

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2009 年 8 月 27 日(27.08.2009)

PCT

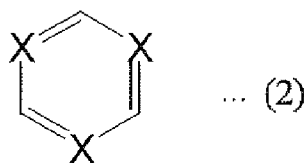
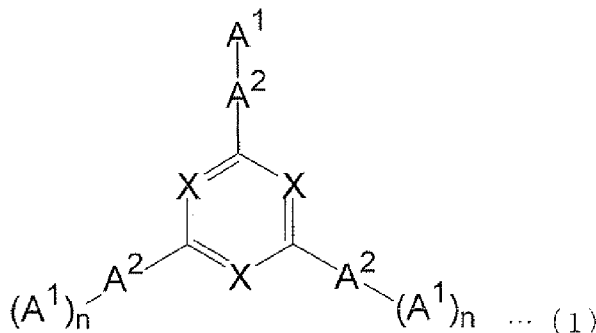
(10) 国際公開番号
WO 2009/104708 A1

- (51) 国際特許分類:
C08F 12/26 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)
C07D 403/14 (2006.01) H05B 33/10 (2006.01)
C09K 11/06 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2009/052955
- (22) 国際出願日: 2009 年 2 月 20 日(20.02.2009)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2008-041902 2008 年 2 月 22 日(22.02.2008) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 昭和電工株式会社(SHOWA DENKO K.K.) [JP/JP]; 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目 1 3 番 9 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 鳥羽 正彦(TOBA, Masahiko) [JP/JP]; 〒2670056 千葉県千葉市緑区大野台 1-1-1 昭和電工株式会社 研究開発センター内 Chiba (JP). 加藤 剛(KATO, Tsuyoshi) [JP/JP]; 〒2670056 千葉県千葉市緑区大野台 1-1-1 昭和電工株式会社 研究開発センター内 Chiba (JP).
- (74) 代理人: 鈴木 俊一郎(SUZUKI, Shunichiro); 〒1410031 東京都品川区西五反田七丁目 1 3 番 6 号 五反田山崎ビル 6 階 鈴木国際特許事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

[続葉有]

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

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



(57) Abstract: Disclosed is a polymer material which enables achievement of an organic EL device having low driving voltage and high durability when used in the organic EL device. An organic EL device using the polymer material is also disclosed. The polymer compound is characterized by containing a structural unit derived from a monomer represented by formula (1). (In the formula (1), A¹'s independently represent a condensed polycyclic aromatic group which may contain a heteroatom as a ring-constituting atom, or the like; the condensed polycyclic aromatic group is bonded to A² at the meta position relative to the bonding position of (2); A²'s independently represent a six-membered aromatic group which may contain a heteroatom as a ring-constituting atom; at least one of A¹'s or A²'s has a substituent having a polymerizable functional group; at least one of X's represents a nitrogen atom; and n's independently represent 1 or 2.)

(57) 要約: 本発明は、有機 EL 素子に用いた場合に、該有機 EL 素子の駆動電圧が低く、耐久性が高い高分子材料およびこれを用いた有機 EL 素子を提供することにある。

[続葉有]

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

本発明の高分子化合物は、下記式 (1) で表される単量体から導かれる構成単位を含むことを特徴とする。(式 (1) 中、 A^1 は、それぞれ独立に、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい縮合多環芳香族基等を表し、 A^2 への該縮合多環芳香族基の結合の位置は、(2) の結合位置に対してメタ位であり、 A^2 は、それぞれ独立に、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい 6 員環芳香族基を表し、 A^1 および A^2 のうち少なくとも 1 つは、重合性官能基を有する置換基を有し、 X のうち少なくとも 1 つは窒素原子を表し、 n は、それぞれ独立に、1 または 2 を表す。)

明 細 書

高分子化合物およびこれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子
技術分野

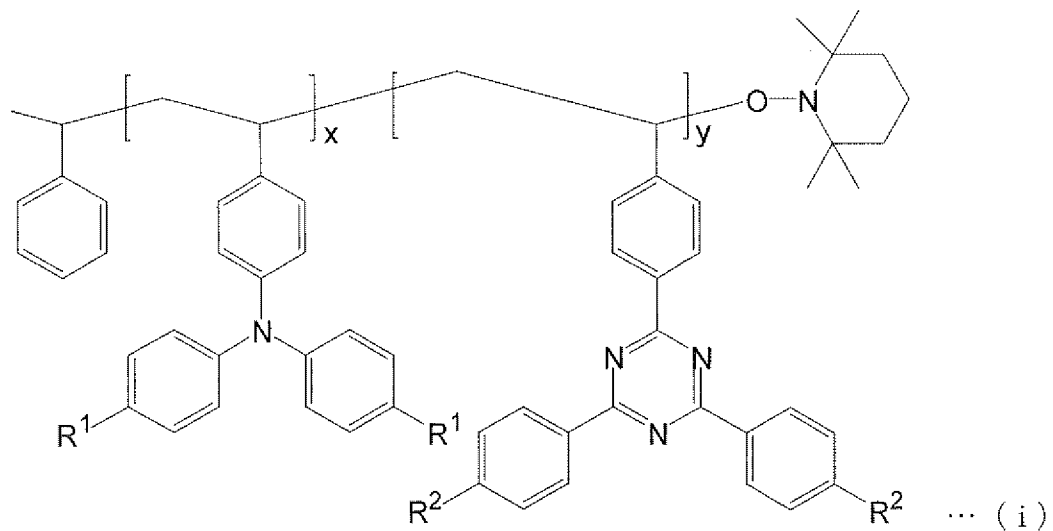
[0001] 本発明は、芳香族複素環を含有する高分子化合物に関する。より詳しくは、本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子(以下「有機EL素子」とも記す。)に好適である電子輸送性およびホール輸送性を有する芳香族複素環を含有する高分子化合物に関する。

背景技術

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

[0003] 非特許文献1には、潜在的に有機EL素子および電界効果トランジスターへの応用が可能であるとする下記式(i)で表されるトリアジン骨格を有する非共役高分子の合成例が開示されている。

[0004] [化1]



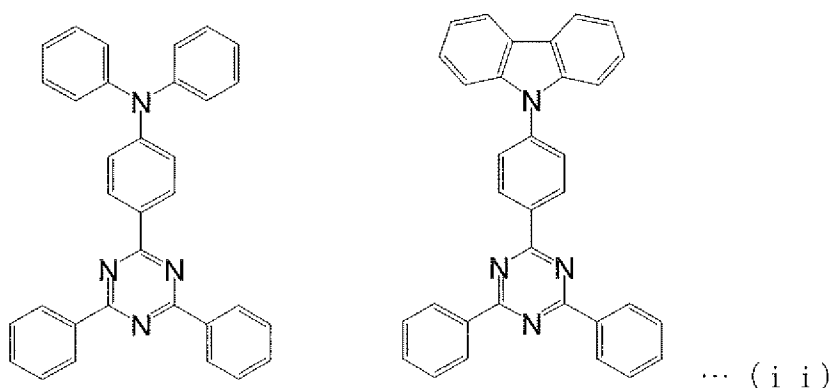
[0005] (式中、 R^1 は、それぞれ独立に、水素原子、メチル基またはn-ブチル基を表し、 R^2 は、それぞれ独立に、水素原子、メチル基、エチル基、イソプロピル基、t-ブチル基、オクチル基またはメキシ基を表し、xおよびyは、それぞれ独立に、1以上の整数を表す。)

また、特許文献1には、パーフルオロフェニレン誘導体を置換基として有するトリアジン誘導体を用いてなる有機EL素子が開示されている。このような低分子化合物により有機EL素子の有機層を製造する場合、一般的に真空蒸着法が用いられる。これにより、真空設備を必要とすること、形成される有機層の膜厚が不均一になりやすいことなどの問題点があった。

[0006] さらに、特許文献2には、トリアジン環を有するアゾメチン蛍光発光材料を用いてなる有機EL素子が開示され、非特許文献2には、トリアジン骨格を有する非共役高分子を用いてなる有機EL素子の製造例が開示されている。

[0007] また、電子輸送能を有する芳香族複素誘導体にホール輸送能を有する置換基を導入したバイポーラ性の化合物の例として、特許文献3に記載の、複素環基を有するアミン誘導体である下記式(ii)で表される化合物が挙げられる。このように、芳香族基上のジフェニルトリアジン環基の位置が、ジフェニルアミノ基の窒素原子またはカルバゾリル基の窒素原子に対してパラ位であることから、該窒素原子と該複素環基上の窒素原子とが共役可能な構造を有するため、該化合物はエキサイマーなどを容易に形成し、また分子内の電荷の分極現象が顕著となり、三重項励起準位が比較的低下する。よって、このような化合物を用いてなる燐光発光性の有機EL素子、特に短波長の光を発する燐光発光性の有機EL素子は、耐久性に問題がある。

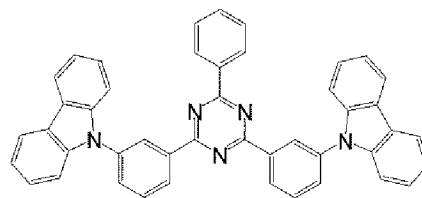
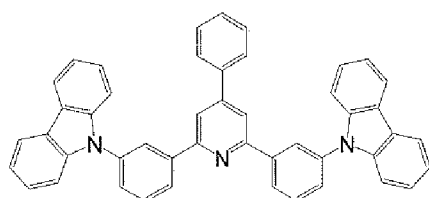
[0008] [化2]



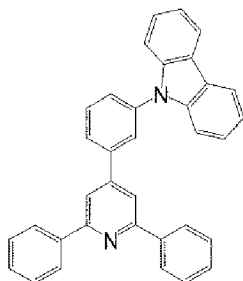
[0009] さらに、特許文献4および5には、燐光発光性の有機EL素子に用いられる電荷輸送材料として、下記式(iii)および下記式(iv)で表される化合物が開示されている。

[0010] これらの化合物は、エキサイマーを形成しづらい構造ではあるが、ガラス転移点が100℃～200℃程度であり、耐熱性の観点から問題がある。また、それを用いて有機EL素子の有機層を製造する際、特許文献4および5に記載の低分子化合物を蒸着法により製膜しており、有機EL素子の製造方法が煩雑であるという問題点がある。

[0011] [化3]



…(iii)



…(v)

特許文献1:特開2006-173569号公報

特許文献2:特開2002-129155号公報

特許文献3:特開2003-22893号公報

特許文献4:国際公開WO03/080760号パンフレット

特許文献5:特開2006-188493号公報

非特許文献1:Macromolecular Chemistry and Physics, 2004, 205, 1633-1643

非特許文献2:Molecular Crystals and Liquid Crystals, 2006, 458, 227-23

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0012] 上述の低分子化合物および高分子化合物を用いた有機EL素子は、駆動電圧、耐久性の点で改善の余地があった。したがって、本発明は、駆動電圧が低く、耐久性が高い有機EL素子が得られる高分子化合物およびこれを用いてなる有機EL素子を

提供することを課題とする。

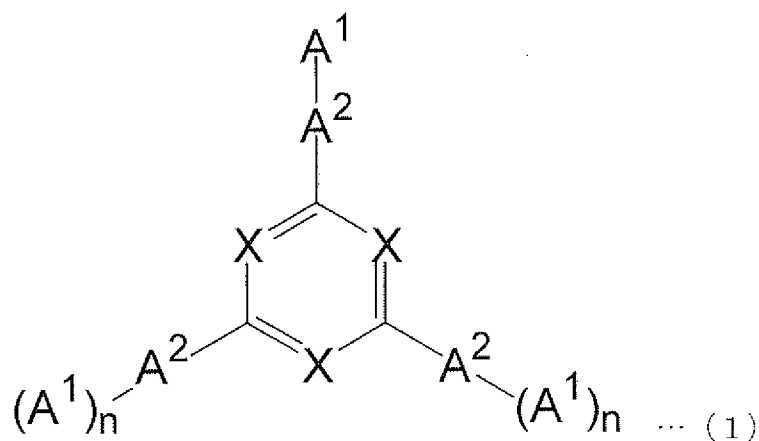
課題を解決するための手段

[0013] 本発明者は、上記課題を解決すべく鋭意研究した結果、有機EL素子の電子輸送部位およびホール輸送部位(電子輸送およびホール輸送を併せて、以下「キャリア輸送」とも記す。)として特定の芳香族複素環構造を有する高分子化合物を用いた有機EL素子が、駆動電圧が低く、耐久性が高いことを見出し、本発明を完成するに至った。

[0014] 本発明は、たとえば以下の[1]～[20]に関する。

[0015] [1]下記式(1)で表される単量体から導かれる構成単位を含むことを特徴とする高分子化合物。

[0016] [化4]

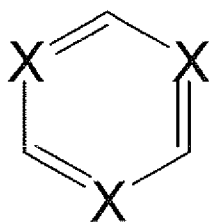


[0017] (式(1)中、複数個ある A^1 は、それぞれ独立に、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基、水素原子、ハロゲン原子、アミノ基、炭素原子数1～12のアルキル基、炭素原子数1～12のアルコキシ基または炭素原子数6～10のアリールオキシ基を表し、

複数個ある A^1 のうち少なくとも1つは、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい縮合多環芳香族基を表し、

A^2 への該縮合多環芳香族基の結合の位置は、

[0018] [化5]



[0019] の結合位置に対してメタ位であり、

3つの A^2 は、それぞれ独立に、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい6員環芳香族基を表し、

A^1 および A^2 において、環構成原子に直接結合している水素原子は、それぞれ独立に、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基、ハロゲン原子、アミノ基、炭素原子数1～12のアルキル基、炭素原子数1～12のアルコキシ基または炭素原子数6～10のアリールオキシ基で置換されていてもよく、

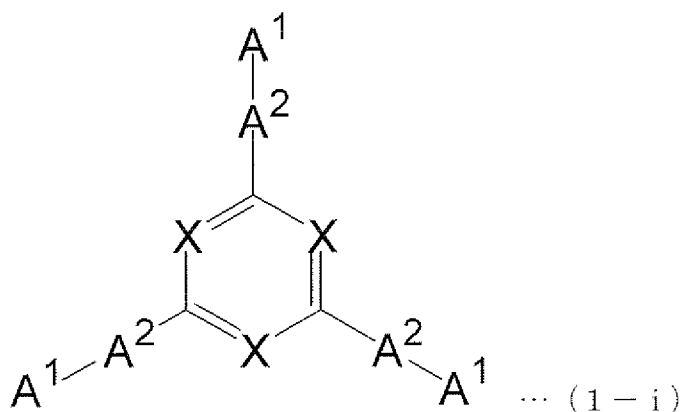
A^1 および A^2 のうち少なくとも1つは、重合性官能基を有する置換基を有し、

3つのXは、それぞれ独立に、1つの水素原子が結合した炭素原子または窒素原子を表し、3つのXのうち少なくとも1つは窒素原子を表し、

2つのnは、それぞれ独立に、1または2を表す。)

[2] 上記式(1)で表される単量体が、下記式(1-i)で表されることを特徴とする[1]に記載の高分子化合物。

[0020] [化6]



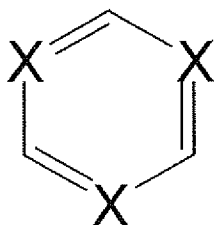
[0021] (式(1-i)中、3つの A^1 は、それぞれ独立に、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基、水素原子、ハロゲン原子、アミノ基、炭素原子数1～12のアル

キル基、炭素原子数1～12のアルコキシ基または炭素原子数6～10のアリールオキシ基を表し、

3つの A^1 のうち少なくとも1つは、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい縮合多環芳香族基を表し、

A^2 への該縮合多環芳香族基の結合の位置は、

[0022] [化7]



[0023] の結合位置に対してメタ位であり、

3つの A^2 は、それぞれ独立に、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい6員環芳香族基を表し、

A^1 および A^2 において、環構成原子に直接結合している水素原子は、それぞれ独立に、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基、ハロゲン原子、アミノ基、炭素原子数1～12のアルキル基、炭素原子数1～12のアルコキシ基または炭素原子数6～10のアリールオキシ基で置換されていてもよく、

A^1 および A^2 のうち少なくとも1つは、重合性官能基を有する置換基を有し、

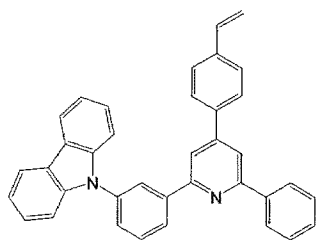
3つのXは、それぞれ独立に、1つの水素原子が結合した炭素原子または窒素原子を表し、3つのXのうち少なくとも1つは窒素原子を表す。）

[3]上記式(1-i)において、1つの A^1 が、重合性官能基を有する置換基を有し、3つの A^1 のうち少なくとも1つが、重合性官能基を有する置換基を有していてもよいカルbazリル基あるいはハロゲン原子、アミノ基、炭素原子数1～12のアルキル基、炭素原子数1～12のアルコキシ基、炭素原子数6～10のアリールオキシ基またはヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基を表すことを特徴とする[2]に記載の高分子化合物。

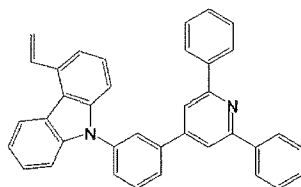
[0024] [4]上記式(1)で表される単量体が、下記式(A1)、(A13)、(A14)、(A15)、(A31)、(A35)、(A40)、(A42)、(A60)、(A71)、(A73)、(A78)、(A79)、(A80

)、(A88)、(A89)、(A107)または(A108)で表されることを特徴とする[2]または[3]に記載の高分子化合物。

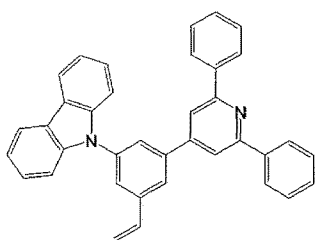
[0025] [化8]



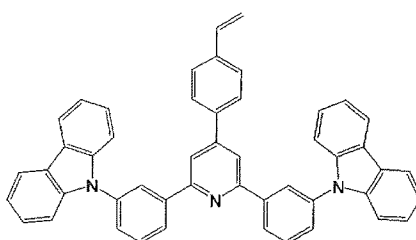
... (A 1)



... (A 1 3)

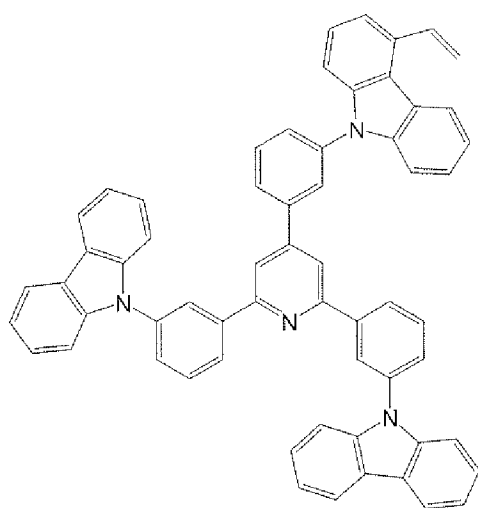


... (A 1 4)

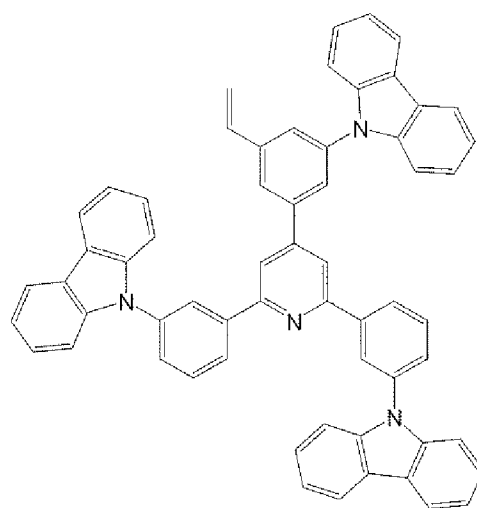


... (A 1 5)

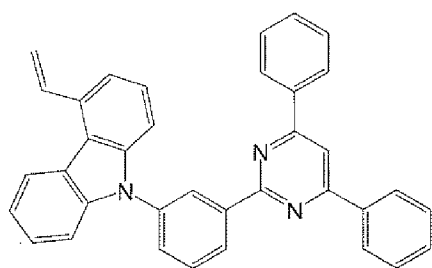
[0026] [化9]



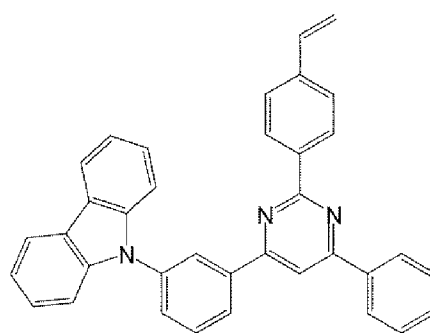
... (A 3 1)



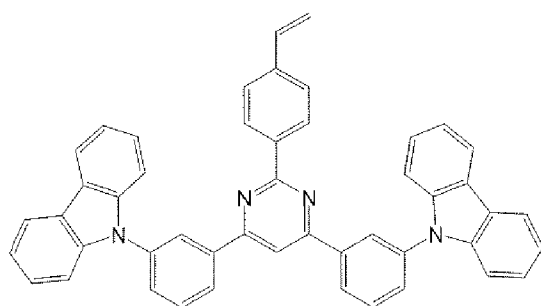
... (A 3 5)



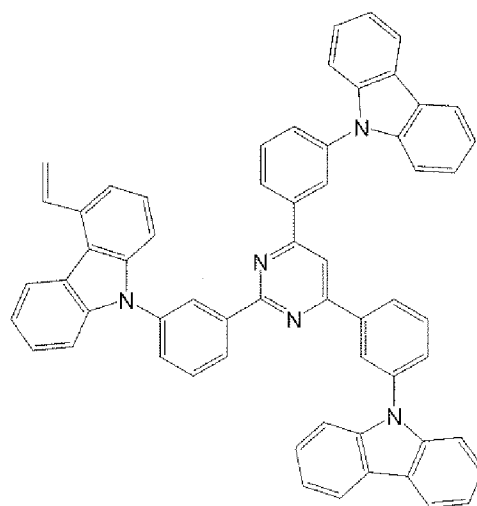
... (A 4 0)



... (A 4 2)

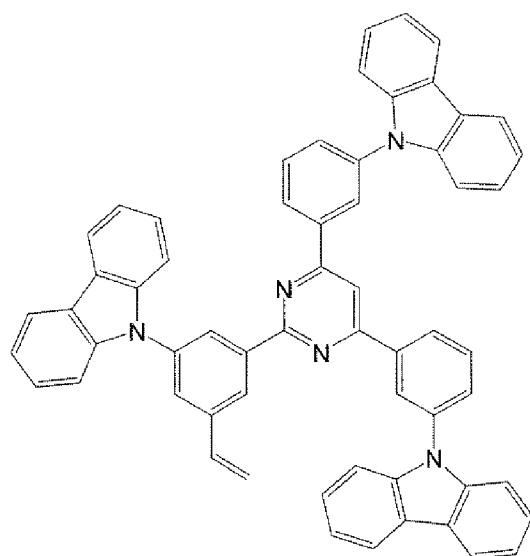


... (A 6 0)

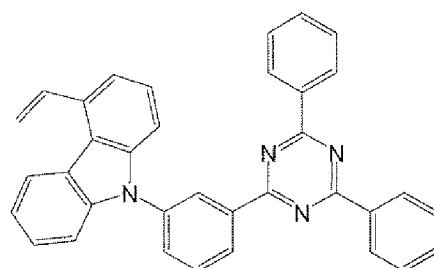


... (A 7 1)

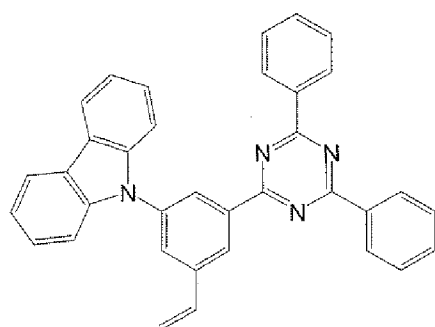
[0027] [化10]



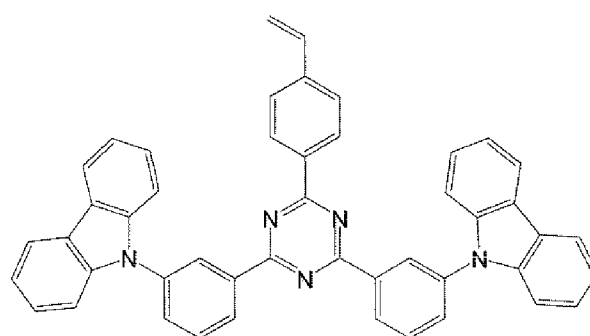
... (A73)



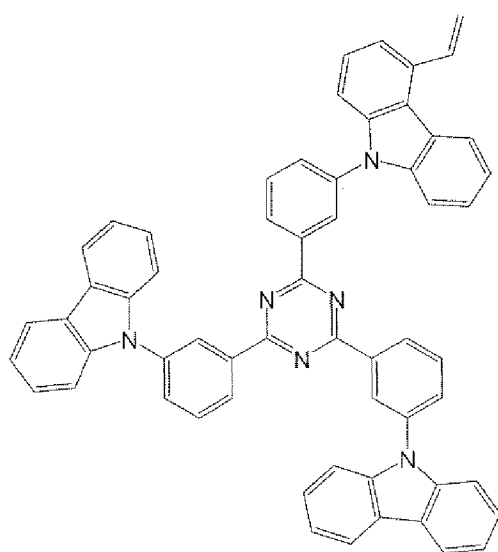
... (A78)



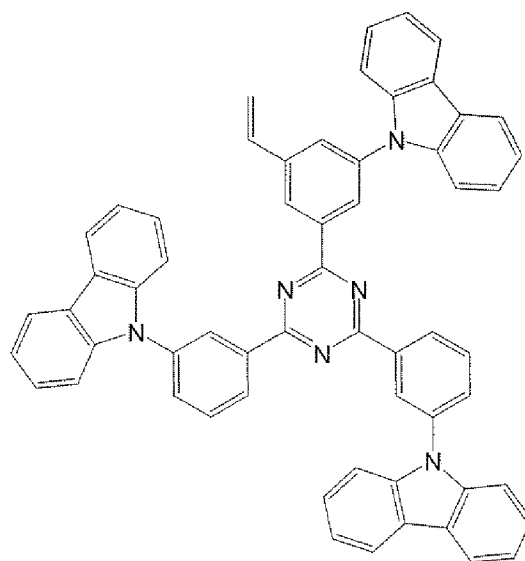
... (A79)



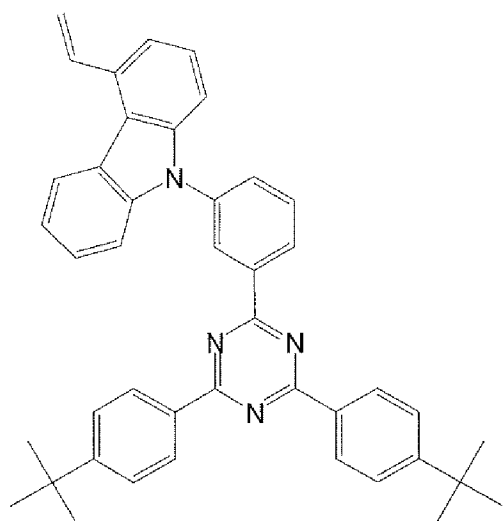
... (A80)



