

(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
2010 年 5 月 27 日(27.05.2010)

(10) 国際公開番号
WO 2010/058859 A1

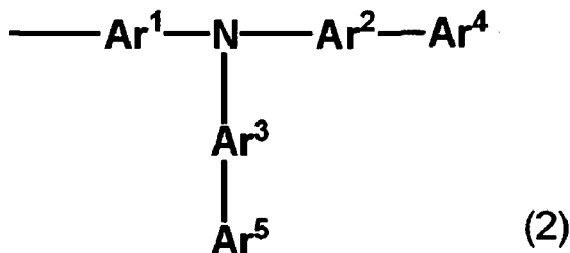
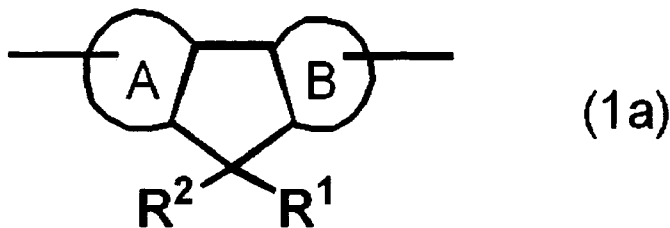


- (51) 国際特許分類:
C08G 61/10 (2006.01) *H01L 51/50* (2006.01)
C09K 11/06 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2009/069891
- (22) 国際出願日: 2009 年 11 月 18 日(18.11.2009)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2008-296434 2008 年 11 月 20 日(20.11.2008) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 住友化学株式会社(SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED) [JP/JP]; 〒1048260 東京都中央区新川二丁目 2 7 番 1 号 Tokyo (JP). サメイション株式会社(Sumation Co., Ltd.) [JP/JP]; 〒1048260 東京都中央区新川二丁目 2 7 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 大内一栄 (OHUCHI, Kazuei) [JP/JP]; 〒3050005 茨城県つくば市天久保 2-13-10-104 Ibaraki (JP). 中谷智也 (NAKATANI, Tomoya) [JP/JP]; 〒3050821 茨城県つくば市春日 1-6-2-505 Ibaraki (JP).
- (74) 代理人: 中山亨, 外(NAKAYAMA, Tohru et al.); 〒5418550 大阪府大阪市中央区北浜四丁目 5 番 3 3 号住友化学知的財産センター株式会社内 Osaka (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, 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, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

[続葉有]

(54) Title: AMINE POLYMER COMPOUND AND LIGHT-EMITTING ELEMENT USING SAME

(54) 発明の名称: アミン系高分子化合物及びそれを用いた発光素子



(57) Abstract: A polymer compound containing a constituent unit represented by formula (1a). (In formula (1a), ring A and ring B each represents an aromatic hydrocarbon ring; R^1 represents a group represented by formula (2); and R^2 represents an aryl group or a monovalent aromatic heterocyclic group.) (In formula (2), Ar^1 represents an arylene group or a divalent group to which two or more arylene groups are directly bonded; Ar^4 and Ar^5 each represents an aryl group or a monovalent aromatic heterocyclic group; Ar^2 and Ar^3 each represents an arylene group or a divalent aromatic heterocyclic group; and R^6 represents a hydrogen atom, an alkyl group, an aryl group or a monovalent aromatic heterocyclic group.)

(57) 要約: 下記式 (1a) で表される構成単位を含む高分子化合物。

〔式中、A 環及び B 環は、芳香族炭化水素環を表す。 R^1 は下記式 (2) で表される基である。 R^2 はアリーール基又は 1 価の芳香族複素環基を表す。〕〔式中、 Ar^1 は、アリーレン基、又は 2 価

以上のアリーレン基が直結した 2 価の基を表す。 Ar^4 及び Ar^5 は、アリーール基又は 1 価の芳香族複素環基を表す。 Ar^2 及び Ar^3 は、アリーレン基、又は 2 価の芳香族複素環基を表す。 R^6 は、水素原子、アルキル基、アリーール基、又は 1 価の芳香族複素環基を表す。〕

WO 2010/058859 A1

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

アミン系高分子化合物及びそれを用いた発光素子

5 技術分野

本発明は、アミン系高分子化合物及びそれを用いた発光素子に関する。

背景技術

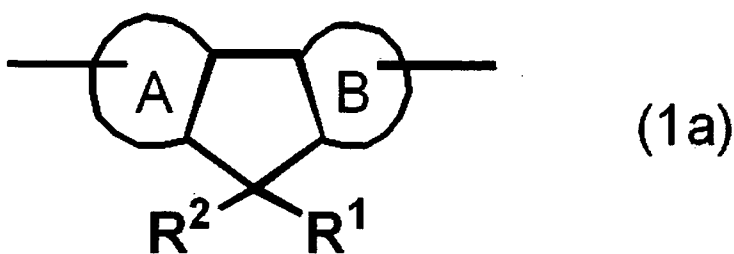
フルオレン構造の9位にアルキル基が2個導入された9, 9-ジアルキルフル
10 オレン等のフルオレン構造を有する高分子化合物は、発光素子（高分子LED等）等の製造に有用であることが知られている（Advanced Materials 2000, 12(23), 1737-1750）。発光効率が優れた高分子化合物として、フルオレン構造の9位にトリフェニルアミン骨格が2個導入された高分子化合物（特表2004-500463号公報）、フルオレン構造の9位に異なるアリール基が2個導入
15 された高分子化合物（特表2002-527553号公報）が知られている。

発明の開示

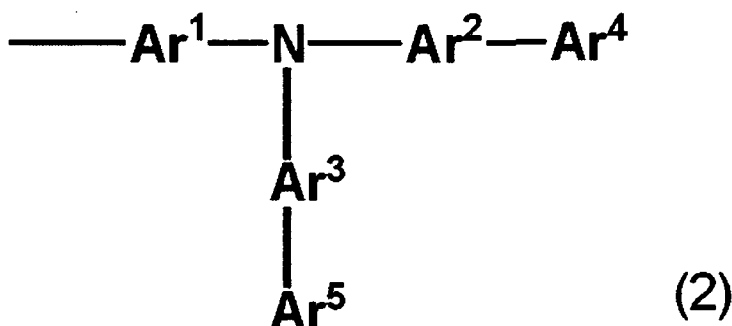
しかし、これらの高分子化合物を含む発光素子は、ディスプレイ等に用いる場合の実用領域である1000cd/m²の輝度において、外部量子収率（色度を考慮した
20 上での発光効率の指標となる）が必ずしも十分ではない。

本発明は、1000cd/m²の輝度における外部量子収率が優れた発光素子の作製に有用な高分子化合物を提供することを目的とする。

25 本発明は第一に、下記式（1 a）で表される構成単位を含む高分子化合物を提供する。



〔式中、A環及びB環はそれぞれ独立に、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素環を表す。R¹は下記式(2)で表される基である。R²はアリール基又は1価の芳香族複素環基を表し、これらの基における水素原子は、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシル基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アラルキル基、1価の芳香族複素環基、フッ素原子又はシアノ基で置換されていてもよい。〕

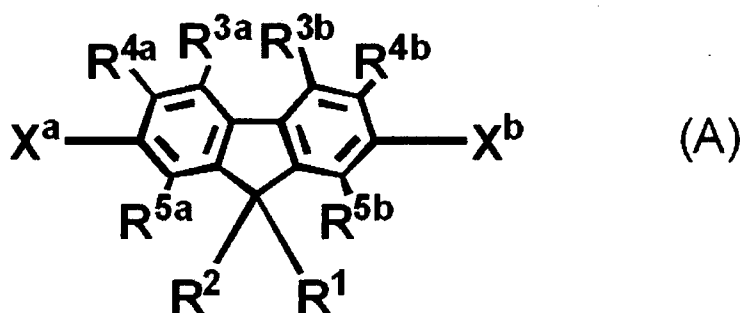


〔式中、Ar¹は、アリーレン基、又は同一若しくは異なる2個以上のアリーレン基が直結した2価の基を表す。Ar⁴及びAr⁵はそれぞれ独立に、アリール基又は1価の芳香族複素環基を表す。Ar²及びAr³はそれぞれ独立に、アリーレン基、又は2価の芳香族複素環基を表す。Ar²及びAr³がフェニレン基である場合、それらのフェニレン基に結合する窒素原子からみてオルト位に位置する、Ar²で表されるフェニレン基上の炭素原子の1個と、Ar³で表されるフェニレン基上の炭素原子の1個とが、互いに直結して、又は-O-、-S-、-C(=O)-、-C(=O)-O-、-N(R⁶)-、-C(=O)-N(R⁶)-若しくは-C(R⁶)(R⁶)-で結合して、5～7員環を形成していてもよい。R⁶は、水素原子、アルキル基、アリール基、又は1価の芳香族複素環基を表す。Ar¹、Ar²、Ar³、Ar⁴、Ar⁵及びR⁶で表される基における水素原子は、各々、アルキル基

、アルコキシ基、アルキルチオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシル基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アラルキル基、1 価の芳香族複素環基、フッ素原子又はシアノ基で置換されていてもよい。R⁶が複数存在する場合、それらは、同一であっても異なってもよい。]

5

本発明は第二に、下記式 (A) で表される化合物を提供する。



[式中、R¹、R²、R^{3a}、R^{4a}、R^{5a}、R^{3b}、R^{4b}及びR^{5b}は前記と同じ意味を有する。

- 10 X^a及びX^bはそれぞれ独立に、臭素原子、ヨウ素原子、塩素原子、 $-O-S(=O)_2R^{20}$ 、 $-B(OR^{21})_2$ 、 $-BF_4Q^1$ 、 $-Sn(R^{22})_3$ 、 $-MgY^1$ 又は $-ZnY^1$ を表す。R²⁰は、アルキル基、又はアルキル基、アルコキシ基、ニトロ基、フッ素原子若しくはシアノ基で置換されていてもよいアリール基を表す。R²¹及びR²²はそれぞれ独立に、水素原子又はアルキル基を表す。2個あるR²¹は同一であつても異なつてもよく、一緒になって環を形成していてもよい。3個あるR²²は同一であつても異なつてもよく、一緒になって環を形成していてもよい。Q¹は、リチウム、ナトリウム、カリウム、ルビジウム又はセシウムの1価の陽イオンを表す。Y¹は、臭素原子、ヨウ素原子又は塩素原子を表す。]
- 15

- 20 本発明は第三に、前記高分子化合物を含有する組成物、薄膜を提供する。

本発明は第四に、前記高分子化合物と溶媒とを含有する溶液を提供する。

本発明は第五に、陽極及び陰極からなる電極と、該電極間に設けられた前記高

分子化合物を含有する有機層とを有する発光素子を提供する。

本発明は第六に、前記発光素子を備えた面状光源、表示装置を提供する。

5 発明を実施するための形態

以下、本発明を詳細に説明する。

- 本明細書において、「構成単位」とは、高分子化合物中に1個以上存在する単位を意味するが、該構成単位は、「繰り返し単位」（即ち、高分子化合物中に2個以上存在する単位）として高分子化合物中に含まれることが好ましい。「 n 個の芳香族複素環基」（ n は1又は2である）とは、芳香族性を有する複素環式化合物から n 個の水素原子を除いた原子団を意味し、縮合環を有する基も含む。「複素環式化合物」とは、環式構造を持つ有機化合物のうち、環を構成する原子が、炭素原子だけでなく、酸素原子、硫黄原子、窒素原子、リン原子、ホウ素原子、ケイ素原子等のヘテロ原子を含む化合物をいう。「芳香族複素環式化合物」とは、オキサジアゾール、チアジアゾール、チアゾール、オキサゾール、チオフェン、ピロール、ホスホール、フラン、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、トリアジン、ピリダジン、キノリン、イソキノリン、カルバゾール、ジベンゾシロール、ジベンゾホスホール等のヘテロ原子を含む複素環式化合物であり、該複素環自体が芳香族性を示すもの；フェノキサジン、フェノチアジン、ジベンゾボロール、ジベンゾシロール、ベンゾピラン等のヘテロ原子を含む複素環それ自体は芳香族性を示さなくとも、該複素環に芳香環が縮環されている化合物を意味する。

<高分子化合物>

—式(1 a)で表される構成単位—

- 25 本発明の高分子化合物は、式(1 a)で表される構成単位を含む。

式(1 a)中、A環及びB環で表される芳香族炭化水素環において、通常、芳香環を構成する炭素数は6～14である。芳香族炭化水素環としては、ベンゼン

環、ナフタレン環、フルオレン環、アントラセン環、フェナントレン環等が挙げられる。芳香族炭化水素環は、置換基を有していてもよい。A環及びB環上にはそれぞれ結合手が存在する。

- 5 式(1a)中、 R^2 で表されるアリール基は、芳香族炭化水素から水素原子1個を除いた原子団であり、縮合環を有する基を含む。アリール基は、炭素数が通常6～60であり、好ましくは6～48であり、より好ましくは6～20であり、さらに好ましくは6～14である。該炭素数には置換基の炭素数は含まれない。アリール基としては、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、1-テトラセニル基、2-テトラセニル基、5-テトラセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ペリレニル基、3-ペリレニル基、2-フルオレニル基、3-フルオレニル基、4-フルオレニル基、1-ビフェニレニル基、2-ビフェニレニル基、2-フェナンスレニル基、9-フェナンスレニル基、6-クリセニル基、1-コロネニル基等が挙げられる。アリール基における水素原子は、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシル基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アラルキル基、1価の芳香族複素環基、フッ素原子、シアノ基で置換されていてもよい。
- 10
- 15

- 20 式(1a)中、 R^2 で表される1価の芳香族複素環基は、炭素数が通常3～60であり、好ましくは3～20である。該炭素数には置換基の炭素数は含まれない。1価の芳香族複素環基としては、2-オキサジアゾール基、2-チアジアゾール基、2-チアゾール基、2-オキサゾール基、2-チエニル基、2-ピロリル基、2-フリル基、2-ピリジル基、3-ピリジル基、4-ピリジル基、2-ピラジル基、2-ピリミジル基、2-トリアジル基、3-ピリダジル基、キノリル基、イソキノリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジニル基等が挙げられる。1価の芳香族複素環基における水素原子は、アル
- 25

キル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシル基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アラルキル基、1価の芳香族複素環基、フッ素原子、シアノ基等で置換されていてもよい。

5 ・置換基の説明

アルキル基は、直鎖、分岐又は環状のいずれでもよく、炭素数が通常1～20である。アルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、i-プロピル基、ブチル基、i-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、イソアミル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、2-エチルヘキシル基、
10 ノニル基、デシル基、3, 7-ジメチルオクチル基、ドデシル基、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、パーフルオロブチル基、パーフルオロヘキシル基、パーフルオロオクチル基等が挙げられる。

アルコキシ基は、直鎖、分岐又は環状のいずれでもよく、炭素数が通常1～2
15 0である。アルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、i-プロピルオキシ基、ブトキシ基、i-ブトキシ基、t-ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、ヘプチルオキシ基、オクチルオキシ基、2-エチルヘキシルオキシ基、ノニルオキシ基、デシルオキシ基、3, 7-ジメチルオクチルオキシ基、ドデシルオキシ基、トリフルオロ
20 メトキシ基、ペンタフルオロエトキシ基、パーフルオロブトキシ基、パーフルオロヘキシルオキシ基、パーフルオロオクチルオキシ基、メトキシメチルオキシ基、2-メトキシエチルオキシ基、2-エトキシエチルオキシ基等が挙げられる。

アルキルチオ基は、直鎖、分岐又は環状のいずれでもよく、炭素数が通常1～
25 20である。アルキルチオ基としては、ブチルチオ基、ヘキシルチオ基、オクチルチオ基、2-エチルヘキシルチオ基、3, 7-ジメチルオクチルチオ基、ドデシルチオ基等が挙げられる。

置換カルボニル基は、炭素数が通常2～60である。置換カルボニル基としては、アルキル基、アリール基、アラルキル基又は1価の芳香族複素環基で置換されたカルボニル基等が挙げられ、アセチル基、ブチリル基、ベンゾイル基が好ましい。

5

置換カルボキシ基は、炭素数が通常2～60である。置換カルボキシ基としては、アルキル基、アリール基、アラルキル基又は1価の芳香族複素環基で置換されたカルボキシ基等が挙げられ、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、ブトキシカルボニル基、フェノキシカルボニル基、ベンジルオキシカルボニル基が好ましい。

10

アリール基は、 R^2 で表されるアリール基の項で説明し例示したものと同等である。

15

アリールオキシ基は、炭素数が通常6～60である。アリールオキシ基としては、フェノキシ基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェノキシ基（「 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシ」は、アルコキシ部分の炭素数1～12であることを示し、以下、同様である）、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルフェノキシ基（「 $C_1 \sim C_{12}$ アルキル」は、アルキル部分の炭素数1～12であることを示し、以下、同様である）、1-ナフチルオキシ基、2-ナフチルオキシ基、ペンタフルオロフェニルオキシ基等が挙げられる。

20

アリールチオ基は、炭素数が通常6～60である。アリールチオ基としては、フェニルチオ基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェニルチオ基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルフェニルチオ基、1-ナフチルチオ基、2-ナフチルチオ基、ペンタフルオロフェニルチオ基等が挙げられる。

25

アラルキル基は、炭素数が通常7～60である。アラルキル基としては、フェニル- $C_1 \sim C_{12}$ アルキル基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェニル- $C_1 \sim C_{12}$ アルキ

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

置換基としての1価の芳香族複素環基は、 R^2 で表される基としての1価の芳香族複素環基の項で説明し例示したものと同一である。

式(1a)中、 R^2 で表される基としては、アリール基が好ましく、本発明の高分子化合物の有機溶媒への溶解性と耐熱性とのバランス等の観点からは、アルキル基、アルコキシ基若しくはアリール基で置換されたアリール基、非置換のアリール基がより好ましく、アルキル基若しくはアリール基で置換されたアリール基、非置換のアリール基がさらに好ましく、アルキル基で置換されたアリール基が特に好ましい。

R^2 で表される基の好適な例としては、フェニル基、4-トリル基、4-ブチルフェニル基、4-t-ブチルフェニル基、4-ヘキシルフェニル基、4-オクチルフェニル基、4-(2-エチルヘキシル)フェニル基、4-(3,7-ジメチルオクチル)フェニル基、3-トリル基、3-ブチルフェニル基、3-t-ブチルフェニル基、3-ヘキシルフェニル基、3-オクチルフェニル基、3-(2-エチルヘキシル)フェニル基、3-(3,7-ジメチルオクチル)フェニル基、3,5-ジメチルフェニル基、3,5-ジ-t-ブチルフェニル基、3,4-ジヘキシルフェニル基、3,4-ジオクチルフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、2-フルオレニル基、9,9-ジヘキシル-2-フルオレニル基、9,9-ジオクチル-2-フルオレニル基、4-(4'-t-ブチルビフェニル)基が挙げられる。

25

次に、式(1a)中、 R^1 で表される式(2)で表される基を説明する。

式(2)中、 Ar^1 、 Ar^2 及び Ar^3 で表されるアリーレン基は、芳香族炭化

水素から水素原子2個を除いた原子団を意味し、縮合環を有する基を含む。アリーレン基は、炭素数が通常6～60である。該炭素数には置換基の炭素数は含まれない。アリーレン基としては、1,4-フェニレン基、1,3-フェニレン基、1,2-フェニレン基等のフェニレン基；ナフタレン-1,4-ジイル基、ナフタレン-1,5-ジイル基、ナフタレン-2,6-ジイル基等のナフタレンジイル基；アントラセン-1,4-ジイル基、アントラセン-1,5-ジイル基、アントラセン-2,6-ジイル基、アントラセン-9,10-ジイル基等のアントラセンジイル基；フェナントレン-2,7-ジイル基等のフェナントレンジイル基；ナフタセン-1,7-ジイル基、ナフタセン-2,8-ジイル基等のナフタセンジイル基；フルオレン-2,7-ジイル基、7H-ベンゾ[c]フルオレン-5,9-ジイル基、6,12-ジヒドロインデノ[1,2-b]フルオレン-2,8-ジイル基等のフルオレンジイル基が挙げられる。アリーレン基における水素原子は、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アラルキル基、1価の芳香族複素環基、フッ素原子、シアノ基等で置換されていてもよい。

式(2)中、 Ar^2 及び Ar^3 で表される2価の芳香族複素環基は、炭素数が通常2～60である。該炭素数には置換基の炭素数は含まれない。2価の芳香族複素環基としては、1,3,4-オキサジアゾール-2,5-ジイル基、1,3,4-チアジアゾール-2,5-ジイル基、1,3-チアゾール-2,5-ジイル基、1,3-オキサゾール-2,5-ジイル基、チオフェン-2,5-ジイル基、ピロール-2,5-ジイル基、フラン-2,5-ジイル基、ピリジン-2,5-ジイル基、ピリジン-2,4-ジイル基、ピリジン-2,6-ジイル基、ピリジン-3,5-ジイル基、ピリミジン-2,4-ジイル基、ピリミジン-2,6-ジイル基、トリアジン-2,4-ジイル基、ピリダジン-3,6-ジイル基、カルバゾール-2,7-ジイル基、カルバゾール-3,6-ジイル基、フェノキサジン-2,7-ジイル基、フェノキサジン-3,6-ジイル基、フェノチアジ

ン-2, 7-ジイル基、フェノチアジン-3, 6-ジイル基等が挙げられる。2
 価の芳香族複素環基における水素原子は、アルキル基、アルコキシ基、アルキル
 チオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシル基、アリール基、アリールオキシ
 基、アリールチオ基、アラルキル基、1 価の芳香族複素環基、フッ素原子、シア
 5 ノ基等で置換されていてもよい。

式(2)中、 Ar^1 で表される同一若しくは異なる2個以上のアリーレン基が
 直結した2価の基としては、ビフェニル-4, 4'-ジイル基、ビフェニル-3
 , 4'-ジイル基、ビフェニル-3, 3'-ジイル基等のビフェニルジイル基；
 10 [1, 1' ; 4', 1''] ターフェニル-4, 4''-ジイル基等のターフェニル
 ジイル基が挙げられる。 Ar^1 で表される同一若しくは異なる2個以上のアリー
 レン基が直結した2価の基における水素原子は、アルキル基、アルコキシ基、ア
 ルキルチオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシル基、アリール基、アリール
 オキシ基、アリールチオ基、アラルキル基、1 価の芳香族複素環基、フッ素原子
 15 、シアノ基等で置換されていてもよい。

式(2)中、 Ar^1 としては、1, 4-フェニレン基、1, 3-フェニレン基
 、ナフタレン-1, 4-ジイル基、ナフタレン-1, 5-ジイル基、ナフタレン-
 2, 6-ジイル基、アントラセン-2, 6-ジイル基、アントラセン-9, 10-
 20 ジイル基、フェナントレン-2, 7-ジイル基、9, 9-ジアルキルフルオレン
 -2, 7-ジイル基、9, 9-ジアリールフルオレン-2, 7-ジイル基、7,
 7-ジアルキル-ベンゾ[c]フルオレン-5, 9-ジイル基、7, 7-ジアリ
 ル-ベンゾ[c]フルオレン-5, 9-ジイル基、6, 6, 12, 12-テトラ
 ラアルキル-インデノ[1, 2-b]フルオレン-2, 8-ジイル基、6, 6,
 25 12, 12-テトラアリール-インデノ[1, 2-b]フルオレン-2, 8-ジ
 イル基、ビフェニル-4, 4'-ジイル基、ビフェニル-3, 4'-ジイル基、
 ビフェニル-3, 3'-ジイル基、[1, 1' ; 4', 1''] ターフェニル-4
 , 4''-ジイル基が好ましく、本発明の高分子化合物の合成の容易さの観点から

、1,4-フェニレン基、1,3-フェニレン基、ビフェニル-4,4'-ジイル基、ビフェニル-3,4'-ジイル基、ビフェニル-3,3'-ジイル基が特に好ましい。

5 式(2)中、 Ar^2 及び Ar^3 としては、本発明の高分子化合物の耐熱性及び合成の容易さの観点から、1,4-フェニレン基、1,3-フェニレン基、アントラセン-9,10-ジイル基、9,9-ジアルキルフルオレン-2,7-ジイル基、9,9-ジアリールフルオレン-2,7-ジイル基が好ましい。

10 式(2)中、 Ar^4 及び Ar^5 で表されるアリール基、1価の芳香族複素環基は、 R^2 で表されるアリール基、1価の芳香族複素環基として説明し例示したものと同一である。

式(2)中、 Ar^4 及び Ar^5 としては、本発明の高分子化合物の耐熱性の観点
15 から、アルキル基、アルコキシ基又はアリール基で置換されたアリール基、非置換のアリール基が好ましく、アルキル基又はアリール基で置換されたアリール基、非置換のアリール基がより好ましく、アルキル基又はアリール基で置換されたフェニル基、非置換のフェニル基、アルキル基又はアリール基で置換された1-ナフチル基、非置換の1-ナフチル基、アルキル基又はアリール基で置換された
20 2-ナフチル基、非置換の2-ナフチル基、アルキル基又はアリール基で置換された2-フルオレニル基、非置換の2-フルオレニル基がさらに好ましい。

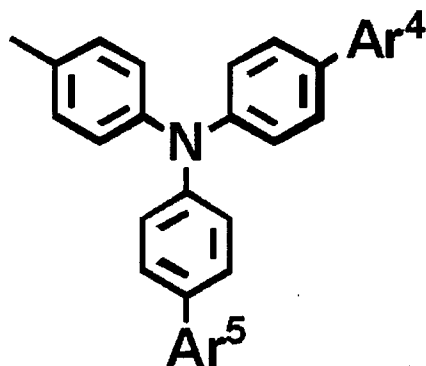
Ar^4 及び Ar^5 としては、4-トリル基、4-ブチルフェニル基、4-*t*-ブチルフェニル基、4-ヘキシルフェニル基、4-オクチルフェニル基、4-(2-エチルヘキシル)フェニル基、4-(3,7-ジメチルオクチル)フェニル基、
25 3-トリル基、3-ブチルフェニル基、3-*t*-ブチルフェニル基、3-ヘキシルフェニル基、3-オクチルフェニル基、3-(2-エチルヘキシル)フェニル基、3-(3,7-ジメチルオクチル)フェニル基、3,5-ジメチルフェニル基、3,5-ジ-*t*-ブチルフェニル基、3,4-ジヘキシルフェニル基、

3, 4-ジオクチルフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、2-フルオ
 レニル基、9, 9-ジヘキシル-2-フルオレニル基、9, 9-ジオクチル-2-
 フルオレニル基、9, 9-ビス(4-トリル)-2-フルオレニル基、9, 9-
 5 ビス(4-ヘキシルフェニル)-2-フルオレニル基、7, 9, 9-トリオク
 チル-2-フルオレニル基、7-(4'-n-ブチルフェニル)-9, 9-ビス(4-
 ヘキシルフェニル)-2-フルオレニル基、4-(4'-t-ブチルビフェ
 ニル)基、4-(4'-ヘキシルビフェニル)基等が挙げられる。

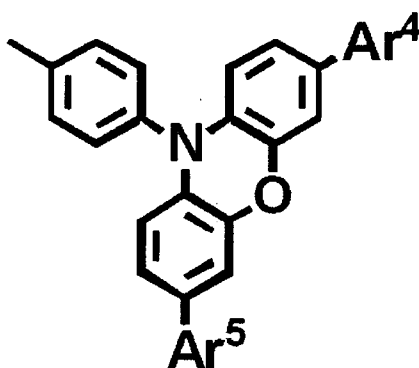
式(2)中、 Ar^2 及び Ar^3 がフェニレン基である場合、それらのフェニレン
 10 基に結合する窒素原子からみてオルト位に位置する、 Ar^2 で表されるフェニ
 レン基上の炭素原子の1個と、 Ar^3 で表されるフェニレン基上の炭素原子の1個
 とが、互いに直結して、又は-O-、-S-、-C(=O)-、-C(=O)-O-
 、-N(R^6)-、-C(=O)-N(R^6)-若しくは-C(R^6)(R^6)-で結合して、
 5~7員環を形成する場合、直結して、又は-O-、-S-若しくは-C(R^6)(
 15 R^6)-で結合して、5~6員環を形成することが好ましく、直結して、又は-O-
 -若しくは-C(R^6)(R^6)-で結合して、5~6員環を形成することがより好ま
 しい。5~7員環としては、 Ar^2 と Ar^3 とが直結してなるカルバゾール環、 Ar^2
 と Ar^3 とが-O-で結合してなるフェノキサジン環、 Ar^2 と Ar^3 とが-C
 (R^6)(R^6)-で結合してなるジヒドロアクリジン環等が挙げられ、フェノキサジ
 20 ン環が発光効率の観点から好ましい。

R^6 で表されるアルキル基は、前記置換基の説明の項において、アルキル基と
 して説明し例示したものと同一である。 R^6 で表されるアリール基は、 Ar^2 及び
 Ar^3 で表されるアリール基として説明し例示したものと同一である。 R^6 で表さ
 25 れる1価の芳香族複素環基は、 R^2 で表される基の説明において、1価の芳香族
 複素環基として説明し例示したものと同一である。 R^6 で表される基としては、
 アルキル基、アリール基が好ましい。

式(2)で表される基としては、下記式(2-000)、(2-100)で表される基が好ましい。



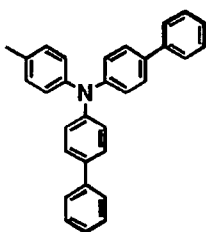
(2-000)



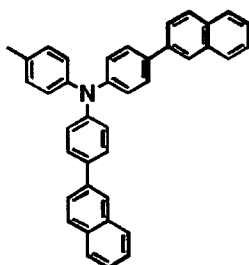
(2-100)

5 [式中、Ar⁴及びAr⁵は前記と同じ意味を表す。]

