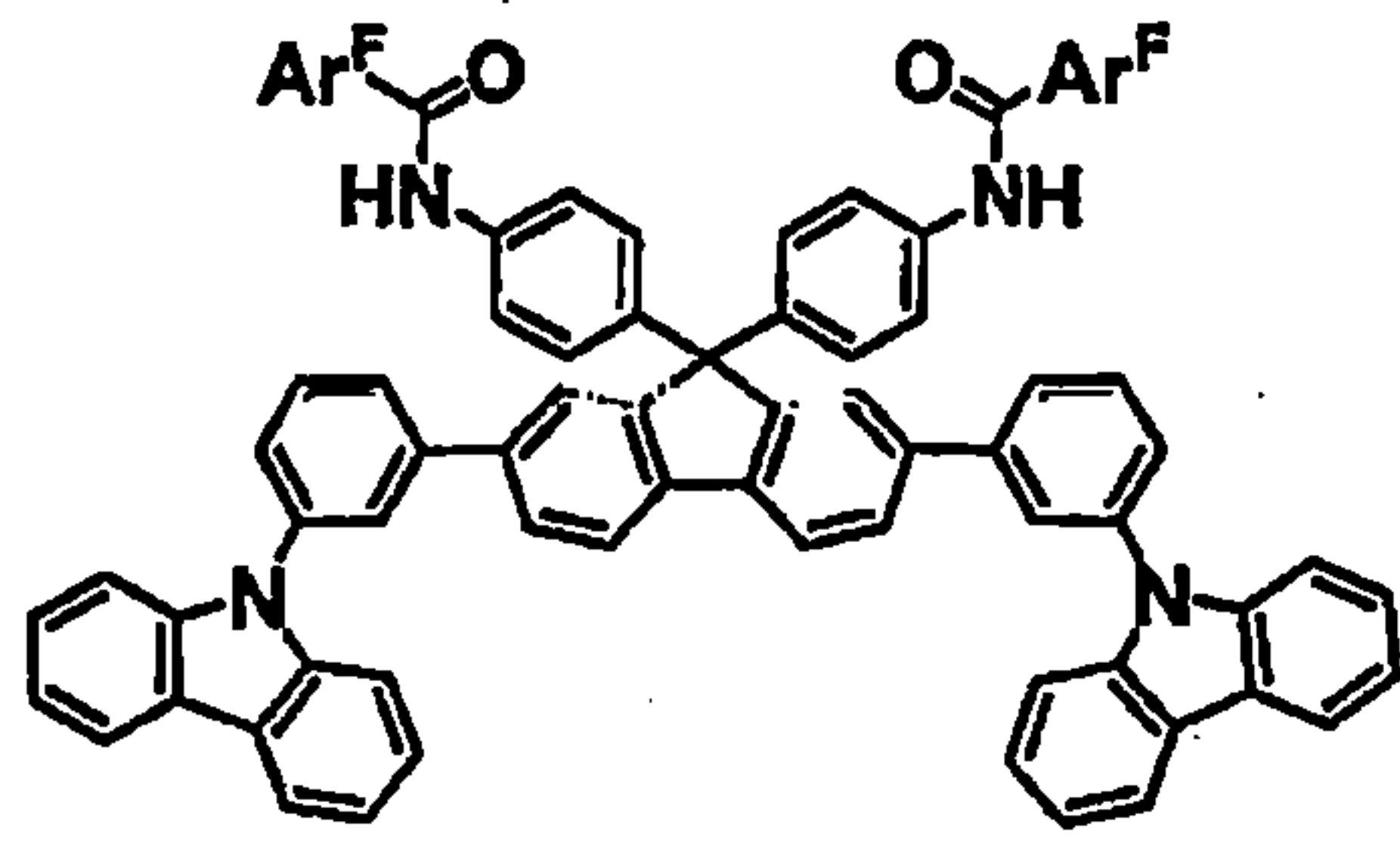
化合物	Ar ^F
(B3-1)	(A1)
(B3-2)	(A2)
(B3-3)	(A3)
(B3-4)	(A4)
(B3-5)	(A5)
(B3-6)	(A6)
(B3-7)	(A7)
(B3-8)	(A8)
(B3-9)	(A9)
(B3-10)	(A10)
(B3-11)	(A11)
(B3-12)	(A12)
(B3-13)	(A13)
(B3-14)	(A14)
(B3-15)	(A15)
(B3-16)	(A16)
(B3-17)	(A17)
(B3-18)	(A18)
(B3-19)	(A19)
(B3-20)	(A20)
(B3-21)	(A21)
(B3-22)	(A22)
(B3-23)	(A23)
(B3-24)	(A24)
(B3-25)	(A25)
(B3-26)	(A26)
(B3-27)	(A27)
(B3-28)	(A28)
(B3-29)	(A29)
(B3-30)	(A30)
(B3-31)	(A31)
(B3-32)	(A32)
(B3-33)	(A33)
(B3-34)	(A34)
(B3-35)	(A35)

化合物	Ar ^F
(B3-36)	(A36)
(B3-37)	(A37)
(B3-38)	(A38)
(B3-39)	(A39)
(B3-40)	(A40)
(B3-41)	(A41)
(B3-42)	(A42)
(B3-43)	(A43)
(B3-44)	(A44)
(B3-45)	(A45)
(B3-46)	(A46)
(B3-47)	(A47)
(B3-48)	(A48)
(B3-49)	(A49)
(B3-50)	(A50)
(B3-51)	(A51)
(B3-52)	(A52)
(B3-53)	(A53)
(B3-54)	(A54)
(B3-55)	(A55)
(B3-56)	(A56)
(B3-57)	(A57)
(B3-58)	(A58)
(B3-59)	(A59)
(B3-60)	(A60)
(B3-61)	(A61)
(B3-62)	(A62)
(B3-63)	(A63)
(B3-64)	(A64)
(B3-65)	(A65)
(B3-66)	(A66)
(B3-67)	(A67)
(B3-68)	(A68)
(B3-69)	(A69)
(B3-70)	(A70)

化合物	Ar ^F
(B3-71)	(A71)
(B3-72)	(A72)
(B3-73)	(A73)
(B3-74)	(A74)
(B3-75)	(A75)
(B3-76)	(A76)
(B3-77)	(A77)
(B3-78)	(A78)
(B3-79)	(A79)
(B3-80)	(A80)
(B3-81)	(A81)
(B3-82)	(A82)
(B3-83)	(A83)
(B3-84)	(A84)
(B3-85)	(A85)
(B3-86)	(A86)
(B3-87)	(A87)
(B3-88)	(A88)
(B3-89)	(A89)
(B3-90)	(A90)
(B3-91)	(A91)
(B3-92)	(A92)
(B3-93)	(A93)
(B3-94)	(A94)
(B3-95)	(A95)
(B3-96)	(A96)
(B3-97)	(A97)
(B3-98)	(A98)
(B3-99)	(A99)
(B3-100)	(A100)
(B3-101)	(A101)
(B3-102)	(A102)
(B3-103)	(A103)
(B3-104)	(A104)

[0049]

【表 4】



(B4)

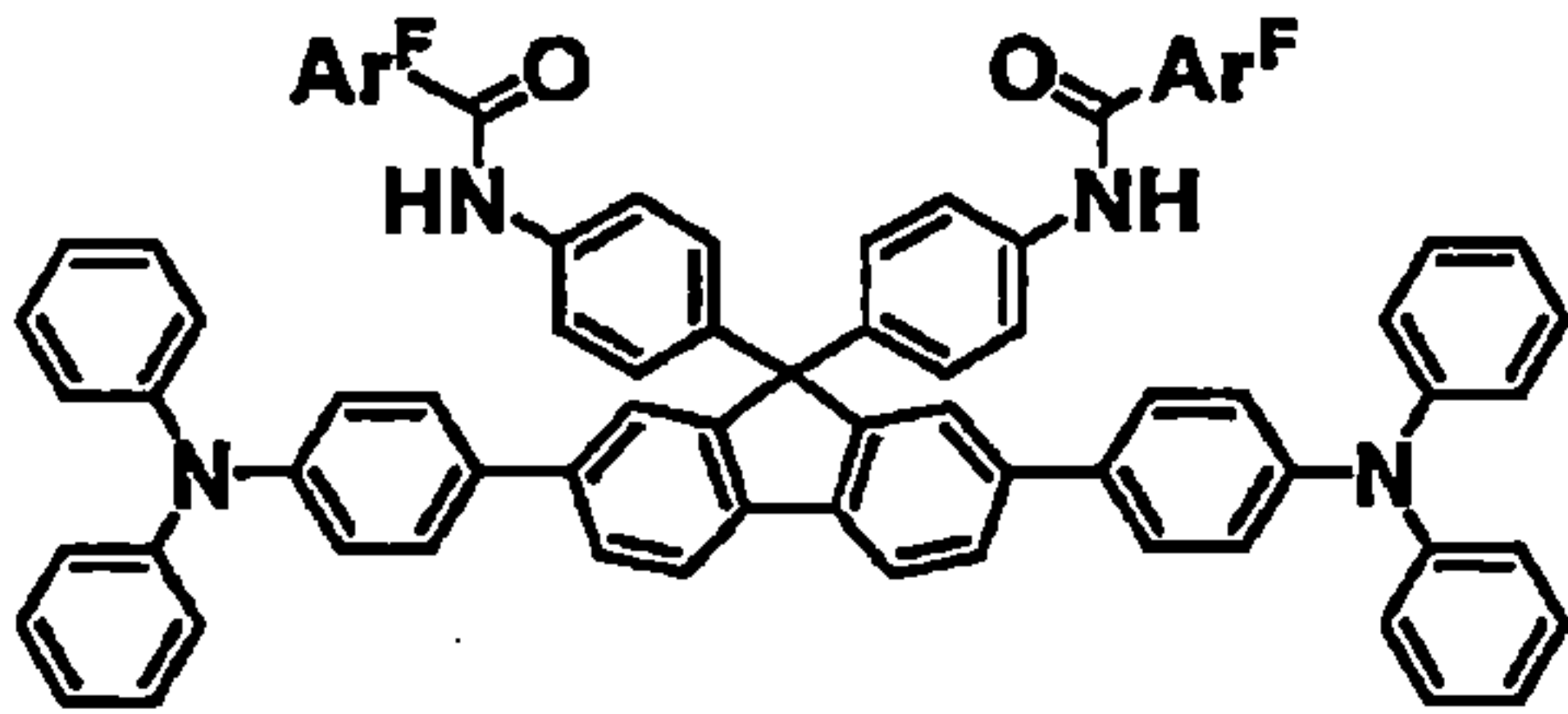
化合物	Ar ^F
(B4-1)	(A1)
(B4-2)	(A2)
(B4-3)	(A3)
(B4-4)	(A4)
(B4-5)	(A5)
(B4-6)	(A6)
(B4-7)	(A7)
(B4-8)	(A8)
(B4-9)	(A9)
(B4-10)	(A10)
(B4-11)	(A11)
(B4-12)	(A12)
(B4-13)	(A13)
(B4-14)	(A14)
(B4-15)	(A15)
(B4-16)	(A16)
(B4-17)	(A17)
(B4-18)	(A18)
(B4-19)	(A19)
(B4-20)	(A20)
(B4-21)	(A21)
(B4-22)	(A22)
(B4-23)	(A23)
(B4-24)	(A24)
(B4-25)	(A25)
(B4-26)	(A26)
(B4-27)	(A27)
(B4-28)	(A28)
(B4-29)	(A29)
(B4-30)	(A30)
(B4-31)	(A31)
(B4-32)	(A32)
(B4-33)	(A33)
(B4-34)	(A34)
(B4-35)	(A35)

化合物	Ar ^F
(B4-36)	(A36)
(B4-37)	(A37)
(B4-38)	(A38)
(B4-39)	(A39)
(B4-40)	(A40)
(B4-41)	(A41)
(B4-42)	(A42)
(B4-43)	(A43)
(B4-44)	(A44)
(B4-45)	(A45)
(B4-46)	(A46)
(B4-47)	(A47)
(B4-48)	(A48)
(B4-49)	(A49)
(B4-50)	(A50)
(B4-51)	(A51)
(B4-52)	(A52)
(B4-53)	(A53)
(B4-54)	(A54)
(B4-55)	(A55)
(B4-56)	(A56)
(B4-57)	(A57)
(B4-58)	(A58)
(B4-59)	(A59)
(B4-60)	(A60)
(B4-61)	(A61)
(B4-62)	(A62)
(B4-63)	(A63)
(B4-64)	(A64)
(B4-65)	(A65)
(B4-66)	(A66)
(B4-67)	(A67)
(B4-68)	(A68)
(B4-69)	(A69)
(B4-70)	(A70)

化合物	Ar ^F
(B4-71)	(A71)
(B4-72)	(A72)
(B4-73)	(A73)
(B4-74)	(A74)
(B4-75)	(A75)
(B4-76)	(A76)
(B4-77)	(A77)
(B4-78)	(A78)
(B4-79)	(A79)
(B4-80)	(A80)
(B4-81)	(A81)
(B4-82)	(A82)
(B4-83)	(A83)
(B4-84)	(A84)
(B4-85)	(A85)
(B4-86)	(A86)
(B4-87)	(A87)
(B4-88)	(A88)
(B4-89)	(A89)
(B4-90)	(A90)
(B4-91)	(A91)
(B4-92)	(A92)
(B4-93)	(A93)
(B4-94)	(A94)
(B4-95)	(A95)
(B4-96)	(A96)
(B4-97)	(A97)
(B4-98)	(A98)
(B4-99)	(A99)
(B4-100)	(A100)
(B4-101)	(A101)
(B4-102)	(A102)
(B4-103)	(A103)
(B4-104)	(A104)

[0050]

【表 5】



(B5)

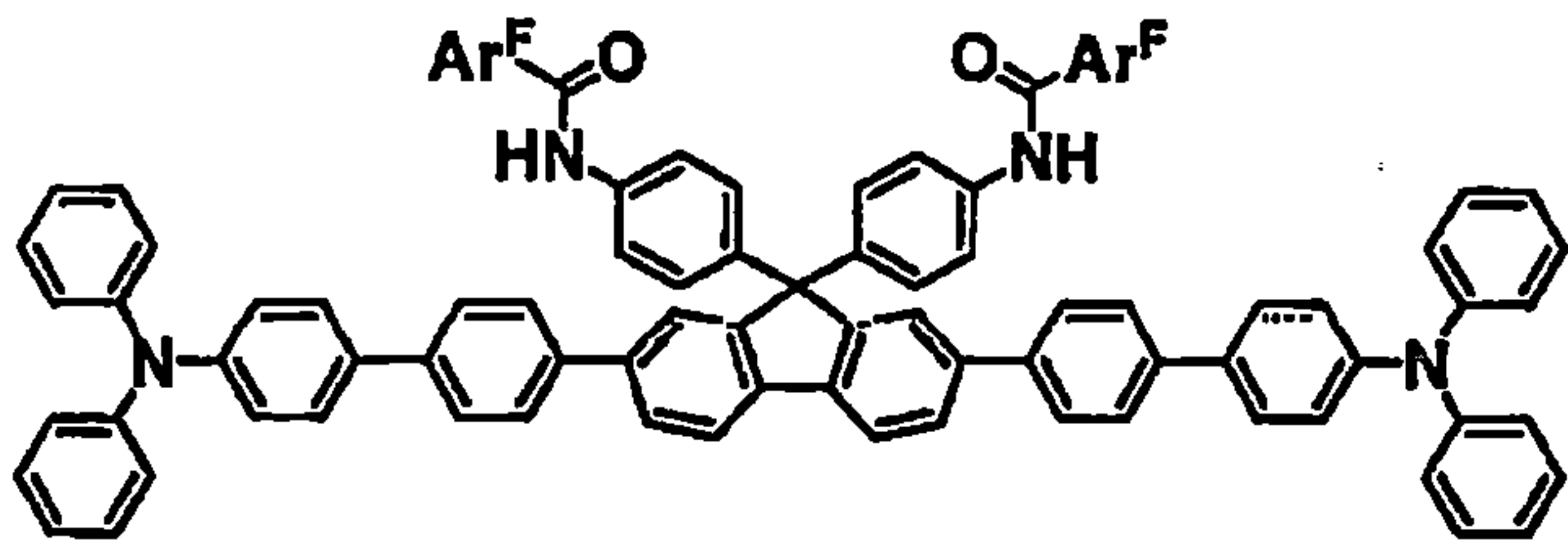
化合物	Ar ^F
(B5-1)	(A1)
(B5-2)	(A2)
(B5-3)	(A3)
(B5-4)	(A4)
(B5-5)	(A5)
(B5-6)	(A6)
(B5-7)	(A7)
(B5-8)	(A8)
(B5-9)	(A9)
(B5-10)	(A10)
(B5-11)	(A11)
(B5-12)	(A12)
(B5-13)	(A13)
(B5-14)	(A14)
(B5-15)	(A15)
(B5-16)	(A16)
(B5-17)	(A17)
(B5-18)	(A18)
(B5-19)	(A19)
(B5-20)	(A20)
(B5-21)	(A21)
(B5-22)	(A22)
(B5-23)	(A23)
(B5-24)	(A24)
(B5-25)	(A25)
(B5-26)	(A26)
(B5-27)	(A27)
(B5-28)	(A28)
(B5-29)	(A29)
(B5-30)	(A30)
(B5-31)	(A31)
(B5-32)	(A32)
(B5-33)	(A33)
(B5-34)	(A34)
(B5-35)	(A35)

化合物	Ar ^F
(B5-36)	(A36)
(B5-37)	(A37)
(B5-38)	(A38)
(B5-39)	(A39)
(B5-40)	(A40)
(B5-41)	(A41)
(B5-42)	(A42)
(B5-43)	(A43)
(B5-44)	(A44)
(B5-45)	(A45)
(B5-46)	(A46)
(B5-47)	(A47)
(B5-48)	(A48)
(B5-49)	(A49)
(B5-50)	(A50)
(B5-51)	(A51)
(B5-52)	(A52)
(B5-53)	(A53)
(B5-54)	(A54)
(B5-55)	(A55)
(B5-56)	(A56)
(B5-57)	(A57)
(B5-58)	(A58)
(B5-59)	(A59)
(B5-60)	(A60)
(B5-61)	(A61)
(B5-62)	(A62)
(B5-63)	(A63)
(B5-64)	(A64)
(B5-65)	(A65)
(B5-66)	(A66)
(B5-67)	(A67)
(B5-68)	(A68)
(B5-69)	(A69)
(B5-70)	(A70)

化合物	Ar ^F
(B5-71)	(A71)
(B5-72)	(A72)
(B5-73)	(A73)
(B5-74)	(A74)
(B5-75)	(A75)
(B5-76)	(A76)
(B5-77)	(A77)
(B5-78)	(A78)
(B5-79)	(A79)
(B5-80)	(A80)
(B5-81)	(A81)
(B5-82)	(A82)
(B5-83)	(A83)
(B5-84)	(A84)
(B5-85)	(A85)
(B5-86)	(A86)
(B5-87)	(A87)
(B5-88)	(A88)
(B5-89)	(A89)
(B5-90)	(A90)
(B5-91)	(A91)
(B5-92)	(A92)
(B5-93)	(A93)
(B5-94)	(A94)
(B5-95)	(A95)
(B5-96)	(A96)
(B5-97)	(A97)
(B5-98)	(A98)
(B5-99)	(A99)
(B5-100)	(A100)
(B5-101)	(A101)
(B5-102)	(A102)
(B5-103)	(A103)
(B5-104)	(A104)

[0051]

【表 6】



(B6)

化合物	Ar ^F	化合物	Ar ^F	化合物	Ar ^F
(B6-1)	(A1)	(B6-36)	(A36)	(B6-71)	(A71)
(B6-2)	(A2)	(B6-37)	(A37)	(B6-72)	(A72)
(B6-3)	(A3)	(B6-38)	(A38)	(B6-73)	(A73)
(B6-4)	(A4)	(B6-39)	(A39)	(B6-74)	(A74)
(B6-5)	(A5)	(B6-40)	(A40)	(B6-75)	(A75)
(B6-6)	(A6)	(B6-41)	(A41)	(B6-76)	(A76)
(B6-7)	(A7)	(B6-42)	(A42)	(B6-77)	(A77)
(B6-8)	(A8)	(B6-43)	(A43)	(B6-78)	(A78)
(B6-9)	(A9)	(B6-44)	(A44)	(B6-79)	(A79)
(B6-10)	(A10)	(B6-45)	(A45)	(B6-80)	(A80)
(B6-11)	(A11)	(B6-46)	(A46)	(B6-81)	(A81)
(B6-12)	(A12)	(B6-47)	(A47)	(B6-82)	(A82)
(B6-13)	(A13)	(B6-48)	(A48)	(B6-83)	(A83)
(B6-14)	(A14)	(B6-49)	(A49)	(B6-84)	(A84)
(B6-15)	(A15)	(B6-50)	(A50)	(B6-85)	(A85)
(B6-16)	(A16)	(B6-51)	(A51)	(B6-86)	(A86)
(B6-17)	(A17)	(B6-52)	(A52)	(B6-87)	(A87)
(B6-18)	(A18)	(B6-53)	(A53)	(B6-88)	(A88)
(B6-19)	(A19)	(B6-54)	(A54)	(B6-89)	(A89)
(B6-20)	(A20)	(B6-55)	(A55)	(B6-90)	(A90)
(B6-21)	(A21)	(B6-56)	(A56)	(B6-91)	(A91)
(B6-22)	(A22)	(B6-57)	(A57)	(B6-92)	(A92)
(B6-23)	(A23)	(B6-58)	(A58)	(B6-93)	(A93)
(B6-24)	(A24)	(B6-59)	(A59)	(B6-94)	(A94)
(B6-25)	(A25)	(B6-60)	(A60)	(B6-95)	(A95)
(B6-26)	(A26)	(B6-61)	(A61)	(B6-96)	(A96)
(B6-27)	(A27)	(B6-62)	(A62)	(B6-97)	(A97)
(B6-28)	(A28)	(B6-63)	(A63)	(B6-98)	(A98)
(B6-29)	(A29)	(B6-64)	(A64)	(B6-99)	(A99)
(B6-30)	(A30)	(B6-65)	(A65)	(B6-100)	(A100)
(B6-31)	(A31)	(B6-66)	(A66)	(B6-101)	(A101)
(B6-32)	(A32)	(B6-67)	(A67)	(B6-102)	(A102)
(B6-33)	(A33)	(B6-68)	(A68)	(B6-103)	(A103)
(B6-34)	(A34)	(B6-69)	(A69)	(B6-104)	(A104)
(B6-35)	(A35)	(B6-70)	(A70)		

[0052]

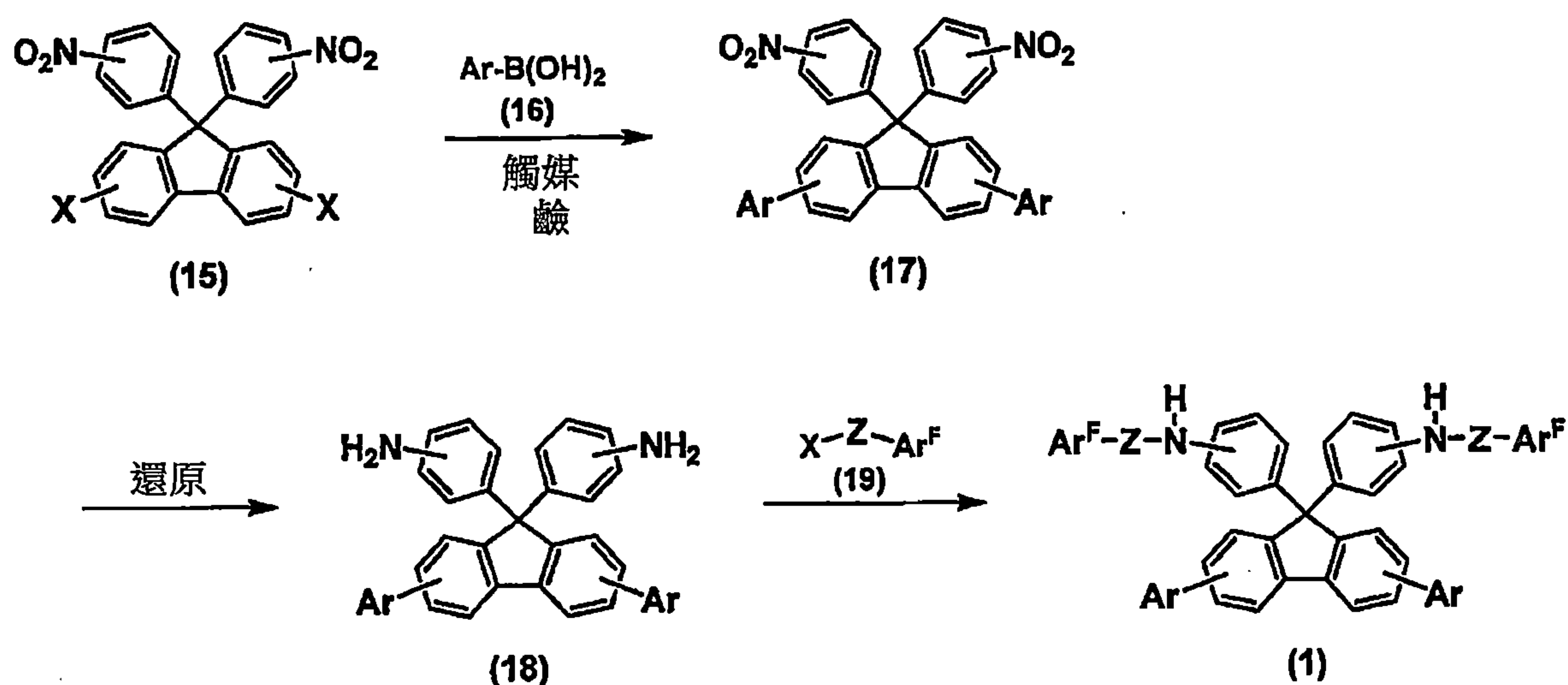
[含有氟原子之化合物之合成方法]

本發明之含有氟原子之化合物，可藉由下述流程 A 所示之方法合成。

[0053]

【化 2 1】

流程A



(式中， Z 、 Ar 及 Ar^{F} 係與前述相同。 X 表示鹵素原子或擬鹵素基)。

[0054] 鹵素原子，可列舉氟原子、氯原子、溴原子、碘原子等。又，擬鹵素基，可列舉甲烷磺醯氧基、三氟甲烷磺醯氧基、九氟丁烷磺醯氧基等之氟烷基磺醯氧基；苯磺醯氧基、甲苯磺醯氧基等之芳香族磺醯氧基等。

[0055] 式(15)表示之化合物，可藉由以往公知之方法合成，例如，可遵照 J. Mater. Chem. C, 2014, pp. 1068-1075 記載之方法合成。

[0056] 流程 A 中，第 1 步驟，係藉由偶合反應，由式(15)表示之化合物及式(16)表示之化合物得到式(17)表

示之中間體的步驟。再者，流程 A 中，係顯示利用鈴木/宮浦偶合反應之合成方法為例，但亦可利用其他之偶合反應合成。

[0057] 鈴木/宮浦偶合反應中所用之觸媒，可列舉 [1,1'-雙(二苯基膦基)二茂鐵]鈀(II)二氯化物($\text{PdCl}_2(\text{dppf})$)、肆(三苯基膦)鈀($\text{Pd}(\text{PPh}_3)_4$)、雙(三苯基膦)二氯鈀($\text{Pd}(\text{PPh}_3)_2\text{Cl}_2$)、雙(亞苺基丙酮)鈀($\text{Pd}(\text{dba})_2$)、參(亞苺基丙酮)二鈀($\text{Pd}_2(\text{dba})_3$)、雙(三 *tert*-丁基膦)鈀($\text{Pd}(\text{P-}t\text{-Bu}_3)_2$)、乙酸鈀($\text{Pd}(\text{OAc})_2$)等之鈀觸媒等。此等之中，就效率良好地得到目標物之觀點而言，較佳之觸媒，係 $\text{PdCl}_2(\text{dppf})$ 、 $\text{Pd}(\text{PPh}_3)_4$ 、 $\text{Pd}(\text{PPh}_3)_2\text{Cl}_2$ 、 $\text{Pd}(\text{P-}t\text{-Bu}_3)_2$ ；更佳為 $\text{Pd}(\text{PPh}_3)_4$ 、 $\text{Pd}(\text{P-}t\text{-Bu}_3)_2$ 。前述觸媒之使用量，相對於式(15)表示之化合物而言，通常為 0.1~50mol%左右、較佳為 0.1~30mol%、更佳為 1~10mol%。