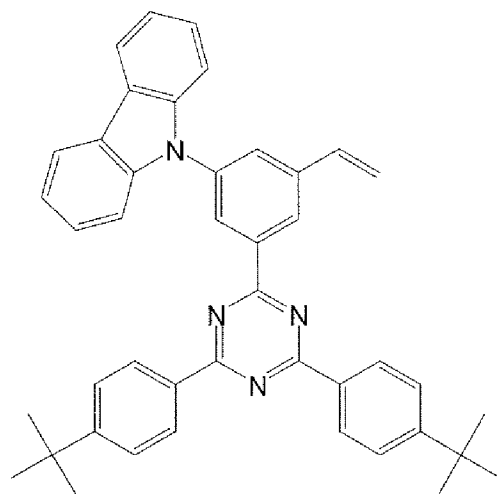
... (A88)



... (A89)



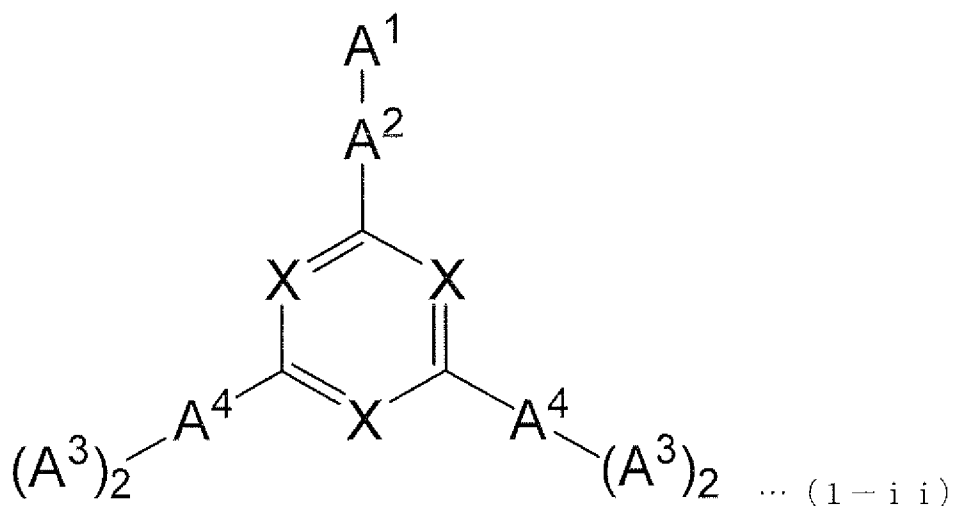
... (A 1 0 7)



... (A 1 0 8)

[0029] [5] 上記式(1)で表される単量体が、下記式(1-ii)で表されることを特徴とする請求項1に記載の高分子化合物。

[0030] [化12]

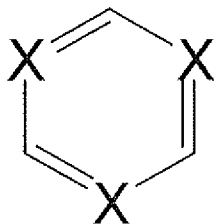


[0031] (式(1-ii)中、 A^1 は、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基、水素原子、ハロゲン原子、アミノ基、炭素原子数1～12のアルキル基、炭素原子数1～12のアルコキシ基または炭素原子数6～10のアリールオキシ基を表し、

4つの A^3 は、それぞれ独立に、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい縮合多環芳香族基を表し、

A^2 への A^1 の結合の位置、および A^4 への A^3 の結合の位置は、それぞれ

[0032] [化13]



[0033] の結合位置に対してメタ位であり、

A^2 および2つの A^4 は、それぞれ独立に、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい6員環芳香族基を表し、

$A^1 \sim A^4$ において、環構成原子に直接結合している水素原子は、それぞれ独立に、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基、ハロゲン原子、アミノ基、炭素原子数1～12のアルキル基、炭素原子数1～12のアルコキシ基または炭素原子数6～10のアリールオキシ基で置換されていてもよく、

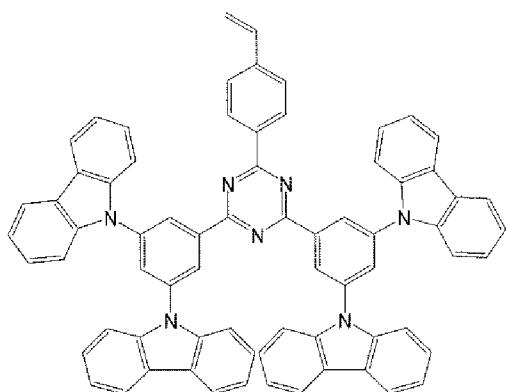
$A^1 \sim A^4$ のうち少なくとも1つは、重合性官能基を有する置換基を有し、

3つのXは、それぞれ独立に、1つの水素原子が結合した炭素原子または窒素原子を表し、3つのXのうち少なくとも1つは窒素原子を表す。）

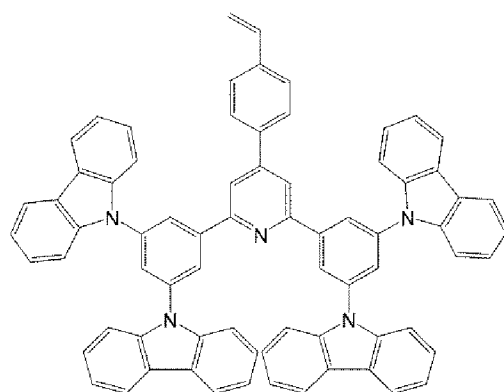
[6]上記式(1-ii)において、1つの A^1 が、重合性官能基を有する置換基を有し、4つの A^3 のうち少なくとも1つが、重合性官能基を有する置換基を有していてもよいカルbazリル基あるいはハロゲン原子、アミノ基、炭素原子数1～12のアルキル基、炭素原子数1～12のアルコキシ基、炭素原子数6～10のアリールオキシ基またはヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基を表すことを特徴とする[5]に記載の高分子化合物。

[0034] [7]上記式(1-ii)で表される単量体が、下記式(A92)、(A94)、(A96)、(A100)、(A102)または(A104)で表されることを特徴とする[5]または[6]に記載の高分子化合物。

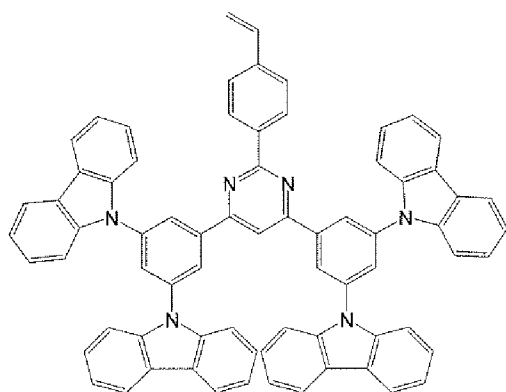
[0035] [化14]



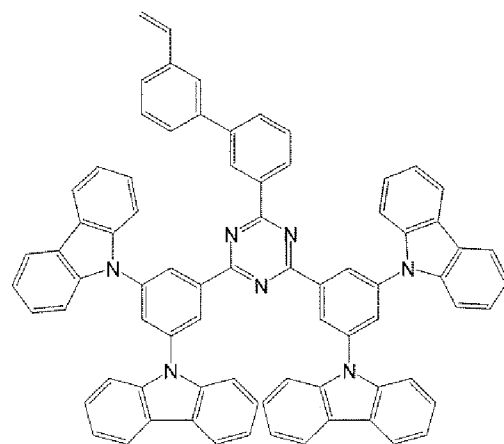
... (A 9 2)



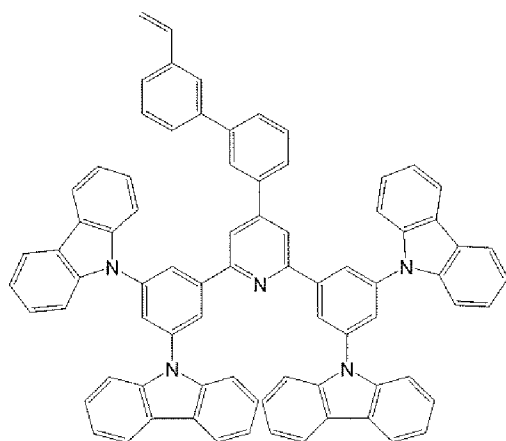
... (A 9 4)



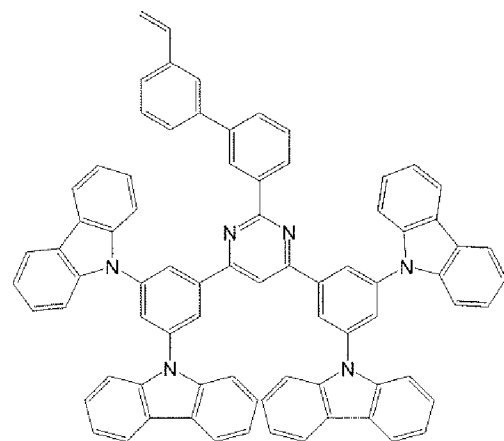
... (A 9 6)



... (A 1 0 0)



... (A 1 0 2)



... (A 1 0 4)

[0036] [8]ホール輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位をさらに含むことを特徴とする[1]～[7]のいずれかに記載の高分子化合物。

[0037] [9]上記ホール輸送性の重合性化合物が、カルバゾール構造またはトリフェニルア

ミン構造を含むことを特徴とする[8]に記載の高分子化合物。

- [0038] [10]上記ホール輸送性の重合性化合物が、カルバゾール構造を含むことを特徴とする[9]に記載の高分子化合物。
- [0039] [11]電子輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位および発光性の重合性化合物から導かれる構成単位のうち少なくとも1つをさらに含むことを特徴とする[1]～[10]のいずれかに記載の高分子化合物。
- [0040] [12]上記発光性の重合性化合物が、燐光発光性を有することを特徴とする[11]に記載の高分子化合物。
- [0041] [13]上記発光性の重合性化合物が、遷移金属錯体であることを特徴とする[11]または[12]に記載の高分子化合物。
- [0042] [14]上記遷移金属錯体が、イリジウム錯体であることを特徴とする[13]に記載の高分子化合物。
- [0043] [15]上記電子輸送性の重合性化合物が、芳香族複素環置換基またはトリアリールホウ素置換基を有することを特徴とする[11]～[14]のいずれかに記載の高分子化合物。
- [0044] [16]有機エレクトロルミネッセンス素子に用いられることを特徴とする[1]～[15]のいずれかに記載の高分子化合物。
- [0045] [17][1]～[16]のいずれかに記載の高分子化合物を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子用発光層。
- [0046] [18]陽極と陰極との間に1層以上の有機層を含む有機エレクトロルミネッセンス素子であって、該有機層が含む発光層の少なくとも1層が、[1]～[16]のいずれかに記載の高分子化合物を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [0047] [19][18]に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えることを特徴とする、ディスプレイ、バックライト、電子写真、照明光源、記録光源、露光光源、読み取り光源、標識、看板、インテリアおよび光通信システムからなる群から選択される物品。
- [0048] [20][17]に記載の発光層が少なくとも1層含まれる有機層を陽極上に形成する工程、および該有機層上に陰極を形成する工程を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。なお、本発明においては、便宜上、陽極から有機層

に向かう方向を「上」と記す。

発明の効果

[0049] 本発明の高分子化合物によれば、駆動電圧が低く、耐久性が高い有機EL素子が提供される。

図面の簡単な説明

[0050] [図1]図1は、本発明に係る有機EL素子の例の断面図である。

符号の説明

- [0051] 1: ガラス基板
2: 陽極
3: ホール輸送層
4: 発光層
5: 電子輸送層
6: 陰極

発明を実施するための最良の形態

[0052] 以下、本発明について詳細に説明する。

[0053] <実施の形態1>

本発明の高分子化合物(I) (実施の形態1)は、上記式(1)、好ましくは上記式(1-i)または(1-ii)で表されるキャリア輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位を含み、上記式(1)、好ましくは上記式(1-i)または(1-ii)で表されるキャリア輸送性の重合性化合物を重合して得られる。このような高分子化合物(I)を用いると、電子とホールとがともに輸送されるため、駆動電圧が低くなり、耐久性が高い有機EL素子が得られる。

[0054] 上記式(1)中、 A^1 は、それぞれ独立に、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基、水素原子、ハロゲン原子、アミノ基、炭素原子数1~12のアルキル基、炭素原子数1~12のアルコキシ基または炭素原子数6~10のアリールオキシ基を表す。

[0055] 上記芳香族基としては、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい縮合多環

芳香族基、フェニル基、ピリジル基、ピリミジル基などが挙げられる。これらのうちで、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい縮合多環芳香族基以外の置換基としては、フェニル基が好ましい。

[0056] 上記ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子またはヨウ素原子が挙げられる。これらのうち、好ましくはフッ素原子および塩素原子、より好ましくはフッ素原子である。

[0057] 上記炭素原子数1～12のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、アミル基、ヘキシル基、オクチル基、デシル基、2-エチルヘキシル基、ドデシル基などが挙げられる。これらのうち、好ましくは炭素数2～8のアルキル基、より好ましくは炭素数3～6のアルキル基である。

[0058] 上記炭素原子数1～12のアルコキシ基としては、例えば、メキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基、イソブトキシ基、*t*-ブトキシ基、ヘキシルオキシ基、2-エチルヘキシルオキシ基、デシルオキシ基、ドデシルオキシ基などが挙げられる。これらのうち、好ましくは炭素数2～8のアルコキシ基、より好ましくは炭素数3～6のアルコキシ基である。

[0059] 上記炭素原子数6～10のアリールオキシ基としては、例えば、フェノキシ基、ベンジルオキシ基、フェネチルオキシ基、フェニルプロポキシ基、フェニルブトキシ基などが挙げられる。これらのうち、好ましくはフェノキシ基、ベンジルオキシ基およびフェネチルオキシ基、より好ましくはフェノキシ基である。

[0060] 上記式(1)中、 A^1 のうち少なくとも1つは、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい縮合多環芳香族基を表す。

[0061] 上記縮合多環芳香族基としては、例えば、ナフチル基、アントラセニル基、フェナンスレニル基、ピレニル基、テトラセニル基、ペンタセニル基、フルオレニル基、トリフェニレニル基、ペリレニル基、インドリル基、カルバゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾチオフェニル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、アザインドリル基、キノリル基、ピリドインドリル基、ベンゾチアジゾリル基などが挙げられる。これらのうち、好ましくはカルバゾリル基、インドリル基、アザインドリル

基およびピリドインドリル基、より好ましくはカルバゾリル基およびインドリル基、特に好ましくは、カルバゾリル基である。

[0062] 上記式(1)中、3つのA²は、それぞれ独立に、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基を表す。

[0063] 上記芳香族基としては、フェニレン基、ピリジレン基、ピリミジレン基などが挙げられる。これらのうち、フェニレン基が好ましい。

[0064] 上記式(1)中、A¹およびA²において、環構成原子に直接結合している水素原子は、それぞれ独立に、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基、ハロゲン原子、アミノ基、炭素原子数1～12のアルキル基、炭素原子数1～12のアルコキシ基または炭素原子数6～10のアリールオキシ基で置換されていてもよい。

[0065] 上記芳香族基としては、フェニル基、ピリジル基、ピリミジル基などが挙げられる。これらのうち、好ましくはフェニル基、およびピリジル基、より好ましくはフェニル基である。

[0066] 上記ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子またはヨウ素原子が挙げられる。これらのうち、好ましくはフッ素原子および塩素原子、より好ましくはフッ素原子である。

[0067] 上記炭素原子数1～12のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、アミル基、ヘキシル基、オクチル基、デシル基、2-エチルヘキシル基、ドデシル基などが挙げられる。これらのうち、好ましくは炭素数2～8のアルキル基であり、より好ましくは炭素数3～6のアルキル基である。

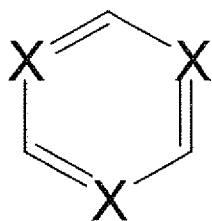
[0068] 上記炭素原子数1～12のアルコキシ基としては、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基、イソブトキシ基、*t*-ブトキシ基、ヘキシルオキシ基、2-エチルヘキシルオキシ基、デシルオキシ基、ドデシルオキシ基などが挙げられる。これらのうち、好ましくは炭素数2～8のアルコキシ基、より好ましくは炭素数3～6のアルコキシ基である。

[0069] 上記炭素原子数6～10のアリールオキシ基としては、例えば、フェノキシ基、ベンジルオキシ基、フェネチルオキシ基、フェニルプロポキシ基、フェニルブトキシ基などが

上げられる。これらのうち、好ましくはフェノキシ基、ベンジルオキシ基およびフェネチルオキシ基、より好ましくはフェノキシ基である。

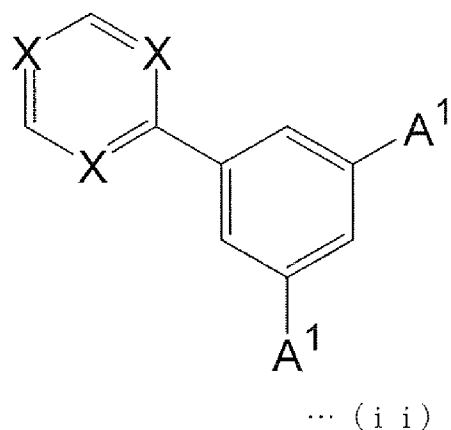
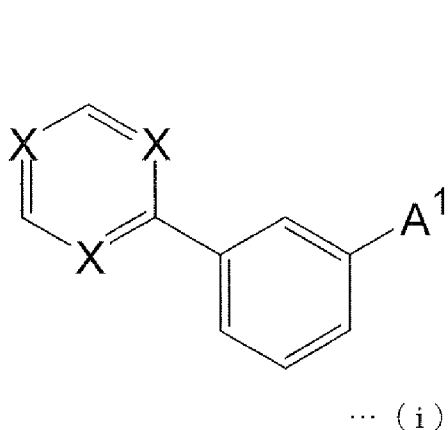
[0070] 上記式(1)中、 A^1 のうち少なくとも1つは、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい縮合多環芳香族基を表し、 A^2 への該縮合多環芳香族基と芳香族基とを表すすべての A^1 の結合の位置は、

[0071] [化15]



[0072] (すなわち、ピリジン環、ピリミジン環またはトリアジン環を示す。)の結合位置に対してメタ位であり、例えば、 A^2 が炭素原子のみを環構成原子として有する6員環芳香族基を表す場合には、下記式(i)または(ii)に示すような結合位置となる。このような上記式(1)で表される単量体は、電気的な酸化に対する耐性に優れ、エキサイマーを形成しづらいことから好ましい。

[0073] [化16]



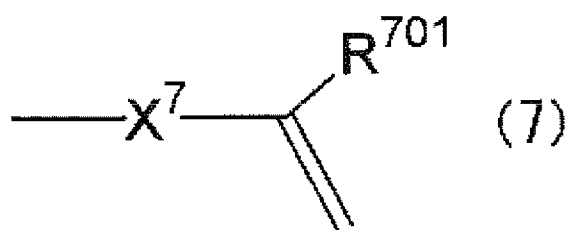
[0074] 上記式(1)中、 A^1 および A^2 のうち少なくとも1つは、重合性官能基を有する置換基を有する。これらのうちで、より高い発光効率を有する有機EL素子が得られることから、少なくとも1つの A^1 が重合性官能基を有する置換基を有していることが好ましい。なお、上記重合性官能基を有する置換基は、重合性官能基そのものも含む。

[0075] 上記重合性官能基は、ラジカル重合性、カチオン重合性、アニオン重合性、付加重合性および縮合重合性の官能基のいずれであってもよい。これらのうちで、ラジカル重合性の官能基は、重合体の製造が容易であるため好ましい。

[0076] 上記重合性官能基の具体例としては、アリル基；アルケニル基；アクリレート基；メタクリレート基；メタクリロイルオキシエチルカルバメート基等のウレタン（メタ）アクリレート基；ビニルアミド基；およびこれらの誘導体などが挙げられる。

[0077] 具体的には、上記重合性官能基を有する置換基としては、下記一般式(7)で表される置換基が好ましい。

[0078] [化17]

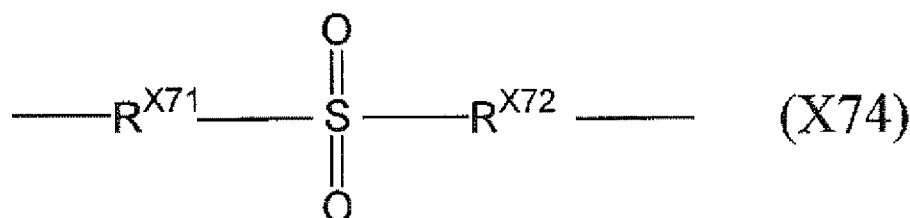
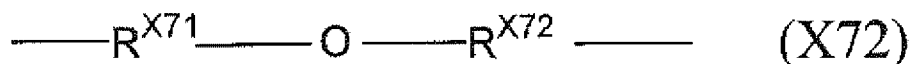
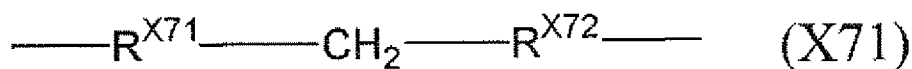


[0079] 上記式(7)中、 R^{701} は、水素原子または炭素原子数1～12のアルキル基を表す。

[0080] 上記炭素原子数1～12のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、アミル基、ヘキシル基、オクチル基、デシル基、2-エチルヘキシル基、ドデシル基などが挙げられる。これらのうちで、キャリア輸送能に優れることから、 R^{701} は水素原子であることが好ましい。

[0081] X^7 は、単結合または下記式(X71)～(X74)で表される基を表す。

[0082] [化18]



[0083] 式中、 R^{X71} は、単結合または炭素原子数1～12のアルキレン基を表し、 R^{X72} は、単結合、炭素原子数1～12のアルキレン基またはフェニレン基を表す。なお、上記式(1)において、 R^{X71} は A^1 に結合し、 R^{X72} はビニル基に結合することが好ましい。このような X^7 によれば、駆動電圧が低く、耐久性が高い有機EL素子が得られる。

[0084] 上記炭素原子数1～12のアルキレン基として、メチレン基、エチレン基、プロピレン基、イソプロピレン基、ブチレン基、イソブチレン基、*t*-ブチレン基、アミレン基、ヘキシレン基、オクチレン基、デシレン基、2-エチルヘキシレン基、ドデシレン基などが挙げられる。これらのうち、好ましくは炭素原子数1～6のアルキレン基、より好ましくは炭素原子数1～3のアルキレン基である。

[0085] これらのうちで、 X^7 は、単結合または炭素原子数1～7のアルキレン基であることが好ましく、単結合であることがより好ましい。

[0086] 上記式(1)中、1つの A^1 が、上記式(7)で表される重合性官能基を有する置換基を有し、複数個ある A^1 のうち少なくとも1つが、ハロゲン原子、アミノ基、炭素原子数1～12のアルキル基、炭素原子数1～12のアルコキシ基、炭素原子数6～10のアリールオキシ基、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基または重合性官能基を有する置換基を有していてもよいカルbazolil基を表すことが好ましい。

[0087] このようなハロゲン原子およびアルキル基などの置換基の具体例としては、それぞれ上述したものと同様である。

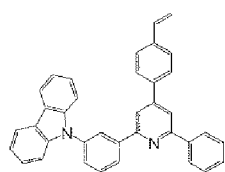
- [0088] 上記式(1)中の A^1 として、上記式(1)で表される単量体が溶解性およびキャリア輸送能に優れることから、1つの A^1 が上記式(7)で表される重合性官能基で置換されているカルバゾリル基を表し、該カルバゾリル基を表す A^1 と結合している A^2 が上記式(i)もしくは(ii)を表す態様、または1つの A^1 が上記式(7)で表される重合性官能基を有し、残りの A^1 のうち少なくとも1つの A^1 がカルバゾリル基を表す態様が特に好ましい。
- [0089] 上記式(1)中、3つのXは、1つの水素原子が結合した炭素原子または窒素原子を表し、3つのXのうち少なくとも1つは窒素原子を表す。すなわち、上記式(1)で表される単量体は、ピリジン環骨格、ピリミジン環骨格およびトリアジン環骨格のいずれかを有する。
- [0090] 上記式(1)で表される単量体として、電気化学的酸化に対する耐性に優れ、エキサイマーを形成しづらいことから、2つのnがいずれも1を表す態様(すなわち、上記式(1-i)で表される。)、および2つのnがいずれも2を表す態様(すなわち、上記式(1-ii)で表される。)が好ましい。
- [0091] 上記式(1-ii)中の A^3 は、それぞれ独立に、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい縮合多環芳香族基を表し、このような縮合多環芳香族基は、上記式(1)中の A^1 と同様である。
- [0092] 上記式(1-ii)中の A^4 は、それぞれ独立に、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい6員環芳香族基を表し、このような芳香族基は、上記式(1)中の A^2 と同様である。
- [0093] 上記式(1-ii)中、 $A^1 \sim A^4$ において、環構成原子に直接結合している水素原子は、それぞれ独立に、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基、ハロゲン原子、アミノ基、炭素原子数1~12のアルキル基、炭素原子数1~12のアルコキシ基または炭素原子数6~10のアリールオキシ基で置換されていてもよく、これらの置換基は、上記式(1)中の A^1 および A^2 と同様である。
- [0094] 上記式(1-ii)中、 $A^1 \sim A^4$ のうち少なくとも1つは、重合性官能基を有する置換基を有する。これらのうちで、より高い発光効率を有する有機EL素子が得られることから、少なくとも1つの A^1 が重合性官能基を有する置換基を有していることが好ましい。な

お、上記重合性官能基を有する置換基は、重合性官能基そのものも含む。

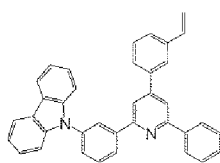
[0095] このような重合性官能基および該官能基を有する置換基は、上述と同様である。

[0096] 上記式(1-i)で表される単量体として、具体的には、下記式(A1)～(A90)、(A107)または(A108)で表される単量体が挙げられ、上記式(i-ii)で表される単量体として、具体的には、下記式(A91)～(A106)のいずれかで表される単量体が挙げられるが、本発明においてはこれらに限定されるものではない。

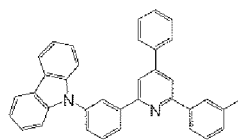
[0097] [化19]



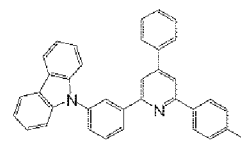
(A1)



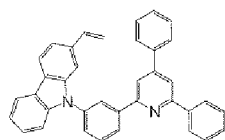
(A2)



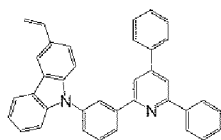
(A3)



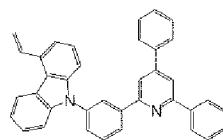
(A4)



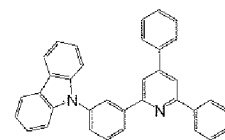
(A5)



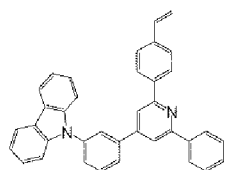
(A6)



