

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号
特許第4891780号
(P4891780)

(45) 発行日 平成24年3月7日 (2012.3.7)

(24) 登録日 平成23年12月22日 (2011.12.22)

(51) Int.Cl.

F I

CO7D 215/38 (2006.01)

CO7D 401/12 (2006.01)

CO7D 471/04 (2006.01)

CO7F 5/02 (2006.01)

CO7D 215/38

CO7D 401/12

CO7D 471/04

CO7F 5/02

1 O 4 Z

D

請求項の数 8 (全 17 頁)

(21) 出願番号	特願2006-543860 (P2006-543860)	(73) 特許権者	510059907
(86) (22) 出願日	平成16年11月29日 (2004.11.29)		グローバル オーエルイーディー テクノ
(65) 公表番号	特表2007-513949 (P2007-513949A)		ロジー リミティド ライアビリティ カ
(43) 公表日	平成19年5月31日 (2007.5.31)		ンパニー
(86) 国際出願番号	PCT/US2004/039869		アメリカ合衆国, デラウェア 19801
(87) 国際公開番号	W02005/061521		, ウィルミントン, オレンジ ストリート
(87) 国際公開日	平成17年7月7日 (2005.7.7)		1209
審査請求日	平成19年9月26日 (2007.9.26)	(74) 代理人	100099759
(31) 優先権主張番号	10/733,086		弁理士 青木 篤
(32) 優先日	平成15年12月11日 (2003.12.11)	(74) 代理人	100077517
(33) 優先権主張国	米国 (US)		弁理士 石田 敬
		(74) 代理人	100087413
			弁理士 古賀 哲次
		(74) 代理人	100102990
			弁理士 小林 良博

最終頁に続く

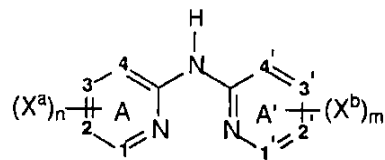
(54) 【発明の名称】 ビス (ピリジル) アミン- B F 2 錯体の合成

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

B F ₃ と式 (1) :

【化 1】



(1)

10

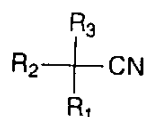
(式中、 A および A ' は、少なくとも 1 個の窒素を含む 6 員芳香族環系を独立に表わし ;
各 X ^a および X ^b は独立に選ばれた置換基であり、これらの 2 つが結合して A または A '
に対して縮合環を形成していてもよく ;

m および n は独立に 0 から 4 であり ;
1 , 2 , 3 , 4 , 1 ' , 2 ' , 3 ' および 4 ' の原子は、炭素原子または窒素原子のい
ずれかとして独立に選ばれる)

により表わされるアミンとを、反応条件下で B F ₃ と反応性でない式 (3) :

20

【化 2】



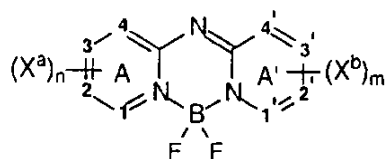
(3)

(式中、 R_1 、 R_2 および R_3 はそれぞれ独立に水素基、アルキル基、アリール基またはペ
ルフルオロアルキル基を表わし、 R_1 と R_2 、 R_2 と R_3 、または R_1 と R_3 は結合して、シク
ロアルキルまたはアリール環基を形成していてもよい)

10

により表わされる極性非プロトン性有機溶剤の存在下で反応させる工程を含む、式(2)

【化 3】



(2)

20

(式中、 A 、 A' 、 X^a 、 X^b 、 m および n 、並びに 1 、 2 、 3 、 4 、 $1'$ 、 $2'$ 、 $3'$ お
よび $4'$ の原子は上記定義のとおりであり、ホウ素原子は2つの環窒素により錯化されて
いる)

により表されるビス(ピリジル)アミン - BF_2 錯体の形成方法。

【請求項 2】

R_1 、 R_2 および R_3 の少なくとも1つがHではない請求項1に記載の方法。

30

【請求項 3】

R_1 および R_2 がHを表わし、 R_3 がメチル基またはエチル基を表す請求項1に記載の方
法。

【請求項 4】

前記 BF_3 の供給源が、 BF_3 ガス、 BF_3 の有機溶剤溶液、または有機溶剤または化合
物との BF_3 の錯体を含む、請求項1～3のいずれか1項に記載の方法。

