



(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 I613207 B

(45)公告日：中華民國 107 (2018) 年 02 月 01 日

(21)申請案號：103105200

(22)申請日：中華民國 103 (2014) 年 02 月 18 日

(51)Int. Cl. : C07F7/18 (2006.01) C07C211/54 (2006.01)
 C09K11/06 (2006.01) C08K5/544 (2006.01)
 C08K5/18 (2006.01)

(30)優先權：2013/02/18 日本 2013-029045

(71)申請人：信越化學工業股份有限公司(日本) SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD. (JP)
日本

(72)發明人：伊藤雄佑 ITOH, YUSUKE (JP)；清森步 KIYOMORI, AYUMU (JP)

(74)代理人：林志剛

(56)參考文獻：

EP 2457917A1

US 2007/0048532A1

Kamino et al., "Liquid Triarylamines: The Scope and Limitations of Piers-Rubinsztajn Conditions for Obtaining Triarylamine-Siloxane Hybrid Materials", The Journal of Organic Chemistry, Vol. 77, No. 4, 5 January 2012, Pages 1663-1674

審查人員：洪敏峰

申請專利範圍項數：9 項 圖式數：0 共 55 頁

(54)名稱

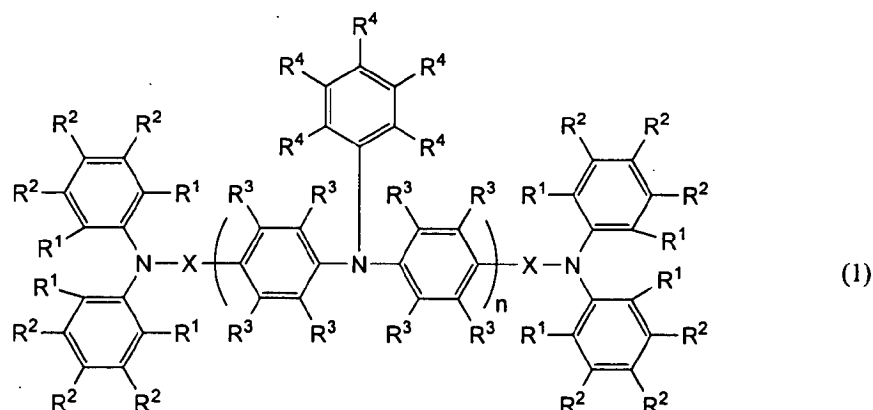
螢光性化合物、其製造方法及螢光性樹脂組成物

FLUORESCENT COMPOUND, METHOD FOR PRODUCING THE SAME, AND FLUORESCENT RESIN COMPOSITION

(57)摘要

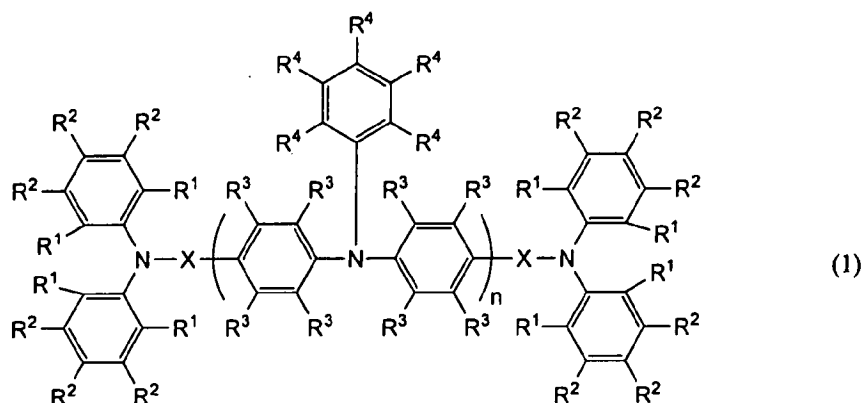
本發明之目的在於提供與樹脂的相溶性優異，以簡便的方法可製作樹脂組成物之螢光性化合物、其製造方法、以及含有螢光性化合物之螢光性樹脂組成物。

本發明提供下述通式(1)所示之螢光性化合物



(式(1)中， $R^1 \sim R^4$ 各自獨立表示由碳數1~20的直鏈狀、支鏈狀或環狀的一價烴基、碳數1~20的烷氧基、碳數6~20的芳氧基、鹵素原子、氫原子、胺基、氰基、含胺的基及含矽氧烷的基中選

An object of the present invention is to provide a fluorescent compound that has an excellent compatibility with resins and can be incorporated into a resin composition in a simple way, a method of producing the same, and a fluorescent resin composition containing the same. The present invention provides a fluorescent compound represented by the following general formula (1):



wherein R¹ to R⁴ each independently represent a substituent selected from a linear, branched or cyclic monovalent hydrocarbon group having 1 to 20 carbon atoms, alkoxy group having 1 to 20 carbon atoms, aryloxy group having 6 to 20 carbon atoms, halogen atom, hydrogen atom, amino group, cyano group, amine-containing group, and siloxane-containing group; with the proviso that when an amine-containing group as the substituent is not included, at least one of R¹ to R⁴ is a siloxane-containing group represented by S_X-A-, and that when an amine-containing group as the substituent is included, at least one of R¹ to R⁴ and a substituent of the amine-containing group is a siloxane-containing group represented by S_X-A-; a method of producing the same; and a fluorescent resin composition containing the same.

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)

螢光性化合物、其製造方法及螢光性樹脂組成物

Fluorescent compound, method for producing the same, and fluorescent resin composition

【技術領域】

本發明關於新穎的螢光性化合物、其製造方法及螢光性樹脂組成物。

【先前技術】

具有螢光性發色團的有機化合物（以下稱為「螢光性化合物」），由於比螢光性無機化合物便宜，而作為螢光性油墨或螢光顏料，使用於紙、纖維、樹脂等之著色劑。

著色劑係大致區分為染料與顏料這二種。顏料係具有發色團的分子之凝聚體，粒徑大。相對於其，染料係可溶解於溶劑或樹脂等介質中之含發色團的分子。一般地，與經染料著色的材料相比，經顏料著色的材料由於著色劑的粒徑大，而透明性或明度、彩度差。

除了如螢光標籤之在分子間進行化學反應之情況情況，一般多使用螢光性化合物作用顏料。其理由之一個為因顏料一般耐光性高，可提高耐光性。另一個可舉出的理由為染料在低極性介質中的溶解度低。

基於上述之理由，藉由螢光性化合物進行樹脂之著色時，在如丙烯酸樹脂或聚酯樹脂之極性比較高的樹脂之情況中，亦可能使用染料來進行，但在如聚烯烴樹脂或聚矽氧樹脂之極性低的樹脂之情況中，由於染料的溶解性低，必然地變成使用顏料。使用顏料進行著色時，為了得到透明的樹脂組成物，必須將顏料細粉碎至比光的波長小之大小且使均勻分散在樹脂中。然而，此係消耗許多的能量與時間之步驟。

作為提高極性低的樹脂與螢光性化合物之相溶性的方法，有使螢光性化合物鍵結於樹脂之方法。例如，專利文獻 1（特開 2007-169535 號公報）中，記載使胺基聚矽氧樹脂與螢光性化合物鍵結之聚矽氧樹脂。

作為螢光性化合物利用的化合物係已知有眾多，例如三芳基胺衍生物由於可得到高亮度、高發光效率之發光，而可作為有機電致發光元件之發光材料（專利文獻 2：特開昭 58-65440 號公報、專利文獻 3：日本發明專利第 3412348 號公報）。然而，專利文獻 2 或專利文獻 3 中所示的化合物，係缺乏在有機溶劑中的溶解性及與樹脂的相溶性。因此，專利文獻 4（日本發明專利第 3897879 號）中顯示藉由烷氧基矽烷基來將三芳基胺衍生物改性，而提高在有機溶劑中的溶解性之化合物。

又，專利文獻 5（特開 2007-63273 號公報）中舉出藉由將矽氧烷基當作間隔物，連結二分子的三芳基胺，而提高在有機溶劑中的溶解性之化合物。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

[專利文獻 1] 特開 2007-169535 號公報

[專利文獻 2] 特開昭 58-65440 號公報

[專利文獻 3] 日本發明專利第 3412348 號公報

[專利文獻 4] 日本發明專利第 3897879 號公報

[專利文獻 5] 特開 2007-63273 號公報

【發明內容】

然而，存在進一步發展上述習知技術的必要性。例如，於專利文獻 1 所揭示之方法中，未反應的螢光性化合物之完全去除係困難，於保存中或使用中由於此凝聚及析出，外觀或光學特性發生變化而不宜。又，由於是高分子，而具有分子量分布，每分子的化學構造不均一，故難以成為使螢光性化合物均勻地分散於樹脂內部之狀態。再者，當分子內複數的螢光性取代基接近存在時，亦有因準分子發光而色調變化之可能性。

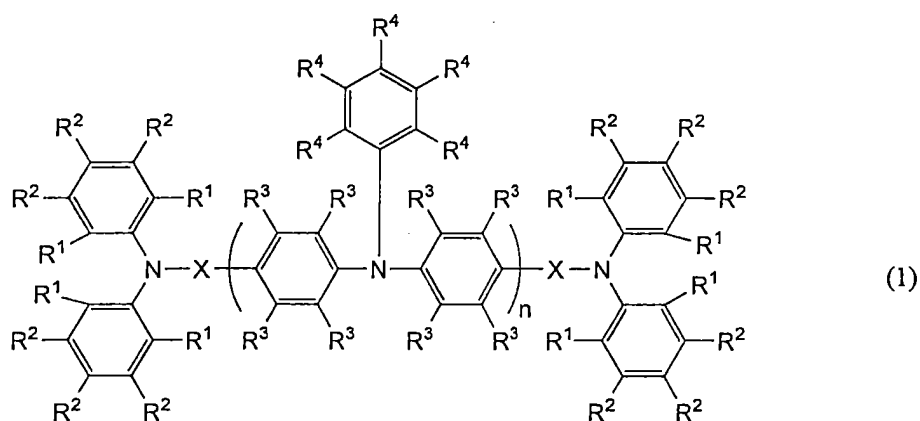
又，將專利文獻 2 或專利文獻 3 改良的專利文獻 4 中揭示之方法，係因為烷氧基矽烷基為反應性，進行水解及脫水縮合，而在操作或保存時有缺乏安定性之問題。

於專利文獻 5 揭示的方法中，雖然在有機溶劑中的溶解性升高，但在如脂肪族烴或聚矽氧樹脂之極性低的溶劑或樹脂中的溶解性係幾乎沒有改善，難以在此等溶劑或樹

脂中作為染料或螢光材料使用。

本發明係鑒於上述情事而完成者，目的在於提供在有機溶劑中的溶解性，及與樹脂或預聚物或單體的相溶性，尤其與聚矽氧樹脂的相溶性優異，以簡便的方法可製作樹脂組成物之螢光性化合物、含有其之螢光性樹脂組成物、以及其製造方法。

即，本發明提供下述通式（1）所示之螢光性化合物。

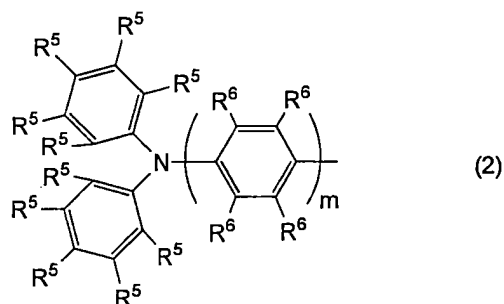


{通式（1）中，

$R^1 \sim R^4$ 各自獨立表示由碳數 1~20 的直鏈狀、支鏈狀或環狀的一價烴基、碳數 1~20 的烷氧基、碳數 6~20 的芳氧基、鹵素原子、氫原子、胺基、氰基、下述通式（2）所示之含胺的基及下述通式（3）所示之含矽氧烷的基中選出之取代基，惟亦可 R^1 不存在，相對於鍵結在 X 的氮原子，鄰位之碳係鍵結而形成呋唑環構造；

當不含有下述通式（2）所示之含胺的基作為取代基時， $R^1 \sim R^4$ 中的至少一個係下述通式（3）所示之含矽氧烷的基，當含有下述通式（2）所示之含胺的基作為取代基

時， $R^1 \sim R^6$ 中的至少一個係下述通式 (3) 所示之含矽氧烷的基；



(通式 (2) 中，

R^5 、 R^6 各自獨立表示由碳數 1~20 的直鏈狀、支鏈狀或環狀的 1 價烴基、碳數 1~20 的烷氧基、碳數 6~20 的芳氧基、鹵素原子、氫原子、胺基、下述通式 (3) 所示之含矽氧烷的基中選出之取代基， m 為 0 或 1)；



(通式 (3) 中，

S_x 係矽原子數 2~10，表示碳數 1~20 的一價烴基鍵結於該矽原子的至少一個而成之直鏈狀、支鏈狀或環狀的有機矽氧烷基；

A 表示單鍵、或可含有 1 個以上的 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NR^0-$ 或彼等之組合的碳數 1~20 的直鏈狀、支鏈狀或環狀的二價烴基，惟除了 A 為環狀的二價烴基之情況以外，氧原子、硫原子及氮原子的雜原子彼此不鄰接， R^0 係碳數 1~20 的一價烴基)；

