

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2009年10月29日(29.10.2009)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2009/131165 A1

- (51) 国際特許分類:
C08F 12/32 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2009/058043
- (22) 国際出願日: 2009年4月23日(23.04.2009)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2008-113905 2008年4月24日(24.04.2008) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 昭和電工株式会社(SHOWA DENKO K.K.) [JP/JP]; 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目13番9号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 加藤 剛 (KATO, Tsuyoshi) [JP/JP]; 〒2670056 千葉県千葉市緑区大野台1-1-1 昭和電工株式会社 研究開発センター内 Chiba (JP). 五十嵐 威史 (IGARASHI, Takeshi) [JP/JP]; 〒2670056 千葉県千葉市緑区大野台1-1-1 昭和電工株式会社 研究開発センター内 Chiba (JP).
- (74) 代理人: 鈴木 俊一郎(SUZUKI, Shunichiro); 〒1410031 東京都品川区西五反田七丁目13番6
- 号 五反田山崎ビル6階 鈴木国際特許事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告 (条約第21条(3))



WO 2009/131165 A1

(54) Title: CHARGE-TRANSPORTING POLYMER COMPOUND AND ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE USING THE SAME

(54) 発明の名称: 電荷輸送性高分子化合物およびこれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子

(57) Abstract: Disclosed is a charge-transporting polymer compound which enables achievement of high luminous efficiency and high luminance. Also disclosed is an organic EL device having low driving voltage, wherein the charge-transporting polymer compound is used in an organic layer. The charge-transporting polymer compound is characterized by containing a structural unit which is derived from at least one polymerizable compound selected from a plurality of kinds of polymerizable compounds having a specific structure.

(57) 要約: [課題] 本発明は、高発光効率および高輝度が得られる電荷輸送性高分子化合物を提供し、このような電荷輸送性高分子化合物を有機EL素子の有機層に用いた場合、低い駆動電圧を有する有機EL素子を提供すること。 [解決手段] 本発明の電荷輸送性高分子化合物は、特定の構造を有する複数種の重合性化合物のうち、少なくとも1種の重合性化合物から導かれる構成単位を含むことを特徴とする。

明 細 書

発明の名称：

電荷輸送性高分子化合物およびこれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子

技術分野

[0001] 本発明は、ピリジン環、ピリミジン環およびピラジン環からなる群から選択される1つの複素環を含有する電荷輸送性高分子化合物に関する。より詳しくは、本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子（以下「有機EL素子」とも記す。）に好適に用いられる電荷輸送性のピリジン環、ピリミジン環およびピラジン環からなる群から選択される1つの複素環を含有する電荷輸送性高分子化合物に関する。

背景技術

[0002] 有機薄膜を用いた電界発光（エレクトロルミネッセンス）素子、すなわち有機EL素子は、通常、基板上に、陽極、陰極、およびこれら両極間に設けられた少なくとも発光層を含む有機層を有する。有機層としては、発光層以外にも、正孔注入層（陽極バッファ層）、正孔輸送層、正孔阻止層、電子輸送層、電子注入層等が設けられる。通常、これらの層を陽極と陰極との間に積層することにより有機EL素子が構成されている。

[0003] 特許文献1には、燐光発光性の有機EL素子に用いられる電荷輸送材料としてピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環またはトリアジン環を骨格とし、カルバゾリル基を置換基として複数個有する有機化合物が開示されている。このような有機化合物は重合せずに用いられ、正孔輸送性と電子輸送性の性質を併せ持ち、「電荷輸送性」と呼ばれることがある。

[0004] さらに特許文献2には、燐光発光材料とイオンラジカルと電荷輸送材料とを含有してなる、低電圧で駆動可能な有機EL素子用組成物が開示されている。

先行技術文献

特許文献

- [0005] 特許文献1：特開2006-188493号公報
特許文献2：特開2007-100083号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0006] しかしながら、上記特許文献1に記載の有機化合物を用いた有機EL素子および上記特許文献2に記載の有機EL素子用組成物を用いた有機EL素子は、発光輝度および発光効率の点において改善の余地が認められる。
- [0007] そこで本発明は、高発光効率および高輝度が得られる電荷輸送性高分子化合物を提供し、このような電荷輸送性高分子化合物を有機EL素子の有機層に用いた場合、低い駆動電圧を有する有機EL素子を提供することを目的とする。

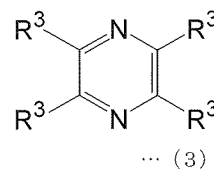
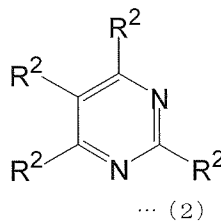
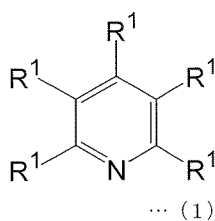
課題を解決するための手段

- [0008] 本発明者らは、上記課題を解決すべく鋭意研究した結果、電荷輸送性高分子化合物が、特定の重合性化合物から導かれる構成単位を含むことによって、有機EL素子の有機層に用いた場合に、低い駆動電圧を有するとともに、高発光効率および高輝度を有することを見出し、本発明を完成するに至った。

- [0009] すなわち、本発明は、たとえば、以下の[1]～[9]に関する。

[1] 下記式(1)で表される重合性化合物、下記式(2)で表される重合性化合物および下記式(3)で表される重合性化合物からなる群から選択される少なくとも1種の重合性化合物から導かれる構成単位を含むことを特徴とする電荷輸送性高分子化合物。

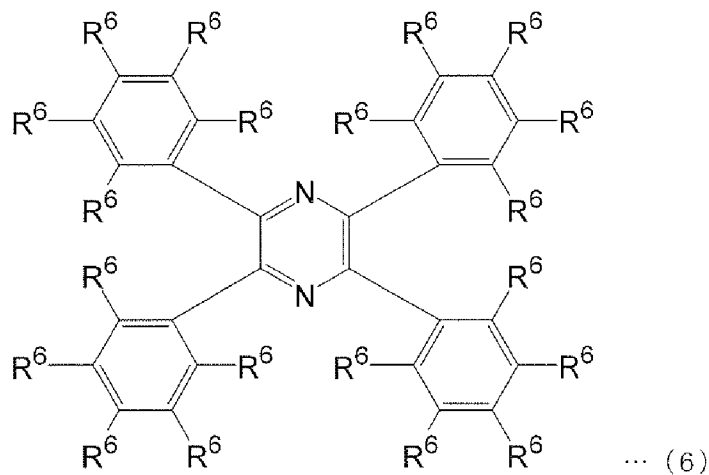
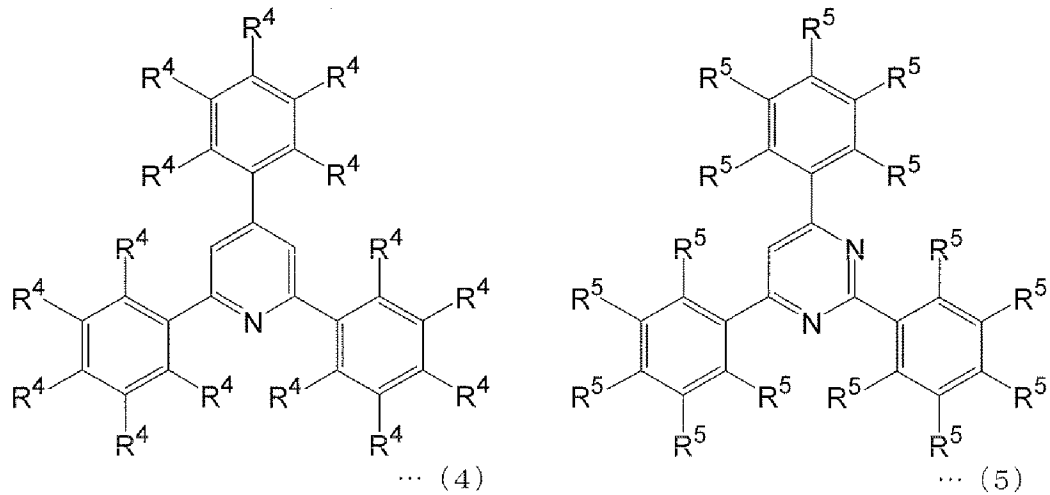
- [0010] [化1]



[0011] (式中、 $R^1 \sim R^3$ のいずれも、それぞれ独立に、水素原子、またはヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基を表す。ただし、少なくとも1つの R^1 、少なくとも1つの R^2 、および少なくとも1つの R^3 は、重合性官能基を有する置換基を有し、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基を表す。)

[2] 上記式(1)で表される重合性化合物が、下記式(4)で表される重合性化合物であり、上記式(2)で表される重合性化合物が、下記式(5)で表される重合性化合物であり、かつ上記式(3)で表される重合性化合物が、下記式(6)で表される重合性化合物であることを特徴とする[1]に記載の電荷輸送性高分子化合物。

[0012] [化2]

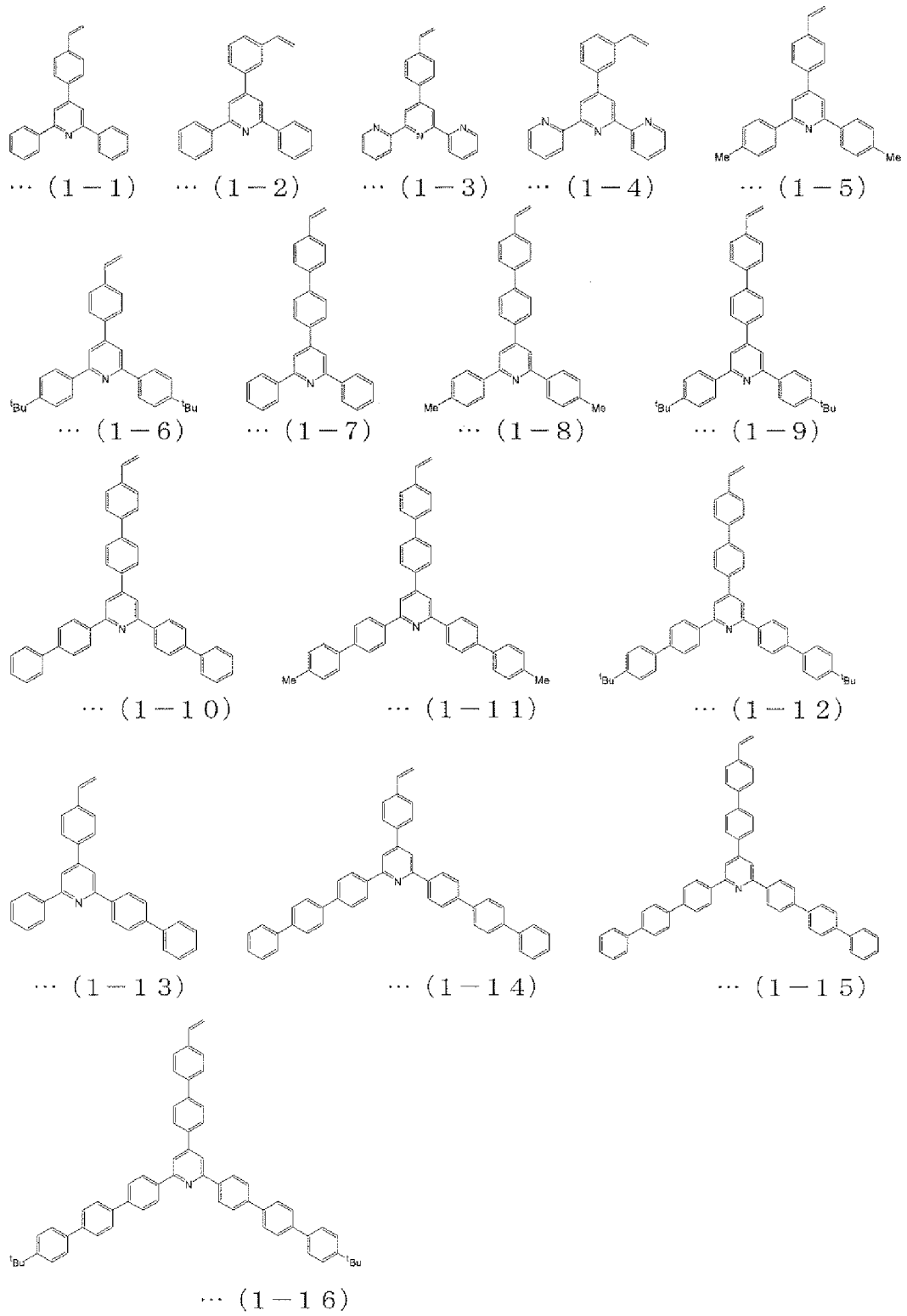


[0013] (式中、 $R^4 \sim R^6$ のいずれも、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数1～12のアルキル基、またはヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基を表す。ただし、少なくとも1つの R^4 、少なくとも1つの R^5 、および少なくとも1つの R^6 は、重合性官能基を有する置換基を有し、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基を表す。)

[3] 上記式(4)で表される重合性化合物が、下記式(1-1)～(1-16)のいずれかで表される重合性化合物であり、上記式(5)で表される重合性化合物が、下記式(2-1)～(2-26)のいずれかで表される重合性化合物であり、かつ上記式(6)で表される重合性化合物が、下記式(3-1)～(3-7)のいずれかで表される重合性化合物であることを特徴とする[2]に記載の電荷輸送性高分子化合物。

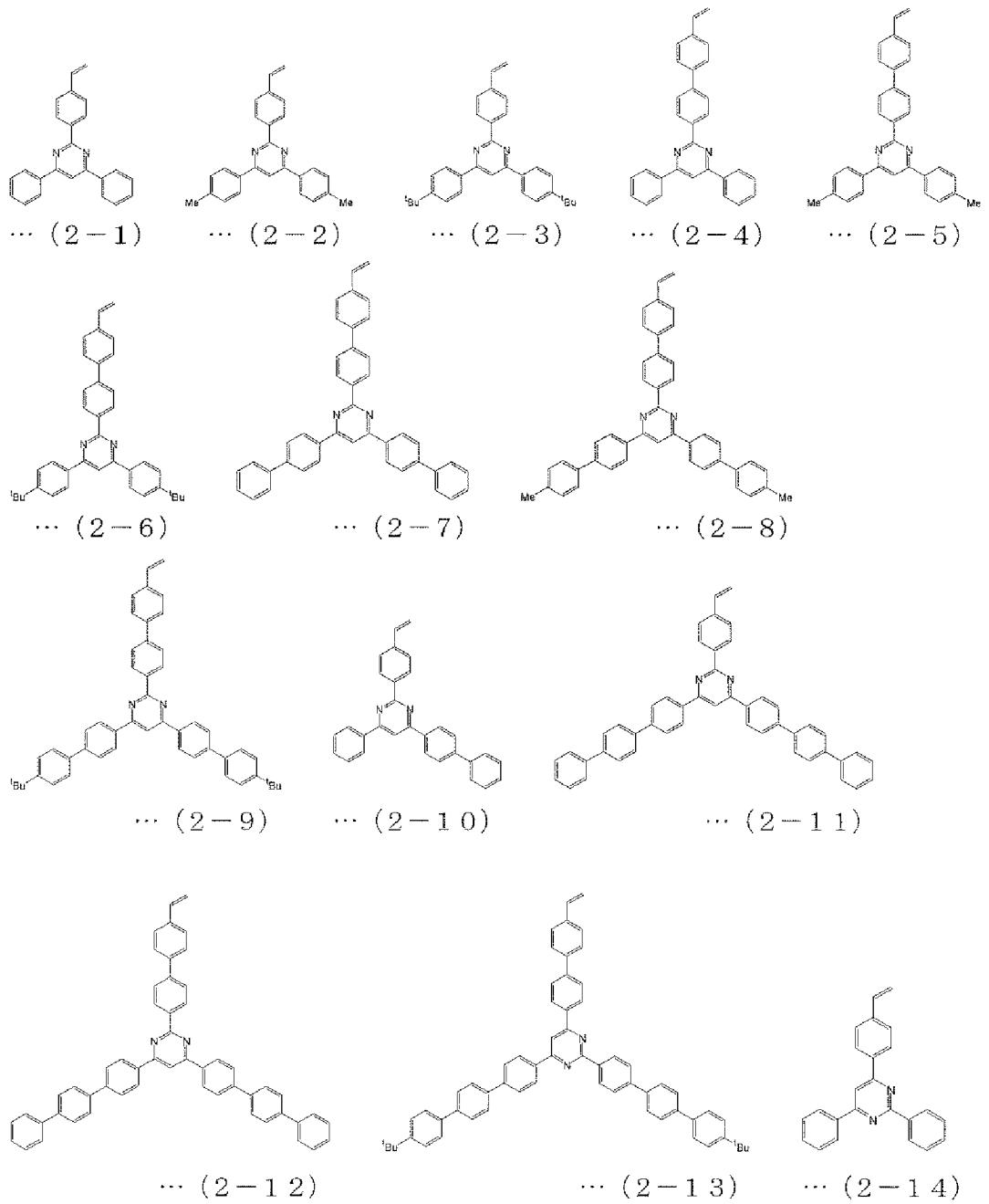
[0014]

[化3]



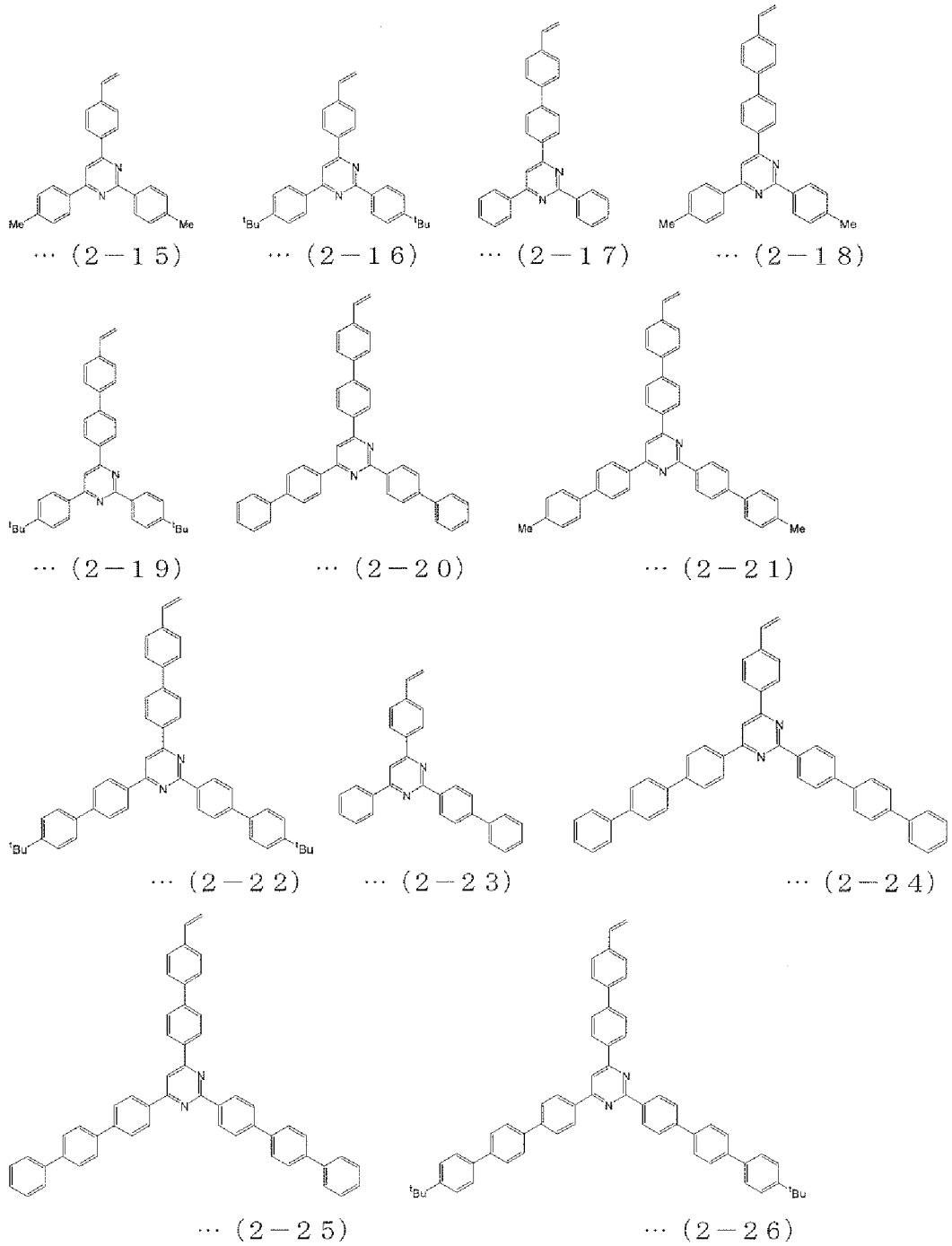
[0015]

[化4]



