

(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
2012 年 9 月 27 日(27.09.2012)



(10) 国際公開番号

WO 2012/128334 A1

- (51) 国際特許分類:
H05B 33/12 (2006.01) H05B 33/10 (2006.01)
H01L 51/50 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/057400
- (22) 国際出願日: 2012 年 3 月 22 日(22.03.2012)
- (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 2011-063712 2011 年 3 月 23 日(23.03.2011) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 住友化学株式会社 (SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED) [JP/JP]; 〒1048260 東京都中央区新川二丁目 2 7 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 佐々 修一 (SASSA Shuichi) [JP/JP]; 〒3003294 茨城県つくば市北原 6 住友化学株式会社内 Ibaraki (JP).
- (74) 代理人: 長谷川 芳樹, 外 (HASEGAWA Yoshiki et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内二丁目 1 番 1 号丸の内 MY PLAZA (明治安田生命ビル) 9 階 創英国際特許法律事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, 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, 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, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, 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, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨー

[続葉有]

(54) Title: ORGANIC EL ELEMENT

(54) 発明の名称: 有機 EL 素子

【図1】

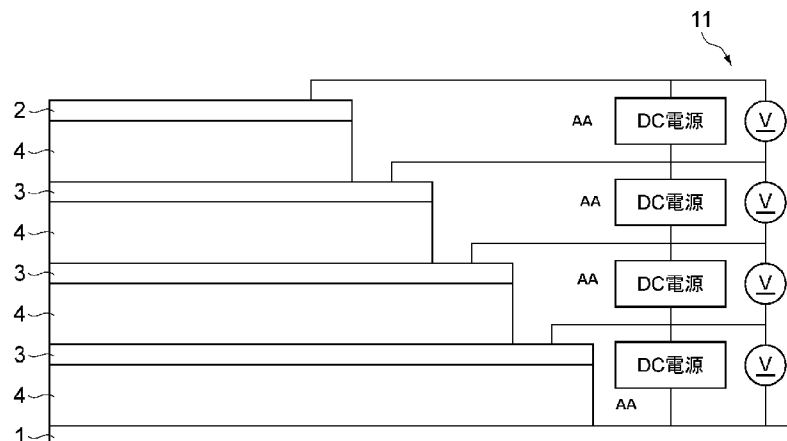


FIG. 1:
AA DC Power supply

(57) Abstract: The present invention relates to an organic EL element comprising a first electrode, a second electrode, one or more lead-out electrodes which are arranged between the first electrode and the second electrode, and a multiple light-emitting units each of which is arranged between any adjacent two of the first electrode, the lead-out electrode and the second electrode and comprises an electronic injection layer and a light-emitting layer, wherein the electronic injection layer comprises an ionic polymer.

(57) 要約: 本発明は、第 1 の電極と、第 2 の電極と、前記第 1 の電極と前記第 2 の電極との間に配置された 1 又は複数の取出し電極と、前記第 1 の電極、前記取出し電極及び前記第 2 の電極のうちの互いに隣り合う電極間にそれぞれ配置され、電子注入層と発光層とを有する複数の発光ユニットと、を備え、前記電子注入層はイオン性ポリマーを含む、有機 EL 素子に関する。

WO 2012/128334 A1



ロツパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE,
ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV,
MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK,
SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ,
GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：有機ＥＬ素子

技術分野

[0001] 本発明は有機ＥＬ素子、この有機ＥＬ素子を備える表示装置及び照明装置、並びに有機ＥＬ素子の製造方法に関する。

背景技術

[0002] 有機ＥＬ（Electro Luminescence）素子は、陽極及び陰極からなる一対の電極と、電極間に設けられる発光層とを含んで構成される。有機ＥＬ素子に電圧を印加すると、陽極からは正孔が注入されるとともに陰極からは電子が注入され、これら正孔と電子とが発光層で結合することにより発光が生じる。

[0003] 電極間に設けられる発光層の層数は１層に限られるわけではなく、いわゆるマルチフォトン型の有機ＥＬ素子では電極間に複数の発光層が設けられる。複数の発光層を備える有機ＥＬ素子では、各発光層からそれぞれ光が放射されるため、発光層の層数が１層のみの有機ＥＬ素子に比べると、単位電流あたりの発光量が増加する。

[0004] しかしながら、上記構成の有機ＥＬ素子では、各発光層に独立して特定の電圧を印加することができないため、各発光層から放射される光の強度を独立して制御することができない。

[0005] このような構成の有機ＥＬ素子に対して、発光層間に取出し電極を設けた有機ＥＬ素子が提案されている。取出し電極は外部の電源に電氣的に接続されるために、取出し電極にも所定の電圧を印加することができる。そのため、各発光層に独立して所定の電圧を印加することができ、各発光層から放射される光の強度を独立して制御することができる（例えば特許文献１参照）。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特開2006-92998号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] 電極間には上述の発光層や取出し電極に限らず、所定の層がさらに設けられることがある。このような層として、上記従来技術では電子注入層が設けられている。なお、特許文献1には電子注入層の材料及びその形成方法が詳しく記載されているわけではないが、電子注入層は一般にBa、BaO、NaF、LiF等の大気中で不安定な材料によって構成されている。

[0008] 有機EL素子は、当該素子を構成する各層を順次積層することによって作製される。そのため、電子注入層を形成したのちに、発光層や取出し電極等の所定の層を形成することになる。電子注入層を形成したのちに、この電子注入層上に積層する発光層等を例えば大気中で形成すると、大気中で不安定な電子注入層が変性し、その結果として、作製された有機EL素子の発光特性が低下するという問題がある。

[0009] したがって本発明の目的は、有機EL素子の製造工程における劣化を抑制することのできる電子注入層を備える有機EL素子を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0010] 本発明は、第1の電極と、第2の電極と、前記第1の電極1と前記第2の電極2との間に配置された1又は複数の取出し電極3と、前記第1の電極、前記取出し電極及び前記第2の電極のうちの互いに隣り合う電極間にそれぞれ配置された発光ユニットと、を備え、前記発光ユニットは電子注入層と発光層とを有し、前記電子注入層はイオン性ポリマーを含む、有機EL素子に関する。

[0011] また本発明は、前記取出し電極を介して隣り合う一対の前記発光ユニットは、一方の前記発光ユニットにおける前記第1の電極を基準とする発光層と電子注入層との積層の順序が、他方の前記発光ユニットにおける発光層と電子注入層との積層の順序と異なる、有機EL素子に関する。

[0012] また本発明は、互いに異なる発光ユニットに設けられる一対の発光層が、

互いに異なる色の光を放射する有機ＥＬ素子に関する。

[0013] また本発明は、互いに異なる発光ユニットに設けられる一対の発光層が、同じ色の光を放射する有機ＥＬ素子に関する。

[0014] また本発明は、前記有機ＥＬ素子を備える照明装置に関する。

[0015] また本発明は、前記有機ＥＬ素子を備える表示装置に関する。

[0016] また本発明は、第１の電極と、第２の電極と、前記第１の電極と前記第２の電極との間に配置された１又は複数の取出し電極と、前記第１の電極、前記取出し電極及び前記第２の電極のうちの互いに隣り合う電極間にそれぞれ配置され、電子注入層と発光層とを有する複数の発光ユニットと、を備える有機ＥＬ素子の製造方法であって、イオン性ポリマーを含む塗布液を成膜して前記電子注入層を形成する工程と、前記電子注入層を形成する前又は前記電子注入層を形成した後に、前記発光層を形成する工程と、備える有機ＥＬ素子の製造方法に関する。

[0017] 前記電子注入層を形成する工程では、イオン性ポリマーを含む塗布液を、窒素の体積比が９０％以下、かつ酸素の体積比が１０％以上３０％以下の雰囲気下で塗布することができる。

発明の効果

[0018] 本発明によれば、有機ＥＬ素子の製造工程における劣化を抑制することのできる電子注入層を備える有機ＥＬ素子を実現することができる。

図面の簡単な説明

[0019] [図１]有機ＥＬ素子の構成を模式的に示す図である。

[図２]有機ＥＬ素子の構成を模式的に示す図である。

[図３]有機ＥＬ素子の構成を模式的に示す図である。

[図４]有機ＥＬ素子の構成を模式的に示す図である。

[図５]有機ＥＬ素子の構成を模式的に示す図である。

[図６]発光色を示す図である。

発明を実施するための形態

[0020] 本発明の有機ＥＬ素子は、第１の電極と、第２の電極と、第１の電極１と

第2の電極2との間に間隔をあけて配置された1又は複数の取出し電極3と、第1の電極、取出し電極及び第2の電極のうちの互いに隣り合う電極間にそれぞれ配置された電子注入層と発光層とを備える発光ユニットと、を備える。また、発光ユニットは、電子注入層と発光層とを有し、電子注入層はイオン性ポリマーを含む。

[0021] すなわち、本実施形態の有機EL素子では、第1の電極と、1又は複数の取出し電極と、第2の電極とがこの順でそれぞれ間隔をあけて配置され、かつ、前記第1の電極、1又は複数の前記取出し電極、及び前記第2の電極のうちの互いに隣り合う電極間には、それぞれ、電子注入層と発光層とを備える発光ユニットが配置されており、前記電子注入層はイオン性ポリマーを含む。

[0022] 以下、図1を参照して有機EL素子の構成について説明する。図1では、一例として、3個の取出し電極3及び4個の発光ユニット4を備える有機EL素子を示しているが、取出し電極3の個数及び発光ユニット4の個数（取出し電極の個数+1）は図1に示す形態のものに限られない。

[0023] 第1の電極1及び第2の電極2は、後述する発光ユニット4の構成に応じて陽極又は陰極として機能する。発光層から放射される光は、第1の電極1及び第2の電極2のうちの少なくともいずれか一方から外界に出射されるため、第1の電極1及び第2の電極2のうちの少なくとも一方は、光透過性を示す電極（光取出し電極）によって構成される。

[0024] 第1の電極1と第2の電極2の間には、1又は複数の取出し電極3が設けられる。以下に説明するように取出し電極3は、一層構成の電極又は複数の層が積層された電極からなる。例えば一層構成の場合、取出し電極3は、陽極と同じ材料の導電性薄膜又は陰極と同じ材料の導電性薄膜から構成される。また複数の層が積層された構成の場合、取出し電極3は、陽極と同じ材料の導電性薄膜と陰極と同じ材料の導電性薄膜との積層体によって構成される。

[0025] 取出し電極3は、発光層から放射される光を透過する必要があるため、光

透過性を示す電極によって構成される。

[0026] 取出し電極 3 は、有機 EL 素子を駆動する駆動回路 11 と所定の電気配線を介して接続される。本実施形態では取出し電極 3 は、正の電圧に限らず、負の電圧を印加することも可能な駆動回路 11 の直流電源に接続される。例えば取出し電極 3 は、図 1 とは構成が異なるが、第 1 の電極 1 の厚み方向の一方から見て（以下、「平面視」ということがある）、発光の生じる領域から延在するように突出して形成され、その端部で前記電気配線と接続される。なおこの場合、平面視において発光の生じる領域から延在する領域では、第 1 の電極 1、第 2 の電極 2、各取出し電極 3 は、互いに重ならないように形成される。

[0027] 発光ユニット 4 は、第 1 の電極 1、1 又は複数の前記取出し電極 3、及び前記第 2 の電極 2 のうちの互いに隣り合う電極間にそれぞれ設けられる。すなわち発光ユニット 4 は、（1）第 1 の電極 1 と、当該第 1 の電極 1 に最も近くに配置される取出し電極 3 との間、（2）互いに隣り合う取出し電極 3 間、及び（3）第 2 の電極 2 と、当該第 2 の電極 2 に最も近くに配置される取出し電極 3 との間に設けられる。したがって発光ユニット 4 は、有機 EL 素子に設けられる取出し電極 3 の数に 1 を加えた個数だけ設けられる。なお、1 つのみの取出し電極 3 が設けられる形態（図 2 ～ 5 参照）では、互いに隣り合う取出し電極 3 が存在しないため、上記の互いに隣り合う取出し電極 3 間には発光ユニットが設けられない。

[0028] 各発光ユニット 4 は、少なくとも電子注入層と発光層とを備える。なお発光ユニット 4 には、これら電子注入層及び発光層に限らず、必要に応じて所定の層が設けられることがある。所定の層は、例えば有機物からなる層、無機物からなる層、有機物と無機物とからなる層等によって構成される。このような所定の層としては、正孔注入層、正孔輸送層、電子ブロック層、電子輸送層、正孔ブロック層等が挙げられる。

[0029] 発光ユニット 4 の層構成としては例えば以下の a) ～ f) のものが挙げられる。

- a) 発光層／電子注入層
- b) 発光層／電子輸送層／電子注入層
- c) 正孔注入層／発光層／電子注入層
- d) 正孔注入層／発光層／電子輸送層／電子注入層
- e) 正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子注入層
- f) 正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層

(ここで、記号「／」は当該記号「／」で区切られる2つの層が隣接して積層されていることを示す。以下、同じ。)

複数設けられる発光ユニット4は、互いにその層構成が同じであっても、異なってもよい。

[0030] 第1の電極1を基準にすると、上記a)～f)の各構成の発光ユニット4の層構成の積層順は、それぞれ2通り存在する。すなわち、電子注入層に対して発光層を第1の電極1寄りに配置する第1の積層順と、発光層に対して電子注入層を第1の電極1寄りに配置する第2の積層順が存在する。上記a)～f)の各層構成の発光ユニット4において、第1の積層順では各層を上記a)～f)の記載において左側から順次積層し、第2の積層順では各層を上記a)～f)の記載において右側から順次積層する。本発明では発光ユニット4の層構成はいずれの積層順であってもよい。

[0031] なお第1の電極1、第2の電極2、及び取出し電極3の構成は、各電極に接して配置される発光ユニット4の層構成の積層順によって特定される。

[0032] 第1の電極1及び第2の電極2の極性は、当該電極に接して設けられる発光ユニット4の層構成の積層順に依存する。

[0033] 第1の電極1に接して設けられる発光ユニット4の層構成の積層順が第1の積層順の場合、陽極として機能する第1の電極1が設けられる。すなわち、第1の電極1とこの第1の電極に接して設けられる発光ユニット4とからなる積層体のみを考慮すると、陽極として機能する第1の電極、発光層、電子注入層の順に、各層が積層される。逆に、第1の電極1に接して設けられる発光ユニット4の層構成の積層順が第2の積層順の場合、陰極として機能

する第1の電極1が設けられる。すなわち第1の電極とこの第1の電極に接して設けられる発光ユニットとからなる積層体のみを考慮すると、陰極として機能する第1の電極、電子注入層、発光層の順に、各層が積層される。

[0034] 第2の電極2に接して設けられる発光ユニット4の層構成の積層順が第1の積層順の場合、陰極として機能する第2の電極2が設けられる。すなわち、第2の電極2に接して設けられる発光ユニット4と第2の電極2とからなる積層体のみを考慮すると、発光層、電子注入層、陰極として機能する第2電極の順に各層が積層される。逆に、第2の電極2に接して設けられる発光ユニット4の層構成の積層順が第2の積層順の場合、陽極として機能する第2の電極2が設けられる。すなわち、第2の電極2に接して設けられる発光ユニット4と第2の電極2とからなる積層体のみを考慮すると、電子注入層、発光層、陽極として機能する第2電極の順に各層が積層される。

[0035] 取出し電極3は、当該取出し電極3を挟持する一对の発光ユニット4の層構成の積層順によってその構成が異なる。

[0036] 層構成の積層順が異なる発光ユニット4に挟持される取出し電極3は、一層の電極から構成される。例えば、陰極と同じ材料の導電性薄膜、及び陽極と同じ材料の導電性薄膜のうちのいずれか一方によって構成することができる。

[0037] 具体的には、第1の積層順の発光ユニット4と、第2の積層順の発光ユニット4に挟持される取出し電極3は、陰極と同じ材料の導電性薄膜によって構成することができる。すなわち第1の積層順の発光ユニット4と、第2の積層順の発光ユニット4と、これらに挟持される取出し電極3とからなる積層体のみを考慮すると、発光層、電子注入層、陰極と同じ材料の導電性薄膜、電子注入層、発光層の順に各層が積層されてもよい。

[0038] また第2の積層順の発光ユニット4と、第1の積層順の発光ユニット4に挟持される取出し電極3は、陽極と同じ材料の導電性薄膜によって構成することができる。すなわち第2の積層順の発光ユニット4と、第1の積層順の発光ユニット4と、これらに挟持される取出し電極3とからなる積層体のみ

を考慮すると、電子注入層、発光層、陽極と同じ材料の導電性薄膜、発光層、電子注入層の順に各層が積層されてもよい。

[0039] 他方、層構成の積層順が同じ発光ユニット4に挟持される取出し電極3は、陰極と同じ材料の導電性薄膜と、陽極と同じ材料の導電性薄膜との積層体から構成することができる。

[0040] 具体的には、第1の積層順の発光ユニット4と、第1の積層順の発光ユニット4に挟持される取出し電極3は、第1の電極1から近い順に、陰極と同じ材料の導電性薄膜、陽極と同じ材料の導電性薄膜をこの順で積層した積層体から構成することができる。すなわち第1の積層順の発光ユニット4と、第1の積層順の発光ユニット4と、これらに挟持される取出し電極3とからなる積層体のみを考慮すると、発光層、電子注入層、陰極と同じ材料の導電性薄膜、陽極と同じ材料の導電性薄膜、発光層、電子注入層の順に、各層が積層されてもよい。

[0041] また第2の積層順の発光ユニット4と、第2の積層順の発光ユニット4に挟持される取出し電極3は、第1の電極1から近い順に、陽極と同じ材料の導電性薄膜、及び陰極と同じ材料の導電性薄膜をこの順で積層した積層体によって構成することができる。すなわち第2の積層順の発光ユニット4と、第2の積層順の発光ユニット4と、これらに挟持される取出し電極3とからなる積層体のみを考慮すると、電子注入層、発光層、陽極と同じ材料の導電性薄膜、陰極と同じ材料の導電性薄膜、電子注入層、発光層の順に、各層が積層されてもよい。

[0042] なお3個以上の発光ユニットを設ける場合、各発光ユニットの層構成の積層順が交互に異なるように、取出し電極を介して発光ユニットを積層してもよく、また各発光ユニットの層構成の積層順が交互に異なるように、取出し電極を介して発光ユニットを複数積層したうえに、さらに同じ積層順になるように、1又は複数の発光ユニットを積層してもよい。すなわち、3個以上の発光ユニットを設ける場合には、各発光ユニットの層構成の積層順が交互に異なるように発光ユニットが取出し電極を介して積層された部分と、積層

順が同じになるように積層された部分とが混在していてもよい。

[0043] 以上のように、取出し電極を介して隣り合う一对の前記発光ユニットにおいて、前記第1の電極を基準にして、発光層と電子注入層との積層順が逆順である場合、すなわち、取出し電極を介して隣り合う一对の発光ユニットは、一方の発光ユニットにおける第1の電極を基準とする発光層と電子注入層との積層の順序が、他方の発光ユニットにおける発光層と電子注入層との積層の順序と異なる場合、取出し電極を、一層構成の電極（陰極と同じ材料の導電性薄膜及び陽極と同じ材料の導電性薄膜のうちのいずれか一方）によって構成することができる。そのため、層構成の積層順が同じ発光ユニット4に挟持される取出し電極3に比べると、取出し電極3の個数を削減することができる。取出し電極を形成する工程を簡略化することができる。

[0044] 発光ユニット4の個数、各層の厚さについては、発光効率や素子寿命を勘案して適宜設定される。

[0045] 以下に、発光ユニット4の個数が2個の場合において、層構成の積層順が同じ発光ユニット4に挟持される取出し電極3が設けられる形態の具体的な一例を（1-1）及び（1-2）に、層構成の積層順が異なる発光ユニット4に挟持される取出し電極3が設けられる形態の具体的な一例を（2-1）及び（2-2）に、それぞれ示す。なお図2～図5では駆動回路については図示していない。

[0046] （1-1）層構成の積層順が同じ発光ユニット4に挟持される取出し電極3が設けられる形態（図2参照）

第1の電極1a（陽極）／正孔注入層5a／正孔輸送層6a／発光層7a／電子注入層8a／取出し電極3a（陰極と同じ材料の導電性薄膜9a／陽極と同じ材料の導電性薄膜10a）／正孔注入層5a／正孔輸送層6a／発光層7a／電子注入層8a／第2の電極2a（陰極）

[0047] （1-2）層構成の積層順が同じ発光ユニット4に挟持される取出し電極3が設けられる形態（図3参照）

第1の電極1b（陰極）／電子注入層8b／発光層7b／正孔輸送層6b

／正孔注入層 5 b／取出し電極 3 b（陽極と同じ材料の導電性薄膜 10 b／陰極と同じ材料の導電性薄膜 9 b）電子注入層 8 b／発光層 7 b／正孔輸送層 6 b／正孔注入層 5 b／第 2 の電極 2 b（陽極）

[0048] （2－1）層構成の積層順が異なる発光ユニット 4 に挟持される取出し電極 3 が設けられる形態（図 4 参照）

第 1 の電極 1 c（陽極）／正孔注入層 5 c／正孔輸送層 6 c／発光層 7 c／電子注入層 8 c／取出し電極 3 c（陰極と同じ材料の導電性薄膜 9 c）／電子注入層 8 c／発光層 7 c／正孔輸送層 6 c／正孔注入層 5 c／第 2 の電極 2 c（陽極）

[0049] （2－2）層構成の積層順が異なる発光ユニット 4 に挟持される取出し電極 3 が設けられる形態（図 5 参照）

第 1 の電極 1 d（陰極）／電子注入層 8 d／発光層 7 d／正孔輸送層 6 d／正孔注入層 5 d／取出し電極 3 d（陽極と同じ材料の導電性薄膜 10 d）／正孔注入層 5 d／正孔輸送層 6 d／発光層 7 d／電子注入層 8 d／第 2 の電極 2 d（陰極）

[0050] 以上説明した構成の有機 EL 素子において、第 1 の電極 1、第 2 の電極 2、及び 1 又は複数の取出し電極 3 にそれぞれ所定の電圧を印加することにより、各発光ユニット 4 に独立して所定の電圧を印加することができる。これによって、各発光ユニット 4 から放射される光の強度を独立して制御することができる。

[0051] なお有機 EL 素子は複数の発光ユニット 4 を備えるため、複数の発光層を備える。互いに異なる発光ユニットに設けられる一対の発光層は、互いに異なる色の光を放射する発光層、又は同じ色の光を放射する発光層によって構成される。

[0052] （i）同じ色の光を放射する発光層を複数層設けた場合

各発光ユニットから放射される光の強度を独立して制御することにより、有機 EL 素子から出射される光の色をほぼ同じにしたまま、その光強度を変化させることができる。

[0053] (i i) 互いに異なる色の光を放射する発光層を設けた場合

有機EL素子からは、各発光ユニットから放射される種々の色の光が重ね合わされた光が出射するため、各発光ユニットから放射される光の強度を独立して制御することにより、有機EL素子から出射される光の色、及びその光強度を制御することができる。

[0054] 互いに同じ色の光を放射する発光層は、互いに同じ発光材料を用いて各層を形成すればよい。また互いに異なる色の光を放射する発光層は、互いに異なる発光材料を用いて各層を形成すればよい。複数の種類の材料を混合して発光層を形成する場合には、互いに異なる色の光を放射する発光層は、その材料が一部共通していてもよい。

[0055] なお3個以上の発光ユニットを設ける場合、発光層は3層以上設けられるが、例えばそのうちの2つの層を、同じ色の光を放射する発光層とし、残りの発光層を互いに異なる色の光を放射する発光層としてもよい。

[0056] 以上の有機EL素子は、例えば表示装置のバックライトや画素の光源、又は照明装置に用いられる。すなわち1又は複数の有機EL素子を所定の基板上に形成することにより、表示装置や照明装置を作製することができる。

[0057] 次に、有機EL素子の製造方法について説明する。

[0058] 本実施形態の有機EL素子の製造方法は、第1の電極と、1又は複数の取出し電極と、第2の電極とがこの順でそれぞれ間隔をあけて配置され、かつ前記第1の電極、前記1又は複数の取出し電極、及び前記第2の電極のうちの互いに隣り合う電極間に、それぞれ発光ユニットが設けられた構成の有機EL素子の製造方法であって、第1の電極を形成する工程と、第2の電極を形成する工程と、1又は複数の取出し電極を形成する工程と、発光ユニットを形成する工程とを含み、前記発光ユニットを形成する工程では、イオン性ポリマーを含む塗布液を塗布成膜し、これを固化することによって電子注入層を形成し、さらに、電子注入層を形成する前又は電子注入層を形成した後に、発光層を形成し、電子注入層と発光層とを含む発光ユニットを形成する。

[0059] 本実施形態の有機EL素子は、例えば、（１）各構成要素を第１の電極から順に、順次積層する方法、又は、（２）ラミネート法によって形成することができる。

[0060] （１）各構成要素を順次積層する場合

発光ユニット４を２個備える場合は、支持基板等に、第１の電極１、発光ユニット４、取出し電極３、発光ユニット４、第２の電極２をこの順に積層することによって、有機EL素子を形成することができる。

[0061] 発光ユニット４を３個以上備える場合は、支持基板等に、第１の電極１、発光ユニット４を順次積層し、さらに、取出し電極３、発光ユニット４を順次積層する工程を、１又は複数回繰り返し、最後に第２の電極２を積層することによって、有機EL素子を形成することができる。

[0062] （２）ラミネート法の場合

有機EL素子を厚み方向に垂直な仮想平面で切断したときに、第１の電極から切断面までの層を予め形成した第１の部材を用意するとともに、第２の電極から切断面までの層を予め形成した第２の部材を用意し、これら第１の部材と第２の部材とを切断面で貼り合わせることによって有機EL素子を形成することができる。

[0063] 第１の電極１及び第２の電極２は陽極又は陰極に相当する電極として設けられる。陽極と陰極の形成方法及びその材料については後述する。

[0064] 取出し電極３は、後述する陽極又は陰極と同様に形成することができる。取出し電極３は、１層の場合には、陽極又は陰極と同じ材料、同じ形成方法によって形成される。２層の場合には、陽極及び陰極のうちの一方と同じ材料、同じ形成方法によって一方の層を形成し、さらに陽極及び陰極のうちの他方と同じ材料、同じ形成方法によって他方の層を形成し、これらの層を積層することにより形成される。なお取出し電極３は、後述する陽極又は陰極と同じ材料で形成されてもよいが、第１の電極１又は第２の電極２とは異なる材料で形成されてもよい。

[0065] 取出し電極３は厚すぎると不透明になる一方で、薄すぎると電気抵抗が高

くなるため、その厚みは、光の透過率及び電気抵抗等を勘案して適宜設定される。

[0066] 発光ユニットを形成する工程では、イオン性ポリマーを含む塗布液を塗布成膜し、これを固化することによって電子注入層を形成し、さらに、電子注入層を形成する前又は電子注入層を形成した後に、発光層を形成し、電子注入層と発光層とを含む発光ユニットを形成することができる。発光ユニットは、例えば上述した a) ～ f) の構成の各層を第 1 の積層順、又は第 2 の積層順で順次積層する、又はラミネート法によって第 1 の積層順、又は第 2 の積層順に形成される。

[0067] 各層を順次積層する形態では、電子注入層に対して、発光層を第 1 の電極 1 寄りに配置する第 1 の積層順の場合には、電子注入層を形成する前に、まず発光層を形成し、その後、電子注入層を形成する。また発光層に対して電子注入層を第 1 の電極 1 寄りに配置する第 2 の積層順の場合には、電子注入層を形成した後に、発光層を形成する。

[0068] 電子注入層は、イオン性ポリマーを含む塗布液を塗布成膜し、これを固化することによって形成される。後述するようにイオン性ポリマーは大気中においても比較的安定であるため、このイオン性ポリマーを含む塗布液を使用する塗布法によって形成することができる。

[0069] イオン性ポリマーを含む塗布液の塗布は、例えば窒素ガスやアルゴンガス等の不活性ガスの雰囲気中において行ってもよいが、製造工程の簡易化の観点からは、窒素の体積比が 90% 以下、かつ酸素の体積比が 10% ～ 30% の雰囲気中で行うことが好ましく、窒素の体積比が 60% ～ 90%、酸素の体積比が 10% ～ 30%、水蒸気の体積比が 0.0001% ～ 0.01%、圧力が 10 kPa ～ 1000 kPa、温度が 5℃ ～ 100℃ の雰囲気中で行うことがより好ましく、窒素の体積比が 70% ～ 90%、酸素の体積比が 10% ～ 30%、水蒸気の体積比が 0.002% ～ 0.005%、圧力が 80 kPa ～ 120 kPa、温度が 20℃ ～ 30℃ の雰囲気中で行うことがさらに好ましく、大気中で温度 20℃ ～ 30℃ で行うことがより一層好ましい。

- [0070] イオン性ポリマーを含む塗布液の塗布は、有機EL素子の形状や工程の簡易さ等を勘案して適宜公知の塗布法のなかから最適な塗布法を選択し、これを用い行うことができる。塗布法としては、例えばスピコート法、キャストリング法、マイクログラビアコート法、グラビアコート法、バーコート法、ロールコート法、ワイヤーバーコート法、ディップコート法、スプレーコート法、スクリーン印刷法、フレキソ印刷法、オフセット印刷法及びインクジェットプリント法を挙げることができる。
- [0071] イオン性ポリマーを含む塗布液を塗布成膜した薄膜の固化は、自然乾燥、加熱乾燥及び真空乾燥等によって行われる。なお加熱又は光照射によって重合する材料を含む塗布液を使用した場合には、加熱又は光照射によって薄膜を固化することができる。
- [0072] 薄膜の固化は、真空雰囲気中又は窒素ガスやアルゴンガス等の不活性ガスの雰囲気中において行ってもよいが、製造工程の簡易化の観点からは、窒素の体積比が90%以下、かつ酸素の体積比が10%～30%の雰囲気中で行うことが好ましく、窒素の体積比が60%～90%、酸素の体積比が10%～30%、水蒸気の体積比が0.0001%～0.01%、10kPa～1000kPa、温度が60℃～200℃雰囲気中に行うことがより好ましく、窒素の体積比が70%～90%、酸素の体積比が10%～30%、水蒸気の体積比が0.002%～0.005%、圧力が80kPa～120kPa、温度が50℃～250℃の雰囲気中に行うことがさらに好ましく、大気中で温度20℃～30℃で行うことがより一層好ましい。
- [0073] 発光層並びに必要なに応じて設けられる正孔注入層、正孔輸送層、電子ブロック層、正孔ブロック層、及び電子輸送層等は、前述した塗布法や後述する蒸着法等の公知の方法によって形成することができる。これらは、真空雰囲気中又は窒素ガスやアルゴンガス等の不活性ガスの雰囲気中において形成してもよいが、製造工程の簡易化の観点からは、少なくとも1層を、上述したイオン性ポリマーを含む塗布液の塗布する際、又は薄膜を固化する際の好ましい雰囲気として挙げた雰囲気中で形成することが好ましい。

[0074] 上述したように、後述するイオン性ポリマーは、大気中においても比較的安定であるため、たとえ上記のような雰囲気中で発光層等を形成したとしても、電子注入層の劣化を抑制することができる。このように、真空雰囲気中又は窒素ガスやアルゴンガス等の不活性ガスの雰囲気を導入することなく発光層等を形成することにより、製造工程の簡易化を実現することができる。

[0075] 以下、有機EL素子の各構成要素について、その材料及び形成方法について説明する。

[0076] 前述したように発光ユニットには、発光層及び電子注入層のみならず、発光層及び電子注入層とは異なる所定の層として、正孔注入層、正孔輸送層、電子ブロック層、電子輸送層、正孔ブロック層等が設けられる。

[0077] 電子注入層は、陰極からの電子注入効率を改善する機能を有する。電子輸送層は陰極側の表面に接する層からの電子注入効率を改善する機能を有する。正孔ブロック層は、正孔の輸送を堰き止める機能を有する。なお電子注入層、及び／又は電子輸送層が正孔の輸送を堰き止める機能を有する場合には、これらの層が正孔ブロック層を兼ねることがある。

[0078] 正孔注入層は陽極からの正孔注入効率を改善する機能を有する。正孔輸送層は陽極側の表面に接する層からの正孔注入効率を改善する機能を有する。電子ブロック層は電子の輸送を堰き止める機能を有する。なお正孔注入層及び／又は正孔輸送層が電子の輸送を堰き止める機能を有する場合には、これらの層が電子ブロック層を兼ねることがある。

[0079] なお、電子注入層及び正孔注入層を総称して電荷注入層ということがあり、電子輸送層及び正孔輸送層を総称して電荷輸送層ということがある。

[0080] 有機EL素子には、（１）ボトムエミッション型の構成のものと、（２）トップエミッション型の構成のものと、（３）両面発光型の構成のものがある。有機EL素子は通常支持基板に設けられ、ボトムエミッション型の有機EL素子は支持基板を通して光を外界に出射し、トップエミッション型の有機EL素子は、支持基板とは反対側から光を外界に出射し、両面発光型の有機EL素子は、支持基板側及び支持基板とは反対側の両方から光を外界に

出射する。本発明はボトムエミッション型、トップエミッション型、及び両面発光型の有機ＥＬ素子のいずれであっても適用することができる。

[0081] ボトムエミッション型の有機ＥＬ素子では、第１の電極を通して光が外界に出射するため、第１の電極は光透過性を示す電極によって構成することができ、逆に支持基板から離間して配置される第２の電極は通常光を反射する電極によって構成される。またトップエミッション型の有機ＥＬ素子では第１の電極に対して、支持基板から離間して配置される第２の電極を通して光が外界に出射するため、第２の電極が光透過性を示す電極によって構成することができ、逆に支持基板寄りに配置される第１の電極は通常光を反射する電極によって構成される。また両面発光型の有機ＥＬ素子では、第１及び第２の電極の両方の電極が、光透過性を示す電極によって構成される。

[0082] <支持基板>

前述したように有機ＥＬ素子は通常支持基板上に形成される。支持基板は有機ＥＬ素子を製造する工程において化学的に変化しないものが好適に用いられ、例えばガラス、プラスチック、高分子フィルム、及びシリコン板、並びにこれらを積層したものが用いられる。なお有機ＥＬ素子を駆動する駆動回路が予め形成されている駆動用基板を支持基板として用いてもよい。支持基板を通して光が出射する構成のボトムエミッション型又は両面発光型の有機ＥＬ素子を支持基板に搭載する場合、支持基板には光透過性を示す基板が用いられる。

[0083] <陽極>

発光層から放射される光が陽極を通して外に出射する構成の有機ＥＬ素子の場合、陽極には光透過性を示す電極が用いられる。光透過性を示す電極としては、金属酸化物、金属硫化物及び金属等の薄膜を用いることができ、電気伝導度及び光透過率の高いものが好適に用いられる。電極として、具体的には酸化インジウム、酸化亜鉛、酸化スズ、ITO、インジウム亜鉛酸化物（Indium Zinc Oxide：略称IZO）、金、白金、銀、及び銅等から成る薄膜が用いられ、これらの中でもITO、IZO、又は酸化

スズから成る薄膜が好適に用いられる。陽極の作製方法としては、真空蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法、メッキ法等を挙げることができる。また、該陽極として、ポリアニリン又はその誘導体、ポリチオフェン又はその誘導体等の有機の透明導電膜を用いてもよい。有機の透明導電膜は、ポリチオフェン等の有機導電材料を用いた塗布法により作製することができる。

[0084] 陽極の膜厚は、要求される特性及び工程の簡易さ等を考慮して適宜設定され、例えば10 nm～10 μmであり、好ましくは20 nm～1 μmであり、さらに好ましくは50 nm～500 nmである。

[0085] <正孔注入層>

正孔注入層を構成する正孔注入材料としては、例えば、酸化バナジウム、酸化モリブデン、酸化ルテニウム及び酸化アルミニウム等の金属酸化物、フェニルアミン系化合物、スターバースト型アミン系化合物、フタロシアニン系化合物、アモルファスカーボン、ポリアニリン及びポリチオフェン誘導体を挙げることができる。

[0086] 正孔注入層の成膜方法としては、例えば正孔注入材料を含む溶液からの成膜を挙げることができる。例えば所定の塗布法によって正孔注入材料を含む溶液を塗布成膜し、さらにこれを固化することによって正孔注入層を形成することができる。塗布膜の固化は、自然乾燥、加熱乾燥、真空乾燥等によって行うことができ、さらには所定の光を照射することによっても行うことができる。

[0087] 溶液からの成膜に用いられる溶媒としては、例えば、クロロホルム、塩化メチレン、ジクロロエタン等の塩素系溶媒、テトラヒドロフラン等のエーテル系溶媒、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素系溶媒、アセトン、メチルエチルケトン等のケトン系溶媒、酢酸エチル、酢酸ブチル、エチルセルソルブアセテート等のエステル系溶媒、及び水を挙げることができる。

[0088] 正孔注入層の膜厚は、求められる特性及び工程の簡易さ等を考慮して適宜設定され、例えば1 nm～1 μmであり、好ましくは2 nm～500 nmで

あり、さらに好ましくは5 nm～200 nmである。

[0089] <正孔輸送層>

正孔輸送層を構成する正孔輸送材料としては、例えば、ポリビニルカルバゾール若しくはその誘導体、ポリシラン若しくはその誘導体、側鎖若しくは主鎖に芳香族アミンを有するポリシロキサン誘導体、ピラゾリン誘導体、アリールアミン誘導体、スチルベン誘導体、トリフェニルジアミン誘導体、ポリアニリン若しくはその誘導体、ポリチオフェン若しくはその誘導体、ポリアリールアミン若しくはその誘導体、ポリピロール若しくはその誘導体、ポリ(p-フェニレンビニレン)若しくはその誘導体、及びポリ(2,5-チエニレンビニレン)若しくはその誘導体を挙げることができる。

[0090] これらのなかで正孔輸送材料としては、ポリビニルカルバゾール若しくはその誘導体、ポリシラン若しくはその誘導体、側鎖若しくは主鎖に芳香族アミン化合物基を有するポリシロキサン誘導体、ポリアニリン若しくはその誘導体、ポリチオフェン若しくはその誘導体、ポリアリールアミン若しくはその誘導体、ポリ(p-フェニレンビニレン)若しくはその誘導体、又はポリ(2,5-チエニレンビニレン)若しくはその誘導体等の高分子正孔輸送材料が好ましく、さらに好ましくはポリビニルカルバゾール若しくはその誘導体、ポリシラン若しくはその誘導体、側鎖若しくは主鎖に芳香族アミンを有するポリシロキサン誘導体である。低分子の正孔輸送材料の場合には、高分子バインダーに分散させて用いることが好ましい。

[0091] 正孔輸送層の成膜方法としては、例えば正孔輸送材料を含む溶液からの成膜を挙げることができる。例えば所定の塗布法によって正孔輸送材料を含む溶液を塗布成膜し、さらにこれを固化することによって正孔輸送層を形成することができる。低分子の正孔輸送材料では、高分子バインダーをさらに混合した溶液を用いて成膜してもよい。

[0092] 溶液からの成膜に用いられる溶媒としては、例えば、クロロホルム、塩化メチレン、ジクロロエタン等の塩素系溶媒、テトラヒドロフラン等のエーテル系溶媒、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素系溶媒、アセトン、メチ

ルエチルケトン等のケトン系溶媒、酢酸エチル、酢酸ブチル、エチルセルソルブアセテート等のエステル系溶媒を挙げることができる。

[0093] 低分子の正孔輸送材料に混合する高分子バインダーとしては、電荷輸送を極度に阻害しないものが好ましく、また可視光に対する吸収の弱いものが好適に用いられ、例えば、ポリカーボネート、ポリアクリレート、ポリメチルアクリレート、ポリメチルメタクリレート、ポリスチレン、ポリ塩化ビニル及びポリシロキサンを挙げることができる。

[0094] 正孔輸送層の膜厚は、要求される特性及び工程の簡易さ等を考慮して適宜設定され、例えば1 nm～1 μmであり、好ましくは2 nm～500 nmであり、さらに好ましくは5 nm～200 nmである。

[0095] <発光層>

発光層は、通常、主として蛍光及び／又はりん光を発光する有機物、または該有機物とこれを補助するドーパントとから形成される。例えば発光効率の向上や、発光波長を変化させるためにドーパントは加えられる。なお発光層に含まれる有機物は、低分子化合物でも高分子化合物でもよい。低分子化合物よりも溶媒への溶解性が一般的に高い高分子化合物は塗布法に好適に用いられるため、発光層は高分子化合物を含むことが好ましく、高分子化合物としてポリスチレン換算の数平均分子量が $10^3 \sim 10^8$ の化合物を含むことがより好ましい。発光層を構成する発光材料としては、例えば以下の色素系材料、金属錯体系材料、高分子系材料、ドーパント材料を挙げることができる。

[0096] (色素系材料)

色素系材料としては、例えば、シクロペンダミン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体化合物、トリフェニルアミン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ピラゾロキノリン誘導体、ジスチリルベンゼン誘導体、ジスチリルアリーレン誘導体、ピロール誘導体、チオフェン環化合物、ピリジン環化合物、ペリノン誘導体、ペリレン誘導体、オリゴチオフェン誘導体、オキサジアゾールダイマー、ピラゾリンダイマー、キナクリドン誘導体及びクマリン誘

導体を挙げることができる。

[0097] (金属錯体系材料)

金属錯体系材料としては、Tb、Eu、Dy等の希土類金属、又はAl、Zn、Be、Ir、Pt等を中心金属に有し、オキサジアゾール、チアジアゾール、フェニルピリジン、フェニルベンゾイミダゾール、キノリン構造等を配位子に有する金属錯体を挙げるができる。具体的には、イリジウム錯体、白金錯体等の三重項励起状態からの発光を有する金属錯体、アルミニウムキノリノール錯体、ベンゾキノリノールベリリウム錯体、ベンゾオキサゾリル亜鉛錯体、ベンゾチアジアゾール亜鉛錯体、アゾメチル亜鉛錯体、ポルフィリン亜鉛錯体、フェナントロリンユーロピウム錯体等を挙げるができる。

[0098] (高分子系材料)

高分子系材料としては、ポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリチオフェン誘導体、ポリパラフェニレン誘導体、ポリシラン誘導体、ポリアセチレン誘導体、ポリフルオレン誘導体、ポリビニルカルバゾール誘導体、上記色素系材料や金属錯体系発光材料を高分子化したもの等を挙げるができる。

[0099] 上記発光材料のうち、青色に発光する材料としては、ジスチリルアリーレン誘導体、オキサジアゾール誘導体、及びそれらの重合体、ポリビニルカルバゾール誘導体、ポリパラフェニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等を挙げるができる。なかでも高分子材料のポリビニルカルバゾール誘導体、ポリパラフェニレン誘導体やポリフルオレン誘導体等が好ましい。

[0100] また、上記発光材料のうち、緑色に発光する材料としては、キナクリドン誘導体、クマリン誘導体、及びそれらの重合体、ポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等を挙げるができる。なかでも高分子材料のポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等が好ましい。

[0101] また、上記発光材料のうち、赤色に発光する材料としては、クマリン誘導

体、チオフェン環化合物、及びそれらの重合体、ポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリチオフェン誘導体、ポリフルオレン誘導体等を挙げることができる。なかでも高分子材料のポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリチオフェン誘導体、ポリフルオレン誘導体等が好ましい。

[0102] (ドーパント材料)

ドーパント材料としては、例えば、ペリレン誘導体、クマリン誘導体、ルブレン誘導体、キナクリドン誘導体、スクアリウム誘導体、ポルフィリン誘導体、スチリル系色素、テトラセン誘導体、ピラゾロン誘導体、デカシクレン、フェノキサゾンを挙げることができる。

[0103] 発光層の厚さは、通常約2 nm～200 nmである。

[0104] 発光層は、例えば溶液からの成膜によって形成することができる。発光層は、例えば発光材料を含む溶液を所定の塗布法によって塗布し、さらにこれを固化することによって形成することができる。溶液からの成膜に用いる溶媒としては、前述の溶液から正孔注入層を成膜する際に用いられる溶媒と同様の溶媒を挙げることができる。

[0105] <電子輸送層>

電子輸送層を構成する電子輸送材料としては、例えば、オキサジアゾール誘導体、アントラキノジメタン若しくはその誘導体、ベンゾキノン若しくはその誘導体、ナフトキノン若しくはその誘導体、アントラキノン若しくはその誘導体、テトラシアノアンスラキノジメタン若しくはその誘導体、フルオレノン誘導体、ジフェニルジシアノエチレン若しくはその誘導体、ジフェノキノン誘導体、又は8-ヒドロキシキノリン若しくはその誘導体の金属錯体、ポリキノリン若しくはその誘導体、ポリキノキサリン若しくはその誘導体、ポリフルオレン若しくはその誘導体等を挙げることができる。

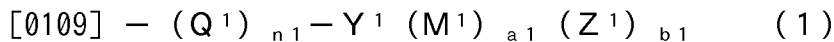
[0106] 電子輸送層の成膜法としては、例えば蒸着法及び溶液からの成膜法を挙げることができる。なお、溶液から成膜する場合には高分子バインダーを併用してもよい。

[0107] 電子輸送層の膜厚は、要求される特性及び工程の簡易さ等を考慮して適宜

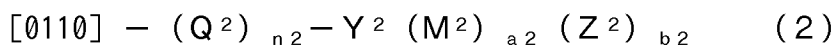
設定され、例えば1 nm～1 μmであり、好ましくは2 nm～500 nmであり、さらに好ましくは5 nm～200 nmである。

[0108] <電子注入層>

電子注入層はイオン性ポリマーを含んで構成される。電子注入層を構成するイオン性ポリマーとしては、例えば、下記式(1)で表される基及び下記式(2)で表される基からなる群から選ばれる1種以上の基を含む構造単位を有する重合体が挙げられる。イオン性ポリマーの一形態としては、式(1)で表される基及び式(2)で表される基からなる群から選ばれる1種以上の基を含む構造単位を、全構造単位中、15～100モル%有する重合体が挙げられる。



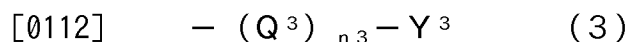
式(1)中、 Q^1 は2価の有機基を表し、 Y^1 は、 $-CO_2^-$ 、 $-SO_3^-$ 、 $-SO_2^-$ 、 $-PO_3^-$ 又は $-B(R^a)_3^-$ を表し、 M^1 は金属カチオン又は置換基を有し若しくは有さないアンモニウムカチオンを表し、 Z^1 は F^- 、 Cl^- 、 Br^- 、 I^- 、 OH^- 、 $R^aSO_3^-$ 、 R^aCOO^- 、 ClO^- 、 ClO_2^- 、 ClO_3^- 、 ClO_4^- 、 SCN^- 、 CN^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 HSO_4^- 、 PO_4^{3-} 、 HPO_4^{2-} 、 $H_2PO_4^-$ 、 BF_4^- 又は PF_6^- を表す。 $n1$ は0以上の整数を表し、 $a1$ は1以上の整数を表し、 $b1$ は0以上の整数を表す。ただし、 $a1$ 及び $b1$ は、式(1)で表される基の電荷が0となるように選択され、 R^a は置換基を有し若しくは有さない炭素原子数1～30のアルキル基又は置換基を有し若しくは有さない炭素原子数6～50のアリール基を表す。 Q^1 、 M^1 及び Z^1 の各々は複数個ある場合、同一でも異なってもよい。



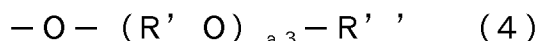
式(2)中、 Q^2 は2価の有機基を表し、 Y^2 はカルボカチオン、アンモニウムカチオン、ホスホニルカチオン又はスルホニルカチオン又はヨードニウムカチオンを表し、 M^2 は F^- 、 Cl^- 、 Br^- 、 I^- 、 OH^- 、 $R^bSO_3^-$ 、 R^bCOO^- 、 ClO^- 、 ClO_2^- 、 ClO_3^- 、 ClO_4^- 、 SCN^- 、 CN^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 HSO_4^- 、 PO_4^{3-} 、 HPO_4^{2-} 、 $H_2PO_4^-$ 、 BF_4^- 又は PF_6^-

6^- を表し、 Z^2 は金属カチオン又は置換基を有し若しくは有さないアンモニウムカチオンを表す。 n^2 は0以上の整数を表し、 a^2 は1以上の整数を表し、 b^2 は0以上の整数を表す。ただし、 a^2 及び b^2 は、式(2)で表される基の電荷が0となるように選択され、 R^b は置換基を有し若しくは有さない炭素原子数1～30のアルキル基又は置換基を有し若しくは有さない炭素原子数6～50のアリール基を表す。 Q^2 、 M^2 及び Z^2 の各々は複数個ある場合、同一でも異なってもよい。

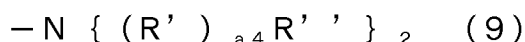
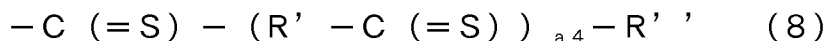
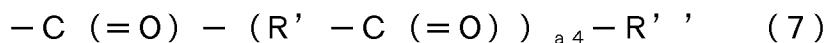
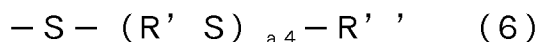
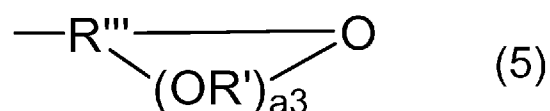
[0111] 本実施形態で用いられるイオン性ポリマーの一形態としては、さらに下記式(3)で表される基を有する重合体が挙げられる。イオン性ポリマーが式(3)で表される基を有する場合、式(3)で表される基は、イオン性ポリマーの構造単位中に含まれていてもよく、式(1)で表される基及び式(2)で表される基からなる群から選ばれる一種以上の基を含む構造単位と同一の構造単位内に含まれていてもよく、異なる他の構造単位内に含まれていてもよい。さらに、イオン性ポリマーの一形態としては、式(1)で表される基、式(2)で表される基、及び式(3)で表される基のうち少なくとも1種を含む構造単位を、全構造単位中、15～100モル%有する重合体が挙げられる。

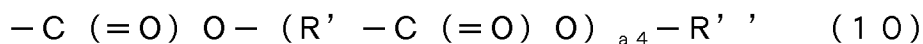


式(3)中、 Q^3 は2価の有機基を表し、 Y^3 は $-CN$ 又は式(4)～(12)のいずれかで表される基を表し、 n^3 は0以上の整数を表す。



[化1]

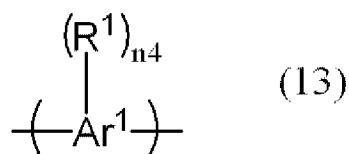




[0113] 式(4)～(12)中、 R' は置換基を有し又は有さない2価の炭化水素基を表し、 R'' は、置換基を有し若しくは有さない1価の炭化水素基、 $-COOH$ 、 $-SO_3H$ 、 $-OH$ 、 $-SH$ 、 $-NR^{\circ}_2$ 、 $-CN$ 、 $-C(=O)N$ R°_2 又は水素原子を表し、 R''' は置換基を有し若しくは有さない3価の炭化水素基を表す。 $a3$ は1以上の整数を表し、 $a4$ は0以上の整数を表す。 R° は置換基を有し若しくは有さない炭素原子数1～30のアルキル基又は置換基を有し若しくは有さない炭素原子数6～50のアリール基を表す。 R' 、 R'' 及び R''' の各々は複数個ある場合、同一でも異なってもよい。

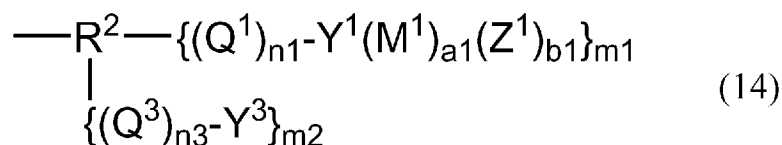
[0114] イオン性ポリマーは、式(13)で表される構造単位、式(15)で表される構造単位、式(17)で表される構造単位及び式(20)で表される構造単位からなる群から選ばれる1種以上の構造単位を、全構造単位中、15～100モル%含むことが好ましい。

[0115] [化2]



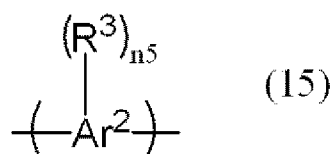
式(13)中、 R^1 は式(14)で表される基を含む1価の基であり、 Ar^1 は R^1 以外の置換基を有し又は有さない $(2+n4)$ 価の芳香族基を表す。 $n4$ は1以上の整数を表す。 R^1 は複数個ある場合、同一でも異なってもよい。

[0116] [化3]



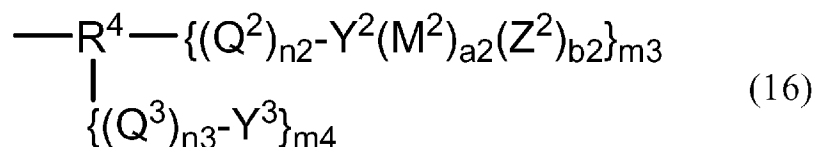
式(14)中、 R^2 は $(1+m_1+m_2)$ 価の有機基を表し、 Q^1 、 Q^3 、 Y^1 、 M^1 、 Z^1 、 Y^3 、 n_1 、 a_1 、 b_1 及び n_3 は前述と同じ意味を表し、 m_1 及び m_2 はそれぞれ独立に1以上の整数を表す。 Q^1 、 Q^3 、 Y^1 、 M^1 、 Z^1 、 Y^3 、 n_1 、 a_1 、 b_1 及び n_3 の各々は複数個ある場合、同一でも異なってもよい。

[0117] [化4]



