(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
2008 年10 月30 日 (30.10.2008)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2008/129947 A1

(51) 国際特許分類:
C07C 211/54 (2006.01) *C09D 5/24* (2006.01)
C07C 211/56 (2006.01) *C09D 179/02* (2006.01)
C07C 251/22 (2006.01) *H01L 51/50* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2008/056974

(22) 国際出願日: 2008 年4 月9 日 (09.04.2008)

(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2007-104410 2007 年4 月12 日 (12.04.2007) JP
特願2007-219311 2007 年8 月27 日 (27.08.2007) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日産化学工業株式会社 (NISSAN CHEMICAL INDUSTRIES, LTD.) [JP/JP]; 〒1010054 東京都千代田区神田錦町３丁目７番地１ Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 山田 智久 (YAMADA, Tomohisa) [JP/JP]; 〒2740052 千葉県船橋市鈴身町４８８番地６ 日産化学工業株式会社 電子材料研究所内 Chiba (JP). 吉本 卓司 (YOSHIMOTO, Takuji) [JP/JP]; 〒2740052 千葉県船橋市鈴身町４８８番地６ 日産化学工業株式会社 電子材料研究所内 Chiba (JP).

(74) 代理人: 小島 隆司 (KOJIMA, Takashi); 〒1040061 東京都中央区銀座二丁目１６番１２号 銀座大塚ビル２階 Tokyo (JP).

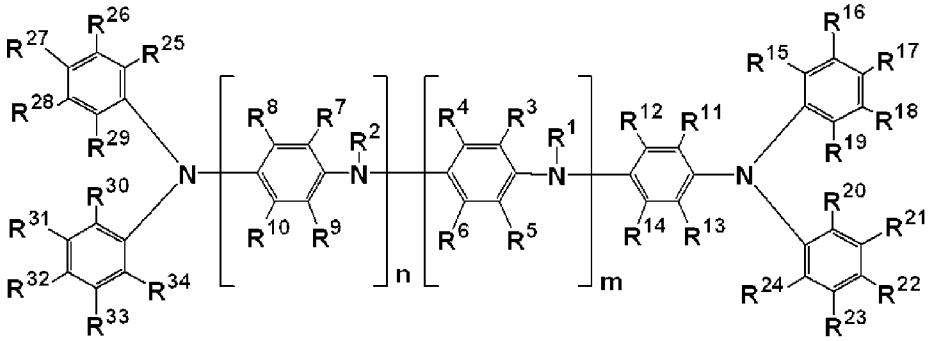
(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, 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, 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,

[続葉有]

(54) **Title:** OLIGOANILINE COMPOUND

(54) **発明の名称:** オリゴアニリン化合物



(1)

(57) **Abstract:** Any of the oligoaniline compounds with a triphenylamine structure represented by the formula (1) exhibits satisfactory light emitting efficiency and brightness performance when used in either an OLED device or a PLED device, and is further satisfactory in the solubility in organic solvents so as to be applicable to various coating methods. (1) (each of R^1 and R^2 independently is a hydrogen atom, an optionally substituted monovalent hydrocarbon group, t-butoxycarbonyl, etc.; each of R^3 to R^{34} independently is a hydrogen atom, hydroxyl, silanol, thiol, carboxyl, a phosphoric group, a phosphoric ester group, ester, thioester, amido, nitro, an optionally substituted monovalent hydrocarbon group, etc.; and each of m and n is an integer of 1 or greater provided that they satisfy the relationship $m+n \leqq 20$).

(57) 要約: 式（１）で表されるトリフェニルアミン構造を有するオリゴアニリン化合物は、ＯＬＥＤ素子およびＰＬＥＤ素子のどちらに使用した場合においても良好な発光効率および輝度特性を発現し得、かつ、有機溶媒に対する溶解性が良好であるため各種塗布方式に適用可能である。（R^1およびR^2は、それぞれ独立して水素原子、置換もしくは非置換の一価炭化水素基、ｔ－ブトキシカルボニル基等を示し、R^3～R^{34}は、それぞれ独立して水素原子、水酸基、シラノール基、チオール基、カルボキシル基、リン酸基、リン酸エステル基、エステル基、チオエステル基、アミド基、ニトロ基、置換もしくは非置換の一価炭化水素基等を示し、ｍおよびｎは１以上の整数で、ｍ＋ｎ≦２０を満足する。）

WO 2008/129947 A1

CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, 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:
— **国際調査報告書**

明 細 書

オリゴアニリン化合物

技術分野

[0001] 本発明は、オリゴアニリン化合物に関し、さらに詳述すると、トリフェニルアミン構造を含むオリゴアニリン化合物、およびこの化合物の電荷輸送性物質としての利用、並びにこの化合物を含む電荷輸送性ワニスに関する。

背景技術

[0002] 従来、低分子有機エレクトロルミネッセンス(以下、OLEDと略す)素子では、正孔注入層として銅フタロシアニン(CuPC)層を設けることによって、駆動電圧の低下や発光効率向上等の初期特性向上、さらには寿命特性向上を実現し得ることが報告されている(非特許文献1:アプライド・フィジックス・レターズ(Applied Physics Letters)、米国、1996年、69巻、p. 2160－2162)。

一方、高分子発光材料を用いた有機エレクトロルミネッセンス(以下、PLEDと略す)素子では、ポリアニリン系材料(特許文献1:特開平3－273087号公報、非特許文献2:ネイチャー(Nature)、英国、1992年、第357巻、p. 477－479)や、ポリチオフェン系材料(非特許文献3:アプライド・フィジックス・レターズ(Applied Physics Letters)、米国、1998年、72巻、p. 2660－2662)からなる薄膜を正孔輸送層として用いることで、OLED素子と同様の効果が得られることが報告されている。

[0003] 近年、高溶解性の低分子オリゴアニリン系材料やオリゴチオフェン系材料を利用し、有機溶媒に完全溶解させた均一系溶液からなる電荷輸送性ワニスが見出された。そして、このワニスから得られる正孔注入層を有機エレクトロルミネッセンス(以下、有機ELという)素子中に挿入することで、下地基板の平坦化効果や、優れたEL素子特性が得られることが報告されている(特許文献2:特開2002－151272号公報、特許文献3:国際公開第2005／043962号パンフレット)。

当該低分子オリゴマー化合物は、それ自体の粘度が低く、通常の有機溶媒を使用した場合、成膜操作におけるプロセスマージンが狭いため、スピンコート、インクジェット塗布、スプレー塗布等の種々の塗布方式や、種々の焼成条件を用いる場合、高

い均一性を有する成膜を行うことは困難であった。

しかし、各種添加溶媒を用いることで、粘度や、沸点および蒸気圧の調整が可能となり、種々の塗布方式に対応して高い均一性を有する成膜面を得ることが可能になってきている(特許文献4:国際公開第2004／043117号パンフレット、特許文献5:国際公開第2005／107335号パンフレット)。

[0004] このように、低分子オリゴマー化合物は、近年、有機EL素子中の正孔注入層として用いられるようになってきている。

しかし、スピンコート、インクジェット塗布、スプレー塗布等の種々の塗布方式に容易に対応し得るように、低分子オリゴマー化合物の溶解性のさらなる改善が求められているとともに、導電性、並びに有機EL素子に使用したときの発光効率および輝度特性の一層の向上が望まれている。

中でも、発光効率および輝度特性の向上は、OLED素子およびPLED素子のどちらにとっても重要な課題である。

正孔注入層の特性としては、発光層への正孔注入能、発光層からの電子ブロック能および発光層の励起子の失活抑制能等が挙げられる。これらの機能は、上述した有機EL素子の発光効率や輝度特性に大きな影響を及ぼすため、正孔注入層として優れた機能を実現し得る低分子オリゴマー化合物が求められている。

[0005] なお、ポリスチレンスルホン酸やポリアニリン等の導電性ポリマーを含む組成物に、シラン化合物を添加することで、この組成物から作製された薄膜を備える有機EL素子の寿命が延びることが報告されている(特許文献6参照)が、低分子オリゴマー化合物を含む電荷輸送性ワニスに、シラン化合物を添加した例は報告されていない。

[0006] 特許文献1:特開平3－273087号公報

特許文献2:特開2002－151272号公報

特許文献3:国際公開第2005／043962号パンフレット

特許文献4:国際公開第2004／043117号パンフレット

特許文献5:国際公開第2005／107335号パンフレット

特許文献6:特開2003－45667号公報

非特許文献1:アプライド・フィジックス・レターズ、米国、1996年、69巻、p. 2160－

2162

非特許文献2:ネイチャー、英国、1992年、第357巻、p. 477－479

非特許文献3:アプライド・フィジックス・レターズ、米国、1998年、72巻、p. 2660－2662

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0007] 本発明は、このような事情に鑑みてなされたものであり、OLED素子およびPLED素子のどちらに使用した場合においても良好な発光効率および輝度特性を発現し得、かつ、有機溶媒に対する溶解性が良好であるため各種塗布方式に適用可能なオリゴアニリン化合物を提供することを目的とする。

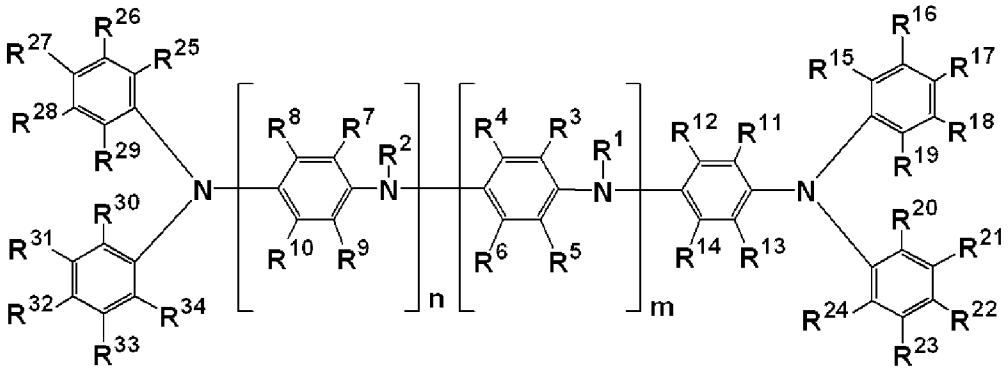
課題を解決するための手段

[0008] 本発明者は、上記目的を達成するために鋭意検討を重ねた結果、分子鎖両末端にトリフェニルアミン構造を含むオリゴアニリン化合物が、有機溶媒に対する溶解性が良好であるとともに、電荷受容性物質と組み合わせて使用した場合に高電荷輸送性を示し、有機EL素子の正孔注入層として用いると、高い発光効率および輝度特性を発現し得ることを見出し、本発明を完成した。

[0009] すなわち、本発明は、

1. 式(1)で表されることを特徴とするオリゴアニリン化合物、

[化1]



(1)

(式中、R^1およびR^2は、それぞれ独立して、水素原子、置換もしくは非置換の一価炭化水素基、t－ブトキシカルボニル基、またはベンジルオキシカルボニル基を示し、R^3

～R^{34}は、それぞれ独立して水素原子、水酸基、シラノール基、チオール基、カルボキシル基、リン酸基、リン酸エステル基、エステル基、チオエステル基、アミド基、ニトロ基、置換もしくは非置換の一価炭化水素基、オルガノオキシ基、オルガノアミノ基、オルガノシリル基、オルガノチオ基、アシル基、スルホン基またはハロゲン原子を示し、mおよびnは、それぞれ独立して1以上の整数で、m＋n≦20を満足する。）

2. 前記R^1およびR^2が、それぞれ独立して水素原子またはt－ブトキシカルボニル基であり、前記R^3～R^{34}が、それぞれ独立して水素原子、置換もしくは非置換の一価炭化水素基、オルガノオキシ基、オルガノアミノ基、またはハロゲン原子であり、前記mおよびnが、それぞれ独立して1以上の整数で、m＋n≦10を満足する1のオリゴアニリン化合物、

3. 前記R^3～R^{34}が、それぞれ独立して水素原子、置換もしくは非置換の一価炭化水素基、またはハロゲン原子であり、mおよびnが、それぞれ独立して、1以上の整数で、m＋n≦5を満足する2のオリゴアニリン化合物、

4. 前記R^3～R^{34}における一価炭化水素基が、フェニル基、ビフェニル基、ナフチル基、または置換もしくは非置換アリールアミンである2のオリゴアニリン化合物、

5. 前記ハロゲン原子が、フッ素原子である2のオリゴアニリン化合物、

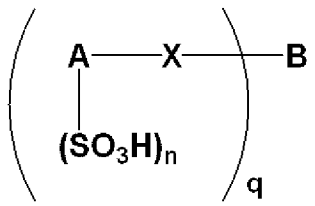
6. 1のオリゴアニリン化合物の酸化体であるキノンジイミン化合物、

7. 1～5のいずれかのオリゴアニリン化合物、または6のキノンジイミン化合物を含む電荷輸送性ワニス、

8. さらに電子受容性ドーパント物質または正孔受容性ドーパント物質を含む7の電荷輸送性ワニス、

9. 前記電子受容性ドーパント物質が、式(2)で表されるアリールスルホン酸誘導体である8の電荷輸送性ワニス、

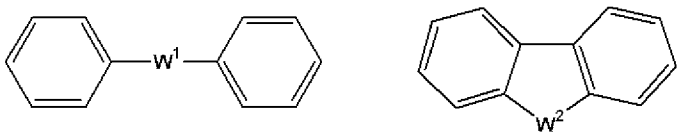
[化2]



(2)

〔式中、Xは、O、SまたはNHを表し、Aは、Xおよびn個の(SO_3H)基以外の置換基を有していてもよいナフタレン環またはアントラセン環を表し、Bは、非置換もしくは置換の炭化水素基、1，3，5－トリアジン基、または非置換もしくは置換の下記式(3)もしくは(4)

[化3]



(3) (4)

で示される基(式中、W^1およびW^2は、それぞれ独立して、O、S、S(O)基、S(O_2)基、または非置換もしくは置換基が結合したN、Si、P、P(O)基を示す。)を表し、nは、Aに結合するスルホン酸基数を表し、$1 \leqq n \leqq 4$を満たす整数であり、qは、BとXとの結合数を示し、$1 \leqq q$を満たす整数である。〕

10．さらに、少なくとも1種のシラン化合物を含む7～9のいずれかの電荷輸送性ワニス、

11．有機溶媒を溶剤とする10の電荷輸送性ワニス、

12．前記有機溶媒に対して0．0001～10質量%の水を含む11の電荷輸送性ワニス、

13．前記シラン化合物が、前記電荷輸送性ワニスの固形分の総質量に対して、1～50質量%含まれる10～12のいずれかの電荷輸送性ワニス、

14．前記シラン化合物が、ジアルコキシシラン化合物、トリアルコキシシラン化合物、テトラアルコキシシラン化合物、およびシリコーン化合物から選ばれる少なくとも1種である10～13のいずれかの電荷輸送性ワニス、

15．前記シラン化合物が、トリアルコキシシラン化合物である14の電荷輸送性ワニス、

16．前記トリアルコキシシラン化合物が、式(27)で表される15の電荷輸送性ワニス、

$$Y^1Si(OY^2)_3 \qquad (27)$$

(式中、Y^1は、ハロゲン原子、水素原子、またはZで置換されていてもよい、炭素数1

～12アルキル基、炭素数2～12アルケニル基、炭素数2～12アルキニル基、アリール基、もしくはヘテロアリール基を表し、Y^2は、炭素数1～12アルキル基を表し、Zは、ハロゲン原子、水素原子、炭素数1～12ハロアルキル基、炭素数1～12アルキル基、ヒドロキシル基、メルカプト基、アミノ基、炭素数1～12ハロアルコキシ基、炭素数1～12アルコキシ基、炭素数2～12アルケニル基、炭素数2～12ハロアルケニル基、炭素数2～12アルキニル基、炭素数2～12ハロアルキニル基、炭素数1～12アルキルチオ基、炭素数1～12モノアルキルアミノ基、炭素数1～12ジアルキルアミノ基、グリシドキシ基、炭素数1～12アルキルカルボニル基、炭素数2～12アルケニルカルボニル基、炭素数2～12アルキニルカルボニル基、炭素数1～12アルキルカルボニルオキシ基、炭素数2～12アルケニルカルボニルオキシ基、炭素数2～12アルキニルカルボニルオキシ基、アリール基、ハロゲン化アリール基、ヘテロアリール基、またはハロゲン化ヘテロアリール基を表す。）

17. 前記Zが、ハロゲン原子、水素原子、炭素数1～12ハロアルキル基、炭素数1～12アルキル基、炭素数2～12アルケニル基、炭素数2～12ハロアルケニル基、炭素数2～12アルキニル基、炭素数2～12ハロアルキニル基、アリール基、ハロゲン化アリール基、ヘテロアリール基、またはハロゲン化ヘテロアリール基を表す16の電荷輸送性ワニス、

18. 前記Y^1が、フッ素原子、水素原子、Zで置換されていてもよい、炭素数1～12アルキル基、炭素数2～12アルケニル基、炭素数2～12アルキニル基、アリール基、またはヘテロアリール基であり、前記Zが、ハロゲン原子、水素原子、炭素数1～12ハロアルキル基、炭素数1～12アルキル基、炭素数2～12アルケニル基、炭素数2～12ハロアルケニル基、炭素数2～12アルキニル基、炭素数2～12ハロアルキニル基、アリール基、ハロゲン化アリール基、ヘテロアリール基、またはハロゲン化ヘテロアリール基を表す16の電荷輸送性ワニス、

19. 前記シラン化合物が、ジアルコキシシラン化合物である14の電荷輸送性ワニス、

20. 前記ジアルコキシシラン化合物が、式(28)で表される19の電荷輸送性ワニス、

$Y^3Y^4Si(OY^5)_2$ (28)

(Y^3およびY^4は、互いに独立して、ハロゲン原子、またはZで置換されていてもよい、炭素数1～12アルキル基、炭素数2～12アルケニル基、炭素数2～12アルキニル基、アリール基、もしくはヘテロアリール基を表し、Y^5は、炭素数1～12アルキル基を表し、Zは、ハロゲン原子、水素原子、炭素数1～12ハロアルキル基、炭素数1～12アルキル基、ヒドロキシル基、メルカプト基、アミノ基、炭素数1～12ハロアルコキシ基、炭素数1～12アルコキシ基、炭素数2～12アルケニル基、炭素数2～12ハロアルケニル基、炭素数2～12アルキニル基、炭素数2～12ハロアルキニル基、炭素数1～12アルキルチオ基、炭素数1～12モノアルキルアミノ基、炭素数1～12ジアルキルアミノ基、グリシドキシ基、炭素数2～12アルキルカルボニル基、炭素数2～12アルケニルカルボニル基、炭素数2～12アルキニルカルボニル基、炭素数1～12アルキルカルボニルオキシ基、炭素数2～12アルケニルカルボニルオキシ基、炭素数2～12アルキニルカルボニルオキシ基、アリール基、ハロゲン化アリール基、ヘテロアリール基、またはハロゲン化ヘテロアリール基を表す。)

21. 前記Zが、ハロゲン原子、水素原子、炭素数1～12ハロアルキル基、炭素数1～12アルキル基、炭素数2～12アルケニル基、炭素数2～12ハロアルケニル基、炭素数2～12アルキニル基、炭素数2～12ハロアルキニル基、アリール基、ハロゲン化アリール基、ヘテロアリール基、またはハロゲン化ヘテロアリール基を表す20の電荷輸送性ワニス、

22. 前記Y^3およびY^4が、互いに独立して、フッ素原子、水素原子、Zで置換されていてもよい、炭素数1～12アルキル基、炭素数2～12アルケニル基、炭素数2～12アルキニル基、アリール基、またはヘテロアリール基であり、前記Zが、ハロゲン原子、水素原子、炭素数1～12ハロアルキル基、炭素数1～12アルキル基、炭素数2～12アルケニル基、炭素数2～12ハロアルケニル基、炭素数2～12アルキニル基、炭素数2～12ハロアルキニル基、アリール基、ハロゲン化アリール基、ヘテロアリール基、またはハロゲン化ヘテロアリール基を表す20の電荷輸送性ワニス、

23. 前記シラン化合物が、テトラアルコキシシラン化合物である14の電荷輸送性ワニス、

24. 前記テトラアルコキシシラン化合物が、式(29)で表される23の電荷輸送性ワニス、

$Si(OY^6)_2$ (29)

(式中、Y^6は、炭素数1～12アルキル基を表す。)

25. 前記Y^6が、メチル基、エチル基、またはプロピル基である24の電荷輸送性ワニス、

26. 前記シラン化合物が、ジアルコキシシラン化合物、トリアルコキシシラン化合物、テトラアルコキシシラン化合物、およびシリコーン化合物から選ばれる2種以上の組み合わせである10の電荷輸送性ワニス、

27. 前記シラン化合物が、トリアルコキシシラン化合物、テトラアルコキシシラン化合物、およびジアルコキシシラン化合物から選ばれる2種以上の組み合わせである10の電荷輸送性ワニス、

28. 前記シラン化合物が、2種以上のトリアルコキシシラン化合物の組み合わせである10の電荷輸送性ワニス、

29. 前記シラン化合物が、2種以上のテトラアルコキシシラン化合物の組み合わせである10の電荷輸送性ワニス、

30. 前記シラン化合物が、2種以上のジアルコキシシラン化合物の組み合わせである10の電荷輸送性ワニス、

31. 前記シラン化合物が、1種または2種以上のトリアルコキシシラン化合物と、1種または2種以上のテトラアルコキシシラン化合物との組み合わせである10の電荷輸送性ワニス、

32. 前記シラン化合物が、1種または2種以上のトリアルコキシシラン化合物と、1種または2種以上のジアルコキシシラン化合物との組み合わせである10の電荷輸送性ワニス、

33. 前記シラン化合物が、1種または2種以上のトリアルコキシシラン化合物と、1種または2種以上のシリコーン化合物との組み合わせである10の電荷輸送性ワニス、

34. 前記シラン化合物が、1種または2種以上のテトラアルコキシシラン化合物と、1種または2種以上のジアルコキシシラン化合物との組み合わせである10の電荷輸送

性ワニス、

35． 前記シラン化合物が、1種または2種以上のテトラアルコキシシラン化合物と、1種または2種以上のシリコーン化合物との組み合わせである10の電荷輸送性ワニス、

36． 前記シラン化合物が、1種または2種以上のジアルコキシシラン化合物と、1種または2種以上のシリコーン化合物との組み合わせである10の電荷輸送性ワニス、

37． 1～5のいずれかのオリゴアニリン化合物、または6のキノンジイミン化合物を含む電荷輸送性薄膜、

38． 7～36のいずれかの電荷輸送性ワニスから作製される電荷輸送性薄膜、

39． 37または38の電荷輸送性薄膜を備える有機エレクトロルミネッセンス素子

を提供する。

発明の効果

[0010] 本発明のトリフェニルアミン構造を有するオリゴアニリン化合物は、ホッピング移動度が高いため良好な導電性を有している。したがって、このオリゴアニリ化合物から得られた薄膜も良好な導電性を有しており、その結果、この薄膜を含む有機EL素子の特性を改善できる。

また、本発明のトリフェニルアミン構造を有するオリゴアニリン化合物と、シラン化合物とを併用して得られた薄膜を有機EL素子に用いることで、有機EL素子の寿命を著しく延ばすことができるのみならず、有機EL素子の輝度の向上を図ることもできる。

なお、導電性高分子や共役系高分子の電荷は1分子内の主鎖方向へ移動するため、高い導電率が発現される。このため、導電性を向上させる方法として、通常、最小繰り返し単位を増加させ、主鎖を伸ばす方法が取られている。これに対し、本発明のトリフェニルアミン構造を含むオリゴアニリン化合物は、最小繰り返し単位を増加させて主鎖を伸ばす方法ではなく、上述のように、隣接分子間への電荷ホッピング移動に着目して、これを向上させて導電率を改善するものである。

また、本発明のオリゴアニリン化合物から得られる薄膜は、高平坦性および高電荷輸送性を有しているため、この特性を利用して、当該薄膜を太陽電池の正孔輸送層

、燃料電池用電極、コンデンサ電極保護膜、帯電防止膜へ応用することもできる。

発明を実施するための最良の形態

[0011] 以下、本発明についてさらに詳しく説明する。

式(1)で表されるオリゴアニリン化合物において、R^1およびR^2は、それぞれ独立して、水素原子、置換もしくは非置換の一価炭化水素基、t－ブトキシカルボニル基、またはベンジルオキシカルボニル基を表す。

上記一価炭化水素基における炭素数は、特に限定されるものではないが、炭素数1～20が好ましく、1～8がより好ましい。

置換または非置換一価炭化水素基の具体例としては、メチル基、エチル基、n－プロピル基、i－プロピル基、n－ブチル基、i－ブチル基、t－ブチル基、n－ヘキシル基、n－オクチル基、2－エチルヘキシル基、デシル基等のアルキル基;シクロペンチル基、シクロヘキシル基等のシクロアルキル基;ビシクロヘキシル基等のビシクロアルキル基;ビニル基、1－プロペニル基、2－プロペニル基、イソプロペニル基、1－メチル－2－プロペニル基、1または2または3－ブテニル基、ヘキセニル基等のアルケニル基;フェニル基、キシリル基、トリル基、ビフェニル基、ナフチル基等のアリール基;ベンジル基、フェニルエチル基、フェニルシクロヘキシル基等のアラルキル基等や、これらの一価炭化水素基の水素原子の一部または全部がハロゲン原子、水酸基、アルコキシ基、スルホン基などで置換されたものが挙げられる。

なお、非置換とは水素原子が結合していることを意味する。また、置換基において、置換基同士が連結されて環状である部分を含んでいてもよい。

[0012] 上記R^1およびR^2は、それぞれ独立して水素原子、メチル基、エチル基、またはt－ブトキシカルボニル基が好ましく、特に、水素原子、t－ブトキシカルボニル基が好ましい。

すなわち、R^1およびR^2が、共に水素原子のもの、共にt－ブトキシカルボニル基のもの、R^1が水素原子でR^2がt－ブトキシカルボニル基のもの、R^1がt－ブトキシカルボニル基でR^2が水素原子のものが好適である。

[0013] 上記式(1)において、R^3～R^{34}は、それぞれ独立して水素原子、水酸基、アミノ基、シラノール基、チオール基、カルボキシル基、リン酸基、リン酸エステル基、エステル

基、チオエステル基、アミド基、ニトロ基、置換または非置換の一価炭化水素基、オルガノオキシ基、オルガノアミノ基、オルガノシリル基、オルガノチオ基、アシル基、スルホン基、ハロゲン原子などを表す。

置換または非置換の一価炭化水素基の具体例としては上記と同様のものが挙げられる。

オルガノオキシ基の具体例としては、アルコキシ基、アルケニルオキシ基、アリールオキシ基などが挙げられ、これらのアルキル基、アルケニル基としても、上記で例示した置換基と同様のものが挙げられる。