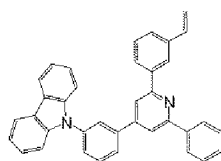
(A7)



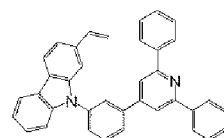
(A8)



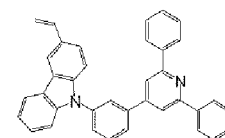
(A9)



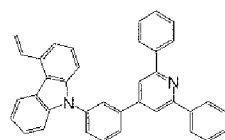
(A10)



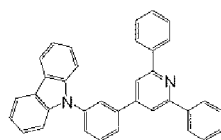
(A11)



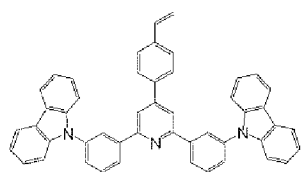
(A12)



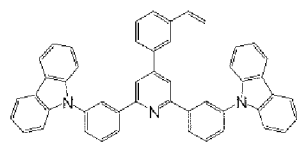
(A13)



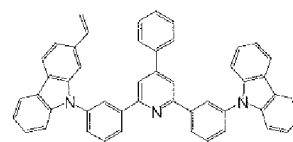
(A14)



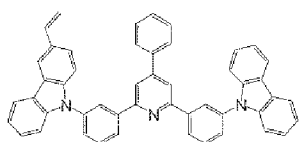
(A15)



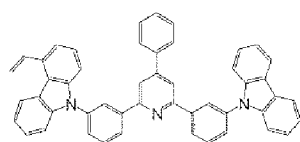
(A16)



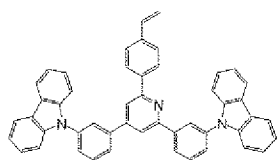
(A17)



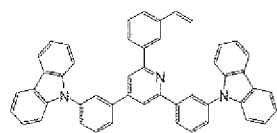
(A18)



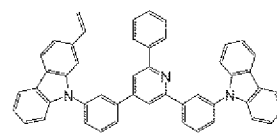
(A19)



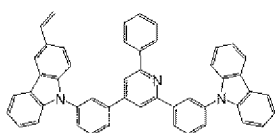
(A20)



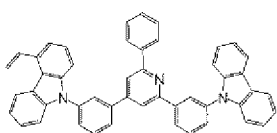
(A21)



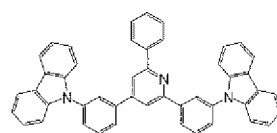
(A22)



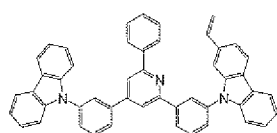
(A23)



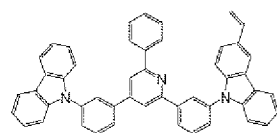
(A24)



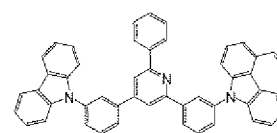
(A25)



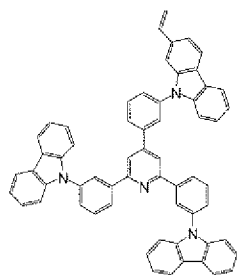
(A26)



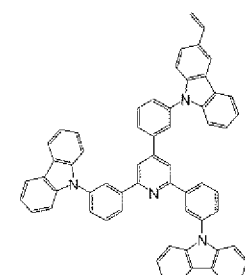
(A27)



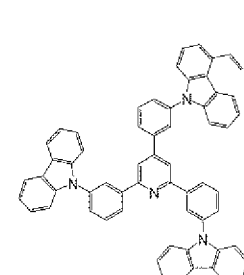
(A28)



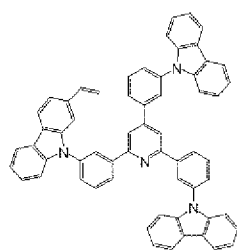
(A29)



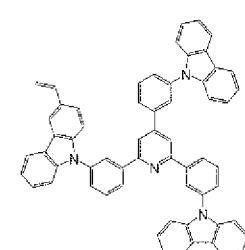
(A30)



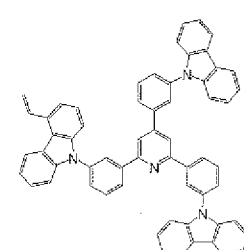
(A31)



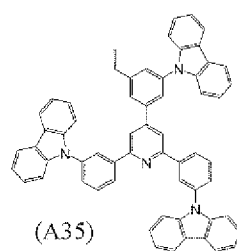
(A32)



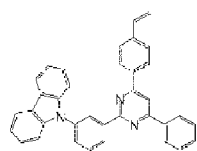
(A33)



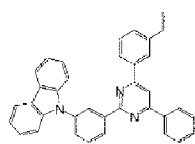
(A34)



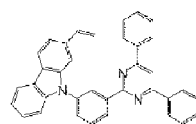
(A35)



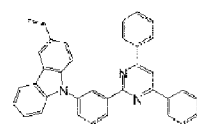
(A36)



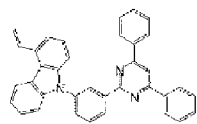
(A37)



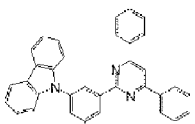
(A38)



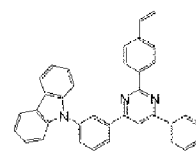
(A39)



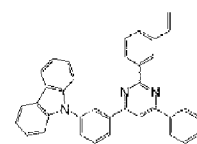
(A40)



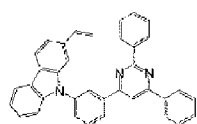
(A41)



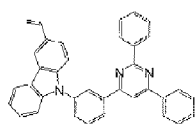
(A42)



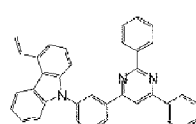
(A43)



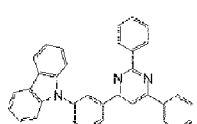
(A44)



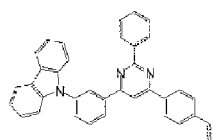
(A45)



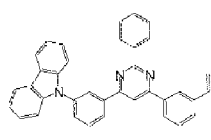
(A46)



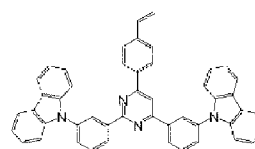
(A47)



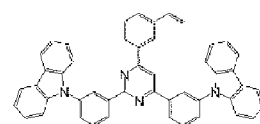
(A48)



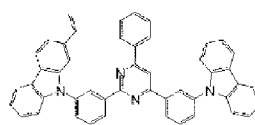
(A49)



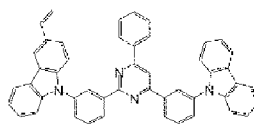
(A50)



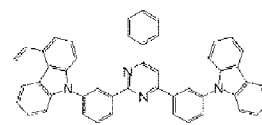
(A51)



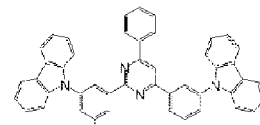
(A52)



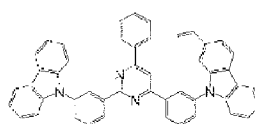
(A53)



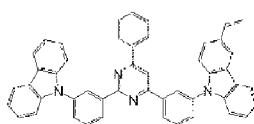
(A54)



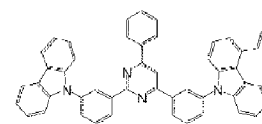
(A55)



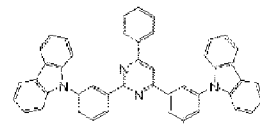
(A56)



(A57)

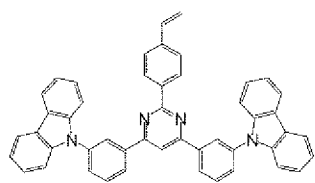


(A58)

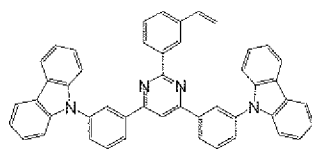


(A59)

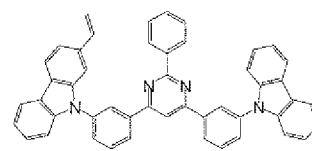
[0100] [化22]



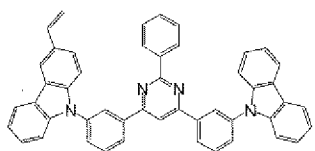
(A60)



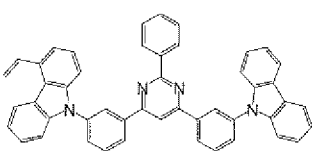
(A61)



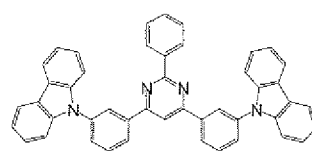
(A62)



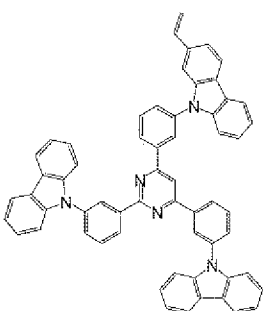
(A63)



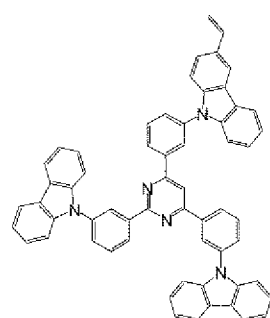
(A64)



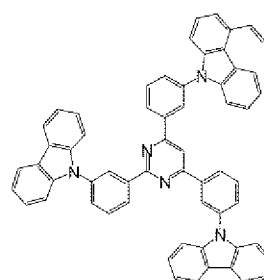
(A65)



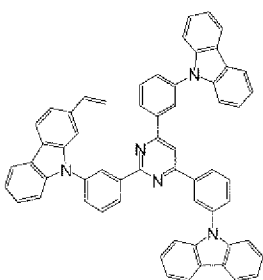
(A66)



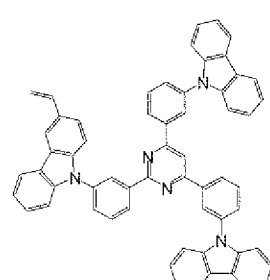
(A67)



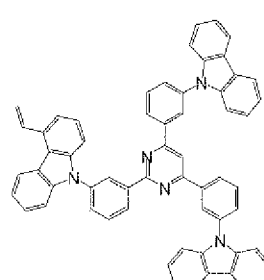
(A68)



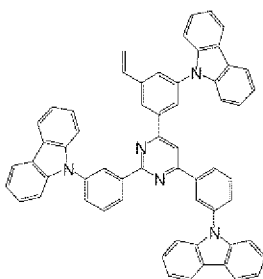
(A69)



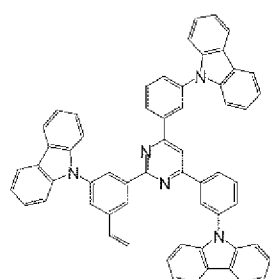
(A70)



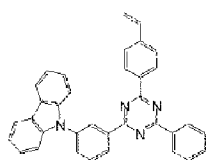
(A71)



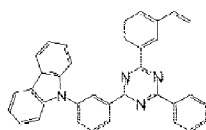
(A72)



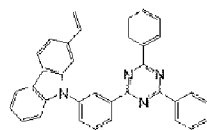
(A73)



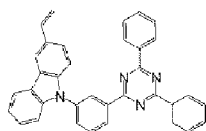
(A74)



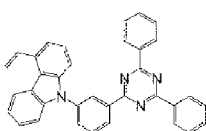
(A75)



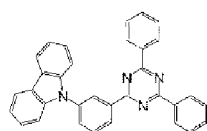
(A76)



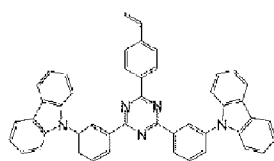
(A77)



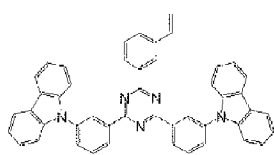
(A78)



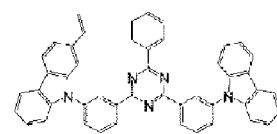
(A79)



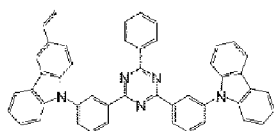
(A80)



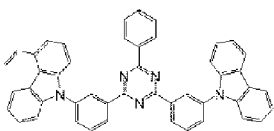
(A81)



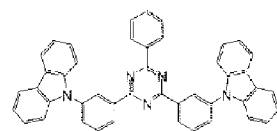
(A82)



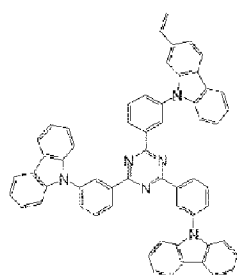
(A83)



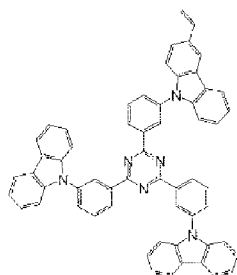
(A84)



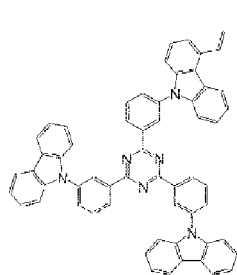
(A85)



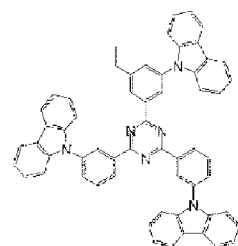
(A86)



(A87)

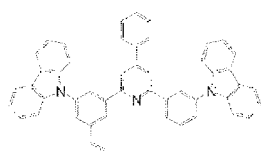


(A88)

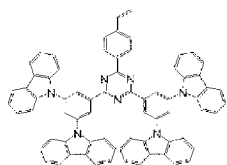


(A89)

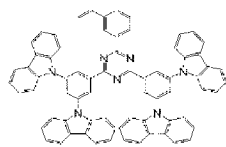
[0102] [化24]



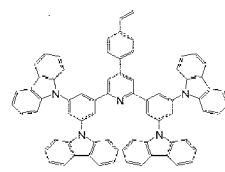
(A90)



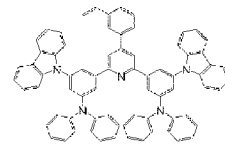
(A91)



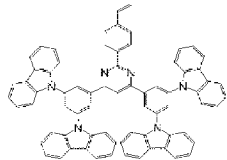
(A92)



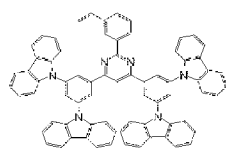
(A93)



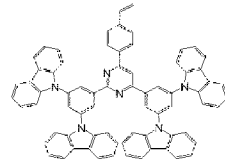
(A94)



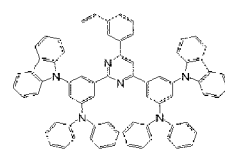
(A95)



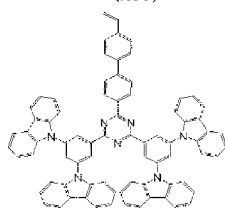
(A96)



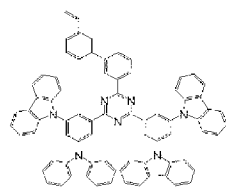
(A97)



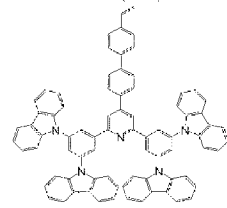
(A98)



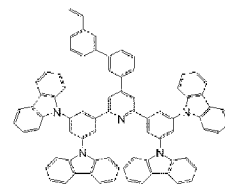
(A99)



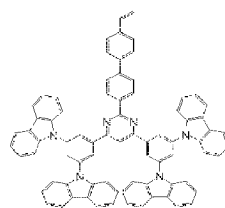
(A100)



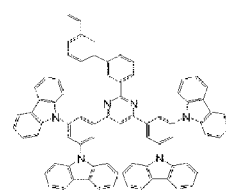
(A101)



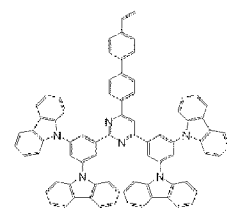
(A102)



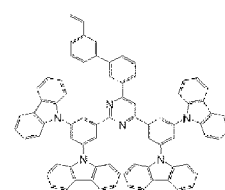
(A103)



(A104)

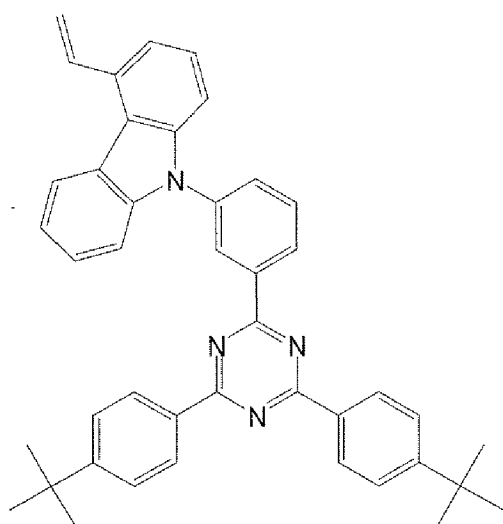


(A105)

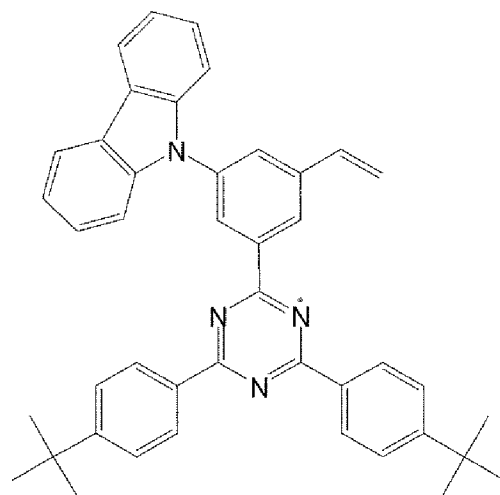


(A106)

[0103] [化25]



… (A107)



… (A108)

[0104] これらのうち、好ましくは上記式(A1)、(A13)、(A14)、(A15)、(A31)、(A35)、(A40)、(A42)、(A60)、(A71)、(A73)、(A78)、(A79)、(A80)、(A88)、(A89)、(A92)、(A94)、(A96)、(A100)、(A102)、(A104)、(A107)および(A108)のいずれかで表される化合物であり、より好ましくは上記式(A13)、(A15)、(A31)、(A40)、(A60)、(A71)、(A78)、(A80)、(A88)および(A107)のいずれかで表される化合物である。

[0105] 上記キャリア輸送性の重合性化合物は、1種単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0106] このようなキャリア輸送性の重合性化合物は、例えば、ルイス酸を用いて、ベンゾニトリル誘導体と3-ブロモ-5-ヨードベンゾイルクロリドとを環化反応させた後、鈴木カップリング法により、ビニルフェニルボウ酸とカルバゾールを順にカップリングすることにより製造できる。

[0107] なお、高分子化合物(I)を製造する際には、さらに、他の重合性化合物を用いてもよい。上記他の重合性化合物としては、例えば、アクリル酸メチル、メタクリル酸メチル等の(メタ)アクリル酸アルキルエステル、スチレンおよびその誘導体などのキャリア輸送性を有さない化合物が挙げられるが、何らこれらに制限されるものではない。高分子化合物(I)中、他の重合性化合物から導かれる構造単位の含有量は、全構造単位100モル%中、好ましくは0～50モル%であることが望ましい。

[0108] 高分子化合物(I)の製造は、上述した重合性化合物を用いて、ラジカル重合、カチオン重合、アニオン重合および付加重合のいずれで行ってもよいが、ラジカル重合で行うことが好ましい。

[0109] 高分子化合物(I)の重量平均分子量は、通常1,000～2,000,000であり、好ましくは5,000～500,000であることが望ましい。重量平均分子量がこの範囲にあると、高分子化合物(I)が有機溶媒に可溶であり、均一な薄膜を得られるため好ましい。ここで、重量平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)法によって、テトラヒドロフランを溶媒として、40℃で測定される値である。

[0110] 高分子化合物(I)のトルエン、クロロホルムなどの有機溶媒に対する溶解性については、高分子化合物(I)1質量部が、有機溶媒1～200質量部の量に溶解することが好ましく、10～50質量部の量に溶解することがより好ましい。溶解性がこの範囲であると、塗布法による有機EL素子が作製しやすいため好ましい。

[0111] <実施の形態2>

本発明の高分子化合物(II)(実施の形態2)は、上記式(1)で表されるキャリア輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位とともに、ホール輸送性の重合性化合物から導かれる単位をさらに含み、上記式(1)で表されるキャリア輸送性の重合性化合物およびホール輸送性の重合性化合物を重合して得られる。

[0112] 上記式(1)で表されるキャリア輸送性の重合性化合物については、実施の形態1に用いられるキャリア輸送性の重合性化合物と同義であり、好ましい範囲およびその理由も同様である。

[0113] 上記ホール輸送性の重合性化合物としては、上述の重合性官能基を有する置換基を含む、カルバゾール構造またはトリフェニルアミン構造を含むことが好ましく、カルバゾール構造を含むことがより好ましい。

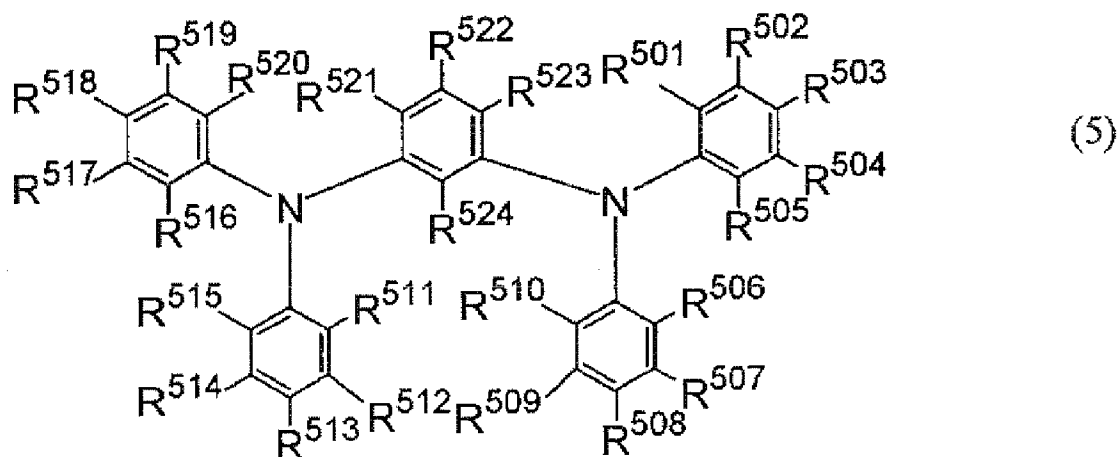
[0114] このようなカルバゾール構造またはトリフェニルアミン構造を含む重合性化合物としては、重合性官能基を有する置換基を含む、N, N'-ジフェニル-N, N'-(3-メチルフェニル)-1, 1'-ビフェニル-4, 4'-ジアミン(TPD)、N, N, N', N'-テトラキス(3-メチルフェニル)-1, 1'-(3, 3'-ジメチル)ビフェニル-4, 4'-ジアミン(HMTPD)、4, 4', 4''-トリス(3-メチルフェニルフェニルアミノ)トリフェニルアミン(m

ーMTDATA)、9-ビニルカルバゾール、9-エチルカルバゾール、4, 4'-ビスカルバゾリルビフェニル(CBP)、4, 4'-ビスカルバゾリル-2, 2'-ジメチルビフェニル(CDBP)などが挙げられる。これらのうち、好ましくは9-ビニルカルバゾール、9-エチルカルバゾール、CBPおよびCDBP、より好ましくは9-エチルカルバゾールおよびCDBPである。

[0115] 上記ホール輸送性の重合性化合物は、1種単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0116] また、下記一般式(5)、(6)で表されるホール輸送性の重合性化合物も、キャリア輸送能および光物性に優れることから本発明に好適である。

[0117] [化26]



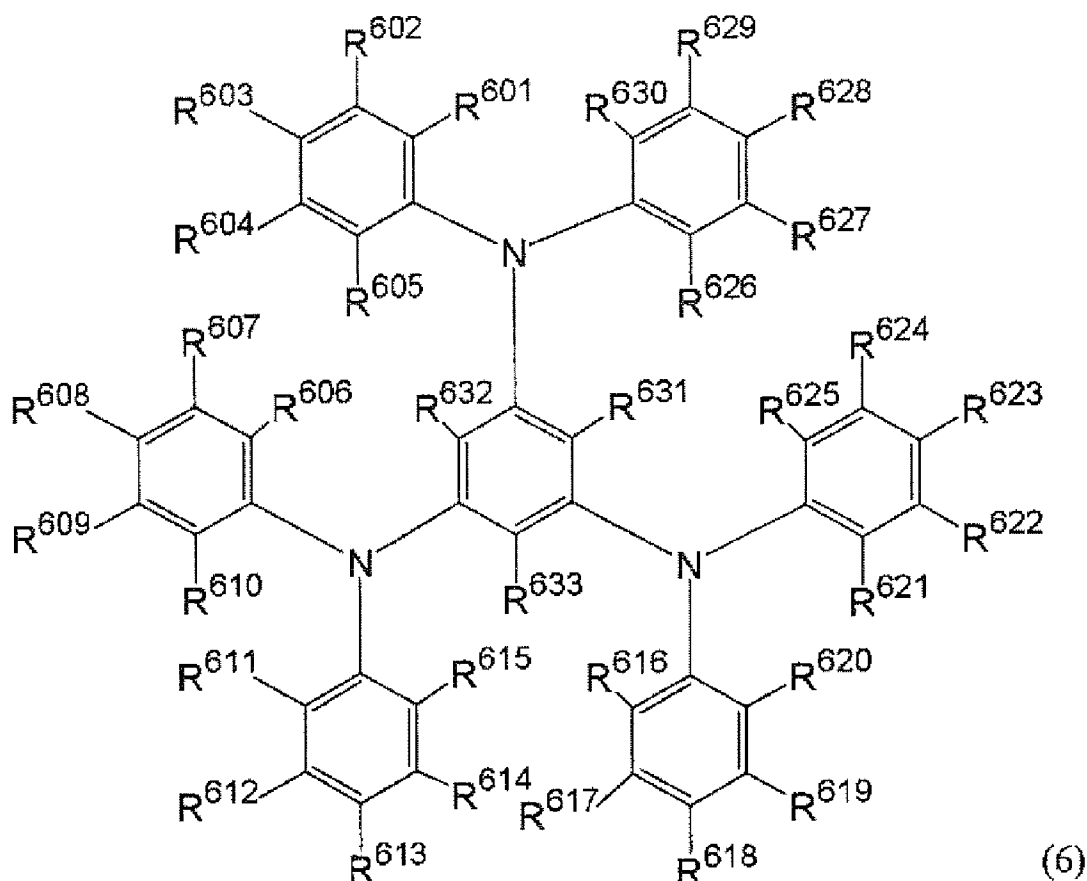
[0118] 上記式(5)中、 $R^{501} \sim R^{524}$ のうち少なくとも1つは重合性官能基を有する置換基を表し、該重合性官能基を有する置換基ではない $R^{501} \sim R^{524}$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、炭素原子数1～10のアルキル基、炭素原子数6～10のアリール基、炭素原子数1～10のアルキル基によって置換されていてもよいアミノ基、炭素原子数1～10のアルコキシ基、カルバゾリル基およびシリル基からなる群より選ばれる原子または置換基を表す。