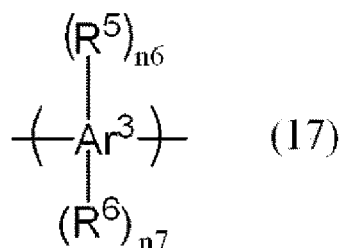
式(15)中、 R^3 は式(16)で表される基を含む1価の基であり、 Ar^2 は R^3 以外の置換基を有し又は有さない $(2+n_5)$ 価の芳香族基を表す。 n_5 は1以上の整数を表す。 R^3 は複数個ある場合、同一でも異なってもよい。

[0118] [化5]



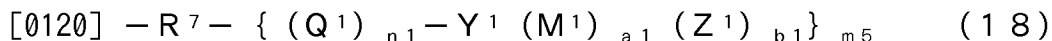
式(16)中、 R^4 は $(1+m_3+m_4)$ 価の有機基を表し、 Q^2 、 Q^3 、 Y^2 、 M^2 、 Z^2 、 Y^3 、 n_2 、 a_2 、 b_2 及び n_3 は前述と同じ意味を表し、 m_3 及び m_4 はそれぞれ独立に1以上の整数を表す。 Q^2 、 Q^3 、 Y^2 、 M^2 、 Z^2 、 Y^3 、 n_2 、 a_2 、 b_2 及び n_3 の各々は複数個ある場合、同一でも異なってもよい。

[0119] [化6]

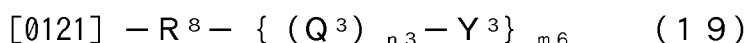


式(17)中、 R^5 は式(18)で表される基を含む1価の基であり、 R^6 は

式(19)で表される基を含む1価の基であり、 Ar^3 は R^5 及び R^6 以外の置換基を有し又は有さない $(2+n_6+n_7)$ 価の芳香族基を表す。 n_6 及び n_7 はそれぞれ独立に1以上の整数を表す。 R^5 及び R^6 の各々は複数個ある場合、同一でも異なってもよい。

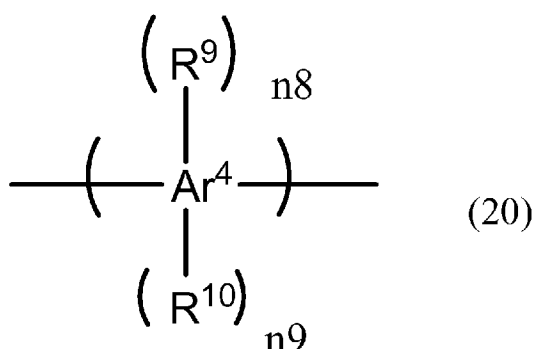


式(18)中、 R^7 は直接結合又は $(1+m_5)$ 価の有機基を表し、 Q^1 、 Y^1 、 M^1 、 Z^1 、 n_1 、 a_1 及び b_1 は前述と同じ意味を表し、 m_5 は1以上の整数を表す。 Q^1 、 Y^1 、 M^1 、 Z^1 、 n_1 、 a_1 及び b_1 の各々は複数個ある場合、同一でも異なってもよい。

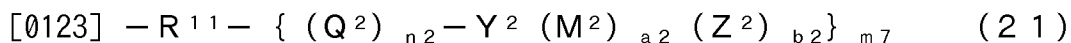


式(19)中、 R^8 は単結合又は $(1+m_6)$ 価の有機基を表し、 Y^3 及び n_3 は前述と同じ意味を表し、 m_6 は1以上の整数を表す。ただし、 R^8 が単結合のとき m_6 は1を表す。 Q^3 、 Y^3 及び n_3 の各々は複数個ある場合、同一でも異なってもよい。

[0122] [化7]



式(20)中、 R^9 は式(21)で表される基を含む1価の基であり、 R^{10} は式(22)で表される基を含む1価の基であり、 Ar^4 は R^9 及び R^{10} 以外の置換基を有し又は有さない $(2+n_8+n_9)$ 価の芳香族基を表す。 n_8 及び n_9 はそれぞれ独立に1以上の整数を表す。 R^9 及び R^{10} の各々は複数個ある場合、同一でも異なってもよい。



式(21)中、 R^{11} は単結合又は $(1+m_7)$ 価の有機基を表し、 Q^2 、 Y^2

、 M^2 、 Z^2 、 n^2 、 a^2 及び b^2 は前述と同じ意味を表し、 m^7 は1以上の整数を表す。ただし、 R^{11} が単結合のとき m^7 は1を表す。 Q^2 、 Y^2 、 M^2 、 Z^2 、 n^2 、 a^2 及び b^2 の各々は複数個ある場合、同一でも異なってもよい。

[0124] $-R^{12}-\{(Q^3)_{n3}-Y^3\}_{m8} \quad (22)$

式(22)中、 R^{12} は単結合又は $(1+m8)$ 価の有機基を表し、 Y^3 及び n^3 は前述と同じ意味を表し、 m^8 は1以上の整数を表す。ただし、 R^{12} が単結合のとき m^8 は1を表す。 Q^3 、 Y^3 及び n^3 の各々は複数個ある場合、同一でも異なってもよい。

[0125] 前記イオン性ポリマー中の構造単位は、式(1)で表される基を2種類以上含んでもよく、式(2)で表される基を2種類以上含んでもよく、式(3)で表される基を2種類以上含んでもよい。

[0126] (式(1)で表される基)

式(1)中、 Q^1 で表される2価の有機基としては、メチレン基、エチレン基、1,2-プロピレン基、1,3-プロピレン基、1,2-ブチレン基、1,3-ブチレン基、1,4-ブチレン基、1,5-ペンチレン基、1,6-ヘキシレン基、1,9-ノニレン基、1,12-ドデシレン基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1~50の2価の飽和炭化水素基；エテニレン基、プロペニレン基、3-ブテニレン基、2-ブテニレン基、2-ペンテニレン基、2-ヘキセニレン基、2-ノネニレン基、2-ドデセニレン基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数2~50のアルケニレン基、及び、エチニレン基を含む、置換基を有し又は有さない炭素原子数2~50の2価の不飽和炭化水素基；シクロプロピレン基、シクロブチレン基、シクロペンチレン基、シクロヘキシレン基、シクロノニレン基、シクロドデシレン基、ノルボニレン基、アダマンチレン基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数3~50の

2価の環状飽和炭化水素基；1，3-フェニレン基、1，4-フェニレン基、1，4-ナフチレン基、1，5-ナフチレン基、2，6-ナフチレン基、ビフェニル-4，4'-ジイル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数6～50のアリーレン基；メチレンオキシ基、エチレンオキシ基、プロピレンオキシ基、ブチレンオキシ基、ペンチレンオキシ基、ヘキシレンオキシ基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～50のアルキレンオキシ基；炭素原子を含む置換基を有するイミノ基；炭素原子を含む置換基を有するシリレン基が挙げられる。イオン性ポリマーの原料となるモノマー（以下、「原料モノマー」と言う。）の合成の容易さの観点からは、2価の飽和炭化水素基、アリーレン基、アルキレンオキシ基が好ましい。

[0127] 前記置換基としては、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリーール基、アリーールオキシ基、アリーールチオ基、アリーールアルキル基、アリーールアルコキシ基、アリーールアルキルチオ基、アリーールアルケニル基、アリーールアルキニル基、アミノ基、置換アミノ基、シリル基、置換シリル基、ハロゲン原子、アシル基、アシルオキシ基、イミン残基、アミド基、酸イミド基、1価の複素環基、ヒドロキシ基、カルボキシ基、置換カルボキシ基、シアノ基及びニトロ基が挙げられる。前記置換基が複数個存在する場合には、それらは同一でも異なってもよい。これらのうち、アミノ基、シリル基、ハロゲン原子、ヒドロキシ基及びニトロ基以外の置換基は炭素原子を含む。

[0128] 以下、置換基について説明する。なお、「 $C_m \sim C_n$ 」（ m 、 n は $m < n$ を満たす正の整数である）という用語は、この用語とともに記載された有機基の炭素原子数が $m \sim n$ であることを表す。例えば、 $C_m \sim C_n$ アルキル基であれば、アルキル基の炭素原子数が $m \sim n$ であることを表し、 $C_m \sim C_n$ アルキルアリーール基であれば、アルキル基の炭素原子数が $m \sim n$ であることを表し、アリーール- $C_m \sim C_n$ アルキル基であれば、アルキル基の炭素原子数が $m \sim$

nであることを表す。

- [0129] アルキル基は、直鎖状でも分岐状でもよく、シクロアルキル基でもよい。アルキル基の炭素原子数は通常1～20であり、1～10が好ましい。アルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基等が挙げられる。前記アルキル基中の水素原子はフッ素原子で置換されていてもよい。該当するフッ素原子置換アルキル基としては、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、パーフルオロブチル基、パーフルオロヘキシル基、パーフルオロオクチル基等が挙げられる。なお、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、イソアミル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基が挙げられる。
- [0130] アルコキシ基は、直鎖状でも分岐状でもよく、シクロアルキルオキシ基であってもよく、置換基を有していてもよい。アルコキシ基の炭素原子数は通常1～20であり、1～10が好ましい。アルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、イソプロピルオキシ基、ブトキシ基、イソブトキシ基、s-ブトキシ基、t-ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、ヘプチルオキシ基、オクチルオキシ基、ノニルオキシ基、デシルオキシ基、ラウリルオキシ基等が挙げられる。
- [0131] 前記アルコキシ基中の水素原子はフッ素原子で置換されていてもよい。該当するフッ素原子置換アルコキシ基としては、トリフルオロメトキシ基、ペンタフルオロエトキシ基、パーフルオロブトキシ基、パーフルオロヘキシルオキシ基、パーフルオロオクチルオキシ基等が挙げられる。また、該アルコキシ基には、メトキシメチルオキシ基、2-メトキシエチルオキシ基も含まれる。なお、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシ基としては、例えば、メトキシ基、エトキ

シ基、プロピルオキシ基、イソプロピルオキシ基、ブトキシ基、イソブトキシ基、*s*-ブトキシ基、*t*-ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、ヘプチルオキシ基、オクチルオキシ基、2-エチルヘキシルオキシ基、ノニルオキシ基、デシルオキシ基、3,7-ジメチルオクチルオキシ基、ラウリルオキシ基が挙げられる。

[0132] アルキルチオ基としては、直鎖状でも分岐状でもよく、シクロアルキルチオ基であってもよく、置換基を有していてもよい。アルキルチオ基の炭素原子数は通常1~20であり、1~10が好ましい。アルキルチオ基としては、メチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、イソプロピルチオ基、ブチルチオ基、イソブチルチオ基、*s*-ブチルチオ基、*t*-ブチルチオ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基、シクロヘキシルチオ基、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、ラウリルチオ基等が挙げられる。前記アルキルチオ基中の水素原子はフッ素原子で置換されていてもよい。該当するフッ素原子置換アルキルチオ基としては、トリフルオロメチルチオ基等が挙げられる。

[0133] アリール基は、芳香族炭化水素から芳香環を構成する炭素原子に結合した水素原子1個を除いた残りの原子団であり、ベンゼン環を持つ基、縮合環を持つ基、独立したベンゼン環又は縮合環2個以上が単結合又は2価の有機基、例えば、ビニレン基のアルケニレン基を介して結合した基も含まれる。アリール基は、炭素原子数が通常6~60であり、7~48であることが好ましい。アリール基としては、フェニル基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェニル基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基等が挙げられる。前記アリール基中の水素原子はフッ素原子で置換されていてもよい。該当するフッ素原子置換アリール基としては、ペンタフルオロフェニル基等が挙げられる。アリール基の中では、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェニル基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルフェニル基が好ましい。

[0134] 前記アリール基のうち、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェニル基としては、メトキ

シフェニル基、エトキシフェニル基、プロピルオキシフェニル基、イソプロピルオキシフェニル基、ブトキシフェニル基、イソブトキシフェニル基、*s*-ブトキシフェニル基、*t*-ブトキシフェニル基、ペンチルオキシフェニル基、ヘキシルオキシフェニル基、シクロヘキシルオキシフェニル基、ヘプチルオキシフェニル基、オクチルオキシフェニル基、2-エチルヘキシルオキシフェニル基、ノニルオキシフェニル基、デシルオキシフェニル基、3, 7-ジメチルオクチルオキシフェニル基、ラウリルオキシフェニル基等が挙げられる。

[0135] 前記アリール基のうち、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルフェニル基としては、メチルフェニル基、エチルフェニル基、ジメチルフェニル基、プロピルフェニル基、メシチル基、メチルエチルフェニル基、イソプロピルフェニル基、ブチルフェニル基、イソブチルフェニル基、*t*-ブチルフェニル基、ペンチルフェニル基、イソアミルフェニル基、ヘキシルフェニル基、ヘプチルフェニル基、オクチルフェニル基、ノニルフェニル基、デシルフェニル基、ドデシルフェニル基等が挙げられる。

[0136] アリールオキシ基は、炭素原子数が通常6～60であり、7～48であることが好ましい。アリールオキシ基としては、フェノキシ基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェノキシ基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルフェノキシ基、1-ナフチルオキシ基、2-ナフチルオキシ基、ペンタフルオロフェニルオキシ基等が挙げられる。アリールオキシ基の中では、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェノキシ基及び $C_1 \sim C_{12}$ アルキルフェノキシ基が好ましい。

[0137] 前記アリールオキシ基のうち、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェノキシ基としては、メトキシフェノキシ基、エトキシフェノキシ基、プロピルオキシフェノキシ基、イソプロピルオキシフェノキシ基、ブトキシフェノキシ基、イソブトキシフェノキシ基、*s*-ブトキシフェノキシ基、*t*-ブトキシフェノキシ基、ペンチルオキシフェノキシ基、ヘキシルオキシフェノキシ基、シクロヘキシルオキシフェノキシ基、ヘプチルオキシフェノキシ基、オクチルオキシフェノキシ基、2-エチルヘキシルオキシフェノキシ基、ノニルオキシフェノ

キシ基、デシルオキシフェノキシ基、3, 7-ジメチルオクチルオキシフェノキシ基、ラウリルオキシフェノキシ基等が挙げられる。

[0138] 前記アリールオキシ基のうち、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルフェノキシ基としては、メチルフェノキシ基、エチルフェノキシ基、ジメチルフェノキシ基、プロピルフェノキシ基、1, 3, 5-トリメチルフェノキシ基、メチルエチルフェノキシ基、イソプロピルフェノキシ基、ブチルフェノキシ基、イソブチルフェノキシ基、s-ブチルフェノキシ基、t-ブチルフェノキシ基、ペンチルフェノキシ基、イソアミルフェノキシ基、ヘキシルフェノキシ基、ヘプチルフェノキシ基、オクチルフェノキシ基、ノニルフェノキシ基、デシルフェノキシ基、ドデシルフェノキシ基等が挙げられる。

[0139] アリールチオ基は、例えば、前述のアリール基に硫黄元素が結合した基である。アリールチオ基は、前記アリール基の芳香環上に置換基を有していてもよい。アリールチオ基は、炭素原子数が通常6～60であり、6～30であることが好ましい。アリールチオ基としては、フェニルチオ基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェニルチオ基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルフェニルチオ基、1-ナフチルチオ基、2-ナフチルチオ基、ペンタフルオロフェニルチオ基等が挙げられる。

[0140] アリールアルキル基は、例えば、前述のアリール基に前述のアルキル基が結合した基である。アリールアルキル基は、置換基を有していてもよい。アリールアルキル基は、炭素原子数が通常7～60であり、7～30であることが好ましい。アリールアルキル基としては、フェニル- $C_1 \sim C_{12}$ アルキル基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェニル- $C_1 \sim C_{12}$ アルキル基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルフェニル- $C_1 \sim C_{12}$ アルキル基、1-ナフチル- $C_1 \sim C_{12}$ アルキル基、2-ナフチル- $C_1 \sim C_{12}$ アルキル基等が挙げられる。

[0141] アリールアルコキシ基は、例えば、前述のアリール基に前述のアルコキシ基が結合した基である。アリールアルコキシ基は、置換基を有していてもよい。アリールアルコキシ基は、炭素原子数が通常7～60であり、7～30であることが好ましい。アリールアルコキシ基としては、フェニル- $C_1 \sim C$

$_{12}$ アルコキシ基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェニル- $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシ基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルフェニル- $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシ基、1-ナフチル- $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシ基、2-ナフチル- $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシ基等が挙げられる。

[0142] アリールアルキルチオ基は、例えば、前述のアリール基に前述のアルキルチオ基が結合した基である。アリールアルキルチオ基は、置換基を有していてもよい。アリールアルキルチオ基は、炭素原子数が通常7～60であり、7～30であることが好ましい。アリールアルキルチオ基としては、フェニル- $C_1 \sim C_{12}$ アルキルチオ基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェニル- $C_1 \sim C_{12}$ アルキルチオ基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルフェニル- $C_1 \sim C_{12}$ アルキルチオ基、1-ナフチル- $C_1 \sim C_{12}$ アルキルチオ基、2-ナフチル- $C_1 \sim C_{12}$ アルキルチオ基等が挙げられる。

[0143] アリールアルケニル基は、例えば、前述のアリール基にアルケニル基が結合した基である。アリールアルケニル基は、炭素原子数が通常8～60であり、8～30であることが好ましい。アリールアルケニル基としては、フェニル- $C_2 \sim C_{12}$ アルケニル基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェニル- $C_2 \sim C_{12}$ アルケニル基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルフェニル- $C_2 \sim C_{12}$ アルケニル基、1-ナフチル- $C_2 \sim C_{12}$ アルケニル基、2-ナフチル- $C_2 \sim C_{12}$ アルケニル基等が挙げられ、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェニル- $C_2 \sim C_{12}$ アルケニル基、 $C_2 \sim C_{12}$ アルキルフェニル- $C_2 \sim C_{12}$ アルケニル基が好ましい。なお、 $C_2 \sim C_{12}$ アルケニル基としては、例えば、ビニル基、1-プロペニル基、2-プロペニル基、1-ブテニル基、2-ブテニル基、1-ペンテニル基、2-ペンテニル基、1-ヘキセニル基、2-ヘキセニル基、1-オクテニル基が挙げられる。

[0144] アリールアルキニル基は、例えば、前述のアリール基にアルキニル基が結合した基である。アリールアルキニル基は、炭素原子数が通常8～60であり、8～30であることが好ましい。アリールアルキニル基としては、フェニル- $C_2 \sim C_{12}$ アルキニル基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェニル- $C_2 \sim C_{12}$

アルキニル基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルフェニル- $C_2 \sim C_{12}$ アルキニル基、1-ナフチル- $C_2 \sim C_{12}$ アルキニル基、2-ナフチル- $C_2 \sim C_{12}$ アルキニル基等が挙げられ、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェニル- $C_2 \sim C_{12}$ アルキニル基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルフェニル- $C_2 \sim C_{12}$ アルキニル基が好ましい。なお、 $C_2 \sim C_{12}$ アルキニル基としては、例えば、エチニル基、1-プロピニル基、2-プロピニル基、1-ブチニル基、2-ブチニル基、1-ペンチニル基、2-ペンチニル基、1-ヘキシニル基、2-ヘキシニル基、1-オクチニル基が挙げられる。

[0145] 置換アミノ基としては、アミノ基の中の少なくとも1個の水素原子が、アルキル基、アリール基、アリールアルキル基及び1価の複素環基からなる群から選択される1又は2個の基によって置換されたアミノ基が好ましい。該アルキル基、アリール基、アリールアルキル基又は1価の複素環基は置換基を有していてもよい。置換アミノ基の炭素原子数は、該アルキル基、アリール基、アリールアルキル基又は1価の複素環基が有していてもよい置換基の炭素原子数を含めないで通常1～60であり、2～48が好ましい。置換アミノ基としては、メチルアミノ基、ジメチルアミノ基、エチルアミノ基、ジエチルアミノ基、プロピルアミノ基、ジプロピルアミノ基、イソプロピルアミノ基、ジイソプロピルアミノ基、ブチルアミノ基、イソブチルアミノ基、s-ブチルアミノ基、t-ブチルアミノ基、ペンチルアミノ基、ヘキシルアミノ基、シクロヘキシルアミノ基、ヘプチルアミノ基、オクチルアミノ基、2-エチルヘキシルアミノ基、ノニルアミノ基、デシルアミノ基、3, 7-ジメチルオクチルアミノ基、ラウリルアミノ基、シクロペンチルアミノ基、ジシクロペンチルアミノ基、シクロヘキシルアミノ基、ジシクロヘキシルアミノ基、ジトリフルオロメチルアミノ基、フェニルアミノ基、ジフェニルアミノ基、($C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェニル)アミノ基、ジ($C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェニル)アミノ基、ジ($C_1 \sim C_{12}$ アルキルフェニル)アミノ基、1-ナフチルアミノ基、2-ナフチルアミノ基、ペンタフルオロフェニルアミノ基、ピリジルアミノ基、ピリダジニルアミノ基、ピリミジルアミノ基、ピラ

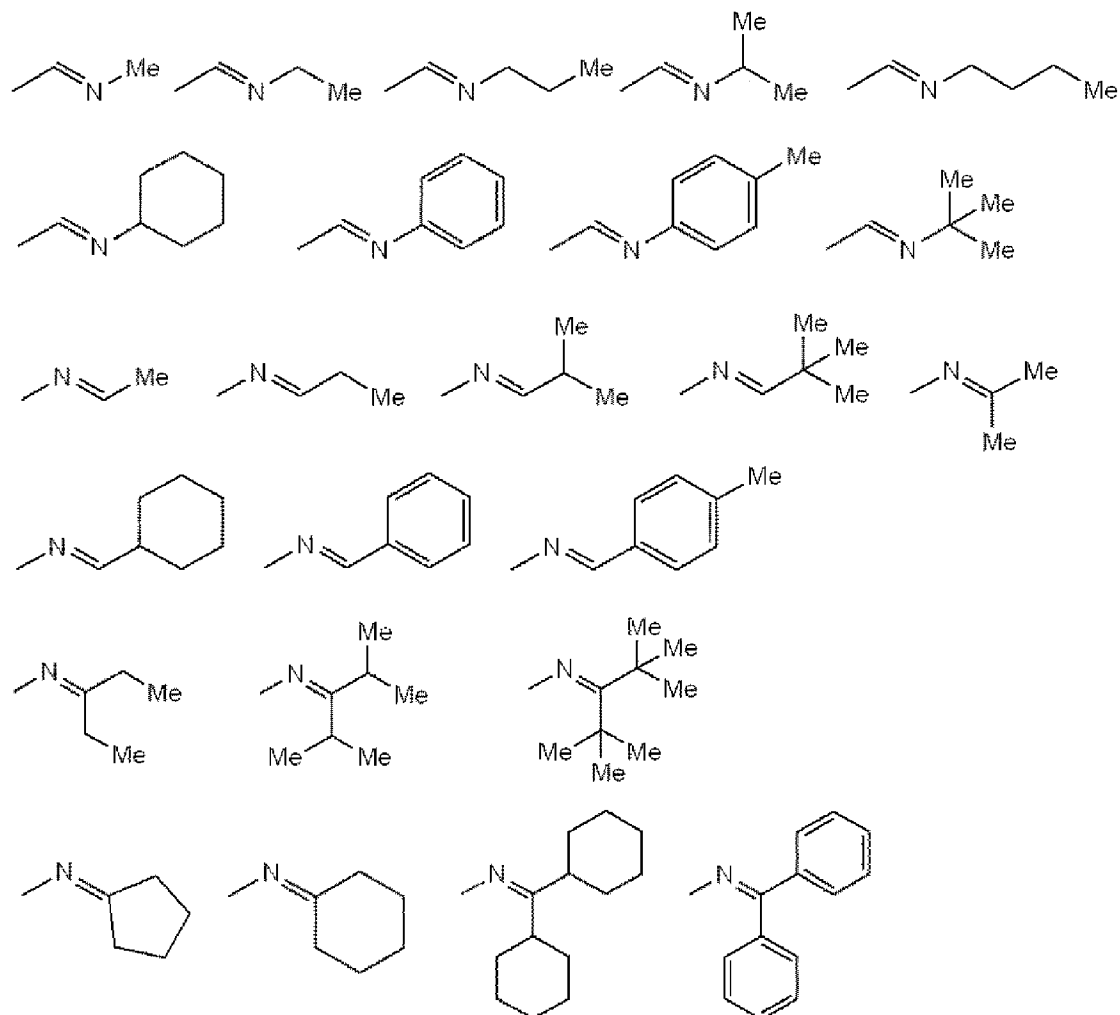
ジニルアミノ基、トリアジニルアミノ基、（フェニル-C₁～C₁₂アルキル）アミノ基、（C₁～C₁₂アルコキシフェニル-C₁～C₁₂アルキル）アミノ基、（C₁～C₁₂アルキルフェニル-C₁～C₁₂アルキル）アミノ基、ジ（C₁～C₁₂アルコキシフェニル-C₁～C₁₂アルキル）アミノ基、ジ（C₁～C₁₂アルキルフェニル-C₁～C₁₂アルキル）アミノ基、1-ナフチル-C₁～C₁₂アルキルアミノ基、2-ナフチル-C₁～C₁₂アルキルアミノ基等が挙げられる。

[0146] 置換シリル基としては、シリル基の中の少なくとも1個の水素原子が、アルキル基、アリール基、アリールアルキル基及び1価の複素環基からなる群から選択される1～3個の基によって置換されたシリル基が挙げられる。該アルキル基、アリール基、アリールアルキル基又は1価の複素環基は置換基を有していてもよい。置換シリル基の炭素原子数は、該アルキル基、アリール基、アリールアルキル基又は1価の複素環基が有していてもよい置換基の炭素原子数を含めないで通常1～60であり、3～48が好ましい。なお、置換シリル基としては、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、トリイソプロピルシリル基、イソプロピルジメチルシリル基、イソプロピルジエチルシリル基、*t*-ブチルジメチルシリル基、ペンチルジメチルシリル基、ヘキシルジメチルシリル基、ヘプチルジメチルシリル基、オクチルジメチルシリル基、2-エチルヘキシルジメチルシリル基、ノニルジメチルシリル基、デシルジメチルシリル基、3,7-ジメチルオクチルジメチルシリル基、ラウリルジメチルシリル基、（フェニル-C₁～C₁₂アルキル）シリル基、（C₁～C₁₂アルコキシフェニル-C₁～C₁₂アルキル）シリル基、（C₁～C₁₂アルキルフェニル-C₁～C₁₂アルキル）シリル基、（1-ナフチル-C₁～C₁₂アルキル）シリル基、（2-ナフチル-C₁～C₁₂アルキル）シリル基、（フェニル-C₁～C₁₂アルキル）ジメチルシリル基、トリフェニルシリル基、トリ（*p*-キシリル）シリル基、トリベンジルシリル基、ジフェニルメチルシリル基、*t*-ブチルジフェニルシリル基、ジメチルフェニルシリル基等が挙げられる。

- [0147] ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子及びヨウ素原子が挙げられる。
- [0148] アシル基は、炭素原子数が通常2～20であり、2～18であることが好ましい。アシル基としては、アセチル基、プロピオニル基、ブチリル基、イソブチリル基、ピバロイル基、ベンゾイル基、トリフルオロアセチル基、ペントフルオロベンゾイル基等が挙げられる。
- [0149] アシルオキシ基は、炭素原子数が通常2～20であり、2～18であることが好ましい。アシルオキシ基としては、アセトキシ基、プロピオニルオキシ基、ブチリルオキシ基、イソブチリルオキシ基、ピバロイルオキシ基、ベンゾイルオキシ基、トリフルオロアセチルオキシ基、ペントフルオロベンゾイルオキシ基等が挙げられる。
- [0150] イミン残基は、式： $\text{H}-\text{N}=\text{C}<$ 及び式： $-\text{N}=\text{CH}-$ の少なくとも一方で表される構造を有するイミン化合物から、この構造中の水素原子1個を除いた残基を意味する。このようなイミン化合物としては、例えば、アルジミン、ケチミン及びアルジミン中の窒素原子に結合した水素原子がアルキル基、アリール基、アリールアルキル基、アリールアルケニル基、アリールアルキニル基等で置換された化合物が挙げられる。イミン残基の炭素原子数は、通常2～20であり、2～18が好ましい。イミン残基としては、例えば、一般式： $-\text{C}^{\beta}\text{R}^{\beta}=\text{N}-\text{R}^{\gamma}$ 又は一般式： $-\text{N}=\text{C}(\text{R}^{\gamma})_2$ （式中、 R^{β} は水素原子、アルキル基、アリール基、アリールアルキル基、アリールアルケニル基、又はアリールアルキニル基を表し、 R^{γ} は独立に、アルキル基、アリール基、アリールアルキル基、アリールアルケニル基、又はアリールアルキニル基を表し、ただし、 R^{γ} が2個存在する場合、2個の R^{γ} は相互に結合し一体となって2価の基、例えば、エチレン基、トリメチレン基、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基の炭素原子数2～18のアルキレン基として環を形成してもよい。）で表される基が挙げられる。イミン残基としては、以下の基が挙げられる。

[0151]

[化8]



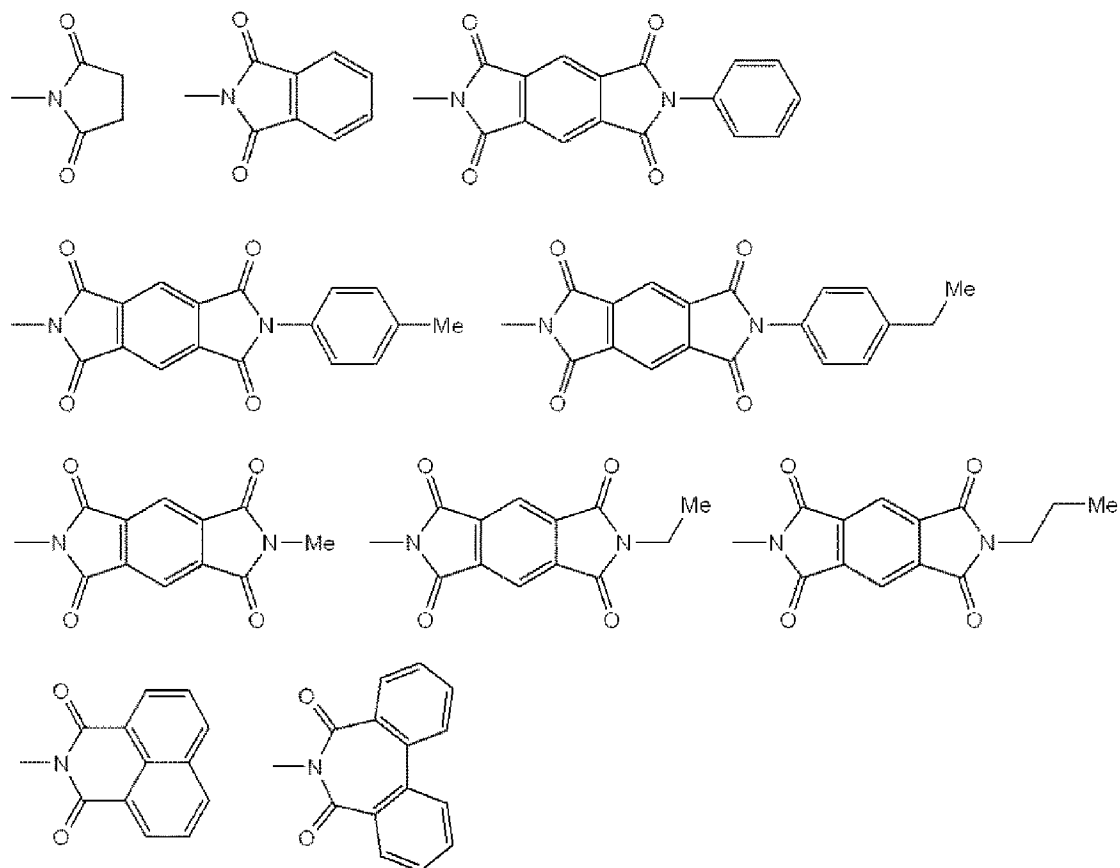
式中、Meはメチル基を示し、以下、同様である。

[0152] アミド基は、炭素原子数が通常1～20であり、2～18であることが好ましい。アミド基としては、ホルムアミド基、アセトアミド基、プロピオアミド基、ブチロアミド基、ベンズアミド基、トリフルオロアセトアミド基、ペンタフルオロベンズアミド基、ジホルムアミド基、ジアセトアミド基、ジプロピオアミド基、ジブチロアミド基、ジベンズアミド基、ジトリフルオロアセトアミド基、ジペンタフルオロベンズアミド基等が挙げられる。

[0153] 酸イミド基は、酸イミドからその窒素原子に結合した水素原子を除いて得られる残基であり、炭素原子数が通常4～20であり、4～18であることが好ましい。酸イミド基としては、以下の基が挙げられる。

[0154]

[化9]



[0155] 1価の複素環基とは、複素環式化合物から水素原子1個を除いた残りの原子団をいう。ここで、複素環式化合物とは、環式構造をもつ有機化合物のうち、環を構成する元素として、炭素原子だけでなく、酸素原子、硫黄原子、窒素原子、リン原子、ホウ素原子、ケイ素原子、セレン原子、テルル原子、ヒ素原子等のヘテロ原子を含む有機化合物をいう。1価の複素環基は置換基を有していてもよい。1価の複素環基は、炭素原子数が通常3～60であり、3～20が好ましい。なお、1価の複素環基の炭素原子数には、置換基の炭素原子数は含まないものとする。このような1価の複素環基としては、例えば、チエニル基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルチエニル基、ピロリル基、フリル基、ピリジル基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルピリジル基、ピリダジニル基、ピリミジル基、ピラジニル基、トリアジニル基、ピロリジル基、ピペリジル基、キノリル基、イソキノリル基が挙げられ、中でも、チエニル基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルチエニル基、ピリジル基及び $C_1 \sim C_{12}$ アルキルピリジル基が好ましい。なお、

1 価の複素環基としては、1 価の芳香族複素環基が好ましい。

[0156] 置換カルボキシル基とは、カルボキシル基中の水素原子が、アルキル基、アリール基、アリールアルキル基又は 1 価の複素環基で置換された基、すなわち、式： $-C(=O)OR^*$ （式中、 R^* はアルキル基、アリール基、アリールアルキル基又は 1 価の複素環基）で表される基である。置換カルボキシル基は、炭素原子数が通常 2～60 であり、2～48 であることが好ましい。前記アルキル基、アリール基、アリールアルキル基又は 1 価の複素環基は、置換基を有していてもよい。なお、上記炭素原子数には、前記アルキル基、アリール基、アリールアルキル基又は 1 価の複素環基が有していてもよい置換基の炭素原子数は含まないものとする。置換カルボキシル基としては、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、プロポキシカルボニル基、イソプロポキシカルボニル基、ブトキシカルボニル基、イソブトキシカルボニル基、s-ブトキシカルボニル基、t-ブトキシカルボニル基、ペンチルオキシカルボニル基、ヘキシロキシカルボニル基、シクロヘキシロキシカルボニル基、ヘプチルオキシカルボニル基、オクチルオキシカルボニル基、2-エチルヘキシロキシカルボニル基、ノニルオキシカルボニル基、デシロキシカルボニル基、3,7-ジメチルオクチルオキシカルボニル基、ドデシルオキシカルボニル基、トリフルオロメトキシカルボニル基、ペンタフルオロエトキシカルボニル基、パーフルオロブトキシカルボニル基、パーフルオロヘキシルオキシカルボニル基、パーフルオロオクチルオキシカルボニル基、フェノキシカルボニル基、ナフトキシカルボニル基、ピリジルオキシカルボニル基等が挙げられる。

[0157] 式(1)中、 Y^1 は、 $-CO_2^-$ 、 $-SO_3^-$ 、 $-SO_2^-$ 、 $-PO_3^-$ 、又は $-B(R^a)_3^-$ 等の 1 価の基を表す。 Y^1 としては、イオン性ポリマーの酸性度の観点からは $-CO_2^-$ 、 $-SO_2^-$ 、 $-PO_3^-$ が好ましく、 $-CO_2^-$ がより好ましく、イオン性ポリマーの安定性の観点からは、 $-CO_2^-$ 、 $-SO_3^-$ 、 $-SO_2^-$ 又は $-PO_3^-$ が好ましい。

[0158] 式(1)中、 M^1 は金属カチオン又は置換基を有し若しくは有さないアンモ

ニウムカチオンを表す。金属カチオンとしては、1価、2価又は3価のイオンが好ましく、例えば、Li、Na、K、Cs、Be、Mg、Ca、Ba、Ag、Al、Bi、Cu、Fe、Ga、Mn、Pb、Sn、Ti、V、W、Y、Yb、Zn、Zr等のイオンが挙げられる。この中でも Li^+ 、 Na^+ 、 K^+ 、 Cs^+ 、 Ag^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} がより好ましい。また、アンモニウムイオンが有していてもよい置換基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*i*-ブチル基、*t*-ブチル基等の炭素原子数1～10のアルキル基が挙げられる。

[0159] 式(1)中、 Z^1 は F^- 、 Cl^- 、 Br^- 、 I^- 、 OH^- 、 R^aSO_3^- 、 R^aCOO^- 、 ClO^- 、 ClO_2^- 、 ClO_3^- 、 ClO_4^- 、 SCN^- 、 CN^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 HSO_4^- 、 PO_4^{3-} 、 HPO_4^{2-} 、 H_2PO_4^- 、 BF_4^- 又は PF_6^- を表す。

[0160] 式(1)中、 n_1 は0以上の整数を表し、原料モノマーの合成の観点から、好ましくは0から8の整数であり、より好ましくは0から2の整数である。

[0161] 式(1)中、 a_1 は1以上の整数を表し、 b_1 は0以上の整数を表す。

[0162] a_1 及び b_1 は、式(1)で表される基の電荷が0となるように選択される。例えば、 Y^1 が $-\text{CO}_2^-$ 、 $-\text{SO}_3^-$ 、 $-\text{SO}_2^-$ 、 $-\text{PO}_3^-$ 、又は $-\text{B}(\text{R}^a)_3^-$ であり、 M^1 が1価の金属カチオン又は置換基を有し若しくは有さないアンモニウムカチオンであり、 Z^1 が F^- 、 Cl^- 、 Br^- 、 I^- 、 OH^- 、 R^aSO_3^- 、 R^aCOO^- 、 ClO^- 、 ClO_2^- 、 ClO_3^- 、 ClO_4^- 、 SCN^- 、 CN^- 、 NO_3^- 、 HSO_4^- 、 H_2PO_4^- 、 BF_4^- 又は PF_6^- である場合は、 $a_1 = b_1 + 1$ を満たすように選択される。 Y^1 が $-\text{CO}_2^-$ 、 $-\text{SO}_3^-$ 、 $-\text{SO}_2^-$ 、 $-\text{PO}_3^-$ 、又は $-\text{B}(\text{R}^a)_3^-$ であり、 M^1 が2価の金属カチオンであり、 Z^1 が F^- 、 Cl^- 、 Br^- 、 I^- 、 OH^- 、 R^aSO_3^- 、 R^aCOO^- 、 ClO^- 、 ClO_2^- 、 ClO_3^- 、 ClO_4^- 、 SCN^- 、 CN^- 、 NO_3^- 、 HSO_4^- 、 H_2PO_4^- 、 BF_4^- 又は PF_6^- である場合は、 $b_1 = 2 \times a_1 - 1$ を満たすように選択される。 Y^1 が $-\text{CO}_2^-$ 、 $-\text{SO}_3^-$ 、 $-\text{SO}_2^-$ 、 $-\text{PO}_3^-$ 、

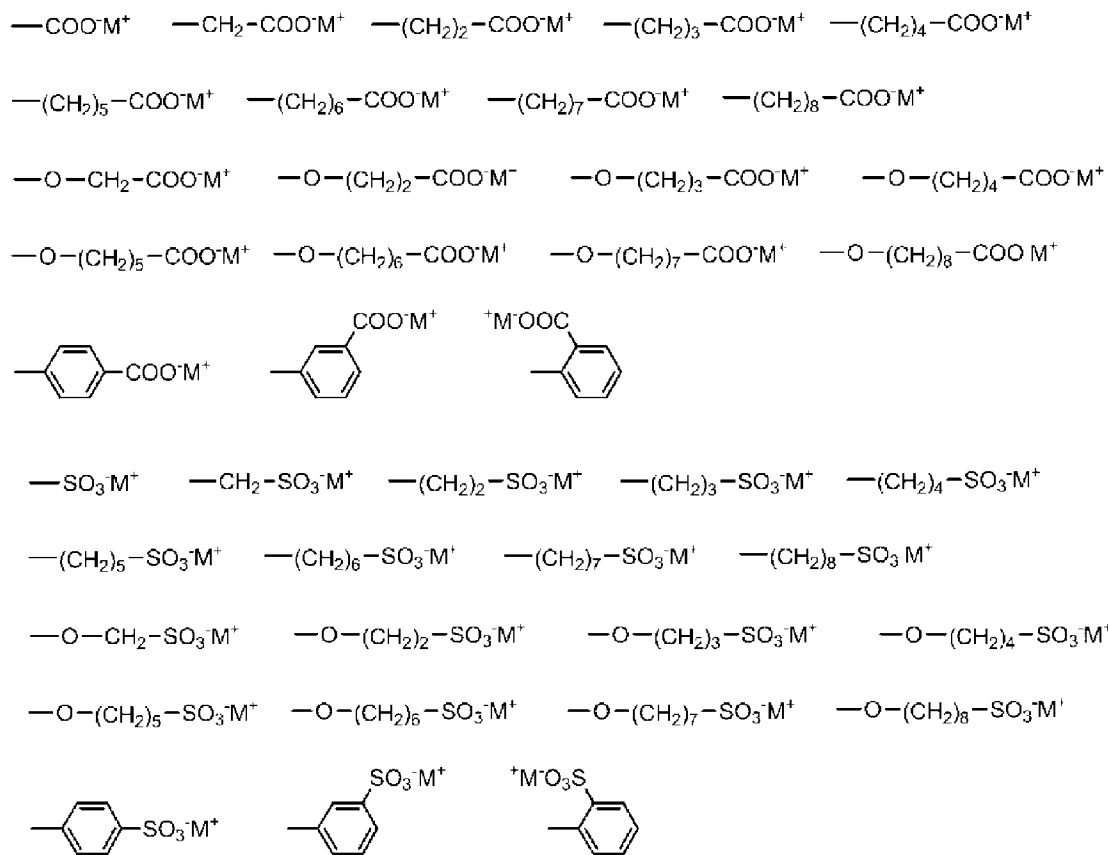
又は $-B(R^a)_3^-$ であり、 M^1 が 3 価の金属カチオンであり、 Z^1 が F^- 、 Cl^- 、 Br^- 、 I^- 、 OH^- 、 $R^aSO_3^-$ 、 R^aCOO^- 、 ClO^- 、 ClO_2^- 、 ClO_3^- 、 ClO_4^- 、 SCN^- 、 CN^- 、 NO_3^- 、 HSO_4^- 、 $H_2PO_4^-$ 、 BF_4^- 又は PF_6^- である場合は、 $b_1 = 3 \times a_1 - 1$ を満たすように選択される。 Y^1 が $-CO_2^-$ 、 $-SO_3^-$ 、 $-SO_2^-$ 、 $-PO_3^-$ 、又は $-B(R^a)_3^-$ であり、 M^1 が 1 価の金属カチオン又は置換基を有し若しくは有さないアンモニウムカチオンであり、 Z^1 が SO_4^{2-} 又は HPO_4^{2-} である場合には、 $a_1 = 2 \times b_1 + 1$ を満たすように選択される。 a_1 と b_1 との関係を表す上記のいずれの数式においても、 a_1 は好ましくは 1 から 5 の整数であり、より好ましくは 1 又は 2 である。

[0163] R^a は置換基を有し若しくは有さない炭素原子数 1 ～ 30 のアルキル基又は置換基を有し若しくは有さない炭素原子数 6 ～ 50 のアリール基を表す。これらの基が有していてもよい置換基としては、前述の Q^1 に関する説明中で例示した置換基と同様の置換基が挙げられる。置換基が複数個存在する場合には、それらは同一でも異なってもよい。 R^a としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基等の炭素原子数 1 ～ 20 のアルキル基、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基等の炭素原子数 6 ～ 30 のアリール基等が挙げられる。

[0164] 前記式 (1) で表される基としては、例えば、以下の基が挙げられる。

[0165]

[化10]



M = Li, Na, K, Cs, N(CH₃)₄

[0166] (式(2)で表される基)

式(2)中、Q²で表される2価の有機基としては、前述のQ¹で表される2価の有機基について例示したものと同様の基が挙げられ、原料モノマーの合成の容易さの観点からは、2価の飽和炭化水素基、アリーレン基、アルキレンオキシ基が好ましい。

[0167] 前記Q²で表される2価の有機基の例として挙げた基は置換基を有していてもよく、当該置換基としては、前述のQ¹に関する説明中で例示した置換基と同様の置換基が挙げられる。置換基が複数個存在する場合には、それらは同一でも異なってもよい。

[0168] 式(2)中、Y²はカルボカチオン、アンモニウムカチオン、ホスホニルカチオン、スルホニルカチオン、又はヨードニウムカチオンを表す。

[0169] カルボカチオンとしては、例えば、-C⁺R₂ (式中、Rは、同一又は相異

なり、アルキル基又はアリール基を表す。)で表される基が挙げられる。

アンモニウムカチオンとしては、例えば、 $-N^+R_3$ (式中、Rは、同一又は相異なり、水素原子、アルキル基又はアリール基を表す。)で表される基が挙げられる。

ホスホニルカチオンとしては、例えば、 $-P^+R_3$ (式中、Rは、同一又は相異なり、水素原子、アルキル基又はアリール基を表す。)で表される基が挙げられる。

スルホニルカチオンとしては、例えば、 $-S^+R_2$ (式中、Rは、同一又は相異なり、水素原子、アルキル基又はアリール基を表す。)で表される基が挙げられる。

ヨードニウムカチオンとしては、例えば、 $-I^+R_2$ (式中、Rは、同一又は相異なり、水素原子、アルキル基又はアリール基を表す。)で表される基が挙げられる。

[0170] 式(2)中、 Y^2 は、原料モノマーの合成の容易さ並びに原料モノマー及びイオン性ポリマーの空気、湿気又は熱に対する安定性の観点からは、カルボカチオン、アンモニウムカチオン、ホスホニルカチオン、スルホニルカチオンが好ましく、アンモニウムカチオンがより好ましい。

[0171] 式(2)中、 Z^2 は金属カチオン又は置換基を有し若しくは有さないアンモニウムカチオンを表す。金属カチオンとしては、1価、2価又は3価のイオンが好ましく、Li、Na、K、Cs、Be、Mg、Ca、Ba、Ag、Al、Bi、Cu、Fe、Ga、Mn、Pb、Sn、Ti、V、W、Y、Yb、Zn、Zr等のイオンが挙げられる。また、アンモニウムカチオンが有していてもよい置換基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基等の炭素原子数1~10のアルキル基が挙げられる。

[0172] 式(2)中、 M^2 は F^- 、 Cl^- 、 Br^- 、 I^- 、 OH^- 、 $R^bSO_3^-$ 、 R^bCOO^- 、 ClO^- 、 ClO_2^- 、 ClO_3^- 、 ClO_4^- 、 SCN^- 、 CN^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 HSO_4^- 、 PO_4^{3-} 、 HPO_4^{2-} 、 $H_2PO_4^-$ 、 BF_4^- 、 PF_6^-

又は BPh_4^- を表す。

[0173] 式(2)中、 n_2 は0以上の整数を表し、好ましくは0から6の整数であり、より好ましくは0から2の整数である。

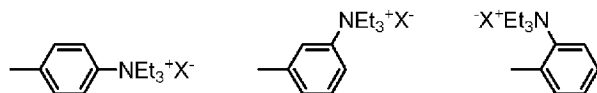
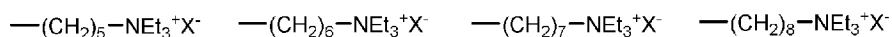
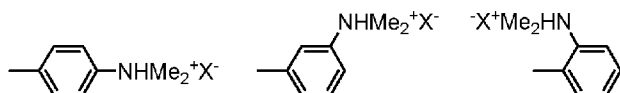
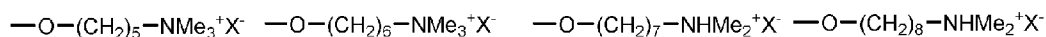
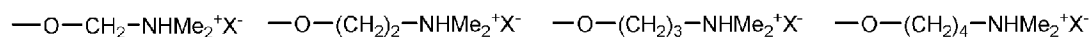
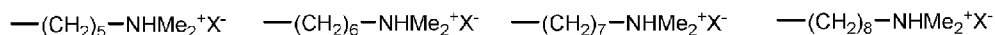
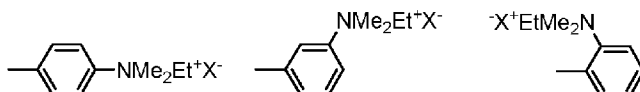
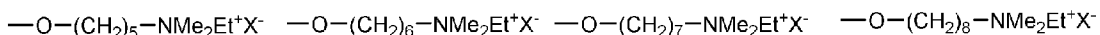
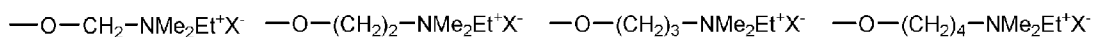
[0174] 式(2)中、 a_2 は1以上の整数を表し、 b_2 は、0以上の整数を表す。

[0175] a_2 及び b_2 は、式(2)で表される基の電荷が0となるように選択される。例えば、 M^2 が F^- 、 Cl^- 、 Br^- 、 I^- 、 OH^- 、 R^bSO_3^- 、 R^bCOO^- 、 ClO^- 、 ClO_2^- 、 ClO_3^- 、 ClO_4^- 、 SCN^- 、 CN^- 、 NO_3^- 、 HSO_4^- 、 H_2PO_4^- 、 BF_4^- 又は PF_6^- である場合、 Z^2 が1価の金属イオン又は置換基を有し若しくは有さないアンモニウムイオンであれば、 $a_2 = b_2 + 1$ を満たすように選択され、 Z^2 が2価の金属イオンであれば、 $a_2 = 2 \times b_2 + 1$ を満たすように選択され、 Z^2 が3価の金属イオンであれば、 $a_2 = 3 \times b_2 + 1$ を満たすように選択される。 M^2 が SO_4^{2-} 、 HPO_4^{2-} である場合、 Z^2 が1価の金属イオン又は置換基を有し若しくは有さないアンモニウムイオンであれば、 $b_2 = 2 \times a_2 - 1$ を満たすように選択され、 Z^2 が3価の金属イオンであれば、 $2 \times a_2 = 3 \times b_2 + 1$ の関係を満たすように選択される。 a_2 と b_2 との関係を表す上記のいずれの数式においても、 a_2 は好ましくは1から3の整数であり、より好ましくは1又は2である。

[0176] R^b は置換基を有し若しくは有さない炭素原子数1～30のアルキル基又は置換基を有し若しくは有さない炭素原子数6～50のアリール基を表すが、これらの基が有していてもよい置換基としては、前述の Q^1 に関する説明中で例示した置換基と同様の置換基が挙げられる。置換基が複数個存在する場合には、それらは同一でも異なってもよい。 R^b としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基等の炭素原子数1～20のアルキル基、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基等の炭素原子数6～30のアリール基等が挙げられる。

[0177] 前記式(2)で表される基としては、例えば、以下の基が挙げられる。

[0178] [化11]



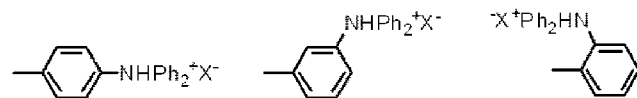
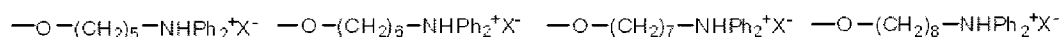
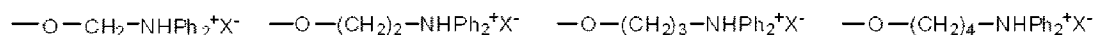
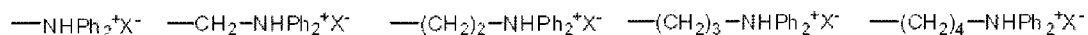
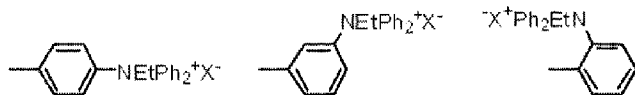
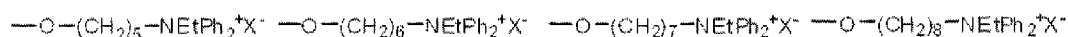
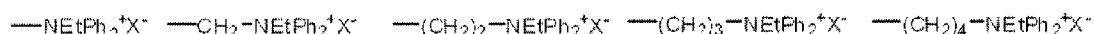
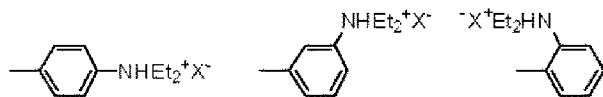
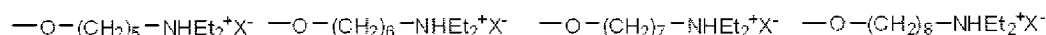
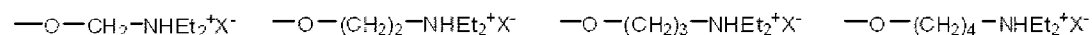
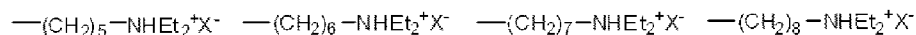
Me = CH₃

Et = CH₂CH₃

X = F, Cl, Br, I, BPh₄, CH₃COO, CF₃SO₃,

[0179]

[化12]

Et = CH₂CH₃Ph = C₆H₅X = F, Cl, Br, I, BPh₄, CH₃COO, CF₃SO₃,

[0180] (式(3)で表される基)

式(3)中、Q³で表される2価の有機基としては、前述のQ¹で表される2価の有機基について例示したものと同様の基が挙げられ、原料モノマーの合成の容易さの観点からは、2価の飽和炭化水素基、アリーレン基、アルキ