X 可相同或相異，表示單鍵、碳數 1~20 的直鏈狀、支鏈狀或環狀的二價烴基，碳原子的一部可被雜原子取代；

n 為 $0 \sim 5$ 之整數}。

作為較佳的實施形態，可舉出於通式 (1) 中， n 為 1、3 或 5， R^4 之任一個以上係通式 (3) 所示之含矽氧烷的基之螢光性化合物。

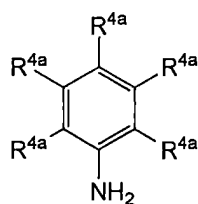
作為另一較佳實施形態，可舉出於通式 (1) 中， R^2 中的至少一個係通式 (2) 所示之含胺的基，且 R^5 之任一個以上係通式 (3) 所示之含矽氧烷的基之螢光性化合物。

作為又另一較佳實施形態，可舉出於通式 (1) 中， n 為 0， R^2 之任一個以上係通式 (3) 所示之含矽氧烷的基之螢光性化合物。

依照另一實施形態，本發明係一種螢光性樹脂組成物，其包含上述中任一項記載之螢光性化合物與樹脂所成。

作為較佳的實施形態，前述樹脂係聚矽氧樹脂。

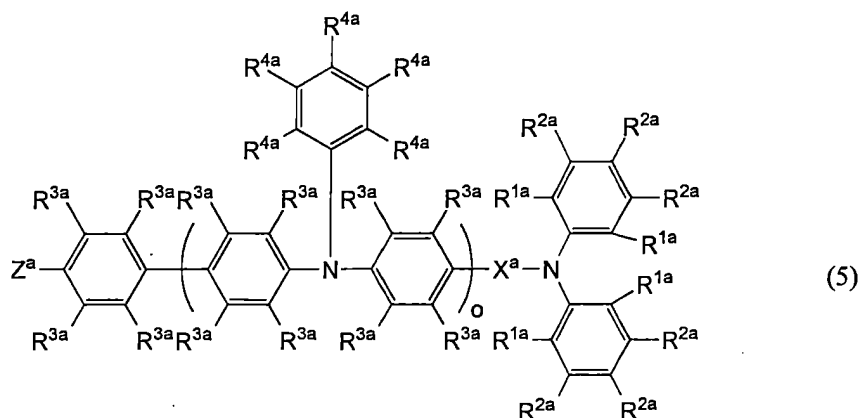
依照另一觀點，本發明係一種螢光性化合物之製造方法，其中於通式 (1) 中， n 為 1、3 或 5， R^4 的任一個以上係通式 (3) 所示之含矽氧烷的基，該螢光性化合物之製造方法包含使下述通式 (4) 所示之胺化合物與下述通式 (5) 所示之芳香族鹵素化合物在過渡金屬觸媒存在下反應之步驟；



(4)

(通式(4)中，

R^{4a} 各自係與通式(1)中的 R^4 相同)。



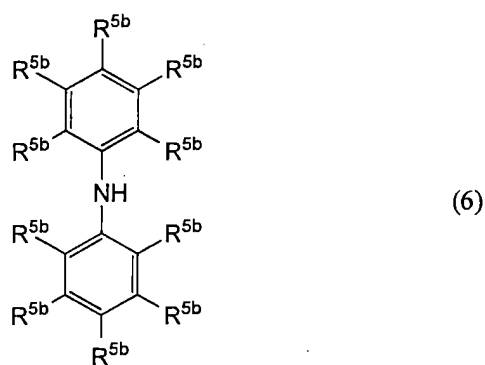
(通式(5)中， $R^{1a} \sim R^{4a}$ 各自係與通式(1)中的 $R^1 \sim R^4$ 相同；

Z^a 係鹵素原子；

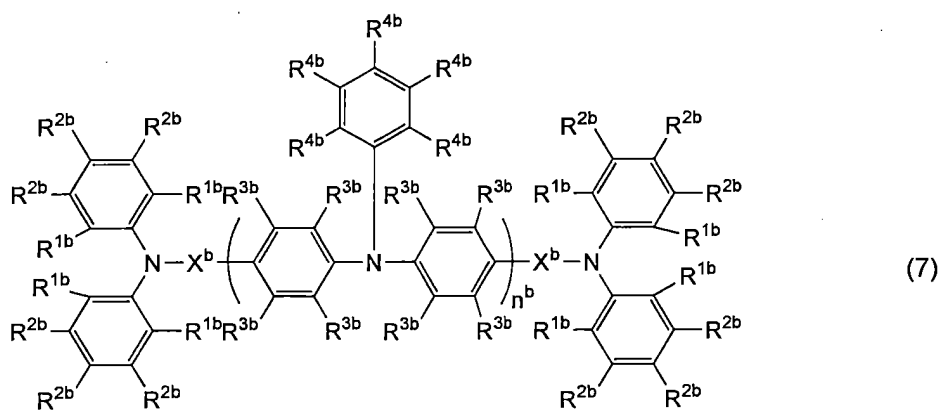
X^a 係與通式(1)中的 X 相同；

o 表示 $0 \sim 2$ 之整數，與通式(1)中的 n 滿足 $o = (n-1)/2$)。

依照又另一觀點，本發明係一種螢光性化合物之製造方法，其中於通式(1)中， R^2 中的至少一個係通式(2)所示之含胺的基，且 R^5 的任一個以上係通式(3)所示之含矽氧烷的基，該螢光性化合物之製造方法包含使下述通式(6)所示之胺化合物與下述通式(7)所示之芳香族鹵素化合物在過渡金屬觸媒存在下反應之步驟；



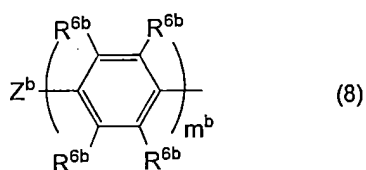
(通式(6)中， R^{5b} 各自係與通式(2)中的 R^5 相同)；



(通式(7)中， $R^{1b} \sim R^{4b}$ 各自係與通式(1)中的 $R^1 \sim R^4$ 相同；

X^b 各自係與通式(1)中的 X 相同；

n^b 係與通式(1)中的 n 相同)；



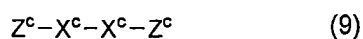
(通式(8)中， R^{6b} 各自係與通式(2)中的 R^6 相同；

m^b 係與通式(2)中的 m 相同；

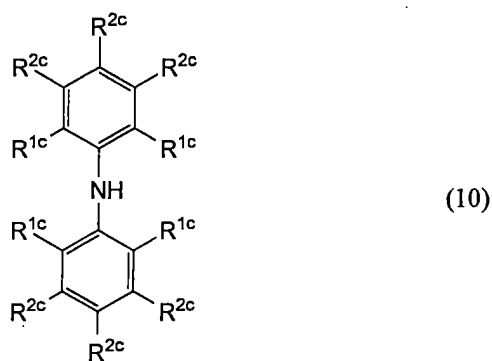
Z^b 係鹵素原子，惟 R^{2b} 的至少1個表示式(8)所示之取代基)。

依照再另一觀點，本發明係一種螢光性化合物之製造

方法，其中於通式（1）中， n 為 0，該螢光性化合物之製造方法包含使下述通式（10）所示之胺化合物與下述通式（9）所示之芳香族鹵素化合物在過渡金屬觸媒存在下反應之步驟；



（通式（9）中， X^c 各自係與通式（1）中的 X 相同， Z^c 係鹵素原子）；



（通式（10）中， R^{1c} 、 R^{2c} 各自係與通式（1）中的 R^1 、 R^2 相同）。

本發明之螢光性化合物，係在有機溶劑中的溶解性及對低極性樹脂的相溶性優異，而且具備充分的螢光特性作為螢光性化合物。又，使用本發明之螢光性化合物，可以簡便的方法製造螢光性樹脂組成物。再者，本發明之螢光性樹脂組成物係透明性或明度、彩度優異，尤其較宜使用在螢光油墨或波長轉換材料、色素雷射等之用途中。

【實施方式】

以下，參照實施形態來說明本發明。

[螢光性化合物]

依照一實施形態，本發明係螢光性化合物。本實施形態之螢光性化合物係以上述通式（1）表示。

通式（1）中， $R^1 \sim R^4$ 係可相同或相異，表示由碳數 1～20、較佳碳數 1～12 的直鏈狀、支鏈狀或環狀的一價烴基；碳數 1～20、較佳碳數 1～12 的烷氧基；碳數 6～20、較佳碳數 6～12 的芳氧基；鹵素原子、氫原子、胺基、氰基、上述通式（2）所示之含胺的基、及上述通式（3）所示之含矽氧烷的基中選出的取代基。惟，亦可 R^1 不存在，相對於氮原子，鄰位之碳係鍵結而形成吡啶環構造。

於通式（1）中，當不含有通式（2）所示之含胺的基作為取代基時， $R^1 \sim R^4$ 中的至少一個係上述通式（3）所示之含矽氧烷的基。另一方面，於通式（1）中，當不含有上述通式（2）所示之含胺的基作為取代基時， $R^1 \sim R^6$ 中的至少一個係上述通式（3）所示之含矽氧烷的基。

作為可構成 $R^1 \sim R^4$ 的上述一價烴基之具體例，可舉出甲基、乙基、丙基、丁基、己基、庚基、辛基、壬基、癸基、十一基、十二基、十四基、十六基、十八基、二十基等之直鏈狀飽和烴基、異丙基、異丁基、第二丁基、第三丁基、戊基、環戊基、異戊基、2-戊基、3-戊基、第三戊基等之支鏈狀飽和烴基、環己基、環戊基等之環狀飽和烴基；乙烯基、烯丙基、丙烯基、1-甲基丙烯基、丁烯基、戊烯基、己烯基、庚烯基、辛烯基、壬烯基、癸烯

基、十一烯基、十八烯基等之烯基、乙炔基、丙炔基等之炔基等不飽和烴基；苯基、萘基、苄基、苯乙基、苯丙基、2-甲基苯基、3-甲基苯基、4-甲基苯基、2,4-二甲基苯基、3,5-二甲基苯基、3,5-二第三丁基苯基、聯苯基等的芳基、芳烷基等的芳香族烴基。

於此等之中，特佳為甲基、乙基、丙基、異丙基、丁基、異丁基、第二丁基、第三丁基、戊基、己基、庚基、辛基、壬基、癸基、十一基、十二基、乙烯基、烯丙基、苯基。

作為上述烷氧基之例，可舉出甲氧基、乙氧基、丁氧基、第三丁氧基、己氧基等。

作為上述芳氧基之例，可舉出苯氧基、對甲基苯氧基、萘氧基等。

作為上述鹵素原子之例，可舉出氟、氯、溴、碘。

作為上述胺基之例，可舉出二甲基胺基、二乙基胺基等。

上述通式（2）中， R^5 、 R^6 係可相同或相異，表示由碳數 1~20、較佳碳數 1~12 的直鏈狀、支鏈狀或環狀的一價烴基，碳數 1~20、較佳碳數 1~12 的烷氧基，碳數 6~20、較佳碳數 6~12 的芳氧基，鹵素原子、氫原子、胺基、上述通式（3）所示之含矽氧烷的基中選出的取代基。 m 為 0 或 1。

可構成 R^5 、 R^6 的一價烴基、烷氧基、芳氧基、鹵素原子、胺基之具體例，係與通式（1）的 $R^1 \sim R^4$ 中說明者

同樣。

上述通式 (3) 中， S_x 係矽原子數 2~10，較佳為 2~8，從耐熱性之面來看更佳為 2~6，表示碳數為 1~20，更佳為 1~10，尤佳為 1~6 的一價烴基鍵結於該矽原子的至少一個而成之直鏈狀、支鏈狀或環狀的有機矽氧烷基。矽原子之數愈多，在有機溶劑中的溶解性愈升高，但耐熱性會降低。

作為鍵結於矽原子的一價烴基之具體例，可舉出甲基、乙基、丙基、異丙基、丁基、第二丁基、第三丁基等之烷基，環己基等之環烷基，苯基、甲苯基、萘基等之芳基，乙烯基、烯丙基、丙烯基、丁烯基等之烯基，苄基、苯乙基等之芳烷基等。鍵結於矽原子的一價烴基係在 S_x 中例如為 1~10 個，較佳為 1~8 個，更佳為 1~6 個。

作為 S_x 之具體例，可舉出五甲基二矽氧烷-1-基、3,3,3-三乙基-1,1-二甲基二矽氧烷-1-基、五乙基二矽氧烷-1-基、3-乙烯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基、3-苄基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基、3-第三丁基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基、3,3,3-三異丙基-1,1-二甲基二矽氧烷-1-基、3-苯基-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基、1,1-二苯基-3,3,3-三甲基二矽氧烷-1-基、3,3-二苯基-1,1,3-三甲基二矽氧烷-1-基、3,3,3-三苯基-1,1-二甲基二矽氧烷-1-基、3-甲基-1,1,3,3-四苯基二矽氧烷-1-基、五苯基二矽氧烷-1-基、1-環己基-1,3,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基、七甲基三矽氧烷-1-基、5-苯基-1,1,3,3,5,5-六甲基三矽氧烷-1-基、