[0014] オルガノアミノ基の具体例としては、メチルアミノ基、エチルアミノ基、プロピルアミノ基、ブチルアミノ基、ペンチルアミノ基、ヘキシルアミノ基、ヘプチルアミノ基、オクチルアミノ基、ノニルアミノ基、デシルアミノ基、ラウリルアミノ基等のアルキルアミノ基;ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジプロピルアミノ基、ジブチルアミノ基、ジペンチルアミノ基、ジヘキシルアミノ基、ジヘプチルアミノ基、ジオクチルアミノ基、ジノニルアミノ基、ジデシルアミノ基等のジアルキルアミノ基;ジシクロヘキシルアミノ基等のジシクロアルキルアミノ基;モルホリノ基;ビフェニルアミノ基等のアリールアミノ基などが挙げられる。

オルガノシリル基の具体例としては、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、トリプロピルシリル基、トリブチルシリル基、トリペンチルシリル基、トリヘキシルシリル基、ペンチルジメチルシリル基、ヘキシルジメチルシリル基、オクチルジメチルシリル基、デシルジメチルシリル基などが挙げられる。

[0015] オルガノチオ基の具体例としては、メチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、ブチルチオ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基、ヘプチルチオ基、オクチルチオ基、ノニルチオ基、デシルチオ基、ラウリルチオ基などのアルキルチオ基が挙げられる。

アシル基の具体例としては、ホルミル基、アセチル基、プロピオニル基、ブチリル基、イソブチリル基、バレリル基、イソバレリル基、ベンゾイル基等が挙げられる。

ハロゲン原子としては、塩素、臭素、フッ素、ヨウ素原子が挙げられる。

リン酸エステル基としては、$-P(O)(OQ^1)(OQ^2)$が挙げられる。

エステル基としては、－C(O)OQ^1、－OC(O)Q^1が挙げられる。

チオエステル基としては、－C(S)OQ^1、－OC(S)Q^1が挙げられる。

アミド基としては、－C(O)NHQ^1、－NHC(O)Q^1、－C(O)NQ^1Q^2、－NQ^1C(O)Q^2が挙げられる。

ここで、上記Q^1およびQ^2は、アルキル基、アルケニル基またはアリール基を示し、これらについては、上記一価炭化水素基で例示した基と同様のものが挙げられる。

[0016] R^3～R^{34}において、上記一価炭化水素基、オルガノオキシ基、オルガノアミノ基、オルガノシリル基、オルガノチオ基、アシル基、リン酸エステル基、エステル基、チオエステル基およびアミド基などにおける炭素数は、特に限定されるものではないが、一般に炭素数1～20、好ましくは1～8である。

[0017] これらの中でも、R^3～R^{34}としては、互いに独立して水素原子、置換もしくは非置換の一価炭化水素基、オルガノオキシ基、オルガノアミノ基、またはハロゲン原子が好ましく、特に、水素原子、置換もしくは非置換の一価炭化水素基、またはハロゲン原子が好適である。

ここで、一価炭化水素基としては、フェニル基、ビフェニル基またはナフチル基が好適である。

ハロゲン原子としては、フッ素原子が好適である。オルガノアミノ基としては、アリールアミノ基が好ましく、特にビフェニルアミノ基が好適である。

[0018] 上記式(1)において、mおよびnは、それぞれ独立して1以上、かつ、m＋n≦20を満たす整数であるが、特に、m＋n≦10を満たすことが好ましく、m＋n≦5を満たすことがより好ましい。

これらの範囲に調整することで、良好な電荷輸送性を発揮させつつ、各種溶媒に対する溶解性を確保することが容易になる。

[0019] 式(1)のオリゴアニリン化合物は、溶解性を高めるとともに、電荷輸送性を均一にするということを考慮すると、分子量分布のない、換言すれば、分散度が1のオリゴアニリン化合物であることが好ましい。

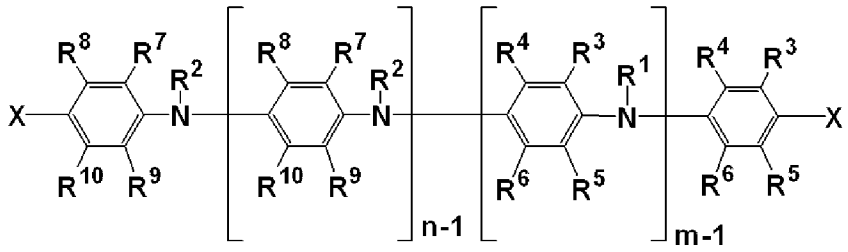
その分子量は、材料の揮発の抑制および電荷輸送性発現のために、下限として通常200以上、好ましくは400以上であり、また溶解性向上のために、上限として通常5

000以下、好ましくは3000以下である。

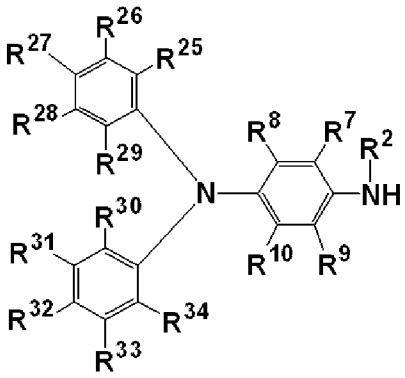
[0020] 上記式(1)で表されるオリゴアニリン化合物の製造方法としては、例えば、以下の方法を挙げることができる。

すなわち、下記オリゴアニリン化合物(5)のハロゲン原子Xに対し、式(6)および(7)のトリフェニルアミン構造を有するアミン化合物を作用させる、または、下記式(5′)のオリゴアニリン化合物のハロゲン原子Xに対し、式(6′)および(7′)のジフェニルアミン構造を有するアミン化合物を作用させる。この場合、反応の方法は、特に限定されるものではなく、例えば、一般的な求核置換反応を用いることができる。

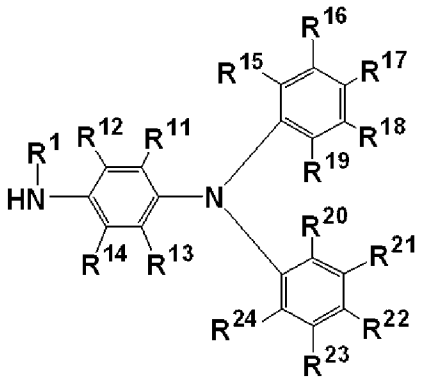
[0021] [化4]



(5)

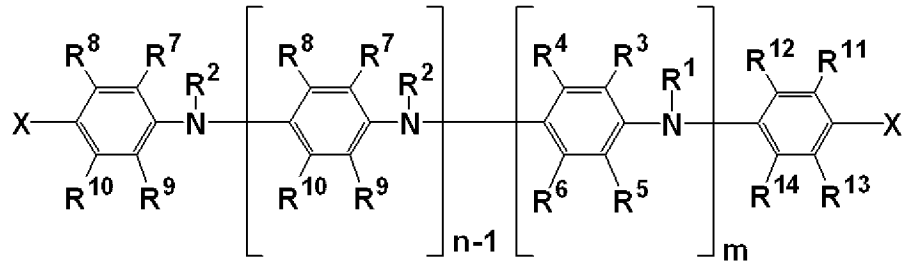


(6)

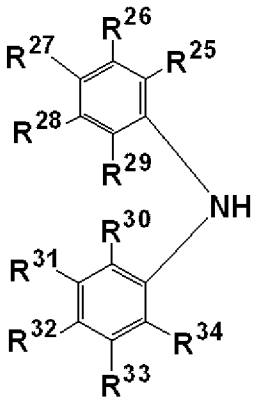


(7)

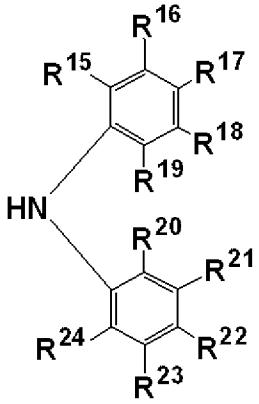
[0022] [化5]



（5′）



（6′）



（7′）

[0023] オリゴアニリン化合物(5)および(5′)は、その構造中のアミノ基が保護された化合物を使用することもできる。アミノ基の保護基としては、上述したt－ブトキシカルボニル基、ベンジルオキシカルボニル基等が挙げられる。

式(6)および(6′)、または(7)および(7′)のアミン化合物の使用量は、オリゴアニリン化合物(5)または(5′)に対して2倍モルが好適である。

[0024] オリゴアニリン化合物(5)と、式(6)もしくは(6′)、または(7)もしくは(7′)のアミン化合物とを反応させる場合、触媒を用いることもできる。この触媒としては、例えば、酢酸パラジウム(II)、トリス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)、(1，1’－ビス－(ジフェニルホスフィノ)フェロセン)ジクロロパラジウム等が挙げられる。また、配位子として、(トリ－t－ブチルホスフィン)、(2，2’－ビス－(ジフェニルホスフィノ)－1，1’－ビナフチル)、(トリ－o－トレイルホスフィン)等、塩基として、NaOtBu，$CsCO_3$，K_2CO_3、NaOPh等、溶媒としては、トルエン、キシレン、THF，NMP，DMF、1，4－ジオキサン等が挙げられる。

[0025] 反応温度は、0～160℃の範囲が好ましい。反応時間は、通常、0．1～100時間である。反応終了後、反応溶媒の留去、固－液抽出または液－液抽出による無機塩の除去、再結晶、シリカゲルカラムクロマトグラフィー等によって、精製することができる。

[0026] なお、アミノ基が保護されたオリゴアニリン化合物を使用した場合は、トリフルオロ酢

酸、塩酸等の強酸を作用させることで保護基を除くことができる。

また、アミノ基が保護されたオリゴアニリン化合物と酸系のドーパントを含む電荷輸送性ワニスとした場合は、薄膜作製時に保護基が脱離するので、この場合、アミノ基が保護されたオリゴアニリン化合物をそのまま電荷輸送性物質として用いることもできる。

特に、アミノ基が保護されたオリゴアニリン化合物は、保護されていない化合物よりも有機溶媒に対する溶解性に優れており、高溶解性を示すホストとして好適に用いることができる。

[0027] 本発明に係る電荷輸送性ワニスは、電荷輸送性物質として、式(1)で表されるオリゴアニリン化合物、またはオリゴアニリン化合物の酸化体であるキノンジイミン化合物を含むものである。

ここで、電荷輸送性ワニスとは、電荷輸送機構の本体である本発明のオリゴアニリン化合物からなる電荷輸送物質、またはこの電荷輸送物質および電子もしくは正孔受容性ドーパント物質からなる電荷輸送性有機材料を少なくとも1種の溶媒に溶解または分散してなるものである。

なお、電荷輸送性とは、導電性と同義であり、正孔輸送性、電子輸送性、正孔および電子の両電荷輸送性のいずれかを意味する。本発明の電荷輸送性ワニスは、それ自体に電荷輸送性があるものでもよく、ワニスを使用して得られる固体膜に電荷輸送性があるものでもよい。

[0028] 本発明の電荷輸送性ワニスの電荷輸送能等を向上させるために、必要に応じて用いられる電荷受容性ドーパント物質としては、正孔輸送性物質に対しては電子受容性ドーパント物質を、電子輸送性物質に対しては正孔受容性ドーパント物質を用いることができるが、いずれも高い電荷受容性を有することが好ましい。電荷受容性ドーパント物質の溶解性に関しては、ワニスに使用する少なくとも一種の溶媒に溶解するものであれば特に限定されない。

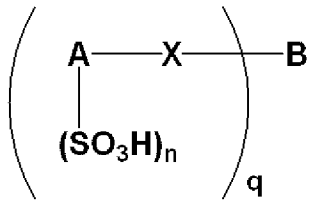
[0029] 電子受容性ドーパント物質の具体例としては、塩化水素、硫酸、硝酸、リン酸等の無機強酸;塩化アルミニウム(III)($AlCl_3$)、四塩化チタン(IV)($TiCl_4$)、三臭化ホウ素(BBr_3)、三フッ化ホウ素エーテル錯体($BF_3 \cdot OEt_2$)、塩化鉄(III)($FeCl_3$)、塩化

銅(II)($CuCl_2$)、五塩化アンチモン(V)($SbCl_5$)、五フッ化砒素(V)(AsF_5)、五フッ化リン(PF_5)、トリス(4－ブロモフェニル)アルミニウムヘキサクロロアンチモナート(TBPAH)等のルイス酸;ベンゼンスルホン酸、トシル酸、カンファスルホン酸、ヒドロキシベンゼンスルホン酸、5－スルホサリチル酸、ドデシルベンゼンスルホン酸、ポリスチレンスルホン酸、国際公開第2005／000832号パンフレットに記載されている1,4－ベンゾジオキサンジスルホン酸誘導体、国際公開第2006／025342号パンフレットに記載されているアリールスルホン酸誘導体、特開2005－108828号公報に記載されているジノニルナフタレンスルホン酸誘導体等の有機強酸;7,7,8,8－テトラシアノキノジメタン(TCNQ)、2,3－ジクロロ－5,6－ジシアノ－1,4－ベンゾキノン(DDQ)、ヨウ素等の有機または無機酸化剤を挙げることができるが、これらに限定されるものではない。

[0030] 特に好ましい電子受容性ドーパント物質としては、5－スルホサリチル酸、ドデシルベンゼンスルホン酸、ポリスチレンスルホン酸、国際公開第2005／000832号パンフレットに記載されている1,4－ベンゾジオキサンジスルホン酸誘導体、特開2005－108828号公報に記載されているジノニルナフタレンスルホン酸誘導体等の有機強酸である電子受容性ドーパント物質を挙げることができる。

[0031] 式(2)で示されるスルホン酸誘導体も好適に用いることができる。

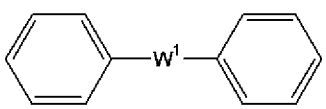
[0032] [化6]



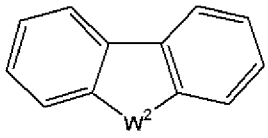
(2)

〔式中、Xは、O、SまたはNHを表し、Aは、Xおよびn個の(SO_3H)基以外の置換基を有していてもよいナフタレン環またはアントラセン環を表し、Bは、非置換もしくは置換の炭化水素基、1,3,5－トリアジン基、または非置換もしくは置換の下記式(3)もしくは(4)

[化7]



（3）



（4）

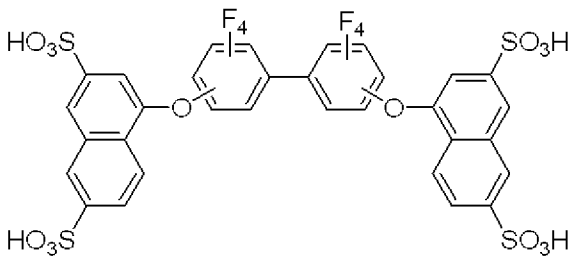
で示される基（式中、W^1およびW^2は、それぞれ独立して、O、S、S（O）基、S（O_2）基、または非置換もしくは置換基が結合したN、Si、P、P（O）基を示す。）を表し、nは、Aに結合するスルホン酸基数を表し、1≦n≦4を満たす整数であり、qは、BとXとの結合数を示し、1≦qを満たす整数である。〕

[0033] Bとしては、耐久性向上および電荷輸送性向上を図ることを考慮すると、一つ以上の芳香環を含んでいる2価以上の非置換もしくは置換の炭化水素基、2価もしくは3価の1，3，5－トリアジン基、置換もしくは非置換の2価のジフェニルスルホン基が好ましく、特に、2価もしくは3価の置換もしくは非置換ベンジル基、2価の置換もしくは非置換p－キシリレン基、2価もしくは3価の置換もしくは非置換ナフチル基、2価もしくは3価の1，3，5－トリアジン基、2価の置換もしくは非置換ジフェニルスルホン基、2～4価のパーフルオロビフェニル基、2価の置換もしくは非置換2，2－ビス（（ヒドロキシプロポキシ）フェニル）プロピル基、置換もしくは非置換ポリビニルベンジル基が好適である。

[0034] 電荷受容性ドーパント物質と電荷輸送性物質との混合比率は、電荷受容性ドーパントの分子構造、電荷輸送性物質の分子構造、受容性ドーパントの分子量、電荷輸送性物質の分子量、導電性膜の目標導電率により異なるが、電荷輸送性物質中のNH構造に対して、電荷受容性ドーパント中のSO_3Hが1：0．01～20（モル比）となる量が好ましく、より好ましくはNH：SO_3H＝1：0．05～10（モル比）である。

特に、本発明の電荷輸送性物質と電荷受容性ドーパント；式（26）で示されるナフタレンジスルホン酸オリゴマー（NSO－2）（国際公開第2006／025342号パンフレット記載の化合物）との組み合わせでは、透明性（ホスト量が少なくなると透過率が向上する）、EL特性（ホストは可視領域に吸収を持っており、励起子からのエネルギー移動を引き起こし易いため、混合比が重要となる）の観点から最適混合モル比は、電荷輸送性物質：電荷受容性ドーパント＝1：0．01～10．0であり、より好ましくは電荷輸送性物質：電荷受容性ドーパント＝1：0．05～4．0である。

[0035] [化8]



(26)

[0036] 正孔受容性ドーパントの具体例としては、アルカリ金属(Li, Na, K, Cs)、リチウムキノリノラート(Liq)、リチウムアセチルアセトナート(Li(acac))等の金属錯体が挙げられるが、これに限定されるものではない。

[0037] また、本発明の電荷輸送性ワニスには、EL素子の低電圧駆動、寿命特性および輝度特性向上のために、シラン化合物を配合してもよい。

このシラン化合物としては、ジアルコキシシラン化合物、トリアルコキシシラン化合物、テトラアルコキシシラン化合物、およびシリコーン化合物から選ばれる少なくとも1種が挙げられ、電荷輸送性ワニスに使用する少なくとも一種の溶媒に溶解するものが好ましい。

シラン化合物の配合量は、多量に配合し過ぎると、素子内へ電流が注入されなくなる虞があるため、電荷輸送性ワニスの固形分の総質量に対して1～50質量%程度が好ましく、1～40質量%がより好ましく、3～35質量%がより一層好ましい。

[0038] トリアルコキシシラン化合物としては、例えば、式(27)で示されるものが挙げられる。

$$Y^1Si(OY^2)_3 \qquad (27)$$

(式中、Y^1は、ハロゲン原子、水素原子、またはZで置換されていてもよい、炭素数1～12アルキル基、炭素数2～12アルケニル基、炭素数2～12アルキニル基、アリール基、もしくはヘテロアリール基を表し、Y^2は、炭素数1～12アルキル基を表し、Zは、ハロゲン原子、水素原子、炭素数1～12ハロアルキル基、炭素数1～12アルキル基、ヒドロキシル基、メルカプト基、アミノ基、炭素数1～12ハロアルコキシ基、炭素数1～12アルコキシ基、炭素数2～12アルケニル基、炭素数2～12ハロアルケニル基、炭素数2～12アルキニル基、炭素数2～12ハロアルキニル基、炭素数1～12アルキルチオ基、炭素数1～12モノアルキルアミノ基、炭素数1～12ジアルキルアミノ基、

グリシドキシ基、炭素数1～12アルキルカルボニル基、炭素数2～12アルケニルカルボニル基、炭素数2～12アルキニルカルボニル基、炭素数1～12アルキルカルボニルオキシ基、炭素数2～12アルケニルカルボニルオキシ基、炭素数2～12アルキニルカルボニルオキシ基、アリール基、ハロゲン化アリール基、ヘテロアリール基、またはハロゲン化ヘテロアリール基を表す。)

[0039] ジアルコキシシラン化合物としては、例えば、式(28)で示されるものが挙げられる。

$Y^3Y^4Si(OY^5)_2$ (28)

(Y^3およびY^4は、互いに独立して、ハロゲン原子、またはZで置換されていてもよい、炭素数1～12アルキル基、炭素数2～12アルケニル基、炭素数2～12アルキニル基、アリール基、もしくはヘテロアリール基を表し、Y^5は、炭素数1～12アルキル基を表し、Zは、ハロゲン原子、水素原子、炭素数1～12ハロアルキル基、炭素数1～12アルキル基、ヒドロキシル基、メルカプト基、アミノ基、炭素数1～12ハロアルコキシ基、炭素数1～12アルコキシ基、炭素数2～12アルケニル基、炭素数2～12ハロアルケニル基、炭素数2～12アルキニル基、炭素数2～12ハロアルキニル基、炭素数1～12アルキルチオ基、炭素数1～12モノアルキルアミノ基、炭素数1～12ジアルキルアミノ基、グリシドキシ基、炭素数1～12アルキルカルボニル基、炭素数2～12アルケニルカルボニル基、炭素数2～12アルキニルカルボニル基、炭素数1～12アルキルカルボニルオキシ基、炭素数2～12アルケニルカルボニルオキシ基、炭素数2～12アルキニルカルボニルオキシ基、アリール基、ハロゲン化アリール基、ヘテロアリール基、またはハロゲン化ヘテロアリール基を表す。)

[0040] テトラアルコキシシラン化合物としては、例えば、式(29)で示されるものが挙げられる。

$Si(OY^6)_2$ (29)

(式中、Y^6は、炭素数1～12アルキル基を表す。)

[0041] Y^1、Y^3およびY^4において、ハロゲン原子としては、式(1)で述べたものと同様のものが挙げられるが、中でもフッ素原子が好ましい。

Zで置換されていてもよい炭素数1～12アルキル基は、直鎖、分岐、環状のいずれでもよく、その具体例としては、式(1)の一価炭化水素基のアルキル基、シクロアルキ

ル基、ビシクロアルキル基で例示したものに加え、s－ブチル、n－ペンチル、n－ヘプチル、n－ノニル、n－デシル、n－ウンデシル、n－ドデシル、c－プロピル、c－ブチル、c－ペンチル、c－ヘキシルが挙げられる。

Zで置換されていてもよい炭素数2～12アルケニル基の具体例としては、式(1)の一価炭化水素基のアルケニル基で例示したものが挙げられる。

[0042] Zで置換されていてもよい炭素数2～12アルキニル基の具体例としては、エチニル基、1－プロピニル基、2－プロピニル基、2－メチル－1－プロピニル基、1－メチル－2－プロピニル基、1または2または3－ブチニル基等が挙げられる。

Zで置換されていてもよいアリール基の具体例としては、式(1)の一価炭化水素基のアリール基で例示したものが挙げられる。

Zで置換されていてもよいヘテロアリール基としては、チオフェン－2－イル基、フラン－2－イル基、ピロール－2－イル基、イミダゾール－2－イル基、ピリジン－2－イル基、ピリミジン－2－イル基等が挙げられる。

[0043] これらの中でも、Y^1、Y^3およびY^4としては、有機EL素子の長寿命化および輝度向上を考慮すると、フッ素原子、水素原子、Zで置換されていてもよい、炭素数1～12アルキル基、炭素数2～12アルケニル基、炭素数2～12アルキニル基、アリール基、またはヘテロアリール基が好ましい。

[0044] Zにおいて、炭素数1～12アルキル基、炭素数2～12アルケニル基、炭素数2～12アルキニル基、アリール基、ヘテロアリール基およびハロゲン原子の具体例としては、上述と同様のものが挙げられる。

炭素数1～12ハロアルキル基の具体例としては、トリフルオロメチル基、2，2，2－トリフルオロエチル基、1，1，2，2，2－ペンタフルオロエチル基、3，3，3－トリフルオロプロピル基、2，2，3，3，3－ペンタフルオロプロピル基、パーフルオロプロピル基、ヘプタフルオロイソプロピル基、パーフルオロブチル基、パーフルオロペンチル基、パーフルオロヘキシル基、パーフルオロヘプチル基、パーフルオロオクチル基、パーフルオロノニル基、パーフルオロデシル基、パーフルオロウンデシル基、パーフルオロドデシル基、ヘプタデカフルオロー1，1，2，2－テトラヒドロデシル等が挙げられる。

[0045] 炭素数1～12ハロアルコキシ基の具体例としては、トリフルオロメトキシ基、2，2，2－トリフルオロエトキシ基、1，1，2，2，2－ペンタフルオロエトキシ基、3，3，3－トリフルオロプロポキシ基、2，2，3，3，3－ペンタフルオロプロポキシ基、パーフルオロプロポキシ基、ヘプタフルオロイソプロポキシ基、パーフルオロブトキシ基、パーフルオロペンチルオキシ基、パーフルオロヘキシルオキシ基、パーフルオロヘプチルオキシ基、パーフルオロオクチルオキシ基、パーフルオロノニルオキシ基、パーフルオロデシルオキシ基、パーフルオロウンデシルオキシ基、パーフルオロドデシルオキシ基、ヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルオキシ等が挙げられる。

[0046] 炭素数1～12アルコキシ基の具体例としては、メトキシ基、エトキシ基、n－プロポキシ基、i－プロポキシ基、n－ブトキシ基、s－ブトキシ基、t－ブトキシ基、n－ペントキシ基等が挙げられる。

炭素数2～12ハロアルケニル基の具体例としては、フルオロビニル基、ジフルオロビニル基、3，3，3－トリフルオロ－1－プロペニル基、3，3，3－トリフルオロ－2－プロペニル基、2－プロペニル基等が挙げられる。

炭素数2～12ハロアルキニル基の具体例としては、3，3，3－トリフルオロ－1－プロピニル基、3，3，3－トリフルオロ－2－プロピニル基等が挙げられる。

[0047] 炭素数1～12アルキルチオ基の具体例としては、式(1)のオルガノチオ基で例示したものが挙げられる。

炭素数1～12モノアルキルアミノ基およびジアルキルアミノ基の具体例としては、式(1)のオルガノアミノ基で例示したものが挙げられる。

炭素数1～12アルキルカルボニル基の具体例としては、メチルカルボニル基、エチルカルボニル基、n－プロピルカルボニル基、i－プロピルカルボニル基、n－ブチルカルボニル基、s－ブチルカルボニル基、t－ブチルカルボニル基、n－ペンチルカルボニル基等が挙げられる。

炭素数1～12アルキルカルボニルオキシ基の具体例としては、メチルカルボニルオキシ基、エチルカルボニルオキシ基、n－プロピルカルボニルオキシ基、i－プロピルカルボニルオキシ基、n－ブチルカルボニルオキシ基、s－ブチルカルボニルオキシ基、t－ブチルカルボニルオキシ基、n－ペンチルカルボニルオキシ基等が挙げられ

る。

[0048] 炭素数2～12アルケニルカルボニル基の具体例としては、ビニルカルボニル基、1－プロペニルカルボニル基、2－プロペニルカルボニル基、2－メチル－1－プロペニルカルボニル基、1－メチル－2－プロペニルカルボニル基等が挙げられる。