【請求項 5】

前記 BF_3 の供給源が、ジエチルエーテル、ジメチルエーテルまたはテトラヒドロフラ
ンと錯化した BF_3 を含む請求項1～3のいずれか1項に記載の方法。

【請求項 6】

BF_3 が、式(1)のアミン1モル当たり1～50当量の量で使用される請求項1～5
のいずれか1項に記載の方法。

40

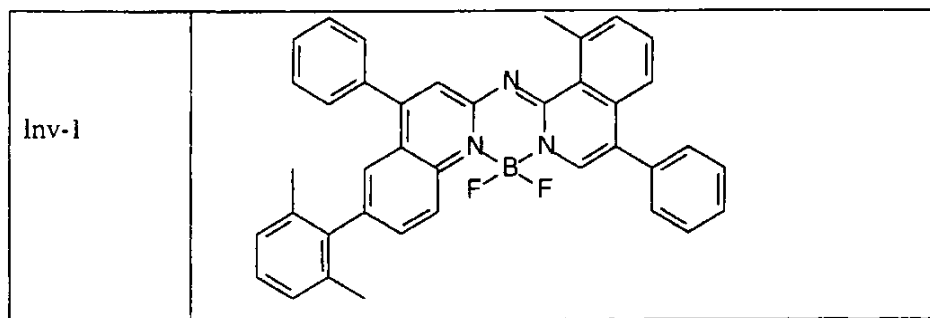
【請求項 7】

前記反応が少なくとも80の温度で行われる請求項1～6のいずれか1項に記載の方
法。

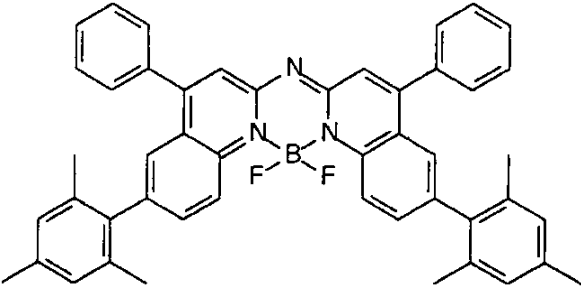
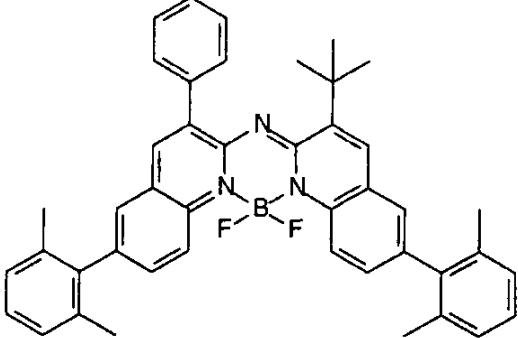
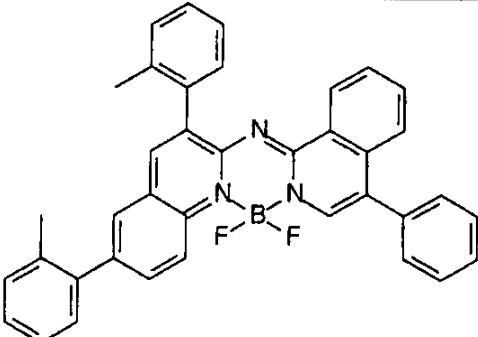
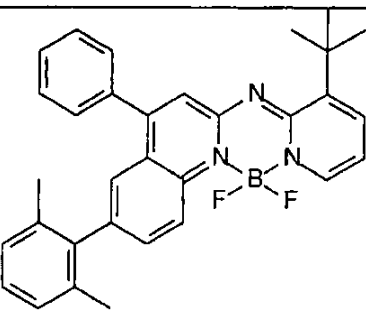
【請求項 8】