レンオキシ基が好ましい。

[0181] 前記 Q^3 で表される2価の有機基の例として挙げた基は置換基を有していてもよく、当該置換基としては、前述の Q^1 に関する説明中で例示した置換基と同様の置換基が挙げられる。置換基が複数個存在する場合には、それらは同一でも異なってもよい。

[0182] 前記 Q^3 で表される2価の有機基としては、 $-(CH_2)-$ で表される基であることが好ましい。

[0183] n_3 は0以上の整数を表し、好ましくは0から20の整数であり、より好ましくは0から8の整数である。

[0184] 式(3)中、 Y^3 は $-CN$ 又は式(4)～(12)のいずれかで表される基を表す。

[0185] 式(4)～(12)中、 R' で表される2価の炭化水素基としては、メチレン基、エチレン基、1,2-プロピレン基、1,3-プロピレン基、1,2-ブチレン基、1,3-ブチレン基、1,4-ブチレン基、1,5-ペンチレン基、1,6-ヘキシレン基、1,9-ノニレン基、1,12-ドデシレン基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～50の2価の飽和炭化水素基；エテニレン基、プロペニレン基、3-ブテニレン基、2-ブテニレン基、2-ペンテニレン基、2-ヘキセニレン基、2-ノネニレン基、2-ドデセニレン基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数2～50のアルケニレン基、及び、エチニレン基を含む、置換基を有し又は有さない炭素原子数2～50の2価の不飽和炭化水素基；シクロプロピレン基、シクロブチレン基、シクロペンチレン基、シクロヘキシレン基、シクロノニレン基、シクロドデシレン基、ノルボニレン基、アダマンチレン基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数3～50の2価の環状飽和炭化水素基；1,3-フェニレン基、1,4-フェニレン基、1,4-ナフチレン基、1,5-ナフチレン基、2,6

ーナフチレン基、ビフェニル-4, 4'-ジイル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数6～50のアリーレン基；メチレンオキシ基、エチレンオキシ基、プロピレンオキシ基、ブチレンオキシ基、ペンチレンオキシ基、ヘキシルオキシ基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～50のアルキレンオキシ基等が挙げられる。

[0186] 前記置換基としては、前述のQ¹に関する説明中で例示した置換基と同様の置換基が挙げられる。置換基が複数個存在する場合には、それらは同一でも異なってもよい。

[0187] 式(4)～(12)中、R¹で表される1価の炭化水素基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～20のアルキル基；フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数6～30のアリール基等が挙げられる。イオン性ポリマーの溶解性の観点からは、メチル基、エチル基、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基が好ましい。前記置換基としては、前述のQ¹に関する説明中で例示した置換基と同様の置換基が挙げられる。置換基が複数個存在する場合には、それらは同一でも異なってもよい。

[0188] 式(5)中、R²で表される3価の炭化水素基としては、メタントリイル基、エタントリイル基、1, 2, 3-プロパントリイル基、1, 2, 4-ブタントリイル基、1, 2, 5-ペンタントリイル基、1, 3, 5-ペンタントリイル基、1, 2, 6-ヘキサントリイル基、1, 3, 6-ヘキサン

トリイル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～20のアルキルトリイル基；1，2，3-ベンゼントリイル基、1，2，4-ベンゼントリイル基、1，3，5-ベンゼントリイル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数6～30のアリール基等が挙げられる。イオン性ポリマーの溶解性の観点からは、メタントリイル基、エタントリイル基、1，2，4-ベンゼントリイル基、1，3，5-ベンゼントリイル基が好ましい。前記置換基としては、前述のQ¹に関する説明中で例示した置換基と同様の置換基が挙げられる。置換基が複数個存在する場合には、それらは同一でも異なってもよい。

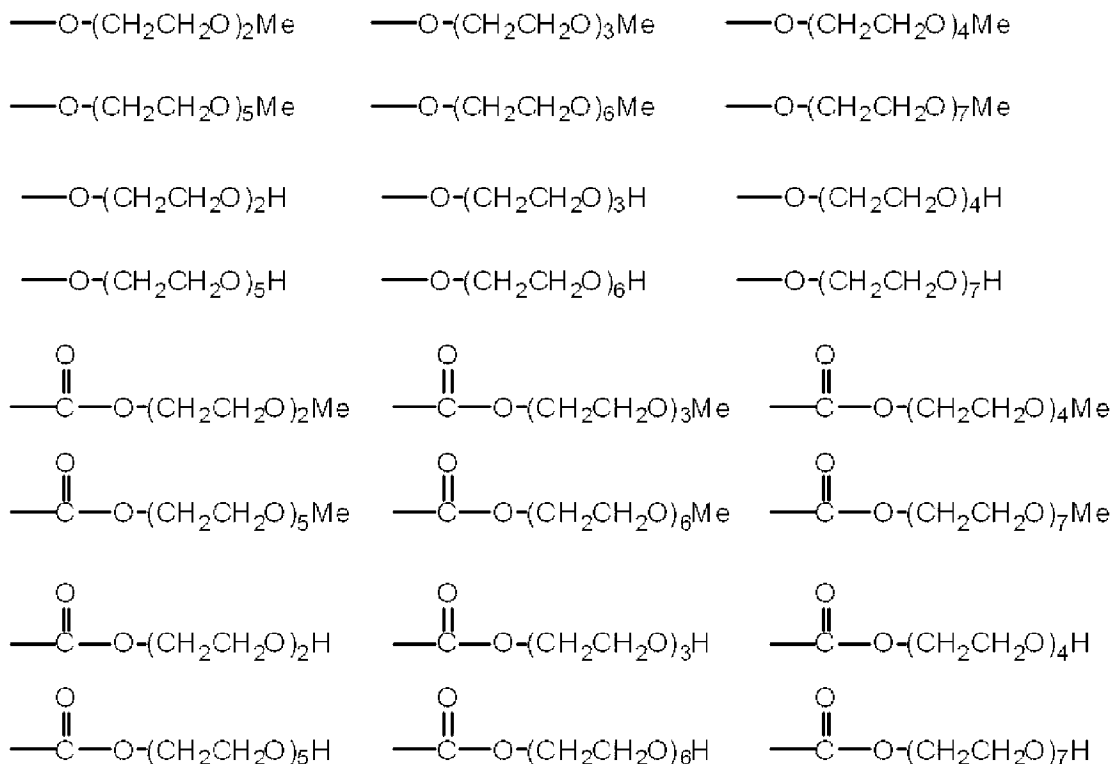
[0189] 式(4)～(12)中、R^oとしては、イオン性ポリマーの溶解性の観点からは、メチル基、エチル基、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基が好ましい。

[0190] 式(4)及び式(5)中、a₃は1以上の整数を表し、3～10の整数が好ましい。式(6)～(12)中、a₄は0以上の整数を表す。式(6)においては、a₄は、0～30の整数が好ましく、3～20の整数がより好ましい。式(7)～(10)においては、a₄は、0～10の整数が好ましく、0～5の整数がより好ましい。式(11)においては、a₄は、0～20の整数が好ましく、3～20の整数がより好ましい。式(12)においては、a₄は、0～20の整数が好ましく、0～10の整数がより好ましい。

[0191] Y³としては、原料モノマーの合成の容易さの観点からは、-CN、式(4)で表される基、式(6)で表される基、式(10)で表される基、式(11)で表される基が好ましく、式(4)で表される基、式(6)で表される基、式(11)で表される基がより好ましく、以下の基が特に好ましい。

[0192]

[化13]



[0193] (イオン性ポリマー中の構造単位)

本発明に用いられるイオン性ポリマーは、前記式(13)で表される構造単位、前記式(15)で表される構造単位、前記式(17)で表される構造単位、前記式(20)で表される構造単位を有することが好ましく、前記構造単位を全構造単位中、15～100モル%有するイオン性ポリマーであることがより好ましい。

[0194] (式(13)で表される構造単位)

式(13)中、 R^1 は式(14)で表される基を含む1価の基であり、 Ar^1 は R^1 以外の置換基を有し又は有さない(2+n4)価の芳香族基を表し、n4は1以上の整数を表す。

[0195] 式(14)で表される基は、 Ar^1 に直接結合していてもよく、メチレン基、エチレン基、プロピレン基、ブチレン基、ペンチレン基、ヘキシレン基、ノニレン基、ドデシレン基、シクロプロピレン基、シクロブチレン基、シクロペンチレン基、シクロヘキシレン基、シクロノニレン基、シクロドデシレ

ン基、ノルボニレン基、アダマンチレン基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～50のアルキレン基；オキシメチレン基、オキシエチレン基、オキシプロピレン基、オキシブチレン基、オキシペンチレン基、オキシヘキシレン基、オキシノニレン基、オキシドデシレン基、シクロプロピレンオキシ基、シクロブチレンオキシ基、シクロペンチレンオキシ基、シクロヘキシレンオキシ基、シクロノニレンオキシ基、シクロドデシレンオキシ基、ノルボニレンオキシ基、アダマンチレンオキシ基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～50のオキシアルキレン基；置換基を有し又は有さないイミノ基；置換基を有し又は有さないシリレン基；置換基を有し又は有さないエテニレン基；エチニレン基；置換基を有し又は有さないメタントリイル基；酸素原子、窒素原子、硫黄原子等のヘテロ原子を介してA^{r1}に結合していてもよい。

[0196] 前記A^{r1}はR¹以外の置換基を有していてもよい。当該置換基としては、前述のQ¹に関する説明中で例示した置換基と同様の置換基が挙げられる。前記置換基が複数個存在する場合には、それらは同一でも異なってもよい。

[0197] 前記A^{r1}が有するR¹以外の置換基としては、原料モノマーの合成の容易さの観点から、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、カルボキシル基又は置換カルボキシル基であることが好ましい。

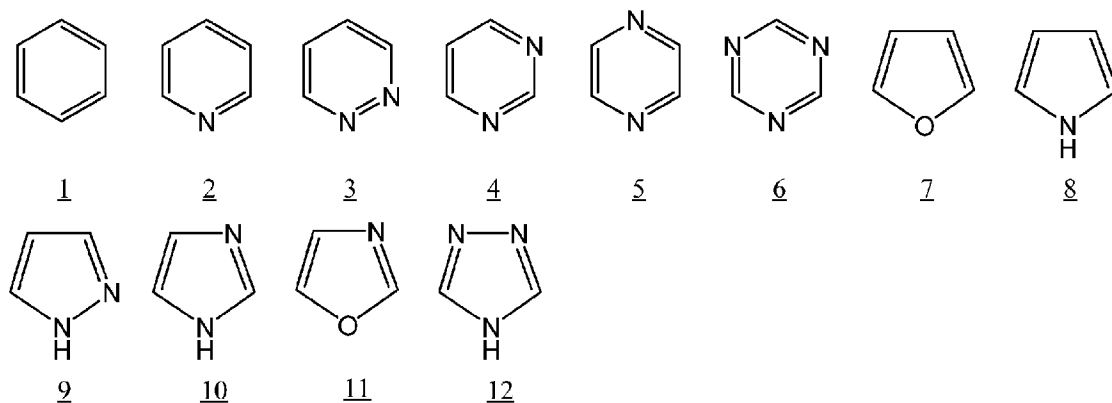
[0198] 式(13)中、n₄は1以上の整数を表し、好ましくは1から4の整数であり、より好ましくは1から3の整数である。

[0199] 式(13)中のA^{r1}で表される(2+n₄)価の芳香族基としては、(2+n₄)価の芳香族炭化水素基、(2+n₄)価の芳香族複素環基が挙げられ、炭素原子のみ、又は、炭素原子と、水素原子、窒素原子及び酸素原子からなる群から選ばれる1つ以上の原子とからなる(2+n₄)価の芳香族基が好ましい。該(2+n₄)価の芳香族基としては、ベンゼン環、ピリジン環、1,2-ジアジン環、1,3-ジアジン環、1,4-ジアジン環、1,

3, 5-トリアジン環、フラン環、ピロール環、ピラゾール環、イミダゾール環、オキサゾール環、アザジアゾール環等の単環式芳香環から水素原子を $(2 + n \cdot 4)$ 個除いた $(2 + n \cdot 4)$ 価の基；該単環式芳香環からなる群から選ばれる二つ以上の環が縮合した縮合多環式芳香環から水素原子を $(2 + n \cdot 4)$ 個除いた $(2 + n \cdot 4)$ 価の基；該単環式芳香環及び該縮合多環式芳香環からなる群より選ばれる二つ以上の芳香環を、単結合、エチレン基又はエチニレン基で連結してなる芳香環集合から水素原子を $(2 + n \cdot 4)$ 個除いた $(2 + n \cdot 4)$ 価の基；該縮合多環式芳香環又は該芳香環集合の隣り合う2つの芳香環をメチレン基、エチレン基、カルボニル基等の2価の基で橋かけした架橋を有する有橋多環式芳香環から水素原子を $(2 + n \cdot 4)$ 個除いた $(2 + n \cdot 4)$ 価の基等が挙げられる。

[0200] 単環式芳香環としては、例えば、以下の構造1～12で表される環が挙げられる。

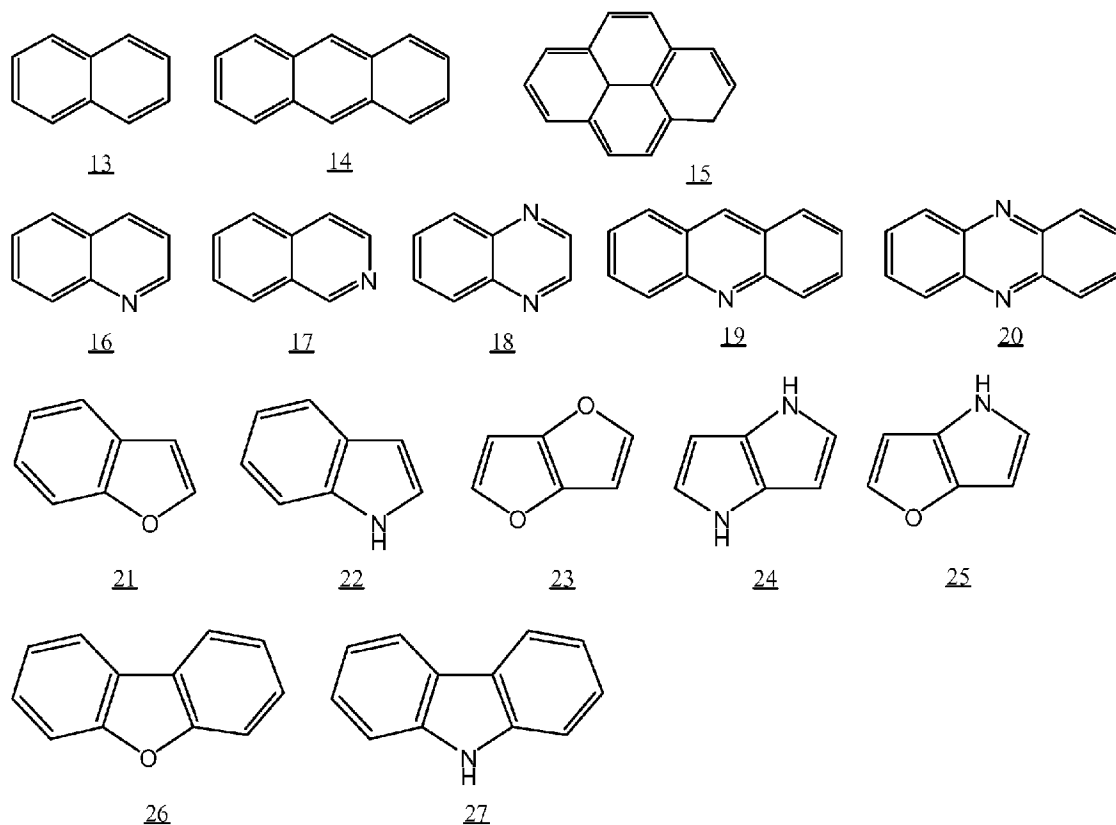
[0201] [化14]



[0202] 縮合多環式芳香環としては、例えば、以下の構造13～27で表される環が挙げられる。

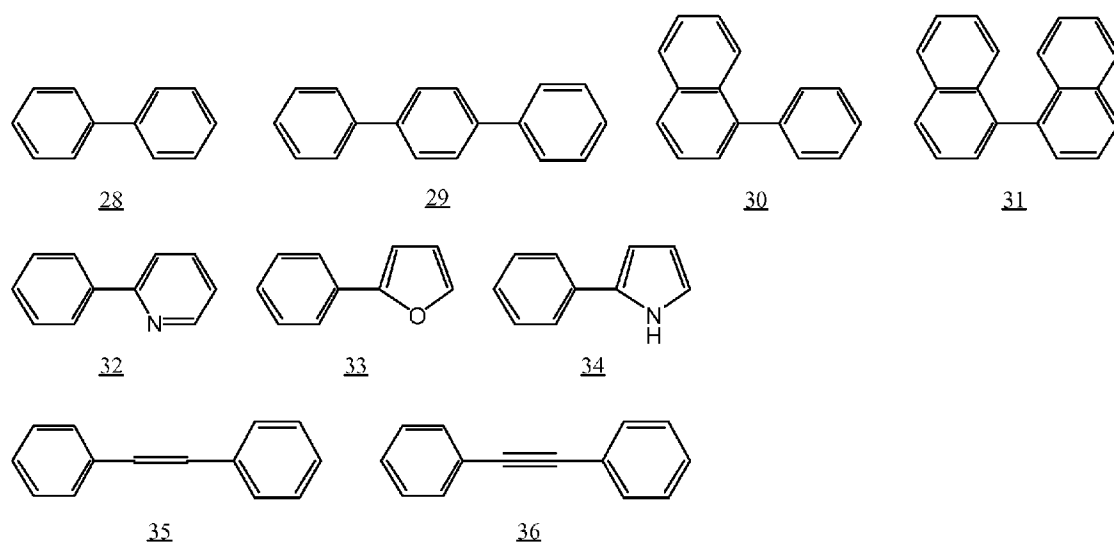
[0203]

[化15]



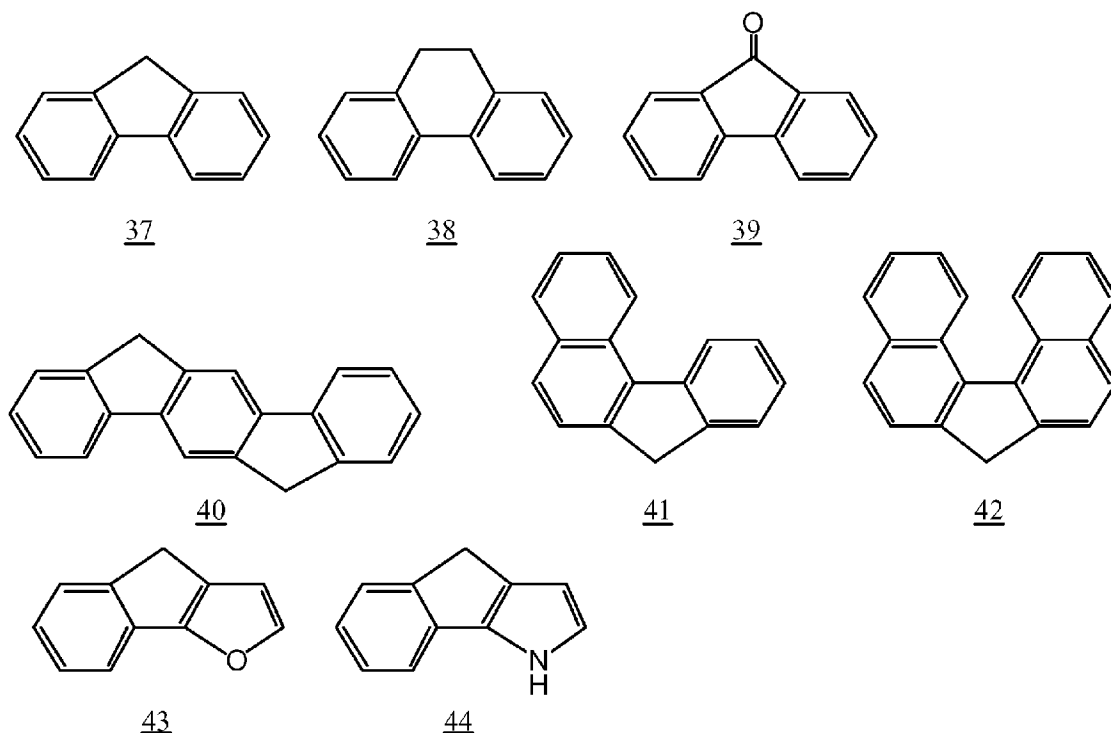
[0204] 芳香環集合としては、例えば、以下の構造 28～36 で表される環が挙げられる。

[0205] [化16]



[0206] 有橋多環式芳香環としては、例えば、以下の構造 37～44 で表される環が挙げられる。

[0207] [化17]



[0208] 前記(2+n4)価の芳香族基としては、原料モノマーの合成の容易さの観点から、構造1~14、26~29、37~39又は41で表される環から水素原子を(2+n4)個除いた基が好ましく、構造1~6、8、13、26、27、37又は41で表される環から水素原子を(2+n4)個除いた基がより好ましく、構造1、37又は41で表される環から水素原子を(2+n4)個除いた基がさらに好ましい。

[0209] 式(14)中、R²で表される(1+m1+m2)価の有機基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1~20のアルキル基から(m1+m2)個の水素原子を除いた基；フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置

置換基を有し又は有さない炭素原子数 6 ～ 30 のアリール基から ($m_1 + m_2$) 個の水素原子を除いた基；メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ノニルオキシ基、ドデシルオキシ基、シクロプロピルオキシ基、シクロブチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、シクロノニルオキシ基、シクロドデシルオキシ基、ノルボニルオキシ基、アダマンチルオキシ基、これらの基の中の少なくとも 1 個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数 1 ～ 50 のアルコキシ基から ($m_1 + m_2$) 個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するアミノ基から ($m_1 + m_2$) 個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するシリル基から ($m_1 + m_2$) 個の水素原子を除いた基が挙げられ、原料モノマーの合成の容易さの観点からは、アルキル基から ($m_1 + m_2$) 個の水素原子を除いた基、アリール基から ($m_1 + m_2$) 個の水素原子を除いた基、アルコキシ基から ($m_1 + m_2$) 個の水素原子を除いた基が好ましい。

[0210] 前記置換基としては、前述の Q^1 に関する説明中で例示した置換基と同様の置換基が挙げられる。前記置換基が複数個存在する場合には、それらは同一でも異なってもよい。

[0211] (式 (15) で表される構造単位)

式 (15) 中、 R^3 は式 (16) で表される基を含む 1 価の基であり、 Ar^2 は R^3 以外の置換基を有し又は有さない ($2 + n_5$) 価の芳香族基を表し、 n_5 は 1 以上の整数を表す。

[0212] 式 (16) で表される基は、 Ar^2 に直接結合していてもよく、メチレン基、エチレン基、プロピレン基、ブチレン基、ペンチレン基、ヘキシレン基、ノニレン基、ドデシレン基、シクロプロピレン基、シクロブチレン基、シクロペンチレン基、シクロヘキシレン基、シクロノニレン基、シクロドデシレン基、ノルボニレン基、アダマンチレン基、これらの基の中の少なくとも 1 個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数 1 ～ 50 のアルキレン基；オキシメチレン基、オキシエチレン基、オキ

シプロピレン基、オキシブチレン基、オキシペンチレン基、オキシヘキシレン基、オキシノニレン基、オキシドデシレン基、シクロプロピレンオキシ基、シクロブチレンオキシ基、シクロペンチレンオキシ基、シクロヘキシレンオキシ基、シクロノニレンオキシ基、シクロドデシレンオキシ基、ノルボニレンオキシ基、アダマンチレンオキシ基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～50のオキシアルキレン基；置換基を有し又は有さないイミノ基；置換基を有し又は有さないシリレン基；置換基を有し又は有さないエテニレン基；エチニレン基；置換基を有し又は有さないメタントリイル基；酸素原子、窒素原子、硫黄原子等のヘテロ原子を介して $A r^2$ に結合していてもよい。

[0213] 前記 $A r^2$ は R^3 以外の置換基を有していてもよい。当該置換基としては、前述の Q^1 に関する説明中で例示した置換基と同様の置換基が挙げられる。前記置換基が複数個存在する場合には、それらは同一でも異なってもよい。

[0214] 前記 $A r^2$ が有する R^3 以外の置換基としては、原料モノマーの合成の容易さの観点から、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、カルボキシル基又は置換カルボキシル基であることが好ましい。

[0215] 式(15)中、 n_5 は1以上の整数を表し、好ましくは1から4の整数であり、より好ましくは1から3の整数である。

[0216] 式(15)中の $A r^2$ で表される $(2 + n_5)$ 価の芳香族基としては、 $(2 + n_5)$ 価の芳香族炭化水素基、 $(2 + n_5)$ 価の芳香族複素環基が挙げられ、炭素原子のみ、又は、炭素原子と、水素原子、窒素原子及び酸素原子からなる群から選ばれる1つ以上の原子とからなる $(2 + n_5)$ 価の芳香族基が好ましい。該 $(2 + n_5)$ 価の芳香族基としては、ベンゼン環、ピリジン環、1, 2-ジアジン環、1, 3-ジアジン環、1, 4-ジアジン環、1, 3, 5-トリアジン環、フラン環、ピロール環、ピラゾール環、イミダゾール環、オキサゾール環、アザジアゾール環等の単環式芳香環から水素原子を $(2 + n_5)$ 個除いた $(2 + n_5)$ 価の基；該単環式芳香環からなる群から

選ばれる二つ以上の環が縮合した縮合多環式芳香環から水素原子を $(2 + n 5)$ 個除いた $(2 + n 5)$ 価の基；該単環式芳香環及び該縮合多環式芳香環からなる群より選ばれる二つ以上の芳香環を、単結合、エチレン基又はエチニレン基で連結してなる芳香環集合から水素原子を $(2 + n 5)$ 個除いた $(2 + n 5)$ 価の基；該縮合多環式芳香環又は該芳香環集合の隣り合う2つの芳香環をメチレン基、エチレン基、カルボニル基等の2価の基で橋かけした架橋を有する有橋多環式芳香環から水素原子を $(2 + n 5)$ 個除いた $(2 + n 5)$ 価の基等が挙げられる。

[0217] 単環式芳香環としては、例えば、式(13)で表される構造単位に関する説明中で例示した構造1～12で表される環が挙げられる。

[0218] 縮合多環式芳香環としては、例えば、式(13)で表される構造単位に関する説明中で例示した構造13～27で表される環が挙げられる。

[0219] 芳香環集合としては、例えば、式(13)で表される構造単位に関する説明中で例示した構造28～36で表される環が挙げられる。

[0220] 有橋多環式芳香環としては、例えば、式(13)で表される構造単位に関する説明中で例示した構造37～44で表される環が挙げられる。

[0221] 前記 $(2 + n 5)$ 価の芳香族基としては、原料モノマーの合成の容易さの観点から、構造1～14、26～29、37～39又は41で表される環から水素原子を $(2 + n 5)$ 個除いた基が好ましく、構造1～6、8、13、26、27、37又は41で表される環から水素原子を $(2 + n 5)$ 個除いた基がより好ましく、構造1、37又は41で表される環から水素原子を $(2 + n 5)$ 個除いた基がさらに好ましい。

[0222] 式(16)中、 $m 3$ 及び $m 4$ はそれぞれ独立に1以上の整数を表す。

[0223] 式(16)中、 R^4 で表される $(1 + m 3 + m 4)$ 価の有機基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置

置換基を有し又は有さない炭素原子数 1 ～ 20 のアルキル基から ($m_3 + m_4$) 個の水素原子を除いた基；フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、これらの基の中の少なくとも 1 個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数 6 ～ 30 のアリール基から ($m_3 + m_4$) 個の水素原子を除いた基；メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ノニルオキシ基、ドデシルオキシ基、シクロプロピルオキシ基、シクロブチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、シクロノニルオキシ基、シクロドデシルオキシ基、ノルボニルオキシ基、アダマンチルオキシ基、これらの基の中の少なくとも 1 個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数 1 ～ 50 のアルコキシ基から ($m_3 + m_4$) 個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するアミノ基から ($m_3 + m_4$) 個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するシリル基から ($m_3 + m_4$) 個の水素原子を除いた基が挙げられ、原料モノマーの合成の容易さの観点からは、アルキル基から ($m_3 + m_4$) 個の水素原子を除いた基、アリール基から ($m_3 + m_4$) 個の水素原子を除いた基、アルコキシ基から ($m_3 + m_4$) 個の水素原子を除いた基が好ましい。

[0224] 前記置換基としては、前述の Q^1 に関する説明中で例示した置換基と同様の置換基が挙げられる。前記置換基が複数個存在する場合には、それらは同一でも異なってもよい。

[0225] (式 (17) で表される構造単位)

式 (17) 中、 R^5 は式 (18) で表される基を含む 1 価の基であり、 R^6 は式 (19) で表される基を含む 1 価の基であり、 Ar^3 は R^5 及び R^6 以外の置換基を有し又は有さない ($2 + n_6 + n_7$) 価の芳香族基を表し、 n_6 及び n_7 はそれぞれ独立に 1 以上の整数を表す。

[0226] 式 (18) で表される基及び式 (19) で表される基は、 Ar^3 に直接結合していてもよく、メチレン基、エチレン基、プロピレン基、ブチレン基、ペ

ンチレン基、ヘキシレン基、ノニレン基、ドデシレン基、シクロプロピレン基、シクロブチレン基、シクロペンチレン基、シクロヘキシレン基、シクロノニレン基、シクロドデシレン基、ノルボニレン基、アダマンチレン基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～50のアルキレン基；オキシメチレン基、オキシエチレン基、オキシプロピレン基、オキシブチレン基、オキシペンチレン基、オキシヘキシレン基、オキシノニレン基、オキシドデシレン基、シクロプロピレンオキシ基、シクロブチレンオキシ基、シクロペンチレンオキシ基、シクロヘキシレンオキシ基、シクロノニレンオキシ基、シクロドデシレンオキシ基、ノルボニレンオキシ基、アダマンチレンオキシ基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～50のオキシアルキレン基；置換基を有し又は有さないイミノ基；置換基を有し又は有さないシリレン基；置換基を有し又は有さないエテニレン基；エチニレン基；置換基を有し又は有さないメタントリイル基；酸素原子、窒素原子、硫黄原子等のヘテロ原子を介して $A r^3$ に結合していてもよい。

[0227] 前記 $A r^3$ は R^5 及び R^6 以外の置換基を有していてもよい。当該置換基としては、前述の Q^1 に関する説明中で例示した置換基と同様の置換基が挙げられる。前記置換基が複数個存在する場合には、それらは同一でも異なってもよい。

[0228] 前記 $A r^3$ が有する R^5 及び R^6 以外の置換基としては、原料モノマーの合成の容易さの観点から、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、カルボキシル基又は置換カルボキシル基であることが好ましい。

[0229] 式(17)中、 n_6 は1以上の整数を表し、好ましくは1から4の整数であり、より好ましくは1から3の整数である。

[0230] 式(17)中、 n_7 は1以上の整数を表し、好ましくは1から4の整数であり、より好ましくは1から3の整数である。

[0231] 式(17)中の $A r^3$ で表される $(2 + n_6 + n_7)$ 価の芳香族基としては

、 $(2 + n_6 + n_7)$ 価の芳香族炭化水素基、 $(2 + n_6 + n_7)$ 価の芳香族複素環基が挙げられ、炭素原子のみ、又は、炭素原子と、水素原子、窒素原子及び酸素原子からなる群から選ばれる 1 つ以上の原子とからなる $(2 + n_6 + n_7)$ 価の芳香族基が好ましい。該 $(2 + n_6 + n_7)$ 価の芳香族基としては、ベンゼン環、ピリジン環、1, 2-ジアジン環、1, 3-ジアジン環、1, 4-ジアジン環、フラン環、ピロール環、ピラゾール環、イミダゾール環、オキサゾール環等の単環式芳香環から水素原子を $(2 + n_6 + n_7)$ 個除いた $(2 + n_6 + n_7)$ 価の基；該単環式芳香環からなる群から選ばれる二つ以上の環が縮合した縮合多環式芳香環から水素原子を $(2 + n_6 + n_7)$ 個除いた $(2 + n_6 + n_7)$ 価の基；該単環式芳香環及び該縮合多環式芳香環からなる群より選ばれる二つ以上の芳香環を、単結合、エチレン基又はエチニレン基で連結してなる芳香環集合から水素原子を $(2 + n_6 + n_7)$ 個除いた $(2 + n_6 + n_7)$ 価の基；該縮合多環式芳香環又は該芳香環集合の隣り合う 2 つの芳香環をメチレン基、エチレン基、カルボニル基等の 2 価の基で橋かけした架橋を有する有橋多環式芳香環から水素原子を $(2 + n_6 + n_7)$ 個除いた $(2 + n_6 + n_7)$ 価の基等が挙げられる。

[0232] 単環式芳香環としては、例えば、式 (13) で表される構造単位に関する説明中で例示した構造 1～5、構造 7～10 で表される環が挙げられる。

[0233] 縮合多環式芳香環としては、例えば、式 (13) で表される構造単位に関する説明中で例示した構造 13～27 で表される環が挙げられる。

[0234] 芳香環集合としては、例えば、式 (13) で表される構造単位に関する説明中で例示した構造 28～36 で表される環が挙げられる。

[0235] 有橋多環式芳香環としては、例えば、式 (13) で表される構造単位に関する説明中で例示した構造 37～44 で表される環が挙げられる。

[0236] 前記 $(2 + n_6 + n_7)$ 価の芳香族基としては、原料モノマーの合成の容易さの観点から、構造 1～5、7～10、13、14、26～29、37～39、41 又は 42 で表される環から水素原子を $(2 + n_6 + n_7)$ 個除いた基が好ましく、構造 1、37、38、41 又は 42 で表される環から水素

原子を $(2 + n_6 + n_7)$ 個除いた基がより好ましく、構造 1、38 又は 42 で表される環から水素原子を $(2 + n_6 + n_7)$ 個除いた基がさらに好ましい。

[0237] 式 (18) 中、 R^7 は単結合又は $(1 + m_5)$ 価の有機基を表し、 $(1 + m_5)$ 価の有機基であることが好ましい。

[0238] 式 (18) 中、 R^7 で表される $(1 + m_5)$ 価の有機基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基、これらの基の中の少なくとも 1 個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数 1 ~ 20 のアルキル基から m_5 個の水素原子を除いた基；フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、これらの基の中の少なくとも 1 個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数 6 ~ 30 のアリール基から m_5 個の水素原子を除いた基；メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ノニルオキシ基、ドデシルオキシ基、シクロプロピルオキシ基、シクロブチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、シクロノニルオキシ基、シクロドデシルオキシ基、ノルボニルオキシ基、アダマンチルオキシ基、これらの基の中の少なくとも 1 個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数 1 ~ 50 のアルコキシ基から m_5 個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するアミノ基から m_5 個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するシリル基から m_5 個の水素原子を除いた基が挙げられ、原料モノマーの合成の容易さの観点からは、アルキル基から m_5 個の水素原子を除いた基、アリール基から m_5 個の水素原子を除いた基、アルコキシ基から m_5 個の水素原子を除いた基が好ましい。

[0239] 前記置換基としては、前述の Q^1 に関する説明中で例示した置換基と同様の

置換基が挙げられる。前記置換基が複数個存在する場合には、それらは同一でも異なってもよい。

[0240] 式(18)中、 m_5 は1以上の整数を表し、ただし、 R^7 が単結合のとき m_5 は1を表す。

[0241] 式(19)中、 R^8 は単結合又は $(1+m_6)$ 価の有機基を表し、 $(1+m_6)$ 価の有機基であることが好ましい。

[0242] 式(19)中、 R^8 で表される $(1+m_6)$ 価の有機基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1~20のアルキル基から m_6 個の水素原子を除いた基；フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数6~30のアリール基から m_6 個の水素原子を除いた基；メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ノニルオキシ基、ドデシルオキシ基、シクロプロピルオキシ基、シクロブチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、シクロノニルオキシ基、シクロドデシルオキシ基、ノルボニルオキシ基、アダマンチルオキシ基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1~50のアルコキシ基から m_6 個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するアミノ基から m_6 個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するシリル基から m_6 個の水素原子を除いた基が挙げられ、原料モノマーの合成の容易さの観点からは、アルキル基から m_6 個の水素原子を除いた基、アリール基から m_6 個の水素原子を除いた基、アルコキシ基から m_6 個の水素原子を除いた基が好ましい。

[0243] 前記置換基としては、前述の Q^1 に関する説明中で例示した置換基と同様の置換基が挙げられる。前記置換基が複数個存在する場合には、それらは同一でも異なってもよい。

[0244] 式(19)中、 m_6 は1以上の整数を表し、ただし、 R^8 が単結合のとき m_6 は1を表す。

[0245] (式(20)で表される構造単位)

式(20)中、 R^9 は式(21)で表される基を含む1価の基であり、 R^{10} は式(22)で表される基を含む1価の基であり、 Ar^4 は R^9 及び R^{10} 以外の置換基を有し又は有さない($2 + n_8 + n_9$)価の芳香族基を表し、 n_8 及び n_9 はそれぞれ独立に1以上の整数を表す。

[0246] 式(21)で表される基及び式(22)で表される基は、 Ar^4 に直接結合していてもよく、メチレン基、エチレン基、プロピレン基、ブチレン基、ペンチレン基、ヘキシレン基、ノニレン基、ドデシレン基、シクロプロピレン基、シクロブチレン基、シクロペンチレン基、シクロヘキシレン基、シクロノニレン基、シクロドデシレン基、ノルボニレン基、アダマンチレン基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～50のアルキレン基；オキシメチレン基、オキシエチレン基、オキシプロピレン基、オキシブチレン基、オキシペンチレン基、オキシヘキシレン基、オキシノニレン基、オキシドデシレン基、シクロプロピレンオキシ基、シクロブチレンオキシ基、シクロペンチレンオキシ基、シクロヘキシレンオキシ基、シクロノニレンオキシ基、シクロドデシレンオキシ基、ノルボニレンオキシ基、アダマンチレンオキシ基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～50のオキシアルキレン基；置換基を有し又は有さないイミノ基；置換基を有し又は有さないシリレン基；置換基を有し又は有さないエテニレン基；エチニレン基；置換基を有し又は有さないメタントリイル基；酸素原子、窒素原子、硫黄原子等のヘテロ原子を介して Ar^4 に結合していてもよい。

- [0247] 前記 A_{r^4} は R^9 及び R^{10} 以外の置換基を有していてもよい。当該置換基としては、前述の Q^1 に関する説明中で例示した置換基と同様の置換基が挙げられる。前記置換基が複数個存在する場合には、それらは同一でも異なってもよい。
- [0248] 前記 A_{r^4} が有する R^9 及び R^{10} 以外の置換基としては、原料モノマーの合成の容易さの観点から、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリーロキシ基、カルボキシル基又は置換カルボキシル基であることが好ましい。
- [0249] 式 (20) 中、 n_8 は 1 以上の整数を表し、好ましくは 1 から 4 の整数であり、より好ましくは 1 から 3 の整数である。
- [0250] 式 (20) 中、 n_9 は 1 以上の整数を表し、好ましくは 1 から 4 の整数であり、より好ましくは 1 から 3 の整数である。
- [0251] 式 (20) 中の A_{r^4} で表される $(2 + n_8 + n_9)$ 価の芳香族基としては、 $(2 + n_8 + n_9)$ 価の芳香族炭化水素基、 $(2 + n_8 + n_9)$ 価の芳香族複素環基が挙げられ、炭素原子のみ、又は、炭素原子と、水素原子、窒素原子及び酸素原子からなる群から選ばれる 1 つ以上の原子とからなる $(2 + n_8 + n_9)$ 価の芳香族基が好ましい。該 $(2 + n_8 + n_9)$ 価の芳香族基としては、ベンゼン環、ピリジン環、1, 2-ジアジン環、1, 3-ジアジン環、1, 4-ジアジン環、フラン環、ピロール環、ピラゾール環、イミダゾール環等の単環式芳香環から水素原子を $(2 + n_8 + n_9)$ 個除いた $(2 + n_8 + n_9)$ 価の基；該単環式芳香環からなる群から選ばれる二つ以上の環が縮合した縮合多環式芳香環から水素原子を $(2 + n_8 + n_9)$ 個除いた $(2 + n_8 + n_9)$ 価の基；該単環式芳香環及び該縮合多環式芳香環からなる群より選ばれる二つ以上の芳香環を、単結合、エチレン基又はエチニレン基で連結してなる芳香環集合から水素原子を $(2 + n_8 + n_9)$ 個除いた $(2 + n_8 + n_9)$ 価の基；該縮合多環式芳香環又は該芳香環集合の隣り合う 2 つの芳香環をメチレン基、エチレン基、カルボニル基等の 2 価の基で橋かけした架橋を有する有橋多環式芳香環から水素原子を $(2 + n_8 + n_9)$ 個除いた $(2 + n_8 + n_9)$ 価の基等が挙げられる。

[0252] 単環式芳香環としては、例えば、式(13)で表される構造単位に関する説明中で例示した構造1～5、構造7～10で表される環が挙げられる。

[0253] 縮合多環式芳香環としては、例えば、式(13)で表される構造単位に関する説明中で例示した構造13～27で表される環が挙げられる。

[0254] 芳香環集合としては、例えば、式(13)で表される構造単位に関する説明中で例示した構造28～36で表される環が挙げられる。

[0255] 有橋多環式芳香環としては、例えば、式(13)で表される構造単位に関する説明中で例示した構造37～44で表される環が挙げられる。

[0256] 前記(2+n8+n9)価の芳香族基としては、原料モノマーの合成の容易さの観点から、構造1～5、7～10、13、14、26～29、37～39、41又は42で表される環から水素原子を(2+n8+n9)個除いた基が好ましく、構造1～5、8、14、27、28、37、38、41又は42で表される環から水素原子を(2+n8+n9)個除いた基がより好ましく、構造1、37又は41で表される環から水素原子を(2+n8+n9)個除いた基がさらに好ましい。

[0257] 式(21)中、R¹¹は単結合又は(1+m7)価の有機基を表し、(1+m7)価の有機基であることが好ましい。

[0258] 式(21)中、R¹¹で表される(1+m7)価の有機基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～20のアルキル基からm7個の水素原子を除いた基；フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数6～30のアリール基からm7個の水素原子を除いた基；メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基

、ヘキシルオキシ基、ノニルオキシ基、ドデシルオキシ基、シクロプロピルオキシ基、シクロブチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、シクロノニルオキシ基、シクロドデシルオキシ基、ノルボニルオキシ基、アダマンチルオキシ基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～50のアルコキシ基からm7個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するアミノ基からm7個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するシリル基からm7個の水素原子を除いた基が挙げられ、原料モノマーの合成の容易さの観点からは、アルキル基からm7個の水素原子を除いた基、アリール基からm7個の水素原子を除いた基、アルコキシ基からm7個の水素原子を除いた基が好ましい。

[0259] 前記置換基としては、前述のQ¹に関する説明中で例示した置換基と同様の置換基が挙げられる。前記置換基が複数個存在する場合には、それらは同一でも異なってもよい。

[0260] 式(21)中、m7は1以上の整数を表し、ただし、R¹¹が単結合のときm7は1を表す。

[0261] 式(22)中、R¹²は単結合又は(1+m8)価の有機基を表し、(1+m8)価の有機基であることが好ましい。

[0262] 式(22)中、R¹²で表される(1+m8)価の有機基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～20のアルキル基からm8個の水素原子を除いた基；フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数6～30のアリール基からm8個の水素原子を除いた基

；メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ノニルオキシ基、ドデシルオキシ基、シクロプロピルオキシ基、シクロブチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、シクロノニルオキシ基、シクロドデシルオキシ基、ノルボニルオキシ基、アダマンチルオキシ基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～50のアルコキシ基からm8個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するアミノ基からm8個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するシリル基からm8個の水素原子を除いた基が挙げられ、原料モノマーの合成の容易さの観点からは、アルキル基からm8個の水素原子を除いた基、アリール基からm8個の水素原子を除いた基、アルコキシ基からm8個の水素原子を除いた基が好ましい。

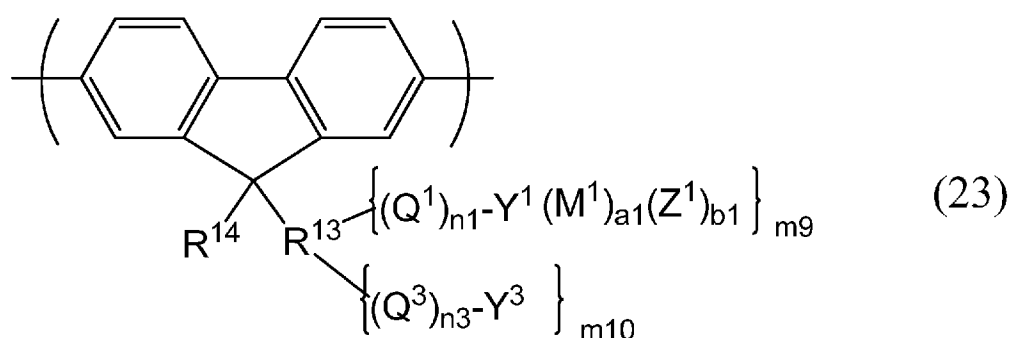
[0263] 前記置換基としては、前述のQ¹に関する説明中で例示した置換基と同様の置換基が挙げられる。前記置換基が複数個存在する場合には、それらは同一でも異なってもよい。

[0264] 式(22)中、m8は1以上の整数を表し、ただし、R¹²が単結合のときm8は1を表す。

[0265] (式(13)で表される構造単位の例)

式(13)で表される構造単位としては、得られるイオン性ポリマーの電子輸送性の観点からは、式(23)で表される構造単位、式(24)で表される構造単位が好ましく、式(24)で表される構造単位がより好ましい。

[0266] [化18]



式(23)中、 R^{13} は $(1 + m_9 + m_{10})$ 価の有機基を表し、 R^{14} は1価の有機基を表し、 Q^1 、 Q^3 、 Y^1 、 M^1 、 Z^1 、 Y^3 、 n_1 、 a_1 、 b_1 及び n_3 は前述と同じ意味を表し、 m_9 及び m_{10} はそれぞれ独立に1以上の整数を表す。 Q^1 、 Q^3 、 Y^1 、 M^1 、 Z^1 、 Y^3 、 n_1 、 a_1 、 b_1 及び n_3 の各々は複数個ある場合、同一でも異なってもよい。

[0267] 式(23)中、 R^{13} で表される $(1 + m_9 + m_{10})$ 価の有機基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1~20のアルキル基から $(m_9 + m_{10})$ 個の水素原子を除いた基；フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数6~30のアリール基から $(m_9 + m_{10})$ 個の水素原子を除いた基；メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ノニルオキシ基、ドデシルオキシ基、シクロプロピルオキシ基、シクロブチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、シクロノニルオキシ基、シクロドデシルオキシ基、ノルボニルオキシ基、アダマンチルオキシ基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1~50のアルコキシ基から $(m_9 + m_{10})$ 個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するアミノ基から $(m_9 + m_{10})$ 個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するシリル基から $(m_9 + m_{10})$ 個の水素原子を除いた基が挙げられ、原料モノマーの合成の容易さの観点からは、アルキル基から $(m_9 + m_{10})$ 個の水素原子を除いた基、アリール基から $(m_9 + m_{10})$ 個の水素原子を除いた基、アルコキシ基から $(m_9 + m_{10})$ 個の水素原子を除いた基が好ましい。

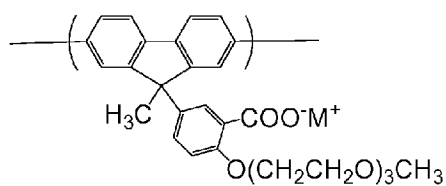
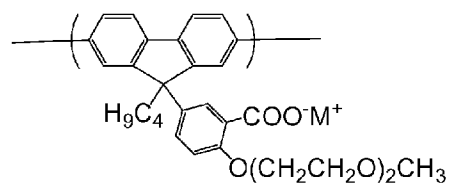
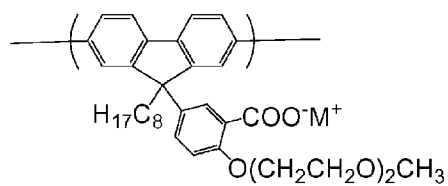
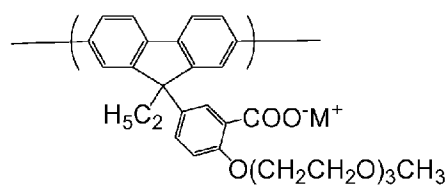
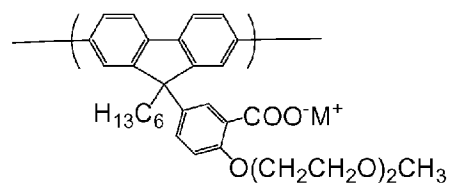
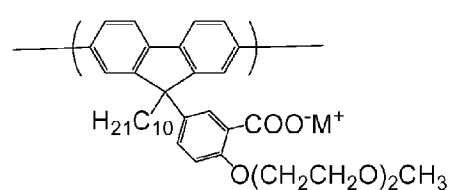
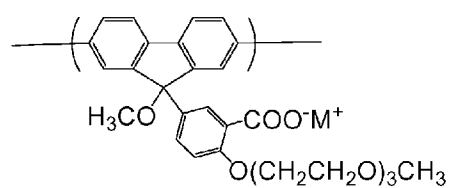
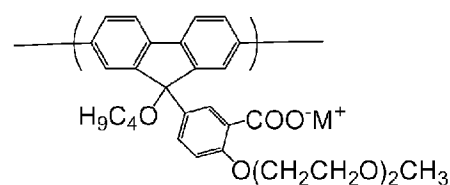
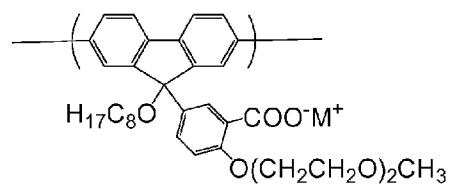
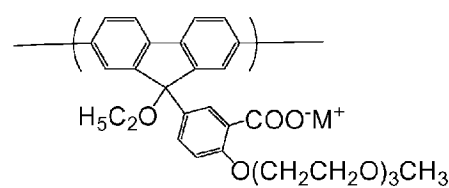
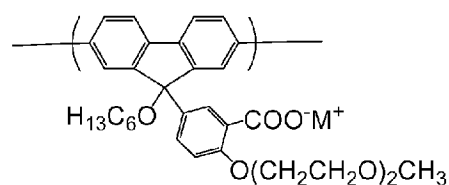
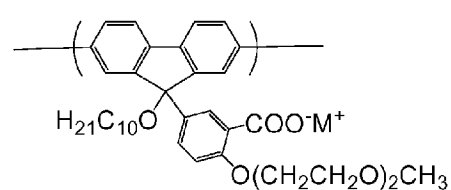
。

[0268] 式(23)中、 R^{14} で表される1価の有機基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1~20のアルキル基；フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数6~30のアリール基；メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ノニルオキシ基、ドデシルオキシ基、シクロプロピルオキシ基、シクロブチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、シクロノニルオキシ基、シクロドデシルオキシ基、ノルボニルオキシ基、アダマンチルオキシ基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1~50のアルコキシ基；炭素原子を含む置換基を有するアミノ基から1個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するシリル基が挙げられ、原料モノマーの合成の容易さの観点からは、アルキル基、アリール基、アルコキシ基が好ましい。

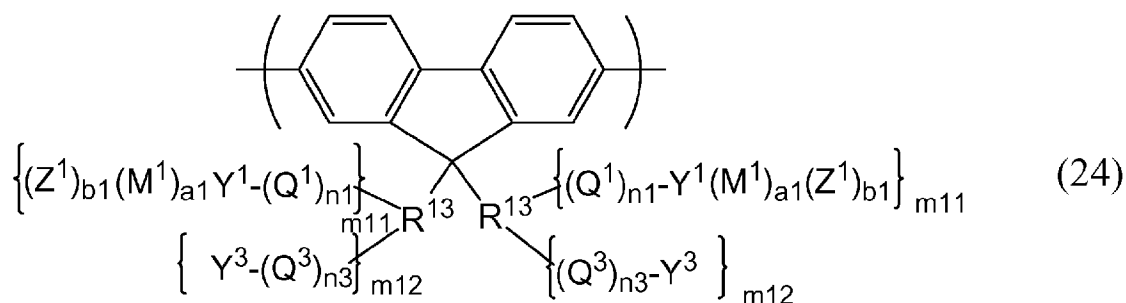
[0269] 式(23)で表される構造単位としては、以下の構造単位が挙げられる。

[0270]

[化19]

M = Li, Na, K, Cs, $\text{N}(\text{CH}_3)_4$ M = Li, Na, K, Cs, $\text{N}(\text{CH}_3)_4$ M = Li, Na, K, Cs, $\text{N}(\text{CH}_3)_4$ M = Li, Na, K, Cs, $\text{N}(\text{CH}_3)_4$ M = Li, Na, K, Cs, $\text{N}(\text{CH}_3)_4$ M = Li, Na, K, Cs, $\text{N}(\text{CH}_3)_4$ M = Li, Na, K, Cs, $\text{N}(\text{CH}_3)_4$ M = Li, Na, K, Cs, $\text{N}(\text{CH}_3)_4$ M = Li, Na, K, Cs, $\text{N}(\text{CH}_3)_4$ M = Li, Na, K, Cs, $\text{N}(\text{CH}_3)_4$ M = Li, Na, K, Cs, $\text{N}(\text{CH}_3)_4$ M = Li, Na, K, Cs, $\text{N}(\text{CH}_3)_4$

[0271] [化20]