[0119] 上記原子または置換基の具体例としては、上述した原子または置換基が挙げられる。上記カルバゾリル基は、メチル基、エチル基、*n*-ブチル基、メトキシ基などの置換基を有していてもよい。

[0120] $R^{501} \sim R^{505}$ 、 $R^{506} \sim R^{510}$ 、 $R^{511} \sim R^{515}$ 、 $R^{516} \sim R^{520}$ および $R^{521} \sim R^{523}$ のうち、環を構成す

る2つの炭素原子を介して隣り合う2つの基は、互いに結合して縮合環を形成してもよい。

[0121] [化27]



[0122] 上記式(6)中、 $R^{601} \sim R^{633}$ のうち少なくとも1つは重合性官能基を有する置換基を表し、該重合性官能基を有する置換基ではない $R^{601} \sim R^{633}$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、炭素原子数1～10のアルキル基、炭素原子数6～10のアリール基、炭素原子数1～10のアルキル基によって置換されていてもよいアミノ基、炭素原子数1～10のアルコキシ基、およびシリル基からなる群より選ばれる原子または置換基を表す。

[0123] 上記原子または置換基の具体例としては、上述した原子または置換基が挙げられる。

[0124] $R^{601} \sim R^{605}$ 、 $R^{606} \sim R^{610}$ 、 $R^{611} \sim R^{615}$ 、 $R^{616} \sim R^{620}$ 、 $R^{621} \sim R^{625}$ 、 $R^{626} \sim R^{630}$ のうち、環を構成する2つの炭素原子を介して隣り合う2つの基は、互いに結合して縮合環を形成

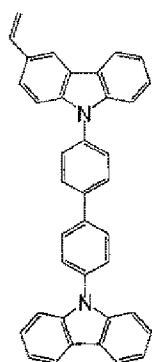
していてもよい。

[0125] これらのうちで、上記式(5)で表される重合性化合物では、 $R^{501} \sim R^{505}$ 、 $R^{506} \sim R^{510}$ 、 $R^{511} \sim R^{515}$ 、 $R^{516} \sim R^{520}$ のそれぞれにおいて、少なくとも一つは水素原子以外の上記原子または置換基であることが好ましい。なお、この場合、重合性官能基あるいは上記原子または置換基ではない $R^{501} \sim R^{524}$ は、水素原子である。また、上記式(6)で表される重合性化合物では、 $R^{601} \sim R^{605}$ 、 $R^{606} \sim R^{610}$ 、 $R^{611} \sim R^{615}$ 、 $R^{616} \sim R^{620}$ 、 $R^{621} \sim R^{625}$ 、 $R^{626} \sim R^{630}$ のそれぞれにおいて、少なくとも一つは水素原子以外の上記原子または置換基であることが好ましい。なお、この場合、重合性官能基あるいは上記原子または置換基ではない $R^{601} \sim R^{633}$ は、水素原子である。

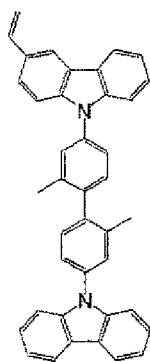
[0126] 上記重合性官能基を有する置換基としては、上記一般式(7)で表される置換基が好ましい。 R^{701} は、水素原子または炭素原子数1～12のアルキル基を表す。 R^{701} の好ましい範囲およびその理由は、実施の形態1で述べた電子輸送性の重合性化合物の場合と同じである。 X^7 は、単結合または上記式(X71)～(X74)で表される基を表す。 X^7 の好ましい範囲および理由は、実施の形態1で述べた電子輸送性の重合性化合物の場合と同じである。

[0127] 上記ホール輸送性の重合性化合物としては、より具体的には、下記式(8-1)～(8-11)に示す化合物が挙げられる。

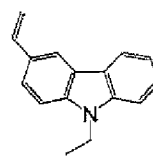
[0128] [化28]



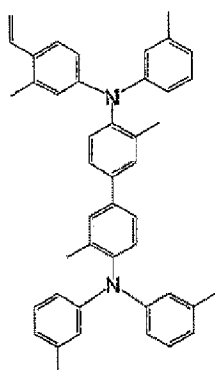
(8-1)



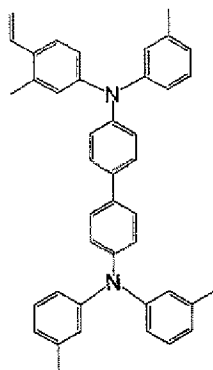
(8-2)



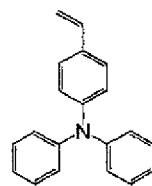
(8-3)



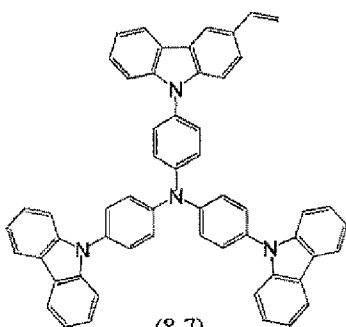
(8-4)



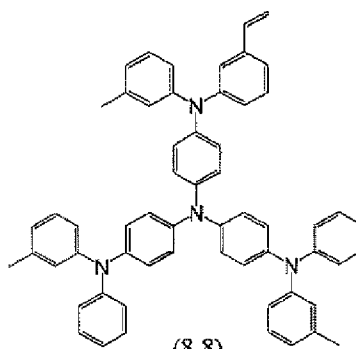
(8-5)



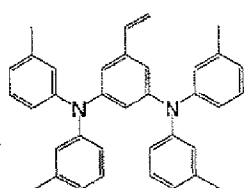
(8-6)



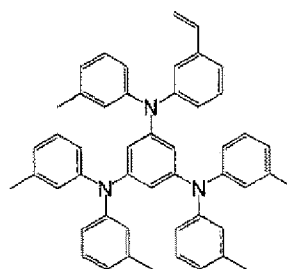
(8-7)



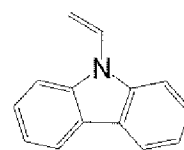
(8-8)



(8-9)



(8-10)



(8-11)

[0129] 上記ホール輸送性の重合性化合物は、1種単独で用いても、2種以上を組み合わせ

せて用いてもよい。

- [0130] 上記式(5)で表される化合物は、例えば、*m*-フェニレンジアミン誘導体とハロゲン化アリールとのパラジウム触媒置換反応またはジアリールアミンと*m*-ジブロモベンゼン誘導体とのパラジウム触媒置換反応によって製造できる。置換反応の具体的な方法については、例えばTetrahedron Letters、1998年、39巻、2367頁などに記載されている。
- [0131] また、上記式(6)で表される化合物は、例えば、1, 3, 5-トリアミノベンゼンとハロゲン化アリールとのパラジウム触媒置換反応またはジアリールアミンと1, 3, 5-トリハロゲン化ベンゼンとのパラジウム触媒置換反応によって製造できる。置換反応の具体的な方法については、例えばTetrahedron Letters、1998年、39巻、2367頁などに記載されている。
- [0132] 上記式(1)中、3つのA¹のうち少なくとも1つのA¹が、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい縮合多環芳香族基(好ましくはカルバゾリル基)を表すことから、ホール輸送性の重合性化合物がカルバゾール構造を有すると、キャリア輸送性の重合性化合物とホール輸送性の重合性化合物との重合反応性の差異が小さくなるため好ましい。
- [0133] なお、高分子化合物(II)を製造する際に、さらに用いてもよい他の重合性化合物についても、実施の形態1と同じである。
- [0134] 高分子化合物(II)の製造は、上述した重合性化合物を用いて、ラジカル重合、カチオン重合、アニオン重合および付加重合のいずれで行ってもよいが、好ましくはラジカル重合で行うことが望ましい。
- [0135] 高分子化合物(II)の重量平均分子量については、実施の形態1と同様である。また、高分子化合物(II)の有機溶媒に対する溶解性は、実施の形態1と同様である。
- [0136] また、高分子化合物(II)において、ホール輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位数を*m*とし、上記式(1)で示されるキャリア輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位数を*n*としたとき(*m*、*n*は1以上の整数を示す)、全構成単位数に対するホール輸送性の重合性化合物から導かれる構造単位数の割合、すなわち*m*/(*m*+*n*)の値は、0.1~0.9の範囲にあることが好ましく、0.2~0.9の範囲にあることが

より好ましく、0.4～0.9の範囲にあることが特に好ましい。 $m/(m+n)$ の値がこの範囲にあると、キャリア移動度および耐久性が高い有機EL素子が得られる。また、上記のような高分子化合物における各構成単位の割合は、ICP元素分析および ^{13}C -NMR測定によって見積られる。

[0137] なお、上記キャリア輸送性の重合性化合物および上記ホール輸送性の重合性化合物の比率を上記範囲内で適宜調整して重合すれば、所望の構造を有する高分子化合物(II)が得られる。

[0138] また、高分子化合物(II)は、ランダム共重合体、ブロック共重合体、および交互共重合体のいずれであってもよい。

[0139] <実施の形態3>

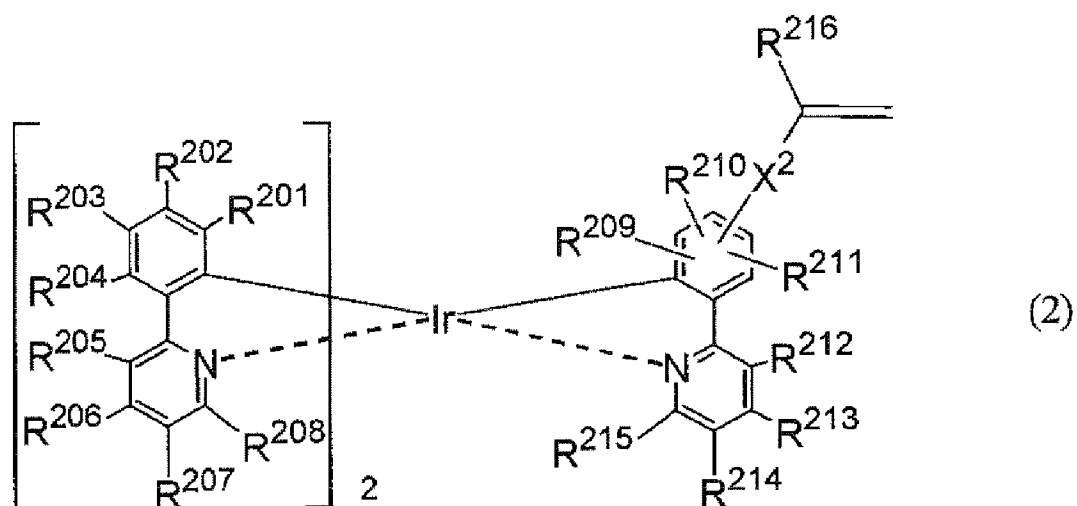
本発明の高分子化合物(III)(実施の形態3)は、上記式(1)で表されるキャリア輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位およびホール輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位とともに、発光性の重合性化合物から導かれる構成単位をさらに含み、上記式(1)で表されるキャリア輸送性の重合性化合物、ホール輸送性の重合性化合物および発光性の重合性化合物を重合して得られる。

[0140] 上記式(1)で示されるキャリア輸送性の重合性化合物およびホール輸送性の重合性化合物については、実施の形態2に用いられるキャリア輸送性の重合性化合物と同義であり、好ましい範囲およびその理由についても同様である。

[0141] 上記発光性の重合性化合物は、燐光発光性を有することが好ましく、重合性官能基を有する置換基を有する遷移金属錯体であることがより好ましく、重合性官能基を有する置換基を有するイリジウム錯体であることがさらに好ましい。

[0142] このようなイリジウム錯体としては、下記一般式(2)～(4)で表される錯体が好適に用いられる。これらの重合性化合物は、重合性の官能基であるビニル基を有する。

[0143] [化29]



[0144] 上記式(2)中、 $R^{201} \sim R^{215}$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、炭素原子数1～10のアルキル基、炭素原子数6～10のアリール基、炭素原子数1～10のアルキル基によって置換されていてもよいアミノ基、炭素原子数1～10のアルコキシ基およびシリル基からなる群より選ばれる原子または置換基を表す。

[0145] 上記ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子またはヨウ素原子が挙げられる。

[0146] 上記炭素原子数1～10のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、アミル基、ヘキシル基、オクチル基、デシル基などが挙げられる。

[0147] 上記炭素原子数6～10のアリール基としては、例えば、フェニル基、トリル基、キシリル基、メシチル基、ナフチル基などが挙げられる。

[0148] 上記炭素原子数1～10のアルキル基によって置換されていてもよいアミノ基としては、例えば、アミノ基、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジブチルアミノ基などが挙げられる。

[0149] 上記炭素原子数1～10のアルコキシ基としては、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基、イソブトキシ基、*t*-ブトキシ基、ヘキシロキシ基、2-エチルヘキシロキシ基、デシロキシ基などが挙げられる。

[0150] 上記シリル基としては、例えば、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、*t*-ブチルジメチルシリル基、トリメトキシシリル基などが挙げられる。

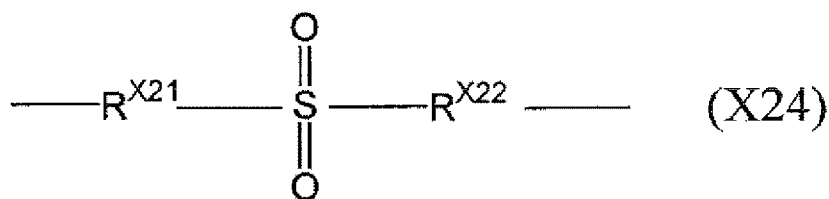
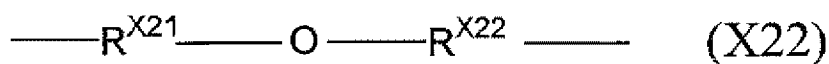
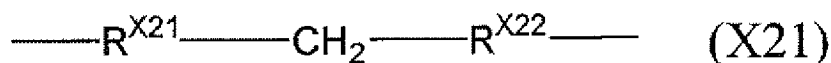
[0151] これらのうちで、燐光発光特性に優れることから、 $R^{201} \sim R^{215}$ は、水素原子、フッ素原子、シアノ基、メチル基、*t*-ブチル基、ジメチルアミノ基、ブトキシ基、2-エチルヘキシルオキシ基であることが好ましく、 R^{202} が*t*-ブチル基であり、 R^{202} を除く $R^{201} \sim R^{215}$ が水素原子であることがより好ましい。

[0152] $R^{201} \sim R^{204}$ 、 $R^{205} \sim R^{208}$ 、 $R^{209} \sim R^{211}$ 、 $R^{212} \sim R^{215}$ のうち、環を構成する2つの炭素原子を介して隣り合う2つの基は、互いに結合して縮合環を形成していてもよい。

[0153] R^{216} は、水素原子または炭素原子数1～12のアルキル基を表す。上記炭素原子数1～12のアルキル基としては、上述したアルキル基が挙げられる。これらのうちで、キャリア輸送能に優れることから、 R^{216} は水素原子であることが好ましい。

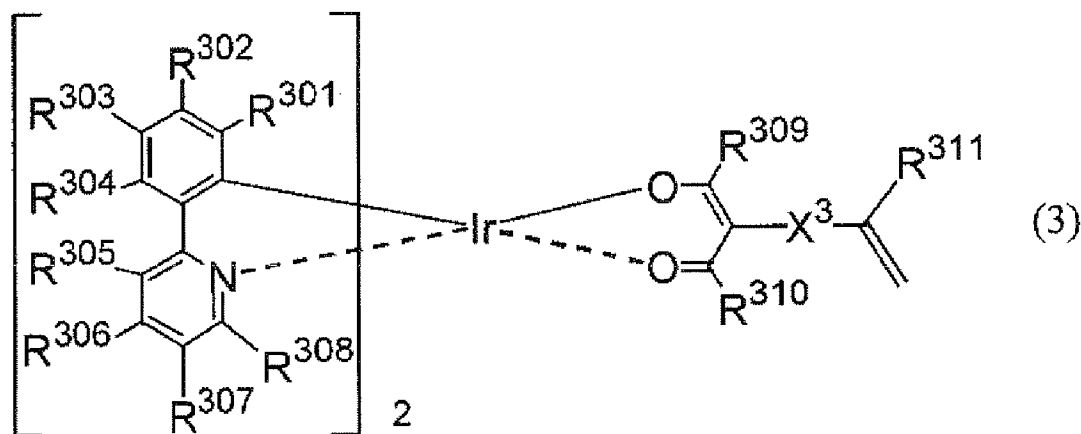
[0154] X^2 は、単結合または下記式(X21)～(X24)で表される基を表す。

[0155] [化30]



[0156] 式中、 R^{X21} は、単結合または炭素原子数1～12のアルキレン基を表し、 R^{X22} は、単結合、炭素原子数1～12のアルキレン基またはフェニレン基を表す。なお、上記式(2)において、 R^{X21} はベンゼン環に結合し、 R^{X22} はビニル基に結合することが好ましい。 X^2 にヘテロ原子が含まれていないと、より高い発光効率を有する有機EL素子が得られる。

[0157] [化31]



[0158] 上記式(3)中、 $R^{301} \sim R^{308}$ は、それぞれ独立に、 R^{201} と同様の原子または置換基を表す。

[0159] $R^{309} \sim R^{310}$ は、それぞれ独立に、 R^{201} と同様の原子または置換基を表す(ただしハロゲン原子を除く)。

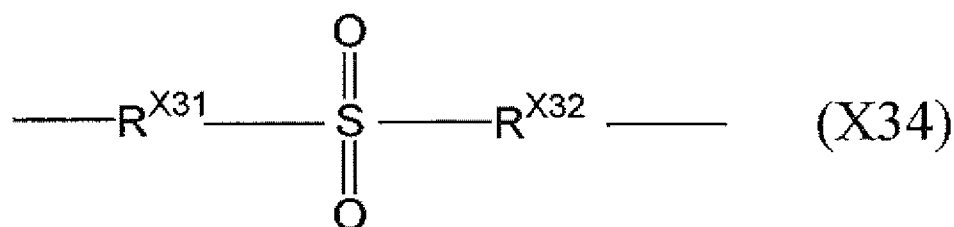
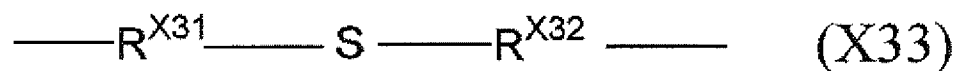
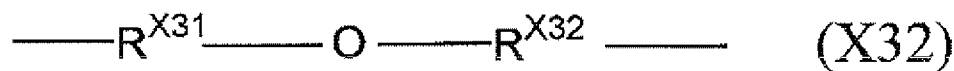
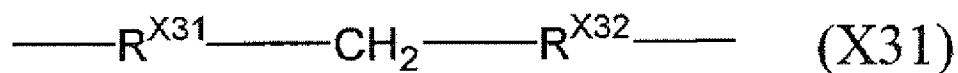
[0160] これらのうちで、燐光発光特性に優れることから、 $R^{301} \sim R^{310}$ は、それぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、シアノ基、メチル基、*t*-ブチル基、ジメチルアミノ基、ブトキシ基、2-エチルヘキシルオキシ基であることが好ましく、 R^{302} が*t*-ブチル基であり、 R^{202} を除く $R^{301} \sim R^{310}$ が水素原子であることがより好ましい。

[0161] $R^{301} \sim R^{304}$ 、 $R^{305} \sim R^{308}$ のうち、環を構成する2つの炭素原子を介して隣り合う2つの基は、互いに結合して縮合環を形成していてもよい。

[0162] R^{311} は、 R^{216} と同様の原子または置換基を表し、好ましい範囲およびその理由も R^{216} の場合と同様である。

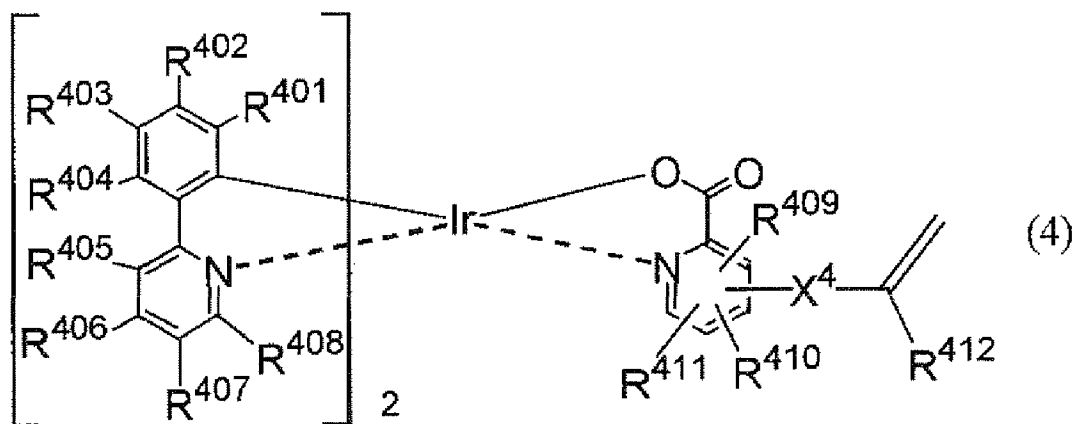
[0163] X^3 は、単結合または下記式(X31)～(X34)で表される基を表す。

[0164] [化32]



[0165] 式中、 R^{X31} は、単結合または炭素原子数1～12のアルキレン基を表し、 R^{X32} は、単結合、炭素原子数1～12のアルキレン基またはフェニレン基を表す。 X^3 の好ましい範囲および理由は X^2 と同じである。

[0166] [化33]



[0167] 上記式(4)中、 $\text{R}^{401} \sim \text{R}^{411}$ は、それぞれ独立に、 R^{201} と同様の原子または置換基を表す。これらのうちで、燐光発光特性に優れることから、 $\text{R}^{401} \sim \text{R}^{411}$ が、それぞれ独立に、水素原子、フッ素原子、シアノ基、メチル基、*t*-ブチル基、ジメチルアミノ基、ブトキシ基、2-エチルヘキシルオキシ基であることが好ましく、 R^{402} が*t*-ブチル基であり、 R^{402} を除く $\text{R}^{401} \sim \text{R}^{411}$ が水素原子であることがより好ましい。

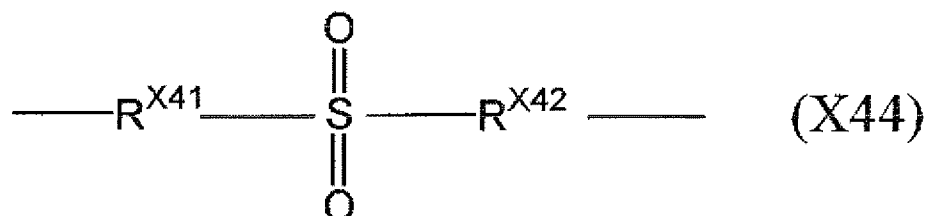
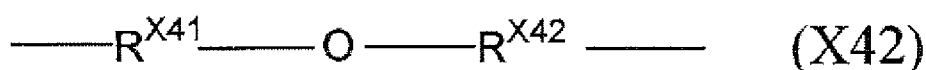
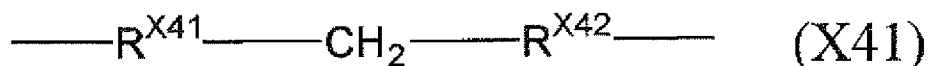
[0168] $\text{R}^{401} \sim \text{R}^{404}$ 、 $\text{R}^{405} \sim \text{R}^{408}$ 、 $\text{R}^{409} \sim \text{R}^{411}$ のうち、環を構成する2つの炭素原子を介して隣

り合う2つの基は、互いに結合して縮合環を形成していてもよい。

[0169] R^{412} は、 R^{216} と同様の原子または置換基を表し、好ましい範囲およびその理由も R^{216} の場合と同様である。

[0170] X^4 は、単結合または下記式(X41)～(X44)で表される基を表す。

[0171] [化34]



[0172] 式中、 R^{X41} は、単結合または炭素原子数1～12のアルキレン基を表し、 R^{X42} は、単結合、炭素原子数1～12のアルキレン基またはフェニレン基を表す。 X^4 の好ましい範囲および理由は X^2 の場合と同様である。

[0173] 上記燐光発光性の重合性化合物は、1種単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0174] このような燐光発光性の重合性化合物は、例えば、塩化イリジウムとフェニルピリジン誘導体を反応させ、イリジウム(Ir)の2核錯体とした後、重合性官能基を有する配位子(上記式(2)～(4)中Irの右側に配位している配位子)を反応させることにより製造できる。

[0175] なお、高分子化合物(III)を製造する際に、さらに用いてもよい他の重合性化合物についても、実施の形態1と同様である。

[0176] 高分子化合物(III)の製造は、上述した重合性化合物を用いて、ラジカル重合、カチオン重合、アニオン重合および付加重合のいずれで行ってもよいが、好ましくはラ

ジカル重合で行うことが望ましい。

[0177] 高分子化合物(III)の重量平均分子量については、実施の形態1と同様である。高分子化合物(III)の有機溶媒に対する溶解性は、実施の形態1と同様である。

[0178] また、高分子化合物(III)において、燐光発光性の重合性化合物から導かれる構成単位数を x とし、上記式(1)で表されるキャリア輸送性の重合性化合物とホール輸送性の重合性化合物とから導かれる構成単位数を y としたとき(x 、 y は、1以上の整数を表す。)、全構成単位数に対する燐光発光性の重合性化合物から導かれる構成単位数の割合、すなわち $x/(x+y)$ の値は、0.001～0.5の範囲にあることが好ましく、0.001～0.2の範囲にあることがより好ましい。 $x/(x+y)$ の値がこの範囲にあると、キャリア移動度が高く、濃度消光の影響が小さい、高い発光効率の有機EL素子を得られる。

[0179] また、高分子化合物(III)において、ホール輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位数を m 、キャリア輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位数を n とすると(m 、 n は1以上の整数を示す)、上記 y との間に、 $y=m+n$ の関係が成り立つ。電荷輸送性化合物から導かれる構成単位数に対する、ホール輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位数の割合 m/y 、およびキャリア輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位数の割合 n/y の最適値は、各構成単位の電荷輸送能、濃度などによって決まる。この高分子化合物(III)のみで有機EL素子の発光層を形成する場合、 m/y および n/y の値は、それぞれ、0.05～0.95の範囲にあることが好ましく、0.20～0.80の範囲にあることがより好ましい。ここで、 $m/y+n/y=1$ が成り立つ。上記のような高分子化合物における各構成単位の割合は、ICP元素分析および ^{13}C -NMR測定によって見積られる。

[0180] なお、上記キャリア輸送性の重合性化合物、上記ホール輸送性の重合性化合物および上記燐光発光性の重合性化合物の比率を上記範囲内で適宜調整して重合すれば、所望の構造を有する高分子化合物(III)が得られる。