5,5-二苯基-1,1,3,3,5-五甲基三矽氧烷-1-基、5,5,5-三苯基-1,1,3,3-四甲基三矽氧烷-1-基、3,3,5-三苯基-1,1,5,5-四甲基三矽氧烷-1-基、七苯基三矽氧烷-1-基、九甲基四矽氧烷-1-基、7,7,7-三苯基-1,1,3,3,5,5-六甲基四矽氧烷-1-基、5,5,7,7,7-五苯基-1,1,3,3-四甲基四矽氧烷-1-基、3,3,5,5,7,7,7-七苯基-1,1-二甲基四矽氧烷-1-基、九苯基四矽氧烷-1-基、十一甲基五矽氧烷-1-基、9,9,9-三苯基-1,1,3,3,5,5,7,7-八甲基五矽氧烷-1-基、7,7,9,9,9-五苯基-1,1,3,3,5,5-六甲基五矽氧烷-1-基、5,5,7,7,9,9,9-七苯基-1,1,3,3-四甲基五矽氧烷-1-基、3,3,5,5,7,7,9,9,9-十苯基-1,1-二甲基五矽氧烷-1-基、十一苯基五矽氧烷-1-基、十二甲基六矽氧烷-1-基、十五甲基七矽氧烷-1-基、十七甲基八矽氧烷-1-基、十九甲基九矽氧烷-1-基、二十一甲基十矽氧烷-1-基等的直鏈狀有機矽氧烷基，1-三甲基矽烷氧基-1,3,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基、1-苯基二甲基矽烷氧基-1,3,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基、1-苯基二甲基矽烷氧基-3-苯基-1,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基、1-苯基二甲基矽烷氧基-1,3-二苯基-3,3-二甲基二矽氧烷-1-基、1,1,5,5-四苯基-1,3,5-三甲基三矽氧烷-3-基、1,1,1,5,5,5-六苯基-3-甲基三矽氧烷-3-基、1-三甲基矽氧烷基-1,3,3,5,5,5-六甲基三矽氧烷-1-基、1-五甲基二矽氧烷基氧基-1,3,3,5,5,5-六甲基三矽氧烷-1-基、1-三甲基矽烷氧基-1,3,3,5,5,7,7,7-八甲基四矽氧烷-1-基、1,1-雙（三甲基矽烷氧基）-3,3,3-三甲基二矽氧烷-1-基、1-三苯基矽烷氧基-1,3,3,3-四苯基二矽氧

烷-1-基、1-三苯基矽烷氧基-1,3,3,5,5,5-六苯基三矽氧烷-1-基、1-五苯基二矽氧烷基氧基-1,3,3,5,5,5-六苯基三矽氧烷-1-基、1-三苯基矽烷氧基-3,5,5,7,7,9,9,9-八苯基四矽氧烷-1-基、1,1-雙(三苯基矽烷氧基)-3,3,3-三苯基二矽氧烷-1-基等之支鏈狀有機矽氧烷基，1,3,3,5,5,7,7-七甲基環四矽氧烷-1-基、1,3,5,7-四甲基-3,5,7-三乙烯基環四矽氧烷-1-基、1,3,3,5,5,7,7-七苯基環四矽氧烷-1-基、1,3,5,7-四苯基-3,5,7-三乙烯基環四矽氧烷-1-基等之環狀有機矽氧烷基等。

於此等之中，從合成上的容易度之觀點來看，五甲基二矽氧烷-1-基、七甲基三矽氧烷-1-基、九甲基四矽氧烷-1-基、十一甲基五矽氧烷-1-基、1-三甲基矽烷氧基-1,3,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基、1,3,3,5,5,7,7-七甲基環四矽氧烷-1-基、五苯基二矽氧烷-1-基、七苯基三矽氧烷-1-基、九苯基四矽氧烷-1-基、十一苯基五矽氧烷-1-基、1-三苯基矽烷氧基-1,3,3,3-四苯基二矽氧烷-1-基、1,3,3,5,5,7,7-七苯基環四矽氧烷-1-基係作為 S_x 特佳。

上述通式(3)中，A 表示單鍵、或可含有 1 個以上的 -O-、-S-、-NR⁰-或彼等之組合的碳數 1~20、較佳碳數 1~12 的直鏈狀、支鏈狀或環狀的二價烴基。惟，除了環狀的二價烴基之情況以外，氧原子、硫原子及氮原子的雜原子彼此不鄰接；R⁰ 係碳數 1~20 的一價烴基。

R⁰ 係碳數 1~20、較佳碳數 1~12 的一價烴基，具體地可舉出甲基、乙基、丙基、丁基、己基、戊基、辛基、

基、1,4-苯二基、2-甲基-1,4-苯二基、3-甲基-1,4-苯二基、2,5-二甲基-1,4-苯二基、1,8-萘二基、2,7-萘二基、1,4-蒽二基、1,5-蒽二基、2,6-蒽二基、9,10-蒽二基、1,6-芘二基、1,8-芘二基、2,7-芘二基、4,9-芘二基、4-乙基苯-1,2'-二基、4-丙基苯-1,3'-二基等的芳香族二價烴基，2-氧雜-1,3-丙烷二基、3-氧雜-1,5-戊烷二基、3-氧雜-2-甲基-1,5-戊烷二基、3-氧雜-1,6-己烷二基、3-氧雜-2-甲基-1,5-己烷二基、3-氧雜-2-甲基-1,6-己烷二基、3,6-二氧雜-1,8-辛烷二基、3,7-二氧雜-1,9-壬烷二基、3-甲基-3-氮雜-1,5-戊烷二基、3-甲基-3-氮雜-1,6-己烷二基、3-苯基-3-氮雜-1,6-己烷二基、3-甲基-3-氮雜-7-氧雜-1,9-壬烷二基、3-硫雜-1,5-戊烷二基、3,6-二硫雜-1,8-辛烷二基、2,5-呋喃二基、2,5-噻吩二基、1,2,4-噁二唑-3,5-二基、1,3,4-噁二唑-2,5-二基、1,2,4-噻二唑-3,5-二基、1,3,4-噻二唑-2,5-二基等之含有雜原子的二價烴基等。

於此等之中，從可賦予更高的溶解性之觀點來看，單鍵、亞甲基、1,2-乙烷二基、1,3-丙烷二基、2-甲基-1,3-丙烷二基、1,4-丁烷二基、1,5-戊烷二基、1,6-己烷二基、1,7-庚烷二基、1,8-辛烷二基、1,9-壬烷二基、1,10-癸烷二基、1,11-十一烷二基係作為 A 所示之取代基特佳。

通式 (3) 中， S_x 、A 係可為任意的組合。若例示 S_x 為十一甲基五矽氧烷-1-基之情況，則作為通式 (3) 所示之含矽氧烷的基之具體例，可舉出十一甲基五矽氧烷-1-基等之矽氧烷基，十一甲基五矽氧烷-1-基甲基、2-(十一

甲基五矽氧烷-1-基) 乙基、1-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 乙基、2-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 乙烯基、3-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 丙基、2-甲基-3-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 丙基、4-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 丁基、5-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 戊基、6-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 己基、7-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 庚基、8-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 辛基、9-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 壬基、10-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 癸基、11-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 十一基、12-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 十二基、14-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 十四基、16-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 十六基、18-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 十八基、20-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 二十基、4-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 苯基、3-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 苯基、4-[2-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 乙基]苯基、4-[3-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 丙基]苯基、4-[2-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 丙基]苯基、2-{2-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 乙氧基}乙基、3-{2-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 乙氧基}丙基、2-{3-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 丙氧基}乙基、2-{3-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 丙氧基}丙基、2-{2-{3-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 丙氧基}乙氧基}乙基、2-{2-{3-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 丙氧基}丙氧基}乙基、2-{2-{3-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 丙氧基}丙氧基}丙基等之取代烴基，(十一甲基五矽氧烷-1-基) 甲氧基、2-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 乙氧基、

3-(十一甲基五矽氧烷-1-基)丙氧基、2-甲基-3-(十一甲基五矽氧烷-1-基)丙氧基、3-(十一甲基五矽氧烷-1-基)丁氧基、4-(十一甲基五矽氧烷-1-基)丁氧基、4-(十一甲基五矽氧烷-1-基)苯氧基、2-{2-(十一甲基五矽氧烷-1-基)乙氧基}乙氧基、3-{2-(十一甲基五矽氧烷-1-基)乙氧基}丙氧基、2-{3-(十一甲基五矽氧烷-1-基)丙氧基}乙氧基、2-{3-(十一甲基五矽氧烷-1-基)丙氧基}丙氧基、2-{2-{3-(十一甲基五矽氧烷-1-基)丙氧基}乙氧基}乙氧基、2-{2-{3-(十一甲基五矽氧烷-1-基)丙氧基}丙氧基}乙氧基、2-{2-{3-(十一甲基五矽氧烷-1-基)丙氧基}丙氧基}丙氧基、2-[N-甲基-N-{3-(十一甲基五矽氧烷-1-基)丙基}胺基]乙氧基、2-[N-甲基-N-{3-(十一甲基五矽氧烷-1-基)丙基}胺基]乙氧基、1-甲基-2-[N-甲基-N-{3-(十一甲基五矽氧烷-1-基)丙基}胺基]乙氧基、2-{2-(十一甲基五矽氧烷-1-基)乙基巯基}乙氧基等之取代有機氧基，(十一甲基五矽氧烷-1-基)甲氧羰基、2-(十一甲基五矽氧烷-1-基)乙氧羰基、3-(十一甲基五矽氧烷-1-基)丙氧羰基、2-甲基-3-(十一甲基五矽氧烷-1-基)丙氧羰基、3-(十一甲基五矽氧烷-1-基)丁氧羰基、4-(十一甲基五矽氧烷-1-基)苯氧羰基、2-{2-(十一甲基五矽氧烷-1-基)乙氧基}乙氧羰基、3-{2-(十一甲基五矽氧烷-1-基)乙氧基}丙氧羰基、2-{3-(十一甲基五矽氧烷-1-基)丙氧基}乙氧羰基、2-{3-(十一甲基五矽氧烷-1-基)丙氧基}丙氧羰基、2-{2-{3-(十一甲基五

矽氧烷-1-基) 丙氧基}乙氧基}乙氧羰基、2-{2-{3-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 丙氧基}丙氧基}乙氧羰基、2-{2-{3-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 丙氧基}丙氧基}丙氧羰基、2-[N-甲基-N-{3-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 丙基}胺基]乙氧羰基、2-[N-甲基-N-{3-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 丙基}胺基]乙氧羰基、1-甲基-2-[N-甲基-N-{3-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 丙基}胺基]乙氧羰基、2-{2-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 乙基巯基}乙氧羰基等之取代有機氧羰基，(十一甲基五矽氧烷-1-基) 乙醯氧基、3-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 丙醯氧基、2-甲基-3-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 丙醯氧基、5-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 戊醯氧基、6-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 己醯氧基、11-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 十一醯氧基、4-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 苯甲醯氧基、{2-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 乙氧基}乙醯基、3-{2-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 乙氧基}丙醯氧基、{3-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 丙氧基}乙醯氧基、3-{3-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 丙氧基}丙醯氧基、{2-{3-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 丙氧基}乙氧基}乙醯氧基、{2-{3-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 丙氧基}丙氧基}乙醯氧基、3-[N-甲基-N-{3-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 丙基}胺基]丙醯氧基、3-[N-甲基-N-{3-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 丙基}胺基]丙醯氧基等之取代醯氧基。

作為通式(3)所示的基，較佳為組合上述 S_x 之較佳例與上述 A 之較佳例而得之基。特別地，更佳為五甲基二

矽氧烷-1-基、七甲基三矽氧烷-1-基、九甲基四矽氧烷-1-基、十一甲基五矽氧烷-1-基、1-三甲基矽烷氧基-1,3,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基、1,3,3,5,5,7,7-七甲基環四矽氧烷-1-基、五苯基二矽氧烷-1-基、七苯基三矽氧烷-1-基、九苯基四矽氧烷-1-基、十一苯基五矽氧烷-1-基、1-三苯基矽烷氧基-1,3,3,3-四苯基二矽氧烷-1-基、1,3,3,5,5,7,7-七苯基環四矽氧烷-1-基、3-（五甲基二矽氧烷-1-基）丙基、3-（七甲基三矽氧烷-1-基）丙基、3-（九甲基四矽氧烷-1-基）丙基、3-（十一甲基五矽氧烷-1-基）丙基、3-（1-三甲基矽烷氧基-（1,3,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基）丙基、3-（1,3,3,5,5,7,7-七甲基環四矽氧烷-1-基）丙基、3-（五苯基二矽氧烷-1-基）丙基、3-（七苯基三矽氧烷-1-基）丙基、3-（九苯基四矽氧烷-1-基）丙基、3-（十一苯基五矽氧烷-1-基）丙基、3-（1-三苯基矽烷氧基-1,3,3,3-四苯基二矽氧烷-1-基）丙基、3-（1,3,3,5,5,7,7-七苯基環四矽氧烷-1-基）丙基、4-（五甲基二矽氧烷-1-基）丁基、4-（七甲基三矽氧烷-1-基）丁基、3-（九甲基四矽氧烷-1-基）丁基、4-（十一甲基五矽氧烷-1-基）丁基、4-（1-三甲基矽烷氧基-1,3,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基）丁基、4-（1,3,3,5,5,7,7-七甲基環四矽氧烷-1-基）丁基、4-（五苯基二矽氧烷-1-基）丁基、4-（七苯基三矽氧烷-1-基）丁基、3-（九苯基四矽氧烷-1-基）丁基、4-（十一苯基五矽氧烷-1-基）丁基、4-（1-三苯基矽烷氧基-1,3,3,3-四苯基二矽氧烷-1-基）丁基、4-（1,3,3,5,5,7,7-七苯基環四矽氧