式(24)中、 R^{13} は $(1+m11+m12)$ 価の有機基を表し、 Q^1 、 Q^3 、 Y^1 、 M^1 、 Z^1 、 Y^3 、 $n1$ 、 $a1$ 、 $b1$ 及び $n3$ は前述と同じ意味を表し、 $m11$ 及び $m12$ はそれぞれ独立に1以上の整数を表す。 R^{13} 、 $m11$ 、 $m12$ 、 Q^1 、 Q^3 、 Y^1 、 M^1 、 Z^1 、 Y^3 、 $n1$ 、 $a1$ 、 $b1$ 及び $n3$ の各々は複数個ある場合、同一でも異なってもよい。

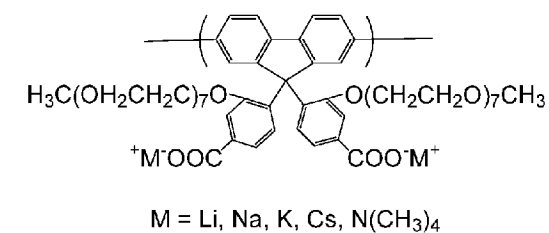
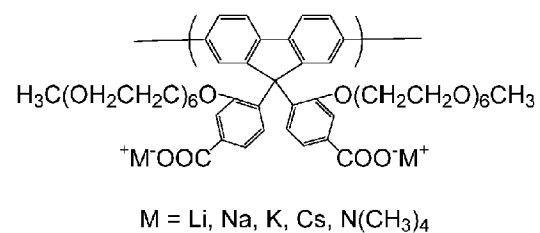
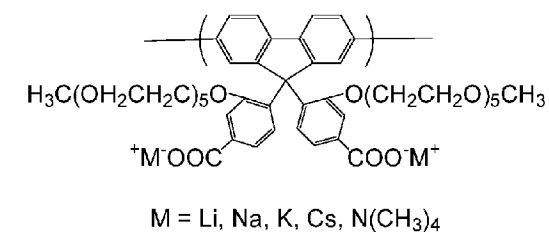
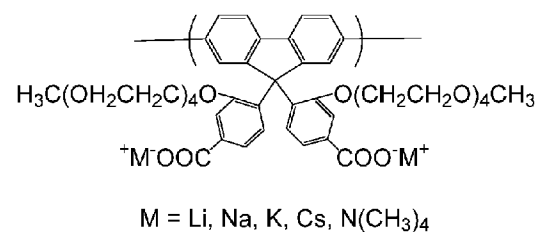
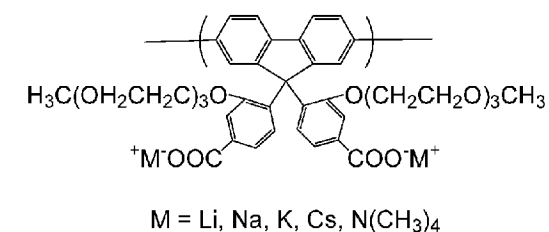
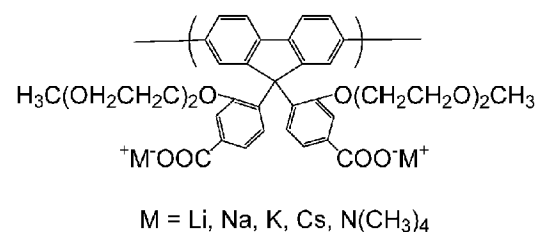
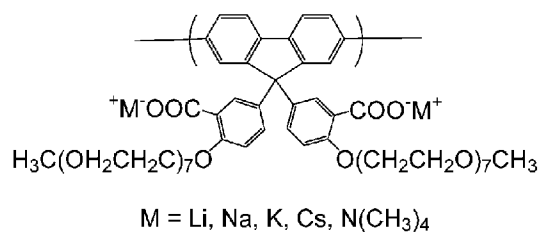
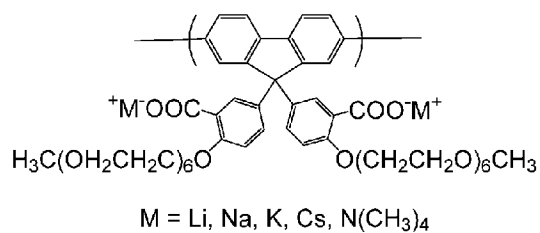
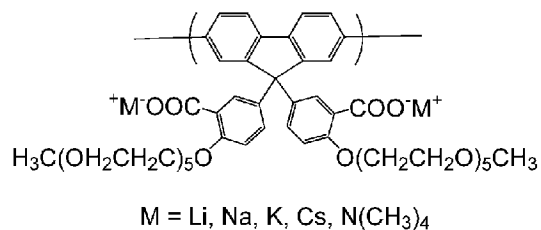
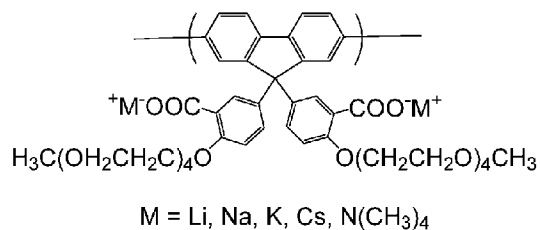
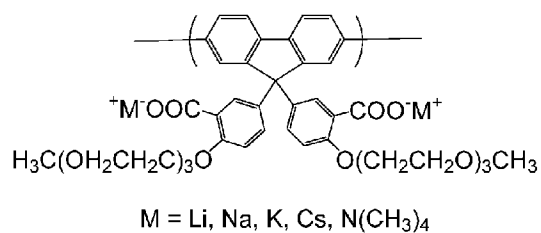
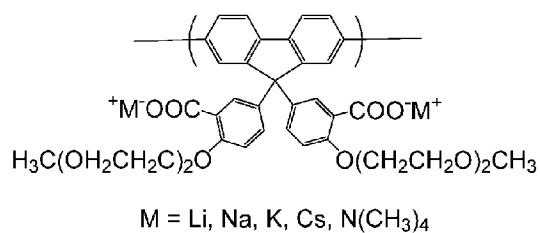
[0272] 式(24)中、 R^{13} で表される $(1+m11+m12)$ 価の有機基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1~20のアルキル基から $(m11+m12)$ 個の水素原子を除いた基；フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数6~30のアリール基から $(m11+m12)$ 個の水素原子を除いた基；メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ノニルオキシ基、ドデシルオキシ基、シクロプロピルオキシ基、シクロブチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、シクロノニルオキシ基、シクロドデシルオキシ基、ノルボニルオキシ基、アダマンチルオキシ基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1~50のアルコキシ基から $(m11$

+ m 1 2) 個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するアミノ基から (m 1 1 + m 1 2) 個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するシリル基から (m 1 1 + m 1 2) 個の水素原子を除いた基が挙げられ、原料モノマーの合成の容易さの観点からは、アルキル基から (m 1 1 + m 1 2) 個の水素原子を除いた基、アリール基から (m 1 1 + m 1 2) 個の水素原子を除いた基、アルコキシ基から (m 1 1 + m 1 2) 個の水素原子を除いた基が好ましい。

[0273] 式 (24) で表される構造単位としては、以下の構造単位が挙げられる。

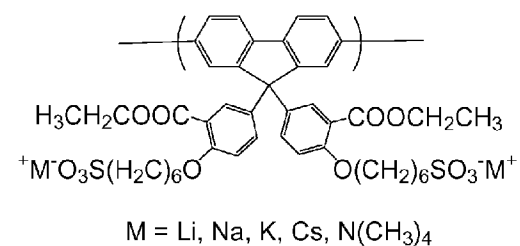
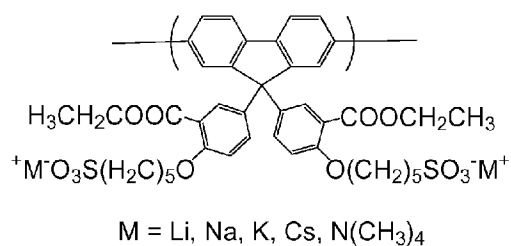
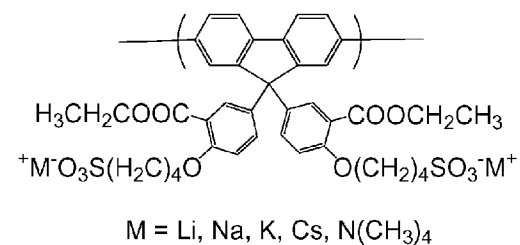
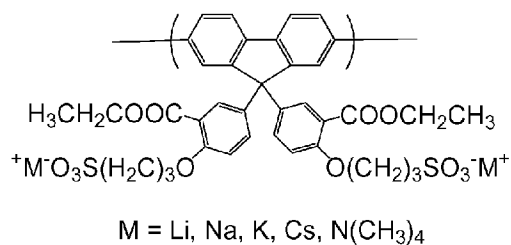
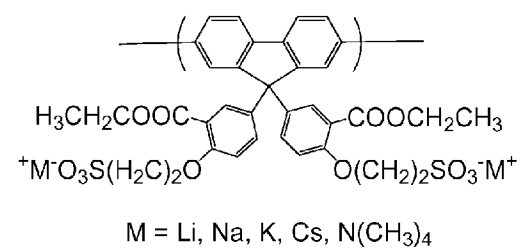
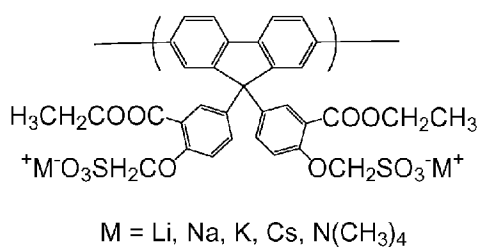
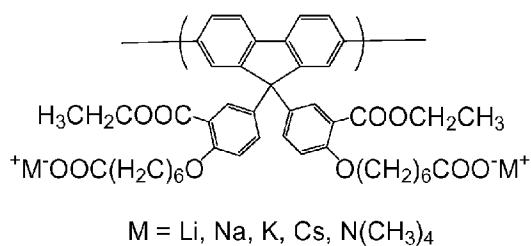
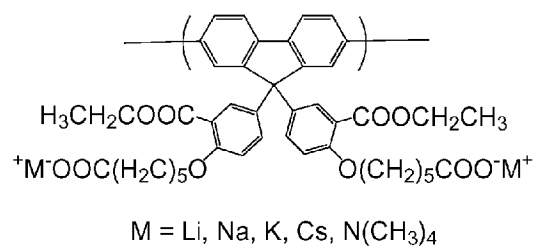
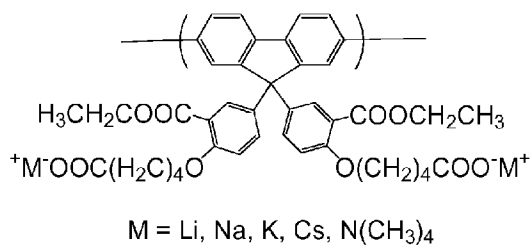
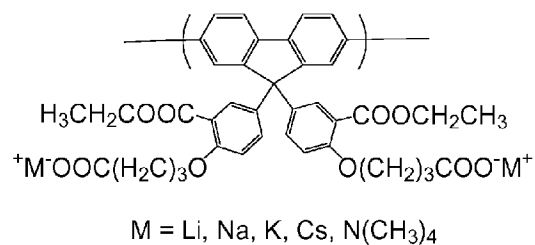
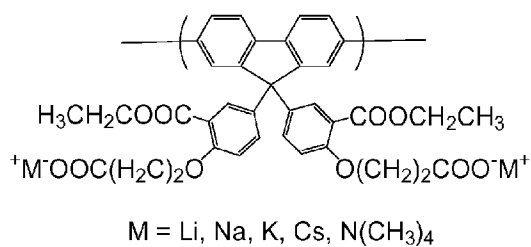
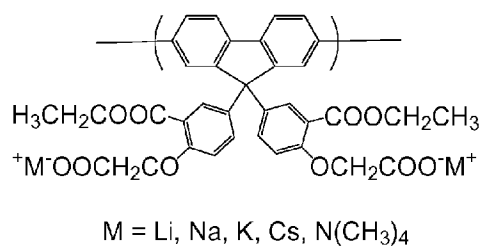
[0274]

[化21]

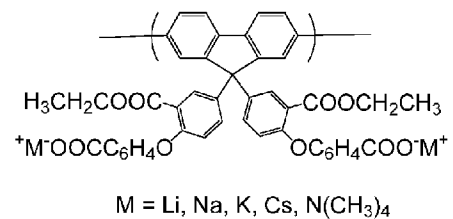
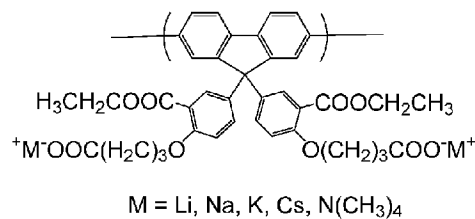
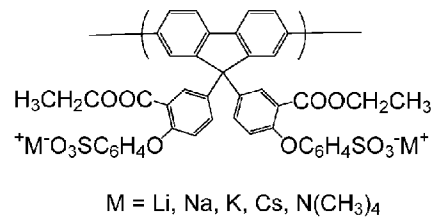
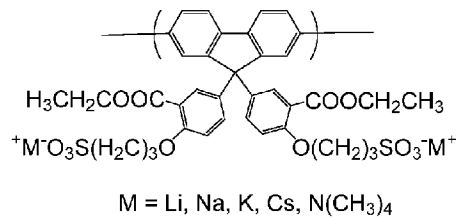
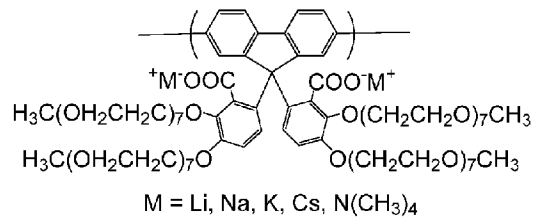
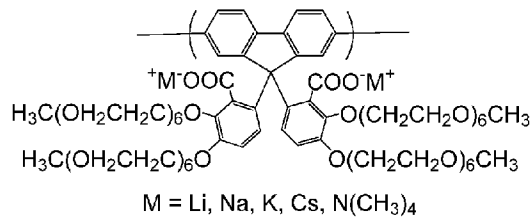
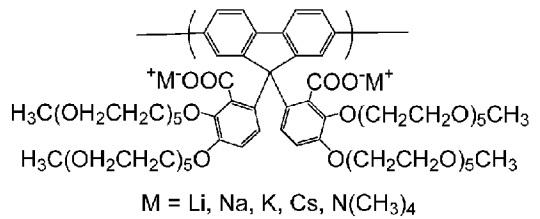
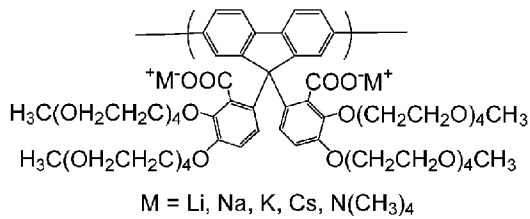
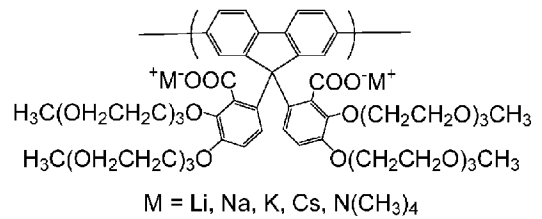
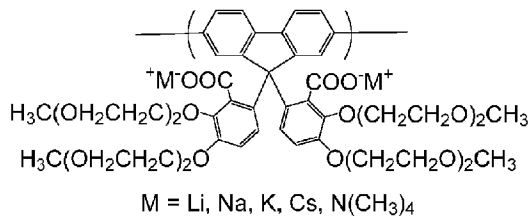


[0275]

[化23]



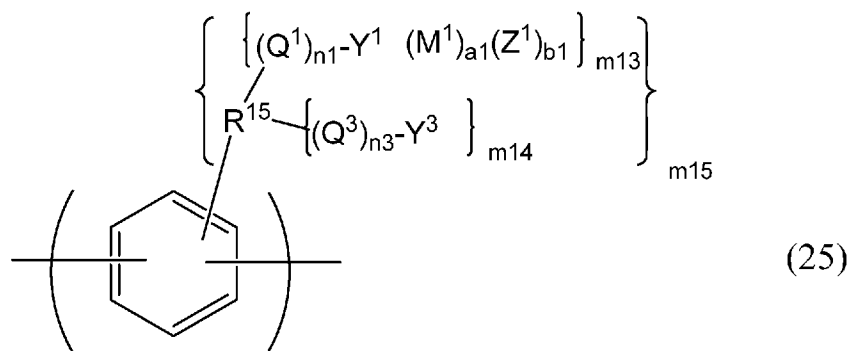
[0277] [化24]



[0278] 式(13)で表される構造単位としては、得られるイオン性ポリマーの耐久性の観点からは、式(25)で表される構造単位が好ましい。

[0279]

[化25]



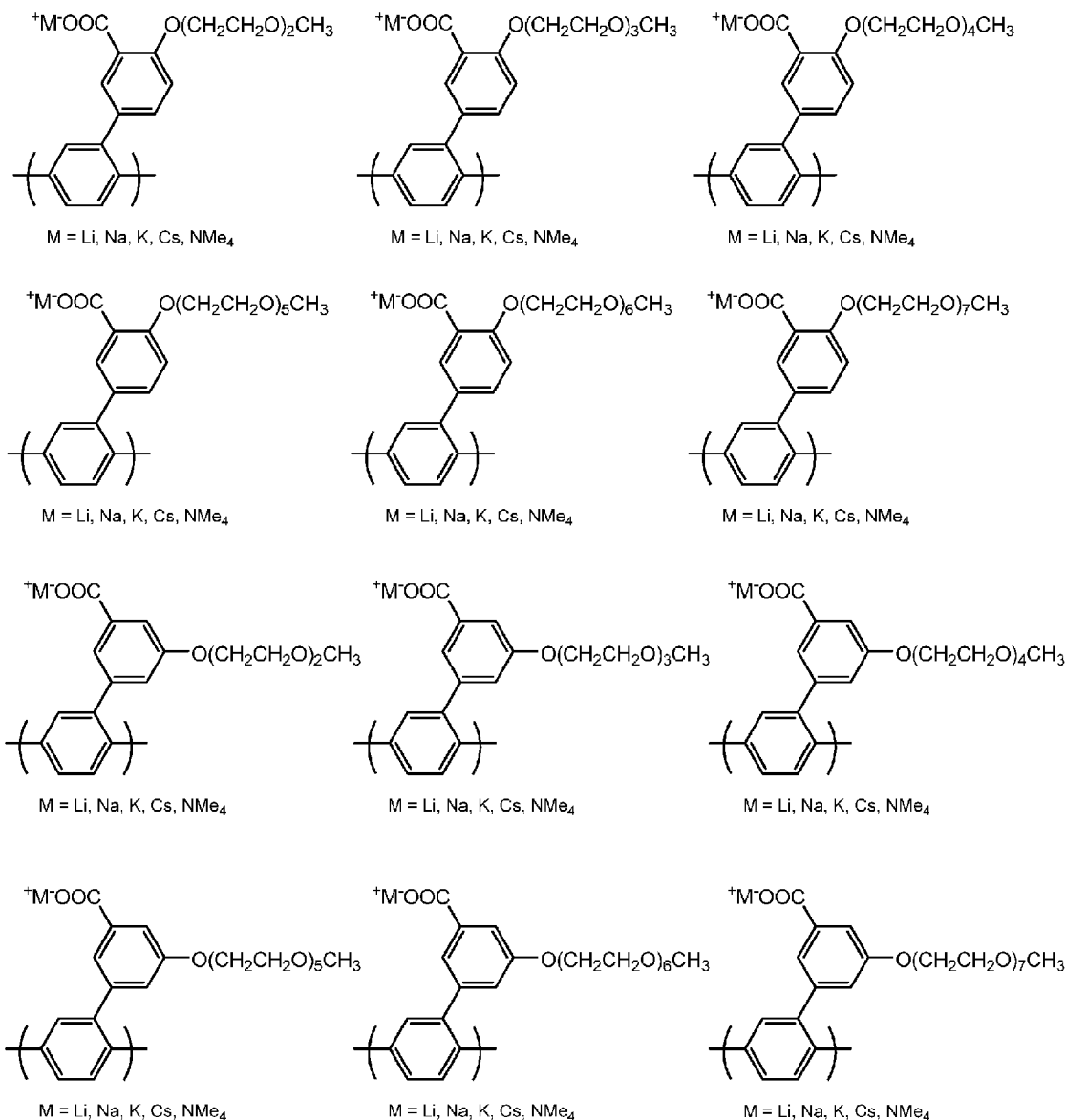
式(25)中、 R^{15} は $(1+m13+m14)$ 価の有機基を表し、 Q^1 、 Q^3 、 Y^1 、 M^1 、 Z^1 、 Y^3 、 $n1$ 、 $a1$ 、 $b1$ 及び $n3$ は前述と同じ意味を表し、 $m13$ 、 $m14$ 及び $m15$ はそれぞれ独立に1以上の整数を表す。 R^{15} 、 $m13$ 、 $m14$ 、 Q^1 、 Q^3 、 Y^1 、 M^1 、 Z^1 、 Y^3 、 $n1$ 、 $a1$ 、 $b1$ 及び $n3$ の各々は複数個ある場合、同一でも異なってもよい。

[0280] 式(25)中、 R^{15} で表される $(1+m13+m14)$ 価の有機基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～20のアルキル基から $(m13+m14)$ 個の水素原子を除いた基；フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数6～30のアリール基から $(m13+m14)$ 個の水素原子を除いた基；メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ノニルオキシ基、ドデシルオキシ基、シクロプロピルオキシ基、シクロブチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、シクロノニルオキシ基、シクロドデシルオキシ基、ノルボニルオキシ基、アダマンチルオキシ基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、

置換基を有し又は有さない炭素原子数 1 ～ 50 のアルコキシ基から (m 1 3 + m 1 4) 個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するアミノ基から (m 1 3 + m 1 4) 個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するシリル基から (m 1 3 + m 1 4) 個の水素原子を除いた基が挙げられ、原料モノマーの合成の容易さの観点からは、アルキル基から (m 1 3 + m 1 4) 個の水素原子を除いた基、アリール基から (m 1 3 + m 1 4) 個の水素原子を除いた基、アルコキシ基から (m 1 3 + m 1 4) 個の水素原子を除いた基が好ましい。

[0281] 式 (25) で表される構造単位としては、以下の構造単位が挙げられる。

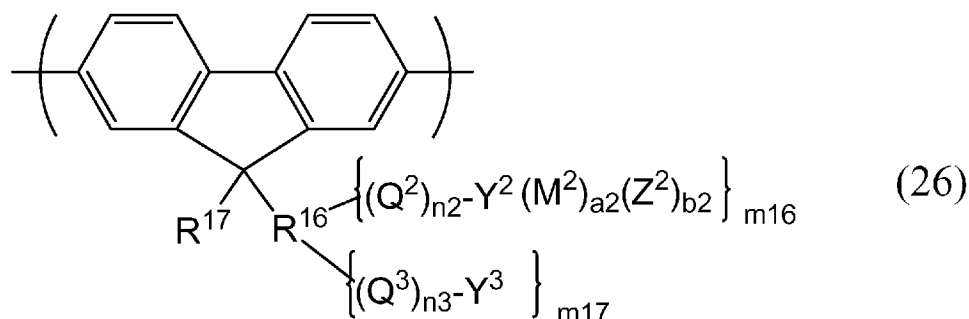
[0282] [化26]



[0283] (式(15)で表される構造単位の例)

式(15)で表される構造単位としては、得られるイオン性ポリマーの電子輸送性の観点からは、式(26)で表される構造単位、式(27)で表される構造単位が好ましく、式(27)で表される構造単位がより好ましい。

[0284] [化27]



式(26)中、 R^{16} は $(1+m16+m17)$ 価の有機基を表し、 R^{17} は1価の有機基を表し、 Q^2 、 Q^3 、 Y^2 、 M^2 、 Z^2 、 Y^3 、 $n2$ 、 $a2$ 、 $b2$ 及び $n3$ は前述と同じ意味を表し、 $m16$ 及び、 $m17$ はそれぞれ独立に1以上の整数を表す。 Q^2 、 Q^3 、 Y^2 、 M^2 、 Z^2 、 Y^3 、 $n2$ 、 $a2$ 、 $b2$ 及び $n3$ の各々は複数個ある場合、同一でも異なってもよい。

[0285] 式(26)中、 R^{16} で表される $(1+m16+m17)$ 価の有機基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1~20のアルキル基から $(m16+m17)$ 個の水素原子を除いた基；フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数6~30のアリール基から $(m16+m17)$ 個の水素原子を除いた基；メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ノニルオキシ基、ドデシルオキシ基、シクロプロピルオキシ基、シクロブチルオキシ基

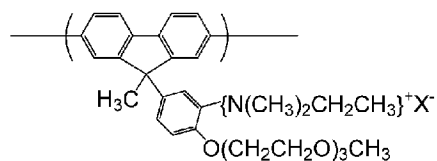
、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、シクロノニルオキシ基、シクロドデシルオキシ基、ノルボニルオキシ基、アダマンチルオキシ基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～50のアルコキシ基から ($m16 + m17$) 個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するアミノ基から ($m16 + m17$) 個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するシリル基から ($m16 + m17$) 個の水素原子を除いた基が挙げられ、原料モノマーの合成の容易さの観点からは、アルキル基から ($m16 + m17$) 個の水素原子を除いた基、アリール基から ($m16 + m17$) 個の水素原子を除いた基、アルコキシ基から ($m16 + m17$) 個の水素原子を除いた基が好ましい。

[0286] 式(26)中、 R^{17} で表される1価の有機基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～20のアルキル基；フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数6～30のアリール基；メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ノニルオキシ基、ドデシルオキシ基、シクロプロピルオキシ基、シクロブチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、シクロノニルオキシ基、シクロドデシルオキシ基、ノルボニルオキシ基、アダマンチルオキシ基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～50のアルコキシ基；炭素原子を含む置換基を有するアミノ基；炭素原子を含む置換基を有するシリル基が挙げられ、原料モノマーの合成の容易さの観点

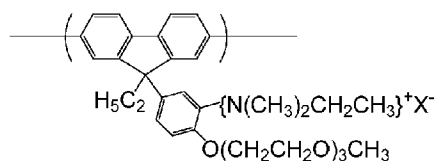
からは、アルキル基、アリール基、アルコキシ基が好ましい。

[0287] 式(26)で表される構造単位としては、以下の構造単位が挙げられる。

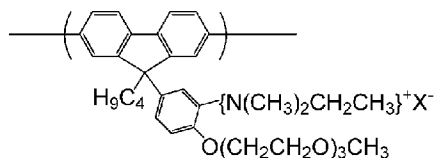
[0288] [化28]



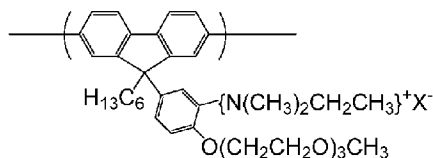
X = F, Cl, Br, I, BPh₄, CF₃SO₃, CH₃COO



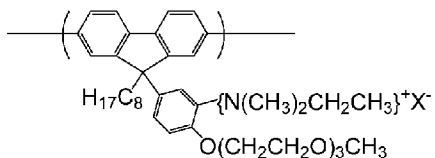
X = F, Cl, Br, I, BPh₄, CF₃SO₃, CH₃COO



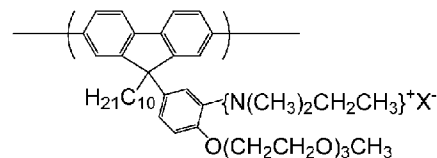
X = F, Cl, Br, I, BPh₄, CF₃SO₃, CH₃COO



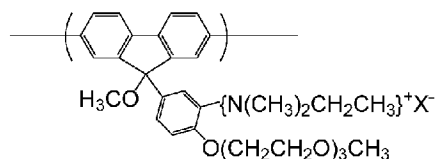
X = F, Cl, Br, I, BPh₄, CF₃SO₃, CH₃COO



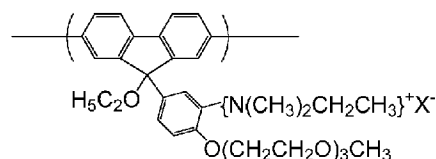
X = F, Cl, Br, I, BPh₄, CF₃SO₃, CH₃COO



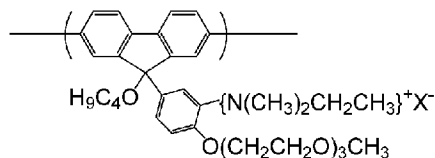
X = F, Cl, Br, I, BPh₄, CF₃SO₃, CH₃COO



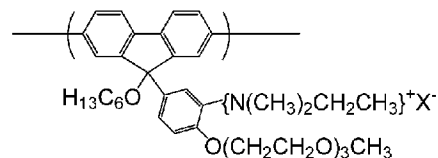
X = F, Cl, Br, I, BPh₄, CF₃SO₃, CH₃COO



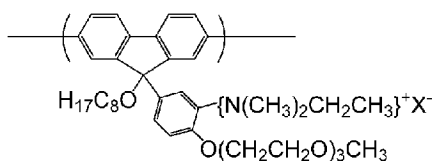
X = F, Cl, Br, I, BPh₄, CF₃SO₃, CH₃COO



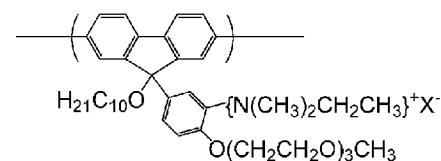
X = F, Cl, Br, I, BPh₄, CF₃SO₃, CH₃COO



X = F, Cl, Br, I, BPh₄, CF₃SO₃, CH₃COO



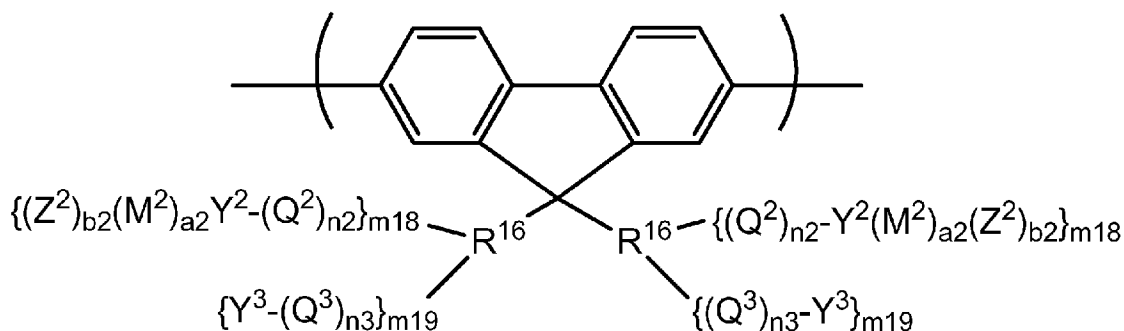
X = F, Cl, Br, I, BPh₄, CF₃SO₃, CH₃COO



X = F, Cl, Br, I, BPh₄, CF₃SO₃, CH₃COO

[0289]

[化29]



式(27)中、 R^{16} は $(1+m18+m19)$ 価の有機基を表し、 Q^2 、 Q^3 、 Y^2 、 M^2 、 Z^2 、 Y^3 、 $n2$ 、 $a2$ 、 $b2$ 及び $n3$ は前述と同じ意味を表し、 $m18$ 及び、 $m19$ はそれぞれ独立に1以上の整数を表す。 R^{16} 、 $m18$ 、 $m19$ 、 Q^2 、 Q^3 、 Y^2 、 M^2 、 Z^2 、 Y^3 、 $n2$ 、 $a2$ 、 $b2$ 及び $n3$ の各々は複数個ある場合、同一でも異なってもよい。

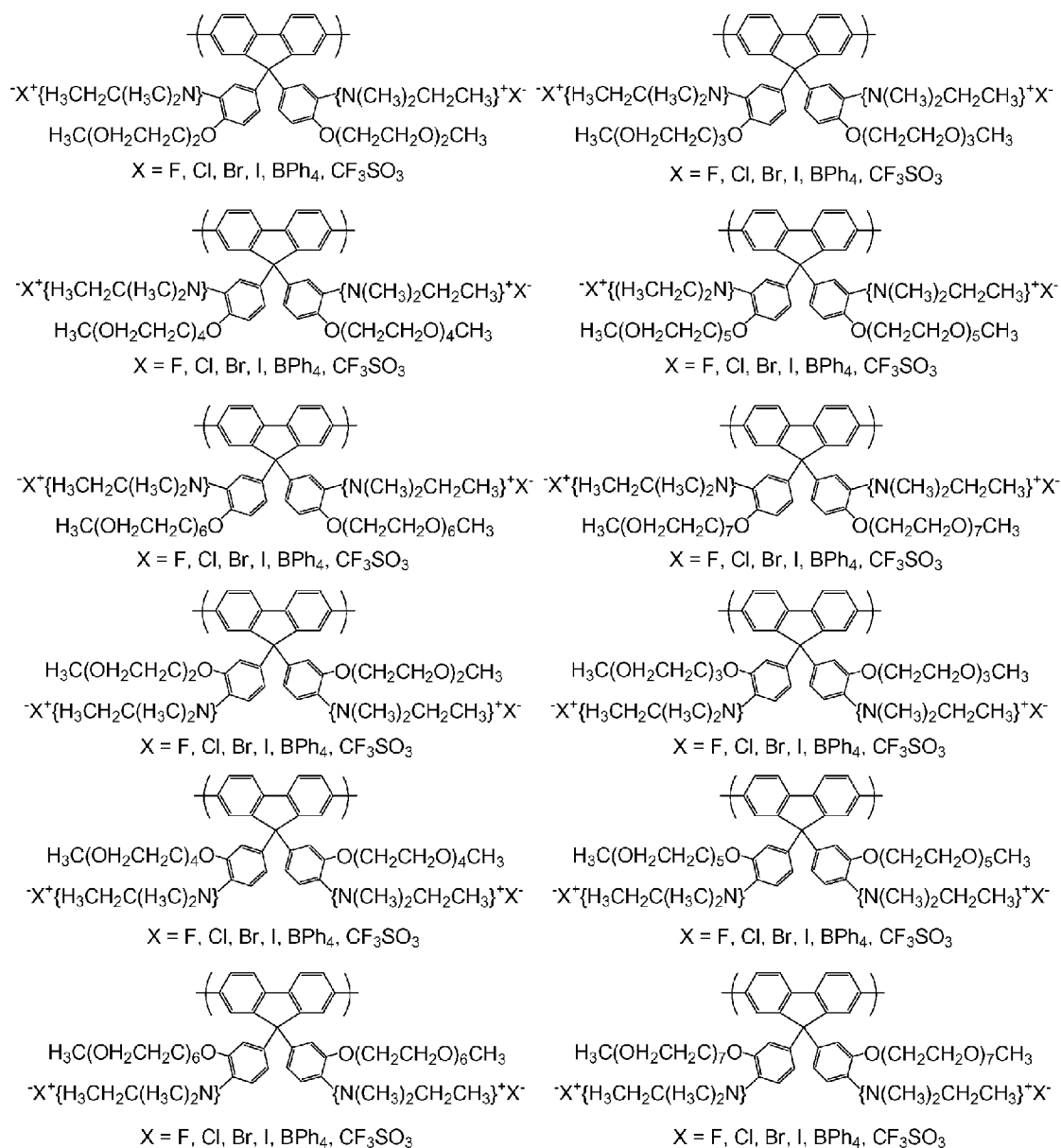
[0290] 式(27)中、 R^{16} で表される $(1+m18+m19)$ 価の有機基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1~20のアルキル基から $(m18+m19)$ 個の水素原子を除いた基；フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数6~30のアリール基から $(m18+m19)$ 個の水素原子を除いた基；メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ノニルオキシ基、ドデシルオキシ基、シクロプロピルオキシ基、シクロブチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、シクロノニルオキシ基、シクロドデシルオキシ基、ノルボニルオキシ基、アダマンチルオキシ基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、

置換基を有し又は有さない炭素原子数 1 ～ 50 のアルコキシ基から ($m_{18} + m_{19}$) 個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するアミノ基から ($m_{18} + m_{19}$) 個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するシリル基から ($m_{18} + m_{19}$) 個の水素原子を除いた基が挙げられ、原料モノマーの合成の容易さの観点からは、アルキル基から ($m_{18} + m_{19}$) 個の水素原子を除いた基、アリール基から ($m_{18} + m_{19}$) 個の水素原子を除いた基、アルコキシ基から ($m_{18} + m_{19}$) 個の水素原子を除いた基が好ましい。

[0291] 式 (27) で表される構造単位としては、以下の構造単位が挙げられる。

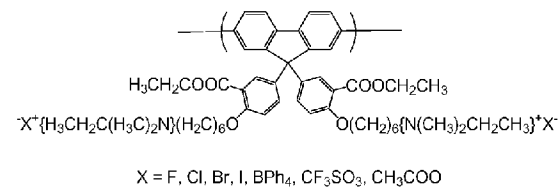
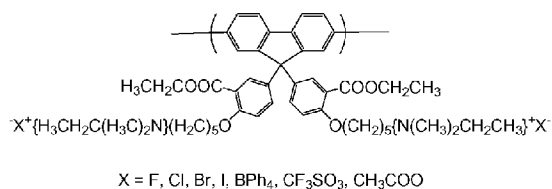
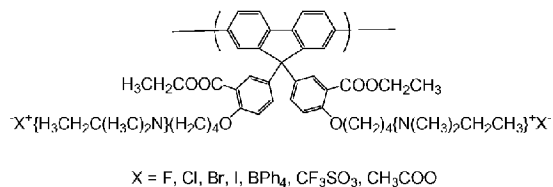
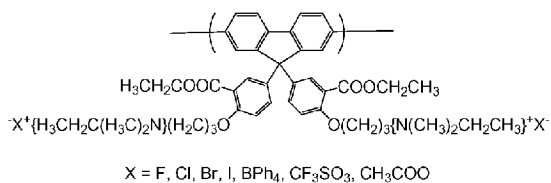
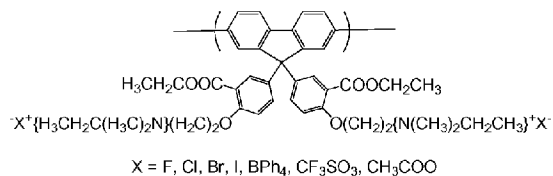
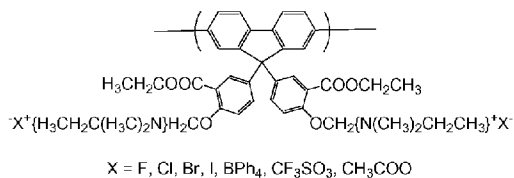
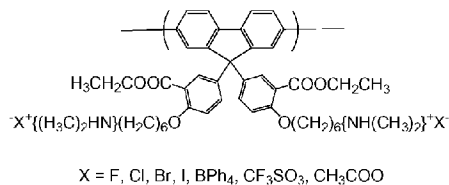
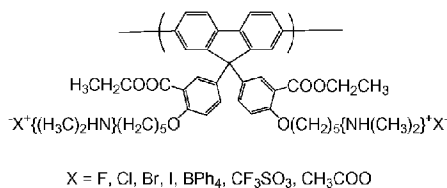
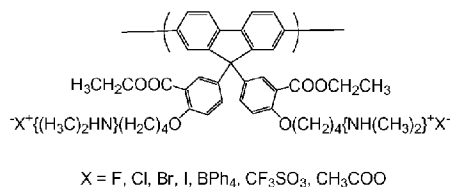
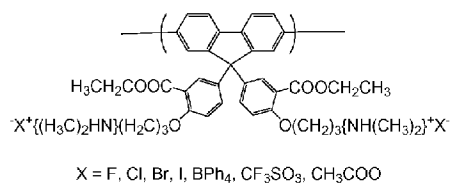
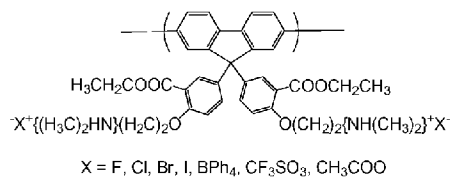
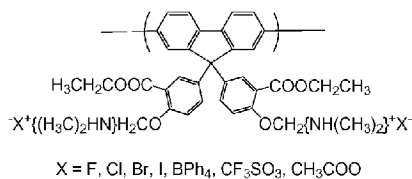
[0292]

[化30]



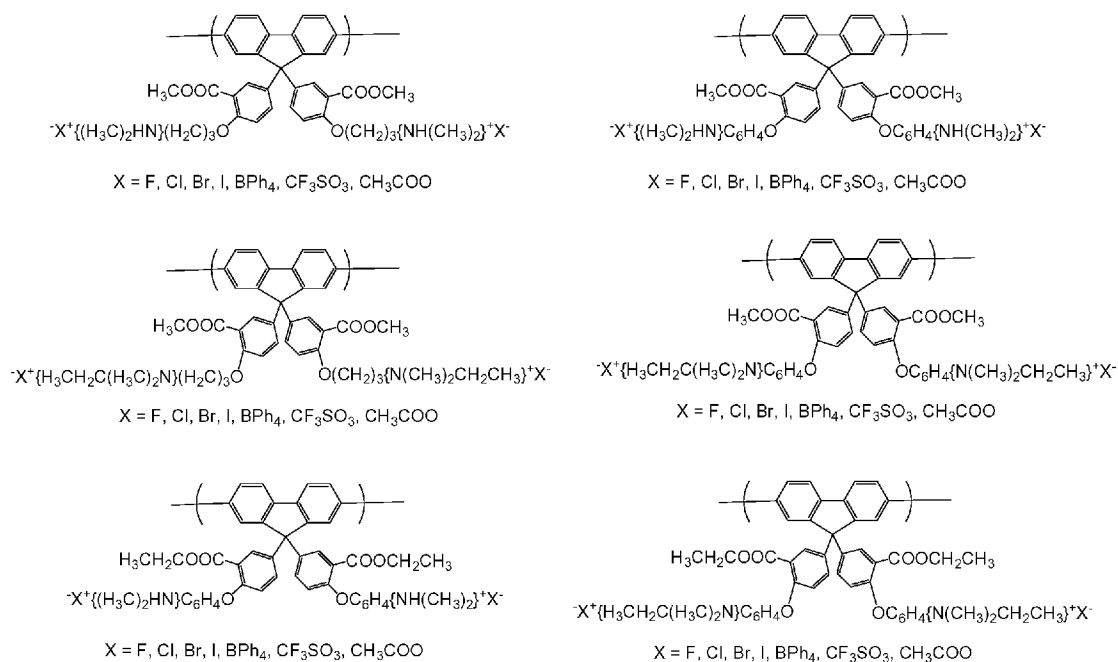
[0293]

[化31]



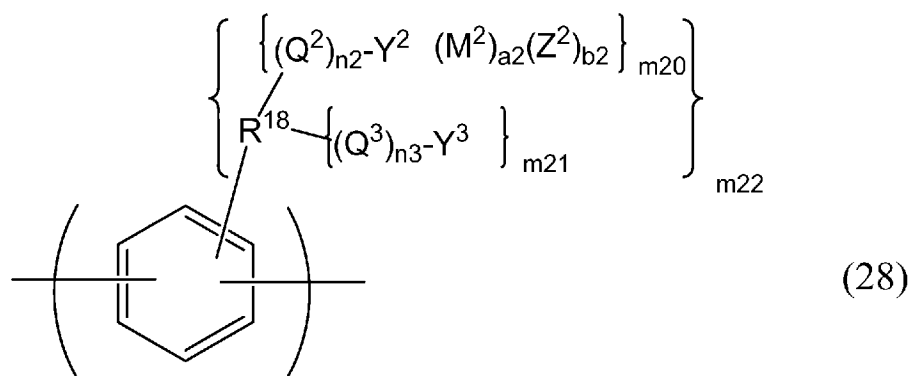
[0294]

[化32]



[0295] 式(15)で表される構造単位としては、得られるイオン性ポリマーの耐久性の観点からは、式(28)で表される構造単位が好ましい。

[0296] [化33]



式(28)中、R¹⁸は(1+m₂₀+m₂₁)価の有機基を表し、Q²、Q³、Y²、M²、Z²、Y³、n₂、a₂、b₂及びn₃は前述と同じ意味を表し、m₂₀、m₂₁及びm₂₂はそれぞれ独立に1以上の整数を表す。R¹⁸、m₂₀、m₂₁、Q²、Q³、Y²、M²、Z²、Y³、n₂、a₂、b₂及びn₃の各々は複数個ある場合、同一でも異なってもよい。

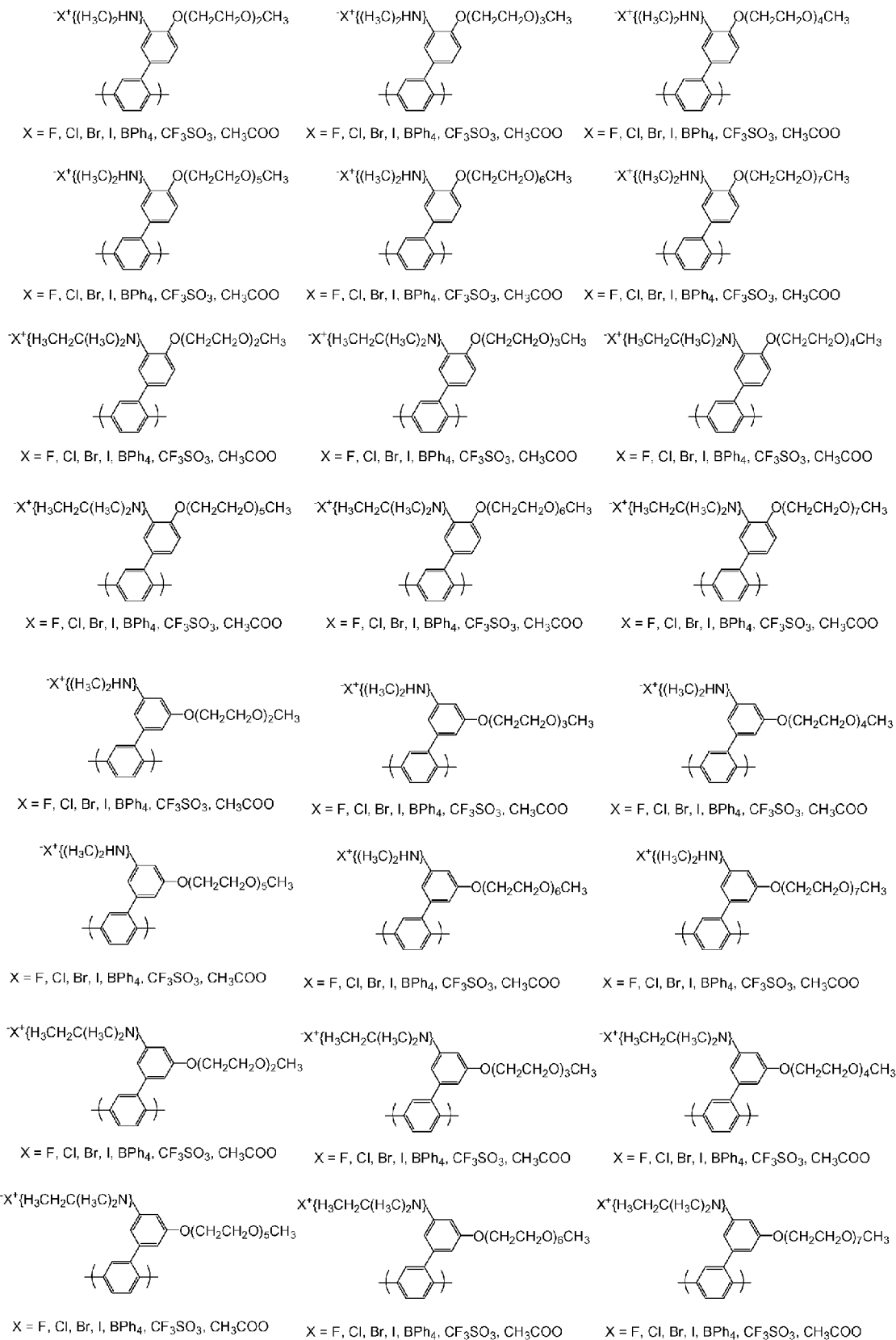
[0297] 式(28)中、R¹⁸で表される(1+m₂₀+m₂₁)価の有機基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基

、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1~20のアルキル基から ($m \times 20 + m \times 21$) 個の水素原子を除いた基；フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数6~30のアリール基から ($m \times 20 + m \times 21$) 個の水素原子を除いた基；メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ノニルオキシ基、ドデシルオキシ基、シクロプロピルオキシ基、シクロブチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、シクロノニルオキシ基、シクロドデシルオキシ基、ノルボニルオキシ基、アダマンチルオキシ基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1~50のアルコキシ基から ($m \times 20 + m \times 21$) 個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するアミノ基から ($m \times 20 + m \times 21$) 個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するシリル基から ($m \times 20 + m \times 21$) 個の水素原子を除いた基が挙げられ、原料モノマーの合成の容易さの観点からは、アルキル基から ($m \times 20 + m \times 21$) 個の水素原子を除いた基、アリール基から ($m \times 20 + m \times 21$) 個の水素原子を除いた基、アルコキシ基から ($m \times 20 + m \times 21$) 個の水素原子を除いた基が好ましい。

[0298] 式(28)で表される構造単位としては、以下の構造単位が挙げられる。

[0299]

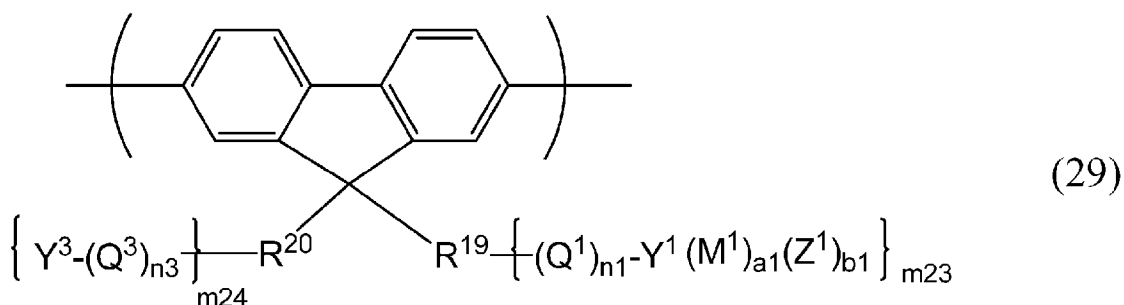
[化34]



[0300] (式(17)で表される構造単位の例)

式（１７）で表される構造単位としては、得られるイオン性ポリマーの電子輸送性の観点からは、式（２９）で表される構造単位が好ましい。

[0301] [化35]



式（２９）中、 R^{19} は単結合又は（１＋ $m23$ ）価の有機基を表し、 R^{20} は単結合又は（１＋ $m24$ ）価の有機基を表し、 Q^1 、 Q^3 、 Y^1 、 M^1 、 Z^1 、 Y^3 、 $n1$ 、 $a1$ 、 $b1$ 及び $n3$ は前述と同じ意味を表し、 $m23$ 及び $m24$ はそれぞれ独立に１以上の整数を表す。ただし、 R^{19} が単結合のとき $m23$ は１を表し、 R^{20} が単結合のとき $m24$ は１を表す。 Q^1 、 Q^3 、 Y^1 、 M^1 、 Z^1 、 Y^3 、 $n1$ 、 $a1$ 、 $b1$ 及び $n3$ の各々は複数個ある場合、同一でも異なっているもよい。

[0302] 式（２９）中、 R^{19} で表される（１＋ $m23$ ）価の有機基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、ｓ－ブチル基、ｔ－ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基、これらの基の中の少なくとも１個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数１～２０のアルキル基から（ $m23$ ）個の水素原子を除いた基；フェニル基、１－ナフチル基、２－ナフチル基、１－アントラセニル基、２－アントラセニル基、９－アントラセニル基、これらの基の中の少なくとも１個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数６～３０のアリール基から（ $m23$ ）個の水素原子を除いた基；メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ノニルオキシ基、ドデシルオキシ基、シクロプロピルオキシ基、シクロブチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基

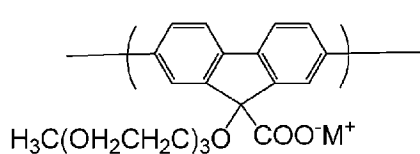
、シクロヘキシルオキシ基、シクロノニルオキシ基、シクロドデシルオキシ基、ノルボニルオキシ基、アダマンチルオキシ基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～50のアルコキシ基から(m23)個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するアミノ基から(m23)個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するシリル基から(m23)個の水素原子を除いた基が挙げられ、原料モノマーの合成の容易さの観点からは、アルキル基から(m23)個の水素原子を除いた基、アリール基から(m23)個の水素原子を除いた基、アルコキシ基から(m23)個の水素原子を除いた基が好ましい。

[0303] 式(29)中、 R^{20} で表される(1+m24)価の有機基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～20のアルキル基から(m24)個の水素原子を除いた基；フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数6～30のアリール基から(m24)個の水素原子を除いた基；メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ノニルオキシ基、ドデシルオキシ基、シクロプロピルオキシ基、シクロブチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、シクロノニルオキシ基、シクロドデシルオキシ基、ノルボニルオキシ基、アダマンチルオキシ基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～50のアルコキシ基から(m24)個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するアミノ基から(m24)個の水素原子を除

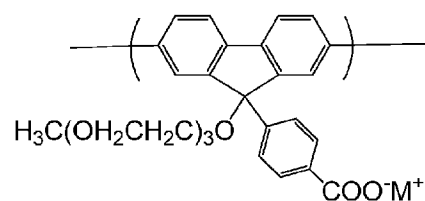
いた基；炭素原子を含む置換基を有するシリル基から（ $m \geq 4$ ）個の水素原子を除いた基が挙げられ、原料モノマーの合成の容易さの観点からは、アルキル基から（ $m \geq 4$ ）個の水素原子を除いた基、アリール基から（ $m \geq 4$ ）個の水素原子を除いた基、アルコキシ基から（ $m \geq 4$ ）個の水素原子を除いた基が好ましい。