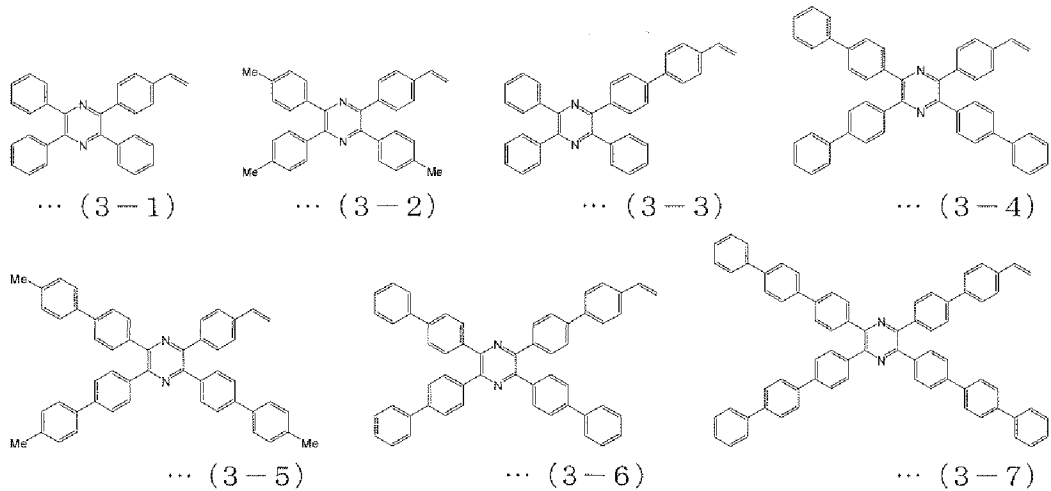
[0016]

[化5]



[0017]

[化6]



[0018] (式中、「Me」は、メチル基を表し、「tBu」は、t-ブチル基を表す。)

[4] 発光性の重合性化合物から導かれる構成単位をさらに有することを特徴とする [1] ~ [3] のいずれかに記載の電荷輸送性高分子化合物。

[0019] [5] 上記発光性の重合性化合物が、燐光発光性を有することを特徴とする [4] に記載の電荷輸送性高分子化合物。

[6] 上記発光性の重合性化合物が、重合性官能基を有する置換基を有する遷移金属錯体であることを特徴とする [5] に記載の電荷輸送性高分子化合物。

[0020] [7] 上記遷移金属錯体が、イリジウム錯体であることを特徴とする [6] に記載の電荷輸送性高分子化合物。

[8] 正孔輸送性の重合性化合物から導かれる単位をさらに含むことを特徴とする [1] ~ [7] のいずれかに記載の電荷輸送性高分子化合物。

[0021] [9] 陽極と陰極との間に発光層を備えて構成される有機エレクトロルミネッセンス素子であって、該発光層が、[1] ~ [8] のいずれかに記載の電荷輸送性高分子化合物を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

発明の効果

[0022] 本発明の電荷輸送性高分子化合物によれば、低い駆動電圧とともに、高発光効率および高輝度を有する有機EL素子が得られる。

図面の簡単な説明

[0023] [図1]図1は、本発明に係る有機EL素子の例の断面図である。

発明を実施するための形態

[0024] 以下、本発明について詳細に説明する。なお、本明細書において、電子輸送性および正孔輸送性を併せて「電荷輸送性」または「キャリア輸送性」ともいう。

<実施の形態1>

本発明の高分子化合物(I) (実施の形態1)は、上記式(1)~(3)から、好ましくは上記式(4)~(6)から、より好ましくは上記式(1-1)~(3-7)から選択される少なくとも1種で表される電荷輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位を含み、上記式(1)~(3)から、好ましくは上記式(4)~(6)から、より好ましくは上記式(1-1)~(3-7)から選択される少なくとも1種で表される電荷輸送性の重合性化合物を重合して得られる。

[0025] 上記式(1)~(3)中、 R^1 ~ R^3 のいずれも、水素原子、またはヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基を表す。ただし、少なくとも1つの R^1 、少なくとも

1つの R^2 、および少なくとも1つの R^3 は、重合性官能基を有する置換基を有し、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基を表す。

[0026] 上記芳香族基としては、例えば、フェニル基、ビフェニル基、テルフェニル基、ピリジル基、ピリミジル基などが挙げられる。

上記式(4)~(6)中 R^4 ~ R^6 のいずれも、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数1~12のアルキル基、またはヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基を表す。ただし、少なくとも1つの R^4 、少なくとも1つの R^5 、および少なくとも1つの R^6 は、重合性官能基を有する置換基を有し、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族

基を表す。

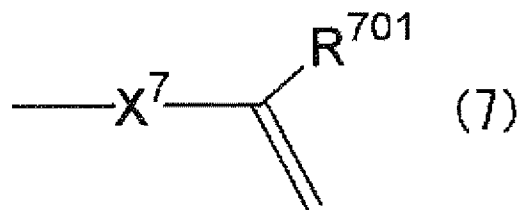
[0027] 上記ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子が挙げられる。

上記炭素原子数 1 ~ 12 のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基、アミル基、ヘキシル基、オクチル基、デシル基、2-エチルヘキシル基、ドデシル基などが挙げられる。

[0028] 上記式 (4) ~ (6) における上記芳香族基としては、例えば、フェニル基、ビフェニリル基、ピリジル基、ピリミジル基などが挙げられる。

上記重合性官能基は、ラジカル重合性、カチオン重合性、アニオン重合性、付加重合性および縮合重合性の官能基のいずれであってもよい。これらのうちで、ラジカル重合性の官能基は、重合体の製造が容易であるため好ましい。具体的には、上記重合性官能基を有する置換基としては、下記一般式 (7) で表される置換基が好ましい。

[0029] [化7]

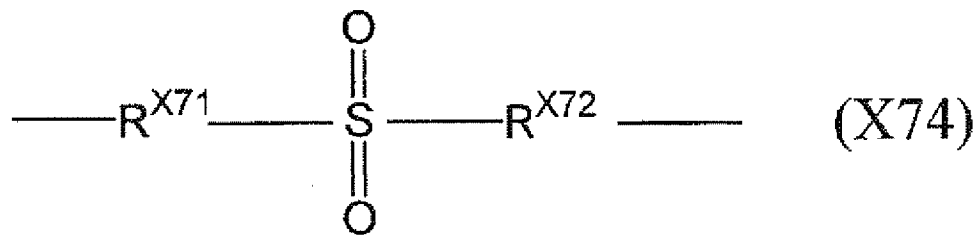
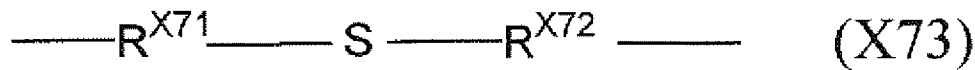
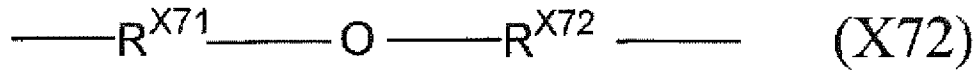


[0030] 上記式 (7) 中、R⁷⁰¹は、水素原子または炭素原子数 1 ~ 12 のアルキル基を表す。

上記炭素原子数 1 ~ 12 のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基、アミル基、ヘキシル基、オクチル基、デシル基、2-エチルヘキシル基、ドデシル基などが挙げられる。これらのうち、キャリア輸送能に優れることから、R⁷⁰¹は水素原子であることが好ましい。

[0031] 上記式 (7) 中、X⁷は、単結合または下記式 (X71) ~ (X74) のいずれかで表される基を表す。

[0032] [化8]



[0033] 上記式中、 R^{X71} は、単結合または炭素原子数1～12のアルキレン基を表し、 R^{X72} は、単結合、炭素原子数1～12のアルキレン基またはフェニレン基を表す。

上記炭素原子数1～12のアルキレン基としては、例えば、メチレン基、エチレン基、トリメチレン基、テトラエチレン基、オクタエチレン基、デカエチレン基、ドデカエチレン基などが挙げられる。

[0034] なお、上記式(X71)～(X74)において、 R^{X71} は芳香族基に結合し、 R^{X72} はビニル基に結合することが好ましい。このような X^7 によれば、低い駆動電圧とともに高発光効率および高輝度を有する有機EL素子が得られる。これらのうちで、 X^7 は、単結合または炭素原子数1～20のアルキレン基であることが好ましく、単結合であることがより好ましい。このように X^7 にヘテロ原子が含まれていないと、より高い発光効率を有する有機EL素子が得られる。

[0035] また、上記式(1)～(6)中 R^1 ～ R^6 は、重合性官能基を有する置換基以外の置換基を有していてもよい。このような置換基としては、シアノ基、アミノ基、炭素原子数1～12のアルキル基または炭素原子数1～12のアル

コキシ基などが挙げられる。

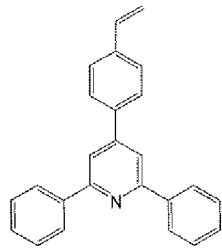
[0036] 上記炭素原子数 1 ~ 12 のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、アミル基、ヘキシル基、オクチル基、デシル基、2-エチルヘキシル基、ドデシル基などが挙げられる。

[0037] 上記炭素原子数 1 ~ 12 のアルコキシ基としては、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基、イソブトキシ基、*t*-ブトキシ基、ヘキシルオキシ基、2-エチルヘキシルオキシ基、デシルオキシ基、ドデシルオキシ基などが挙げられる。

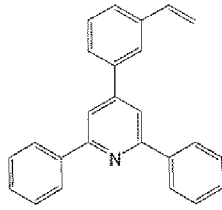
[0038] 上記電荷輸送性の重合性化合物としては、溶解性およびキャリア輸送能に優れることから、およびその合成が容易であるため該重合性化合物の構造が対称性を有することから、具体的には下記式 (1-1) ~ (3-7) で表される重合性化合物が好ましい。なお、下記式中、「Me」は、メチル基を表し、「*t*Bu」は、*t*-ブチル基を表す。

[0039]

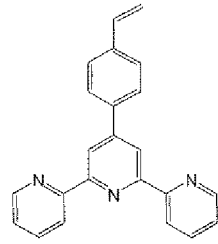
[化9]



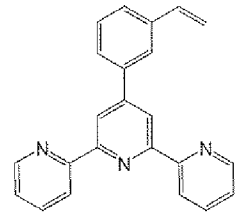
... (1-1)



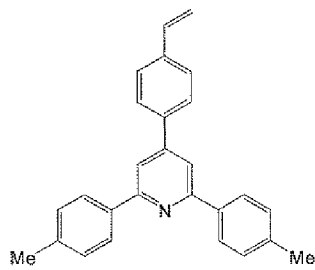
... (1-2)



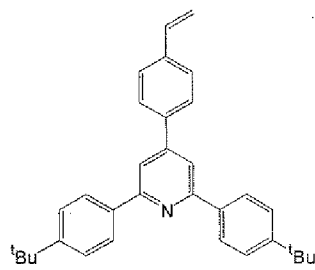
... (1-3)



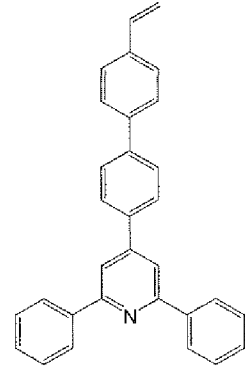
... (1-4)



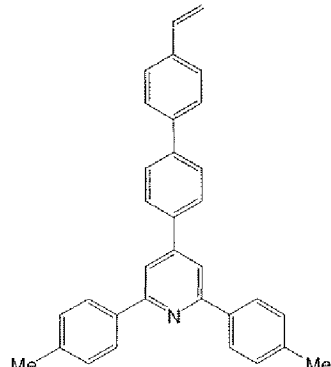
... (1-5)



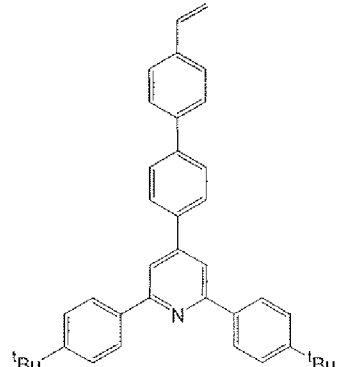
... (1-6)



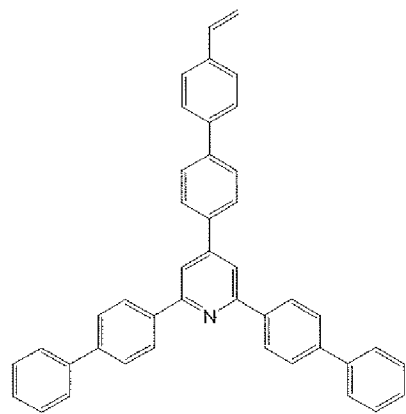
... (1-7)



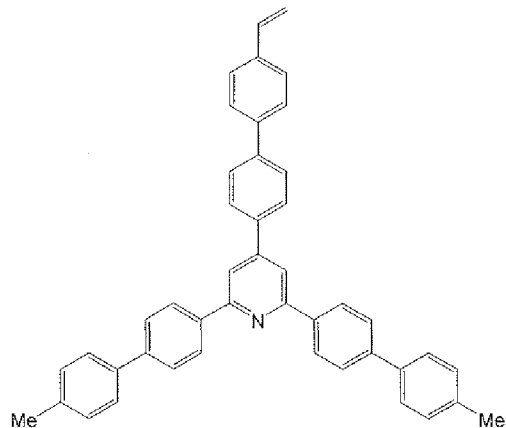
... (1-8)



... (1-9)



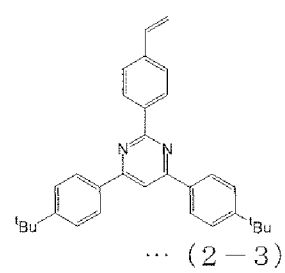
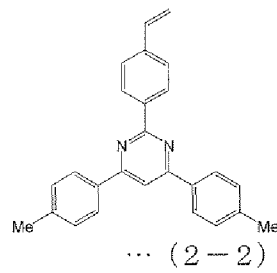
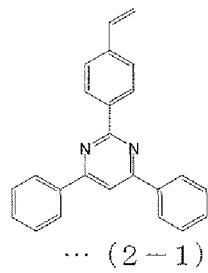
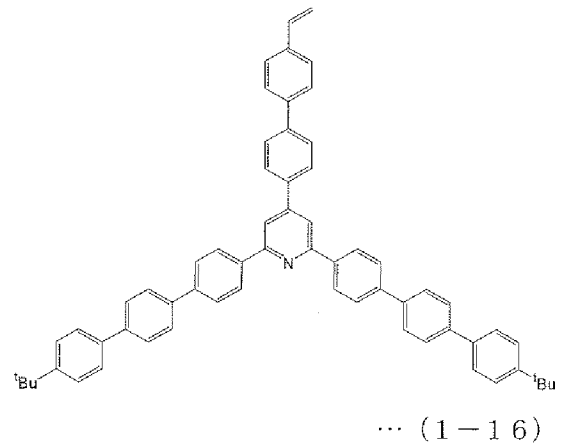
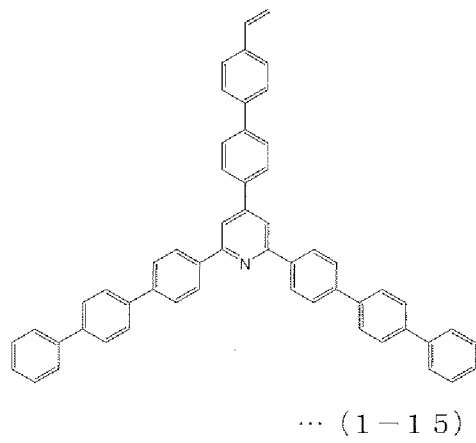
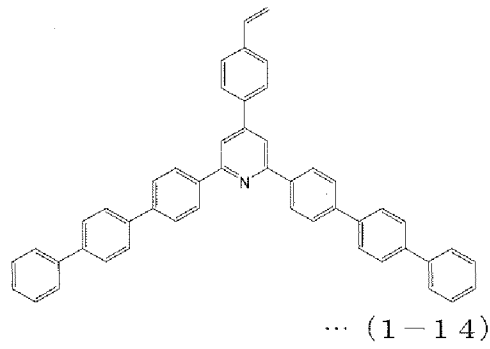
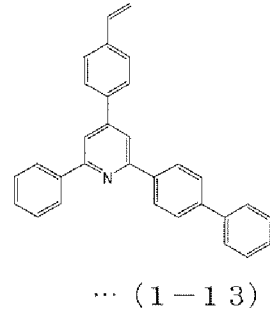
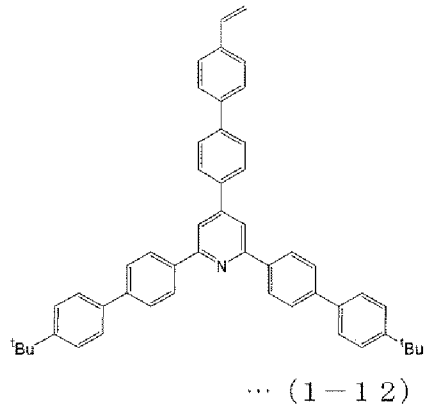
... (1-10)



... (1-11)

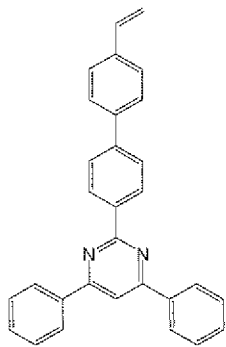
[0040]

[化10]

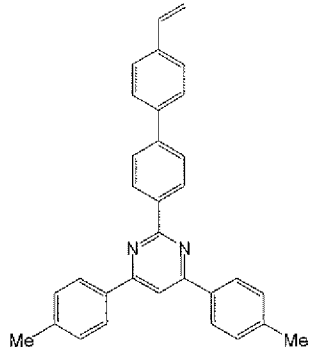


[0041]

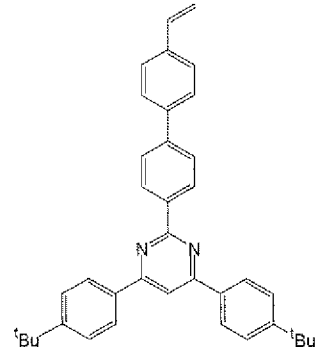
[化11]



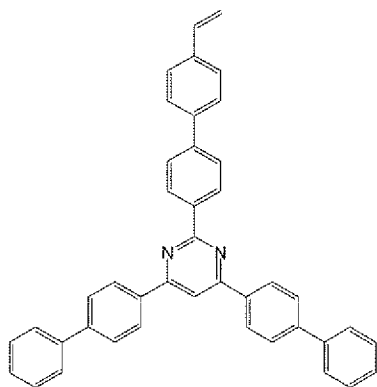
... (2-4)



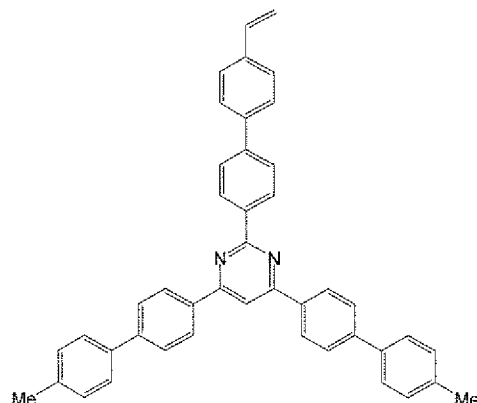
... (2-5)



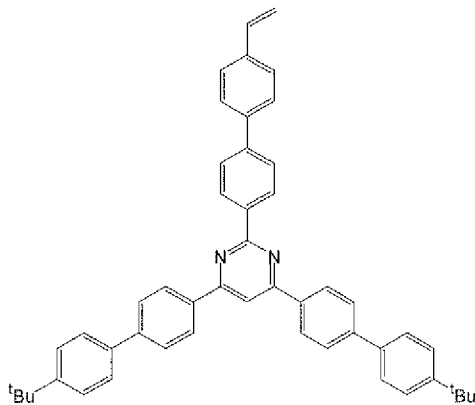
... (2-6)



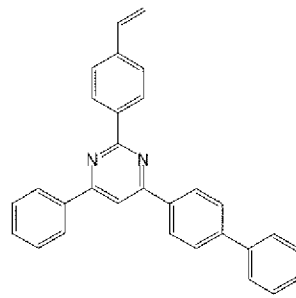
... (2-7)



... (2-8)



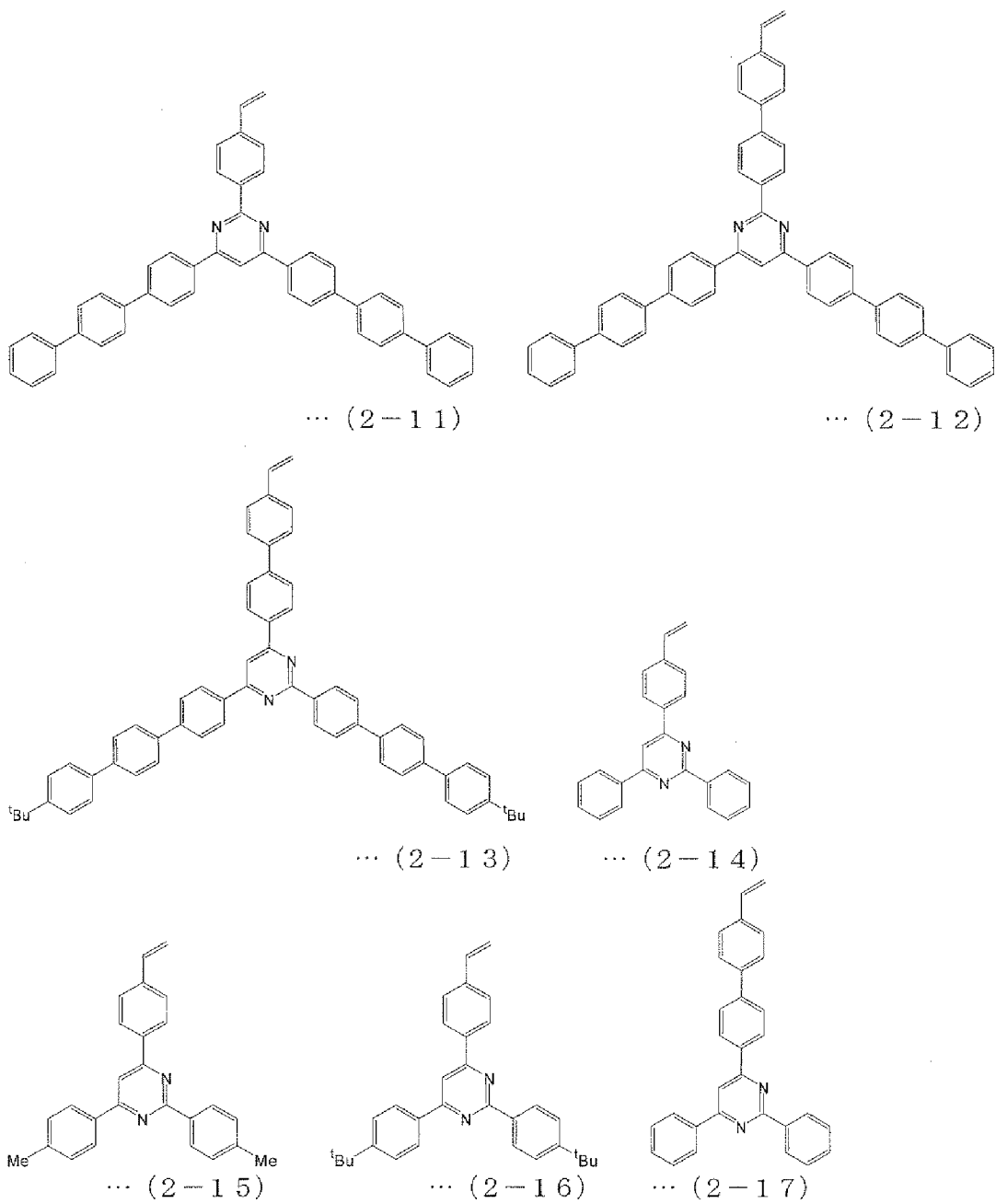
... (2-9)