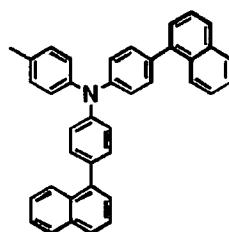
式(2-000)で表される基としては、以下の式(2-001)～(2-008)で表される基；これらの基における水素原子が、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシル基、アリール基、ア
 10 リールオキシ基、アリールチオ基、アラルキル基、1価の芳香族複素環基、フッ素原子及びシアノ基からなる群から選ばれた基で置換された基が挙げられる。式中、芳香環から出た結合手は、そのまま結合手を表すか、アリーレン基を介しての結合手を表す。



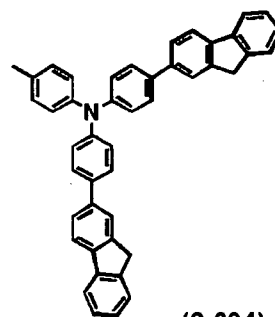
(2-001)



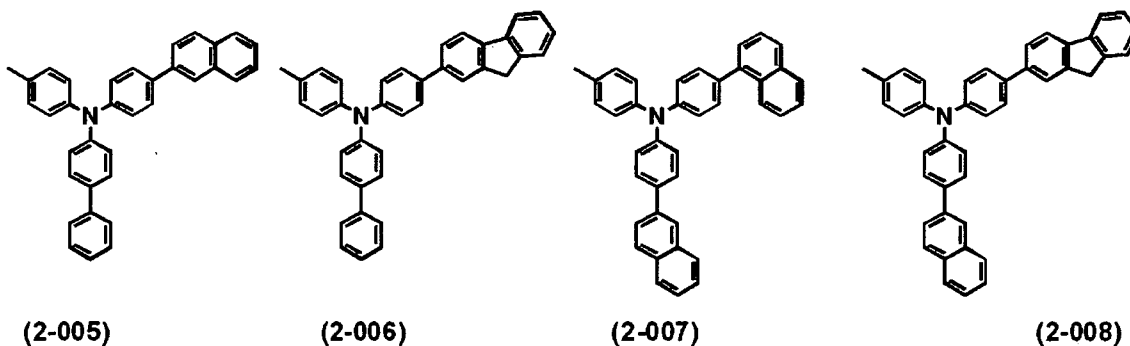
(2-002)



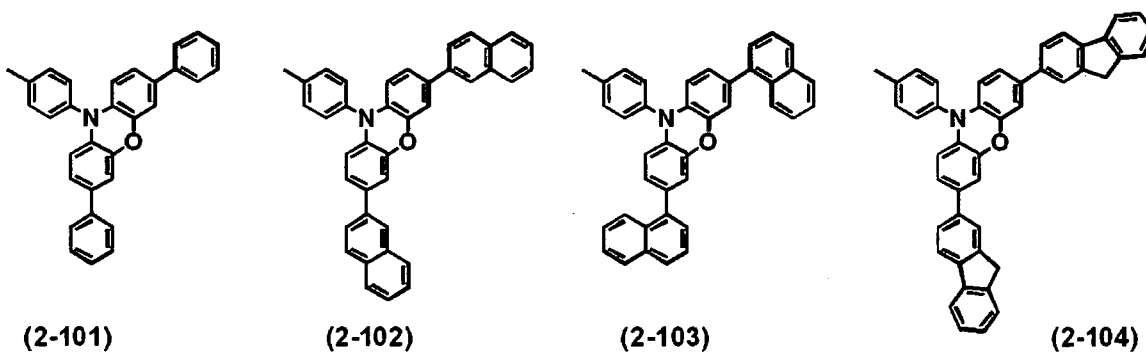
(2-003)

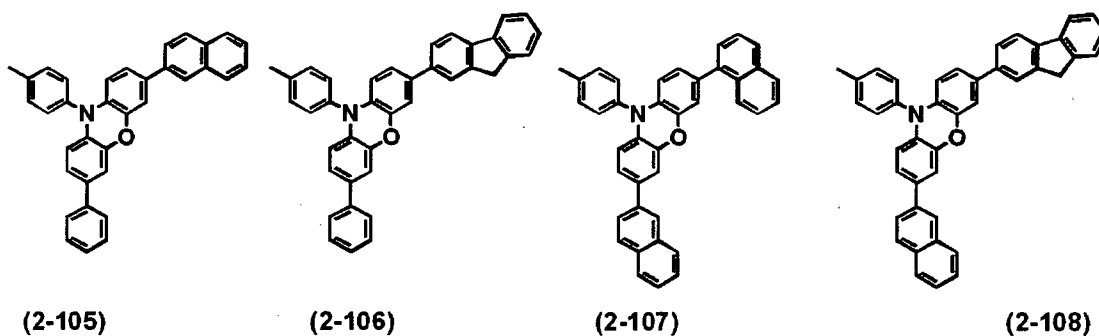


(2-004)



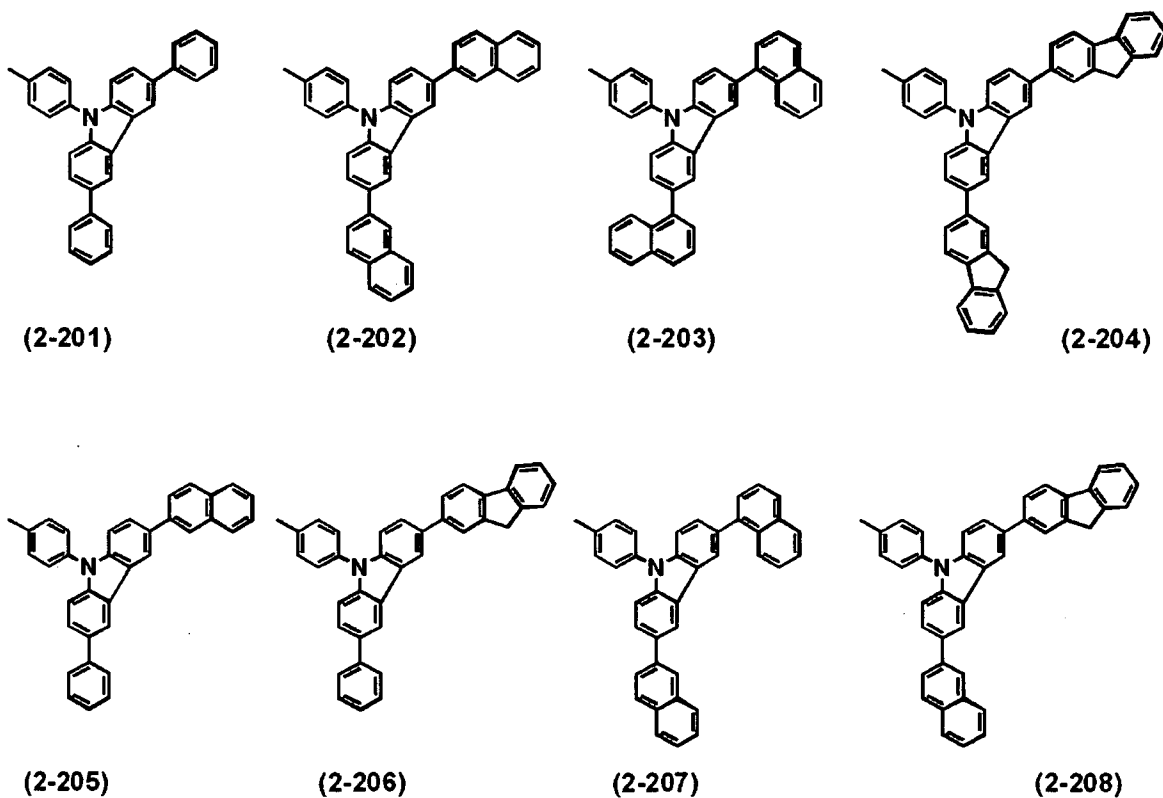
- 5 式(2-100)で表される基としては、以下の式(2-101)～(2-108)で表される基；これらの基における水素原子が、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシル基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アラルキル基、1価の芳香族複素環基、フッ素原子及びシアノ基からなる群から選ばれた基で置換された基が挙げられる。式
- 10 中、芳香環から出た結合手は、そのまま結合手を表すか、アリーレン基を介しての結合手を表す。

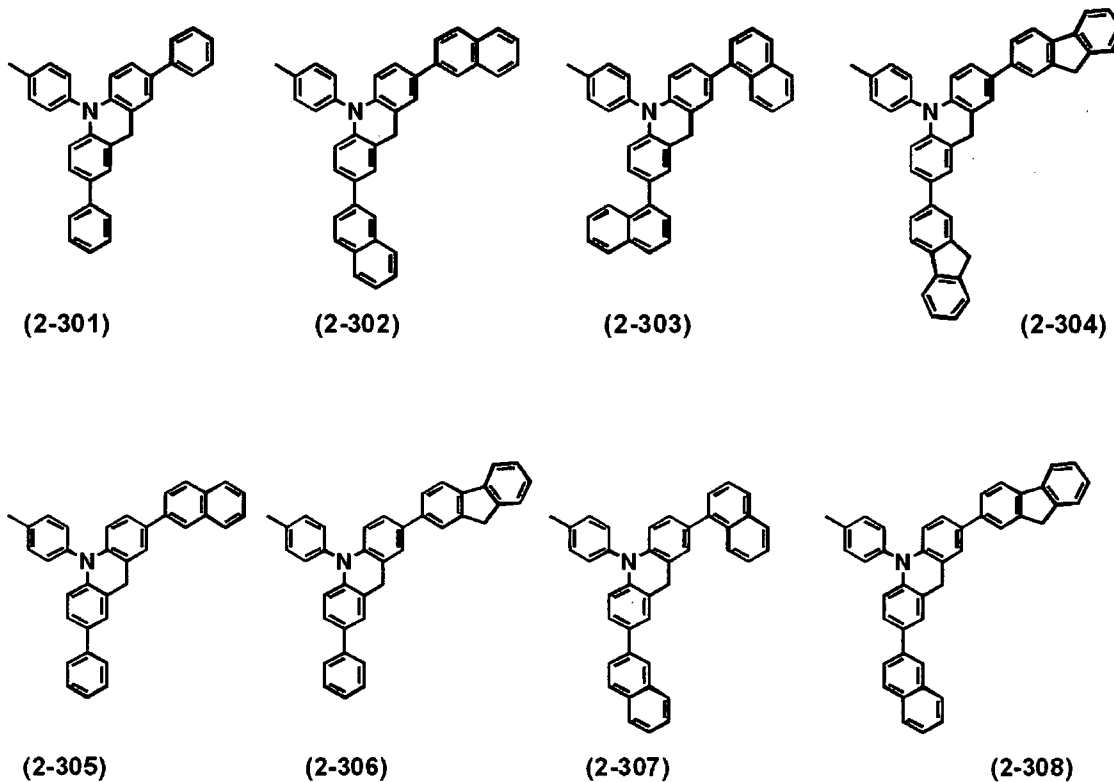




式(2)で表される基としては、その他にも、以下の式(2-201)～(2-208)、(2-301)～(2-308)で表される基；これらの基における水素原子が、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシル基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アラール基、1価の芳香族複素環基、フッ素原子及びシアノ基からなる群から選ばれた基で置換された基が挙げられる。式中、芳香環から出た結合手は、そのまま結合手を表すか、アリーレン基を介しての結合手を表す。

10

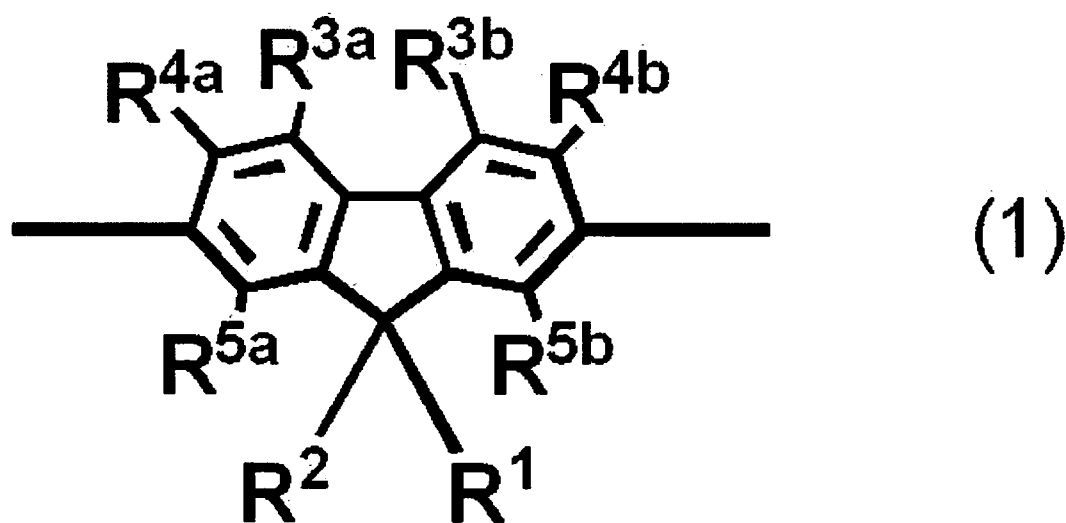




5

・式(1)で表される構成単位

式(1a)で表される構成単位としては、合成の容易さの観点から、下記式(1)で表される構成単位が好ましい。



[式中、 R^1 及び R^2 は前記と同じ意味を表す。 R^{3a} 、 R^{4a} 、 R^{5a} 、 R^{3b} 、 R^{4b} 及び R^{5b} はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アリール基、1価の芳香族複素環基、 $-N(R^8)(R^9)$ 、フッ素原子又はシアノ基を表す。 R^8 及び R^9 はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アリール基、又は1価の芳香族複素環基を表す。 R^{3a} 、 R^{4a} 、 R^{5a} 、 R^{3b} 、 R^{4b} 、 R^{5b} 、 R^8 及び R^9 で表されるアリール基及び1価の芳香族複素環基における水素原子は、各々、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシル基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アラルキル基、1価の芳香族複素環基、フッ素原子又はシアノ基で置換されていてもよい。 R^{3a} と R^{4a} 、 R^{3b} と R^{4b} 、 R^{3a} と R^{3b} 、及び R^8 と R^9 は、各々、一緒になって環を形成していてもよい。]

式(1)中、 R^{3a} 、 R^{4a} 、 R^{5a} 、 R^{3b} 、 R^{4b} 、 R^{5b} 、 R^8 及び R^9 で表されるアルキル基、アリール基は、置換基の説明の項において、アルキル基、アリール基として説明し例示したものと同一である。 R^{3a} 、 R^{4a} 、 R^{5a} 、 R^{3b} 、 R^{4b} 、 R^{5b} 、 R^8 及び R^9 で表される1価の芳香族複素環基は、 R^2 で表される基の説明において、1価の芳香族複素環基として説明し例示したものと同一である。 R^{3b} 、 R^{4b} 、 R^{5b} 、 R^8 及び R^9 で表される基が置換基として有し得る、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシル基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アラルキル基、1価の芳香族複素環基は、置換基の説明の項において、例示し説明したものと同一である。

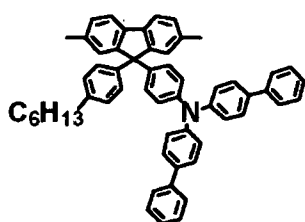
R^8 及び R^9 としては、本発明の高分子化合物の耐熱性の観点から、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキル基、非置換又は $C_1 \sim C_{12}$ アルキル基で置換されたアリール基が好ましく、非置換又は $C_1 \sim C_{12}$ アルキル基で置換されたアリール基がより好ましい。

$-N(R^8)(R^9)$ で表される基としては、ジフェニルアミノ基、ジ-4-トリルアミノ基、ジ-3-トリルアミノ基、ジ-(4-*t*-ブチルフェニル)アミノ基、ジ-(4-ヘキシルフェニル)アミノ基、ビス((3, 5-ジ-*t*-ブチル

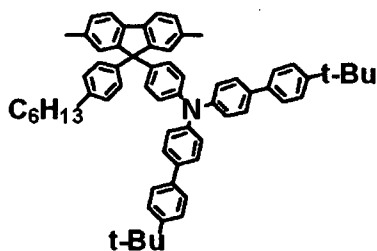
フェニル) アミノ基、フェニル-1-ナフチルアミノ基、フェニル-2-ナフチルアミノ基等が挙げられる。

5 R^{3a} 、 R^{4a} 、 R^{5a} 、 R^{3b} 、 R^{4b} 及び R^{5b} としては、本発明の高分子化合物の合成の容易さの観点から、水素原子、アルキル基、アリール基が好ましく、水素原子がより好ましい。

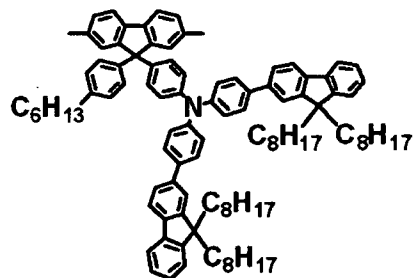
式 (1) で表される構成単位としては、以下の式 (1-001) ~ (1-008)、(1-001) ~ (1-009)、(1-001) ~ (1-002)、(1-001) ~ (1-003) で表される基；これらの基における水素原子が、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アラルキル基、1 価の芳香族複素環基、フッ素原子及びシアノ基からなる群から選ばれる基で置換された基が挙げられる。以下の式において、Me はメチル基、n-Bu は n-ブチル基、t-Bu は tert-ブチル基を表し、以下、同じである。



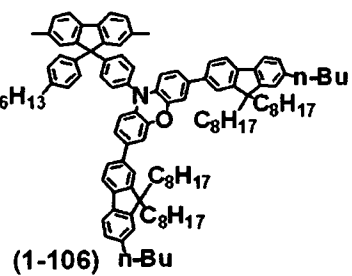
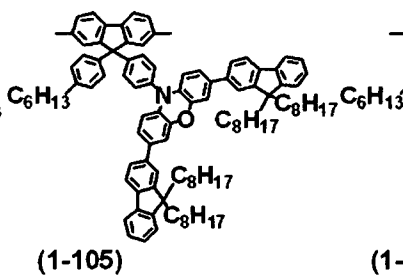
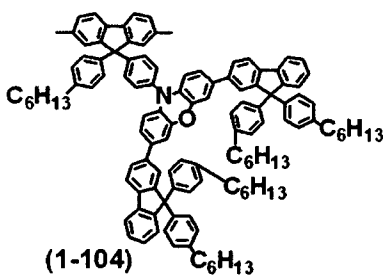
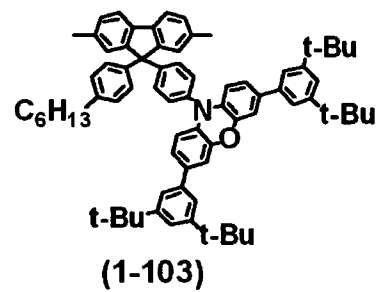
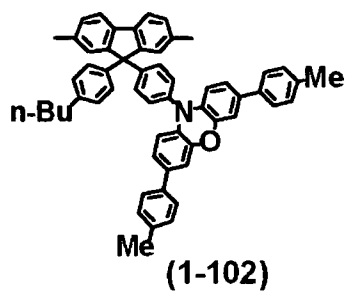
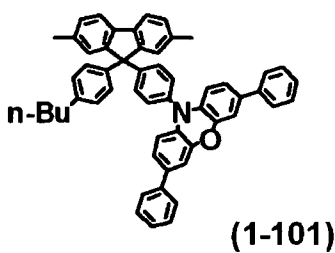
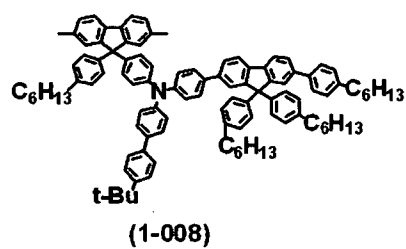
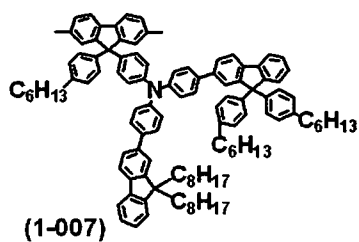
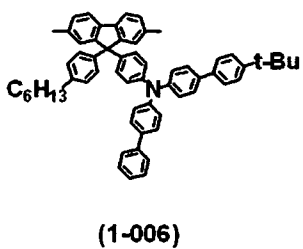
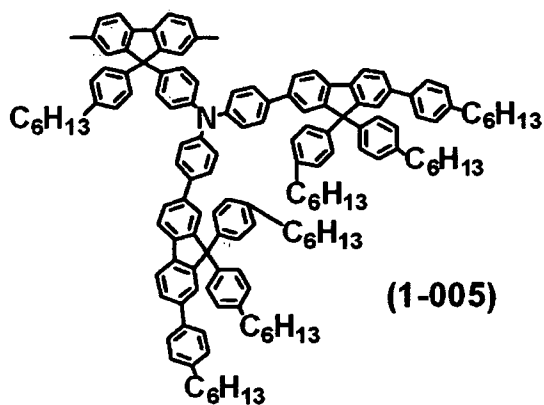
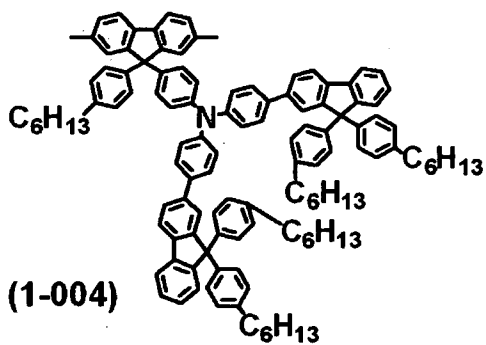
(1-001)

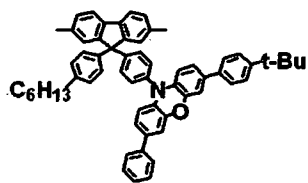


(1-002)

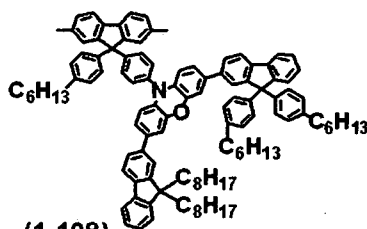


(1-003)

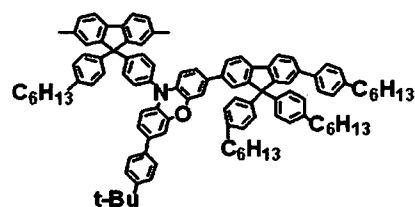




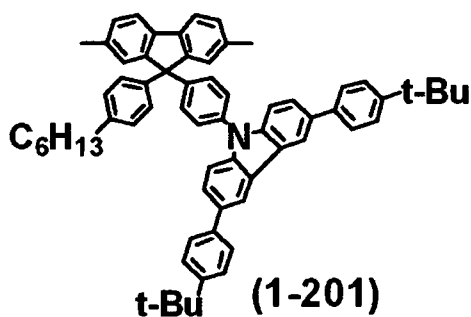
(1-107)



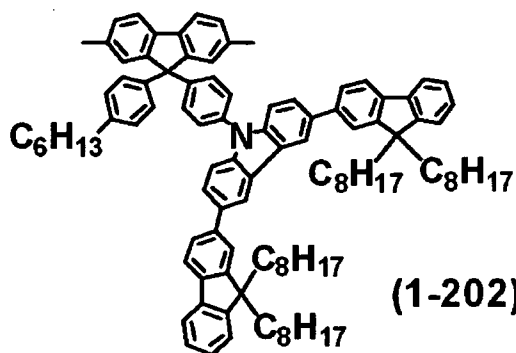
(1-108)



(1-109)

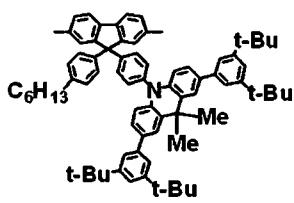


(1-201)

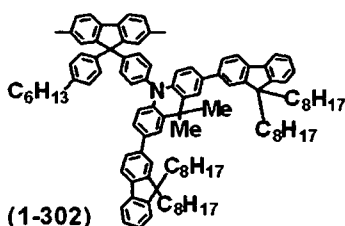


(1-202)

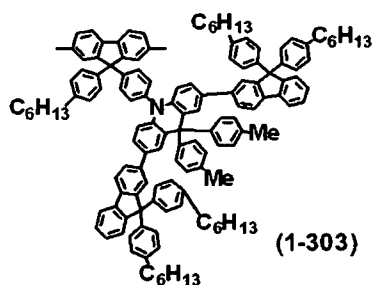
5



(1-301)



(1-302)

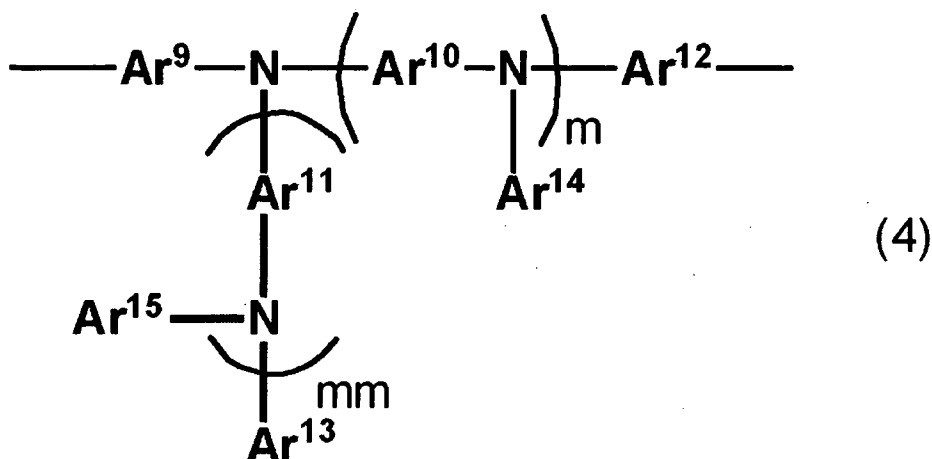


(1-303)

—式 (3) ~ (5) で表される構成単位—

本発明の高分子化合物は、式 (1 a) で表される構成単位に加えて、さらに、
 10 下記式 (3) ~ (5) で表される構成単位からなる群から選ばれる少なくとも一
 種の構成単位を含んでいてもよい。





〔式中、 Ar^8 及び Ar^{16} はそれぞれ独立に、アリーレン基、若しくは2価の芳香族複素環基、又は該アリーレン基及び該2価の芳香族複素環基からなる群から選ばれる同一若しくは異なる2個以上の基が直結した2価の基を表す。 Ar^9 、 Ar^{10} 、 Ar^{11} 及び Ar^{12} はそれぞれ独立に、アリーレン基、又は同一若しくは異なる2個以上のアリーレン基が直結した2価の基を表す。 Ar^{13} 、 Ar^{14} 及び Ar^{15} はそれぞれ独立に、アリール基又は1価の芳香族複素環基を表す。 Ar^8 及び Ar^{16} で表されるアリーレン基、2価の芳香族複素環基及び2価の基における水素原子は、各々、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシル基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アラルキル基、1価の芳香族複素環基、 $-\text{N}(\text{R}^8)(\text{R}^9)$ 、フッ素原子又はシアノ基で置換されていてもよい。 Ar^9 、 Ar^{10} 、 Ar^{11} 、 Ar^{12} 、 Ar^{13} 、 Ar^{14} 及び Ar^{15} で表される基における水素原子は、各々、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシル基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アラルキル基、1価の芳香族複素環基、フッ素原子又はシアノ基で置換されていてもよい。 Ar^{11} 、 Ar^{14} 及び Ar^{15} で表される基からなる群から選ばれる基は、該基と同一の窒素原子に結合する Ar^9 、 Ar^{10} 、 Ar^{11} 、 Ar^{12} 、 Ar^{13} 、 Ar^{14} 及び Ar^{15} で表される基からなる群から

ら選ばれる基と、互いに直結して、又は $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-C(=O)-$ 、 $-C(=O)-O-$ 、 $-N(R^6)-$ 、 $-C(=O)-N(R^6)-$ 又は $-C(R^6)(R^6)-$ で結合して、5～7員環を形成していてもよい。 m 及び mm はそれぞれ独立に、0又は1である。 X^1 は、 $-C(R^7)=C(R^7)-$ 又は $-C\equiv C-$ を表す。 R^7 は、水素原子、アルキル基、アリール基、1価の芳香族複素環基、フッ素原子又はシアノ基を表す。 R^7 で表される基は、置換基を有していてもよい。 Ar^{10} 、 Ar^{11} 、 Ar^{14} 及び Ar^{15} が複数ある場合、それらは、各々、同一であっても異なってもよい。 R^6 、 R^8 及び R^9 は、前記と同じ意味を表す。]

10 ・式(3)で表される構成単位

本発明の高分子化合物を用いて得られる発光素子の発光効率、該発光素子から得られる色度の調整の容易さ、発光素子の駆動電圧又は耐熱性の観点からは、本発明の高分子化合物は、式(3)で表される構成単位を含むことが好ましい。

Ar^8 で表されるアリーレン基は、芳香族炭化水素から水素原子2個を除いた原子団を意味し、縮合環を有する基を含む。アリーレン基は、炭素数が通常6～60であり、好ましくは6～48であり、より好ましくは6～30であり、さらに好ましくは6～14である。該炭素数には置換基の炭素数は含まれない。アリーレン基としては、1,4-フェニレン基、1,3-フェニレン基、1,2-フェニレン基等のフェニレン基；ナフタレン-1,4-ジイル基、ナフタレン-1,5-ジイル基、ナフタレン-2,6-ジイル基等のナフタレンジイル基；アントラセン-1,4-ジイル基、アントラセン-1,5-ジイル基、アントラセン-2,6-ジイル基、アントラセン-9,10-ジイル基等のアントラレンジイル基；フェナントレン-2,7-ジイル基等のフェナントレンジイル基；4,5-ジヒドロフェナントレン-2,7-ジイル基等のジヒドロフェナントレンジイル基；ナフタセン-1,7-ジイル基、ナフタセン-2,8-ジイル基、ナフタセン-5,12-ジイル基等のナフタセンジイル基；フルオレン-2,7-ジイル基、フルオレン-3,6-ジイル基等のフルオレンジイル基；ピレン-1,6-ジイル基、ピレン-1,8-ジイル基、ピレン-2,7-ジイル基、ピレン-4,9