[0058] 又，鈴木/宮浦偶合反應中亦使用鹼，前述鹼可列舉氫氧化鈉、氫氧化鉀、氫氧化銨等之氫氧化物類；*tert*-丁氧基鈉、*tert*-丁氧基鉀等之烷氧化物類；氟化鋰、氟化鉀、氟化銨等之氟化物鹽類；碳酸鋰、碳酸鈉、碳酸鉀、碳酸銨、碳酸氫鈉、碳酸氫鉀等之碳酸鹽類；磷酸鉀等之磷酸鹽類；三甲基胺、三乙基胺、二異丙基胺、*n*-丁基胺、二異丙基乙基胺等之胺類。此等之中，就效率良好地得到目標物之觀點而言，較佳之鹼為碳酸鈉、碳酸鉀、碳酸銨、碳酸氫鈉、碳酸氫鉀等之碳酸鹽類；磷酸鉀等之磷酸鹽類；更佳為碳酸鉀、碳酸銨。前述鹼之使用量，相

對於式(15)表示之化合物而言，通常為 2~20 當量左右、較佳為 1~20 當量、更佳為 2~8 當量。

[0059] 第 1 步驟中所用之溶劑，只要係不對反應造成不良影響者，則無特殊限定，具體例子可列舉脂肪族烴(戊烷、*n*-己烷、*n*-辛烷、*n*-癸烷、十氫萘等)、鹵化脂肪族烴(氯仿、二氯甲烷、二氯乙烷、四氯化碳等)、芳香族烴(苯、硝基苯、甲苯、*o*-二甲苯、*m*-二甲苯、*p*-二甲苯、均三甲苯等)、醚(二乙基醚、二異丙基醚、*tert*-丁基甲基醚、四氫呋喃(THF)、二噁烷、1,2-二甲氧基乙烷、1,2-二乙氧基乙烷等)、醯胺(*N,N*-二甲基甲醯胺(DMF)、*N,N*-二甲基乙醯胺等)、內醯胺及內酯(*N*-甲基吡咯啉酮、 γ -丁內酯等)、尿素衍生物(*N,N*-二甲基四氫咪唑酮、四甲基脲等)、亞砒(二甲基亞砒、環丁砒等)、腈(乙腈、丙腈、丁腈等)等。此等之中，就效率良好地得到目標物之觀點而言。較佳之溶劑，為脂肪族烴(戊烷、*n*-己烷、*n*-辛烷、*n*-癸烷、十氫萘等)、芳香族烴(苯、硝基苯、甲苯、*o*-二甲苯、*m*-二甲苯、*p*-二甲苯、均三甲苯等)、醚(二乙基醚、二異丙基醚、*tert*-丁基甲基醚、THF、二噁烷、1,2-二甲氧基乙烷、1,2-二乙氧基乙烷等)；更佳為芳香族烴(苯、硝基苯、甲苯、*o*-二甲苯、*m*-二甲苯、*p*-二甲苯、均三甲苯等)、醚(二乙基醚、二異丙基醚、*tert*-丁基甲基醚、THF、二噁烷、1,2-二甲氧基乙烷、1,2-二乙氧基乙烷等)。

[0060] 式(15)表示之化合物與式(16)表示之化合物之

饋入比，相對於式(15)表示之化合物而言，式(16)表示之化合物較佳為 2~6 當量、更佳為 2~3 當量。

[0061] 第 1 步驟中，反應溫度係考慮所用之原料化合物或觸媒之種類或量，並且於溶劑之熔點至沸點的範圍中適當設定，但通常為 0~200℃ 左右、較佳為 0~50℃。又，反應時間雖依所用之原料化合物或反應溫度等而異，故不能一概規定，但通常為 1~24 小時左右。

[0062] 流程 A 中，第 2 步驟為將式(17)表示之中間體還原而得到式(18)表示之中間體之步驟。還原方法可列舉接觸氫化、以金屬與酸所進行的化學還原等之公知方法。

[0063] 藉由接觸氫化來進行還原時，只要使用鈀碳、雷氏鎳觸媒、氧化鉑、釩碳、銻碳、鉑碳等之公知觸媒來進行即可。又，接觸氫化之條件，可列舉例如氫壓力 1~10 氣壓、反應溫度 20~100℃、反應時間 1~48 小時。

[0064] 流程 A 中、第 3 步驟為使式(18)表示之中間體與式(19)表示之化合物反應，而合成式(1)表示之含有氟原子之化合物的步驟。

[0065] 式(19)表示之化合物當中，Z 為以式(2)表示者，可列舉 2-氟苯甲醯氯、3-氟苯甲醯氯、4-氟苯甲醯氯、2-氟-4-甲基苯甲醯氯、2-氟-5-甲基苯甲醯氯、3-氟-4-甲基苯甲醯氯、3-氟-6-甲基苯甲醯氯、4-氟-2-甲基苯甲醯氯、4-氟-3-甲基苯甲醯氯、2,3-二氟苯甲醯氯、2,4-二

氟苯甲醯氯、2,5-二氟苯甲醯氯、2,6-二氟苯甲醯氯、3,4-二氟苯甲醯氯、3,5-二氟苯甲醯氯、3-氯-2-氟苯甲醯氯、4-氯-2-氟苯甲醯氯、5-氯-2-氟苯甲醯氯、2-氯-6-氟苯甲醯氯、2-氯-3-氟苯甲醯氯、2-氯-4-氟苯甲醯氯、2-氯-5-氟苯甲醯氯、3-氯-4-氟苯甲醯氯、3-氯-5-氟苯甲醯氯、3-溴-2-氟苯甲醯氯、4-溴-2-氟苯甲醯氯、5-溴-2-氟苯甲醯氯、2-溴-6-氟苯甲醯氯、2-溴-3-氟苯甲醯氯、2-溴-4-氟苯甲醯氯、2-溴-5-氟苯甲醯氯、3-溴-4-氟苯甲醯氯、3-溴-5-氟苯甲醯氯、2-氟-5-碘苯甲醯氯、2-氟-6-碘苯甲醯氯、2-氟-3-(三氟甲基)苯甲醯氯、2-氟-5-(三氟甲基)苯甲醯氯、2-氟-6-(三氟甲基)苯甲醯氯、3-氟-4-(三氟甲基)苯甲醯氯、3-氟-5-(三氟甲基)苯甲醯氯、3-氟-6-(三氟甲基)苯甲醯氯、4-氟-2-(三氟甲基)苯甲醯氯、4-氟-3-(三氟甲基)苯甲醯氯、2-氟-4-硝基苯甲醯氯、2-氟-5-硝基苯甲醯氯、3-氟-2-硝基苯甲醯氯、3-氟-4-硝基苯甲醯氯、3-氟-6-硝基苯甲醯氯、4-氟-2-硝基苯甲醯氯、4-氟-3-硝基苯甲醯氯、4-氰基-2-氟苯甲醯氯、3-氰基-5-氟苯甲醯氯、2,3,4-三氟苯甲醯氯、2,3,5-三氟苯甲醯氯、2,3,6-三氟苯甲醯氯、2,4,5-三氟苯甲醯氯、2,4,6-三氟苯甲醯氯、3,4,5-三氟苯甲醯氯、4-氯-2,4-二氟苯甲醯氯、2,4-二氯-5-氟-4-硝基苯甲醯氯、2,4,5-三氟-3-甲基-6-硝基苯甲醯氯、2,3,4,5-四氟苯甲醯氯、2,3,5,6-四氟苯甲醯氯、2,3,5,6-四氟-4-甲基-苯甲醯氯、2,3,4,5-四氟-6-硝基苯甲醯氯、2,3,4,5,6-五氟苯甲醯氯、2-(三氟甲基)苯甲醯氯、

3-(三氟甲基)苯甲醯氯、4-(三氟甲基)苯甲醯氯、3-三氟甲基-4-乙氧基苯甲醯氯、3,5-雙(三氟甲基)苯甲醯氯、2,4,6-參(三氟甲基)苯甲醯氯、4-(五氟乙基)苯甲醯氯、4-(3-四氟丙基)苯甲醯氯、2,3,5,6-四氟-4-(三氟甲基)苯甲醯氯、2,3,5,6-四氟-4-(三氟乙烯基)苯甲醯氯、2,3,5,6-四氟-4-(五氟烯丙基)苯甲醯氯等，但不限定於此等。

[0066] 式(19)表示之化合物當中，Z 為以式(3)表示者，可列舉 2-氟硫苯甲醯氯、3-氟硫苯甲醯氯、4-氟硫苯甲醯氯、2-氟-4-甲基硫苯甲醯氯、2-氟-5-甲基硫苯甲醯氯、3-氟-4-甲基硫苯甲醯氯、3-氟-6-甲基硫苯甲醯氯、4-氟-2-甲基硫苯甲醯氯、4-氟-3-甲基硫苯甲醯氯、2,3-二氟硫苯甲醯氯、2,4-二氟硫苯甲醯氯、2,5-二氟硫苯甲醯氯、2,6-二氟硫苯甲醯氯、3,4-二氟硫苯甲醯氯、3,5-二氟硫苯甲醯氯、3-氯-2-氟硫苯甲醯氯、4-氯-2-氟硫苯甲醯氯、5-氯-2-氟硫苯甲醯氯、2-氯-6-氟硫苯甲醯氯、2-氯-3-氟硫苯甲醯氯、2-氯-4-氟硫苯甲醯氯、2-氯-5-氟硫苯甲醯氯、3-氯-4-氟硫苯甲醯氯、3-氯-5-氟硫苯甲醯氯、3-溴-2-氟硫苯甲醯氯、4-溴-2-氟硫苯甲醯氯、5-溴-2-氟硫苯甲醯氯、2-溴-6-氟硫苯甲醯氯、2-溴-3-氟硫苯甲醯氯、2-溴-4-氟硫苯甲醯氯、2-溴-5-氟硫苯甲醯氯、3-溴-4-氟硫苯甲醯氯、3-溴-5-氟硫苯甲醯氯、2-氟-5-碘硫苯甲醯氯、2-氟-6-碘硫苯甲醯氯、2-氟-3-(三氟甲基)硫苯甲醯氯、2-氟-5-(三氟甲基)硫苯甲醯氯、2-氟-6-(三氟甲基)硫苯甲醯氯、3-氟-4-(三氟甲基)硫苯甲醯氯、3-氟-5-(三氟

甲基)硫苯甲醯氯、3-氟-6-(三氟甲基)硫苯甲醯氯、4-氟-2-(三氟甲基)硫苯甲醯氯、4-氟-3-(三氟甲基)硫苯甲醯氯、2-氟-4-硝基硫苯甲醯氯、2-氟-5-硝基硫苯甲醯氯、3-氟-2-硝基硫苯甲醯氯、3-氟-4-硝基硫苯甲醯氯、3-氟-6-硝基硫苯甲醯氯、4-氟-2-硝基硫苯甲醯氯、4-氟-3-硝基硫苯甲醯氯、4-氰基-2-氟硫苯甲醯氯、3-氰基-5-氟硫苯甲醯氯、2,3,4-三氟硫苯甲醯氯、2,3,5-三氟硫苯甲醯氯、2,3,6-三氟硫苯甲醯氯、2,4,5-三氟硫苯甲醯氯、2,4,6-三氟硫苯甲醯氯、3,4,5-三氟硫苯甲醯氯、4-氯-2,4-二氟硫苯甲醯氯、2,4-二氯-5-氟-4-硝基硫苯甲醯氯、2,4,5-三氟-3-甲基-6-硝基硫苯甲醯氯、2,3,4,5-四氟硫苯甲醯氯、2,3,5,6-四氟硫苯甲醯氯、2,3,5,6-四氟-4-甲基-硫苯甲醯氯、2,3,4,5-四氟-6-硝基硫苯甲醯氯、2,3,4,5,6-五氟硫苯甲醯氯、2-(三氟甲基)硫苯甲醯氯、3-(三氟甲基)硫苯甲醯氯、4-(三氟甲基)硫苯甲醯氯、3-三氟甲基-4-乙氧基硫苯甲醯氯、3,5-雙(三氟甲基)硫苯甲醯氯、2,4,6-參(三氟甲基)硫苯甲醯氯、4-(五氟乙基)硫苯甲醯氯、4-(3-四氟丙基)硫苯甲醯氯、2,3,5,6-四氟-4-(三氟甲基)硫苯甲醯氯、2,3,5,6-四氟-4-(三氟乙烯基)硫苯甲醯氯、2,3,5,6-四氟-4-(五氟烯丙基)硫苯甲醯氯等，但不限定於此等。

[0067] 式(19)表示之化合物當中，Z 為以式(4)表示者，可列舉 2-氟苯基胺甲醯氯、3-氟苯基胺甲醯氯、4-氟苯基胺甲醯氯、2-氟-4-甲基苯基胺甲醯氯、2-氟-5-甲基苯基胺甲醯氯、3-氟-4-甲基苯基胺甲醯氯、3-氟-6-甲基

苯基胺甲鹽氯、4-氟-2-甲基苯基胺甲鹽氯、4-氟-3-甲基
 苯基胺甲鹽氯、2,3-二氟苯基胺甲鹽氯、2,4-二氟苯基胺
 甲鹽氯、2,5-二氟苯基胺甲鹽氯、2,6-二氟苯基胺甲鹽
 氯、3,4-二氟苯基胺甲鹽氯、3,5-二氟苯基胺甲鹽氯、3-
 氯-2-氟苯基胺甲鹽氯、4-氯-2-氟苯基胺甲鹽氯、5-氯-2-
 氟苯基胺甲鹽氯、2-氯-6-氟苯基胺甲鹽氯、2-氯-3-氟苯
 基胺甲鹽氯、2-氯-4-氟苯基胺甲鹽氯、2-氯-5-氟苯基胺
 甲鹽氯、3-氯-4-氟苯基胺甲鹽氯、3-氯-5-氟苯基胺甲鹽
 氯、3-溴-2-氟苯基胺甲鹽氯、4-溴-2-氟苯基胺甲鹽氯、5-
 溴-2-氟苯基胺甲鹽氯、2-溴-6-氟苯基胺甲鹽氯、2-溴-3-
 氟苯基胺甲鹽氯、2-溴-4-氟苯基胺甲鹽氯、2-溴-5-氟苯
 基胺甲鹽氯、3-溴-4-氟苯基胺甲鹽氯、3-溴-5-氟苯基胺
 甲鹽氯、2-氟-5-碘苯基胺甲鹽氯、2-氟-6-碘苯基胺甲鹽
 氯、2-氟-3-(三氟甲基)苯基胺甲鹽氯、2-氟-5-(三氟甲基)
 苯基胺甲鹽氯、2-氟-6-(三氟甲基)苯基胺甲鹽氯、3-氟-4-
 (三氟甲基)苯基胺甲鹽氯、3-氟-5-(三氟甲基)苯基胺甲鹽
 氯、3-氟-6-(三氟甲基)苯基胺甲鹽氯、4-氟-2-(三氟甲基)
 苯基胺甲鹽氯、4-氟-3-(三氟甲基)苯基胺甲鹽氯、2-氟-4-
 硝基苯基胺甲鹽氯、2-氟-5-硝基苯基胺甲鹽氯、3-氟-2-
 硝基苯基胺甲鹽氯、3-氟-4-硝基苯基胺甲鹽氯、3-氟-6-
 硝基苯基胺甲鹽氯、4-氟-2-硝基苯基胺甲鹽氯、4-氟-3-
 硝基苯基胺甲鹽氯、4-氰基-2-氟苯基胺甲鹽氯、3-氰基-
 5-氟苯基胺甲鹽氯、2,3,4-三氟苯基胺甲鹽氯、2,3,5-三氟
 苯基胺甲鹽氯、2,3,6-三氟苯基胺甲鹽氯、2,4,5-三氟苯基

胺甲醯氯、2,4,6-三氟苯基胺甲醯氯、3,4,5-三氟苯基胺甲醯氯、4-氯-2,4-二氟苯基胺甲醯氯、2,4-二氯-5-氟-4-硝基苯基胺甲醯氯、2,4,5-三氟-3-甲基-6-硝基苯基胺甲醯氯、2,3,4,5-四氟苯基胺甲醯氯、2,3,5,6-四氟苯基胺甲醯氯、2,3,5,6-四氟-4-甲基-苯基胺甲醯氯、2,3,4,5-四氟-6-硝基苯基胺甲醯氯、2,3,4,5,6-五氟苯基胺甲醯氯、2-(三氟甲基)苯基胺甲醯氯、3-(三氟甲基)苯基胺甲醯氯、4-(三氟甲基)苯基胺甲醯氯、3-三氟甲基-4-乙氧基苯基胺甲醯氯、3,5-雙(三氟甲基)苯基胺甲醯氯、2,4,6-參(三氟甲基)苯基胺甲醯氯、4-(五氟乙基)苯基胺甲醯氯、4-(3-四氟丙基)苯基胺甲醯氯、2,3,5,6-四氟-4-(三氟甲基)苯基胺甲醯氯、2,3,5,6-四氟-4-(三氟乙烯基)苯基胺甲醯氯、2,3,5,6-四氟-4-(五氟烯丙基)苯基胺甲醯氯等，但不限定於此等。

[0068] 式(19)表示之化合物當中，Z 為以式(5)表示者，可列舉 2-氟苯基硫胺甲醯氯、3-氟苯基硫胺甲醯氯、4-氟苯基硫胺甲醯氯、2-氟-4-甲基苯基硫胺甲醯氯、2-氟-5-甲基苯基硫胺甲醯氯、3-氟-4-甲基苯基硫胺甲醯氯、3-氟-6-甲基苯基硫胺甲醯氯、4-氟-2-甲基苯基硫胺甲醯氯、4-氟-3-甲基苯基硫胺甲醯氯、2,3-二氟苯基硫胺甲醯氯、2,4-二氟苯基硫胺甲醯氯、2,5-二氟苯基硫胺甲醯氯、2,6-二氟苯基硫胺甲醯氯、3,4-二氟苯基硫胺甲醯氯、3,5-二氟苯基硫胺甲醯氯、3-氯-2-氟苯基硫胺甲醯氯、4-氯-2-氟苯基硫胺甲醯氯、5-氯-2-氟苯基硫胺甲醯氯、2-氯-6-氟苯基硫胺甲醯氯、2-氯-3-氟苯基硫胺甲醯

氯、2-氯-4-氟苯基硫胺甲鹽氯、2-氯-5-氟苯基硫胺甲鹽
 氯、3-氯-4-氟苯基硫胺甲鹽氯、3-氯-5-氟苯基硫胺甲鹽
 氯、3-溴-2-氟苯基硫胺甲鹽氯、4-溴-2-氟苯基硫胺甲鹽
 氯、5-溴-2-氟苯基硫胺甲鹽氯、2-溴-6-氟苯基硫胺甲鹽
 氯、2-溴-3-氟苯基硫胺甲鹽氯、2-溴-4-氟苯基硫胺甲鹽
 氯、2-溴-5-氟苯基硫胺甲鹽氯、3-溴-4-氟苯基硫胺甲鹽
 氯、3-溴-5-氟苯基硫胺甲鹽氯、2-氟-5-碘苯基硫胺甲鹽
 氯、2-氟-6-碘苯基硫胺甲鹽氯、2-氟-3-(三氟甲基)苯基硫
 胺甲鹽氯、2-氟-5-(三氟甲基)苯基硫胺甲鹽氯、2-氟-6-
 (三氟甲基)苯基硫胺甲鹽氯、3-氟-4-(三氟甲基)苯基硫胺
 甲鹽氯、3-氟-5-(三氟甲基)苯基硫胺甲鹽氯、3-氟-6-(三
 氟甲基)苯基硫胺甲鹽氯、4-氟-2-(三氟甲基)苯基硫胺甲
 鹽氯、4-氟-3-(三氟甲基)苯基硫胺甲鹽氯、2-氟-4-硝基苯
 基硫胺甲鹽氯、2-氟-5-硝基苯基硫胺甲鹽氯、3-氟-2-硝
 基苯基硫胺甲鹽氯、3-氟-4-硝基苯基硫胺甲鹽氯、3-氟-
 6-硝基苯基硫胺甲鹽氯、4-氟-2-硝基苯基硫胺甲鹽氯、4-
 氟-3-硝基苯基硫胺甲鹽氯、4-氰基-2-氟苯基硫胺甲鹽
 氯、3-氰基-5-氟苯基硫胺甲鹽氯、2,3,4-三氟苯基硫胺甲
 鹽氯、2,3,5-三氟苯基硫胺甲鹽氯、2,3,6-三氟苯基硫胺甲
 鹽氯、2,4,5-三氟苯基硫胺甲鹽氯、2,4,6-三氟苯基硫胺甲
 鹽氯、3,4,5-三氟苯基硫胺甲鹽氯、4-氯-2,4-二氟苯基硫
 胺甲鹽氯、2,4-二氯-5-氟-4-硝基苯基硫胺甲鹽氯、2,4,5-
 三氟-3-甲基-6-硝基苯基硫胺甲鹽氯、2,3,4,5-四氟苯基硫
 胺甲鹽氯、2,3,5,6-四氟苯基硫胺甲鹽氯、2,3,5,6-四氟-4-

甲基-苯基硫胺甲醯氯、2,3,4,5-四氟-6-硝基苯基硫胺甲醯氯、2,3,4,5,6-五氟苯基硫胺甲醯氯、2-(三氟甲基)苯基硫胺甲醯氯、3-(三氟甲基)苯基硫胺甲醯氯、4-(三氟甲基)苯基硫胺甲醯氯、3-三氟甲基-4-乙氧基苯基硫胺甲醯氯、3,5-雙(三氟甲基)苯基硫胺甲醯氯、2,4,6-參(三氟甲基)苯基硫胺甲醯氯、4-(五氟乙基)苯基硫胺甲醯氯、4-(3-四氟丙基)苯基硫胺甲醯氯、2,3,5,6-四氟-4-(三氟甲基)苯基硫胺甲醯氯、2,3,5,6-四氟-4-(三氟乙基)苯基硫胺甲醯氯、2,3,5,6-四氟-4-(五氟烯丙基)苯基硫胺甲醯氯等，但不限定於此等。

[0069] 式(19)表示之化合物當中，Z 為以式(6)表示者，可列舉 2-氟苄基氯、3-氟苄基氯、4-氟苄基氯、2-氟-4-甲基苄基氯、2-氟-5-甲基苄基氯、3-氟-4-甲基苄基氯、3-氟-6-甲基苄基氯、4-氟-2-甲基苄基氯、4-氟-3-甲基苄基氯、2,3-二氟苄基氯、2,4-二氟苄基氯、2,5-二氟苄基氯、2,6-二氟苄基氯、3,4-二氟苄基氯、3,5-二氟苄基氯、3-氯-2-氟苄基氯、4-氯-2-氟苄基氯、5-氯-2-氟苄基氯、2-氯-6-氟苄基氯、2-氯-3-氟苄基氯、2-氯-4-氟苄基氯、2-氯-5-氟苄基氯、3-氯-4-氟苄基氯、3-氯-5-氟苄基氯、3-溴-2-氟苄基氯、4-溴-2-氟苄基氯、5-溴-2-氟苄基氯、2-溴-6-氟苄基氯、2-溴-3-氟苄基氯、2-溴-4-氟苄基氯、2-溴-5-氟苄基氯、3-溴-4-氟苄基氯、3-溴-5-氟苄基氯、2-氟-5-碘苄基氯、2-氟-6-碘苄基氯、2-氟-3-(三氟甲基)苄基氯、2-氟-5-(三氟甲基)苄基氯、2-氟-6-(三氟甲基)苄基

氯、3-氟-4-(三氟甲基)苄基氯、3-氟-5-(三氟甲基)苄基氯、3-氟-6-(三氟甲基)苄基氯、4-氟-2-(三氟甲基)苄基氯、4-氟-3-(三氟甲基)苄基氯、2-氟-4-硝基苄基氯、2-氟-5-硝基苄基氯、3-氟-2-硝基苄基氯、3-氟-4-硝基苄基氯、3-氟-6-硝基苄基氯、4-氟-2-硝基苄基氯、4-氟-3-硝基苄基氯、4-氰基-2-氟苄基氯、3-氰基-5-氟苄基氯、2,3,4-三氟苄基氯、2,3,5-三氟苄基氯、2,3,6-三氟苄基氯、2,4,5-三氟苄基氯、2,4,6-三氟苄基氯、3,4,5-三氟苄基氯、4-氯-2,4-二氟苄基氯、2,4-二氯-5-氟-4-硝基苄基氯、2,4,5-三氟-3-甲基-6-硝基苄基氯、2,3,4,5-四氟苄基氯、2,3,5,6-四氟苄基氯、2,3,5,6-四氟-4-甲基-苄基氯、2,3,4,5-四氟-6-硝基苄基氯、2,3,4,5,6-五氟苄基氯、2-(三氟甲基)苄基氯、3-(三氟甲基)苄基氯、4-(三氟甲基)苄基氯、3-三氟甲基-4-乙氧基苄基氯、3,5-雙(三氟甲基)苄基氯、2,4,6-參(三氟甲基)苄基氯、4-(五氟乙基)苄基氯、4-(3-四氟丙基)苄基氯、2,3,5,6-四氟-4-(三氟甲基)苄基氯、2,3,5,6-四氟-4-(三氟乙烯基)苄基氯、2,3,5,6-四氟-4-(五氟烯丙基)苄基氯等，但不限定於此等。

[0070] 式(19)表示之化合物當中，Z 為以式(7)表示者，可列舉 2-氟苯磺醯氯、3-氟苯磺醯氯、4-氟苯磺醯氯、2-氟-4-甲基苯磺醯氯、2-氟-5-甲基苯磺醯氯、3-氟-4-甲基苯磺醯氯、3-氟-6-甲基苯磺醯氯、4-氟-2-甲基苯磺醯氯、4-氟-3-甲基苯磺醯氯、2,3-二氟苯磺醯氯、2,4-二氟苯磺醯氯、2,5-二氟苯磺醯氯、2,6-二氟苯磺醯氯、3,4-

二氟苯磺醯氯、3,5-二氟苯磺醯氯、3-氯-2-氟苯磺醯氯、
 4-氯-2-氟苯磺醯氯、5-氯-2-氟苯磺醯氯、2-氯-6-氟苯磺
 醯氯、2-氯-3-氟苯磺醯氯、2-氯-4-氟苯磺醯氯、2-氯-5-
 氟苯磺醯氯、3-氯-4-氟苯磺醯氯、3-氯-5-氟苯磺醯氯、3-
 溴-2-氟苯磺醯氯、4-溴-2-氟苯磺醯氯、5-溴-2-氟苯磺醯
 氯、2-溴-6-氟苯磺醯氯、2-溴-3-氟苯磺醯氯、2-溴-4-氟
 苯磺醯氯、2-溴-5-氟苯磺醯氯、3-溴-4-氟苯磺醯氯、3-溴
 -5-氟苯磺醯氯、2-氟-5-碘苯磺醯氯、2-氟-6-碘苯磺醯
 氯、2-氟-3-(三氟甲基)苯磺醯氯、2-氟-5-(三氟甲基)苯磺
 醯氯、2-氟-6-(三氟甲基)苯磺醯氯、3-氟-4-(三氟甲基)苯
 磺醯氯、3-氟-5-(三氟甲基)苯磺醯氯、3-氟-6-(三氟甲基)
 苯磺醯氯、4-氟-2-(三氟甲基)苯磺醯氯、4-氟-3-(三氟甲
 基)苯磺醯氯、2-氟-4-硝基苯磺醯氯、2-氟-5-硝基苯磺醯
 氯、3-氟-2-硝基苯磺醯氯、3-氟-4-硝基苯磺醯氯、3-氟-
 6-硝基苯磺醯氯、4-氟-2-硝基苯磺醯氯、4-氟-3-硝基苯磺
 醯氯、4-氰基-2-氟苯磺醯氯、3-氰基-5-氟苯磺醯氯、
 2,3,4-三氟苯磺醯氯、2,3,5-三氟苯磺醯氯、2,3,6-三氟苯
 磺醯氯、2,4,5-三氟苯磺醯氯、2,4,6-三氟苯磺醯氯、
 3,4,5-三氟苯磺醯氯、4-氯-2,4-二氟苯磺醯氯、2,4-二氯-
 5-氟-4-硝基苯磺醯氯、2,4,5-三氟-3-甲基-6-硝基苯磺醯
 氯、2,3,4,5-四氟苯磺醯氯、2,3,5,6-四氟苯磺醯氯、
 2,3,5,6-四氟-4-甲基-苯磺醯氯、2,3,4,5-四氟-6-硝基苯磺
 醯氯、2,3,4,5,6-五氟苯磺醯氯、2-(三氟甲基)苯磺醯氯、
 3-(三氟甲基)苯磺醯氯、4-(三氟甲基)苯磺醯氯、3-三氟甲