烷-1-基) 丁基、5-(五甲基二矽氧烷-1-基) 戊基、5-
 (七甲基三矽氧烷-1-基) 戊基、5-(九甲基四矽氧烷-1-
 基) 戊基、5-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 戊基、5-(1-三
 甲基矽烷氧基-1,3,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基) 戊基、5-
 (1,3,3,5,5,7,7-七甲基環四矽氧烷-1-基) 戊基、5-(五苯
 基二矽氧烷-1-基) 戊基、5-(七苯基三矽氧烷-1-基) 戊
 基、5-(九苯基四矽氧烷-1-基) 戊基、5-(十一苯基五矽
 氧烷-1-基) 戊基、5-(1-三苯基矽烷氧基-1,3,3,3-四苯基
 二矽氧烷-1-基) 戊基、5-(1,3,3,5,5,7,7-七苯基環四矽氧
 烷-1-基) 戊基、6-(五甲基二矽氧烷-1-基) 己基、6-
 (七甲基三矽氧烷-1-基) 己基、6-(九甲基四矽氧烷-1-
 基) 己基、6-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 己基、6-(1-三
 甲基矽烷氧基-1,3,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基) 己基、6-
 (1,3,3,5,5,7,7-七甲基環四矽氧烷-1-基) 己基、6-(五苯
 基二矽氧烷-1-基) 己基、6-(七苯基三矽氧烷-1-基) 己
 基、6-(九苯基四矽氧烷-1-基) 己基、6-(十一苯基五矽
 氧烷-1-基) 己基、6-(1-三苯基矽烷氧基-1,3,3,3-四苯基
 二矽氧烷-1-基) 己基、6-(1,3,3,5,5,7,7-七苯基環四矽氧
 烷-1-基) 己基、7-(五甲基二矽氧烷-1-基) 庚基、7-
 (七甲基三矽氧烷-1-基) 庚基、7-(九甲基四矽氧烷-1-
 基) 庚基、7-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 庚基、7-(1-三
 甲基矽烷氧基-1,3,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基) 庚基、7-
 (1,3,3,5,5,7,7-七甲基環四矽氧烷-1-基) 庚基、7-(五苯
 基二矽氧烷-1-基) 庚基、7-(七苯基三矽氧烷-1-基) 庚

基、7-(九苯基四矽氧烷-1-基)庚基、7-(十一苯基五矽氧烷-1-基)庚基、7-(1-三苯基矽烷氧基-1,3,3,3-四苯基二矽氧烷-1-基)庚基、7-(1,3,3,5,5,7,7-七苯基環四矽氧烷-1-基)庚基、8-(五甲基二矽氧烷-1-基)辛基、8-(七甲基三矽氧烷-1-基)辛基、8-(九甲基四矽氧烷-1-基)辛基、8-(十一甲基五矽氧烷-1-基)辛基、8-(1-三甲基矽烷氧基-1-基)辛基、8-(1,3,3,5,5,7,7-七甲基環四矽氧烷-1-基)辛基、8-(五苯基二矽氧烷-1-基)辛基、8-(七苯基三矽氧烷-1-基)辛基、8-(九苯基四矽氧烷-1-基)辛基、8-(十一苯基五矽氧烷-1-基)辛基、8-(1-三苯基矽烷氧基-1,3,3,3-四苯基二矽氧烷-1-基)辛基、8-(1,3,3,5,5,7,7-七苯基環四矽氧烷-1-基)辛基、9-(五甲基二矽氧烷-1-基)壬基、9-(七甲基三矽氧烷-1-基)壬基、9-(九甲基四矽氧烷-1-基)壬基、9-(十一甲基五矽氧烷-1-基)壬基、9-(1-三甲基矽烷氧基-1,3,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基)壬基、9-(1,3,3,5,5,7,7-七甲基環四矽氧烷-1-基)壬基、9-(五苯基二矽氧烷-1-基)壬基、9-(七苯基三矽氧烷-1-基)壬基、9-(九苯基四矽氧烷-1-基)壬基、9-(十一苯基五矽氧烷-1-基)壬基、9-(1-三苯基矽烷氧基-1,3,3,3-四苯基二矽氧烷-1-基)壬基、9-(1,3,3,5,5,7,7-七苯基環四矽氧烷-1-基)壬基、10-(五甲基二矽氧烷-1-基)癸基、10-(七甲基三矽氧烷-1-基)癸基、10-(九甲基四矽氧烷-1-基)癸基、10-(十一甲基五矽氧烷-1-基)癸基、10-(1-三甲基矽烷氧基-1,3,3,3-四

甲基二矽氧烷-1-基) 癸基、10-(1,3,3,5,5,7,7-七甲基環四矽氧烷-1-基) 癸基、10-(五苯基二矽氧烷-1-基) 癸基、10-(七苯基三矽氧烷-1-基) 癸基、10-(九苯基四矽氧烷-1-基) 癸基、10-(十一苯基五矽氧烷-1-基) 癸基、10-(1-三苯基矽烷氧基-1,3,3,3-四苯基二矽氧烷-1-基) 癸基、10-(1,3,3,5,5,7,7-七苯基環四矽氧烷-1-基) 癸基、11-(五甲基二矽氧烷-1-基) 十一基、11-(七甲基三矽氧烷-1-基) 十一基、11-(九甲基四矽氧烷-1-基) 十一基、11-(十一甲基五矽氧烷-1-基) 十一基、11-(1-三甲基矽烷氧基-1,3,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基) 十一基、11-(1,3,3,5,5,7,7-七甲基環四矽氧烷-1-基) 十一基、11-(五苯基二矽氧烷-1-基) 十一基、11-(七苯基三矽氧烷-1-基) 十一基、11-(九苯基四矽氧烷-1-基) 十一基、11-(十一苯基五矽氧烷-1-基) 十一基、11-(1-三苯基矽烷氧基-1,3,3,3-四苯基二矽氧烷-1-基) 十一基、11-(1,3,3,5,5,7,7-七苯基環四矽氧烷-1-基) 十一基。

通式(1)中，X係可相同或相異，表示單鍵、碳數1~20的直鏈狀、支鏈狀或環狀的二價烴。碳原子的一部分亦可被雜原子取代。此時，於二價烴基中，取代雜原子與碳原子之合計數為1~20。

作為X之具體例，可舉出單鍵，亞甲基、1,2-乙烷二基、1,1-乙烷二基、1,2-乙烯二基、1,1-乙烯二基、1,3-丙烷二基、1,2-丙烷二基、2-甲基-1,3-丙烷二基、1,3-丁烷二基、1,4-丁烷二基、1,5-戊烷二基、1,6-己烷二基、1,4-

環己烷二基、1,7-庚烷二基、1,8-辛烷二基、1,9-壬烷二基、1,10-癸烷二基、1,11-十一烷二基、1,12-十二烷二基、1,13-十三烷二基、1,14-十四烷二基、1,15-十五烷二基、1,16-十六烷二基、1,17-十七烷二基、1,18-十八烷二基、1,19-十九烷二基、1,20-二十烷二基等之直鏈狀、支鏈狀或環狀的脂肪族二價烴基，1,3-苯二基、1,4-苯二基、2-甲基-1,4-苯二基、3-甲基-1,4-苯二基、2,5-二甲基-1,4-苯二基、1,8-萘二基、2,7-萘二基、1,4-蒽二基、1,5-蒽二基、2,6-蒽二基、9,10-蒽二基、1,6-芘二基、1,8-芘二基、2,7-芘二基、4,9-芘二基、4-乙基苯-1,2'-二基、4-丙基苯-1,3'-二基等的芳香族二價烴基，2-氧雜-1,3-丙烷二基、3-氧雜-1,5-戊烷二基、3-氧雜-2-甲基-1,5-戊烷二基、3-氧雜-1,6-己烷二基、3-氧雜-2-甲基-1,5-己烷二基、3-氧雜-2-甲基-1,6-己烷二基、3,6-二氧雜-1,8-辛烷二基、3,7-二氧雜-1,9-壬烷二基、3-甲基-3-氮雜-1,5-戊烷二基、3-甲基-3-氮雜-1,6-己烷二基、3-苯基-3-氮雜-1,6-己烷二基、3-甲基-3-氮雜-1,7-氧雜-1,9-壬烷二基、3-硫雜-1,5-戊烷二基、3,6-二硫雜-1,8-辛烷二基、2,5-呋喃二基、2,5-噻吩二基、1,2,4-噁二唑-3,5-二基、1,3,4-噁二唑-2,5-二基、1,2,4-噻二唑-3,5-二基、1,3,4-噻二唑-2,5-二基等之含有雜原子的二價烴基等。

於此等之中，從合成上的容易度之觀點來看，單鍵、1,3-苯二基、1,4-苯二基、2-甲基-1,4-苯二基、3-甲基-1,4-苯二基、2,5-二甲基-1,4-苯二基、1,8-萘二基、2,7-萘二

基、1,4-蒽二基、1,5-蒽二基、2,6-蒽二基、9,10-蒽二基係作為 X 特佳。

本發明之上述通式 (1) 所示之螢光性化合物係以含有通式 (3) 所示之含矽氧烷的基者作為特徵。此處，含矽氧烷的基之矽氧烷部分係明確地規定構造，不是具有分子量分布的矽氧烷混合物。因此，通式 (1) 所示之化合物亦不是混合物而是單一化合物。使用螢光性化合物來製造組成物時，螢光發色團的莫耳濃度係決定組成物的螢光特性之重要因子。因此，為了正確地決定莫耳濃度，通式 (1) 所示之螢光性化合物較佳為單一化合物。

本發明之上述通式 (1) 所示之螢光性化合物，為了最大地發揮螢光特性，宜盡可能高純度地精製。如上述，由於通式 (1) 所示之本發明的螢光性化合物為單一化合物，可精製到高純度為止。作為精製方法，例如與通常的有機化合物同樣地，可舉出再結晶或晶析、昇華、溶劑的洗淨、矽凝膠管柱層析法、凝膠過濾層析法、製備液體層析法等之方法。本發明之螢光性化合物的純度，於以液體層析法精製時，較佳為 95% 以上，更佳為 98% 以上，尤佳為 99% 以上。當含有許多的雜質時，通式 (1) 所示之螢光性化合物本身之螢光特性會降低。又，使用如此的螢光性化合物來製造螢光性樹脂組成物時，由於在螢光性樹脂組成物中發生霧濁，作為組成物亦有螢光特性降低之情況。

液體層析法的純度決定係可為在順相、逆相之任一條

件下。於順相中例如可使用 GL Sciences 公司製 Inertsil (註冊商標) Diol 管柱，於逆相中例如可使用 Waters 公司製 XBridge (註冊商標) C18 管柱。又，尺寸排除層析法亦為有效的方法，例如可使用東曹(股)製 TSK-GEL SuperHZ2000 管柱。

其次，說明本發明的上述通式(1)所示之螢光性化合物之製造方法。本發明之螢光性化合物係三芳基胺衍生物，可用各式各樣的方法來製造。例如，可舉出在藉由眾所周知的方法製造不含有含矽氧烷的基之三芳基胺衍生物後，導入含矽氧烷的基之方法。或者，可舉出調製鍵結有含矽氧烷的基之芳香族鹵素化物或芳香族胺，使用此作為建構塊，構築三芳基胺衍生物之方法。於後者之中，較佳為藉由使鍵結有含矽氧烷的基之芳香族胺衍生物與芳香族鹵素化物在過渡金屬觸媒存在下反應之芳香族胺基化反應而製造之方法。

[第 1 製造方法]

本發明的通式(1)所示之化合物之製造方法，係按照含矽氧烷的基之位置，考慮各式各樣的組合。首先，說明在通式(1)中 n 為 1、3 或 5 且 R^4 的任一個為通式(3)所示之含矽氧烷的基之情況的螢光性化合物之製造方法。於本說明書中，將具有該特徵的螢光性化合物之製造方法稱為「第 1 製造方法」。

第 1 製造方法包含使上述通式(4)所示之胺化合物

與上述通式 (5) 所示之芳香族鹵素化合物在過渡金屬觸媒存在下反應之步驟。

上述通式 (4) 中， R^{4a} 各自係與通式 (1) 的 R^4 相同。因此，於製造目的物之通式 (1) 所示之螢光性化合物中，對應於導入含矽氧烷的基之地方的 R^{4a} 係必須為含矽氧烷的基。又，於製造目的物之通式 (1) 所示之螢光性化合物中，當複數不同種類的 R^4 存在時，於起始物質之通式 (4) 所示之胺化合物中，以使對應於複數不同種類的 R^4 之方式，決定 R^{4a} 。

通式 (4) 所示之胺化合物係本業者可依照常用方法來適宜合成。

上述式 (5) 中， $R^{1a} \sim R^{4a}$ 各自係與式 (1) 的 $R^1 \sim R^4$ 相同。此處，亦於目的物之通式 (1) 所示之螢光性化合物中，當複數不同種類的 $R^1 \sim R^4$ 存在時，於起始物質的通式 (5) 所示之胺化合物中，以使對應於複數不同種類的 $R^1 \sim R^4$ 之方式，決定 $R^{1a} \sim R^{4a}$ 。 Z^a 係鹵素原子，例如 Cl、Br、I，較佳為 Br、I。 X^a 表示與通式 (1) 中定義的 X 相同之取代基。

o 表示 0~2 之整數，與通式 (1) 中的 n 滿足 $o = (n-1)/2$ 。即，以本實施形態之製造方法來製造時，1 分子的通式 (4) 所示之胺化合物與 2 分子的通式 (5) 所示之芳香族鹵素化合物反應，可製造通式 (1) 所示之螢光性化合物。