[0181] また、高分子化合物(III)は、ランダム共重合体、ブロック共重合体、および交互共重合体のいずれであってもよい。

[0182] <実施の形態4>

本発明の高分子化合物(IV)(実施の形態4)は、上記式(1)で表されるキャリア輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位およびホール輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位とともに、電子輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位をさらに含み、上記式(1)で表されるキャリア輸送性の重合性化合物、ホール輸送性の重合性化合物および電子輸送性の重合性化合物を重合して得られる。

[0183] 上記式(1)で示されるキャリア輸送性の重合性化合物およびホール輸送性の重合性化合物については、実施の形態2に用いられるキャリア輸送性の重合性化合物と同義であり、好ましい範囲およびその理由についても同様である。

[0184] 上記電子輸送性の重合性化合物としては、重合性官能基を有する置換基を含む、芳香族複素環構造またはトリアリールホウ素構造であることが好ましく、芳香族環構造であることがより好ましい。

[0185] なお、高分子化合物(IV)を製造する際に、さらに用いてもよい他の重合性化合物についても、実施の形態1と同様である。

[0186] 高分子化合物(IV)の製造は、上述した重合性化合物を用いて、ラジカル重合、カチオン重合、アニオン重合および付加重合のいずれで行ってもよいが、好ましくはラジカル重合で行うことが望ましい。

[0187] 高分子化合物(IV)の重量平均分子量については、実施の形態1と同様である。高分子化合物(IV)の有機溶媒に対する溶解性は、実施の形態1と同様である。

[0188] また、高分子化合物(IV)において、電子輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位数を x' とし、ホール輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位数を y' とし、上記式(1)で示されるキャリア輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位数を z' としたとき(x' 、 y' および z' は、1以上の整数を表す。)、全構成単位数に対する電子輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位数の割合、すなわち $x'/(x'+y'+z')$ の値は、0.1～0.9の範囲にあることが好ましく、0.1～0.5の範囲にあることがより好ましく、0.1～0.3の範囲にあることがさらに好ましい。 $x'/(x'+y'+z')$ の値がこの範囲にあると、キャリア移動度が高く、高い耐久性の有機EL素子が得られる。上記のような高分子化合物における各構成単位の割合は、ICP元素分析および ^{13}C -NMR測定によって見積もられる。

[0189] なお、上記キャリア輸送性の重合性化合物、上記ホール輸送性の重合性化合物および上記電子輸送性の重合性化合物の比率を上記範囲内で適宜調整して重合すれば、所望の構造を有する高分子化合物(IV)が得られる。

[0190] また、高分子化合物(IV)は、ランダム共重合体、ブロック共重合体、および交互共重合体のいずれであってもよい。

[0191] <実施の形態5>

本発明の高分子化合物(V)(実施の形態5)は、上記式(1)で表されるキャリア輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位とホール輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位と電子輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位と発光性の重合性化合物から導かれる構成単位とを含み、上記式(1)で表されるキャリア輸送性の重合性化合物とホール輸送性の重合性化合物と電子輸送性の重合性化合物と発光性の重合性化合物とを重合して得られる。

[0192] 上記式(1)で示されるキャリア輸送性の重合性化合物とホール輸送性の重合性化合物と電子輸送性の重合性化合物と発光性の重合性化合物については、実施の形態1～4に用いられるそれぞれの重合性化合物と同義であり、好ましい範囲およびその理由についても同様である。

[0193] なお、高分子化合物(V)を製造する際に、さらに用いてもよい他の重合性化合物についても、実施の形態1と同様である。

[0194] 高分子化合物(V)の製造は、上述した重合性化合物を用いて、ラジカル重合、カチオン重合、アニオン重合および付加重合のいずれで行ってもよいが、好ましくはラジカル重合で行うことが望ましい。

[0195] 高分子化合物(V)の重量平均分子量については、実施の形態1と同様である。高分子化合物(V)の有機溶媒に対する溶解性は、実施の形態1と同様である。

[0196] また、高分子化合物(V)において、電子輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位数を p とし、発光性の重合性化合物から導かれる構成単位を q とし、ホール輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位数を r とし、上記式(1)で示されるキャリア輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位数を s としたとき($p \sim s$ は、それぞれ1以上の整数を表す。)、全構成単位数に対する電子輸送性の重合性化合物から導

かれる構造単位数の割合、すなわち $p/(p+q+r+s)$ の値は、0.1～0.9の範囲にあることが好ましく、0.1～0.5の範囲にあることがより好ましく、0.1～0.3の範囲にあることがさらに好ましい。また、全構成単位数に対する発光性の重合性化合物から導かれる構造単位数の割合、すなわち $q/(p+q+r+s)$ の値は、0.001～0.5の範囲にあることが好ましく、0.001～0.2の範囲にあることがより好ましい。全構成単位数に対する電子輸送性および発光性の重合性化合物から導かれる構成単位数の値がこの範囲にあると、キャリア移動度が高く、高い耐久性の有機EL素子が得られる。上記のような高分子化合物における各構成単位の割合は、ICP元素分析および ^{13}C -NMR測定によって見積もられる。

[0197] なお、上記キャリア輸送性の重合性化合物と上記ホール輸送性の重合性化合物と上記電子輸送性の重合性化合物と上記発光性の重合性化合物との比率を上記範囲内で適宜調整して重合すれば、所望の構造を有する高分子化合物(V)が得られる。

[0198] また、高分子化合物(V)は、ランダム共重合体、ブロック共重合体、および交互共重合体のいずれであってもよい。

[0199] <実施の形態6>

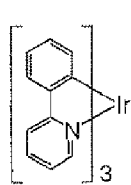
本発明の有機EL素子(実施の形態6)では、陽極と陰極との間に、特定の高分子化合物(I)、後述する発光性の化合物および後述するホール輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位を有する高分子化合物(I')を含む発光層が一層備えられている。この場合、発光層は、高分子化合物(I)100質量部に対して、上記発光性の化合物を好ましくは0.1～50質量部、より好ましくは0.5～30質量部の量で、高分子化合物(I')を好ましくは10～200質量部、より好ましくは50～150質量部の量で含むことが望ましい。このように、キャリア輸送性の高分子化合物(I)、発光性の化合物およびホール輸送性の高分子化合物(I')から発光層を形成すれば、他の有機材料の層を設けない場合でも、高い発光効率を有する有機EL素子を作製できる。

[0200] 上記発光性の化合物としては、燐光発光性の化合物が好ましく、イリジウム錯体がより好ましい。

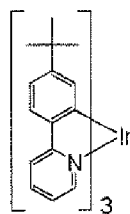
[0201] 上記イリジウム錯体としては、具体的には、以下のような錯体(E-1)～(E-39)が

好適に用いられる。

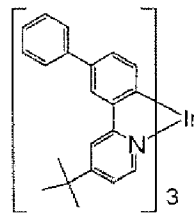
[0202] [化35]



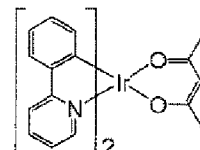
E-1



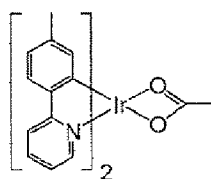
E-2



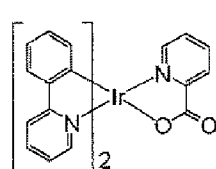
E-3



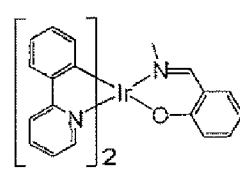
E-4



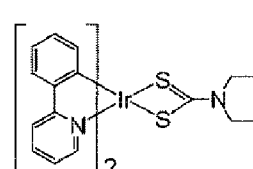
E-5



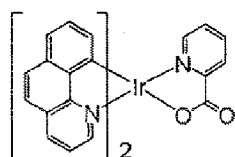
E-6



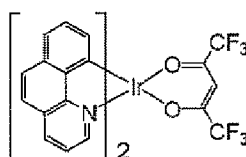
E-7



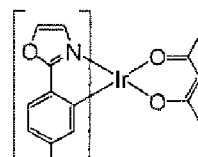
E-8



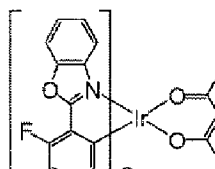
E-9



E-10

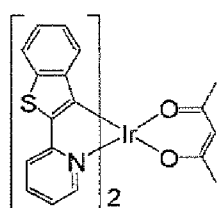


E-11

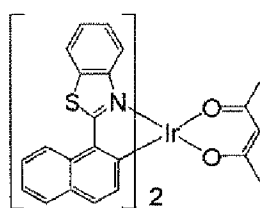


E-12

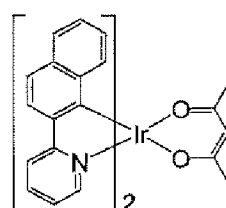
[0203] [化36]



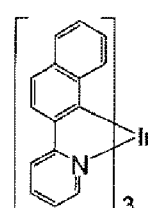
E-13



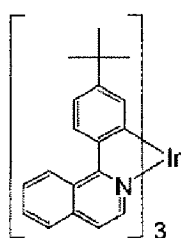
E-14



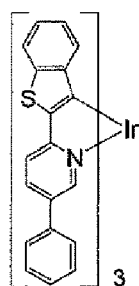
E-15



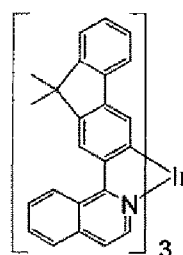
E-16



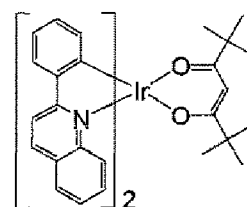
E-17



E-18

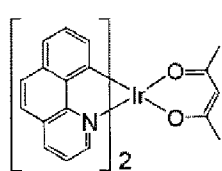


E-19

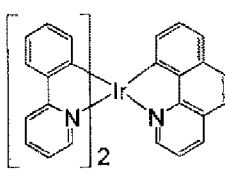


E-20

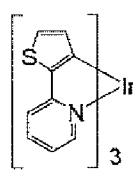
[0204] [化37]



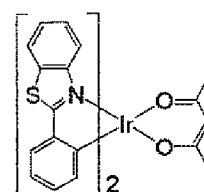
E-21



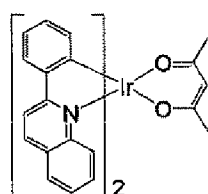
E-22



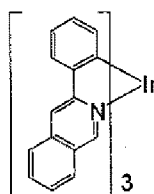
E-23



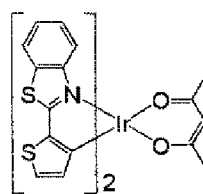
E-24



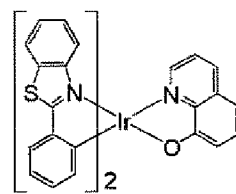
E-25



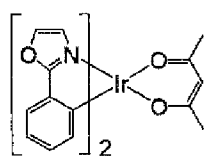
E-26



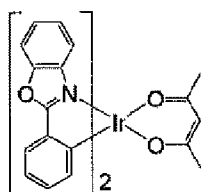
E-27



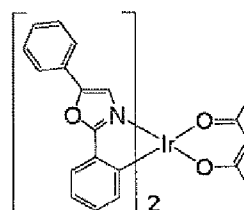
E-28



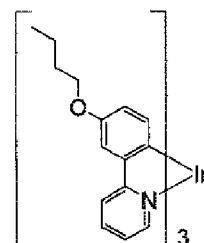
E-29



E-30

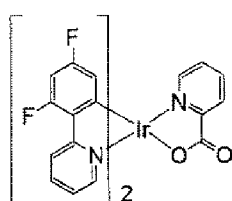


E-31

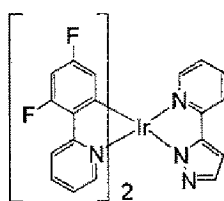


E-32

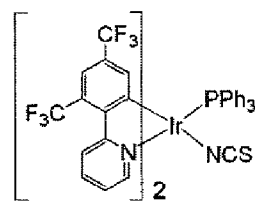
[0205] [化38]



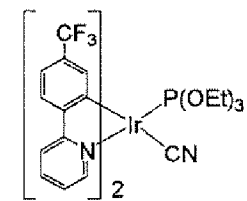
E-33



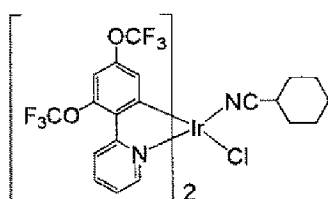
E-34



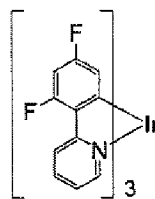
E-35



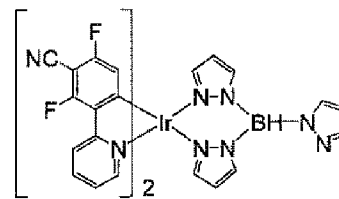
E-36



E-37



E-38



E-39

- [0206] これらのうち、より好ましくはE-1、E-2、E-6、E-33、E-34、E-38、およびE-39のいずれかで表される化合物であり、さらに好ましくは、E-33およびE-38のいずれかで表される化合物である。
- [0207] 上記発光性の化合物は、1種単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。
- [0208] 高分子化合物(I')は、ホール輸送性の重合性化合物を重合して得られる。上記ホール輸送性の重合性化合物については、実施の形態3に用いられるホール輸送性の重合性化合物と同義であり、好ましい範囲およびその理由も同様である。
- [0209] 高分子化合物(I')の製造は、上述した重合性化合物を用いて、ラジカル重合、カチオン重合、アニオン重合および付加重合のいずれで行ってもよいが、ラジカル重合で行うことが好ましい。
- [0210] 高分子化合物(I')の重量平均分子量は、通常1,000~2,000,000であり、好ましくは5,000~500,000であることが望ましい。重量平均分子量がこの範囲にあると、高分子化合物(I')が有機溶媒に可溶であり、均一な薄膜を得られるため好ましい。ここで、重量平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)法によって、テトラヒドロフランを溶媒として、40℃で測定される値である。また、高分子化合物(I')の有機溶媒に対する溶解性は、実施の形態1と同じである。
- [0211] 上述した陽極と陰極との間に、高分子化合物(I)、発光性の化合物および高分子化合物(I')を含む発光層を一層備えて構成される有機EL素子の製造において、該発光層は、基板上に設けられた陽極上に、通常以下のようにして形成される。まず、高分子化合物(1)、発光性の化合物および高分子化合物(I')を溶解した溶液を調製する。上記溶液の調製に用いる溶媒としては、特に限定されないが、例えば、クロホルム、塩化メチレン、ジクロロエタン等の塩素系溶媒、テトラヒドロフラン、アニソール等のエーテル系溶媒、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素系溶媒、アセトン、メチルエチルケトン等のケトン系溶媒、酢酸エチル、酢酸ブチル、エチルセルソルブアセテート等のエステル系溶媒などが用いられる。次いで、このように調製した溶液を、スピンコート法、キャストイング法、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、ワイアーバーコート法、ディップコート法、スプレーコート法

、スクリーン印刷法、フレキソ印刷法、オフセット印刷法、インクジェットプリント法等の湿式成膜法などにより基板上に成膜する。用いる化合物および成膜条件などに依存するが、例えば、スピコート法やディップコート法の場合には、上記溶液は、高分子化合物(I) 100質量部に対して、発光性の化合物を0.5～30質量部の量で、高分子化合物(I') 10～200質量部の量で、溶媒を1000～20000質量部の量で含むことが好ましい。

[0212] このようにして形成された発光層の上に陰極を設ければ、実施の形態6の有機EL素子が得られる。

[0213] なお、実施の形態6に用いられる基板としては、上記発光材料の発光波長に対して透明な絶縁性基板が好適に用いられ、具体的には、ガラスのほか、PET(ポリエチレンテレフタレート)、ポリカーボネート等の透明プラスチックなどが用いられる。

[0214] また、実施の形態6に用いられる陽極材料としては、例えば、ITO(酸化インジウムスズ)、酸化錫、酸化亜鉛、ポリチオフェン、ポリピロール、ポリアニリン等の導電性高分子など、公知の透明導電材料が好適に用いられる。この透明導電材料によって形成された電極の表面抵抗は、 $1 \sim 50 \Omega / \square$ (オーム/スクエア)であることが好ましい。陽極の厚さは50～300nmであることが好ましい。

[0215] また、実施の形態6に用いられる陰極材料としては、例えば、Li、Na、K、Cs等のアルカリ金属; Mg、Ca、Ba等のアルカリ土類金属; Al; MgAg合金; AlLi、AlCa等のAlとアルカリ金属またはアルカリ土類金属との合金など、公知の陰極材料が好適に用いられる。陰極の厚さは、好ましくは10nm～1 μ m、より好ましくは50～500nmであることが望ましい。アルカリ金属、アルカリ土類金属などの活性の高い金属を使用する場合には、陰極の厚さは、好ましくは0.1～100nm、より好ましくは0.5～50nmであることが望ましい。また、この場合には、上記陰極金属を保護する目的で、この陰極上に、大気に対して安定な金属層が積層される。上記金属層を形成する金属として、例えば、Al、Ag、Au、Pt、Cu、Ni、Crなどが挙げられる。上記金属層の厚さは、好ましくは10nm～1 μ m、より好ましくは50～500nmであることが望ましい。

[0216] また、上記陽極材料の成膜方法としては、例えば、電子ビーム蒸着法、スパッタリング法、化学反応法、コーティング法などが用いられ、上記陰極材料の成膜方法として

は、例えば、抵抗加熱蒸着法、電子ビーム蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法などが用いられる。

[0217] <実施の形態7>

本発明の有機EL素子(実施の形態7)では、陽極と陰極との間に、特定の高分子化合物(II)および実施の形態6に示した発光性の化合物を含む発光層が一層備えられている。この場合、発光層は、高分子化合物(II)100質量部に対して、上記発光性の化合物を好ましくは0.1～50質量部、より好ましくは0.5～30質量部の量で含むことが望ましい。このように、キャリア輸送性およびホール輸送性を併せ持つ高分子化合物(II)および発光性の化合物から発光層を形成すれば、他の有機材料の層を設けない場合でも、高い発光効率を有する有機EL素子を作製できる。

[0218] 上記発光層は、基板上に設けられた陽極上に、通常以下のようにして形成される。まず、高分子化合物(II)および上記発光性の化合物を溶解した溶液を調製する。上記溶液の調製に用いる溶媒については、実施の形態5と同様である。調製した溶液の成膜方法については、実施の形態6と同様である。用いる化合物および成膜条件などに依存するが、例えば、スピンコート法やディップコート法の場合には、上記溶液は、高分子化合物(II)100質量部に対して、発光性の化合物を0.5～30質量部の量で、溶媒を1000～20000質量部の量で含むことが好ましい。

[0219] このようにして形成された発光層の上に陰極を設ければ、実施の形態7の有機EL素子が得られる。

[0220] また、実施の形態7に用いられる基板、陽極材料、陰極材料、ならびに陽極材料および陰極材料の成膜方法については、実施の形態6と同じである。

[0221] <実施の形態8>

本発明の有機EL素子(実施の形態8)では、陽極と陰極との間に、特定の高分子化合物(III)を含む発光層が一層備えられている。キャリア輸送性、燐光発光性およびホール輸送性を併せ持つ高分子化合物(III)を用いて発光層を形成する場合は、他の有機材料の層を設けない場合でも、高い発光効率を有する有機EL素子を作製できる。さらに、実施の形態8では、高分子化合物(III)のみから発光層を構成できるため、製造工程がより簡略化できる利点もある。

[0222] 上記発光層は、基板上に設けられた陽極上に、通常以下のようにして形成される。まず、高分子化合物(III)を溶解した溶液を調製する。上記溶液の調製に用いる溶媒については、実施の形態6と同様である。調製した溶液の成膜方法については、実施の形態6と同様である。用いる化合物および成膜条件などに依存するが、例えば、スピンコート法やディップコート法の場合には、上記溶液は、高分子化合物(III) 100質量部に対して、溶媒を1000～20000質量部の量で含むことが好ましい。

[0223] このようにして形成された発光層の上に陰極を設ければ、実施の形態8の有機EL素子が得られる。

[0224] また、実施の形態8に用いられる基板、陽極材料、陰極材料、ならびに陽極材料および陰極材料の成膜方法については、実施の形態6と同じである。

[0225] <実施の形態9>

本発明の有機EL素子(実施の形態9)では、陽極と陰極との間に、特定の高分子化合物(IV)および実施の形態6に示した発光性の化合物を含む発光層が一層備えられている。この場合、発光層は、高分子化合物(IV) 100質量部に対して、上記発光性の化合物を好ましくは0.1～50質量部、より好ましくは0.5～30質量部の量で含むことが望ましい。このように、キャリア輸送性、電子輸送性およびホール輸送性を併せ持つ高分子化合物(IV)および発光性の化合物から発光層を形成すれば、他の有機材料の層を設けない場合でも、高い発光効率を有する有機EL素子を作製できる。

[0226] 上記発光層は、基板上に設けられた陽極上に、通常以下のようにして形成される。まず、高分子化合物(IV)および上記発光性の化合物を溶解した溶液を調製する。上記溶液の調製に用いる溶媒については、実施の形態6と同様である。調製した溶液の成膜方法については、実施の形態6と同様である。用いる化合物および成膜条件などに依存するが、例えば、スピンコート法やディップコート法の場合には、上記溶液は、高分子化合物(IV) 100質量部に対して、発光性の化合物を0.5～30質量部の量で、溶媒を1000～20000質量部の量で含むことが好ましい。

[0227] このようにして形成された発光層の上に陰極を設ければ、実施の形態9の有機EL素子が得られる。

[0228] また、実施の形態9に用いられる基板、陽極材料、陰極材料、ならびに陽極材料および陰極材料の成膜方法については、実施の形態6と同じである。

[0229] <実施の形態10>

本発明の有機EL素子(実施の形態10)では、陽極と陰極との間に、特定の高分子化合物(V)を含む発光層が一層備えられている。キャリア輸送性とホール輸送性と電子輸送性と燐光発光性とを併せ持つ高分子化合物(V)を用いて発光層を形成する場合は、他の有機材料の層を設けない場合でも、高い発光効率を有する有機EL素子を作製できる。さらに、実施の形態10では、高分子化合物(V)のみから発光層を構成できるため、製造工程がより簡略化できる利点もある。

[0230] 上記発光層は、基板上に設けられた陽極上に、通常以下のようにして形成される。まず、高分子化合物(V)を溶解した溶液を調製する。上記溶液の調製に用いる溶媒については、実施の形態6と同様である。調製した溶液の成膜方法については、実施の形態6と同様である。用いる化合物および成膜条件などに依存するが、例えば、スピンコート法やディップコート法の場合には、上記溶液は、高分子化合物(V)100質量部に対して、溶媒を1000～20000質量部の量で含むことが好ましい。

[0231] このようにして形成された発光層の上に陰極を設ければ、実施の形態10の有機EL素子が得られる。

[0232] また、実施の形態10に用いられる基板、陽極材料、陰極材料、ならびに陽極材料および陰極材料の成膜方法については、実施の形態6と同じである。

[0233] <実施の形態11>

本発明に係る有機EL素子は、陽極と陰極との間に、実施の形態6～10で説明した発光層とともに、他の有機層を備えて構成される有機EL素子であってもよい(実施の形態11)。

[0234] 他の有機層としては、ホール輸送層、電子輸送層、ホールブロック層、バッファ層などが挙げられる。これらの有機層を設けることにより、発光効率をさらに高めることもできる。

[0235] 本発明に係る有機EL素子(実施の形態11)の構成の一例を図1に示す。図1では、透明基板(1)上に設けた陽極(2)および陰極(6)の間に、ホール輸送層(3)、実施

の形態1または2で説明した発光層(4)および電子輸送層(5)を、この順で設けている。

[0236] また、実施の形態11では、例えば、陽極(2)と陰極(6)の間に、1)ホール輸送層／上記発光層、2)上記発光層／電子輸送層のいずれかを設けてもよい。

[0237] 上記の各有機層は、バインダとして高分子材料などを混合して、形成してもよい。上記高分子材料としては、例えば、ポリメチルメタクリレート、ポリカーボネート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキサイドなどが挙げられる。

[0238] また、上記ホール輸送層および電子輸送層に用いられるホール輸送性の化合物および電子輸送性の化合物は、それぞれ単独で各層を形成しても、機能の異なる材料を混合して、各層を形成していてもよい。

[0239] 上記ホール輸送層を形成するホール輸送性の化合物としては、例えば、TPD(N, N'-ジメチル-N, N'-(3-メチルフェニル)-1, 1'-ビフェニル-4, 4'ジアミン); α -NPD(4, 4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル); m-MTDATA(4, 4', 4''-トリス(3-メチルフェニルフェニルアミノ)トリフェニルアミン)等の低分子トリフェニルアミン誘導体; ポリビニルカルバゾール; 上記トリフェニルアミン誘導体に重合性官能基を導入して重合した高分子化合物; ポリパラフェニレンビニレン、ポリジアルキルフルオレン等の蛍光発光性高分子化合物などが挙げられる。上記高分子化合物としては、例えば、特開平8-157575号公報に開示されているトリフェニルアミン骨格の高分子化合物などが挙げられる。上記ホール輸送性の化合物は、1種単独でも、2種以上を混合して用いてもよく、異なるホール輸送性の化合物を積層して用いてもよい。ホール輸送層の厚さは、ホール輸送層の導電率などに依存するが、通常、好ましくは1nm~5 μ m、より好ましくは5nm~1 μ m、特に好ましくは10nm~500nmであることが望ましい。

[0240] 上記電子輸送層を形成する電子輸送性の化合物としては、例えば、Alq3(アルミニウムトリスキノリノレート)等のキノリノール誘導体金属錯体、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、トリアジン誘導体、トリアリールボラン誘導体等の低分子化合物; 上記の低分子化合物に重合性置換基を導入して重合した高分子化合物を挙げることができる。上記高分子化合物としては、例えば、特開平1

0-1665号公報に開示されているポリPBDなどが挙げられる。上記電子輸送性の化合物は、1種単独でも、2種以上を混合して用いてもよく、異なる電子輸送性の化合物を積層して用いてもよい。電子輸送層の厚さは、電子輸送層の導電率などに依存するが、通常、好ましくは1nm～5 μ m、より好ましくは5nm～1 μ m、特に好ましくは10nm～500nmであることが望ましい。

[0241] また、上記発光層の陰極側に隣接して、ホールが発光層を通過することを抑え、発光層内でホールと電子とを効率よく再結合させる目的で、ホールブロック層が設けられていてもよい。上記ホールブロック層の形成には、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、フェナントロリン誘導体などの公知の材料が用いられる。

[0242] また、陽極とホール輸送層との間、または陽極と陽極に隣接して積層される有機層との間に、ホール注入において注入障壁を緩和するために、バッファ層が設けられていてもよい。上記バッファ層を形成するためには、銅フタロシアニン、ポリエチレンジオキシチオフェンとポリスチレンスルホン酸との混合物(PEDOT:PSS)などの公知の材料が用いられる。

[0243] さらに、陰極と電子輸送層との間、または陰極と陰極に隣接して積層される有機層との間に、電子注入効率を向上するために、厚さ0.1～10nmの絶縁層が設けられていてもよい。上記絶縁層を形成するためには、フッ化リチウム、フッ化ナトリウム、フッ化マグネシウム、酸化マグネシウム、アルミナなどの公知の材料が用いられる。