基-4-乙氧基苯磺醯氯、3,5-雙(三氟甲基)苯磺醯氯、2,4,6-參(三氟甲基)苯磺醯氯、4-(五氟乙基)苯磺醯氯、4-(3-四氟丙基)苯磺醯氯、2,3,5,6-四氟-4-(三氟甲基)苯磺醯氯、2,3,5,6-四氟-4-(三氟乙烯基)苯磺醯氯、2,3,5,6-四氟-4-(五氟烯丙基)苯磺醯氯等，但不限定於此等。

[0071] 第 3 步驟中，亦可使用鹼。前述鹼可列舉與第 1 步驟中可使用的為相同者。此等之中，特別由操作容易而言，較適宜為三乙基胺、吡啶、二異丙基乙基胺等。

[0072] 反應溶劑較佳為非質子性有機溶劑，可列舉例如 N,N-二甲基甲醯胺、N,N-二甲基乙醯胺、N-甲基吡咯啉酮、1,3-二甲基-2-四氫咪唑酮、二甲基亞砷、四氫呋喃、二噁烷等。由反應後之反應溶劑的去除容易性之觀點而言，較適宜為 N,N-二甲基甲醯胺、N,N-二甲基乙醯胺、四氫呋喃、二噁烷、甲苯、二甲苯、均三甲苯等。

[0073] 式(18)表示之中間體、與式(19)表示之化合物的饋入比，相對於式(18)表示之中間體而言，式(19)表示之化合物較佳為 2~6 當量、更佳為 2~3 當量。

[0074] 第 3 步驟中，反應溫度係考慮所用之原料化合物或觸媒之種類或量，並且於由溶劑之熔點至沸點的範圍中適當設定，但通常為 0~200℃ 左右、較佳為 0~50℃。又，反應時間雖依所用之原料化合物或反應溫度等而異，故不能一概規定，但通常為 1~24 小時左右。

[0075] 反應結束後，可遵照一般方法進行後處理，得到目標的含有氟原子之化合物。

[0076] 再者，式(19)表示之化合物，可藉由公知之方法或獲得市售品而得到。

[0077]

[電荷傳輸性物質]

本發明之含有氟原子之化合物，可適合作為電荷傳輸性物質、特別是作為電洞傳輸性物質使用。本發明中，電荷傳輸性，係與導電性相同意義。電荷傳輸性物質，係指其本身具有電荷傳輸性者。又，電荷傳輸性塗漆，可為其本身具有電荷傳輸性者、亦可為藉由其所得之固體膜具有電荷傳輸性者。

[0078]

[電荷傳輸性塗漆]

本發明之電荷傳輸性塗漆，為含有由前述含有氟原子之化合物所構成之電荷傳輸性物質、及有機溶劑者。

[0079]

[有機溶劑]

配製本發明之電荷傳輸性塗漆時所用的有機溶劑，可使用可良好地溶解前述含有氟原子之化合物的高溶解性溶劑。

[0080] 如此之高溶解性溶劑，可列舉例如 N,N-二甲基甲醯胺、N,N-二甲基乙醯胺、N,N-二甲基異丁基醯胺、N-甲基吡咯啉酮、1,3-二甲基-2-四氫咪唑酮等之醯胺系溶劑；氯仿、氯苯等之氯系溶劑；甲苯、二甲苯、四氫萘、環己基苯、3-苯氧基甲苯等之芳香族烴系溶劑；異佛酮、

環己酮等之酮系溶劑；乙酸乙酯、安息香酸甲酯等之酯系溶劑；乙二醇、二乙二醇等之多元醇系溶劑；四氫呋喃、二噁烷、苯甲醚、二乙二醇單甲基醚等之醚系溶劑；異丙醇、環己醇、苧醇等之醇系溶劑；二甲基亞碲等之亞碲系溶劑。此等溶劑可 1 種單獨或混合 2 種以上使用，其之使用量，可為使用於塗漆的全部溶劑中之 5~100 質量%。

[0081] 再者，電荷傳輸性物質，較佳均完全溶解於前述溶劑、或成為均勻分散的狀態；更佳為完全溶解。

[0082] 又，本發明中，於塗漆中可含有至少 1 種於 25℃ 具有 10~200mPa·s、特別是 35~150mPa·s 的黏度，且於常壓(大氣壓)下沸點 50~300℃、特別是 150~250℃ 的高黏度有機溶劑。藉由添加如此之溶劑，塗漆之黏度調整成為容易，再現性良好地賦予平坦性高的薄膜、可對應所使用之塗佈方法配製塗漆。

[0083] 高黏度有機溶劑，可列舉例如環己醇、乙二醇、乙二醇二縮水甘油醚、1,3-辛二醇、二乙二醇、二丙二醇、三乙二醇、三丙二醇、1,3-丁二醇、2,3-丁二醇、1,4-丁二醇、丙二醇、己二醇等，但不限定於此等。高黏度有機溶劑亦可兼為高溶解性溶劑，此等係依主體之種類而決定。

[0084] 本發明之塗漆所使用之全部溶劑中的高黏度有機溶劑之添加比例，較佳為固體不會析出的範圍內，只要固體不析出，添加比例較佳為 5~90 質量%。

[0085] 進一步地，亦能夠以提高對基板之濕潤性、

調整溶劑之表面張力、調整極性、調整沸點等為目的，以使用於塗漆的全部溶劑中之 1~90 質量%、較佳為 1~50 質量%之比例混合其他溶劑。

[0086] 如此之溶劑可列舉例如丙二醇單甲基醚、乙二醇單丁基醚、二乙二醇二乙基醚、二乙二醇單甲基醚、二乙二醇二甲基醚、二乙二醇單乙基醚乙酸酯、二乙二醇單丁基醚乙酸酯、二丙二醇單甲基醚、丙二醇單甲基醚乙酸酯、二乙二醇單乙基醚、二丙酮醇、 γ -丁內酯、乳酸乙酯、乙酸 n-己酯等，但不限定於此等。此等溶劑可 1 種單獨或混合 2 種以上使用。此等溶劑亦可兼為高溶解性溶劑，此等係依主體之種類而決定。

[0087] 本發明中，由再現性良好地得到平坦性更高之薄膜的觀點而言，電荷傳輸性塗漆，較期望為將電荷傳輸性物質溶解於有機溶劑後，使用次微米等級之過濾器等過濾。

[0088] 本發明之塗漆中之固體成分濃度，由抑制電荷傳輸性物質之析出的同時，確保充分的膜厚之觀點而言，通常為 0.1~20 質量%左右、較佳為 0.5~10 質量%。再者，此處所稱之固體成分，意指由塗漆中所含之成分中去除溶劑所殘留的成分。本發明之塗漆之黏度，通常於 25℃ 為 1~50mPa·s。

[0089]

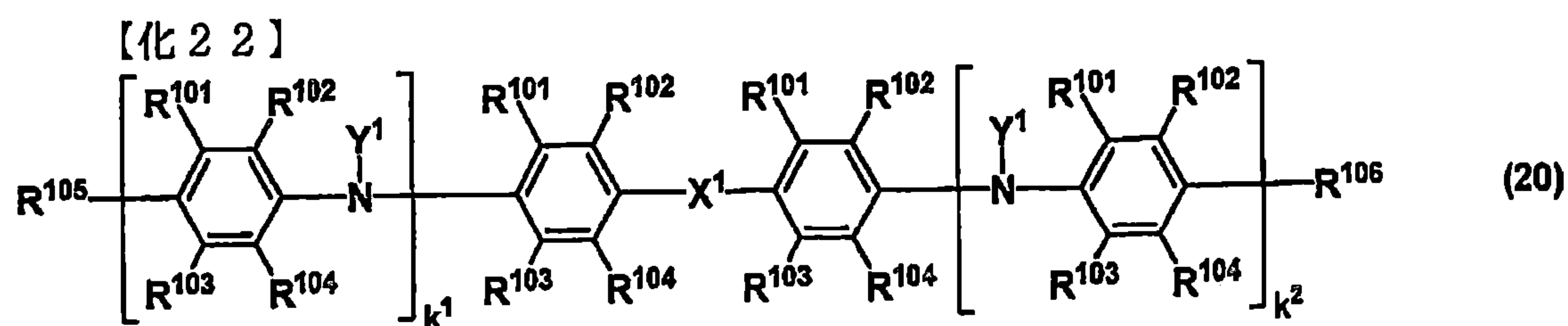
[不含有氟原子之電荷傳輸性物質]

本發明之電荷傳輸性塗漆，亦可進一步含有不含有氟

原子之電荷傳輸性物質。如此之不含有氟原子之電荷傳輸性物質，可列舉苯胺衍生物、噻吩衍生物、吡咯衍生物等之電荷傳輸性寡聚物。前述不含有氟原子之電荷傳輸性寡聚物之分子量，通常為 200~8,000，但由配製賦予電荷傳輸性高之薄膜的塗漆之觀點而言，較佳為 300 以上、更佳為 400 以上、又更較佳為 500 以上，由配製賦予平坦性高之薄膜的均勻之塗漆的觀點而言，較佳為 6,000 以下、更佳為 5,000 以下、又更佳為 4,000 以下、又再更佳為 3,000 以下。

[0090] 前述不含有氟原子之電荷傳輸性寡聚物當中，考慮到對有機溶劑之溶解性與所得薄膜之電荷傳輸性的平衡時，較佳為苯胺衍生物。苯胺衍生物，可列舉日本特開 2002-151272 號公報記載之寡苯胺衍生物、國際公開第 2004/105446 號記載之寡苯胺化合物、國際公開第 2008/032617 號記載之寡苯胺化合物、國際公開第 2008/032616 號記載之寡苯胺化合物、國際公開第 2013/042623 號記載之芳基二胺化合物等。

[0091] 又，亦可適合使用下述式(20)表示之苯胺衍生物。



[0092] 式(20)中， X^1 表示 $-\text{NY}^1-$ 、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-(\text{CR}^{107}\text{R}^{108})_L-$

或單鍵，但 k^1 或 k^2 為 0 時，係表示 $-NY^1-$ 。

[0093] Y^1 係分別獨立地表示氫原子；可經 Z^{11} 取代之碳數 1~20 之烷基、碳數 2~20 之烯基或碳數 2~20 之炔基；或可經 Z^{12} 取代之碳數 6~20 之芳基或碳數 2~20 之雜芳基。

[0094] 碳數 1~20 之烷基及碳數 6~20 之芳基之具體例，可列舉與前述為相同者。

[0095] 碳數 2~20 之烯基，係直鏈狀、分支狀、環狀的任意者均可，其具體例子可列舉乙烯基、*n*-1-丙烯基、*n*-2-丙烯基、1-甲基乙烯基、*n*-1-丁烯基、*n*-2-丁烯基、*n*-3-丁烯基、2-甲基-1-丙烯基、2-甲基-2-丙烯基、1-乙基乙烯基、1-甲基-1-丙烯基、1-甲基-2-丙烯基、*n*-1-戊烯基、*n*-1-癸烯基、*n*-1-二十烯基等。

[0096] 碳數 2~20 之炔基，係直鏈狀、分支狀、環狀的任意者均可，其具體例子可列舉乙炔基、*n*-1-丙炔基、*n*-2-丙炔基、*n*-1-丁炔基、*n*-2-丁炔基、*n*-3-丁炔基、1-甲基-2-丙炔基、*n*-1-戊炔基、*n*-2-戊炔基、*n*-3-戊炔基、*n*-4-戊炔基、1-甲基-*n*-丁炔基、2-甲基-*n*-丁炔基、3-甲基-*n*-丁炔基、1,1-二甲基-*n*-丙炔基、*n*-1-己炔基、*n*-1-癸炔基、*n*-1-十五炔基、*n*-1-二十炔基等。

[0097] 碳數 2~20 之雜芳基之具體例子，可列舉 2-噻吩基、3-噻吩基、2-呋喃基、3-呋喃基、2-噁唑基、4-噁唑基、5-噁唑基、3-異噁唑基、4-異噁唑基、5-異噁唑基、2-噻唑基、4-噻唑基、5-噻唑基、3-異噻唑基、4-異

噻唑基、5-異噻唑基、2-咪唑基、4-咪唑基、2-吡啶基、3-吡啶基、4-吡啶基等。

[0098] R^{107} 及 R^{108} ，係分別獨立地表示氫原子、氯原子、溴原子、碘原子、硝基、氰基、胺基、醛基、羥基、硫醇基、磺酸基、羧基；可經 Z^{11} 取代之碳數 1~20 之烷基、碳數 2~20 之烯基或碳數 2~20 之炔基；可經 Z^{12} 取代之碳數 6~20 之芳基或碳數 2~20 之雜芳基；或 $-NHY^2$ 、 $-NY^3Y^4$ 、 $-C(O)Y^5$ 、 $-OY^6$ 、 $-SY^7$ 、 $-SO_3Y^8$ 、 $-C(O)OY^9$ 、 $-OC(O)Y^{10}$ 、 $-C(O)NHY^{11}$ 或 $-C(O)NY^{12}Y^{13}$ 基。

[0099] $Y^2 \sim Y^{13}$ ，係分別獨立地表示可經 Z^{11} 取代之碳數 1~20 之烷基、碳數 2~20 之烯基或碳數 2~20 之炔基；或可經 Z^{12} 取代之碳數 6~20 之芳基或碳數 2~20 之雜芳基。

[0100] Z^{11} 表示氯原子、溴原子、碘原子、硝基、氰基、胺基、醛基、羥基、硫醇基、磺酸基、羧基；或可經 Z^{13} 取代之碳數 6~20 之芳基或碳數 2~20 之雜芳基。

[0101] Z^{12} 表示氯原子、溴原子、碘原子、硝基、氰基、胺基、醛基、羥基、硫醇基、磺酸基、羧基；或可經 Z^{13} 取代之碳數 1~20 之烷基、碳數 2~20 之烯基或碳數 2~20 之炔基。

[0102] Z^{13} 表示氯原子、溴原子、碘原子、硝基、氰基、胺基、醛基、羥基、硫醇基、磺酸基、或羧基。

[0103] R^{107} 、 R^{108} 及 $Y^2 \sim Y^{13}$ 之烷基、烯基、炔基、芳基及雜芳基，可列舉與前述相同者。

[0104] 此等之中，作為 R^{107} 及 R^{108} ，尤以氫原子或可經 Z^{11} 取代之碳數 1~20 之烷基為佳；更佳為氫原子或可經 Z^{11} 取代之甲基；最佳係均為氫原子。

[0105] L 表示 $-(CR^{107}R^{108})$ -所表示之 2 價基的數目，且係 1~20 之整數，較佳為 1~10、更佳為 1~5、又更佳為 1 或 2、最佳為 1。再者， L 為 2 以上時，複數個 R^{107} ，可互為相同亦可相異，複數個 R^{108} 亦可互為相同亦可相異。

[0106] 特別地，作為 X^1 ，較佳為 $-NY^1$ -或單鍵。又，作為 Y^1 ，較佳為氫原子或可經 Z^{11} 取代之碳數 1~20 之烷基；更佳為氫原子或可經 Z^{11} 取代之甲基；最佳為氫原子。

[0107] 式(20)中， $R^{101} \sim R^{106}$ ，係分別獨立地表示氫原子、氟原子、溴原子、碘原子、硝基、氰基、胺基、醛基、羥基、硫醇基、磺酸基、羧基；可經 Z^{11} 取代之碳數 1~20 之烷基、碳數 2~20 之烯基或碳數 2~20 之炔基；可經 Z^{12} 取代之碳數 6~20 之芳基或碳數 2~20 之雜芳基；或 $-NHY^2$ 、 $-NY^3Y^4$ 、 $-C(O)Y^5$ 、 $-OY^6$ 、 $-SY^7$ 、 $-SO_3Y^8$ 、 $-C(O)OY^9$ 、 $-OC(O)Y^{10}$ 、 $-C(O)NHY^{11}$ 或 $-C(O)NY^{12}Y^{13}$ ($Y^2 \sim Y^{13}$ 係表示與前述相同意義)。此等烷基、烯基、炔基、芳基及雜芳基，可列舉與前述相同者。

[0108] 特別地，式(20)中，作為 $R^{101} \sim R^{104}$ ，較佳為氫原子、鹵素原子、可經 Z^{11} 取代之碳數 1~10 之烷基、或可經 Z^{12} 取代之碳數 6~14 之芳基；更佳為氫原子、或

碳數 1~10 之烷基；最佳係全部為氫原子。

[0109] 又，作為 R^{105} 及 R^{106} ，較佳為氫原子、氯原子、溴原子、碘原子、可經 Z^{11} 取代之碳數 1~10 之烷基、可經 Z^{12} 取代之碳數 6~14 之芳基、或可經 Z^{12} 取代之二苯基胺基(Y^3 及 Y^4 為可經 Z^{12} 取代之苯基的 $-NY^3Y^4$ 基)；更佳為氫原子、或二苯基胺基；又更佳為同時為氫原子或二苯基胺基。

[0110] 此等之中，尤以 $R^{101} \sim R^{104}$ 為氫原子或碳數 1~10 之烷基、 R^{105} 及 R^{106} 為氫原子或二苯基胺基、 X^1 為 $-NY^1-$ 或單鍵且 Y^1 為氫原子或甲基的組合為佳；更佳係 $R^{101} \sim R^{104}$ 為氫原子、 R^{105} 及 R^{106} 同時為氫原子或二苯基胺基、 X^1 為 $-NH-$ 或單鍵的組合。

[0111] 式(20)中， k^1 及 k^2 ，係分別獨立地表示 0 以上之整數，且滿足 $1 \leq k^1 + k^2 \leq 20$ ，但考慮到所得薄膜之電荷傳輸性與苯胺衍生物之溶解性的平衡時，較佳滿足 $2 \leq k^1 + k^2 \leq 8$ 、更佳滿足 $2 \leq k^1 + k^2 \leq 6$ 、又更佳滿足 $2 \leq k^1 + k^2 \leq 4$ 。

[0112] $Y^1 \sim Y^{13}$ 及 $R^{101} \sim R^{108}$ 中， Z^{11} 較佳為氯原子、溴原子、碘原子、或可經 Z^{13} 取代之碳數 6~20 之芳基；更佳為氯原子、溴原子、碘原子、或可經 Z^{13} 取代之苯基；最佳為不存在(亦即非取代)。

[0113] Z^{12} 較佳為氯原子、溴原子、碘原子、或可經 Z^{13} 取代之碳數 1~20 之烷基；更佳為氯原子、溴原子、碘原子、或可經 Z^{13} 取代之碳數 1~4 之烷基；最佳為不

存在(亦即非取代)。

[0114] Z^{13} 較佳為氯原子、溴原子或碘原子；最佳為不存在(亦即非取代)。

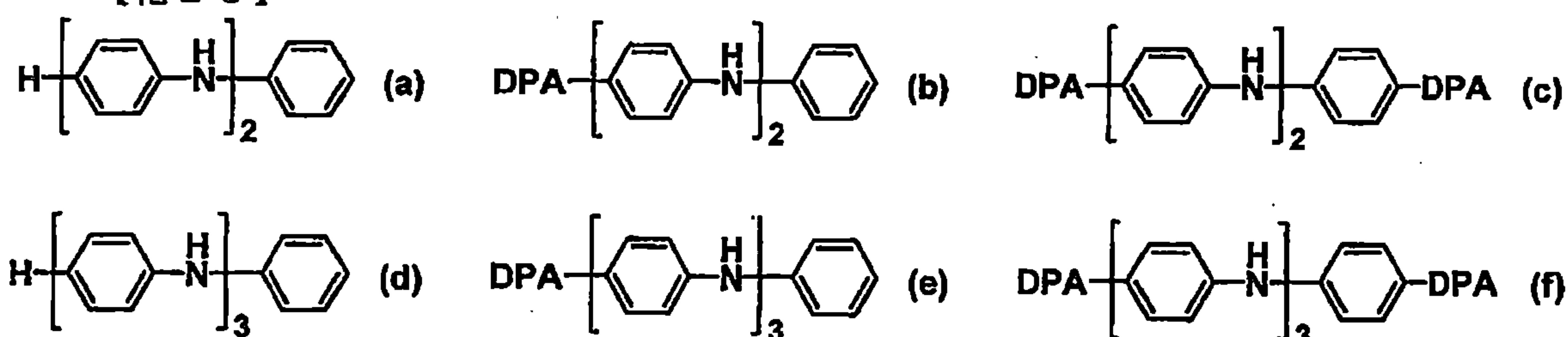
[0115] $Y^1 \sim Y^{13}$ 及 $R^{101} \sim R^{108}$ 中，烷基、烯基及炔基之碳數較佳為 10 以下、更佳為 6 以下、又更佳為 4 以下。又，芳基及雜芳基之碳數較佳為 14 以下、更佳為 10 以下、又更佳為 6 以下。

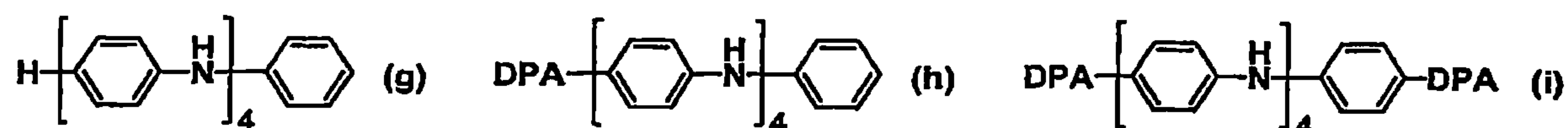
[0116] 再者，前述苯胺衍生物之合成法並無特殊限定，可列舉 Bulletin of Chemical Society of Japan, 67, pp. 1749-1752 (1994)、Synthetic Metals, 84, pp. 119-120 (1997)、Thin Solid Films, 520(24), pp. 7157-7163 (2012)、國際公開第 2008/032617 號、國際公開第 2008/032616 號、國際公開第 2008/129947 號、國際公開第 2013/084664 號等記載之方法。

[0117] 式(20)表示之苯胺衍生物之具體例子，可列舉下述式表示者，但不限定於此等。再者，下述式中，DPA 表示二苯基胺基、Ph 表示苯基、TPA 表示 p-(二苯基胺基)苯基。

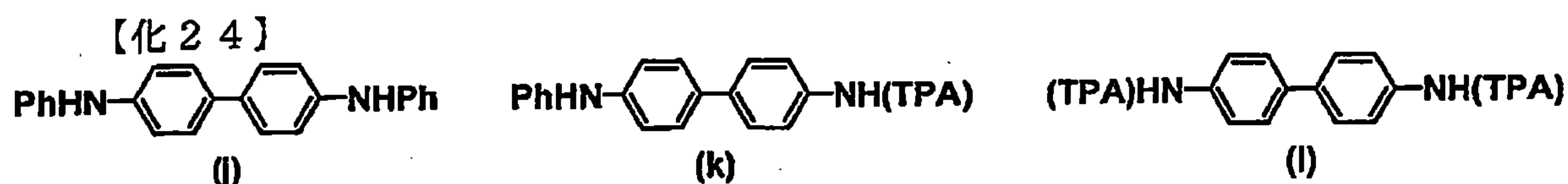
[0118]

【化 2 3】





[0119]



[0120]

[摻雜劑]

本發明之電荷傳輸性塗漆，亦可依所得薄膜之用途，以提高其電荷傳輸能力等為目的，而含有摻雜劑。摻雜劑只要為會溶解於塗漆所使用之至少 1 種溶劑者則無特殊限定，無機系摻雜劑、有機系摻雜劑均可使用。無機系及有機系之摻雜劑，可 1 種單獨使用、亦可組合 2 種以上使用。

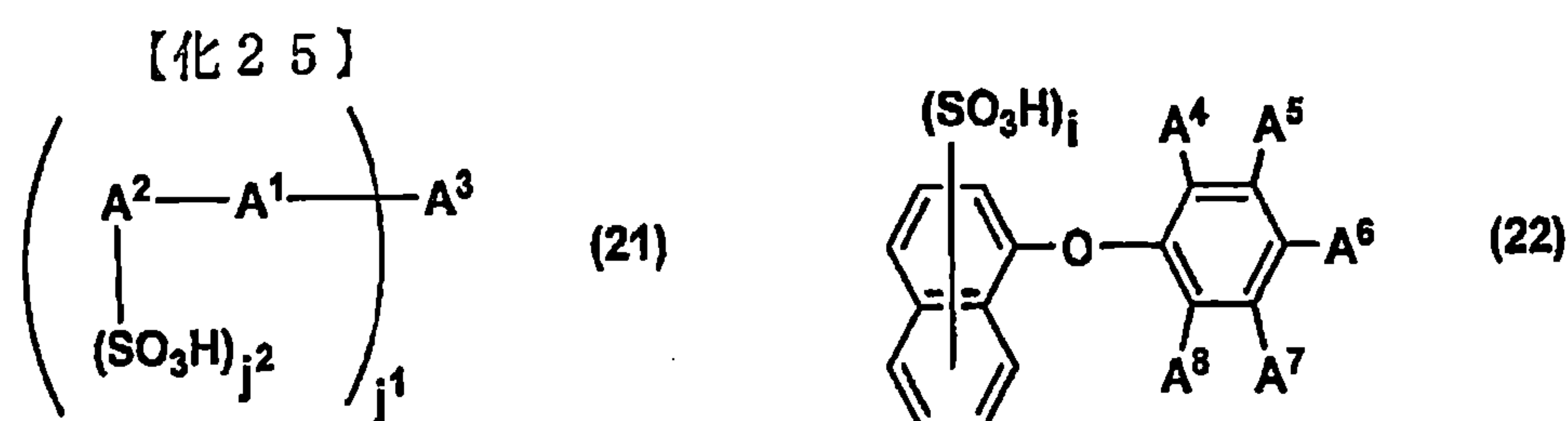
[0121] 本發明之電荷傳輸性塗漆含有摻雜劑時，其含量，相對於電荷傳輸性物質而言，以莫耳比計，較佳為 0.01~20.0 左右、更佳為 0.4~5.0 左右。

[0122] 無機系摻雜劑可列舉氯化氫、硫酸、硝酸、磷酸等之無機酸；氯化鋁(III)(AlCl_3)、四氯化鈦(IV)(TiCl_4)、三溴化硼(BBr_3)、三氟化硼醚錯合物($\text{BF}_3 \cdot \text{OEt}_2$)、氯化鐵(III)(FeCl_3)、氯化銅(II)(CuCl_2)、五氯化銻(V)(SbCl_5)、五氟化銻(V)(SbF_5)、五氟化砷(V)(AsF_5)、五氟化磷(PF_5)、參(4-溴苯基)鋁六氯銻酸鹽(TBPAH)等之金屬鹵化物； Cl_2 、 Br_2 、 I_2 、 ICl 、 ICl_3 、 IBr 、 IF_4 等之鹵素；磷鉬酸、磷鎢酸等之雜多酸等。此等之中，較佳為磷

鉬酸、磷鎢酸等之雜多酸。

[0123] 有機系摻雜劑，可列舉苯磺酸、甲苯磺酸、p-苯乙烯磺酸、2-萘磺酸、4-羥基苯磺酸、5-磺水楊酸、p-十二烷基苯磺酸、二己基苯磺酸、2,5-二己基苯磺酸、二丁基萘磺酸、6,7-二丁基-2-萘磺酸、十二烷基萘磺酸、3-十二烷基-2-萘磺酸、己基萘磺酸、4-己基-1-萘磺酸、辛基萘磺酸、2-辛基-1-萘磺酸、己基萘磺酸、7-己基-1-萘磺酸、6-己基-2-萘磺酸、二壬基萘磺酸、2,7-二壬基-4-萘磺酸、二壬基萘二磺酸、2,7-二壬基-4,5-萘二磺酸、國際公開第 2005/000832 號記載之 1,4-苯并二噁烷二磺酸化合物、國際公開第 2006/025342 號記載之芳基磺酸化合物、國際公開第 2009/096352 號記載之芳基磺酸化合物、聚苯乙烯磺酸等之芳基磺酸化合物等。