[0304] 式（29）で表される構造単位としては、以下の構造単位が挙げられる。

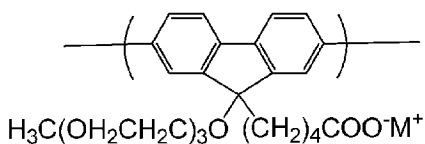
[0305] [化36]



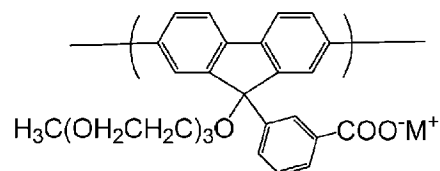
$\text{M} = \text{Li}, \text{Na}, \text{K}, \text{Cs}, \text{N}(\text{CH}_3)_4$



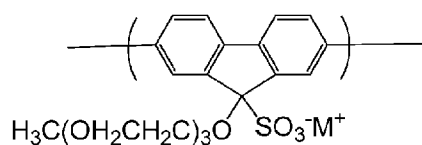
$\text{M} = \text{Li}, \text{Na}, \text{K}, \text{Cs}, \text{N}(\text{CH}_3)_4$



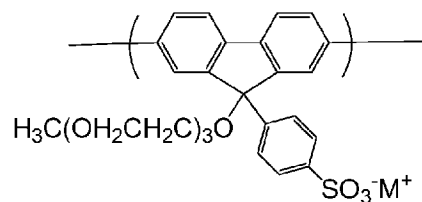
$\text{M} = \text{Li}, \text{Na}, \text{K}, \text{Cs}, \text{N}(\text{CH}_3)_4$



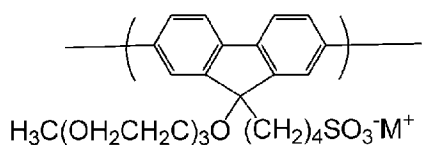
$\text{M} = \text{Li}, \text{Na}, \text{K}, \text{Cs}, \text{N}(\text{CH}_3)_4$



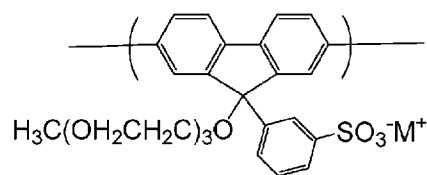
$\text{M} = \text{Li}, \text{Na}, \text{K}, \text{Cs}, \text{N}(\text{CH}_3)_4$



$\text{M} = \text{Li}, \text{Na}, \text{K}, \text{Cs}, \text{N}(\text{CH}_3)_4$



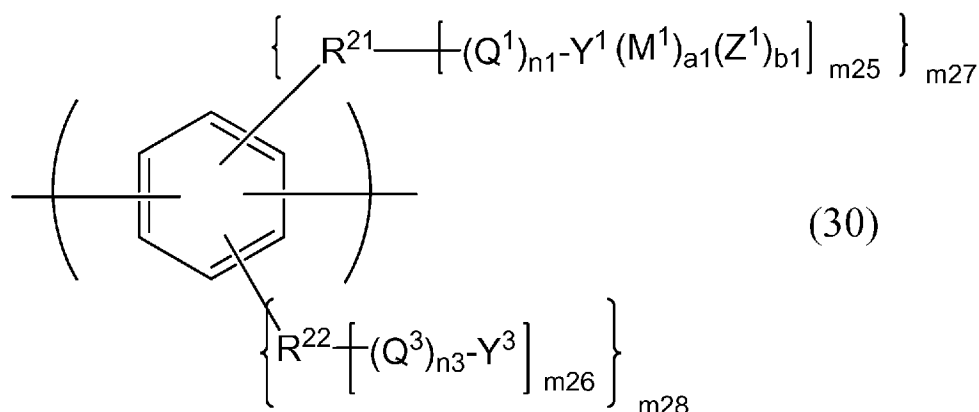
$\text{M} = \text{Li}, \text{Na}, \text{K}, \text{Cs}, \text{N}(\text{CH}_3)_4$



$\text{M} = \text{Li}, \text{Na}, \text{K}, \text{Cs}, \text{N}(\text{CH}_3)_4$

[0306] 式(17)で表される構造単位としては、得られるイオン性ポリマーの耐久性の観点からは、式(30)で表される構造単位が好ましい。

[0307] [化37]



式(30)中、 R^{21} は単結合又は $(1+m25)$ 価の有機基を表し、 R^{22} は単結合又は $(1+m26)$ 価の有機基を表し、 Q^1 、 Q^3 、 Y^1 、 M^1 、 Z^1 、 Y^3 、 $n1$ 、 $a1$ 、 $b1$ 及び $n3$ は前述と同じ意味を表す。 $m25$ 及び $m26$ はそれぞれ独立に1以上の整数を表す。ただし、 R^{21} が単結合のとき $m25$ は1を表し、 R^{22} が単結合のとき $m26$ は1を表す。 $m27$ 及び $m28$ はそれぞれ独立に1以上の整数を表す。 $m25$ 、 $m26$ 、 R^{21} 、 R^{22} 、 Q^1 、 Q^3 、 Y^1 、 M^1 、 Z^1 、 Y^3 、 $n1$ 、 $a1$ 、 $b1$ 及び $n3$ の各々は複数個ある場合、同一でも異なってもよい。

[0308] 式(30)中、 R^{21} で表される $(1+m25)$ 価の有機基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1~20のアルキル基から $(m25)$ 個の水素原子を除いた基；フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数6~30のアリール基から $(m25)$ 個の水素

原子を除いた基；メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ノニルオキシ基、ドデシルオキシ基、シクロプロピルオキシ基、シクロブチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、シクロノニルオキシ基、シクロドデシルオキシ基、ノルボニルオキシ基、アダマンチルオキシ基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～50のアルコキシ基から(m25)個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するアミノ基から(m25)個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するシリル基から(m25)個の水素原子を除いた基が挙げられ、原料モノマーの合成の容易さの観点からは、アルキル基から(m25)個の水素原子を除いた基、アリール基から(m25)個の水素原子を除いた基、アルコキシ基から(m25)個の水素原子を除いた基が好ましい。

[0309] 式(30)中、 R^{22} で表される(1+m26)価の有機基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～20のアルキル基から(m26)個の水素原子を除いた基；フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数6～30のアリール基から(m26)個の水素原子を除いた基；メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ノニルオキシ基、ドデシルオキシ基、シクロプロピルオキシ基、シクロブチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、シクロノニルオキシ基、シクロドデシルオキシ基、ノルボニルオキシ基、アダマンチルオキシ基、これらの基の中の少なく

とも 1 個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数 1 ～ 50 のアルコキシ基から (m 2 6) 個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するアミノ基から (m 2 6) 個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するシリル基から (m 2 6) 個の水素原子を除いた基が挙げられ、原料モノマーの合成の容易さの観点からは、アルキル基から (m 2 6) 個の水素原子を除いた基、アリール基から (m 2 6) 個の水素原子を除いた基、アルコキシ基から (m 2 6) 個の水素原子を除いた基が好ましい。

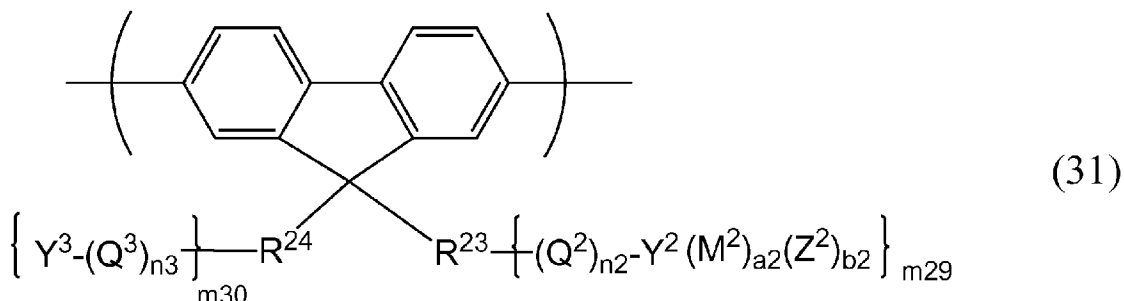
[0310] 式 (30) で表される構造単位としては、以下の構造単位が挙げられる。

[0311]

[0312] (式(20)で表される構造単位の例)

式(20)で表される構造単位としては、得られる電子輸送性の観点からは、式(31)で表される構造単位が好ましい。

[0313] [化39]



式(31)中、 R^{23} は単結合又は $(1+m_{29})$ 価の有機基を表し、 R^{24} は単結合又は $(1+m_{30})$ 価の有機基を表し、 Q^2 、 Q^3 、 Y^2 、 M^2 、 Z^2 、 Y^3 、 n_2 、 a_2 、 b_2 及び n_3 は前述と同じ意味を表す。 m_{29} 及び m_{30} はそれぞれ独立に1以上の整数を表す。ただし、 R^{23} が単結合のとき m_{29} は1を表し、 R^{24} が単結合のとき m_{30} は1を表す。 Q^2 、 Q^3 、 Y^2 、 M^2 、 Z^2 、 Y^3 、 n_2 、 a_2 、 b_2 及び n_3 の各々は複数個ある場合、同一でも異なってもよい。

[0314] 式(31)中、 R^{23} で表される $(1+m_{29})$ 価の有機基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1~20のアルキル基から (m_{29}) 個の水素原子を除いた基；フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数6~30のアリール基から (m_{29}) 個の水素原子を除いた基；メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ノニルオキシ基、ドデシルオキシ基、

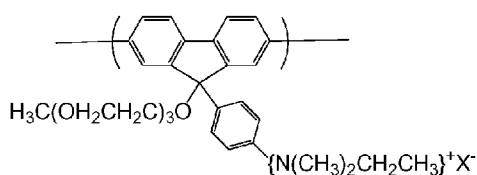
シクロプロピルオキシ基、シクロブチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、シクロノニルオキシ基、シクロドデシルオキシ基、ノルボニルオキシ基、アダマンチルオキシ基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～50のアルコキシ基から(m29)個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するアミノ基から(m29)個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するシリル基から(m29)個の水素原子を除いた基が挙げられ、原料モノマーの合成の容易さの観点からは、アルキル基から(m29)個の水素原子を除いた基、アリール基から(m29)個の水素原子を除いた基、アルコキシ基から(m29)個の水素原子を除いた基が好ましい。

[0315] 式(31)中、 R^{24} で表される(1+m30)価の有機基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～20のアルキル基から(m30)個の水素原子を除いた基；フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数6～30のアリール基から(m30)個の水素原子を除いた基；メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ノニルオキシ基、ドデシルオキシ基、シクロプロピルオキシ基、シクロブチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、シクロノニルオキシ基、シクロドデシルオキシ基、ノルボニルオキシ基、アダマンチルオキシ基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1～50のアルコキシ基から(m30)個の水素原子を除いた基

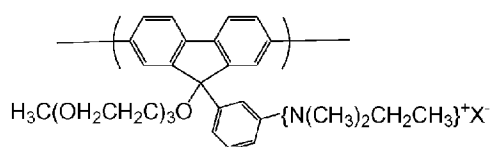
；炭素原子を含む置換基を有するアミノ基から（ $m+30$ ）個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するシリル基から（ $m+30$ ）個の水素原子を除いた基が挙げられ、原料モノマーの合成の容易さの観点からは、アルキル基から（ $m+30$ ）個の水素原子を除いた基、アリール基から（ $m+30$ ）個の水素原子を除いた基、アルコキシ基から（ $m+30$ ）個の水素原子を除いた基が好ましい。

[0316] 式(31)で表される構造単位としては、以下の構造単位が挙げられる。

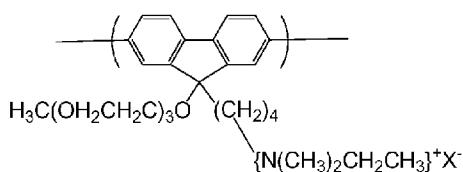
[0317] [化40]



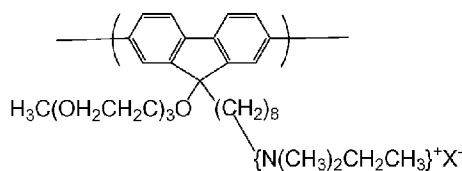
X = F, Cl, Br, I, BPh₄, CF₃SO₃, CH₃COO



X = F, Cl, Br, I, BPh₄, CF₃SO₃, CH₃COO

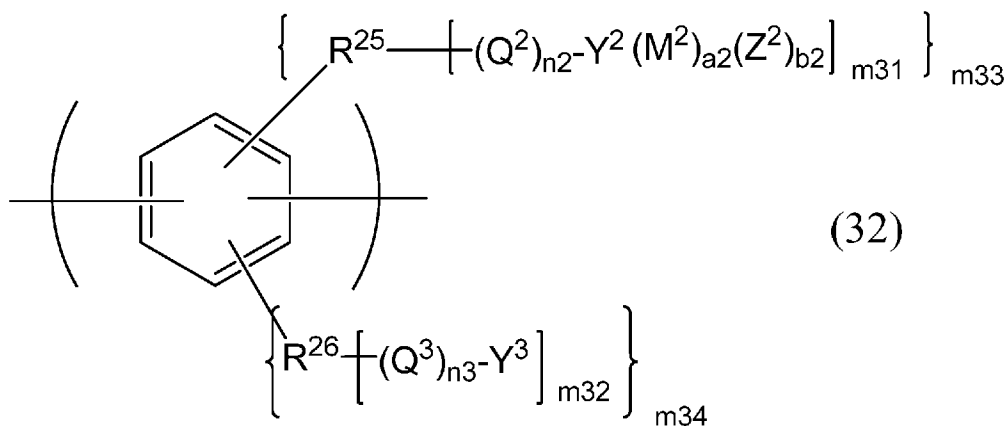


X = F, Cl, Br, I, BPh₄, CF₃SO₃, CH₃COO


$$X = \text{F, Cl, Br, I, BPh}_4, \text{CF}_3\text{SO}_3, \text{CH}_3\text{COO}$$

[0318] 式(20)で表される構造単位としては、得られるイオン性ポリマーの耐久性の観点からは、式(32)で表される構造単位が好ましい。

[0319] [化41]



式(32)中、 R^{25} は単結合又は $(1+m31)$ 価の有機基を表し、 R^{26} は単結合又は $(1+m32)$ 価の有機基を表し、 Q^2 、 Q^3 、 Y^2 、 M^2 、 Z^2 、 Y^3 、 n^2 、 a^2 、 b^2 及び n^3 は前述と同じ意味を表す。 $m31$ 及び $m32$ はそれぞれ独立に1以上の整数を表す。ただし、 R^{25} が単結合のとき $m31$ は1を表し、 R^{26} が単結合のとき $m32$ は1を表す。 $m33$ 及び $m34$ はそれぞれ独立に1以上の整数を表す。 $m31$ 、 $m32$ 、 R^{25} 、 R^{26} 、 Q^2 、 Q^3 、 Y^2 、 M^2 、 Z^2 、 Y^3 、 n^2 、 a^2 、 b^2 及び n^3 の各々は複数個ある場合、同一でも異なってもよい。

[0320] 式(32)中、 R^{25} で表される $(1+m31)$ 価の有機基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1~20のアルキル基から $(m31)$ 個の水素原子を除いた基；フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数6~30のアリール基から $(m31)$ 個の水素原子を除いた基；メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ノニルオキシ基、ドデシルオキシ基、シクロプロピルオキシ基、シクロブチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、シクロノニルオキシ基、シクロドデシルオキシ基、ノルボニルオキシ基、アダマンチルオキシ基、これらの基の中の少なくとも1個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数1~50のアルコキシ基から $(m31)$ 個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するアミノ基から $(m31)$ 個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するシリル基から $(m31)$ 個の水素原子を除いた基が挙げられ、原料モノマーの合成の容易さの観点からは、アル

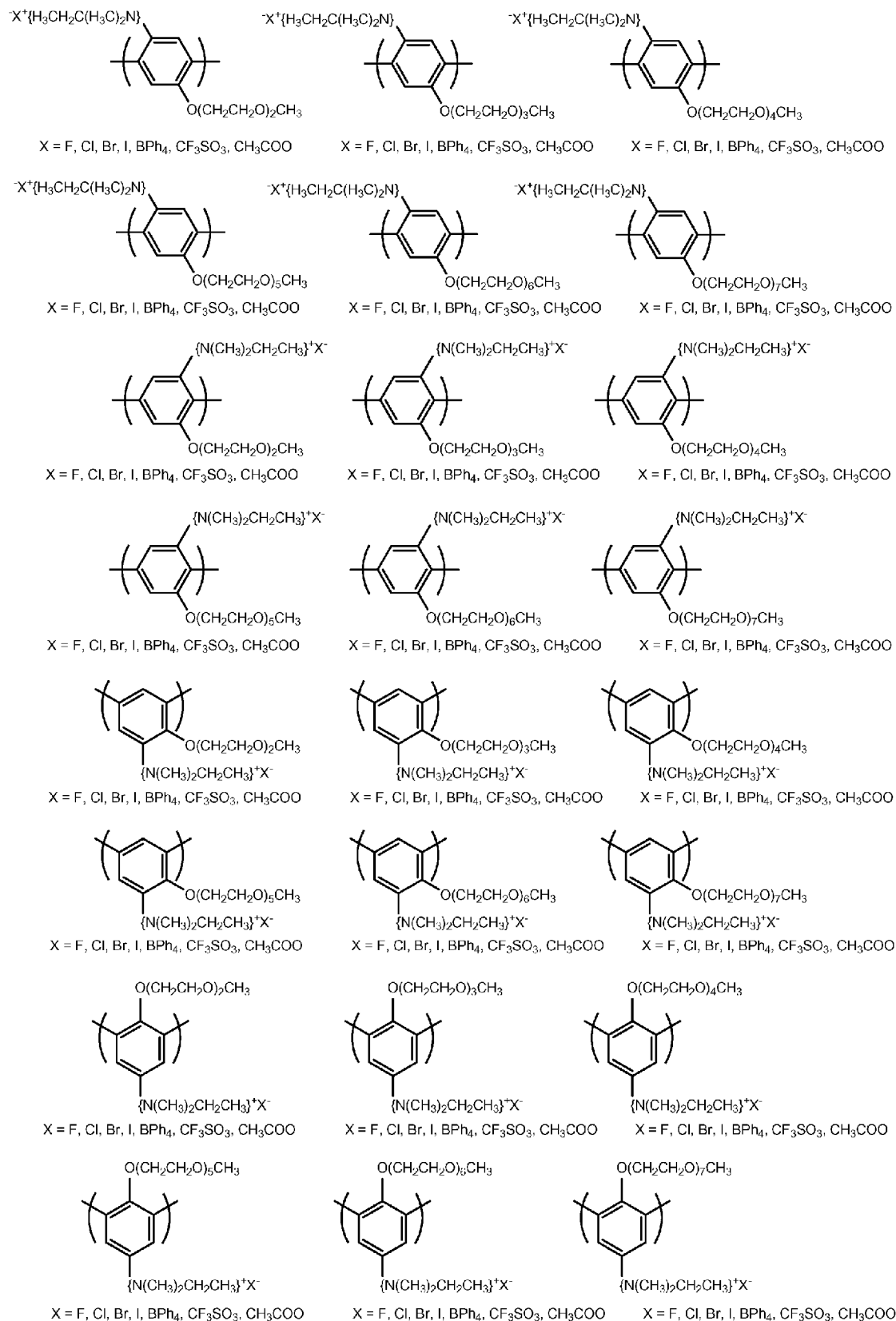
キル基から (m 3 1) 個の水素原子を除いた基、アリール基から (m 3 1) 個の水素原子を除いた基、アルコキシ基から (m 3 1) 個の水素原子を除いた基が好ましい。

[0321] 式 (3 2) 中、 R^{26} で表される (1 + m 3 2) 価の有機基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基、これらの基の中の少なくとも 1 個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数 1 ~ 20 のアルキル基から (m 3 2) 個の水素原子を除いた基；フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、これらの基の中の少なくとも 1 個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数 6 ~ 30 のアリール基から (m 3 2) 個の水素原子を除いた基；メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ノニルオキシ基、ドデシルオキシ基、シクロプロピルオキシ基、シクロブチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、シクロノニルオキシ基、シクロドデシルオキシ基、ノルボニルオキシ基、アダマンチルオキシ基、これらの基の中の少なくとも 1 個の水素原子を置換基で置換した基等の、置換基を有し又は有さない炭素原子数 1 ~ 50 のアルコキシ基から (m 3 2) 個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するアミノ基から (m 3 2) 個の水素原子を除いた基；炭素原子を含む置換基を有するシリル基から (m 3 2) 個の水素原子を除いた基が挙げられ、原料モノマーの合成の容易さの観点からは、アルキル基から (m 3 2) 個の水素原子を除いた基、アリール基から (m 3 2) 個の水素原子を除いた基、アルコキシ基から (m 3 2) 個の水素原子を除いた基が好ましい。

[0322] 式 (3 2) で表される構造単位としては、以下の構造単位が挙げられる。

[0323]

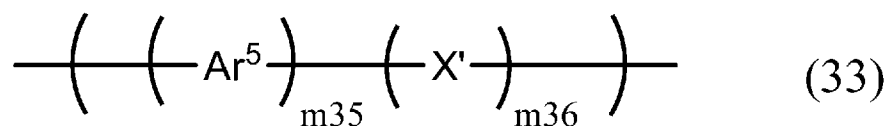
[化42]



[0324] (その他の構造単位)

本発明に用いられるイオン性ポリマーは、さらに式(33)で表される1種以上の構造単位を有していてもよい。

[0325] [化43]



式(33)中、 Ar^5 は置換基を有し若しくは有さない2価の芳香族基又は置換基を有し若しくは有さない2価の芳香族アミン残基を表し、 X' は置換基を有し若しくは有さないイミノ基、置換基を有し若しくは有さないシリレン基、置換基を有し若しくは有さないエテニレン基又はエチニレン基を表す。 $m35$ 及び $m36$ はそれぞれ独立に0又は1を表し、 $m35$ 及び $m36$ の少なくとも1つは1である。

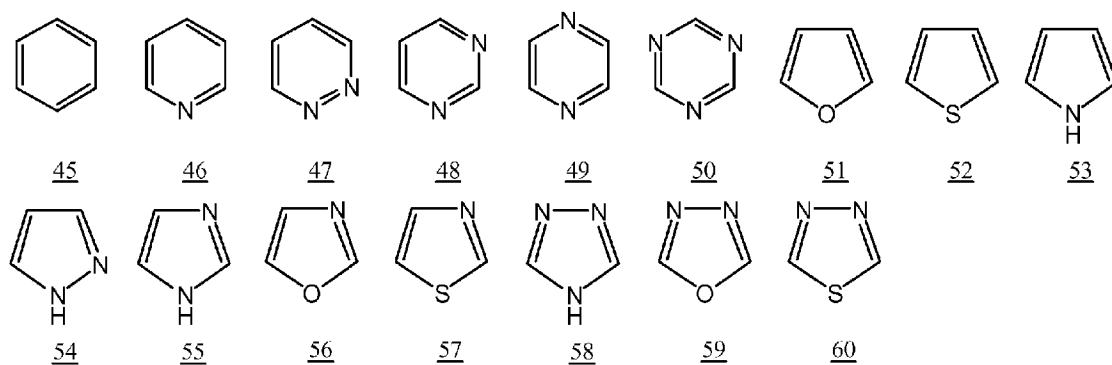
[0326] 式(33)中の Ar^5 で表される2価の芳香族基としては、2価の芳香族炭化水素基、2価の芳香族複素環基が挙げられる。該2価の芳香族基としては、ベンゼン環、ピリジン環、1,2-ジアジン環、1,3-ジアジン環、1,4-ジアジン環、1,3,5-トリアジン環、フラン環、ピロール環、チオフェン環、ピラゾール環、イミダゾール環、オキサゾール環、オキサジアゾール環、アザジアゾール環等の単環式芳香環から水素原子を2個除いた2価の基；該単環式芳香環からなる群から選ばれる二つ以上が縮合した縮合多環式芳香環から水素原子を2個除いた2価の基；該単環式芳香環及び該縮合多環式芳香環からなる群より選ばれる2つ以上の芳香環を、単結合、エテニレン基又はエチニレン基で連結してなる芳香環集合から水素原子を2個除いた2価の基；該縮合多環式芳香環又は該芳香環集合の隣り合う2つの芳香環をメチレン基、エチレン基、カルボニル基、イミノ基等の2価の基で橋かけた架橋を有する有橋多環式芳香環から水素原子を2個除いた2価の基等が挙げられる。

[0327] 前記縮合多環式芳香環において、縮合する単環式芳香環の数は、イオン性ポリマーの溶解性の観点からは、2~4が好ましく、2~3がより好ましく、2がさらに好ましい。前記芳香環集合において、連結される芳香環の数は

、溶解性の観点からは、2～4が好ましく、2～3がより好ましく、2がさらに好ましい。前記有橋多環式芳香環において、橋かけされる芳香環の数は、イオン性ポリマーの溶解性の観点からは、2～4が好ましく、2～3がより好ましく、2がさらに好ましい。

[0328] 前記単環式芳香環としては、例えば、以下の構造45～60で表される環が挙げられる。

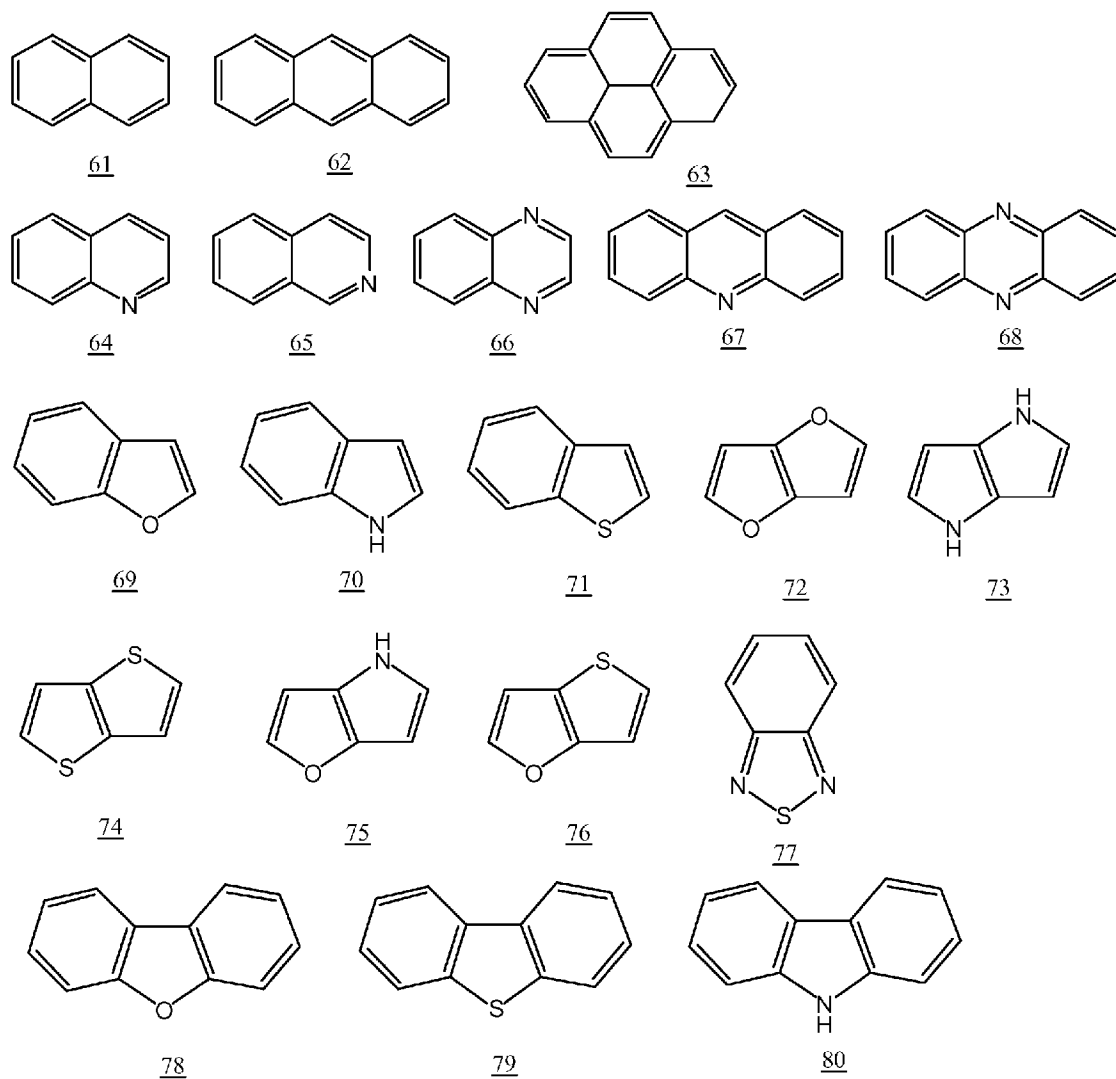
[0329] [化44]



[0330] 前記縮合多環式芳香環としては、例えば、以下の構造61～80で表される環が挙げられる。

[0331]

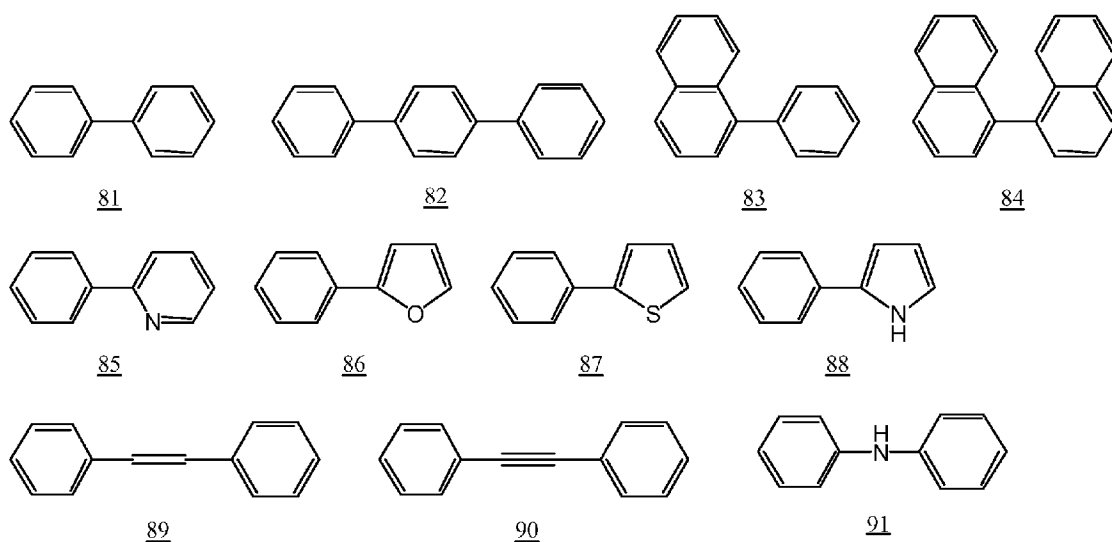
[化45]



[0332] 前記芳香環集合としては、例えば、以下の構造 81～91 で表される環が挙げられる。

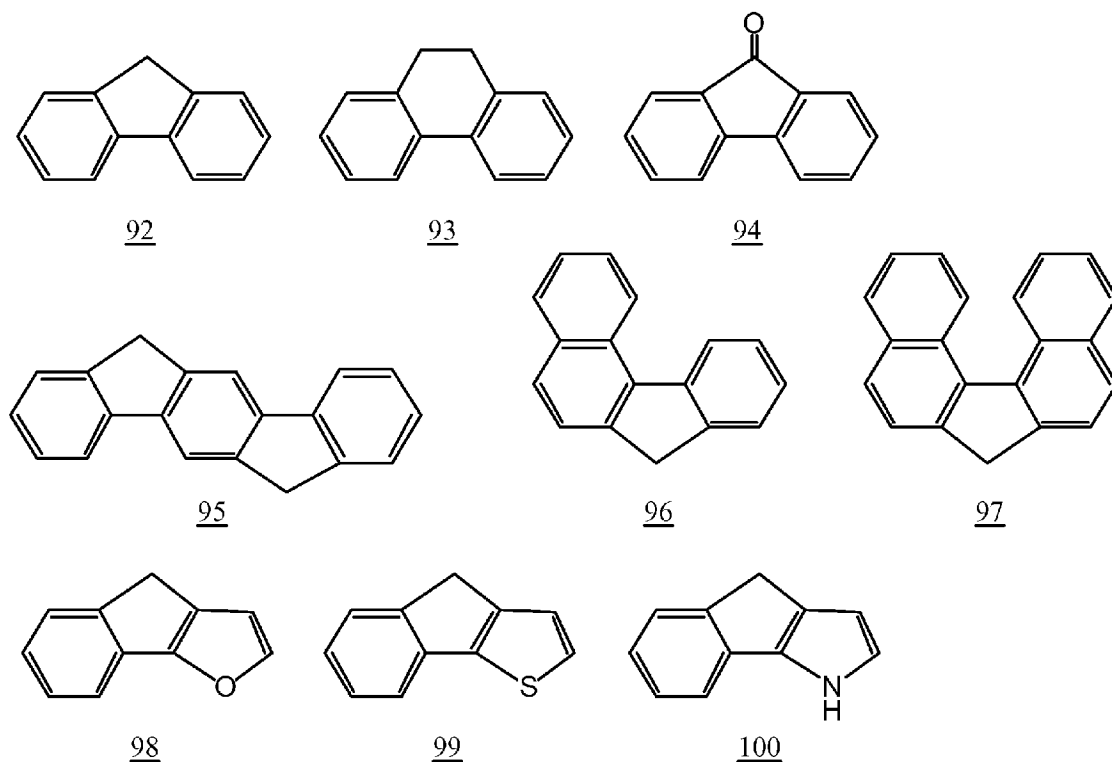
[0333]

[化46]



[0334] 前記有橋多環式芳香環としては、例えば、以下の構造92～100で表される環が挙げられる。

[0335] [化47]



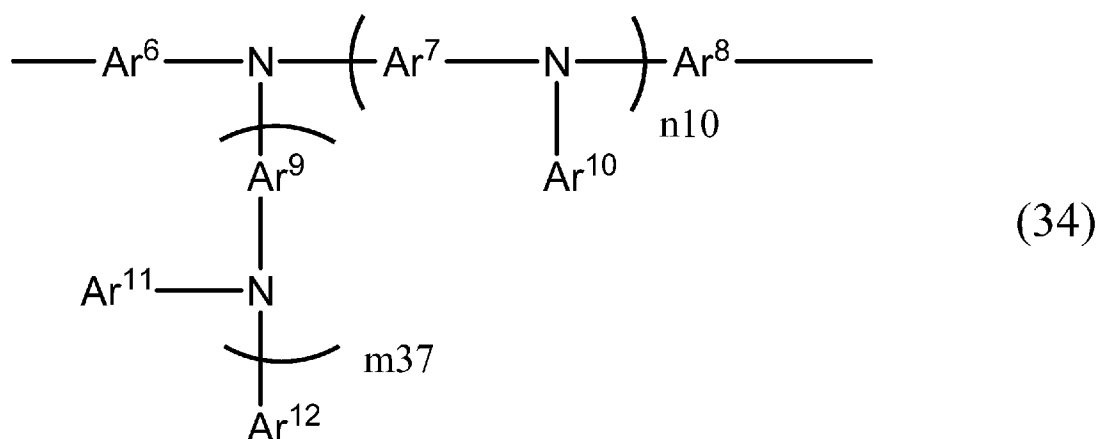
[0336] 前記イオン性ポリマーの電子受容性及び正孔受容性のいずれか一方又は両方の観点からは、 Ar^5 で表される2価の芳香族基は構造45～60、61～71、77～80、91、92、93又は96で表される環から水素原子を

2個除いた2価の基が好ましく、構造45～50、59、60、77、80、91、92又は96で表される環から水素原子を2個除いた2価の基がより好ましい。

[0337] 上記の2価の芳香族基は、置換基を有していてもよい。当該置換基としては、前述のQ¹に関する説明（（式（1）で表される基）の項）中で例示した置換基と同様の置換基が挙げられる。

[0338] 式（33）中のAr⁵で表される2価の芳香族アミン残基としては、式（34）で表される基が挙げられる。

[0339] [化48]



式（34）中、Ar⁶、Ar⁷、Ar⁸及びAr⁹は、それぞれ独立に、置換基を有し若しくは有さないアリーレン基又は置換基を有し若しくは有さない2価の複素環基を表す。Ar¹⁰、Ar¹¹及びAr¹²は、それぞれ独立に、置換基を有し若しくは有さないアリール基又は置換基を有し若しくは有さない1価の複素環基を表す。n10及びm37は、それぞれ独立に、0又は1を表す。

[0340] 前記アリーレン基、アリール基、2価の複素環基、1価の複素環基が有していてもよい置換基としては、ハロゲン原子、アルキル基、アルキルオキシ基、アルキルチオ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アリールアルキル基、アリールアルキルオキシ基、アリールアルキルチオ基、アルケニル基、アルキニル基、アリールアルケニル基、アリールアルキニル基、アシル基、アシルオキシ基、アミド基、酸イミド基、イミン残基、置換

アミノ基、置換シリル基、置換シリルオキシ基、置換シリルチオ基、置換シリルアミノ基、シアノ基、ニトロ基、1価の複素環基、ヘテロアリールオキシ基、ヘテロアリールチオ基、アルキルオキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アリールアルキルオキシカルボニル基、ヘテロアリールオキシカルボニル基及びカルボキシル基等が挙げられる。該置換基は、ビニル基、アセチレン基、ブテニル基、アクリル基、アクリレート基、アクリルアミド基、メタクリル基、メタクリレート基、メタクリルアミド基、ビニルエーテル基、ビニルアミノ基、シラノール基、小員環（シクロプロピル基、シクロブチル基、エポキシ基、オキセタン基、ジケテン基、エピスルフィド基等）を有する基、ラクトン基、ラクタム基、又はシロキサン誘導体の構造を含有する基等の架橋基であってもよい。

[0341] $n10$ が0の場合、 Ar^6 中の炭素原子と Ar^8 中の炭素原子とが直接結合してもよく、 $-O-$ 、 $-S-$ 等の2価の基を介して結合していてもよい。

[0342] Ar^{10} 、 Ar^{11} 、 Ar^{12} で表されるアリール基、1価の複素環基としては、前記で置換基として説明し例示したアリール基、1価の複素環基と同様である。

[0343] Ar^6 、 Ar^7 、 Ar^8 、 Ar^9 で表されるアリーレン基としては、芳香族炭化水素から芳香環を構成する炭素原子に結合した水素原子2個を除いた残りの原子団が挙げられ、ベンゼン環を持つ基、縮合環を持つ基、独立したベンゼン環又は縮合環2個以上が単結合又は2価の有機基、例えば、ビニレン基等のアルケニレン基を介して結合した基等が挙げられる。アリーレン基は、炭素原子数が通常6～60であり、7～48であることが好ましい。アリーレン基の具体例としては、フェニレン基、ビフェニレン基、 $C_1 \sim C_{17}$ アルコキシフェニレン基、 $C_1 \sim C_{17}$ アルキルフェニレン基、1-ナフチレン基、2-ナフチレン基、1-アントラセニレン基、2-アントラセニレン基、9-アントラセニレン基が挙げられる。前記アリール基中の水素原子はフッ素原子で置換されていてもよい。該当するフッ素原子置換アリール基としては、テトラフルオロフェニレン基等が挙げられる。アリール基の中では、フェニ

レン基、ビフェニレン基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェニレン基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルフェニレン基が好ましい。

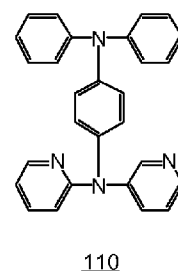
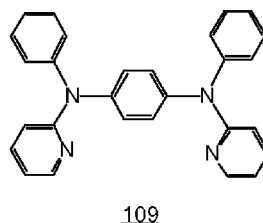
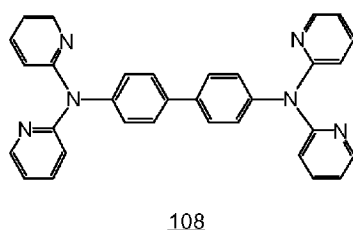
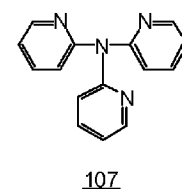
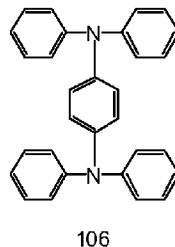
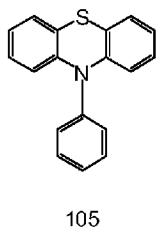
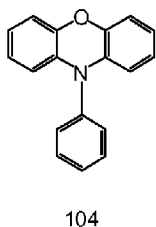
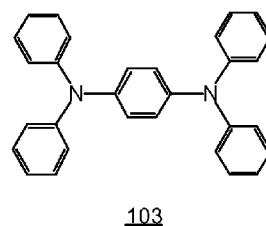
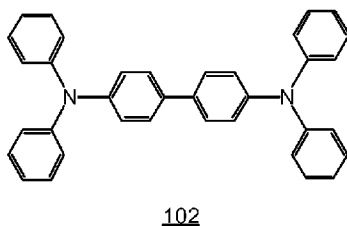
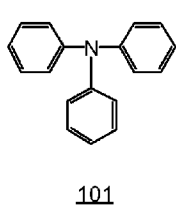
[0344] Ar^6 、 Ar^7 、 Ar^8 、 Ar^9 で表される2価の複素環基としては、複素環式化合物から水素原子2個を除いた残りの原子団が挙げられる。ここで、複素環式化合物とは、環式構造をもつ有機化合物のうち、環を構成する元素として、炭素原子だけでなく、酸素原子、硫黄原子、窒素原子、リン原子、ホウ素原子、ケイ素原子、セレン原子、テルル原子、ヒ素原子等のヘテロ原子を含む有機化合物をいう。2価の複素環基は置換基を有していてもよい。2価の複素環基は、炭素原子数が通常4～60であり、4～20が好ましい。なお、2価の複素環基の炭素原子数には、置換基の炭素原子数は含まないものとする。このような2価の複素環基としては、例えば、チオフェンジイル基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルチオフェンジイル基、ピロールジイル基、フランジイル基、ピリジンジイル基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルピリジンジイル基、ピリダジンジイル基、ピリミジンジイル基、ピラジンジイル基、トリアジンジイル基、ピロリジンジイル基、ピペリジンジイル基、キノリンジイル基、イソキノリンジイル基が挙げられ、中でも、チオフェンジイル基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルチオフェンジイル基、ピリジンジイル基及び $C_1 \sim C_{12}$ アルキルピリジンジイル基がより好ましい。

[0345] 構造単位として2価の芳香族アミン残基を含むイオン性ポリマーは、さらに他の構造単位を有していてもよい。他の構造単位としては、フェニレン基、フルオレンジイル基等のアリーレン基等が挙げられる。なお、これらのイオン性ポリマーの中では、架橋基を含んでいるものが好ましい。

[0346] また、式(34)で表される2価の芳香族アミン残基としては、下記構造101～110で表される芳香族アミンから水素原子を2個除いた基が例示される。

[0347]

[化49]



[0348] 構造 101～110 で表される芳香族アミンは 2 価の芳香族アミン残基を生成しうる範囲で置換基を有していてもよく、該置換基としては、前述の Q¹ に関する説明中で例示した置換基と同様の置換基が挙げられ、置換基が複数個存在する場合には、それらは同一でも異なってもよい。

[0349] 式 (33) 中、X' は置換基を有し若しくは有さないイミノ基、置換基を有し若しくは有さないシリレン基、置換基を有し若しくは有さないエテニレン基又はエチニレン基を表す。イミノ基、シリレン基若しくはエテニレン基が有していてもよい置換基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、2-エチルヘキシル基、ノニル基、デシル基、3,7-ジメチルオクチル基、ラウリル基等の炭素原子数 1～20 のアルキル基；フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基等の炭素原子数 6～30 のアリール基等が挙げられ、置換基

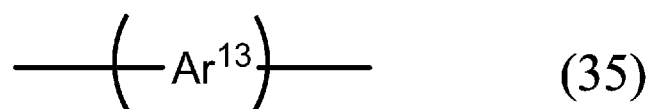
が複数個存在する場合には、それらは同一でも異なってもよい。

[0350] 前記イオン性ポリマーの空気、湿気又は熱に対する安定性の観点からは、 X' はイミノ基、エテニレン基、エチニレン基が好ましい。

[0351] 前記イオン性ポリマーの電子受容性、正孔受容性の観点からは、 m_{35} が1であり、 m_{36} が0であることが好ましい。

[0352] 式(33)で表される構造単位としては、前記イオン性ポリマーの電子受容性の観点からは、式(35)で表される構造単位が好ましい。

[0353] [化50]



式(35)中、 Ar^{13} は、置換基を有し若しくは有さないピリジンジイル基、置換基を有し若しくは有さないピラジンジイル基、置換基を有し若しくは有さないピリミジンジイル基、置換基を有し若しくは有さないピリダジンジイル基又は置換基を有し若しくは有さないトリアジンジイル基を表す。

[0354] ピリジンジイル基が有していてもよい置換基としては、前述の Q' に関する説明中で例示した置換基と同様の置換基が挙げられる。置換基が複数個存在する場合には、それらは同一でも異なってもよい。

ピラジンジイル基が有していてもよい置換基としては、前述の Q' に関する説明中で例示した置換基と同様の置換基が挙げられる。置換基が複数個存在する場合には、それらは同一でも異なってもよい。

ピリミジンジイル基が有していてもよい置換基としては、前述の Q' に関する説明中で例示した置換基と同様の置換基が挙げられる。置換基が複数個存在する場合には、それらは同一でも異なってもよい。

ピリダジンジイル基が有していてもよい置換基としては、前述の Q' に関する説明中で例示した置換基と同様の置換基が挙げられる。置換基が複数個存在する場合には、それらは同一でも異なってもよい。

トリアジンジイル基が有していてもよい置換基としては、前述の Q' に関する説明中で例示した置換基と同様の置換基が挙げられる。置換基が複数個存

在する場合には、それらは同一でも異なってもよい。

[0355] (構造単位の割合)

本実施形態で用いられるイオン性ポリマーに含まれる式(13)で表される構造単位、式(15)で表される構造単位、式(17)で表される構造単位、及び式(20)で表される構造単位の合計の割合は、有機EL素子の発光効率の観点からは、末端の構造単位を除く該イオン性ポリマーに含まれる全構造単位中、30～100モル%であることがより好ましい。

[0356] (末端の構造単位)

なお、本発明に用いられるイオン性ポリマーの末端の構造単位(末端基)としては、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、イソアミル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ラウリル基、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、イソプロピルオキシ基、ブトキシ基、イソブトキシ基、s-ブトキシ基、t-ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、ヘプチルオキシ基、オクチルオキシ基、2-エチルヘキシルオキシ基、ノニルオキシ基、デシルオキシ基、3,7-ジメチルオクチルオキシ基、ラウリルオキシ基、メチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、イソプロピルチオ基、ブチルチオ基、イソブチルチオ基、s-ブチルチオ基、t-ブチルチオ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基、シクロヘキシルチオ基、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、メトキシフェニル基、エトキシフェニル基、プロピルオキシフェニル基、イソプロピルオキシフェニル基、ブトキシフェニル基、イソブトキシフェニル基、s-ブトキシフェニル基、t-ブトキシフェニル基、ペンチルオキシフェニル基、ヘキシルオキシフェニル基、シクロヘキシルオキシフェニル基、ヘプチルオキシフェニル基、オクチルオキシフェニル基、2-エチルヘキシルオキシフェニル基、ノニルオキシフェニル基、デシルオキシフェニル基、3,7-ジメチルオクチルオキシフェニル基、ラウリルオキシフ

エニル基、メチルフェニル基、エチルフェニル基、ジメチルフェニル基、プロピルフェニル基、メシチル基、メチルエチルフェニル基、イソプロピルフェニル基、ブチルフェニル基、イソブチルフェニル基、*t*-ブチルフェニル基、ペンチルフェニル基、イソアミルフェニル基、ヘキシルフェニル基、ヘプチルフェニル基、オクチルフェニル基、ノニルフェニル基、デシルフェニル基、ドデシルフェニル基、メチルアミノ基、ジメチルアミノ基、エチルアミノ基、ジエチルアミノ基、プロピルアミノ基、ジプロピルアミノ基、イソプロピルアミノ基、ジイソプロピルアミノ基、ブチルアミノ基、イソブチルアミノ基、*s*-ブチルアミノ基、*t*-ブチルアミノ基、ペンチルアミノ基、ヘキシルアミノ基、シクロヘキシルアミノ基、ヘプチルアミノ基、オクチルアミノ基、2-エチルヘキシルアミノ基、ノニルアミノ基、デシルアミノ基、3, 7-ジメチルオクチルアミノ基、ラウリルアミノ基、シクロペンチルアミノ基、ジシクロペンチルアミノ基、シクロヘキシルアミノ基、ジシクロヘキシルアミノ基、ジトリフルオロメチルアミノ基、フェニルアミノ基、ジフェニルアミノ基、($C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェニル)アミノ基、ジ($C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェニル)アミノ基、ジ($C_1 \sim C_{12}$ アルキルフェニル)アミノ基、1-ナフチルアミノ基、2-ナフチルアミノ基、ペンタフルオロフェニルアミノ基、ピリジルアミノ基、ピリダジニルアミノ基、ピリミジニルアミノ基、ピラジニルアミノ基、トリアジニルアミノ基、(フェニル- $C_1 \sim C_{12}$ アルキル)アミノ基、($C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェニル- $C_1 \sim C_{12}$ アルキル)アミノ基、($C_1 \sim C_{12}$ アルキルフェニル- $C_1 \sim C_{12}$ アルキル)アミノ基、ジ($C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェニル- $C_1 \sim C_{12}$ アルキル)アミノ基、ジ($C_1 \sim C_{12}$ アルキルフェニル- $C_1 \sim C_{12}$ アルキル)アミノ基、1-ナフチル- $C_1 \sim C_{12}$ アルキルアミノ基、2-ナフチル- $C_1 \sim C_{12}$ アルキルアミノ基、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、トリイソプロピルシリル基、イソプロピルジメチルシリル基、イソプロピルジエチルシリル基、*t*-ブチルジメチルシリル基、ペンチルジメチルシリル基、ヘキシルジメチルシリル基、ヘプチルジメチルシリル基、オクチルジメチル

シリル基、2-エチルヘキシルジメチルシリル基、ノニルジメチルシリル基、デシルジメチルシリル基、3,7-ジメチルオクチルジメチルシリル基、ラウリルジメチルシリル基、(フェニル-C₁~C₁₂アルキル)シリル基、(C₁~C₁₂アルコキシフェニル-C₁~C₁₂アルキル)シリル基、(C₁~C₁₂アルキルフェニル-C₁~C₁₂アルキル)シリル基、(1-ナフチル-C₁~C₁₂アルキル)シリル基、(2-ナフチル-C₁~C₁₂アルキル)シリル基、(フェニル-C₁~C₁₂アルキル)ジメチルシリル基、トリフェニルシリル基、トリ(p-キシリル)シリル基、トリベンジルシリル基、ジフェニルメチルシリル基、t-ブチルジフェニルシリル基、ジメチルフェニルシリル基、チエニル基、C₁~C₁₂アルキルチエニル基、ピロリル基、フリル基、ピリジル基、C₁~C₁₂アルキルピリジル基、ピリダジニル基、ピリミジル基、ピラジニル基、トリアジニル基、ピロリジル基、ピペリジル基、キノリル基、イソキノリル基、ヒドロキシ基、メルカプト基、フッ素原子、塩素原子、臭素原子及びヨウ素原子等が挙げられる。前記末端の構造単位が複数個存在する場合には、それらは同一でも異なってもよい。

[0357] (イオン性ポリマーの特性)

本実施形態で用いられるイオン性ポリマーは、好ましくは共役化合物である。本発明で用いられるイオン性ポリマーが共役化合物であるとは、該イオン性ポリマーが主鎖中に、多重結合（例えば、二重結合、三重結合）又は窒素原子、酸素原子等が有する非共有電子対が1つの単結合を挟んで連なっている領域を含むことを意味する。該イオン性ポリマーは、共役化合物である場合、共役化合物の電子輸送性の観点から、{(多重結合又は窒素原子、酸素原子等が有する非共有電子対が1つの単結合を挟んで連なっている領域に含まれる主鎖上の原子の数) / (主鎖上の全原子の数)} × 100%で計算される比が50%以上であることが好ましく、60%以上であることがより好ましく、70%以上であることがより好ましく、80%以上であることがより好ましく、90%以上であることがさらに好ましい。

[0358] また、本実施形態で用いられるイオン性ポリマーは、好ましくは高分子化

合物であり、より好ましくは共役高分子化合物である。ここで、高分子化合物とは、ポリスチレン換算の数平均分子量が 1×10^3 以上である化合物をいう。また、本発明で用いられるイオン性ポリマーが共役高分子化合物であるとは、該イオン性ポリマーが共役化合物かつ高分子化合物であることを意味する。