ージイル基等のピレンジイル基；ペリレンー2，5ージイル基、ペリレンー2，8ージイル基、ペリレンー3，9ージイル基、ペリレンー3，10ージイル基等のペリレンジイル基、7Hーベンゾ[c]フルオレンー5，9ージイル基等のベンゾフルオレンジイル基、6，12ージヒドロインデノ[1，2-b]フルオレンー2，8ージイル基等のジヒドロインデノフルオレンジイル基等が挙げられる。これらのアリーレン基における水素原子は、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシル基、アリール基、アリーロキシ基、アリールチオ基、アラルキル基、1価の芳香族複素環基、 $-N(R^8)(R^9)$ 、フッ素原子又はシアノ基で置換されていてもよい。 Ar^8 で表される基は、式(1a)で表される基とは異なる。

Ar^8 で表される2価の芳香族複素環基は、芳香族複素環式化合物から水素原子2個を除いた原子団であり、縮合環を有する基も含む。2価の芳香族複素環基は、炭素数が通常3～60であり、好ましくは3～20である。該炭素数には置換基の炭素数は含まれない。2価の芳香族複素環基としては、オキサジアゾールー2，5ージイル基；チアジアゾールー2，5ージイル基；チアゾールー2，5ージイル基等のチアゾールジイル基；オキサゾールー2，5ージイル基等のオキサゾールジイル基；チオフエンー2，5ージイル基等のチオフエンジイル基；ピロールー2，5ージイル基等のピロールジイル基；フランー2，5ージイル基等のフランジイル基；ピリジンー2，5ージイル基、ピリジンー2，6ージイル基等のピリジンジイル基；ピラジンー2，5ージイル基等のピラジンジイル基；ピリミジンー4，6ージイル基等のピリミジンジイル基；トリアジンー2，4ージイル基；ピリダジンー3，6ージイル基等のピリダジンジイル基；キノリンー2，6ージイル基等のキノリンジイル基；イソキノリンー1，4ージイル基等のイソキノリンジイル基；キノキサリンー5，8ージイル基等のキノキサリンジイル基；カルバゾールー2，7ージイル基、カルバゾールー3，6ージイル基等のカルバゾールジイル基；フェノキサジンー3，7ージイル基、フェノキサジンー2，8ージイル基等のフェノキサジンジイル基；フェノチアジンー3，7ージイル

基、フェノチアジン-2, 8-ジイル基等のフェノチアジンジイル基；ベンゾ[1, 2, 5]チアジアゾール-4, 7-ジイル基等のベンゾチアジアゾールジイル基；ベンゾチアジアゾール-4, 7-ジイル基等のベンゾチアジアゾールジイル基；ジベンゾシロール-2, 7-ジイル基、ジベンゾシロール-3, 6-ジイル基等のジベンゾシロールジイル基等が挙げられる。これらの2価の芳香族複素環基における水素原子は、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシル基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アラールキル基、1価の芳香族複素環基、 $-N(R^8)(R^9)$ 、フッ素原子、シアノ基等で置換されていてもよい。

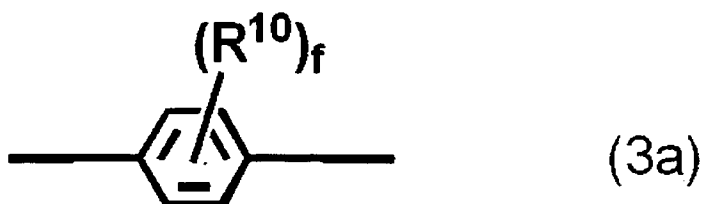
10

式(3)中、 Ar^8 は、好ましくは、1, 4-フェニレン基、1, 3-フェニレン基、ナフタレン-1, 4-ジイル基、ナフタレン-1, 5-ジイル基、ナフタレン-2, 6-ジイル基、アントラセン-2, 6-ジイル基、アントラセン-9, 10-ジイル基、フルオレン-2, 7-ジイル基、フルオレン-3, 6-ジイル基、ピレン-1, 6-ジイル基、ピレン-1, 8-ジイル基、ペリレン-3, 9-ジイル基、7H-ベンゾ[c]フルオレン-5, 9-ジイル基、6, 12-ジヒドロインデノ[1, 2-b]フルオレン-2, 8-ジイル基、オキサジアゾール-2, 5-ジイル基、チアジアゾール-2, 5-ジイル基、チオフェン-2, 5-ジイル基、ピリジン-2, 5-ジイル基、キノリン-2, 6-ジイル基、イソキノリン-1, 4-ジイル基、キノキサリン-5, 8-ジイル基、カルバゾール-2, 7-ジイル基、カルバゾール-3, 6-ジイル基、フェノキサジン-2, 7-ジイル基、フェノキサジン-3, 6-ジイル基、フェノチアジン-2, 7-ジイル基、フェノチアジン-3, 6-ジイル基、ベンゾ[1, 2, 5]チアジアゾール-4, 7-ジイル基であり、より好ましくは、1, 4-フェニレン基、ナフタレン-1, 4-ジイル基、ナフタレン-2, 6-ジイル基、アントラセン-2, 6-ジイル基、アントラセン-9, 10-ジイル基、フルオレン-2, 7-ジイル基、ピレン-1, 6-ジイル基、ペリレン-3, 9-ジイル基、7H-ベンゾ[c]フルオレン-5, 9-ジイル基、6, 12-ジヒドロインデノ[1

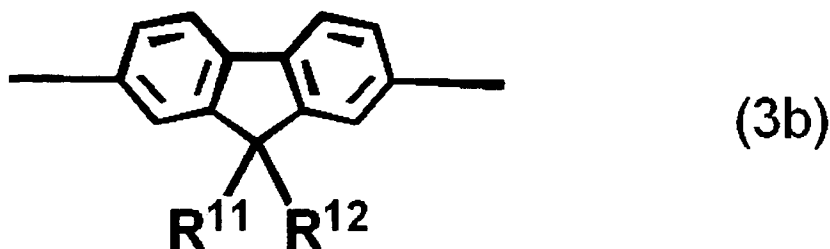
25

， 2-b] フルオレン-2， 8-ジイル基、キノリン-2， 6-ジイル基、キノキサリン-5， 8-ジイル基、フェノキサジン-3， 7-ジイル基、フェノチアジン-3， 7-ジイル基、ベンゾ[1， 2， 5]チアジアゾール-4， 7-ジイル基である。これらの基における水素原子は、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アラルキル基、1価の芳香族複素環基、 $-N(R^8)(R^9)$ 、フッ素原子、シアノ基等で置換されていてもよい。

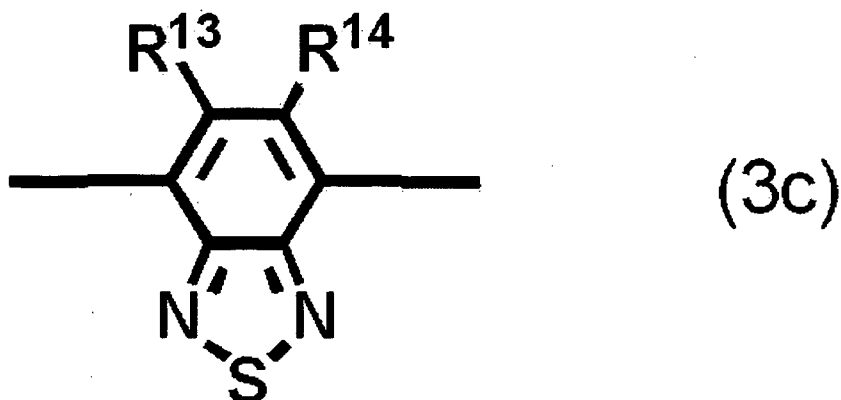
式(3)中、 Ar^8 は、本発明の高分子化合物の耐熱性の観点から、下記式(3a)、(3b)のいずれかで表される2価の基であることが好ましく、本発明の高分子化合物を用いて得られる発光素子の色度調整の容易さ、駆動電圧の観点から、下記式(3b)、(3c)のいずれかで表される2価の基であることが好ましく、本発明の高分子化合物を用いて得られる発光素子の発光効率の観点から、下記式(3b)、(3d)、(3e)のいずれかで表される2価の基であることが好ましく、下記式(3b)で表される2価の基であることが特に好ましい。



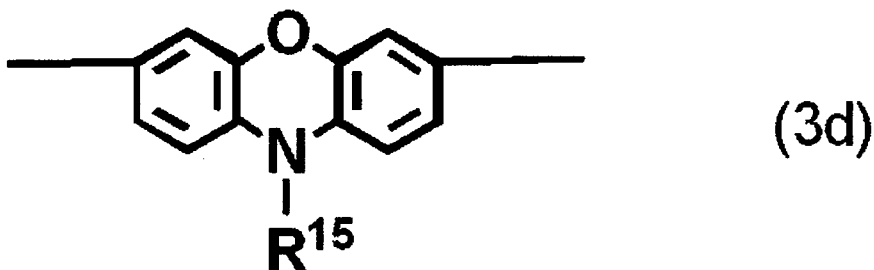
〔式中、 R^{10} は、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アラルキル基、1価の芳香族複素環基、 $-N(R^8)(R^9)$ 、フッ素原子又はシアノ基を表す。 f は0～4の整数を表す。 R^{10} が複数存在する場合には、それらは同一であっても異なってもよい。〕



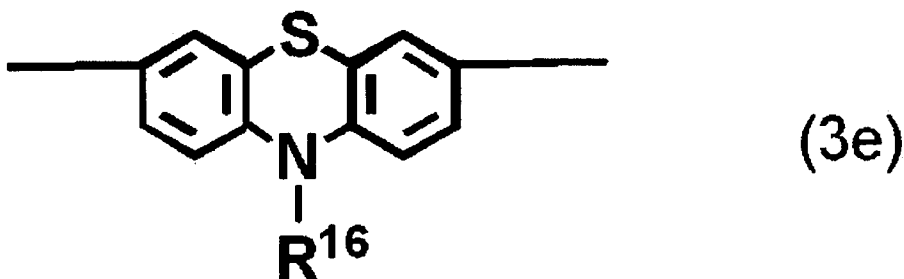
〔式中、 R^{11} 及び R^{12} はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アリール基、アラルキル基又は 1 価の芳香族複素環基を表す。 R^{11} と R^{12} は一緒になって環を形成していてもよい。〕



- 5 〔式中、 R^{13} 及び R^{14} はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アラルキル基、1 価の芳香族複素環基、 $-N(R^8)(R^9)$ 、フッ素原子又はシアノ基を表す。〕



- 10 〔式中、 R^{15} は、水素原子、アルキル基、アリール基、1 価の芳香族複素環基又はアラルキル基を表す。〕



〔式中、 R^{16} は、水素原子、アルキル基、アリール基、1 価の芳香族複素環基又はアラルキル基を表す。〕

式(3a)中、 R^{10} は、好ましくは、アルキル基、アルコキシ基、置換カルボニル基、アリール基、アリールオキシ基、アラルキル基、1価の芳香族複素環基、 $-N(R^8)(R^9)$ であり、より好ましくは、アルキル基、アルコキシ基又はアリール基である。アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシル基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アラルキル基は、 R^2 の置換基として説明し例示したものと同一である。 R^{10} で表される1価の芳香族複素環基は、 R^2 で表される基としての1価の芳香族複素環基の項で説明し例示したものと同一である。

10

式(3a)中、 f は、好ましくは1~4の整数であり、より好ましくは1、2であり、さらに好ましくは2である。

式(3b)中の R^{11} 及び R^{12} 、式(3d)中の R^{15} 及び式(3e)中の R^{16} は、好ましくは、アルキル基、アリール基、1価の芳香族複素環基であり、より好ましくは、アルキル基、アリール基である。アルキル基、アリール基及びアラルキル基は、 R^2 の置換基として説明し例示したものと同一である。 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{15} 、 R^{16} で表される1価の芳香族複素環基は、 R^2 で表される基としての1価の芳香族複素環基の項で説明し例示したものと同一である。

20

式(3c)中、 R^{13} 及び R^{14} は、好ましくは、水素原子、アルキル基である。アルキル基は、 R^2 の置換基として説明し例示したものと同一である。 R^{13} 、 R^{14} で表される1価の芳香族複素環基は、 R^2 で表される基としての1価の芳香族複素環基の項で説明し例示したものと同一である。

25

・式(4)で表される構成単位

本発明の高分子化合物の耐熱性向上、または該高分子化合物を用いて得られる発光素子の発光効率、又は耐熱性の観点からは、本発明の高分子化合物は、式(

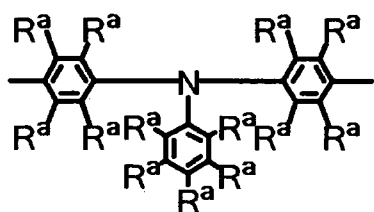
4) で表される構成単位を含むことが好ましい。

式 (4) 中、 $Ar^9 \sim Ar^{12}$ で表されるアリーレン基、同一若しくは異なる 2 個以上のアリーレン基が直結した 2 価の基は、式 (2) 中の Ar^1 として説明し

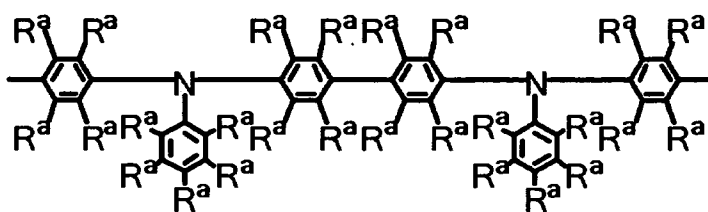
5 例示したものと同一である。

式 (4) 中、 $Ar^{13} \sim Ar^{15}$ で表されるアリール基、1 価の芳香族複素環基は、式 (2) 中の Ar^2 及び Ar^3 として説明し例示したものと同一である。

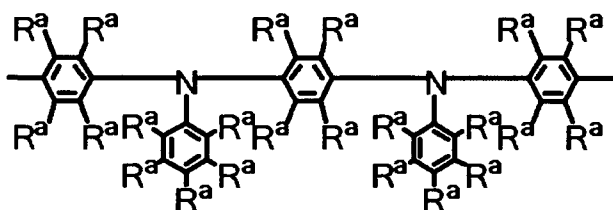
- 10 式 (4) で表される構成単位としては、好ましくは、下記式 (4 a) ~ (4 d) で表される構成単位が挙げられる。これらの式中、 R^a は、水素原子、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アラルキル基、1 価の芳香族複素環基、フッ素原子又はシアノ基を表し、好ましくは、水素原子、アルキル
- 15 基である。複数存在する R^a は、同一であっても異なってもよい。アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アラルキル基、1 価の芳香族複素環基は、式 (1 a) 中の R^2 が置換基を有する場合の置換基の項で説明し例示したものと同一である。



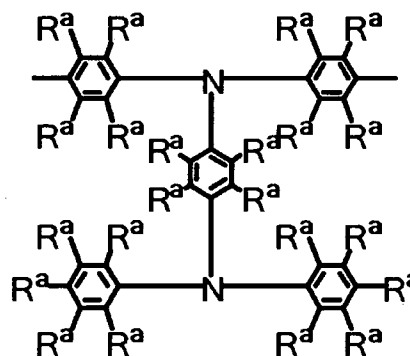
(4a)



(4b)



(4c)



(4d)

・式(5)で表される構成単位

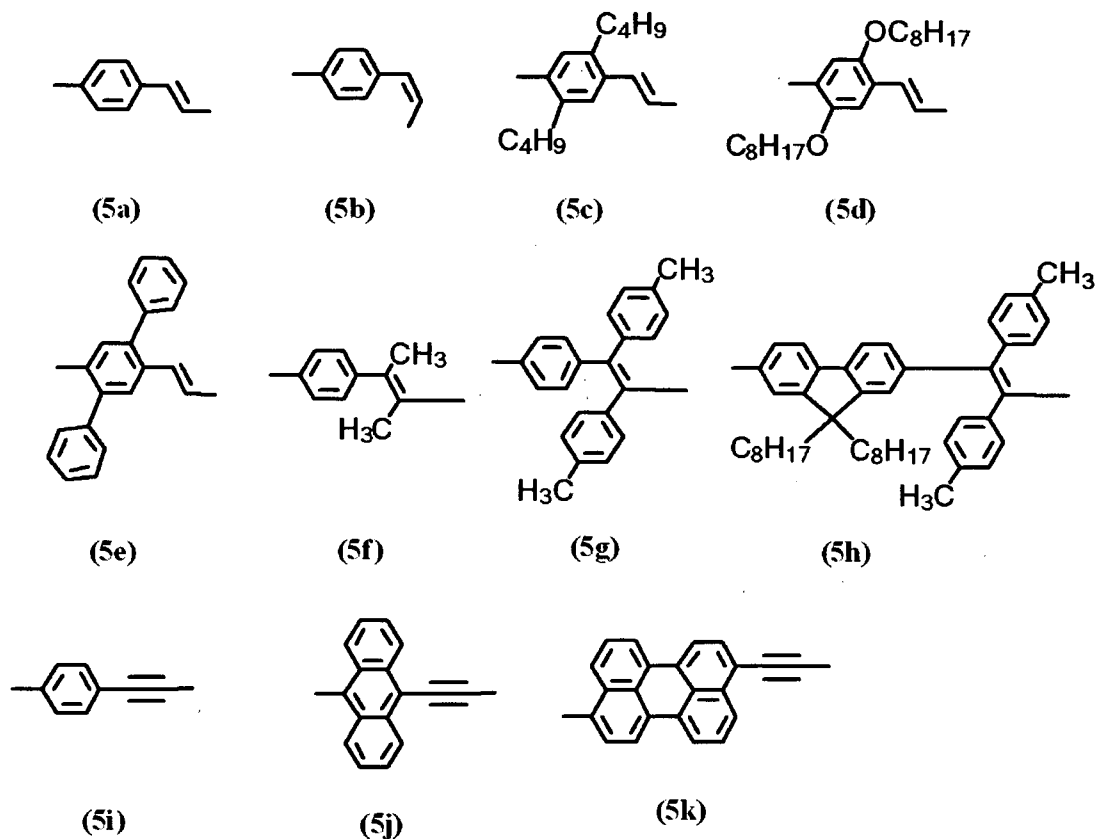
本発明の高分子化合物は、該高分子化合物を用いた発光素子の色度を調節する
5 観点から、式(5)で表される構成単位を含んでいてもよい。

式(5)中、 Ar^{16} で表されるアリーレン基、2価の芳香族複素環基、該アリーレン基及び該2価の芳香族複素環基からなる群から選ばれる同一若しくは異なる2個以上の基が直結した2価の基は、 Ar^8 として説明し例示したものと同一である。

10

式(5)中、 X^1 に含まれ得る R^7 は、好ましくは、水素原子、アルキル基、アリール基であり、より好ましくは、水素原子、アリール基である。アルキル基及びアリール基は、置換基を有していてもよい。アルキル基及びアリール基は、式(1a)中の R^2 の置換基として説明し例示したものと同一である。 R^7 で表される
15 1価の芳香族複素環基は、 R^2 で表される基としての1価の芳香族複素環基の項で説明し例示したものと同一である。

式(5)で表される構成単位としては、下記式(5a)～(5k)で表される構成単位が好ましい。



5

—本発明の高分子化合物—

本発明の高分子化合物は、発光素子の発光効率の観点から、全構成単位の合計モル数に対する、式(1a)で表される構成単位のモル数が、0.1～100%であることが好ましく、0.5～50%であることがより好ましく、1～20%であることがさらに好ましい。

10

本発明の高分子化合物において、式(1a)で表される構成単位以外に、さらに式(3)～(5)で表される構成単位を含有する場合、発光素子の発光効率の観点から、全構成単位の合計モル数に対する、式(1a)、(3)～(5)で表される構成単位の合計モル数が、90～100%であることが好ましく、95～

15

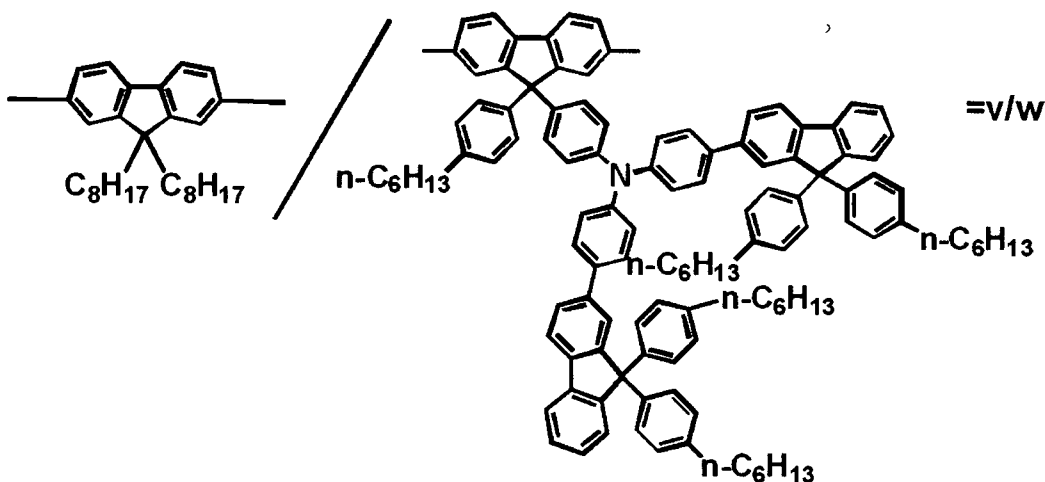
100%であることがより好ましく、98～100%であることがさらに好ましく、100%であることが特に好ましい。

さらに、本発明の高分子化合物において、式(1a)で表される構成単位以外
5 に、さらに式(3)、(4)で表される構成単位を含有する場合、高分子化合物の耐熱性、発光素子の発光効率の観点から、全構成単位の合計モル数に対する、式(1a)、(3)、(4)で表される構成単位の合計モル数が90～100%であることが好ましく、95～100%であることがより好ましい。

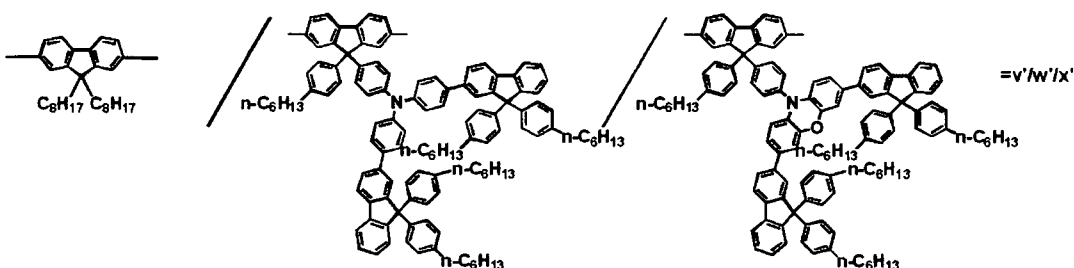
10 本発明の高分子化合物としては、式(1a)で表される構成単位に加えて、式(3)、(4)で表される構成単位からなる群から選ばれる少なくとも一種の構成単位とからなる高分子化合物が好ましい。

本発明の高分子化合物としては、その他にも、式(1)で表される構成単位からなる高分子化合物；式(1)及び(3a)で表される構成単位からなる高分子化合物；式(1)、(3a)及び(3b)で表される構成単位からなる高分子化合物；式(1)、(3a)及び(4a)で表される構成単位からなる高分子化合物；式(1)、(3a)、(3b)及び(4a)で表される構成単位からなる高分子化合物；式(1)及び(3b)で表される構成単位からなる高分子化合物；
20 式(1)、(3b)及び(3c)で表される構成単位からなる高分子化合物；式(1)、(3b)、(3c)及び(3d)で表される構成単位からなる高分子化合物；式(1)、(3b)、(3c)及び(4d)で表される構成単位からなる高分子化合物；式(1)、(3b)及び(3d)で表される構成単位からなる高分子化合物；式(1)、(3b)及び(3e)で表される構成単位からなる高分子化合物；式(1)、(3b)及び(4a)で表される構成単位からなる高分子化合物；式(1)、(3b)及び(4b)で表される構成単位からなる高分子化合物；式(1)、(3b)及び(4c)で表される構成単位からなる高分子化合物；式(1)、(3b)及び(4d)で表される構成単位からなる高分子化合物

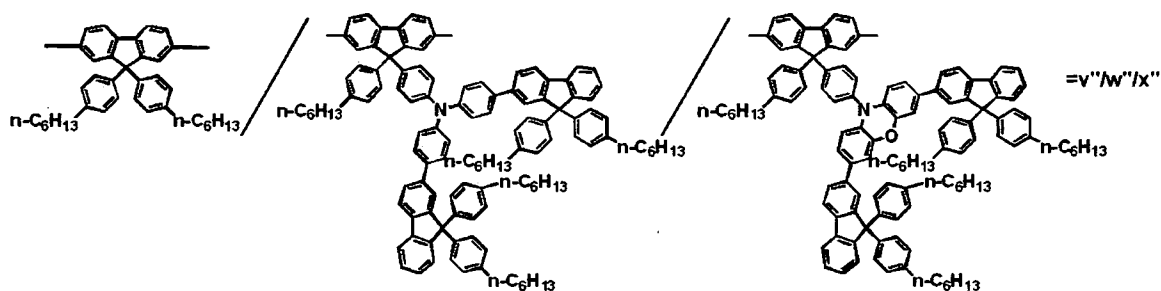
- ；式（１）及び（４ a）で表される構成単位からなる高分子化合物；式（１）及び（４ b）で表される構成単位からなる高分子化合物；式（１）及び（４ c）で表される構成単位からなる高分子化合物；式（１）及び（４ d）で表される構成単位からなる高分子化合物が挙げられる。本発明の高分子化合物の具体例として
- 5 は、以下の高分子化合物が挙げられる。式中、 v/w 、 $v'/w'/x'$ 、 $v''/w''/x''$ 、 $v'''/w'''/x'''$ 、 $v^{I\ V}/w^{I\ V}/x^{I\ V}$ 、 $v^V/w^V/x^V$ は、２種又は３種の構成単位のモル比を表す。



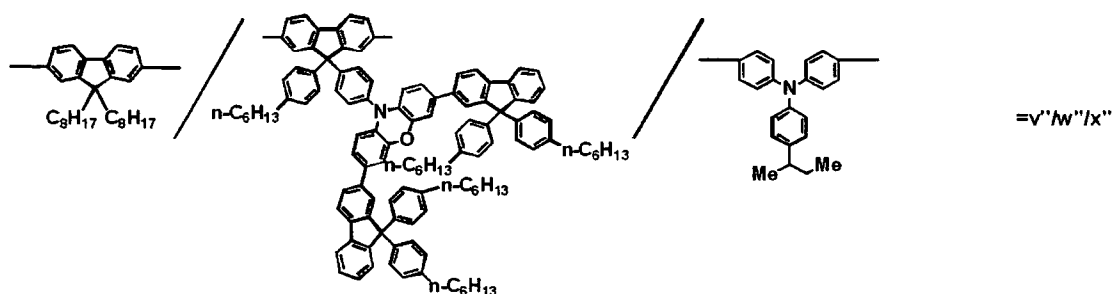
- 10 [式中、 v は 0～0.99 の数であり、 w は 0.01～1 の数であり、 $v + w = 1$ である。]



- 15 [式中、 v' は 0～0.98 の数であり、 w' は 0.01～0.99 の数であり、 x' は 0.01～0.99 の数であり、 $v' + w' + x' = 1$ である。]

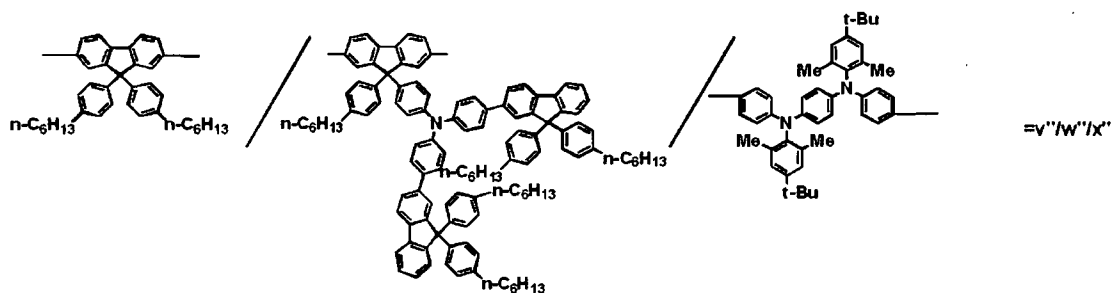


[式中、 v'' は0～0.98の数であり、 w'' は0.01～0.99の数であり、 x'' は0.01～0.50の数であり、 $v'' + w'' + x'' = 1$ である。]

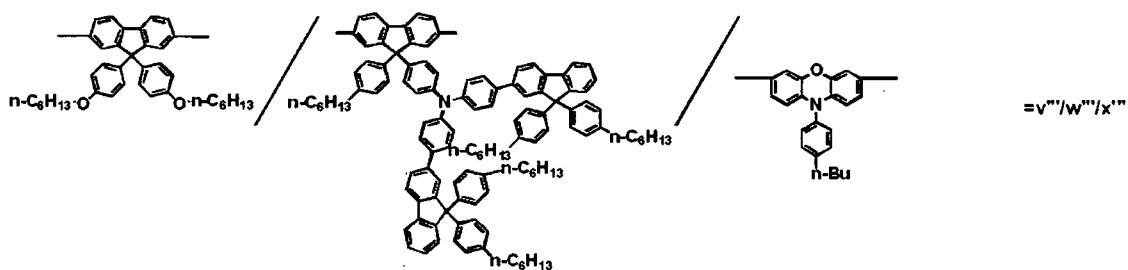


5

[式中、 v'' は0～0.98の数であり、 w'' は0.01～0.99の数であり、 x'' は0.01～0.50の数であり、 $v'' + w'' + x'' = 1$ である。]