... (2-10)

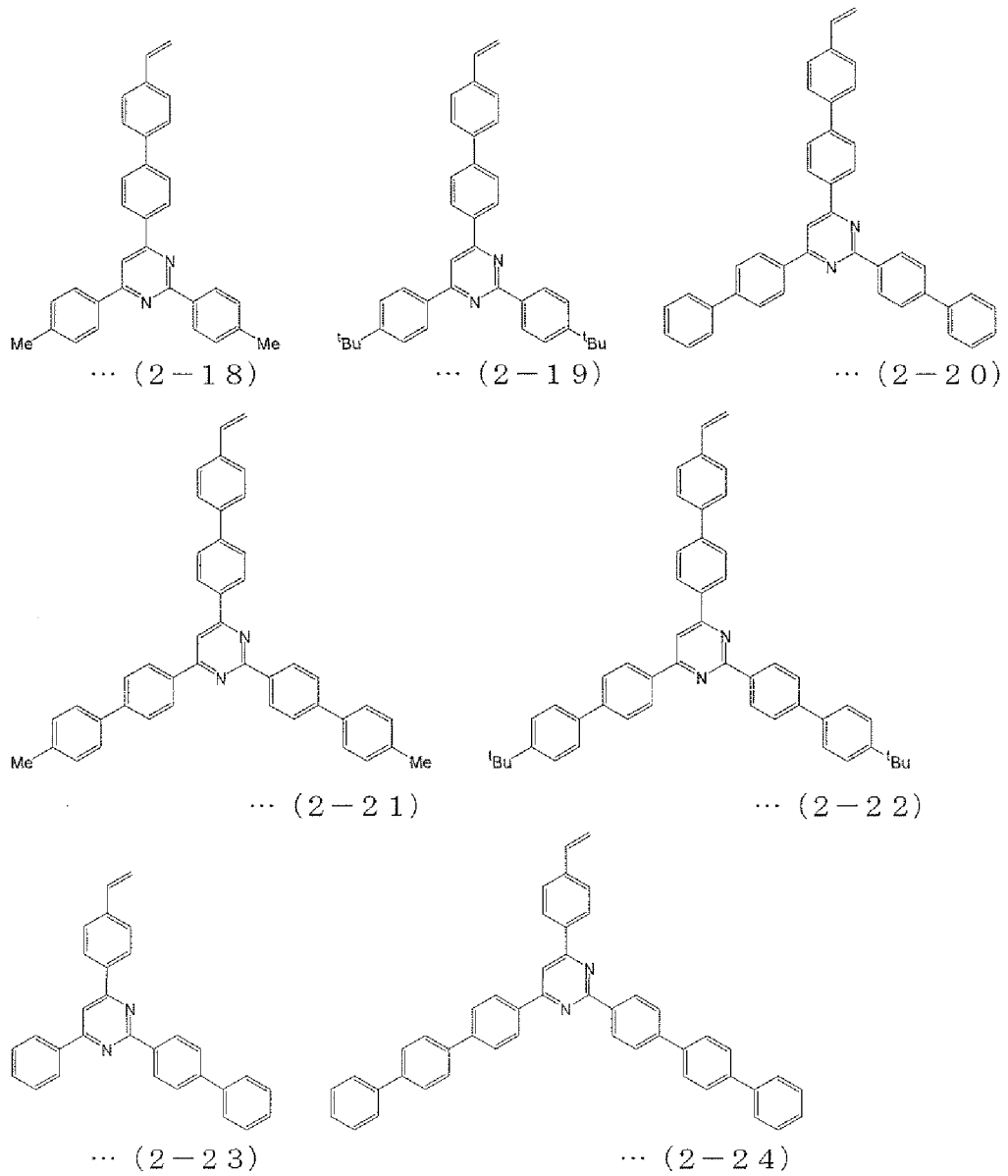
[0042]

[化12]



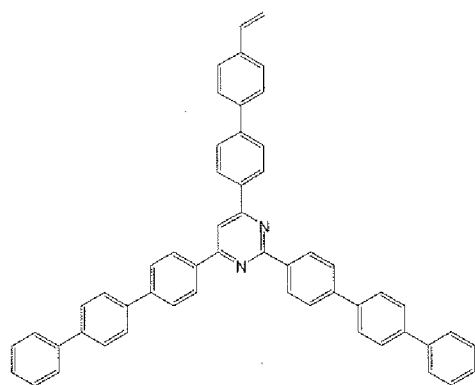
[0043]

[化13]

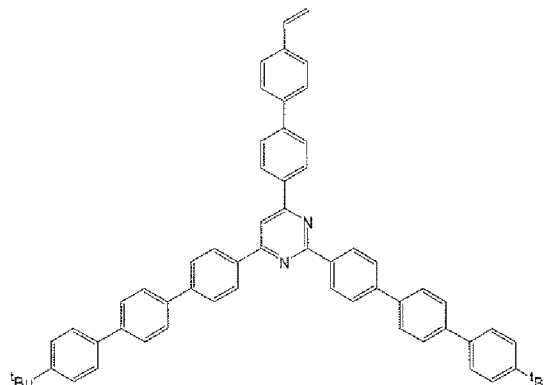


[0044]

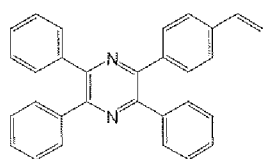
[化14]



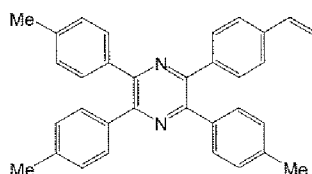
... (2-25)



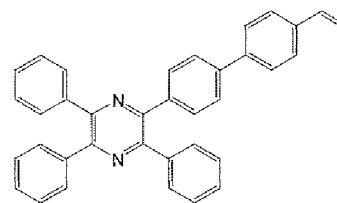
... (2-26)



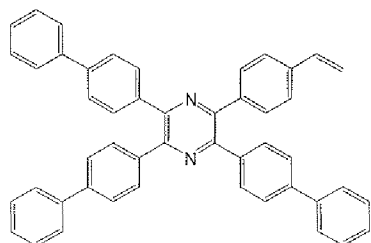
... (3-1)



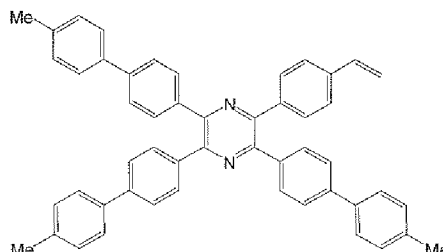
... (3-2)



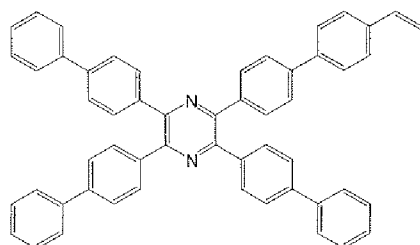
... (3-3)



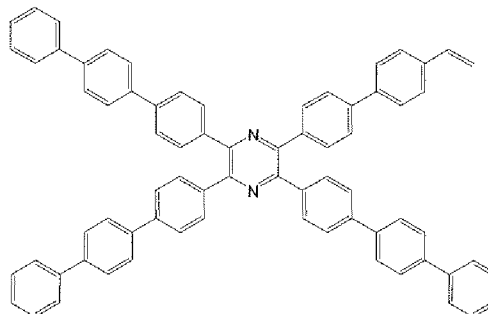
... (3-4)



... (3-5)



... (3-6)



... (3-7)

[0045] 上記式 (1) ~ (3)、好ましくは上記式 (4) ~ (6)、より好ましくは上記式 (1-1) ~ (3-7) のいずれかで表される電荷輸送性の重合性化合物は、1種単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0046] このような電荷輸送性の重合性化合物は、例えば、ルイス酸を用いて、ア

セトフェノン誘導体とブロモベンズアルデヒドとを環化反応させた後、鈴木カップリング法により製造することができる。

[0047] 高分子化合物（I）の製造は、上述した重合性化合物を用いて、ラジカル重合、カチオン重合、アニオン重合および付加重合のいずれで行ってもよいが、ラジカル重合で行うことが好ましい。

[0048] なお、高分子化合物（I）を製造する際には、さらに、他の重合性化合物を用いてもよい。他の重合性化合物としては、例えば、アクリル酸メチル、メタクリル酸メチル等の（メタ）アクリル酸アルキルエステル、スチレンおよびその誘導体などのキャリア輸送性を有さない化合物が挙げられるが、何らこれらに制限されるものではない。

[0049] 高分子化合物（I）の重量平均分子量は、好ましくは1,000~2,000,000であり、より好ましくは5,000~500,000であることが望ましい。重量平均分子量がこの範囲にあると、高分子化合物（I）が有機溶媒に可溶であり、均一な薄膜を得られるため好ましい。ここで、重量平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）法によって、テトラヒドロフランを溶媒として、40℃で測定される値である。

[0050] 高分子化合物（I）のトルエン、クロロホルムなどの有機溶媒に対する溶解性については、高分子化合物（I）1質量部が、好ましくは有機溶媒0.1~200質量部の量に溶解し、より好ましくは1~50質量部の量に溶解することが望ましい。溶解性がこの範囲であると、塗布法による有機EL素子の作製が容易なため好ましい。

[0051] <実施の形態2>

本発明の高分子化合物（I I）（実施の形態2）は、上記式（1）~（3）から、好ましくは上記式（4）~（6）から、より好ましくは上記式（1-1）~（3-7）から選択される少なくとも1種で表される電荷輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位とともに、発光性の重合性化合物から導かれる構成単位をさらに含む。すなわち、上記式（1）~（3）から、好ましくは上記式（4）~（6）から、より好ましくは上記式（1-1）~（3

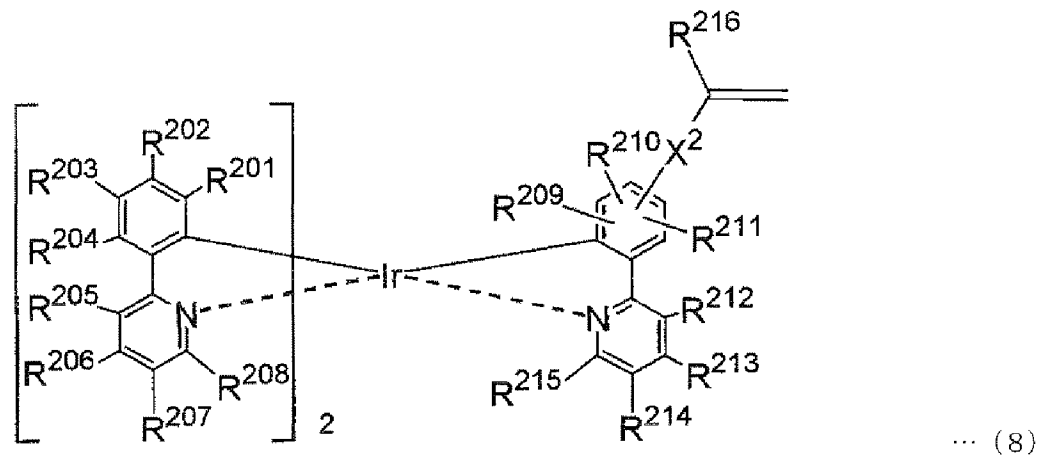
ー 7) から選択される少なくとも 1 種で表される電荷輸送性の重合性化合物と発光性の重合性化合物とを重合して得られる。

[0052] 上記式 (1) ~ (3) から、好ましくは上記式 (4) ~ (6) から、より好ましくは上記式 (1-1) ~ (3-7) から選択される少なくとも 1 種で表される電荷輸送性の重合性化合物については、実施の形態 1 に用いられる電荷輸送性の重合性化合物と同義であり、好ましい理由も同様である。

[0053] 上記発光性の重合性化合物は、燐光発光性を有することが好ましく、重合性官能基を有する置換基を有する遷移金属錯体であることがより好ましく、重合性官能基を有する置換基を有するイリジウム錯体であることがさらに好ましい。

[0054] このようなイリジウム錯体としては、下記一般式 (8) ~ (10) で表される錯体が好適に用いられる。これらの重合性化合物は、重合性の官能基であるビニル基を有する。

[0055] [化15]



[0056] 上記式 (8) 中、 $R^{201} \sim R^{215}$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、炭素原子数 1 ~ 10 のアルキル基、炭素原子数 6 ~ 10 のアリール基、炭素原子数 1 ~ 10 のアルキル基によって置換されていてもよいアミノ基、炭素原子数 1 ~ 10 のアルコキシ基およびシリル基からなる群より選ばれる原子または置換基を表す。

[0057] 上記ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子およびヨウ

素原子が挙げられる。

上記炭素原子数 1 ~ 10 のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、アミル基、ヘキシル基、オクチル基、デシル基などが挙げられる。

[0058] 上記炭素原子数 6 ~ 10 のアリール基としては、例えば、フェニル基、トリル基、キシリル基、メシチル基、ナフチル基などが挙げられる。

上記炭素原子数 1 ~ 10 のアルキル基によって置換されていてもよいアミノ基としては、例えば、アミノ基、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジブチルアミノ基などが挙げられる。

[0059] 上記炭素原子数 1 ~ 10 のアルコキシ基としては、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基、イソブトキシ基、*t*-ブトキシ基、ヘキシルオキシ基、2-エチルヘキシルオキシ基、デシルオキシ基などが挙げられる。

[0060] 上記シリル基としては、例えば、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、*t*-ブチルジメチルシリル基、トリメトキシシリル基などが挙げられる。

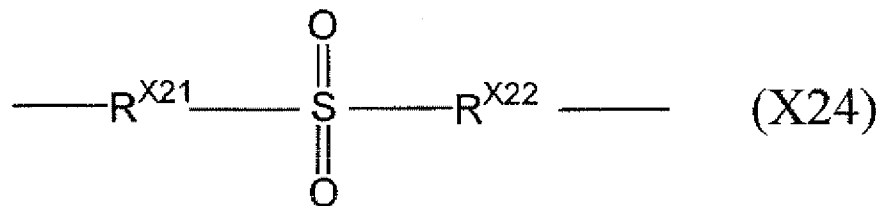
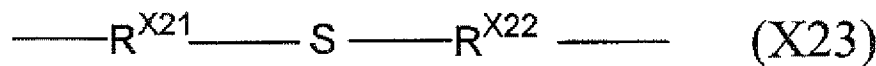
これらのうちで、燐光発光特性に優れることから、 $R^{201} \sim R^{215}$ は、それぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、シアノ基、メチル基、*t*-ブチル基、ジメチルアミノ基、ブトキシ基または 2-エチルヘキシルオキシ基であることが好ましく、 R^{202} が *t*-ブチル基であり、 R^{202} を除く $R^{201} \sim R^{215}$ がそれぞれ水素原子であることがより好ましい。

[0061] $R^{201} \sim R^{204}$ 、 $R^{205} \sim R^{208}$ 、 $R^{209} \sim R^{211}$ および $R^{212} \sim R^{215}$ のうち、環を構成する 2 つの炭素原子を介して隣り合う 2 つの基は、互いに結合して縮合環を形成していてもよい。

[0062] R^{216} は、水素原子または炭素原子数 1 ~ 12 のアルキル基を表す。上記炭素原子数 1 ~ 12 のアルキル基としては、上述したアルキル基が挙げられる。これらのうちで、キャリア輸送能に優れることから、 R^{216} は水素原子であることが好ましい。

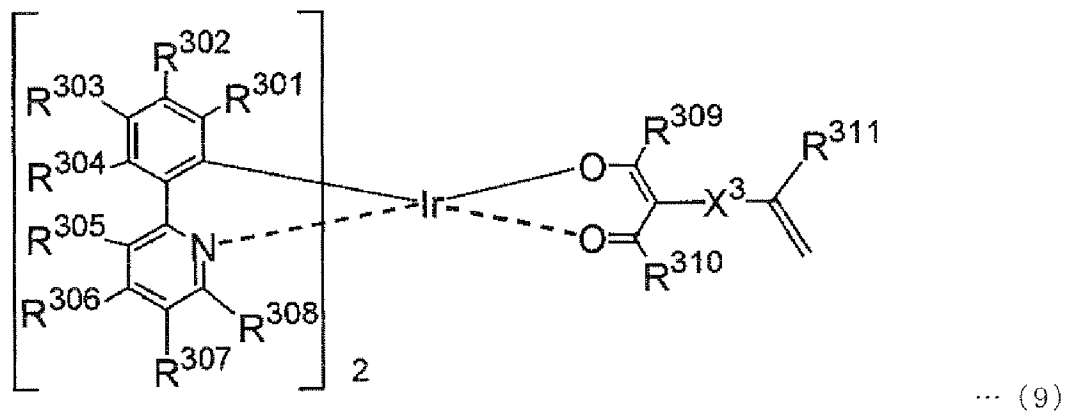
[0063] X^2 は、単結合または下記式 (X21) ~ (X24) のいずれかで表される基を表す。

[0064] [化16]



[0065] 式中、 R^{X21} は、単結合または炭素原子数1~12のアルキレン基を表し、 R^{X22} は、単結合、炭素原子数1~12のアルキレン基またはフェニレン基を表す。なお、上記式(8)において、 R^{X21} はベンゼン環に結合し、 R^{X22} はビニル基に結合することが好ましい。 X^2 にヘテロ原子が含まれていないと、より高い発光効率を有する有機EL素子が得られる。

[0066] [化17]



[0067] 上記式(9)中、 R^{301} ~ R^{308} は、それぞれ独立に、 R^{201} と同様の原子または置換基を表す。 R^{309} ~ R^{310} は、それぞれ独立に、 R^{201} と同様の原子または置換

基を表す（ただし、ハロゲン原子を除く）。

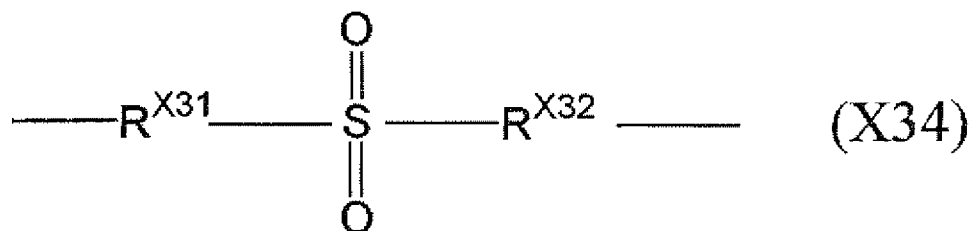
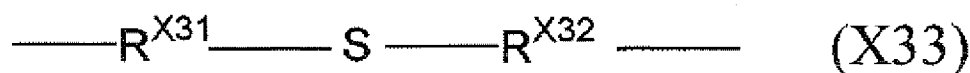
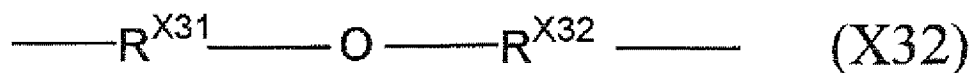
[0068] これらのうちで、燐光発光特性に優れることから、 $R^{301} \sim R^{310}$ は、それぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、シアノ基、メチル基、*t*-ブチル基、ジメチルアミノ基、ブトキシ基、2-エチルヘキシルオキシ基であることが好ましく、 R^{302} が *t*-ブチル基であり、 R^{302} を除く $R^{301} \sim R^{310}$ が水素原子であることがより好ましい。

[0069] $R^{301} \sim R^{304}$ 、 $R^{305} \sim R^{308}$ のうち、環を構成する2つの炭素原子を介して隣り合う2つの基は、互いに結合して縮合環を形成していてもよい。

R^{311} は、 R^{216} と同様に、水素原子または炭素原子数1～12のアルキル基を表す。上記炭素原子数1～12のアルキル基としては、上述したアルキル基が挙げられる。これらのうちで、キャリア輸送能に優れることから、 R^{311} は水素原子であることが好ましい。