[0359] 本実施形態で用いられるイオン性ポリマーの塗布による成膜性の観点から、該イオン性ポリマーのポリスチレン換算の数平均分子量が $1 \times 10^3 \sim 1 \times 10^8$ であることが好ましく、 $2 \times 10^3 \sim 1 \times 10^7$ であることがより好ましく、 $3 \times 10^3 \sim 1 \times 10^7$ であることがさらに好ましく、 $5 \times 10^3 \sim 1 \times 10^7$ であることがより一層好ましい。また、イオン性ポリマーの純度の観点から、ポリスチレン換算の重量平均分子量が $1 \times 10^3 \sim 5 \times 10^7$ であることが好ましく、 $1 \times 10^3 \sim 1 \times 10^7$ であることがより好ましく、 $1 \times 10^3 \sim 5 \times 10^6$ であることがさらに好ましい。また、イオン性ポリマーの溶解性の観点から、ポリスチレン換算の数平均分子量は $1 \times 10^3 \sim 5 \times 10^5$ であることが好ましく、 $1 \times 10^3 \sim 5 \times 10^4$ であることがより好ましく、 $1 \times 10^3 \sim 3 \times 10^3$ であることがさらに好ましい。本発明に用いられるイオン性ポリマーのポリスチレン換算の数平均分子量及び重量平均分子量は、例えば、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）を用いて、求めることができる。

[0360] 本実施形態で用いられるイオン性ポリマーの純度の観点から、末端構造単位を除く該イオン性ポリマー中に含まれる全構造単位の数（即ち、重合度）は1以上20以下であることが好ましく、1以上10以下であることがより好ましく、1以上5以下であることがさらに好ましい。

[0361] 本実施形態で用いられるイオン性ポリマーの電子受容性、正孔受容性の観点からは、該イオン性ポリマーの最低非占有分子軌道（LUMO）の軌道エネルギーが、 -5.0 eV 以上 -2.0 eV 以下であることが好ましく、 -4.5 eV 以上 -2.0 eV 以下がより好ましい。また、同様の観点から、該イオン性ポリマーの最高占有分子軌道（HOMO）の軌道エネルギーが、

−6.0 eV以上−3.0 eV以下であることが好ましく、−5.5 eV以上−3.0 eV以下がより好ましい。ただし、HOMOの軌道エネルギーはLUMOの軌道エネルギーよりも低い。なお、イオン性ポリマーの最高占有分子軌道（HOMO）の軌道エネルギーは、イオン性ポリマーのイオン化ポテンシャルを測定し、得られたイオン化ポテンシャルを該軌道エネルギーとすることにより求める。一方、イオン性ポリマーの最低非占有分子軌道（LUMO）の軌道エネルギーは、HOMOとLUMOとのエネルギー差を求め、その値と前記で測定したイオン化ポテンシャルとの和を該軌道エネルギーとすることにより求める。イオン化ポテンシャルの測定には光電子分光装置を用いる。また、HOMOとLUMOのエネルギー差は紫外・可視・近赤外分光光度計を用いてイオン性ポリマーの吸収スペクトルを測定し、その吸収末端より求める。

[0362] なお、本実施形態で用いられる重合体は、電界発光素子で用いられた場合、実質的に非発光性であることが好ましい。ここで、ある重合体を実質的に非発光性であるとは、以下のとおりの意味である。まず、ある重合体を含む層を有する電界発光素子Aを作製する。一方、重合体を含む層を有さない電界発光素子2を作製する。電界発光素子Aは重合体を含む層を有するが、電界発光素子2は重合体を含む層を有さない点でのみ、電界発光素子Aと電界発光素子2とは異なる。次に、電界発光素子A及び電界発光素子2に10Vの順方向電圧を印加して発光スペクトルを測定する。電界発光素子2について得られた発光スペクトルにおいて最大ピークを与える波長 λ を求める。波長 λ における発光強度を1として、電界発光素子2について得られた発光スペクトルを規格化し、波長について積分して規格化発光量 S_0 を計算する。一方、波長 λ における発光強度を1として、電界発光素子Aについて得られた発光スペクトルも規格化し、波長について積分して規格化発光量 S を計算する。 $(S - S_0) / S_0 \times 100\%$ で計算される値が30%以下である場合、即ち、重合体を含む層を有さない電界発光素子2の規格化発光量に比べ、重合体を含む層を有する電界発光素子Aの規格化発光量の増加分が30%以下

である場合に、用いた重合体は実質的に非発光性であるものとする。 $(S - S_0) / S_0 \times 100$ で計算される値が15%以下であることが好ましく、10%以下であることがより好ましい。

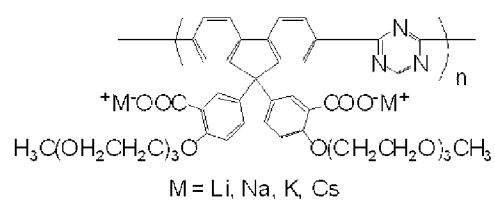
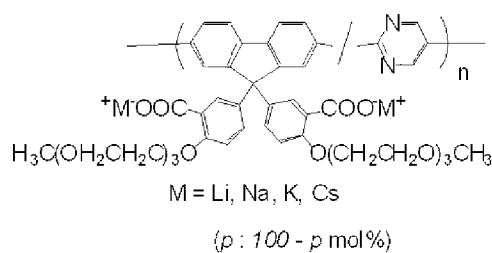
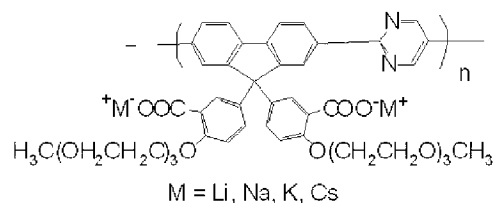
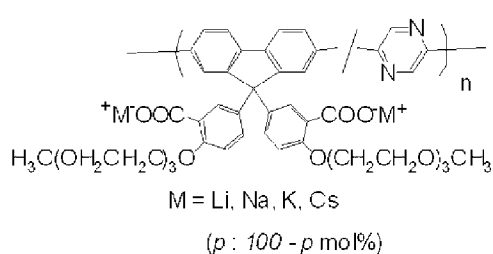
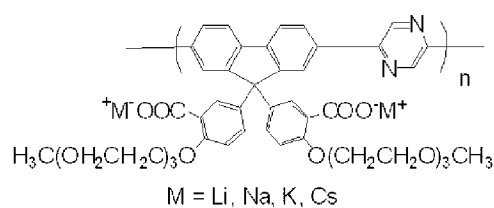
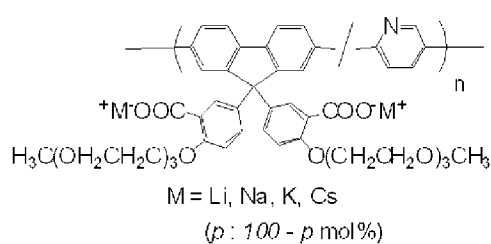
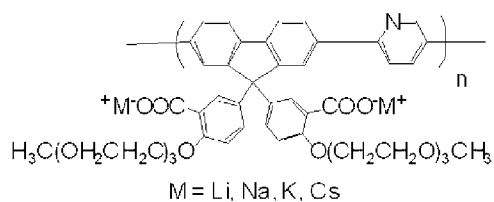
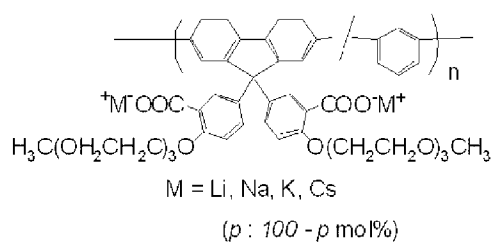
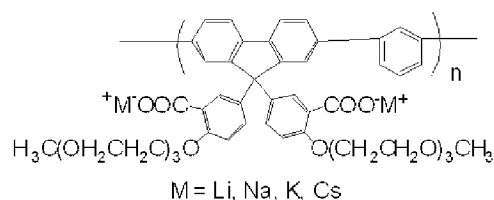
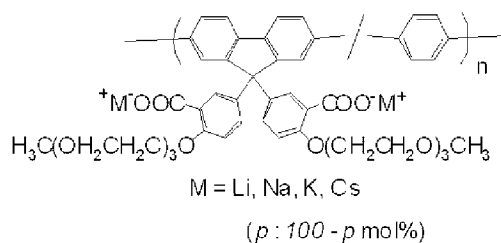
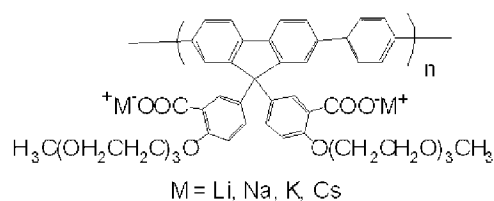
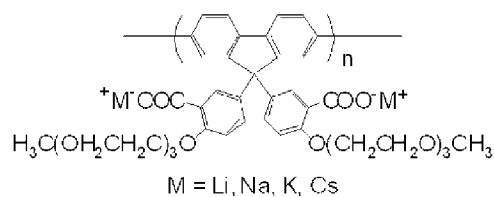
[0363] 前記式(1)で表される基及び前記式(3)で表される基を含むイオン性ポリマーとしては、式(23)で表される構造単位のみからなるイオン性ポリマー、式(23)で表される構造単位及び構造45～50、59、60、77、80、91、92、96、101～110で表される基から水素原子を2個除いた基からなる群から選ばれる1種以上の基からなるイオン性ポリマー、式(24)で表される構造単位のみからなるイオン性ポリマー、式(24)で表される構造単位及び構造45～50、59、60、77、80、91、92、96、101～110で表される基から水素原子を2個除いた基からなる群から選ばれる1種以上の基からなるイオン性ポリマー、式(25)で表される構造単位のみからなるイオン性ポリマー、式(25)で表される構造単位及び構造45～50、59、60、77、80、91、92、96、101～110で表される基から水素原子を2個除いた基からなる群から選ばれる1種以上の基からなるイオン性ポリマー、式(29)で表される構造単位のみからなるイオン性ポリマー、式(29)で表される構造単位及び構造45～50、59、60、77、80、91、92、96、101～110で表される基から水素原子を2個除いた基からなる群から選ばれる1種以上の基からなるイオン性ポリマー、式(30)で表される構造単位のみからなるイオン性ポリマー、式(30)で表される構造単位及び構造45～50、59、60、77、80、91、92、96、101～110で表される基から水素原子を2個除いた基からなる群から選ばれる1種以上の基からなるイオン性ポリマーが挙げられる。

[0364] 前記式(1)で表される基及び前記式(3)で表される基を含むイオン性ポリマーとしては、以下の高分子化合物が挙げられる。これらのうち、2種の構造単位がスラッシュ「/」で区切られている式で表される高分子化合物では、左側の構造単位の割合がpモル%、右側の構造単位の割合が(100

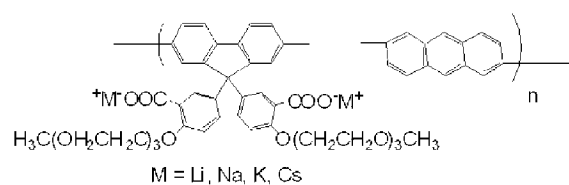
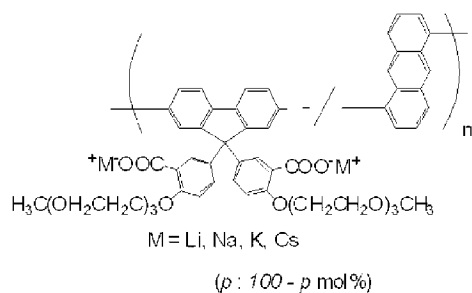
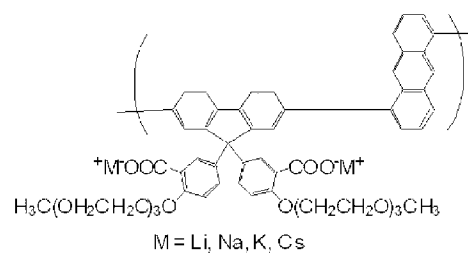
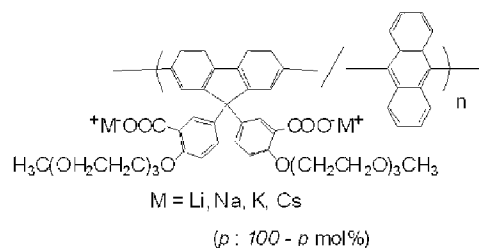
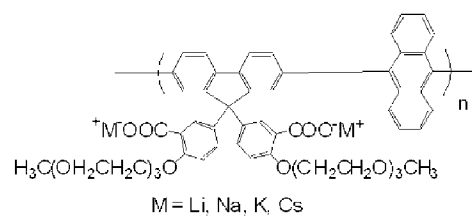
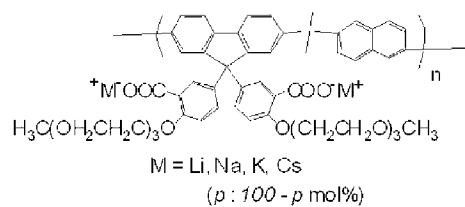
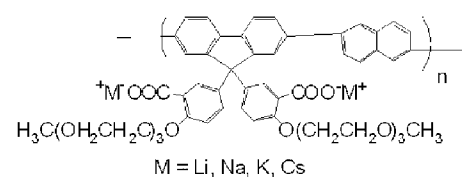
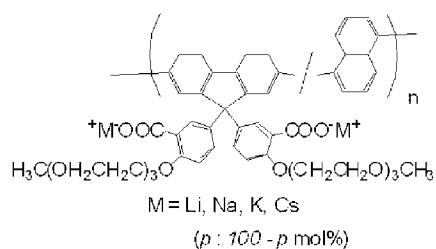
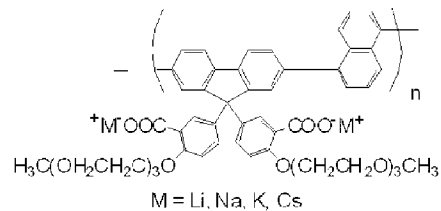
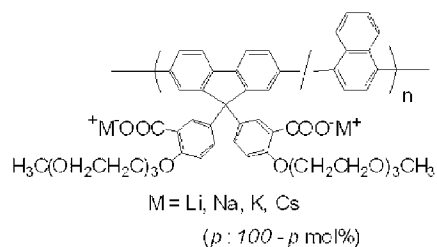
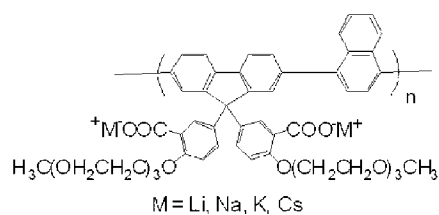
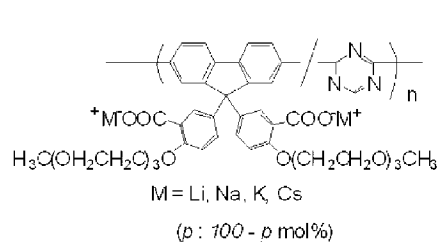
－ p) モル%であり、これらの構造単位はランダムに配列している。なお、以下の式中、 n は重合度を表す。

[0365]

[化51]

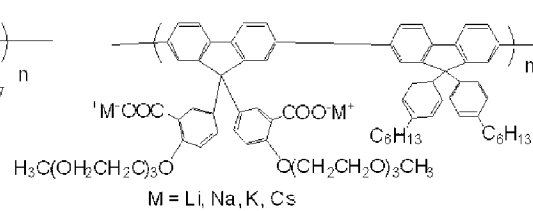
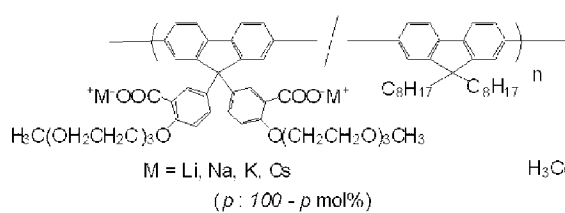
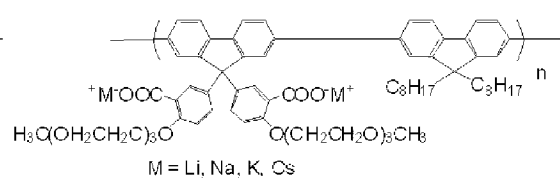
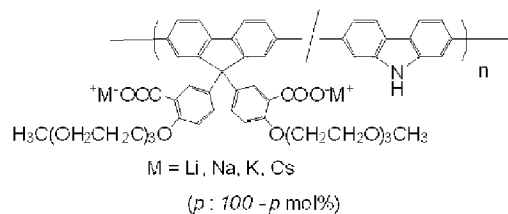
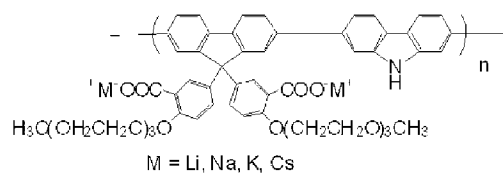
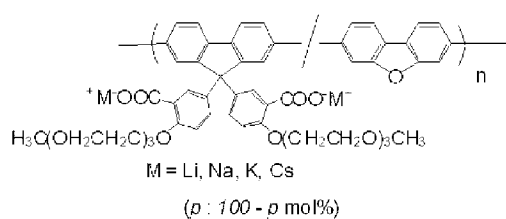
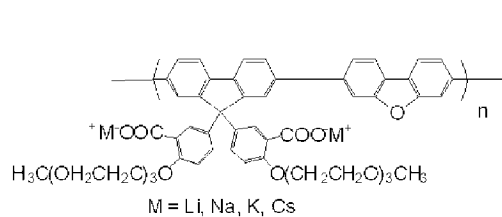
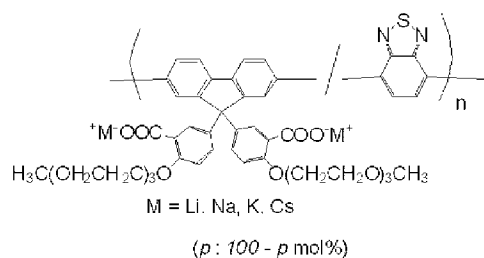
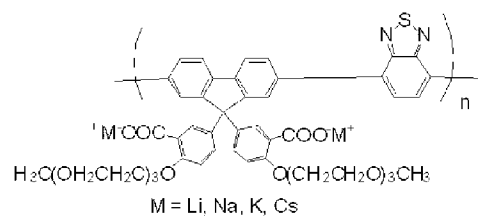
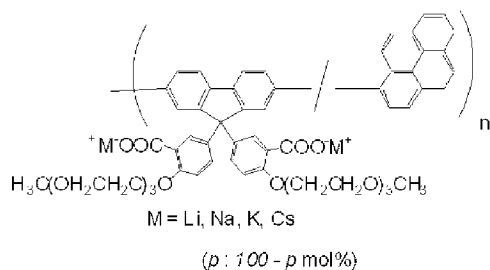
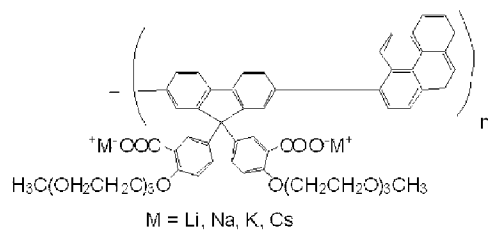
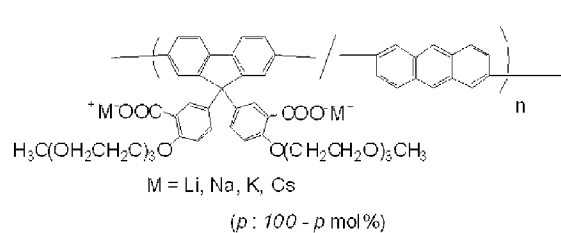


[0366] [化52]



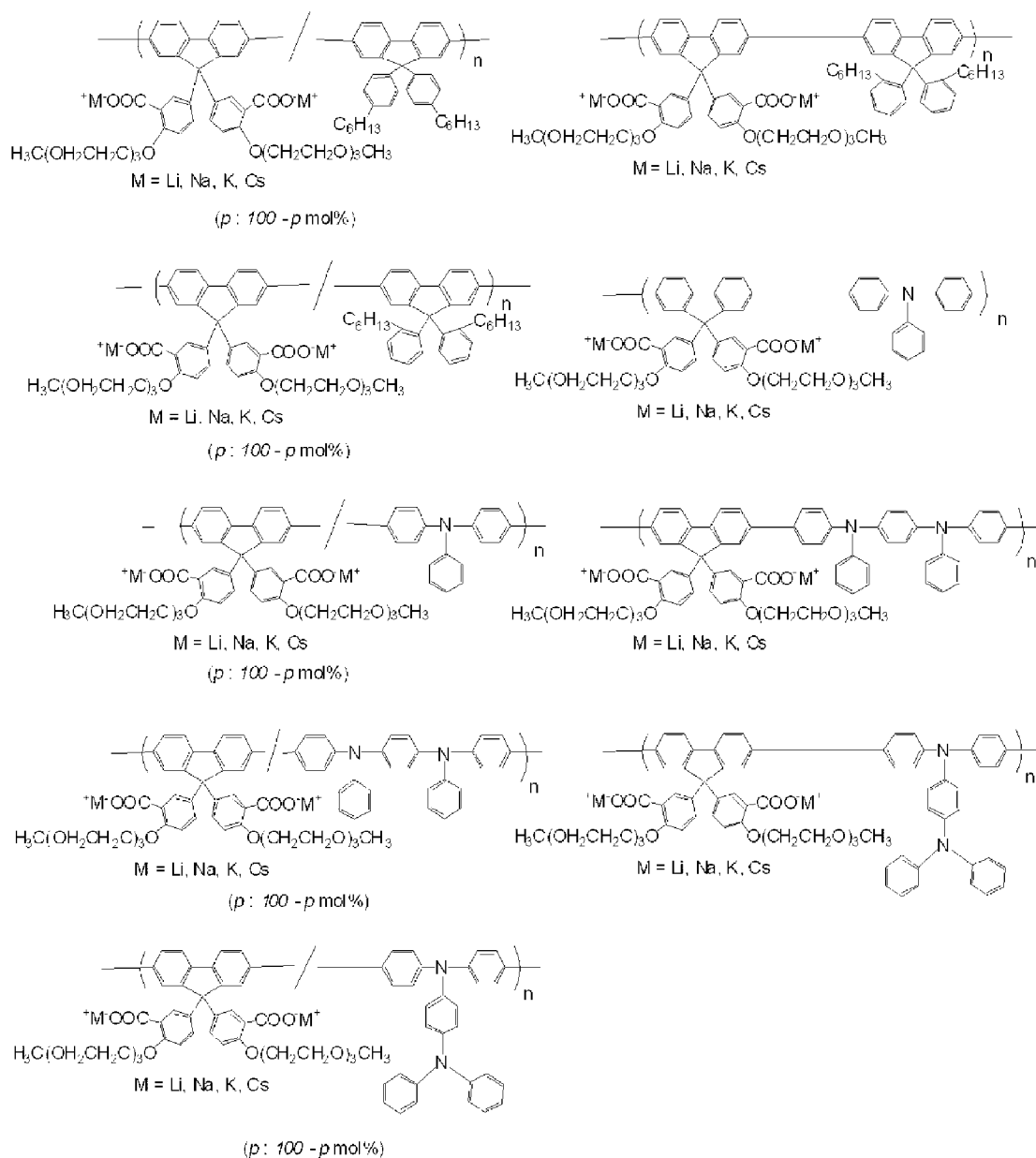
[0367]

[化53]



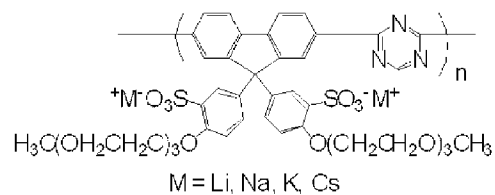
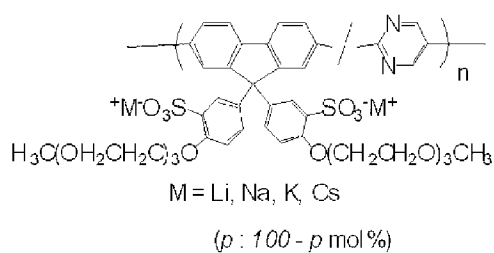
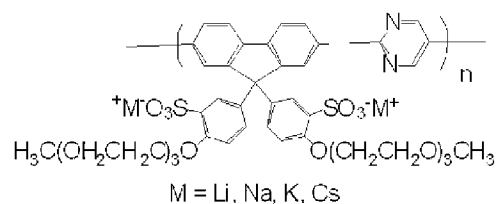
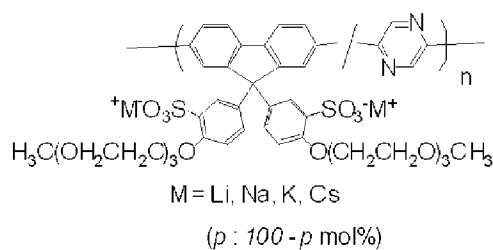
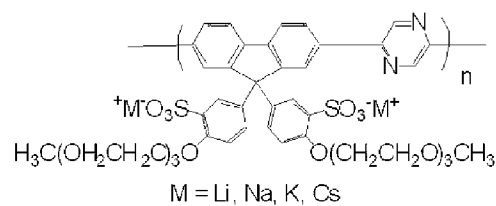
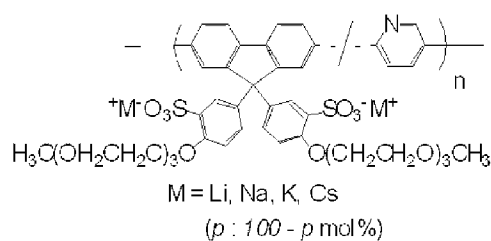
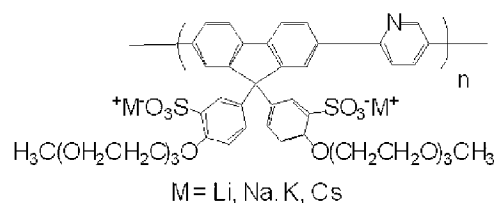
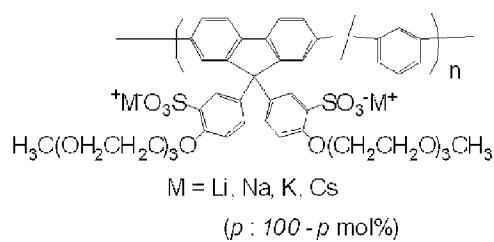
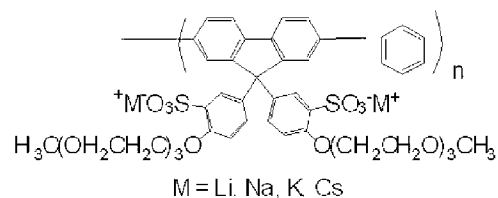
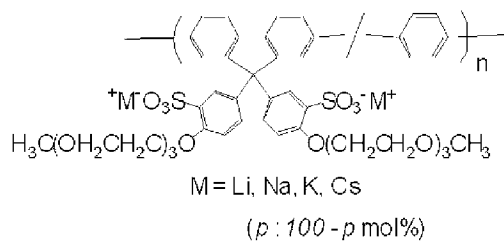
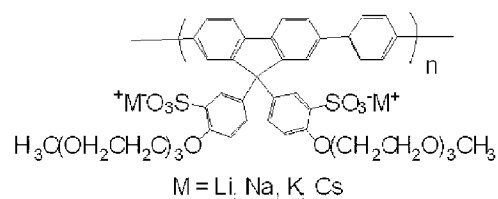
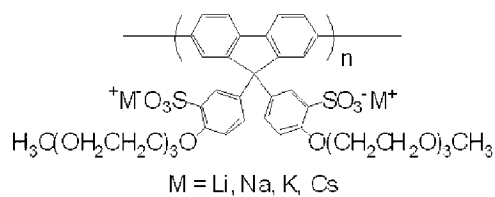
[0368]

[化54]

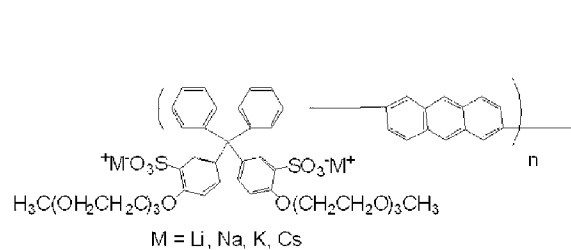
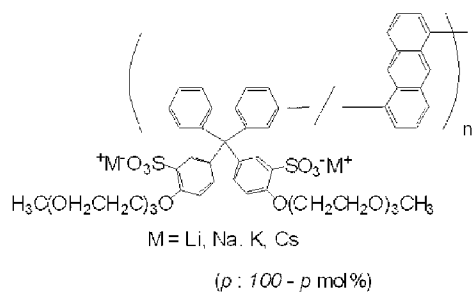
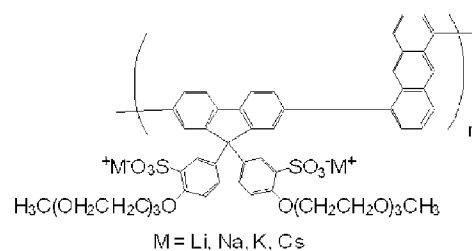
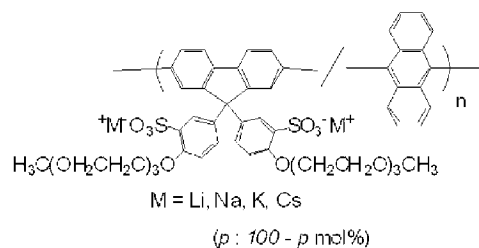
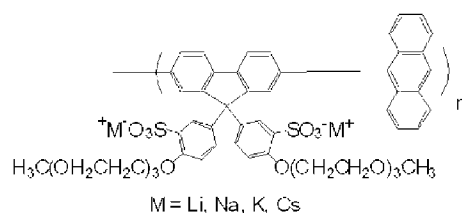
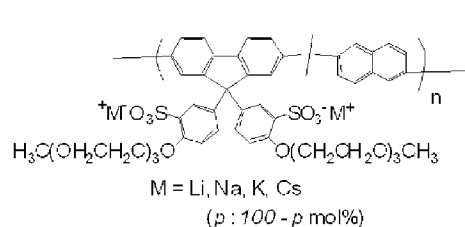
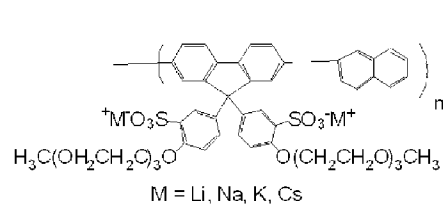
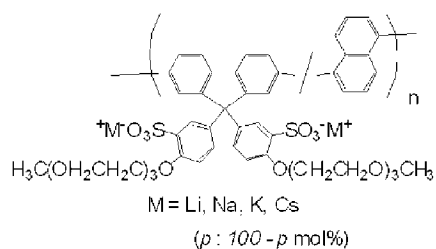
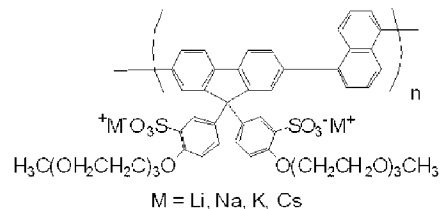
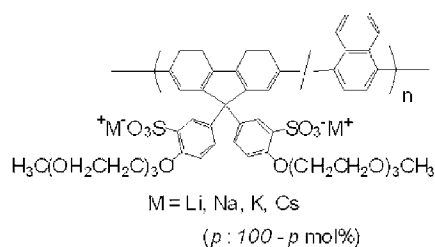
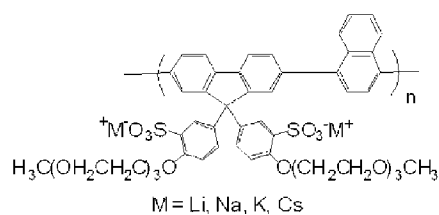
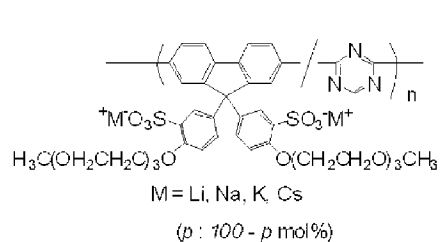


[0369]

[化55]

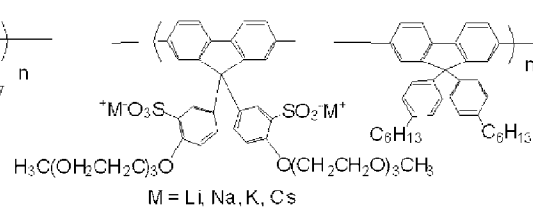
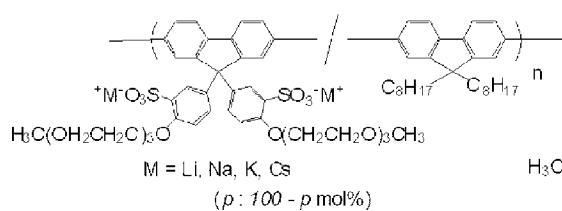
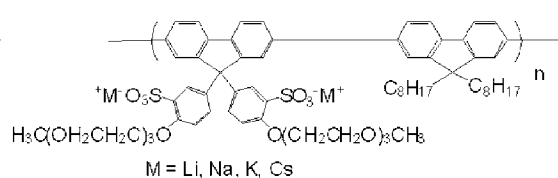
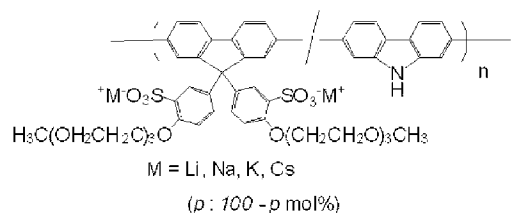
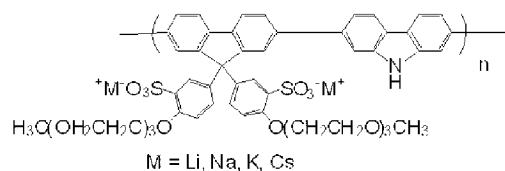
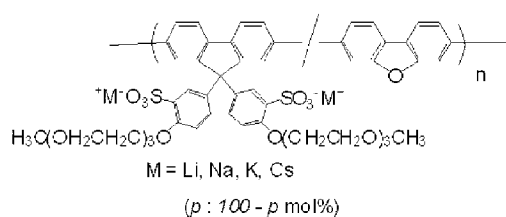
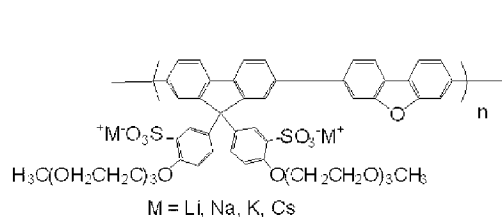
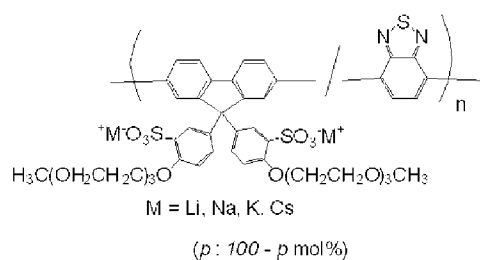
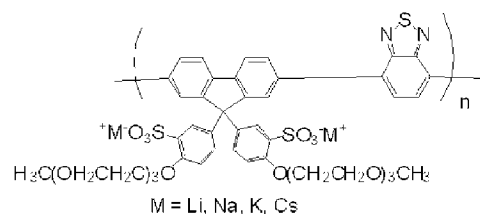
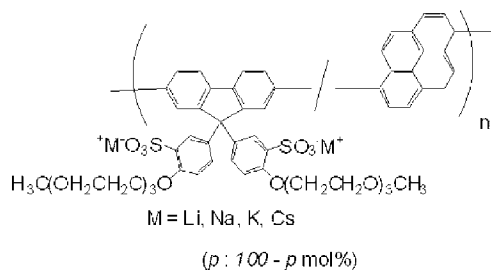
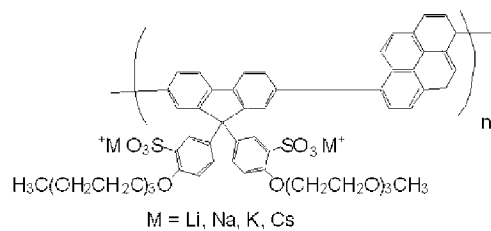
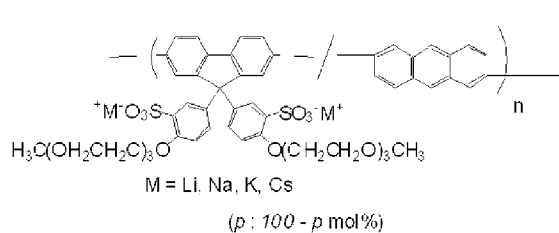


[0370] [化56]



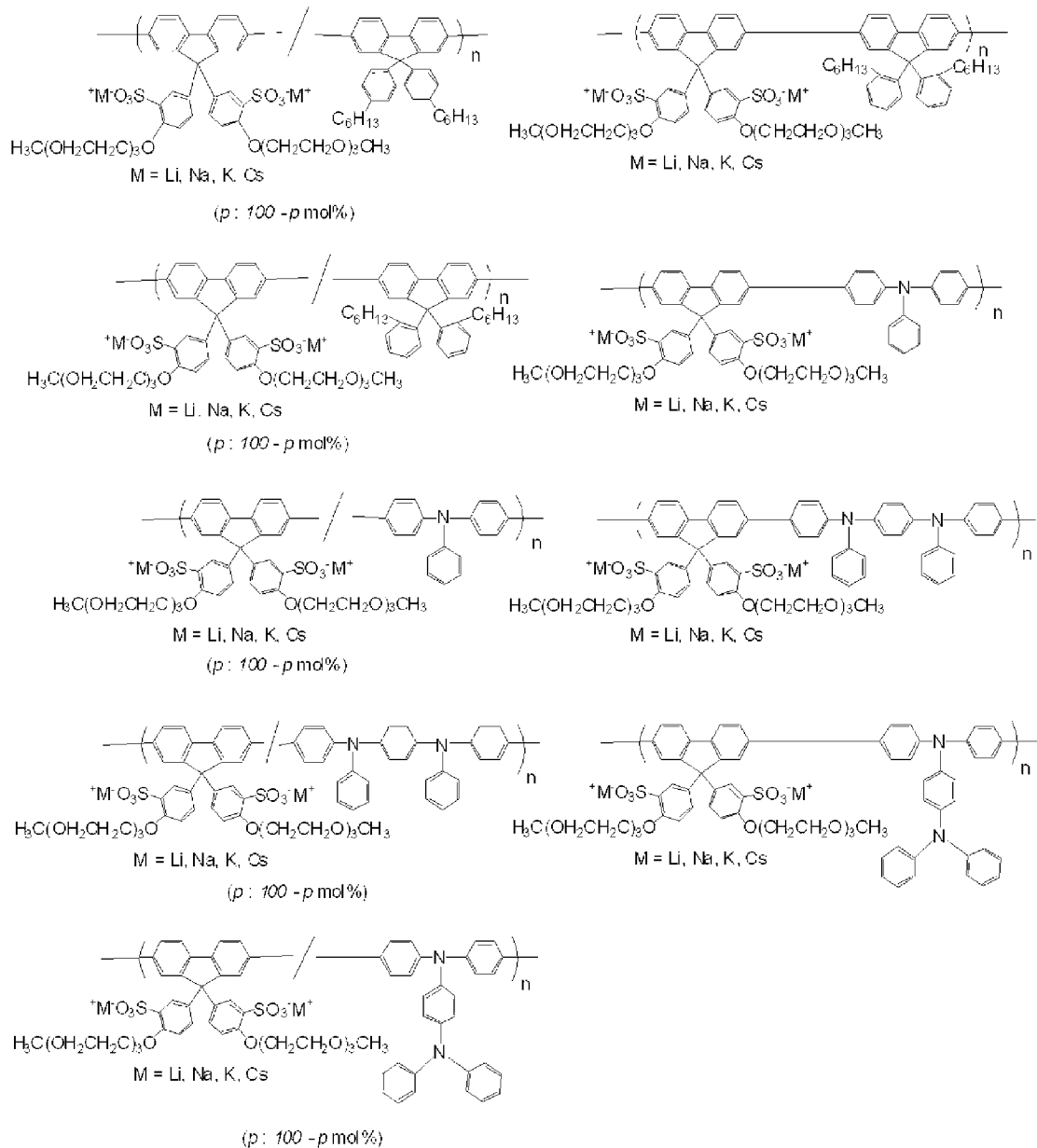
[0371]

[化57]



[0372]

[化58]



(式中、 p は15～100の数を表す。)

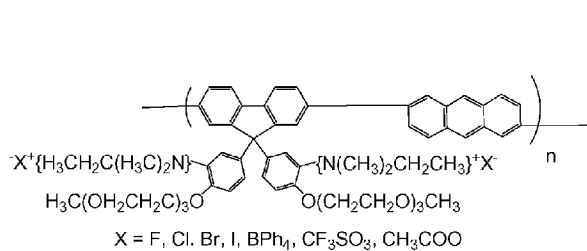
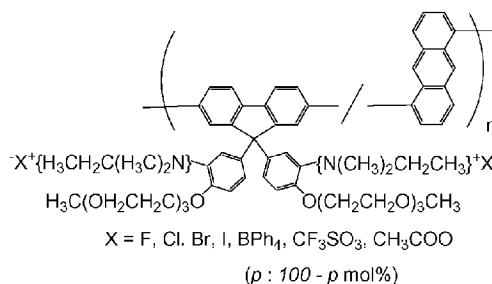
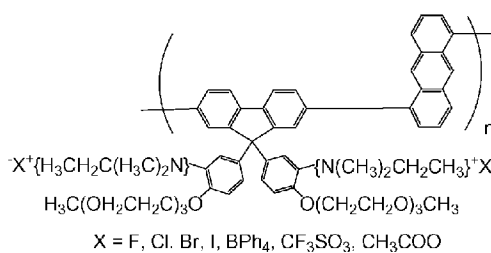
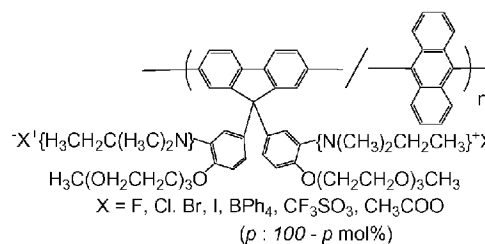
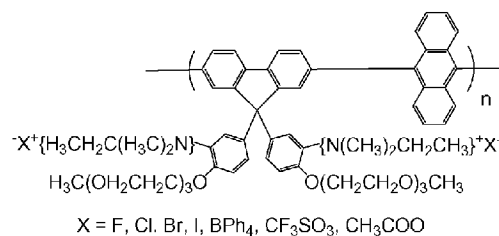
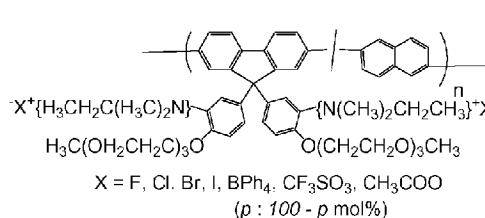
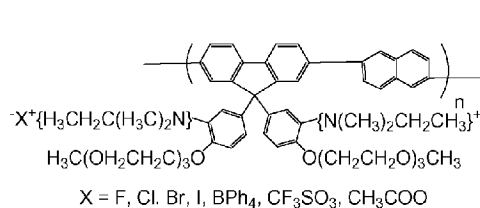
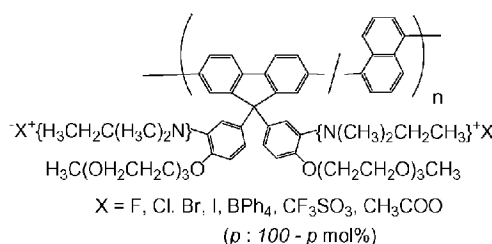
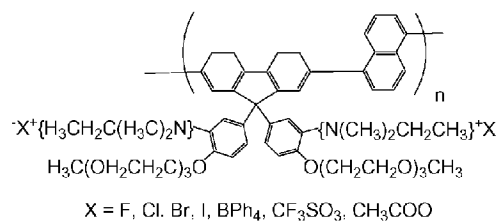
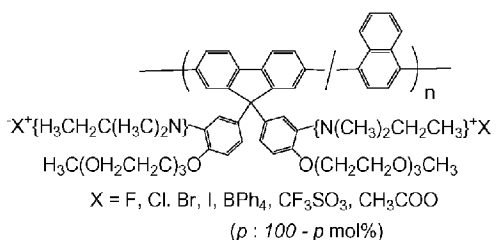
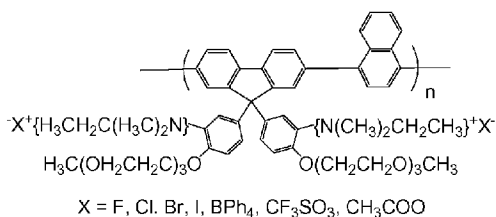
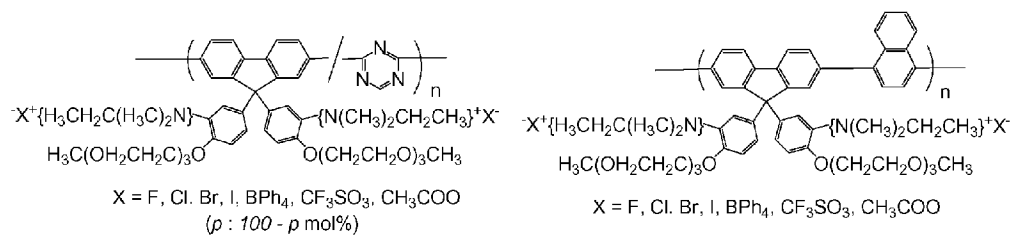
[0373] 前記式(2)で表される基及び前記式(3)で表される基を含むイオン性ポリマーとしては、式(26)で表される構造単位のみからなるイオン性ポリマー、式(26)で表される構造単位及び構造45～50、59、60、77、80、91、92、96、101～110で表される基から水素原子を2個除いた基からなる群から選ばれる1種以上の基からなるイオン性ポリマー、式(27)で表される構造単位のみからなるイオン性ポリマー、式(

27) で表される構造単位及び構造45～50、59、60、77、80、91、92、96、101～110で表される基から水素原子を2個除いた基からなる群から選ばれる1種以上の基からなるイオン性ポリマー、式(28)で表される構造単位のみからなるイオン性ポリマー、式(28)で表される構造単位及び構造45～50、59、60、77、80、91、92、96、101～110で表される基から水素原子を2個除いた基からなる群から選ばれる1種以上の基からなるイオン性ポリマー、式(31)で表される構造単位のみからなるイオン性ポリマー、式(31)で表される構造単位及び構造45～50、59、60、77、80、91、92、96、101～110で表される基から水素原子を2個除いた基からなる群から選ばれる1種以上の基からなるイオン性ポリマー、式(32)で表される構造単位のみからなるイオン性ポリマー、式(32)で表される構造単位及び構造45～50、59、60、77、80、91、92、96、101～110で表される基から水素原子を2個除いた基からなる群から選ばれる1種以上の基からなるイオン性ポリマーが挙げられる。

[0374] 前記式(2)で表される基及び前記式(3)で表される基を含むイオン性ポリマーとしては、以下の高分子化合物が挙げられる。これらのうち、2種の構造単位がスラッシュ「/」で区切られている式で表される高分子化合物では、左側の構造単位の割合がpモル%、右側の構造単位の割合が(100-p)モル%であり、これらの構造単位はランダムに配列している。なお、以下の式中、nは重合度を表す。

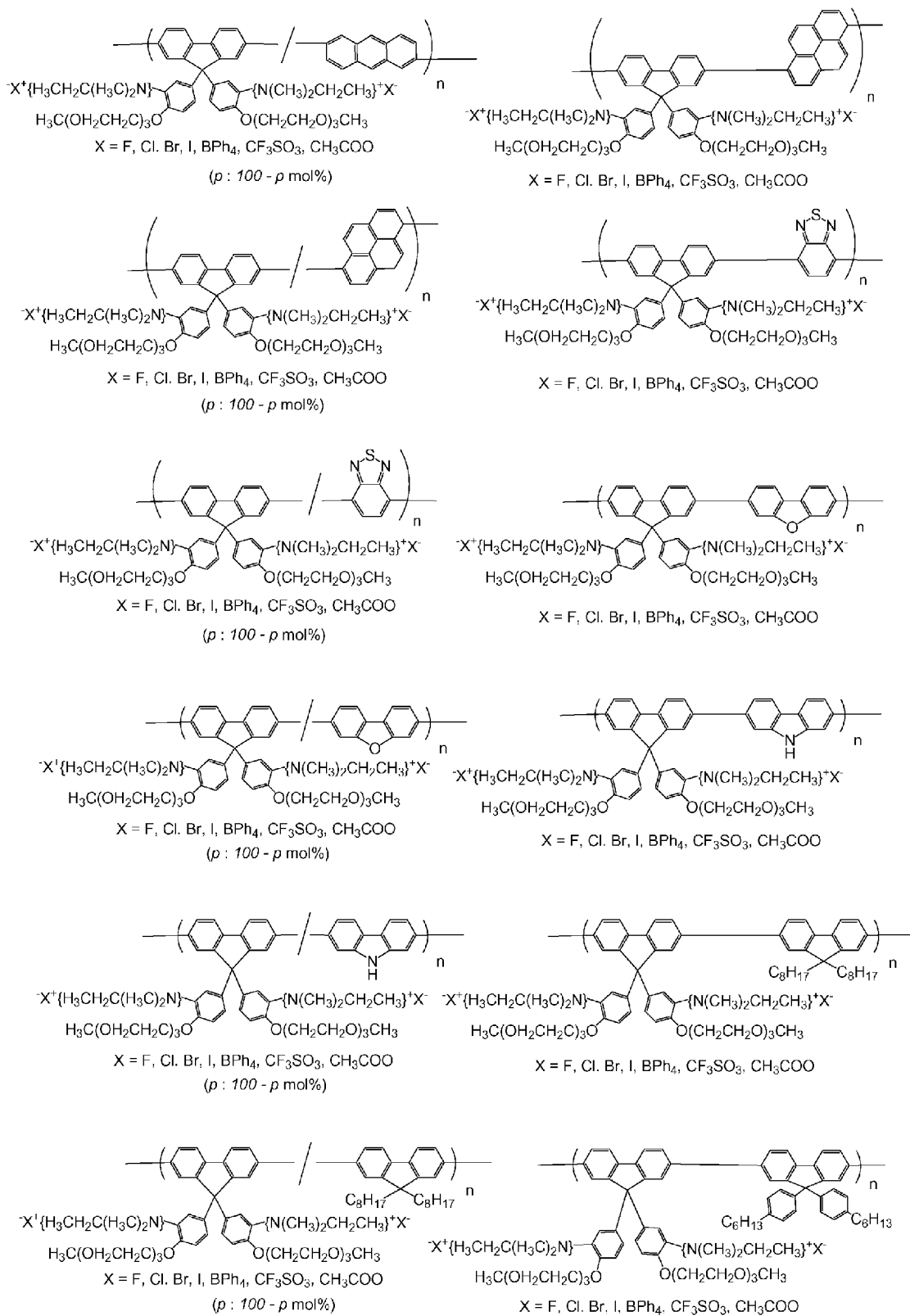
[0375]

[化60]



[0377]

[化61]



[0378]

[化62]

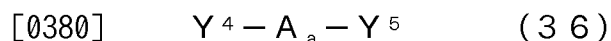


(式中、pは15～100の数を表す。)

[0379] (イオン性ポリマーの製造方法)

次に、本実施形態で用いられるイオン性ポリマーを製造する方法について説明する。本実施形態で用いられるイオン性ポリマーを製造するための好適な方法としては、例えば、下記式(36)で表される化合物を原料の1つとして選択して用い、中でも、式(36)中の-A_a-が式(13)で表される

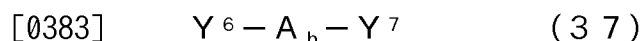
構造単位である化合物、 $-A_a-$ が式(15)で表される構造単位である化合物、 $-A_a-$ が式(17)で表される構造単位である化合物及び $-A_a-$ が式(20)で表される構造単位である化合物の少なくとも1種を必須の原料として含有させて、これを縮合重合させる方法を挙げることができる。



式(36)中、 A_a は式(1)で表される基及び式(2)で表される基からなる群から選ばれる1種以上の基と、式(3)で表される1種以上の基とを含む構造単位(繰返し単位)を表す。 Y^4 及び Y^5 は、それぞれ独立に、縮合重合に関与する基を示す。

[0381] また、本実施形態で用いられるイオン性ポリマー中に上記式(36)中の $-A_a-$ で表される構造単位とともに、前記 $-A_a-$ 以外の他の構造単位を含有させる場合には、前記 $-A_a-$ 以外の他の構造単位となる、縮合重合に関与する置換基を2個有する化合物を用い、これを前記式(36)で表される化合物とともに共存させて縮合重合させればよい。

[0382] このような他の構造単位を含有させるために用いられ、縮合重合可能な置換基を2個有する化合物としては、式(37)で表される化合物が例示される。このようにして、前記 $Y^4 - A_a - Y^5$ で表される化合物に加えて、式(37)で表される化合物を縮合重合させることで、 $-A_b-$ で表される構造単位を更に有する本発明に用いられるイオン性ポリマーを製造することができる。



式(37)中、 A_b は前記一般式(33)で表される構造単位又は一般式(35)で表される構造単位であり、 Y^6 及び Y^7 は、それぞれ独立に、縮合重合に関与する基を示す。

[0384] このような縮合重合に関与する基(Y^4 、 Y^5 、 Y^6 及び Y^7)としては、水素原子、ハロゲン原子、アルキルスルホネート基、アリールスルホネート基、アリールアルキルスルホネート基、ホウ酸エステル残基、スルホニウムメチル基、ホスホニウムメチル基、ホスホネートメチル基、モノハロゲン化メ