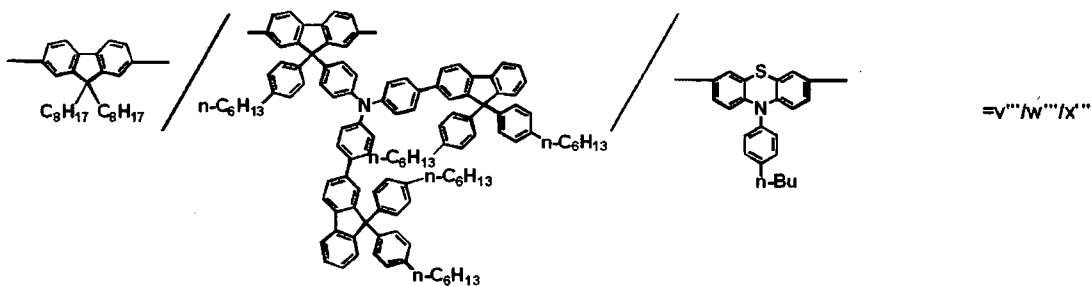


10 [式中、 v'' は0～0.98の数であり、 w'' は0.01～0.99の数であり、 x'' は0.01～0.50の数であり、 $v'' + w'' + x'' = 1$ である。]

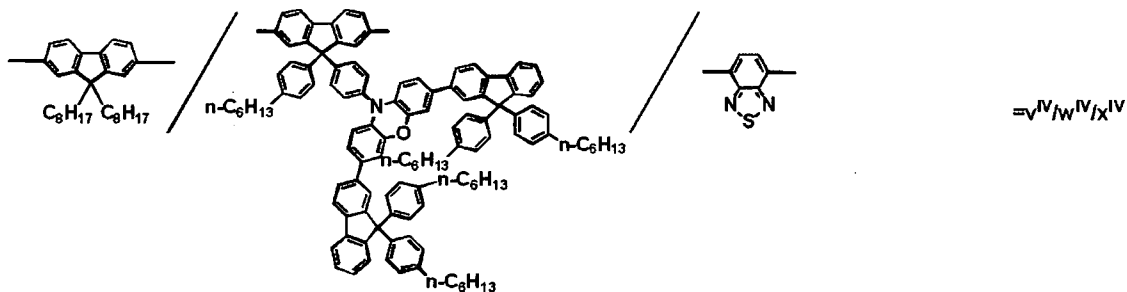


[式中、 v''' は0～0.98の数であり、 w''' は0.01～0.99の数であり、 x''' は0.01～0.50の数であり、 $v''' + w''' + x''' = 1$ である。]

5

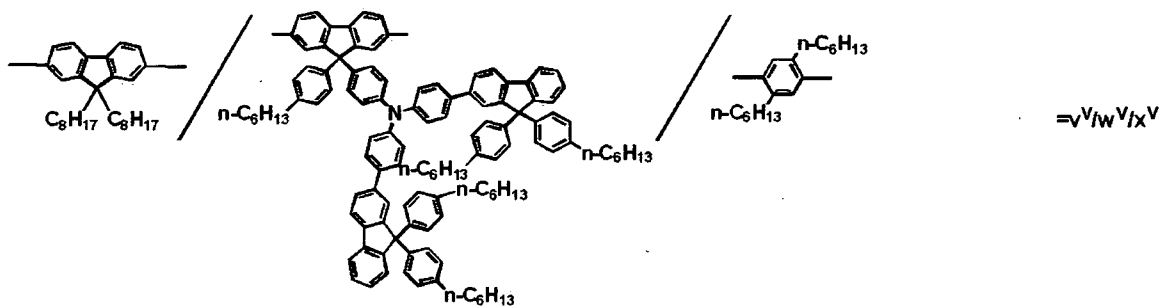


[式中、 v''' は0～0.98の数であり、 w''' は0.01～0.99の数であり、 x''' は0.01～0.50の数であり、 $v''' + w''' + x''' = 1$ である。]



10

[式中、 v^{IV} は0～0.98の数であり、 w^{IV} は0.01～0.99の数であり、 x^{IV} は0.01～0.50の数であり、 $v^{IV} + w^{IV} + x^{IV} = 1$ である。]



〔式中、 v^v は0～0.98の数であり、 w^v は0.01～0.99の数であり、 x^v は0.01～0.50の数であり、 $v^v + w^v + x^v = 1$ である。〕

- 5 本発明の高分子化合物の末端基は、重合活性基がそのまま残っていると、該高分子化合物を発光素子の作製に用いた場合に発光特性や寿命が低下する可能性があるため、安定な基であることが好ましい。末端基は、主鎖と共役結合していることが好ましく、炭素-炭素結合を介してアリール基又は1価の芳香族複素環基と結合していることが好ましい。

10

本発明の高分子化合物において、式(1a)で表される構成単位、式(3)～(5)で表される構成単位は、それぞれ、一種のみ含まれていても二種以上を組み合わせて含まれていてもよい。

- 15 本発明の高分子化合物は、線状ポリマー、分岐ポリマー、ハイパーブランチポリマー、環状ポリマー、楕円ポリマー、星型ポリマー、網目ポリマー等の任意の形状を有していてもよく、それぞれの形状を有する、ホモポリマー、交互コポリマー、周期コポリマー、ランダムコポリマー、ブロックコポリマー、グラフトコポリマー等の任意の組成、規則性を有するポリマーであってもよい。

20

本発明の高分子化合物は、発光材料、電荷輸送材料等として有用であり、使用する際には、その他の化合物と併用し、後述の組成物として用いてもよい。

本発明の高分子化合物のゲルパーミエーションクロマトグラフィー（以下、「

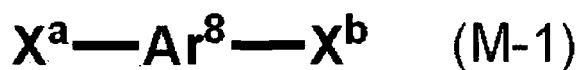
GPC」と言う)によるポリスチレン換算の数平均分子量 (M_n) は、通常、 $1 \times 10^3 \sim 1 \times 10^8$ であり、好ましくは $1 \times 10^4 \sim 1 \times 10^6$ である。本発明の高分子化合物のポリスチレン換算の重量平均分子量 (M_w) は、通常、 $1 \times 10^3 \sim 1 \times 10^8$ であり、成膜性の観点、発光素子の発光効率の観点から、好ましくは $1 \times 10^4 \sim 5 \times 10^6$ であり、より好ましくは $3 \times 10^4 \sim 1 \times 10^6$ であり、さらに好ましくは $5 \times 10^4 \sim 5 \times 10^5$ である。

発光素子等を作製するための様々なプロセスに対する耐久性や、発光素子の駆動中の発熱による安定性、耐熱性の観点から、本発明の高分子化合物のガラス転移温度は 100°C 以上が好ましい。

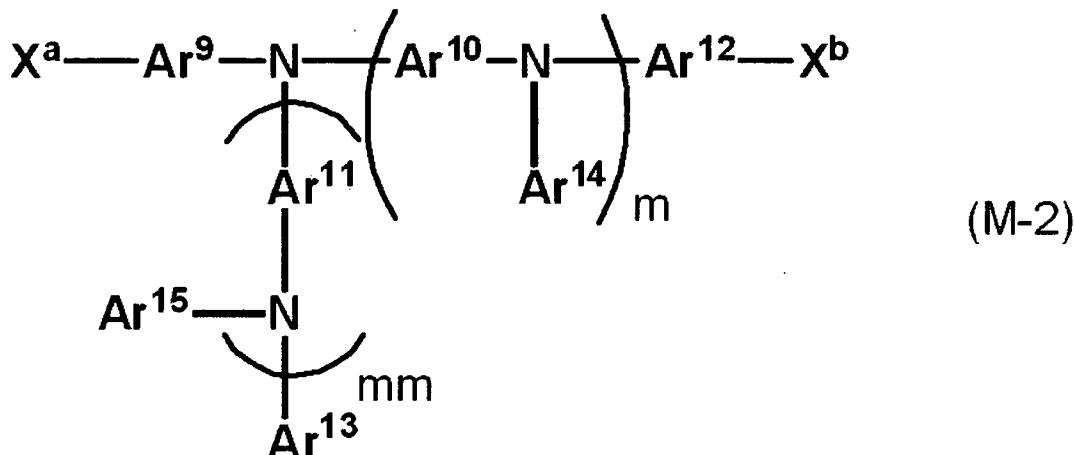
本発明の高分子化合物は、通常、固体状態で蛍光又は燐光を発し、発光素子の材料として有用である。この高分子化合物を用いた発光素子は、高発光効率で駆動できる高性能の発光素子である。したがって、該発光素子は、液晶ディスプレイのバックライト、照明用としての曲面状や平面状の光源、セグメントタイプの表示素子、ドットマトリックスのフラットパネルディスプレイ等の表示装置に有用である。さらに、本発明の高分子化合物は、レーザー用色素、有機太陽電池用材料、有機トランジスタ用の有機半導体、導電性薄膜、有機半導体薄膜等の伝導性薄膜用材料、蛍光や燐光を発する発光性薄膜材料としても用いることができる。

・高分子化合物の製造方法

本発明の高分子化合物は、例えば、用いる重合反応に適した官能基を有する、式 (A) で表される単量体を、必要に応じて、下記式 (M-1) ~ (M-3) で表される化合物からなる群から選ばれる化合物とともに、必要に応じて、有機溶媒に溶解させ、アルカリや適当な触媒、配位子となる化合物を用いた公知のアールカップリング等の重合方法により重合又は共重合させることにより合成することができる。



〔式中、 $A r^8$ 、 X^a 及び X^b は、前記と同じ意味を有する。〕



〔式中、 $\text{Ar}^9 \sim \text{Ar}^{15}$ 、 m 、 mm 、 X^a 及び X^b は、前記と同じ意味を有する。

5]



〔式中、 Ar^{16} 、 X^1 、 X^a 及び X^b は、前記と同じ意味を有する。〕

式（Ａ）中、 R^{20} 、 R^{21} 及び R^{22} で表されるアルキル基は、それぞれ独立に、直鎖、分岐又は環状のいずれでもよく、炭素数が通常１～２０であり、好ましくは１～１５であり、より好ましくは１～１０である。

式(A)中、 R^{20} で表されるアルキル基は、 R^2 の置換基の説明において説明し例示したものと同一である。

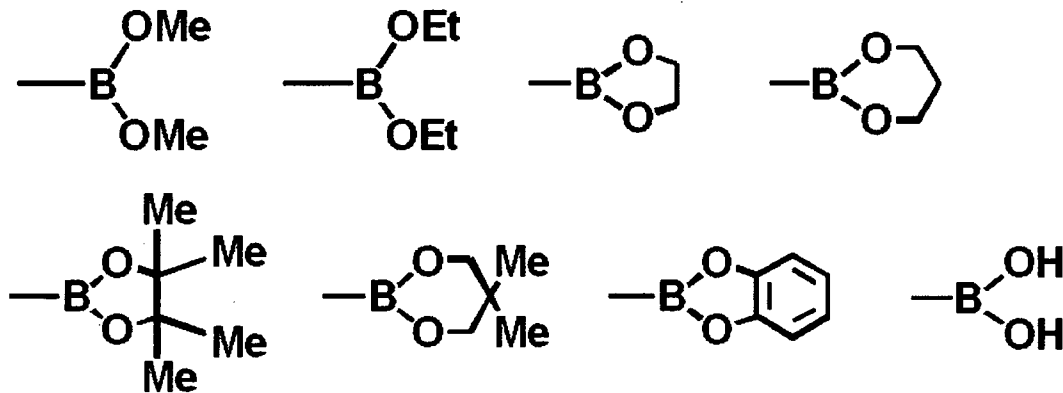
15

式(A)中、 R^{20} で表されるアリール基は、 R^2 で表されるアリール基として説明し例示したものと同じであるが、本発明の高分子化合物の合成の容易さ、及び重合の反応性の観点から、フェニル基、4-トリル基、4-メトキシフェニル基、4-ニトロフェニル基、3-ニトロフェニル基、2-ニトロフェニル基、4-

ートリフルオロメチルフェニル基が特に好ましい。

式 (A) 中、 $-O-S(=O)_2 R^{20}$ で表される基としては、メタンスルホニル
 オキシ基、トリフルオロメタンスルホニルオキシ基、フェニルスルホニルオキシ
 5 基、4-メチルフェニルスルホニルオキシ基、4-トリフルオロメチルフェニル
 スルホニルオキシ基等が挙げられる。

式 (A) 中、 $-B(OR^{21})_2$ で表される基としては、以下の式で表される基等
 が挙げられる。



式 (A) 中、 $-BF_4 Q^1$ で表される基としては、以下の式で表される基等が挙
 げられる。



式 (A) 中、 $-Sn(R^{22})_3$ で表される基としては、トリメチルスタナニル基
 、トリエチルスタナニル基、トリブチルスタナニル基等が挙げられる。

式 (A)、式 (M-1) ~ (M-3) で表される化合物は、予め合成し単離し
 20 てから用いてもよいし、反応系中で合成してそのまま用いてもよいが、本発明の
 高分子化合物を発光素子に用いる場合、その純度が発光特性の素子の性能に影響

を与えるため、重合前の単量体を蒸留、昇華精製、再結晶等で精製した後に縮合重合することが好ましい。

縮合重合の方法としては、Suzukiカップリング反応により重合する方法（ケミカル レビュー（Chem. Rev.），第95巻，2457-2483頁（1995年））、Grignard反応により重合する方法（Bull. Chem. Soc. Jpn.，第51巻，2091頁（1978年））、Ni（0）触媒により重合する方法（プロGRESS イン ポリマー サイエンス（Progress in Polymer Science），第17巻，1153～1205頁，1992年）、Stilleカップリング反応を用いる方法（ヨーロッパアン ポリマー ジャーナル（European Polymer Journal），第41巻，2923-2933頁（2005年））等が挙げられるが、Suzukiカップリング反応により重合する方法、Ni（0）触媒により重合する方法が原料の合成しやすさと重合反応操作の簡便性の観点から好ましく、高分子化合物の構造制御のしやすさの観点からSuzukiカップリング反応により重合する方法がより好ましい。

15

式（M-1）～（M-3）中、 X^a 及び X^b は、本発明の高分子化合物の合成の容易さの観点から、臭素原子、ヨウ素原子、塩素原子、 $-B(OR^{21})_2$ 、 $-BF_4Q^1$ 、 $-Sn(R^{22})_3$ であることが好ましく、特に、縮合重合の方法としてSuzukiカップリング反応により重合する方法を選択する場合は、式（A）、（M-1）～（M-3）で表される化合物の合成の簡便さや取り扱いやすさの観点から、臭素原子、ヨウ素原子、塩素原子、 $-B(OR^{21})_2$ であることがより好ましく、臭素原子、 $-B(OR^{21})_2$ であることがさらに好ましい。

20

縮合重合の方法としては、式（A）、（M-1）～（M-3）で表される化合物を、必要に応じて、適切な触媒や適切な塩基とともに反応させる方法が挙げられる。特に、縮合重合の方法としてSuzukiカップリング反応により重合する方法を選択する場合は、本発明の高分子化合物の分子量を十分なものとするために、式（A）、（M-1）～（M-3）で表される化合物が有する、 X^a 及び X^b で表

25

される臭素原子、ヨウ素原子、塩素原子の合計モル数と $-B(OR^{21})_2$ で表される基の合計モル数の比率が0.95～1.05となるようにすることが好ましく、0.98～1.02となるようにすることがより好ましい。

- 5 触媒としては、Suzukiカップリング反応による重合においては、パラジウム[テトラキス(トリフェニルホスフィン)]、[トリス(ジベンジリデンアセトン)]ジパラジウム、パラジウムアセテート、ジクロロビストリフェニルホスフィンパラジウム等のパラジウム錯体等の遷移金属錯体と、必要に応じて、さらにトリフェニルホスフィン、トリ(t-ブチルホスフィン)、トリシクロヘキシルホスフィン等の配位子とからなる触媒が挙げられる。Ni(0)触媒による重合においては、ニッケル[テトラキス(トリフェニルホスフィン)]、[1,3-ビス(ジフェニルホスフィノ)プロパン]ジクロロニッケル、[ビス(1,4-シクロオクタジェン)]ニッケル等のニッケル錯体等の遷移金属錯体と、必要に応じて、さらにトリフェニルホスフィン、トリ(t-ブチルホスフィン)、トリシクロヘキシルホスフィン、ジフェニルホスフィノプロパン、ビピリジル等の配位子とからなる触媒が挙げられる。触媒は、予め合成してから用いてもよいし、反応系中で調製してそのまま用いてもよい。触媒は、一種単独で用いても二種以上を併用してもよい。

- 20 触媒を用いる場合には、触媒の量は、触媒としての有効量であればよい。式(A)、(M-1)～(M-3)で表される化合物のモル数の合計に対する遷移金属化合物の量は、通常、0.00001～3モル当量であり、好ましくは0.00005～0.5モル当量であり、より好ましくは0.0001～0.2モル当量である。

- 25 Suzukiカップリング反応による重合においては、通常塩基の存在下で反応を行う。塩基としては、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸セシウム、フッ化カリウム、フッ化セシウム、リン酸三カリウム等の無機塩基、フッ化テトラブチルアンモニウム、塩化テトラブチルアンモニウム、臭化テトラブチルアンモニウム、

水酸化テトラブチルアンモニウム等の有機塩基が挙げられる。

- 塩基を用いる場合には、その量は、式 (A)、(M-1) ~ (M-3) で表される化合物のモル数の合計に対して、通常、0.5~20モル当量であり、好ましくは1~10モル当量である。

縮合重合は、溶媒の非存在下で行っても、溶媒の存在下で行ってもよいが、通常、有機溶媒の存在下で行う。

- 10 有機溶媒としては、トルエン、キシレン、メシチレン、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン、ジメトキシエタン、N,N-ジメチルアセトアミド、N,N-ジメチルホルムアミド等が挙げられる。一般的に、副反応を抑制するために、有機溶媒の脱酸素処理を行うことが望ましい。有機溶媒は一種単独で用いても二種以上を併用してもよい。

15

有機溶媒の使用量は、式 (A)、(M-1) ~ (M-3) で表される化合物の合計濃度が、有機溶媒と式 (A)、(M-1) ~ (M-3) で表される化合物の合計重量を基準として、通常、0.1~90重量%、好ましくは1~50重量%、より好ましくは2~30重量%となる量である。

20

縮合重合の反応温度は、好ましくは-100~200℃であり、より好ましくは-80~150℃であり、さらに好ましくは0~120℃である。

- 反応時間は、反応温度等の条件によるが、通常、1時間以上であり、好ましくは2~500時間である。

25

縮合重合は、式 (A) (M-1) ~ (M-3) 中の X^a 及び X^b が、 $-MgY^1$ で表される基である場合には、脱水条件下で行う。

縮合重合においては、本発明の高分子化合物の末端に重合活性基が残存するのを避けるために、連鎖停止剤として、下記式 (M-4) で示される化合物を用いてもよい。これにより高分子化合物の末端がアリール基又は 1 価の芳香族複素環基で置換された高分子化合物を得ることができる。



[式中、 Ar^{24} は、アリール基又は 1 価の芳香族複素環基を表す。 X^c は、臭素原子、ヨウ素原子、塩素原子、 $-O-S(=O)_2 R^{20}$ 、 $-B(OR^{21})_2$ 、 $-BF_4$ 、 Q^1 、 $-Sn(R^{22})_3$ 、 $-Mg Y^1$ 又は $-Zn Y^1$ を表す。 R^{20} は、アルキル基、又はアルキル基、アルコキシ基、ニトロ基、フッ素原子若しくはシアノ基で置換されていてもよいアリール基を表す。 R^{21} 及び R^{22} はそれぞれ独立に、水素原子又はアルキル基を表す。2 個ある R^{21} は同一であっても異なってもよく、一緒になって環を形成していてもよい。3 個ある R^{22} は同一であっても異なってもよく、一緒になって環を形成していてもよい。 Q^1 は、リチウム、ナトリウム、カリウム、ルビジウム又はセシウムの 1 価の陽イオンを表す。 Y^1 は、臭素原子、ヨウ素原子又は塩素原子を表す。]

式 (M-4) 中、 X^c で表される原子又は基は、 X^a 及び X^b で表されるそれぞれの原子又は基として説明し例示したものと同一である。

式 (M-4) 中、 Ar^{24} で表されるアリール基、1 価の芳香族複素環基は、 R^{24} で表されるアリール基、1 価の芳香族複素環基として説明し例示したものと同一である。

縮合重合の後処理は、公知の方法で行うことができる。後処理は、例えば、メタノール等の低級アルコールに縮合重合で得られた反応溶液を加えて析出させた沈殿を濾過、乾燥する方法で行うことができる。

本発明の高分子化合物の純度が低い場合には、高分子化合物を、再結晶、ソックスレー抽出器による連続抽出、カラムクロマトグラフィー等の通常の方法にて精製することができる。本発明の高分子化合物を発光素子に用いる場合、その純度が発光特性等の素子の性能に影響を与えるため、縮合重合後、再沈精製、クロマトグラフィーによる分別等の純化处理をすることが好ましい。

<単量体>

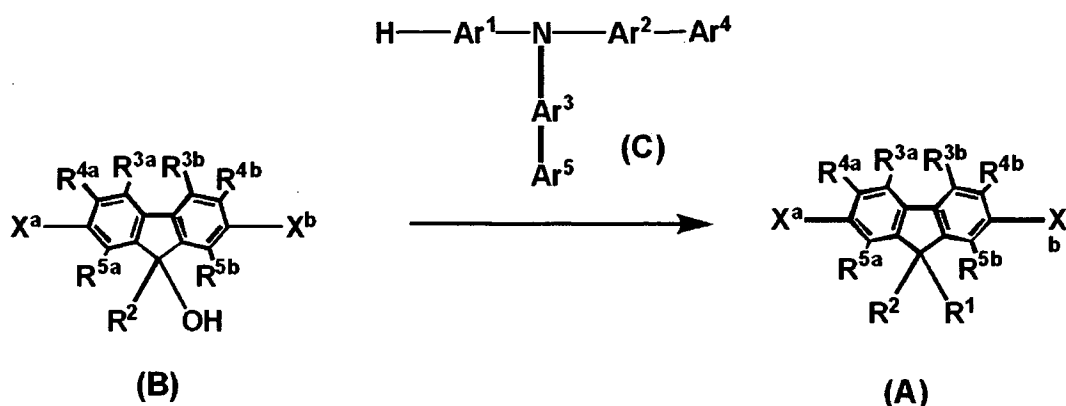
一式 (A) で表される化合物ー

式 (A) で表される化合物としては、式 (1) で表される構成単位 (例えば、式 (1-001) ~ (1-005)、(1-101) ~ (1-106)、(1-201) ~ (1-202)、(1-301) ~ (1-303) で表される構成単位)、これらの置換体における 2 本の結合手のうち、一方が X^a で表される基、他方が X^b で表される基に置換された化合物が挙げられる。

15 ・式 (A) で表される化合物の製造方法

式 (A) で表される化合物は、例えば、下記スキーム 1 に示すように、下記式 (B) で表される化合物と、下記式 (C) で表される化合物とを、必要に応じて溶媒に溶解又は懸濁させた状態で、酸の存在下でカップリング反応させて合成できる。式 (B) で表される化合物は、例えば、フルオレノン誘導体に Grignard 試薬、有機リチウム試薬を反応させて合成することができる。

(スキーム 1)



式 (C) で表される化合物の使用量は、式 (B) で表される化合物 1 モルに対して、通常、0.8～2 モルであるが、得られる式 (A) で表される化合物を精製する容易さの観点から、0.9～1.5 モルが好ましい。

酸としては、三フッ化ホウ素ジエチルエーテル錯体、トリフロオロメタンスルホン酸、メタンスルホン酸、トリフルオロ酢酸、硫酸、ポリリン酸等が挙げられ、三フッ化ホウ素ジエチルエーテル錯体が好ましい。酸の使用量は、その種類にもよるが、例えば、三フッ化ホウ素ジエチルエーテル錯体を用いる場合、三フッ化ホウ素ジエチルエーテル錯体の使用量は、式 (B) で表される化合物 1 モルに対して、反応性、経済性の観点から、通常、1～10 モルであり、1～2 モルが好ましい。

溶媒を用いる場合、その溶媒としては、トルエン、キシレン、メシチレン、クロロベンゼン、*o*-ジクロロベンゼン、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素等の有機溶媒が挙げられる。酸として三フッ化ホウ素ジエチルエーテル錯体を用いる場合には、溶媒としては、クロロベンゼン、*o*-ジクロロベンゼン、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素が好ましく、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素がより好ましい。反応温度の制御がし易い等の取扱いの容易さの観点からは、三フッ化ホウ素ジエチルエーテル錯体及び有機溶媒の組み合わせを用いることが好ましい。

反応は、式（B）で表される化合物、式（A）で表される化合物の安定性の観点から、遮光下で行うことが好ましい。

- 5 反応の反応温度は、通常、 $-50 \sim 300^{\circ}\text{C}$ であるが、三フッ化ホウ素ジエチルエーテル錯体及び有機溶媒の組み合わせを用いる場合、好ましくは $-20 \sim 100^{\circ}\text{C}$ である。有機溶媒を用いる場合、還流状態で反応させてもよい。

- 10 反応の終了後は、水、アルコール等を加えて反応を停止させた後、洗浄、分液等により水、アルコール等の不要成分を除去した後、カラムクロマトグラフィー、再結晶等の通常の操作を行うことにより、式（A）で表される化合物を得ることができる。

<組成物>

- 15 本発明の高分子化合物は、その他の成分と混合して組成物として用いることができ、例えば、正孔輸送材料、電子輸送材料及び発光材料からなる群から選ばれる少なくとも1種と組み合わせて、組成物の態様で、発光材料、正孔輸送材料又は電子輸送材料として用いることができる。

- 20 組成物における、正孔輸送材料、電子輸送材料及び発光材料からなる群から選ばれる少なくとも1種と本発明の高分子化合物との比率は、本発明の組成物を発光材料に用いる場合は、本発明の高分子化合物100重量部に対して、正孔輸送材料、電子輸送材料及び発光材料の重量は、それぞれ、通常、 $1 \sim 400$ 重量部であり、好ましくは $5 \sim 150$ 重量部である。

25

本発明の組成物のポリスチレン換算の数平均分子量は、通常、 $1 \times 10^3 \sim 1 \times 10^8$ であり、好ましくは $1 \times 10^4 \sim 1 \times 10^6$ である。本発明の組成物のポリスチレン換算の重量平均分子量は、通常、 $1 \times 10^3 \sim 1 \times 10^8$ であり、成膜

性、及び得られる発光素子の発光効率の観点から、 $1 \times 10^4 \sim 5 \times 10^6$ であることが好ましい。ここで、本発明の組成物の平均分子量とは、該組成物をGPCで分析して求めた値をいう。

5 <溶液>

本発明の溶液は、本発明の高分子化合物と溶媒とを含有する溶液、本発明の組成物が溶媒を含有してなる溶液である。この溶液は、印刷法等に有用であり、一般に、インク、インク組成物等と呼ばれることもある。本発明の溶媒は、正孔輸送材料（後述の正孔輸送層に用いられる材料）、電子輸送材料（後述の電子輸送層に用いられる材料）、発光材料、安定剤、増粘剤（粘度を高めるための高分子量の化合物）、粘度を低くするための低分子量の化合物、界面活性剤、酸化防止剤、高分子化合物以外の高分子量の化合物等を含んでいてもよい。本発明の溶液に含まれる各成分は、各々、一種単独であっても二種以上の組み合わせであってもよい。

15

本発明の溶液における本発明の高分子化合物の割合は、該溶液全体を100重量部とした場合に、通常、0.1～99重量部であり、好ましくは0.5～40重量部であり、より好ましくは0.5～20重量部である。

20 本発明の溶液の粘度は、印刷法の種類によって調整することができるが、インクジェットプリント法等の該溶液が吐出装置を経由するもの場合には、吐出時の目づまりや飛行曲がりを防止するために、25℃において、1～20 mPa・sの範囲であることが好ましい。

25 増粘剤は、本発明の高分子化合物と同じ溶媒に可溶性であり、発光や電荷輸送を阻害しないものであればよく、例えば、高分子量のポリスチレン、高分子量のポリメチルメタクリレート等を用いることができる。増粘剤として用いる化合物は、ポリスチレン換算の重量平均分子量が 5×10^5 以上であることが好ましく

、 1×10^6 以上であることがより好ましい。

酸化防止剤は、本発明の溶液の保存安定性を向上させるためのものである。酸化防止剤としては、本発明の高分子化合物と同じ溶媒に可溶性であり、発光や電荷輸送を阻害しないものであればよく、フェノール系酸化防止剤、リン系酸化防止剤等が挙げられる。

本発明の溶液の溶媒は、溶質となる固形分を溶解又は均一に分散できるものが好ましい。該溶媒としては、クロロホルム、塩化メチレン、1, 2-ジクロロエタン、1, 1, 2-トリクロロエタン、クロロベンゼン、o-ジクロロベンゼン等の塩素系溶媒；テトラヒドロフラン、ジオキサン、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；シクロヘキサン、メチルシクロヘキサン、n-ペンタン、n-ヘキサン、n-ヘプタン、n-オクタン、n-ノナン、n-デカン等の脂肪族炭化水素系溶媒；アセトン、メチルエチルケトン、シクロヘキサノン、ベンゾフェノン、アセトフェノ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、安息香酸メチル、酢酸フェニル等のエステル系溶媒；エチレングリコール、エチレングリコールモノブチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル、エチレングリコールモノメチルエーテル、ジメトキシエタン、プロピレングリコール、ジエトキシメタン、トリエチレングリコールモノエチルエーテル、グリセリン、1, 2-ヘキサジオール等の多価アルコール及びその誘導体、メタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノール、シクロヘキサノール等のアルコール系溶媒；ジメチルスルホキシド等のスルホキシド系溶媒、N-メチル-2-ピロリドン、N, N-ジメチルホルムアミド等のアミド系溶媒が挙げられる。これらの溶媒は、一種単独で用いても二種以上を併用してもよい。