[0124] 又，下述式(21)或(22)表示之芳基磺酸化合物，亦可適合使用作為摻雜劑。



[0125] 式(21)中， A^1 表示 -O- 或 -S-，較佳為 -O-。 A^2 表示萘環或蒽環，較佳為萘環。 A^3 表示 2~4 價之全氟聯苯基。 j^1 表示 A^1 與 A^3 之鍵結數，且為滿足 $2 \leq j^1 \leq 4$ 之整數，較佳係 A^3 為 2 價之全氟聯苯基、且 j^1 為 2。 j^2 表示鍵結於 A^2 之磺酸基數，且為滿足 $1 \leq j^2 \leq 4$ 之整數，較適

宜為 2。

[0126] 式(22)中， $A^4 \sim A^8$ ，係分別獨立地表示氫原子、鹵素原子、氟基、碳數 1~20 之烷基、碳數 1~20 之鹵化烷基或碳數 2~20 之鹵化烯基，但 $A^4 \sim A^8$ 當中至少 3 者為鹵素原子。 i 表示鍵結於萘環之磺酸基數，且為滿足 $1 \leq i \leq 4$ 之整數，較佳為 2~4、更佳為 2。

[0127] 碳數 1~20 之鹵化烷基，可列舉三氟甲基、2,2,2-三氟乙基、全氟乙基、3,3,3-三氟丙基、2,2,3,3,3-五氟丙基、全氟丙基、4,4,4-三氟丁基、3,3,4,4,4-五氟丁基、2,2,3,3,4,4,4-七氟丁基、全氟丁基等。碳數 2~20 之鹵化烯基，可列舉全氟乙烯基、1-全氟丙烯基、全氟烯丙基、全氟丁烯基等。

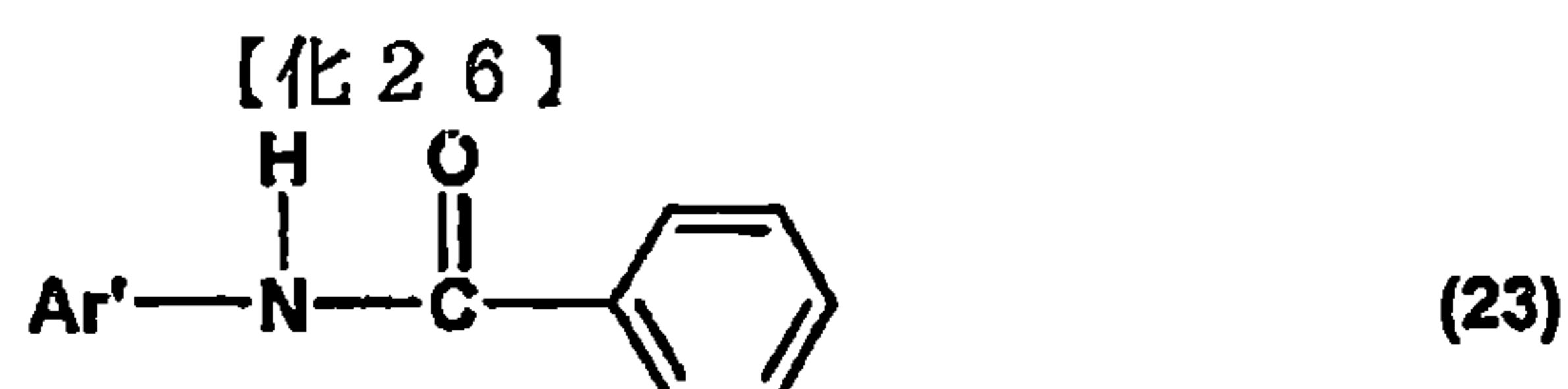
[0128] 鹵素原子、碳數 1~20 之烷基之例子可列舉與前述相同者，但作為鹵素原子，較佳為氟原子。

[0129] 此等之中， $A^4 \sim A^8$ 尤以氫原子、鹵素原子、氟基、碳數 1~10 之烷基、碳數 1~10 之鹵化烷基或碳數 2~10 之鹵化烯基，且 $A^4 \sim A^8$ 當中至少 3 者為氟原子為佳；更佳為氫原子、氟原子、氟基、碳數 1~5 之烷基、碳數 1~5 之氟化烷基或碳數 2~5 之氟化烯基，且 $A^4 \sim A^8$ 當中至少 3 者為氟原子；又更佳為氫原子、氟原子、氟基、碳數 1~5 之全氟烷基或碳數 1~5 之全氟烯基，且 A^4 、 A^5 及 A^8 為氟原子。

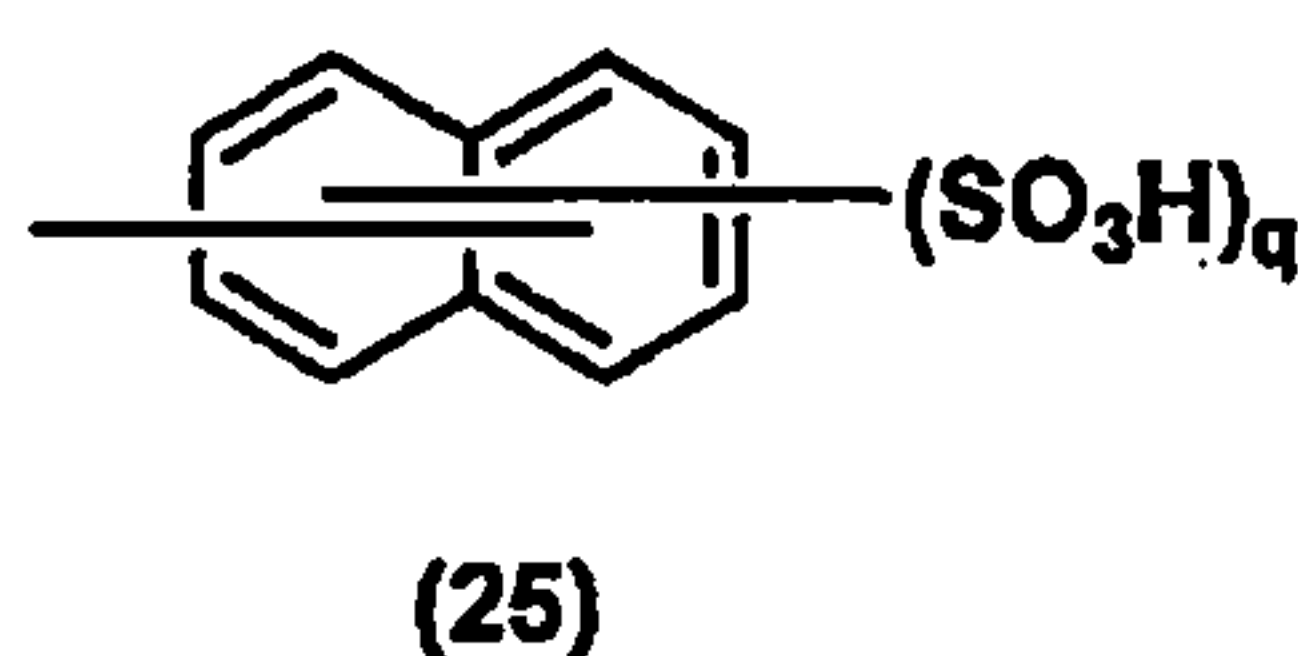
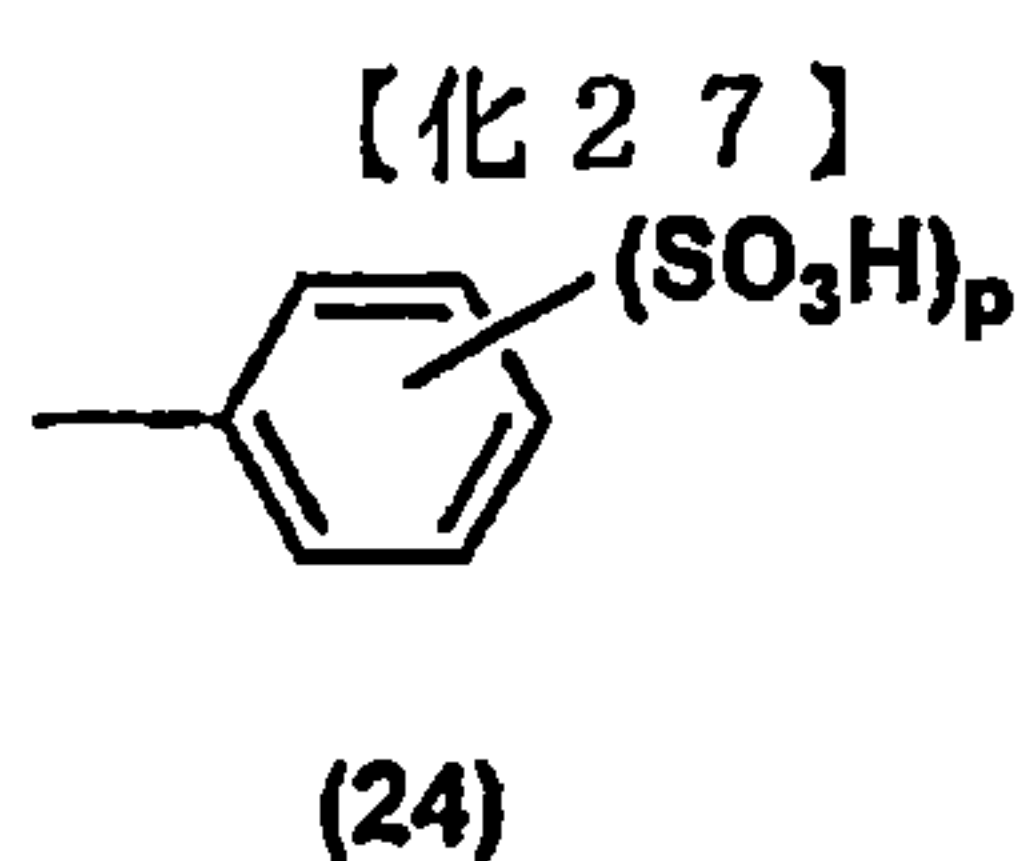
[0130] 再者，全氟烷基，係指烷基之全部氫原子被取代為氟原子之基，全氟烯基係指烯基之全部氫原子被取

代為氟原子之基。

[0131] 進一步地，下述式(23)表示之芳基磺酸化合物亦可適合使用作為摻雜劑。

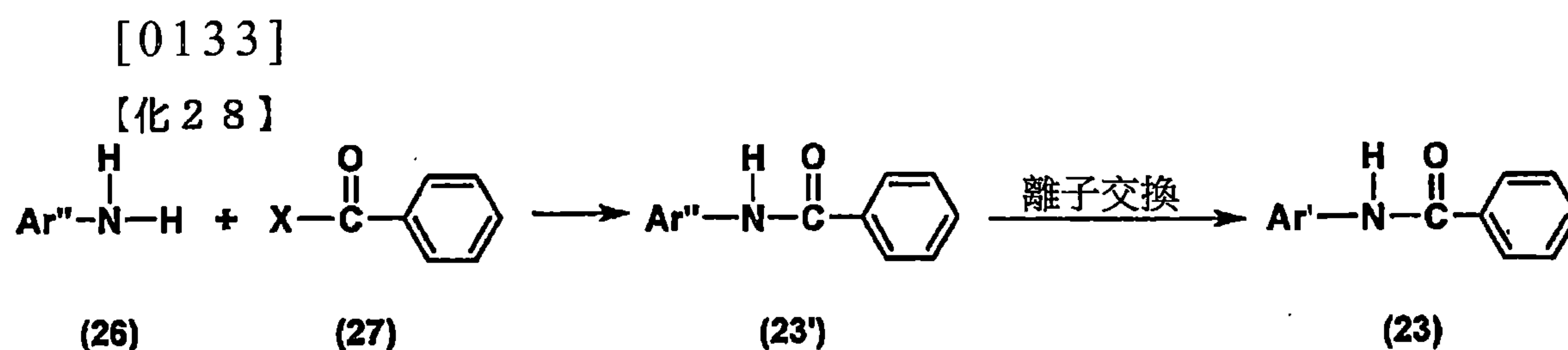


[式中，Ar'為式(24)或(25)表示之基。

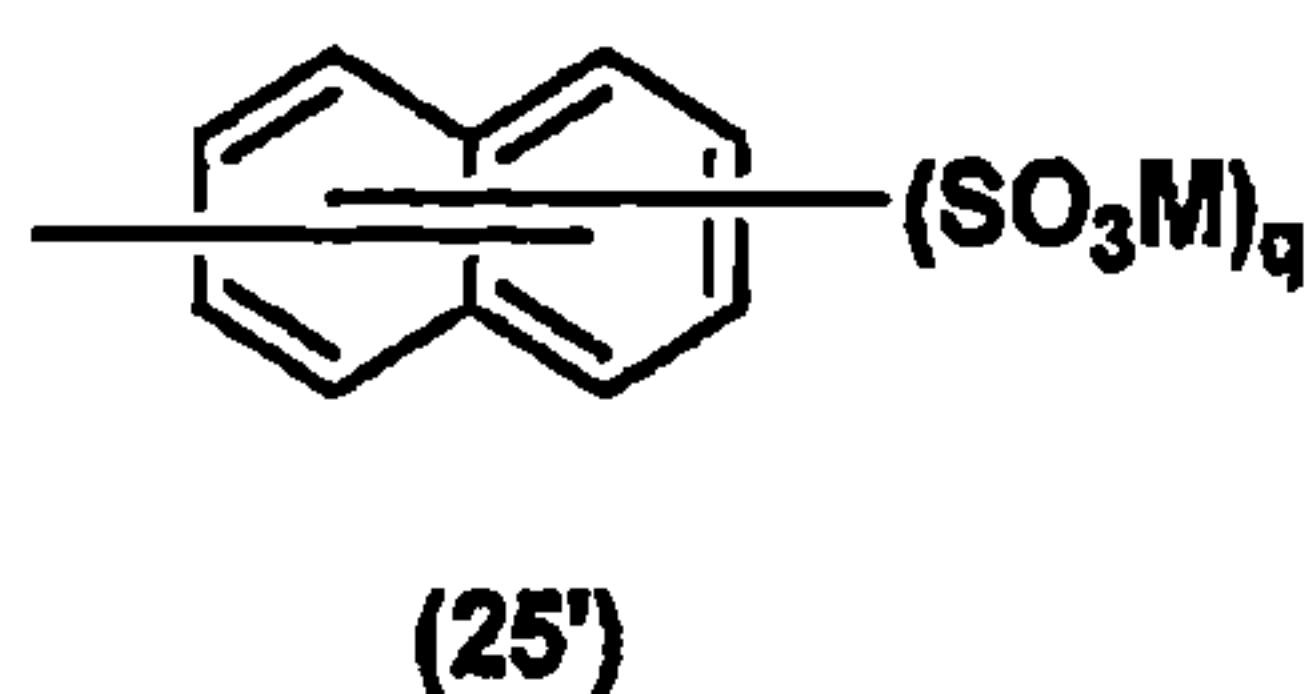
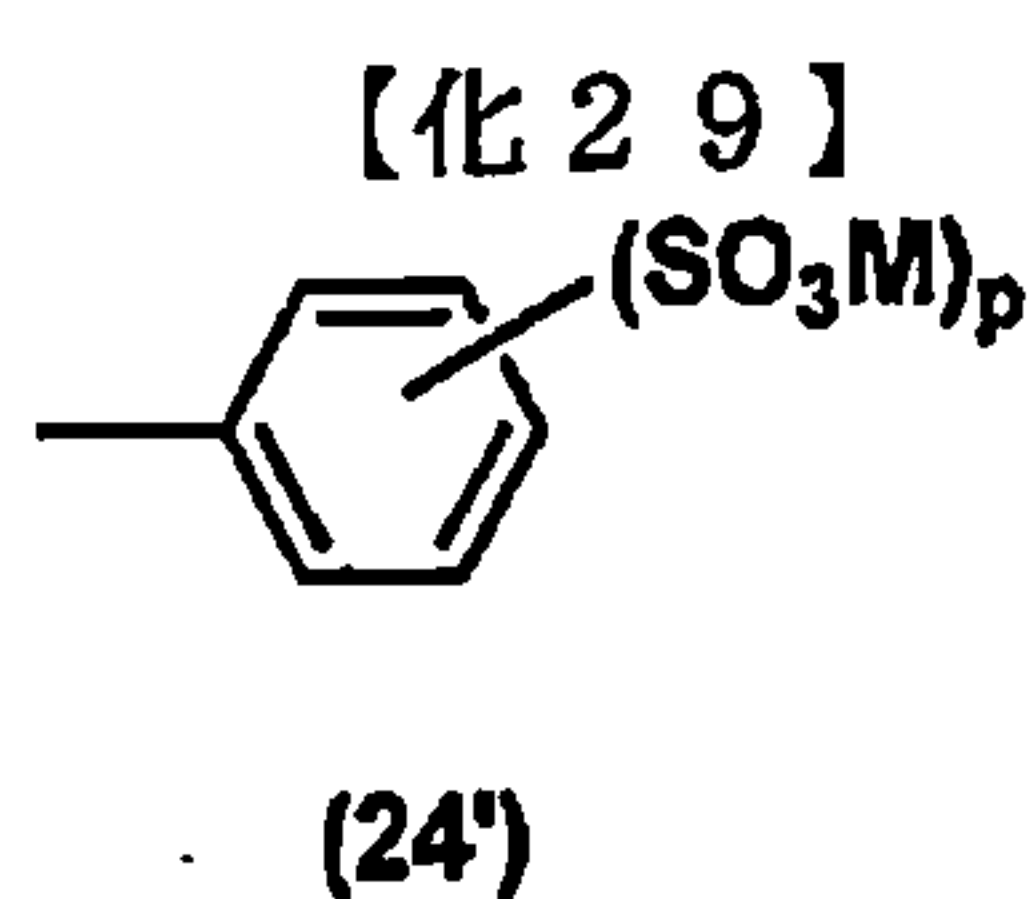


(式中，p表示1~5之整數，q表示1~7之整數)]。

[0132] 式(23)表示之芳基磺酸化合物，可藉由使式(26)表示之胺化合物與式(27)表示之酸鹵化物反應而得到式(23')表示之芳基磺酸鹽，且將該鹽進行離子交換處理而得到。



[式中，Ar'及X係與前述相同。Ar''表示式(24')或(25')表示之基；



(式中， p 及 q 係與前述相同。 M 表示鈉、鉀等之鹼金屬原子)]。

[0134] 式(26)表示之胺化合物，可列舉苯胺-2,4-二磺酸二鈉、苯胺-2,5-二磺酸二鈉、8-胺基-萘-1,5-二磺酸二鈉、2-胺基-萘-1,5-二磺酸二鈉、2-胺基-萘-3,6-二磺酸二鈉、7-胺基萘-1,5-二磺酸二鈉、7-胺基萘-2,4-二磺酸二鈉、7-胺基萘-1,3-二磺酸二鈉等，但不限定於此等。再者，式(26)表示之胺化合物，亦可使用水合物。

[0135] 式(27)表示之酸鹵化物，可列舉苯甲醯氯、苯甲醯溴等。

[0136] 反應溶劑較佳為非質子性極性有機溶劑，可列舉例如 N,N -二甲基甲醯胺、 N,N -二甲基乙醯胺、 N -甲基吡咯啉酮、1,3-二甲基-2-四氫咪唑酮、二甲基亞砷、四氫呋喃、二噁烷等。由反應後之反應溶劑的去除容易性之觀點而言，較適宜為 N,N -二甲基甲醯胺、 N,N -二甲基乙醯胺、四氫呋喃、二噁烷等。

[0137] 反應溫度，通常可為 -50°C 至所使用之溶劑的沸點，較佳為 $0\sim 140^{\circ}\text{C}$ 之範圍。反應時間通常為 $0.1\sim 100$ 小時。

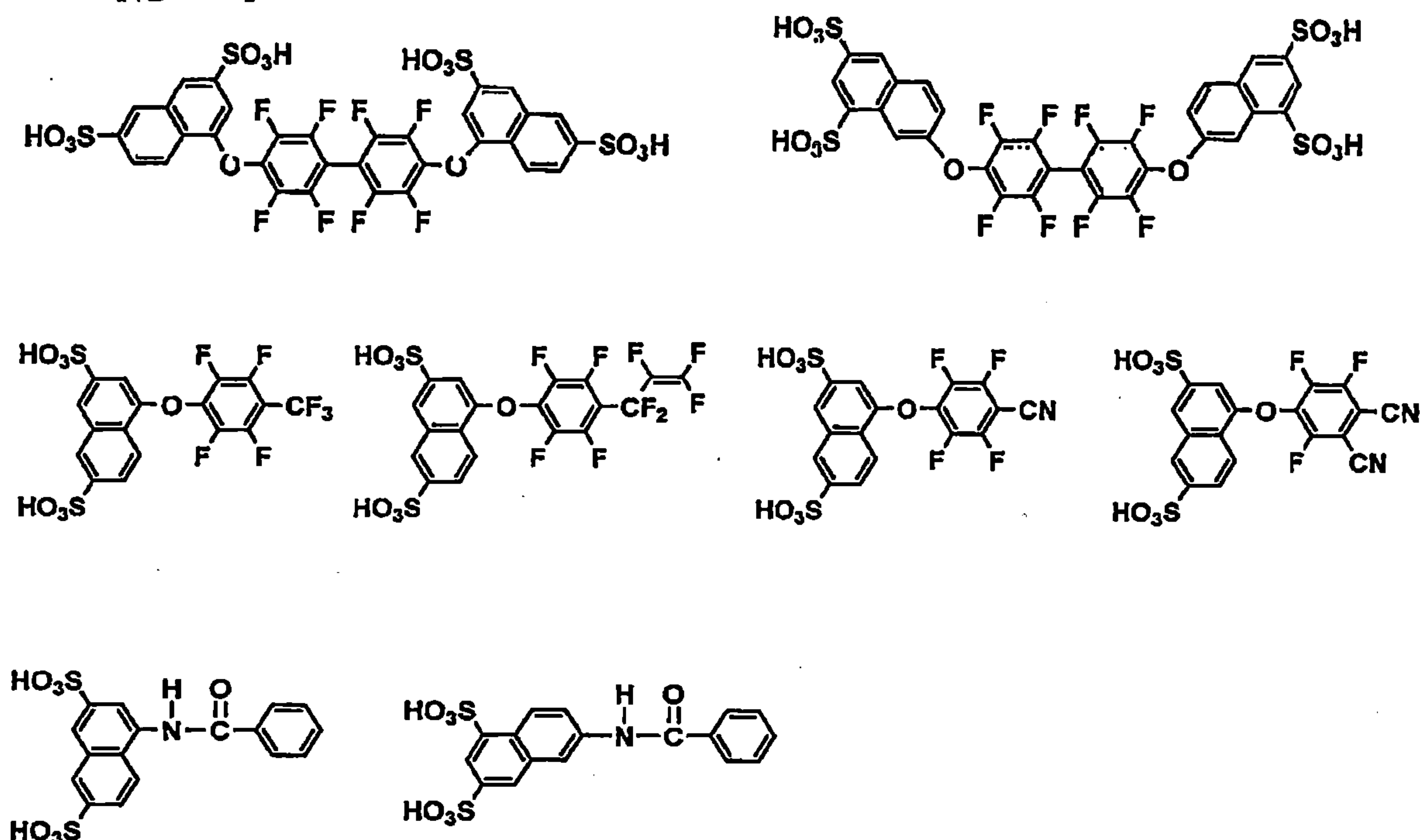
[0138] 反應結束後，藉由過濾、反應溶劑之餾去等以回收式(23')表示之芳基磺酸鹽後，例如可藉由陽離子交換樹脂將磺酸鹽質子化，藉以製造式(23)表示之芳基磺酸化合物。

[0139] 再者，式(27)表示之酸鹵化物，可藉由使安息

香酸與例如亞硫醯氯或草醯氯、磷醯氯、硫醯氯、三氯化磷、五氯化磷等之親電子性的鹵化劑反應而得到。

[0140] 適合的摻雜劑之具體例子，可列舉磷鉬酸、磷鎢酸及以下所示者，但不限定於此等。

【化30】



[0141] 一併含有前述含有氟原子之化合物、不含有氟原子之電荷傳輸性物質、及摻雜劑的塗漆所用之高溶解性溶劑，可列舉例如環己酮、N,N-二甲基甲醯胺、N,N-二甲基乙醯胺、N,N-二甲基異丁基醯胺、N-甲基吡咯啉酮、1,3-二甲基-2-四氫咪唑酮等之有機溶劑，但不限定於此等。又，與僅由含有氟原子之化合物所成的電荷傳輸性塗漆同樣地，作為塗漆之調整，可含有前述高黏度有機溶劑或其他溶劑，其溶劑種類亦與前述相同。

[0142] 電荷傳輸性塗漆之配製方法並無特殊限定，可列舉例如將本發明之含有氟原子之化合物、不含有氟原

子之電荷傳輸性物質、摻雜劑等溶解於高溶解性溶劑，對其添加高黏度有機溶劑之方法；或混合高溶解性溶劑與高黏度有機溶劑，對其溶解本發明之含有氟原子之化合物、不含有氟原子之電荷傳輸性物質、摻雜劑等之方法。

[0143]

[電荷傳輸性薄膜]

藉由將本發明之電荷傳輸性塗漆塗佈於基材上並乾燥，可於基材上形成電荷傳輸性薄膜。

[0144] 塗漆之塗佈方法，可列舉浸漬法、旋轉塗佈法、轉印印刷法、輥塗佈法、刷毛塗佈、噴墨法、噴霧法、狹縫塗佈法等，但不限定於此等。較佳為依塗佈方法，來調節塗漆之黏度及表面張力。

[0145] 又，使用本發明之塗漆時，液膜之乾燥條件亦無特殊限定，例如有使用加熱板之加熱燒成。通常藉由於 100～260℃ 左右之範圍內加熱燒成 1 分鐘～1 小時左右，得到乾燥膜。再者，燒成環境亦無特殊限定。

[0146] 電荷傳輸性薄膜之膜厚並無特殊限定，作為有機 EL 元件之功能層使用時，較佳為 5～200nm。使膜厚變化之方法，係有使塗漆中之固體成分濃度變化、或使塗佈時基板上之溶液量變化等之方法。

[0147]

[有機 EL 元件]

使用本發明之電荷傳輸性薄膜的有機 EL 元件，係指具有一對電極，於此等電極之間具有作為發光層之有機

層，且於陽極與發光層之間具有本發明之電荷傳輸性薄膜者。有機 EL 元件之元件構造之一例，可列舉陽極/電洞注入層/電洞傳輸層/電子阻擋層/發光層/電洞阻擋層/電子傳輸層/電子注入層/陰極，但不限定於此。

[0148] 本發明之電荷傳輸性薄膜，於有機 EL 元件中，可適合使用作為電洞注入層、電洞傳輸層、電洞注入傳輸層，可更適合使用作為電洞傳輸層。再者，「電洞注入層」、「電洞傳輸層」及「電洞注入傳輸層」，係指於發光層與陽極之間所形成之層，其係具有將電洞由陽極傳輸至發光層之功能者。於發光層與陽極之間僅設置 1 層電洞傳輸性材料之層時，其係「電洞注入傳輸層」，於發光層與陽極之間設置 2 層以上之電洞傳輸性材料之層時，較接近陽極之層為「電洞注入層」，其以外之層為「電洞傳輸層」。特別是電洞注入層及電洞注入傳輸層，係使用不僅自陽極之電洞接受性，且分別對電洞傳輸層及發光層之電洞注入性亦優良的薄膜。

[0149] 使用本發明之電荷傳輸性塗漆來製作有機 EL 元件時的使用材料，並無特殊限定，可由以往公知之各種材料中適當選擇來使用。又，關於有機 EL 元件之製法亦無特殊限定。

[實施例]