炭素数2～12アルキニルカルボニル基の具体例としては、エチニルカルボニル基、1－プロピニルカルボニル基、2－プロピニルカルボニル基、2－メチル－1－プロピニルカルボニル基、1－メチル－2－プロピニルカルボニル基等が挙げられる。

炭素数1～12アルケニルカルボニルオキシ基の具体例としては、ビニルカルボニルオキシ基、1－プロペニルカルボニルオキシ基、2－プロペニルカルボニルオキシ基、2－メチル－1－プロペニルカルボニルオキシ基、1－メチル－2－プロペニルカルボニルオキシ基等が挙げられる。

[0049] 炭素数1～12アルキニルカルボニルオキシ基の具体例としては、エチニルカルボニルオキシ基、1－プロピニルカルボニルオキシ基、2－プロピニルカルボニルオキシ基、2－メチル－1－プロピニルカルボニルオキシ基、1－メチル－2－プロピニルカルボニルオキシ基等が挙げられる。

ハロゲン化アリール基の具体例としては、1－フルオロフェニル基、2－フルオロフェニル基、3－フルオロフェニル基、4－フルオロフェニル基、5－フルオロフェニル基、ペンタフルオロフェニル基等が挙げられる。

ハロゲン化ヘテロアリール基の具体例としては、3－フルオロチオフェン－2－イル基、4－フルオロチオフェン－2－イル基、5－フルオロチオフェン－2－イル基等が挙げられる。

[0050] これらの中でも、Zとしては、有機ELの長寿命化および輝度向上を図ることを考慮すると、ハロゲン原子、水素原子、炭素数1～12ハロアルキル基、炭素数1～12アルキル基、炭素数2～12アルケニル基、炭素数2～12ハロアルケニル基、炭素数2～12アルキニル基、炭素数2～12ハロアルキニル基、アリール基、ハロゲン化アリール基、ヘテロアリール基、ハロゲン化ヘテロアリール基が好ましい。

本発明において、フッ素原子や、フッ素原子を含む置換基を有するシラン化合物は、これを含むワニスから作製された薄膜中で優れた表面移行性を有しているため、薄

膜の最表面付近に多く存在することになる。このため、このようなフッ素原子を含むシラン化合物をワニスに配合することで、得られる薄膜の表面エネルギーの調整を容易に行えるようになる。

したがって、上述したトリアルコキシシランの場合はY^1が、フッ素原子であるか、フッ素原子を含む置換基であることが好ましく、ジアルコキシシランの場合は、Y^3およびY^4の少なくとも一方が、フッ素原子であるか、フッ素原子を含む置換基であることが好ましい。

[0051] Y^2、Y^5およびY^6は、炭素数1～12アルキル基であるが、有機EL素子の長寿命化および輝度向上を図ることを考慮すると、炭素数1～5アルキル基が好ましく、特に、メチル基、エチル基、n－プロピル基が好適である。

[0052] トリアルコキシシラン化合物の具体例としては、メチルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、エチルトリメトキシシラン、エチルトリエトキシシラン、プロピルトリメトキシシラン、プロピルトリエトキシシラン、ブチルトリメトキシシラン、ブチルトリエトキシシラン、ペンチルトリメトキシシラン、ペンチルトリエトキシシラン、ヘプチルトリメトキシシラン、ヘプチルトリエトキシシラン、オクチルトリメトキシシラン、オクチルトリエトキシシラン、ドデシルトリメトキシシラン、ドデシルトリエトキシシラン、ヘキサデシルトリメトキシシラン、ヘキサデシルトリエトキシシラン、オクタデシルトリメトキシシラン、オクタデシルトリエトキシシラン、フェニルトリメトキシシラン、フェニルトリエトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、γ－アミノプロピルトリメトキシシラン、γ－アミノプロピルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、トリエトキシ（4－（トリフルオロメチル）フェニル）シラン、ドデシルトリエトキシシラン、3，3，3－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン、（トリエトキシシリル）シクロヘキサン、パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシラン、トリエトキシフルオロシラン、トリデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシラン、ペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシラン、3－（ヘプタフルオロイソプロポキシ）プロピルトリエトキシシラン、ヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシラン、トリエトキシ－2－チエニルシラン、3－（トリエトキシシリル

)フランなどが挙げられる。これらは単独で、または2種以上組み合わせて用いることができる。

[0053] 好ましいトリアルコキシシラン化合物の具体例としては、メチルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、エチルトリメトキシシラン、エチルトリエトキシシラン、プロピルトリメトキシシラン、プロピルトリエトキシシラン、ブチルトリメトキシシラン、ブチルトリエトキシシラン、フェニルトリメトキシシラン、フェニルトリエトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン、(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシラン、トリエトキシフルオロシラン、トリデカフルオロ－1, 1, 2, 2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシラン、ペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシラン、3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシラン、ヘプタデカフルオロ－1, 1, 2, 2－テトラヒドロデシルトリエトキシシラン、トリエトキシ－2－チエニルシラン、3－(トリエトキシシリル)フランなどが挙げられる。

[0054] より好ましいトリアルコキシシラン化合物の具体例としては、メチルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、エチルトリメトキシシラン、エチルトリエトキシシラン、プロピルトリメトキシシラン、プロピルトリエトキシシラン、ブチルトリメトキシシラン、ブチルトリエトキシシラン、フェニルトリメトキシシラン、フェニルトリエトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン、(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシラン、トリエトキシフルオロシラン、トリデカフルオロ－1, 1, 2, 2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシラン、ペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシラン、3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシラン、ヘプタデカフルオロ－1, 1, 2, 2－テトラヒドロデシルトリエトキシシラン、トリエトキシ－2－チエニルシラン、3－(トリエトキシシリル)フランなどが挙げられる。

[0055] ジアルコキシシラン化合物の具体例としては、メチルハイドロジェンジメトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、ジメチルジエトキシシラン、メチルエチルジメトキシシラン、ジエチルジメトキシシラン、ジエチルジエトキシ

シラン、メチルプロピルジメトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシラン、β－(3，4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシラン、N－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、3，3，3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランなどが挙げられる。これらは単独で、または2種以上組み合わせて用いることができる。

好ましいジアルコキシシラン化合物としては、3，3，3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシラン等のフッ素原子を含有するものが挙げられる。

[0056] テトラアルコキシシラン化合物の具体例としては、テトラエトキシシラン、テトラメトキシシラン、テトラプロポキシシランなどが挙げられる。これらは、単独で、または2種以上組み合わせて用いることができる。

シリコーンの具体例としては、ジメチルシリコーンオイル、メチルフェニルシリコーンオイル、メチルハイドロジェンシリコーンオイル、アルキル変性シリコーンオイル、フッ素変性シリコーンオイル、ポリエーテル変性シリコーンオイル、アルコール変性シリコーンオイル、アミノ変性シリコーンオイル、エポキシ変性シリコーンオイル、フェノール変性シリコーンオイル、カルボキシ変性シリコーンオイル、メルカプト変性シリコーン、メタクリレート変性シリコーンなどが挙げられる。これらは単独で、または2種以上組み合わせて用いることができる。

[0057] 本発明の電荷輸送性ワニスにおいては、上述した各種シラン化合物のうちの、少なくとも2種を併用することが好ましく、これにより、より平坦性に優れた薄膜を得ることができる。

[0058] トリアルコキシシラン化合物を併用する場合の好適な組み合わせとしては、例えば、以下のものが挙げられる。

(1)メチルトリメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、メチルトリメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、メチルトリメトキシシランビニルトリメトキシシラン、メチルトリメト

キシシランとビニルトリエトキシシラン、メチルトリメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、メチルトリメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、メチルトリメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、メチルトリメトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、メチルトリメトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、メチルトリメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、メチルトリメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0059] (2)メチルトリエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、メチルトリエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシランとビニルトリエトキシシラン、メチルトリエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、メチルトリエトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、メチルトリエトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、メチルトリエトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0060] (3)エチルトリメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、エチルトリメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、エチルトリメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、エチルトリメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、エチルトリメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、エチルトリメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、エチルトリメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、エチルトリメトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、エチルトリメトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、エチルトリメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、エチルトリメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0061] (4)エチルトリエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、エチルトリエトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、エチルトリエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、エチルトリエトキシシランとビニルトリエトキシシラン、エチルトリエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、エチルトリエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、エチルトリエトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、エチルトリエトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、エチルトリエトキシシランとp－メトキシ

フェニルトリメトキシシラン、エチルトリエトキシシランとトリエトキシ－２－チエニルシラン、エチルトリエトキシシランと３－（トリエトキシシリル）フラン

[0062] （５）プロピルトリメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、プロピルトリメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、プロピルトリメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、プロピルトリメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、プロピルトリメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、プロピルトリメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、プロピルトリメトキシシランと（トリエトキシシリル）シクロヘキサン、プロピルトリメトキシシランとｐ－トリルトリメトキシシラン、プロピルトリメトキシシランとｐ－メトキシフェニルトリメトキシシラン、プロピルトリメトキシシランとトリエトキシ－２－チエニルシラン、プロピルトリメトキシシランと３－（トリエトキシシリル）フラン

[0063] （６）プロピルトリエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、プロピルトリエトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、プロピルトリエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、プロピルトリエトキシシランとビニルトリエトキシシラン、プロピルトリエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、プロピルトリエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、プロピルトリエトキシシランと（トリエトキシシリル）シクロヘキサン、プロピルトリエトキシシランとｐ－トリルトリメトキシシラン、プロピルトリエトキシシランとｐ－メトキシフェニルトリメトキシシラン、プロピルトリエトキシシランとトリエトキシ－２－チエニルシラン、プロピルトリエトキシシランと３－（トリエトキシシリル）フラン

[0064] （７）ブチルトリメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、ブチルトリメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、ブチルトリメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、ブチルトリメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、ブチルトリメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、ブチルトリメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、ブチルトリメトキシシランと（トリエトキシシリル）シクロヘキサン、ブチルトリメトキシシランとｐ－トリルトリメトキシシラン、ブチルトリメトキシシランとｐ－メトキシフェニルトリメトキシシラン、ブチルトリメトキシシランとトリエトキシ－２－チエニルシラン、ブチルトリメトキシシランと３－（トリエトキシシリル）フラン

[0065] （８）ブチルトリエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、ブチルトリエトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、ブチルトリエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、ブチルト

リエトキシシランとビニルトリエトキシシラン、ブチルトリエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、ブチルトリエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、ブチルトリエトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、ブチルトリエトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、ブチルトリエトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、ブチルトリエトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、ブチルトリエトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0066] (9)トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シランとフェニルトリメトキシシラン、トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シランとフェニルトリエトキシシラン、トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シランとビニルトリメトキシシラン、トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シランとビニルトリエトキシシラン、トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シランとp－トリルトリメトキシシラン、トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0067] (10)ブチルトリエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、ブチルトリエトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、ブチルトリエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、ブチルトリエトキシシランとビニルトリエトキシシラン、ブチルトリエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、ブチルトリエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、ブチルトリエトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、ブチルトリエトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、ブチルトリエトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、ブチルトリエトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、ブチルトリエトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0068] (11)3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、3, 3, 3－ト

リフルオロプロピルトリメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0069] (12)パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシランとビニルトリエトキシシラン、パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0070] (13)トリエトキシフルオロシランとフェニルトリメトキシシラン、トリエトキシフルオロシランとフェニルトリエトキシシラン、トリエトキシフルオロシランとビニルトリメトキシシラン、トリエトキシフルオロシランとビニルトリエトキシシラン、トリエトキシフルオロシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、トリエトキシフルオロシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、トリエトキシフルオロシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、トリエトキシフルオロシランとp－トリルトリメトキシシラン、トリエトキシフルオロシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、トリエトキシフルオロシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、トリエトキシフルオロシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0071] (14)トリデカフルオロー1, 1, 2, 2ーテトラヒドロオクチルトリエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、トリデカフルオロー1, 1, 2, 2ーテトラヒドロオクチルトリエトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、トリデカフルオロー1, 1, 2, 2ーテトラヒドロオクチルトリエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、トリデカフルオロー1, 1, 2, 2ーテトラヒドロオクチルトリエトキシシランとビニルトリエトキシシラン、トリデカフルオロー1, 1, 2, 2ーテトラヒドロオクチルトリエトキシシランとγーグリシドキシプロピルトリメトキシシラン、トリデカフルオロー1, 1, 2, 2ーテトラヒドロオクチルトリエトキシシランとγーグリシドキシプロピルトリエトキシシラン、トリデカフルオロー1, 1, 2, 2ーテトラヒドロオクチルトリエトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、トリデカフルオロー1, 1, 2, 2ーテトラヒドロオクチルトリエトキシシランとpートリルトリメトキシシラン、トリデカフルオロー1, 1, 2, 2ーテトラヒドロオクチルトリエトキシシランとpーメトキシフェニルトリメトキシシラン、トリデカフルオロー1, 1, 2, 2ーテトラヒドロオクチルトリエトキシシランとトリエトキシー2ーチエニルシラン、トリデカフルオロー1, 1, 2, 2ーテトラヒドロオクチルトリエトキシシランと3ー(トリエトキシシリル)フラン

[0072] (15)3ー(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、3ー(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、3ー(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、3ー(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシランとビニルトリエトキシシラン、3ー(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシランとγーグリシドキシプロピルトリメトキシシラン、3ー(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシランとγーグリシドキシプロピルトリエトキシシラン、3ー(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、3ー(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシランとpートリルトリメトキシシラン、3ー(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシランとpーメトキシフェニルトリメトキシシラン、3ー(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシランとトリエトキシー2ーチエニルシラン、3ー(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシランと3ー(トリエトキシシリル)フラン

[0073] (16)ヘプタデカフルオロー1, 1, 2, 2ーテトラヒドロデシルトリエトキシシランとフェニ

ルトリメトキシシラン、ヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、ヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、ヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシランとビニルトリエトキシシラン、ヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、ヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、ヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、ヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、ヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、ヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、ヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0074] (17)トリエトキシ－2－チエニルシランとフェニルトリメトキシシラン、トリエトキシ－2－チエニルシランとフェニルトリエトキシシラン、トリエトキシ－2－チエニルシランとビニルトリメトキシシラン、トリエトキシ－2－チエニルシランとビニルトリエトキシシラン、トリエトキシ－2－チエニルシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、トリエトキシ－2－チエニルシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、トリエトキシ－2－チエニルシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、トリエトキシ－2－チエニルシランとp－トリルトリメトキシシラン、トリエトキシ－2－チエニルシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、トリエトキシ－2－チエニルシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0075] (18)3－(トリエトキシシリル)フランとフェニルトリメトキシシラン、3－(トリエトキシシリル)フランとフェニルトリエトキシシラン、3－(トリエトキシシリル)フランとビニルトリメトキシシラン、3－(トリエトキシシリル)フランとビニルトリエトキシシラン、3－(トリエトキシシリル)フランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、3－(トリエトキシシリル)フランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、3－(トリエトキシシリル)フランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、3－(トリエトキシシリル)フランとp－トリルトリメトキシシラン、3－(トリエトキシシリル)フランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、3－(トリ

エトキシシリル)フランとトリエトキシ－2－チエニルシラン

[0076] (19)フェニルトリメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、フェニルトリメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、フェニルトリメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、フェニルトリメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、フェニルトリメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、フェニルトリメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、フェニルトリメトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、フェニルトリメトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、フェニルトリメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、フェニルトリメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0077] (20)フェニルトリエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、フェニルトリエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、フェニルトリエトキシシランとビニルトリエトキシシラン、フェニルトリエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、フェニルトリエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、フェニルトリエトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、フェニルトリエトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、フェニルトリエトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、フェニルトリエトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、フェニルトリエトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0078] (21)ビニルトリメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、ビニルトリメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、ビニルトリメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、ビニルトリメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、ビニルトリメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、ビニルトリメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、ビニルトリメトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、ビニルトリメトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、ビニルトリメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、ビニルトリメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0079] (22)ビニルトリエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、ビニルトリエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、ビニルトリエトキシシランと(トリエトキ

シシリル)シクロヘキサン、ビニルトリエトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、ビニルトリエトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0080] (23)γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、3－(トリエトキシシリル)フラン

[0081] (24)γ－グリシドキシプロピルトリエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルトリエトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルトリエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルトリエトキシシランとビニルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルトリエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルトリエトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、γ－グリシドキシプロピルトリエトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルトリエトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルトリエトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、γ－グリシドキシプロピルトリエトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0082] (25)(トリエトキシシリル)シクロヘキサンとフェニルトリメトキシシラン、(トリエトキシシリル)シクロヘキサンとフェニルトリエトキシシラン、(トリエトキシシリル)シクロヘキサンとビニルトリメトキシシラン、(トリエトキシシリル)シクロヘキサンとビニルトリエトキシシラン、(トリエトキシシリル)シクロヘキサンとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、(トリエトキシシリル)シクロヘキサンとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、(トリエ

トキシシリル)シクロヘキサンとp－トリルトリメトキシシラン、(トリエトキシシリル)シクロヘキサンとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、(トリエトキシシリル)シクロヘキサンとトリエトキシ－2－チエニルシラン、(トリエトキシシリル)シクロヘキサンと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0083] (26)p－トリルトリメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、p－トリルトリメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、p－トリルトリメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、p－トリルトリメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、p－トリルトリメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、p－トリルトリメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、p－トリルトリメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、p－トリルトリメトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、p－トリルトリメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、p－トリルトリメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0084] (27)p－メトキシフェニルトリメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、p－メトキシフェニルトリメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、p－メトキシフェニルトリメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、p－メトキシフェニルトリメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、p－メトキシフェニルトリメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、p－メトキシフェニルトリメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、p－メトキシフェニルトリメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、p－メトキシフェニルトリメトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、p－メトキシフェニルトリメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、p－メトキシフェニルトリメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0085] より好ましい組み合わせの具体例としては、下記のものが挙げられる。

(28)メチルトリメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、メチルトリメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、メチルトリメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、メチルトリメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、メチルトリメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、メチルトリメトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、メチルトリメトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、メチルトリメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、メチルトリメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0086] (29)メチルトリエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、メチルトリエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシランとビニルトリエトキシシラン、メチルトリエトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、メチルトリエトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、3－(トリエトキシシリル)フラン

[0087] (30)エチルトリメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、エチルトリメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、エチルトリメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、エチルトリメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、エチルトリメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、エチルトリメトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、エチルトリメトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、エチルトリメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、エチルトリメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0088] (31)エチルトリエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、エチルトリエトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、エチルトリエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、エチルトリエトキシシランとビニルトリエトキシシラン、エチルトリエトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、エチルトリエトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、エチルトリエトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、エチルトリエトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、エチルトリエトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0089] (32)プロピルトリメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、プロピルトリメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、プロピルトリメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、プロピルトリメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、プロピルトリメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、プロピルトリメトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、プロピルトリメトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、プロピルトリメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、プロピルトリメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0090] (33)プロピルトリエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、プロピルトリエトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、プロピルトリエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、プロピルトリエトキシシランとビニルトリエトキシシラン、プロピルトリエトキシシランと(トリ

エトキシシリル)シクロヘキサン、プロピルトリエトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、プロピルトリエトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、プロピルトリエトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、プロピルトリエトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0091] (34)ブチルトリメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、ブチルトリメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、ブチルトリメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、ブチルトリメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、ブチルトリメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、ブチルトリメトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、ブチルトリメトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、ブチルトリメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、ブチルトリメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0092] (35)ブチルトリエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、ブチルトリエトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、ブチルトリエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、ブチルトリエトキシシランとビニルトリエトキシシラン、ブチルトリエトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、ブチルトリエトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、ブチルトリエトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、ブチルトリエトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、ブチルトリエトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0093] (36)トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シランとフェニルトリメトキシシラン、トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シランとフェニルトリエトキシシラン、トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シランとビニルトリメトキシシラン、トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シランとビニルトリエトキシシラン、トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シランとp－トリルトリメトキシシラン、トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0094] (37)ブチルトリエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、ブチルトリエトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、ブチルトリエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、ブチル

トリエトキシシランとビニルトリエトキシシラン、ブチルトリエトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、ブチルトリエトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、ブチルトリエトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、ブチルトリエトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、ブチルトリエトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0095] (38)3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0096] (39)パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシランとビニルトリエトキシシラン、パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0097] (40)トリエトキシフルオロシランとフェニルトリメトキシシラン、トリエトキシフルオロシランとフェニルトリエトキシシラン、トリエトキシフルオロシランとビニルトリメトキシシラン、トリエトキシフルオロシランとビニルトリエトキシシラン、トリエトキシフルオロシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、トリエトキシフルオロシランとp－トリルトリメトキシシラン、トリエトキシフルオロシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、トリエトキシフルオロシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、トリエトキシフルオロシランと3－(トリエト

キシシリル)フラン

[0098] (41)トリデカフルオロー1, 1, 2, 2ーテトラヒドロオクチルトリエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、トリデカフルオロー1, 1, 2, 2ーテトラヒドロオクチルトリエトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、トリデカフルオロー1, 1, 2, 2ーテトラヒドロオクチルトリエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、トリデカフルオロー1, 1, 2, 2ーテトラヒドロオクチルトリエトキシシランとビニルトリエトキシシラン、トリデカフルオロー1, 1, 2, 2ーテトラヒドロオクチルトリエトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、トリデカフルオロー1, 1, 2, 2ーテトラヒドロオクチルトリエトキシシランとpートリルトリメトキシシラン、トリデカフルオロー1, 1, 2, 2ーテトラヒドロオクチルトリエトキシシランとpーメトキシフェニルトリメトキシシラン、トリデカフルオロー1, 1, 2, 2ーテトラヒドロオクチルトリエトキシシランとトリエトキシー2ーチエニルシラン、トリデカフルオロー1, 1, 2, 2ーテトラヒドロオクチルトリエトキシシランと3ー(トリエトキシシリル)フラン

[0099] (42)3ー(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、3ー(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、3ー(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、3ー(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシランとビニルトリエトキシシラン、3ー(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、3ー(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシランとpートリルトリメトキシシラン、3ー(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシランとpーメトキシフェニルトリメトキシシラン、3ー(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシランとトリエトキシー2ーチエニルシラン、3ー(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシランと3ー(トリエトキシシリル)フラン

[0100] (43)ヘプタデカフルオロー1, 1, 2, 2ーテトラヒドロデシルトリエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、ヘプタデカフルオロー1, 1, 2, 2ーテトラヒドロデシルトリエトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、ヘプタデカフルオロー1, 1, 2, 2ーテトラヒドロデシルトリエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、ヘプタデカフルオロー1, 1, 2, 2ーテトラヒドロデシルトリエトキシシランとビニルトリエトキシシラン、ヘプタデカフルオロー

1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、ヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、ヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、ヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、3－(トリエトキシシリル)フラン

[0101] (44)トリエトキシ－2－チエニルシランとフェニルトリメトキシシラン、トリエトキシ－2－チエニルシランとフェニルトリエトキシシラン、トリエトキシ－2－チエニルシランとビニルトリメトキシシラン、トリエトキシ－2－チエニルシランとビニルトリエトキシシラン、トリエトキシ－2－チエニルシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、トリエトキシ－2－チエニルシランとp－トリルトリメトキシシラン、トリエトキシ－2－チエニルシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、トリエトキシ－2－チエニルシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0102] (45)3－(トリエトキシシリル)フランとフェニルトリメトキシシラン、3－(トリエトキシシリル)フランとフェニルトリエトキシシラン、3－(トリエトキシシリル)フランとビニルトリメトキシシラン、3－(トリエトキシシリル)フランとビニルトリエトキシシラン、3－(トリエトキシシリル)フランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、3－(トリエトキシシリル)フランとp－トリルトリメトキシシラン、3－(トリエトキシシリル)フランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、3－(トリエトキシシリル)フランとトリエトキシ－2－チエニルシラン

[0103] (46)フェニルトリメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、フェニルトリメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、フェニルトリメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、フェニルトリメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、フェニルトリメトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、フェニルトリメトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、フェニルトリメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、フェニルトリメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0104] (47)フェニルトリエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、フェニルトリエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、フェニルトリエトキシシランとビニルトリエトキシシラン、フェニルトリエトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、フェニルトリエトキシシ

ランとp－トリルトリメトキシシラン、フェニルトリエトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、フェニルトリエトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、フェニルトリエトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0105] (48)ビニルトリメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、ビニルトリメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、ビニルトリメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、ビニルトリメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、ビニルトリメトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、ビニルトリメトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、ビニルトリメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、ビニルトリメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0106] (49)ビニルトリエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、ビニルトリエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、ビニルトリエトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、ビニルトリエトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0107] (50)(トリエトキシシリル)シクロヘキサンとフェニルトリメトキシシラン、(トリエトキシシリル)シクロヘキサンとフェニルトリエトキシシラン、(トリエトキシシリル)シクロヘキサンとビニルトリメトキシシラン、(トリエトキシシリル)シクロヘキサンとビニルトリエトキシシラン、(トリエトキシシリル)シクロヘキサンとp－トリルトリメトキシシラン、(トリエトキシシリル)シクロヘキサンとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、(トリエトキシシリル)シクロヘキサンとトリエトキシ－2－チエニルシラン、(トリエトキシシリル)シクロヘキサンと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0108] (51)p－トリルトリメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、p－トリルトリメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、p－トリルトリメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、p－トリルトリメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、p－トリルトリメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、p－トリルトリメトキシシランとp－メトキシフェニルトリメトキシシラン、p－トリルトリメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、p－トリルトリメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0109] (52)p－メトキシフェニルトリメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、p－メトキシフェニルトリメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、p－メトキシフェニルトリメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、p－メトキシフェニルトリメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、p－メトキシフェニルトリメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、p－メトキシフェニルトリメトキシシランとp－トリルトリメトキシシラン、p－メトキシフェニルトリメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、p－メトキシフェニルトリメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0110] 少なくとも1種のトリアルコキシシラン化合物と、少なくとも1種のテトラアルコキシシラン化合物とを併用する場合の好ましい組み合わせとしては以下の例が挙げられる。

(1)メチルトリメトキシシランとテトラメトキシシラン、メチルトリメトキシシランとテトラエトキシシラン、メチルトリメトキシシランとテトラプロポキシシラン

(2)メチルトリエトキシシランとテトラメトキシシラン、メチルトリエトキシシランとテトラエトキシシラン、メチルトリエトキシシランとテトラプロポキシシラン

(3)エチルトリメトキシシランとテトラメトキシシラン、エチルトリメトキシシランとテトラエトキシシラン、エチルトリメトキシシランとテトラプロポキシシラン

[0111] (4)エチルトリエトキシシランとテトラメトキシシラン、エチルトリエトキシシランとテトラエトキシシラン、エチルトリエトキシシランとテトラプロポキシシラン