溶媒は、成膜性、素子特性等の観点から、2種以上を併用することが好ましく、2～3種を併用することがより好ましく、2種を併用することが特に好ましい。

。

本発明の溶液中に２種の溶媒が含まれる場合、そのうちの１種の溶媒は２５℃において固体状態のものでもよい。成膜性の観点から、１種の溶媒は沸点が１８
５ ０℃以上の溶媒であることが好ましく、２００℃以上の溶媒であることがより好ましい。本発明の溶液としては、粘度の観点から、用いる混合溶媒の沸点未満の温度で均一な溶液として存在し得るものが好ましく、用いる２種の溶媒のいずれにも６０℃において１重量％以上の濃度で本発明の高分子化合物が溶解することがより好ましく、２種の溶媒のうちの１種の溶媒には、２５℃において１重量％
１０ 以上の濃度で本発明の高分子化合物が溶解することが特に好ましい。

本発明の溶液中に２種以上の溶媒が含まれる場合、粘度及び成膜性の観点から、沸点が最も高い溶媒が、該溶液中の全溶媒の重量の４０～９０重量％であることが好ましく、５０～９０重量％であることがより好ましく、６５～８５重量％
１５ であることがさらに好ましい。

本発明の溶液には、さらに、水、金属及びその塩、ケイ素、リン、フッ素、塩素、臭素等を重量基準で１～１０００ｐｐｍの範囲で含んでいてもよい。金属としては、リチウム、ナトリウム、カルシウム、カリウム、鉄、銅、ニッケル、アルミニウム、亜鉛、クロム、マンガン、コバルト、白金、イリジウム等が挙げられる。
２０

<薄膜>

本発明の薄膜は、本発明の高分子化合物を含有するものであり、例えば、発光
２５ 性薄膜、導電性薄膜、有機半導体薄膜等である。

本発明の薄膜は、例えば、スピンコート法、キャスト法、マイクログラビアコート法、グラビアコート法、バーコート法、ロールコート法、ワイヤーバ

ーコート法、ディップコート法、スプレーコート法、スクリーン印刷法、フレキソ印刷法、オフセット印刷法、インクジェットプリント法、キャピラリーコート法、ノズルコート法等で作製することができる。

- 5 本発明の溶液を用いて薄膜を作製する場合、該溶液に含まれる本発明の高分子化合物のガラス転移温度が高いため、 100°C 以上の温度でベークすることが可能であり、 130°C の温度でベークしても素子特性はほとんど低下しない。高分子化合物の種類によっては、 160°C 以上の温度でベークすることもできる。

- 10 発光性薄膜は、素子の輝度や発光電圧等の観点から、発光の量子収率が30%以上であることが好ましく、50%以上であることがより好ましく、60%以上であることがさらに好ましく、70%以上であることが特に好ましい。

- 15 導電性薄膜は、表面抵抗が $1\text{ K}\Omega/\square$ 以下であることが好ましく、 $100\Omega/\square$ 以下であることがより好ましく、 $10\Omega/\square$ 以下であることがさらに好ましい。該導電性薄膜に、ルイス酸、イオン性化合物等をドーピングすることにより、電気伝導度を高めることができる。

- 20 有機半導体薄膜は、電子移動度又は正孔移動度のいずれか大きい方が、 $10^{-5}\text{ cm}^2/\text{V}/\text{秒}$ 以上であることが好ましく、 $10^{-3}\text{ cm}^2/\text{V}/\text{秒}$ 以上であることがより好ましく、 $10^{-1}\text{ cm}^2/\text{V}/\text{秒}$ 以上であることがさらに好ましい。SiO₂等の絶縁膜とゲート電極とを形成したSi基板上に該有機半導体薄膜を形成し、Au等でソース電極とドレイン電極を形成することにより、有機トランジスタとすることができる。

25 <発光素子>

本発明の発光素子は、陽極及び陰極からなる電極と、該電極間に設けられた高分子化合物を含有する有機層とを有する発光素子である。陽極及び陰極は、通常、少なくとも一方が透明又は半透明である。有機層は、一層からなるものであつ

ても、二層以上からなるものであってもよく、二層以上からなる場合には、そのうちの少なくとも一層が高分子化合物を含有している。高分子化合物を含有する有機層は、通常、発光層、正孔輸送層、電子ブロック層として機能するが、発光層として機能することが好ましい。本発明の発光素子は、陰極、陽極、発光層以外にも、陽極と発光層との間、陰極と発光層との間に、その他の層を設けてもよい。本発明の発光素子において、各層は、一層からなるものであっても二層以上からなるものであってもよく、また、各層を構成する材料・化合物は、一種単独で用いても二種以上を併用してもよい。

- 10 陽極と発光層との間に設けられた層としては、正孔注入層、正孔輸送層、電子ブロック層等が挙げられる。陽極と発光層との間に一層のみ設けられた場合には、正孔注入層であり、陽極と発光層との間に二層以上設けられた場合には、陽極に接する層が正孔注入層であり、それ以外の層が正孔輸送層である。正孔注入層は、陰極からの正孔注入効率を改善する機能を有する層である。正孔輸送層は、
- 15 正孔注入層又は陽極により近い層からの正孔注入を改善する機能を有する層である。正孔注入層、正孔輸送層が電子の輸送を堰き止める機能を有する場合には、これらの層が電子ブロック層である。電子の輸送を堰き止める機能を有することは、例えば、電子電流のみを流す素子を作製し、その電流値の減少により確認することができる。

20

- 陰極と発光層との間に設けられた層としては、電子注入層、電子輸送層、正孔ブロック層等が挙げられる。陰極と発光層との間に一層のみ設けられた場合には、電子注入層であり、陰極と発光層との間に二層以上設けられた場合には、陰極に接している層が電子注入層であり、それ以外の層が電子輸送層である。電子注
- 25 入層は、陰極からの電子注入効率を改善する機能を有する層である。電子輸送層は、電子注入層又は陰極により近い層からの電子注入を改善する機能を有する層である。電子注入層、電子輸送層が正孔の輸送を堰き止める機能を有する場合には、これらの層を正孔ブロック層と称することがある。正孔の輸送を堰き止める

機能を有することは、例えば、ホール電流のみを流す素子を作製し、その電流値の減少により確認することができる。

本発明の発光素子としては、例えば、以下の a) ~ d) の構造が挙げられる。

- 5 a) 陽極／発光層／陰極
- b) 陽極／正孔輸送層／発光層／陰極
- c) 陽極／発光層／電子輸送層／陰極
- d) 陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／陰極

(ここで、／は各層が隣接して積層されていることを示す。以下同じ。)

10

電極に隣接して設けた正孔輸送層、電子輸送層のうち、電極からの電荷（正孔・電子）注入効率を改善する機能を有し、素子の駆動電圧を低下させる効果を有するものは、電荷注入層（正孔注入層、電子注入層）と呼ばれることがある。

- 15 さらに、電極との密着性向上や電極からの電荷注入の改善のために、電極に隣接して電荷注入層、絶縁層を設けてもよい。界面の密着性向上や混合の防止等のために、電荷輸送層や発光層の界面に、薄いバッファ層を挿入してもよい。積層する層の順番や数、及び各層の厚さは、発光効率や素子寿命を勘案して調整することができる。

20

電荷注入層を設けた本発明の発光素子としては、例えば、以下の e) ~ p) の構造が挙げられる。

- e) 陽極／電荷注入層／発光層／陰極
- f) 陽極／発光層／電荷注入層／陰極
- 25 g) 陽極／電荷注入層／発光層／電荷注入層／陰極
- h) 陽極／電荷注入層／正孔輸送層／発光層／陰極
- i) 陽極／正孔輸送層／発光層／電荷注入層／陰極
- j) 陽極／電荷注入層／正孔輸送層／発光層／電荷注入層／陰極

- k) 陽極／電荷注入層／発光層／電子輸送層／陰極
- l) 陽極／発光層／電子輸送層／電荷注入層／陰極
- m) 陽極／電荷注入層／発光層／電子輸送層／電荷注入層／陰極
- n) 陽極／電荷注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／陰極
- 5 o) 陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電荷注入層／陰極
- p) 陽極／電荷注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電荷注入層／陰極

・陽極

陽極は、通常、透明又は半透明であり、電気伝導度の高い金属酸化物、金属硫
10 化物や金属の薄膜から構成され、それらの中でも透過率が高い材料から構成され
ることが好ましい。陽極の材料としては、酸化インジウム、酸化亜鉛、酸化スズ
、及びそれらの複合体であるインジウム・スズ・オキサイド（ITO）、インジ
ウム・亜鉛・オキサイド等からなる導電性無機化合物を用いて作製された膜（NE
ESA等）や、金、白金、銀、銅等が用いられ、ITO、インジウム・亜鉛・オ
15 キサイド、酸化スズが好ましい。陽極の作製には、真空蒸着法、スパッタリング
法、イオンプレーティング法、メッキ法等の方法を用いることができる。陽極と
して、ポリアニリン及びその誘導体、ポリチオフェン及びその誘導体等の有機の
透明導電膜を用いてもよい。

20 陽極の厚さは、光の透過性と電気伝導度とを考慮して選択することができるが
、通常、10 nm～10 μ mであり、好ましくは20 nm～1 μ mであり、より
好ましくは50 nm～500 nmである。

・正孔注入層

25 正孔注入層に用いられる材料としては、フェニルアミン系、スターバースト型
アミン系、フタロシアニン系、酸化バナジウム、酸化モリブデン、酸化ルテニウ
ム、酸化アルミニウム等の酸化物、アモルファスカーボン、ポリアニリン及びそ
の誘導体、ポリチオフェン及びその誘導体等の導電性高分子、本発明の高分子化

合物等が挙げられる。

正孔注入層に用いられる材料が導電性高分子、本発明の高分子化合物である場合、該導電性高分子、高分子化合物の電気伝導度を向上させるために、必要に応じて、ポリスチレンスルホン酸イオン、アルキルベンゼンスルホン酸イオン、樟脳スルホン酸イオン等のアニオンをドーピングしてもよい。

・正孔輸送層

正孔輸送層に用いられる材料としては、ポリビニルカルバゾール及びその誘導体、ポリシラン及びその誘導体、側鎖又は主鎖に芳香族アミンを有するポリシロキサン誘導体、ピラゾリン誘導体、アリールアミン誘導体、スチルベン誘導体、トリフェニルジアミン誘導体、ポリアニリン及びその誘導体、ポリチオフェン及びその誘導体、ポリアリールアミン及びその誘導体、ポリピロール及びその誘導体、ポリ（*p*-フェニレンビニレン）及びその誘導体、ポリ（2，5-チエニレンビニレン）及びその誘導体、本発明の高分子化合物等が挙げられ、ポリビニルカルバゾール及びその誘導体、ポリシラン及びその誘導体、側鎖又は主鎖に芳香族アミン化合物基を有するポリシロキサン誘導体、ポリアニリン及びその誘導体、ポリチオフェン及びその誘導体、ポリアリールアミン及びその誘導体、ポリ（*p*-フェニレンビニレン）及びその誘導体、ポリ（2，5-チエニレンビニレン）及びその誘導体、本発明の高分子化合物等の高分子正孔輸送材料が好ましく、ポリビニルカルバゾール及びその誘導体、ポリシラン及びその誘導体、側鎖又は主鎖に芳香族アミンを有するポリシロキサン誘導体、ポリアリールアミン及びその誘導体、本発明の高分子化合物がさらに好ましい。正孔輸送層に用いられる材料が低分子化合物である場合には、高分子バインダーに分散させて用いることが好ましい。

正孔輸送層の成膜の方法としては、正孔輸送層に用いられる材料が低分子化合物である場合には、高分子バインダーとの混合溶液からの成膜が挙げられ、高分

子化合物である場合には、溶液からの成膜が挙げられる。

溶液からの成膜に用いる溶媒は、正孔輸送層に用いられる材料を溶解させるものである。該溶媒として、クロロホルム、塩化メチレン、ジクロロエタン等の塩素系溶媒、テトラヒドロフラン等のエーテル系溶媒、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素系溶媒、アセトン、メチルエチルケトン等のケトン系溶媒、酢酸エチル、酢酸ブチル、エチルセルソルブアセテート等のエステル系溶媒が挙げられる。

10 溶液からの成膜には、溶液からのスピンコート法、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塗布法を用いることができる。

15

高分子バインダーとしては、電荷輸送を極度に阻害しないものが好ましく、また可視光に対する吸収が強くないものが好適に用いられる。該高分子バインダーとして、ポリカーボネート、ポリアクリレート、ポリメチルアクリレート、ポリメチルメタクリレート、ポリスチレン、ポリ塩化ビニル、ポリシロキサン等が挙げられる。

20

正孔輸送層の厚さは、駆動電圧と発光効率を考慮しつつ選択することができるが、ピンホールが発生しないような厚さが必要であり、あまり厚いと、素子の駆動電圧が高くなり好ましくない。従って、該正孔輸送層の膜厚は、通常、1 nm
25 ~ 1 μ mであり、好ましくは2 nm~500 nmであり、より好ましくは5 nm~200 nmである。

・発光層

発光層は、通常、蛍光又は燐光を発する有機化合物（低分子化合物、高分子化合物）と、必要に応じてこれを補助するドーパントとから形成される。本発明の発光素子における発光層には、本発明の高分子化合物；シクロペンダミン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体化合物、トリフェニルアミン誘導体、オキサ

5 ジアゾール誘導体、ピラゾロキノリン誘導体、ジスチリルベンゼン誘導体、ジスチリルアリーレン誘導体、ピロール誘導体、チオフェン環化合物、ピリジン環化合物、アントラセン誘導体、ペリレン誘導体、ナフタセン誘導体、キナクリドン誘導体、オリゴチオフェン誘導体、トリフマリルアミン誘導体、オキサジアゾールダイマー、ピラゾリンダイマー等の色素系材料；イリジウム錯体、白金錯体等

10 の三重項励起状態からの発光を有する金属錯体、アルミキノリノール錯体、ベンゾキノリノールベリリウム錯体、ベンゾオキサゾリル亜鉛錯体、ベンゾチアゾール亜鉛錯体、アゾメチル亜鉛錯体、ポルフィリン亜鉛錯体、ユーロピウム錯体等、中心金属に、Al、Zn、Be等又はTb、Eu、Dy等の希土類金属を有し、配位子にオキサジアゾール、チアジアゾール、フェニルピリジン、フェニルベンゾイミダゾール、キノリン構造等を有する金属錯体等の金属錯体系材料；ポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリチオフェン誘導体、ポリパラフェニレン誘導体、ポリシラン誘導体、ポリアセチレン誘導体、ポリフルオレン誘導体、ポリビニルカルバゾール誘導体、上記色素体や金属錯体系発光材料を高分子化したもの等の高分子系材料等の発光材料を用いることができる。

20

上記発光材料のうち、青色に発光する材料は、青色蛍光材料と青色燐光材料とに分類できる。青色蛍光材料としては、ジスチリルアリーレン誘導体及びその重合体、オキサジアゾール誘導体及びその重合体、ポリビニルカルバゾール誘導体、ポリパラフェニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等が挙げられ、好ましくは

25 、ポリビニルカルバゾール誘導体、ポリパラフェニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等である。青色燐光材料としては、イリジウム錯体が挙げられる。

上記発光材料のうち、緑色に発光する材料は、緑色蛍光材料と緑色燐光材料と

に分類できる。緑色蛍光材料としては、キナクリドン誘導体、クマリン誘導体、アントラセン誘導体、及びそれらの重合体、ポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等が挙げられ、好ましくは、ポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等である。緑色燐光材料としては、イリジウム錯体が挙げられる。

上記発光材料のうち、赤色に発光する材料は、赤色蛍光材料と赤色燐光材料とに分類できる。赤色蛍光材料としては、クマリン誘導体及びその重合体、チオフェン系化合物及びその重合体、ポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリチオフェン誘導体、ポリフルオレン誘導体等が挙げられ、好ましくは、ポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリチオフェン誘導体、ポリフルオレン誘導体等である。赤色燐光材料としては、イリジウム錯体が挙げられる。

発光層には、発光効率を向上させたり、発光波長を変化させたりするために、ドーパントを添加することができる。ドーパントは、蛍光性ドーパントと燐光性ドーパントとに分類できる。蛍光性ドーパントとしては、アントラセン誘導体、ペリレン誘導体、クマリン誘導体、ルブレン誘導体、キナクリドン誘導体、スクアリウム誘導体、ポルフィリン誘導体、スチリル系色素、テトラセン誘導体、ピラゾロン誘導体、デカシクレン、フェノキサゾン等を挙げることができる。燐光性ドーパントとしては、イリジウム錯体が挙げられる。

発光層の厚さは、駆動電圧と発光効率を考慮して選択することができるが、通常、約2～200nmである。

発光層の成膜には、発光材料を含む溶液を基体の上又は上方に塗布する方法、真空蒸着法、転写法等を用いることができる。溶液からの成膜に用いる溶媒は、正孔輸送層の溶液からの成膜の項で説明し例示したのと同じである。発光材料を含む溶液を基体の上又は上方に塗布するには、スピコート法、ディップコー

ト法、インクジェットプリント法、フレキソ印刷法、グラビア印刷法、スリットコート法等の印刷法を用いることができる。昇華性の低分子化合物の場合は、真空蒸着法を用いることができる。レーザーによる転写や熱転写により、所望の位置に発光層を形成する方法も用いることができる。

5

・電子輸送層

電子輸送層に用いられる材料としては、オキサジアゾール誘導体、アントラキノジメタン及びその誘導体、ベンゾキノン及びその誘導体、ナフトキノン及びその誘導体、アントラキノン及びその誘導体、テトラシアノアンスラキノジメタン
10 及びその誘導体、フルオレノン誘導体、ジフェニルジシアノエチレン及びその誘導体、ジフェノキノン誘導体、8-ヒドロキシキノリン及びその誘導体の金属錯体、ポリキノリン及びその誘導体、ポリキノキサリン及びその誘導体、ポリフルオレン及びその誘導体等が挙げられ、オキサジアゾール誘導体、ベンゾキノン
15 及びその誘導体、アントラキノン及びその誘導体、8-ヒドロキシキノリン及びその誘導体の金属錯体、ポリキノリン及びその誘導体、ポリキノキサリン及びその誘導体、ポリフルオレン及びその誘導体が好ましく、2-(4-ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール、ベンゾキノン、アントラキノン、トリス(8-キノリノール)アルミニウム、ポリキノリンがより好ましい。

20

電子輸送層の成膜には、電子輸送層に用いられる材料が低分子化合物である場合には、粉末からの真空蒸着法、溶液又は熔融状態からの成膜による方法が用いられ、電子輸送層に用いられる材料が高分子化合物である場合には、溶液又は熔融状態からの成膜による方法が用いられる。溶液又は熔融状態からの成膜には、
25 高分子バインダーを併用してもよい。溶液からの成膜は、溶液から正孔輸送層を成膜する方法と同様である。

電子輸送層の厚さは、駆動電圧と発光効率を考慮して調整することができるが

、ピンホールが発しないような厚さが必要であり、あまり厚いと、素子の駆動電圧が高くなり好ましくない。従って、該電子輸送層の膜厚は、通常、1 nm～1 μmであり、好ましくは2 nm～500 nmであり、より好ましくは5 nm～200 nmである。

5

・電子注入層

電子注入層としては、発光層の種類に応じて、Ca層の単層構造からなる電子注入層、又はCaを除いた周期律表IA族とIIA族の金属であり、かつ仕事関数が1.5～3.0 eVの金属及びその金属の酸化物、ハロゲン化物及び炭酸化物からなる群から選ばれる1種又は2種以上で形成された層とCa層との積層構造からなる電子注入層が挙げられる。仕事関数が1.5～3.0 eVの、周期律表IA族の金属又はその酸化物、ハロゲン化物、炭酸化物としては、リチウム、フッ化リチウム、酸化ナトリウム、酸化リチウム、炭酸リチウム等が挙げられる。仕事関数が1.5～3.0 eVの、Caを除いた周期律表IIA族の金属又はその酸化物、ハロゲン化物、炭酸化物としては、ストロンチウム、酸化マグネシウム、フッ化マグネシウム、フッ化ストロンチウム、フッ化バリウム、酸化ストロンチウム、炭酸マグネシウム等が挙げられる。

電子注入層は、蒸着法、スパッタリング法、印刷法等により形成する。電子注入層の厚さは、1 nm～1 μmが好ましい。

・陰極材料

陰極の材料としては、仕事関数の小さく発光層への電子注入が容易な材料が好ましく、リチウム、ナトリウム、カリウム、ルビジウム、セシウム、ベリリウム、マグネシウム、カルシウム、ストロンチウム、バリウム、アルミニウム、スカンジウム、バナジウム、亜鉛、イットリウム、インジウム、セリウム、サマリウム、ユーロピウム、テルビウム、イッテルビウム等の金属、若しくは上記金属のうち2種以上の合金、又はそれらのうち1種以上と、金、銀、白金、銅、マンガ

ン、チタン、コバルト、ニッケル、タングステン、錫のうち1種以上との合金、
或いはグラファイト又はグラファイト層間化合物等が用いられる。合金としては
、マグネシウム－銀合金、マグネシウム－インジウム合金、マグネシウム－アル
ミニウム合金、インジウム－銀合金、リチウム－アルミニウム合金、リチウム－
5 マグネシウム合金、リチウム－インジウム合金、カルシウム－アルミニウム合金
等が挙げられる。陰極を2層以上の積層構造とする場合には、金属、金属酸化物
、金属フッ化物、これらの合金と、アルミニウム、銀、クロム等の金属との積層
構造が好ましい。

10 陰極の厚さは、電気伝導度や耐久性を考慮して選択すればよく、通常、10 nm
m～10 μmであり、好ましくは20 nm～1 μmであり、より好ましくは50
nm～500 nmである。

陰極の作製には、真空蒸着法、スパッタリング法、金属薄膜を熱圧着するラミ
15 ネット法等が用いられる。陰極作製後、発光素子を保護する保護層を装着してい
てもよい。発光素子を長期安定的に用いるためには、該発光素子を外部から保護
するために、保護層及び／又は保護カバーを装着することが好ましい。

保護層としては、高分子量の化合物、金属酸化物、金属フッ化物、金属ホウ化
20 物等を用いることができる。保護カバーとしては、金属板、ガラス板、表面に低
透水率処理を施したプラスチック板等を用いることができる。保護の方法として
は、保護カバーを熱硬化樹脂や光硬化樹脂で素子基板と貼り合わせて密閉する方
法が挙げられる。スペーサーを用いて空間を維持すれば、素子の損傷を防ぐこと
が容易である。該空間に窒素やアルゴンのような不活性ガスを封入すれば、陰極
25 の酸化を防止することができ、さらに酸化バリウム等の乾燥剤を該空間内に設置
することにより、製造工程で吸着した水分又は硬化樹脂を通り抜けて浸入する微
量の水分が素子に損傷を与えるのを抑制することが容易となる。これらのうち、
いずれか1つ以上の方策を採ることが好ましい。

本発明の発光素子は、面状光源、セグメント表示装置、ドットマトリックス表示装置等の表示装置、液晶表示装置のバックライト等として用いることができる。本発明の発光素子を用いて面状の発光を得るためには、面状の陽極と陰極が重なり合うように配置する。

パターン状の発光を得るためには、面状の発光素子の表面にパターン状の窓を設けたマスクを設置する方法、非発光部の有機物層を極端に厚く形成し実質的に非発光とする方法、陽極又は陰極のいずれか一方、又は両方の電極をパターン状に形成する方法がある。これらのいずれかの方法でパターンを形成し、いくつかの電極を独立にON/OFFできるように配置することにより、数字や文字、簡単な記号等を表示できるセグメントタイプの表示素子が得られる。更に、ドットマトリックス素子とするためには、陽極と陰極をともにストライプ状に形成して直交するように配置する。複数の種類の発光色の異なる高分子化合物を塗り分ける方法や、カラーフィルター又は蛍光変換フィルターを用いる方法により、部分カラー表示、マルチカラー表示が可能となる。ドットマトリックス素子は、パッシブ駆動も可能であるし、TFT等と組み合わせてアクティブ駆動してもよい。これらの表示素子は、コンピュータ、テレビ、携帯端末、携帯電話、カーナビゲーション、ビデオカメラのビューファインダー等の表示装置として用いることができる。さらに、面状の発光素子は、自発光薄型であり、液晶表示装置のバックライト用の面状光源、面状の照明用光源等として好適に用いることができる。フレキシブルな基板を用いれば、曲面状の光源や表示装置としても使用できる。

実施例

以下、実施例によって本発明を更に詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

(数平均分子量及び重量平均分子量)

実施例において、ポリスチレン換算の数平均分子量 (M_n) 及びポリスチレン換算の重量平均分子量 (M_w) は、GPC (島津製作所製、商品名: LC-10

Avp) により求めた。測定する高分子化合物は、約 0.5 重量%の濃度になるようテトラヒドロフランに溶解させ、GPC に 30 μ L 注入した。GPC の移動相にはテトラヒドロフランを用い、0.6 mL/分の流速で流した。カラムは、TSK gel SuperHM-H (東ソー製) 2 本と TSK gel SuperH2000 (東ソー製) 1 本を直列に繋げた。検出器には示差屈折率検出器 (島津製作所製、商品名: RID-10A) を用いた。

(高速液体クロマトグラフィー (HPLC))

実施例において、化合物の純度の指標となる HPLC 面積百分率の値は、高速液体クロマトグラフィー (島津製作所製、商品名: LC-20A) により、特に記載のない限り、254 nm における値を求めた。測定する化合物は、0.01 ~ 0.2 重量%の濃度になるようテトラヒドロフラン又はクロロホルムに溶解させ、HPLC に濃度に応じて 1 ~ 10 μ L 注入した。HPLC の移動相には、アセトニトリル及びテトラヒドロフランを用い、1 mL/分の流速で、アセトニトリル/テトラヒドロフラン = 100/0 ~ 0/100 (容積比) のグラジエント分析で流した。カラムは、Kaseisorb LC ODS 2000 (東京化成工業製) を用いた。検出器は、フォトダイオードアレイ検出器 (島津製作所製、商品名: SPD-M20A) を用いた。

20 (ガラス転移温度)

実施例において、ガラス転移温度 (T_g) は、示差走査熱量測定装置 (DSC、TA Instruments 社製、商品名: DSC2920) により求めた。測定条件としては、サンプルを 200°C で 5 分間保持した後、-50°C まで急冷して 30 分間保持した。

25 30°C まで温度を上げた後、毎分 5°C の昇温速度で 300°C まで測定を行った。

(蛍光特性評価)

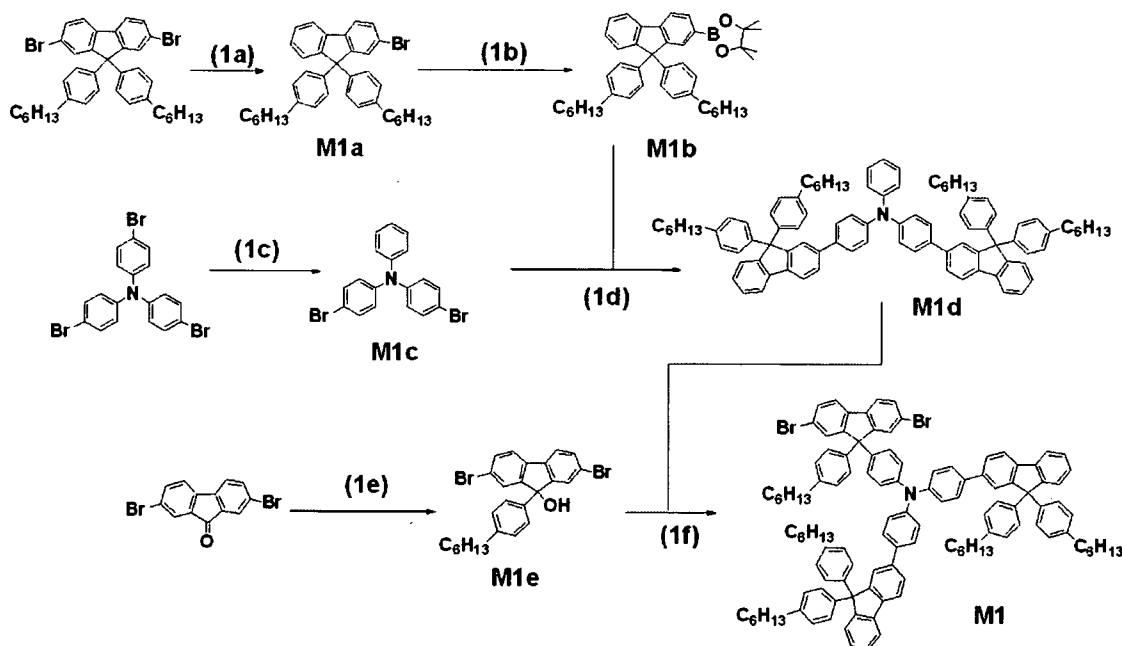
実施例において、蛍光特性 (高分子化合物の薄膜の蛍光ピーク波長) の評価は

、以下の方法で行った。高分子化合物をキシレン（関東化学社製、電子工業用グレード）に溶解させた。このとき、固形分の濃度は、0.8重量%となるように調製し、該溶液を石英板上に1500rpmの回転速度でスピコートして高分子化合物の薄膜を作製した。この薄膜を350nmの波長で励起し、蛍光分光光度計（JOBINYVON-SPEX社製、商品名：Fluorolog）を用いて蛍光スペクトルを測定した。

（フォトルミネッセンス量子収率（PLQY）測定）

実施例において、フォトルミネッセンス量子収率測定は、絶対PL量子収率測定装置（浜松ホトニクス社製、商品名：C9920-02）を用い、励起中心波長325nm、励起波長範囲315～335nm、測定波長範囲390～800nmにて測定した。

<実施例1>（化合物M1の合成）



・工程（1a）

アルゴン雰囲気下、300mlの四つ口フラスコ中で、2,7-ジブロモ-9

、9-ビス(4-ヘキシルフェニル)フルオレン(50.27 g, 78 mmol)とTHF(500 ml)を混合し、 -78°C に冷却した。次いで1.6 M n-ブチルリチウムヘキサン溶液(51 ml, 82 mmol)を2時間かけて滴下し、 -78°C を保ちながらさらに2時間攪拌した。反応溶液に水100 mlを一
5 気に加えることでクエンチした。反応溶液を室温まで昇温した後、有機層を硫酸ナトリウムを用いて乾燥させ、減圧濃縮を行った。得られたオイルトルエン(500 ml)を加え、水(100 ml $\times$ 3)で洗浄後、有機層を硫酸ナトリウムを用いて乾燥させ、減圧濃縮を行った。得られたオイルを中圧分取カラム(シリカゲル、ヘキサン：トルエン=10：1)で精製することにより化合物M1a(3
10 5.1 g, 79%)を得た。

$^1\text{H-NMR}$ (270 MHz, CDCl_3) : δ = 0.87 (t, 6H), 1.25–1.40 (m, 24H), 1.55 (m, 4H), 2.54 (t, 4H), 7.02 (d, 4H), 7.06 (d, 4H), 7.24–7.39 (m, 3H), 7.45 (dd, 1H), 7.52 (s, 1H), 7.59 (d, 1H),
15 7.69 (d, 1H) ppm.