上述通式 (5) 所示之芳香族鹵素化合物係本業者可

依照常用方法來適宜合成而準備。

其次，於使通式（4）所示之胺化合物與通式（5）所示之芳香族鹵素化合物在過渡金屬觸媒存在下反應之步驟中，作為所使用的過渡金屬觸媒，可舉出鈀觸媒、釕觸媒、銻觸媒、鉑觸媒、鈷觸媒、鎳觸媒。於此等過渡金屬觸媒之中，較佳為使用鈀觸媒。

作為鈀觸媒之具體例，可舉出二- μ -氯雙[(η -烯丙基)鈀(II)]、醋酸鈀、參(二亞苳基丙酮)二鈀(0)、雙(苯甲腈)二氯鈀(II)、反式二氯雙(三苯基膦)鈀(II)、二氯(η -環辛-1,5-二烯)鈀(II)、反式二- μ -溴-雙[o-(二均三甲苯基膦基)-3,5-二甲基苳基]二鈀(II)、反式二- μ -氯-雙[o-(二均三甲苯基膦基)-3,5-二甲基苳基]二鈀(II)、反式二- μ -碘-雙[o-(二均三甲苯基膦基)-3,5-二甲基苳基]二鈀(II)、反式二- μ -乙酸根-雙[o-(第三丁基鄰甲苯基膦基)苳基]二鈀(II)、反式二- μ -乙酸根-雙[o-(二第三丁基膦基)苳基]二鈀(II)、反式二- μ -乙酸根-雙[o-(二鄰甲苯基膦基)苳基]二鈀(II)等。

過渡金屬觸媒之使用量係沒有特別的限定，但相對於通式（4）所示之胺化合物 1 莫耳，較佳為 0.000001~0.01 莫耳之範圍，更佳為 0.00001~0.001 莫耳之範圍。

於上述第 1 製造方法中，在進行反應之際亦可添加配位子。作為如此的配位子之例，可舉出 1,1'-雙(二苯基膦基)二茂鐵、2-二第三丁基膦基-2'-甲基聯苯、2-(二

第三丁基磷基) 聯苯、三苯基磷、三鄰甲苯基磷、三丁基磷、三第三丁基磷、三環己基磷、二第三丁基磷基聯苯、二環己基磷基聯苯、亞磷酸三苯酯等之磷化合物。此等配位子之使用量，係相對於作為觸媒添加的過渡金屬原子，較佳為 0.5~2 當量，更佳為 0.8~1.5 當量。配位子之添加係可與過渡金屬觸媒之添加同時地實施。

於第 1 製造方法中，較佳為在進行反應之際添加鹼。作為鹼，可舉出氫氧化鈉、氫氧化鉀、碳酸鈉、碳酸鉀、碳酸銨、碳酸氫鈉、碳酸氫鉀等之無機鹽、甲氧化鈉、甲氧化鉀、乙氧化鈉、乙氧化鉀等之金屬烷氧化物、甲胺、二乙胺、三乙胺、吡啶等之有機鹼。鹼之使用量係相對於通式(4)所示之胺化合物 1 莫耳，較佳為 0.1~10 莫耳，更佳為 1~3 莫耳。鹼之添加較佳為與觸媒或配位子同時地添加。

通式(4)所示之胺化合物與通式(5)所示之芳香族鹵素化合物之反應時的配合比係沒有特別的限定。從反應性、生產性之點來看，相對於通式(4)所示之胺化合物 1 莫耳，通式(5)所示之芳香族鹵素化合物較佳為 1.5~4 莫耳，更佳為 2.0~3.0 莫耳。

第 1 製造方法的反應溫度較佳為 0~300℃，更佳為 80~150℃。反應時間較佳為 0.1~20 小時，更佳為 1~3 小時。惟，反應溫度及反應時間係可由本業者適宜地決定，不受上述範圍所限定。

作為反應溶劑，可使用醚系或烴系溶劑、非質子性極

性溶劑。具體地，可舉出戊烷、己烷、二乙基醚、四氫呋喃、二噁烷、甲苯、二甲苯、均三甲苯、乙腈、N,N-二甲基甲醯胺、N,N-二甲基乙醯胺或此等之混合溶劑等。於此等之中，特佳為使用甲苯、二甲苯、均三甲苯。

由上述製造方法所製造之通式（1）所示之螢光性化合物，係可藉由前述精製方法來精製。

[第 2 製造方法]

其次，說明於通式（1）中， R^2 中的至少一個為通式（2）所示之含胺的基，且 R^5 之任一個以上為通式（3）所示之含矽氧烷的基時之螢光性化合物之製造方法。將具有該特徵的螢光性化合物之製造方法在本說明書中稱為「第 2 製造方法」。

第 2 製造方法包含使上述通式（6）所示之胺化合物與上述通式（7）所示之芳香族鹵素化合物在過渡金屬觸媒存在下反應之步驟。

通式（6）中， R^{5b} 係與通式（2）中的 R^5 相同， R^{5b} 之任一個係通式（3）所示之含矽氧烷的基。因此，於製造目的物之通式（1）所示之螢光性化合物中，對應於導入含矽氧烷的基之地方的 R^{5b} 係必須為含矽氧烷的基。又，於製造目的物之通式（2）中，當複數不同種類的 R^5 存在時，於起始物質之通式（6）所示之胺化合物中，以使對應於複數不同種類的 R^5 之方式，決定 R^{5b} 。

通式（6）所示之胺化合物係本業者可依照常用方法

來適宜合成而準備。

通式 (7) 中， $R^{1b} \sim R^{4b}$ 係與通式 (1) 中的 $R^1 \sim R^4$ 相同。此處，亦於目的物之通式 (1) 所示之螢光性化合物中，當複數不同種類的 $R^1 \sim R^4$ 存在時，於起始物質的通式 (7) 所示之芳香族鹵素化合物中，以使對應於複數不同種類的 $R^1 \sim R^4$ 之方式，決定 $R^{1b} \sim R^{4b}$ 。惟， R^{2b} 中的至少一個表示通式 (8) 所示之取代基。此處，亦於目的物之通式 (1) 所示之螢光性化合物中，對應於導入通式 (2) 所示之含胺的基之 R^2 的 R^{2b} ，係必須為通式 (8) 所示之取代基。 X^b 係與通式 (1) 中的 X 相同。 n^b 係與通式 (1) 中的 n 相同。

通式 (8) 中， R^{6b} 係與通式 (2) 中的 R^6 相同。於製造目的物之通式 (2) 中，當複數不同種類的 R^6 存在時，於起始物質之通式 (8) 中，以使對應於複數不同種類的 R^6 之方式，決定 R^{6b} 。 m^b 係與通式 (2) 中的 m 相同。 Z^b 係鹵素原子，例如 Cl、Br、I，較佳為 Br、I。

上述通式 (7) 所示之芳香族鹵素化合物本業者可依照常用方法來適宜合成而準備。

於第 2 製造方法中，亦除了上述起始物質以外，可在與第 1 製造方法大致相同的條件下，同樣地實施反應。於使通式 (6) 所示之胺化合物與通式 (7) 所示之芳香族鹵素化合物在過渡金屬觸媒存在下反應之步驟中，可使用與上述第 1 製造方法中說明者同樣之過渡金屬觸媒。又，其使用量係相對於通式 (7) 所示之芳香族鹵素化合物 1 莫

耳，較佳為 0.000001~0.01 莫耳，更佳為 0.00001~0.001 莫耳之範圍。

於第 2 製造方法中，亦可使用與上述第 1 製造方法中說明者同樣之配位子。其使用量亦與上述第 1 製造方法中說明者同樣，相對於作為觸媒添加的化合物之過渡金屬原子，較佳為 0.5~2 當量，更佳為 0.8~1.5 當量。

於第 2 製造方法中，亦於使通式 (6) 所示之胺化合物與通式 (7) 所示之芳香族鹵素化合物在過渡金屬觸媒存在下反應之步驟中，較佳為附加地添加鹼。作為鹼，可使用與上述第 1 製造方法中說明者同樣者。鹼之使用量係相對於通式 (7) 的化合物 1 莫耳，較佳為 0.1~10 莫耳，更佳為 1~3 莫耳。鹼之添加係可在與上述第 1 製造方法中說明的同樣之時間點進行。

通式 (6) 所示之胺化合物與通式 (7) 所示之芳香族鹵素化合物之配合比係沒有特別的限定。從反應性、生產性之點來看，相對於通式 (7) 所示之芳香族鹵素化合物 1 莫耳，通式 (6) 所示之胺化合物較佳為 1.5~4 莫耳，更佳為 2.0~3.0 莫耳。

第 2 製造方法中的反應溫度亦較佳為 0~300℃，更佳為 80~150℃。反應時間較佳為 0.1~20 小時，更佳為 1~3 小時。惟，反應溫度及反應時間係可由本業者適宜地決定，不受上述範圍所限定。作為反應溶劑，可使用與上述第 1 製造方法中說明的同樣者。

由第 2 製造方法所製造的通式 (1) 所示之螢光性化

合物，係可藉由前述精製方法來精製。

[第 3 製造方法]

說明於通式 (1) 中， n 為 0， R^2 之任一個以上為通式 (3) 所示之含矽氧烷的基時之螢光性化合物之製造方法。將具有該特徵的螢光性化合物之製造方法在本說明書中稱為「第 3 製造方法」。

第 3 製造方法包含使上述通式 (10) 所示之胺化合物與上述通式 (9) 所示之芳香族鹵素化合物在過渡金屬觸媒存在下反應之步驟。

通式 (9) 中， X^C 各自係與通式 (1) 中的 X 相同， Z^C 係鹵素原子，例如 Cl 、 Br 、 I ，較佳為 Br 、 I 。上述通式 (9) 所示之芳香族鹵素化合物係本業者可依照常用方法來適宜合成而準備。

通式 (10) 中， R^{1c} 、 R^{2c} 各自係與通式 (1) 中的 R^1 、 R^2 相同，於目的物之通式 (1) 所示之螢光性化合物中，當複數不同種類的 R^1 、 R^2 存在時，於起始物質之通式 (10) 所示之胺化合物中，以使對應於複數不同種類的 R^1 、 R^2 之方式，決定 R^{1c} 、 R^{2c} 。又，於製造目的物之通式 (1) 所示之螢光性化合物中，對應於導入含矽氧烷的基之地方的起始物質之通式 (10) 中的 R^{2c} ，必須為含矽氧烷的基。通式 (10) 所示之胺化合物係本業者可依照常用方法來適宜合成而準備。

於第 3 製造方法中，亦除了上述起始物質以外，可在

與第 1 製造方法或第 2 製造方法大致相同的條件下，同樣地實施反應。第 3 製造方法中所用的過渡金屬觸媒之使用方法及使用量、配位子之使用方法及使用量、鹼之使用方法及使用量、溶劑、反應條件等，係可與第 1 製造方法或第 2 製造方法同樣地實施。又，由第 3 製造方法所製造的通式（1）所示之螢光性化合物，係可藉由前述精製方法來精製。

[螢光性樹脂組成物]

其次，說明本發明之另一實施形態的螢光性樹脂組成物。本實施形態之螢光性樹脂組成物係包含本發明的螢光性化合物與樹脂而成。

對於本發明之螢光性化合物，於上述實施形態中，如以通式（1）表示而說明。本實施形態之螢光性樹脂組成物係可含有通式（1）所示的螢光性化合物之僅一種，也可含有二種以上。又，只要含有至少一種的通式（1）所示之螢光性化合物，則亦可含有具有通式（1）以外的構造之螢光性化合物。

螢光性樹脂組成物中之作為基質的樹脂，係不限於特定的樹脂，例如可舉出聚乙烯、聚丙烯、聚苯乙烯、環烯烴聚合物、聚丙烯酸酯、聚氯乙烯、聚碳酸酯、聚酯、聚醯胺、聚醯亞胺、聚乙烯醇、聚矽氧樹脂、乙烯-乙醇共聚合樹脂、乙烯-醋酸乙烯酯共聚合樹脂、ABS 樹脂、環氧樹脂、酚樹脂、三聚氰胺樹脂、聚胺基甲酸酯等之熱

塑性或熱硬化性樹脂、天然橡膠、腈橡膠、胺基甲酸酯橡膠、EPDM、苯乙烯丁二烯橡膠、氟橡膠、聚矽氧橡膠等之彈性體等。特別地，較佳為聚矽氧油、聚矽氧橡膠、聚矽氧樹脂、聚矽氧凝膠等之聚矽氧樹脂。

本發明之螢光性樹脂組成物係可為液體、固體、橡膠、凝膠等之任一狀態。螢光性樹脂組成物之狀態係本業者可按照基質樹脂的狀態或後述的任意成分來適宜調節。又，於本發明之螢光性樹脂組成物中，螢光性化合物較佳為在不凝聚下均勻地分散。為了均勻分散螢光性化合物，於螢光性樹脂組成物之製造方法中，較佳為包含加熱或徐徐攪拌至均勻為止之步驟。

於本發明之螢光性樹脂組成物中，螢光性化合物之含量為任意，但通常當組成物全體為 100 % 時，例如為 0.001 ~ 10 質量 %，較佳為 0.01 ~ 5 質量 %，更佳為 0.1 ~ 5 質量 %。較佳為在相溶於基質樹脂之範圍，決定螢光性化合物之含量。因此，於螢光性樹脂組成物中，螢光性化合物之含量係取決於螢光性化合物之性質或基質樹脂之性質，但螢光性化合物之含量若過多，則因濃度消光而有螢光強度降低之情況，含量若過少，則有螢光強度變不充分之情況。