(5)プロピルトリメトキシシランとテトラメトキシシラン、プロピルトリメトキシシランとテトラエトキシシラン、プロピルトリメトキシシランとテトラプロポキシシラン

(6)プロピルトリエトキシシランとテトラメトキシシラン、プロピルトリエトキシシランとテトラエトキシシラン、プロピルトリエトキシシランとテトラプロポキシシラン

(7)ブチルトリメトキシシランとテトラメトキシシラン、ブチルトリメトキシシランとテトラエトキシシラン、ブチルトリメトキシシランとテトラプロポキシシラン

(8)ブチルトリエトキシシランとテトラメトキシシラン、ブチルトリエトキシシランとテトラエトキシシラン、ブチルトリエトキシシランとテトラプロポキシシラン

[0112] (9)フェニルトリメトキシシランとテトラメトキシシラン、フェニルトリメトキシシランとテトラエトキシシラン、フェニルトリメトキシシランとテトラプロポキシシラン

(10)フェニルトリエトキシシランとテトラメトキシシラン、フェニルトリエトキシシランとテト

ラエトキシシラン、フェニルトリエトキシシランとテトラプロポキシシラン

(11)p－トリルトリメトキシシランとテトラメトキシシラン、p－トリルトリメトキシシランとテトラエトキシシラン、p－トリルトリメトキシシランとテトラプロポキシシラン

(12)p－メトキシフェニルトリメトキシシランとテトラメトキシシラン、p－メトキシフェニルトリメトキシシランとテトラエトキシシラン、p－メトキシフェニルトリメトキシシランとテトラプロポキシシラン

[0113] (13)ビニルトリメトキシシランとテトラメトキシシラン、ビニルトリメトキシシランとテトラエトキシシラン、ビニルトリメトキシシランとテトラプロポキシシラン

(14)ビニルトリエトキシシランとテトラメトキシシラン、ビニルトリエトキシシランとテトラエトキシシラン、ビニルトリエトキシシランとテトラプロポキシシラン

(15)γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシランとテトラメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシランとテトラエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシランとテトラプロポキシシラン

(16)γ－グリシドキシプロピルトリエトキシシランとテトラメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルトリエトキシシランとテトラエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルトリエトキシシランとテトラプロポキシシラン

[0114] (17)トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シランとテトラメトキシシラン、トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シランとテトラエトキシシラン、トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シランとテトラプロポキシシラン

(18)(トリエトキシシリル)シクロヘキサンとテトラメトキシシラン、(トリエトキシシリル)シクロヘキサンとテトラエトキシシラン、(トリエトキシシリル)シクロヘキサンとテトラプロポキシシラン

(19)3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシランとテトラメトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシランとテトラエトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシランとテトラプロポキシシラン

(20)パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシランとテトラメトキシシラン、パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシランとテトラエトキシシラン、パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシランとテトラプロポキシシラン

[0115] (21)トリエトキシフルオロシランとテトラメトキシシラン、トリエトキシフルオロシランとテトラエトキシシラン、トリエトキシフルオロシランとテトラプロポキシシラン

(22)トリデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシランとテトラメトキシシラン、トリデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシランとテトラエトキシシラン、トリデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシランとテトラプロポキシシラン

(23)ペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシランとテトラメトキシシラン、ペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシランとテトラエトキシシラン、ペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシランとテトラプロポキシシラン

[0116] (24)3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシランとテトラメトキシシラン、3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシランとテトラエトキシシラン、3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシランとテトラプロポキシシラン

(25)ヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシランとテトラメトキシシラン、ヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシランとテトラエトキシシラン、ヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシランとテトラプロポキシシラン

(26)トリエトキシ－2－チエニルシランとテトラメトキシシラン、トリエトキシ－2－チエニルシランとテトラエトキシシラン、トリエトキシ－2－チエニルシランとテトラプロポキシシラン

(27)3－(トリエトキシシリル)フランとテトラメトキシシラン、3－(トリエトキシシリル)フランとテトラエトキシシラン、3－(トリエトキシシリル)フランとテトラプロポキシシラン

[0117] より好ましい組み合わせとしては、以下の例が挙げられる。

(28)メチルトリメトキシシランとテトラメトキシシラン、メチルトリメトキシシランとテトラエトキシシラン、メチルトリメトキシシランとテトラプロポキシシラン

(29)メチルトリエトキシシランとテトラメトキシシラン、メチルトリエトキシシランとテトラエトキシシラン、メチルトリエトキシシランとテトラプロポキシシラン

(30)エチルトリメトキシシランとテトラメトキシシラン、エチルトリメトキシシランとテトラエ

トキシシラン、エチルトリメトキシシランとテトラプロポキシシラン

(31)エチルトリエトキシシランとテトラメトキシシラン、エチルトリエトキシシランとテトラエトキシシラン、エチルトリエトキシシランとテトラプロポキシシラン

[0118] (32)プロピルトリメトキシシランとテトラメトキシシラン、プロピルトリメトキシシランとテトラエトキシシラン、プロピルトリメトキシシランとテトラプロポキシシラン

(33)プロピルトリエトキシシランとテトラメトキシシラン、プロピルトリエトキシシランとテトラエトキシシラン、プロピルトリエトキシシランとテトラプロポキシシラン

(34)ブチルトリメトキシシランとテトラメトキシシラン、ブチルトリメトキシシランとテトラエトキシシラン、ブチルトリメトキシシランとテトラプロポキシシラン

(35)ブチルトリエトキシシランとテトラメトキシシラン、ブチルトリエトキシシランとテトラエトキシシラン、ブチルトリエトキシシランとテトラプロポキシシラン

[0119] (36)フェニルトリメトキシシランとテトラメトキシシラン、フェニルトリメトキシシランとテトラエトキシシラン、フェニルトリメトキシシランとテトラプロポキシシラン

(37)フェニルトリエトキシシランとテトラメトキシシラン、フェニルトリエトキシシランとテトラエトキシシラン、フェニルトリエトキシシランとテトラプロポキシシラン

(38)p－トリルトリメトキシシランとテトラメトキシシラン、p－トリルトリメトキシシランとテトラエトキシシラン、p－トリルトリメトキシシランとテトラプロポキシシラン

(39)p－メトキシフェニルトリメトキシシランとテトラメトキシシラン、p－メトキシフェニルトリメトキシシランとテトラエトキシシラン、p－メトキシフェニルトリメトキシシランとテトラプロポキシシラン

[0120] (40)ビニルトリメトキシシランとテトラメトキシシラン、ビニルトリメトキシシランとテトラエトキシシラン、ビニルトリメトキシシランとテトラプロポキシシラン

(41)ビニルトリエトキシシランとテトラメトキシシラン、ビニルトリエトキシシランとテトラエトキシシラン、ビニルトリエトキシシランとテトラプロポキシシラン

(42)トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シランとテトラメトキシシラン、トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シランとテトラエトキシシラン、トリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シランとテトラプロポキシシラン

(43)(トリエトキシシリル)シクロヘキサンとテトラメトキシシラン、(トリエトキシシリル)シ

クロヘキサンとテトラエトキシシラン、(トリエトキシシリル)シクロヘキサンとテトラプロポキシシラン

[0121] (44)3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシランとテトラメトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシランとテトラエトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシランとテトラプロポキシシラン

(45)パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシランとテトラメトキシシラン、パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシランとテトラエトキシシラン、パーフルオロオクチルエチルトリエトキシシランとテトラプロポキシシラン

(46)トリエトキシフルオロシランとテトラメトキシシラン、トリエトキシフルオロシランとテトラエトキシシラン、トリエトキシフルオロシランとテトラプロポキシシラン

(47)トリデカフルオロ－1, 1, 2, 2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシランとテトラメトキシシラン、トリデカフルオロ－1, 1, 2, 2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシランとテトラエトキシシラン、トリデカフルオロ－1, 1, 2, 2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシランとテトラプロポキシシラン

[0122] (48)ペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシランとテトラメトキシシラン、ペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシランとテトラエトキシシラン、ペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシランとテトラプロポキシシラン

(49)3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシランとテトラメトキシシラン、3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシランとテトラエトキシシラン、3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシランとテトラプロポキシシラン

(50)ヘプタデカフルオロ－1, 1, 2, 2－テトラヒドロデシルトリエトキシシランとテトラメトキシシラン、ヘプタデカフルオロ－1, 1, 2, 2－テトラヒドロデシルトリエトキシシランとテトラエトキシシラン、ヘプタデカフルオロ－1, 1, 2, 2－テトラヒドロデシルトリエトキシシランとテトラプロポキシシラン

(51)トリエトキシ－2－チエニルシランとテトラメトキシシラン、トリエトキシ－2－チエニルシランとテトラエトキシシラン、トリエトキシ－2－チエニルシランとテトラプロポキシシラン

(52)3－(トリエトキシシリル)フランとテトラメトキシシラン、3－(トリエトキシシリル)フランとテトラエトキシシラン、3－(トリエトキシシリル)フランとテトラプロポキシシラン

[0123] 2種のジアルコキシシラン化合物を併用する場合の好ましい組み合わせとしては以下の例が挙げられる。

(1)メチルハイドロジェンジメトキシシランとメチルハイドロジェンジエトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとジメチルジメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとジメチルジエトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとメチルエチルジメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとジエチルジメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとジエチルジエトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとメチルプロピルジメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとメチルプロピルジエトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとジイソプロピルジメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとフェニルメチルジメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとビニルメチルジメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとβ－(3,4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとγ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとγ－アミノプロピルメチルジエトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとN－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランと3,3,3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシラン

[0124] (2)メチルハイドロジェンジエトキシシランとジメチルジメトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとジメチルジエトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとメチルエチルジメトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとジエチルジメトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとジエチルジエトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとメチルプロピルジメトキシシラン、メチルハイドロ

ジェンジエトキシシランとメチルプロピルジエトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとジイソプロピルジメトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとフェニルメチルジメトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとビニルメチルジメトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとβ－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとγ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとγ－アミノプロピルメチルジエトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとN－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランと3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシラン

[0125] (3)ジメチルジメトキシシランとジメチルジエトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとメチルエチルジメトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとジエチルジメトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとジエチルジエトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとメチルプロピルジメトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとメチルプロピルジエトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとジイソプロピルジメトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとフェニルメチルジメトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとビニルメチルジメトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシラン、ジメチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシラン、ジメチルジメトキシシランとβ－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとγ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとγ－アミノプロピルメチルジエトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとN－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、ジメチルジメトキシシランと3, 3,

3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシラン

[0126] (4)ジメチルジエトキシシランとメチルエチルジメトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとジエチルジメトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとジエチルジエトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとメチルプロピルジメトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとメチルプロピルジエトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとジイソプロピルジメトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとフェニルメチルジメトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとビニルメチルジメトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシラン、ジメチルジエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシラン、ジメチルジエトキシシランとβ－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとγ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとγ－アミノプロピルメチルジエトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとN－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、ジメチルジエトキシシランと3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシラン

[0127] (5)メチルエチルジメトキシシランとジエチルジメトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとジエチルジエトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとメチルプロピルジメトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとメチルプロピルジエトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとジイソプロピルジメトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとフェニルメチルジメトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとビニルメチルジメトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシラン、メチルエチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシラン、メチルエチルジメトキシシランとβ－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとγ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとγ－アミノプロピルメチルジエトキ

シシラン、メチルエチルジメトキシシランとN－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランと3，3，3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシラン

[0128] (6)ジエチルジメトキシシランとジエチルジエトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとメチルプロピルジメトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとメチルプロピルジエトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとジイソプロピルジメトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとフェニルメチルジメトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとビニルメチルジメトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシラン、ジエチルジメトキシシランとβ－(3，4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとγ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとγ－アミノプロピルメチルジエトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとN－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、ジエチルジメトキシシランと3，3，3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシラン

[0129] (7)ジエチルジエトキシシランとメチルプロピルジメトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとメチルプロピルジエトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとジイソプロピルジメトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとフェニルメチルジメトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとビニルメチルジメトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシラン、ジエチルジエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシラン、ジエチルジエトキシシランとβ－(3，4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとγ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとγ－アミノプロピルメチルジエトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとN－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、ジエチルジエトキシシランと3，3，3－トリフルオロプロピルメチル

ジメトキシシラン

[0130] (8)メチルプロピルジメトキシシランとメチルプロピルジエトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとジイソプロピルジメトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとフェニルメチルジメトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとビニルメチルジメトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとβ－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとγ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとγ－アミノプロピルメチルジエトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとN－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランと3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシラン

[0131] (9)メチルプロピルジエトキシシランとジイソプロピルジメトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとフェニルメチルジメトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとビニルメチルジメトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとβ－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとγ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとγ－アミノプロピルメチルジエトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとN－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランと3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシラン

[0132] (10)ジイソプロピルジメトキシシランとフェニルメチルジメトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとビニルメチルジメトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとγ－

グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとβ－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとγ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとγ－アミノプロピルメチルジエトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとN－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランと3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシラン

[0133] (11)フェニルメチルジメトキシシランとビニルメチルジメトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとβ－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとγ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとγ－アミノプロピルメチルジエトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとN－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランと3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシラン

[0134] (12)ビニルメチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとβ－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとγ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとγ－アミノプロピルメチルジエトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとN－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランと3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシラ

ン

[0135] (13) γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとβ－(3,4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとγ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとγ－アミノプロピルメチルジエトキシシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとN－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランと3,3,3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシシラン

[0136] (14) γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとβ－(3,4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとγ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとγ－アミノプロピルメチルジエトキシシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとN－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランと3,3,3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシシラン

[0137] (15) β－(3,4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシシラン、β－(3,4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシシラン、β－(3,4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシシランとγ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシシラン、β－(3,4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシシランとγ－アミノプロピルメチルジエトキシシシラン、β－(3,4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシシランとN－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジ

メトキシシラン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランと3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシラン

[0138] (16) γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとγ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとγ－アミノプロピルメチルジエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとN－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランと3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシラン

[0139] (17) γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとγ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとγ－アミノプロピルメチルジエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとN－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランと3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシラン

[0140] (18) γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとγ－アミノプロピルメチルジエトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとN－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランと3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシラン

(19) γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとN－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランと3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシラン

(20) N－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシランと3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシラン

[0141] 少なくとも1種のジアルコキシシラン化合物と、少なくとも1種のトリアルコキシシラン化合物とを併用する場合の好ましい組み合わせとしては以下の例が挙げられる。

(1)メチルハイドロジェンジメトキシシランとメチルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとメチルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとエチルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとエチルトリエトキシシラン

、メチルハイドロジェンジメトキシシランとプロピルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとプロピルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとブチルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとブチルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとペンチルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとペンチルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとヘプチルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとヘプチルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとオクチルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとオクチルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとドデシルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとヘキサデシルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとヘキサデシルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとオクタデシルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとオクタデシルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとγ－アミノプロピルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとγ－アミノプロピルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとトリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランと3，3，3－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとパーフルオロオクチルエチルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとトリエトキシフルオロシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとトリデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロオク

チルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランと3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、メチルハイドロジェンジメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0142] (2)メチルハイドロジェンジエトキシシランとメチルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとメチルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとエチルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとエチルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとプロピルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとプロピルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとブチルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとブチルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとペンチルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとペンチルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとヘプチルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとヘプチルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとオクチルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとオクチルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとドデシルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとヘキサデシルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとヘキサデシルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとオクタデシルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとオクタデシルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとビニルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとγ－アミノプロピルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとγ－アミノプロピルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジ

エトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとトリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランと3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとパーフルオロオクチルエチルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとトリエトキシフルオロシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとトリデカフルオロ－1, 1, 2, 2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランと3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとヘプタデカフルオロ－1, 1, 2, 2－テトラヒドロデシルトリエトキシシラン、メチルハイドロジェンジエトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、3－(トリエトキシシリル)フラン

[0143] (3)ジメチルジメトキシシランとメチルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとメチルトリエトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとエチルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとエチルトリエトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとプロピルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとプロピルトリエトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとブチルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとブチルトリエトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとペンチルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとペンチルトリエトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとヘプチルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとヘプチルトリエトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとオクチルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとオクチルトリエトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとドデシルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとヘキサデシルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとヘキサデシルトリエトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとオクタデシルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとオクタデシルトリエトキシシラン、ジメチルジメトキシ

シランとフェニルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとγ－アミノプロピルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとγ－アミノプロピルトリエトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとトリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シラン、ジメチルジメトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、ジメチルジメトキシシランと3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、ジメチルジメトキシシランとパーフルオロオクチルエチルトリエトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとトリエトキシフルオロシラン、ジメチルジメトキシシランとトリデカフルオロ－1, 1, 2, 2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシランと3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとヘプタデカフルオロ－1, 1, 2, 2－テトラヒドロデシルトリエトキシシラン、ジメチルジメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、ジメチルジメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0144] (4)ジメチルジエトキシシランとメチルトリメトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとメチルトリエトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとエチルトリメトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとエチルトリエトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとプロピルトリメトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとプロピルトリエトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとブチルトリメトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとブチルトリエトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとペンチルトリメトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとペンチルトリエトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとヘプチルトリメトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとヘプチルトリエトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとオクチルトリメトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとオクチルトリエトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとドデシルトリメトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとドデシルト

リエトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとヘキサデシルトリメトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとヘキサデシルトリエトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとオクタデシルトリメトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとオクタデシルトリエトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとビニルトリエトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとγ－アミノプロピルトリメトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとγ－アミノプロピルトリエトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとトリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シラン、ジメチルジエトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、ジメチルジエトキシシランと3，3，3－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン、ジメチルジエトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、ジメチルジエトキシシランとパーフルオロオクチルエチルトリエトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとトリエトキシフルオロシラン、ジメチルジエトキシシランとトリデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシラン、ジメチルジエトキシシランと3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシラン、ジメチルジエトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、3－(トリエトキシシリル)フラン

[0145] (5)メチルエチルジメトキシシランとメチルトリメトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとメチルトリエトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとエチルトリメトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとエチルトリエトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとプロピルトリメトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとプロピルトリエトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとブチルトリメトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとブチルトリエトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとペンチルトリメトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとペンチルトリエトキシシラン、メチルエチル

ジメトキシシランとヘプチルトリメトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとヘプチルトリエトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとオクチルトリメトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとオクチルトリエトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとドデシルトリメトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとヘキサデシルトリメトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとヘキサデシルトリエトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとオクタデシルトリメトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとオクタデシルトリエトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとγ－アミノプロピルトリメトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとγ－アミノプロピルトリエトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとトリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シラン、メチルエチルジメトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランと3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、メチルエチルジメトキシシランとパーフルオロオクチルエチルトリエトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとトリエトキシフルオロシラン、メチルエチルジメトキシシランとトリデカフルオロ－1, 1, 2, 2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランと3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとヘプタデカフルオロ－1, 1, 2, 2－テトラヒドロデシルトリエトキシシラン、メチルエチルジメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、メチルエチルジメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0146] (6)ジエチルジメトキシシランとメチルトリメトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとメ

チルトリエトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとエチルトリメトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとエチルトリエトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとプロピルトリメトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとプロピルトリエトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとブチルトリメトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとブチルトリエトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとペンチルトリメトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとペンチルトリエトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとヘプチルトリメトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとヘプチルトリエトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとオクチルトリメトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとオクチルトリエトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとドデシルトリメトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとヘキサデシルトリメトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとヘキサデシルトリエトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとオクタデシルトリメトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとオクタデシルトリエトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとγ－アミノプロピルトリメトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとγ－アミノプロピルトリエトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとトリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シラン、ジエチルジメトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、ジエチルジメトキシシランと3，3，3－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン、ジエチルジメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、ジエチルジメトキシシランとパーフルオロオクチルエチルトリエトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとトリエトキシフルオロシラン、ジエチルジメトキシシランとトリデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシラン、ジエチルジメトキシシランと3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとヘプタデカフルオロ－1，1，2

，２－テトラヒドロデシルトリエトキシシラン、ジエチルジメトキシシランとトリエトキシ－２－チエニルシラン、３－(トリエトキシシリル)フラン

[0147] (7)ジエチルジエトキシシランとメチルトリメトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとメチルトリエトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとエチルトリメトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとエチルトリエトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとプロピルトリメトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとプロピルトリエトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとブチルトリメトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとブチルトリエトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとペンチルトリメトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとペンチルトリエトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとヘプチルトリメトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとヘプチルトリエトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとオクチルトリメトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとオクチルトリエトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとドデシルトリメトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとヘキサデシルトリメトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとヘキサデシルトリエトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとオクタデシルトリメトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとオクタデシルトリエトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとビニルトリエトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとγ－アミノプロピルトリメトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとγ－アミノプロピルトリエトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとトリエトキシ(４－(トリフルオロメチル)フェニル)シラン、ジエチルジエトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、ジエチルジエトキシシランと3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン、ジエチルジエトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、ジエチルジエトキシシランとパーフルオロオクチルエチルトリエトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとトリエトキシフルオロシラン、ジエチルジエトキシシランとトリデカフルオロ－１

，1，2，2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシラン、ジエチルジエトキシシランと3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシラン、ジエチルジエトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、3－(トリエトキシシリル)フラン

[0148] (8)メチルプロピルジメトキシシランとメチルトリメトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとメチルトリエトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとエチルトリメトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとエチルトリエトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとプロピルトリメトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとプロピルトリエトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとブチルトリメトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとブチルトリエトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとペンチルトリメトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとペンチルトリエトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとヘプチルトリメトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとヘプチルトリエトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとオクチルトリメトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとオクチルトリエトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとドデシルトリメトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとヘキサデシルトリメトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとヘキサデシルトリエトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとオクタデシルトリメトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとオクタデシルトリエトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとγ－アミノプロピルトリメトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとγ－アミノプロピルトリエトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとトリエトキシ(4－(

トリフルオロメチル)フェニル)シラン、メチルプロピルジメトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランと3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、メチルプロピルジメトキシシランとパーフルオロオクチルエチルトリエトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとトリエトキシフルオロシラン、メチルプロピルジメトキシシランとトリデカフルオロ－1, 1, 2, 2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランと3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとヘプタデカフルオロ－1, 1, 2, 2－テトラヒドロデシルトリエトキシシラン、メチルプロピルジメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、メチルプロピルジメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0149] (9)メチルプロピルジエトキシシランとメチルトリメトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとメチルトリエトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとエチルトリメトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとエチルトリエトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとプロピルトリメトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとプロピルトリエトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとブチルトリメトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとブチルトリエトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとペンチルトリメトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとペンチルトリエトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとヘプチルトリメトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとヘプチルトリエトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとオクチルトリメトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとオクチルトリエトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとドデシルトリメトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとヘキサデシルトリメトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとヘキサデシルトリエトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとオクタデシルトリメトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとオクタデシルトリエトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシラ

ンとビニルトリエトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとγ－アミノプロピルトリメトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとγ－アミノプロピルトリエトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとトリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シラン、メチルプロピルジエトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランと3，3，3－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、メチルプロピルジエトキシシランとパーフルオロオクチルエチルトリエトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとトリエトキシフルオロシラン、メチルプロピルジエトキシシランとトリデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランと3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシラン、メチルプロピルジエトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、メチルプロピルジエトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0150] (10)ジイソプロピルジメトキシシランとメチルトリメトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとメチルトリエトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとエチルトリメトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとエチルトリエトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとプロピルトリメトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとプロピルトリエトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとブチルトリメトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとブチルトリエトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとペンチルトリメトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとペンチルトリエトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとヘプチルトリメトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとヘプチルトリエトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとオクチルトリメトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとオクチルトリエトキシシラン、ジイソプロピ

ルジメトキシシランとドデシルトリメトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとヘキサデシルトリメトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとヘキサデシルトリエトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとオクタデシルトリメトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとオクタデシルトリエトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとγ－アミノプロピルトリメトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとγ－アミノプロピルトリエトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとトリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シラン、ジイソプロピルジメトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランと3，3，3－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、ジイソプロピルジメトキシシランとパーフルオロオクチルエチルトリエトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとトリエトキシフルオロシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとトリデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランと3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、ジイソプロピルジメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0151] (11)フェニルメチルジメトキシシランとメチルトリメトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとメチルトリエトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとエチルトリメトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとエチルトリエトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとプロピルトリメトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとプロピルトリ

エトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとブチルトリメトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとブチルトリエトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとペンチルトリメトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとペンチルトリエトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとヘプチルトリメトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとヘプチルトリエトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとオクチルトリメトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとオクチルトリエトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとドデシルトリメトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとヘキサデシルトリメトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとヘキサデシルトリエトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとオクタデシルトリメトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとオクタデシルトリエトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとγ－アミノプロピルトリメトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとγ－アミノプロピルトリエトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとトリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シラン、フェニルメチルジメトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランと3，3，3－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、フェニルメチルジメトキシシランとパーフルオロオクチルエチルトリエトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとトリエトキシフルオロシラン、フェニルメチルジメトキシシランとトリデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランと3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエ

トキシシラン、フェニルメチルジメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、フェニルメチルジメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0152] (12)ビニルメチルジメトキシシランとメチルトリメトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとメチルトリエトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとエチルトリメトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとエチルトリエトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとプロピルトリメトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとプロピルトリエトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとブチルトリメトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとブチルトリエトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとペンチルトリメトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとペンチルトリエトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとヘプチルトリメトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとヘプチルトリエトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとオクチルトリメトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとオクチルトリエトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとドデシルトリメトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとヘキサデシルトリメトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとヘキサデシルトリエトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとオクタデシルトリメトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとオクタデシルトリエトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとγ－アミノプロピルトリメトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとγ－アミノプロピルトリエトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとトリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シラン、ビニルメチルジメトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランと3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、ビニルメチルジメトキシシランとパーフルオロオクチルエチルトリエト

キシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとトリエトキシフルオロシラン、ビニルメチルジメトキシシランとトリデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランと3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、ビニルメチルジメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0153] (13) γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとメチルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとメチルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとエチルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとエチルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとプロピルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとプロピルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとブチルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとブチルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとペンチルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとペンチルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとヘプチルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとヘプチルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとオクチルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとオクチルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとドデシルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとドデシルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとヘキサデシルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとヘキサデシルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとオクタデシルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとオクタデシルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとフェニルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとフェニルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプ

ロピルメチルジメトキシシシランとビニルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとビニルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとγ－アミノプロピルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとγ－アミノプロピルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとトリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとドデシルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランと3，3，3－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとパーフルオロオクチルエチルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとトリエトキシフルオロシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとトリデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランと3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0154] (14) γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとメチルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとメチルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとエチルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとエチルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとプロピルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメ

チルジエトキシシシランとプロピルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとブチルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとブチルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとペンチルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとペンチルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとヘプチルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとヘプチルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとオクチルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとオクチルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとドデシルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとドデシルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとヘキサデシルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとヘキサデシルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとオクタデシルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとオクタデシルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとフェニルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとフェニルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとビニルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとビニルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとγ－アミノプロピルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとγ－アミノプロピルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとトリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとドデシルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランと3，3，3－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン、γ－グリシ

ドキシプロピルメチルジエトキシシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとパーフルオロオクチルエチルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとトリエトキシフルオロシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとトリデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランと3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0155] (15) β－(3，4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとメチルトリメトキシシラン、β－(3，4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとメチルトリエトキシシラン、β－(3，4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとエチルトリメトキシシラン、β－(3，4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとエチルトリエトキシシラン、β－(3，4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとプロピルトリメトキシシラン、β－(3，4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとプロピルトリエトキシシラン、β－(3，4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとブチルトリメトキシシラン、β－(3，4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとブチルトリエトキシシラン、β－(3，4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとペンチルトリメトキシシラン、β－(3，4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとペンチルトリエトキシシラン、β－(3，4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとヘプチルトリメトキシシラン、β－(3，4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとヘプチルトリエトキシシラン、β－(3，4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとオクチルトリメトキシシラン、β－(3，4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとオクチルトリエトキシシラン、β－(3，4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとドデシルトリメ

トキシシラン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとヘキサデシルトリメトキシシラン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとヘキサデシルトリエトキシシラン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとオクタデシルトリメトキシシラン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとオクタデシルトリエトキシシラン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとγ－アミノプロピルトリメトキシシラン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとγ－アミノプロピルトリエトキシシラン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとトリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シラン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランと3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとパーフルオロオクチルエチルトリエトキシシラン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとトリエトキシフルオロシラン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとトリデカフルオロ－1, 1, 2, 2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシ

ラン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシラン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランと3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシラン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとヘプタデカフルオロ－1, 1, 2, 2－テトラヒドロデシルトリエトキシシラン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、β－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0156] (16) γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとメチルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとメチルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとエチルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとエチルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとプロピルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとプロピルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとブチルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとブチルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとペンチルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとペンチルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとヘプチルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとヘプチルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとオクチルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとオクチルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとドデシルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとヘキサデシルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとヘキサデシルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとオクタデシルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとオクタデシルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジ

メトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとγ－アミノプロピルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとγ－アミノプロピルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとトリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランと3，3，3－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとパーフルオロオクチルエチルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとトリエトキシフルオロシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとトリデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランと3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0157] (17) γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとメチルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとメチルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとエチルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとエチルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとプロピルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチ

ルジエトキシシランとプロピルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとブチルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとブチルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとペンチルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとペンチルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとヘプチルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとヘプチルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとオクチルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとオクチルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとドデシルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとヘキサデシルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとヘキサデシルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとオクタデシルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとオクタデシルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとビニルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとγ－アミノプロピルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとγ－アミノプロピルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとトリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランと3，3，3－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシ

シランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとパーフルオロオクチルエチルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとトリエトキシフルオロシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとトリデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランと3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、γ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0158] (18)γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとメチルトリメトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとメチルトリエトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとエチルトリメトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとエチルトリエトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとプロピルトリメトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとプロピルトリエトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとブチルトリメトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとブチルトリエトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとペンチルトリメトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとペンチルトリエトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとヘプチルトリメトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとヘプチルトリエトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとオクチルトリメトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとオクチルトリエトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとドデシルトリメトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとヘキサデシルトリメトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとヘキサデシルトリエトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとオクタデシルトリメトキシシラン、

γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとオクタデシルトリエトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとγ－アミノプロピルトリメトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとγ－アミノプロピルトリエトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとトリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランと3, 3, 3－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとパーフルオロオクチルエチルトリエトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとトリエトキシフルオロシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとトリデカフルオロ－1, 1, 2, 2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランと3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとヘプタデカフルオロ－1, 1, 2, 2－テトラヒドロデシルトリエトキシシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、γ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0159] (19) γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとメチルトリメトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとメチルトリエトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとエチルトリメトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシラン

とエチルトリエトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとプロピルトリメトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとプロピルトリエトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとブチルトリメトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとブチルトリエトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとペンチルトリメトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとペンチルトリエトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとヘプチルトリメトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとヘプチルトリエトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとオクチルトリメトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとオクチルトリエトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとドデシルトリメトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとヘキサデシルトリメトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとヘキサデシルトリエトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとオクタデシルトリメトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとオクタデシルトリエトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとビニルトリメトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとビニルトリエトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとγ－アミノプロピルトリメトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとγ－アミノプロピルトリエトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとトリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランと3，3，3－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとパ

ーフルオロオクチルエチルトリエトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとトリエトキシフルオロシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとトリデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランと3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、γ－アミノプロピルメチルジエトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0160] (20)N－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシランとメチルトリメトキシシラン、N－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシランとメチルトリエトキシシラン、N－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシランとエチルトリメトキシシラン、N－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシランとエチルトリエトキシシラン、N－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシランとプロピルトリメトキシシラン、N－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシランとプロピルトリエトキシシラン、N－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシランとブチルトリメトキシシラン、N－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシランとブチルトリエトキシシラン、N－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシランとペンチルトリメトキシシラン、N－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシランとペンチルトリエトキシシラン、N－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシランとヘプチルトリメトキシシラン、N－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシランとヘプチルトリエトキシシラン、N－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシランとオクチルトリメトキシシラン、N－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシランとオクチルトリエトキシシラン、N－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシランとドデシルトリメトキシシラン、N－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、N－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシランとヘキサデシルトリメトキシシラン、N－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシランとヘキサデシルトリエトキシシラン、

Ｎ－（２－アミノエチル）アミノプロピルメチルジメトキシシランとオクタデシルトリメトキシシラン、Ｎ－（２－アミノエチル）アミノプロピルメチルジメトキシシランとオクタデシルトリエトキシシラン、Ｎ－（２－アミノエチル）アミノプロピルメチルジメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、Ｎ－（２－アミノエチル）アミノプロピルメチルジメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、Ｎ－（２－アミノエチル）アミノプロピルメチルジメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、Ｎ－（２－アミノエチル）アミノプロピルメチルジメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、Ｎ－（２－アミノエチル）アミノプロピルメチルジメトキシシランとγ－アミノプロピルトリメトキシシラン、Ｎ－（２－アミノエチル）アミノプロピルメチルジメトキシシランとγ－アミノプロピルトリエトキシシラン、Ｎ－（２－アミノエチル）アミノプロピルメチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、Ｎ－（２－アミノエチル）アミノプロピルメチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、Ｎ－（２－アミノエチル）アミノプロピルメチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、Ｎ－（２－アミノエチル）アミノプロピルメチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、Ｎ－（２－アミノエチル）アミノプロピルメチルジメトキシシランとトリエトキシ（４－（トリフルオロメチル）フェニル）シラン、Ｎ－（２－アミノエチル）アミノプロピルメチルジメトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、Ｎ－（２－アミノエチル）アミノプロピルメチルジメトキシシランと３，３，３－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン、Ｎ－（２－アミノエチル）アミノプロピルメチルジメトキシシランと（トリエトキシシリル）シクロヘキサン、Ｎ－（２－アミノエチル）アミノプロピルメチルジメトキシシランとパーフルオロオクチルエチルトリエトキシシラン、Ｎ－（２－アミノエチル）アミノプロピルメチルジメトキシシランとトリエトキシフルオロシラン、Ｎ－（２－アミノエチル）アミノプロピルメチルジメトキシシランとトリデカフルオロ－１，１，２，２－テトラヒドロオクチルトリエトキシシラン、Ｎ－（２－アミノエチル）アミノプロピルメチルジメトキシシランとペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシラン、Ｎ－（２－アミノエチル）アミノプロピルメチルジメトキシシランと３－（ヘプタフルオロイソプロポキシ）プロピルトリエトキシシラン、Ｎ－（２－アミノエチル）アミノプロピルメチルジメトキシシランとヘプタデカフルオロ－１，１，２，２－テトラヒドロデシルトリエトキシシラン、Ｎ－（２－アミノエチル）アミノプロピルメチルジメトキシシランとトリエトキシ－２－チエニルシラン、

N－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0161] (21)3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとメチルトリメトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとメチルトリエトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとエチルトリメトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとエチルトリエトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとプロピルトリメトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとプロピルトリエトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとブチルトリメトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとブチルトリエトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとペンチルトリメトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとペンチルトリエトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとヘプチルトリメトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとヘプチルトリエトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとオクチルトリメトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとオクチルトリエトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとドデシルトリメトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとヘキサデシルトリメトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとヘキサデシルトリエトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとオクタデシルトリメトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとオクタデシルトリエトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとフェニルトリメトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとフェニルトリエトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとビニルトリメトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとビニルトリエトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとγ－アミノプロピルトリメトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとγ－アミノプロピルトリエトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチル

ジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、3，3，3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとγ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、3，3，3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、3，3，3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとγ－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、3，3，3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとトリエトキシ(4－(トリフルオロメチル)フェニル)シラン、3，3，3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとドデシルトリエトキシシラン、3，3，3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランと3，3，3－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン、3，3，3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランと(トリエトキシシリル)シクロヘキサン、3，3，3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとパーフルオロオクチルエチルトリエトキシシラン、3，3，3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとトリエトキシフルオロシラン、3，3，3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとトリデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロオクチルトリエトキシシラン、3，3，3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとペンタフルオロフェニルプロピルトリメトキシシラン、3，3，3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランと3－(ヘプタフルオロイソプロポキシ)プロピルトリエトキシシラン、3，3，3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとヘプタデカフルオロ－1，1，2，2－テトラヒドロデシルトリエトキシシラン、3，3，3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランとトリエトキシ－2－チエニルシラン、3，3，3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシランと3－(トリエトキシシリル)フラン

[0162] 少なくとも1種のジアルコキシシラン化合物と、少なくとも1種のテトラアルコキシシラン化合物とを併用する場合の好ましい組み合わせとしては以下の例が挙げられる。

(1)テトラメチルシランとメチルハイドロジェンジメトキシシラン、テトラメチルシランとメチルハイドロジェンジエトキシシラン、テトラメチルシランとジメチルジメトキシシラン、テトラメチルシランとジメチルジエトキシシラン、テトラメチルシランとメチルエチルジメトキシシラン、テトラメチルシランとジエチルジメトキシシラン、テトラメチルシランとジエチルジエトキシシラン、テトラメチルシランとメチルプロピルジメトキシシラン、テトラメチルシランとメチルプロピルジエトキシシラン、テトラメチルシランとジイソプロピルジメトキシシラン、テトラメチルシランとフェニルメチルジメトキシシラン、テトラメチルシランとビニ

ルメチルジメトキシシラン、テトラメチルシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシラン、テトラメチルシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシラン、テトラメチルシランとβ－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシラン、テトラメチルシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、テトラメチルシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、テトラメチルシランとγ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、テトラメチルシランとγ－アミノプロピルメチルジエトキシシラン、テトラメチルシランとN－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、テトラメチルシランと3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシラン

[0163] (2)テトラエチルシランとメチルハイドロジェンジメトキシシラン、テトラエチルシランとメチルハイドロジェンジエトキシシラン、テトラエチルシランとジメチルジメトキシシラン、テトラエチルシランとジメチルジエトキシシラン、テトラエチルシランとメチルエチルジメトキシシラン、テトラエチルシランとジエチルジメトキシシラン、テトラエチルシランとジエチルジエトキシシラン、テトラエチルシランとメチルプロピルジメトキシシラン、テトラエチルシランとメチルプロピルジエトキシシラン、テトラエチルシランとジイソプロピルジメトキシシラン、テトラエチルシランとフェニルメチルジメトキシシラン、テトラエチルシランとビニルメチルジメトキシシラン、テトラエチルシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシラン、テトラエチルシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシラン、テトラエチルシランとβ－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシラン、テトラエチルシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、テトラエチルシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、テトラエチルシランとγ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、テトラエチルシランとγ－アミノプロピルメチルジエトキシシラン、テトラエチルシランとN－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシラン

[0164] (3)テトラプロポキシシランとメチルハイドロジェンジメトキシシラン、テトラプロポキシシランとメチルハイドロジェンジエトキシシラン、テトラプロポキシシランとジメチルジメトキシシラン、テトラプロポキシシランとジメチルジエトキシシラン、テトラプロポキシシランと

メチルエチルジメトキシシラン、テトラプロポキシシランとジエチルジメトキシシラン、テトラプロポキシシランとジエチルジエトキシシラン、テトラプロポキシシランとメチルプロピルジメトキシシラン、テトラプロポキシシランとメチルプロピルジエトキシシラン、テトラプロポキシシランとジイソプロピルジメトキシシラン、テトラプロポキシシランとフェニルメチルジメトキシシラン、テトラプロポキシシランとビニルメチルジメトキシシラン、テトラプロポキシシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシシラン、テトラプロポキシシランとγ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシシラン、テトラプロポキシシランとβ－(3, 4－エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジメトキシシラン、テトラプロポキシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、テトラプロポキシシランとγ－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、テトラプロポキシシランとγ－メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、テトラプロポキシシランとγ－アミノプロピルメチルジエトキシシラン、テトラプロポキシシランとN－(2－アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、テトラプロポキシシランと3, 3, 3－トリフルオロプロピルメチルジメトキシシラン

[0165] 電荷輸送性ワニスに用いられる有機溶媒としては、例えば、N, N－ジメチルホルムアミド(153℃)、N, N－ジメチルアセトアミド(165℃)、N－メチルピロリドン(202℃)、1, 3－ジメチル－2－イミダゾリジノン(225℃)、ジメチルスルホキシド(189℃)、N－シクロヘキシル－2－ピロリジノン(284℃)、芳香族炭化水素〔ベンゼン(80℃)、トルエン(111℃)、エチルベンゼン(136℃)、p－キシレン(138℃)、o－キシレン(138℃)、スチレン(145℃)等〕、ケトン類〔アセトン(56℃)、メチルエチルケトン(80℃)、メチルイソプロピルケトン(94℃)、ジエチルケトン(102℃)、メチルイソブチルケトン(117℃)、メチルノーマルブチルケトン(127℃)、シクロヘキサノン(155℃)、エチルノーマルアミルケトン(167℃)〕、エステル類〔酢酸エチル(77℃)、酢酸イソプロピルケトン(85℃)、酢酸ノーマルプロピル(101℃)、酢酸イソブチル(116℃)、酢酸ノーマルブチル(125℃)、酢酸ノーマルアミル(142℃)、カプロン酸メチル(151℃)、酢酸－2－メチルペンチル(162℃)、乳酸ノーマルブチル(186℃)等〕、グリコールエステルおよびグリコールエーテル類〔エチレングリコールジメチルエーテル(85℃)、プロピレングリコールモノメチルエーテル(119℃)、エチレングリコールモノメチルエ

ーテル(124℃)、プロピレングリコールモノエチルエーテル(132℃)、エチレングリコールモノエチルエーテル(136℃)、エチレングリコールモノイソプロピルエーテル(144℃)、エチレングリコールメチルエーテルアセテート(145℃)、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート(146℃)、エチレングリコールエチルエーテルアセテート(156℃)、ジエチレングリコールジメチルエーテル(162℃)、プロピレングリコールモノブチルエーテル(170℃)、エチレングリコールモノブチルエーテル(171℃)、ジエチレングリコールジエチルエーテル(188℃)、ジプロピレングリコールモノメチルエーテル(189℃)、ジエチレングリコールモノメチルエーテル(194℃)、ジプロピレングリコールモノエチルエーテル(198℃)、ジエチレングリコールモノエチルエーテル(202℃)、トリエチレングリコールジメチルエーテル(216℃)、ジエチレングリコールモノエチルエーテルアセテート(217℃)、ジエチレングリコール(244℃)等]、アルコール類〔メタノール(65℃)、エタノール(78℃)、イソプロパノール(82℃)、tert－ブタノール(83℃)、アリルアルコール(97℃)、ノーマルプロパノール(97℃)、2－メチル－2－ブタノール(102℃)、イソブタノール(108℃)、ノーマルブタノール(117℃)、2－メチル－1－ブタノール(130℃)、1－ペンタノール(137℃)、2－メチル－1－ペンタノール(148℃)、2－エチルヘキサノール(185℃)、1－オクタノール(196℃)、エチレングリコール(197℃)、ヘキシレングリコール(198℃)、トリメチレングリコール(214℃)、1－メトキシ－2－ブタノール(135℃)、シクロヘキサノール(161℃)、ジアセトンアルコール(166℃)、フルフリルアルコール(170℃)、テトラヒドロフルフリルアルコール(178℃)、プロピレングリコール(187℃)、ベンジルアルコール(205℃)、1，3－ブタンジオール(208℃)等]、フェノール類〔アニソール(154℃)、フェノール(182℃)、m－クレゾール(202℃)等]、エーテルおよびカルボン酸類〔イソプロピルエーテル(68℃)、1，4－ジオキサン(101℃)、酢酸(117℃)、γ－ブチルラクトン(204℃)等]が挙げられる。

これらの有機溶媒は、単独で、または2種以上組み合わせて用いることができる。

[0166] 本発明においては、電荷輸送性物質および電荷受容性物質を良好に溶解し得る高溶解性溶媒を用いることができる。このような高溶解性溶媒としては、例えば、水;メタノール、N，N－ジメチルホルムアミド、N，N－ジメチルアセトアミド、N－メチルピロ

リドン、1，3－ジメチル－2－イミダゾリジノン、ジメチルスルホキシド、クロロホルム、トルエン等が挙げられる。これらの溶媒は1種単独で、または2種以上混合して用いることができ、その使用量は、ワニスに使用する溶媒全体に対して5～100質量%とすることができる。

なお、電荷輸送性ワニスは、上記溶媒に完全に溶解しているか、均一に分散している状態となっていることが好ましい。

[0167] また、本発明の電荷輸送性ワニスは、20℃で10～200mPa・s、特に50～150mPa・sの粘度を有し、常圧で沸点50～300℃、特に150～250℃の高粘度有機溶媒を、少なくとも一種類含有することが好適である。

高粘度有機溶媒としては、例えば、シクロヘキサノール、エチレングリコール、エチレングリコールジクリシジルエーテル、1，3－オクチレングリコール、ジエチレングリコール、ジプロピレングリコール、トリエチレングリコール、トリプロピレングリコール、1，3－ブタンジオール、2，3－ブタンジオール、1，4－ブタンジオール、プロピレングリコール、ヘキシレングリコール等が挙げられる。

本発明のワニスに用いられる溶媒全体に対する高粘度有機溶媒の添加割合は、固体が析出しない範囲内であることが好ましく、固体が析出しない限りにおいて、添加割合は、5～80質量%であることが好ましい。

[0168] さらに、基板に対する濡れ性の向上、溶媒の表面張力の調整、極性の調整、沸点の調整等の目的で、焼成時に膜の平坦性を付与し得るその他の溶媒を、ワニスに使用する溶媒全体に対して1～90質量%、好ましくは1～50質量%の割合で混合することもできる。

このような溶媒としては、例えば、ブチルセロソルブ、ジエチレングリコールジエチルエーテル、ジプロピレングリコールモノメチルエーテル、エチルカルビトール、ジアセトンアルコール、γ－ブチロラクトン、乳酸エチル等が挙げられる。

[0169] 電荷輸送性ワニスの固形分は、ワニスを塗布する場合の操作性を考慮すると、0．001～50質量%が好ましく、0．01～20質量%がより好ましい。

本発明の電荷輸送性ワニスが、上述したシラン化合物を含む場合、シランモノマーよりも、数量体や、オリゴマーまたはポリマーの状態で存在する方がワニスの保存安

定性が良好になる場合がある。このため、本発明の電荷輸送性ワニスは、シラン化合物を加水分解・縮合させる水を含んでもよい。

その場合、用いられる水の量はワニスの全有機溶媒に対して、0.0001～10質量%が好ましく、0.001～5質量%がより好ましい。

[0170] 以上で説明した電荷輸送性ワニスを基材上に塗布し、溶媒を蒸発させることで基材上に電荷輸送性薄膜を形成させることができる。

ワニスの塗布方法としては、特に限定されるものではなく、ディップ法、スピンコート法、転写印刷法、ロールコート法、刷毛塗り、インクジェット法、スプレー法等が挙げられる。

溶媒の蒸発法としては、特に限定されるものではなく、例えば、ホットプレートやオーブンを用いて、適切な雰囲気下、即ち大気、窒素等の不活性ガス、真空中等で蒸発させればよい。これにより、均一な成膜面を有する薄膜を得ることが可能である。

焼成温度は、溶媒を蒸発させることができれば特に限定されないが、40～250℃で行うことが好ましい。この場合、より高い均一成膜性を発現させたり、基材上で反応を進行させたりする目的で、2段階以上の温度変化をつけてもよい。

[0171] 電荷輸送性薄膜の膜厚は、特に限定されないが、有機EL素子内で電荷注入層として用いる場合、5～200nmであることが望ましい。膜厚を変化させる方法としては、ワニス中の固形分濃度を変化させたり、塗布時の基板上の溶液量を変化させたりする等の方法がある。

[0172] 本発明の電荷輸送性ワニスを用いてOLED素子を作製する場合の使用材料や、作製方法としては、下記のようなものが挙げられるが、これらに限定されるものではない。

使用する電極基板は、洗剤、アルコール、純水等による液体洗浄を予め行って浄化しておくことが好ましく、例えば、陽極基板では使用直前にオゾン処理、酸素－プラズマ処理等の表面処理を行うことが好ましい。ただし陽極材料が有機物を主成分とする場合、表面処理を行わなくともよい。

[0173] 正孔輸送性ワニスをOLED素子に使用する場合、以下の方法を挙げることができる。

陽極基板上に当該正孔輸送性ワニスを塗布し、上記の方法により蒸発、焼成を行い、電極上に正孔輸送性薄膜を作製する。これを真空蒸着装置内に導入し、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層、陰極金属を順次蒸着してOLED素子とする。発光領域をコントロールするために任意の層間にキャリアブロック層を設けてもよい。

陽極材料としては、インジウム錫酸化物(ITO)、インジウム亜鉛酸化物(IZO)に代表される透明電極が挙げられ、平坦化処理を行ったものが好ましい。高電荷輸送性を有するポリチオフェン誘導体やポリアニリン誘導体を用いることもできる。

[0174] 正孔輸送層を形成する材料としては、(トリフェニルアミン)ダイマー誘導体(TPD)、(α－ナフチルジフェニルアミン)ダイマー(α－NPD)、[(トリフェニルアミン)ダイマー]スピロダイマー(Spiro－TAD)等のトリアリールアミン類、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', 4"－トリス[1－ナフチル(フェニル)アミノ]トリフェニルアミン(1－TNATA)等のスターバーストアミン類、5, 5"－ビス－{4－[ビス(4－メチルフェニル)アミノ]フェニル}－2, 2':5', 2"－ターチオフェン(BMA－3T)等のオリゴチオフェン類を挙げることができる。

[0175] 発光層を形成する材料としては、トリス(8－キノリノラート)アルミニウム(III)(Alq_3)、ビス(8－キノリノラート)亜鉛(II)(Znq_2)、ビス(2－メチル－8－キノリノラート)(p－フェニルフェノラート)アルミニウム(III)(BAlq)および4, 4'－ビス(2, 2－ジフェニルビニル)ビフェニル(DPVBi)等が挙げられ、電子輸送材料または正孔輸送材料と発光性ドーパントとを共蒸着することによって、発光層を形成してもよい。

電子輸送材料としては、Alq_3、BAlq、DPVBi、(2－(4－ビフェニル)－5－(4－t－ブチルフェニル)－1, 3, 4－オキサジアゾール)(PBD)、トリアゾール誘導体(TAZ)、バソクプロイン(BCP)、シロール誘導体等が挙げられる。

[0176] 発光性ドーパントとしては、キナクリドン、ルブレン、クマリン540、4－(ジシアノメチレン)－2－メチル－6－(p－ジメチルアミノスチリル)－4H－ピラン(DCM)、トリス(2－フェニルピリジン)イリジウム(III)($Ir(ppy)_3$)、(1, 10－フェナントロリン)－トリス(4, 4, 4－トリフルオロ－1－(2－チエニル)－ブタン－1, 3－ジオナート)ユーロピウ

ム(III)(Eu(TTA)$_3$phen)等が挙げられる。

[0177] キャリアブロック層を形成する材料としては、PBD、TAZ、BCP等が挙げられる。

電子注入層を形成する材料としては、酸化リチウム(Li_2O)、酸化マグネシウム(MgO)、アルミナ(Al_2O_3)、フッ化リチウム(LiF)、フッ化マグネシウム(MgF_2)、フッ化ストロンチウム(SrF_2)、Liq、Li(acac)、酢酸リチウム、安息香酸リチウム等が挙げられる。

陰極材料としては、アルミニウム、マグネシウムー銀合金、アルミニウムーリチウム合金、リチウム、ナトリウム、カリウム、セシウム等が挙げられる。

[0178] また、電子輸送性ワニスをOLED素子に使用する場合、以下の方法を挙げることができる。

陰極基板上に当該電子輸送性ワニスを塗布して電子輸送性薄膜を作製し、これを真空蒸着装置内に導入し、上記と同様の材料を用いて電子輸送層、発光層、正孔輸送層、正孔注入層を形成した後、陽極材料をスパッタリング等の方法により成膜してOLED素子とする。

[0179] 本発明の電荷輸送性ワニスを用いたPLED素子の作製方法は、特に限定されないが、以下の方法が挙げられる。

上記OLED素子作製において、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層の真空蒸着操作を行う代わりに、発光性電荷輸送性高分子層を形成することによって本発明の電荷輸送性ワニスによって形成される電荷輸送性薄膜を含むPLED素子を作製することができる。

具体的には、陽極基板上に、電荷輸送性ワニス(正孔輸送性ワニス)を塗布して上記の方法により正孔輸送性薄膜を作製し、その上部に発光性電荷輸送性高分子層を形成し、さらに陰極電極を蒸着してPLED素子とする。

あるいは、陰極基板上に、電荷輸送性ワニス(電子輸送性ワニス)を塗布して上記の方法により電子輸送性薄膜を作製し、その上部に発光性電荷輸送性高分子層を形成し、さらにスパッタリング、蒸着、スピンコート等の方法により陽極電極を作製してPLED素子とする。