[0244] 上記のホール輸送層および電子輸送層の成膜方法としては、例えば、抵抗加熱蒸着法、電子ビーム蒸着法、スパッタリング法等の乾式成膜法のほか、スピンコート法、キャストイング法、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、ワイアーバーコート法、ディップコート法、スプレーコート法、スクリーン印刷法、フレキソ印刷法、オフセット印刷法、インクジェットプリント法等の湿式成膜法などを用いることができる。低分子化合物の場合は、乾式成膜法が好適に用いられ、高分子化合物の場合は、湿式成膜法が好適に用いられる。

[0245] <用途>

本発明に係る有機EL素子は、公知の方法で、マトリックス方式またはセグメント方式による画素として画像表示装置に好適である。また、上記有機EL素子は、画素を

形成せずに、面発光光源としても好適である。

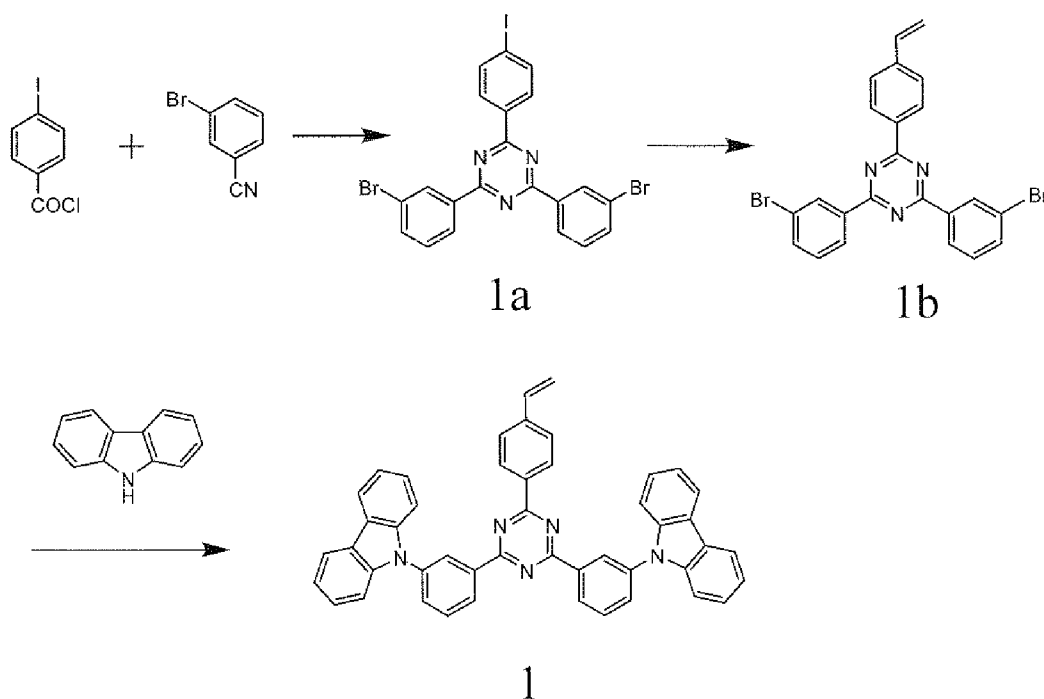
[0246] 本発明に係る有機EL素子は、具体的には、ディスプレイ、バックライト、電子写真、照明光源、記録光源、露光光源、読み取り光源、標識、看板、インテリア、光通信システムなどに好適である。

実施例

[0247] 以下、実施例に基づいて本発明をさらに具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

[0248] [合成例1]

[0249] [化39]



…スキーム 1

[0250] 上記スキーム1を参照しながら説明する。

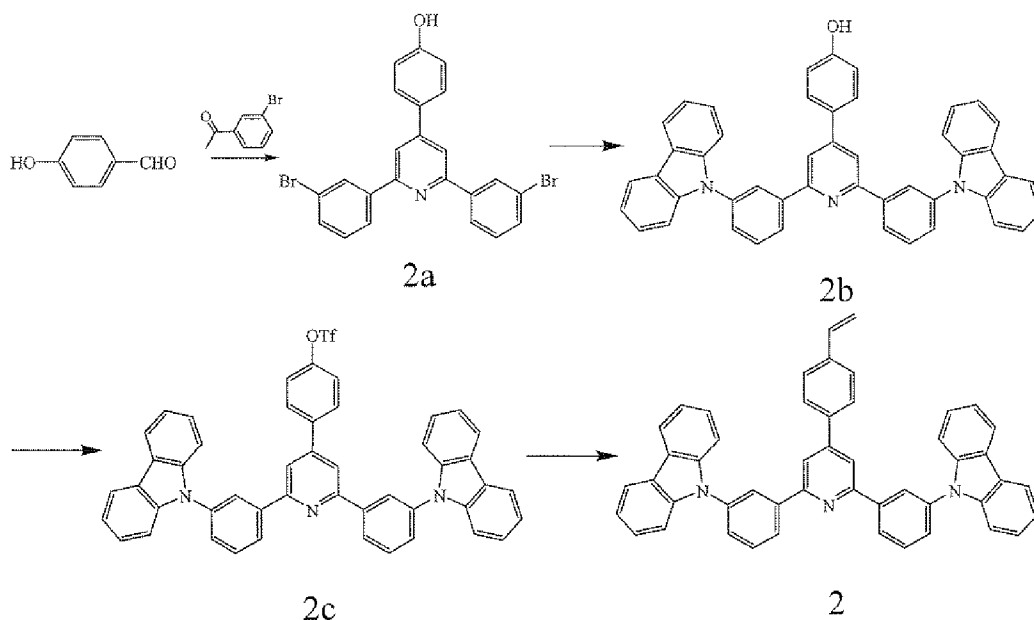
[0251] 4-ヨードベンゾイルクロリド10mmolと3-ブロモベンゾニトリル30mmolとを脱水クロロホルム50mLに溶解し、塩化アルミニウム10mmolとアンモニウムクロリド40mmolを加え、50℃で加熱攪拌を24時間行った。室温まで冷却した後、10%塩酸に注ぎ入れ、1時間攪拌した。クロロホルムを用いて抽出し、カラムクロマトグラフィーにより精製を行い、ハロゲン化トリアジン誘導体(1a)を得た。

[0252] 得られたハロゲン化トリアジン誘導体(1a) 3mmol、ビニルホウ酸2. 8mmol、およびテトラブチルアンモニウムブロミド1. 5mmolをトルエン45mLに溶解した。そこに重合禁止剤を少量加えた後、2M炭酸カリウム水溶液30mLを加えた。テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム0. 15mmolを加え、加熱還流を3時間行った。室温まで冷却した後、酢酸エチルを用いて抽出し、カラムクロマトグラフィーによって精製し、トリアジンのハロゲン化ビニルモノマー(1b)を得た。

[0253] 得られたハロゲン化ビニルモノマー(1b) 2. 5mmol、カルバゾール5. 5mmolおよびターシャルブトキシナトリウム8mmolをトルエン50mLに溶解し、重合禁止剤を少量加えた。酢酸パラジウム0. 13mmolとトリ(ターシャルブチル)ホスフィン0. 5mmolとを加えた後、加熱還流を2時間行った。酢酸エチルを用いて抽出し、カラムクロマトグラフィーによって精製し、カルバゾリル基導入トリアジンビニルモノマー(1)を得た。

[0254] [合成例2]

[0255] [化40]



…スキーム2

[0256] 上記スキーム2を参照しながら説明する。

[0257] 3'-ブromoアセトフェノン62. 8mmol、4-ヒドロキシベンズアルデヒド31. 4mmol、酢酸アンモニウム0. 4molに酢酸80mLを加え、8時間加熱還流した。純水を加え、反応を停止し、クロロホルムを用いて抽出し、カラムクロマトグラフィーにより精製を

行い、ハロゲン化ピリジン誘導体(2a)を得た。

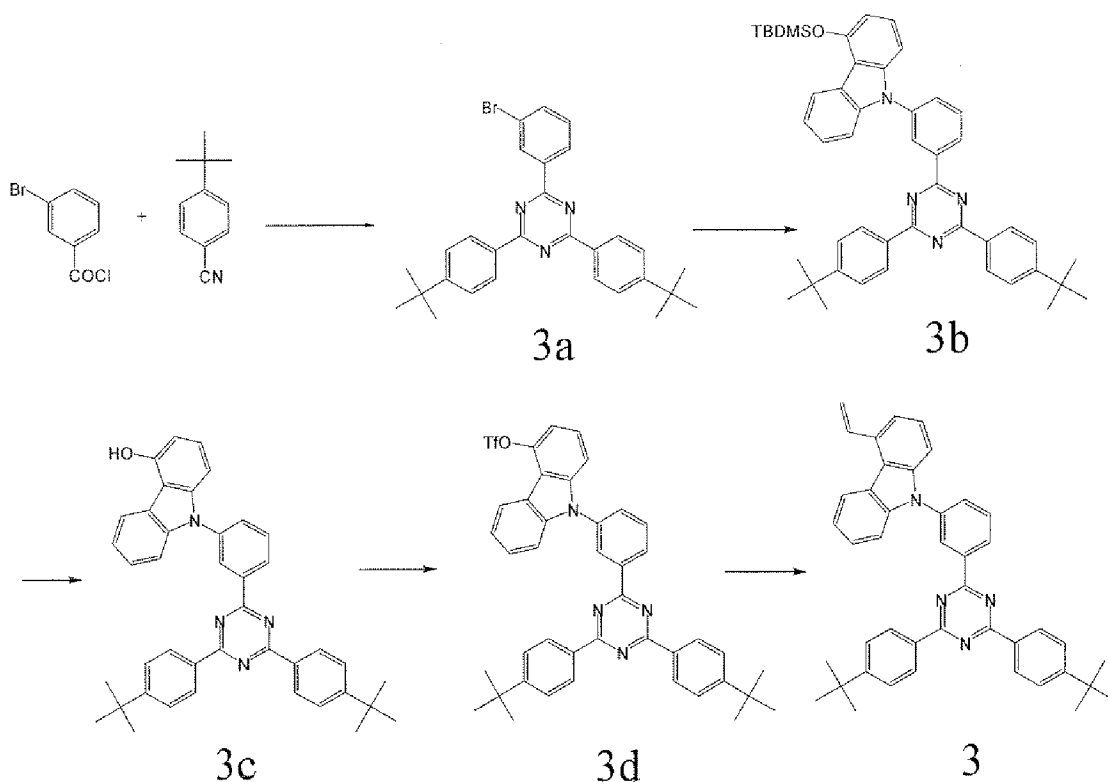
[0258] ハロゲン化ピリジン誘導体(2a) 10mmol、カルバゾール22mmolおよびターシャルブトキシナトリウム8mmolをトルエン50mLに溶解した。酢酸パラジウム0.13mmolとトリ(ターシャルブチル)ホスフィン0.5mmolを加えた後、加熱還流を2時間行った。酢酸エチルを用いて抽出し、カラムクロマトグラフィーによって精製し、カルバゾリル基導入ピリジン誘導体(2b)を得た。

[0259] 得られたカルバゾリル基導入ピリジン誘導体(2b) 9mmolをピリジン30mLに溶解し、無水トリフルオロスルホン酸10mmolを氷浴下で加えた。室温で14時間攪拌した後、希塩酸を用いて反応を停止した。酢酸エチルを用いて抽出し、カラムクロマトグラフィーによって精製し、カルバゾリル基導入ピリジン誘導体(2c)を得た。

[0260] カルバゾリル基導入ピリジン誘導体(2c) 6mmol、ビニルホウ酸6.6mmol、およびテトラブチルアンモニウムブロミド3mmolをトルエン75mLに溶解した。そこに重合禁止剤を少量加えた後、2M炭酸カリウム水溶液50mLを加えた。テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム0.3mmolを加え、加熱還流を3時間行った。室温まで冷却した後、酢酸エチルを用いて抽出し、カラムクロマトグラフィーによって精製し、カルバゾリル基導入ピリジンビニルモノマー(2)を得た。

[0261] [合成例3]

[0262] [化41]



…スキーム 3

[0263] 上記スキーム3を参照しながら説明する。

[0264] 3-ブロモベンゾイルクロリド10mmolと4-tert-ブチルベンゾニトリル30mmolとを脱水クロロホルム50mLに溶解し、塩化アルミニウム10mmolとアンモニウムクロリド40mmolを加え、50℃で加熱攪拌を24時間行った。室温まで冷却した後、10%塩酸に注ぎ入れ、1時間攪拌した。クロロホルムを用いて抽出し、カラムクロマトグラフィーにより精製を行い、ハロゲン化トリアジン誘導体(3a)を得た。

[0265] 得られたハロゲン化トリアジン誘導体(3a)3mmol、Si基で水酸基を保護したカルバゾール3.3mmolおよびターシャルブトキシナトリウム8mmolをトルエン50mLに溶解した。酢酸パラジウム0.13mmolとトリ(ターシャルブチル)ホスフィン0.5mmolを加えた後、加熱還流を2時間行った。酢酸エチルを用いて抽出し、カラムクロマトグラフィーによって精製し、カルバゾリル基導入トリアジン誘導体(3b)を得た。

[0266] カルバゾリル基導入トリアジン誘導体(3b)2.8mmolをテトラヒドロフラン20mLに溶解し、テトラブチルアンモニウムフルオリド9mmolを氷浴下に加えた。室温で1時間攪拌した後、酢酸エチルを用いて抽出し、カラムクロマトグラフィーによって精製し

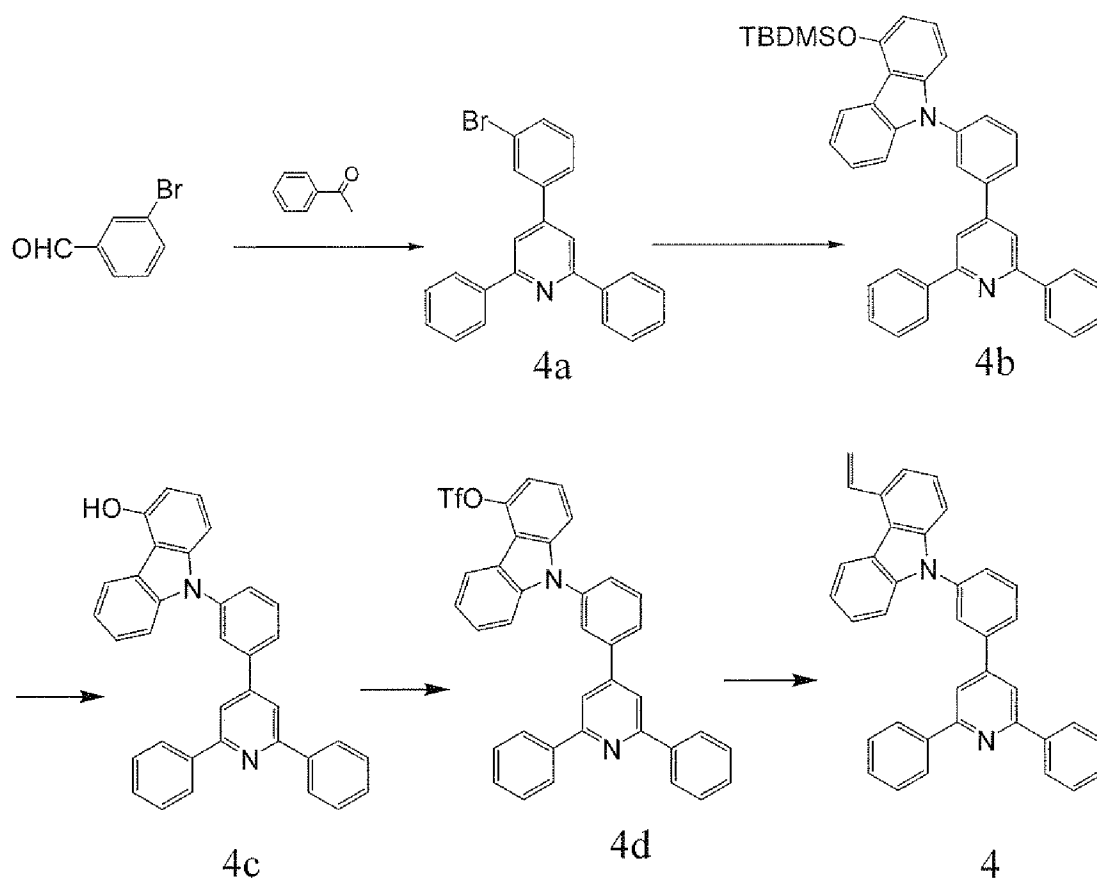
、カルバゾリル基導入トリアジン誘導体(3c)を得た。

[0267] 得られたカルバゾリル基導入トリアジン誘導体(3c) 2.7mmolをピリジン10mLに溶解し、無水トリフルオロスルホン酸3mmolを氷浴下で加えた。室温で14時間攪拌した後、希塩酸を用いて反応を停止した。酢酸エチルを用いて抽出し、カラムクロマトグラフィーによって精製し、カルバゾリル基導入トリアジン誘導体(3d)を得た。

[0268] カルバゾリル基導入トリアジン誘導体(3d) 2.5mmol、ビニルホウ酸3mmol、およびテトラブチルアンモニウムブロミド1.3mmolをトルエン45mLに溶解した。そこに重合禁止剤を少量加えた後、2M炭酸カリウム水溶液30mLを加えた。テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム0.13mmolを加え、加熱還流を3時間行った。室温まで冷却した後、酢酸エチルを用いて抽出し、カラムクロマトグラフィーによって精製し、カルバゾリル基導入トリアジンビニルモノマー(3)を得た。

[0269] [合成例4]

[0270] [化42]



…スキーム 4

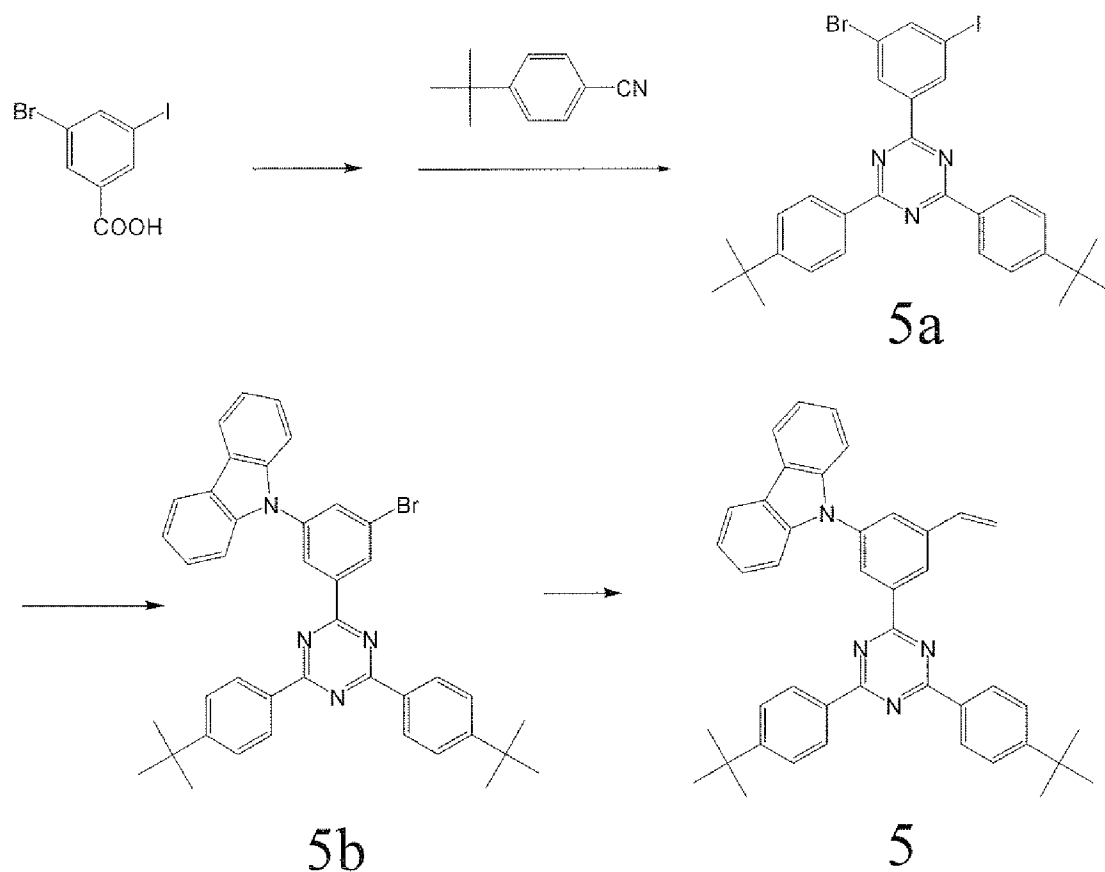
[0271] 上記スキーム4を参照しながら説明する。

[0272] アセトフェノン62.8mmol、3-ブロモベンズアルデヒド31.4mmol、酢酸アンモニウム0.4molに酢酸80mLを加え、8時間加熱還流した。純水を加え、反応を停止し、クロロホルムを用いて抽出し、カラムクロマトグラフィーにより精製を行い、ハロゲン化ピリジン誘導体(4a)を得た。

[0273] ハロゲン化ピリジン誘導体(4a)を用いた他は、合成例3と同様に合成を行い、カルbazil基導入ピリジンビニルモノマー(4)を得た。

[0274] [合成例5]

[0275] [化43]



…スキーム5

[0276] 上記スキーム5を参照しながら説明する。

[0277] 3-ブロモ-5-ヨード安息香酸10mmolをジクロロエタン100mLに溶解し、塩化チオニル10mLを加え、2時間加熱還流した。反応液から溶媒を減圧下で留去した後、4-tert-ブチルベンゾニトリル30mmolとクロロホルム75mLを加えた。次いで、塩

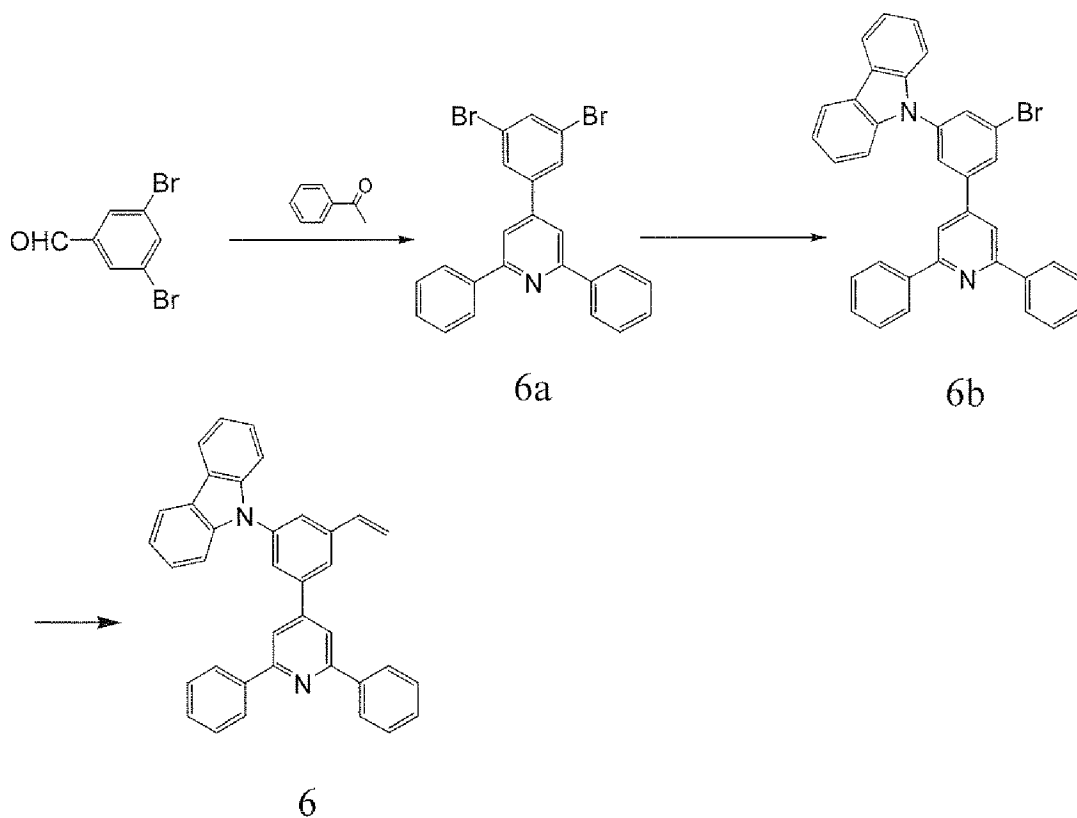
化アルミニウム10mmolとアンモニウムクロリド40mmolを加え、50℃で加熱攪拌を24時間行った。室温まで冷却した後、10%塩酸に注ぎ入れ、1時間攪拌した。クロロホルムを用いて抽出し、カラムクロマトグラフィーにより精製を行い、ジハロゲン化トリアジン誘導体(5a)を得た。

[0278] ジハロゲン化トリアジン誘導体(5a) 3mmolとカルバゾール3mmolをジメチルスルホキシド15mLに溶解し、炭酸カリウム9mmol、よう化銅0.15mmol、L-プロリン0.6mmolを加え、80℃で6時間反応させた。反応溶液を室温まで冷却し、セライトろ過を行い、クロロホルムを用いて抽出した。カラムクロマトグラフィーにより精製し、カルバゾール導入ハロゲン化トリアジン誘導体(5b)を得た。

[0279] 得られたカルバゾール導入トリアジン誘導体に、ビニルホウ酸と鈴木カップリングすることにより、カルバゾリル基導入トリアジンビニルモノマー(5)を得た。

[0280] [合成例6]

[0281] [化44]



[0282] 上記スキーム6を参照しながら説明する。

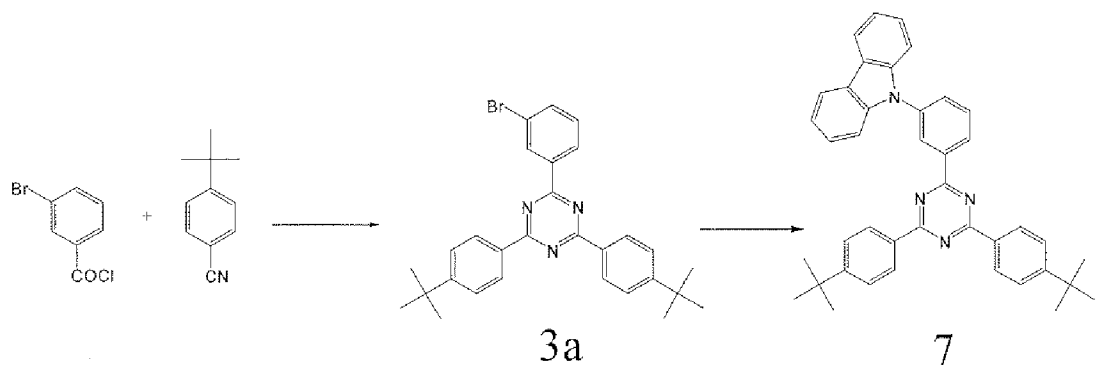
[0283] アセトフェノン62.8mmol、3, 5—ジブロモベンズアルデヒド31.4mmol、酢酸アンモニウム0.4molに酢酸80mLを加え、8時間加熱還流した。純水を加え、反応を停止し、クロロホルムを用いて抽出し、カラムクロマトグラフィーにより精製を行い、ジハロゲン化ピリジン誘導体(6a)を得た。