於本實施形態之螢光性樹脂組成物中，除了螢光性化合物與樹脂，還可含有任意成分。作為任意成分，例如可舉出水、甲醇、乙醇、己烷、異辛烷、癸烷、甲苯、二甲苯、二甲基甲醯胺、二甲基乙醯胺、甲基吡咯啉酮、二甲

亞碲等之溶劑、矽凝膠、氧化鈦、氧化鋅、碳、氫氧化鎂等之填料、矽烷偶合劑或四甲氧基矽烷、四乙氧基矽烷、六甲基二矽氧烷、十甲基環五矽氧烷等之矽化合物、偶氮雙異丁腈或過氧化苯甲醯等之自由基聚合引發劑、2-羥基-2-甲基苯丙酮、二苯基碘鎘六氟磷酸鹽等之光聚合引發劑、氯鉑酸、鉑(0)二乙烯基四甲基二矽氧烷錯合物、亞苺基二氯雙(三環己基膦)鈦等之金屬化合物、玻璃纖維或碳纖維等之纖維、二苯基酮衍生物或受阻胺化合物等之紫外線吸收劑及光安定劑、苯二甲酸酯或己二酸酯等之可塑劑、磷酸酯等之難燃劑等。

此等任意成分之含量，係可在不妨礙組成物的發光特性之範圍內任意決定。通常，相對於螢光性樹脂組成物全體之質量，可含有 0.01~80 質量%之範圍的任意成分，但不受此範圍所限定。

其次，從製造方法之觀點來說明本實施形態之螢光性樹脂組成物。螢光性樹脂組成物之製造方法係包含將螢光性化合物與樹脂混合之步驟而成。作為將螢光性化合物與樹脂混合之步驟，例如，可舉出將樹脂與螢光性化合物混煉而使分散。另外，可舉出於液狀的樹脂單體或預聚物中，使螢光性化合物預先混合溶解後，使加成聚合或縮聚合之方法，或使螢光性化合物溶解於樹脂清漆中之方法等。任一方法皆為本業者可依照常用方法來實施。

於本實施形態之螢光性樹脂組成物中，構成成分的螢光性化合物與樹脂之相溶性高，可不損害樹脂本身之透明

性而得到經著色的螢光性樹脂組成物。因此，可廣泛使用於螢光油墨或波長轉換材料、色素雷射等之各式各樣的用途中。

實施例

其次，藉由實施例及比較例來更具體說明本發明，惟本發明完全不受以下的實施例所限定。於以下之構造式中，Me 表示甲基。

[實施例 1]

N,N-雙[4'- (N',N'-二-4-甲苯基胺基) 聯苯-4-基]-3- (1-三甲基矽烷氧基-1,3,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基) 苯胺 (化合物 1) 之合成

於 100ml 的 3 口燒瓶，安裝回流冷卻器、攪拌機，氮氣置換內部。於此燒瓶中，加入 4'- (N,N-二-4-甲苯基胺基) -4-溴聯苯 921.1mg (2.15mmol) 、 3- (1-三甲基矽烷氧基-1,3,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基) 苯胺 315.5mg (1.09mmol) 、第三丁氧化鈉 460.6mg (4.79mmol) 、 1,1-雙 (二苯基膦基) 二茂鐵 82.1mg (0.15mmol) 、參 (二亞苺基丙酮) (氯仿) 二鈾(0)77.1mg (0.074mmol) 與均三甲苯 8ml，在 115℃ 攪拌 1.5 小時。將所得之溶液減壓濃縮，添加水與甲苯後，藉由分液操作來萃取有機層。藉由硫酸鎂乾燥所得之溶液，用旋轉式蒸發器減壓濃縮後，藉由矽凝膠管柱層析術及製備液體層析法進行精

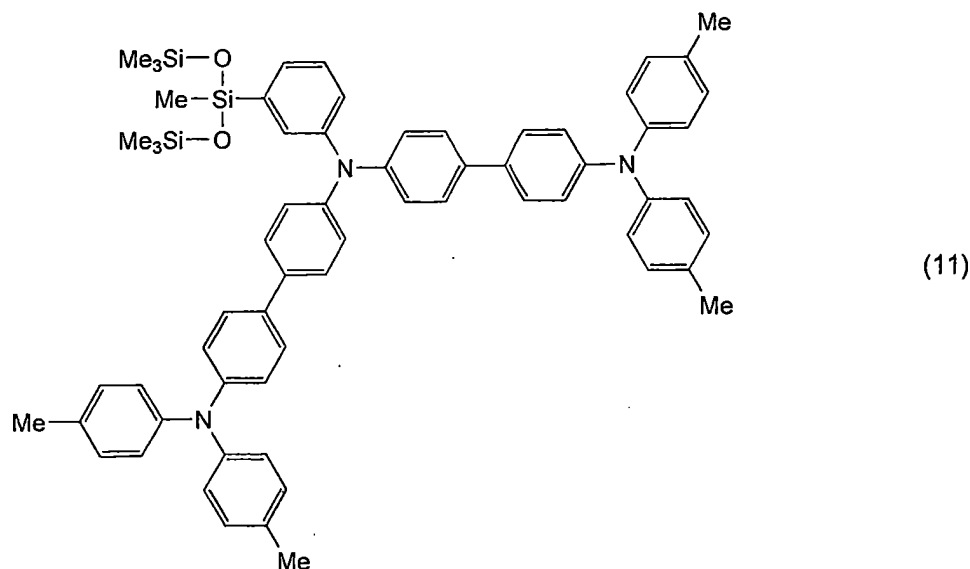
製，得到淡黃色固體 704.9mg。

測定此固體之 NMR 光譜及 MALDI-TOFMS 光譜，結果確認為 N,N-雙[4'- (N',N'-二-4-甲苯基胺基) 聯苯-4-基]-3- (1-三甲基矽烷氧基-1,3,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基) 苯胺。

$^1\text{H-NMR}$ (600MHz , δ in CDCl_3) : 0.03 (s , 18H) , 0.23 (s , 3H) , 2.32 (s , 12H) , 7.01-7.10 (m , 20H) , 7.12-7.29 (m , 7H) , 7.32 (brs , 1H) , 7.39-7.46 (m , 8H)

MALDI-TOFMS m/z : 1007.4(M^+)

下述式 (11) 中顯示實施例 1 所製造之化合物 1 的構造。



於乙醇中測定化合物 1 的紫外可見吸收光譜及螢光光譜。最長吸收極大波長為 359nm，莫耳吸光係數為 6.50×10^4 ，最大螢光波長為 410nm (激發波長：359nm)。

[實施例 2]

N,N'-雙[苯基-3-(1-三甲基矽烷氧基-1,3,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基)苯基胺基聯苯-4'-基]-N,N'-二苯基聯苯胺(化合物 2)之合成

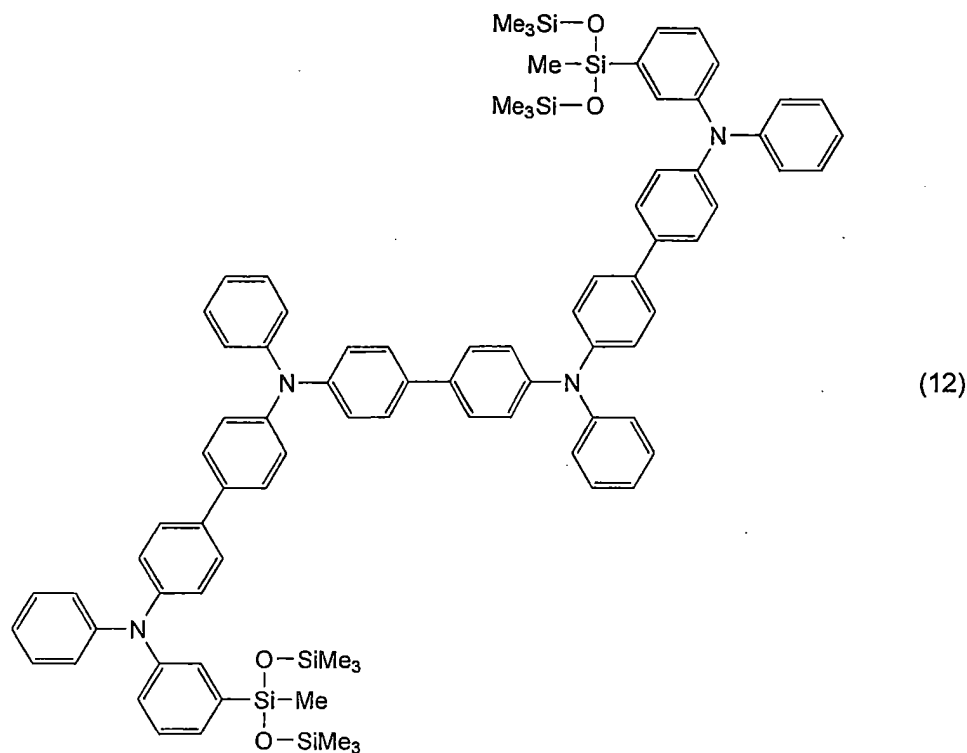
於 100ml 的 3.口燒瓶，安裝回流冷卻器、攪拌機，氮氣置換內部。於此燒瓶中，加入 N,N'-雙(4'-溴聯苯-4-基)-N,N'-二苯基聯苯胺 386.2mg (0.48mmol)、苯基-3-(1-三甲基矽烷氧基-1,3,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基)胺 409.4mg (1.05mmol)、第三丁氧化鈉 214.4mg (2.23mmol)、1,1-雙(二苯基膦基)二茂鐵 61.9mg (0.11mmol)、參(二亞苺基丙酮)(氯仿)二鈀(0) 50.1mg (0.048mmol)與均三甲苯 8ml，在 110°C 攪拌 3.5 小時。將所得之溶液減壓濃縮，添加水與甲苯後，藉由分液操作來萃取有機層。藉由硫酸鎂乾燥所得之溶液，用旋轉式蒸發器減壓濃縮後，藉由矽凝膠管柱層析術及製備液體層析法進行精製，得到淡黃色固體 437.4mg。

測定此固體之 NMR 光譜及 MALDI-TOFMS 光譜，結果確認為 N,N'-雙[苯基-3-(1-三甲基矽烷氧基-1,3,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基)苯基胺基聯苯-4'-基]-N,N'-二苯基聯苯胺。

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

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

下述式 (12) 中顯示實施例 2 所製造之化合物 2 的構造。



於乙醇中測定化合物 2 的紫外可見吸收光譜及螢光光譜。最長吸收極大波長為 359nm，莫耳吸光係數為 7.88×10^4 ，最大螢光波長為 410nm（激發波長：359nm）。

[實施例 3]

N,N-雙[4'-（N'-苯基-N'-4'-二苯基胺基聯苯-4-基）聯苯-4-基]-3-（1-三甲基矽烷氧基-1,3,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基）苯胺（化合物 3）之合成

於 100ml 的 3 口燒瓶，安裝回流冷卻器、攪拌機，氮氣置換內部。於此燒瓶中，加入 N-（4'-溴聯苯-4-基）-N',N',N'-三苯基聯苯胺 665.8mg（1.03mmol）、苯基-3-（1-三甲基矽烷氧基-1,3,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基）胺

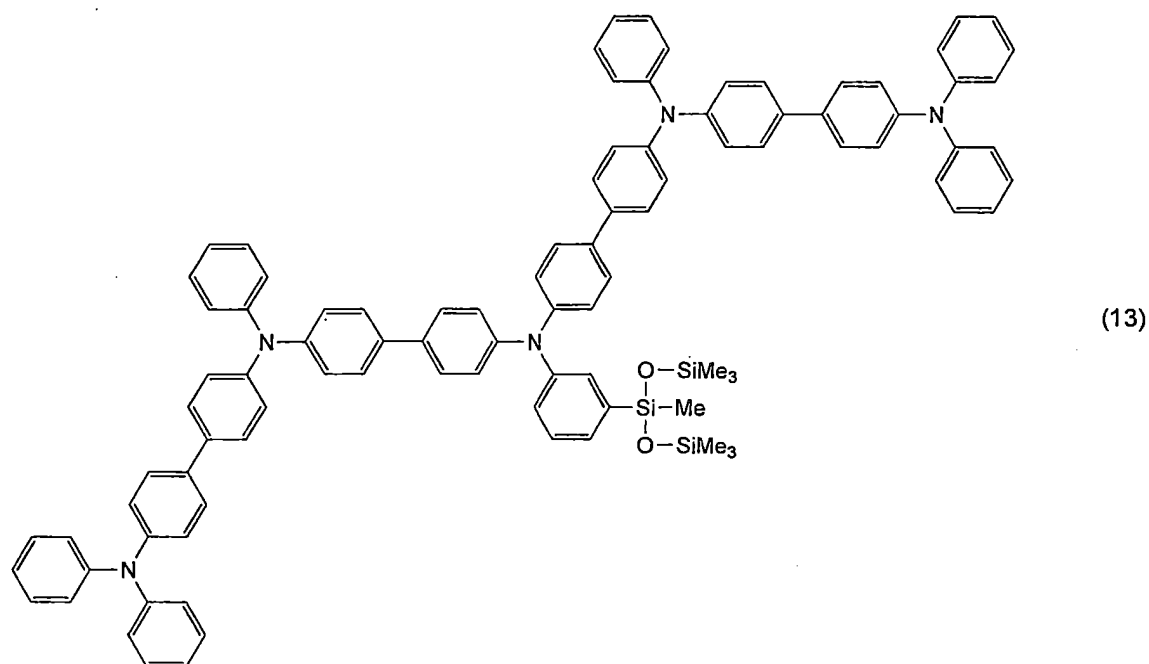
108.4mg (0.45mmol) 、 第三丁氧化鈉 211.5mg (2.20mmol) 、 三第三丁基膦 21.0mg (0.10mmol) 、 參 (二亞苺基丙酮) (氯仿) 二鈾(0)42.1mg (0.041mmol) 與均三甲苯 5ml, 在 120℃ 攪拌 3.5 小時。將所得之溶液減壓濃縮, 添加水與甲苯後, 藉由分液操作來萃取有機層。藉由硫酸鎂乾燥所得之溶液, 用旋轉式蒸發器減壓濃縮後, 藉由矽凝膠管柱層析術及製備液體層析法進行精製, 得到淡黃色固體 353.2mg。