[0180] 使用する陰極および陽極材料としては、上記OLED素子作製時と同様の物質が使

用でき、同様の洗浄処理、表面処理を行うことができる。

発光性電荷輸送性高分子層の形成法としては、発光性電荷輸送性高分子材料、またはこれに発光性ドーパントを加えた材料に溶媒を加えて溶解するか、均一に分散し、正孔注入層を形成してある電極基板に塗布した後、溶媒の蒸発により成膜する方法が挙げられる。

発光性電荷輸送性高分子材料としては、ポリ(9, 9－ジアルキルフルオレン)(PDAF)等のポリフルオレン誘導体、ポリ(2－メトキシ－5－(2'－エチルヘキソキシ)－1, 4－フェニレンビニレン)(MEH－PPV)等のポリフェニレンビニレン誘導体、ポリ(3－アルキルチオフェン)(PAT)などのポリチオフェン誘導体、ポリビニルカルバゾール(PVCz)等を挙げることができる。

[0181] 溶媒としては、トルエン、キシレン、クロロホルム等を挙げることができ、溶解または均一分散法としては攪拌、加熱攪拌、超音波分散等の方法が挙げられる。

塗布方法としては、特に限定されるものではなく、インクジェット法、スプレー法、ディップ法、スピンコート法、転写印刷法、ロールコート法、刷毛塗り等が挙げられる。なお、塗布は、窒素、アルゴン等の不活性ガス下で行うことが望ましい。

溶媒の蒸発法としては、不活性ガス下または真空中、オーブンまたはホットプレートで加熱する方法を挙げることができる。

実施例

[0182] 以下、実施例および比較例を挙げて、本発明をより具体的に説明するが、本発明は下記の実施例に限定されるものではない。なお、実施例で用いた各測定装置は以下のとおりである。

[MSスペクトル]

装置(MALDI－TOF):Applied Biosystems社製 Voyager－DE™ PRO

[NMRスペクトル]

日本電子株式会社製 ECP300

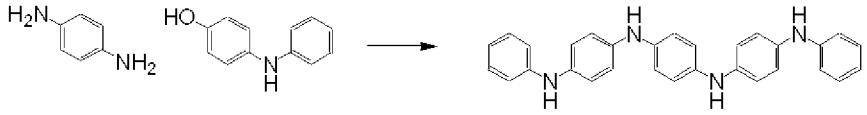
[0183] [1]オリゴアニリン化合物の合成

[比較例1]

下記に示すフェニルテトラアニリン(以下PTAと略す)は、ブレティン・オブ・ケミカル

・ソサエティ・オブ・ジャパン(Bulletin of Chemical Society of Japan)、1994年、第67巻、p1749－1752に従って、p－ヒドロキシジフェニルアミンとp－フェニレンジアミンとから合成した(薄青色固体、収率85%)。

[化9]



(8)

[0184] 得られたPTA 20g(0.0452mmol)と、活性炭 2g(PTAの10質量%)と、超音波を用いて脱気した脱水1,4－ジオキサン500gとを窒素雰囲気下にて1L三口丸底フラスコに加えた。次いで、オイルバスを使用して内温を90℃に保持したまま1時間加熱攪拌し、PTAを完全に溶解させた。その後、桐山ガラスS－60、桐山ろ紙3C、固定相としてセライト545を用いて、温度コントローラ付き水循環装置を90℃に保温したまま熱時ろ過を行い、活性炭を除去した。得られたろ液を内温が20℃になるまで放冷した。放冷後、PTAが析出した薄紫色溶液を、反応容器に入れたままグローブボックスに移し、相対湿度が5%になるまで窒素フローを行った。相対湿度5%を保持し、グローブボックス中で析出したPTAを吸引ろ過した。ブフナーロート上のPTAを、1,4－ジオキサン200mL、脱水トルエン200mL、ジエチルエーテル200mLの順序で洗浄した。グローブボックス中でフッ素樹脂ミクロスパーテルを用いてPTAを100mL丸底フラスコに移し取り、3方コックを用いて減圧後、窒素パージした。その後、120℃に保持した真空乾燥機中で24時間減圧乾燥して白色固体のPTA19.34gを得た(回収率96%)。

なお、脱水1,4－ジオキサンは関東化学製、ヒドラジン1水和物は和光純薬製、活性炭素は純正化学製、セライトは純正化学製(セライト545)を使用した。

1H－NMR;δ 6.6－7.2(Ar, 22H, m)、7.6－7.8(－NH, 4H)ppm

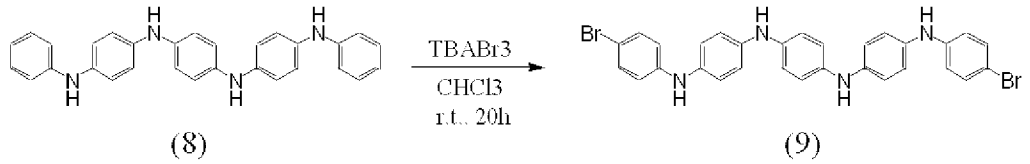
分子量;442.55

MALDI－TOF;442.43$[M]^+$

[0185] [実施例1]

〔1－1〕ジブロモフェニルテトラアニリンの合成

[化10]



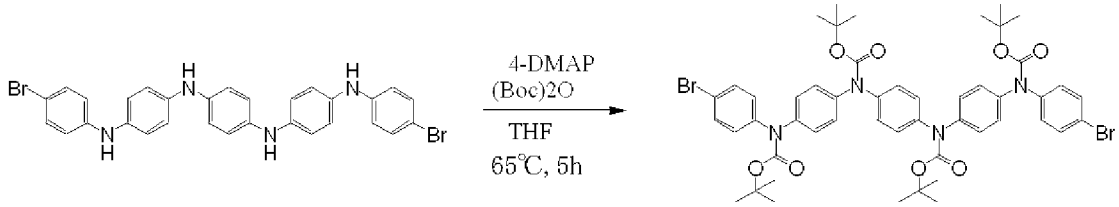
(8) (9)

[0186] 500mL三角フラスコに、PTA20g(41.19mmol)、およびクロロホルム300mLを投入し、さらにラグビーボール型の攪拌子を入れて攪拌した(PTAはクロロホルムに溶解しないので懸濁状であった)。次に、200mLのビーカにテトラブチルアンモニウムトリブロミド(TBABr$_3$)39.72g(82.38mmol)を投入し、これにクロロホルム50mL加えて溶解させた。この溶液をクロロホルム－PTA溶液へ滴下した後、20時間、室温、大気中で攪拌した。撹拌後、クロロホルム－PTA溶液を1000mLの分液ロートへ移し、飽和チオ硫酸ナトリウム水溶液100mLを加えて分液洗浄を5回行った。分液後のクロロホルム層を500mLの三角フラスコに移し、無水硫酸マグネシウム20gを入れて脱水を行った。ろ過により無水硫酸マグネシウムを除去した後、クロロホルム溶液を500mLのナスフラスコに移し、エバポレーターによりクロロホルムを除去した。比較例1に準じ、粗生成物を活性炭処理・再結晶して精製した(回収率85%)。

1H－NMR; δ 6.8－7.2(Ar, 20H, m)、7.6－7.8(－NH, 4H)ppm

[0187] 〔1－2〕BOC化

[化11]



(9) (10)

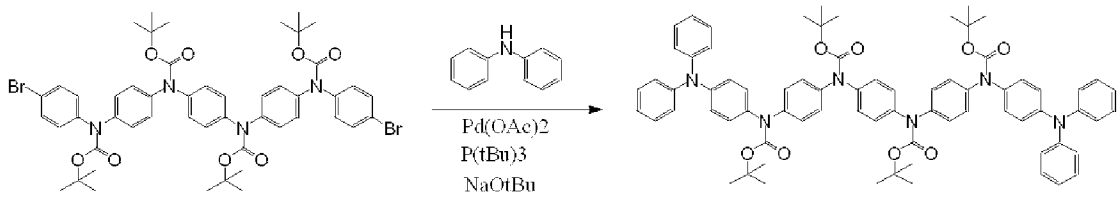
[0188] 500mLナスフラスコに、〔1－1〕で得られた化合物(9) 10g(16.65mmol)、4－ジメチルアミノピリジン0.2g(1.66mmol)、二炭酸ジ－t－ブチル15.26g(69.95mmol)、およびテトラヒドロフラン(THF)400mLを投入し、65℃で5時間反応させた。反応終了後、エバポレーターによりTHFを除去した。残渣にメタノール400mLを加え、室温で20分間攪拌後、析出物をブフナーロートでろ別回収し、50℃で真空乾

燥して目的物を得た(収率80%)。

1H-NMR; δ 1.36(CH_3, 36H, s)、7.1-7.6(Ar, 20H, m)ppm

[0189] 〔1-3〕カップリング反応

[化12]



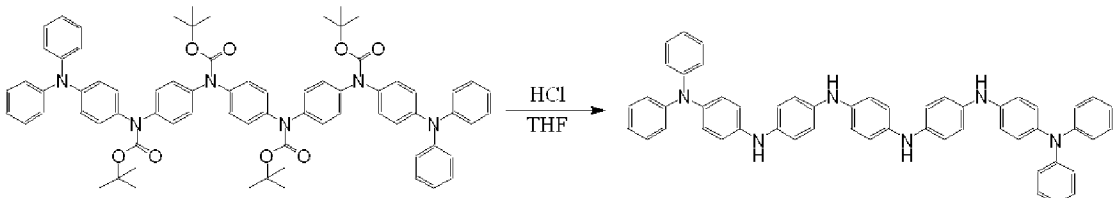
(10) (11)

[0190] 300mL三口フラスコに、トルエン200mLおよび酢酸パラジウム67.2mg(0.3mmol)を投入し、さらにラグビーボール型の撹拌子を入れた。続いて、フラスコ両側の口にセプタムキャップをセットし、中央の口に還流蛇管、その上に3方コックと窒素ガスを封入した風船をセットし、真空ポンプを用いて風船内の窒素ガスでフラスコ内を3回置換した。次に、トリス-t-ブチルホスフィン1.2g(6mmol)をシリンジ注入し、5~10分間室温で撹拌した。その後、〔1-2〕で得られた化合物(10) 10g(9.99mmol)、ジフェニルアミン3.38g(20mmol)、およびt-ブトキシナトリウム2g(20.98mmol)を加えた。フラスコをオイルバスにセットし、溶液を撹拌しながら徐々に120℃まで昇温した。20時間後、オイルバスからフラスコをはずして反応を終了させ、さらに窒素雰囲気下で空冷して室温まで戻した。

反応溶液を分液ロートに移し、ジエチルエーテル70mLを加え、飽和食塩水100mLで数回洗浄した。有機層を取り出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。無水硫酸マグネシウムをろ別して得られた有機層からエバポレーターにより溶媒を除去し、粗生成物を得た(収率75%)。単離精製が困難であったため、粗生成物を用いて次の反応を進めた。

[0191] 〔1-4〕脱BOC化

[化13]



(11) (12)

[0192] 500mLナスフラスコに、〔1－3〕で得られた化合物(11) 10g(8.49mmol)、テトラヒドロフラン200mL、および4規定塩酸水溶液50mLを投入し、さらにラグビーボール型攪拌子を入れた。続いて、フラスコの口に還流蛇管を付け、大気中、65℃で5時間反応させた後、反応容器を空冷して反応を終了させた。反応液を分液ロートに移し、飽和水酸化ナトリム溶液50mLを加えて数回、さらに水で数回洗浄を行った。有機層を無水硫酸マグネシウムで脱水した後、硫酸マグネシウムをろ過にて除去し、エバポレーターでろ液から溶媒を除去し、粗生成物を得た(収率70%)。比較例1に準じ、粗生成物を活性炭処理・再結晶して精製した(回収率90%)。

1H－NMR; δ 6.8－7.3(Ar, 40H, m)、7.55－7.85(－NH, 4H)ppm

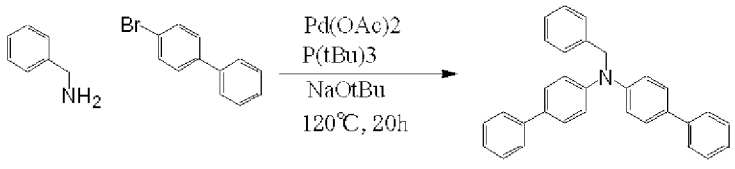
分子量;776.97

MALDI－TOF;775.87$[M]^+$

[0193] [実施例2]

〔2－1〕N, N－ジ－(4－ビフェニリル)－ベンジルアミンの合成

[化14]



(13)

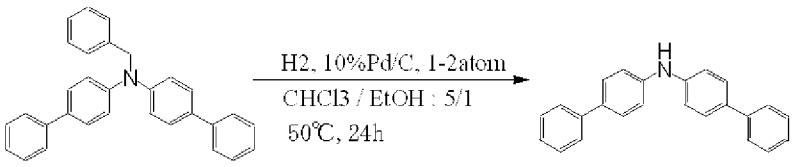
[0194] 100mL三口フラスコに、トルエン80mLおよび酢酸パラジウム42.0mg(0.187mmol)を投入し、さらにラグビーボール型の攪拌子を入れた。続いて、フラスコ両側の口にセプタムキャップをセットし、中央の口に還流蛇管、その上に3方コックと窒素ガスを封入した風船をセットし、真空ポンプを用いて風船内の窒素ガスでフラスコ内を3回置換した。次に、トリス－t－ブチルホスフィン0.6g(3mmol)をシリンジ注入し、5～10分間室温で攪拌した。その後、ベンジルアミン2.04mL(18.7mmol)、4－ジ

ブロモフェニル10．0g(42．9mmol)、およびt－ブトキシナトリウム4．3g(44．9mmol)を加えた。フラスコをオイルバスにセットし、溶液を攪拌しながら徐々に120℃まで昇温した。20時間後、オイルバスからフラスコをはずして反応を終了させ、さらに窒素雰囲気下で空冷して室温まで戻した。反応溶液を分液ロートに移し、ジエチルエーテル10mLを加え、飽和食塩水50mLで数回洗浄した。有機層を取り出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。無水硫酸マグネシウムをろ別して得られた有機層からエバポレーターにより溶媒を除去し、粗生成物を得た。粗生成物をトルエン50mLで数回洗浄し、精製した(収率90％)。

1H－NMR；δ 5．07(CH_2, 2H, s)、7．0－7．7(Ar, 23H, m)ppm

[0195] 〔2－2〕脱ベンジル化

[化15]



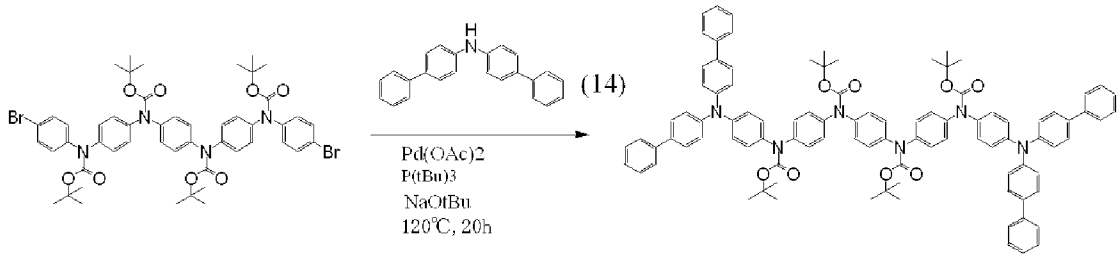
(13) (14)

[0196] 300mLナスフラスコに、〔2－1〕で得られた化合物(13) 1．35g(3．28mmol)、およびパラジウム－活性炭素(パラジウム含有量10重量％)135mg(10重量％)を投入し、これにクロロホルム100mL、エタノール20mLを加えて化合物(13)を溶解させた。次に、フラスコにラクビーボール型の攪拌子を入れた後、水素ガスが充填された風船を装着した3方コックをフラスコに取り付け、真空ポンプを用いてフラスコ内を水素ガスで3回置換した。置換に使用した分の水素ガスを風船に新たに充填し、50℃で24時間反応させた。反応終了後、ジクロロメタン100mLを加え、触媒をろ別した。次に、得られた溶液を分液ロートに移し、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液50mLで洗浄後、有機層を分別し、無水硫酸マグネシウムで脱水した。ろ別後、溶媒をエバポレーターで除去し、得られた粗生成物を、トルエン50mLで再結晶して精製した(収率90％)。

1H－NMR；δ 5．83(1H, s)、7．0－7．8(18H, m)ppm

[0197] 〔2－3〕カップリング反応

[化16]

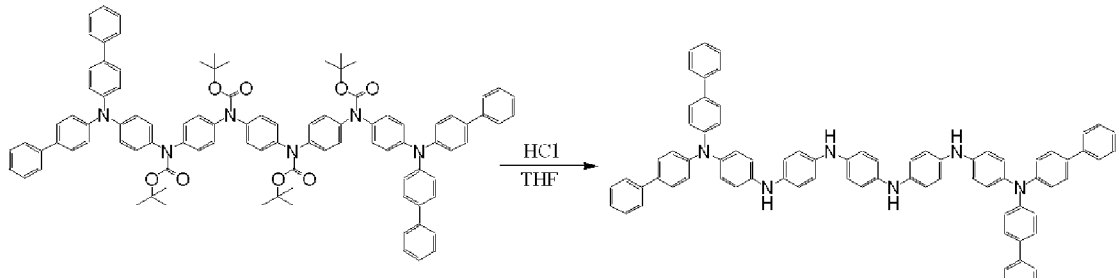


(10) (15)

[0198] 300mL三口フラスコに、トルエン200mL、および酢酸パラジウム67．2mg(0．3mmol)を投入し、さらにラグビーボール型の攪拌子を入れた。続いて、フラスコ両側の口にセプタムキャップをセットし、中央の口に還流蛇管、その上に3方コックと窒素ガスを封入した風船をセットし、真空ポンプを用いて風船内の窒素ガスでフラスコ内を3回置換した。次に、トリス－t－ブチルホスフィン1．2g(6mmol)をシリンジ注入し、5～10分間室温で攪拌した。その後、〔1－2〕で得られた化合物(10) 10g(9．99mmol)、〔2－2〕で得られた化合物(14)6．42g(20mmol)、およびt－ブトキシナトリウム2．1g(22mmol)を加えた。フラスコをオイルバスにセットし、溶液を攪拌しながら徐々に120℃まで昇温した。20時間後、オイルバスからフラスコをはずして反応を終了させ、さらに窒素雰囲気下で空冷して室温まで戻した。反応溶液を分液ロートに移し、ジエチルエーテル70mLを加え、飽和食塩水100mLで数回洗浄した。有機層を取り出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。無水硫酸マグネシウムをろ別して得られた有機層からエバポレーターにより溶媒を除去し、粗生成物を得た(収率85%)。単離精製が困難であったため、粗生成物を用いて次の反応を進めた。

[0199] 〔2－4〕脱BOC化

[化17]



(15) (16)

[0200] 500mLナスフラスコに、〔2－3〕で得られた化合物（15） 10g（6．75mmol）、テトラヒドロフラン200mL、および4規定塩酸水溶液50mLを投入し、さらにラグビーボール型攪拌子を入れた。続いて、フラスコの口に還流蛇管を付け、大気中、65℃で5時間反応させた後、反応容器を空冷して反応を終了させた。反応液を分液ロートに移し、飽和水酸化ナトリム溶液50mLを加えて数回、さらに水で数回洗浄を行った。有機層を無水硫酸マグネシウムで脱水し、ろ過で硫酸マグネシウムを除去した後、エバポレーターでろ液から溶媒を除去し、粗生成物を得た（収率80％）。比較例1に準じ、粗生成物を活性炭処理・再結晶して精製した（回収率95％）。

1H－NMR；δ 6．9－7．5（Ar，56H，m）、7．55－7．65（－NH，4H）ppm

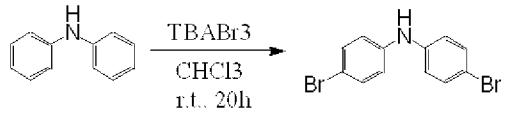
分子量；1081．35

MALDI－TOF；1079．69$[M]^{+}$

[0201] ［実施例3］

〔3－1〕4－ブロモジフェニルアミンの合成

［化18］



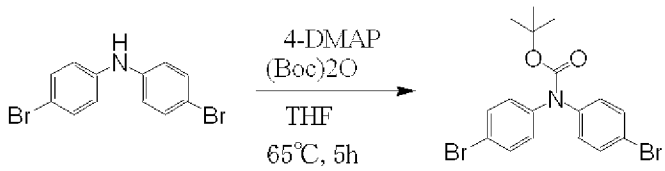
(17)

[0202] 1000mL三角フラスコに、ジフェニルアミン20g（118．1mmol）、およびクロロホルム500mLを投入し、さらにラグビーボール型の攪拌子を入れて攪拌した。次に500mLビーカに、テトラブチルアンモニウムトリブロミド（$TBABr_3$）113．8g（236．2mmol）を投入し、クロロホルム200mLを加えて溶解させた。この溶液をクロロホルム－ジフェニルアミン溶液へ滴下し、20時間、室温、大気中で攪拌後、1000mLの分液ロートへクロロホルム－ジフェニルアミン溶液を移し、飽和チオ硫酸ナトリウム水溶液100mL加えて分液洗浄を7回行った。有機層を、10000mLの三角フラスコに移し、無水硫酸マグネシウム100gを入れて脱水を行った。ろ過により無水硫酸マグネシウムを除去した後、クロロホルム溶液を1000mLのナスフラスコに移し、エバポレーターによりクロロホルムを除去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラム（ヘキサン：クロロホルム＝1：1）により精製した（収率70％）。

1H－NMR; δ 5. 8(－NH, 1H, s)、7. 0－7. 6(Ar, 8H, d)ppm

[0203] 〔3－2〕BOC化

[化19]



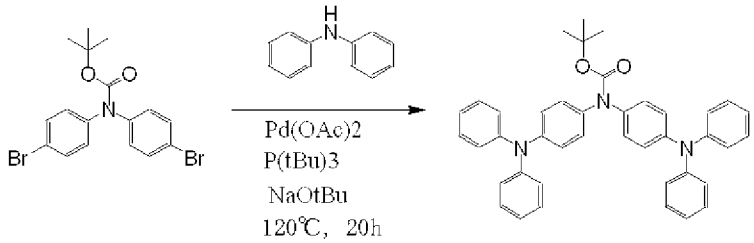
(17) (18)

[0204] 500mLナスフラスコに、〔3－1〕で得られた化合物(17) 10g(30. 58mmol)、4－ジメチルアミノピリジン0. 74g(6. 1mmol)、二炭酸ジ－t－ブチル8. 0g(36. 7mmol)、およびTHF400mLを加え、65℃で5時間反応させた。反応終了後、エバポレーターでTHFを除去した。得られた粗生成物をシリカゲルカラム(ヘキサン:クロロホルム:酢酸エチル＝10:10:1)により精製した(収率80%)。

1H－NMR; δ 1. 38(CH_3, 9H、s)、7. 0－7. 6(Ar, 8H, d)ppm

[0205] 〔3－3〕カップリング反応

[化20]



(18) (19)

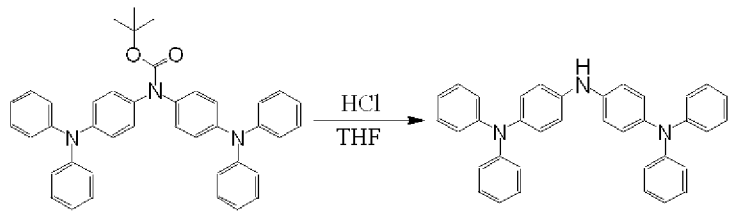
[0206] 300mL三口フラスコに、トルエン200mLおよび酢酸パラジウム157. 3mg(0. 702mmol)を投入し、さらにラグビーボール型の攪拌子を入れた。続いて、フラスコ両側の口にセプタムキャップをセットし、中央の口に還流蛇管、その上に3方コックと窒素ガスを封入した風船をセットし、真空ポンプを用いて風船内の窒素ガスでフラスコ内を3回置換した。次に、トリス－t－ブチルホスフィン2. 84g(14mmol)をシリンジ注入し、5～10分間室温で攪拌した。その後、〔3－2〕で得られた化合物(18) 10g(23. 41mmol)、ジフェニルアミン7. 92g(46. 82mmol)、およびt－ブトキシナトリウム4. 6g(48mmol)を加えた。フラスコをオイルバスにセットし、溶液を攪拌しながら

徐々に120℃まで昇温した。20時間後、オイルバスからフラスコをはずして反応を終了させ、さらに、窒素雰囲気下で空冷して室温まで戻した。反応溶液を分液ロートに移し、ジエチルエーテル70mLを加え、飽和食塩水100mLで数回洗浄した。有機層を取り出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。無水硫酸マグネシウムをろ別して得られた有機層からエバポレーターにより溶媒を除去し、粗生成物を得た(収率90%)。

1H−NMR; δ 1.38(CH_3, 9H, s)、6.9−7.8(Ar, 28H, m)ppm

[0207] 〔3−4〕脱BOC化

[化21]



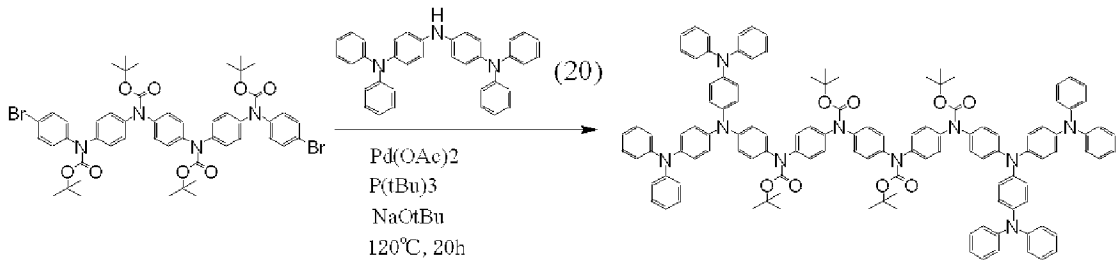
(19) (20)

[0208] 500mLナスフラスコに、〔3−3〕で得られた化合物(19) 10g(16.56mmol)、テトラヒドロフラン200mL、および4規定塩酸水溶液20mLを投入し、さらにラグビーボール型攪拌子を入れた。続いて、フラスコの口に還流蛇管を付け、大気中、65℃で5時間反応させ、反応容器を空冷して反応を終了させた。反応液を分液ロートに移し、飽和水酸化ナトリム溶液50mLを加えて数回、さらに水で数回洗浄した。有機層を無水硫酸マグネシウムで脱水し、ろ過で硫酸マグネシウムを除去した後、エバポレーターでろ液から溶媒を除去し、粗生成物を得た。得られた粗生成物を、シリカゲルカラム(ヘキサン:クロロホルム=1:1)により精製した(収率80%)。

1H−NMR; δ 6.9−7.8(Ar, 28H, m)ppm

[0209] 〔3−5〕カップリング反応

[化22]