[0150] 以下，列舉合成例、實施例及比較例以更具體說明本發明，但本發明不受下述實施例限定。再者，所

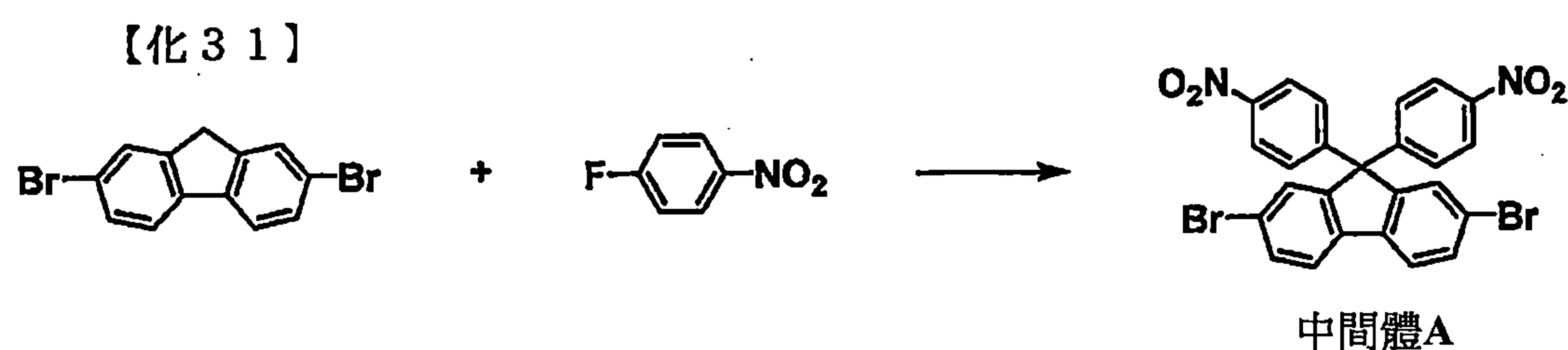
使用之裝置係如以下所述。

- (1)¹H-NMR 測定：Varian 公司製、NMR system 400NB、BRUKER 公司製、Ascend 500
- (2)基板洗淨：長州產業(股)製、基板洗淨裝置(減壓電漿方式)
- (3)塗漆之塗佈：Mikasa(股)製、旋轉塗佈器 MS-A100
- (4)膜厚測定：(股)小坂研究所製、微細形狀測定機 Surfcoorder ET-4000
- (5)元件之製作：長州產業(股)製、多功能蒸鍍裝置系統 C-E2L1G1-N
- (6)元件之電流密度測定：(有)Tech-world 製、I-V-L 測定系統

[0151]

[1]化合物之合成

[合成例 1]中間體 A 之合成

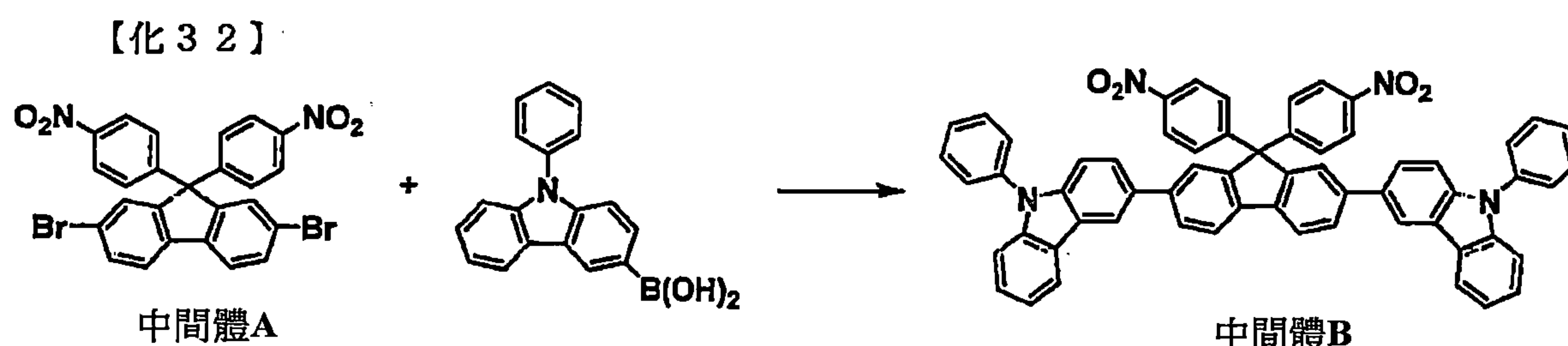


[0152] 遵照 J. Mater. Chem. C, 2014, pp.1068-1075 記載之方法實施合成，得到中間體 A(2,7-二溴-9,9'-雙(4-硝基苯基)-9H-芴)。

[0153]

[實施例 1]含有氟原子之化合物 A 之合成

[實施例 1-1]中間體 B 之合成



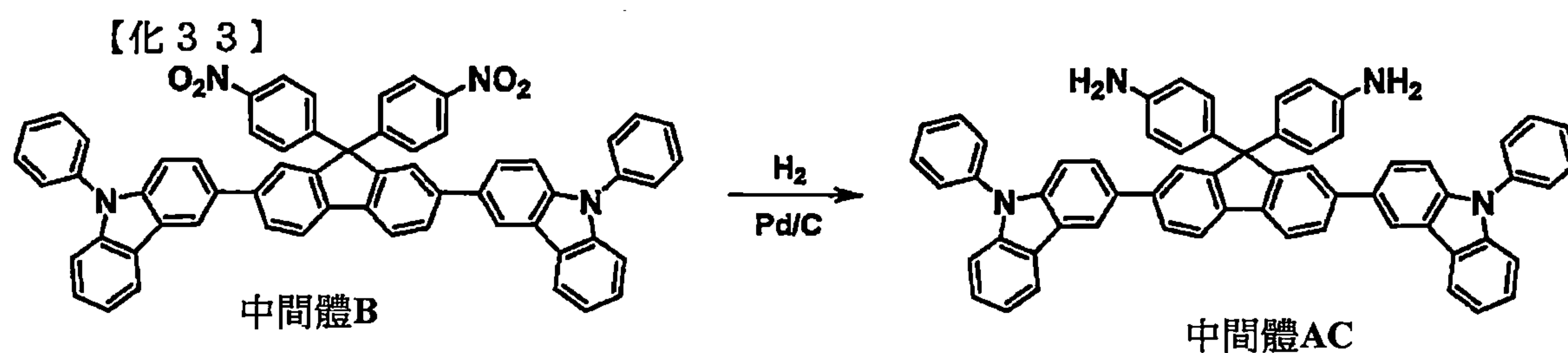
[0154] 於反應容器中加入中間體 A 1.80g、(9-苯基-9H-呋啶-3-基)硼酸 2.28g、肆-三苯基膦鈹 0.18g、三辛基甲基氯化銨 (Aliquat 336) 0.30g、四氫呋喃 18mL、及 2mol/L 碳酸鉀水溶液 12mL，進行氮取代後，於 60℃ 攪拌 4.5 小時。使反應液回到室溫後，添加甲苯與飽和食鹽水，進行分液。將所得之有機層之溶劑予以減壓餾去。將濃縮殘渣以管柱層析(氯仿/n-己烷 70/30→90/10)進行精製，收集含目標物之區分，將溶劑減壓餾去。將濃縮殘渣溶解於氯仿後，滴下至 n-己烷中，過濾懸浮液。將濾物乾燥，得到作為目標之中間體 B(3,3'-(9,9-雙(4-硝基苯基)-9H-萸-2,7-二基)雙(9-苯基-9H-呋啶))2.44g(產率：86%)。

$^1\text{H-NMR}$ 之測定結果如以下所示。

$^1\text{H-NMR}$ (400MHz, DMSO- d_6) δ [ppm]: 8.76(d, $J=1.6\text{Hz}$, 2H), 8.32(d, $J=7.6\text{Hz}$, 2H), 8.18-8.20(m, 4H), 8.14(d, $J=8.0\text{Hz}$, 2H), 7.89-7.94(m, 4H), 7.59-7.74(m, 14H), 7.52(t, $J=7.2\text{Hz}$, 2H), 7.35-7.44(m, 6H), 7.28(t, $J=8.0\text{Hz}$, 2H)。

[0155]

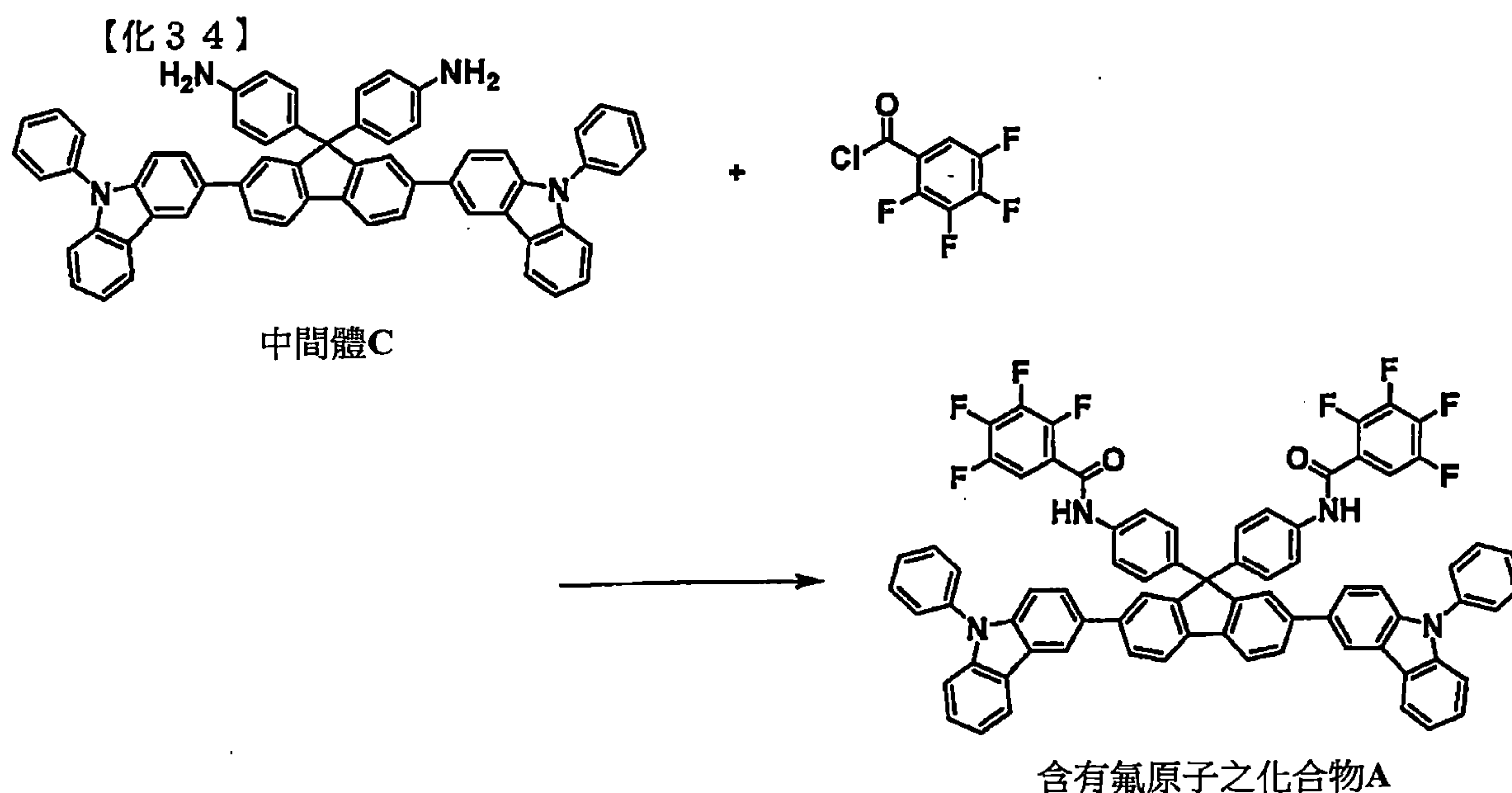
[實施例 1-2]中間體 C 之合成



[0156] 於反應容器中加入中間體 B 1.80g、5%鈀碳 (NE CHEMCAT 公司製、AER 型、49%含水)0.18g、及四氫呋喃 18mL，進行氫取代後於 50℃ 攪拌 23 小時。使反應液回到室溫後，添加四氫呋喃，進行過濾。將濾液濃縮，將濃縮液滴下至 n-己烷中，將懸浮液於室溫下攪拌後，進行過濾。將濾物乾燥，得到含有作為目標之中間體 C(4,4'-(2,7-雙(9-苯基-9H-吡啶-3-基)-9H-芴-9,9-二基)二苯胺)的混合物 1.59g。再者，不進一步進行精製，而使用作為下一步驟之原料。

[0157]

[實施例 1-3]含有氟原子之化合物 A 之合成



[0158] 於反應容器中加入前述含有中間體 C 之混合物 1.00g、N,N-二甲基甲醯胺 10mL、及三甲基胺 580 μ L，進行氮取代後，一邊於冰浴冷卻，一邊滴下 2,3,4,5-四氟苯甲醯氯 0.96g。滴下結束後，於室溫攪拌 3 小時。將反應混合物滴下至離子交換水中後，直接於室溫攪拌 0.5 小時。過濾所得到之懸浮液後，將濾物懸浮於 2-丙醇，進行過濾。將濾物溶解於氯仿，滴下至甲醇中，將懸浮液於室溫下攪拌。進行過濾，將所得到之濾物乾燥，得到作為目標之含有氟原子之化合物 A(N,N'-((2,7-雙(9-苯基-9H-吡啶-3-基)-9H-芴-9,9-二基)雙(4,1-伸苯基))雙(2,3,4,5-四氟苯甲醯胺))1.02g(產率：72%)。¹H-NMR 之測定結果如下所示。

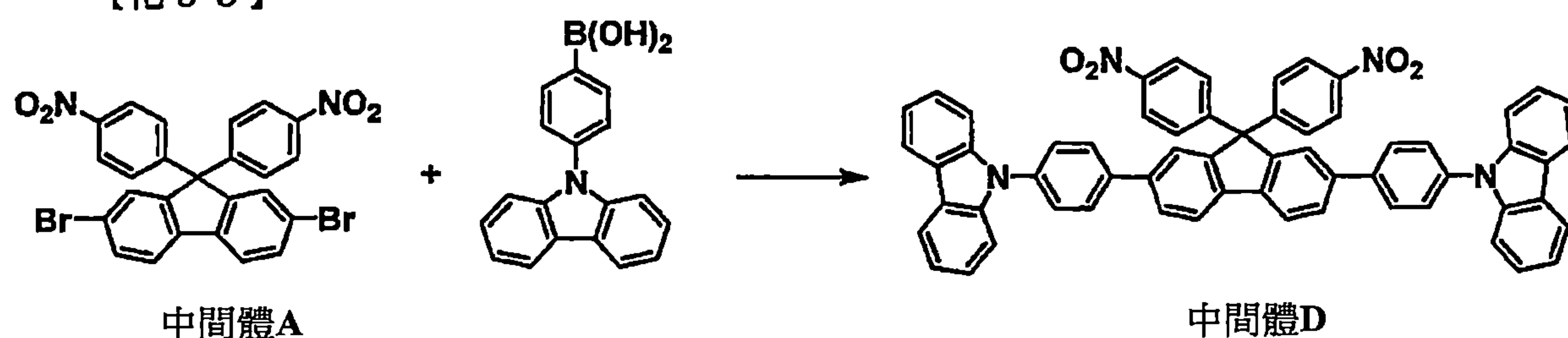
¹H-NMR (400MHz, DMSO-d₆) δ [ppm]：8.63(d, J=1.6Hz, 2H), 8.39(d, J=8.0Hz, 2H), 8.12(d, J=8.0Hz, 2H), 7.92(dd, J=8.0, 1.6Hz, 2H), 7.88(s, 2H), 7.64-7.78(m, 16H), 7.54-7.58(m, 2H), 7.30-7.48(m, 12H)。

[0159]

[實施例 2]含有氟原子之化合物 B 之合成

[實施例 2-1]中間體 D 之合成

【化 3 5】



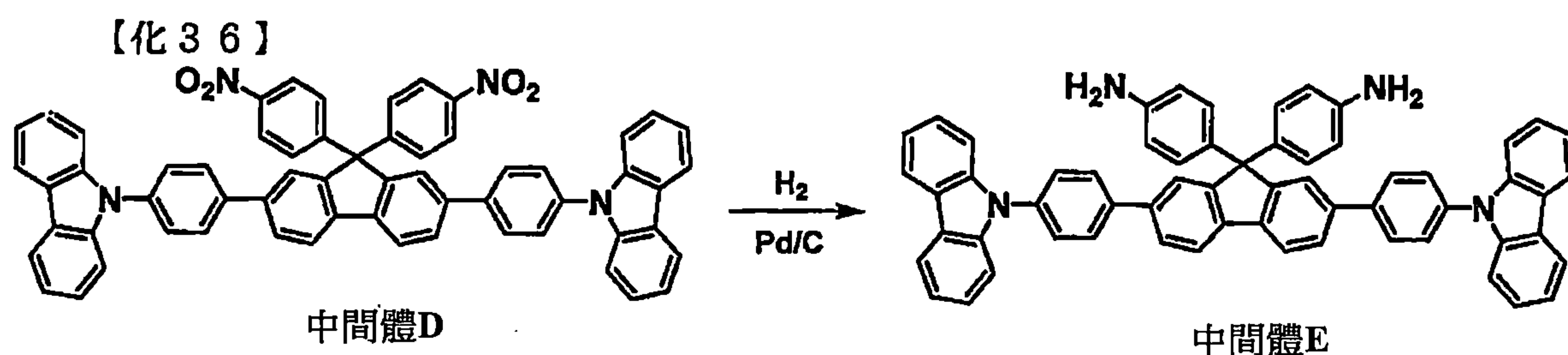
[0160] 於反應容器中加入中間體 A 1.81g、(4-(9H-吡

唑-9-基)苯基)硼酸 2.28g、肆-三苯基膦鈀 0.18g、三辛基甲基氯化銨 (Aliquat 336)0.30g、四氫呋喃 18mL、及 2mol/L 碳酸鉀水溶液 12mL，進行氫取代後，於 60℃ 攪拌 3 小時。使反應液回到室溫後，添加甲苯，進行分液。將所得之有機層之溶劑予以減壓餾去。對濃縮殘渣添加氯仿與 n-己烷之混合溶劑，暫時於室溫下放置，過濾所得到之懸浮液。將濾物乾燥，得到作為目標之中間體 D(9,9'-((9,9-雙(4-硝基苯基)-9H-芴-2,7-二基)雙(4,1-伸苯基))雙(9H-咔唑))2.46g(產率：87%)。¹H-NMR 之測定結果如下所示。

¹H-NMR (400MHz, THF-d₈) δ[ppm]：8.19(d, J=9.2Hz, 4H), 8.11-8.15(m, 6H), 7.90-7.95(m, 8H), 7.68(d, J=8.8Hz, 4H), 7.64(d, J=9.2Hz, 4H), 7.34-7.42(m, 8H), 7.21-7.25(m, 4H)。

[0161]

[實施例 2-2]中間體 E 之合成

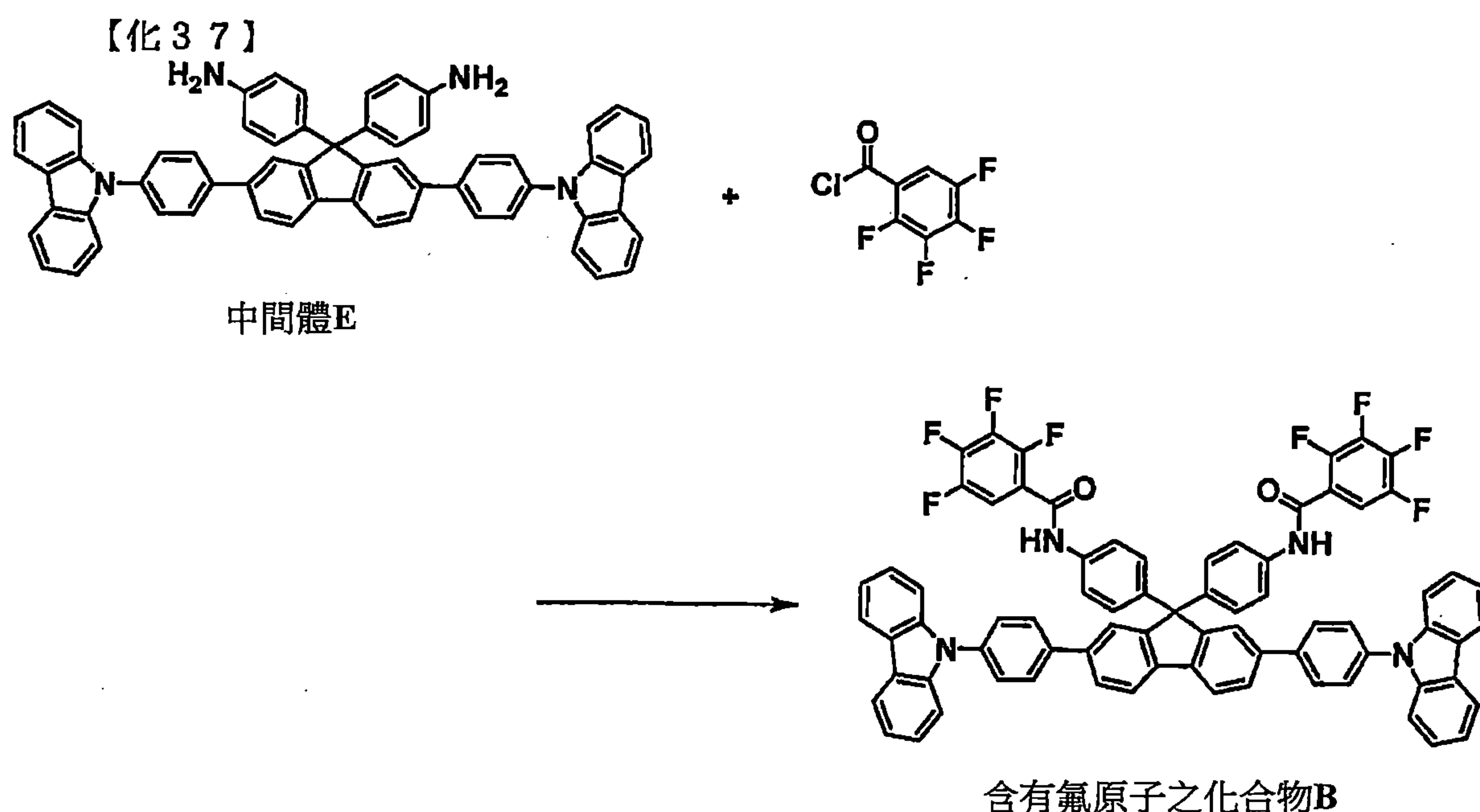


[0162] 於反應容器中加入中間體 D 1.80g、5%鈀碳 (NE CHEMCAT 公司製、AER 型、49%含水)0.31g、及四氫呋喃 18mL，進行氫取代之後於 50℃ 攪拌 53 小時。使反應液回到室溫後，添加四氫呋喃，進行過濾。將濾液濃

縮，將濃縮液滴下至 *n*-己烷中，將懸浮液於室溫下攪拌後，進行過濾。將濾物乾燥，得到含有作為目標之中間體 E(4,4'-(2,7-雙(4-(9H-吡啶-9-基)苯基)-9H-芴-9,9-二基)二苯胺)的混合物 1.28g。再者，不進一步進行精製，而使用作為下一步驟之原料。

[0163]

[實施例 2-3]含有氟原子之化合物 B 之合成



[0164] 於反應容器中加入前述含有中間體 E 之混合物 1.00g、N,N-二甲基甲醯胺 10mL、及三甲基胺 450 μ L，進行氮取代後，一邊於冰浴冷卻，一邊滴下 2,3,4,5-四氟苯甲醯氯 0.62g。滴下結束後，於室溫攪拌 0.5 小時。將反應混合物滴下至離子交換水中後，直接於室溫攪拌 0.5 小時。過濾所得到之懸浮液後，將濾物溶解於氯仿，滴下至 *n*-己烷中，將懸浮液於室溫下攪拌。進行過濾，將所得之濾物以管柱層析進行精製，收集含有目標物之區分，將

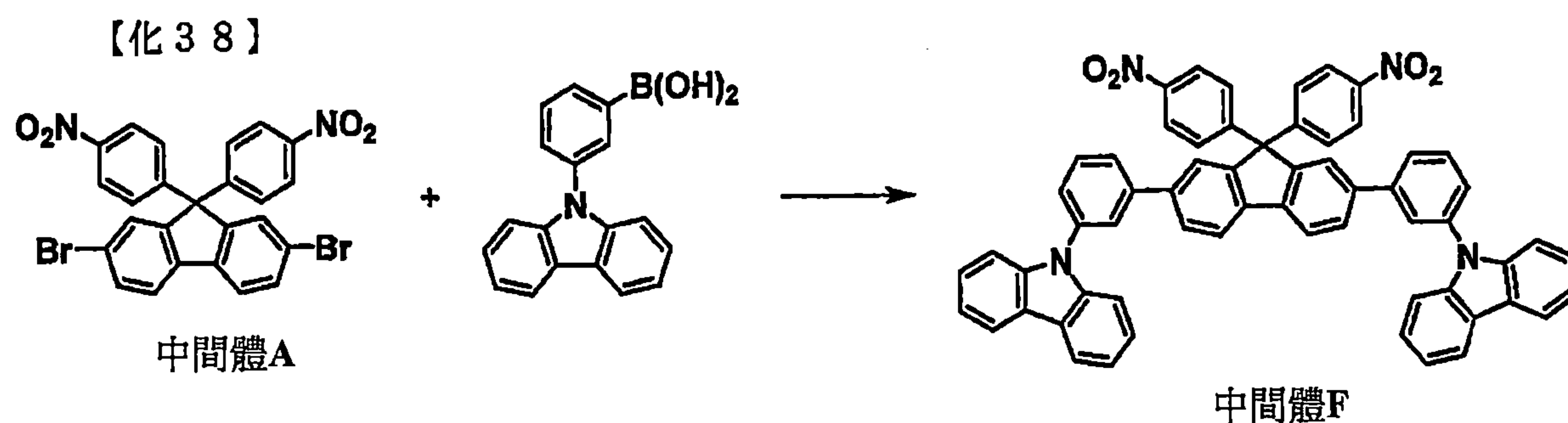
溶劑減壓餾去。將濃縮殘渣溶解於氯仿，滴下至甲醇中，將懸浮液於室溫下攪拌 0.5 小時。進行過濾，將濾物乾燥，得到作為目標之含有氟原子之化合物 B(N,N'-((2,7-雙(4-(9H-吡啶-9-基)苯基)-9H-芴-9,9-二基)雙(4,1-伸苯基))雙(2,3,4,5-四氟苯甲醯胺))0.88g(產率：62%)。¹H-NMR 之測定結果如以下所示。

¹H-NMR (400MHz, DMSO-d₆) δ[ppm] : 10.63(s, 2H), 8.23(d, J=8.0Hz, 4H), 8.15(d, J=8.0Hz, 2H), 7.96(d, J=8.8Hz, 4H), 7.87-7.90(m, 4H), 7.69(d, J=8.8Hz, 6H), 7.64(d, J=8.8Hz, 4H), 7.39-7.44(m, 8H), 7.33(d, J=8.8Hz, 4H), 7.25-7.29(m, 4H)。

[0165]

[實施例 3]含有氟原子之化合物 C 之合成

[實施例 3-1]中間體 F 之合成



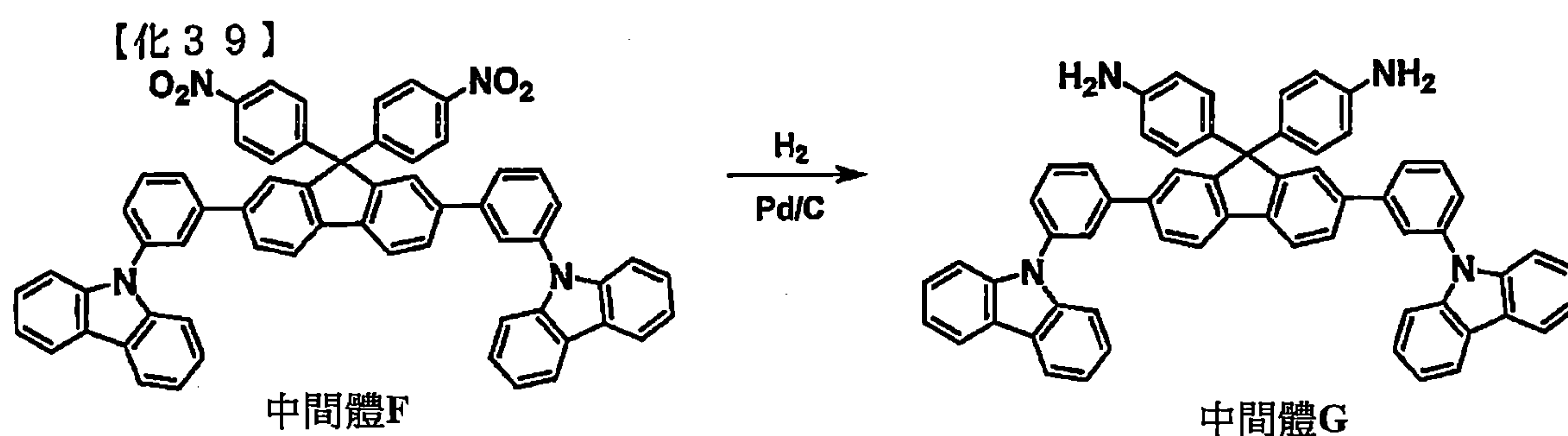
[0166] 於反應容器中加入中間體 A 1.81g、(3-(9H-吡啶-9-基)苯基)硼酸 2.28g、肆-三苯基膦鈀 0.18g、三辛基甲基氯化銨 (Aliquat 336)0.32g、四氫呋喃 18mL、及 2mol/L 碳酸鉀水溶液 12mL，進行氮取代後，於 60℃ 攪拌 3 小時。使反應液回到室溫後，添加甲苯，進行分液。將