[0070] X^3 は、単結合または下記式 (X31)～(X34) のいずれかで表される基を表す。

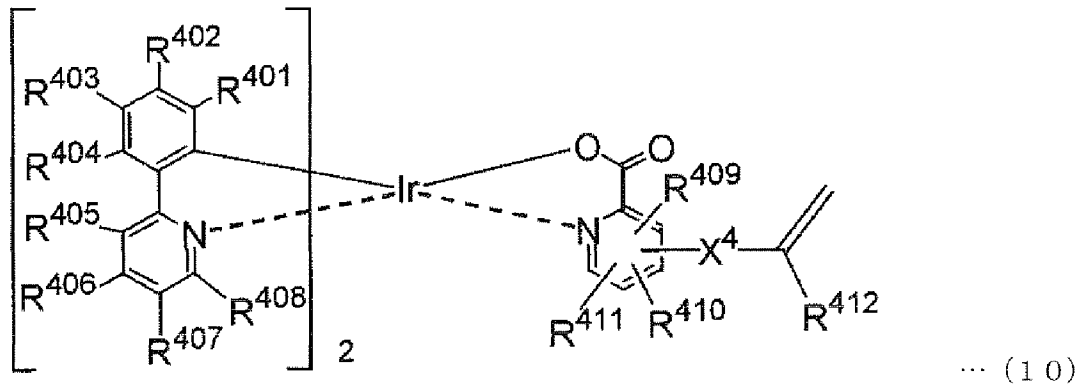
[0071] [化18]



[0072] 式中、 R^{X31} は、単結合または炭素原子数1～12のアルキレン基を表し、 R^{X32} は、単結合、炭素原子数1～12のアルキレン基またはフェニレン基を表す

。X³の好ましい態様および理由はX²の場合と同様である。

[0073] [化19]



[0074] 上記式(10)中、R⁴⁰¹~R⁴¹¹は、それぞれ独立に、R²⁰¹と同様の原子または置換基を表す。これらのうちで、燐光発光特性に優れることから、R⁴⁰¹~R⁴¹¹が、それぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、シアノ基、メチル基、*t*-ブチル基、ジメチルアミノ基、ブトキシ基、2-エチルヘキシルオキシ基であることが好ましく、R⁴⁰²が*t*-ブチル基であり、R⁴⁰²を除くR⁴⁰¹~R⁴¹¹が水素原子であることがより好ましい。

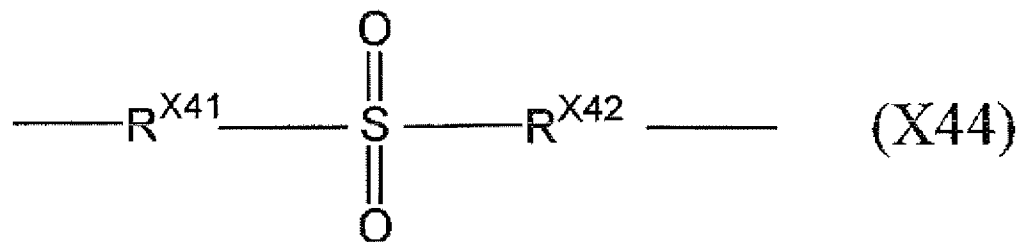
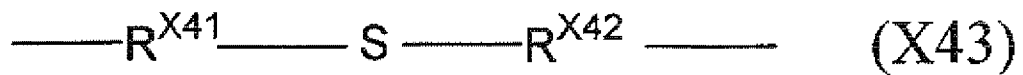
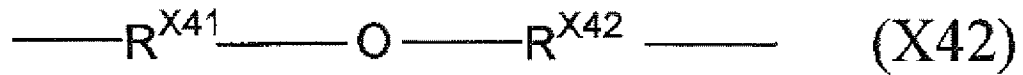
[0075] R⁴⁰¹~R⁴⁰⁴、R⁴⁰⁵~R⁴⁰⁸、R⁴⁰⁹~R⁴¹¹のうち、環を構成する2つの炭素原子を介して隣り合う2つの基は、互いに結合して縮合環を形成していてもよい。

R⁴¹²は、R²¹⁶と同様の原子または置換基を表し、好ましい態様およびその理由もR²¹⁶の場合と同様である。

[0076] X⁴は、単結合または下記式(X41)~(X44)のいずれかで表される基を表す。

[0077]

[化20]



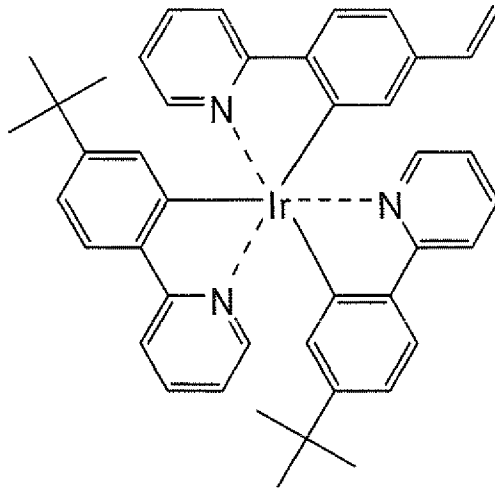
[0078] 式中、 R^{X41} は、単結合または炭素原子数1～12のアルキレン基を表し、 R^{X42} は、単結合、炭素原子数1～12のアルキレン基またはフェニレン基を表す。 X^4 の好ましい態様および理由は X^2 の場合と同様である。

[0079] 本発明に用いられる重合性燐光発光性化合物としては、例えば、特開2003-119179号公報、特開2003-113246号公報、特開2003-206320号公報、特開2003-147021号公報、特開2003-171391号公報、特開2004-346312号公報、特開2006-008996号公報、特開2007-023269号公報、特開2007-084612号公報等に記載の化合物が挙げられるが、何らこれらに限定されない。

[0080] 上記重合性燐光発光性化合物としては、より具体的には下記の化合物が好ましい。

[0081]

[化21]



[0082] 上記重合性燐光発光性化合物は、1種単独で用いても、2種以上を組み合わせて用いてもよい。

このような燐光発光性の重合性化合物は、例えば、塩化イリジウムとフェニルピリジン誘導体とを反応させ、イリジウムの2核錯体とした後、重合性官能基を有する配位子（上記式（8）～（10）中Irの右側に配位している配位子）を反応させることにより製造できる。なお、高分子化合物（I I）を製造する際にさらに用いてもよい他の重合性化合物は、実施の形態1に記載したものと同様である。

[0083] 高分子化合物（I I）の製造は、上述した重合性化合物を用いて、ラジカル重合、カチオン重合、アニオン重合および付加重合のいずれで行ってもよいが、好ましくはラジカル重合で行うことが望ましい。

[0084] 高分子化合物（I I）の重量平均分子量は、実施の形態1と同様である。高分子化合物（I I）の有機溶媒に対する溶解性は、実施の形態1と同様である。

また、高分子化合物（I I）において、燐光発光性の重合性化合物から導かれる構成単位数を m とし、電荷輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位数を n としたとき（ m 、 n は1以上の整数を示す）、全構成単位数に対する燐光発光性の重合性化合物から導かれる構成単位数の割合、すなわち $m/(m+n)$ の値は、好ましくは0.001～0.5の範囲にあり、より好ま

しくは0.001~0.2の範囲にあることが望ましい。 $m/(m+n)$ の値がこの範囲にあると、キャリア移動度が高く、濃度消光の影響が小さい、高い発光効率の有機EL素子が得られる。上記のような高分子化合物における各構成単位の割合は、ICP元素分析および ^{13}C -NMR測定によって見積もられる。

[0085] なお、上記電荷輸送性の重合性化合物および上記燐光発光性の重合性化合物の比率を上記範囲内で適宜調整して重合すれば、所望の構造を有する高分子化合物(II)が得られる。また、高分子化合物(II)は、ランダム共重合体、ブロック共重合体、および交互共重合体のいずれであってもよい。

[0086] <実施の形態3>

本発明の高分子化合物(III)(実施の形態3)は、上記式(1)~(3)から、好ましくは上記式(4)~(6)から、より好ましくは上記式(1-1)~(3-7)から選択される少なくとも1種で表される電荷輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位と発光性の重合性化合物から導かれる構成単位とともに、正孔輸送性の重合性化合物から導かれる単位をさらに含み、上記式(1)~(3)から、好ましくは上記式(4)~(6)から、より好ましくは上記式(1-1)~(3-7)から選択される少なくとも1種で表される電荷輸送性の重合性化合物と発光性の重合性化合物と正孔輸送性の重合性化合物とを重合して得られる。

[0087] 上記式(1)~(3)から、好ましくは上記式(4)~(6)から、より好ましくは上記式(1-1)~(3-7)から選択される少なくとも1種で表される電荷輸送性の重合性化合物と発光性の重合性化合物とについては、実施の形態1に用いられる電荷輸送性の重合性化合物および実施の形態2に用いられる発光性の重合性化合物と同義であり、好ましい態様およびその理由についても同様である。

[0088] 上記正孔輸送性の重合性化合物としては、重合性官能基を有する置換基を含む、カルバゾール誘導体またはトリアリールアミン誘導体が好適である。

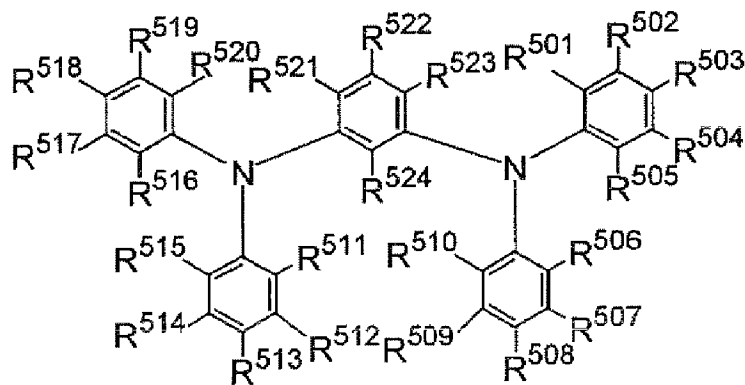
このようなカルバゾール誘導体およびトリアリールアミン誘導体としては

、重合性官能基を有する置換基を含む、N, N' -ジフェニル-N, N' - (3-メチルフェニル) -1, 1' -ビフェニル-4, 4' ジアミン (TPD)、N, N, N', N' -テトラキス (3-メチルフェニル) -1, 1' - (3, 3' -ジメチル) ビフェニル-4, 4' ジアミン (HMTPD)、4, 4', 4'' -トリス (3-メチルフェニルフェニルアミノ) トリフェニルアミン (m-MTDATA)、4, 4' -ビスカルバゾリルビフェニル (CBP)、4, 4' -ビスカルバゾリル-2, 2' -ジメチルビフェニル (CDBP)、4, 4', 4'' -トリス (カルバゾイル-9-イル) トリフェニルアミン (TCTA) などが挙げられる。

[0089] 上記正孔輸送性の重合性化合物は、1種単独で用いても、2種以上を組み合わせて用いてもよい。

また、下記一般式 (11) または (12) で表される正孔輸送性の重合性化合物も、キャリア輸送能および光物性に優れることから本発明に好適である。

[0090] [化22]



… (11)

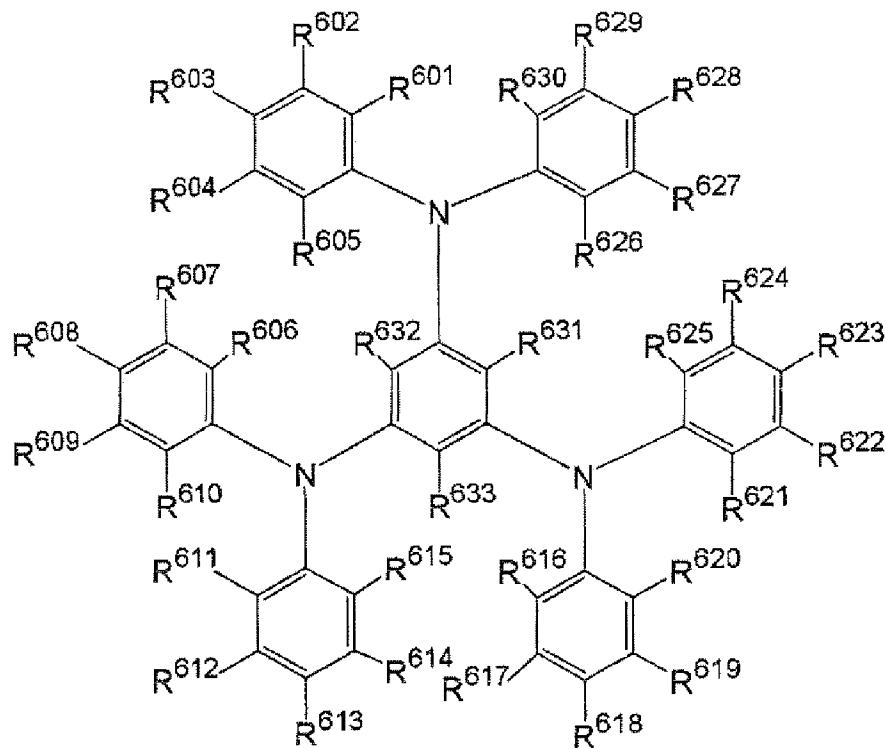
[0091] 上記式 (11) 中、R⁵⁰¹~R⁵²⁴のうち少なくとも1つは重合性官能基を有する置換基を表し、該重合性官能基を有する置換基ではないR⁵⁰¹~R⁵²⁴は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、炭素原子数1~10のアルキル基、炭素原子数6~10のアリール基、炭素原子数1~10のアルキル基によって置換されていてもよいアミノ基、炭素原子数1~10のアルコ

キシ基、カルバゾール基およびシリル基からなる群より選ばれる原子または置換基を表す。

[0092] 上記原子または置換基の具体例としては、上述したハロゲン原子の具体例または炭素原子数 1～10 のアルキル基、炭素原子数 6～10 のアリール基、炭素原子数 1～10 のアルキル基、炭素原子数 1～10 のアルコキシ基の具体例と同様である。上記カルバゾール基は、メチル基、エチル基、*t*-ブチル基、メトキシ基などの置換基を有していてもよい。

[0093] $R^{501} \sim R^{505}$ 、 $R^{506} \sim R^{510}$ 、 $R^{511} \sim R^{515}$ 、 $R^{516} \sim R^{520}$ および $R^{521} \sim R^{523}$ のうち、環を構成する 2 つの炭素原子を介して隣り合う 2 つの基は、互いに結合して縮合環を形成してもよい。

[0094] [化23]



… (12)

[0095] 上記式 (12) 中、 $R^{601} \sim R^{633}$ のうち少なくとも 1 つは重合性官能基を有する置換基を表し、該重合性官能基を有する置換基ではない $R^{601} \sim R^{633}$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、炭素原子数 1～10 のアルキル基、炭素原子数 6～10 のアリール基、炭素原子数 1～10 のアルキ

ル基によって置換されていてもよいアミノ基、炭素原子数 1～10 のアルコキシ基、およびシリル基からなる群より選ばれる原子または置換基を表す。

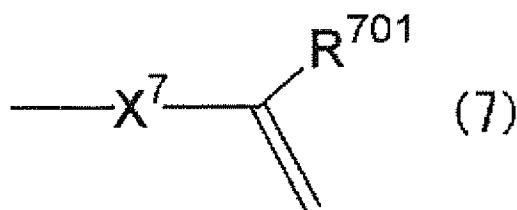
[0096] 上記原子または置換基の具体例としては、上述したハロゲン原子の具体例または炭素原子数 1～10 のアルキル基、炭素原子数 6～10 のアリール基、炭素原子数 1～10 のアルキル基、炭素原子数 1～10 のアルコキシ基の具体例と同様である。

[0097] $R^{601} \sim R^{605}$ 、 $R^{606} \sim R^{610}$ 、 $R^{611} \sim R^{615}$ 、 $R^{616} \sim R^{620}$ 、 $R^{621} \sim R^{625}$ 、 $R^{626} \sim R^{630}$ のうち、環を構成する 2 つの炭素原子を介して隣り合う 2 つの基は、互いに結合して縮合環を形成していてもよい。

[0098] これらのうちで、上記式 (11) で表される重合性化合物では、 $R^{501} \sim R^{505}$ 、 $R^{506} \sim R^{510}$ 、 $R^{511} \sim R^{515}$ 、 $R^{516} \sim R^{520}$ のそれぞれにおいて、少なくとも一つは水素原子以外の上記原子または置換基であることが好ましい。なお、この場合、重合性官能基あるいは上記原子または置換基ではない $R^{501} \sim R^{524}$ は、水素原子である。また、上記式 (12) で表される重合性化合物では、 $R^{601} \sim R^{605}$ 、 $R^{606} \sim R^{610}$ 、 $R^{611} \sim R^{615}$ 、 $R^{616} \sim R^{620}$ 、 $R^{621} \sim R^{625}$ 、 $R^{626} \sim R^{630}$ のそれぞれにおいて、少なくとも一つは水素原子以外の上記原子または置換基であることが好ましい。なお、この場合、重合性官能基あるいは上記原子または置換基ではない $R^{601} \sim R^{633}$ は、水素原子である。

[0099] 上記重合性官能基を有する置換基としては、下記一般式 (7) で表される置換基が好ましい。

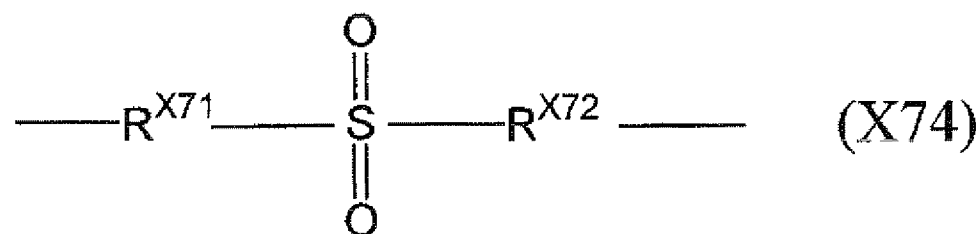
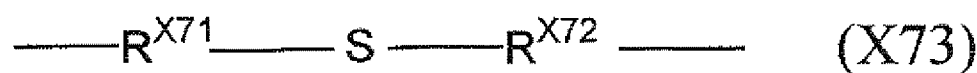
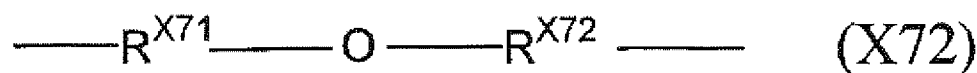
[0100] [化24]



[0101] R^{701} は、水素原子または炭素原子数 1～12 のアルキル基を表す。 R^{701} の好ましい範囲およびその理由は、実施の形態 1 で述べた電荷輸送性の重合性化合物の場合と同様である。

[0102] 上記式中（7）中、 X^7 は、単結合または下記式（X71）～（X74）のいずれかで表される基を表す。 X^7 の好ましい範囲および理由は、実施の形態1で述べた電荷輸送性の重合性化合物の場合と同様である。

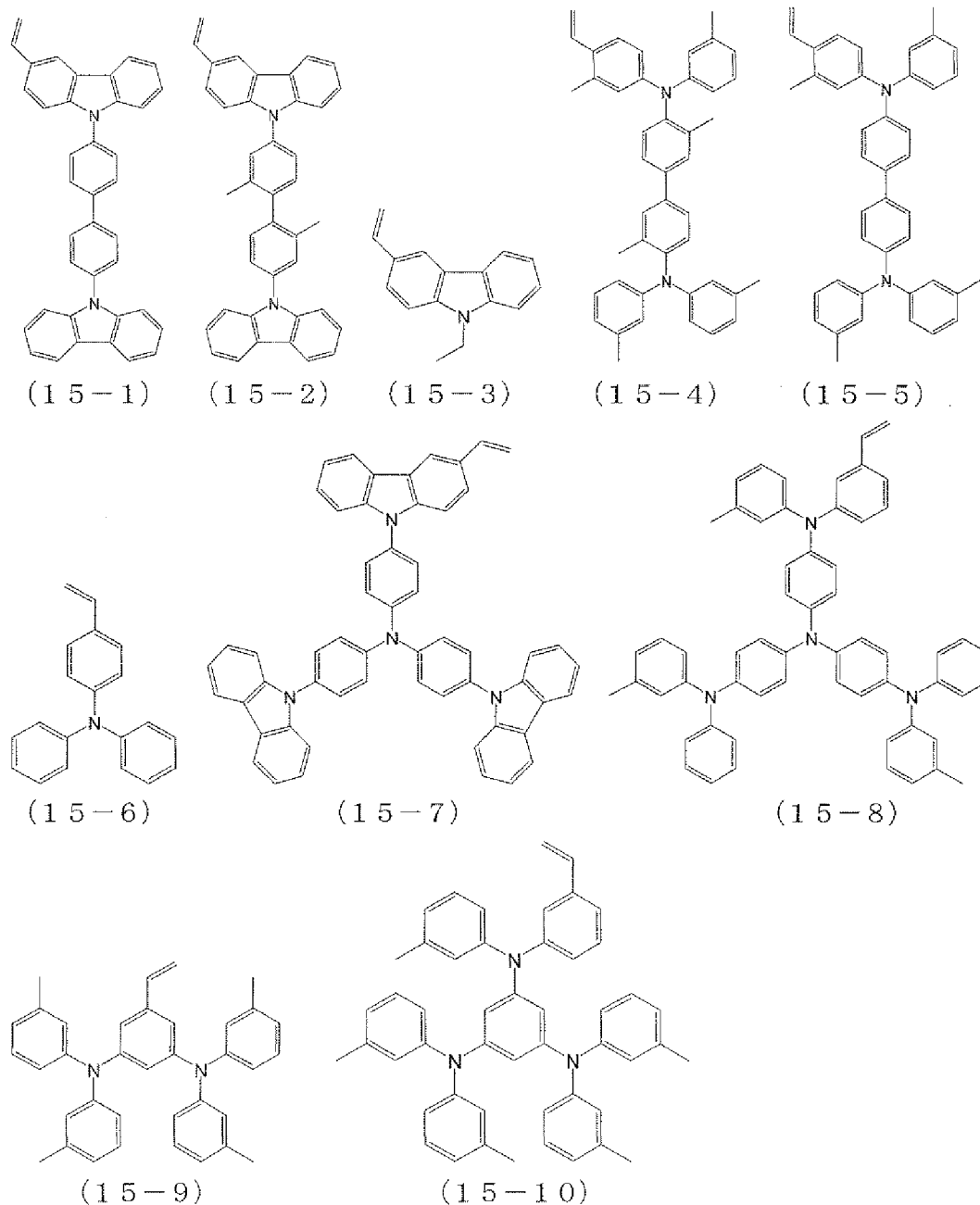
[0103] [化25]