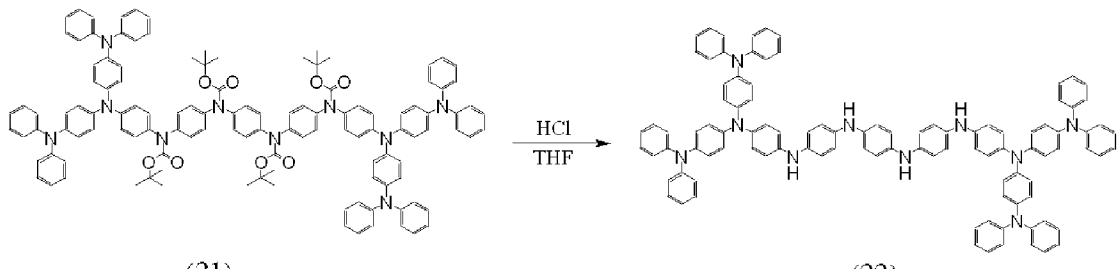


(10) (21)

[0210] 300mL三口フラスコに、トルエン200mLおよび酢酸パラジウム0．67g（0．3mmol）を投入し、さらにラグビーボール型の攪拌子を入れた。続いて、フラスコ両側の口にセプタムキャップをセットし、中央の口に還流蛇管、その上に3方コックと窒素ガスを封入した風船をセットし、真空ポンプを用いて風船内の窒素ガスでフラスコ内を3回置換した。次に、トリスーtーブチルホスフィン1．2g（6mmol）をシリンジ注入し、5～10分間室温で攪拌した。その後、〔1－2〕で得られた化合物（10） 10g（9．99mmol）、〔3－4〕で得られた化合物（20） 10．07g（20mmol）、およびtーブトキシナトリウム2g（20．98mmol）を加えた。フラスコをオイルバスにセットし、溶液を攪拌しながら徐々に120℃まで昇温した。20時間後、オイルバスからフラスコをはずして反応を終了させ、さらに窒素雰囲気下で空冷して室温まで戻した。反応溶液を分液ロートに移し、ジエチルエーテル70mLを加え、飽和食塩水100mLで数回洗浄した。有機層を取り出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。無水硫酸マグネシウムをろ別して得られた有機層からエバポレーターにより溶媒を除去し、粗生成物を得た（収率85％）。単離精製が困難であったため、粗生成物を用いて次の反応を進めた。

[0211] 〔3－6〕脱BOC化

[化23]



(21) (22)

[0212] 500mLナスフラスコに、〔3－5〕で得られた化合物（21） 10g（5．41mmol）、テトラヒドロフラン200mL、および4規定塩酸水溶液50mLを投入し、さらにラグビーボー

ル型攪拌子を入れた。続いて、フラスコに還流蛇管を付け、大気中、65℃で5時間反応させた後、反応容器を空冷して反応を終了させた。反応液を分液ロートに移し、飽和水酸化ナトリム溶液50mLを加えて数回、さらに水で数回洗浄した。有機層を無水硫酸マグネシウムで脱水し、ろ過で硫酸マグネシウムを除去した後、エバポレーターでろ液から溶媒を除去し、粗生成物を得た(収率80%)。比較例1に準じ、粗生成物を活性炭処理・再結晶して精製した(回収率95%)。

1H－NMR; δ 6. 9－7. 3(Ar, 72H, m)ppm

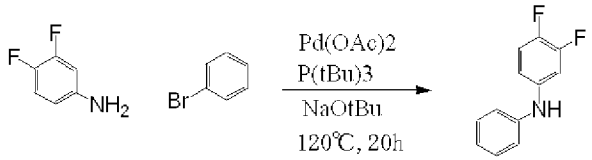
分子量;1445. 79

MALDI－TOF;1443. 53$[M]^+$

[0213] [実施例4]

〔4－1〕3, 4－ジフルオロフェニルフェニルアミンの合成

[化24]



(23)

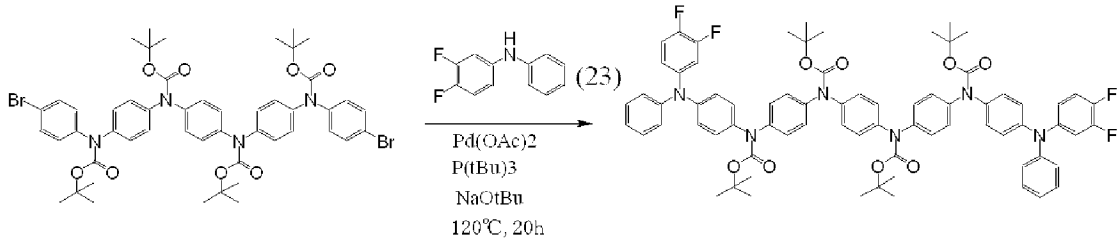
[0214] 300mL三口フラスコに、トルエン200mLおよび酢酸パラジウム0. 21g(0. 96mmol)を投入し、さらにラグビーボール型の攪拌子を入れた。続いて、フラスコ両側の口にセプタムキャップをセットし、中央の口に還流蛇管、その上に3方コックと窒素ガスを封入した風船をセットし、真空ポンプを用いて風船内の窒素ガスでフラスコ内を3回置換した。次に、トリス－t－ブチルホスフィン3. 8g(18. 9mmol)をシリンジ注入し、5～10分間室温で攪拌した。その後、4－ブロモベンゼン10g(63. 7mmol)、3, 4－ジフルオロアニリン4. 11g(31. 8mmol)、およびt－ブトキシナトリウム6. 1g(63. 7mmol)を加えた。フラスコをオイルバスにセットし、溶液を攪拌しながら徐々に120℃まで昇温した。20時間後、オイルバスからフラスコをはずして反応を終了させ、さらに、窒素雰囲気下で空冷して室温まで戻した。反応溶液を分液ロートに移し、ジエチルエーテル70mLを加え、飽和食塩水100mLで数回洗浄した。有機層を取り出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。無水硫酸マグネシウムをろ別して得られた有機層

からエバポレーターにより溶媒を除去し、粗生成物を得た。粗生成物をシリカゲルカラム(ヘキサン:クロロホルム＝2:1)により精製した(収率92%)。

1H－NMR; δ 5.8(－NH, 1H, s)、6.9－7.8(Ar, 8H, m)ppm

[0215] 〔4－2〕カップリング反応

[化25]

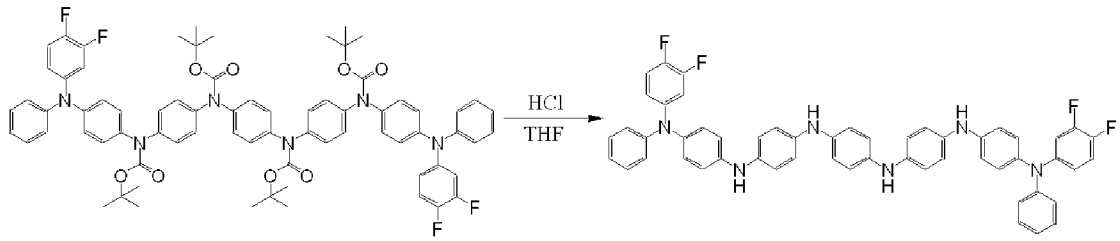


(10) (24)

[0216] 300mL三口フラスコに、トルエン200mLおよび酢酸パラジウム67.2mg(0.3mmol)を投入し、さらにラグビーボール型攪拌子を入れた。続いて、フラスコ両側の口にセプタムキャップをセットし、中央の口に還流蛇管、その上に3方コックと窒素ガスを封入した風船をセットし、真空ポンプを用いて風船内の窒素ガスでフラスコ内を3回置換した。次に、トリス－t－ブチルホスフィン1.2g(6mmol)をシリンジ注入し、5～10分間室温で攪拌した。その後、〔1－2〕で得られた化合物(10) 10g(9.99mmol)、〔4－1〕で得られた化合物(23) 4.1g(20mmol)、およびt－ブトキシナトリウム2g(20.98mmol)を加えた。フラスコをオイルバスにセットし、溶液を攪拌しながら徐々に120℃まで昇温した。20時間後、オイルバスからフラスコをはずして反応を終了させ、さらに窒素雰囲気下で空冷して室温まで戻した。反応溶液を分液ロートに移し、ジエチルエーテル70mLを加え、飽和食塩水100mLで数回洗浄した。有機層を取り出し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。無水硫酸マグネシウムをろ別して得られた有機層からエバポレーターにより溶媒を除去し、粗生成物を得た(収率72%)。単離精製が困難であったため、粗生成物を用いて次の反応を進めた。

[0217] 〔4－3〕脱BOC化

[化26]



(24) (25)

[0218] 500mLナスフラスコに、〔4－3〕で得られた化合物(24) 10g(8.0mmol)、テトラヒドロフラン200mL、および4規定塩酸水溶液50mLを投入し、さらにラグビーボール型攪拌子を入れた。続いて、フラスコの口に還流蛇管を付け、大気中、65℃で5時間反応させた後、反応容器を空冷して反応を終了させた。反応液を分液ロートに移し、飽和水酸化ナトリム溶液50mLを加えて数回、さらに水で数回洗浄した。有機層を無水硫酸マグネシウムで脱水し、ろ過で硫酸マグネシウムを除去した後、エバポレーターでろ液から溶媒を除去し、粗生成物を得た(収率80%)。比較例1に準じ、粗生成物を活性炭処理・再結晶して精製した(回収率95%)。

1H－NMR;δ 6.8－7.3(Ar, 36H、m)、7.55－7.85(－NH, 4H)ppm

分子量;848.93

MALDI－TOF;848.01$[M]^+$

[0219] [2]電荷輸送性ワニスおよび電荷輸送性薄膜の作製

[比較例2]

比較例1で得られたPTAと、これに対して12モル当量の5－スルホサリチル酸とを、1,3－ジメチル－2－イミダゾリジノン(DMI):シクロヘキサノール＝2:4(質量比)の割合の溶媒に、固形分15質量%になるように溶解させてワニスを調製した。このワニスを用いてITOガラス基板上へスピンコート法により薄膜を作製した。

[0220] [実施例5]

実施例1で得られた化合物(12)と、これに対して12モル当量の5－スルホサリチル酸とを、1,3－ジメチル－2－イミダゾリジノン(DMI):シクロヘキサノール＝2:4(質量比)の割合の溶媒に、固形分15質量%になるように溶解させてワニスを調製した。このワニスを用いてITOガラス基板上へスピンコート法により薄膜を作製した。

[0221] [実施例6]

実施例2で得られた化合物(16)を用いた以外は、実施例5と同様にして、ワニスおよび薄膜を作製した。

[0222] [実施例7]

実施例3で得られた化合物(22)を用いた以外は、実施例5と同様にして、ワニスおよび薄膜を作製した。

[0223] [実施例8]

実施例4で得られた化合物(25)を用いた以外は、実施例5と同様にして、ワニスおよび薄膜を作製した。

[0224] 上記比較例2および実施例5～8で作製した薄膜の膜厚およびその導電率を測定した。結果を表1に示す。

なお、膜厚は、日本真空技術社製、表面形状測定装置 DEKTAK3STを用いて測定し、導電率は、アジレント社製、半導体パラメータアナライザ 4156Cを用いて測定した。

[0225] [表1]

	5-SSA当量 (eq.)	膜厚 (nm)	導電率 (S/cm)
比較例2	12	154.6	4.11×10^{-7}
実施例5	12	126.5	2.80×10^{-6}
実施例6	12	147.3	6.10×10^{-6}
実施例7	12	110.4	2.74×10^{-5}
実施例8	12	121.4	3.70×10^{-6}

[0226] 表1に示されるように、実施例5～8で得られた薄膜の導電率は、比較例2よりも大きな値を示していることから、実施例1～4で得られたトリフェニルアミン構造を有するオリゴアニリンはPTAより優れた導電性を有していることがわかる。

[0227] [3]高分子EL素子の作製

[実施例9]

実施例1で得られた化合物(12)と、これに対して2．5モル当量の上記式(26)で示されるナフタレンジスルホン酸オリゴマー(NSO－2)とを、1，3－ジメチル－2－イミダゾリジノン(DMI):シクロヘキサノール＝2:4(質量比)の割合の溶媒に、固形分3

質量%になるように溶解させてワニスを調製した。このワニスを用いてITOガラス基板上へスピンコート法により約50nmの均一な薄膜を作製した。次にキシレン溶媒に高分子青色発光材料(メルク社製, SPB－02T)を固形分約1．5質量%になるように溶解させたワニスを用いて、先に作製した薄膜上にスピンコート法により約70nmの膜を成膜した後、真空蒸着装置内に導入し、陰極としてバリウム(0．1nm)、銀(100nm)をそれぞれ8×10^{-4}Pa以下の圧力となってから蒸着操作(蒸着レート0．5nm／s)を行って成膜し、高分子EL素子を得た。

なお、NSO－2は、国際公開第2006／025342号パンフレットに従って合成した(収率81%)。

[0228] [実施例10]

化合物(12)に換えて、実施例2で得られた化合物(16)を用いた以外は実施例9と同様にして、高分子EL素子を得た。

[0229] [実施例11]

化合物(12)に換えて、実施例4で得られた化合物(25)を用いた以外は実施例9と同様にして、高分子EL素子を得た。

[0230] 上記実施例9～11で得られた高分子EL素子の特性を評価した。結果を表2に示す。

なお、高分子EL素子の特性は、有機EL発光効率測定装置(EL1003、プレサイスゲージ(株)製)を使用して測定した(以下同じ)。

[0231] [表2]

	発光開始(V)	@8V		
		mA/cm^2	cd/m^2	cd/A
実施例9	12	331.8	7972	2.4
実施例10	12	353.6	8320	2.4
実施例11	12	319.6	9694	3.0

[0232] 表2に示されるように、実施例1，2および4で得られた化合物は正孔輸送性材料として機能することがわかった。

[0233] [4]低分子EL素子の作製

[比較例3]

比較例1で得られた化合物(8)と、これに対して1．0モル当量のNSO－2とを、1，3－ジメチル－2－イミダゾリジノン(DMI)：シクロヘキサノール＝2：4(質量比)の割合の溶媒に、固形分3質量％になるように溶解させてワニスを調製した。このワニスを用いてITOガラス基板上へスピンコート法により約30nmの均一な薄膜を作製した後、真空蒸着装置内に導入し、α－NPD、Alq_3、LiF、Alを順次蒸着し、OLED素子を得た。膜厚はそれぞれ、40nm、45nm、0．5nm、100nmとし、それぞれ8×10^{-4}Pa以下の圧力となってから蒸着操作を行い、蒸着レートはLiFを除いて、0．3～0．4nm／sとし、LiFについては、0．02～0．04nm／sとした。蒸着操作間の移動操作は真空中で行った。

[0234] ［実施例12］

実施例1で得られた化合物(12)と、これに対して2．0モル当量のNSO－2とを、1，3－ジメチル－2－イミダゾリジノン(DMI)：シクロヘキサノール＝2：4(質量比)の割合の溶媒に、固形分3質量％になるように溶解させてワニスを調製した。このワニスを用いてITOガラス基板上へスピンコート法により約30nmの均一な薄膜を作製した後、比較例3と同様の方法で真空蒸着を行い、OLED素子を得た。

[0235] ［実施例13］

実施例2で得られた化合物(16)と、これに対して2．5モル当量のNSO－2とを、1，3－ジメチル－2－イミダゾリジノン(DMI)：シクロヘキサノール＝2：4(質量比)の割合の溶媒に、固形分3質量％になるように溶解させてワニスを調製した。このワニスを用いてITOガラス基板上へスピンコート法により約30nmの均一な薄膜を作製した後、比較例3と同様の方法で真空蒸着を行い、OLED素子を得た。

[0236] ［実施例14］

実施例3で得られた化合物(22)と、これに対して3．0モル当量のNSO－2とを、1，3－ジメチル－2－イミダゾリジノン(DMI)：シクロヘキサノール＝2：4(質量比)の割合の溶媒に、固形分3質量％になるように溶解させてワニスを調製した。このワニスを用いてITOガラス基板上へスピンコート法により約30nmの均一な薄膜を作製した後、比較例3と同様の方法で真空蒸着を行い、OLED素子を得た。

[0237] 上記実施例12～14および比較例3で得られたOLED素子の特性を評価した。結

果を表3に示す。

なお、高分子EL素子の特性は、有機EL発光効率測定装置(EL1003、プレサイスゲージ(株)製)を使用して測定した。

[0238] [表3]

	発光開始(V)	@8V		
		mA/cm^2	cd/m^2	cd/A
比較例3	2.75	14.4	592	4.1
実施例12	2.75	36.6	1656	4.5
実施例13	2.50	23.2	939	4.1
実施例14	2.75	23.4	974	4.2

[0239] 表3に示されるように、実施例12～14で得られたOLED素子は、比較例3の素子と比べ、一定電圧下で、電流密度、輝度特性に優れていることがわかる。

[0240] [5]オリゴアニリン化合物とドーパント(NSO－2)との比率検討

[実施例15]

NSO－2の使用量を、化合物(12)に対して2．0モル当量とした以外は、実施例9と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0241] [実施例16]

NSO－2の使用量を、化合物(12)に対して3．0モル当量とした以外は、実施例9と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0242] 上記実施例15および16で得られた高分子EL素子の特性を評価した。結果を表4に示す。なお、実施例9の結果も併せて示す。

[0243] [表4]

	発光開始(V)	@8V		
		mA/cm^2	cd/m^2	cd/A
実施例9	12	331.8	7972	2.4
実施例15	12	364.9	8784	2.4
実施例16	12	324.9	7432	2.3

[0244] [6]シラン化合物の配合

[比較例4]

上記化合物(12)と、これに対して1．5モル当量のNSO－2とを、1，3－ジメチル－2－イミダゾリジノン(DMI)：シクロヘキサノール＝2：4(質量比)の割合の溶媒に、固形分3質量％になるように溶解させた。そのワニスを用いてITOガラス基板上へスピンコート法により約50nmの均一な薄膜を作製した。

次に、この薄膜上に、キシレンに高分子青色発光材料(メルク社製、SPB－02T)を固形分約1．5質量％になるように溶解させた溶液をスピンコート法により約70nmの厚みで成膜した後、真空蒸着装置内に導入し、陰極としてバリウム(0．1nm)、銀(100nm)をそれぞれ8×10^{-4}Pa以下の圧力となってから蒸着操作(蒸着レイト0．5nm／s)を行って成膜した。

[0245] [比較例5]

化合物(12)と、これに対して2．5モル当量のNSO－2とを、1，3－ジメチル－2－イミダゾリジノン(DMI)：シクロヘキサノール＝2：4(質量比)の割合の溶媒に、固形分3質量％になるように溶解させたワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0246] [実施例17]

化合物(12)と、これに対して1．5モル当量のNSO－2とを、1，3－ジメチル－2－イミダゾリジノン(DMI)：シクロヘキサノール＝2：4(質量比)の割合の混合溶媒に、固形分3質量％になるように溶解させ、さらにその固形分3質量％に対して4質量％の量のトリフルオロプロピルトリメトキシシラン(信越シリコーン製)を添加してワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0247] [実施例18]

化合物(12)と、これに対して2．5モル当量のNSO－2とを、1，3－ジメチル－2－イミダゾリジノン(DMI)：シクロヘキサノール＝2：4(質量比)の割合の混合溶媒に、固形分3質量％になるように溶解させ、さらにその固形分3質量％に対して4質量％の量のメチルトリエトキシシラン(信越シリコーン製)を添加してワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0248] [実施例19]

化合物(12)と、これに対して2．5モル当量のNSO－2を、1，3－ジメチル－2－イ

ミダゾリジノン(DMI):シクロヘキサノール＝2:4(質量比)の割合の混合溶媒に、固形分3質量%になるように溶解させ、さらにその固形分3質量%に対して4質量%の量のエチルトリエトキシシラン(信越シリコーン製)を添加してワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0249] [実施例20]

化合物(12)と、これに対して2．5モル当量のNSO－2を、1，3－ジメチル－2－イミダゾリジノン(DMI):シクロヘキサノール＝2:4(質量比)の割合の混合溶媒に、固形分3質量%になるように溶解させ、さらにその固形分3質量%に対して4質量%の量のビニルトリメトキシシラン(信越シリコーン製)を添加してワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0250] [実施例21]

化合物(12)と、これに対して2．5モル当量のNSO－2とを、1，3－ジメチル－2－イミダゾリジノン(DMI):シクロヘキサノール＝2:4(質量比)の割合の混合溶媒に、固形分3質量%になるように溶解させ、さらにその固形分3質量%に対して4質量%の量のトリフルオロプロピルトリメトキシシラン(信越シリコーン製)を添加してワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0251] [実施例22]

化合物(12)と、これに対して2．5モル当量のNSO－2とを、1，3－ジメチル－2－イミダゾリジノン(DMI):シクロヘキサノール＝2:4(質量比)の割合の混合溶媒に、固形分3質量%になるように溶解させ、さらにその固形分3質量%に対して4質量%の量のフェニルトリメトキシシラン(信越シリコーン製)を添加してワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0252] [実施例23]

化合物(12)と、これに対して2．5モル当量のNSO－2とを、1，3－ジメチル－2－イミダゾリジノン(DMI):シクロヘキサノール＝2:4(質量比)の割合の混合溶媒に、固形分3質量%になるように溶解させ、さらにその固形分3質量%に対して4質量%のプロピルトリエトキシシラン(信越シリコーン製)を添加してワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0253] [実施例24]

化合物(12)と、これに対して1．5モル当量のNSO－2とを、1，3－ジメチル－2－イミダゾリジノン(DMI):シクロヘキサノール＝2:4(質量比)の割合の混合溶媒に、固形分3質量％になるように溶解させ、さらにその固形分3質量％に対してトリフルオロプロピルトリメトキシシラン(信越シリコーン製)およびフェニルトリメトキシシラン(信越シリコーン製)を2:5(質量比)の割合で4質量％添加してワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0254] [実施例25]

化合物(12)と、これに対して2．5モル当量のNSO－2とを、1，3－ジメチル－2－イミダゾリジノン(DMI):シクロヘキサノール＝2:4(質量比)の割合の混合溶媒に、固形分3質量％になるように溶解させ、さらにその固形分3質量％に対してトリフルオロプロピルトリメトキシシラン(信越シリコーン製)およびフェニルトリメトキシシラン(信越シリコーン製)を2:5(質量比)の割合で4質量％添加してワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

上記実施例17～25および比較例4，5で作製したEL素子の特性を表5に示す。

[0255] [表5]

	発光開始 (V)	100mA/cm^2		
		電圧 (V)	輝度 (cd/m^2)	効率 (cd/A)
実施例17	2.5	6	2305	2.2
実施例18	2.5	5.5	3180	2.97
実施例19	2.5	5.5	2761	2.75
実施例20	2.5	5.5	2717	2.51
実施例21	2.5	5.5	2828	2.75
実施例22	2.5	5.5	2850	2.73
実施例23	2.5	5.5	3479	3.19
実施例24	2.5	5.75	1923	2.0
実施例25	2.5	5.5	3441	3.3
比較例4	2.5	6.25	1413	1.31
比較例5	2.5	5.75	2525	2.35

[0256] また、比較例4，5および実施例24，25で作製したEL素子について、初期輝度1000cd／m^2（定電流測定）で素子の寿命を評価した。評価は、半減期（輝度500cd／m^2までの時間）にて行った。結果を表6に示す。

[0257] [表6]

	半減期 (h)
実施例24	27
実施例25	30
比較例4	10
比較例5	22

[0258] 表6に示されるように、電荷輸送性ワニスにシラン化合物を加えると、素子の寿命が延びることがわかる。

[0259] [比較例6]

化合物（12）と、これに対して1．5モル当量のNSO－2を、ジメチルアセトアミド：シクロヘキサノール：2，3－ブタンジオール＝2：3：1（質量比）の割合の溶媒に、固形分3．5質量％になるように溶解させた。このワニスを用いてITOガラス基板上へスピンコート法により約50nmの均一な薄膜を作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0260] [実施例26]

化合物（12）と、これに対して1．5モル当量のNSO－2とを、ジメチルアセトアミド：シクロヘキサノール：2，3－ブタンジオール＝2：3：1（質量比）の割合の溶媒に、固形分3．5質量％で溶解させた。さらにワニスの固形分総質量に対して、10質量％のエチルトリメトキシシラン（信越シリコーン製）を添加してワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0261] [実施例27]

化合物（12）と、これに対して1．5モル当量のNSO－2とを、ジメチルアセトアミド：シクロヘキサノール：2，3－ブタンジオール＝2：3：1（質量比）の割合の溶媒に、固形分3．5質量％で溶解させた。さらにワニスの固形分総質量に対して、10質量％の3－アクリロキシプロピルトリメトキシシラン（信越シリコーン製）を添加してワニスを作製

した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0262] [実施例28]

化合物(12)と、これに対して1．5モル当量のNSO－2とを、ジメチルアセトアミド:シクロヘキサノール:2，3－ブタンジオール＝2:3:1(質量比)の割合の溶媒に、固形分3．5質量％で溶解させた。さらにワニスの固形分総質量に対して、10質量％のメチルトリメトキシシラン(信越シリコーン製)を添加してワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0263] [実施例29]

化合物(12)と、これに対して1．5モル当量のNSO－2とを、ジメチルアセトアミド:シクロヘキサノール:2，3－ブタンジオール＝2:3:1(質量比)の割合の溶媒に、固形分3．5質量％で溶解させた。さらにワニスの固形分総質量に対して、10質量％のフェニルトリメトキシシラン(信越シリコーン製)を添加してワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0264] [実施例30]

化合物(12)と、これに対して1．5モル当量のNSO－2とを、ジメチルアセトアミド:シクロヘキサノール:2，3－ブタンジオール＝2:3:1(質量比)の割合の溶媒に、固形分3．5質量％で溶解させた。さらにワニスの固形分総質量に対して、10質量％の3－アミノプロピルトリエトキシシラン(信越シリコーン製)を添加してワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0265] [実施例31]

化合物(12)と、これに対して1．5モル当量のNSO－2とを、ジメチルアセトアミド:シクロヘキサノール:2，3－ブタンジオール＝2:3:1(質量比)の割合の溶媒に、固形分3．5質量％で溶解させた。さらにワニスの固形分総質量に対して、10質量％の3－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン(信越シリコーン製)を添加してワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0266] [実施例32]

化合物(12)と、これに対して1．5モル当量のNSO－2とを、ジメチルアセトアミド:シクロヘキサノール:2，3－ブタンジオール＝2:3:1(質量比)の割合の溶媒に、固

形分3．5質量％で溶解させた。さらにワニスの固形分総質量に対して、10質量％のテトラメトキシシラン（純正化学製）を添加してワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0267] ［実施例33］