測定此固體之 NMR 光譜及 MALDI-TOFMS 光譜, 結果確認為 N,N-雙[4'- (N'-苺基-N'-4'-二苺基胺基聯苺-4-基) 聯苺-4-基]-3- (1-三甲基矽烷氧基-1,3,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基) 苺胺。

$^1\text{H-NMR}$ (600MHz, δ in CDCl_3) : 0.03 (s, 18H), 0.23 (s, 3H), 7.00-7.07 (m, 28H), 7.09-7.23 (m, 28H), 7.24-7.32 (m, 16H), 7.43-7.51 (m, 16H)

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

下述式 (13) 中顯示實施例 3 所製造之化合物 3 的構造。



於四氫呋喃中測定化合物 3 的紫外可見吸收光譜及螢光光譜。最長吸收極大波長為 363nm，莫耳吸光係數為 2.65×10^4 ，最大螢光波長為 413nm（激發波長：363nm）。

[實施例 4]

N,N-雙[4'-（N'-苯基-N'-4'-二苯基胺基聯苯-4-基）聯苯-4-基]-3-（五甲基二矽氧烷-1-基）苯胺（化合物 4）之合成

於 100ml 的 3 口燒瓶，安裝回流冷卻器、攪拌機，氮氣置換內部。於此燒瓶中，加入 N-（4'-溴聯苯-4-基）-N',N',N'-三苯基聯苯胺 583.2mg（0.90mmol）、苯基-3-（五甲基二矽氧烷-1-基）胺 118.7mg（0.41mmol）、第三丁氧化鈉 203.6mg（2.12mmol）、三第三丁基膦 14.0mg（0.069mmol）、參（二亞苄基丙酮）（氯仿）二鈦

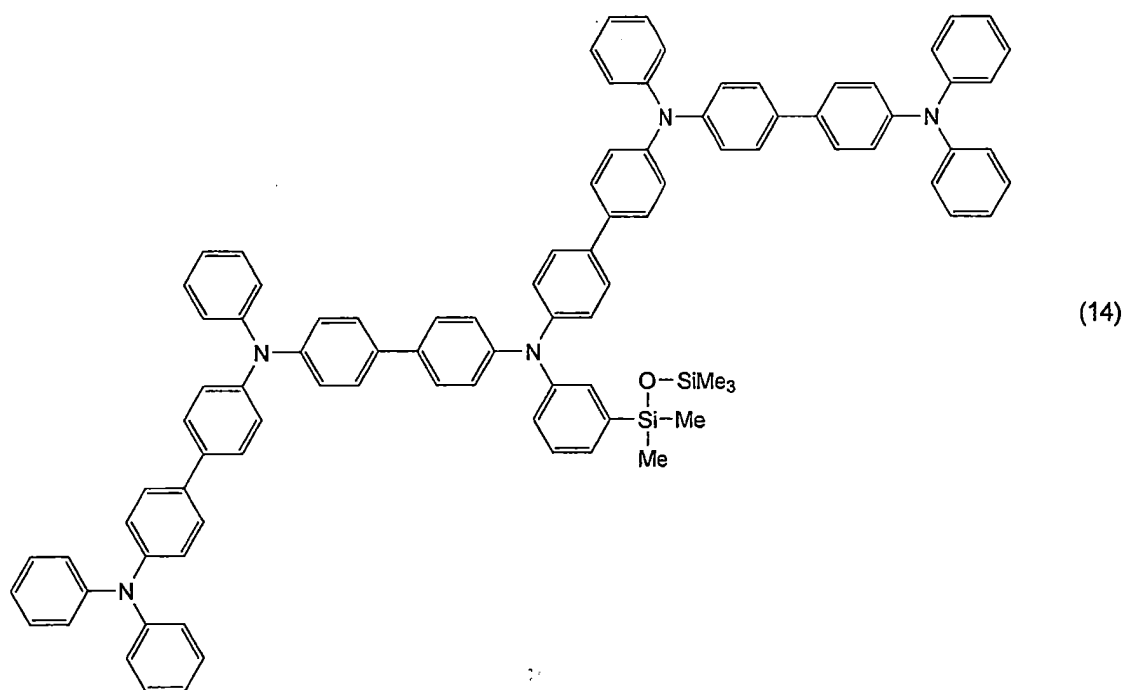
(0)31.4mg (0.030mmol) 與均三甲苯 5ml , 在 125℃ 攪拌 1.5 小時。將所得之溶液減壓濃縮, 添加水與甲苯後, 藉由分液操作來萃取有機層。藉由硫酸鎂乾燥所得之溶液, 用旋轉式蒸發器減壓濃縮後, 藉由矽凝膠管柱層析術及製備液體層析法進行精製, 得到淡黃色固體 308.1mg。

測定此固體之 NMR 光譜及 MALDI-TOFMS 光譜, 結果確認為 N,N-雙[4'- (N'-苯基-N'-4'-二苯基胺基聯苯-4-基) 聯苯-4-基]-3- (五甲基二矽氧烷-1-基) 苯胺。

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

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

下述式 (14) 中顯示實施例 4 所製造之化合物 4 的構造。



於四氫呋喃中測定化合物 4 的紫外可見吸收光譜及螢光光譜。最長吸收極大波長為 363nm，莫耳吸光係數為 2.83×10^4 ，最大螢光波長為 413nm（激發波長：363nm）。

[實施例 5]

N,N'-二苯基-N,N'-二-[3-(1-三甲基矽烷氧基-1,3,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基)苯基]-聯苯胺之合成

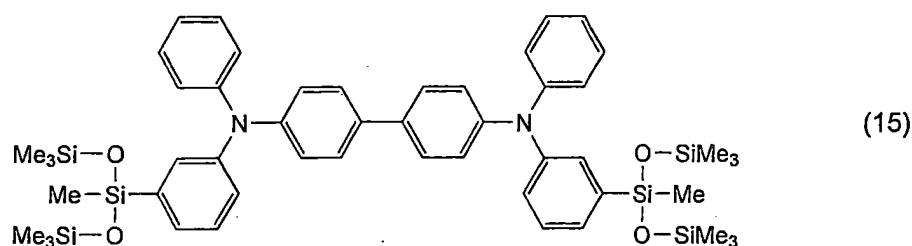
於 100ml 的 3 口燒瓶，安裝回流冷卻器、攪拌機，氮氣置換內部。於此燒瓶中，加入 4,4'-二溴聯苯 71.3mg（0.23mmol）、苯基-3-(1-三甲基矽烷氧基-1,3,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基)苯基胺 197.3mg（0.51mmol）、第三丁氧化鈉 150.8mg（0.63mmol）、三第三丁基膦 7.5mg（0.037mmol）、參(二亞苳基丙酮)(氯仿)二鈮(0) 24.8mg（0.024mmol）與均三甲苯 3ml，在 110℃ 攪拌 7 小時。將所得之溶液減壓濃縮，添加水與甲苯後，藉由分液操作來萃取有機層。藉由硫酸鎂乾燥所得之溶液，用旋轉式蒸發器減壓濃縮後，藉由矽凝膠管柱層析術及製備液體層析法進行精製，得到無色液體 332.0mg。

測定此液體之 MALDI-TOFMS，結果確認為 N,N'-二苯基-N,N'-二-[3-(1-三甲基矽烷氧基-1,3,3,3-四甲基二矽氧烷-1-基)苯基]-聯苯胺。

MALDI-TOFMS m/z: 929.5(M⁺)

下述式 (15) 中顯示實施例 5 所製造之化合物 5 的構

造。



[實施例 6]

含有化合物 1 的聚矽氧樹脂組成物之製造

於玻璃管瓶中秤量 10.1mg 實施例 1 所製造之化合物 1，於室溫下邊攪拌邊少量一點一點地添加透明聚矽氧樹脂 SIM-360 主劑（信越化學工業（股）製）。於溶液成為透明時判斷已溶解，計算溶解度，為 1mmol/L。於此混合物中添加相對於主劑之 10 質量%的硬化劑及混合，脫泡後在 150℃ 加熱 30 分鐘而使硬化，得到螢光性的聚矽氧樹脂組成物。再者，化合物 1 之濃度係可在上述之濃度以下任意地變更。

[實施例 7]

含有化合物 2 的聚矽氧樹脂組成物之製造

與實施例 6 同樣地測定化合物 2 在 SIM-360 主劑中之溶解度，結果為 0.5mmol/L。於此混合物中添加相對於主劑之 10 質量%的硬化劑及混合，脫泡後在 150℃ 加熱 30 分鐘而使硬化，得到螢光性的聚矽氧樹脂組成物。再者，化合物 2 之濃度係可在上述之濃度以下任意地變更。

[實施例 8]

含有化合物 3 的聚矽氧樹脂組成物之製造

與實施例 6 同樣地測定化合物 3 在 SIM-360 主劑中之溶解度，結果為 0.1mmol/L。於此混合物中添加相對於主劑之 10 質量%的硬化劑及混合，脫泡後在 150℃加熱 30 分鐘而使硬化，得到螢光性的聚矽氧樹脂組成物。再者，化合物 3 之濃度係可在上述之濃度以下任意地變更。

[實施例 9]

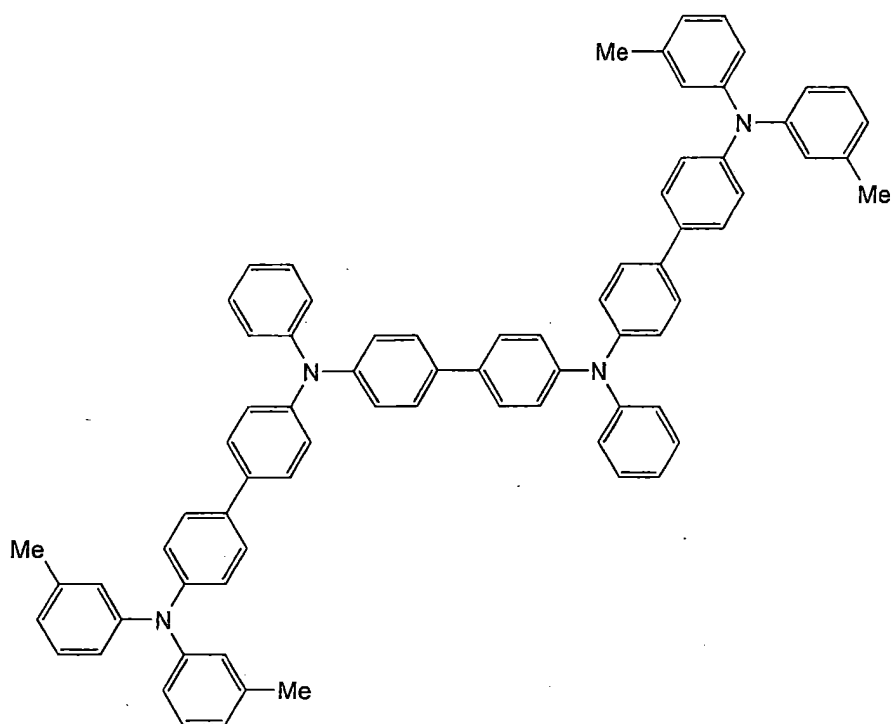
含有化合物 4 的聚矽氧樹脂組成物之製造

與實施例 6 同樣地測定化合物 4 在 SIM-360 主劑中之溶解度，結果為 0.1mmol/L。於此混合物中添加相對於主劑之 10 質量%的硬化劑及混合，脫泡後在 150℃加熱 30 分鐘而使硬化，得到螢光性的聚矽氧樹脂組成物。再者，化合物 4 之濃度係可在上述之濃度以下任意地變更。

[比較例 1]

化合物 6 在聚矽氧樹脂中的溶解度測定

下述式 (16) 中顯示本比較例 1 所使用之化合物 6 的構造。與實施例 6 同樣地測定化合物 6 在 SIM-360 主劑中之溶解度，結果為白濁狀態，完全未溶解。



(16)

本發明之螢光性化合物，由於可不損害透明性，而例如可使如聚矽氧樹脂之低極性樹脂著色，故得到高透明性的螢光性樹脂組成物，有用性高。可使用於螢光油墨或波長轉換材料、色素雷射等。又，本發明之螢光性化合物，由於具有三芳基胺骨架，而在有機電致發光元件等之有機電子裝置中，可使用作為電荷輸送性化合物或發光化合物。