前記ビス(ピリジル)アミン - BF_2 錯体が、

【化 4】



【化 5】

Inv-2	
Inv-3	
Inv-4	
Inv-5	

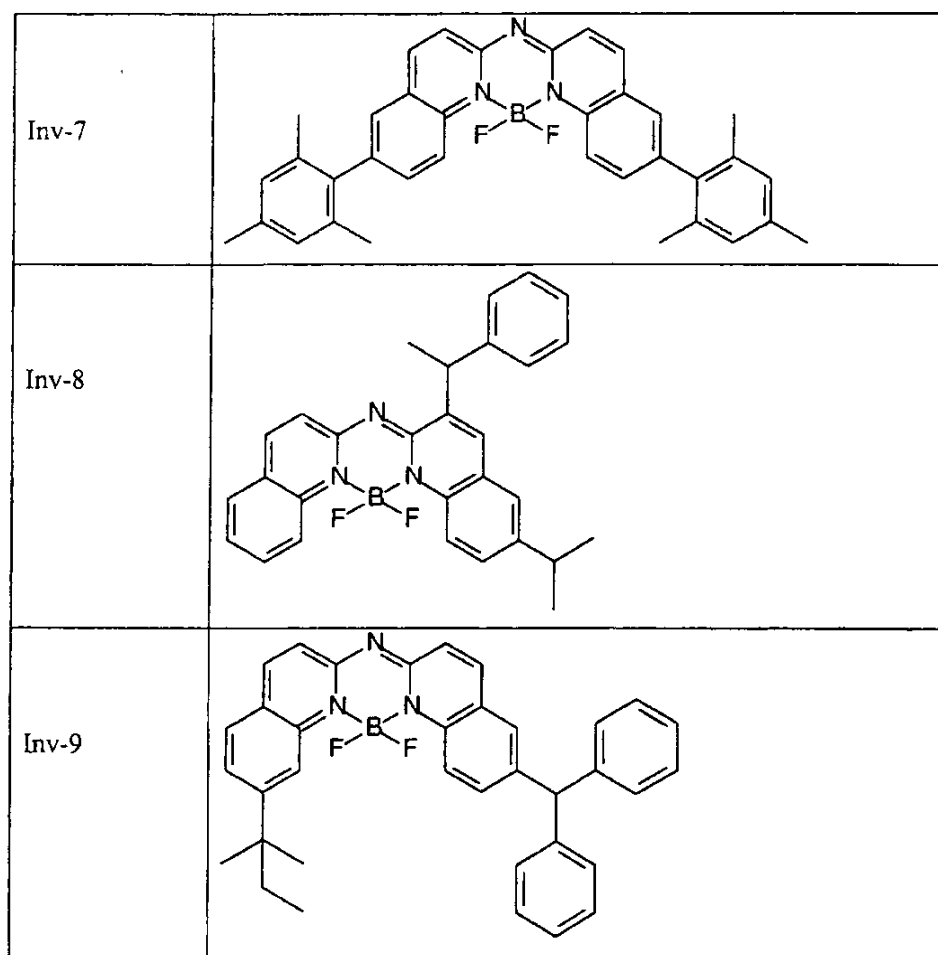
10

20

30

40

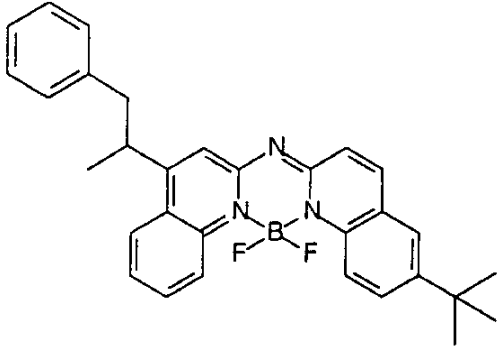
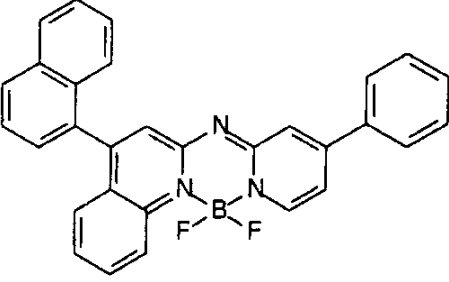
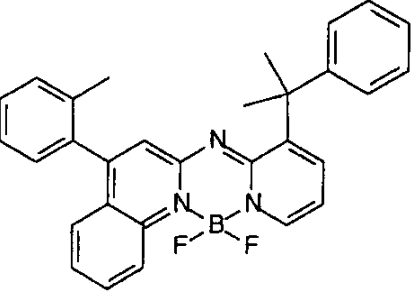
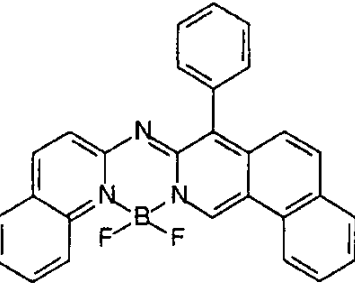
【化 6】



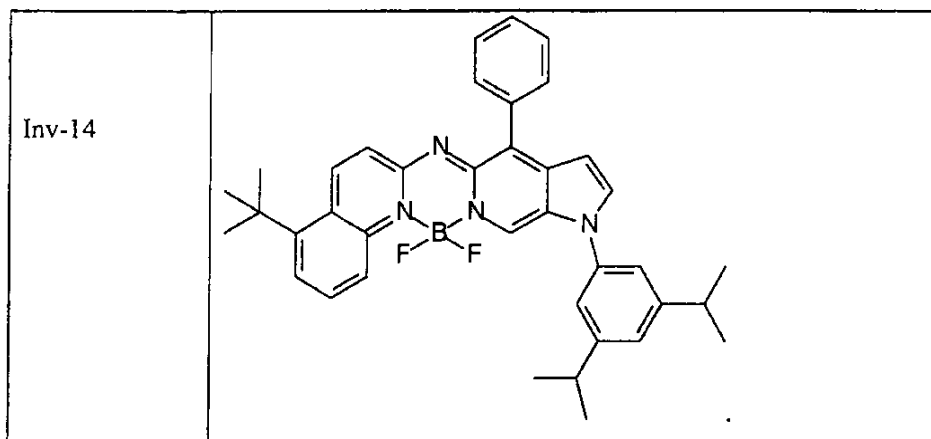
10

20

【化 7】

Inv-10		10
Inv-11		20
Inv-12		30
Inv-13	 及び	

【化 8】



10

から選ばれる請求項 1 ～ 7 のいずれか 1 項に記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

20

本発明は、有機合成の分野に関し、ホウ素原子が、脱プロトン化されたビス(ピリジル)アミン化合物の 2 個の環窒素により錯化されているビス(ピリジル)アミン - BF_2 錯体の形成方法であって、反応条件下で BF_3 と反応性でない極性非プロトン性有機溶剤の存在下で、 BF_3 をプロトン化されたビス(ピリジル)アミンと反応させることを含む、ビス(ピリジル)アミン - BF_2 錯体の形成方法に関する。

【背景技術】

【0002】

エレクトロルミネセンス装置は、光の放出を提供するそれらの有用性でよく知られている。かかる装置において有用な発光材料のなかには、ホウ素原子が、脱プロトン化されたビス(ピリジル)アミン化合物の 2 個の環窒素により錯化されたビス(ピリジル)アミン - BF_2 錯体がある。2002 年 2 月 28 日に出願された米国特許出願第 10 / 086, 085 号の係属中の同一出願人による 2002 年 6 月 27 日に部分継続出願された米国特許出願第 10 / 183, 242 号には、 BF_3 を、有機溶剤としてのトルエン中で、プロトン化されたビス(ピリジル)アミン化合物と反応させることによるビス(ピリジル)アミン - BF_2 錯体の製造方法が開示されている。Sathyamoorthi ら (Heteroatom Chemistry 1993, 6, 603) は、有機溶剤としてトルエンとジクロロメタンを使用するビス(ピリジル)アミン - BF_2 錯体の合成を報告した。これらの方法は概して満足のいく収率で「所望の生成物をもたらすが、選ばれた脱プロトン化されたビス(ピリジル)アミン化合物がフェニル基、*t*-ブチル基またはメシチル基などの嵩高い基で置換された場合に、典型的には 5 % 未満の低い収率を与える。