[0104] 上記正孔輸送性の重合性化合物としては、より具体的には、下記式（15-1）～（15-10）に示す化合物が挙げられる。

[0105]

[化26]



[0106] 上記正孔輸送性の重合性化合物は、1種単独で用いても、2種以上を組み合わせて用いてもよい。

上記式(11)で表される化合物は、例えば、*m*-フェニレンジアミン誘導体およびハロゲン化アリール、またはジアリールアミンおよび*m*-ジブロモベンゼン誘導体のパラジウム触媒置換反応によって製造できる。置換反応の具体的な方法については、例えば *Tetrahedron Letter*

s、1998年、39巻、2367頁などに記載されている。また、上記式(12)で表される化合物は、例えば、1,3,5-トリアミノベンゼンおよびハロゲン化アリール、またはジアリールアミンおよび1,3,5-トリハロゲン化ベンゼンのパラジウム触媒置換反応によって製造できる。置換反応の具体的な方法については、例えばTetrahedron Letters、1998年、39巻、2367頁などに記載されている。

[0107] なお、高分子化合物(III)を製造する際に、さらに用いてもよい他の重合性化合物についても、実施の形態1のさらに用いてもよい他の重合性化合物と同様である。

高分子化合物(III)の製造は、上述した重合性化合物を用いて、ラジカル重合、カチオン重合、アニオン重合および付加重合のいずれで行ってもよいが、ラジカル重合で行うことが好ましい。

[0108] 高分子化合物(III)の重量平均分子量は、実施の形態1の重量平均分子量と同様である。また、高分子化合物(III)の有機溶媒に対する溶解性は、実施の形態1の場合と同様である。

[0109] また、高分子化合物(III)において、燐光発光性の重合性化合物から導かれる構成単位数を m とし、キャリア輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位数を n としたとき(m 、 n は1以上の整数を示す)、全構成単位数に対する燐光発光性の重合性化合物から導かれる構成単位数の割合、すなわち $m/(m+n)$ の値は、好ましくは0.001~0.5の範囲にあり、より好ましくは0.001~0.2の範囲にある。 $m/(m+n)$ の値がこの範囲にあると、キャリア移動度が高く、濃度消光の影響が小さく、発光効率が高い有機EL素子が得られる。

[0110] また、高分子化合物(III)において、正孔輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位数を x 、電荷輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位数を y とすると(x 、 y は1以上の整数を示す)、上記 n との間に、 $n=x+y$ の関係が成り立つ。キャリア輸送性化合物から導かれる構成単位数に対する、正孔輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位数の割合 x/n 、お

よび電荷輸送性の重合性化合物から導かれる構造単位数の割合 y/n の最適値は、各構造単位の電荷輸送能、濃度などによって決まる。この高分子化合物（I I I）のみで有機EL素子の発光層を形成する場合、 x/n および y/n の値は、それぞれ、好ましくは0.05~0.95の範囲にあり、より好ましくは0.20~0.80の範囲にあることが望ましい。ここで、 $x/n + y/n = 1$ が成り立つ。また、上記のような高分子化合物における各構成単位の割合は、ICP元素分析および ^{13}C -NMR測定によって見積もられる。

[0111] なお、上記電荷輸送性の重合性化合物、上記燐光発光性の重合性化合物および上記正孔輸送性の重合性化合物の比率を上記範囲内で適宜調整して重合すれば、所望の構造を有する高分子化合物（I I I）が得られる。また、高分子化合物（I I I）は、ランダム共重合体、ブロック共重合体、および交互共重合体のいずれであってもよい。

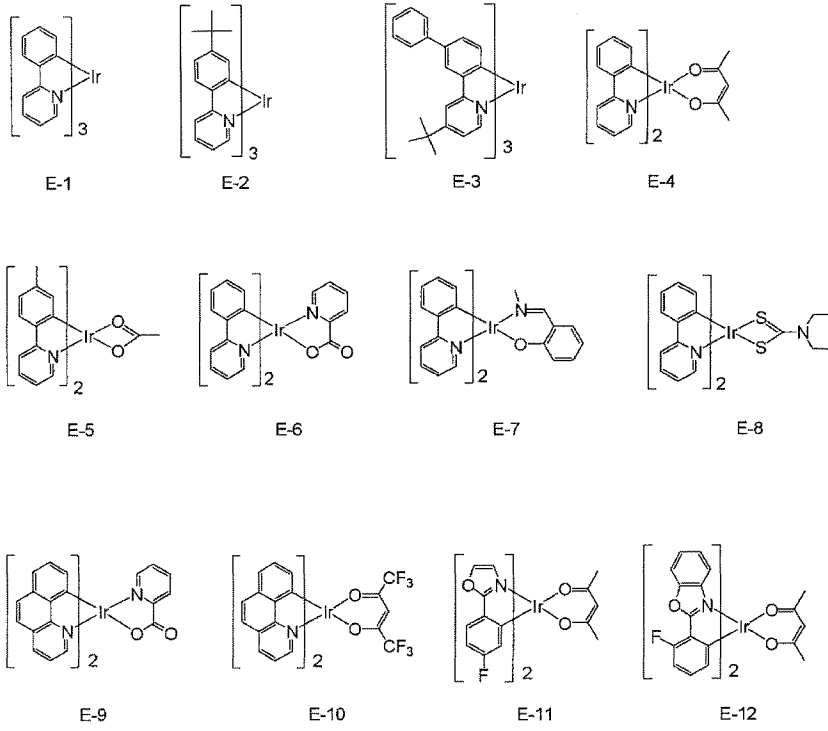
[0112] <実施の形態4>

本発明の有機EL素子（実施の形態4）では、陽極と陰極との間に、上記高分子化合物（I）、発光性の化合物および正孔輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位を有する高分子化合物（I'）を含む発光層が一層備えられている。この場合、発光層は、高分子化合物（I）100質量部に対して、上記発光性の化合物を好ましくは0.1~50質量部、より好ましくは0.5~30質量部の量で、高分子化合物（I'）を好ましくは10~200質量部、より好ましくは50~150質量部の量で含むことが望ましい。このように、高分子化合物（I）、発光性の化合物および正孔輸送性の高分子化合物（I'）から発光層を形成すれば、他の有機材料の層を設けない場合でも、高い発光効率を有する有機EL素子を作製できる。

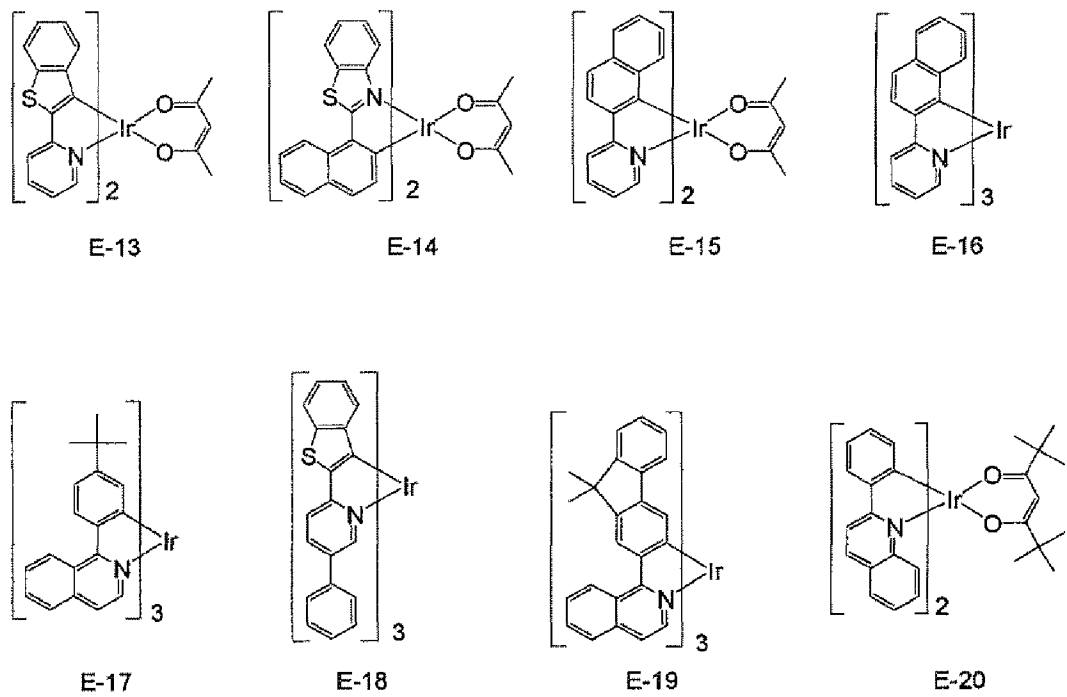
[0113] 上記発光性の化合物としては、燐光発光性の化合物が好ましく、イリジウム錯体がより好ましい。上記イリジウム錯体としては、具体的には、以下のような錯体（E-1）~（E-39）が好適である。

[0114]

[化27]

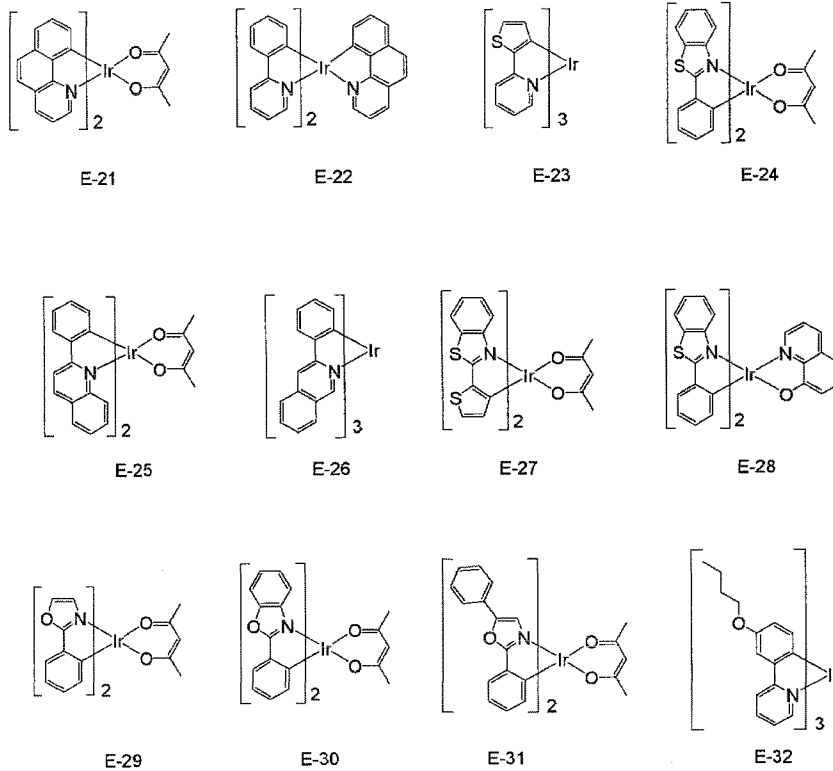


[0115] [化28]

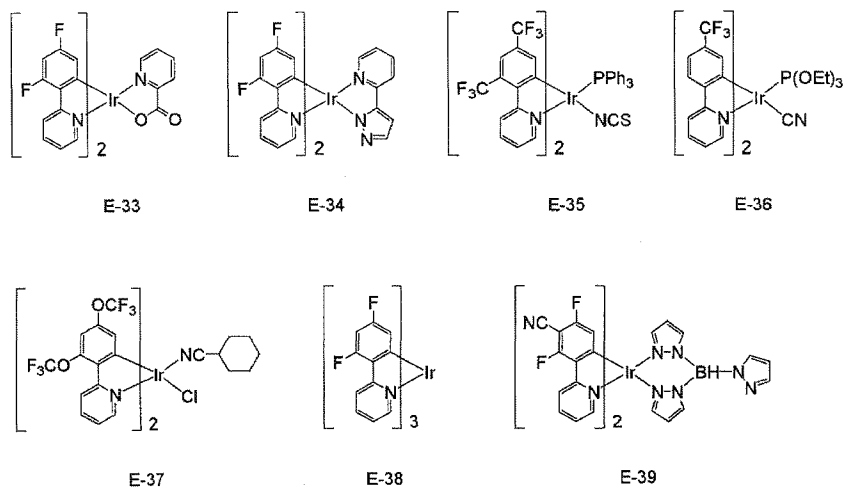


[0116]

[化29]



[0117] [化30]



[0118] 上記発光性の化合物は、1種単独で用いても、2種以上を組み合わせて用いてもよい。

高分子化合物（I'）は、正孔輸送性の重合性化合物を重合して得られる。上記正孔輸送性の重合性化合物については、実施の形態3に用いられる正孔輸送性の重合性化合物と同義であり、好ましい範囲およびその理由について

も同様である。

[0119] 高分子化合物（I'）の製造は、上述した重合性化合物を用いて、ラジカル重合、カチオン重合、アニオン重合および付加重合のいずれで行ってもよいが、好ましくはラジカル重合で行うことが望ましい。

[0120] 高分子化合物（I'）の重量平均分子量は、通常1,000~2,000,000であり、好ましくは5,000~500,000であることが望ましい。重量平均分子量がこの範囲にあると、高分子化合物（I'）が有機溶媒に可溶であり、均一な薄膜を得られるため好ましい。ここで、重量平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）法によって、テトラヒドロフランを溶媒として、40℃で測定される値である。また、高分子化合物（I'）の有機溶媒に対する溶解性は、実施の形態1と同様である。

[0121] 上述した陽極と陰極との間に、高分子化合物（I）、発光性の化合物および高分子化合物（I'）を含む発光層を一層備えて構成される有機EL素子の製造において、該発光層は、基板上に設けられた陽極上に、通常以下のようにして形成される。まず、高分子化合物（I）、発光性の化合物および高分子化合物（I'）を溶解した溶液を調製する。上記溶液の調製に用いる溶媒としては、特に限定されないが、例えば、クロロホルム、塩化メチレン、ジクロロエタン等の塩素系溶媒、テトラヒドロフラン、アニソール等のエーテル系溶媒、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素系溶媒、アセトン、メチルエチルケトン等のケトン系溶媒、酢酸エチル、酢酸ブチル、エチルセルソルブアセテート等のエステル系溶媒などが用いられる。次いで、このように調製した溶液を、スピンコート法、キャスト法、マイクログラビアコート法、グラビアコート法、バーコート法、ロールコート法、ワイアーバーコート法、ディップコート法、スプレーコート法、スクリーン印刷法、フレキソ印刷法、オフセット印刷法、インクジェットプリント法等の湿式成膜法などにより基板上に成膜する。用いる化合物および成膜条件などに依存するが、例えば、スピンコート法やディップコート法の場合には、上記溶液は

、高分子化合物（I）100質量部に対して、発光性の化合物を0.5～30質量部の量で、高分子化合物（I'）10～200質量部の量で、溶媒を好ましくは1000～20000質量部の量で含むことが望ましい。

[0122] このようにして形成された発光層の上に陰極を設ければ、実施の形態4の有機EL素子が得られる。

なお、実施の形態4に用いられる基板としては、上記発光材料の発光波長に対して透明な絶縁性基板が好適であって、具体的には、ガラスのほか、PET（ポリエチレンテレフタレート）、ポリカーボネート等の透明プラスチックなどが用いられる。

[0123] また、実施の形態4に用いられる陽極材料としては、例えば、ITO（酸化インジウムスズ）、酸化錫、酸化亜鉛、ポリチオフェン、ポリピロール、ポリアニリン等の導電性高分子など、公知の透明導電材料が好適に用いられる。この透明導電材料によって形成された電極の表面抵抗は、好ましくは1～50Ω/□（オーム/スクエア）であることが望ましい。陽極の厚さは好ましくは50～300nmであることが望ましい。

[0124] また、実施の形態4に用いられる陰極材料としては、例えば、Li、Na、K、Cs等のアルカリ金属；Mg、Ca、Ba等のアルカリ土類金属；Al；MgAg合金；AlLi、AlCa等のAlとアルカリ金属またはアルカリ土類金属との合金など、公知の陰極材料が好適である。陰極の厚さは、好ましくは10nm～1μm、より好ましくは50～500nmであることが望ましい。アルカリ金属、アルカリ土類金属などの活性の高い金属を使用する場合には、陰極の厚さは、好ましくは0.1～100nm、より好ましくは0.5～50nmであることが望ましい。また、この場合には、上記陰極金属を保護する目的で、この陰極上に、大気に対して安定な金属層が積層される。上記金属層を形成する金属として、例えば、Al、Ag、Au、Pt、Cu、Ni、Crなどが挙げられる。上記金属層の厚さは、好ましくは10nm～1μm、より好ましくは50～500nmであることが望ましい。

[0125] また、上記陽極材料の成膜方法としては、例えば、電子ビーム蒸着法、スパッタリング法、化学反応法、コーティング法などが用いられ、上記陰極材料の成膜方法としては、例えば、抵抗加熱蒸着法、電子ビーム蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法などが用いられる。

[0126] <実施の形態5>

本発明の有機EL素子（実施の形態5）では、陽極と陰極との間に、特定の高分子化合物（I I）および高分子化合物（I'）を含む発光層が一層備えられている。この場合、発光層は、高分子化合物（I I）100質量部に対して、高分子化合物（I'）を好ましくは10~200質量部、より好ましくは50~150質量部の量で含むことが望ましい。このように、電子輸送性および発光性を併せ持つ高分子化合物（1）および正孔輸送性的高分子化合物（I'）から発光層を形成すれば、他の有機材料の層を設けない場合でも、高い発光効率を有する有機EL素子を作製できる。

[0127] 上記発光層は、基板上に設けられた陽極上に、通常以下のようにして形成される。まず、高分子化合物（I I）および上記正孔輸送性の化合物を溶解した溶液を調製する。上記溶液の調製に用いる溶媒については、実施の形態4の場合と同様である。調製した溶液の成膜方法については、実施の形態4の場合と同様である。用いる化合物および成膜条件などに依存するが、例えば、スピコート法やディップコート法の場合には、上記溶液は、高分子化合物（I I）100質量部に対して、高分子化合物（I'）を10~200質量部の量で、溶媒を好ましくは1000~20000質量部の量で含むことが望ましい。

[0128] このようにして形成された発光層の上に陰極を設ければ、実施の形態5の有機EL素子が得られる。また、実施の形態5に用いられる基板、陽極材料、陰極材料、ならびに陽極材料および陰極材料の成膜方法については、実施の形態4の場合と同様である。

[0129] <実施の形態6>

本発明の有機EL素子（実施の形態6）では、陽極と陰極との間に、特定

の高分子化合物（I I I）を含む発光層が一層備えられている。電荷輸送性、燐光発光性および正孔輸送性を併せ持つ高分子化合物（I I I）を用いて発光層を形成する場合は、他の有機材料の層を設けない場合でも、高い発光効率を有する有機EL素子を作製できる。さらに、実施の形態6では、高分子化合物（I I I）のみから発光層を構成できるため、製造工程がより簡略化できる利点もある。

[0130] 上記発光層は、基板上に設けられた陽極上に、通常以下のようにして形成される。まず、高分子化合物（I I I）を溶解した溶液を調製する。上記溶液の調製に用いる溶媒については、実施の形態4の場合と同様である。調製した溶液の成膜方法については、実施の形態4の場合と同様である。用いる化合物および成膜条件などに依存するが、例えば、スピコート法またはディップコート法の場合には、上記溶液は、高分子化合物（I I I）100質量部に対して、好ましくは溶媒を1000～20000質量部の量で含むことが望ましい。このようにして形成された発光層の上に陰極を設ければ、実施の形態6の有機EL素子が得られる。

[0131] また、実施の形態6に用いられる基板、陽極材料、陰極材料、ならびに陽極材料および陰極材料の成膜方法については、実施の形態4の場合と同様である。

<実施の形態7>

本発明に係る有機EL素子は、陽極と陰極との間に、実施の形態4～6で説明したいずれかの発光層とともに、他の有機層を備えて構成される有機EL素子であってもよい（実施の形態7）。

[0132] 他の有機層としては、正孔輸送層、電荷輸送層、正孔ブロック層、バッファ層などが挙げられる。これらの有機層を設けることにより、発光効率をさらに高めることもできる。

本発明に係る有機EL素子（実施の形態7）の構成の一例を図1に示す。図1では、透明基板（1）上に設けた陽極（2）および陰極（6）の間に、正孔輸送層（3）、実施の形態4～6で説明した発光層（4）および電子輸