所得之有機層之溶劑予以減壓餾去。將濃縮殘渣以管柱層析(氯仿/*n*-己烷 70/30→95/5)進行精製，收集含目標物之區分，將溶劑減壓餾去。將濃縮殘渣溶解於氯仿後，滴下至 *n*-己烷中，過濾懸浮液。將濾物乾燥，得到作為目標之中間體 F(9,9'-((9,9-雙(4-硝基苯基)-9H-芴-2,7-二基)雙(3,1-伸苯基))雙(9H-吡啶))2.28g(產率：80%)。¹H-NMR 之測定結果如以下所示。

¹H-NMR (400MHz, DMSO-d₆) δ[ppm]：8.26(d, J=8.0Hz, 4H), 8.18(d, J=8.4Hz, 2H), 8.14(d, J=8.8Hz, 4H), 7.94-7.96(m, 6H), 7.85(d, J=8.4Hz, 2H), 7.76(t, J=8.0Hz, 2H), 7.61-7.63(m, 2H), 7.57(d, J=8.8Hz, 4H), 7.41-7.44(m, 8H), 7.28-7.32(m, 4H)。

[0167]

[實施例 3-2]中間體 G 之合成

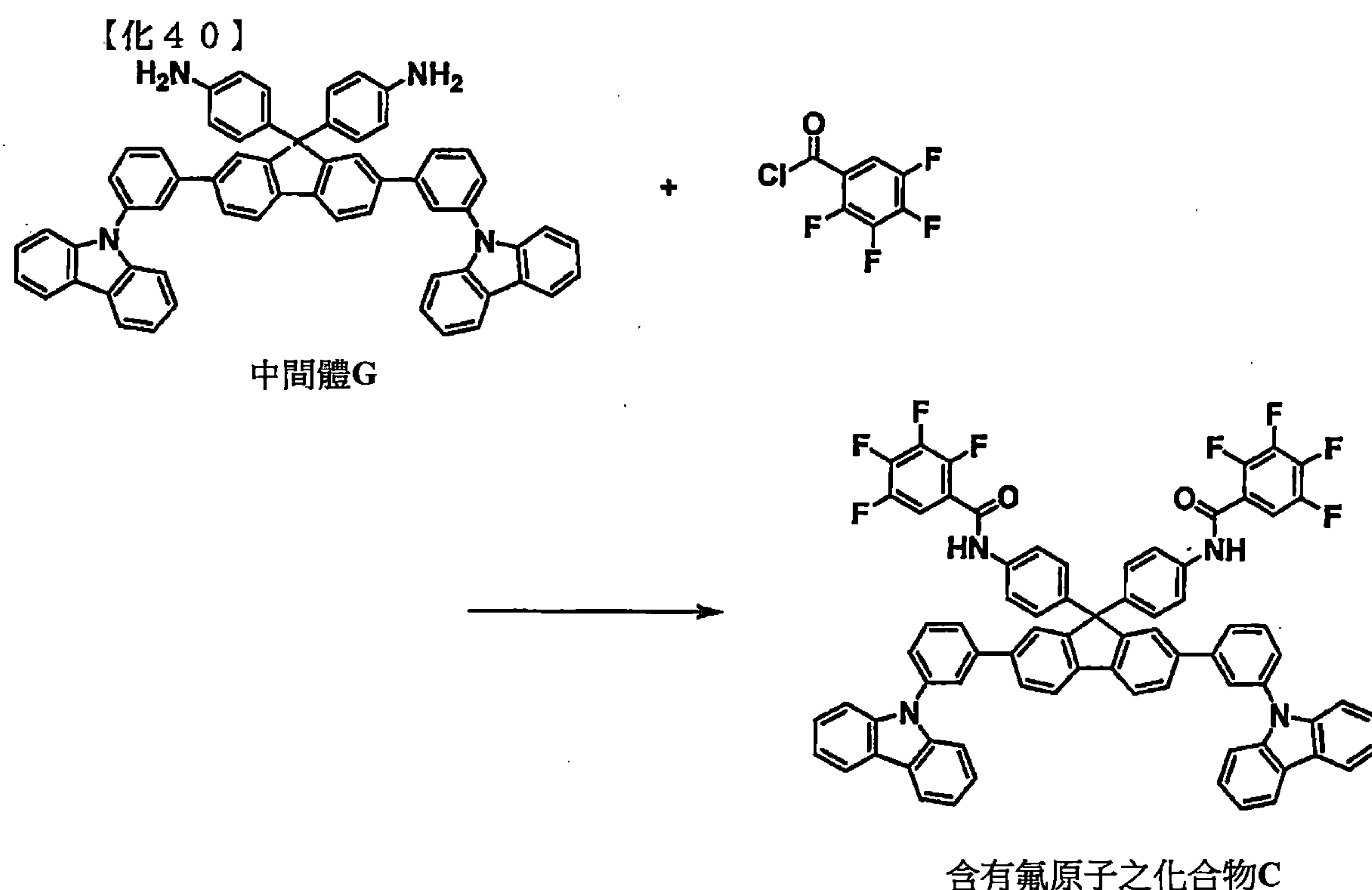


[0168] 於反應容器中加入中間體 F 1.81g、5%鈀碳(NE CHEMCAT 公司製、AER 型、49%含水)0.18g、及四氫呋喃 18mL，進行氫取代之後，於 50℃攪拌 33 小時。使反應液回到室溫後，添加四氫呋喃，進行過濾。將濾液濃縮，將濃縮液滴下至 *n*-己烷中，將懸浮液於室溫下攪拌

後，進行過濾。將濾物乾燥，得到含有作為目標之中間體 G(4,4'-(2,7-雙(3-(9H-吡啶-9-基)苯基)-9H-芴-9,9-二基)二苯胺)的混合物 1.56g。再者，不進一步進行精製，而使用作為下一步驟之原料。

[0169]

[實施例 3-3]含有氟原子之化合物 C 之合成



[0170] 於反應容器中加入前述含有中間體 G 之混合物 1.00g、N,N-二甲基甲醯胺 10mL、及三甲基胺 450 μ L，進行氮取代後，一邊於冰浴冷卻，一邊滴下 2,3,4,5-四氟苯甲醯氯 0.62g。滴下結束後，於室溫攪拌 2.5 小時。將反應混合物滴下至離子交換水中後，直接於室溫攪拌 0.5 小時。過濾所得到之懸浮液後，將濾物溶解於氯仿，滴下至甲醇中，將懸浮液於室溫下攪拌。進行過濾，將所得到之濾物乾燥，得到作為目標之含有氟原子之化合物

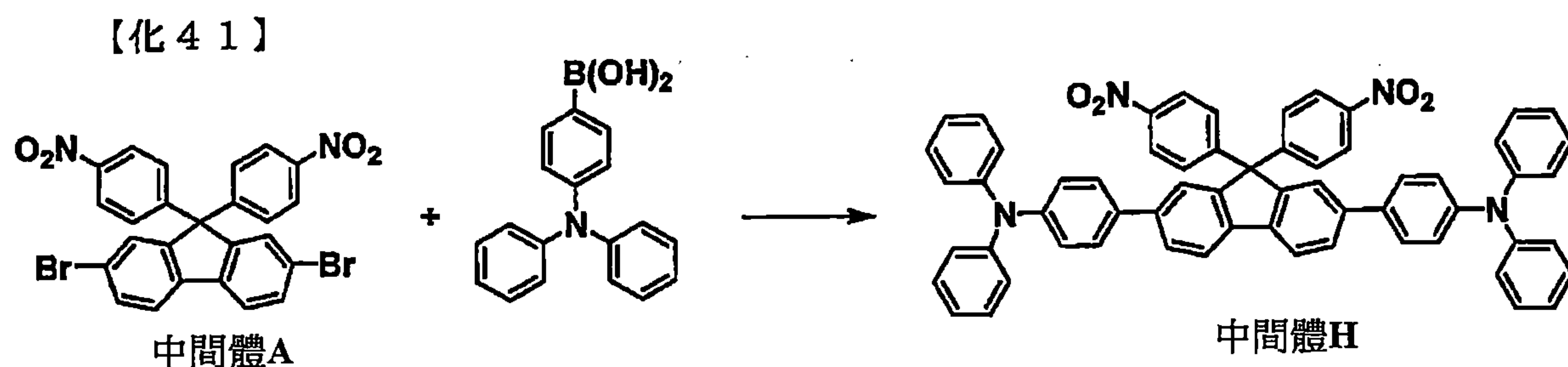
C(N,N'-((2,7-雙(3-(9H-吡啶-9-基)苯基)-9H-芴-9,9-二基)雙(4,1-伸苯基))雙(2,3,4,5-四氟苯甲醯胺))1.18g(產率：83%)。¹H-NMR 之測定結果如以下所示。

¹H-NMR (400MHz, DMSO-d₆) δ[ppm] : 10.59(s, 2H), 8.26(d, J=7.6Hz, 4H), 8.11(d, J=8.4Hz, 2H), 7.82-7.93(m, 8H), 7.76(t, J=7.6Hz, 2H), 7.66-7.73(m, 2H), 7.59-7.63(m, 6H), 7.42-7.47(m, 8H), 7.26-7.33(m, 8H)。

[0171]

[實施例 4]含有氟原子之化合物 D 之合成

[實施例 4-1]中間體 H 之合成



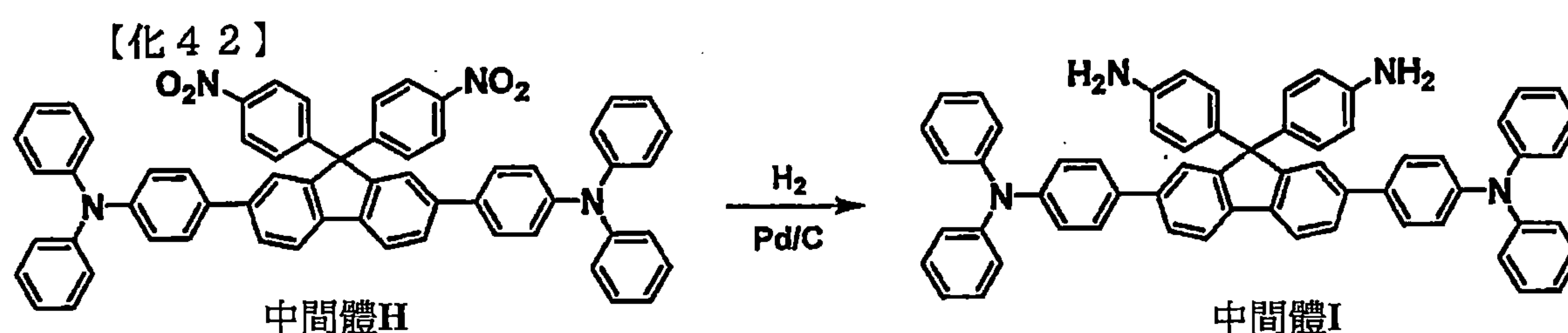
[0172] 於反應容器中加入中間體 A 1.80g、(4-二苯基胺基)苯基硼酸 2.30g、肆-三苯基膦鈰 0.18g、三辛基甲基氯化銨(Aliquat 336)0.28g、四氫呋喃 18mL、及 2mol/L 碳酸鉀水溶液 12mL，進行氮取代後，於 60℃ 攪拌 4.5 小時。使反應液回到室溫後，添加甲苯與飽和食鹽水，進行分液。將所得到之有機層的溶劑予以減壓餾去，過濾懸浮液。將濾物乾燥，得到作為目標之中間體 H(4,4'-(9,9-雙(4-硝基苯基)-9H-芴-2,7-二基)雙(N,N-二苯基苯胺)) 2.39g(產率：84%)。¹H-NMR 之測定結果如以下所示。

¹H-NMR (400MHz, THF-d₈) δ[ppm] : 8.11(d, J=9.2Hz, 4H),

7.95(d, J=8.0Hz, 2H), 7.69-7.73(m, 4H), 7.54(d, J=8.8Hz, 4H), 7.47(d, J=8.8Hz, 4H), 7.20-7.25(m, 8H), 7.04-7.07(m, 12H), 6.99(t, J=7.2Hz, 4H)。

[0173]

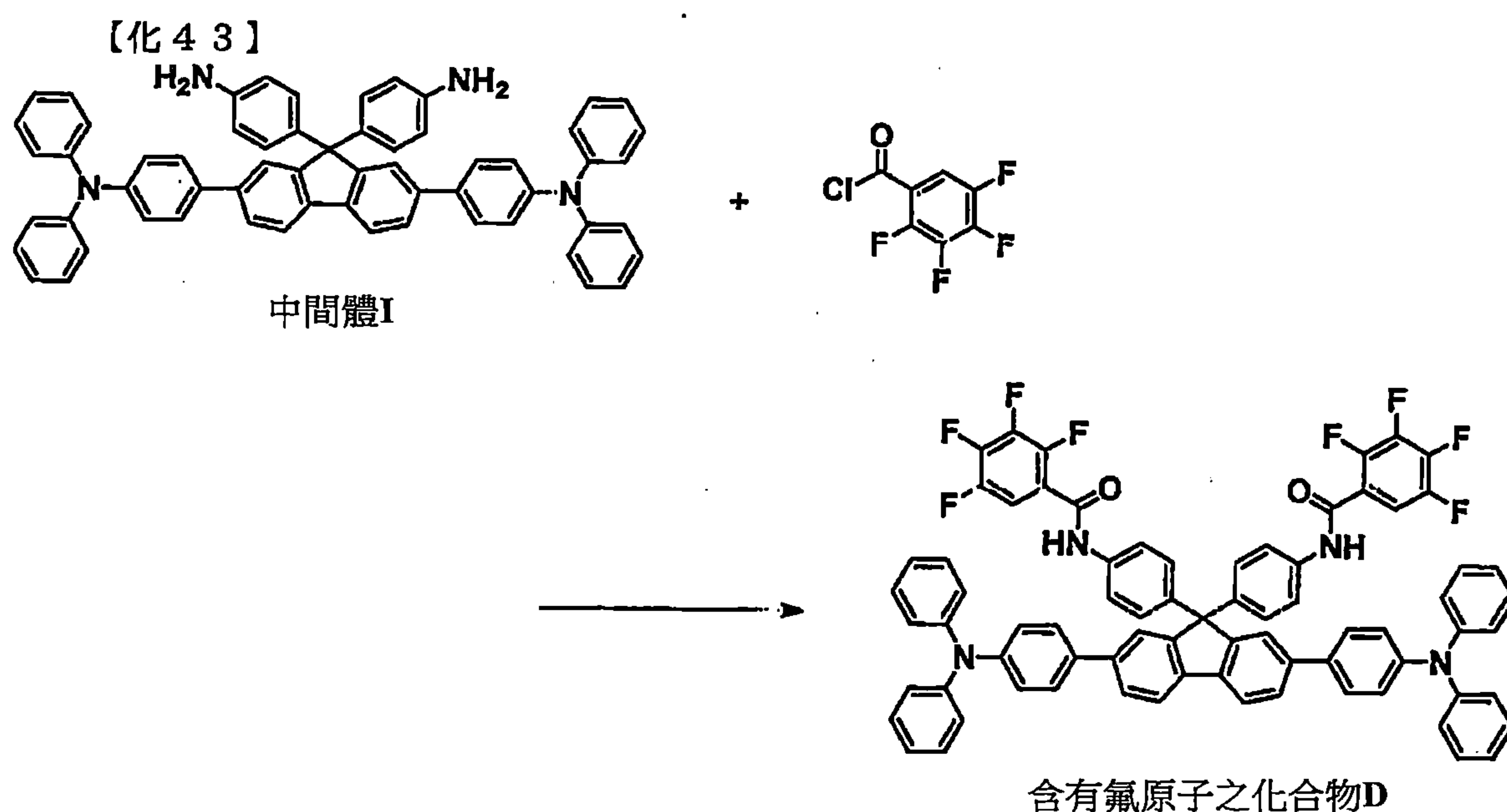
[實施例 4-2]中間體 I 之合成



[0174] 於反應容器中加入中間體 H1.80g、5%鈀碳 (NE CHEMCAT 公司製、AER 型、49%含水)0.18g、及、四氫呋喃 18mL，進行氫取代之後，於 60℃ 攪拌 22.5 小時。使反應液回到室溫後，添加四氫呋喃，進行過濾。將濾液濃縮，將濃縮液滴下至 n-己烷中，將懸浮液於室溫下攪拌後，進行過濾。將濾物乾燥，得到含有作為目標之中間體 I(4,4'-(9,9-雙(4-胺基苯基)-9H-芴-2,7-二基)雙(N,N-二苯基胺))之混合物 1.62g。再者，不進一步進行精製，而使用作為下一步驟之原料。

[0175]

[實施例 4-3]含有氟原子之化合物 D 之合成



[0176] 於反應容器中加入前述含有中間體 I 之混合物 0.50g、N,N-二甲基甲醯胺 30mL、及三甲基胺 330 μ L，進行氮取代後，一邊於冰浴冷卻，一邊滴下 2,3,4,5-四氟苯甲醯氯 0.47g。滴下結束後，於室溫攪拌 2.5 小時。將反應混合物滴下至離子交換水中後，直接於室溫攪拌 0.5 小時。過濾所得到之懸浮液後，將濾物溶解於氯仿，添加離子交換水進行分液。將有機層以無水硫酸鈉乾燥後，將溶劑減壓餾去。將濃縮液滴下至甲醇與 n-己烷之混合溶劑中，將懸浮液於室溫下攪拌。進行過濾，將濾物乾燥，得到作為目標之含有氟原子之化合物 D(N,N'-((2,7-雙(4-(二苯基胺基)苯基-9H-芴-9,9-二基)雙(4,1-伸苯基))雙(2,3,4,5-四氟苯甲醯胺))0.45g(產率：63%)。¹H-NMR 之測定結果如以下所示。

¹H-NMR(400MHz,DMSO-d₆) δ [ppm]：10.59(s, 2H), 7.98(d, J=8.0Hz, 2H), 7.64-7.70(m, 6H), 7.55-7.58(m, 8H), 7.25-

7.29(m, 8H), 7.21(d, J=8.8Hz, 4H), 6.98-7.04(m, 16H)。

[0177]

[2]電荷傳輸性塗漆之配製

[實施例 5]電荷傳輸性塗漆 A 之配製

將含有氟原子之化合物 A 150mg，溶解於 N,N-二甲基異丁基醯胺(DMIB)5g 並攪拌，將所得之溶液使用孔徑 0.2 μ m 之聚四氟乙烯(PTFE)製過濾器過濾，得到電荷傳輸性塗漆 A。

[0178]

[實施例 6]電荷傳輸性塗漆 B 之配製

將含有氟原子之化合物 B 150mg，溶解於 DMIB 5g 並攪拌，將所得之溶液使用孔徑 0.2 μ m 之 PTFE 製過濾器過濾，得到電荷傳輸性塗漆 B。

[0179]

[實施例 7]電荷傳輸性塗漆 C 之配製

將含有氟原子之化合物 C 100mg，溶解於 1,3-二甲基-2-四氫咪唑酮(DMI)1.65g、2,3-丁二醇(2,3-BD)2g 及二丙二醇單甲基醚(DPM)1.35g 之混合溶劑並攪拌，將所得之溶液使用孔徑 0.2 μ m 之 PTFE 製過濾器過濾，得到電荷傳輸性塗漆 C。

[0180]

[實施例 8]電荷傳輸性塗漆 D 之配製

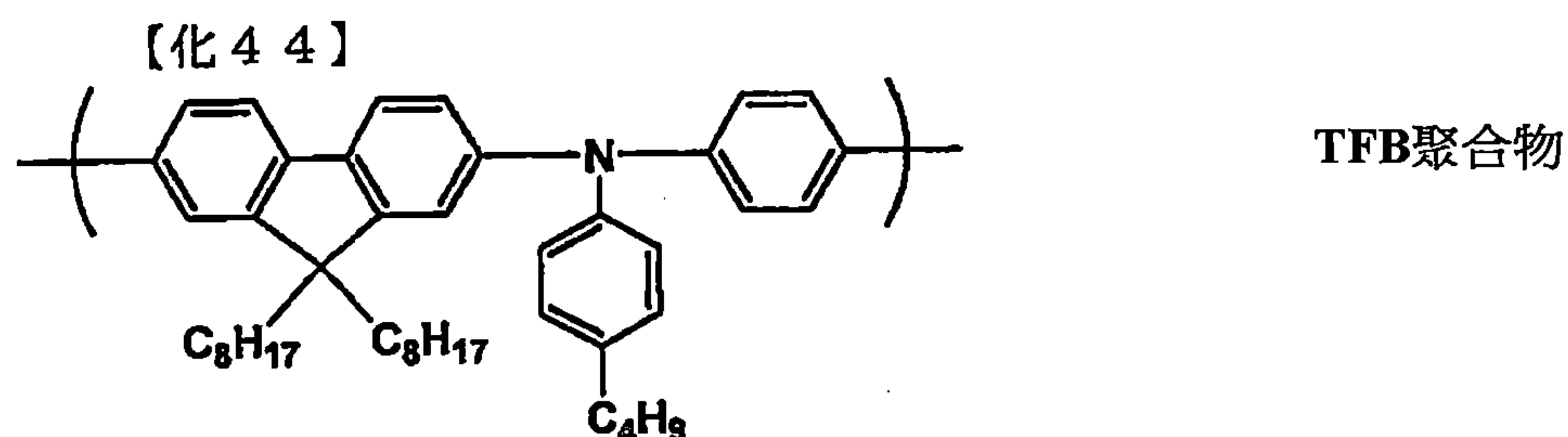
將含有氟原子之化合物 D 100mg，溶解於 DMI 1.65g、2,3-BD2g 及 DPM 1.35g 之混合溶劑並攪拌，將所得之

溶液使用孔徑 $0.2\mu\text{m}$ 之 PTFE 製過濾器過濾，得到電荷傳輸性塗漆 D。

[0181]

[比較例 1]電荷傳輸性塗漆 E 之配製

將下述式表示之 TFB 聚合物(Luminescence Technology 公司製 LT-N148)50mg，溶解於 3-苯氧基甲苯 2.5g 及環己基苯 2.5g 之混合溶劑並攪拌，將所得之溶液使用孔徑 $0.2\mu\text{m}$ 之 PTFE 製過濾器過濾，得到電荷傳輸性塗漆 E。



[0182]

[3]元件之製作及特性評估

以下之實施例及比較例中，係使用 ITO 於表面上以膜厚 150nm 被圖型化之 $25\text{mm}\times 25\text{mm}\times 0.7\text{t}$ 的玻璃基板，作為 ITO 基板，使用前藉由 O_2 電漿洗淨裝置(150W 、 30 秒)去除表面上之雜質後使用。

[0183]

[3-1]單獨電洞元件(Hole-only device)(HOD)之製作及特性評估

[實施例 9]

將電荷傳輸性塗漆 A 使用旋轉塗佈器塗佈於 ITO 基板後，於大氣下、 80°C 進行 1 分鐘臨時燒成，接著於

230℃ 進行 15 分鐘主要燒成，於 ITO 基板上形成 30nm 之薄膜。

使用蒸鍍裝置(真空度 2.0×10^{-5} Pa)於其上層合鋁之薄膜，得到 HOD。蒸鍍係以蒸鍍速率 0.2nm/秒之條件進行。鋁之薄膜之膜厚為 80nm。

再者，為了防止空氣中的氧、水等之影響而造成特性劣化，HOD 係藉由密封基板密封後，評估其特性。密封係由以下順序進行。

於氧濃度 2ppm 以下，露點 -85℃ 以下之氮環境中，將 SLD 容納於密封基板之間，將密封基板以接著材((股) MORESCO 製 Moresco Moisture Cut WB90US(P))貼合。此時，將捕水劑(Dynic(股)製 HD-071010W-40)與 SLD 一起容納於密封基板內。對貼合之密封基板照射 UV 光(波長 365nm、照射量 $6,000\text{mJ}/\text{cm}^2$)後，於 80℃ 退火處理 1 小時使接著材硬化。

[0184]

[實施例 10~12]

除了分別使用電荷傳輸性塗漆 B~D 以取代電荷傳輸性塗漆 A 以外，係以與實施例 9 相同之方法製作 HOD。

[0185]

[比較例 2]

除了使用電荷傳輸性塗漆 E 以取代電荷傳輸性塗漆 A 以外，係以與實施例 9 相同之方法製作 HOD。

[0186]

[3-2]單獨電子元件(Electron-only device)(EOD)之製作及特性評估

[實施例 13]

使用 Al/Nd 於表面上以膜厚 150nm 被圖型化之 25mm×25mm×0.7t 的玻璃基板作為 Al/Nd 基板，使用前以 O₂ 電漿洗淨裝置(150W、30 秒)去除表面上之雜質。接著，將電荷傳輸性塗漆 A 使用旋轉塗佈器塗佈於 Al/Nd 基板後，於大氣下、80℃ 進行 1 分鐘臨時燒成，接著於 230℃ 進行 15 分鐘主要燒成，於 Al/Nd 基板上形成 30nm 之薄膜。

使用蒸鍍裝置(真空度 2.0×10^{-5} Pa)於其上層合鋁之薄膜，得到 EOD。蒸鍍係以蒸鍍速率 0.2nm/秒之條件進行。鋁之薄膜之膜厚為 80nm。

再者，為了防止空氣中的氧、水等之影響而造成特性劣化，EOD 係藉由密封基板密封後，評估其特性。密封係以與前述相同之方法進行。

[0187]

[實施例 14~16]

除了分別使用電荷傳輸性塗漆 B~D 以取代電荷傳輸性塗漆 A 以外，係以與實施例 13 相同之方法製作 EOD。

[0188]

[比較例 3]

除了使用電荷傳輸性塗漆 E 以取代電荷傳輸性塗漆 A 以外，係以與實施例 13 相同之方法製作 EOD。

[0189] 對於前述實施例及比較例所製作得各 HOD 及 EOD，測定於驅動電壓 3V 之電流密度。結果示於表 7。

[0190]

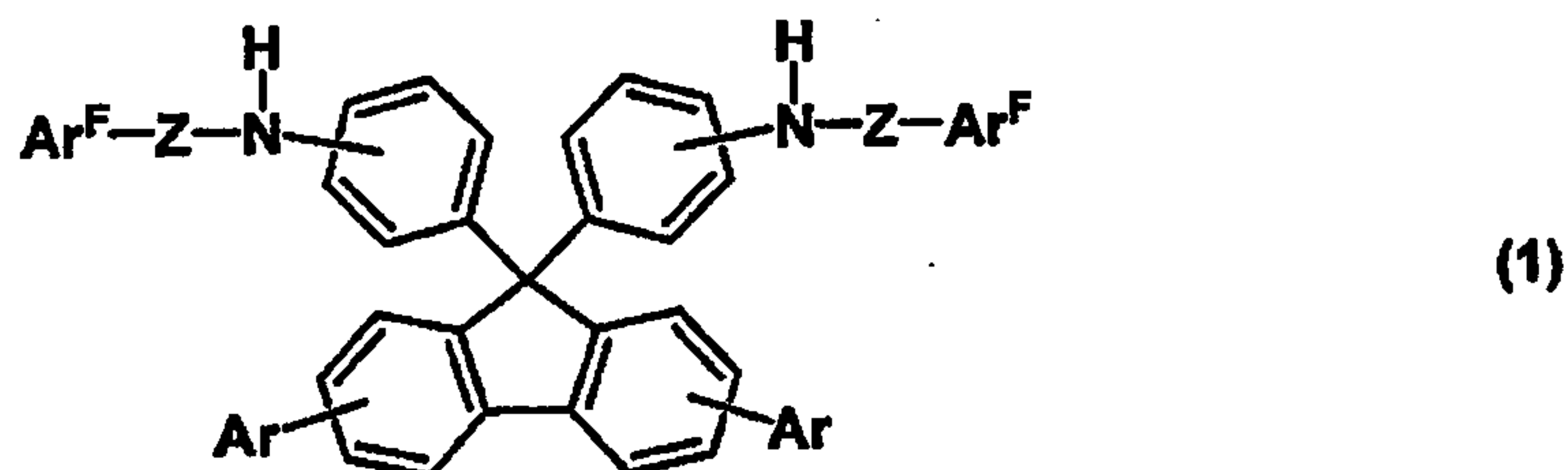
【表 7】

	電荷傳輸性塗漆	電流密度 (mA/cm ²)	
		HOD	EOD
實施例 9,13	A	1.84×10^2	5.67×10^{-5}
實施例 10,14	B	1.92×10^2	6.94×10^{-3}
實施例 11,15	C	1.06×10^2	5.48×10^{-5}
實施例 12,16	D	1.37×10^2	1.09×10^{-5}
比較例 2,3	E	9.13×10^1	6.81×10^{-1}