[0284] ジハロゲン化ピリジン誘導体(6a)10mmolとカルバゾール10mmolをジメチルスルホキシド30mLに溶解し、炭酸セシウム30mmol、よう化銅0.5mmol、シクロヘキサレンジアミン2mmolを加え、80℃で6時間反応させた。反応溶液を室温まで冷却し、セライトろ過を行い、クロロホルムを用いて抽出した。カラムクロマトグラフィーにより精製し、カルバゾール導入ハロゲン化ピリジン誘導体(6b)を得た。

[0285] 得られたカルバゾール導入ピリジン誘導体(6b)に、ビニルホウ酸と鈴木カップリングすることにより、カルバゾリル基導入ピリジンビニルモノマー(6)を得た。

[0286] [合成例7]

[0287] [化45]



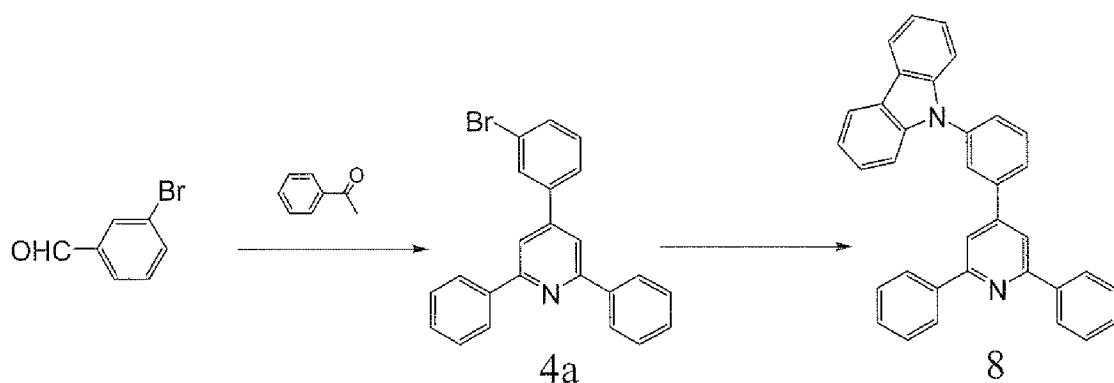
…スキーム7

[0288] 上記スキーム7を参照しながら説明する。

[0289] 中間体3aまでは、合成例3と同様に合成を行った。3aとカルバゾールとを反応させ、目的とする低分子化合物7を得た。

[0290] [合成例8]

[0291] [化46]



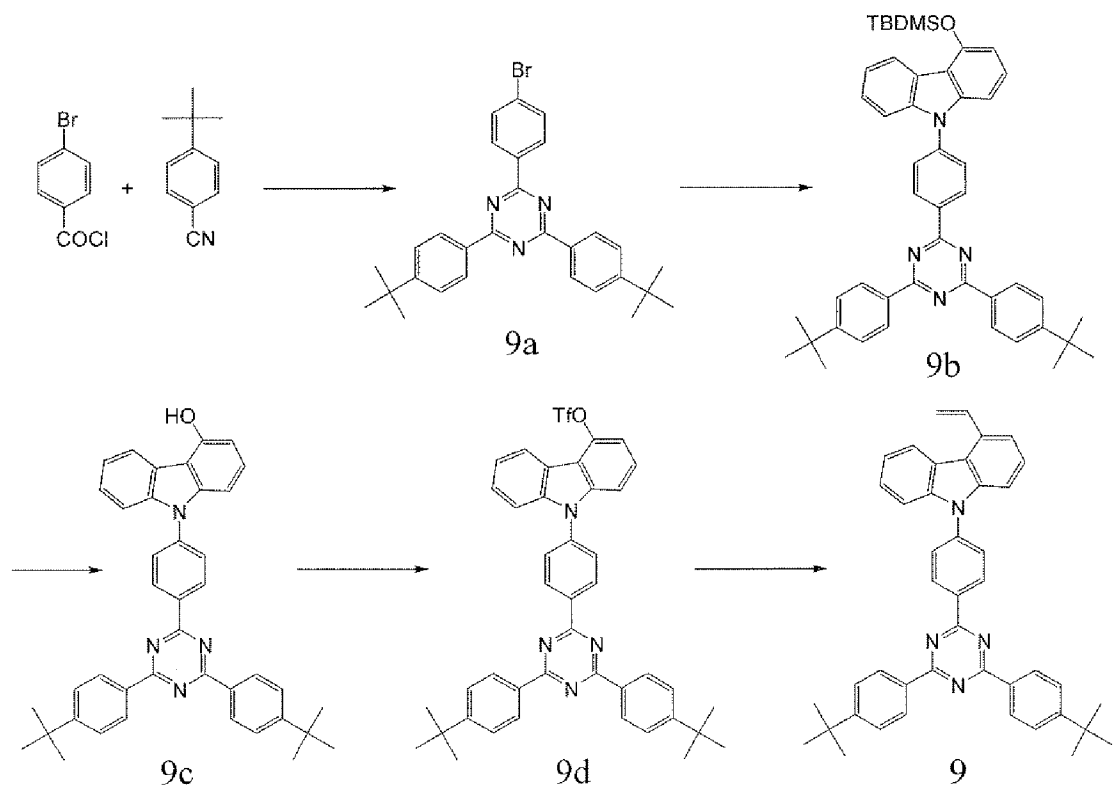
…スキーム 8

[0292] 上記スキーム8を参照しながら説明する。

[0293] 中間体4aまでは、合成例4と同様に合成を行った。4aとカルバゾールとを反応させ、目的とする低分子化合物8を得た。

[0294] [合成例9]

[0295] [化47]



…スキーム 9

[0296] 上記スキーム9を参照しながら説明する。

[0297] 合成例3において、4-ブロモベンゾイルクロリドの代わりに3-ブロモベンゾイルク

ロリドを用いた以外は合成例3と同様にして、カルバゾリル基導入トリアジンビニルモノマー(9)を得た。

[0298] [実施例1]高分子化合物(I-1)の合成

密閉容器に、合成例1で合成したカルバゾリル基導入トリアジンビニルモノマー(1) 200mgを入れ、さらに脱水トルエン3.2mLを加えた。次いで、ラジカル重合開始剤であるV-601(和光純薬工業(株)製)のトルエン溶液(0.1M、34 μ L)を加え、凍結脱気操作を5回繰り返した。真空のまま密閉し、60°Cで60時間攪拌した。反応後、反応液をアセトン100mL中に滴下し、沈殿を得た。さらにトルエン-アセトンによる再沈殿操作を2回繰り返した後、50°Cで一晩乾燥し、高分子化合物(I-1)を得た。高分子化合物(I-1)の重量平均分子量(M_w)、分子量分布指数(M_w/M_n)を表1に示す。

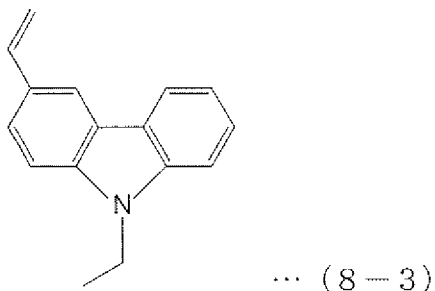
[0299] [実施例2～6]高分子化合物(I-2)～(I-6)の合成

合成例1で合成した化合物(1)の代わりに、合成例2～6で合成したカルバゾリル基導入トリアジンビニルモノマー(2)、カルバゾリル基導入トリアジンビニルモノマー(3)、カルバゾリル基導入ピリジンビニルモノマー(4)、カルバゾリル基導入トリアジンビニルモノマー(5)およびカルバゾリル基導入ピリジンビニルモノマー(6)をそれぞれ用いた以外は高分子化合物(I-1)と同様にして、高分子化合物(I-2)～(I-6)を得た。得られた高分子化合物の重量平均分子量などを表1に示す。

[0300] [実施例7]高分子化合物(II-1)の合成

密閉容器に、合成例1で合成した化合物(1) 50mgおよび下記式(8-3)で表されるホール輸送性の重合性化合物を100mg入れ、さらに脱水トルエン2.6mLを加えた。次いでV-601(和光純薬工業(株)製)のトルエン溶液(0.1M、53 μ L)を加え、凍結脱気操作を5回繰り返した。真空のまま密閉し、60°Cで60時間攪拌した。反応後、反応液をアセトン100mL中に滴下し、沈殿を得た。さらにトルエン-アセトンによる再沈殿操作を2回繰り返した後、50°Cで一晩乾燥し、高分子化合物(II-1)を得た。高分子化合物(II-1)の重量平均分子量(M_w)、分子量分布指数(M_w/M_n)を表1に示す。ICP元素分析および¹³C-NMR測定の結果から見積った高分子化合物におけるm/(m+n)の値は、0.64であった。

[0301] [化48]



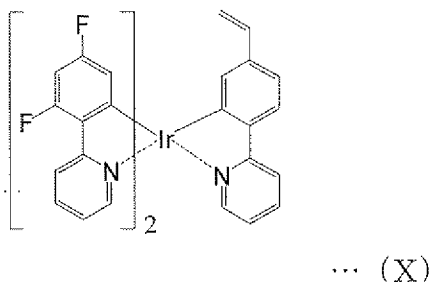
[0302] [実施例8～12]高分子化合物(II-2)～(II-6)の合成

高分子化合物(II-2)～(II-6)の合成は、合成例1で合成した化合物(1)の代わりに、合成例2～6で合成した化合物(2)～(6)をそれぞれ用いた以外は、高分子化合物(II-1)と同様にして高分子化合物(II-2)～(II-6)を得た。得られた高分子化合物の重量平均分子量などを表1に示す。

[0303] [実施例13]高分子化合物(III-1)の合成

密閉容器に、合成例1で合成した化合物(1) 60mg、ホール輸送性の重合性化合物(8-3) 120mgおよび下記式(X)で表される燐光発光性の重合性化合物40mg入れ、さらに脱水トルエン3.1mLを加えた。次いでV-601(和光純薬工業(株)製)のトルエン溶液(0.1M、64 μ L)を加え、凍結脱気操作を5回繰り返した。真空のまま密閉し、60℃で60時間攪拌した。反応後、反応液をアセトン100mL中に滴下し、沈殿を得た。さらにトルエン-アセトンによる再沈殿操作を2回繰り返した後、50℃で一晩乾燥し、高分子化合物(III-1)を得た。高分子化合物(III-1)の重量平均分子量(Mw)、分子量分布指数(Mw/Mn)を表1に示す。ICP元素分析および¹³C-NMR測定の結果から見積った高分子化合物におけるm/(m+n)の値は、0.68であり、x/(x+y)の値は、0.16であった。

[0304] [化49]



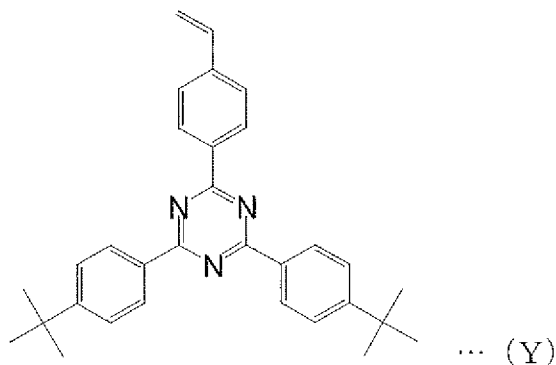
[0305] [実施例14～18]高分子化合物(III-2)～(III-6)の合成

高分子化合物(III-2)～(III-6)の合成は、合成例1で合成した化合物(1)の代わりに、合成例2～6で合成した化合物(2)～(6)をそれぞれ用いた以外は、高分子化合物(III-1)と同様にして高分子化合物(III-2)～(III-6)を得た。得られた高分子化合物(III-2)～(III-6)の重量平均分子量などは表1に示す。

[0306] [実施例19]高分子化合物(IV-1)の合成

密閉容器に、合成例1で合成した化合物(1) 50mg、ホール輸送性の重合性化合物(8-3) 200mgおよび下記式(Y)で表される電子輸送性の重合性化合物を50mg入れ、さらに脱水トルエン5.5mLを加えた。次いでV-601(和光純薬工業(株)製)のトルエン溶液(0.1M、110 μ L)を加え、凍結脱気操作を5回繰り返した。真空のまま密閉し、60°Cで60時間攪拌した。反応後、反応液をアセトン100mL中に滴下し、沈殿を得た。さらにトルエン-アセトンによる再沈殿操作を2回繰り返した後、50°Cで一晩乾燥し、高分子化合物(IV-1)を得た。高分子化合物(IV-1)の重量平均分子量(Mw)、分子量分布指数(Mw/Mn)を表1に示す。ICP元素分析および¹³C-NMR測定の結果から見積った高分子化合物におけるm/(m+n)の値は、0.68であり、x/(x+y)の値は、0.16であった。

[0307] [化50]



[0308] [実施例20～24]高分子化合物(IV-2)～(IV-6)の合成

高分子化合物(IV-2)～(IV-6)の合成は、合成例1で合成した化合物(1)の代わりに、合成例2～6で合成した化合物(2)～(6)を用いた以外は、高分子化合物(IV-1)と同様にして高分子化合物(IV-2)～(IV-6)を得た。得られた高分子化合物(IV-2)～(IV-6)の重量平均分子量などは表1に示す。

[0309] [表1]

表 1

	高分子化合物	重量平均分子量 (Mw)	分子量分布指数 (Mw/Mn)
実施例 1	I-1	73,000	1.97
実施例 2	I-2	68,000	1.84
実施例 3	I-3	68,000	1.48
実施例 4	I-4	57,000	1.56
実施例 5	I-5	54,000	2.00
実施例 6	I-6	61,000	1.82
実施例 7	II-1	68,000	2.12
実施例 8	II-2	56,000	1.79
実施例 9	II-3	69,000	1.88
実施例10	II-4	66,000	1.94
実施例11	II-5	62,000	1.64
実施例12	II-6	59,000	1.56
実施例13	III-1	63,000	1.59
実施例14	III-2	68,000	1.64
実施例15	III-3	53,000	1.87
実施例16	III-4	71,000	1.84
実施例17	III-5	62,000	1.55
実施例18	III-6	58,000	1.47
実施例19	IV-1	70,000	1.81
実施例20	IV-2	75,000	1.95
実施例21	IV-3	67,000	2.04
実施例22	IV-4	59,000	1.65
実施例23	IV-5	71,000	1.75
実施例24	IV-6	69,000	1.69

[0310] [実施例25]有機EL素子1の作製およびその発光輝度の測定

まず、高分子化合物(I')を以下のようにして合成した。密閉容器に、ホール輸送性の重合性化合物(8-3) 200mgを入れ、さらに脱水トルエン4.5mLを加えた。次いでV-601(和光純薬工業(株)製)のトルエン溶液(0.1M、90 μ L)を加え、凍結脱気操作を5回繰り返した。真空のまま密閉し、60°Cで60時間攪拌した。反応後、反応液をアセトン100mL中に滴下し、沈殿を得た。さらにトルエン-アセトンによる再沈殿操作を2回繰り返した後、50°Cで一晩乾燥し、高分子化合物(I')を得た。

[0311] 次に、有機EL素子を以下の手順により作製した。まず、25mm角のガラス基板の一方の面に、幅4mmのITO(酸化インジウム錫)電極(陽極)が、ストライプ状に2本形成されたITO付き基板(ニッポ電機(株)製)を用いて、該基板上に、ポリ(3,4-エチレンジオキシチオフェン)・ポリスチレンスルホン酸(バイエル(株)製、商品名「バイト

ロンP」)を、回転数3500rpm、塗布時間40秒の条件で、スピコート法により塗布した。その後、真空乾燥器で減圧下、60℃で2時間乾燥し、陽極バッファ層を形成した。得られた陽極バッファ層の膜厚は、約50nmであった。次に、高分子化合物(I-1) 40.5mg、燐光発光性の化合物(E-38) 9mg、および高分子化合物(I') 40.5mgをトルエン2910mgに溶解し、この溶液を孔径0.2 μ mのフィルターでろ過し、塗布溶液を調製した。次いで、上記陽極バッファ層上に、上記塗布溶液を、回転数3000rpm、塗布時間30秒の条件で、スピコート法により塗布した。塗布後、室温(25℃)で30分間乾燥し、発光層を形成した。得られた発光層の膜厚は、約100nmであった。

[0312] 次に、発光層を形成した基板を蒸着装置内に載置した。次いで、バリウムおよびアルミニウムを重量比1:10で共蒸着し、陽極の延在方向に対して直交するように、幅3mmの陰極をストライプ状に2本形成した。得られた陰極の膜厚は、約50nmであった。

[0313] 最後に、アルゴン雰囲気中で、陽極と陰極とにリード線(配線)を取り付けて、縦4mm×横3mmの有機EL素子を4個作製した。これら4個の有機EL素子を併せて有機EL素子1とする。有機EL素子1に、プログラマブル直流電圧／電流源(TR6143、(株)アドバンテスト社製)を用いて電圧を印加して発光させた。

[0314] その発光輝度を、輝度計(BM-8、(株)トプコン社製)を用いて測定した。作製した有機EL素子1の最大外部量子効率、最高到達輝度、駆動電圧、初期輝度100cd/m²で点灯させて定電流駆動した時の輝度半減寿命を表2に示す。

[0315] [実施例26～30]有機EL素子2～6の作製およびその発光輝度の測定
高分子化合物(I-1)の代わりに高分子化合物(I-2)～(I-6)を用いた以外は、実施例25と同様の方法によって有機EL素子2～6を作製し、その発光輝度を測定した。有機EL素子2～6の最大外部量子効率、最高到達輝度、駆動電圧、初期輝度100cd/m²で点灯させて定電流駆動した時の輝度半減寿命を表2に示す。

[0316] [実施例31～36]有機EL素子7～12の作製およびその発光輝度の測定
高分子化合物(I-1)および高分子化合物(I')の代わりに、それぞれ高分子化合物(II-1)～(II-6)を用いた以外は、実施例25と同様にしてそれぞれ有機EL素子

7～12を作製し、その発光輝度を測定した。有機EL素子7～12の最大外部量子効率、最高到達輝度、駆動電圧、初期輝度 $100\text{cd}/\text{m}^2$ で点灯させて定電流駆動した時の輝度半減寿命を表2に示す。

[0317] [実施例37～42]有機EL素子13～18の作製およびその発光輝度の測定

高分子化合物(II-1)と発光性の化合物(E-38)の代わりに、それぞれ高分子化合物(III-1)～(III-6)を用いた以外は、実施例31と同様にしてそれぞれ有機EL素子13～18を作製し、その発光輝度を測定した。有機EL素子13～18の最大外部量子効率、最高到達輝度、駆動電圧、初期輝度 $100\text{cd}/\text{m}^2$ で点灯させて定電流駆動した時の輝度半減寿命を表2に示す。

[0318] [実施例43～48]有機EL素子18～24の作製およびその発光輝度の測定

高分子化合物(III-1)の代わりに、それぞれ高分子化合物(IV-1)～(IV-6)を用いた以外は、実施例37と同様にしてそれぞれ有機EL素子19～24を作製し、その発光輝度を測定した。有機EL素子19～24の最大外部量子効率、最高到達輝度、駆動電圧、初期輝度 $100\text{cd}/\text{m}^2$ で点灯させて定電流駆動した時の輝度半減寿命を表2に示す。

[0319] [比較例1]有機EL素子25の作製およびその発光輝度の測定

高分子化合物(I-1)の代わりに低分子化合物7を用いた以外は、実施例25と同様にして有機EL素子25を作製し、その発光輝度を測定した。有機EL素子25の最大外部量子効率、最高到達輝度、駆動電圧、初期輝度 $100\text{cd}/\text{m}^2$ で点灯させて定電流駆動した時の輝度半減寿命を表2に示す。

[0320] [比較例2]有機EL素子26の作製およびその発光輝度の測定

高分子化合物(I-1)の代わりに低分子化合物8を用いた以外は、実施例25と同様にして有機EL素子26を作製し、その発光輝度を測定した。有機EL素子26の最大外部量子効率、最高到達輝度、駆動電圧、初期輝度 $100\text{cd}/\text{m}^2$ で点灯させて定電流駆動した時の輝度半減寿命を表2に示す。

[0321] [比較例3]有機EL素子27の作製およびその発光輝度の測定

まず、合成例1で合成した化合物(1)の代わりに、合成例9で合成したカルバゾリル基導入トリアジンビニルモノマー(9)を用いた以外は高分子化合物(I-1)と同様に

て、高分子化合物(I'')を得た。得られた高分子化合物(I'')の重量平均分子量は、68,000、分子量分布指数は2.14であった。

[0322] 高分子化合物(I-1)の代わりに高分子化合物(I'')を用いた以外は、実施例25と同様にして有機EL素子27を作製し、その発光輝度を測定した。有機EL素子27の最大外部量子効率、最高到達輝度、駆動電圧、初期輝度100cd/m²で点灯させて定電流駆動した時の輝度半減寿命を表2に示す。

[0323] なお、表2に示す輝度半減寿命は、有機EL素子26の輝度半減寿命を1として相対評価したものである。

[0324] [表2]

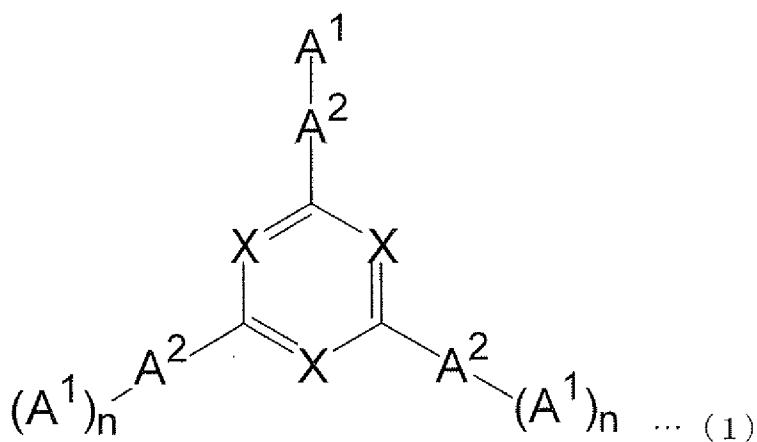
表2

	有機EL素子	最大外部 量子効率(%)	最高到達輝度 (cd/m ²)	駆動電圧 (V)	輝度半減寿命 (相対評価)
実施例25	1	5.6	9,500	2.9	7
実施例26	2	6.0	7,000	3.6	5
実施例27	3	6.1	20,000	3.0	45
実施例28	4	5.7	7,000	3.3	35
実施例29	5	7.2	26,000	3.0	40
実施例30	6	6.3	27,000	3.5	40
実施例31	7	5.1	22,000	2.9	425
実施例32	8	6.4	30,000	3.0	370
実施例33	9	6.2	12,000	3.2	450
実施例34	10	5.4	28,000	3.2	390
実施例35	11	6.6	37,000	2.8	115
実施例36	12	6.1	23,000	3.6	130
実施例37	13	4.9	15,000	3.3	470
実施例38	14	4.1	11,000	3.4	415
実施例39	15	5.3	21,000	3.1	523
実施例40	16	4.9	19,000	3.1	476
実施例41	17	4.3	17,000	3.5	179
実施例42	18	3.9	12,000	3.7	165
実施例43	19	5.3	24,000	3.0	481
実施例44	20	6.5	32,000	3.1	439
実施例45	21	6.4	18,000	3.2	538
実施例46	22	6.1	31,000	3.3	482
実施例47	23	6.8	23,000	3.2	206
実施例48	24	6.9	34,000	3.4	181
比較例 1	25	1.2	7,000	3.9	1.5
比較例 2	26	2.6	10,000	3.3	1
比較例 3	27	3.7	11,000	3.4	2.5

請求の範囲

- [1] 下記式(1)で表される単量体から導かれる構成単位を含むことを特徴とする高分子化合物。

[化1]

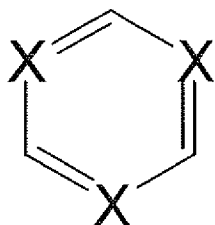


(式(1)中、複数個ある A^1 は、それぞれ独立に、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基、水素原子、ハロゲン原子、アミノ基、炭素原子数1～12のアルキル基、炭素原子数1～12のアルコキシ基または炭素原子数6～10のアリールオキシ基を表し、

複数個ある A^1 のうち少なくとも1つは、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい縮合多環芳香族基を表し、

A^2 への該縮合多環芳香族基の結合の位置は、

[化2]



の結合位置に対してメタ位であり、

3つの A^2 は、それぞれ独立に、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい6員環芳香族基を表し、

A^1 および A^2 において、環構成原子に直接結合している水素原子は、それぞれ独

立に、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基、ハロゲン原子、アミノ基、炭素原子数1～12のアルキル基、炭素原子数1～12のアルコキシ基または炭素原子数6～10のアリールオキシ基で置換されていてもよく、

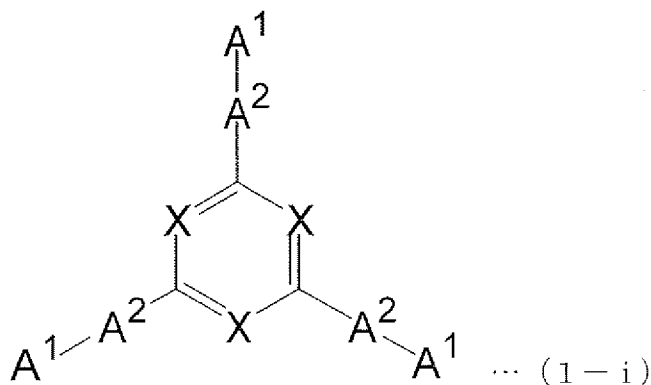
A^1 および A^2 のうち少なくとも1つは、重合性官能基を有する置換基を有し、

3つのXは、それぞれ独立に、1つの水素原子が結合した炭素原子または窒素原子を表し、3つのXのうち少なくとも1つは窒素原子を表し、

2つのnは、それぞれ独立に、1または2を表す。）

- [2] 上記式(1)で表される単量体が、下記式(1-i)で表される単量体であることを特徴とする請求項1に記載の高分子化合物。

[化3]

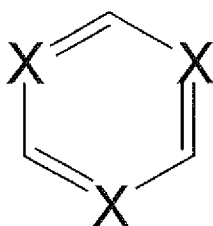


(式(1-i)中、3つの A^1 は、それぞれ独立に、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基、水素原子、ハロゲン原子、アミノ基、炭素原子数1～12のアルキル基、炭素原子数1～12のアルコキシ基または炭素原子数6～10のアリールオキシ基を表し、

3つの A^1 のうち少なくとも1つは、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい縮合多環芳香族基を表し、

A^2 への該縮合多環芳香族基の結合の位置は、

[化4]



の結合位置に対してメタ位であり、

3つの A^2 は、それぞれ独立に、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい6員環芳香族基を表し、

A^1 および A^2 において、環構成原子に直接結合している水素原子は、それぞれ独立に、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基、ハロゲン原子、アミノ基、炭素原子数1～12のアルキル基、炭素原子数1～12のアルコキシ基または炭素原子数6～10のアリールオキシ基で置換されていてもよく、