チル基、 $-B(OH)_2$ 、ホルミル基、シアノ基、ビニル基等が挙げられる。

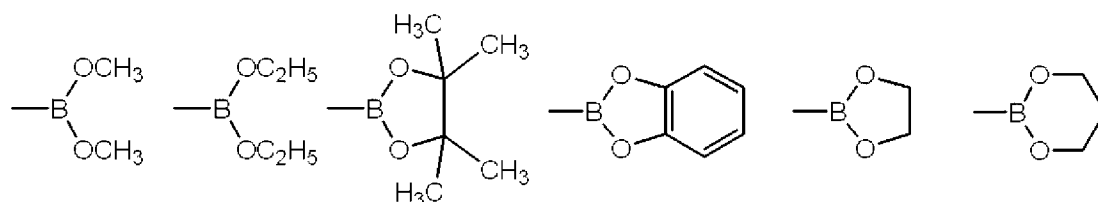
[0385] このような縮合重合に関与する基として選択され得るハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子及びヨウ素原子が挙げられる。

[0386] また、前記縮合重合に関与する基として選択され得るアルキルスルホネート基としては、メタンスルホネート基、エタンスルホネート基、トリフルオロメタンスルホネート基が例示され、アリースルホネート基としては、ベンゼンスルホネート基、p-トルエンスルホネート基が例示される。

[0387] 前記縮合重合に関与する基として選択され得るアリアルアルキルスルホネート基としては、ベンジルスルホネート基が例示される。

[0388] また、前記縮合重合に関与する基として選択され得るホウ酸エステル残基としては、下記式で表される基が例示される。

[0389] [化63]



[0390] さらに、前記縮合重合に関与する基として選択され得るスルホニウムメチル基としては、下記式：



(式中、Eはハロゲン原子を示す。Phはフェニル基を示し、以下、同じである。)で表される基が例示される。

[0391] また、前記縮合重合に関与する基として選択され得るホスホニウムメチル基としては、下記式：



(式中、Eはハロゲン原子を示す。)で表される基が例示される。

[0392] また、前記縮合重合に関与する基として選択され得るホスホネートメチル基としては、下記式：



(式中、 R^d はアルキル基、アリール基、又はアリールアルキル基を示す。)で表される基が例示される。

[0393] さらに、前記縮合重合に関与する基として選択され得るモノハロゲン化メチル基としては、フッ化メチル基、塩化メチル基、臭化メチル基、ヨウ化メチル基が例示される。

[0394] さらに、縮合重合に関与する基として好適な基は、重合反応の種類によって異なるが、例えば、Yamamotoカップリング反応等の0価ニッケル錯体を用いる場合には、ハロゲン原子、アルキルスルホネート基、アリールスルホネート基、アリールアルキルスルホネート基が挙げられる。また、Suzukiカップリング反応等のニッケル触媒又はパラジウム触媒を用いる場合には、アルキルスルホネート基、ハロゲン原子、ホウ酸エステル残基、 $-B(OH)_2$ 等が挙げられる。酸化剤を用いて酸化重合する場合、又は電気化学的に酸化重合する場合には、水素原子が挙げられる。

[0395] 本実施形態で用いられるイオン性ポリマーを製造する際には、例えば、縮合重合に関与する基を複数有する前記一般式(36)又は(37)で表される化合物(モノマー)を、必要に応じて有機溶媒に溶解し、アルカリや適当な触媒を用いて、有機溶媒の融点以上沸点以下の温度で反応させる重合方法を採用してもよい。このような重合方法としては、例えば、”オルガニックリアクションズ(Organic Reactions)”, 第14巻, 270-490頁, ジョンワイリー アンド サンズ(John Wiley & Sons, Inc.), 1965年、”オルガニック シンセシス(Organic Syntheses)”, コレクティブ第6巻(Collective Volume VI), 407-411頁, ジョンワイリー アンド サンズ(John Wiley & Sons, Inc.), 1988年、ケミカル レビュー(Chem. Rev.), 第95巻, 2457頁(1995年)、ジャーナル オブ オルガノメタリック ケミストリー(J. Organomet. Chem.), 第576巻, 147頁(1999年)、マクロモレキュラー ケミストリー マクロモレキュラー シンポジウ

ム (Macromol. Chem., Macromol. Symp.), 第 12 巻, 229 頁 (1987 年) に記載の公知の方法を採用することができる。

[0396] また、本実施形態で用いられるイオン性ポリマーを製造する際には、縮合重合に関与する基に応じて、既知の縮合重合反応を採用してもよい。このような重合方法としては、該当するモノマーを、Suzuki カップリング反応により重合する方法、Grignard 反応により重合する方法、0 価ニッケル錯体により重合する方法、FeCl₃等の酸化剤により重合する方法、電気化学的に酸化重合する方法、適当な脱離基を有する中間体高分子の分解による方法等が挙げられる。このような重合反応の中でも、Suzuki カップリング反応により重合する方法、Grignard 反応により重合する方法、及びニッケルゼロ価錯体により重合する方法が、得られるイオン性ポリマーの構造制御がし易いので好ましい。

[0397] 本実施形態で用いられるイオン性ポリマーの好ましい製造方法の 1 つの態様は、縮合重合に関与する基として、ハロゲン原子、アルキルスルホネート基、アリールスルホネート基及びアリールアルキルスルホネート基からなる群から選択される基を有する原料モノマーを用いて、0 価ニッケル錯体の存在下で縮合重合して、イオン性ポリマーを製造する方法である。このような方法に使用する原料モノマーとしては、例えば、ジハロゲン化化合物、ビス（アルキルスルホネート）化合物、ビス（アリールスルホネート）化合物、ビス（アリールアルキルスルホネート）化合物、ハロゲン－アルキルスルホネート化合物、ハロゲン－アリールスルホネート化合物、ハロゲン－アリールアルキルスルホネート化合物、アルキルスルホネート－アリールスルホネート化合物、アルキルスルホネート－アリールアルキルスルホネート化合物及びアリールスルホネート－アリールアルキルスルホネート化合物が挙げられる。

[0398] 前記イオン性ポリマーの好ましい製造方法の他の態様は、縮合重合に関与する基として、ハロゲン原子、アルキルスルホネート基、アリールスルホネ

ート基、アリールアルキルスルホネート基、 $-B(OH)_2$ 、及びホウ酸エステル残基からなる群から選ばれる基を有し、全原料モノマーが有する、ハロゲン原子、アルキルスルホネート基、アリールスルホネート基及びアリールアルキルスルホネート基のモル数の合計（J）と、 $-B(OH)_2$ 及びホウ酸エステル残基のモル数の合計（K）の比（ K/J ）が実質的に1（通常 K/J は0.7～1.2の範囲）である原料モノマーを用いて、ニッケル触媒又はパラジウム触媒の存在下で縮合重合して、イオン性ポリマーを製造する方法である。

[0399] 前記有機溶媒としては、用いる化合物や反応によっても異なるが、一般に副反応を抑制するために十分に脱酸素処理を施した有機溶媒を用いることが好ましい。イオン性ポリマーを製造する際には、このような有機溶媒を用いて不活性雰囲気下で反応を進行させることが好ましい。また、前記有機溶媒においては、前記脱酸素処理と同様に脱水処理を行うことが好ましい。但し、Suzukiカップリング反応等の水との2相系での反応の場合にはその限りではない。

[0400] このような有機溶媒としては、ペンタン、ヘキサン、ヘプタン、オクタン、シクロヘキサン等の飽和炭化水素；ベンゼン、トルエン、エチルベンゼン、キシレン等の不飽和炭化水素、四塩化炭素、クロロホルム、ジクロロメタン、クロロブタン、ブロモブタン、クロロペンタン、ブロモペンタン、クロロヘキサン、ブロモヘキサン、クロロシクロヘキサン、ブロモシクロヘキサン等のハロゲン化飽和炭化水素；クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、トリクロロベンゼン等のハロゲン化不飽和炭化水素；メタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノール、ブタノール、*t*-ブチルアルコール等のアルコール類；蟻酸、酢酸、プロピオン酸等のカルボン酸類；ジメチルエーテル、ジエチルエーテル、メチルー*t*-ブチルエーテル、テトラヒドロフラン、テトラヒドロピラン、ジオキサン等のエーテル類；トリメチルアミン、トリエチルアミン、N, N, N', N'-テトラメチルエチレンジアミン、ピリジン等のアミン類；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，N－ジエチルアセトアミド、N－メチルモルホリンオキシド等のアミド類が例示される。これらの有機溶媒は1種を単独で、又は2種以上を混合して用いてもよい。また、このような有機溶媒の中でも、反応性の観点からはエーテル類がより好ましく、テトラヒドロフラン、ジエチルエーテルがさらに好ましい。反応速度の観点からはトルエン、キシレンが好ましい。

[0401] 前記イオン性ポリマーを製造する際においては、原料モノマーを反応させるために、アルカリや適当な触媒を添加することが好ましい。このようなアルカリ又は触媒は、採用する重合方法等に応じて選択すればよい。このようなアルカリ又は触媒としては、反応に用いる溶媒に十分に溶解するものが好ましい。また、前記アルカリ又は触媒を混合する方法としては、反応液をアルゴンや窒素等の不活性雰囲気下で攪拌しながらゆっくりとアルカリ又は触媒の溶液を添加するか、アルカリ又は触媒の溶液に反応液をゆっくりと添加する方法が例示される。

[0402] 本実施形態で用いられるイオン性ポリマーにおいては、末端基に重合活性基がそのまま残っていると得られる発光素子の発光特性や寿命特性が低下する可能性があるため、末端基が安定な基で保護されていてもよい。このように安定な基で末端基が保護されている場合、本発明に用いられるイオン性ポリマーが共役化合物であるときには、末端基は、該イオン性ポリマーの主鎖の共役構造と連続した共役結合を有していることが好ましい。末端基の構造としては、例えば、炭素－炭素結合を介してアリール基又は複素環基と結合している構造が挙げられる。このような末端基を保護する安定な基としては、特開平9－45478号公報において化10の構造式で示される1価の芳香族化合物基等の置換基が挙げられる。

[0403] 式(1)で表される基を含む構造単位を有するイオン性ポリマーを製造する他の好ましい方法としては、第1工程でカチオンを有さないイオン性ポリマーを重合し、第2工程で該イオン性ポリマーからカチオンを含有するイオン性ポリマーを製造する方法が挙げられる。第1工程のカチオンを有さない

イオン性ポリマーを重合する方法としては、前述の縮合重合反応が挙げられる。第2工程の反応としては、金属水酸化物、アルキルアンモニウムヒドロキシド等による加水分解反応等が挙げられる。

[0404] 式(2)で表される基を含む構造単位を有するイオン性ポリマーを製造する他の好ましい方法としては、第1工程でイオンを有さないイオン性ポリマーを重合し、第2工程で該イオン性ポリマーからイオンを含有するイオン性ポリマーを製造する方法が挙げられる。第1工程のイオンを有さないイオン性ポリマーを重合する方法としては、前述の縮合重合反応が挙げられる。第2工程の反応としては、ハロゲン化アルキルを用いたアミンの4級アンモニウム塩化反応、 SbF_5 によるハロゲン引き抜き反応等が挙げられる。

[0405] 本実施形態で用いられるイオン性ポリマーは電荷の注入性や輸送性に優れるため、高輝度で発光する素子が得られる。

[0406] イオン性ポリマーを含む層を形成する方法としては、例えば、イオン性ポリマーを含有する溶液を用いて成膜する方法が挙げられる。

[0407] このような溶液からの成膜に用いる溶媒としては、アルコール類、エーテル類、エステル類、ニトリル化合物類、ニトロ化合物類、ハロゲン化アルキル類、ハロゲン化アリール類、チオール類、スルフィド類、スルホキシド類、チオケトン類、アミド類、カルボン酸類等の溶媒（ただし水を除く）のうち、溶解度パラメーターが9.3以上の溶媒が好ましい。該溶媒の例（各括弧内の値は、各溶媒の溶解度パラメーターの値を表す）としては、メタノール（12.9）、エタノール（11.2）、2-プロパノール（11.5）、1-ブタノール（9.9）、*t*-ブチルアルコール（10.5）、アセトニトリル（11.8）、1,2-エタンジオール（14.7）、*N,N*-ジメチルホルムアミド（11.5）、ジメチルスルホキシド（12.8）、酢酸（12.4）、ニトロベンゼン（11.1）、ニトロメタン（11.0）、1,2-ジクロロエタン（9.7）、ジクロロメタン（9.6）、クロロベンゼン（9.6）、ブromoベンゼン（9.9）、ジオキサン（9.8）、炭酸プロピレン（13.3）、ピリジン（10.4）、二硫化炭素（10.

0)、及びこれらの溶媒の混合溶媒が挙げられる。ここで、2種の溶媒(溶媒1、溶媒2とする)を混合してなる混合溶媒について説明すると、該混合溶媒の溶解度パラメーター(δ_m)は、 $\delta_m = \delta_1 \times \phi_1 + \delta_2 \times \phi_2$ により求めることとする(δ_1 は溶媒1の溶解度パラメーター、 ϕ_1 は溶媒1の体積分率、 δ_2 は溶媒2の溶解度パラメーター、 ϕ_2 は溶媒2の体積分率である。)

[0408] 電子注入層の膜厚としては、用いるイオン性ポリマーによって最適値が異なるため、駆動電圧と発光効率が適度な値となるように選択すればよく、ピンホールが発生しない厚さが必要である。素子の駆動電圧を低くする観点からは、該膜厚は、1 nm～1 μ mであることが好ましく、2 nm～500 nmであることがより好ましく、2 nm～200 nmであることがさらに好ましい。発光層を保護する観点からは、該膜厚は、5 nm～1 μ mであることが好ましい。

[0409] <陰極>

陰極の材料としては、電気伝導度の高い材料が好ましい。また陽極側から光を取出す構成の有機EL素子では、発光層からの光を陰極で陽極側に反射するために、陰極の材料としては可視光反射率の高い材料が好ましい。陰極には、金、銀、白金、銅、アルミニウム、マンガン、チタン、コバルト、ニッケル、タングステン、錫の単体もしくは1種以上を含む合金、又はグラファイト若しくはグラファイト層間化合物等を用いることができる。また、陰極としては導電性金属酸化物、導電性樹脂、及び樹脂と導電性フィラーの混合物等を用いることができる。具体的には、導電性金属酸化物として酸化インジウム、酸化亜鉛、酸化スズ、ITO、及びIZOを挙げることができ、導電性樹脂として3,4-ポリエチレンジオキシチオフェン/ポリスチレンスルホン酸等を挙げることができる。

[0410] 樹脂と導電性フィラーとからなる薄膜の場合、樹脂には導電性樹脂を使用することができる。また導電性フィラーとしては、金属微粒子や導電性ワイヤー等を使用することができる。導電性フィラーとしてはAuやAg、Al等を使用することができる。なお陰極は、2層以上を積層した積層体で構成

されていてもよい。

[0411] 陰極の膜厚は、求められる特性及び工程の簡易さ等を考慮して適宜設計され、例えば10nm～10μmであり、好ましくは20nm～1μmであり、さらに好ましくは50nm～500nmである。

[0412] 陰極の作製方法としては、真空蒸着法、スパッタリング法、また金属薄膜を熱圧着するラミネート法等を挙げることができる。また陰極の作製方法として、導電性フィラー及び樹脂を分散媒に分散させたインキを用いる場合、塗布法を用いることができる。

実施例

[0413] <有機EL素子の作製>

図4に示す積層構造の有機EL素子をガラス基板上に作製した。

ITO薄膜が形成されたガラス基板を用意した。ITO薄膜は陽極として機能する第1の電極に相当する。ITO薄膜は、スパッタ法によって形成されており、その厚みは50nmである。

つぎに、大気中において、スピコート法によってITO薄膜上に高分子化合物Aの懸濁液を塗布成膜し、厚みが60nmの正孔注入層用の塗布膜を形成した。この薄膜をホットプレート上で170℃、15分間乾燥することによって正孔注入層を形成した。

[0414] つぎに、高分子化合物Bを0.8重量%の濃度でキシレンに溶解し、このキシレン溶液を大気中においてスピコート法によって正孔注入層上に塗布し、膜厚が15nmの正孔輸送層用の塗布膜を成膜した。つづいて、常圧程度の圧力において、酸素濃度及び水分濃度がそれぞれ体積比で10ppm以下に制御された窒素雰囲気中において180℃、60分間保持することによって塗布膜を乾燥し、正孔輸送層を得た。

[0415] つぎに赤色の光を放射する高分子発光材料Cを1.6重量%の濃度でキシレンに溶解し、このキシレン溶液を大気中においてスピコート法によって正孔輸送層上に塗布し、膜厚が70nmの発光層用の塗布膜を成膜した。つづいて、常圧程度の圧力において、酸素濃度及び水分濃度がそれぞれ体積比

で10ppm以下に制御された窒素雰囲気中において130℃、10分間保持することによって塗布膜を乾燥し、赤色の光を放射する発光層を得た。

[0416] つぎに後述の実験例1で得られた共役高分子化合物1を0.2重量%の濃度でメタノールに溶解し、このメタノール溶液を大気中においてスピンコート法により発光層上に塗布し、膜厚が10nmの電子注入層用の塗布膜を成膜した。つづいて、大気雰囲気中において130℃で10分間保持することによって塗布膜を乾燥し、電子注入層を得た。

[0417] つぎに、 1.0×10^{-4} Pa以下にまで減圧した状態において、アルミニウムを電子注入層の上に約8nm蒸着し、アルミニウム薄膜からなる取出し電極を形成した。なおこのアルミニウムは一般に陰極の材料として使用されるものである。

[0418] 取出し電極が形成された基板を大気中に取り出し、共役高分子化合物1を0.2重量%の濃度でメタノールに溶解し、このメタノール溶液を大気中においてスピンコート法により取出し電極上に塗布し、膜厚が10nmの電子注入層用の塗布膜を成膜した。つづいて、大気雰囲気中において130℃で10分間保持することによって塗布膜を乾燥し、電子注入層を得た。

[0419] つぎに、白色の光を放射する高分子発光材料Dを1.3重量%の濃度でキシレンに溶解し、このキシレン溶液を大気中においてスピンコート法によって電子注入層上に塗布し、膜厚が70nmの発光層用の塗布膜を成膜した。つづいて、常圧程度の圧力において、酸素濃度及び水分濃度がそれぞれ体積比で10ppm以下に制御された窒素雰囲気中において190℃、60分間保持することによって塗布膜を乾燥し、白色の光を放射する発光層を得た。

[0420] つぎに、高分子化合物Bを0.8重量%の濃度でキシレンに溶解し、このキシレン溶液を大気中においてスピンコート法によって発光層上に塗布し、膜厚が15nmの正孔輸送層用の塗布膜を成膜した。つづいて、酸素濃度及び水分濃度がそれぞれ体積比で10ppm以下に制御された窒素雰囲気中において180℃、60分間保持することによって塗布膜を乾燥し、正孔輸送層を得た。

[0421] つぎに、 1.0×10^{-4} Pa以下にまで減圧した状態において、酸化モリブデンを正孔輸送層の上に約30 nm蒸着し、酸化モリブデンからなる正孔注入層を得た。

[0422] つぎに、 1.0×10^{-4} Pa以下にまで減圧した状態において、金を正孔注入層の上に約60 nm蒸着し、金からなる第2の電極を得た。この第2の電極は陽極に相当する。

第2の電極を形成した後、接着材料を介して封止用ガラス基板を貼り合せ、有機EL素子の封止を行った。

[0423] [発光状態の確認]

実施例で作製した有機EL素子の発光確認を行った。第1の電極、第2の電極、及び取出し電極と、駆動回路とをそれぞれ接続し、第1の電極と取出し電極との間に電圧V1、取出し電極と第2の電極との間に電圧V2をそれぞれ独立して印加した。なお有機EL素子から放射される光（赤色の光と白色の光を重ね合わせた光）の輝度が $1,000 \text{ cd/m}^2$ となるように、V1、V2を種々設定し、各印加電圧における色度を測定した。

測定結果を図6のCIE色度座標に示す。図6に示すように、V1、V2を種々調整することにより、輝度を一定にしたまま、発光色を調整することができることを確認した。すなわち白色の光を放射する発光層、赤色の光を放射する発光層から放射される光の強度をそれぞれ独立して制御することが可能であることを確認した。

[0424] つぎに、上記実施例で使用されたイオン性ポリマー等、作製した各種イオン性ポリマーについて記載する。

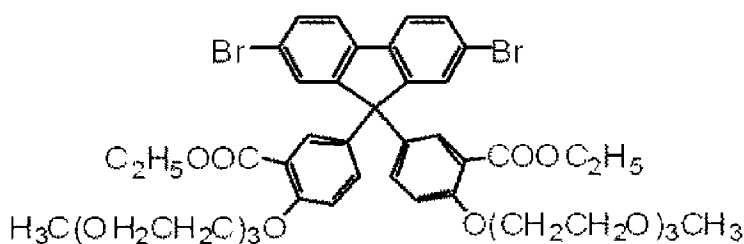
[0425] [参考例1]

2,7-ジブロモ-9,9-ビス[3-エトキシカルボニル-4-[2-[2-(2-メトキシエトキシ)エトキシ]エトキシ]フェニル]-フルオレン（化合物A）の合成

2,7-ジブロモ-9-フルオレノン（52.5 g）、サリチル酸エチル（154.8 g）、及びメルカプト酢酸（1.4 g）を300 mLフラスコ

に入れ、フラスコ中の雰囲気窒素置換（以下、フラスコに関して、フラスコ中の雰囲気窒素置換することを単に窒素置換と省略して記載することがある。）した。そこに、メタンスルホン酸（630 mL）を添加し、混合物を75℃で終夜撹拌した。混合物を放冷し、氷水に添加して1時間撹拌した。生じた固体をろ別し、加熱したアセトニトリルで洗浄した。洗浄済みの該固体をアセトンに溶解させ、得られたアセトン溶液から固体を再結晶させ、ろ別した。得られた固体（62.7 g）、2-[2-(2-メトキシエトキシ)エトキシ]-p-トルエンスルホネート（86.3 g）、炭酸カリウム（62.6 g）、及び18-クラウン-6（7.2 g）をN、N-ジメチルホルムアミド（DMF）（670 mL）に溶解させ、溶液をフラスコへ移して105℃で終夜撹拌した。得られた混合物を室温まで放冷し、氷水へ加え、1時間撹拌した。反応液にクロロホルム（300 mL）を加えて分液抽出を行い、溶液を濃縮することで、2,7-ジブロモ-9,9-ビス[3-エトキシカルボニル-4-[2-[2-(2-メトキシエトキシ)エトキシ]エトキシ]フェニル]-フルオレン（化合物A）（51.2 g）を得た。

[0426] [化64]



化合物 A

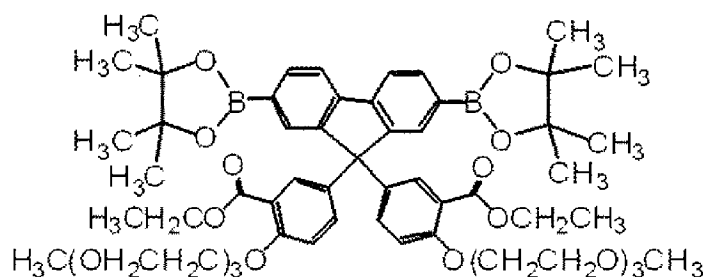
[0427] [参考例2]

2,7-ビス(4,4,5,5-テトラメチル-1,3,2-ジオキサボロラン-2-イル)-9,9-ビス[3-エトキシカルボニル-4-[2-[2-(2-メトキシエトキシ)エトキシ]エトキシ]フェニル]-フルオレン（化合物B）の合成

窒素雰囲気下、化合物A（15 g）、ビス（ピナコラート）ジボロン（8.9 g）、[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 (11) ジクロロメタン錯体 (0.8 g)、1, 1'-ビス (ジフェニルホスフィノ) フェロセン (0.5 g)、酢酸カリウム (9.4 g)、ジオキサン (400 mL) を混合し、110℃に加熱し、10時間加熱還流させた。放冷後、反応液をろ過し、ろ液を減圧濃縮した。反応混合物をメタノールで3回洗浄した。沈殿物をトルエンに溶解させ、溶液に活性炭を加えて攪拌した。その後、ろ過を行い、ろ液を減圧濃縮することで、2, 7-ビス (4, 4, 5, 5-テトラメチル-1, 3, 2-ジオキサボロラン-2-イル)-9, 9-ビス [3-エトキシカルボニル-4-[2-[2-(2-メトキシエトキシ)エトキシ]エトキシ]フェニル]-フルオレン (化合物B) (11.7 g) を得た。

[0428] [化65]



化合物B

[0429] [参考例3]

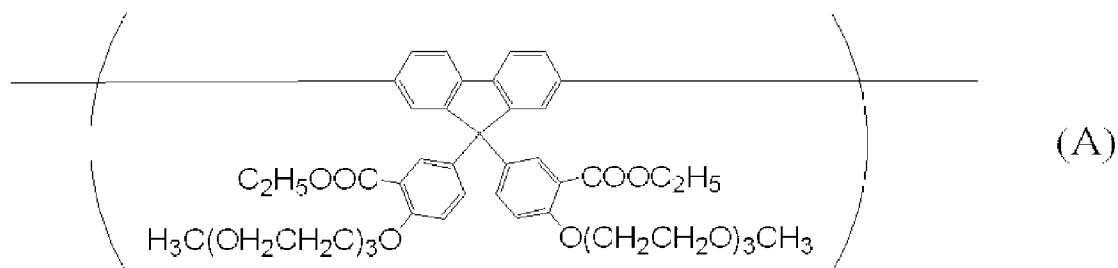
ポリ [9, 9-ビス [3-エトキシカルボニル-4-[2-[2-(2-メトキシエトキシ)エトキシ]エトキシ]フェニル]-フルオレン] (重合体A) の合成

不活性雰囲気下、化合物A (0.55 g)、化合物B (0.61 g)、トリフェニルホスフィンパラジウム (0.01 g)、メチルトリオクチルアンモニウムクロライド (アルドリッチ製、商品名Aliquat 336 (登録商標)) (0.20 g)、及びトルエン (10 mL) を混合し、105℃に加熱した。この反応液に2M 炭酸ナトリウム水溶液 (6 mL) を滴下し、8時間還流させた。反応液に4-tert-ブチルフェニル硼酸 (0.01 g) を加え、6時間還流させた。次いで、ジエチルジチアカルバミン酸ナトリ

ウム水溶液（10 mL、濃度：0.05 g/mL）を加え、2時間攪拌した。混合溶液をメタノール300 mL中に滴下して1時間攪拌した後、析出した沈殿をろ過して2時間減圧乾燥させ、テトラヒドロフラン20 mLに溶解させた。得られた溶液をメタノール120 mL、3重量%酢酸水溶液50 mLの混合溶媒中に滴下して1時間攪拌した後、析出した沈殿をろ過し、テトラヒドロフラン20 mLに溶解させた。こうして得られた溶液をメタノール200 mLに滴下して30分攪拌した後、析出した沈殿をろ過して固体を得た。得られた固体をテトラヒドロフランに溶解させ、アルミナカラム、シリカゲルカラムを通すことにより精製した。カラムから回収したテトラヒドロフラン溶液を濃縮した後、メタノール（200 mL）に滴下し、析出した固体をろ過し、乾燥させた。得られたポリ〔9, 9-ビス〔3-エトキシカルボニル-4-ビス〔2-〔2-（2-メトキシエトキシ）エトキシ〕エトキシ〕フェニル〕-フルオレン〕（重合体A（BSAFEGP））の収量は520 mgであった。

[0430] 重合体Aのポリスチレン換算の数平均分子量は 5.2×10^4 であった。重合体Aは、式（A）で表される繰り返し単位からなる。

[0431] [化66]



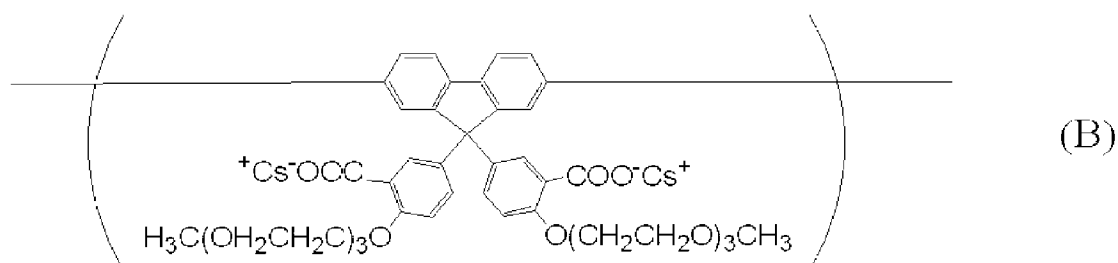
[0432] [実験例1]

重合体Aセシウム塩の合成

重合体A（200 mg）を100 mLフラスコに入れ、窒素置換した。テトラヒドロフラン（20 mL）、及びエタノール（20 mL）を添加し、混合物を55℃に昇温した。そこに、水酸化セシウム（200 mg）を水（2 mL）に溶解させた水溶液を添加し、55℃で6時間攪拌した。混合物を窒

温まで冷却した後、反応溶媒を減圧留去した。生じた固体を水で洗浄し、減圧乾燥させることで薄黄色の固体（150 mg）を得た。NMRスペクトルにより、重合体A内のエチルエステル部位のエチル基由来のシグナルが完全に消失していることを確認した。得られた重合体Aのセシウム塩を共役高分子化合物1と呼ぶ。共役高分子化合物1は式（B）で表される繰り返し単位からなる（「全繰り返し単位中の、式（1）で表される基及び式（2）で表される基からなる群から選ばれる1種以上の基と式（3）で表される1種以上の基とを含む繰り返し単位の割合」及び「全繰り返し単位中の、式（13）、（15）、（17）、（20）で表される繰り返し単位の割合」は、100モル%である。）。共役高分子化合物1のHOMOの軌道エネルギーは -5.5 eV 、LUMOの軌道エネルギーは -2.7 eV であった。

[0433] [化67]



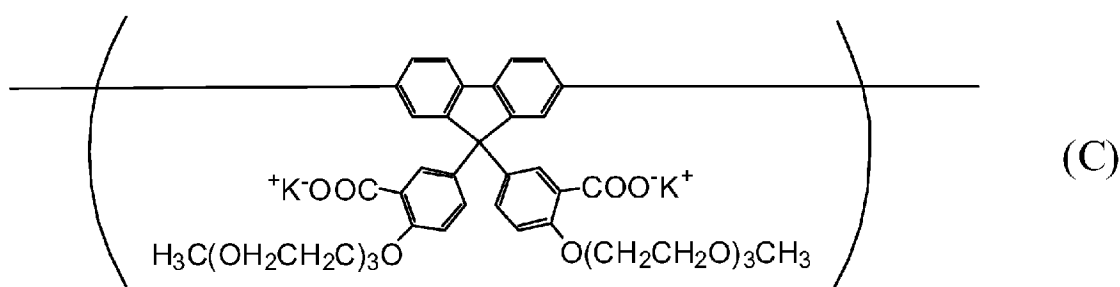
[0434] [実験例2]

重合体Aカリウム塩の合成

重合体A（200 mg）を100 mLフラスコに入れ、窒素置換した。テトラヒドロフラン（20 mL）、及びメタノール（10 mL）を混合し、混合溶液に、水酸化カリウム（400 mg）を水（2 mL）に溶解させた水溶液を添加し、65℃で1時間攪拌した。反応溶液にメタノール50 mLを加え、さらに65℃で4時間攪拌した。混合物を室温まで冷却した後、反応溶媒を減圧留去した。生じた固体を水で洗浄し、減圧乾燥させることで薄黄色の固体（131 mg）を得た。NMRスペクトルにより、重合体A内のエチルエステル部位のエチル基由来のシグナルが完全に消失していることを確認した。得られた重合体Aのカリウム塩を共役高分子化合物2と呼ぶ。共役高

分子化合物 2 は式 (C) で表される繰返し単位からなる (「全繰返し単位中の、式 (1) で表される基及び式 (2) で表される基からなる群から選ばれる 1 種以上の基と式 (3) で表される 1 種以上の基とを含む繰返し単位の割合」及び「全繰返し単位中の、式 (13)、(15)、(17)、(20) で表される繰返し単位の割合」は、100 モル%である。)。共役高分子化合物 2 の HOMO の軌道エネルギーは -5.5 eV 、LUMO の軌道エネルギーは -2.7 eV であった。

[0435] [化68]



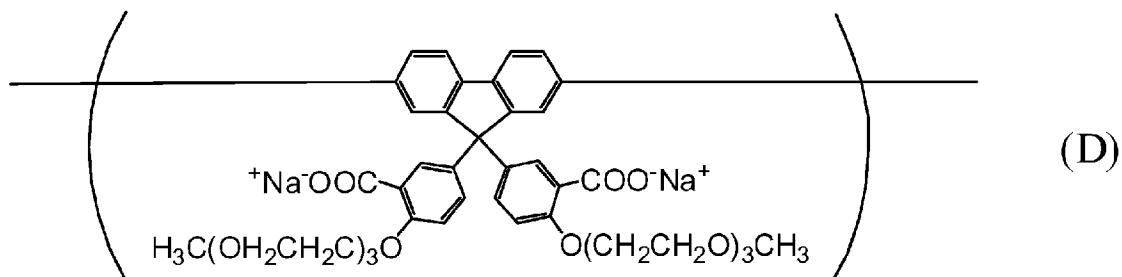
[0436] [実験例 3]

重合体 A ナトリウム塩の合成

重合体 A (200 mg) を 100 mL フラスコに入れ、窒素置換した。テトラヒドロフラン (20 mL)、及びメタノール (10 mL) を混合し、混合溶液に、水酸化ナトリウム (260 mg) を水 (2 mL) に溶解させた水溶液を添加し、65℃で1時間攪拌した。反応溶液にメタノール 30 mL を加え、さらに 65℃で4時間攪拌した。混合物を室温まで冷却した後、反応溶媒を減圧留去した。生じた固体を水で洗浄し、減圧乾燥させることで薄黄色の固体 (123 mg) を得た。NMR スペクトルにより、重合体 A 内のエチルエステル部位のエチル基由来のシグナルが完全に消失していることを確認した。得られた重合体 A のナトリウム塩を共役高分子化合物 3 と呼ぶ。共役高分子化合物 3 は式 (D) で表される繰返し単位からなる (「全繰返し単位中の、式 (1) で表される基及び式 (2) で表される基からなる群から選ばれる 1 種以上の基と式 (3) で表される 1 種以上の基とを含む繰返し単位の割合」及び「全繰返し単位中の、式 (13)、(15)、(17

）、（２０）で表される繰り返し単位の割合」は、１００モル％である。）
共役高分子化合物３のＨＯＭＯの軌道エネルギーは－５．６ e V、ＬＵＭ
Ｏの軌道エネルギーは－２．８ e Vであった。

[0437] [化69]

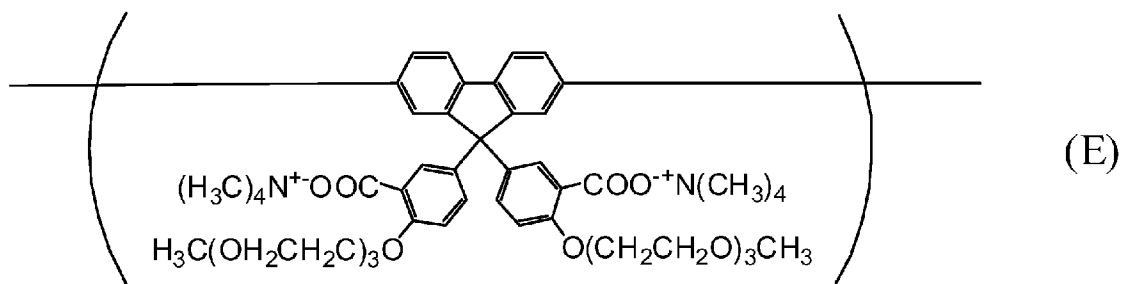


[0438] [実験例４]

重合体Ａアンモニウム塩の合成

重合体Ａ（２００ m g）を１００ m L フラスコに入れ、窒素置換した。テトラヒドロフラン（２０ m L）、及びメタノール（１５ m L）を混合し、混合溶液にテトラメチルアンモニウムヒドロキシド（５０ m g）を水（１ m L）に溶解させた水溶液を添加し、６５℃で６時間攪拌した。反応溶液にテトラメチルアンモニウムヒドロキシド（５０ m g）を水（１ m L）に溶解させた水溶液を加え、さらに６５℃で４時間攪拌した。混合物を室温まで冷却した後、反応溶媒を減圧留去した。生じた固体を水で洗浄し、減圧乾燥させることで薄黄色の固体（１５０ m g）を得た。NMRスペクトルにより、重合体Ａ内のエチルエステル部位のエチル基由来のシグナルが９０％消失していることを確認した。得られた重合体Ａのアンモニウム塩を共役高分子化合物４と呼ぶ。共役高分子化合物４は式（Ｅ）で表される繰り返し単位からなる（「全繰り返し単位中の、式（１）で表される基及び式（２）で表される基からなる群から選ばれる１種以上の基と式（３）で表される１種以上の基を含む繰り返し単位の割合」及び「全繰り返し単位中の、式（１３）、（１５）、（１７）、（２０）で表される繰り返し単位の割合」は、９０モル％である。）。共役高分子化合物４のＨＯＭＯの軌道エネルギーは－５．６ e V、ＬＵＭＯの軌道エネルギーは－２．８ e Vであった。

[0439] [化70]



[0440] [参考例4]

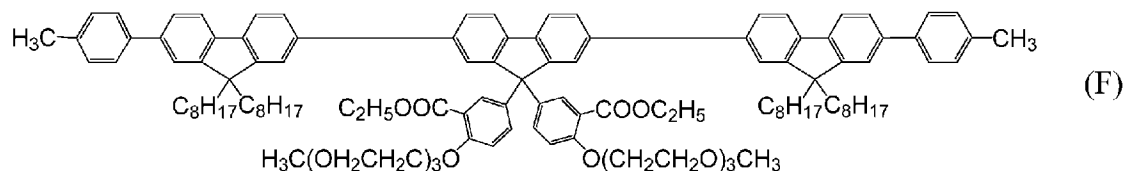
2, 7-ビス [7- (4-メチルフェニル) -9, 9-ジオクチルフルオレン-2-イル] -9, 9-ビス [3-エトキシカルボニル-4- [2- [2- (2-メトキシエトキシ) エトキシ] エトキシ] フェニル] -フルオレン (重合体B) の合成

不活性雰囲気下、化合物A (0.52g)、2, 7-ビス (1, 3, 2-ジオキサボロラン-2-イル) -9, 9-ジオクチルフルオレン (1.29g)、トリフェニルホスフィンパラジウム (0.0087g)、メチルトリオクチルアンモニウムクロライド (アルドリッチ製、商品名 Aliquat 336 (登録商標)) (0.20g)、トルエン (10mL)、及び2M炭酸ナトリウム水溶液 (10mL) を混合し、80℃に加熱した。反応液を3.5時間反応させた。その後、そこに、パラブロモトルエン (0.68g) を加えて、更に2.5時間反応させた。反応後、反応液を室温まで冷却し、酢酸エチル50mL／蒸留水50mLを加えて水層を除去した。再び蒸留水50mLを加えて水層を除去した後、乾燥剤として硫酸マグネシウムを加えて、不溶物をろ過して、有機溶媒を除去した。その後、得られた残渣を再びTHF10mLに溶かして、飽和ジエチルジチオカルバミン酸ナトリウム水2mLを添加して、30分間攪拌した後、有機溶媒を除去した。アルミナカラム (展開溶媒 ヘキサン：酢酸エチル=1：1、v／v) を通して精製を行い、析出した沈殿をろ過して12時間減圧乾燥させたところ、2, 7-ビス [7- (4-メチルフェニル) -9, 9-ジオクチルフルオレン-2-イル] -9, 9-ビス [3-エトキシカルボニル-4- [2- [2- (2-メ

トキシエトキシ) エトキシ] エトキシ] フェニル] ーフルオレン (重合体 B) が 524 mg 得られた。

[0441] 重合体 B のポリスチレン換算の数平均分子量は、 2.0×10^3 であった。
なお、重合体 B は、式 (F) で表される。

[0442] [化71]



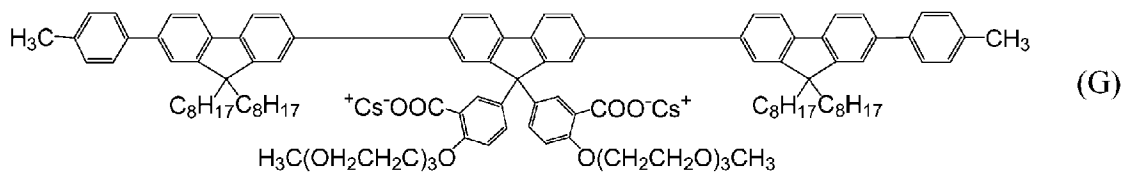
[0443] [実験例 5]

重合体 B セシウム塩の合成

重合体 B (262 mg) を 100 mL フラスコに入れ、アルゴン置換した。そこに、テトラヒドロフラン (10 mL)、及びメタノール (15 mL) を添加し、混合物を 55℃ に昇温した。そこに、水酸化セシウム (341 mg) を水 (1 mL) に溶かした水溶液を添加し、55℃ で 5 時間攪拌した。得られた混合物を室温まで冷却した後、反応溶媒を減圧留去した。生じた固体を水で洗浄し、減圧乾燥させることで薄黄色の固体 (250 mg) を得た。NMR スペクトルにより、エチルエステル部位のエチル基由来のシグナルが完全に消失していることを確認した。得られた重合体 B セシウム塩を共役高分子化合物 5 と呼ぶ。共役高分子化合物 5 は、式 (G) で表される (「全繰返し単位中の、式 (1) で表される基及び式 (2) で表される基からなる群から選ばれる 1 種以上の基と式 (3) で表される 1 種以上の基とを含む繰返し単位の割合」及び「全繰返し単位中の、式 (13)、(15)、(17)、(20) で表される繰返し単位の割合」は、小数第二位で四捨五入して、33.3 モル%である。)。共役高分子化合物 5 の HOMO の軌道エネルギーは -5.6 eV であり、LUMO の軌道エネルギーは -2.6 eV であった。

[0444]

[化72]



[0445] [参考例 5]

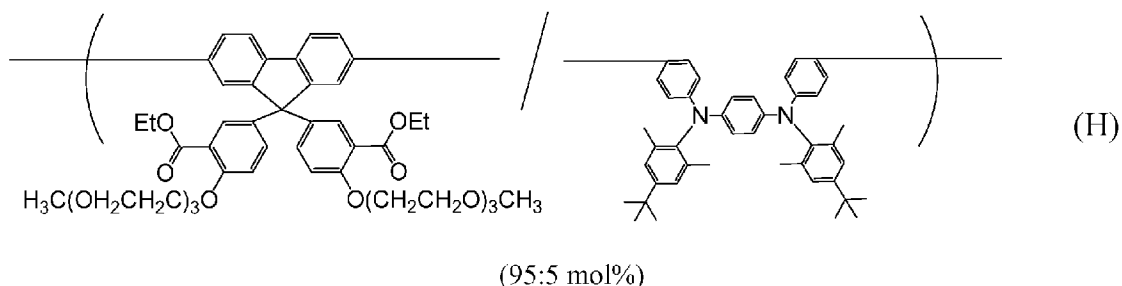
重合体Cの合成

不活性雰囲気下、化合物A（0.40g）、化合物B（0.49g）、N,N'-ビス（4-ブロモフェニル）-N,N'-ビス（4-t-ブチル-2,6-ジメチルフェニル）1,4-フェニレンジアミン（35mg）、トリフェニルホスフィンパラジウム（8mg）、メチルトリオクチルアンモニウムクロライド（アルドリッチ製、商品名Aliquat 336（登録商標））（0.20g）、及びトルエン（10mL）を混合し、105℃に加熱した。この反応液に2M炭酸ナトリウム水溶液（6mL）を滴下し、8時間還流させた。反応液にフェニルボロン酸（0.01g）を加え、6時間還流させた。次いで、ジエチルジチアカルバミン酸ナトリウム水溶液（10mL、濃度：0.05g/mL）を加え、2時間攪拌した。混合溶液をメタノール300mL中に滴下して1時間攪拌した後、析出した沈殿をろ過して2時間減圧乾燥させ、テトラヒドロフラン20mLに溶解させた。得られた溶液をメタノール120mL、3重量%酢酸水溶液50mLの混合溶媒中に滴下して1時間攪拌した後、析出した沈殿をろ過し、テトラヒドロフラン20mLに溶解させた。こうして得られた溶液をメタノール200mLに滴下して30分攪拌した後、析出した沈殿をろ過して固体を得た。得られた固体をテトラヒドロフランに溶解させ、アルミナカラム、シリカゲルカラムを通すことにより精製した。カラムから回収したテトラヒドロフラン溶液を濃縮した後、メタノール（200mL）に滴下し、析出した固体をろ過し、乾燥させた。得られた重合体Cの収量は526mgであった。

[0446] 重合体Cのポリスチレン換算の数平均分子量は 3.6×10^4 であった。重合体Cは、式(H)で表される繰返し単位からなる。

[0447] なお、N, N' -ビス (4 -ブロモフェニル) -N, N' -ビス (4 -tert -ブチル -2, 6 -ジメチルフェニル) 1, 4 -フェニレンジアミンは、例えば特開 2008 - 74017 号公報に記載されている方法で合成することができる。

[0448] [化73]

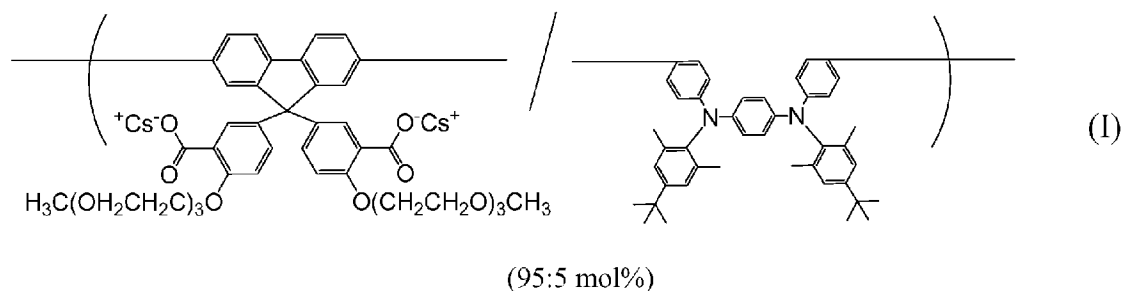


[0449] [実験例 6]

重合体 C セシウム塩の合成

重合体 C (200 mg) を 100 mL フラスコに入れ、窒素置換した。テトラヒドロフラン (20 mL)、及びメタノール (20 mL) を添加し混合した。混合溶液に、水酸化セシウム (200 mg) を水 (2 mL) に溶解させた水溶液を添加し、65℃で1時間攪拌した。反応溶液にメタノール 30 mL を加え、さらに 65℃で4時間攪拌した。混合物を室温まで冷却した後、反応溶媒を減圧留去した。生じた固体を水で洗浄し、減圧乾燥させることで薄黄色の固体 (150 mg) を得た。NMR スペクトルにより、重合体 C 内のエチルエステル部位のエチル基由来のシグナルが完全に消失していることを確認した。得られた重合体 C のセシウム塩を共役高分子化合物 6 と呼ぶ。共役高分子化合物 6 は式 (1) で表される繰り返し単位からなる (「全繰り返し単位中の、式 (1) で表される基及び式 (2) で表される基からなる群から選ばれる 1 種以上の基と式 (3) で表される 1 種以上の基とを含む繰り返し単位の割合」及び「全繰り返し単位中の、式 (13)、(15)、(17)、(20) で表される繰り返し単位の割合」は、95 モル%である)。共役高分子化合物 6 の HOMO の軌道エネルギーは -5.3 eV、LUMO の軌道エネルギーは -2.6 eV であった。

[0450] [化74]



[0451] [参考例6]

重合体Dの合成

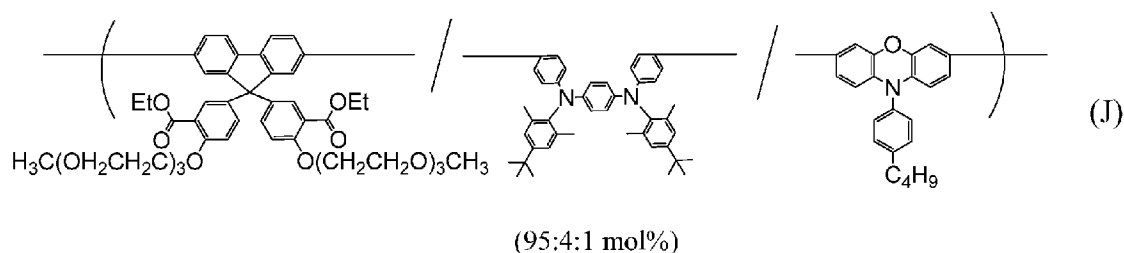
不活性雰囲気下、化合物A（0.55g）、化合物B（0.67g）、N, N'-ビス（4-ブロモフェニル）-N, N'-ビス（4-tert-ブチル-2,6-ジメチルフェニル）1,4-フェニレンジアミン（0.038g）、3,7-ジブromo-N-（4-n-ブチルフェニル）フェノキサジン 0.009g、トリフェニルホスフィンパラジウム（0.01g）、メチルトリオクチルアンモニウムクロライド（アルドリッチ製、商品名Aliquat 336（登録商標））（0.20g）、及びトルエン（10mL）を混合し、105℃に加熱した。この反応液に2M 炭酸ナトリウム水溶液（6mL）を滴下し、2時間還流させた。反応液にフェニルボロン酸（0.004g）を加え、6時間還流させた。次いで、ジエチルジチアカルバミン酸ナトリウム水溶液（10mL、濃度：0.05g/mL）を加え、2時間攪拌した。混合溶液をメタノール300mL中に滴下して1時間攪拌した後、析出した沈殿をろ過して2時間減圧乾燥させ、テトラヒドロフラン20mLに溶解させた。得られた溶液をメタノール120mL、3重量%酢酸水溶液50mLの混合溶媒中に滴下して1時間攪拌した後、析出した沈殿をろ過し、テトラヒドロフラン20mLに溶解させた。こうして得られた溶液をメタノール200mLに滴下して30分攪拌した後、析出した沈殿をろ過して固体を得た。得られた固体をテトラヒドロフランに溶解させ、アルミナカラム、シリカゲルカラムを通すことにより精製した。カラムから回収したテトラヒドロフラン溶液を濃縮した後、メタノール（200mL）に滴下し、析出した

固体をろ過し、乾燥させた。得られた重合体Dの収量は590mgであった。

[0452] 重合体Dのポリスチレン換算の数平均分子量は 2.7×10^4 であった。重合体Dは、式(J)で表される繰り返し単位からなる。

なお、3,7-ジブロモ-N-(4-n-ブチルフェニル)フェノキサジンは、特開2004-137456号公報に記載の方法で合成した。

[0453] [化75]



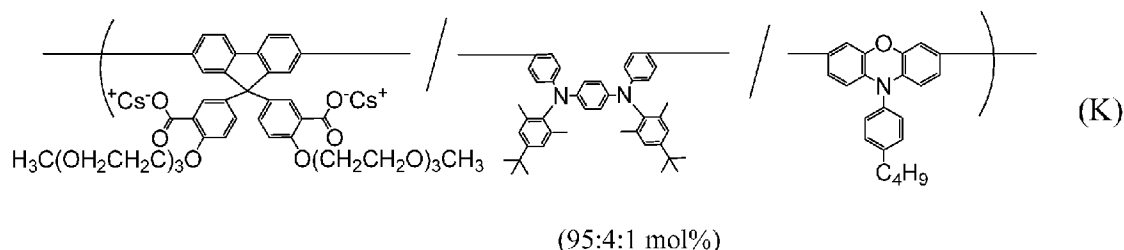
[0454] [実験例7]

重合体Dセシウム塩の合成

重合体D(200mg)を100mLフラスコに入れ、窒素置換した。テトラヒドロフラン(15mL)、及びメタノール(10mL)を混合した。混合溶液に、水酸化セシウム(360mg)を水(2mL)に溶解させた水溶液を添加し、65℃で3時間攪拌した。反応溶液にメタノール10mLを加え、さらに65℃で4時間攪拌した。混合物を室温まで冷却した後、反応溶媒を減圧留去した。生じた固体を水で洗浄し、減圧乾燥させることで薄黄色の固体(210mg)を得た。NMRスペクトルにより、重合体D内のエチルエステル部位のエチル基由来のシグナルが完全に消失していることを確認した。得られた重合体Dのセシウム塩を共役高分子化合物7と呼ぶ。共役高分子化合物7は式(K)で表される繰り返し単位からなる(「全繰り返し単位中の、式(1)で表される基及び式(2)で表される基からなる群から選ばれる1種以上の基と式(3)で表される1種以上の基とを含む繰り返し単位の割合」及び「全繰り返し単位中の、式(13)、(15)、(17)、(20)で表される繰り返し単位の割合」は、95モル%である。)。共役高分子化合物7のHOMOの軌道エネルギーは -5.3 eV 、LUMOの

軌道エネルギーは -2.4 eV であった。

[0455] [化76]



[0456] [参考例7]