30

40

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0003】

ビス(ピリジル)アミン - BF_3 錯体、特に嵩高い置換基を有するビス(ピリジル)アミン - BF_3 錯体の有効な合成方法を提供することが解決すべき課題である。

【課題を解決するための手段】

【0004】

本発明は、ホウ素原子が、脱プロトン化されたビス(ピリジル)アミン化合物の 2 個の環窒素により錯化されたビス(ピリジル)アミン - BF_2 錯体の形成方法であって、反応条件下で BF_3 と反応性でない極性非プロトン性有機溶剤の存在下で、 BF_3 をプロトン化

50

されたビス(ピリジル)アミンと反応させる工程を含む、上記ビス(ピリジル)アミン - BF_2 錯体の形成方法を提供する。

【0005】

かかる方法は、ビス(ピリジル)アミン化合物上に嵩高い基が存在する場合でも良好な収率を与える。

【発明を実施するための最良の形態】

【0006】

本発明は、上記のとおり要約される。この方法は、プロトン化されたビス(ピリジル)アミン化合物を BF_3 または BF_3 供給源と反応させることによりビス(ピリジル)アミン - BF_2 錯体の高収率での合成を可能にする。「プロトン化された」とは、前記化合物の少なくとも1個の窒素原子が水素原子により置換されたことを意味する。

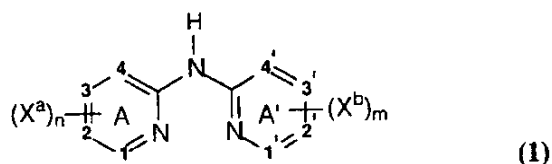
10

【0007】

上記プロトン化されたビス(ピリジル)アミン反応物化合物は、好都合なことに、式(1)：

【0008】

【化9】



20

【0009】

(式中、AおよびA'は、少なくとも1個の窒素を含む6員芳香族環系を独立に表わし；各 X^a および X^b は独立に選ばれた置換基であり、これらの2つが結合してAまたはA'に対して縮合環を形成していてもよく、mおよびnは独立に0から4であり；

30

1, 2, 3, 4, 1', 2', 3'および4'の原子は、炭素原子または窒素原子のいずれかとして独立に選ばれる)により十分に表わされる。

【0010】

式(1)により表される化合物を、 BF_3 または BF_3 供給源、例えば $\text{Et}_2\text{O} \cdot \text{BF}_3$ と反応させる。他の BF_3 供給源としては、 $\text{Me}_2\text{O} \cdot \text{BF}_3$ 、 $\text{THF} \cdot \text{BF}_3$ 、 $\text{Me}_2\text{S} \cdot \text{BF}_3$ が挙げられるが、これらに限定されない。式(1)の出発物質に対する、この方法において使用される BF_3 の量は、1~50当量に及びうる。

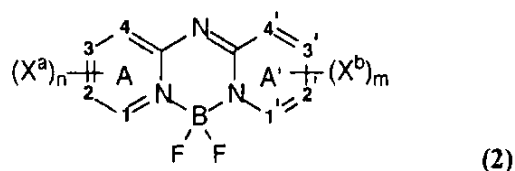
【0011】

この方法により得られる生成物は、式(2)：

40

【0012】

【化 1 0】



10

【 0 0 1 3】

(式中、置換基および変数は式(1)に関して記載したとおりである)
により表される。

【 0 0 1 4】

上記反応は、当該反応の条件下で BF_3 と反応性でない極性非プロトン性溶剤の存在下で行われる。極性非プロトン性溶剤がニトリル基を含む極性非プロトン性有機溶剤であることが都合よく、極性非プロトン性有機溶剤が式(3)：

【 0 0 1 5】

【化 1 1】

20



【 0 0 1 6】

(式中、 R_1 、 R_2 および R_3 はそれぞれ独立に水素、フッ素、アルキル、アリール、アルコキシ、アリールオキシ、ジアルキルアミノ、ジアリールアミノ、シアノまたはニトロ基を表わし、 R_1 と R_2 、 R_2 と R_3 、または R_1 と R_3 は結合して、シクロアルキルまたはアリール環基を形成していてもよい)

30

により表されるものであることが都合よい。

【 0 0 1 7】

典型的な置換基としては、アルキル、アリールアルコキシ基、アリールオキシ、ジアルキルアミノ、ジアリールアミノ、シアノまたはニトロ基が挙げられる。ペルフルオロアルキル基などの様々な上記アルキル基は典型的には1～6個の炭素原子を含むが、炭素原子数は12個未満である。上記シクロアルキル部分は通常3～10個の炭素原子を含むが、典型的には、例えばシクロペンチルまたはシクロヘキシル構造のように5または6個の炭素原子を含む。上記アリール基は通常、フェニル部分である。