$^{13}\text{C-NMR}$ (270 MHz, CDCl_3) : δ = 14.4, 22.9, 29.4, 31.6, 32.0, 35.8, 65.3, 120.4, 121.6, 121.7, 126.5, 127.7, 128.2, 128.3, 128.6, 129.7, 130.8, 139.2, 139.4, 141.8, 142.7, 15
20 1.7, 154.0 ppm.

・工程(1b)

アルゴン雰囲気下、300 mlの四つ口フラスコ中で化合物M1a(12.16 g, 22 mmol)、ピナコレートジボラン(5.35 g, 24 mmol)、
25 酢酸カリウム(6.33 g, 66 mmol)、ジオキサン(92 ml)、ジフェニルホスフィノフェロセンパラジウムジクロリド(0.53 g, 0.66 mmol)とジフェニルホスフィノフェロセン(0.36 g, 0.66 mmol)を混合し、15時間、 110°C に加熱した。反応終了後、イオン交換水(100 ml

）を加え、クエンチした。分液漏斗を用いて水層を除去した後、水（100 ml × 3）で洗浄後、有機層を硫酸ナトリウムを用いて乾燥させ、減圧濃縮を行った。得られたオイルを中圧分取カラム（シリカゲル、ヘキサン：トルエン＝1：1）で精製することにより化合物M1b（10.5 g, 80%）を得た。

5 $^1\text{H-NMR}$ (270 MHz, CDCl_3) : δ = 0.87 (t, 6H), 1.25–1.40 (m, 24H), 1.56 (m, 4H), 2.53 (t, 4H), 7.00 (d, 4H), 7.10 (d, 4H) 7.22–7.39 (m, 4H), 7.72–7.85 (m, 3H) ppm.

$^{13}\text{C-NMR}$ (270 MHz, CDCl_3) : δ = 14.4, 22.9, 25.

10 2, 29.4, 31.6, 32.0, 35.8, 65.2, 83.9, 119.6, 120.8, 126.6, 127.5, 128.3, 128.4, 132.6, 134.5, 140.1, 141.3, 143.3, 143.4, 151.2, 152.6 ppm.

・工程 (1c)

15 アルゴン雰囲気下、2 Lの四つ口フラスコ中でトリス（4-ブロモフェニル）アミン（73.75 g, 153 mmol）と脱水THF（980 ml）を混合し、 -78°C に冷却した。反応溶液に1.6 Mブチルリチウム（100 ml）を1時間かけて滴下した。滴下後、100 mlのイオン交換水を一気に加えることでクエンチを行った。反応溶液にトルエン（400 ml）を加え、分液漏斗を用いて水層を除去した後、有機層が400 mlになるまで減圧濃縮した。さらにイオン交換水（300 ml × 3）で洗浄し、硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧乾燥させた。得られたオイルを中圧分取カラム（シリカゲル、ヘキサン：トルエン＝1：1）で3回精製することにより化合物M1c（34 g, 55%）を得た。

25 $^1\text{H-NMR}$ (270 MHz, CDCl_3) : δ = 6.93 (d, 4H), 7.05 (m, 3H), 7.25 (m, 2H), 7.33 (d, 4H) ppm.

$^{13}\text{C-NMR}$ (270 MHz, CDCl_3) : δ = 115.7, 124.0, 124.9, 125.9, 129.8, 132.6, 146.8, 147.2 ppm.

・工程 (1 d)

アルゴン雰囲気下、300 ml の四つ口フラスコ中で、化合物M1 b (13.82 g, 23 mmol)、化合物M1 c (4.43 g, 11 mmol)、水酸化カリウム (9.26 g, 170 mmol)、テトラブチルアンモニウムブロマイド (1.77 g, 6 mmol)、トルエン (150 ml)、イオン交換水 (70 ml) とテトラキス (トリフェニルホスフィン) パラジウム (380 mg, 0.33 mmol) を混合し、2時間、80℃に加熱した。反応終了後、分液漏斗を用いて水層を除去した後、イオン交換水 (100 ml × 3) で洗浄した。有機層を硫酸ナトリウムで乾燥させた後、減圧濃縮を行った。得られたオイルを中圧分取カラム (シリカゲル、ヘキサン：トルエン=8：1) で3回精製することにより化合物M1 d (10.7 g, 80%) を得た。

$^1\text{H-NMR}$ (270 MHz, CDCl_3) : δ = 0.85 (t, 12H), 1.28 (m, 24H), 1.54 (m, 8H), 2.53 (t, 8H), 7.01 (d, 8H), 7.07–7.19 (m, 14H), 7.20–7.50 (m, 13H), 7.51–7.63 (m, 4H), 7.69–7.62 (m, 4H) ppm.

$^{13}\text{C-NMR}$ (270 MHz, CDCl_3) : δ = 14.4, 22.9, 29.5, 31.8, 32.0, 35.9, 65.3, 120.4, 120.5, 123.5, 124.4, 124.7, 124.9, 126.3, 126.6, 127.7, 127.8, 128.2, 128.3, 128.5, 129.6, 135.8, 139.3, 140.1, 140.3, 141.5, 143.5, 147.2, 147.8, 152.2, 152.6 ppm.

25 ・工程 (1 e)

アルゴン雰囲気下、500 ml の4つ口フラスコ中でマグネシウム (2.89 g, 120 mmol) と少量のTHFを混合した。混合液をヒートガンで加熱しながら1, 2-ジブロモエタン (0.51 g, 2.8 mmol) を加え、還流を

保ちながら4-ヘキシルブロモベンゼン (25.3 g, 105 mmol) を1時間かけて滴下し、さらに1時間還流させることによりグリニャール試薬を合成した。アルゴン置換した別の500 mlの4つ口フラスコ中で、2,7-ジブロモフルオレノン (23.7 g, 70 mmol) とジエチルエーテル (300 ml)

- 5 を混合し、室温下で先に合成したグリニャール試薬を30分かけて滴下した。滴下終了後、4時間還流させた。反応終了後、水100 mlを加える事によりクエンチを行い、分液漏斗を用いて水 (200 ml × 3) で洗浄した。得られた有機層を硫酸ナトリウムで乾燥させた後、減圧濃縮を行った。得られたオイルを中圧分取カラム (シリカゲル、クロロホルム：ヘキサン=1：5) で2回精製することにより化合物M1e (29 g, 83%) を得た。
- 10

$^1\text{H-NMR}$ (270 MHz, CDCl_3) : δ = 0.88 (t, 3H), 1.36 (m, 6H), 1.58 (m, 2H), 2.44 (s, 1H), 2.56 (t, 2H), 7.13 (d, 2H), 7.23 (d, 2H), 7.43 (d, 2H), 7.48 (m, 4H) $^{13}\text{C-NMR}$ (270 MHz, CDCl_3) : δ = 14.3, 22.9, 29.4, 31.6, 32.0, 35.9, 83.6, 121.8, 122.8, 125.4, 128.6, 128.8, 132.6, 137.8, 139.0, 142.9, 152.4 ppm.

・工程 (1f)

- 20 アルゴン雰囲気下、500 mlの4つ口フラスコ中で化合物M1d (9.7 g, 8.0 mmol)、化合物M1e (4.8 g, 10 mmol) とジクロロメタン (150 ml) を混合した。室温下、混合溶液にトリフルオロボランエーテル錯体 (1.2 ml, 10 mmol) とジクロロメタン (50 ml) の混合溶液を1時間かけて滴下した後、2時間攪拌した。反応終了後、イオン交換水 (100 ml) を加えた後、分液漏斗を用いてイオン交換水 (100 ml × 3) で洗浄した。得られた有機層を硫酸ナトリウムを用いて乾燥させ、減圧濃縮した。得られた油状物を
- 25 中圧分取カラム (シリカゲル、ヘキサン：トルエン=4：1) で3回精製することにより化合物M1 (9.11 g, 67%) を得た。

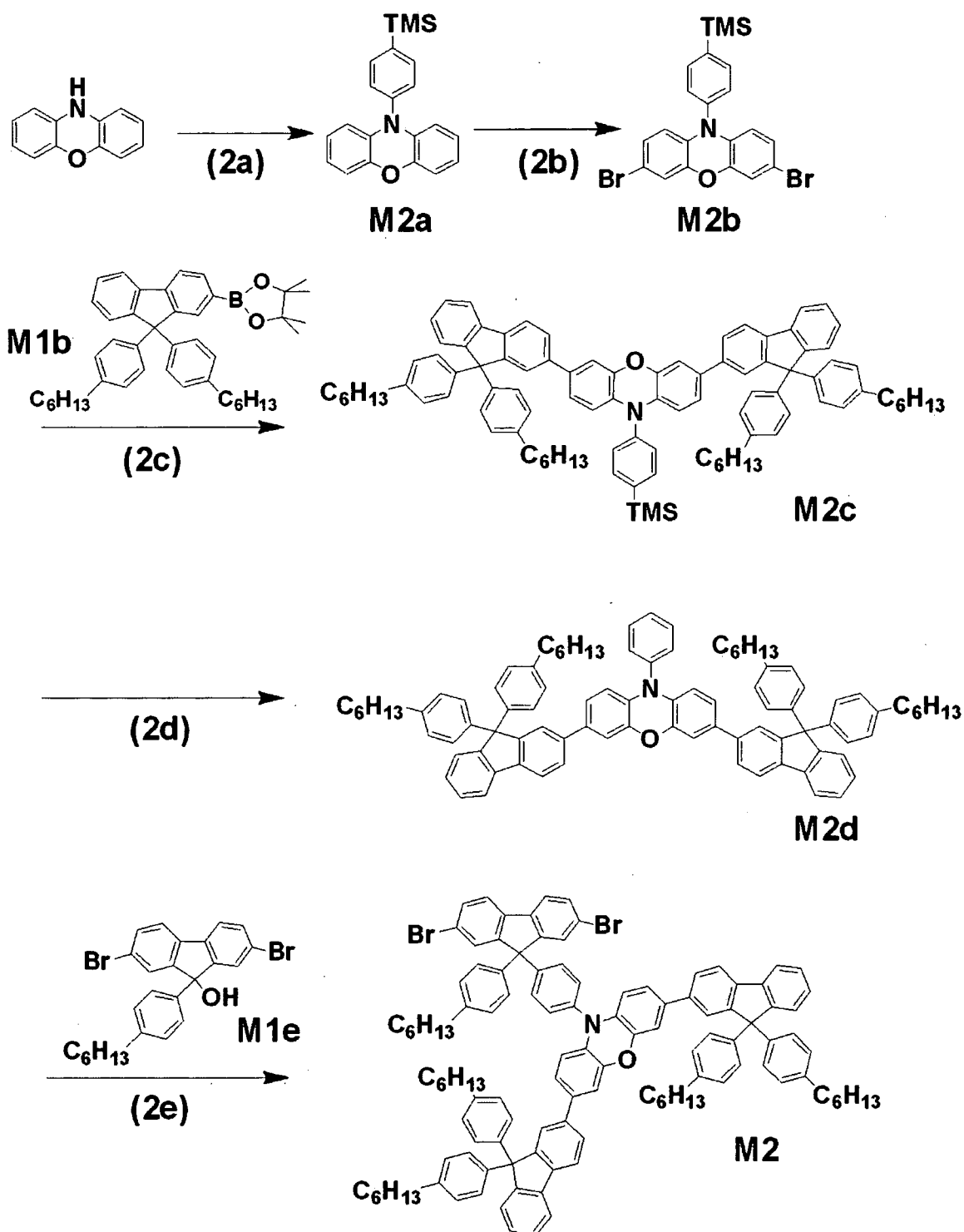
MS (APCI-MS: Positive) m/z : 1697.3 ([M+H]⁺)

¹H-NMR (270MHz, CDCl₃): δ =0.86 (t, 15H), 1.12-1.43 (m, 30H), 1.44-1.67 (m, 10H), 2.52
5 (t, 10H), 6.84-7.20 (m, 30H), 7.22-7.65 (m, 26H), 7.76 (dd, 4H) ppm.

¹³C-NMR (270MHz, CDCl₃): δ =14.4, 22.9, 29.4, 31.6, 32.0, 35.8, 65.3, 120.4, 120.6, 121.8, 122.0, 123.8, 124.7, 126.5, 127.6, 127.8, 128.1, 128.2, 128.4, 128.5, 128.8, 129.1, 129.7, 131.1, 136.1, 138.3, 139.3, 140.1, 140.3, 141.5, 141.8, 142.2, 143.5, 146.9, 152.2, 152.6, 153.7 ppm

10

15 <実施例2> (化合物M2の合成)



・工程 (2 a)

アルゴン雰囲気下、500mlの四つ口フラスコ中でフェノキサジン (19.79 g, 108 mmol)、4-トリメチルシリルブロモベンゼン (24.75

g, 108 mmol)、ナトリウム-*t*-ブトキシド (15.57 g, 162 mmol)、酢酸パラジウム (121 mg, 0.54 mmol)、トリス (4-メチルフェニル) ホスフィン (329 mg, 1.1 mmol) とトルエン (170 ml) を混合し、6時間、還流させた。反応終了後、冷却し、セライトとアルミナを通した。得られたトルエン溶液を100 mlまで濃縮し、メタノール (200 ml) を加え、静置することで再結晶を行った。得られた固体をろ取り、乾燥させることで化合物M2aを得た (26.3 g, 73%)。

$^1\text{H-NMR}$ (270 MHz, THF- d_8) : δ = -0.46 (s, 9H), 6.01 (d, 2H), 6.63-6.77 (m, 6H), 7.46 (d, 2H), 7.72 (d, 2H) ppm.

$^{13}\text{C-NMR}$ (270 MHz, THF- d_8) : δ = -1.2, 114.0, 115.9, 121.9, 123.8, 130.6, 135.2, 136.7, 140.5, 141.7, 144.8 ppm.

・工程 (2b)

アルゴン雰囲気下、500 mlの四つ口フラスコ中で化合物M2a (23.2 g, 70 mmol) とクロロホルム (300 ml) を混合し、0℃に冷却した。反応溶液にN-ブロモスクシンイミド (NBS, 24.9 g, 140 mmol) とN, N-ジメチルホルムアミド (DMF, 100 ml) の混合溶液を1時間かけて滴下した。滴下終了後、室温まで昇温した。さらに反応が完全に進行するまでNBSを1 gずつ加えた。反応終了後、反応溶液をメタノール (1.5 L) に注ぎ込んだ。得られた固体をろ取り、乾燥させた。得られた固体にトルエン (500 ml) を加え還流させ、熱時ろ過を行った。ここで、得られた固体 (固体A) は回収し、それとは別に、得られたトルエン溶液を濃縮し、トルエン-イソプロパノールを用いて再結晶を行い、再結晶により得られた固体 (固体B) をろ取した。これらの固体Aと固体Bを混合し、3回トルエン-イソプロパノールを用いて再結晶を行うことにより、目的物M2bを得た (25.1 g, 64%)。

$^1\text{H-NMR}$ (270 MHz, THF- d_8) : δ = -0.50 (s, 9H), 5

. 96 (d, 2H), 6.89 (dd, 2H), 7.02 (s, 2H), 7.49 (d, 2H), 7.99 (d, 2H) ppm.

・工程 (2c)

- 5 アルゴン雰囲気下、500mlの四つ口フラスコ中で前記と同様に合成した化合物M1b (12.1g, 20mmol)、化合物M2b (4.6g, 9.4mmol)、Aliquat 336 (1.2g, 3mmol) とトルエン (150ml) を混合し、1時間アルゴンバブリングを行った。この反応溶液に、酢酸パラジウム (21mg, 0.1mmol) とトリス (o-メトキシフェニル) ホスフィン (33mg, 0.1mmol) を混合し、105℃に加温した。この反応
- 10 溶液に2Mの炭酸ナトリウム水溶液 (15ml) を1時間かけて滴下し、3時間反応させた。反応終了後、分液を行い、有機層をイオン交換水 (100ml×3) で洗浄し、硫酸ナトリウムで乾燥させた。さらにアルミナを通液することで精製し、濃縮乾燥させることにより化合物M2cを得た (11.9g, 99%)。
- 15 粗製物のまま精製は行わず、次の反応に用いた。

・工程 (2d)

- アルゴン雰囲気下、300mlの四つ口フラスコ中で化合物M2c (11.9g, 9mmol)、トリフルオロ酢酸 (22g, 180mmol) とトルエン (
- 20 100ml) を混合し、3時間、80℃に加温した。反応終了後、分液を行い、イオン交換水 (100ml×3) と炭酸水素ナトリウム飽和水溶液 (100ml×4) で洗浄し、硫酸ナトリウムで乾燥させた。アルミナを通液し、トルエン溶液を濃縮乾固させた。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (トルエン/ヘキサン=1:1) で精製し、得られた溶液を濃縮後、トルエン-ヘキ
- 25 サンで再沈殿を行うことで化合物M2dを得た (9.41g, 83%)。

MS (APCI-MS: Positive) m/z: 1228.6 ([M+H]⁺).

¹H-NMR (270MHz, THF-d₈): δ=0.99 (t, 12H), 1

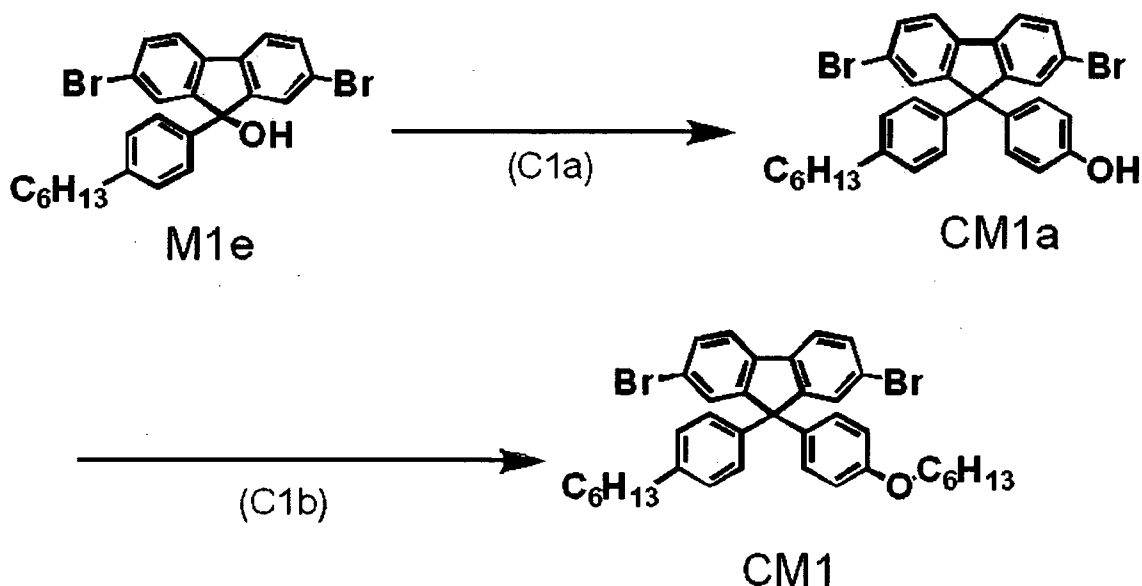
. 32-1.56 (m, 24H), 1.63-1.73 (m, 8H), 2.65
 (t, 8H), 6.06 (d, 2H), 6.94 (dd, 2H), 7.09 (d
 , 2H), 7.13 (d, 8H), 7.23 (d, 8H), 7.33 (dd, 2
 H), 7.43 (dd, 2H), 7.49-7.52 (m, 4H), 7.60-
 5 7.67 (m, 3H), 7.68 (s, 2H), 7.76 (dd, 2H), 7.
 89-7.95 (m, 4H) ppm.

・工程 (2e)

アルゴン雰囲気下、500mlの4つ口フラスコ中で化合物M2d (8.6g
 10 , 7.0mmol)、前記同様に合成した化合物M1e (3.6g, 7.1mm
 ol)とジクロロメタン (130ml)を混合した。室温下、混合溶液にトリフ
 ルオロボランエーテル錯体 (1ml, 8mmol)とジクロロメタン (10ml
)の混合溶液を1時間かけて滴下した。その後、反応溶液を30℃で100時間
 15 攪拌した。反応終了後、イオン交換水 (100ml)を加えた後、分液漏斗を用
 いてイオン交換水 (100ml×3)で洗浄した。得られた有機層を硫酸ナトリ
 ウムを用いて乾燥させ、減圧濃縮した。得られたオイルを中圧分取カラム (シリ
 カゲル、ヘキサン：トルエン=4：1)で精製することにより化合物M2 (2.
 2g, 18%)を得た。

MS (APCI-MS: Positive) m/z: 1711.6 ([M+H]
 20 ⁺) .

<比較例1> (化合物CM1の合成)



・工程 (C 1 a)

アルゴンガス雰囲気下、遮光下で、室温にて、化合物M1e (10.0g、20.0mmol)、及びフェノール (2.82g、30.0mmol) を脱水ジクロロメタン (300mL) に溶解させ、攪拌した中へ、脱水ジクロロメタン (100mL) に希釈した、三フッ化ホウ素ジエチルエーテル錯体 (3.0mL、24mmol) 溶液を1時間かけて滴下し、さらに室温にて2時間攪拌した。エタノール (200mL)、水 (200mL) を反応混合物へ加え、1時間攪拌した。水層を分液により除いた後に、有機層を5重量%炭酸水素ナトリウム水溶液 (2回)、水、15重量%食塩水 (2回) で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥、減圧濃縮することにより、赤色油状物として化合物CM1a (11.0g、収率96%、HPLC面積百分率97%) を得た。

$^1\text{H-NMR}$ (300MHz, THF-d₈) δ 8.25 (s, 1H), 7.74 (d, 2H), 7.54 (s, 1H), 7.51 (s, 2H), 7.08 (s, 4H), 6.96 (d, 2H), 6.63 (d, 2H), 2.57 (t, 2H), 1.60 (m, 2H), 1.33 (s, 6H), 0.90 (t, 3H)

$^{13}\text{C-NMR}$ (75MHz, THF-d₈) δ = 159.0, 156.2, 144.2, 143.5, 140.2, 136.9, 132.6, 131.2, 13

1. 0, 130. 9, 130. 3, 129. 8, 123. 8, 123. 5, 11
7. 0, 37. 4, 33. 8, 33. 6, 31. 2, 24. 6, 15. 5

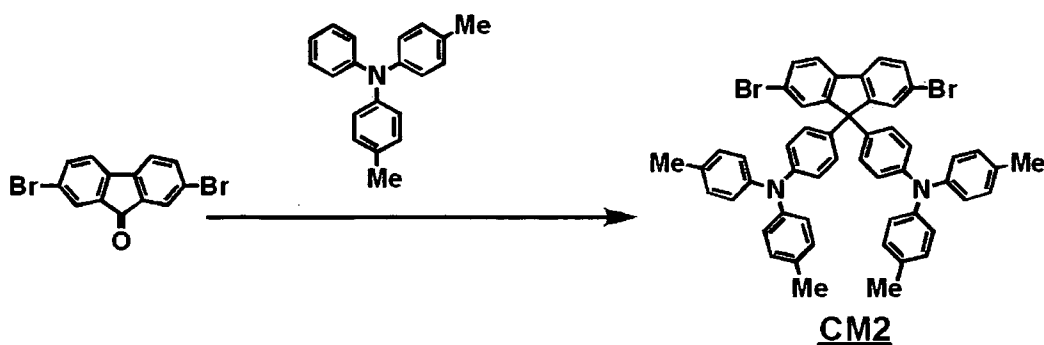
・工程 (C1b)

- 5 アルゴンガス雰囲気下、遮光下で、室温にて、化合物CM1a (10. 9 g、
18. 9 mmol)、及び1-ブロモヘキサン (6. 24 g、37. 8 mmol)
)、炭酸カリウム (7. 84 g、56. 7 mmol)、エタノール (47 ml)
を混合し、加熱還流下で4時間攪拌した。水 (100 ml) を加え攪拌し、静置
した後に、上澄み溶液をデカントすることにより除く操作を2回繰り返した後、
10 エタノール (38 ml) を加え、30分間加熱還流し、冷却した後に、上澄みを
デカントすることにより除いた。反応容器底部に固着した油状物をトルエンに溶
解させ、減圧濃縮することにより脱水した後に、中圧分取シリカゲルカラムクロ
マトグラフィー (シリカゲル、ヘキサン：クロロホルム=100：0～70：3
0) で精製することにより化合物CM1を黄色油状物として得た (10. 49 g
15 , 収率55%、HPLC面積百分率値99%)。

$^1\text{H-NMR}$ (300 MHz, THF-d₈) δ 7. 75 (d, 2H), 7. 55 (s, 2H), 7. 52 (s, 2H), 7. 06 (m, 6H), 6. 78 (d, 2H), 3. 91 (t, 2H), 2. 57 (t, 2H), 1. 75 (m, 2H), 1. 60 (m, 2H), 1. 37 (m, 12H), 0. 91 (t, 6H)

- 20 $^{13}\text{C-NMR}$ (75 MHz, THF-d₈) δ = 159. 0, 156. 2, 144. 2, 143. 5, 140. 2, 136. 9, 132. 6, 131. 2, 131. 0, 130. 9, 130. 3, 129. 8, 123. 8, 123. 5, 117. 0, 37. 4, 33. 8, 33. 6, 31. 2, 24. 6, 15. 5

- 25 <比較例2> (化合物CM2の合成)

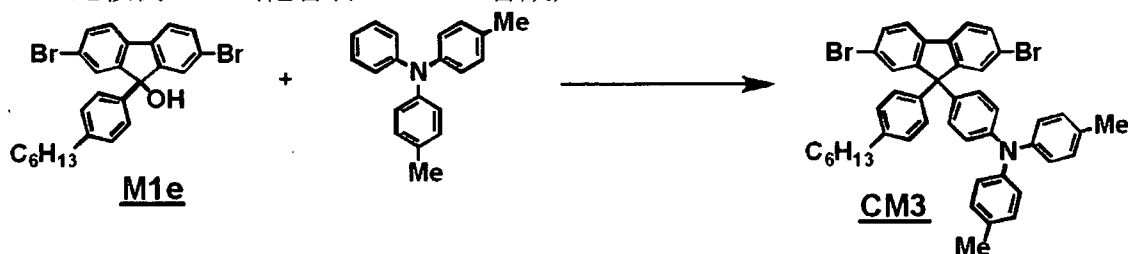


窒素ガス雰囲気下、遮光下で、2,7-ジブロモフルオレノン（4.97 g、14.7 mmol）、4,4'-ジメチルトリフェニルアミン（10.5 g、36.8 mmol）、及びメタンスルホン酸（1.41 g、14.7 mmol）を140℃で5時間攪拌した。50℃まで冷却した後、クロロホルム（50 ml）を加え、10重量%炭酸ナトリウム水溶液（50 ml）で2回洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥、減圧濃縮した後に、再結晶（クロロホルム-アセトン）した。得られた固体を塩化メチレン（330 g）に加熱溶解させた溶液へ活性炭（3 g）を加え、1時間室温で攪拌した。シリカゲルをプレコートしたろ過器により、活性炭を除去し、得られた溶液にアセトンをゆっくりと加えて晶析し、減圧乾燥させて、白色固体の化合物CM2（9.8 g、収率77%、HPLC面積百分率99%以上）を得た。

$^1\text{H-NMR}$ （300 MHz、THF- d_8 ） δ 2.26（s, 12H）, 6.80–7.20（m, 24H）, 7.5–7.8（m, 6H）

LC-MS $M = 864$

<比較例3>（化合物CM3の合成）



アルゴンガス雰囲気下、遮光下で、室温にて、前記同様に合成した化合物M1

e (5.00 g、10.0 mmol)、4, 4'-ジメチルトリフェニルアミン (2.73 g、10.0 mmol) を脱水ジクロロメタン (340 mL) に溶解させ、攪拌した中へ、脱水ジクロロメタン (68 mL) に希釈した、三フッ化ホウ素ジエチルエーテル錯体 (1.44 mL、11.7 mmol) 溶液を30分かけて滴下し、さらに室温にて30分攪拌した。エタノール (100 mL)、水 (100 mL) を反応混合物へ加え、1時間攪拌した。

水層を分液により除いた後に、有機層を5重量%炭酸水素ナトリウム水溶液 (2回)、15%食塩水 (2回) で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥、減圧濃縮した後に、シリカゲルショートカラム (ヘキサン/トルエン=1/1) に通液し、減圧濃縮、2回再結晶 (アセトン-メタノール)、減圧乾燥することにより、化合物CM3 (5.84 g、収率77%、HPLC面積百分率で99%以上) を白色固体として得た。

$^1\text{H-NMR}$ (300 MHz, THF- d_8) δ 0.90 (t, 3H), 1.28-1.41 (m, 6H), 1.56-1.62 (m, 2H), 2.27 (s, 6H), 2.56 (t, 2H), 6.84 (d, 2H), 6.92-7.11 (m, 14H), 7.51 (dd, 2H), 7.59 (d, 2H), 7.74 (d, 2H)