發明摘要

※申請案號：103105200

C07F7/18(2006.01)
C07C211/54(2006.01)
C09K11/06(2006.01)
C08K5/544(2006.01)
C08K5/18(2006.01)

※申請日：103 年 02 月 18 日

※IPC 分類：

【發明名稱】(中文/英文)

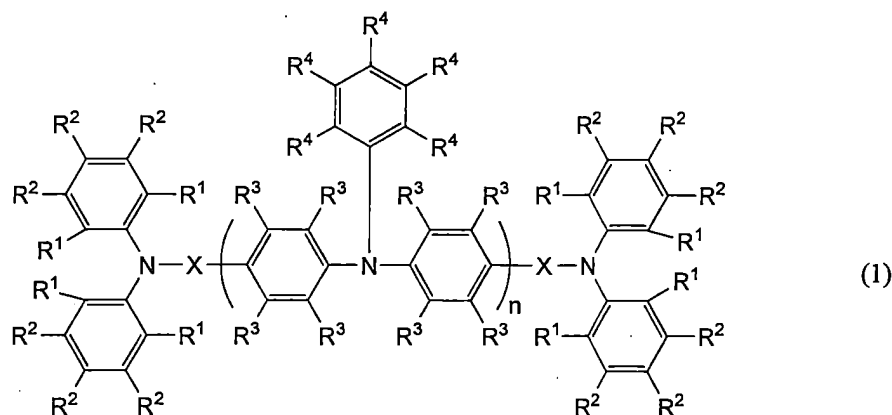
螢光性化合物、其製造方法及螢光性樹脂組成物

Fluorescent compound, method for producing the same, and fluorescent resin composition

【中文】

本發明之目的在於提供與樹脂的相溶性優異，以簡便的方法可製作樹脂組成物之螢光性化合物、其製造方法、以及含有螢光性化合物之螢光性樹脂組成物。

本發明提供下述通式(1)所示之螢光性化合物



(式(1)中， $R^1 \sim R^4$ 各自獨立表示由碳數1~20的直鏈狀、支鏈狀或環狀的一價烴基、碳數1~20的烷氧基、碳數6~20的芳氧基、鹵素原子、氫原子、胺基、氰基、含胺的基及含矽氧烷的基中選出之取代基，當不含有含胺的基作為取代基時， $R^1 \sim R^4$ 中的至少一個係Sx-A-所示之含矽氧烷的基，當含有含胺的基作為取代基時， $R^1 \sim R^4$ 或含胺的基之取代基中的至少一個係Sx-A-所示之含矽氧烷的基)、其製造方法、以及含有螢光性化合物之螢光性樹脂組成物。

【代表圖】

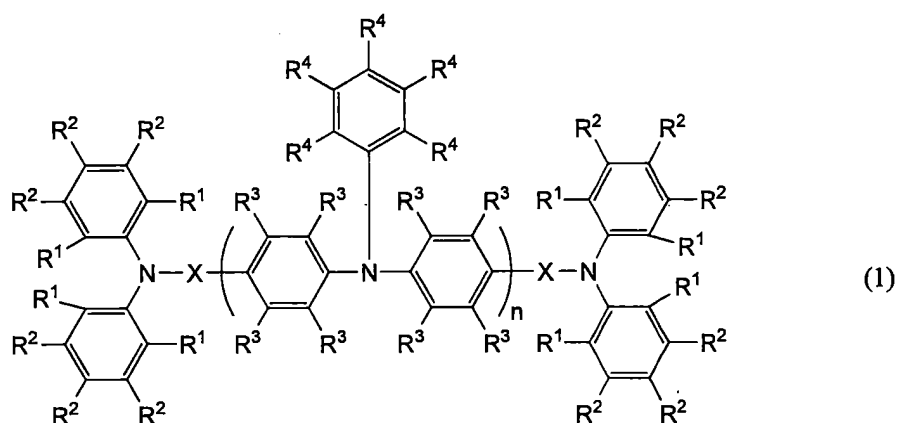
【本案指定代表圖】：無

【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】：
無

申請專利範圍

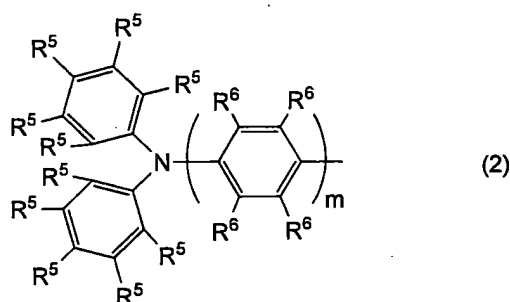
1. 一種下述通式 (1) 所示之螢光性化合物，



{通式 (1) 中，

$R^1 \sim R^4$ 各自獨立表示由碳數 1~20 的直鏈狀、支鏈狀或環狀的一價烴基、碳數 1~20 的烷氧基、碳數 6~20 的芳氧基、鹵素原子、氫原子、胺基、氰基、下述通式 (2) 所示之含胺的基及下述通式 (3) 所示之含矽氧烷的基中選出之取代基，惟亦可 R^1 不存在，相對於鍵結在 X 的氮原子，鄰位之碳係鍵結而形成呋啞環構造；

當不含有下述通式 (2) 所示之含胺的基作為取代基時， $R^1 \sim R^4$ 中的至少一個係下述通式 (3) 所示之含矽氧烷的基，當含有下述通式 (2) 所示之含胺的基作為取代基時， $R^1 \sim R^6$ 中的至少一個係下述通式 (3) 所示之含矽氧烷的基；



(通式 (2) 中 ,

R^5 、 R^6 各自獨立表示由碳數 1~20 的直鏈狀、支鏈狀或環狀的 1 價烴基、碳數 1~20 的烷氧基、碳數 6~20 的芳氧基、鹵素原子、氫原子、胺基、下述通式 (3) 所示之含矽氧烷的基中選出之取代基 ,

m 為 0 或 1) ;



(通式 (3) 中 ,

S_x 係矽原子數 2~8 , 表示碳數 1~10 的一價烴基鍵結於該矽原子的至少一個而成之直鏈狀或支鏈狀的有機矽氧烷基) ;

X 可相同或相異 , 表示單鍵、碳數 1~20 的直鏈狀、支鏈狀或環狀的二價烴基 , 碳原子的一部分可被雜原子取代 ;

n 為 0~5 之整數 }。

2. 如請求項 1 之螢光性化合物 , 其中於通式 (1) 中 , n 為 1、3 或 5 , R^4 之任一個以上係通式 (3) 所示之含矽氧烷的基。

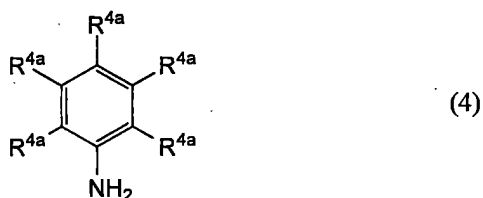
3. 如請求項 1 之螢光性化合物 , 其中於通式 (1) 中 , R^2 中的至少一個係通式 (2) 所示之含胺的基 , 且 R^5 之任一個以上係通式 (3) 所示之含矽氧烷的基。

4. 如請求項 1 之螢光性化合物 , 其中於通式 (1) 中 , n 為 0 , R^2 之任一個以上係通式 (3) 所示之含矽氧烷的基。

5. 一種螢光性樹脂組成物，其包含如請求項 1~4 中任一項之螢光性化合物與樹脂所成。

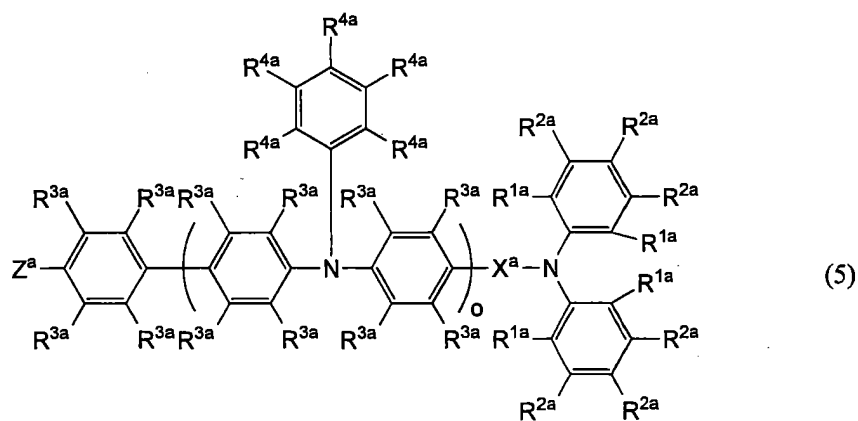
6. 如請求項 5 之螢光性樹脂組成物，其中前述樹脂係聚矽氧樹脂。

7. 一種如請求項 2 之螢光性化合物之製造方法，其包含使下述通式 (4) 所示之胺化合物與下述通式 (5) 所示之芳香族鹵素化合物在過渡金屬觸媒存在下反應之步驟；



(通式 (4) 中，

R^{4a} 各自係與通式 (1) 中的 R^4 相同)；



(通式 (5) 中， $R^{1a} \sim R^{4a}$ 各自係與通式 (1) 中的 $R^1 \sim R^4$ 相同；

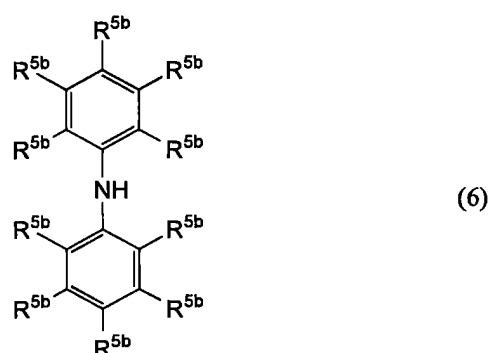
Z^a 係鹵素原子；

X^a 係與通式 (1) 中的 X 相同；

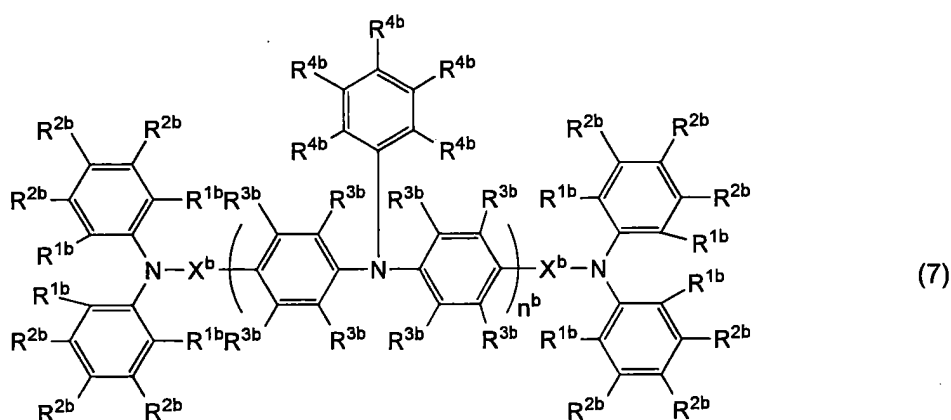
o 表示 0~2 之整數，與通式 (1) 中的 n 滿足 $o = (n-1)$

/2)。

8. 一種如請求項 3 之螢光性化合物之製造方法，其包含使下述通式 (6) 所示之胺化合物與下述通式 (7) 所示之芳香族鹵素化合物在過渡金屬觸媒存在下反應之步驟；



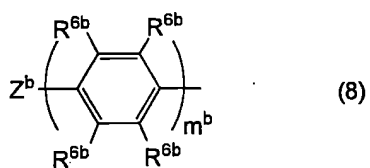
(通式 (6) 中， R^{5b} 各自係與通式 (2) 中的 R^5 相同)；



(通式 (7) 中， $R^{1b} \sim R^{4b}$ 各自係與通式 (1) 中的 $R^1 \sim R^4$ 相同；

X^b 各自係與通式 (1) 中的 X 相同；

n^b 係與通式 (1) 中的 n 相同，惟 R^{2b} 的至少 1 個表示式 (8) 所示之取代基)；

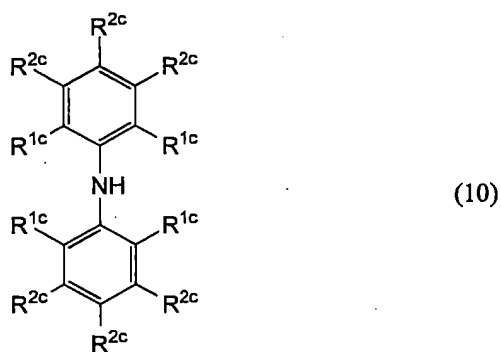


(通式 (8) 中， R^{6b} 各自係與通式 (2) 中的 R^6 相同；
 m^b 係與通式 (2) 中的 m 相同；
 Z^b 係鹵素原子)。

9. 一種如請求項 4 之螢光性化合物之製造方法，其包含使下述通式 (10) 所示之胺化合物與下述通式 (9) 所示之芳香族鹵素化合物在過渡金屬觸媒存在下反應之步驟；



(通式 (9) 中， X^c 各自係與通式 (1) 中的 X 相同；
 Z^c 係鹵素原子)；



(通式 (10) 中， R^{1c} 、 R^{2c} 各自係與通式 (1) 中的 R^1 、 R^2 相同)。