化合物（12）と、これに対して1．5モル当量のNSO－2とを、ジメチルアセトアミド：シクロヘキサノール：2，3－ブタンジオール＝2：3：1（質量比）の割合の溶媒に、固形分3．5質量％で溶解させた。さらにワニスの固形分総質量に対して、10質量％の3，3，3－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン（信越シリコーン製）を添加してワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0268] ［実施例34］

化合物（12）と、これに対して1．5モル当量のNSO－2とを、ジメチルアセトアミド：シクロヘキサノール：2，3－ブタンジオール＝2：3：1（質量比）の割合の溶媒に、固形分3．5質量％で溶解させた。さらにワニスの固形分総質量に対して、10質量％の3－メルカプトプロピルトリメトキシシラン（信越シリコーン製）を添加してワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0269] ［実施例35］

化合物（12）と、これに対して1．5モル当量のNSO－2とを、ジメチルアセトアミド：シクロヘキサノール：2，3－ブタンジオール＝2：3：1（質量比）の割合の溶媒に、固形分3．5質量％で溶解させた。さらにワニスの固形分総質量に対して、10質量％のトリエトキシ（4－（トリフルオロメチル）フェニル）シラン（アルドリッチ製）を添加してワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0270] ［実施例36］

化合物（12）と、これに対して1．5モル当量のNSO－2とを、ジメチルアセトアミド：シクロヘキサノール：2，3－ブタンジオール＝2：3：1（質量比）の割合の溶媒に、固形分3．5質量％で溶解させた。さらにワニスの固形分総質量に対して、10質量％のドデシルトリエトキシシラン（信越シリコーン製）を添加してワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0271] ［実施例37］

化合物(12)と、これに対して1．5モル当量のNSO－2とを、ジメチルアセトアミド:シクロヘキサノール:2，3－ブタンジオール＝2:3:1(質量比)の割合の溶媒に、固形分3．5質量％で溶解させた。さらにワニスの固形分総質量に対して、10質量％のジメトキシメチル(3，3，3－トリフルオロプロピル)シラン(ランカスター製)を添加してワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0272] [実施例38]

化合物(12)と、これに対して1．5モル当量のNSO－2とを、ジメチルアセトアミド:シクロヘキサノール:2，3－ブタンジオール＝2:3:1(質量比)の割合の溶媒に、固形分3．5質量％で溶解させた。さらにワニスの固形分総質量に対して、10質量％のジエトキシジメチルシラン(信越シリコーン製)を添加してワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0273] [実施例39]

化合物(12)と、これに対して1．5モル当量のNSO－2とを、ジメチルアセトアミド:シクロヘキサノール:2，3－ブタンジオール＝2:3:1(質量比)の割合の溶媒に、固形分3．5質量％で溶解させた。さらにワニスの固形分総質量に対して、10質量％の(トリエトキシシリル)シクロヘキサン(アルドリッチ製)を添加してワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0274] [実施例40]

化合物(12)と、これに対して1．5モル当量のNSO－2とを、ジメチルアセトアミド:シクロヘキサノール:2，3－ブタンジオール＝2:3:1(質量比)の割合の溶媒に、固形分3．5質量％で溶解させた。さらにワニスの固形分総質量に対して、10質量％のトリエトキシ－2－チエニルシラン(アルドリッチ製)を添加してワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0275] [実施例41]

化合物(12)と、これに対して1．5モル当量のNSO－2とを、ジメチルアセトアミド:シクロヘキサノール:2，3－ブタンジオール＝2:3:1(質量比)の割合の溶媒に、固形分3．5質量％で溶解させた。さらにワニスの固形分総質量に対して、10質量％の

トリメトキシビニルシラン(アルドリッチ製)を添加してワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0276] [実施例42]

化合物(12)と、これに対して1．5モル当量のNSO－2とを、ジメチルアセトアミド:シクロヘキサノール:2，3－ブタンジオール＝2:3:1(質量比)の割合の溶媒に、固形分3．5質量％で溶解させた。さらにワニスの固形分総質量に対して、10質量％のテトラメトキシシランおよびメチルトリメトキシシラン(テトラメトキシシランとメチルトリメトキシシランの比率は、質量比で2:1である。)を添加してワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0277] [実施例43]

化合物(12)と、これに対して1．5モル当量のNSO－2とを、ジメチルアセトアミド:シクロヘキサノール:2，3－ブタンジオール＝2:3:1(質量比)の割合の溶媒に、固形分3．5質量％で溶解させた。さらにワニスの固形分総質量に対して、10質量％のフェニルトリメトキシシランおよび3，3，3－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン(フェニルトリメトキシシランと3，3，3－トリフルオロプロピルトリメトキシシランの比率は、質量比で2:1である。)を添加してワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0278] [実施例44]

化合物(12)と、これに対して1．5モル当量のNSO－2とを、ジメチルアセトアミド:シクロヘキサノール:2，3－ブタンジオール＝2:3:1(質量比)の割合の溶媒に、固形分3．5質量％で溶解させた。さらにワニスの固形分総質量に対して、10質量％のテトラメトキシシランおよび3，3，3－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン(テトラメトキシシランと3，3，3－トリフルオロプロピルトリメトキシシランの比率は、質量比で2:1である。)を添加してワニスを作製した。このワニスを用い、比較例4と同様にして高分子EL素子を作製した。

[0279] 実施例26～44および比較例6で作製した高分子EL素子について、4V時の輝度特性を評価し、比較例6の輝度を1とした場合の実施例26～44の輝度の比率を表7に示す。

[0280] [表7]

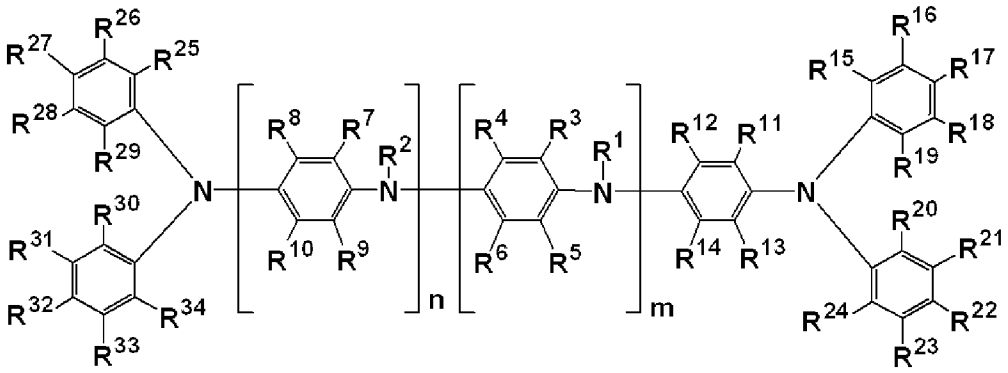
	輝度
比較例6	1
実施例26	2
実施例27	1
実施例28	2
実施例29	2
実施例30	1
実施例31	1
実施例32	2
実施例33	4
実施例34	1
実施例35	5
実施例36	1
実施例37	1
実施例38	1
実施例39	2
実施例40	2
実施例41	1
実施例42	4
実施例43	4
実施例44	3

[0281] 以上のように、電荷輸送性ワニスにシラン化合物を添加することによってEL素子特性が改善されることがわかった。

請求の範囲

[1] 式(1)で表されることを特徴とするオリゴアニリン化合物。

[化1]



(1)

(式中、R^1およびR^2は、それぞれ独立して、水素原子、置換もしくは非置換の一価炭化水素基、t－ブトキシカルボニル基、またはベンジルオキシカルボニル基を示し、R^3～R^{34}は、それぞれ独立して水素原子、水酸基、シラノール基、チオール基、カルボキシル基、リン酸基、リン酸エステル基、エステル基、チオエステル基、アミド基、ニトロ基、置換もしくは非置換の一価炭化水素基、オルガノオキシ基、オルガノアミノ基、オルガノシリル基、オルガノチオ基、アシル基、スルホン基またはハロゲン原子を示し、mおよびnは、それぞれ独立して1以上の整数で、m＋n≦20を満足する。)

[2] 前記R^1およびR^2が、それぞれ独立して水素原子またはt－ブトキシカルボニル基であり、

前記R^3～R^{34}が、それぞれ独立して水素原子、置換もしくは非置換の一価炭化水素基、オルガノオキシ基、オルガノアミノ基、またはハロゲン原子であり、

前記mおよびnが、それぞれ独立して1以上の整数で、m＋n≦10を満足する請求項1記載のオリゴアニリン化合物。

[3] 前記R^3～R^{34}が、それぞれ独立して水素原子、置換もしくは非置換の一価炭化水素基、またはハロゲン原子であり、

mおよびnが、それぞれ独立して、1以上の整数で、m＋n≦5を満足する請求項2記載のオリゴアニリン化合物。

[4] 前記R^3～R^{34}における一価炭化水素基が、フェニル基、ビフェニル基、ナフチル基、または置換もしくは非置換アリールアミンである請求項2記載のオリゴアニリン化合物

。

[5] 前記ハロゲン原子が、フッ素原子である請求項2記載のオリゴアニリン化合物。

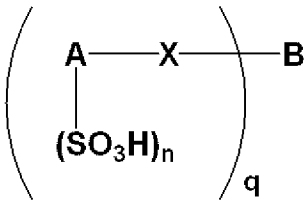
[6] 請求項1記載のオリゴアニリン化合物の酸化体であるキノンジイミン化合物。

[7] 請求項1～5のいずれか1項記載のオリゴアニリン化合物、または請求項6記載のキノンジイミン化合物を含む電荷輸送性ワニス。

[8] さらに電子受容性ドーパント物質または正孔受容性ドーパント物質を含む請求項7記載の電荷輸送性ワニス。

[9] 前記電子受容性ドーパント物質が、式(2)で表されるアリールスルホン酸誘導体である請求項8記載の電荷輸送性ワニス。

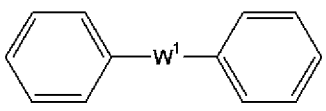
[化2]



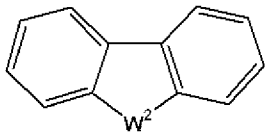
(2)

〔式中、Xは、O、SまたはNHを表し、Aは、Xおよびn個の(SO_3H)基以外の置換基を有していてもよいナフタレン環またはアントラセン環を表し、Bは、非置換もしくは置換の炭化水素基、1，3，5－トリアジン基、または非置換もしくは置換の下記式(3)もしくは(4)

[化3]



(3)



(4)

で示される基(式中、W^1およびW^2は、それぞれ独立して、O、S、S(O)基、S(O_2)基、または非置換もしくは置換基が結合したN、Si、P、P(O)基を示す。)を表し、nは、Aに結合するスルホン酸基数を表し、1≦n≦4を満たす整数であり、qは、BとXとの結合数を示し、1≦qを満たす整数である。〕

[10] さらに、少なくとも1種のシラン化合物を含む請求項7～9のいずれか1項記載の電荷輸送性ワニス。

[11] 有機溶媒を溶剤とする請求項10記載の電荷輸送性ワニス。

[12] 前記有機溶媒に対して0．0001～10質量％の水を含む請求項11記載の電荷輸送性ワニス。

[13] 前記シラン化合物が、前記電荷輸送性ワニスの固形分の総質量に対して、1～50質量％含まれる請求項10～12のいずれか1項記載の電荷輸送性ワニス。

[14] 前記シラン化合物が、ジアルコキシシラン化合物、トリアルコキシシラン化合物、テトラアルコキシシラン化合物、およびシリコーン化合物から選ばれる少なくとも1種である請求項10～13のいずれか1項記載の電荷輸送性ワニス。

[15] 前記シラン化合物が、トリアルコキシシラン化合物である請求項14記載の電荷輸送性ワニス。

[16] 前記トリアルコキシシラン化合物が、式(27)で表される請求項15記載の電荷輸送性ワニス。

$Y^1Si(OY^2)_3$ (27)

(式中、Y^1は、ハロゲン原子、水素原子、またはZで置換されていてもよい、炭素数1～12アルキル基、炭素数2～12アルケニル基、炭素数2～12アルキニル基、アリール基、もしくはヘテロアリール基を表し、Y^2は、炭素数1～12アルキル基を表し、

Zは、ハロゲン原子、水素原子、炭素数1～12ハロアルキル基、炭素数1～12アルキル基、ヒドロキシル基、メルカプト基、アミノ基、炭素数1～12ハロアルコキシ基、炭素数1～12アルコキシ基、炭素数2～12アルケニル基、炭素数2～12ハロアルケニル基、炭素数2～12アルキニル基、炭素数2～12ハロアルキニル基、炭素数1～12アルキルチオ基、炭素数1～12モノアルキルアミノ基、炭素数1～12ジアルキルアミノ基、グリシドキシ基、炭素数1～12アルキルカルボニル基、炭素数2～12アルケニルカルボニル基、炭素数2～12アルキニルカルボニル基、炭素数1～12アルキルカルボニルオキシ基、炭素数2～12アルケニルカルボニルオキシ基、炭素数2～12アルキニルカルボニルオキシ基、アリール基、ハロゲン化アリール基、ヘテロアリール基、またはハロゲン化ヘテロアリール基を表す。)

[17] 前記Zが、ハロゲン原子、水素原子、炭素数1～12ハロアルキル基、炭素数1～12アルキル基、炭素数2～12アルケニル基、炭素数2～12ハロアルケニル基、炭素数

2～12アルキニル基、炭素数2～12ハロアルキニル基、アリール基、ハロゲン化アリール基、ヘテロアリール基、またはハロゲン化ヘテロアリール基を表す請求項16記載の電荷輸送性ワニス。

[18] 前記Y^1が、フッ素原子、水素原子、Zで置換されていてもよい、炭素数1～12アルキル基、炭素数2～12アルケニル基、炭素数2～12アルキニル基、アリール基、またはヘテロアリール基であり、

前記Zが、ハロゲン原子、水素原子、炭素数1～12ハロアルキル基、炭素数1～12アルキル基、炭素数2～12アルケニル基、炭素数2～12ハロアルケニル基、炭素数2～12アルキニル基、炭素数2～12ハロアルキニル基、アリール基、ハロゲン化アリール基、ヘテロアリール基、またはハロゲン化ヘテロアリール基を表す請求項16記載の電荷輸送性ワニス。

[19] 前記シラン化合物が、ジアルコキシシラン化合物である請求項14記載の電荷輸送性ワニス。

[20] 前記ジアルコキシシラン化合物が、式(28)で表される請求項19記載の電荷輸送性ワニス。

$$Y^3Y^4Si(OY^5)_2 \qquad (28)$$

(Y^3およびY^4は、互いに独立して、ハロゲン原子、またはZで置換されていてもよい、炭素数1～12アルキル基、炭素数2～12アルケニル基、炭素数2～12アルキニル基、アリール基、もしくはヘテロアリール基を表し、

Y^5は、炭素数1～12アルキル基を表し、

Zは、ハロゲン原子、水素原子、炭素数1～12ハロアルキル基、炭素数1～12アルキル基、ヒドロキシル基、メルカプト基、アミノ基、炭素数1～12ハロアルコキシ基、炭素数1～12アルコキシ基、炭素数2～12アルケニル基、炭素数2～12ハロアルケニル基、炭素数2～12アルキニル基、炭素数2～12ハロアルキニル基、炭素数1～12アルキルチオ基、炭素数1～12モノアルキルアミノ基、炭素数1～12ジアルキルアミノ基、グリシドキシ基、炭素数1～12アルキルカルボニル基、炭素数2～12アルケニルカルボニル基、炭素数2～12アルキニルカルボニル基、炭素数1～12アルキルカルボニルオキシ基、炭素数2～12アルケニルカルボニルオキシ基、炭素数2～12ア

ルキニルカルボニルオキシ基、アリール基、ハロゲン化アリール基、ヘテロアリール基、またはハロゲン化ヘテロアリール基を表す。)

[21] 前記Zが、ハロゲン原子、水素原子、炭素数1～12ハロアルキル基、炭素数1～12アルキル基、炭素数2～12アルケニル基、炭素数2～12ハロアルケニル基、炭素数2～12アルキニル基、炭素数2～12ハロアルキニル基、アリール基、ハロゲン化アリール基、ヘテロアリール基、またはハロゲン化ヘテロアリール基を表す請求項20記載の電荷輸送性ワニス。

[22] 前記Y^3およびY^4が、互いに独立して、フッ素原子、水素原子、Zで置換されていてもよい、炭素数1～12アルキル基、炭素数2～12アルケニル基、炭素数2～12アルキニル基、アリール基、またはヘテロアリール基であり、

前記Zが、ハロゲン原子、水素原子、炭素数1～12ハロアルキル基、炭素数1～12アルキル基、炭素数2～12アルケニル基、炭素数2～12ハロアルケニル基、炭素数2～12アルキニル基、炭素数2～12ハロアルキニル基、アリール基、ハロゲン化アリール基、ヘテロアリール基、またはハロゲン化ヘテロアリール基を表す請求項20記載の電荷輸送性ワニス。

[23] 前記シラン化合物が、テトラアルコキシシラン化合物である請求項14記載の電荷輸送性ワニス。

[24] 前記テトラアルコキシシラン化合物が、式(29)で表される請求項23記載の電荷輸送性ワニス。

$$Si(OY^6)_2 \qquad (29)$$

(式中、Y^6は、炭素数1～12アルキル基を表す。)

[25] 前記Y^6が、メチル基、エチル基、またはプロピル基である請求項24記載の電荷輸送性ワニス。

[26] 前記シラン化合物が、ジアルコキシシラン化合物、トリアルコキシシラン化合物、テトラアルコキシシラン化合物、およびシリコーン化合物から選ばれる2種以上の組み合わせである請求項10記載の電荷輸送性ワニス。

[27] 前記シラン化合物が、トリアルコキシシラン化合物、テトラアルコキシシラン化合物、およびジアルコキシシラン化合物から選ばれる2種以上の組み合わせである請求項1

0記載の電荷輸送性ワニス。

[28] 前記シラン化合物が、2種以上のトリアルコキシシラン化合物の組み合わせである請求項10記載の電荷輸送性ワニス。

[29] 前記シラン化合物が、2種以上のテトラアルコキシシラン化合物の組み合わせである請求項10記載の電荷輸送性ワニス。

[30] 前記シラン化合物が、2種以上のジアルコキシシラン化合物の組み合わせである請求項10記載の電荷輸送性ワニス。

[31] 前記シラン化合物が、1種または2種以上のトリアルコキシシラン化合物と、1種または2種以上のテトラアルコキシシラン化合物との組み合わせである請求項10記載の電荷輸送性ワニス。

[32] 前記シラン化合物が、1種または2種以上のトリアルコキシシラン化合物と、1種または2種以上のジアルコキシシラン化合物との組み合わせである請求項10記載の電荷輸送性ワニス。

[33] 前記シラン化合物が、1種または2種以上のトリアルコキシシラン化合物と、1種または2種以上のシリコーン化合物との組み合わせである請求項10記載の電荷輸送性ワニス。

[34] 前記シラン化合物が、1種または2種以上のテトラアルコキシシラン化合物と、1種または2種以上のジアルコキシシラン化合物との組み合わせである請求項10記載の電荷輸送性ワニス。

[35] 前記シラン化合物が、1種または2種以上のテトラアルコキシシラン化合物と、1種または2種以上のシリコーン化合物との組み合わせである請求項10記載の電荷輸送性ワニス。

[36] 前記シラン化合物が、1種または2種以上のジアルコキシシラン化合物と、1種または2種以上のシリコーン化合物との組み合わせである請求項10記載の電荷輸送性ワニス。

[37] 請求項1～5のいずれか1項記載のオリゴアニリン化合物、または請求項6記載のキノンジイミン化合物を含む電荷輸送性薄膜。

[38] 請求項7～36のいずれか1項記載の電荷輸送性ワニスから作製される電荷輸送性

薄膜。

[39] 請求項37または38記載の電荷輸送性薄膜を備える有機エレクトロルミネッセンス素子。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2008/056974

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C07C211/54(2006.01)i, *C07C211/56*(2006.01)i, *C07C251/22*(2006.01)i, *C09D5/24*(2006.01)i, *C09D179/02*(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)
C07C211/54, C07C211/56, C07C251/22, C09D5/24, C09D179/02, 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 1996-2008
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2008 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2008

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	Rolf KOPPANG, Preparation of poly (N-phenylimino-perfluoro-phenylene). Solvent effects on reactions between anilides and hexafluorobenzene, Journal of Fluorine Chemistry, 1976, Vol.8, No.5, P.389-400 page 390, Scheme 1, compound IV, pages 398 to 399, production method of oligomer	1,6
X Y	JP 9-151371 B1 (Toppan Printing Co., Ltd.), 10 June, 1997 (10.06.97), Claims; Par. No. [0031]; example 2 (Family: none)	1,6,37-39 7-36

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

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

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
28 April, 2008 (28.04.08)	13 May, 2008 (13.05.08)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (April 2007)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2008/056974

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 10-265773 A (Toyo Ink Manufacturing Co., Ltd.), 06 October, 1998 (06.10.98), Claims; page 37, chemical structural formula 88, 90; examples 91, 93 (Family: none)	1,6,37-39 7-36
X Y	JP 2005-276832 A (LG Electronics Inc.), 06 October, 2005 (06.10.05), Claims; examples 1, 2 & US 2005/0208334 A1 & EP 1586616 A2 & KR 10-2005-0094195 A & CN 1674747 A	1,6,37-39 7-36
X Y	JP 10-168446 A (Mitsui Toatsu Chemicals, Inc.), 23 June, 1998 (23.06.98), Claims; examples 22, 23 (Family: none)	1,6-7,37-39 7-36
X Y	JP 2007-5444 A (Konica Minolta Holdings, Inc.), 11 January, 2007 (11.01.07), Claims; organic EL element 1-5 of the example 1 (Family: none)	1,6-7,37-39 7-36
Y	JP 2002-151272 A (Nissan Chemical Industries, Ltd.), 24 May, 2002 (24.05.02), Claims; example 1 (Family: none)	8-9
Y	JP 2003-45667 A (Samsung SDI Co., Ltd.), 14 February, 2003 (14.02.03), Claims; examples & US 2003/0010959 A1 & KR 10-2003-0001623 A & CN 1395456 A & CN 1571609 A & CN 1592523 A	10-36
P,X	CN 101088992 A (Nanchang University), 19 December, 2007 (19.12.07), Example 2 (Family: none)	1-6

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2008/056974

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

The technical feature common to claims 1-39 is oligoaniline compounds of the formula (1). However, these compounds are not novel as indicated in page 2 Box C.
Accordingly, among the claims 1-39, there is no technical relationship involving a common special technical feature indicating a contribution over the prior art. Therefore, it does not appear that they are linked with each other so as to form a single general inventive concept.

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

the

☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, payment of a protest fee.

☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.

☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２００８／０５６９７４

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C07C211/54(2006.01)i, C07C211/56(2006.01)i, C07C251/22(2006.01)i, C09D5/24(2006.01)i, C09D179/02(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.　C07C211/54, C07C211/56, C07C251/22, C09D5/24, C09D179/02, 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	１９７１－２００８年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２００８年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２００８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）

CAplus(STN)
REGISTRY(STN)

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	関連する請求の範囲の番号
X	Rolf KOPPANG, Preparation of poly(N-phenylimino-perfluoro-phenylene). Solvent effects on reactions between anilides and hexafluorobenzene, Journal of Fluorine Chemistry, 1976, Vol.8, No.5, P.389-400 390頁スキームＩの化合物IV,398～399頁のオリゴマーの製造方法	1,6

☑　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。

＊　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

国際調査を完了した日 ２８．０４．２００８	国際調査報告の発送日 １３．０５．２００８
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ） 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）　４Ｈ　９０４５ 関　美祝 電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４４３

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２００８／０５６９７４

第Ⅱ欄　請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第１ページの２の続き）

法第8条第3項（ＰＣＴ17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

１．☐ 請求の範囲＿＿＿＿＿＿＿＿ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。
つまり、

２．☐ 請求の範囲＿＿＿＿＿＿＿＿ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、

３．☐ 請求の範囲＿＿＿＿＿＿＿＿ は、従属請求の範囲であってＰＣＴ規則6.4(a)の第２文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第Ⅲ欄　発明の単一性が欠如しているときの意見（第１ページの３の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

請求の範囲1-39に共通する技術的特徴は,式(1)で表されるオリゴアニリン化合物であるが,この化合物は，第2ページC欄に示す通り新規な化合物ではない。

したがって，請求の範囲1-39には，先行技術に対して行う貢献を明示する共通の特別な技術的特徴を含む技術的な関係にないから,単一の一般的発明概念を形成するように連関しているものとは認められない。

１．☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。

２．☑ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。

３．☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。

４．☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

☐ 追加調査手数料及び、該当する場合には、異議申立手数料の納付と共に、出願人から異議申立てがあった。

☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあったが、異議申立手数料が納付命令書に示した期間内に支払われなかった。

☐ 追加調査手数料の納付はあったが、異議申立てはなかった。

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	関連する請求の範囲の番号
X	JP 9-151371 B1 (凸版印刷株式会社) 1997.06.10, 特許請求の範囲，段落[0031]，実施例２	1,6,37-39
Y	(ファミリーなし)	7-36
X	JP 10-265773 A (東洋インキ製造株式会社) 1998.10.06, 特許請求の範囲，37頁の化学構造式88及び90，実施例91及び93	1,6,37-39
Y	(ファミリーなし)	7-36
X	JP 2005-276832 A (ｴﾙｼﾞｰ ｴﾚｸﾄﾛﾆｸｽ ｲﾝｺｰﾎﾟﾚｰﾃﾞｯﾄﾞ) 2005.10.06, 特許請求の範囲，実施例1,2	1,6,37-39
Y	& US 2005/0208334 A1 & EP 1586616 A2 & KR 10-2005-0094195 A & CN 1674747 A	7-36
X	JP 10-168446 A (三井東圧化学株式会社) 1998.06.23, 特許請求の範囲，実施例22,23	1,6-7, 37-39
Y	(ファミリーなし)	7-36
X	JP 2007-5444 A (ｺﾆｶﾐﾉﾙﾀﾎｰﾙﾃﾞｨﾝｸﾞｽ株式会社) 2007.01.11, 特許請求の範囲，実施例1の有機EL素子1-5	1,6-7, 37-39
Y	(ファミリーなし)	7-36
Y	JP 2002-151272 A (日産化学工業株式会社) 2002.05.24, 特許請求の範囲，実施例1 (ファミリーなし)	8-9
Y	JP 2003-45667 A (三星エスディアイ株式会社) 2003.02.14, 特許請求の範囲，実施例 & US 2003/0010959 A1 & KR 10-2003-0001623 A & CN 1395456 A & CN 1571609 A & CN 1592523 A	10-36
P,X	CN 101088992 A (南昌大学) 2007.12.19, 実施例２ (ファミリーなし)	1-6