送層（５）を、この順で設けている。また、実施の形態７では、例えば、陽極（２）と陰極（６）の間に、１）正孔輸送層／上記発光層、２）上記発光層／電子輸送層のいずれかを設けてもよい。

[0133] 上記の各有機層は、バインダとして高分子材料などを混合して、形成してもよい。上記高分子材料としては、例えば、ポリメチルメタクリレート、ポリカーボネート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキサイドなどが挙げられる。

[0134] また、上記正孔輸送層および電子輸送層に用いられる正孔輸送性の化合物および電子輸送性の化合物は、それぞれ単独で各層を形成しても、機能の異なる材料を混合して、各層を形成してもよい。

[0135] 上記正孔輸送層を形成する正孔輸送性の化合物としては、例えば、TPD（N, N' -ジメチル-N, N' -（3-メチルフェニル）-1, 1' -ビフェニル-4, 4' ジアミン）； α -NPD（4, 4' -ビス [N-（1-ナフチル）-N-フェニルアミノ] ビフェニル）；m-MTDATA（4, 4', 4'' -トリス（3-メチルフェニルフェニルアミノ）トリフェニルアミン）等の低分子トリフェニルアミン誘導体；ポリビニルカルバゾール；上記トリフェニルアミン誘導体に重合性官能基を導入して重合した高分子化合物；ポリパラフェニレンビニレン、ポリジアルキルフルオレン等の蛍光発光性高分子化合物などが挙げられる。上記高分子化合物としては、例えば、特開平8-157575号公報に開示されているトリフェニルアミン骨格の高分子化合物などが挙げられる。上記正孔輸送性の化合物は、1種単独でも、2種以上を混合して用いてもよく、異なる正孔輸送性の化合物を積層して用いてもよい。正孔輸送層の厚さは、正孔輸送層の導電率などに依存するが、好ましくは1nm~5 μ m、より好ましくは5nm~1 μ m、特に好ましくは10nm~500nmである。

[0136] 上記電子輸送層を形成する電子輸送性の化合物としては、例えば、Alq3（アルミニウムトリスキノリノレート）等のキノリノール誘導体金属錯体、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ト

リアジン誘導体、トリアリールボラン誘導体等の低分子化合物；上記の低分子化合物に重合性置換基を導入して重合した高分子化合物を挙げることができる。上記高分子化合物としては、例えば、特開平10-1665号公報に開示されているポリPBDなどが挙げられる。上記電子輸送性の化合物は、1種単独でも、2種以上を混合して用いてもよく、異なる電子輸送性の化合物を積層して用いてもよい。電子輸送層の厚さは、電子輸送層の導電率などに依存するが、好ましくは1nm~5 μ m、より好ましくは5nm~1 μ m、特に好ましくは10nm~500nmである。

[0137] また、上記発光層の陰極側に隣接して、正孔が発光層を通過することを抑え、発光層内で正孔と電子とを効率よく再結合させる目的で、正孔ブロック層が設けられていてもよい。上記正孔ブロック層の形成には、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、フェナントロリン誘導体などの公知の材料が用いられる。

[0138] また、陽極と正孔輸送層との間、または陽極と陽極に隣接して積層される有機層との間に、正孔注入において注入障壁を緩和するために、バッファ層が設けられていてもよい。上記バッファ層を形成するためには、銅フタロシアン、ポリエチレンジオキシチオフェンとポリスチレンスルホン酸との混合物（PEDOT:PSS）などの公知の材料が用いられる。

[0139] さらに、陰極と電子輸送層との間、または陰極と陰極に隣接して積層される有機層との間に、電子注入効率を向上するために、厚さ0.1~10nmの絶縁層が設けられていてもよい。上記絶縁層を形成するためには、フッ化リチウム、フッ化ナトリウム、フッ化マグネシウム、酸化マグネシウム、アルミナなどの公知の材料が用いられる。

[0140] 上記の正孔輸送層および電子輸送層の成膜方法としては、例えば、抵抗加熱蒸着法、電子ビーム蒸着法、スパッタリング法等の乾式成膜法のほか、スピコート法、キャスト法、マイクログラビアコート法、グラビアコート法、バーコート法、ロールコート法、ワイアーバーコート法、ディップコート法、スプレーコート法、スクリーン印刷法、フレキソ印刷法、オフセ

ット印刷法、インクジェットプリント法等の湿式成膜法などを用いることができる。低分子化合物の場合は、乾式成膜法が好適に用いられ、高分子化合物の場合は、湿式成膜法が好適である。

[0141] <用途>

本発明に係る有機EL素子は、公知の方法で、マトリックス方式またはセグメント方式による画素として画像表示装置に好適に用いられる。また、上記有機EL素子は、画素を形成せずに、面発光光源としても好適である。

[0142] 本発明に係る有機EL素子は、具体的には、ディスプレイ、バックライト、電子写真、照明光源、記録光源、露光光源、読み取り光源、標識、看板、インテリア、光通信などに好適である。

実施例

[0143] 以下、実施例に基づいて本発明をさらに具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。なお、合成した化合物の種々の物性を測定法および測定に用いた装置等を以下に示す。

[0144] (1) $^1\text{H-NMR}$ 、 $^{13}\text{C-NMR}$

日本電子 (JEOL) 製 JNM EX270

270MHz、溶媒：重クロロホルム

(2) ゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) (分子量測定)

カラム：Shodex KF-G+KF804L+KF802+KF801

溶離液：テトラヒドロフラン (THF)

温度：40°C

検出器：RI (Shodex RI-71)

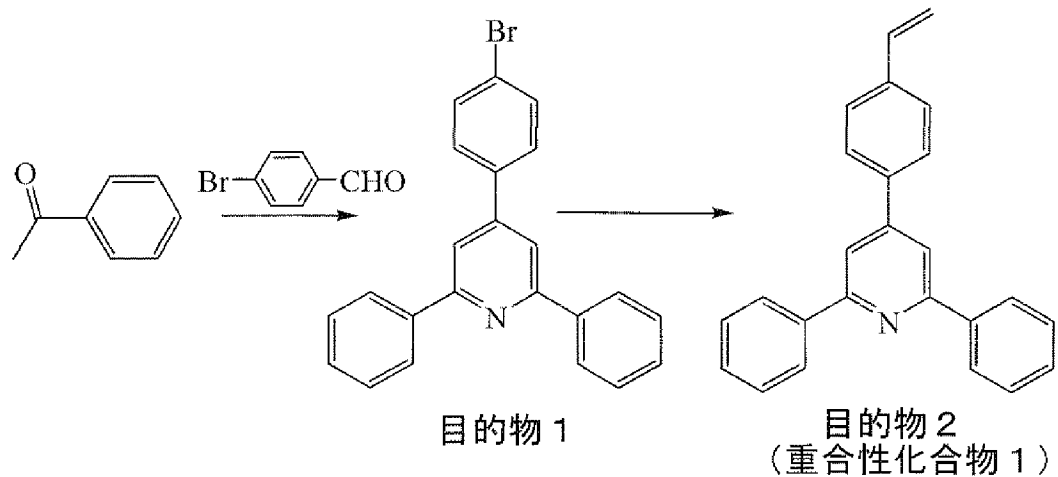
(3) ICP元素分析

島津製作所製 ICPS8000

[合成例1] 重合性化合物1の合成

[0145]

[化31]



…スキーム 1

[0146] (1-1) 目的物 1 の合成

上記スキーム 1 を参照しながら説明する。

100 mL ナスフラスコにアセトフェノン 3.61 g (30 mmol)、4-ブロモベンズアルデヒド 2.78 g (15 mmol)、酢酸アンモニウム 14.8 g (192 mmol)、酢酸 30 mL を仕込み、9 時間還流下撹拌した。放冷後、析出した固体をろ取し、これをシリカゲルカラムクロマトグラフィーにかけ、ヘキサン：クロロホルム = 80 : 20 で溶出させ、目的物 1 (収量 : 1.22 g、収率 : 21 モル%) を得た。

[0147] (1-2) 目的物 2 (重合性化合物 1) の合成

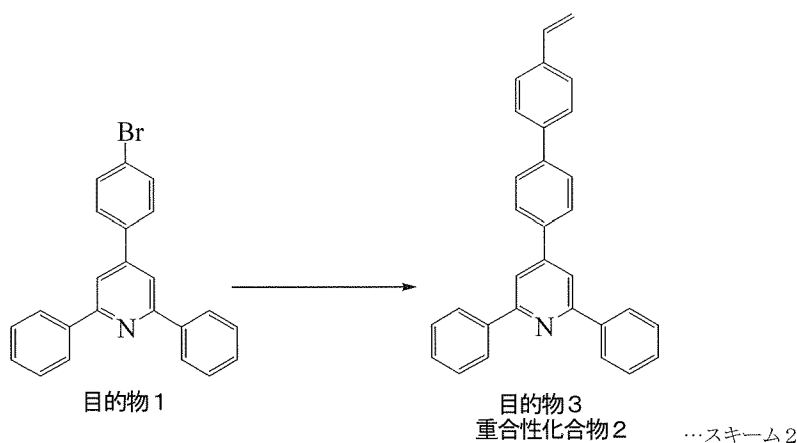
上記スキーム 1 を参照しながら説明する。

100 mL ニロフラスコに、目的物 1 1.22 g (3.15 mmol)、ビニルホウ酸ジブチルエステル 0.70 g (3.78 mmol)、炭酸カリウム 4.35 g (31.5 mmol)、テトラブチルアンモニウムブロマイド 0.61 g (1.89 mmol)、ジーターシャルブチルクレゾール 40 mg、トルエン 25 mL、水 15 mL を仕込み、窒素下 1 時間還流撹拌させた。この溶液にテトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) 128 mg (0.112 mmol) を加え、窒素下 1 時間還流撹拌させた。

。放冷後、酢酸エチルと水を加え、有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄した。有機層を濃縮後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにかけ、ヘキサン：クロロホルム＝70：30で溶出させ、目的物2（収量：0.64g、収率：61モル%）を得た。

[0148] [合成例2] 重合性化合物2の合成

[0149] [化32]



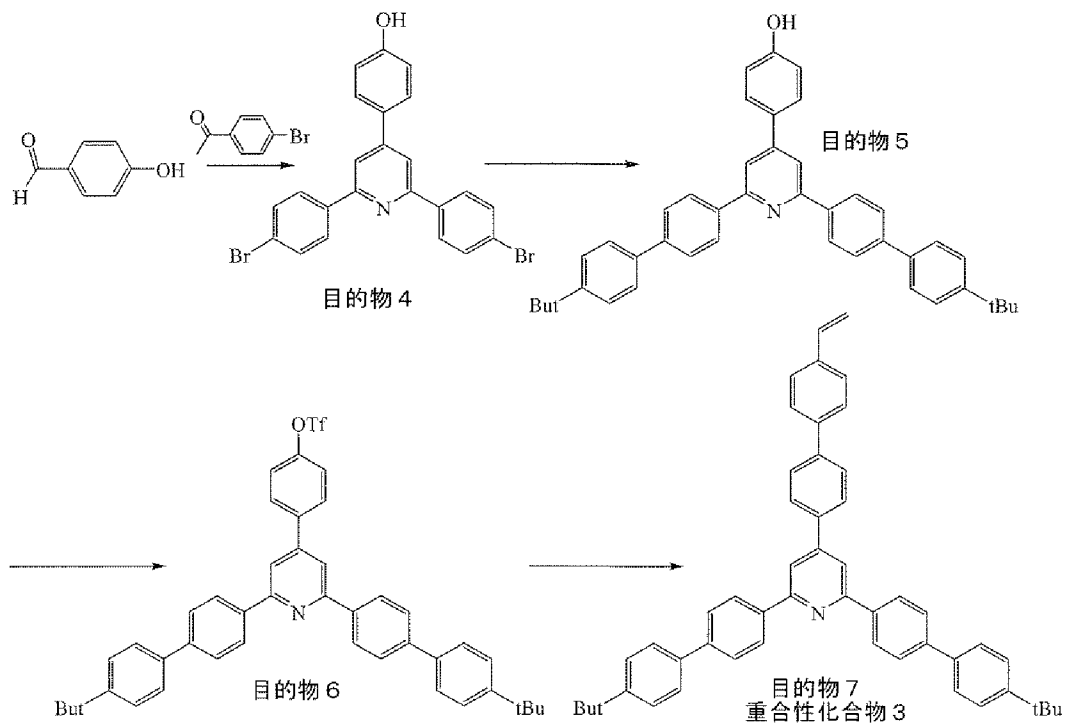
[0150] 上記スキーム2を参照しながら説明する。

100mLニロフラスコに、目的物1 1.00g（2.60mmol）、スチリルホウ酸0.46g（3.12mmol）、炭酸カリウム3.59g（26.0mmol）、テトラブチルアンモニウムブロマイド0.50g（1.56mmol）、ジーターシャルブチルクレゾール30mg、トルエン25mL、水15mLを仕込み、窒素下1時間還流撹拌させた。この溶液にテトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム（0）120mg（0.104mmol）を加え、窒素下1時間還流撹拌させた。放冷後、酢酸エチルと水を加え、有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄した。有機層を濃縮後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにかけ、ヘキサン：クロロホルム＝65：35で溶出させ、目的物3（収量：0.84g、収率：78モル%）を得た。

[0151] [合成例3] 重合性化合物3の合成

[0152]

[化33]



…スキーム3

[0153] (3-1) 目的物4の合成

上記スキーム3を参照しながら説明する。

200 mL フラスコに、4'-ブromoアセトフェノン6.25 g (31.40 mmol)、4-ヒドロキシベンズアルデヒド1.92 g (15.72 mmol)、酢酸アンモニウム15.5 g (201.1 mmol)、酢酸40 mLを仕込み、還流下8時間攪拌させた。放冷後、析出した固体をろ取り、少量のメタノールで洗浄し、目的物4 (収量: 3.25 g、収率: 43モル%)を得た。

[0154] (3-2) 目的物5の合成

上記スキーム3を参照しながら説明する。

100 mL ニ口フラスコに、目的物4 3.24 g (6.73 mmol)、4-ターシャルブチルフェニルホウ酸2.64 g (14.8 mmol)、炭酸カリウム9.31 g (67.33 mmol)、テトラブチルアンモニウ

ムブロマイド 1.33 g (4.00 mmol)、トルエン 30 mL、水 20 mL を仕込み、窒素下 1 時間還流撹拌させた。この溶液にテトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) 347 mg (0.40 mmol) を加え、窒素下 3 時間還流撹拌させた。放冷後、酢酸エチルと水を加え、有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄した。有機層を濃縮後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにかけ、クロロホルム：酢酸エチル=98：2 で溶出させ、目的物 5 (収量：2.40 g、収率：60 モル%) を得た。

[0155] (3-3) 目的物 6 の合成

上記スキーム 3 を参照しながら説明する。

200 mL フラスコに目的物 5 1.99 g (3.39 mmol)、ピリジン 10 mL を仕込み、氷冷下、トリフルオロメタンスルホン酸無水物 0.7 mL (4.26 mmol) を滴下した。1 時間後、反応液に氷を適量入れ、氷冷下 6 N 塩酸 20 mL を加えた。これを酢酸エチルで抽出し、有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄した。有機層を濃縮し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにかけ、ヘキサン：クロロホルム=70：30 で溶出させ、目的物 6 (収量：1.88 g、収率：77 モル%) を得た。

[0156] (3-4) 目的物 7 (重合性化合物 3) の合成

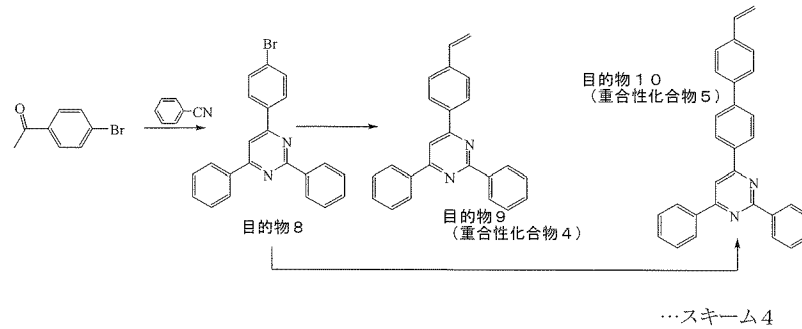
上記スキーム 3 を参照しながら説明する。

100 mL ニ口フラスコに、目的物 6 1.08 g (1.50 mmol)、スチリルホウ酸 0.27 g (1.80 mmol)、炭酸カリウム 2.07 g (15.0 mmol)、テトラブチルアンモニウムブロマイド 0.29 g (0.90 mmol)、ジーターシャルブチルクレゾール 30 mg、トルエン 25 mL、水 15 mL を仕込み、窒素下 1 時間還流撹拌させた。この溶液にテトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) 69 mg (0.06 mmol) を加え、窒素下 1 時間還流撹拌させた。放冷後、酢酸エチルと水を加え、有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄した。有機層を濃縮後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにかけ、ヘキサン：クロロホルム=65：35 で溶出させ、目的物 7 (収量：0.81 g、収率：80 モル%) を得た。

%)を得た。

[0157] [合成例4] 重合性化合物4の合成

[0158] [化34]



[0159] (4-1) 目的物8の合成

上記スキーム4を参照しながら説明する。

100 mLナスフラスコにトリフルオロメタンスルホン酸無水物3.2 g (11.4 mmol)、ベンゾニトリル2.17 g (21 mmol)、脱水ジクロロメタン10 mLを仕込み、この溶液に、4'-ブromoアセトフェノン1.99 g (10 mmol)の脱水ジクロロメタン溶液10 mLを滴下した。室温で22時間攪拌した後、飽和炭酸水素ナトリウム溶液をゆっくり滴下し、有機層を水と飽和食塩水で洗浄した。有機層を濃縮し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにかけ、ジクロロメタン：ジエチルエーテル＝70：30で溶出させ、目的物8（収量：3.17 g、収率：82モル%）を得た。

[0160] (4-2) 目的物9（重合性化合物4）の合成

上記スキーム4を参照しながら説明する。

100 mL二口フラスコに、目的物8 1.22 g (3.15 mmol)、ビニルホウ酸ジブチルエステル0.70 g (3.78 mmol)、炭酸カリウム4.35 g (31.5 mmol)、テトラブチルアンモニウムブロマイド0.61 g (1.89 mmol)、ジーターシャルブチルクレゾール40 mg、トルエン25 mL、水15 mLを仕込み、窒素下1時間還流攪拌させた。この溶液にテトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム（0

) 128 mg (0.112 mmol) を加え、窒素下 1 時間還流撹拌させた。放冷後、酢酸エチルと水を加え、有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄した。有機層を濃縮後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにかけ、ヘキサン：クロロホルム=65：35で溶出させ、目的物9 (収量：0.88 g、収率：84モル%) を得た。

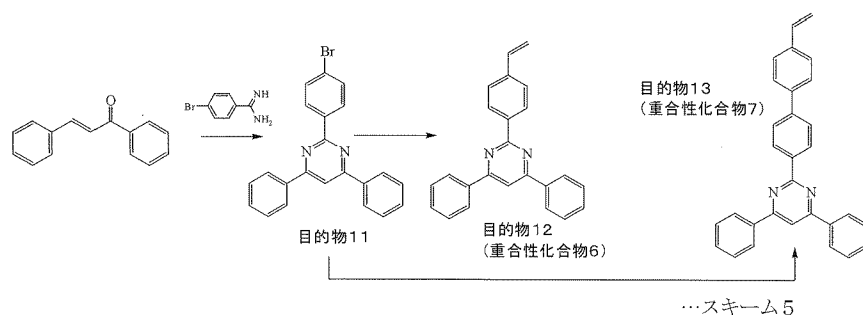
[0161] [合成例5] 重合性化合物5の合成

上記スキーム4を参照しながら説明する。

100 mL ニ口フラスコに、目的物8 1.20 g (3.10 mmol)、スチリルホウ酸0.55 g (3.74 mmol)、炭酸カリウム4.28 g (31.0 mmol)、テトラブチルアンモニウムブロマイド0.60 g (1.87 mmol)、ジーターシャルブチルクレゾール40 mg、トルエン25 mL、水15 mLを仕込み、窒素下 1 時間還流撹拌させた。この溶液にテトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)144 mg (0.124 mmol)を加え、窒素下 1 時間還流撹拌させた。放冷後、酢酸エチルと水を加え、有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄した。有機層を濃縮後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにかけ、ヘキサン：クロロホルム=65：35で溶出させ、目的物10 (重合性化合物5) (収量：1.00 g、収率：77モル%) を得た。

[0162] [合成例6] 重合性化合物6の合成

[0163] [化35]



[0164] (6-1) 目的物11の合成

上記スキーム5を参照しながら説明する。

100 mL ナスフラスコにカルコン4.17 g (20 mmol)、4-ブ

ロモベンズアミジン 1.99 g (10 mmol)、エタノール 300 mL を仕込み、この溶液に、水酸化カリウム 1.12 g (20 mmol) のエタノール溶液 100 mL を滴下した。3 時間還流撹拌させた後、室温まで冷却し、生じた沈殿をろ取り、純水で洗浄した。この粗生成物を氷酢酸から再結晶し、目的物 11 (収量: 3.29 g、収率: 85 モル%) を得た。