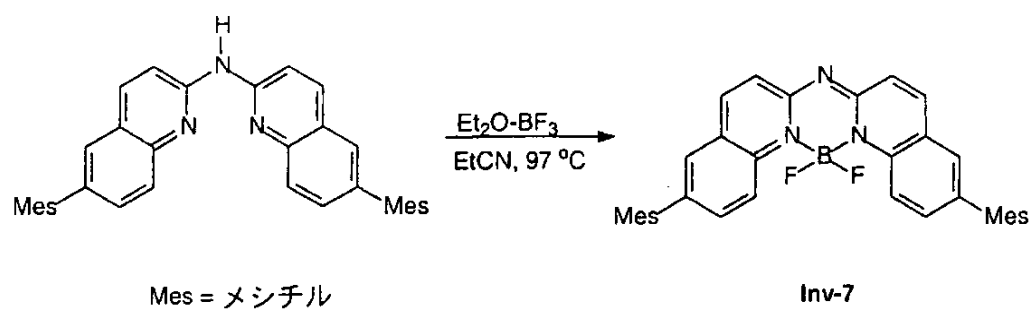
40

【 0 0 1 8】

本発明の方法を、Inv-7を製造する以下のスキームで例示する。

【 0 0 1 9】

【化 1 2】



10

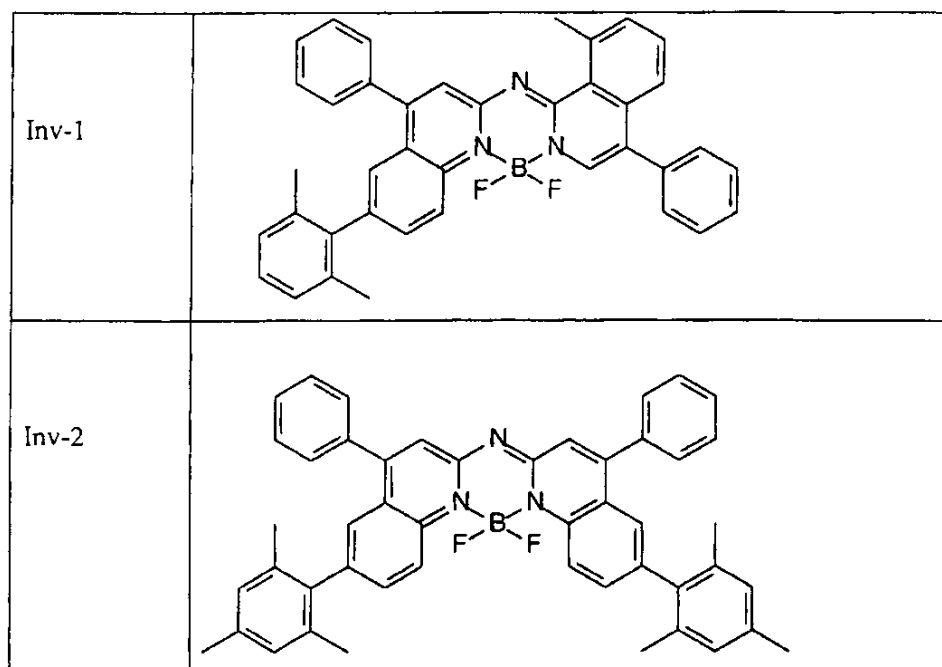
【 0 0 2 0】

脱プロトン化されたビス（ピリジル）アミン化合物の2個の環窒素により錯化されたホウ素化合物であって、本発明を使用して製造できるものの具体例は以下のとおりである。

【 0 0 2 1】

【化 1 3】

20

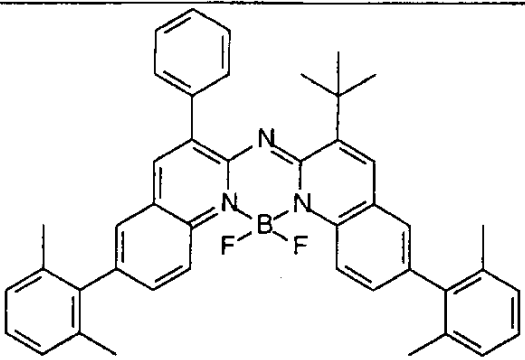
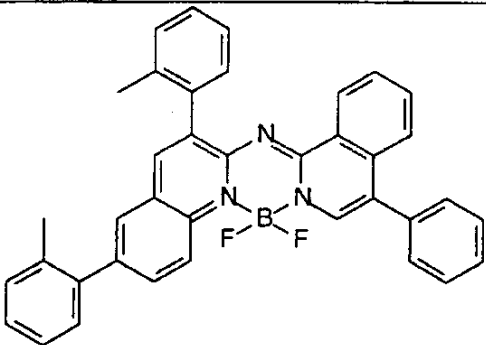
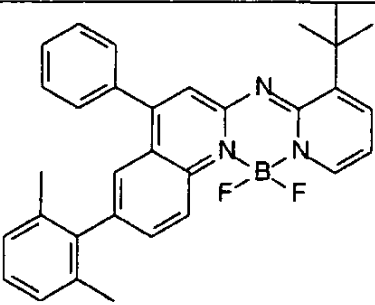