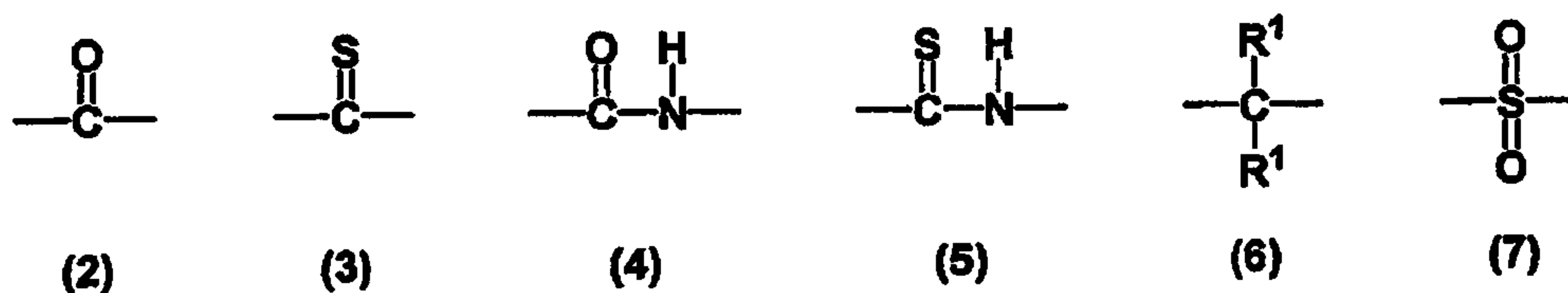
[0191] 如表 7 所示，由本發明之電荷傳輸性塗漆所製作的實施化合物，顯示比較例之 TFB 聚合物以上的電洞傳輸性，且較比較例之 TFB 聚合物電子阻擋性更優異。

申請專利範圍

1. 一種下述式(1)表示之含有氟原子之化合物；

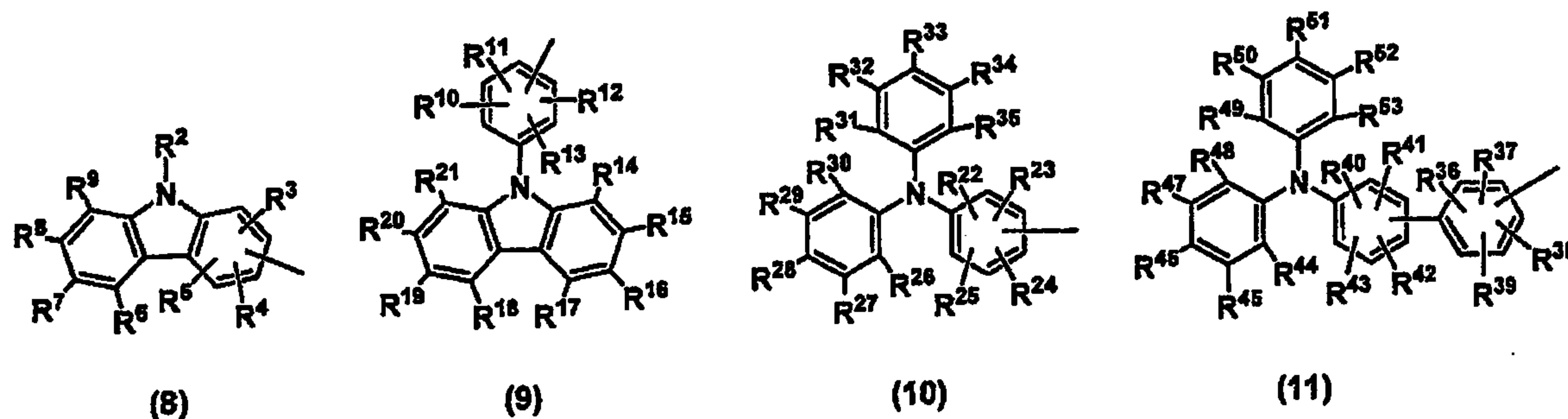


[式中，Z 表示下述式(2)~(7)之任一者表示之基；

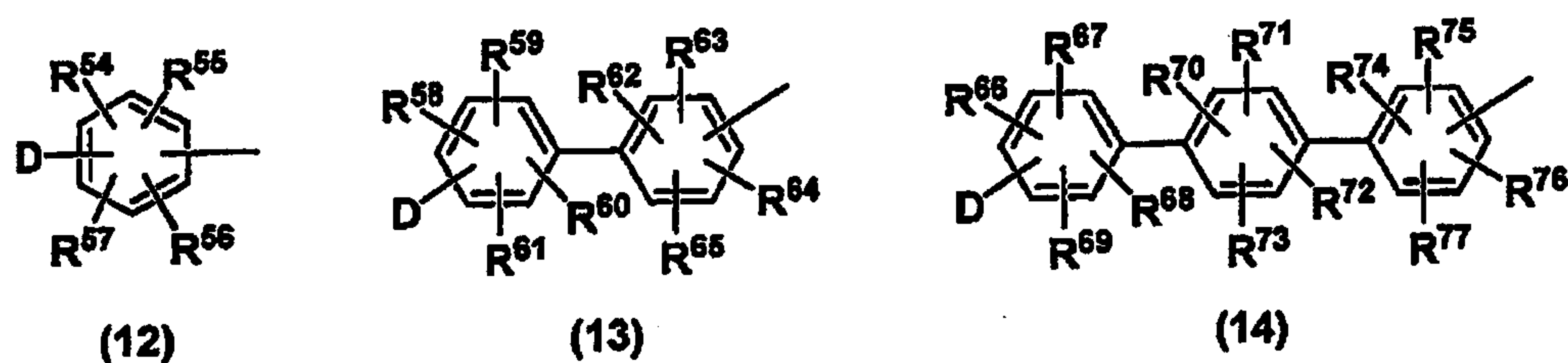


(式中， R^1 係分別獨立地表示氫原子或碳數 1~20 之烷基)

Ar 係分別獨立地表示下述式(8)~(11)表示之基；



(式(8)中， R^2 表示氫原子、碳數 1~20 之烷基；可經氰基、硝基、鹵素原子、碳數 1~20 之烷基或碳數 1~20 之鹵烷基取代之碳數 6~20 之芳基；或下述式(12)~(14)



表示之基，式中，D 表示各芳基分別獨立地為碳數 6~20 之芳基的二芳基胺基，式(8)~(14)中， $R^3 \sim R^{77}$ 係分別獨

立地表示氫原子、氰基、硝基、鹵素原子、碳數 1~20 之烷基或碳數 1~20 之鹵烷基)

Ar^{F} 係分別獨立地表示可經氰基、氯原子、溴原子、碘原子、硝基、碳數 1~20 之烷基、碳數 1~20 之氟烷基或碳數 1~20 之氟烷氧基取代的碳數 6~20 之氟芳基；經碳數 1~20 之氟烷基、碳數 3~20 之氟環烷基、碳數 4~20 之氟雙環烷基、碳數 2~20 之氟烯基或碳數 2~20 之氟炔基取代，而且可經氰基、鹵素原子或碳數 1~20 之氟烷氧基取代的碳數 6~20 之芳基]。

2.如請求項 1 之含有氟原子之化合物，其中 Ar^{F} 係分別獨立地為可經氰基、氯原子、溴原子、碘原子、硝基、碳數 1~20 之烷基、碳數 1~20 之氟烷基或碳數 1~20 之氟烷氧基取代的經 3 個以上之氟原子取代的苯基；或 2-(三氟甲基)苯基、3-(三氟甲基)苯基、4-(三氟甲基)苯基、4-乙氧基-3-(三氟甲基)苯基、3-氟-4-三氟甲基苯基、4-氟-3-三氟甲基苯基、4-氟-2-三氟甲基苯基、2-氟-5-(三氟甲基)苯基、3-氟-5-(三氟甲基)苯基、3,5-二(三氟甲基)苯基、2,4,6-三(三氟甲基)苯基、4-(五氟乙基)苯基、4-(3,3,3-三氟丙基)苯基、2,3,5,6-四氟-4-三氟甲基苯基、4-(全氟乙烯基)苯基、4-(全氟丙烯基)苯基或 4-(全氟丁烯基)苯基。

3.如請求項 1 或 2 之含有氟原子之化合物，其中 Ar^{F} 為相同之基。

4.如請求項 1 或 2 之含有氟原子之化合物，其中 Z 為

式(2)表示之基。

5.如請求項 1 或 2 之含有氟原子之化合物，其中 R^2 為苯基。

6.如請求項 1 或 2 之含有氟原子之化合物，其中 $R^3 \sim R^{77}$ 為氫原子。

7.一種電荷傳輸性物質，其係由如請求項 1～6 中任一項之含有氟原子之化合物所構成。

8.一種電荷傳輸性塗漆，其含有如請求項 7 之電荷傳輸性物質及有機溶劑。

9.如請求項 8 之電荷傳輸性塗漆，其進一步含有不含有氟原子之電荷傳輸性物質。

10.如請求項 8 或 9 之電荷傳輸性塗漆，其進一步含有摻雜劑。

11.一種電荷傳輸性薄膜，其係使用如請求項 8～10 中任一項之電荷傳輸性塗漆所製作。

12.一種有機電致發光元件，其具備如請求項 11 之電荷傳輸性薄膜。

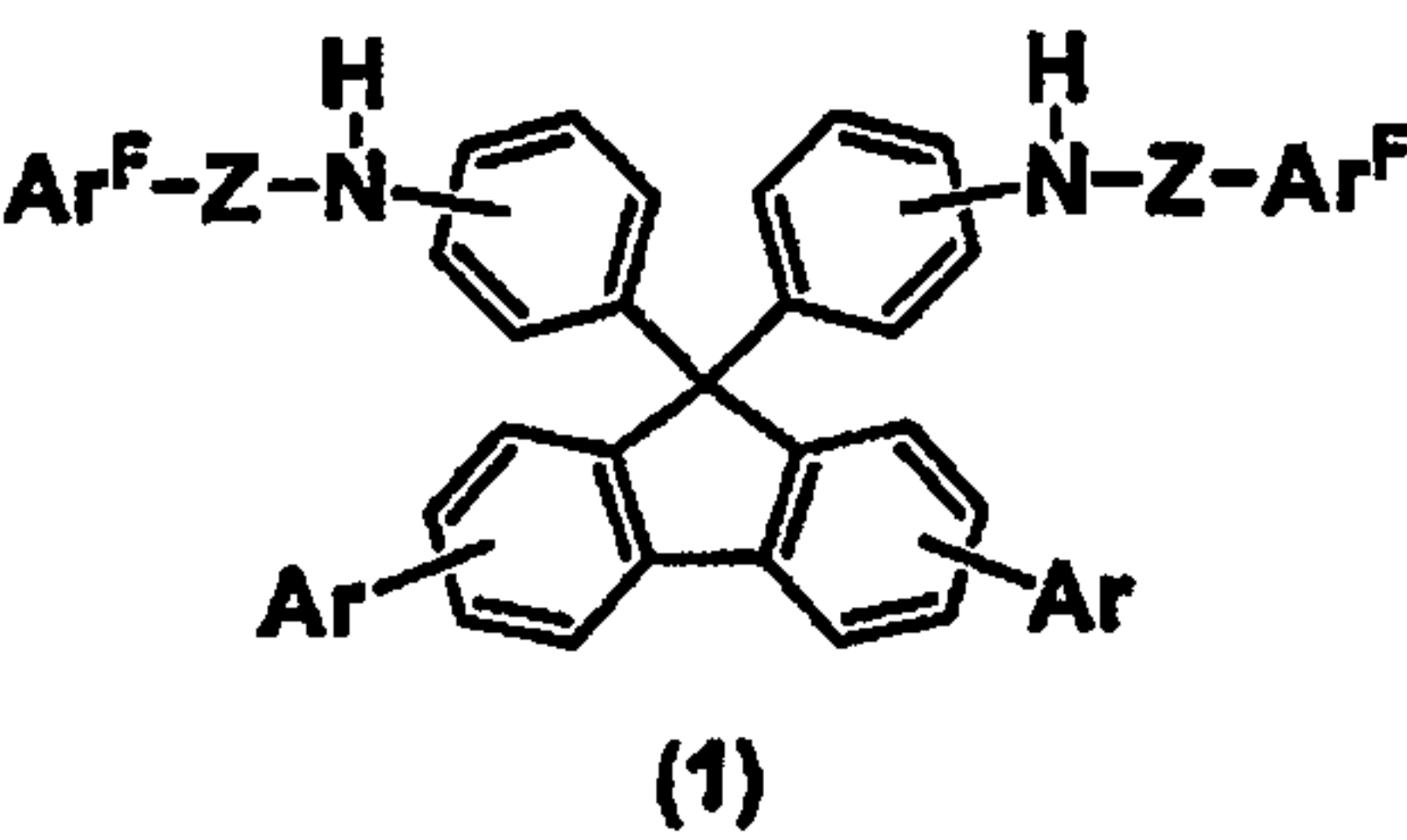
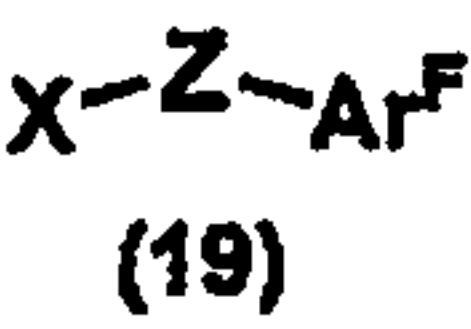
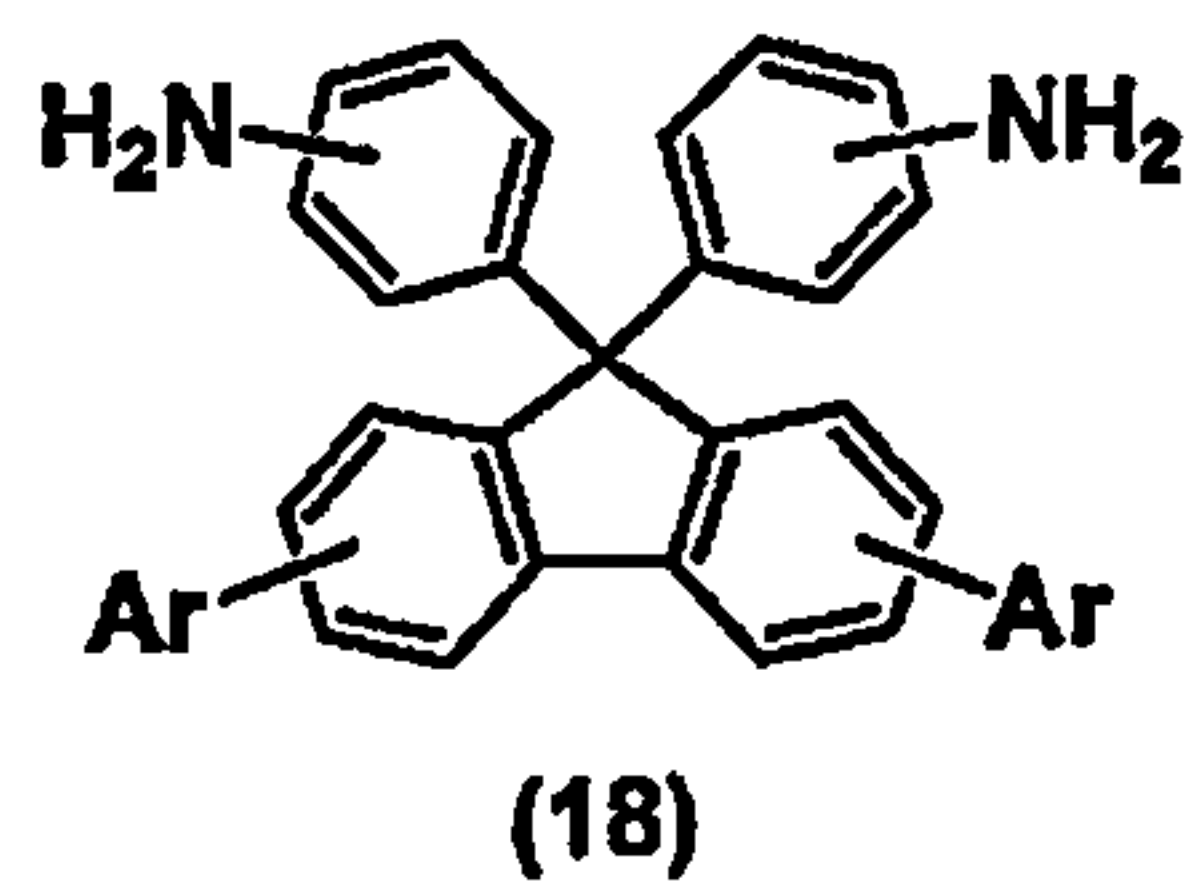
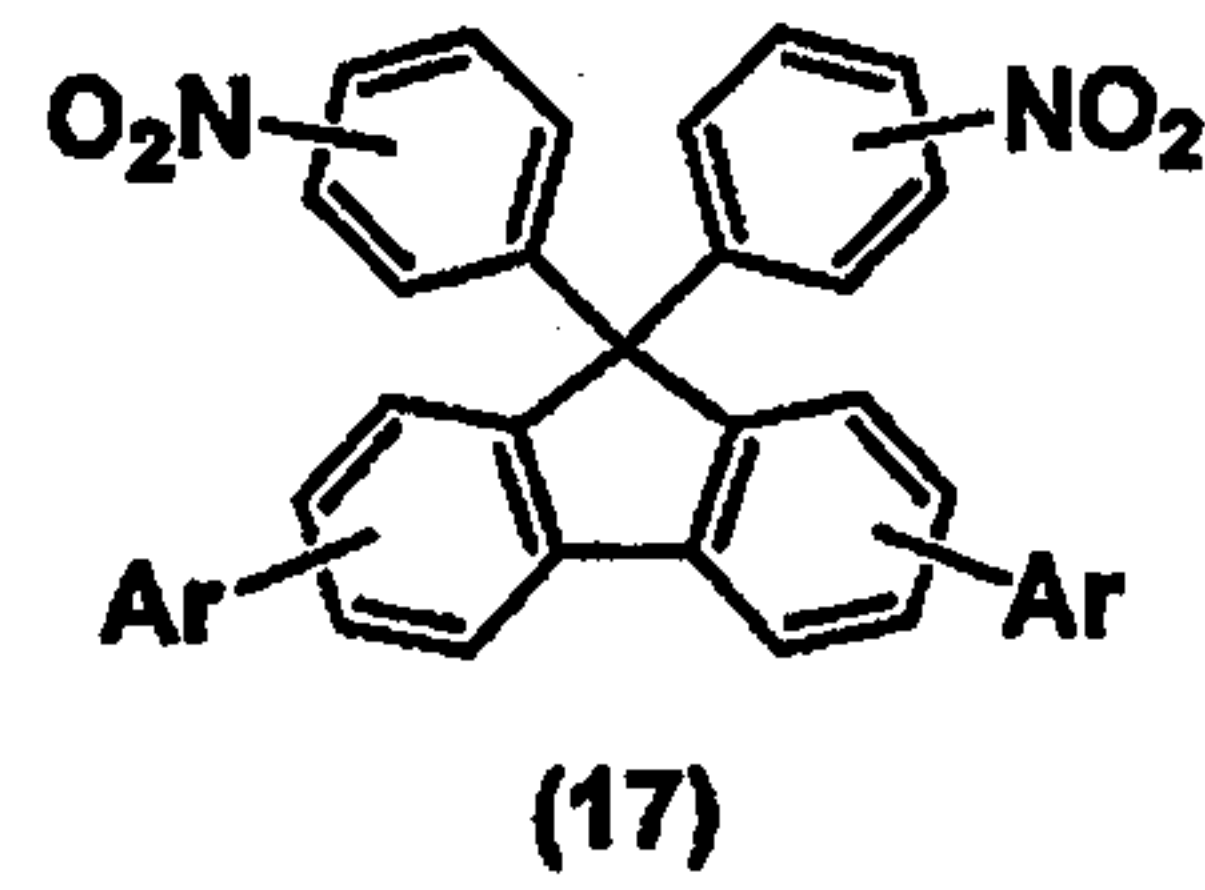
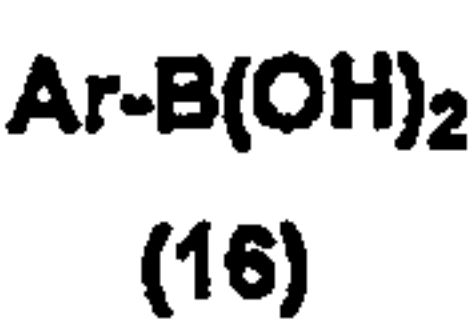
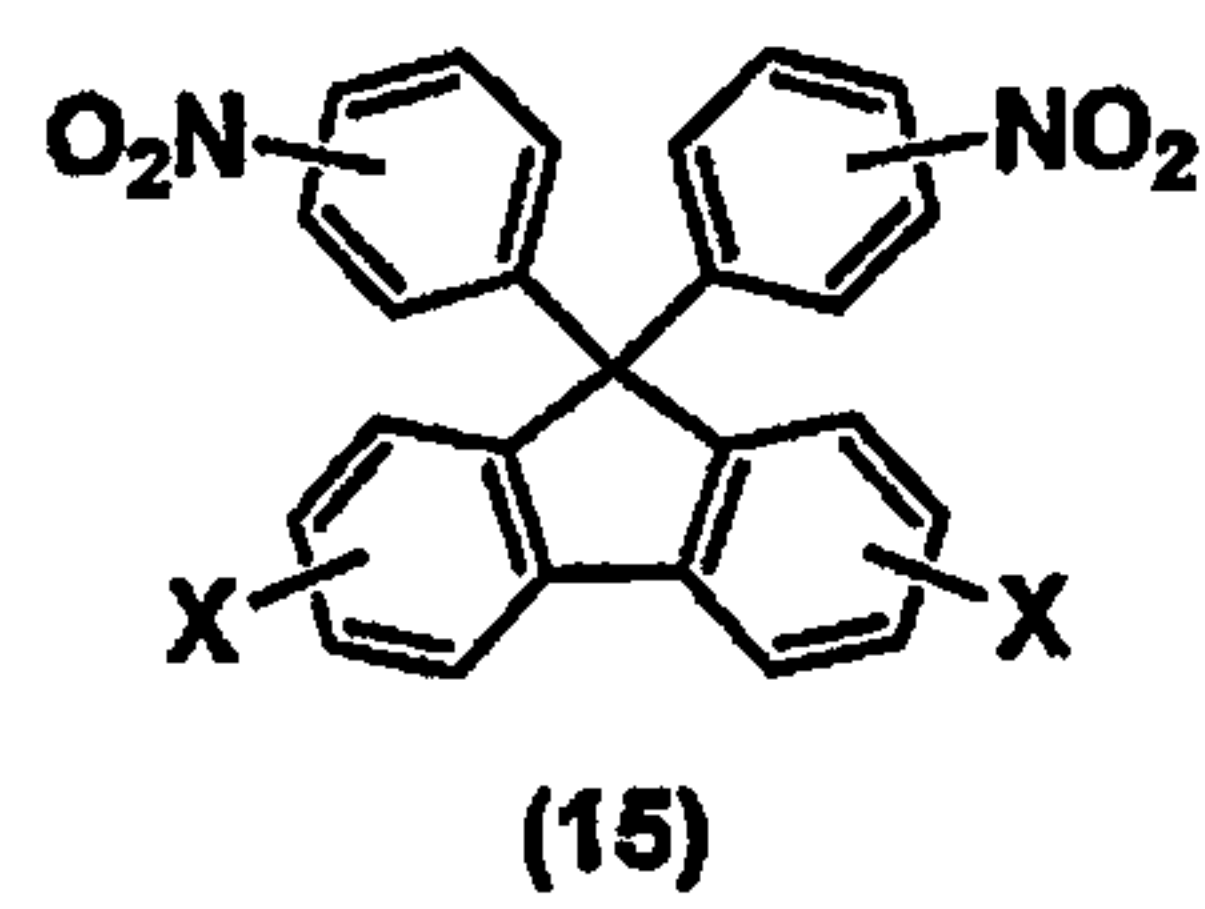
13.一種下述式(1)表示之含有氟原子之化合物之製造方法，其包含

使式(15)表示之化合物及式(16)表示之化合物反應而得到式(17)表示之中間體之步驟、

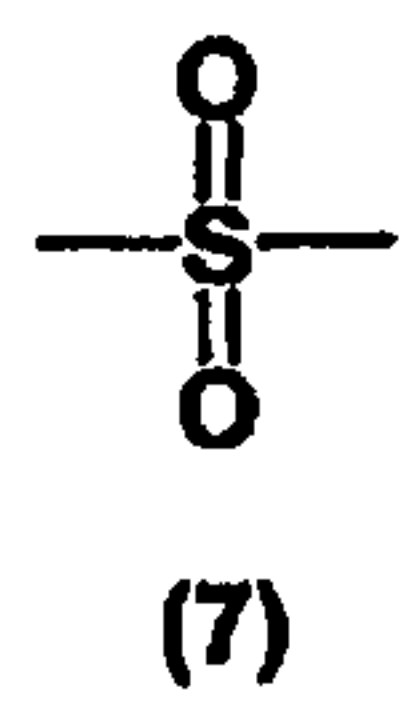
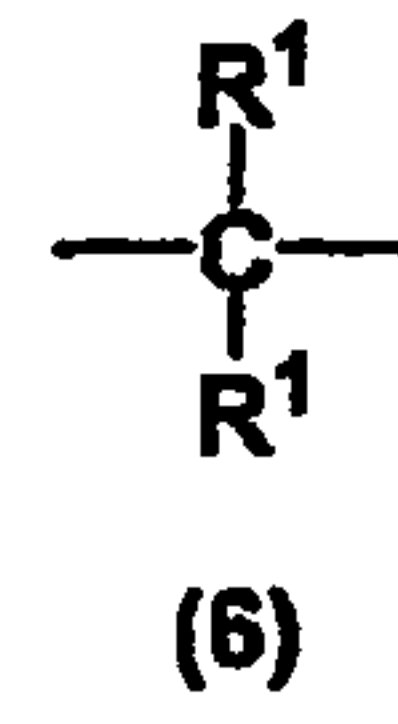
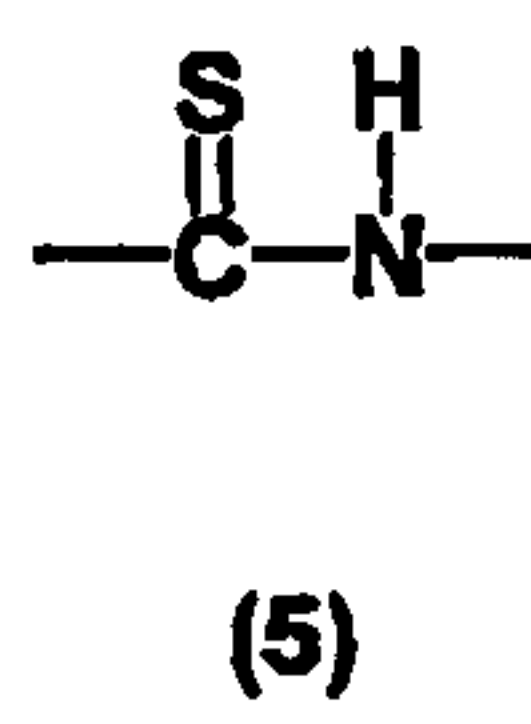
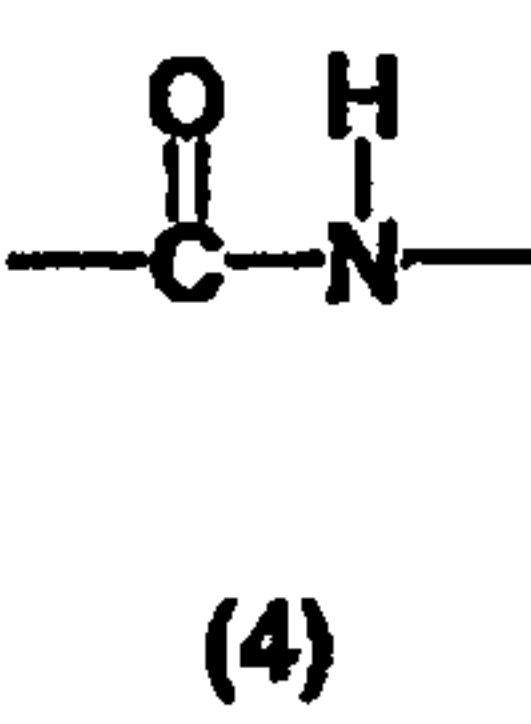
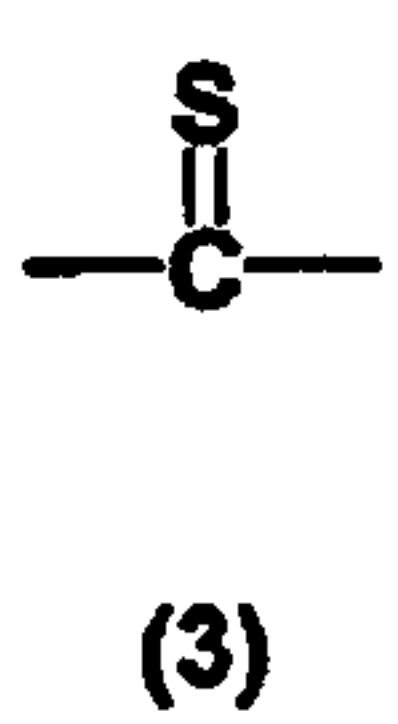
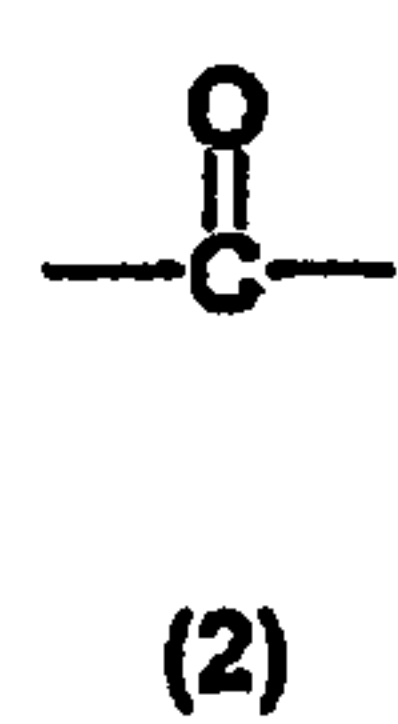
將式(17)表示之中間體還原而得到式(18)表示之中間體之步驟、及