[0165] (6-2) 目的物 12 (重合性化合物 6) の合成

上記スキーム 5 を参照しながら説明する。

100 mL ニ口フラスコに、目的物 11 1.94 g (5 mmol)、ビニルホウ酸ジブチルエステル 1.10 g (6 mmol)、炭酸カリウム 6.91 g (50 mmol)、テトラブチルアンモニウムブロマイド 0.61 g (3 mmol)、ジーターシャルブチルクレゾール 50 mg、トルエン 40 mL、水 25 mL を仕込み、窒素下 1 時間還流撹拌させた。この溶液にテトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) 231 mg (0.2 mmol) を加え、窒素下 1 時間還流撹拌させた。放冷後、酢酸エチルと水を加え、有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄した。有機層を濃縮後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにかけ、ヘキサン:クロロホルム=60:40 で溶出させ、目的物 12 (収量: 1.47 g、収率: 88 モル%) を得た。

[0166] [合成例 7] 重合性化合物 7 の合成

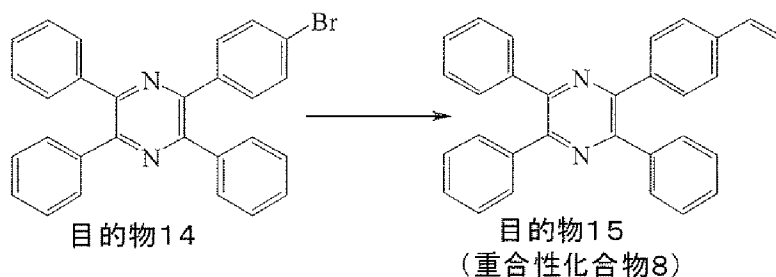
上記スキーム 5 を参照しながら説明する。

100 mL ニ口フラスコに、目的物 11 1.94 g (5 mmol)、スチリルホウ酸 0.89 g (6 mmol)、炭酸カリウム 6.91 g (50 mmol)、テトラブチルアンモニウムブロマイド 0.61 g (3 mmol)、ジーターシャルブチルクレゾール 50 mg、トルエン 40 mL、水 25 mL を仕込み、窒素下 1 時間還流撹拌させた。この溶液にテトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) 231 mg (0.2 mmol) を加え、窒素下 1 時間還流撹拌させた。放冷後、酢酸エチルと水を加え、有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄した。有機層を濃縮後、残渣をシリカゲルカラ

ムクロマトグラフィーにかけ、ヘキサン：クロロホルム＝60：40で溶出させ、目的物13（重合性化合物7）（収量：1.66g、収率：81モル%）を得た。

[0167] [合成例8] 重合性化合物8の合成

[0168] [化36]



…スキーム6

[0169] 上記スキーム6を参照しながら説明する。

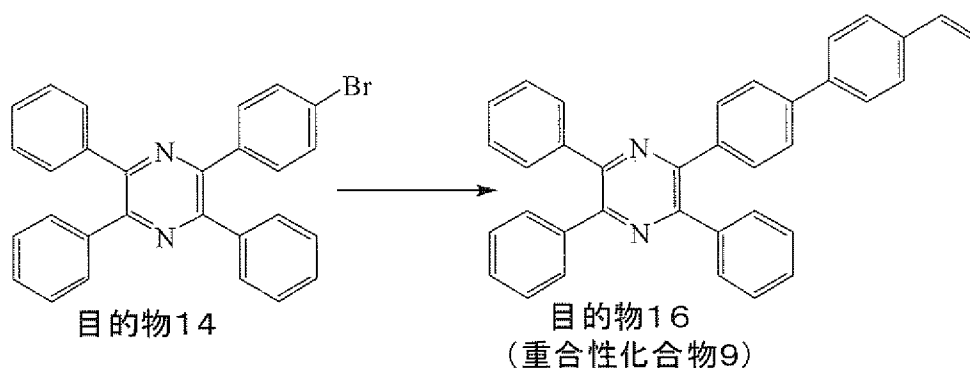
目的物14を特開2007-197426に記載されている方法で合成した。

100mL二口フラスコに、目的物14 1.39g（3.00mmol）、ビニルホウ酸ジブチルエステル0.67g（3.60mmol）、炭酸カリウム4.15g（30.0mmol）、テトラブチルアンモニウムブロマイド0.58g（1.80mmol）、ジーターシャルブチルクレゾール40mg、トルエン25mL、水15mLを仕込み、窒素下1時間還流撹拌させた。この溶液にテトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム（0）104mg（0.09mmol）を加え、窒素下1時間還流撹拌させた。放冷後、酢酸エチルと水を加え、有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄した。有機層を濃縮後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにかけ、ヘキサン：クロロホルム＝65：35で溶出させ、目的物15（重合性化合物8）（収量：0.81g、収率：66モル%）を得た。

[0170] [合成例9] 重合性化合物9の合成

[0171]

[化37]



…スキーム7

[0172] 上記スキーム7を参照しながら説明する。

100mLニ口フラスコに、目的物14 1.39g (3.00mmol)、スチリルホウ酸0.53g (3.60mmol)、炭酸カリウム4.15g (30.0mmol)、テトラブチルアンモニウムブロマイド0.58g (1.80mmol)、ジーターシャルブチルクレゾール40mg、トルエン25mL、水15mLを仕込み、窒素下1時間還流撹拌させた。この溶液にテトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)104mg (0.09mmol)を加え、窒素下1時間還流撹拌させた。放冷後、酢酸エチルと水を加え、有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄した。有機層を濃縮後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにかけ、ヘキサン：クロロホルム=65：35で溶出させ、目的物16(重合性化合物9)(収量：1.29g、収率：80モル%)を得た。

[0173] [合成例10] ホモポリマー1の合成

密閉容器に重合性化合物1(333mg)を入れ、脱水トルエン(10mL)を加えた後、ラジカル重合開始剤V-601(和光純薬工業製)のトルエン溶液(0.1M, 100 μ L)を加え、凍結脱気操作を5回繰り返した。真空のまま密閉し、60 $^{\circ}$ Cで60時間撹拌した。反応後、反応液をアセトン(250mL)中に滴下して沈殿を生じさせた。さらにトルエン-アセト

ンでの再沈殿精製を2回繰り返して精製した後、50°Cで一晩真空乾燥し、白色の固体としてホモポリマー1（300mg）を得た。得られた共重合体の分子量はポリスチレン換算のGPC測定より重量平均分子量（Mw）42,000であった。

[0174] 同様にして、ホモポリマー2～9を得た。各ポリマーの重量平均分子量を以下に示す。

ホモポリマー2（重合性化合物2の重合）（Mw）58,000

ホモポリマー3（重合性化合物3の重合）（Mw）39,000

ホモポリマー4（重合性化合物4の重合）（Mw）41,000

ホモポリマー5（重合性化合物5の重合）（Mw）40,000

ホモポリマー6（重合性化合物6の重合）（Mw）51,000

ホモポリマー7（重合性化合物7の重合）（Mw）44,000

ホモポリマー8（重合性化合物8の重合）（Mw）43,000

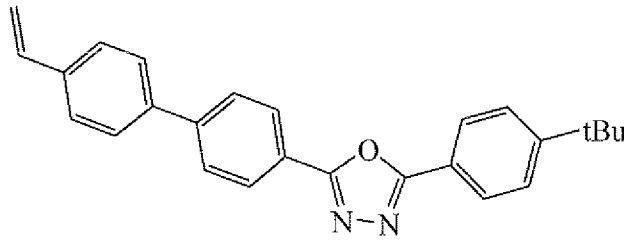
ホモポリマー9（重合性化合物9の重合）（Mw）47,000

[合成例11] ホモポリマー10の合成

密閉容器に、下記式（16）で表されるviPBD（350mg）を入れ、脱水トルエン（10mL）を加えた後、ラジカル重合開始剤V-601（和光純薬工業製）のトルエン溶液（0.1M, 100μL）を加え、凍結脱気操作を5回繰り返した。真空のまま密閉し、60°Cで60時間攪拌した。反応後、反応液をアセトン（250mL）中に滴下して沈殿を生じさせた。さらにトルエン-アセトンでの再沈殿精製を2回繰り返して精製した後、50°Cで一晩真空乾燥し、白色の固体としてホモポリマー10（300mg）を得た。得られた共重合体の分子量はポリスチレン換算のGPC測定より重量平均分子量（Mw）67,000であった。

[0175]

[化38]

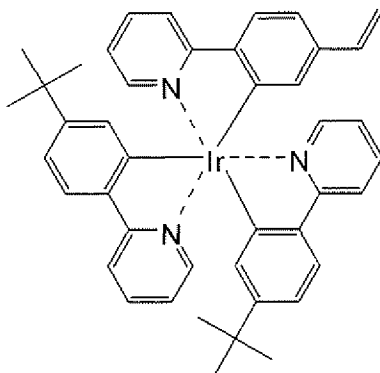


… (16)

[0176] [合成例12] 共重合ポリマー1の合成

密閉容器に重合性化合物1 (300mg) と下記式で表される発光性の重合性化合物10 (79mg) とを入れ、脱水トルエン (8mL) を加えた後、ラジカル重合開始剤V-601 (和光純薬工業製) のトルエン溶液 (0.1M, 100 μ L) を加え、凍結脱気操作を5回繰り返した。真空のまま密閉し、60 $^{\circ}$ Cで60時間撹拌した。反応後、反応液をアセトン (250mL) 中に滴下して沈殿を生じさせた。さらにトルエン-アセトンでの再沈殿精製を2回繰り返して精製した後、50 $^{\circ}$ Cで一晩真空乾燥し、薄黄色の固体として共重合ポリマー1 (341mg) を得た。得られた共重合ポリマー1の分子量はポリスチレン換算のGPC測定より重量平均分子量 (Mw) 70,000であった。またNMR測定による共重合ポリマー1の共重合比は重合性化合物1 : 重合性化合物10 = 91 : 9 (モル比) と見積もられた。

[0177] [化39]



…発光性の重合性化合物10

[0178] 同様にして共重合ポリマー2~9を得た。各ポリマーの重量平均分子量を

以下に示す。

共重合ポリマー 2 (重合性化合物 2 と 10 の重合) (Mw) 68,000

共重合ポリマー 3 (重合性化合物 3 と 10 の重合) (Mw) 71,000

共重合ポリマー 4 (重合性化合物 4 と 10 の重合) (Mw) 82,000

共重合ポリマー 5 (重合性化合物 5 と 10 の重合) (Mw) 59,000

共重合ポリマー 6 (重合性化合物 6 と 10 の重合) (Mw) 58,000

共重合ポリマー 7 (重合性化合物 7 と 10 の重合) (Mw) 63,000

共重合ポリマー 8 (重合性化合物 8 と 10 の重合) (Mw) 64,000

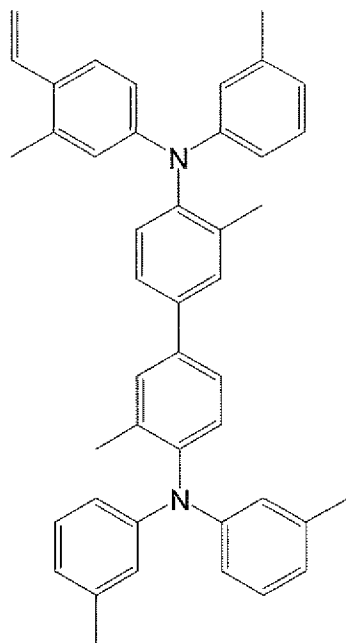
共重合ポリマー 9 (重合性化合物 9 と 10 の重合) (Mw) 67,000

[合成例 13] 共重合ポリマー 10 の合成

密閉容器に重合性化合物 1 (150 mg) と発光性の重合性化合物 10 (79 mg) と下記式 (15-4) で表される重合性化合物 15-4 (269 mg) とを入れ、脱水トルエン (8 mL) を加えた後、ラジカル重合開始剤 V-601 (和光純薬工業製) のトルエン溶液 (0.1 M, 100 μ L) を加え、凍結脱気操作を 5 回繰り返した。真空のまま密閉し、60°C で 60 時間攪拌した。反応後、反応液をアセトン (250 mL) 中に滴下して沈殿を生じさせた。さらにトルエン-アセトンでの再沈殿精製を 2 回繰り返して精製した後、50°C で一晩真空乾燥し、薄黄色の固体として共重合ポリマー 10 (448 mg) を得た。得られた共重合ポリマー 10 の分子量はポリスチレン換算の GPC 測定より重量平均分子量 (Mw) 67,000 であった。

またNMR測定による共重合ポリマー10の共重合比は重合性化合物1：重合性化合物10：重合性化合物15-4=47：44：9（モル比）と見積もられた。

[0179] [化40]



[0180] 同様にして共重合ポリマー11～18を得た。各ポリマーの重量平均分子量を以下に示す。

共重合ポリマー11（重合性化合物2と10と15-4の重合）（M_w）64,000

共重合ポリマー12（重合性化合物3と10と15-4の重合）（M_w）70,000

共重合ポリマー13（重合性化合物4と10と15-4の重合）（M_w）78,000

共重合ポリマー14（重合性化合物5と10と15-4の重合）（M_w）62,000

共重合ポリマー15（重合性化合物6と10と15-4の重合）（M_w）72,000

共重合ポリマー16（重合性化合物7と10と15-4の重合）（M_w）

) 69, 000

共重合ポリマー 17 (重合性化合物 8 と 10 と 15-4 の重合) (Mw

) 66, 000

共重合ポリマー 18 (重合性化合物 9 と 10 と 15-4 の重合) (Mw

) 66, 000

[合成例 14] 共重合ポリマー 19 の合成

重合性化合物 1 の代わりに viPBD (315 mg) を用いた以外は合成例 12 と同様に共重合を行った。得られた共重合ポリマー 19 の分子量はポリスチレン換算の GPC 測定より重量平均分子量 (Mw) 68, 400 であった。共重合ポリマー 19 の共重合比は viPBD : 重合性化合物 10 = 9 : 9 (モル比) と見積もられた。

[0181] [合成例 15] 共重合ポリマー 20 の合成

重合性化合物 1 の代わりに viPBD (157 mg) を用いた以外は合成例 13 と同様に行った。得られた共重合ポリマー 20 の分子量はポリスチレン換算の GPC 測定より重量平均分子量 (Mw) 56, 000 であった。共重合ポリマー 20 の共重合比は viPBD : 重合性化合物 10 : 重合性化合物 15-4 = 47 : 44 : 9 (モル比) と見積もられた。

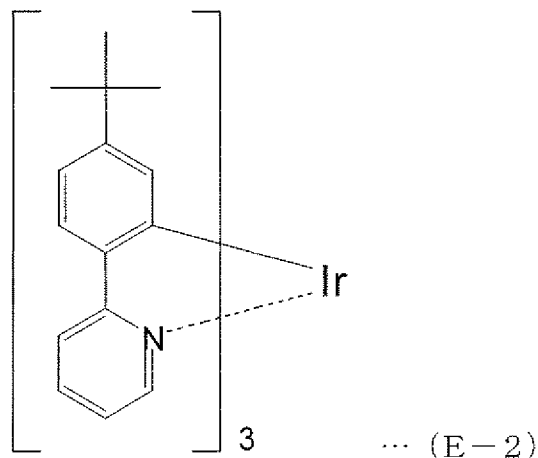
[0182] [実施例 1] 有機 EL 素子 1 の作製およびその発光輝度測定

25 mm × 25 mm のガラス基板の一方の面に、陽極となる幅 4 mm の 2 本の ITO (酸化インジウム錫) 電極がストライプ状に形成された ITO 付き基板 (ニッポ電機、Nippo Electric Co., LTD.) を用いて有機 EL 素子 1 を作製した。

[0183] はじめに、上記 ITO 付き基板の ITO (陽極) 上に、ポリ (3, 4-エチレンジオキシチオフェン) ・ポリスチレンスルホン酸 (バイエル社製、商品名「バイトロン P」) をスピンコート法により、回転数 3, 500 rpm、塗布時間 40 秒の条件で塗布した後、真空乾燥器で減圧下、60°C で 2 時間乾燥を行い、陽極バッファ層を形成した。得られた陽極バッファ層の膜厚は約 50 nm であった。

[0184] 次に、発光性の化合物およびキャリア輸送性の化合物を含む層を形成するための塗布溶液を調製した。ホモポリマー1（45 mg）と、4, 4', 4''-トリリス（カルバゾルー9-イル）トリフェニルアミン（TCTA）（45 mg）と下記式（E-2）で表されるイリジウム錯体E-2（10 mg）をトルエン（和光純薬工業製，特級）（2, 910 mg）に溶解し、得られた溶液を孔径0. 2 μmのフィルターで濾過して塗布溶液とした。次に、陽極バッファ層上に、調製した塗布溶液をスピコート法により、回転数3, 000 rpm、塗布時間30秒の条件で塗布し、室温（25℃）にて30分間乾燥することにより、発光層を形成した。得られた発光層の膜厚は約100 nmであった。

[0185] [化41]



[0186] 次に発光層を形成した基板を蒸着装置内に載置し、セシウムを蒸着速度0. 01 nm/sで2 nmの厚さに蒸着し（セシウム源としては、サエスゲッターズ社製アルカリメタルディスペンサーを使用）、続いて、陰極としてアルミニウムを蒸着速度1 nm/sで250 nmの厚さに蒸着した。セシウムとアルミニウムとの層は、陽極の延在方向に対して直交する2本の幅3 mmのストライプ状に形成し、1枚のガラス基板当たり、縦4 mm×横3 mmの有機EL素子1を4個作製した。

[0187] （株）アドバンテスト社製 プログラマブル直流電圧／電流源 TR61

43を用いて上記有機EL素子1に電圧を印加し発光させ、その発光輝度を(株)トプコン社製輝度計BM-8を用いて測定した。その結果得られた発光開始電圧、最高輝度および $100\text{cd}/\text{m}^2$ 点灯時の外部量子効率を表2に示す。なお、各値は、1枚の基板に形成された4個の有機EL素子1の平均値を表す。

[0188] [実施例2~21] 有機EL素子2~21の作製およびその発光輝度測定
実施例2~21は、表1に記載の発光材料およびその他の材料を用いて、有機EL素子1と同様にして有機EL素子2~21を作製し、発光輝度を測定した。その結果得られた発光開始電圧、最高輝度および $100\text{cd}/\text{m}^2$ 点灯時の外部量子効率を表2に示す。

[0189] [比較例1~3] 有機EL素子22~24の作製およびその発光輝度測定
比較例1~3は、表1に記載の発光材料およびその他の材料を用いて、有機EL素子1と同様にして有機EL素子22~24を作製し、発光輝度を測定した。その結果得られた発光開始電圧、最高輝度および $100\text{cd}/\text{m}^2$ 点灯時の外部量子効率を表2に示す。

[0190]

[表1]

表 1

	有機EL素子	発光材料	その他の材料
実施例 1	1	ホモポリマー 1	TCTA、E-2
実施例 2	2	ホモポリマー 2	TCTA、E-2
実施例 3	3	ホモポリマー 3	TCTA、E-2
実施例 4	4	ホモポリマー 4	TCTA、E-2
実施例 5	5	ホモポリマー 5	TCTA、E-2
実施例 6	6	ホモポリマー 6	TCTA、E-2
実施例 7	7	ホモポリマー 7	TCTA、E-2
実施例 8	8	ホモポリマー 8	TCTA、E-2
実施例 9	9	ホモポリマー 9	TCTA、E-2
実施例10	10	共重合ポリマー 1	TCTA
実施例11	11	共重合ポリマー 2	TCTA
実施例12	12	共重合ポリマー 3	TCTA
実施例13	13	共重合ポリマー 4	TCTA
実施例14	14	共重合ポリマー 5	TCTA
実施例15	15	共重合ポリマー 6	TCTA
実施例16	16	共重合ポリマー 7	TCTA
実施例17	17	共重合ポリマー 8	TCTA
実施例18	18	共重合ポリマー 9	TCTA
実施例19	19	共重合ポリマー10	—
実施例20	20	共重合ポリマー11	—
実施例21	21	共重合ポリマー12	—
実施例22	22	共重合ポリマー13	—
実施例23	23	共重合ポリマー14	—
実施例24	24	共重合ポリマー15	—
実施例25	25	共重合ポリマー16	—
実施例26	26	共重合ポリマー17	—
実施例27	27	共重合ポリマー18	—
比較例 1	28	ホモポリマー 10	TCTA、E-2
比較例 2	29	共重合ポリマー19	TCTA
比較例 3	30	共重合ポリマー20	—

[0191]

[表2]

表 2

	有機EL素子	発光開始電圧 (V)	最高輝度 (cd/m ²)	外部量子効率 (%)
実施例 1	1	2.5	64000	8.2
実施例 2	2	2.3	81000	7.6
実施例 3	3	2.9	58000	6.3
実施例 4	4	2.7	60000	6.9
実施例 5	5	2.7	61000	6.1
実施例 6	6	2.8	62000	6.6
実施例 7	7	2.7	59000	6.2
実施例 8	8	3.0	48000	6.5
実施例 9	9	3.1	44000	5.8
実施例10	10	2.5	67000	8.8
実施例11	11	2.4	90000	8.0
実施例12	12	2.8	62000	6.3
実施例13	13	2.9	59000	6.4
実施例14	14	3.0	57000	5.1
実施例15	15	2.8	60000	6.7
実施例16	16	2.8	58000	6.6
実施例17	17	3.2	50000	6.3
実施例18	18	3.1	50000	6.6
実施例19	19	2.5	100000	9.1
実施例20	20	2.4	105000	9.2
実施例21	21	3.2	70000	6.7
実施例22	22	2.8	55000	5.7
実施例23	23	2.9	56000	5.1
実施例24	24	2.9	56000	6.0
実施例25	25	2.8	53000	5.9
実施例26	26	3.1	49000	6.0
実施例27	27	3.3	47000	5.6
比較例 1	28	2.8	18000	4.0
比較例 2	29	3.0	21000	4.1
比較例 3	30	2.9	19000	3.7