30

40

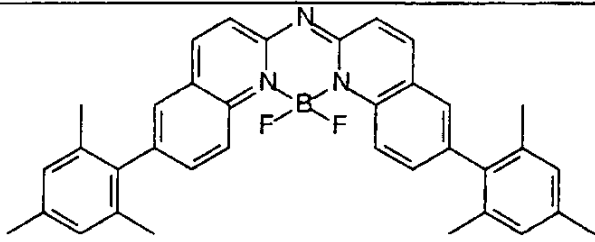
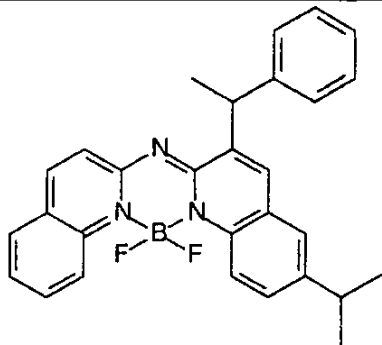
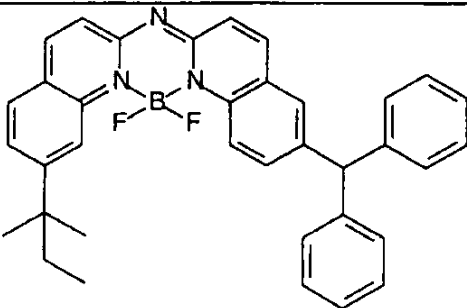
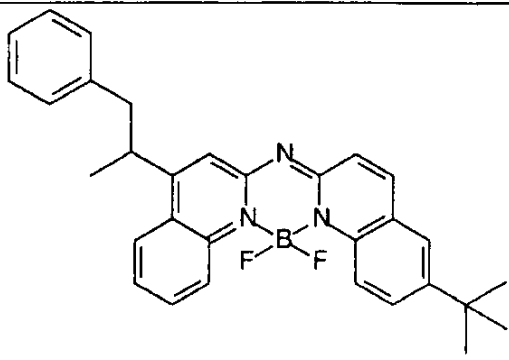
【 0 0 2 2】

【化 1 4】

Inv-3		10
Inv-4		20
Inv-5		30

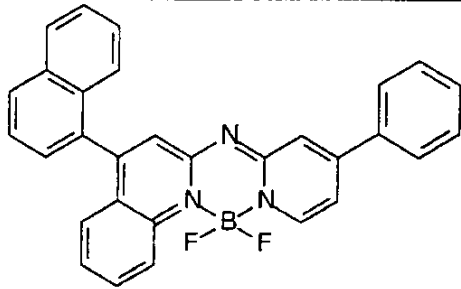
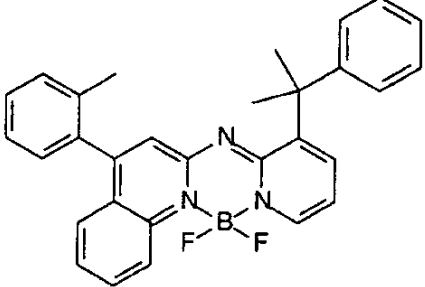
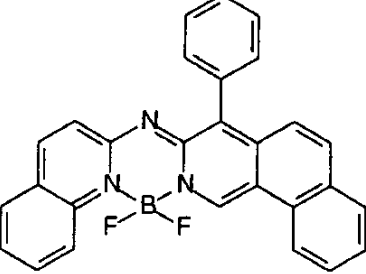
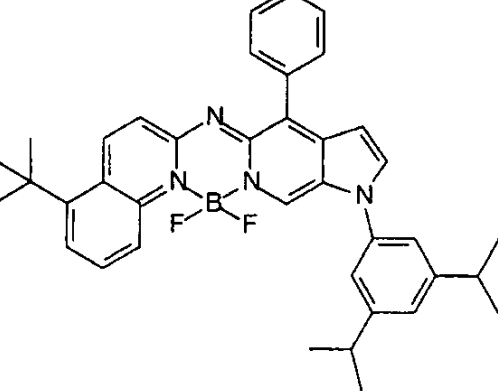
【 0 0 2 3 】

【化 1 5】

Inv-7	
Inv-8	
Inv-9	
Inv-10	

【 0 0 2 4 】

【化 16】

Inv-11	
Inv-12	
Inv-13	
Inv-14	

【0025】

上記反応条件下では、式(2)で示した錯体の形成をもたらすのに必要な温度は典型的には室温(18)から200 である。上記反応を少なくとも80 の温度で行うのが都合よい。この温度に関する要件は、式(1)および(2)に記載した置換基の性質並びに出発配位子(1)の溶解性にも依存する。

【0026】

特に断らない限り、用語「置換された」または「置換基」は、水素以外のすべての基または原子を意味する。さらに、用語「基」を使用する場合、その用語には、ある置換基が置換可能な水素を含む時には、当該置換基の非置換形態のみならず、本明細書に記載した何らかの1または複数の置換基でさらに置換されている形態のものも包含されるものとす