A^1 および A^2 のうち少なくとも1つは、重合性官能基を有する置換基を有し、

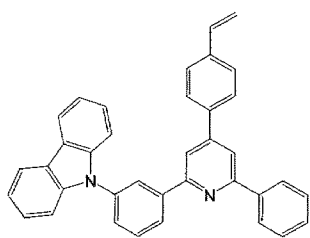
3つのXは、それぞれ独立に、1つの水素原子が結合した炭素原子または窒素原子を表し、3つのXのうち少なくとも1つは窒素原子を表す。）

[3] 上記式(1-i)において、1つの A^1 が、重合性官能基を有する置換基を有し、

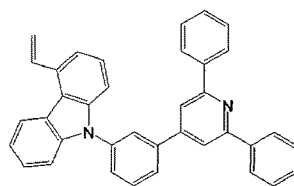
3つの A^1 のうち少なくとも1つが、重合性官能基を有する置換基を有していてもよいカルbazリル基あるいはハロゲン原子、アミノ基、炭素原子数1～12のアルキル基、炭素原子数1～12のアルコキシ基、炭素原子数6～10のアリールオキシ基またはヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基を表すことを特徴とする請求項2に記載の高分子化合物。

[4] 上記式(1-i)で表される単量体が、下記式(A1)、(A13)、(A14)、(A15)、(A31)、(A35)、(A40)、(A42)、(A60)、(A71)、(A73)、(A78)、(A79)、(A80)、(A88)、(A89)、(A107)または(A108)で表される単量体であることを特徴とする請求項2または3に記載の高分子化合物。

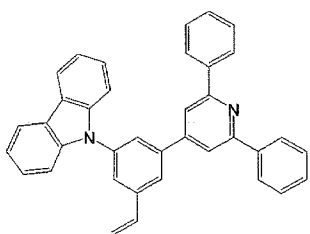
[化5]



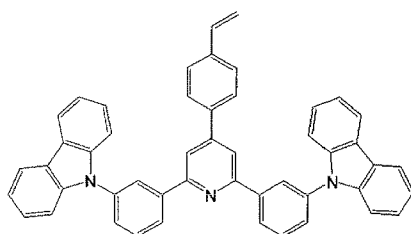
... (A 1)



... (A 1 3)

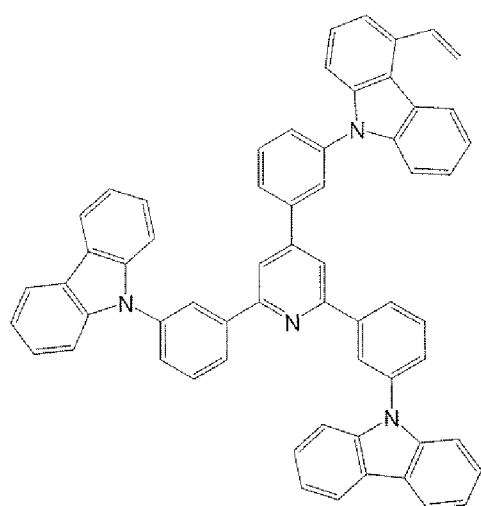


... (A 1 4)

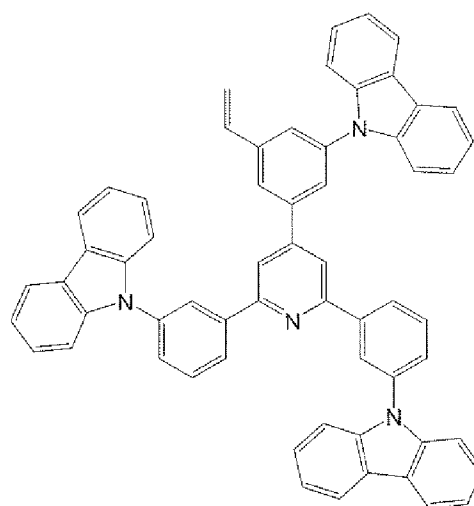


... (A 1 5)

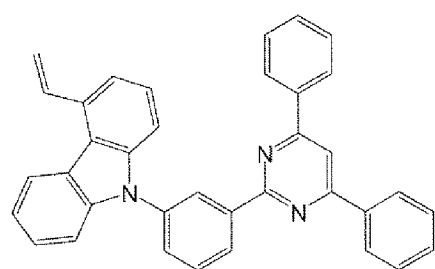
[化6]



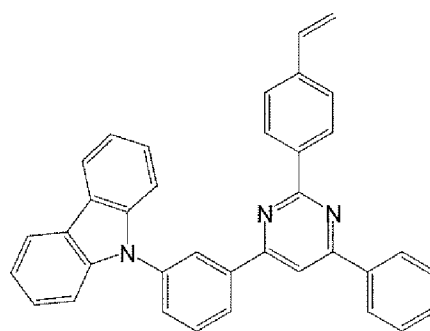
... (A 3 1)



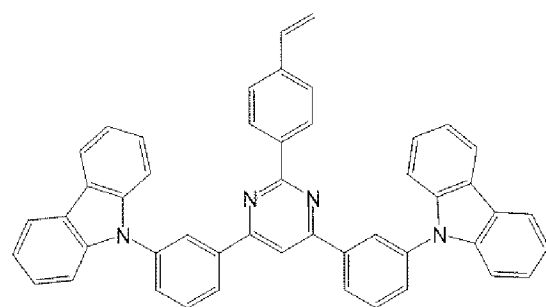
... (A 3 5)



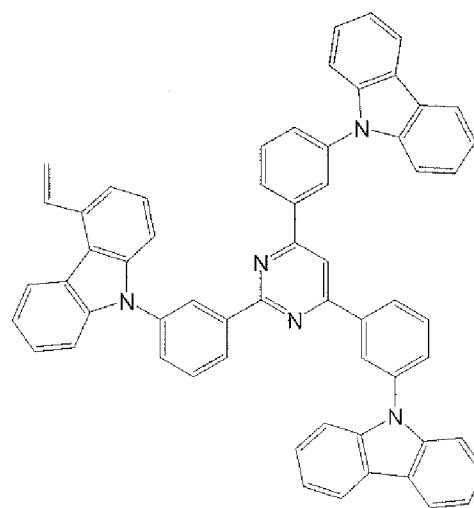
... (A 4 0)



... (A 4 2)

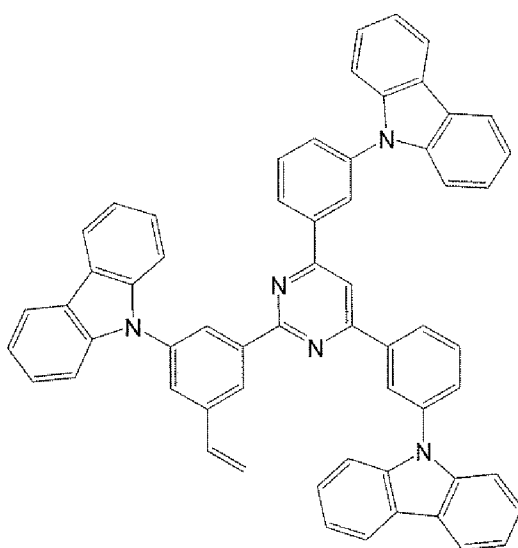


... (A 6 0)

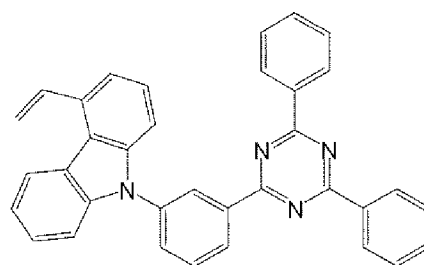


... (A 7 1)

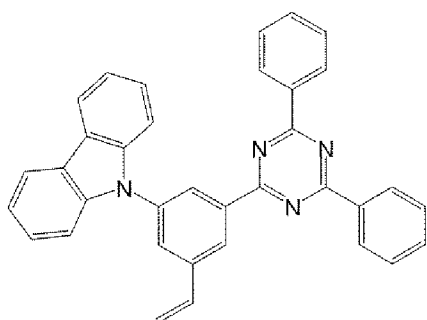
[化7]



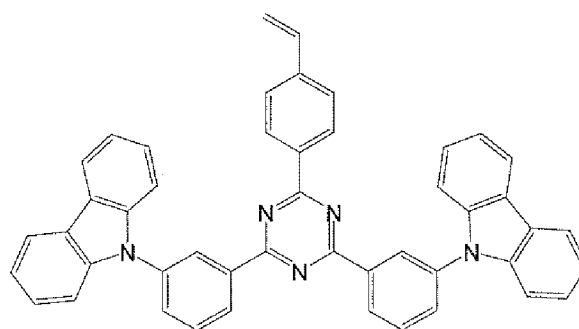
... (A 7 3)



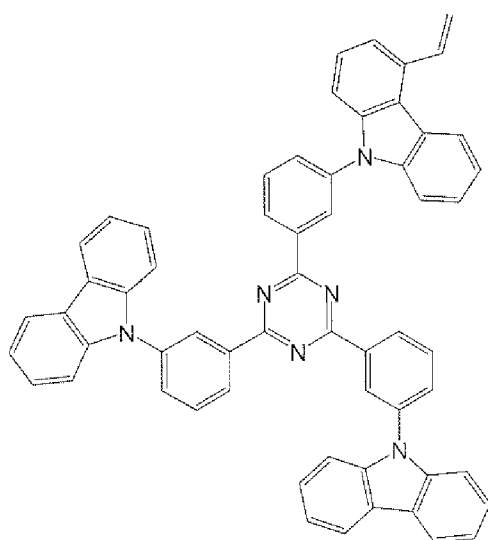
... (A 7 8)



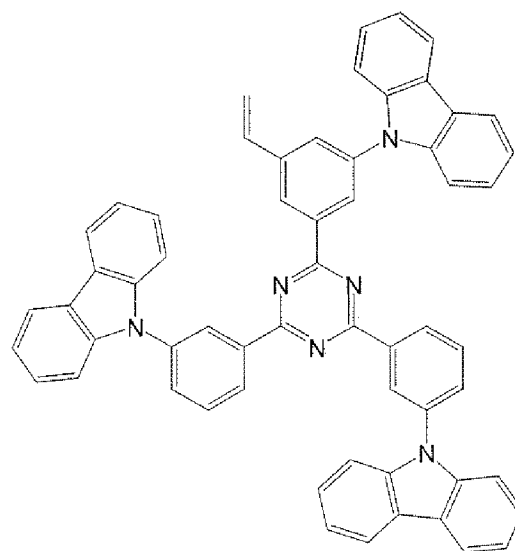
... (A 7 9)



... (A 8 0)

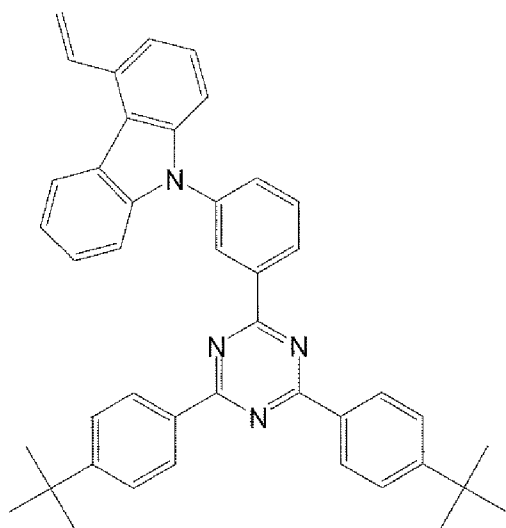


... (A 8 8)

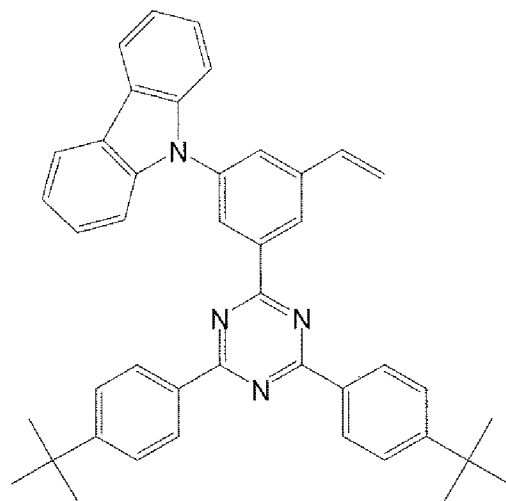


... (A 8 9)

[化8]



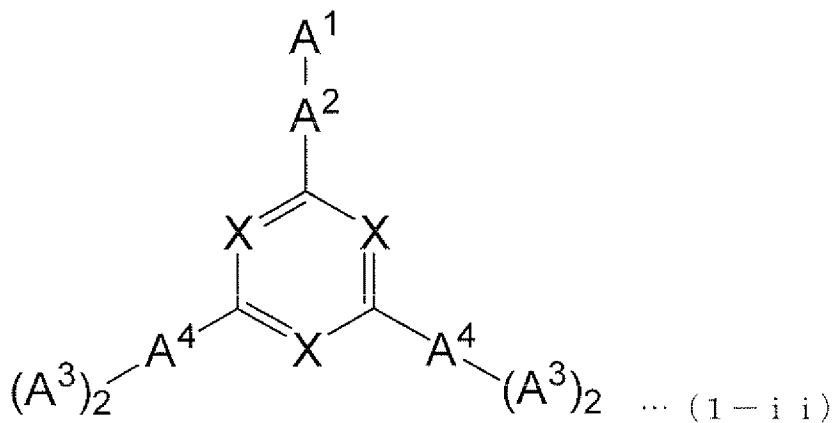
... (A107)



... (A108)

- [5] 上記式(1)で表される単量体が、下記式(1-ii)で表されることを特徴とする請求項1に記載の高分子化合物。

[化9]

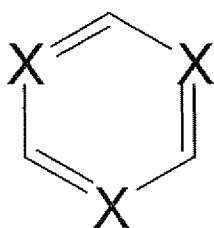


(式(1-ii)中、A¹は、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基、水素原子、ハロゲン原子、アミノ基、炭素原子数1～12のアルキル基、炭素原子数1～12のアルコキシ基または炭素原子数6～10のアリールオキシ基を表し、

4つのA³は、それぞれ独立に、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい縮合多環芳香族基を表し、

A²へのA¹の結合の位置、およびA⁴へのA³の結合の位置は、それぞれ

[化10]



の結合位置に対してメタ位であり、

A^2 および2つの A^4 は、それぞれ独立に、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい6員環芳香族基を表し、

$A^1 \sim A^4$ において、環構成原子に直接結合している水素原子は、それぞれ独立に、ヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基、ハロゲン原子、アミノ基、炭素原子数1～12のアルキル基、炭素原子数1～12のアルコキシ基または炭素原子数6～10のアリールオキシ基で置換されていてもよく、

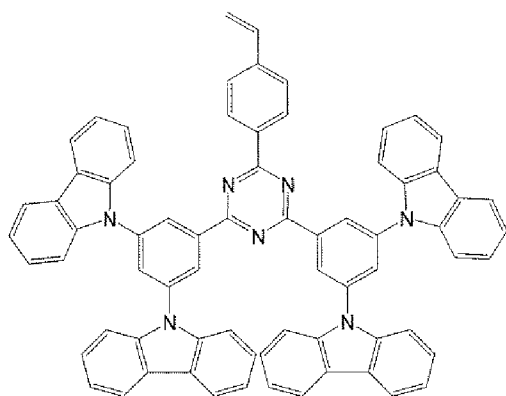
$A^1 \sim A^4$ のうち少なくとも1つは、重合性官能基を有する置換基を有し、

3つのXは、それぞれ独立に、1つの水素原子が結合した炭素原子または窒素原子を表し、3つのXのうち少なくとも1つは窒素原子を表す。）

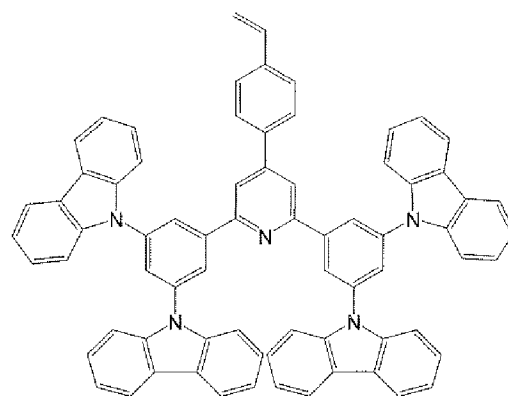
- [6] 上記式(1-ii)において、 A^1 が、重合性官能基を有する置換基を表し、4つの A^3 のうち少なくとも1つが、重合性官能基を有する置換基を有していてもよいカルbazリル基あるいはハロゲン原子、アミノ基、炭素原子数1～12のアルキル基、炭素原子数1～12のアルコキシ基、炭素原子数6～10のアリールオキシ基またはヘテロ原子を環構成原子として有していてもよい芳香族基を表すことを特徴とする請求項5に記載の高分子化合物。

- [7] 上記式(1-ii)で表される単量体が、下記式(A92)、(A94)、(A96)、(A100)、(A102)または(A104)で表されることを特徴とする請求項5または6に記載の高分子化合物。

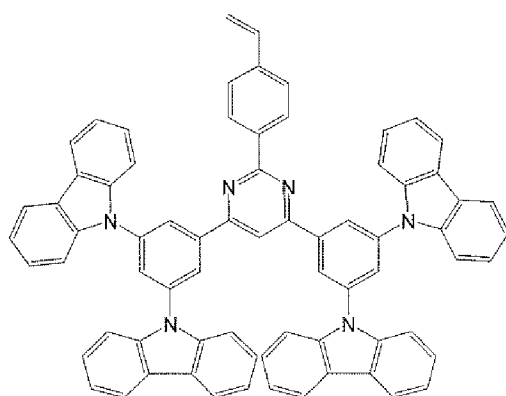
[化11]



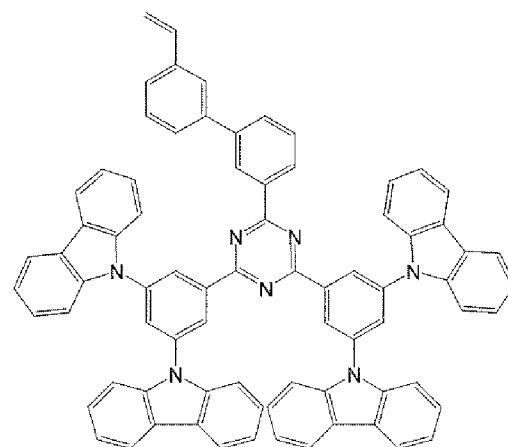
... (A 9 2)



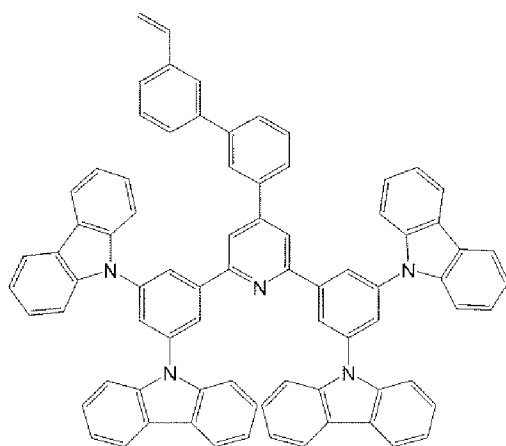
... (A 9 4)



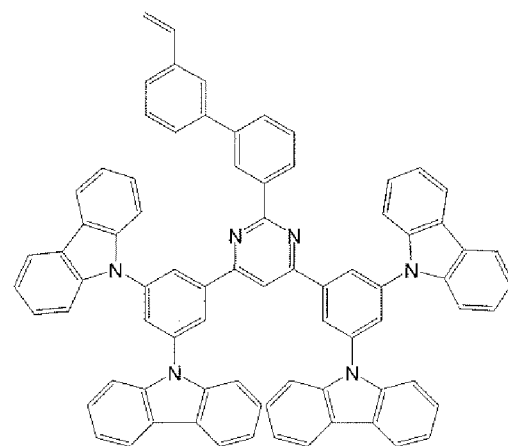
... (A 9 6)



... (A 1 0 0)



... (A 1 0 2)



... (A 1 0 4)

[8] ホール輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位をさらに含むことを特徴とする請求項1～7のいずれかに記載の高分子化合物。

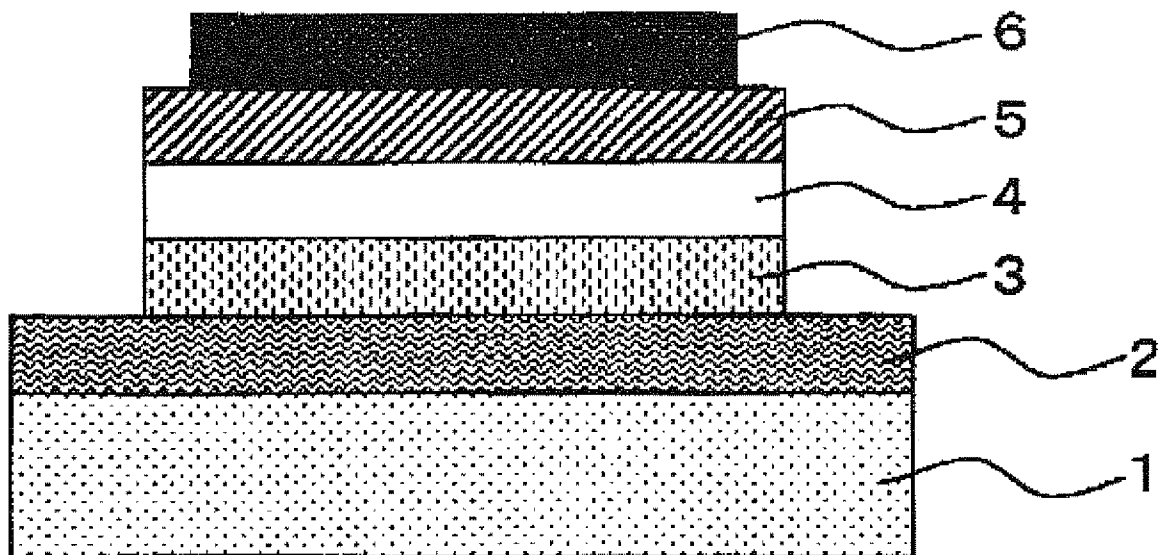
[9] 上記ホール輸送性の重合性化合物が、カルバゾール構造またはトリフェニルアミン

構造を含むことを特徴とする請求項8に記載の高分子化合物。

- [10] 上記ホール輸送性の重合性化合物が、カルバゾール構造を含むことを特徴とする請求項9に記載の高分子化合物。
- [11] 電子輸送性の重合性化合物から導かれる構成単位および発光性の重合性化合物から導かれる構成単位のうち少なくとも1つをさらに含むことを特徴とする請求項1～10のいずれかに記載の高分子化合物。
- [12] 上記発光性の重合性化合物が、燐光発光性を有することを特徴とする請求項11に記載の高分子化合物。
- [13] 上記発光性の重合性化合物が、遷移金属錯体であることを特徴とする請求項11または12に記載の高分子化合物。
- [14] 上記遷移金属錯体が、イリジウム錯体であることを特徴とする請求項13に記載の高分子化合物。
- [15] 上記電子輸送性の重合性化合物が、芳香族複素環置換基またはトリアリールホウ素置換基を有することを特徴とする請求項11～14のいずれかに記載の高分子化合物。
- [16] 有機エレクトロルミネッセンス素子に用いられることを特徴とする請求項1～15のいずれかに記載の高分子化合物。
- [17] 請求項1～16のいずれかに記載の高分子化合物を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子用発光層。
- [18] 陽極と陰極との間に1層以上の有機層を含む有機エレクトロルミネッセンス素子であって、該有機層が含む発光層の少なくとも1層が、請求項1～16のいずれかに記載の高分子化合物を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [19] 請求項18に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えることを特徴とする、ディスプレイ、バックライト、電子写真、照明光源、記録光源、露光光源、読み取り光源、標識、看板、インテリアおよび光通信システムからなる群から選択される物品。
- [20] 請求項17に記載の発光層が少なくとも1層含まれる有機層を陽極上に形成する工程、および
該有機層上に陰極を形成する工程

を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/052955

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08F12/26(2006.01)i, C07D403/14(2006.01)i, C09K11/06(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)

C08F12/26, C07D403/14, C09K11/06, 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	1996-2009
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2009	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2009

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2008-28119 A (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 07 February, 2008 (07.02.08), Par. Nos. [0065] to [0071], [0096] to [0109] (Family: none)	1-20
A	JP 2007-269895 A (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 18 October, 2007 (18.10.07), Par. Nos. [0069] to [0079], [0101] to [0121] (Family: none)	1-20
A	JP 2007-153917 A (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 21 June, 2007 (21.06.07), Par. Nos. [0072] to [0079], [0106] to [0124] (Family: none)	1-20

☒ 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
30 April, 2009 (30.04.09)

Date of mailing of the international search report
19 May, 2009 (19.05.09)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/052955

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2007-169541 A (Konica Minolta Holdings, Inc.), 05 July, 2007 (05.07.07), Par. Nos. [0094] to [0098] (Family: none)	1-20
A	JP 2006-225428 A (Tokyo Institute of Technology), 31 August, 2006 (31.08.06), Par. Nos. [0003], [0032] (Family: none)	1-20

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C08F12/26(2006.01)i, C07D403/14(2006.01)i, C09K11/06(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. C08F12/26, C07D403/14, C09K11/06, 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 0 9 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 0 9 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 0 9 年

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

CA/REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	J P 2 0 0 8 - 2 8 1 1 9 A (昭和電工株式会社) 2 0 0 8 . 0 2 . 0 7 , 段落【0 0 6 5】 - 【0 0 7 1】 , 【0 0 9 6】 - 【0 1 0 9】 (ファミリーなし)	1 - 2 0
A	J P 2 0 0 7 - 2 6 9 8 9 5 A (昭和電工株式会社) 2 0 0 7 . 1 0 . 1 8 , 段落【0 0 6 9】 - 【0 0 7 9】 , 【0 1 0 1】 - 【0 1 2 1】 (ファミリーなし)	1 - 2 0

☒ 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

3 0 . 0 4 . 2 0 0 9

国際調査報告の発送日

1 9 . 0 5 . 2 0 0 9

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)

和田 勇生

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 5 7

4 J

4 1 6 7

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	J P 2 0 0 7 - 1 5 3 9 1 7 A (昭和電工株式会社) 2 0 0 7 . 0 6 . 2 1 , 段落【0 0 7 2】 - 【0 0 7 9】 , 【0 1 0 6】 - 【0 1 2 4】 (ファミリーなし)	1 - 2 0
A	J P 2 0 0 7 - 1 6 9 5 4 1 A (コニカミノルタホールディン グス株式会社) 2 0 0 7 . 0 7 . 0 5 , 段落【0 0 9 4】 - 【0 0 9 8】 (ファミリーなし)	1 - 2 0
A	J P 2 0 0 6 - 2 2 5 4 2 8 A (国立大学法人東京工業大学) 2 0 0 6 . 0 8 . 3 1 , 段落【0 0 0 3】 , 【0 0 3 2】 (ファミリーなし)	1 - 2 0