使式(18)表示之中間體與式(19)表示之鹵化物反應之

步驟；

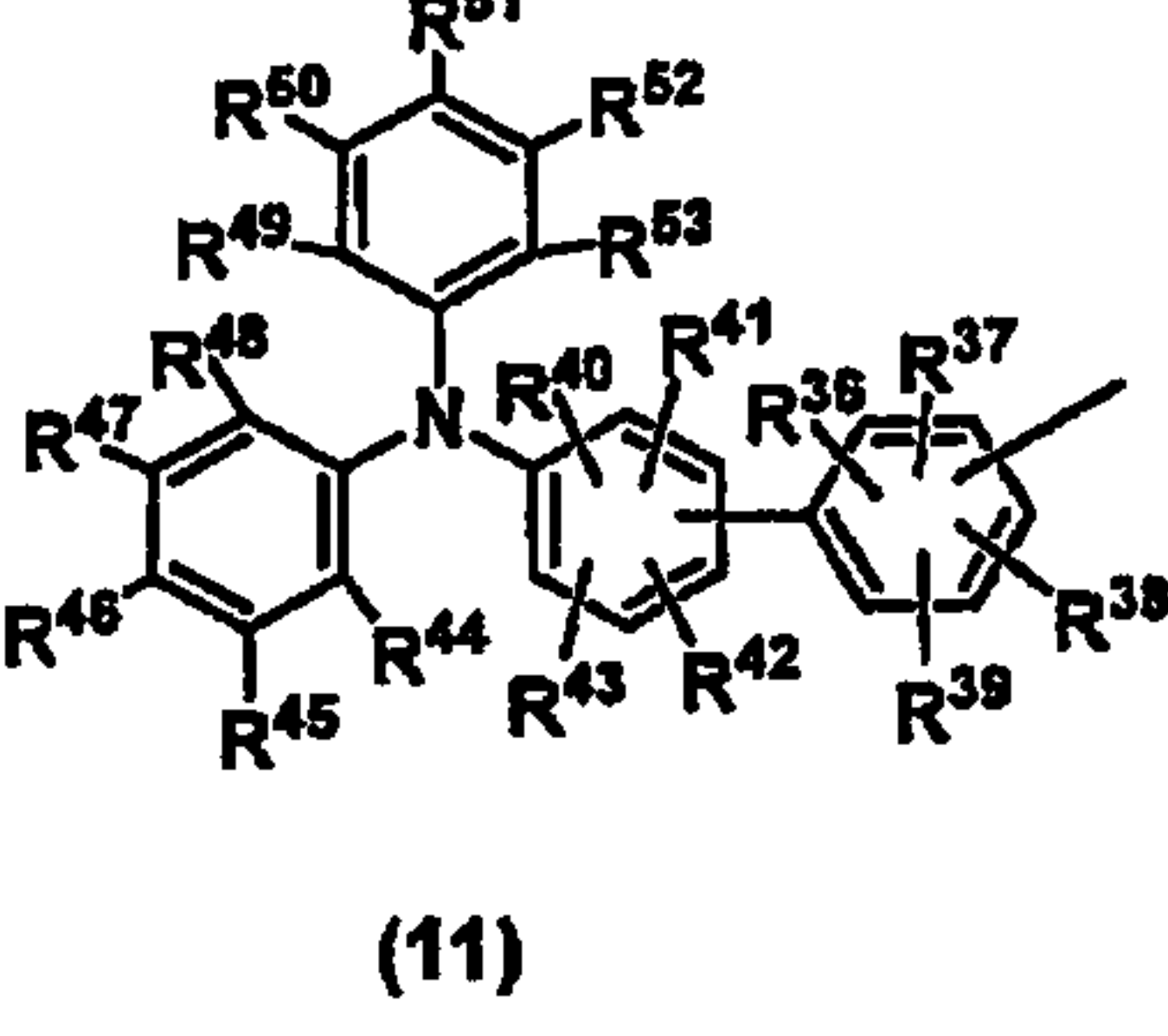
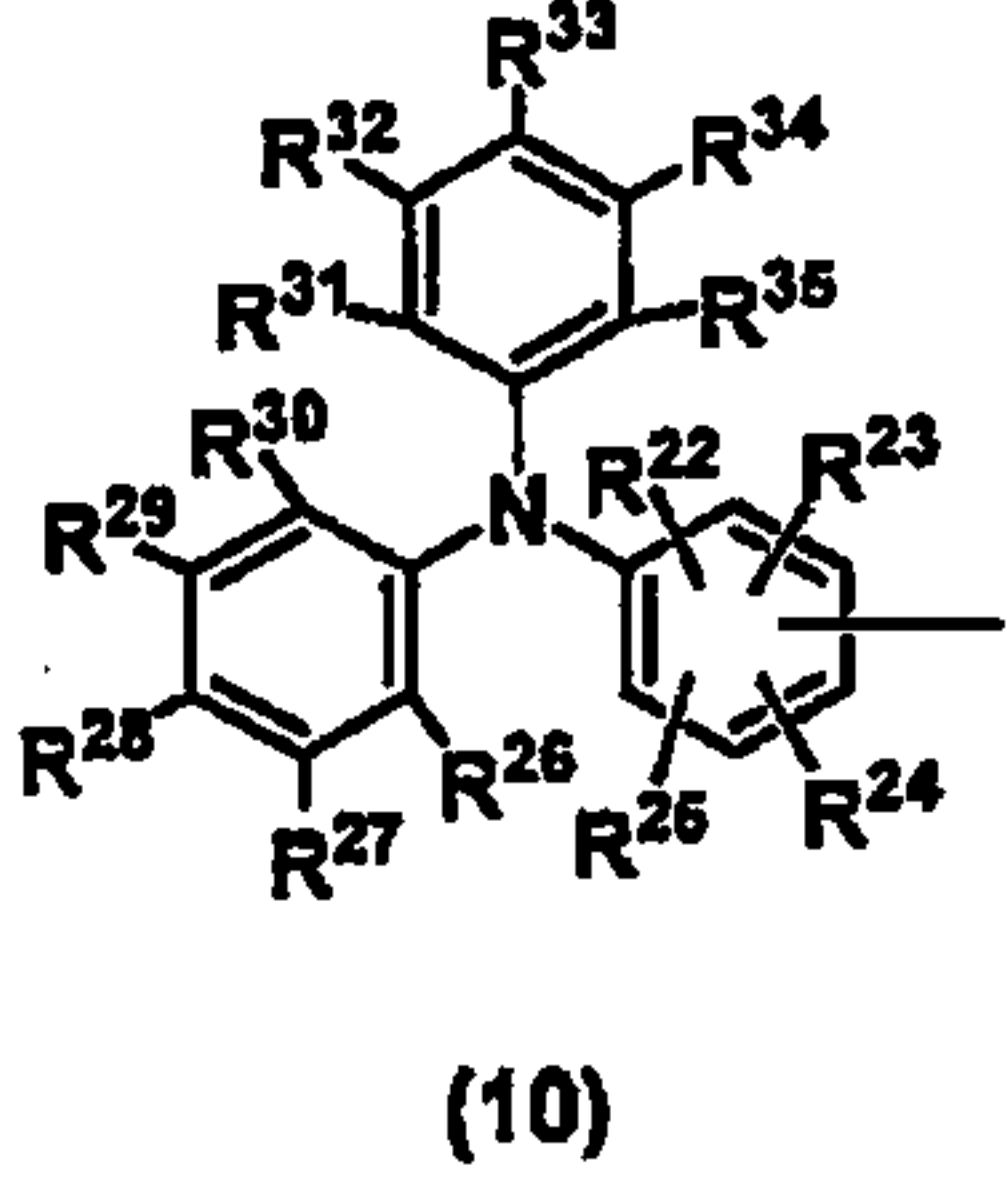
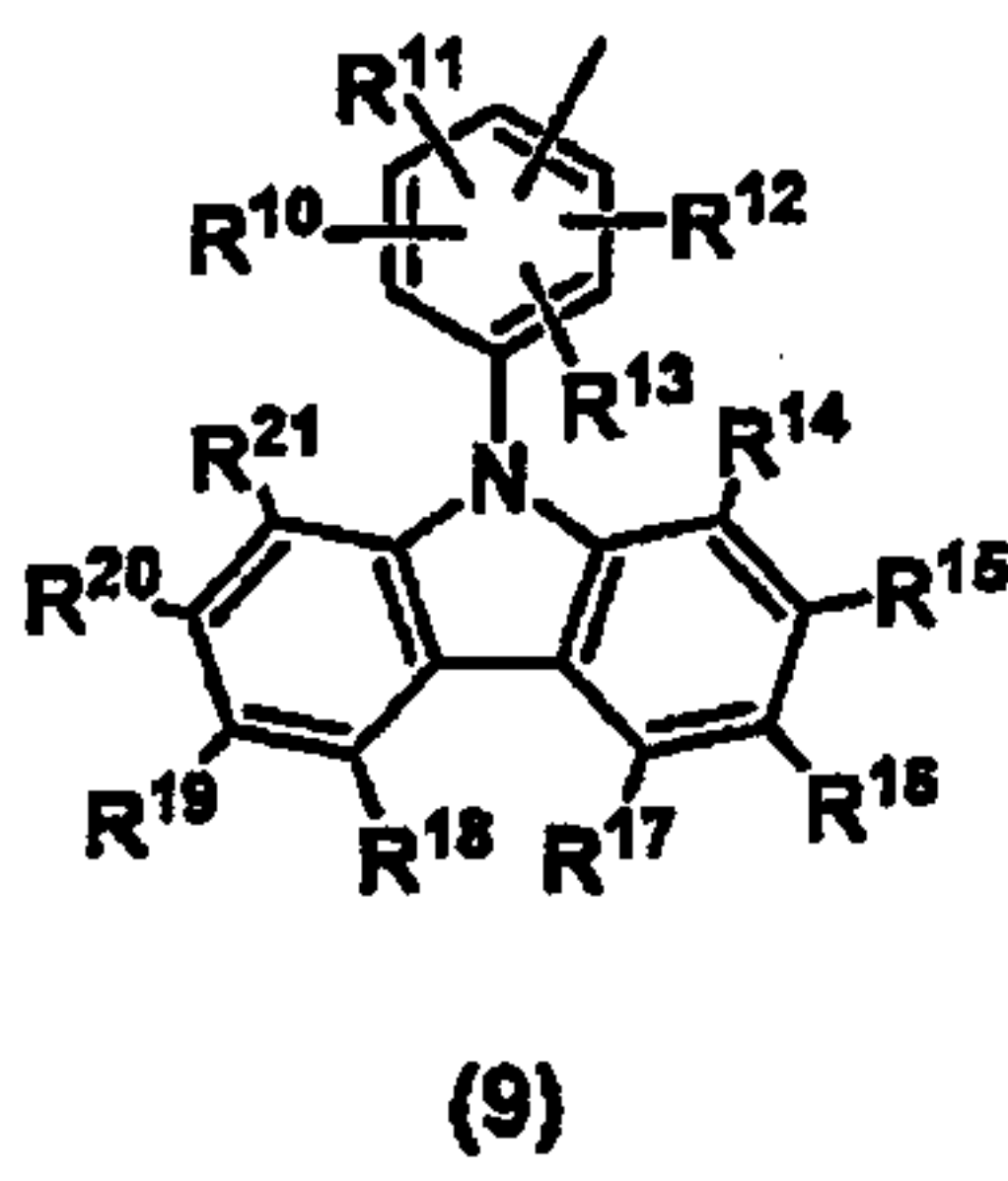
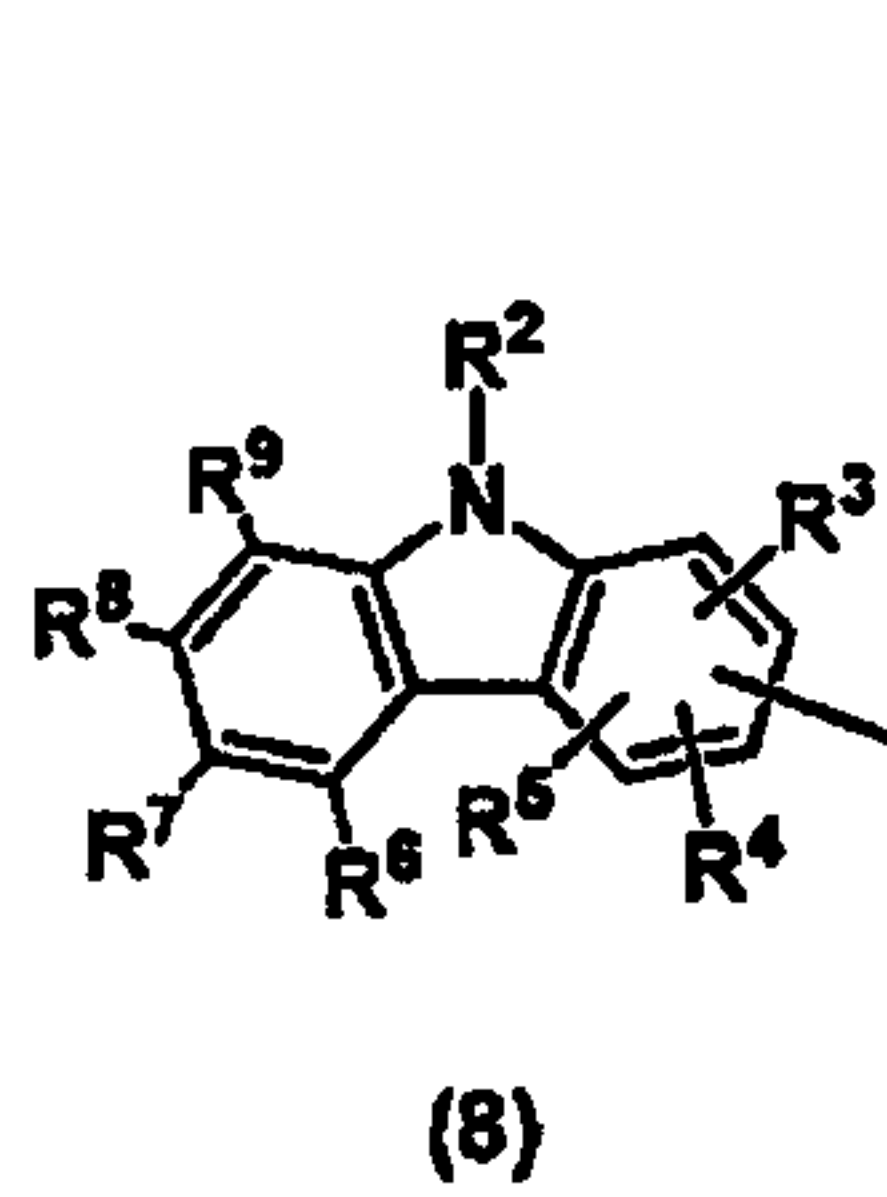


[式中，Z 表示下述式 (2)~(7) 之任一者表示之基；

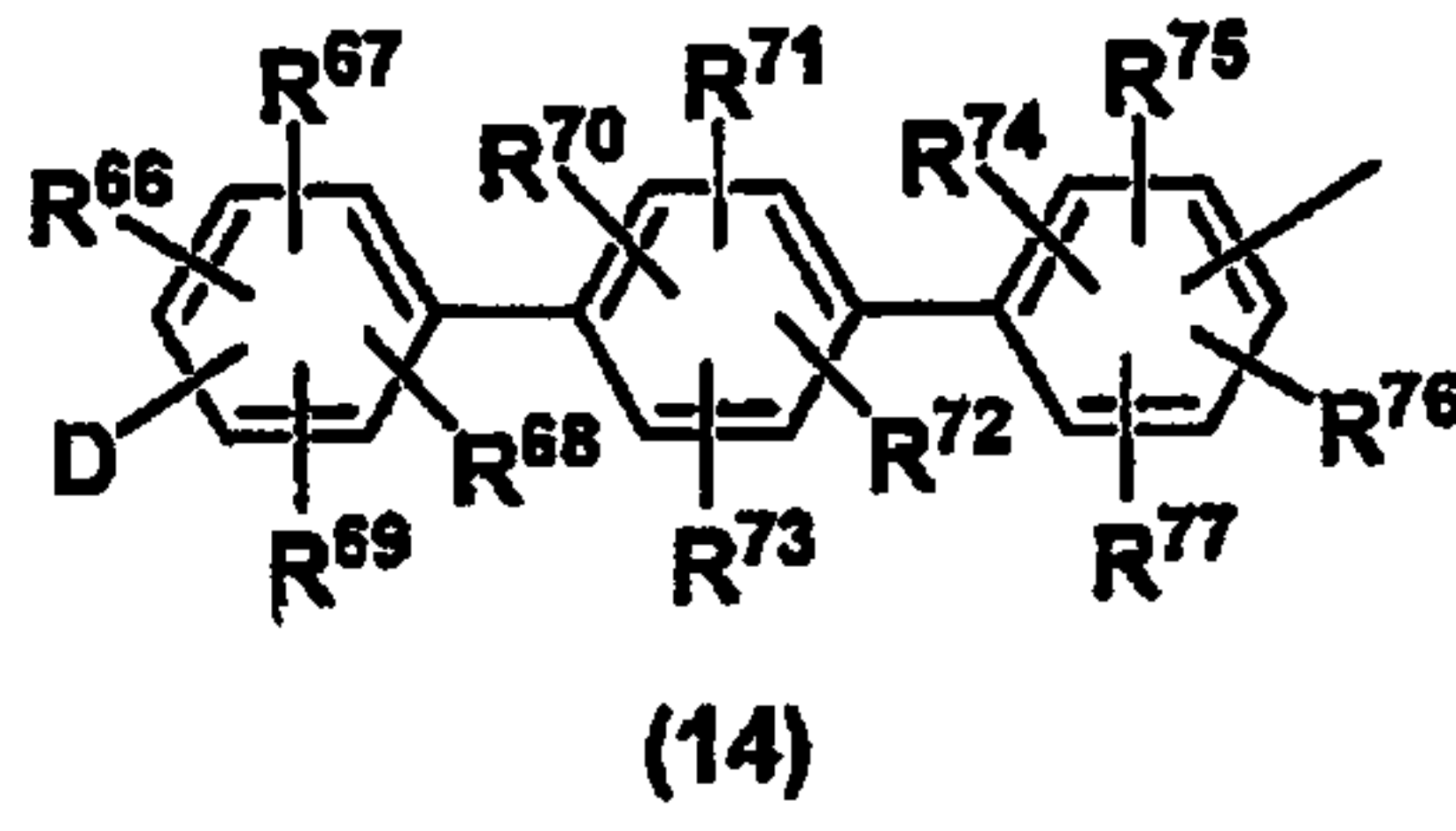
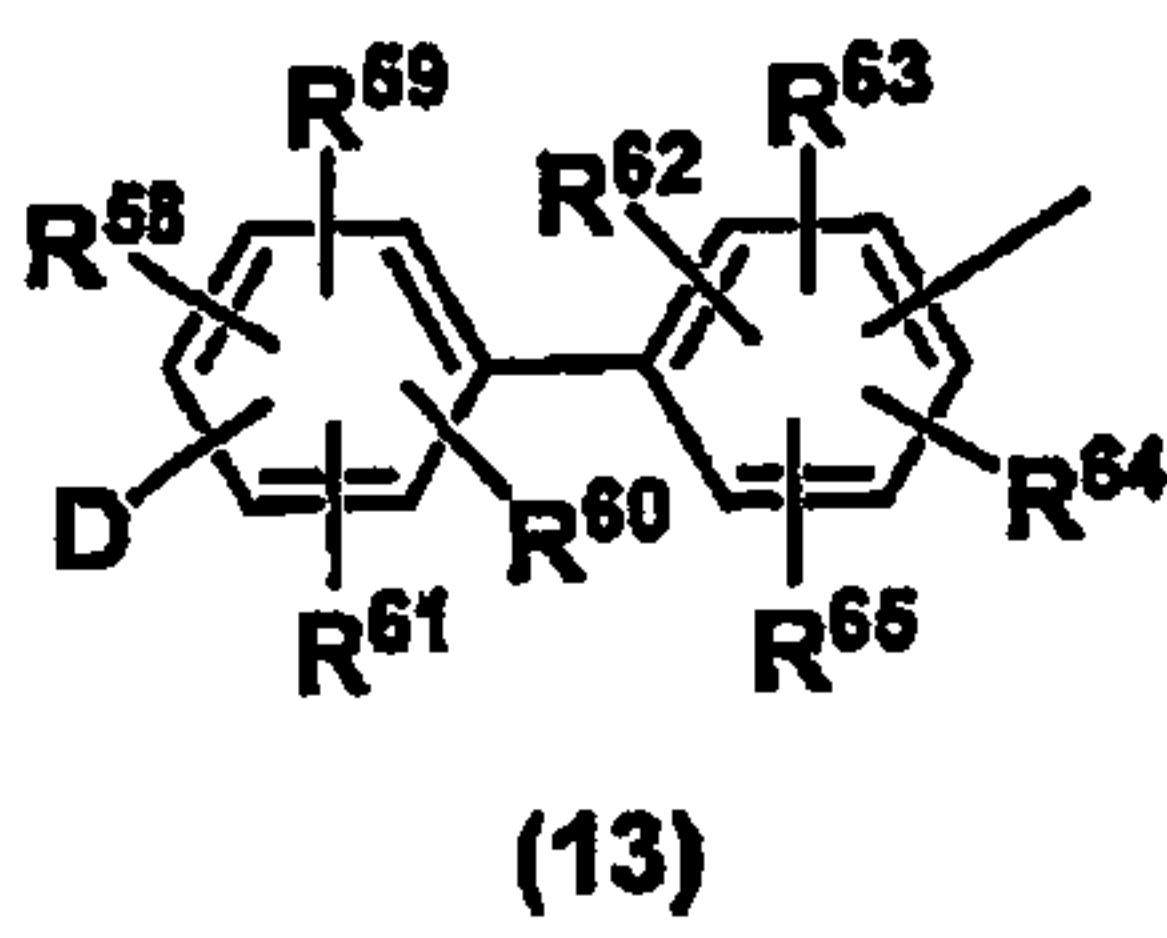
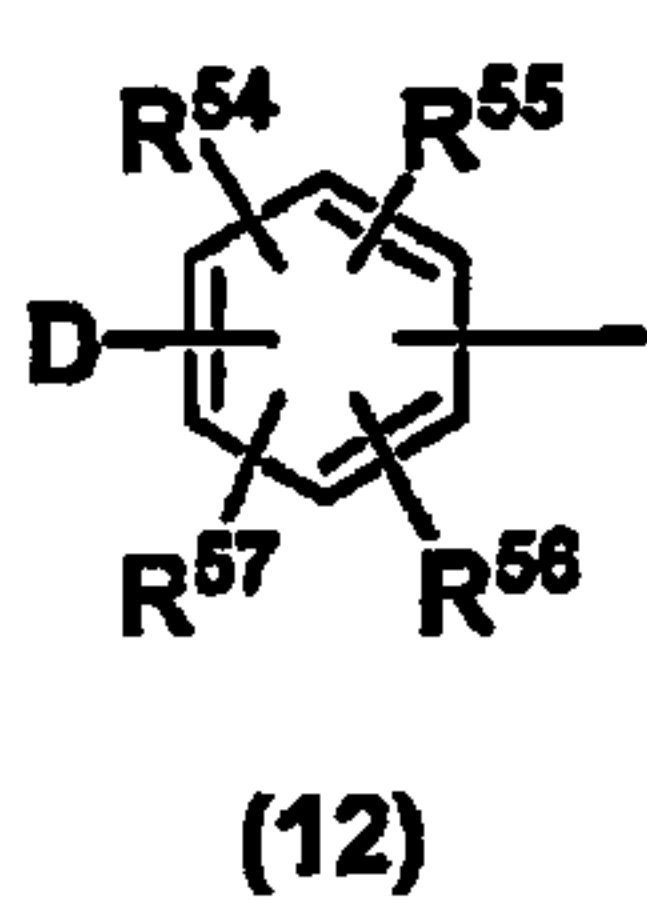


(式中， R^1 係分別獨立地表示氫原子或碳數 1~20 之烷基)

Ar 係分別獨立地表示下述式 (8)~(11) 表示之基；



(式中， R^2 表示氫原子、碳數 1~20 之烷基；可經氰基、硝基、鹵素原子、碳數 1~20 之烷基或碳數 1~20 之鹵烷基取代之碳數 6~20 之芳基；或下述式 (12)~(14)



表示之基，式中，D 表示各芳基分別獨立地為碳數 6～20 之芳基的二芳基胺基，式(8)～(14)中， $R^3 \sim R^{77}$ 係分別獨立地表示氫原子、氰基、硝基、鹵素原子、碳數 1～20 之烷基或碳數 1～20 之鹵烷基)

Ar^F 係分別獨立地表示可經氰基、氯原子、溴原子、碘原子、硝基、碳數 1～20 之烷基、碳數 1～20 之氟烷基或碳數 1～20 之氟烷氧基取代的碳數 6～20 之氟芳基；經碳數 1～20 之氟烷基、碳數 3～20 之氟環烷基、碳數 4～20 之氟雙環烷基、碳數 2～20 之氟烯基或碳數 2～20 之氟炔基取代，而且可經氰基、鹵素原子或碳數 1～20 之氟烷氧基取代的碳數 6～20 之芳基；

X 表示鹵素原子或擬鹵素基]。