る。好適には、置換基は、ハロゲンであること、あるいは当該分子の残部に対して、炭素、ケイ素、酸素、窒素、リン、硫黄、セレンまたはホウ素の原子によって結合されていることが可能である。置換基は、例えば、ハロゲン、例えば、塩素、臭素またはフッ素；ニトロ；ヒドロキシル；シアノ；カルボキシル；またはさらに置換されていてもよい基、例えば、直鎖もしくは分岐鎖のまたは環状のアルキルなどのアルキル、例えば、メチル、トリフルオロメチル、エチル、*t*-ブチル、シクロヘキシル、3-(2,4-ジ-*t*-アミルフェノキシ)プロピルおよびテトラデシル；アルケニル、例えば、エチレン、2-ブテン；アルコキシ、例えば、メトキシ、エトキシ、プロポキシ、ブトキシ、2-メトキシエトキシ、*sec*-ブトキシ、ヘキシルオキシ、2-エチルヘキシルオキシ、テトラデシルオキシ、2-(2,4-ジ-*t*-ペンチルフェノキシ)エトキシおよび2-ドデシルオキシエトキシ；アリール、例えば、フェニル、4-*t*-ブチルフェニル、2,4,6-トリメチルフェニル、ナフチル；アリーロキシ、例えば、フェノキシ、2-メチルフェノキシ、*o*-又は*p*-ナフチルオキシおよび4-トリルオキシ；カルボンアミド、例えば、アセトアミド、ベンズアミド、ブチルアミド、テトラデカンアミド、*o*-(2,4-ジ-*t*-ペンチルフェノキシ)アセトアミド、*p*-(2,4-ジ-*t*-ペンチルフェノキシ)ブチルアミド、*o*-(3-ペンタデシルフェノキシ)ヘキサノアミド、*o*-(4-ヒドロキシ-3-*t*-ブチルフェノキシ)テトラデカンアミド、2-オキソ-ピロリジン-1-イル、2-オキソ-5-テトラデシルピロリン-1-イル、*N*-メチルテトラデカンアミド、*N*-スクシンイミド、*N*-フタルイミド、2,5-ジオキソ-1-オキサゾリジニル、3-ドデシル-2,5-ジオキソ-1-イミダゾリル、*N*-アセチル-*N*-ドデシルアミノ、エトキシカルボニルアミノ、フェノキシカルボニルアミノ、ベンジルオキシカルボニルアミノ、ヘキサデシルオキシカルボニルアミノ、2,4-ジ-*t*-ブチルフェノキシカルボニルアミノ、フェニルカルボニルアミノ、2,5-(ジ-*t*-ペンチルフェニル)カルボニルアミノ、*p*-ドデシルフェニルカルボニルアミノ、*p*-トリルカルボニルアミノ、*N*-メチルウレイド、*N,N*-ジメチルウレイド、*N*-メチル-*N*-ドデシルウレイド、*N*-ヘキサデシルウレイド、*N,N*-ジオクタデシルウレイド、*N,N*-ジオクチル-*N'*-エチルウレイド、*N*-フェニルウレイド、*N,N*-ジフェニルウレイド、*N*-フェニル-*N*-*p*-トリルウレイド、*N*-(*m*-ヘキサデシルフェニル)ウレイド、*N,N*-(2,5-ジ-*t*-ペンチルフェニル)-*N'*-エチルウレイドおよび*t*-ブチルカルボンアミド；スルホンアミド、例えば、メチルスルホンアミド、ベンゼンスルホンアミド、*p*-トリルスルホンアミド、*p*-ドデシルベンゼンスルホンアミド、*N*-メチルテトラデシルスルホンアミド、*N,N*-ジプロピル-スルファモイルアミノおよびヘキサデシルスルホンアミド；スルファモイル、例えば、*N*-メチルスルファモイル、*N*-エチルスルファモイル、*N,N*-ジプロピルスルファモイル、*N*-ヘキサデシルスルファモイル、*N,N*-ジメチルスルファモイル、*N*-〔3-(ドデシルオキシ)プロピル〕スルファモイル、*N*-〔4-(2,4-ジ-*t*-ペンチルフェノキシ)ブチル〕スルファモイル、*N*-メチル-*N*-テトラデシルスルファモイルおよび*N*-ドデシルスルファモイル；カルバモイル、例えば、*N*-メチルカルバモイル、*N,N*-ジブチルカルバモイル、*N*-オクタデシルカルバモイル、*N*-〔4-(2,4-ジ-*t*-ペンチルフェノキシ)ブチル〕カルバモイル、*N*-メチル-*N*-テトラデシルカルバモイルおよび*N,N*-ジオクチルカルバモイル；アシル、例えば、アセチル、(2,4-ジ-*t*-アミルフェノキシ)アセチル、フェノキシカルボニル、*p*-ドデシルオキシフェノキシカルボニル、メトキシカルボニル、ブトキシカルボニル、テトラデシルオキシカルボニル、エトキシカルボニル、ベンジルオキシカルボニル、3-ペンタデシルオキシカルボニルおよびドデシルオキシカルボニル；スルホニル、例えば、メトキシスルホニル、オクチルオキシスルホニル、テトラデシルオキシスルホニル、2-エチルヘキシルオキシスルホニル、フェノキシスルホニル、2,4-ジ-*t*-ペンチルフェノキシスルホニル、メチルスルホニル、オクチルスルホニル、2-エチルヘキシルスルホニル、ドデシルスルホニル、ヘキサデシルスルホニル、フェニルスルホニル、4-ノニルフェニルスルホニルおよび*p*-トリルスルホニル；スルホニルオキシ、例えば、ドデシルスルホニルオキシおよびヘキサデシルスルホニルオキシ；スルフィ

10

20

30

40

50

ニル、例えば、メチルスルフィニル、オクチルスルフィニル、2-エチルヘキシルスルフィニル、ドデシルスルフィニル、ヘキサデシルスルフィニル、フェニルスルフィニル、4-ノニルフェニルスルフィニルおよびp-トリルスルフィニル；チオ、例えば、エチルチオ、オクチルチオ、ベンジルチオ、テトラデシルチオ、2-(2,4-ジ-t-ペンチルフェノキシ)エチルチオ、フェニルチオ、2-ブトキシ-5-t-オクチルフェニルチオおよびp-トリルチオ；アシルオキシ、例えば、アセチルオキシ、ベンゾイルオキシ、オクタデカノイルオキシ、p-ドデシルアミドベンゾイルオキシ、N-フェニルカルバモイルオキシ、N-エチルカルバモイルオキシおよびシクロヘキシルカルボニルオキシ；アミン、例えば、フェニルアニリノ、2-クロロアニリノ、ジエチルアミン、ドデシルアミン；イミノ、例えば、1-(N-フェニルイミド)エチル、N-スクシンイミド又は3-ベン