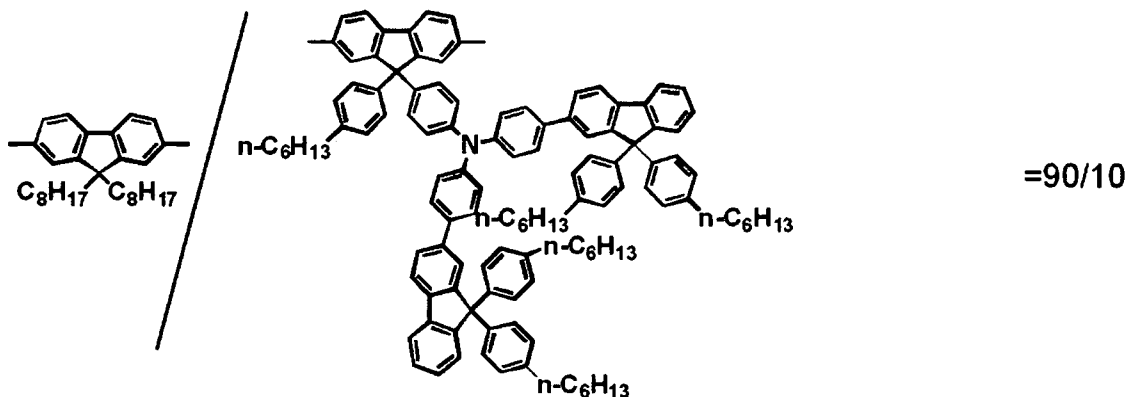
LC-MS $M=753$

<実施例3> (高分子化合物P1の合成)

2, 7-ビス (1, 3, 2-ジオキサボロラン-2-イル) -9, 9-ジオクチルフルオレン (0.7942 g、1.497 mmol)、2, 7-ジブromo-9, 9-ジオクチルフルオレン (0.6581 g、1.2 mmol)、化合物M1 (0.5091 g、0.300 mmol)、及びトリオクチルメチルアンモニウムクロライド (Aldrich社製、商品名: Aliquat 336) (0.19 g、0.48 mmol) をアルゴンガス雰囲気下、トルエン (48 mL) に溶解させた。溶液中へアルゴンガスをバブリングした後、80℃まで昇温し、ジクロロビストリフェニルホスフィンパラジウム (3.2 mg、4.5 μmol) のトルエン懸濁液 (5 mL) を仕込み、更に17.5重量%炭酸ナトリウム水溶液 (8.2

- ml、6.8 mmol)を加え、還流下20時間反応させた。一旦冷却した後に、フェニルホウ酸 (0.02 g、0.15 mmol) をトルエン1 mlに懸濁させた溶液を加え、更に還流下2時間反応させた。トルエン (20 ml) を加え希釈した後に、水層を除去し、9重量%N,N-ジエチルジチオカルバミド酸ナトリウム水溶液(9 ml)を加え、90℃で2時間攪拌した後、有機層をイオン交換水 (20 ml) で2回、3重量%酢酸水溶液(20 ml)で2回、イオン交換水 (20 ml)で2回順次洗浄し、次いでメタノール (250 ml) へ滴下し、30分攪拌して、ポリマーを析出させた。吸引ろ過でポリマーをろ取し、メタノール (50 ml)で洗浄し、減圧乾燥させて粗ポリマーを得た。
- 10 この粗ポリマーをトルエン (70 ml) に溶解させ、カラムに充填したアルミナ(5 g)、シリカゲル (15 g) に通液し、更にトルエン(70 ml)を通液した。得られた溶液をメタノール (250 ml) を攪拌した中にゆっくりと加え、更に30分攪拌して、ポリマーを析出させた。吸引ろ過でろ取し、メタノール(50 ml)で洗浄し、減圧乾燥させて、ポリマーである高分子化合物P1を得た(1.20 g、収率80%)。高分子化合物P1のポリスチレン換算の数平均分子量 M_n は 1.2×10^5 であり、ポリスチレン換算の重量平均分子量 M_w は 3.8×10^5 であり、ガラス転移温度は108℃であり、薄膜の蛍光ピーク波長は422 nm及び446 nmであった。

高分子化合物P1は、仕込み原料から、下記繰り返し単位を下記割合(モル比
20)で含むものであると推測される。



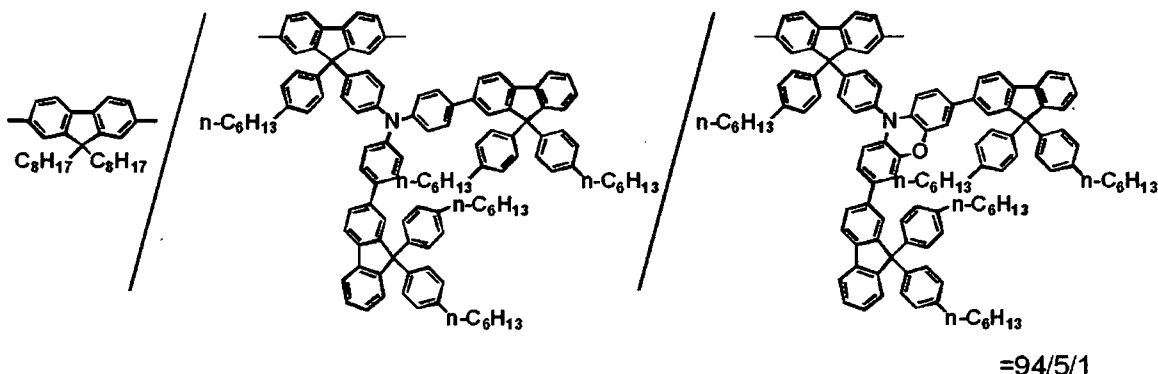
<実施例4> (高分子化合物P2の合成)

2, 7-ビス (1, 3, 2-ジオキサボロラン-2-イル) -9, 9-ジオクチルフルオレン (0. 4223 g、0. 796 mmol)、2, 7-ジブロー9, 9-ジオクチルフルオレン (0. 3861 g、0. 704 mmol)、化合物M1 (0. 1358 g、0. 080 mmol)、化合物M2 (0. 0274 g、0. 016 mmol)、及びトリオクチルメチルアンモニウムクロライド (Aldrich社製、商品名: Aliquat 336) (0. 10 g、0. 26 mmol)をアルゴンガス雰囲気下、トルエン(16 ml)に溶解させた。溶液中へアルゴンガスをバブリングした後、80℃まで昇温し、ジクロロビストリフェニルホスフィンパラジウム(0. 6 mg、0. 8 μ mol)のトルエン懸濁液(1 ml)を仕込み、更に17. 5重量%炭酸ナトリウム水溶液(2. 2 ml、3. 6 mmol)を加え、還流下20時間反応させた。一旦冷却した後に、フェニルホウ酸 (0. 10 g、0. 8 mmol)をトルエン3 mlに懸濁させた溶液を加え、更に還流下2時間反応させた。トルエン (20 ml)を加え希釈した後に、水層を除去し、9重量%N, N-ジエチルジチオカルバミド酸ナトリウム水溶液(5 ml)を加え、90℃で2時間攪拌した後、有機層をイオン交換水 (10 ml)で2回、3重量%酢酸水溶液(10 ml)で2回、イオン交換水(10 ml)で2回順次洗浄し、次いでメタノール (125 ml)へ滴下し、30分攪拌して、ポリマーを析出させた。吸引ろ過でポリマーをろ取し、メタノール(25 ml)で洗浄し、減圧乾燥させて粗ポリマーを得た。

この粗ポリマーをトルエン (25 ml)に溶解させ、カラムに充填したアルミナ(5 g)、シリカゲル (12 g)に通液し、更にトルエン(20 ml)を通液した。得られた溶液をメタノール (125 ml)を攪拌した中にゆっくりと加え、更に30分攪拌して、ポリマーを析出させた。吸引ろ過でろ取し、メタノール(25 ml)で洗浄し、減圧乾燥させて、ポリマーである高分子化合物P1を得た(0. 50 g、収率78%)。高分子化合物P2のポリスチレン換算の数平均分子量 M_n は 1.1×10^5 であり、ポリスチレン換算の重量平均分子量 M_w は 2.4×10^5 であり、ガラス転移温度は86℃であり、薄膜の蛍光ピーク波長は422

nm及び440nmであった。

高分子化合物P2は、仕込み原料から、下記繰り返し単位を下記割合（モル比）で含むものであると推測される。



5

<実施例5>（高分子化合物P3の合成）

2, 7-ビス（4, 4, 5, 5-テトラメチルー1, 3, 2-ジオキサボロラン-2-イル）-9, 9-ビス（4'-ヘキシルフェニル）フルオレン（0. 5909g、0. 800mmol）、2, 7-ジブromo-9, 9-ビス（4'-ヘキシルフェニル）フルオレン（0. 4125g、0. 640mmol）、化合物M1（0. 2308g、0. 136mmol）、及び化合物M2（0. 0411g、0. 024mmol）をアルゴンガス雰囲気下、トルエン（18ml）に溶解させた。溶液中へアルゴンガスをバブリングした後、80℃まで昇温し、ジクロロビストリフェニルホスフィンパラジウム（1. 1mg、1. 6μmol）のトルエン懸濁液（3ml）を仕込み、更に20重量%テトラエチルアンモニウム水酸化物水溶液（2. 7ml、3. 6mmol）を加え、還流下20時間反応させた。一旦冷却した後に、フェニルホウ酸（0. 13g、0. 85mmol）をトルエン3mlに懸濁させた溶液を加え、更に還流下2時間反応させた。トルエン（20ml）を加え希釈した後に、水層を除去し、9重量%N, N-ジエチルジチオカルバミド酸ナトリウム水溶液（5ml）を加え、90℃で2時間攪拌した後、有機層をイオン交換水（10ml）で2回、3重量%酢酸水溶液（10ml）で2回、イオン交換水（10ml）で2回順次洗浄し、次いでメタノール（125ml）へ滴下し、30分攪拌して、ポリマーを析出させた。吸引ろ過でポリマーをろ取し、

10

15

20

メタノール(25 ml)で洗浄し、減圧乾燥させて粗ポリマーを得た。

この粗ポリマーをトルエン(25 ml)に溶解させ、カラムに充填したアルミナ(5 g)、シリカゲル(12 g)に通液し、更にトルエン(20 ml)を通液した。

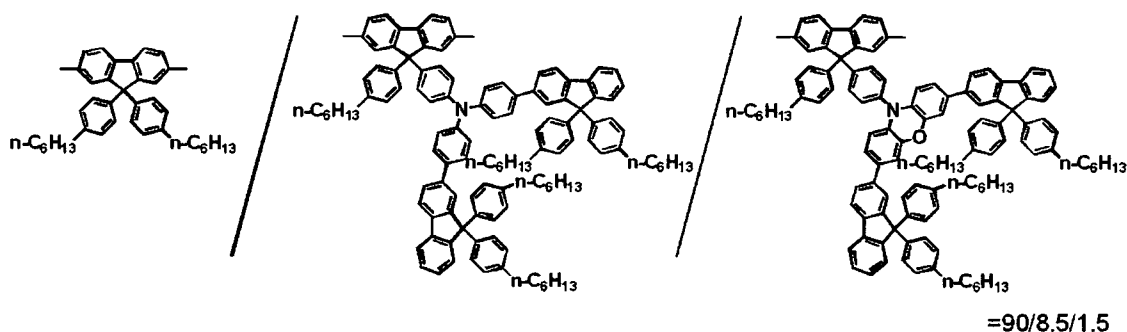
得られた溶液をメタノール(125 ml)を攪拌した中にゆっくりと加え、更に

5 30分攪拌して、ポリマーを析出させた。吸引ろ過でろ取し、メタノール(25 ml)で洗浄し、減圧乾燥させて、ポリマーである高分子化合物P1を得た(0.

72 g、収率76%)。高分子化合物P3のポリスチレン換算の数平均分子量 M_n は 1.4×10^5 であり、ポリスチレン換算の重量平均分子量 M_w は 3.9×10^5 であり、ガラス転移温度は179℃であり、薄膜の蛍光ピーク波長は44

10 8 nmであった。

高分子化合物P3は、仕込み原料から、下記繰り返し単位を下記割合(モル比)で含むものであると推測される。



15 <比較例4> (高分子化合物CP1の合成)

2,7-ビス(1,3,2-ジオキサボロラン-2-イル)-9,9-ジオクチルフルオレン(1.0675 g、2.012 mmol)、2,7-ジブromo-9,9-ジオクチルフルオレン(0.8873 g、1.618 mmol)、化合物CM1(0.2672 g、0.404 mmol)、及びトリオクチルメチルアン

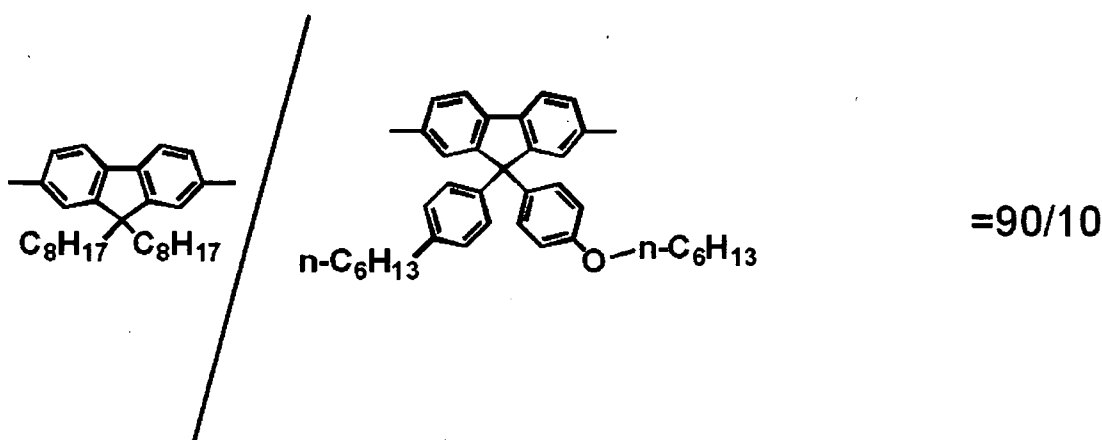
20 モニウムクロライド(Aldrich社製、商品名: Aliquat 336)(0.26 g、0.65 mmol)をアルゴンガス雰囲気下、トルエン(20 ml)に溶解させた。溶液中へアルゴンガスをバブリングした後、80℃まで昇温し、

ジクロロビストリフェニルホスフィンパラジウム(2.8 mg、4.0 μmol)の

トルエン懸濁液(5 ml)を仕込み、更に17.5重量%炭酸ナトリウム水溶液(5.5 ml、9.1 mmol)を加え、還流下7時間反応させた。一旦冷却した後、フェニルホウ酸(0.25 g、2.02 mmol)をトルエン3 mlに懸濁させた溶液を加え、更に還流下2時間反応させた。トルエン(20 ml)を加え希釈した後に、水層を除去し、9重量%N,N-ジエチルジチオカルバミド酸ナトリウム水溶液(12 ml)を加え、90℃で2時間攪拌した後、有機層をイオン交換水(26 ml)で2回、3重量%酢酸水溶液(26 ml)で2回、イオン交換水(26 ml)で2回順次洗浄し、次いでメタノール(320 ml)へ滴下し、30分攪拌して、ポリマーを析出させた。吸引ろ過でポリマーをろ取り、メタノール(60 ml)で洗浄し、減圧乾燥させて粗ポリマー(1.54 g)を得た。

この粗ポリマーをトルエン(70 ml)に溶解させ、カラムに充填したアルミナ(15 g)、シリカゲル(30 g)に通液し、更にトルエン(50 ml)を通液した。得られた溶液をメタノール(320 ml)を攪拌した中にゆっくりと加え、更に30分攪拌して、ポリマーを析出させた。吸引ろ過でろ取り、メタノール(60 ml)で洗浄し、減圧乾燥させて、ポリマーである高分子化合物CP1を得た(1.22 g、収率76%)。高分子化合物CP1のポリスチレン換算の数平均分子量 M_n は 1.7×10^5 であり、ポリスチレン換算の重量平均分子量 M_w は 5.8×10^5 であり、ガラス転移温度は83℃であり、薄膜の蛍光ピーク波長は422 nm及び438 nmであった。

高分子化合物CP1は、仕込み原料から、下記繰り返し単位を下記割合(モル比)で含むものであると推測される。



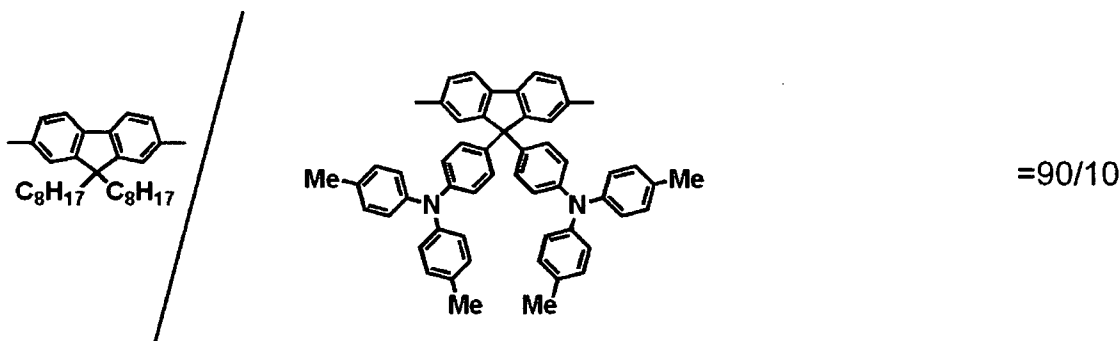
<比較例 5> (高分子化合物 CP 2 の合成)

- 2, 7-ビス (1, 3, 2-ジオキサボロラン-2-イル) -9, 9-ジオク
 5 チルフルオレン (1. 1814 g、2. 228 mmol)、2, 7-ジブromo-
 9, 9-ジオクチルフルオレン (0. 9872 g、1. 800 mmol)、化合
 物 CM2 (0. 3900 g、0. 450 mmol)、及びトリオクチルメチルアン
 モニウムクロライド (Aldrich 社製、商品名: Aliquat 336) (0.
 29 g、0. 72 mmol) をアルゴンガス雰囲気下、トルエン (17. 5 m
 10 l) に溶解させた。溶液中へアルゴンガスをバブリングした後、80℃まで昇温
 し、ジクロロビストリフェニルホスフィンパラジウム (1. 6 mg、2. 3 μ
 mol) のトルエン懸濁液 (5 ml) を仕込み、更に 20 重量% テトラエチルアンモニ
 ウム水酸化物水溶液 (7. 3 ml、10. 4 mmol) を加え、還流下 7 時間反応
 させた。一旦冷却した後に、フェニルホウ酸 (0. 27 g、2. 25 mmol
 15) をトルエン 3 ml に懸濁させた溶液を加え、更に還流下 2 時間反応させた。ト
 ルエン (22 ml) を加え希釈した後に、水層を除去し、9 重量% N, N-ジエ
 チルジチオカルバミド酸ナトリウム水溶液 (14 ml) を加え、90℃で 2 時間攪
 拌した後、有機層をイオン交換水 (30 ml) で 2 回、3 重量% 酢酸水溶液 (30
 ml) で 2 回、イオン交換水 (30 ml) で 2 回順次洗浄し、次いでメタノール (3
 20 50 ml) へ滴下し、30 分攪拌して、ポリマーを析出させた。吸引ろ過でポリマ
 ーをろ取し、メタノール (70 ml) で洗浄し、減圧乾燥させて粗ポリマー (1.

89 g)を得た。

この粗ポリマーをトルエン（70 ml）に溶解させ、カラムに充填したアルミナ（15 g）、シリカゲル（35 g）に通液し、更にトルエン（110 ml）を通液した。得られた溶液を、メタノール（350 ml）を攪拌した中にゆっくりと加え、更に30分攪拌して、ポリマーを析出させた。吸引ろ過でろ取し、メタノール（70 ml）で洗浄し、減圧乾燥させて、ポリマーである高分子化合物CP2を得た（1.65 g、収率88%）。高分子化合物CP2のポリスチレン換算の数平均分子量 M_n は 2.8×10^4 であり、ポリスチレン換算の重量平均分子量 M_w は 6.1×10^4 であり、ガラス転移温度は89℃であり、薄膜の蛍光ピーク波長は423 nm及び438 nmであった。

高分子化合物CP2は、仕込み原料から、下記繰り返し単位を下記割合（モル比）で含むものと推測される。



15 <比較例6>（高分子化合物CP3の合成）

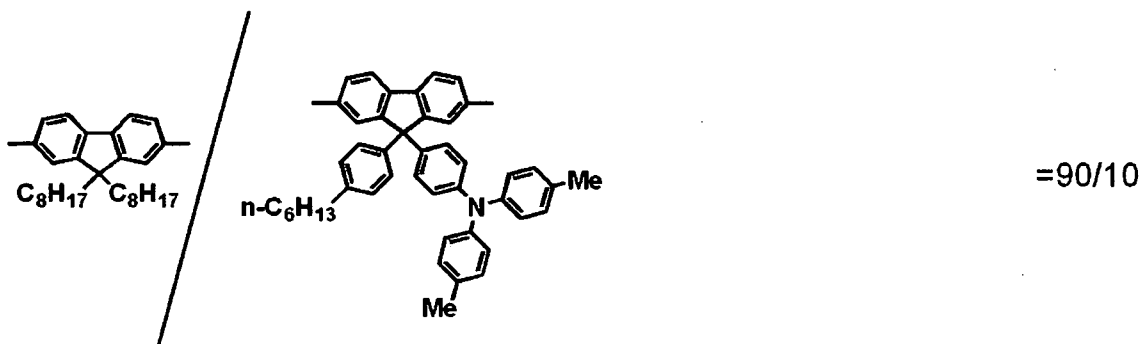
2,7-ビス（1,3,2-ジオキサボロラン-2-イル）-9,9-ジオクチルフルオレン（0.7838 g、1.478 mmol）、2,7-ジブromo-9,9-ジオクチルフルオレン（0.6581 g、1.200 mmol）及び化合物CM3（0.2267 g、0.300 mmol）をアルゴンガス雰囲気下、トルエン（17 ml）に溶解させた。

溶液中へアルゴンガスをバブリングした後、80℃まで昇温し、ジクロロビストリフェニルホスフィンパラジウム（1.1 mg、1.5 μmol）のトルエン懸濁液（5 ml）を仕込み、更に20重量%テトラエチルアンモニウム水酸化物水溶液（4

- 9 ml、6.9 mmol)を加え、還流下7時間反応させた。一旦冷却した後に、フェニルホウ酸 (0.18 g、1.5 mmol) をトルエン17 mlに懸濁させた溶液を加え、更に還流下2時間反応させた。水層を除去し、9重量%N, N-ジエチルジチオカルバミド酸ナトリウム水溶液(10 ml)を加え、90℃
- 5 で2時間攪拌した後、有機層をイオン交換水(20 ml)で2回、3重量%酢酸水溶液(20 ml)で2回、イオン交換水(20 ml)で2回順次洗浄し、次いでメタノール(250 ml)へ滴下し、30分攪拌して、ポリマーを析出させた。吸引ろ過でポリマーをろ取し、メタノール(50 ml)で洗浄し、減圧乾燥させて粗ポリマー(0.94 g)を得た。
- 10 この粗ポリマーをトルエン(50 ml)に溶解させ、カラムに充填したアルミナ(5.5 g)、シリカゲル(16.5 g)に通液し、更にトルエン(72 ml)を通液した。得られた溶液を、メタノール(250 ml)を攪拌した中にゆっくりと加え、更に30分攪拌して、ポリマーを析出させた。吸引ろ過でろ取し、メタノール(50 ml)で洗浄し、減圧乾燥させて、ポリマーである高分子化合物CP3
- 15 を得た(0.83 g、収率69%)。高分子化合物CP3のポリスチレン換算の数平均分子量Mnは 1.7×10^4 であり、ポリスチレン換算の重量平均分子量Mwは 3.2×10^4 であり、ガラス転移温度は73℃であり、薄膜の蛍光ピーク波長は423 nm及び446 nmであった。

高分子化合物CP3は、仕込み原料から、下記繰り返し単位を下記割合(モル

20 比)で含むものと推測される。



<実施例6> (発光素子P1の作製)

高分子化合物P 1をキシレン（関東化学社製、電子工業用グレード）に溶解させた。このとき、固形分の濃度は、1. 2重量%となるように調製した。スパッタ法により150nmの厚みでITO膜を付けたガラス基板に、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の溶液（バイエル社製、商品名：Baytron P CH8000）を用いてスピコートにより65nmの厚みで成膜し、ホットプレート上で、200℃で10分間乾燥させた。次に、上記調製したキシレン溶液を用いてスピコートにより850rpmの回転速度で成膜した。膜厚は約100nmであった。これを窒素ガス雰囲気下130℃で20分間乾燥させた後、陰極として、フッ化リチウムを約4nm、次いでカルシウムを約5nm、最後にアルミニウムを約100nm蒸着して、発光素子P 1を作製した。素子構成は、ITO／Baytron P（65nm）／高分子化合物P 1／LiF／Ca／Alとなる。真空度が、 1×10^{-4} Pa以下に到達した後、金属の蒸着を開始した。

発光素子P 1に電圧を印加したところ、高分子化合物P 1由来のピーク波長（EL）450nmの深青色発光を示した。最大発光効率は1. 9cd/Aであり、そのときの電圧は3. 6Vであり、外部量子収率は1. 5%であった。輝度1000cd/m²での電圧は7. 4Vであり、色度座標C. I. E. 1931は（x, y）=（0. 18, 0. 13）であり、発光効率1. 2cd/Aであり、外部量子収率は1. 2%であった。これらの結果を表1に示す。

20

<実施例7>（発光素子P 2の作製）

実施例6において、高分子化合物P 1の1. 2重量%キシレン溶液に代えて、高分子化合物P 2の1. 3重量%キシレン溶液を用いたこと、スピコートの回転速度を1000rpmに変更したこと以外は、実施例6と同様にして、発光素子P 2を作製した。膜厚は約100nmであった。

発光素子P 2に電圧を印加したところ、高分子化合物P 2由来のピーク波長（EL）450nmの深青色発光を示した。最大発光効率は0. 82cd/Aであり、そのときの電圧は6. 4Vであり、外部量子収率は0. 92%であった。輝

度 1000 cd/m^2 の電圧は 12.0 V であり、色度座標 $C. I. E. 1931$ は $(x, y) = (0.16, 0.10)$ であり、発光効率 0.77 cd/A であり、外部量子収率は 0.90% であった。これらの結果を表 1 に示す。

5 <実施例 8> (発光素子 P 3 の作製)

実施例 6 において、高分子化合物 P 1 の 1.2 重量%キシレン溶液に代えて、高分子化合物 P 3 の 1.2 重量%キシレン溶液を用いたこと、スピスコートの回転速度を 1000 rpm に変更したこと以外は、実施例 6 と同様にして、発光素子 P 3 を作製した。膜厚は約 100 nm であった。

- 10 発光素子 P 3 に電圧を印加したところ、高分子化合物 P 3 由来のピーク波長 (EL) 455 nm の青色発光を示した。最大発光効率は 2.8 cd/A であり、そのときの電圧は 4.6 V であり、外部量子収率は 2.0% であった。輝度 1000 cd/m^2 の電圧は 9.2 V であり、色度座標 $C. I. E. 1931$ は $(x, y) = (0.15, 0.17)$ であり、発光効率 2.1 cd/A であり、外部
- 15 量子収率は 1.6% であった。これらの結果を表 1 に示す。

<比較例 7> (発光素子 C P 1 の作製)

- 実施例 6 において、高分子化合物 P 1 の 1.2 重量%キシレン溶液に代えて、高分子化合物 C P 1 の 1.2 重量%キシレン溶液を用いたこと、スピスコートの
- 20 回転速度を 2000 rpm に変更したこと以外は、実施例 6 と同様にして、発光素子 C P 1 を作製した。膜厚は約 100 nm であった。

- 発光素子 C P 1 に電圧を印加したところ、高分子化合物 C P 1 由来のピーク波長 (EL) 425 nm の深青色発光を示した。最大発光効率は 1.5 cd/A であり、そのときの電圧は 3.2 V であり、外部量子収率は 1.2% であった。輝
- 25 度 1000 cd/m^2 の電圧は 5.6 V であり、色度座標 $C. I. E. 1931$ は $(x, y) = (0.15, 0.17)$ であり、発光効率 0.54 cd/A であり、外部量子収率は 0.59% であった。
- これらの結果を表 1 に示す。

<比較例 8> (発光素子 CP 2 の作製)

実施例 6 において、高分子化合物 P 1 の 1.3 重量%キシレン溶液に代えて、高分子化合物 CP 2 の 1.7 重量%キシレン溶液を用いたこと、スピンの回転速度を 2200 rpm としたこと以外は、実施例 6 と同様にして、発光素子 CP 2 を作製した。膜厚は約 100 nm であった。

発光素子 CP 2 に電圧を印加したところ、高分子化合物 CP 2 由来のピーク波長 (EL) 450 nm の深青色発光を示した。最大発光効率 0.18 cd/A であり、そのときの電圧は 5.6 V であり、外部量子収率は 0.29% であった。輝度 1000 cd/m^2 での電圧は 7.8 V であり、色度座標 C. I. E. 1931 は $(x, y) = (0.19, 0.11)$ であり、発光効率 0.34 cd/A であり、外部量子収率は 0.37% であった。これらの結果を表 1 に示す。

<比較例 9> (発光素子 CP 3 の作製)