[0192] 表 2 より、電子輸送部位に ν i PBD を用いた有機 EL 素子 22 ~ 24 (比較例 1 ~ 3) と比較して、電子輸送部位に本発明の高分子化合物を用いた有機 EL 素子 1 ~ 21 (実施例 1 ~ 21) は、最高輝度が高く、外部量子効率が良いことがわかる。

符号の説明

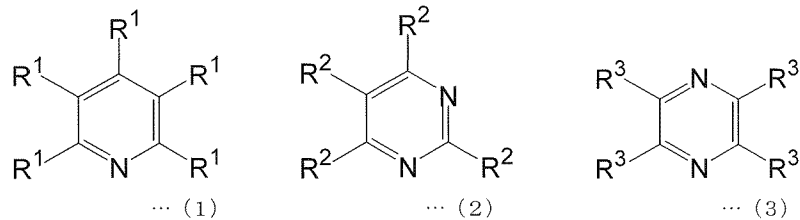
[0193] 1 : ガラス基板
 2 : 陽極
 3 : 正孔輸送層
 4 : 発光層
 5 : 電子輸送層

6 : 陰極

請求の範囲

[請求項1] 下記式（１）で表される重合性化合物、下記式（２）で表される重合性化合物および下記式（３）で表される重合性化合物からなる群から選択される少なくとも１種の重合性化合物から導かれる構成単位を含むことを特徴とする電荷輸送性高分子化合物。

[化1]



（式中、 $R^1 \sim R^3$ のいずれも、それぞれ独立に、水素原子、またはヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基を表す。

ただし、少なくとも１つの R^1 、少なくとも１つの R^2 、および少なくとも１つの R^3 は、

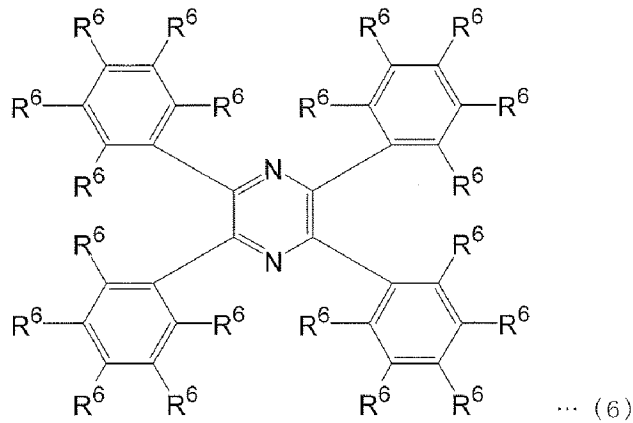
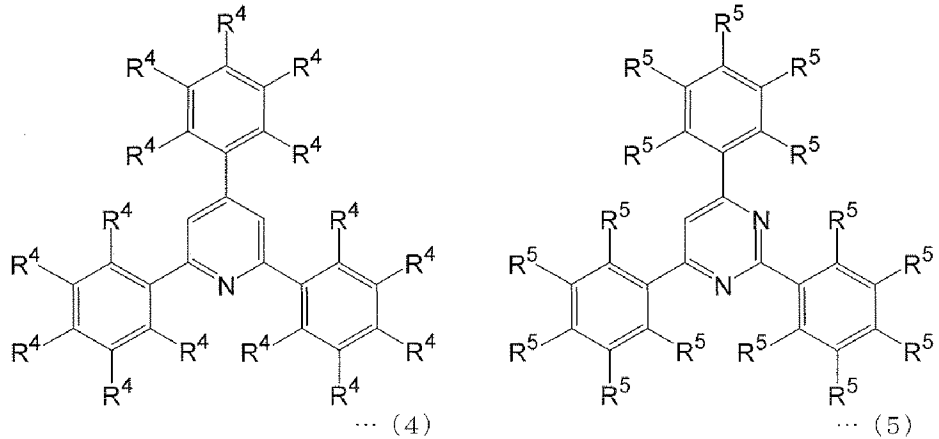
重合性官能基を有する置換基を有し、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基を表す。）

[請求項2] 上記式（１）で表される重合性化合物が、下記式（４）で表される重合性化合物であり、

上記式（２）で表される重合性化合物が、下記式（５）で表される重合性化合物であり、かつ

上記式（３）で表される重合性化合物が、下記式（６）で表される重合性化合物であることを特徴とする請求項１に記載の電荷輸送性高分子化合物。

[化2]



(式中、 $R^4 \sim R^6$ のいずれも、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数1～12のアルキル基、またはヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基を表す。

ただし、少なくとも1つの R^4 、少なくとも1つの R^5 、および少なくとも1つの R^6 は、

重合性官能基を有する置換基を有し、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基を表す。)

[請求項3]

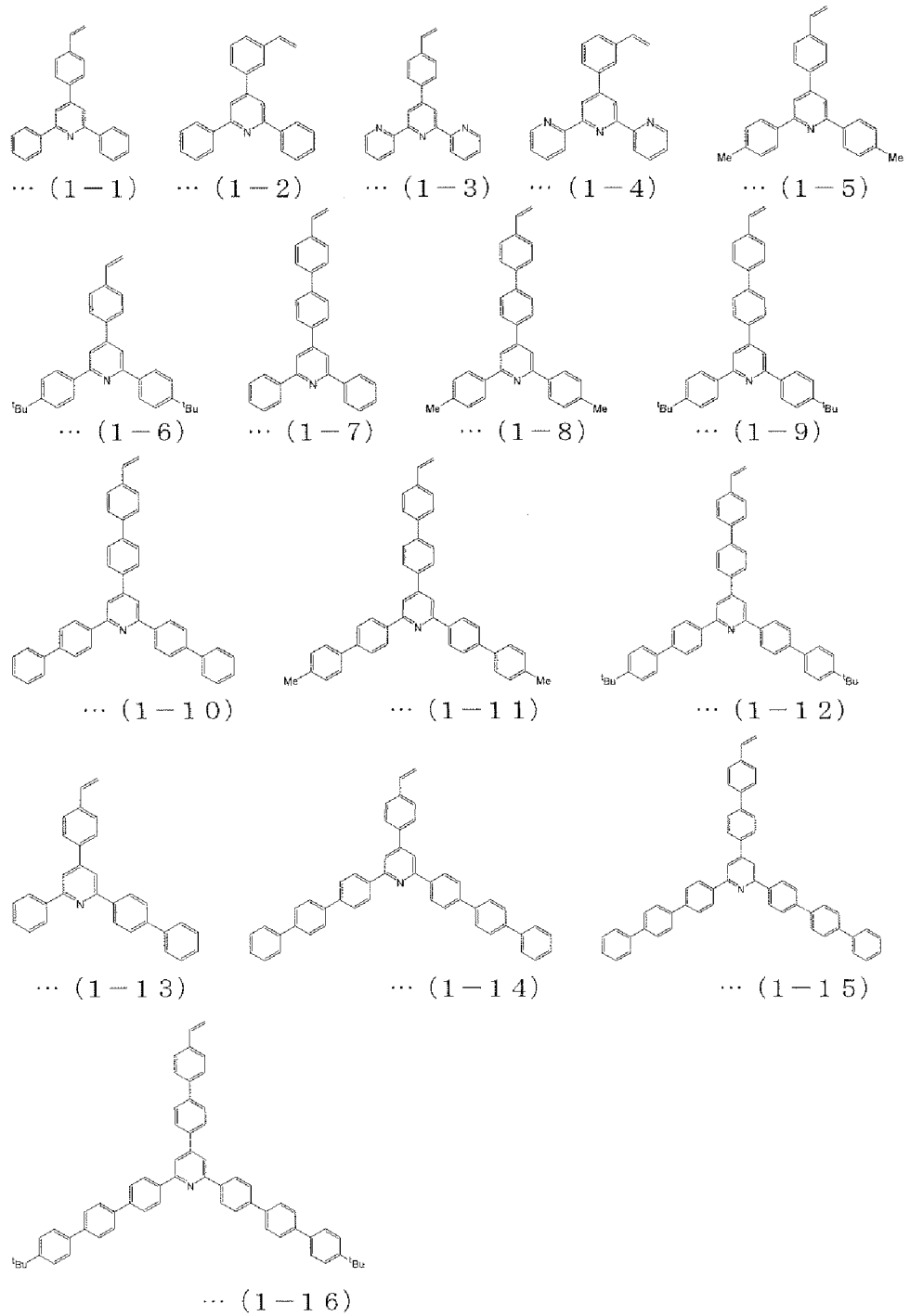
上記式(4)で表される重合性化合物が、下記式(1-1)～(1-16)のいずれかで表される重合性化合物であり、

上記式(5)で表される重合性化合物が、下記式(2-1)～(2-26)のいずれかで表される重合性化合物であり、かつ

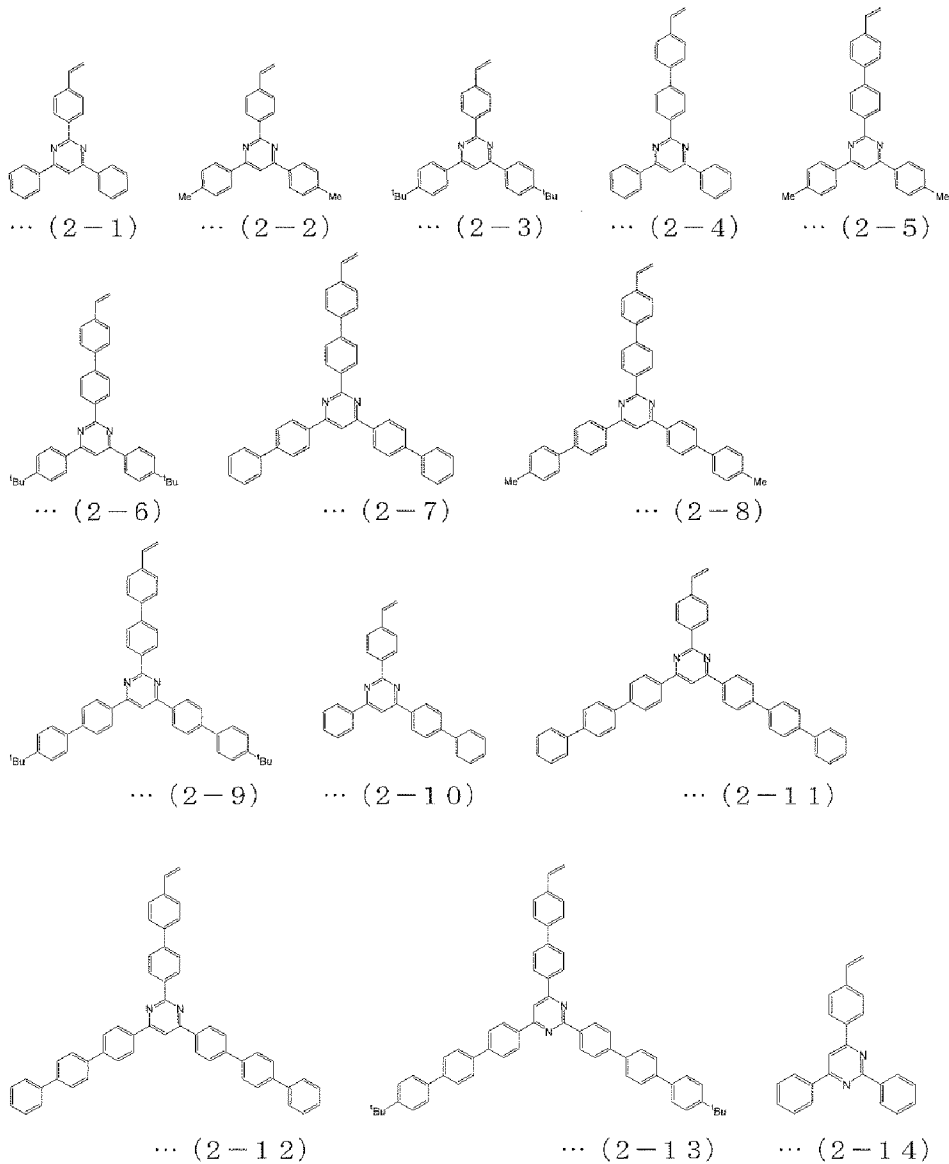
上記式(6)で表される重合性化合物が、下記式(3-1)～(3

－ 7) のいずれかで表される重合性化合物であることを特徴とする請求項 2 に記載の電荷輸送性高分子化合物。

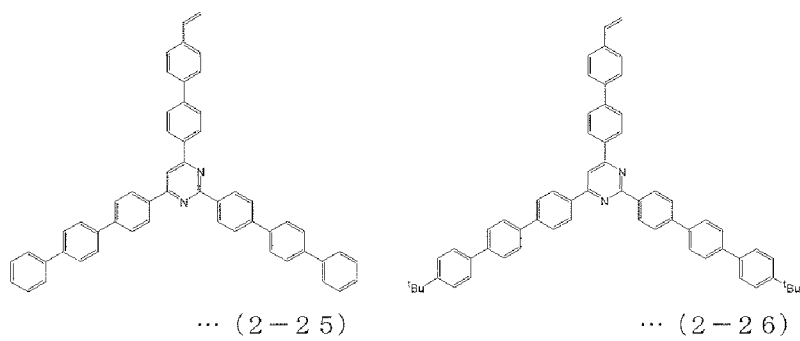
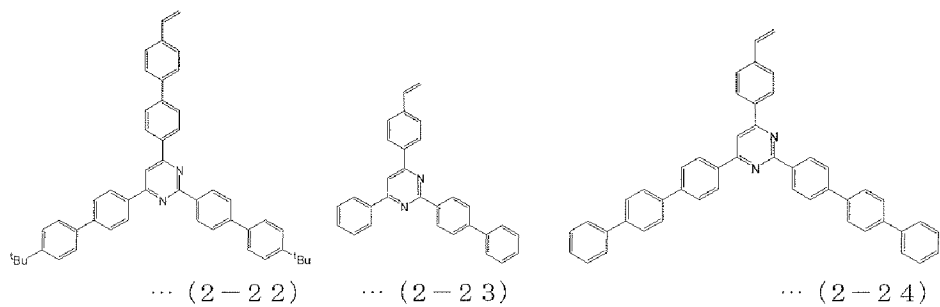
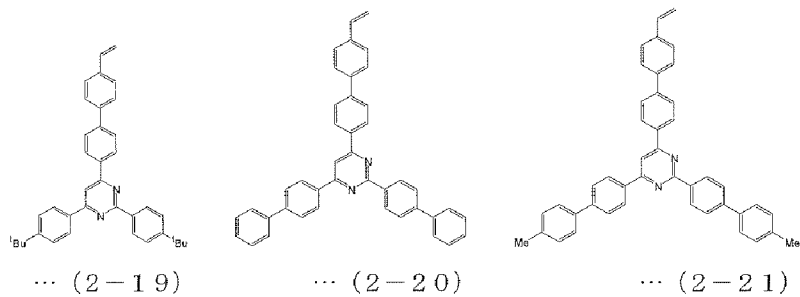
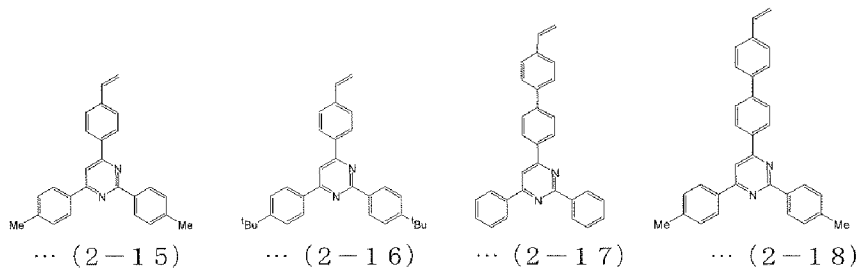
[化 3]



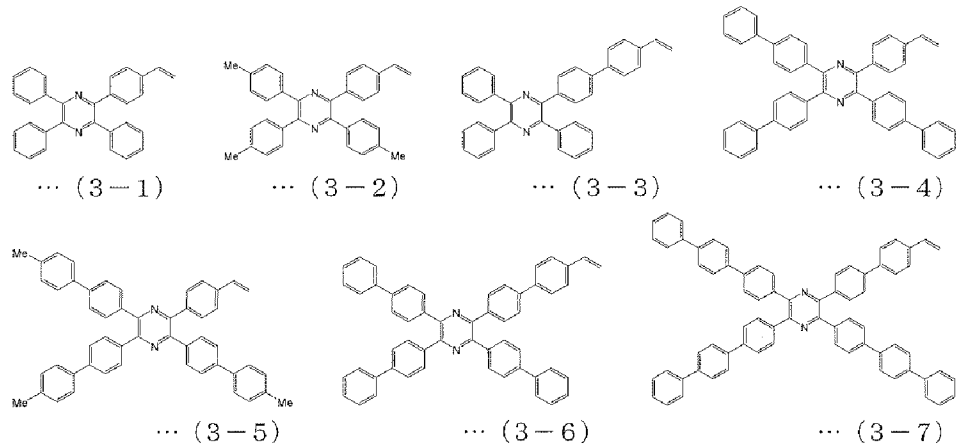
[化4]



[化5]



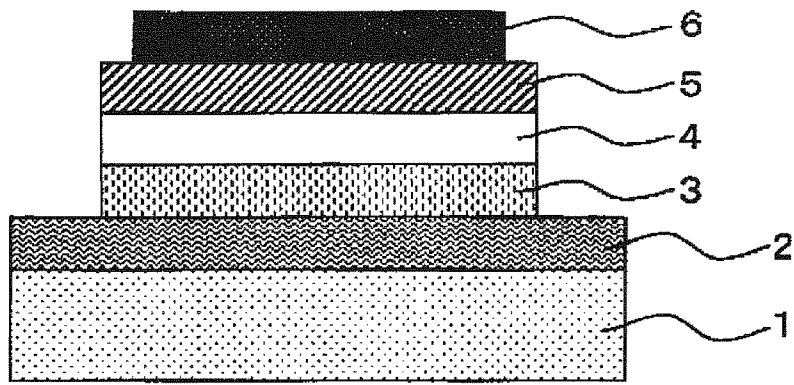
[化6]



(式中、「Me」は、メチル基を表し、「^tBu」は、*t*-ブチル基を表す。)

- [請求項4] 発光性の重合性化合物から導かれる構成単位をさらに有することを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載の電荷輸送性高分子化合物。
- [請求項5] 上記発光性の重合性化合物が、燐光発光性を有することを特徴とする請求項4に記載の電荷輸送性高分子化合物。
- [請求項6] 上記発光性の重合性化合物が、重合性官能基を有する置換基を有する遷移金属錯体であることを特徴とする請求項5に記載の電荷輸送性高分子化合物。
- [請求項7] 上記遷移金属錯体が、イリジウム錯体であることを特徴とする請求項6に記載の電荷輸送性高分子化合物。
- [請求項8] 正孔輸送性の重合性化合物から導かれる単位をさらに含むことを特徴とする請求項1～7のいずれかに記載の電荷輸送性高分子化合物。
- [請求項9] 陽極と陰極との間に発光層を備えて構成される有機エレクトロルミネッセンス素子であって、該発光層が、請求項1～8のいずれかに記載の電荷輸送性高分子化合物を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2009/058043

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C08F12/32(2006.01) i, H01L51/50(2006.01) i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
C08F12/32, H01L51/50

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2009
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2009	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2009

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
CA/REGISTRY (STN), WPI

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2007-31679 A (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 08 February, 2007 (08.02.07), Claims; Par. Nos. [0051] to [0055] (Family: none)	1-9
A	JP 2007-169474 A (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 05 July, 2007 (05.07.07), Claims; Par. Nos. [0075] to [0079] (Family: none)1	1-9

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search 12 June, 2009 (12.06.09)	Date of mailing of the international search report 23 June, 2009 (23.06.09)
---	--

Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/058043

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2007-197426 A (Semiconductor Energy Laboratory Co., Ltd), 09 August, 2007 (09.08.07), Claims; Par. Nos. [0001], [0118] to [0130], [0221] to [0343] & US 2007/0161793 A1	1-9
A	JP 2006-225428 A (Tokyo Institute of Technology, Tosoh Corp.), 31 August, 2006 (31.08.06), Claims; Par. Nos. [0001], [0008] to [0031] (Family: none)	1-9

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))
 Int.Cl. C08F12/32(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i

B. 調査を行った分野
 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))
 Int.Cl. C08F12/32, H01L51/50

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの
 日本国実用新案公報 1922-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2009年
 日本国実用新案登録公報 1996-2009年
 日本国登録実用新案公報 1994-2009年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)
 CA/REGISTRY (STN), WPI

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	J P 2 0 0 7 - 3 1 6 7 9 A (昭和電工株式会社) 2007.02.08, 段落【特許請求の範囲】、【0051】 - 【0055】 (ファミリーなし)	1-9
A	J P 2 0 0 7 - 1 6 9 4 7 4 A (昭和電工株式会社) 2007.07.05, 段落【特許請求の範囲】、【0075】 - 【0079】 (ファミリーなし)	1-9

C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

<p>* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願</p>	<p>の日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」同一パテントファミリー文献</p>
--	---

国際調査を完了した日 12.06.2009	国際調査報告の発送日 23.06.2009
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 和田 勇生 電話番号 03-3581-1101 内線 3457

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2007-197426 A (株式会社半導体エネルギー研究所) 2007.08.09, 段落【特許請求の範囲】, 【0001】, 【0118】 - 【0130】, 【0221】 - 【0343】 & US 2007/0161793 A1	1-9
A	JP 2006-225428 A (国立大学法人東京工業大学, 東ソー株式会社) 2006.08.31, 段落【特許請求の範囲】, 【0001】, 【0008】 - 【0031】 (ファミリーなし)	1-9