10
 ジルヒダントイニル；ホスフェート、例えば、ジメチルホスフェートおよびエチルブチルホスフェート；ホスフィット、例えば、ジエチルホスフィットおよびジヘキシルホスフィット；酸素、窒素、硫黄、リン、またはホウ素から成る群より選択された少なくとも1種のヘテロ原子と炭素原子とを含む3~7員複素環を含有し、かつ、置換されていてもよいそれぞれ複素環式基、複素環式オキシ基又は複素環式チオ基、例えば、2-フリル、2-チエニル、2-ベンズイミダゾリルオキシ又は2-ベンゾチアゾリル；第4級アンモニウム、例えば、トリエチルアンモニウム；第4級ホスホニウム、例えば、トリフェニルホスホニウム；並びにシリルオキシ、例えば、トリメチルシリルオキシであることができる。

【0027】

所望であれば、これらの置換基自体が上記の置換基でさらに1回以上置換されていてもよい。用いられる特定の置換基は、特定の用途に望まれる特性が得られるよう当業者であれば選ぶことができ、例えば、電子吸引基、電子供与基、および立体障害基等を含むことができる。分子が2以上の置換基を有することができる場合、特に断らない限り、これら複数の置換基が結合し合って縮合環などの環を形成していてもよい。一般的に、上記の基およびそれらの置換基は、炭素原子を最大48個まで、典型的には1~36個、通常は24個未満で有するものを含むことができるが、選ばれた特定の置換基によっては、さらに多い炭素原子数が可能である。

【実施例】

【0028】

実施例1

密閉式機械攪拌機、温度計、還流冷却器、滴下漏斗および窒素注入口を備えた2リットル4口フラスコに化合物7(130.00g, 256mmol)および乾燥プロピオニトリル(1000ml)を入れた。BF₃・Et₂O(156ml, 1250mmol)を漏斗から加え、1時間後に、反応混合物を約97℃に暖め、そして36時間還流させた。反応混合物を室温に冷却する前にプロピオニトリルの約半分を急速蒸留により除去した。冷たい濃縮反応混合物を18~28℃の水(10リットル)にゆっくり(20~30分間にわたって)加えた。この水混合物を攪拌(1~3時間)して生成物を固化させ、この固化した生成物を濾過により単離し、水(400ml)、飽和炭酸水素ナトリウム(400ml)、水(3×400ml)で洗浄し、そして空気流により3時間乾燥させた。粗生成物をフラスコに移し、i-Pr₂O(600ml)でスラリー化し、0.5時間攪拌し、濾過し、Et₂O(250ml)で洗浄し、そして空気流で1~2時間乾燥させ、次に真空オーブン中で70℃で6~12時間乾燥させて、119.6g(83%)の所望の生成物、すなわちInv7を得た。

【0029】

実施例2, 3

これらは、溶剤および温度の選択を表に示すようにしたことを除いて実施例1と同様に合成した。

【0030】

実施例4~6

10

20

30

40

50

プロトン化出発化合物 7 (1 . 3 0 g , 2 . 5 6 mmol) 、 1 0 m l の適切な乾燥溶剤 (テトラヒドロフラン、トルエンまたはジクロロメタン) と $\text{BF}_3 \cdot \text{Et}_2\text{O}$ (1 . 5 6 m l , 1 2 . 5 0 mmol) を密閉容器内で組み合わせ、表 1 に示す温度で加熱した。

【 0 0 3 1 】

反応の進行を T L C および L C 分析により追跡した。

【 0 0 3 2 】

異なる溶剤および得られた収率での、脱プロトン化されたビス (ピリジル) アミン化合物からのビス (ピリジル) アミン - BF_2 錯体の合成に適用した反応条件を含めて、上記実施例を表 1 にまとめて示す。収率は、プロトン化された化合物である出発物質を基準としたものである。

【 0 0 3 3 】

【表 1】

表 1 : Inv-7 の製造を説明するための例 (36時間)

例	タイプ	溶媒	温度	収率
1	本発明	プロピオニトリル	97℃	83%
2	本発明	アセトニトリル	80℃	79%
3	本発明	ブチロニトリル	115℃	91%
4	比較	トルエン	115℃	4%
5	比較	テトラヒドロフラン	65℃	<1%
6	比較	ジクロロエタン	65℃	<1%

【 0 0 3 4 】

表 1 から、試験した試料では、本発明の方法を用いた場合の収率が 7 0 ~ 9 1 % であるのに対して、比較例の方法では 0 ~ 4 % であることが判る。嵩高い置換基の場合に、DM SO および DM F などの溶剤を使用した場合に、結果が不十分であることも観察された。

【 0 0 3 5 】

本明細書で引用した特許文献および他の刊行物の全内容を本明細書に援用する。

フロントページの続き

(74)代理人 100128495

弁理士 出野 知

(74)代理人 100093665

弁理士 蛭谷 厚志

(74)代理人 100114018

弁理士 南山 知広

(72)発明者 オウクザークジーク,ズビスロー ロマン

アメリカ合衆国,ニューヨーク 14580,ウェブスター,ジョン グレン ブールバード 7
69

審査官 岡部 佐知子

(56)参考文献 特開2003-257670(JP,A)

欧州特許出願公開第01340798(EP,A1)

Heteroatom Chemistry, 1993年, Vol.4, No.6, p.603-608

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C07D 215/38

C07D 401/12

C07D 471/04

C07F 5/02

CA(STN)

REGISTRY(STN)

WPI