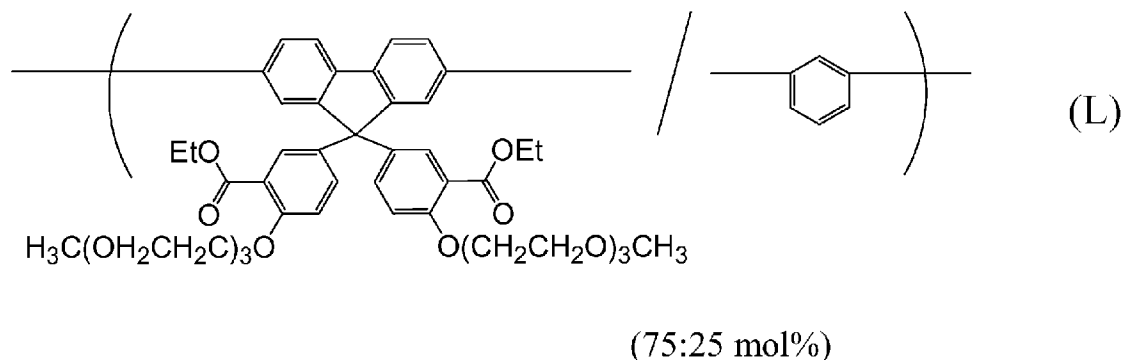
重合体Eの合成

不活性雰囲気下、化合物A (0.37 g)、化合物B (0.82 g)、1,3-ジブロモベンゼン (0.09 g)、トリフェニルホスフィンパラジウム (0.01 g)、メチルトリオクチルアンモニウムクロライド (アルドリッチ製、商品名 Aliquat 336 (登録商標)) (0.20 g)、及びトルエン (10 mL) を混合し、 105°C に加熱した。この反応液に 2 M 炭酸ナトリウム水溶液 (6 mL) を滴下し、7 時間還流させた。反応液にフェニルボロン酸 (0.002 g) を加え、10 時間還流させた。次いで、ジエチルジチアカルバミン酸ナトリウム水溶液 (10 mL、濃度: 0.05 g/mL) を加え、1 時間攪拌した。混合溶液をメタノール 300 mL 中に滴下して 1 時間攪拌した後、析出した沈殿をろ過して 2 時間減圧乾燥させ、テトラヒドロフラン 20 mL に溶解させた。得られた溶液をメタノール 120 mL、3 重量% 酢酸水溶液 50 mL の混合溶媒中に滴下して 1 時間攪拌した後、析出した沈殿をろ過し、テトラヒドロフラン 20 mL に溶解させた。こうして得られた溶液をメタノール 200 mL に滴下して 30 分攪拌した後、析出した沈殿をろ過して固体を得た。得られた固体をテトラヒドロフランに溶解させ、アルミナカラム、シリカゲルカラムを通すことにより精製した。カラムから回収したテトラヒドロフラン溶液を濃縮した後、メタノール (200 mL) に滴下し、析出した固体をろ過し、乾燥させた。得られた重合体 E の収量は 293 mg であった。

[0457] 重合体 E のポリスチレン換算の数平均分子量は 1.8×10^4 であった。重

合体Eは、式(L)で表される繰り返し単位からなる。

[0458] [化77]



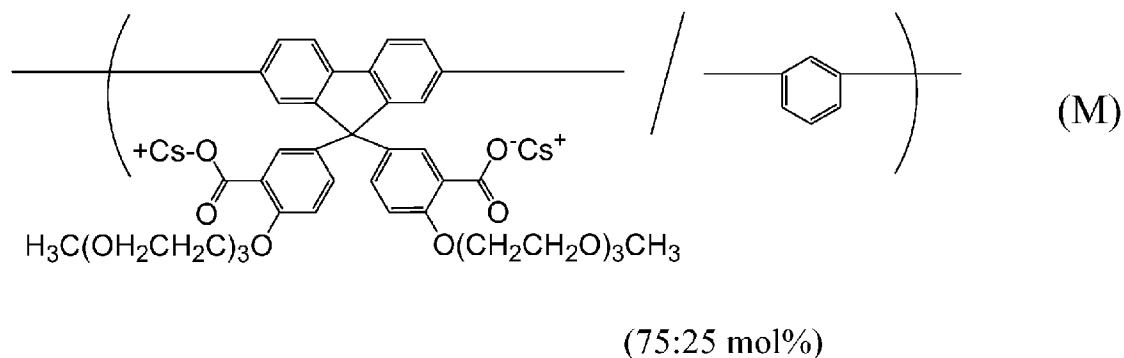
[0459] [実験例8]

重合体Eセシウム塩の合成

重合体E (200 mg) を100 mL フラスコに入れ、窒素置換した。テトラヒドロフラン (10 mL)、及びメタノール (5 mL) を混合した。混合溶液に、水酸化セシウム (200 mg) を水 (2 mL) に溶解させた水溶液を添加し、65℃で2時間攪拌した。反応溶液にメタノール10 mLを加え、さらに65℃で5時間攪拌した。混合物を室温まで冷却した後、反応溶媒を減圧留去した。生じた固体を水で洗浄し、減圧乾燥させることで薄黄色の固体 (170 mg) を得た。NMRスペクトルにより、重合体E内のエチルエステル部位のエチル基由来のシグナルが完全に消失していることを確認した。得られた重合体Eのセシウム塩を共役高分子化合物8と呼ぶ。共役高分子化合物8は式(M)で表される繰り返し単位からなる(「全繰り返し単位中の、式(1)で表される基及び式(2)で表される基からなる群から選ばれる1種以上の基と式(3)で表される1種以上の基とを含む繰り返し単位の割合」及び「全繰り返し単位中の、式(13)、(15)、(17)、(20)で表される繰り返し単位の割合」は、75モル%である。)。共役高分子化合物8のHOMOの軌道エネルギーは−5.6 eV、LUMOの軌道エネルギーは−2.6 eVであった。

[0460]

[化78]



[0461] [参考例8]

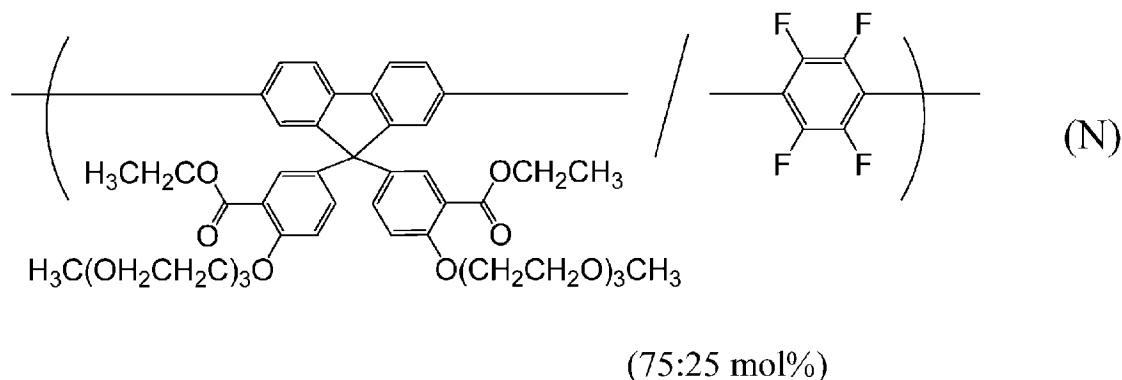
重合体Fの合成

不活性雰囲気下、化合物B（1.01g）、1,4-ジブromo-2,3,5,6-テトラフルオロベンゼン（0.30g）、トリフェニルホスフィンパラジウム（0.02g）、メチルトリオクチルアンモニウムクロライド（アルドリッチ製、商品名Aliquat 336（登録商標））（0.20g）、及びトルエン（10mL）を混合し、105℃に加熱した。この反応液に2M炭酸ナトリウム水溶液（6mL）を滴下し、4時間還流させた。反応液にフェニルボロン酸（0.002g）を加え、4時間還流させた。次いで、ジエチルジチアカルバミン酸ナトリウム水溶液（10mL、濃度：0.05g/mL）を加え、1時間攪拌した。混合溶液をメタノール300mL中に滴下して1時間攪拌した後、析出した沈殿をろ過して2時間減圧乾燥させ、テトラヒドロフラン20mLに溶解させた。得られた溶液をメタノール120mL、3重量%酢酸水溶液50mLの混合溶媒中に滴下して1時間攪拌した後、析出した沈殿をろ過し、テトラヒドロフラン20mLに溶解させた。こうして得られた溶液をメタノール200mLに滴下して30分攪拌した後、析出した沈殿をろ過して固体を得た。得られた固体をテトラヒドロフラン／酢酸エチル（1／1（体積比））の混合溶媒に溶解させ、アルミナカラム、シリカゲルカラムを通すことにより精製した。カラムから回収したテトラヒドロフラン溶液を濃縮した後、メタノール（200mL）に滴下し、析出した固体をろ過し、乾燥させた。得られた重合体Eの収量は343mg

であった。

[0462] 重合体Fのポリスチレン換算の数平均分子量は 6.0×10^4 であった。重合体Fは、式(N)で表される繰り返し単位からなる。

[0463] [化79]

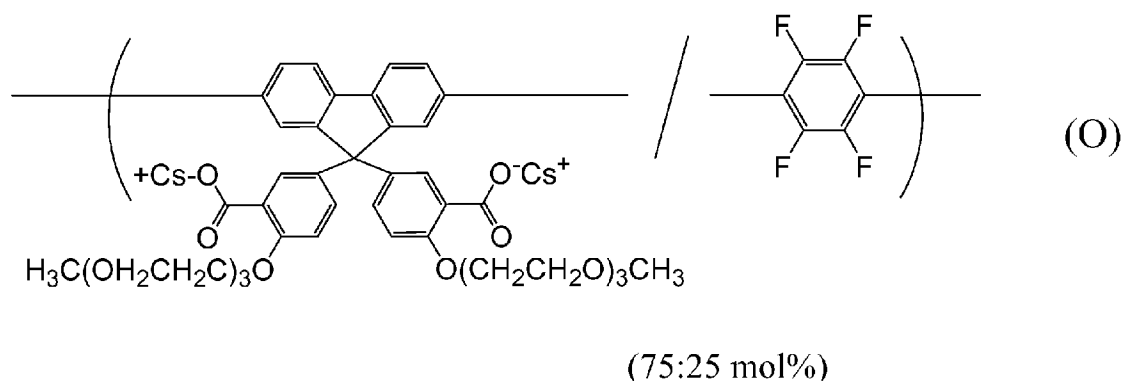


[0464] [実験例9]

重合体Fセシウム塩の合成

重合体F (150 mg) を100 mL フラスコに入れ、窒素置換した。テトラヒドロフラン (10 mL)、及びメタノール (5 mL) を混合した。混合溶液に、水酸化セシウム (260 mg) を水 (2 mL) に溶解させた水溶液を添加し、65℃で2時間攪拌した。反応溶液にメタノール10 mLを加え、さらに65℃で5時間攪拌した。混合物を室温まで冷却した後、反応溶媒を減圧留去した。生じた固体を水で洗浄し、減圧乾燥させることで薄黄色の固体 (130 mg) を得た。NMRスペクトルにより、重合体E内のエチルエステル部位のエチル基由来のシグナルが完全に消失していることを確認した。得られた重合体Fのセシウム塩を共役高分子化合物9と呼ぶ。共役高分子化合物9は式(O)で表される繰り返し単位からなる(「全繰り返し単位中の、式(1)で表される基及び式(2)で表される基からなる群から選ばれる1種以上の基と式(3)で表される1種以上の基とを含む繰り返し単位の割合」及び「全繰り返し単位中の、式(13)、(15)、(17)、(20)で表される繰り返し単位の割合」は、75モル%である。)。共役高分子化合物9のHOMOの軌道エネルギーは -5.9 eV 、LUMOの軌道エネルギーは -2.8 eV であった。

[0465] [化80]



[0466] [参考例 9]

不活性雰囲気下、2-[2-(2-メトキシエトキシ)エトキシ]-p-トルエンスルホネート(11.0g)、トリエチレングリコール(30.0g)、水酸化カリウム(3.3g)を混合し、100℃で18時間加熱撹拌した。放冷後、反応溶液を水(100mL)に加え、クロロホルムで分液抽出を行い、溶液を濃縮した。濃縮した溶液を、クーゲルロー蒸留(10mm Torr、180℃)することで、2-(2-(2-(2-(2-(2-メトキシエトキシ)-エトキシ)-エトキシ)-エトキシ)-エトキシ)エタノール(6.1g)を得た。

[0467] [参考例 10]

不活性雰囲気下、2-(2-(2-(2-(2-(2-メトキシエトキシ)-エトキシ)-エトキシ)-エトキシ)-エトキシ)エタノール(8.0g)、水酸化ナトリウム(1.4g)、蒸留水(2mL)、テトラヒドロフラン(2mL)を混合し、氷冷した。混合溶液に、p-トシルクロリド(5.5g)のテトラヒドロフラン(6.4mL)溶液を30分かけて滴下し、滴下後反応溶液を室温に上げて15時間撹拌した。反応溶液に蒸留水(50mL)を加え、6M硫酸で反応溶液を中和した後、クロロホルムで分液抽出を行った。溶液を濃縮することで、2-(2-(2-(2-(2-(2-メトキシエトキシ)-エトキシ)-エトキシ)-エトキシ)-エトキシ)p-トルエンスルホネート(11.8g)を得た。

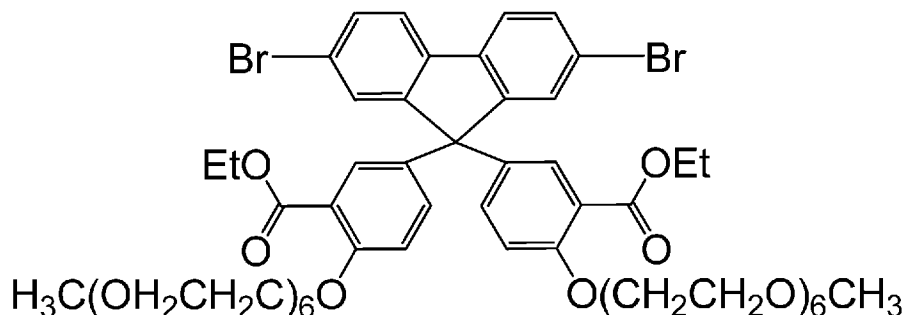
[0468] [参考例 11]

2, 7-ジブロモ-9, 9-ビス [3-エトキシカルボニル-4-[2-(2-(2-(2-(2-メトキシエトキシ)-エトキシ)-エトキシ)-エトキシ)-エトキシ] フェニル]-フルオレン (化合物 C) の合成

2, 7-ジブロモ-9-フルオレノン (127.2 g)、サリチル酸エチル (375.2 g)、及びメルカプト酢酸 (3.5 g) を 300 mL フラスコに入れ、窒素置換した。そこに、メタンスルホン酸 (1420 mL) を添加し、混合物を 75℃ で終夜撹拌した。混合物を放冷し、氷水に添加して 1 時間撹拌した。生じた固体をろ別し、加熱したアセトニトリルで洗浄した。洗浄済みの該固体をアセトンに溶解させ、得られたアセトン溶液から固体を再結晶させ、ろ別し固体 (167.8 g) を得た。得られた固体 (5 g)、2-(2-(2-(2-(2-(2-メトキシエトキシ)-エトキシ)-エトキシ)-エトキシ)-エトキシ) p-トルエンスルホネート (10.4 g)、炭酸カリウム (5.3 g)、及び 18-クラウン-6 (0.6 g) を N、N-ジメチルホルムアミド (DMF) (100 mL) に溶解させ、溶液をフラスコへ移して 105℃ で 4 時間撹拌した。得られた混合物を室温まで放冷し、氷水へ加え、1 時間撹拌した。反応液にクロロホルム (300 mL) を加えて分液抽出を行い、溶液を濃縮した。濃縮物を酢酸エチルに溶解させ、アルミナのカラムに通液し、溶液を濃縮することで、2, 7-ジブロモ-9, 9-ビス [3-エトキシカルボニル-4-[2-(2-(2-(2-(2-(2-メトキシエトキシ)-エトキシ)-エトキシ)-エトキシ)-エトキシ)-エトキシ] フェニル]-フルオレン (化合物 C) (4.5 g) を得た。

[0469]

[化81]



化合物C

[0470] [参考例 1 2]

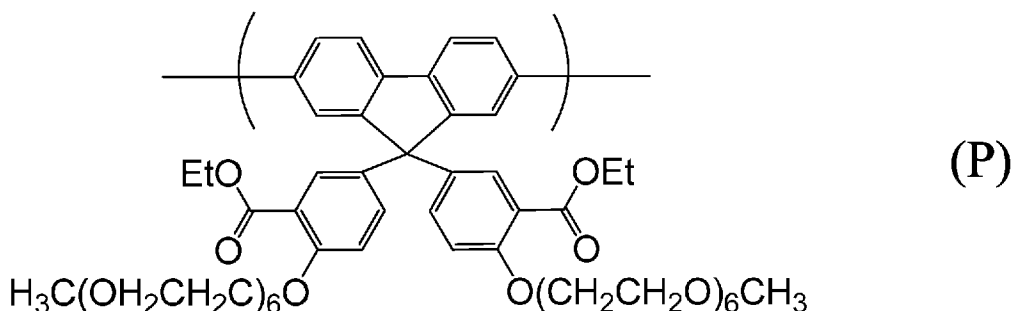
重合体Gの合成

不活性雰囲気下、化合物C（1.0 g）、4-tert-ブチルフェニルブロミド（0.9 mg）、2,2'-ビピリジン（0.3 g）、脱水テトラヒドロフラン（50 mL）を200 mLフラスコに入れ混合した。混合物を55℃に昇温した後、ビス（1,5-シクロオクタジエン）ニッケル（0.6 g）を添加し、55℃で5時間攪拌した。混合物を室温まで冷却した後、反応溶液をメタノール（200 mL）、1 N希塩酸（200 mL）の混合液に滴下した。生じた沈殿物をろ過により収集した後、テトラヒドロフランに再溶解させた。メタノール（200 mL）、15%アンモニア水（100 mL）の混合液に滴下し、生じた沈殿物をろ過により収集した。沈殿物をテトラヒドロフランに再溶解させ、メタノール（200 mL）、水（100 mL）の混合液に滴下し、生じた沈殿物をろ過により収集した。収集した沈殿物を減圧乾燥することで重合体G（360 mg）を得た。

重合体Gのポリスチレン換算の数平均分子量は 6.0×10^4 であった。重合体Gは、式（P）で表される繰り返し単位からなる。

[0471]

[化82]



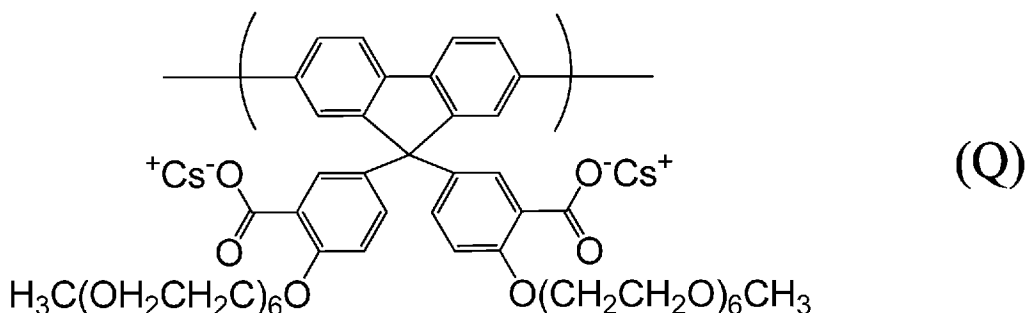
[0472] [実験例 10]

重合体Gセシウム塩の合成

重合体G (150 mg) を100 mL フラスコに入れ、窒素置換した。テトラヒドロフラン (15 mL)、及びメタノール (5 mL) を混合した。混合溶液に、水酸化セシウム (170 mg) を水 (2 mL) に溶解させた水溶液を添加し、65℃で6時間攪拌した。混合物を室温まで冷却した後、反応溶媒を減圧留去した。生じた固体を水で洗浄し、減圧乾燥させることで薄黄色の固体 (95) mg) を得た。NMRスペクトルにより、重合体G内のエチルエステル部位のエチル基由来のシグナルが完全に消失していることを確認した。得られた重合体Gのセシウム塩を共役高分子化合物10と呼ぶ。共役高分子化合物10は式(Q)で表される繰り返し単位からなる(「全繰り返し単位中の、式(1)で表される基及び式(2)で表される基からなる群から選ばれる1種以上の基と式(3)で表される1種以上の基とを含む繰り返し単位の割合」及び「全繰り返し単位中の、式(13)、(15)、(17)、(20)で表される繰り返し単位の割合」は、100モル%である。)。共役高分子化合物10のHOMOの軌道エネルギーは-5.7 eV、LUMOの軌道エネルギーは-2.9 eVであった。

[0473]

[化83]



[0474] [参考例 1 3]

1, 3-ジブロモ-5-エトキシカルボニル-6-[2-[2-(2-メトキシエトキシ)エトキシ]エトキシ]ベンゼンの合成

不活性雰囲気下、3, 5-ジブロモサリチル酸 (20 g)、エタノール (17 mL)、濃硫酸 (1.5 mL)、トルエン (7 mL) を混合し、130℃で20時間加熱攪拌した。放冷後、反応溶液を氷水 (100 mL) に加え、クロロホルムで分液抽出を行い、溶液を濃縮した。得られた固体を、イソプロパノールに溶解し、溶液を蒸留水に滴下した。得られた析出物をろ別することにより、固体 (18 g) を得た。不活性雰囲気下、得られた固体 (1 g)、2-[2-(2-メトキシエトキシ)エトキシ]-p-トルエンスルホネート (1.5 g)、炭酸カリウム (0.7 g)、DMF (15 mL) を混合し、100℃で4時間加熱攪拌した。放冷後、クロロホルムを加えて分液抽出し、溶液を濃縮した。濃縮物をクロロホルムに溶解させ、シリカゲルカラムに通液することにより精製した。溶液を濃縮することにより、1, 3-ジブロモ-5-エトキシカルボニル-6-[2-[2-(2-メトキシエトキシ)エトキシ]エトキシ]ベンゼン (1.0 g) を得た。

[0475] [参考例 1 4]

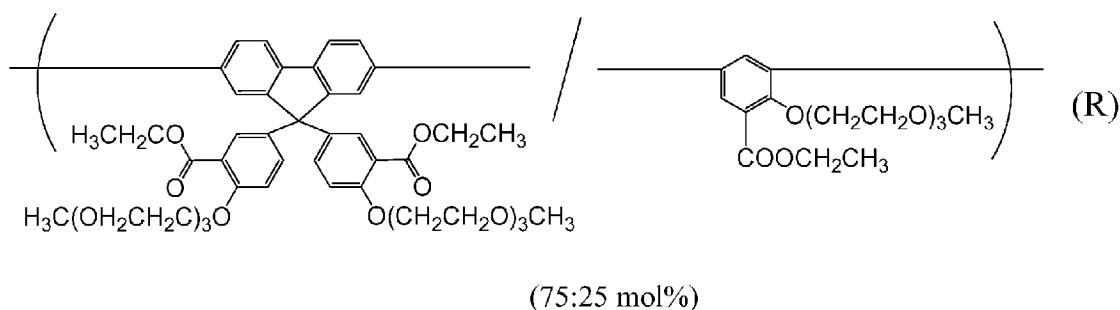
重合体 H の合成

不活性雰囲気下、化合物 A (0.2 g)、化合物 B (0.5 g)、1, 3-ジブロモ-5-エトキシカルボニル-6-[2-[2-(2-メトキシエトキシ)エトキシ]エトキシ]ベンゼン (0.1 g)、トリフェニルホスフィンパラジウム (30 mg)、テトラブチルアンモニウムブロミド (4 mg

）、及びトルエン（19 mL）を混合し、105℃に加熱した。この反応液に2M 炭酸ナトリウム水溶液（5 mL）を滴下し、5時間還流させた。反応液にフェニルボロン酸（6 mg）を加え、14時間還流させた。次いで、ジエチルジチアカルバミン酸ナトリウム水溶液（10 mL、濃度：0.05 g/mL）を加え、2時間攪拌した。水層を除去して有機層を蒸留水で洗浄し、濃縮して得られた固体をクロロホルムに溶解させ、アルミナカラム、シリカゲルカラムを通すことにより精製した。カラムからの溶出液を濃縮して乾燥させた。得られた重合体Hの収量は0.44 gであった。

[0476] 重合体Hのポリスチレン換算の数平均分子量は 3.6×10^4 であった。重合体Hは、式（R）で表される繰り返し単位からなる。

[0477] [化84]



[0478] [実験例 11]

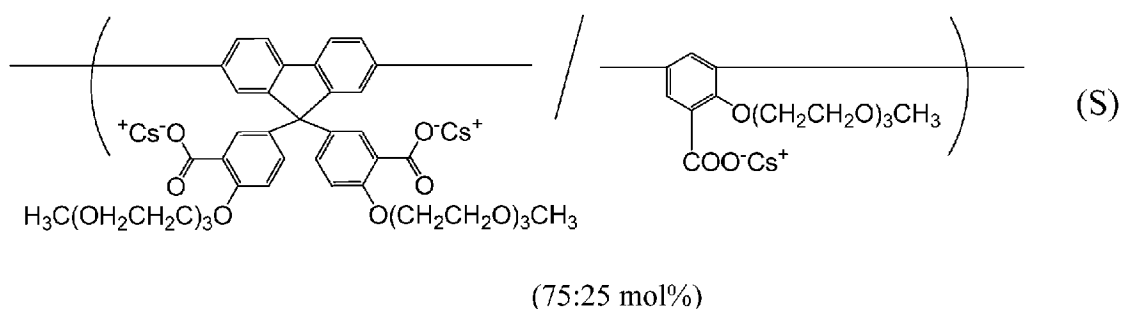
重合体Hセシウム塩の合成

重合体H（200 mg）を100 mL フラスコに入れ、窒素置換した。テトラヒドロフラン（14 mL）、及びメタノール（7 mL）を添加し混合した。混合溶液に、水酸化セシウム（90 mg）を水（1 mL）に溶解させた水溶液を添加し、65℃で1時間攪拌した。反応溶液にメタノール5 mLを加え、さらに65℃で4時間攪拌した。混合物を室温まで冷却した後、反応溶媒を減圧留去した。生じた固体を水で洗浄し、減圧乾燥させることで薄黄色の固体（190 mg）を得た。NMRスペクトルにより、重合体H内のエチルエステル部位のエチル基由来のシグナルが完全に消失していることを確認した。得られた重合体Hのセシウム塩を共役高分子化合物11と呼ぶ。共役高分子化合物11は式（S）で表される繰り返し単位からなる（「全繰り

返し単位中の、式（１）で表される基及び式（２）で表される基からなる群から選ばれる１種以上の基と式（３）で表される１種以上の基とを含む繰り返し単位の割合」及び「全繰り返し単位中の、式（１３）、（１５）、（１７）、（２０）で表される繰り返し単位の割合」は、１００モル％である。）。

共役高分子化合物１１のＨＯＭＯの軌道エネルギーは－５．６ e V、ＬＵＭＯの軌道エネルギーは－２．８ e Vであった。

[0479] [化85]



[0480] [参考例 15]

２，７－ジブロモ－９，９－ビス〔３，４－ビス〔２－〔２－（２－メトキシエトキシ）エトキシ〕エトキシ〕－５－メトキシカルボニルフェニル〕フルオレン（化合物Ｄ）の合成

２，７－ジブロモ－９－フルオレノン（３４．１ g）、２，３－ジヒドロキシ安息香酸メチル（１０１．３ g）、及びメルカプト酢酸（１．４ g）を５００ m L フラスコに入れ、窒素置換した。そこに、メタンスルホン酸（３５０ m L）を添加し、混合物を９０℃で１９時間攪拌した。混合物を放冷し、氷水に添加して１時間攪拌した。生じた固体をろ別し、加熱したアセトニトリルで洗浄した。洗浄済みの該固体をアセトンに溶解させ、得られたアセトン溶液から固体を再結晶させ、ろ別した。得られた固体（１６．３ g）、２－〔２－（２－メトキシエトキシ）エトキシ〕－ｐ－トルエンスルホネート（６０．３ g）、炭酸カリウム（４８．６ g）、及び１８－クラウン－６（２．４ g）をＮ、Ｎ－ジメチルホルムアミド（DMF）（５００ m L）に溶解させ、溶液をフラスコへ移して１１０℃で１５時間攪拌した。得られた混合物を室温まで放冷し、氷水へ加え、１時間攪拌した。反応液に酢酸エチ

ル（300 mL）を加えて分液抽出を行い、溶液を濃縮し、クロロホルム／メタノール（50／1（体積比））の混合溶媒に溶解させ、シリカゲルカラムを通すことにより精製した。カラムに通液した溶液を濃縮することで、2, 7-ジブロモ-9, 9-ビス[3, 4-ビス[2-[2-(2-メトキシエトキシ)エトキシ]エトキシ]-5-メトキシカルボニルフェニル]フルオレン（化合物D）（20.5 g）を得た。

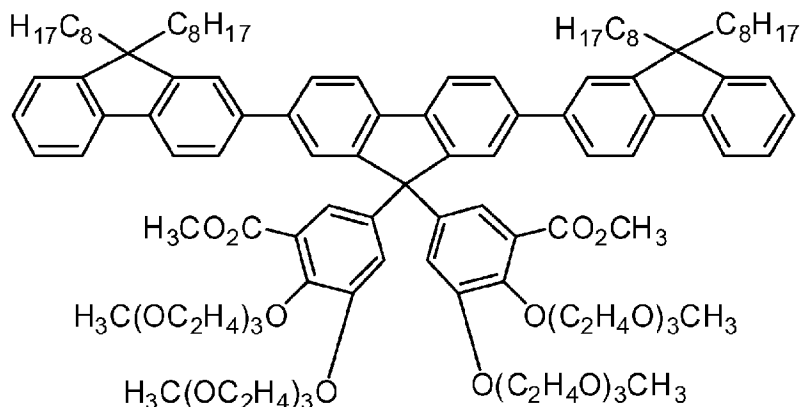
[0481] [参考例16]

2, 7-ビス[7-(4-メチルフェニル)-9, 9-ジオクチルフルオレン-2-イル]-9, 9-ビス[5-メトキシカルボニル-3, 4-ビス[2-[2-(2-メトキシエトキシ)エトキシ]エトキシ]フェニル]-フルオレン（重合体I）の合成

不活性雰囲気下、化合物D（0.70 g）、2-(4, 4, 5, 5-テトラメチル-1, 2, 3-ジオキサボラン-2-イル)-9, 9-ジオクチルフルオレン（0.62 g）、トリフェニルホスフィンパラジウム（0.019 g）、ジオキサン（40 mL）、水（6 mL）及び炭酸カリウム水溶液（1.38 g）を混合し、80℃に加熱した。反応液を1時間反応させた。反応後、飽和ジエチルジチオカルバミン酸ナトリウム水5 mLを添加して、30分間攪拌した後、有機溶媒を除去した。得られた固体をアルミナカラム（展開溶媒 ヘキサン：酢酸エチル＝1：1（体積比））を通して精製を行い、溶液を濃縮することで、2, 7-ビス[7-(4-メチルフェニル)-9, 9-ジオクチルフルオレン-2-イル]-9, 9-ビス[3-エトキシカルボニル-4-[2-[2-(2-メトキシエトキシ)エトキシ]エトキシ]フェニル]-フルオレン（重合体I）を660 mg得た。

[0482] 重合体Iのポリスチレン換算の数平均分子量は、 2.0×10^3 であった。重合体Iは、式（T）で表される。なお、2-(4, 4, 5, 5-テトラメチル-1, 2, 3-ジオキサボラン-2-イル)-9, 9-ジオクチルフルオレンは、例えば特開2008-74017号公報に記載されている方法で合成することができる。

[0483] [化86]



(T)

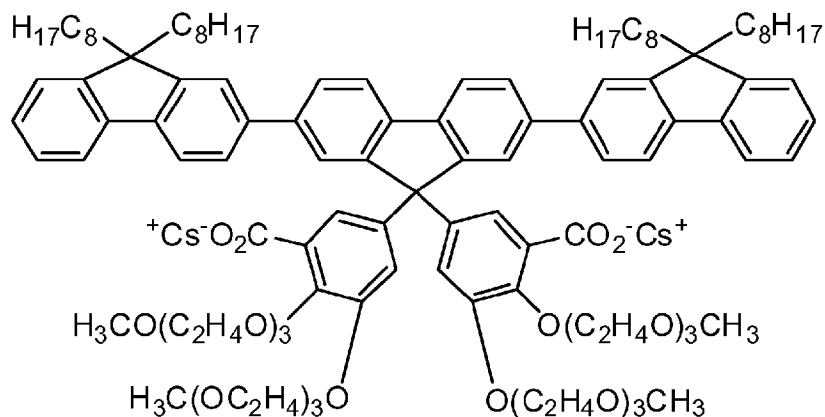
[0484] [実験例 1 2]

重合体 I セシウム塩の合成

重合体 I (236 mg) を 100 mL フラスコに入れ、アルゴン置換した。そこに、テトラヒドロフラン (20 mL)、及びメタノール (10 mL) を添加し、混合物を 65℃ に昇温した。そこに、水酸化セシウム (240 mg) を水 (2 mL) に溶かした水溶液を添加し、65℃ で 7 時間攪拌した。得られた混合物を室温まで冷却した後、反応溶媒を減圧留去した。生じた固体を水で洗浄し、減圧乾燥させることで薄黄色の固体 (190 mg) を得た。NMR スペクトルにより、メチルエステル部位のメチル基由来のシグナルが完全に消失していることを確認した。得られた重合体 I セシウム塩を共役高分子化合物 12 と呼ぶ。共役高分子化合物 12 は、式 (U) で表される (「全繰り返し単位中の、式 (1) で表される基及び式 (2) で表される基からなる群から選ばれる 1 種以上の基と式 (3) で表される 1 種以上の基を含む繰り返し単位の割合」及び「全繰り返し単位中の、式 (13)、(15)、(17)、(20) で表される繰り返し単位の割合」は、小数第二位で四捨五入して、33.3 モル%である。)。共役高分子化合物 12 の HOMO の軌道エネルギーは -5.6 eV であり、LUMO の軌道エネルギーは -2.8 eV であった。

[0485]

[化87]



(U)

符号の説明

[0486] 1, 1 a, 1 b, 1 c, 1 d…第1の電極、2, 2 a, 2 b, 2 c, 2 d…第2の電極、3, 3 a, 3 b, 3 c, 3 d…取出し電極、4…発光ユニット、5 a, 5 b, 5 c, 5 d…正孔注入層、6 a, 6 b, 6 c, 6 d…正孔輸送層、7 a, 7 b, 7 c, 7 d…発光層、8 a, 8 b, 8 c, 8 d…電子注入層、9 a, 9 b, 9 c…陰極と同じ材料の導電性薄膜、10 a, 10 b, 10 d…陽極と同じ材料の導電性薄膜、11…駆動回路。

請求の範囲

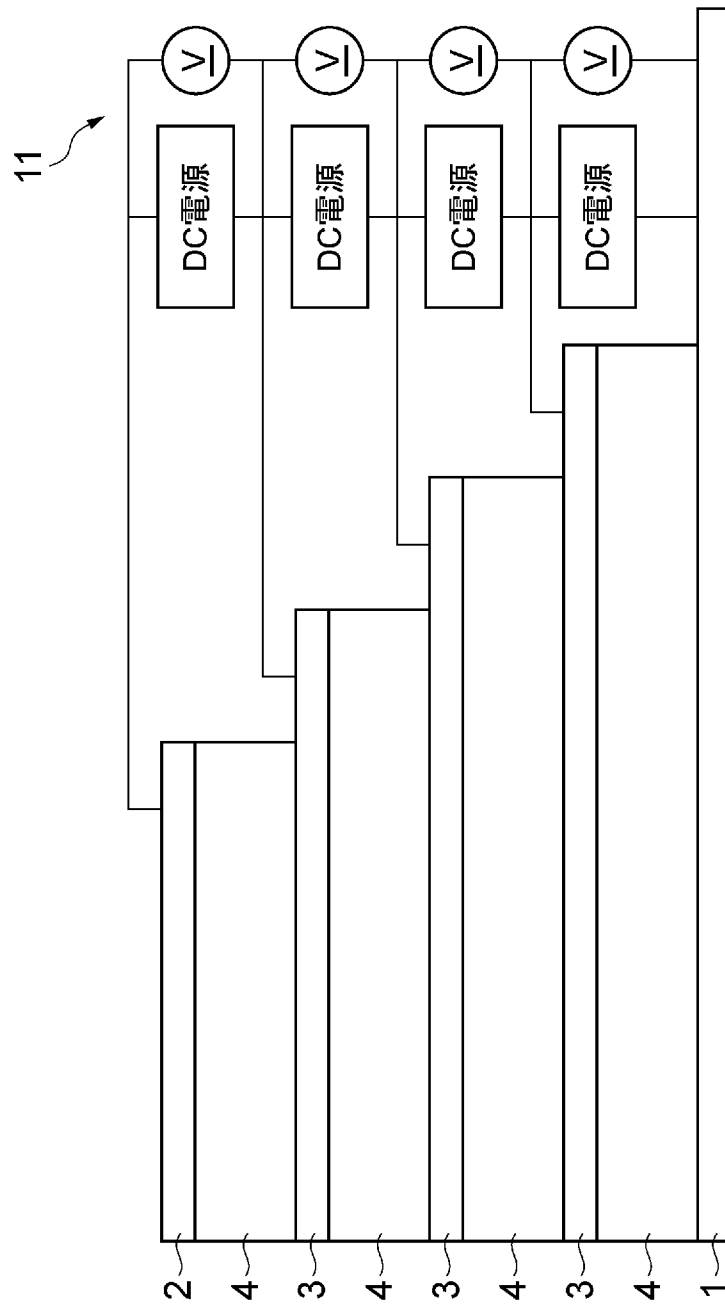
- [請求項1] 第1の電極と、
第2の電極と、
前記第1の電極と前記第2の電極との間に配置された1又は複数の
取出し電極と、
前記第1の電極、前記取出し電極及び前記第2の電極のうちの互い
に隣り合う電極間にそれぞれ配置され、電子注入層と発光層とを有す
る複数の発光ユニットと、を備え、
前記電子注入層はイオン性ポリマーを含む、有機EL素子。
- [請求項2] 前記取出し電極を介して隣り合う一対の前記発光ユニットは、一方
の前記発光ユニットにおける前記第1の電極を基準とする発光層と電
子注入層との積層の順序が、他方の前記発光ユニットにおける発光層
と電子注入層との積層の順序と異なる、請求項1記載の有機EL素子
。
- [請求項3] 互いに異なる発光ユニットに設けられる一対の発光層が、互いに異
なる色の光を放射する、請求項1又は2記載の有機EL素子。
- [請求項4] 互いに異なる発光ユニットに設けられる一対の発光層が、同じ色の
光を放射する、請求項1又は2記載の有機EL素子。
- [請求項5] 請求項1～4のいずれか一項に記載の有機EL素子を備える照明装
置。
- [請求項6] 請求項1～4のいずれか一項に記載の有機EL素子を備える表示装
置。
- [請求項7] 第1の電極と、第2の電極と、前記第1の電極と前記第2の電極と
の間に配置された1又は複数の取出し電極と、前記第1の電極、前記
取出し電極及び前記第2の電極のうちの互いに隣り合う電極間にそれ
ぞれ配置され、電子注入層と発光層とを有する複数の発光ユニットと
、を備える有機EL素子の製造方法であって、
イオン性ポリマーを含む塗布液を成膜して前記電子注入層を形成す

る工程と、

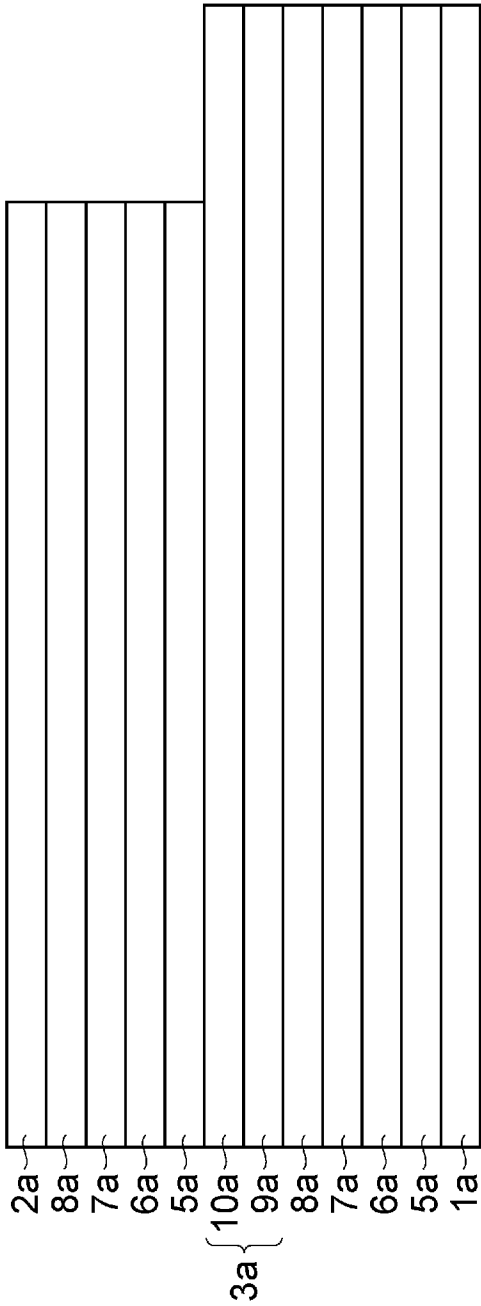
前記電子注入層を形成する前又は前記電子注入層を形成した後に、
前記発光層を形成する工程と、備える有機EL素子の製造方法。

[請求項8] 前記イオン性ポリマーを含む塗布液を、窒素の体積比が90%以下、かつ酸素の体積比が10%以上30%以下の雰囲気中で塗布する、請求項7記載の有機EL素子の製造方法。

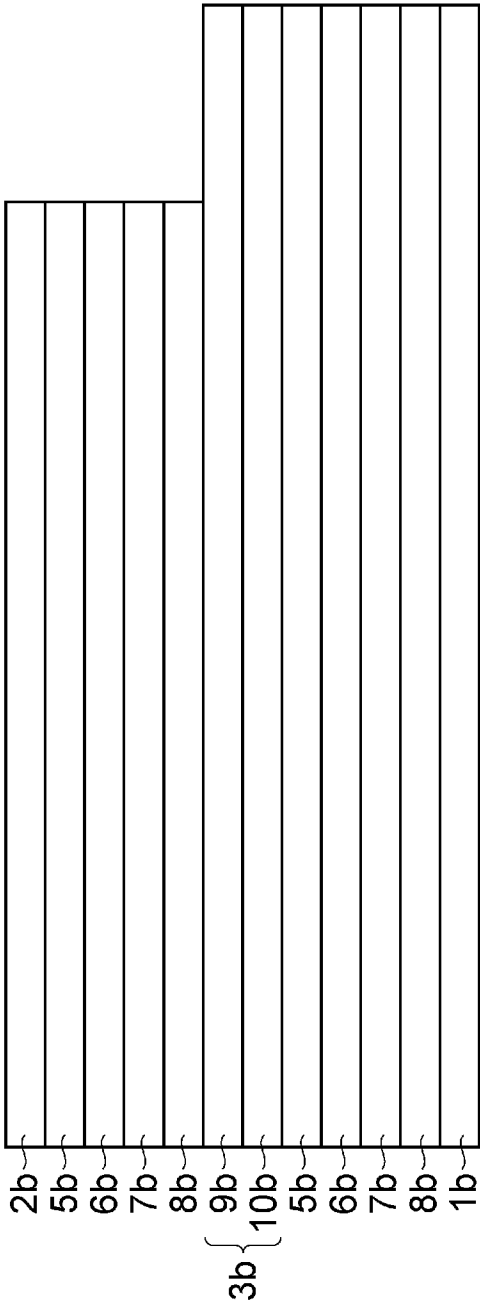
[図1]



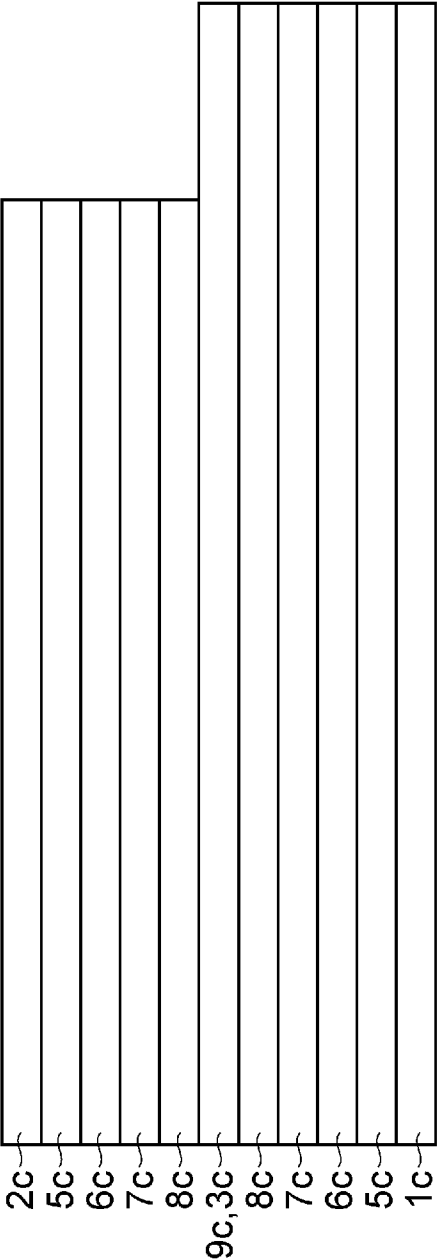
[図2]



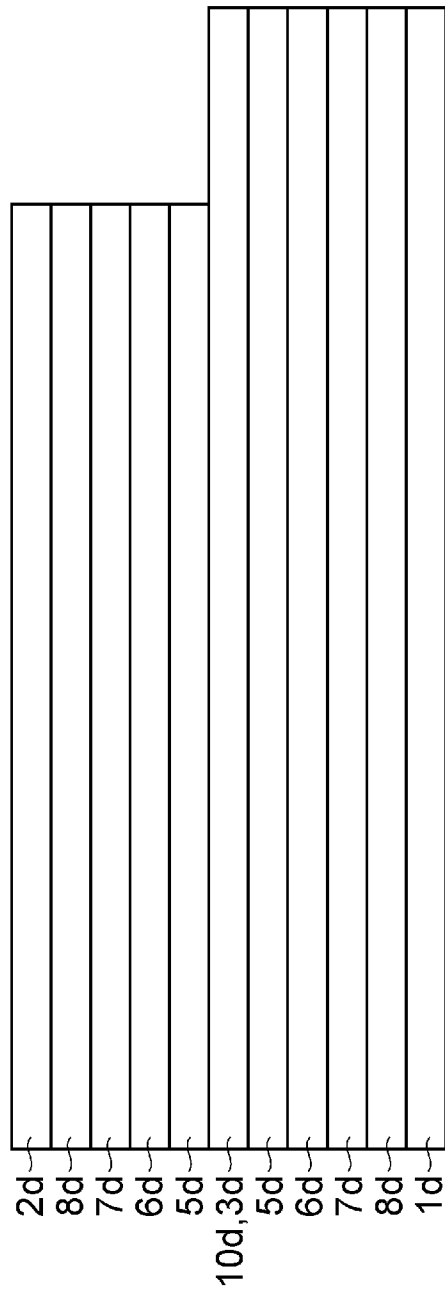
[図3]



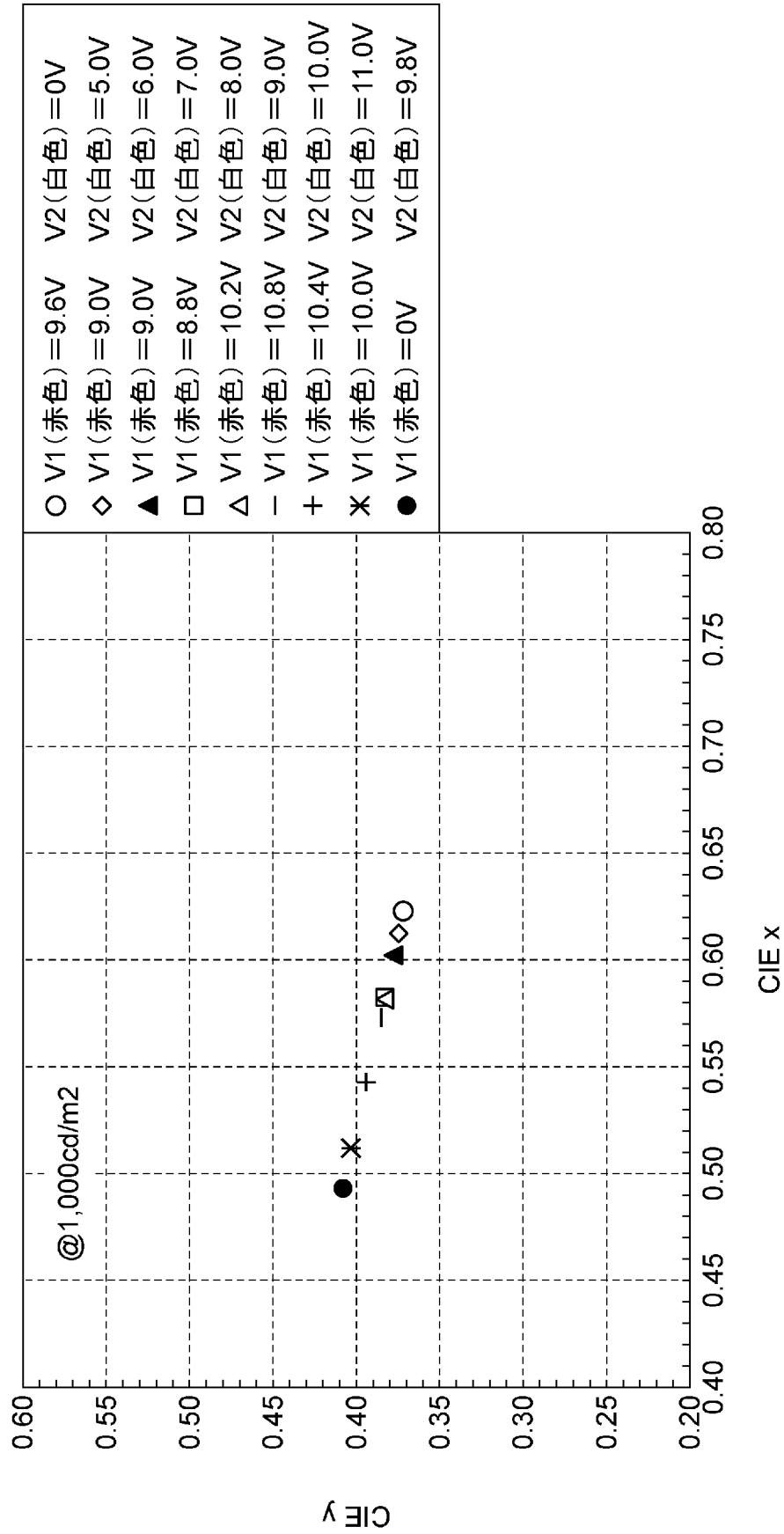
[図4]



[図5]



[図6]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/057400

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H05B33/12(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/10(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)

H05B33/12, H01L51/50, H05B33/10

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 1996-2012

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2012 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2012

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2006-332049 A (L.G. Philips LCD Co., Ltd.), 07 December 2006 (07.12.2006), paragraphs [0002], [0023] to [0025], [0030], [0066] to [0069]; fig. 2, 3 & US 2006/0261731 A1 & GB 610066 D0 & DE 102006023511 A & FR 2886059 A & KR 10-2006-0120506 A & CN 1866536 A	1-8
Y	JP 2010-033984 A (Canon Inc.), 12 February 2010 (12.02.2010), paragraphs [0002], [0039] to [0046]; fig. 1 (Family: none)	1, 3, 5, 6



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

17 April, 2012 (17.04.12)

Date of mailing of the international search report

24 April, 2012 (24.04.12)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/057400

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2009-239279 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 15 October 2009 (15.10.2009), paragraphs [0015] to [0151], [0168] to [0169], [0173], [0184] to [0185], [0220] & US 2011/0006294 A1 & EP 2249411 A1 & WO 2009/110642 A1 & KR 10-2011-0000731 A & CN 102017219 A	1-8
Y	JP 2007-123257 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 17 May 2007 (17.05.2007), paragraph [0252] (Family: none)	8
Y	JP 2005-531106 A (Austria Wirtschaftsservice GmbH), 13 October 2005 (13.10.2005), paragraph [0051] & US 2005/0184660 A1 & WO 2003/100879 A2 & ATA 0A8272002 & AT 8272002 A & AU 2003232914 A	8

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. H05B33/12 (2006.01) i, H01L51/50 (2006.01) i, H05B33/10 (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 (I P C))

Int.Cl. H05B33/12, H01L51/50, H05B33/10

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 2 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 2 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 2 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)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	JP 2006-332049 A (エルジー フィリップス エルシーデー カンパニー リミテッド) 2006. 12. 07, 段落[0002], [0023]-[0025], [0030], [0066]-[0069], [図 2], [図 3] & US 2006/0261731 A1 & GB 610066 D0 & DE 102006023511 A & FR 2886059 A & KR 10-2006-0120506 A & CN 1866536 A	1-8
Y	JP 2010-033984 A (キヤノン株式会社) 2010. 02. 12, 段落[0002], [0039]-[0046], [図 1] (ファミリーなし)	1, 3, 5, 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

1 7 . 0 4 . 2 0 1 2

国際調査報告の発送日

2 4 . 0 4 . 2 0 1 2

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

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)

横川 美穂

2 0

4 7 4 9

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 2 7 1

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	JP 2009-239279 A (住友化学株式会社) 2009. 10. 15, 段落[0015]-[0151], [0168]-[0169], [0173], [0184]-[0185], [0220] & US 2011/0006294 A1 & EP 2249411 A1 & WO 2009/110642 A1 & KR 10-2011-0000731 A & CN 102017219 A	1-8
Y	JP 2007-123257 A (三菱化学株式会社) 2007. 05. 17, 段落[0252] (ファミリーなし)	8
Y	JP 2005-531106 A (オーストリア ヴィルトシャフトサービス ゲ ゼルシャフト エム ベー ハー) 2005. 10. 13, 段落[0051] & US 2005/0184660 A1 & WO 2003/100879 A2 & ATA 0A8272002 & AT 8272002 A & AU 2003232914 A	8