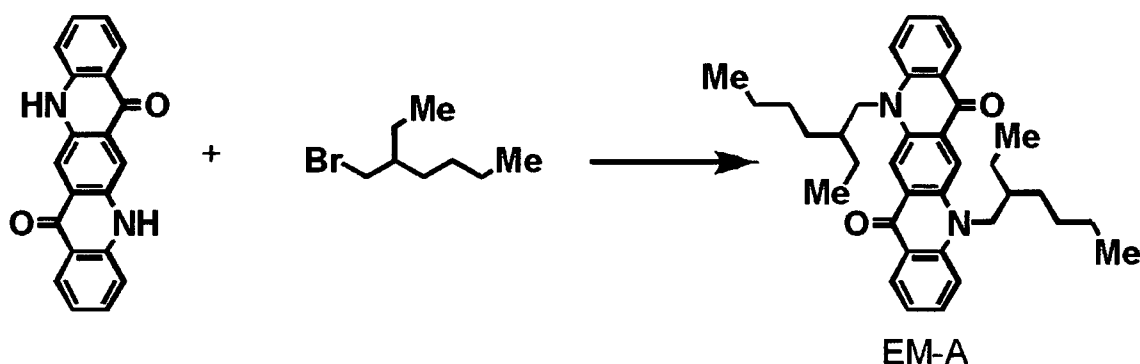
実施例 6 において、高分子化合物 P 1 の 1.2 重量%キシレン溶液に代えて、高分子化合物 CP 2 の 1.8 重量%キシレン溶液を用いたこと、スピンの回転速度を 2200 rpm に変更したこと以外は、実施例 6 と同様にして、発光素子 CP 3 を作製した。膜厚は約 100 nm であった。

発光素子 CP 3 に電圧を印加したところ、高分子化合物 CP 1 由来のピーク波長 (EL) 450 nm の青色発光を示した。最大発光効率 0.83 cd/A であり、そのときの電圧は 3.4 V であり、外部量子収率は 0.89% であった。輝度 1000 cd/m^2 での電圧は 7.8 V であり、色度座標 C. I. E. 1931 は $(x, y) = (0.17, 0.10)$ であり、発光効率 0.43 cd/A であり、外部量子収率は 0.51% であった。これらの結果を表 1 に示す。

表1

	高分子化合物	輝度1000cd/m ² における値		ピーク波長	
		外部量子収率 (%)	色度(CIE) (x,y)	λ max	
				EL	PL
実施例6	P1	1.19	(0.18,0.13)	450 nm	422, 446 nm
実施例7	P2	0.90	(0.16,0.10)	450 nm	422, 440 nm
実施例8	P3	1.55	(0.15,0.17)	455 nm	448 nm
比較例7	CP1	0.59	(0.16,0.11)	425 nm	422, 438 nm
比較例8	CP2	0.37	(0.19,0.11)	450 nm	423, 438 nm
比較例9	CP3	0.51	(0.17,0.10)	450 nm	423, 446 nm

< 合成例 1 > (発光材料 EM-A の合成)



5

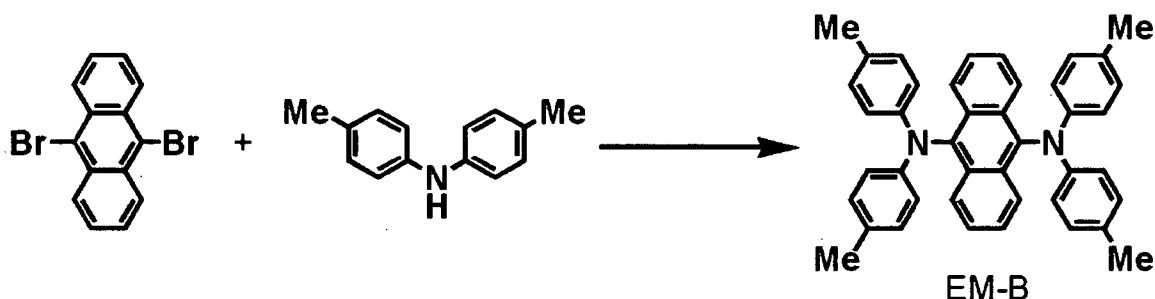
アルゴン雰囲気下、1000ml フラスコ中でN,N-ジメチルアセトアミド (300ml)、及びキナクリドン (15.0g, 48.0mmol) を混合し、約60重量%で鉍物油に希釈された水素化ナトリウム (5.76g, 144mmol) を少しずつ加え、80℃で1時間攪拌したところへ、2-エチルヘキシル
10 ブロミド (38.6g, 200mmol) を15分かけて滴下し、80℃で6時間攪拌した。反応終了後、氷水バスにて冷却した蒸留水 (900ml) に注加し、1N塩酸水にて中和した。酢酸エチル800mlを加え抽出した後に、有機層を5重量%食塩水 (300ml) で洗浄し、得られた有機層を硫酸マグネシウムを用いて乾燥させ、減圧濃縮した。得られた固体をクロロホルム (200ml) に溶解させ、シリカゲルショートカラムに通液した後、減圧濃縮し、ヘキサ
15

ン (150 ml) を加えることにより析出した固体をろ取、ヘキサン (100 ml) で洗浄し、減圧乾燥することにより粗生成物 (11.2 g) を得た。得られた固体を中圧シリカゲルカラムクロマトグラフィー (クロロホルム/酢酸エチル = 5/1) で精製し、発光材料 EM-A を得た (9.4 g, 収率 46%)。

5 $^1\text{H-NMR}$ (300 MHz, CDCl_3) : δ (ppm) = 0.84 (t, 6H), 0.97 (t, 6H), 1.20–1.54 (m, 16H), 2.20 (bs, 2H), 4.50 (bs, 4H), 7.26 (t, 2H), 7.56 (d, 2H), 7.72 (t, 2H), 8.58 (d, 2H), 8.84 (s, 2H)

10 $^{13}\text{C-NMR}$ (75 MHz, CDCl_3) : δ (ppm) = 11.6, 14.3, 23.4, 24.7, 29.1, 31.3, 38.7, 50.0, 114.7, 115.8, 121.2, 121.6, 126.5, 128.4, 134.7, 136.7, 143.4, 178.5.

15 <合成例 2> (発光材料 EM-B の合成)



アルゴン雰囲気下、500 ml フラスコ中、9,10-ジブロモアントラセン (16.8 g, 50.0 mmol)、ナトリウム-tert-ブトキシド (10.5 g, 110 mmol)、トリス (ジベンジリデンアセトン) ジパラジウム (0) (0.46 g, 0.5 mmol)、及びトルエン (100 ml) の混合物をアルゴンガスでバブリングした後に、トリ-tert-ブチルホスフィン (0.4 g, 2 mmol) をシリンジで加えた。90℃まで加熱した後に、N,N'-ジ-p-トリルアミン (21.7 g, 110 mmol) をトルエン (100 ml)

に溶解させた溶液を40分かけて滴下して加えた。90℃で40分攪拌、続いて還流下で3時間攪拌した後、室温まで冷却し、析出物をろ取した。得られた固体をクロロホルム(500ml)に還流下で溶解させ、不溶物を熱時ろ過により除去した。ろ液を約350gまで濃縮した後に、攪拌しながらメタノール(250

5 ml)滴下により加え、析出した固体をろ取、メタノールで洗浄し減圧乾燥させた。得られた固体に、トルエン(200ml)を加え、80℃にて激しく攪拌した後に、室温まで冷却し、固体をろ取、トルエン(100ml)、ヘキサン(100ml)で順次洗浄し、減圧乾燥することにより、発光材料EM-Bをオレンジ色粉末として得た(19.9g, 収率70%)。

- 10 $^1\text{H-NMR}$ (300MHz, CDCl_3) : δ (ppm) = 2.26 (s, 12H), 6.98 (s, 16H), 7.30–7.34 (m, 4H), 8.15–8.18 (m, 4H) .

<実施例9>

- 15 高分子化合物P1の、0.8重量%キシレン溶液を調製した。この溶液を石英基板上に回転速度1000rpmのスピコートにて塗布し、フォトルミネッセンス量子収率を測定した。その結果、量子収率は65%であり、発光スペクトルより求めた色度座標C. I. E. 1931は(x, y) = (0.16, 0.07)と深青色発光を示した。これらの結果を表2に示す。

20

<実施例10>

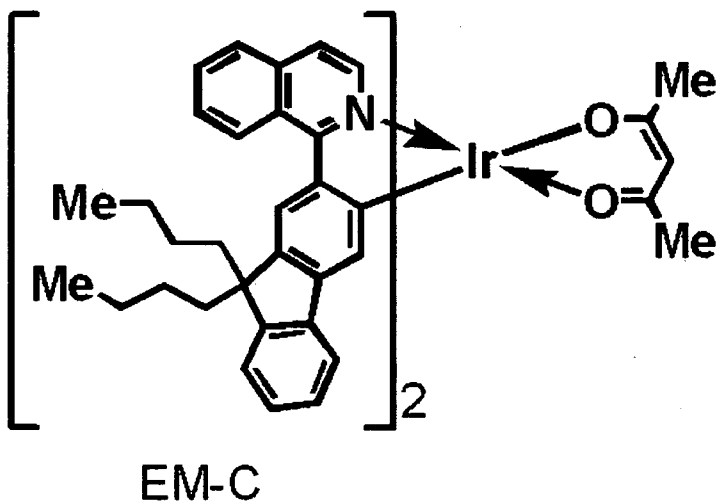
- 実施例9において、高分子化合物P1の0.8重量%キシレン溶液に代えて、高分子化合物P1に、発光材料EM-Aを5重量%添加した混合物の0.8重量%キシレン溶液を用いたこと以外は、実施例32と同様にして、フォトルミネッセンス量子率を測定した。その結果、量子収率は24%であり、発光スペクトル
- 25 より求めた色度座標C. I. E. 1931は(x, y) = (0.37, 0.52)と緑色発光を示した。これらの結果を表2に示す。

<実施例 1 1>

実施例 9 において、高分子化合物 P 1 の 0.8 重量%キシレン溶液に代えて、高分子化合物 P 1 に、発光材料 EM-B を 5 重量%添加した混合物の 0.8 重量%キシレン溶液を用いたこと以外は、実施例 3 2 と同様にして、フォトルミネッセンス量子率を測定した。その結果、量子収率は 73%であり、発光スペクトルより求めた色度座標 C. I. E. 1931 は $(x, y) = (0.30, 0.62)$ と緑色発光を示した。これらの結果を表 2 に示す。

<実施例 1 2>

10 実施例 9 において、高分子化合物 P 1 の 0.8 重量%キシレン溶液に代えて、高分子化合物 P 1 に、下記式：

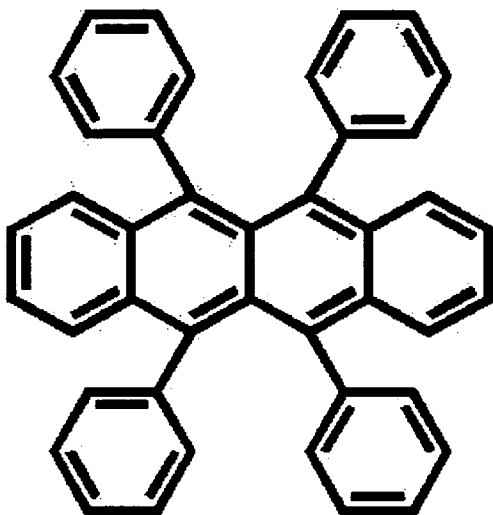


で表される発光材料 EM-C (アメリカンダイソース社製、商品名：ADS077RE) を 5 重量%添加した混合物の 0.8 重量%キシレン溶液を用いたこと以外は、実施例 3 2 と同様にして、フォトルミネッセンス量子率を測定した。その結果、量子収率は 24%であり、発光スペクトルより求めた色度座標 C. I. E. 1931 は $(x, y) = (0.51, 0.22)$ と赤色発光を示した。これらの結果を表 2 に示す。

20 <実施例 1 3>

実施例 9 において、高分子化合物 P 1 の 0.8 重量%キシレン溶液に代えて、

高分子化合物 P 1 に、下記式：



EM-D

5 で表される発光材料 EM-D（東京化成工業株式会社製、5，6，11，12-テトラフェニルナフタセン）を 10 重量%添加した混合物の 0.8 重量%キシレン溶液を用いたこと以外は、実施例 32 と同様にして、フォトルミネッセンス量子収率を測定した。その結果、量子収率は 58 % であり、発光スペクトルより求めた色度座標 C. I. E. 1931 は $(x, y) = (0.48, 0.49)$ と黄色発光を示した。これらの結果を表 2 に示す。

10 表2

	高分子化合物	発光材料	組成比 (重量比)	PLQY	色度(CIE) (x, y)
実施例9	P1	なし	—	65%	(0.16, 0.07)
実施例10	P1	EM-A	95/5	24%	(0.37, 0.55)
実施例11	P1	EM-B	95/5	73%	(0.30, 0.62)
実施例12	P1	EM-C	95/5	24%	(0.51, 0.22)
実施例13	P1	EM-D	90/10	58%	(0.48, 0.49)

<評価>

表 1 から分かるように、本発明の高分子化合物は、1000cd/m² の輝度における

外部量子収率が優れた発光素子の作製に有用な高分子化合物である。

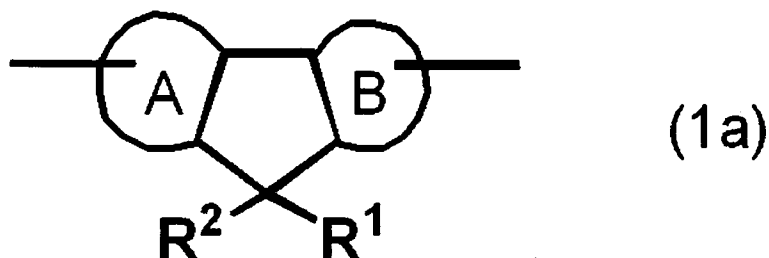
表2から分かるように、本発明の高分子化合物は、発光材料との組成物とすることにより、発光色度を容易に調整することができる。

5 産業上の利用可能性

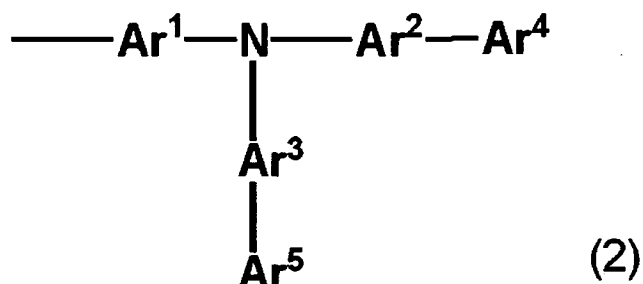
本発明の高分子化合物は、 1000cd/m^2 の輝度における外部量子収率が優れた発光素子の作製に有用な高分子化合物である。さらに、本発明の高分子化合物は、通常、発光材料との組成物とすることにより、発光色度を容易に調整することができる。

請求の範囲

1. 下記式（1 a）で表される構成単位を含む高分子化合物。



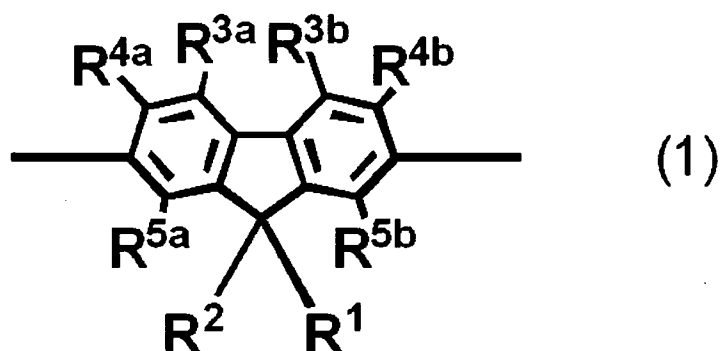
- 5 〔式中、A環及びB環はそれぞれ独立に、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素環を表す。R¹は下記式（2）で表される基である。R²はアリール基又は1価の芳香族複素環基を表し、これらの基における水素原子は、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アラルキル基、1価の芳香族複素環基、フッ素原子又はシアノ基で置換されていてもよい。〕



- 〔式中、Ar¹は、アリーレン基、又は同一若しくは異なる2個以上のアリーレン基が直結した2価の基を表す。Ar⁴及びAr⁵はそれぞれ独立に、アリール基又は1価の芳香族複素環基を表す。Ar²及びAr³はそれぞれ独立に、アリーレン基、又は2価の芳香族複素環基を表す。Ar²及びAr³がフェニレン基である場合、それらのフェニレン基に結合する窒素原子からみてオルト位に位置する、Ar²で表されるフェニレン基上の炭素原子の1個と、Ar³で表されるフェニレン基上の炭素原子の1個とが、互いに直結して、又は-O-、-S-、-C(=O)-、-C(=O)-O-、-N(R⁶)-、-C(=O)-N(R⁶)-若しくは-C(R⁶)(R⁶)-で結合して、5～7員環を形成していてもよい。R⁶は、水素原子、

アルキル基、アリール基、又は1価の芳香族複素環基を表す。Ar¹、Ar²、Ar³、Ar⁴、Ar⁵及びR⁶で表される基における水素原子は、各々、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシ基、ア
 5 リール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アラルキル基、1価の芳香族複
 素環基、フッ素原子又はシアノ基で置換されていてもよい。R⁶が複数存在する
 場合、それらは、同一であっても異なってもよい。]

2. 式(1a)で表される構成単位が下記式(1)で表される構成単位である請
 求項1に記載の高分子化合物。

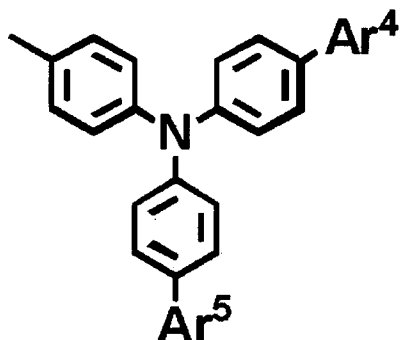


10

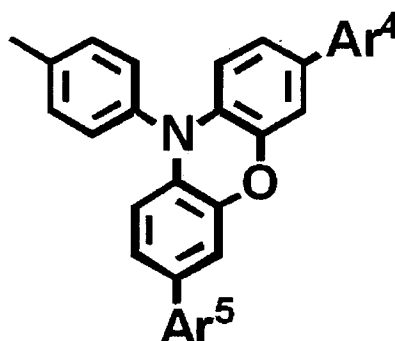
[式中、R¹及びR²は前記と同じ意味を表す。R^{3a}、R^{4a}、R^{5a}、R^{3b}、R^{4b}及
 びR^{5b}はそれぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アリール基、1価の芳香族複
 素環基、-N(R⁸)(R⁹)、フッ素原子又はシアノ基を表す。R⁸及びR⁹はそれぞ
 15 れ独立に、水素原子、アルキル基、アリール基、又は1価の芳香族複素環基を表
 す。R^{3a}、R^{4a}、R^{5a}、R^{3b}、R^{4b}、R^{5b}、R⁸及びR⁹で表されるアリール基及
 び1価の芳香族複素環基における水素原子は、各々、アルキル基、アルコキシ基
 、アルキルチオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシ基、アリール基、アリ
 ールオキシ基、アリールチオ基、アラルキル基、1価の芳香族複素環基、フッ素
 20 原子又はシアノ基で置換されていてもよい。R^{3a}とR^{4a}、R^{3b}とR^{4b}、R^{3a}とR^{3b}、及びR⁸とR⁹は、各々、一緒になって環を形成していてもよい。]

3. R²が、アルキル基若しくはアリール基で置換されたアリール基、又は非置
 換のアリール基である請求項1又は2に記載の高分子化合物。

4. 式(2)で表される基が下記式(2-000)又は(2-100)で表される基である請求項1～3のいずれか一項に記載の高分子化合物。



(2-000)



(2-100)

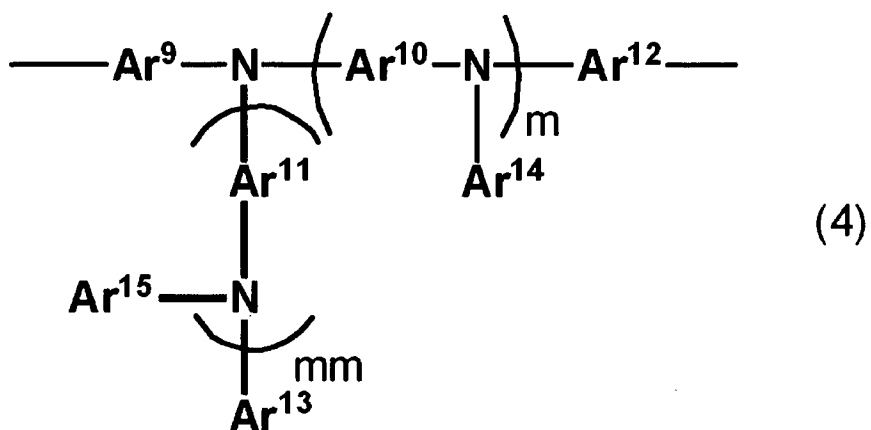
[式中、Ar⁴及びAr⁵は前記と同じ意味を表す。]

5

5. さらに、下記式(3)～(5)で表される構成単位からなる群から選ばれる少なくとも一種の構成単位を含む請求項1～4のいずれか一項に記載の高分子化合物。



10



[式中、 Ar^8 及び Ar^{16} はそれぞれ独立に、アリーレン基、若しくは2価の芳香族複素環基、又は該アリーレン基及び該2価の芳香族複素環基からなる群から選ばれる同一若しくは異なる2個以上の基が直結した2価の基を表す。 Ar^9 、 Ar^{10} 、 Ar^{11} 及び Ar^{12} はそれぞれ独立に、アリーレン基、又は同一若しくは異なる2個以上のアリーレン基が直結した2価の基を表す。 Ar^{13} 、 Ar^{14} 及び Ar^{15} はそれぞれ独立に、アリール基又は1価の芳香族複素環基を表す。 Ar^8 及び Ar^{16} で表されるアリーレン基、2価の芳香族複素環基及び2価の基は、各々、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシル基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アラルキル基、1価の芳香族複素環基、 $-N(R^8)(R^9)$ 、フッ素原子又はシアノ基で置換されていてもよい。 Ar^9 、 Ar^{10} 、 Ar^{11} 、 Ar^{12} 、 Ar^{13} 、 Ar^{14} 及び Ar^{15} で表される基における水素原子は、各々、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、置換カルボニル基、置換カルボキシル基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アラルキル基、1価の芳香族複素環基、フッ素原子又はシアノ基で置換されていてもよい。 Ar^{11} 、 Ar^{14} 及び Ar^{15} で表される基からなる群から選ばれる基は、該基と同一の窒素原子に結合する Ar^9 、 Ar^{10} 、 Ar^{11} 、 Ar^{12} 、 Ar^{13} 、 Ar^{14} 及び Ar^{15} で表される基からなる群から選ばれる基と、互いに直結して、又は $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-C(=O)-$ 、 $-C(=O)-O-$ 、 $-N(R^6)-$ 、 $-C(=O)-N(R^6)-$ 又は $-C(R^6)(R^6)-$ で結合して、5～7員環を形成していてもよい。 m 及び mm はそれぞれ独立に、0又は1である。 X^1 は、 $-C(R^7)=C(R^7)-$ 又は $-C\equiv C-$ を表す。 R^7 は、水素原子、アルキル基、アリール基、1価の芳香族複素環基、フッ素原子又はシアノ基を表す。 R^7 で表される基は、置換基を有していてもよい。 Ar^{10} 、 Ar^{11} 、 Ar^{14} 及び Ar^{15} が複数ある場合、それらは、各々、同一であっても異なってもよい。 R^6 、 R^8 及び R^9 は、前記と同じ意味を表す。]

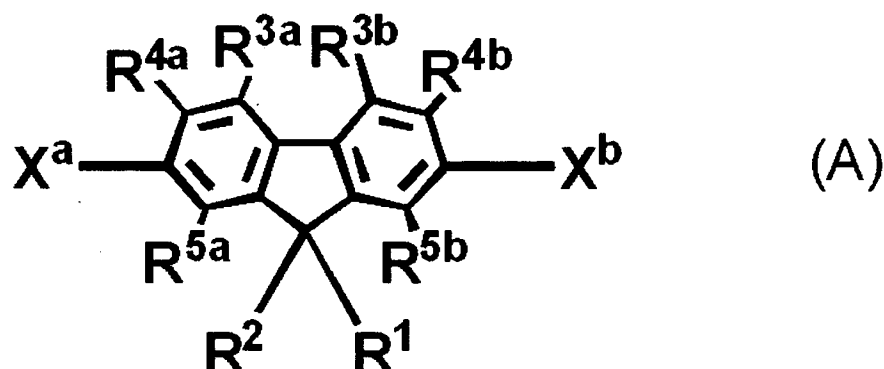
6. 全構成単位の合計モル数に対する、式(1a)で表される構成単位、式(3)で表される構成単位、式(4)で表される構成単位、及び式(5)で表される

構成単位の合計モル数が90～100%である請求項5に記載の高分子化合物。

7. ポリスチレン換算の数平均分子量が $1 \times 10^3 \sim 1 \times 10^8$ である請求項1～6のいずれか一項に記載の高分子化合物。

5

8. 下記式(A)で表される化合物。



〔式中、 R^1 、 R^2 、 R^{3a} 、 R^{4a} 、 R^{5a} 、 R^{3b} 、 R^{4b} 及び R^{5b} は前記と同じ意味を有する。〕

- 10 X^a 及び X^b はそれぞれ独立に、臭素原子、ヨウ素原子、塩素原子、 $-O-S(=O)_2R^{20}$ 、 $-B(OR^{21})_2$ 、 $-BF_4Q^1$ 、 $-Sn(R^{22})_3$ 、 $-MgY^1$ 又は $-ZnY^1$ を表す。 R^{20} は、アルキル基、又はアルキル基、アルコキシ基、ニトロ基、フッ素原子若しくはシアノ基で置換されていてもよいアリール基を表す。 R^{21} 及び R^{22} はそれぞれ独立に、水素原子又はアルキル基を表す。2個ある R^{21} は同一であっても異なってもよく、一緒になって環を形成していてもよい。3個ある R^{22} は同一であっても異なってもよく、一緒になって環を形成していてもよい。 Q^1 は、リチウム、ナトリウム、カリウム、ルビジウム又はセシウムの1価の陽イオンを表す。 Y^1 は、臭素原子、ヨウ素原子又は塩素原子を表す。〕

- 20 9. 請求項1～7のいずれか一項に記載の高分子化合物を含有する組成物。

10. 請求項1～7のいずれか一項に記載の高分子化合物と溶媒とを含有する溶液。

11. 請求項 1 ～ 7 のいずれか一項に記載の高分子化合物を含有する薄膜。
12. 陽極及び陰極からなる電極と、該電極間に設けられた請求項 1 ～ 7 のい
5 れかに記載の高分子化合物を含有する有機層とを有する発光素子。
13. 請求項 1 2 に記載の発光素子を備えた面状光源。
14. 請求項 1 2 に記載の発光素子を備えた表示装置。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/069891

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08G61/10(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C08G61/00-61/12, C09K11/06, H01L51/50

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

Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2010

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2010 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2010

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

CAplus (STN), REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X	WO 2009/069523 A1 (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 04 June 2009 (04.06.2009), paragraphs [0247] to [0258], [0264] to [0265] & JP 2009-149850 A	1-14
A	JP 2004-500463 A (Cambridge Display Technology Ltd.), 08 January 2004 (08.01.2004), claims 5 to 9 & JP 2002-507825 A & US 2003/0153725 A1 & GB 9805476 A & EP 1263834 A & EP 1244723 A & WO 2000/055927 A1 & WO 2001/062822 A1 & WO 1999/048160 A1 & WO 2001/049768 A2 & WO 2001/062869 A1 & WO 2001/066618 A1 & DE 60105130 D	1-14

☒ 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
08 January, 2010 (08.01.10)Date of mailing of the international search report
26 January, 2010 (26.01.10)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/069891

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 2005-120030 A (Mitsui Chemicals, Inc.), 12 May 2005 (12.05.2005), claim 1 (Family: none)	1-14
A	CN 1769269 A (Fudan University), 10 May 2006 (10.05.2006), pages 25 to 27 (Family: none)	1-14
A	JP 2004-315495 A (Tosoh Corp.), 11 November 2004 (11.11.2004), claim 1 & US 2004/0110958 A1 & EP 1400578 A1 & DE 60302513 T & KR 10-2004-0025826 A	1-14
A	JP 2002-252085 A (Junji KIDO), 06 September 2002 (06.09.2002), table 2 (Family: none)	1-14
A	SHIH, P. et al, A novel fluorene-triphenylamine hybrid that is a highly efficient host material for blue-, green-, and red-light-emitting electrophosphorescent devices, Advanced Functional Materials, 2007, Vol.17, No.17, p.3514-3520	1-14

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C08G61/10(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C08G61/00-61/12, C09K11/06, H01L51/50

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

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

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

CAplus (STN), REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
P, X	WO 2009/069523 A1 (住友化学株式会社) 2009.06.04, [O 2 4 7] - [O 2 5 8], [O 2 6 4] - [O 2 6 5] & JP 2009-149850 A	1-14
A	JP 2004-500463 A (ケンブリッジ ディスプレイ テクノロジー リミテッド) 2004.01.08, 請求項 5 - 9 & JP 2002-507825 A & US 2003/0153725 A1 & GB 9805476 A & EP 1263834 A & EP 1244723 A & WO 2000/055927 A1 & WO 2001/062822 A1 & WO 1999/048160 A1 & WO 2001/049768 A2 & WO 2001/062869 A1 & WO 2001/066618 A1 & DE 60105130 D	1-14

☒ 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

0 8 . 0 1 . 2 0 1 0

国際調査報告の発送日

2 6 . 0 1 . 2 0 1 0

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)

井津 健太郎

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 4

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2005-120030 A (三井化学株式会社) 2005.05.12, 請求項 1、(ファミリーなし)	1-14
A	CN 1769269 A (Fudan University) 2006.05.10, 第 2 5 頁－2 7 頁 (ファミリーなし)	1-14
A	JP 2004-315495 A (東ソー株式会社) 2004.11.11, 請求項 1 & US 2004/0110958 A1 & EP 1400578 A1 & DE 60302513 T & KR 10-2004-0025826 A	1-14
A	JP 2002-252085 A (城戸 淳二) 2002.09.06, 【表 2】 (ファミリーなし)	1-14
A	SHIH,P. et al, A novel fluorene-triphenylamine hybrid that is a highly efficient host material for blue-, green-, and red-light-emitting electrophosphorescent devices, Advanced Functional Materials, 2007, Vol.17, No.17, p.3514-3520	1-14