

## (12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2008年9月18日 (18.09.2008)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 2008/111658 A1

## (51) 国際特許分類:

*C08G 61/12* (2006.01)      *C09K 11/06* (2006.01)  
*C08K 5/56* (2006.01)      *H01L 51/50* (2006.01)  
*C08L 65/00* (2006.01)

千津 (SEKINE, Chizu) [JP/JP]; 〒3004249 茨城県つくば市洞下 100-19 Ibaraki (JP).

## (21) 国際出願番号:

PCT/JP2008/054684

## (22) 国際出願日:

2008年3月7日 (07.03.2008)

## (25) 国際出願の言語:

日本語

## (26) 国際公開の言語:

日本語

## (30) 優先権データ:

特願2007-059820 2007年3月9日 (09.03.2007) 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 33 号住友化学知的財産センター株式会社内 Osaka (JP).

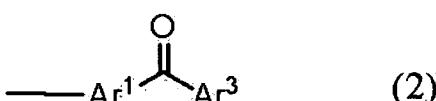
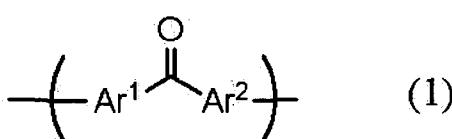
(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:  
— 國際調査報告書

## (54) Title: POLYMER COMPOUND AND COMPOSITION CONTAINING THE SAME

## (54) 発明の名称: 高分子化合物およびそれを含む組成物



**(57) Abstract:** Disclosed is a polymer compound containing, as repeating units, an optionally substituted fluorenediyl group and a phenylene group having one or more substituents, while containing a repeating unit represented by the formula (1) below and/or a group represented by the formula (2) below. (In the formula (1), Ar<sup>1</sup> and Ar<sup>2</sup> represent an arylene group or a divalent aromatic heterocyclic group, and Ar<sup>1</sup> and Ar<sup>2</sup> may be the same as or different from each other.) (In the formula (2), Ar<sup>1</sup> is as defined above, and Ar<sup>3</sup> represents an aryl group or a monovalent aromatic heterocyclic group.)

**(57) 要約:** 繰り返し単位として置換基を有していてもよいフルオレンジイル基および置換基を1個以上有するフェニレン基を含み、かつ、下記式(1)で表される繰り返し単位および/または下記式(2)で表される基を含む高分子化合物。〔式(1)において、Ar<sup>1</sup>およびAr<sup>2</sup>は、アリーレン基または2価の芳香族複素環基を表し、Ar<sup>1</sup>とAr<sup>2</sup>は、同一でも異なっていてもよい。〕〔式(2)において、Ar<sup>1</sup>は前記と同じ意味を表す。また、Ar<sup>3</sup>は、アリール基または1価の芳香族複素環基を表す。〕

WO 2008/111658 A1

## 明細書

## 高分子化合物およびそれを含む組成物

## 5 技術分野

本発明は、高分子化合物およびそれを含む組成物に関する。

## 背景技術

近年、有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、「有機EL素子」と略する場合がある。）の分野において、さまざまな発光材料の研究開発が10 活発に行われている。中でも、三重項励起状態からの発光を示す化合物（以下、「三重項化合物」と略する場合がある。）を含む発光材料は、高発光効率で発光する材料として期待されている。

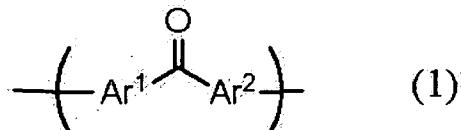
三重項化合物を含む発光材料を用いた有機EL素子を製造するに際し、該発光材料を有する薄膜を作製する方法として、三重項化合物に、高分子化合物を混合した組成物を溶媒に溶解させて、塗布法により薄膜を形成する方法が知られている。このように、三重項化合物に高分子化合物を混合して使用する場合、該高分子化合物が有機EL素子の特性に大きな影響を与えるため、該組成物に好適に用いることができる高分子化合物について様々な検討がなされている。このような高分子化合物として、例えば、20 2、7-フルオレンジイル基と4、4' -ベンゾフェノンジイル基を含む高分子化合物が知られている（国際公開第2005/40302号パンフレット）。

## 発明の開示

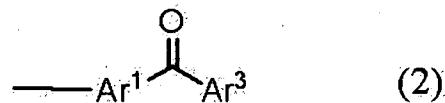
しかし、上記公知の高分子化合物と三重項化合物とを含む組成物を用いて有機EL素子を作製した場合、その素子の最大発光効率が未だ十分でない。

そこで、本発明の目的は、最大発光効率が高い高分子発光素子を与える高分子化合物を提供することにある。

本発明は第一に、繰り返し単位として置換基を有していてもよいフルオレンジイル基および置換基を1個以上有するフェニレン基を含み、かつ、下記式（1）で表される繰り返し単位および／または下記式（2）で表される基を含む高分子化合物を提供する。



〔式（1）において、 $\text{Ar}^1$ および $\text{Ar}^2$ は、アリーレン基または2価の芳香族複素環基を表し、 $\text{Ar}^1$ と $\text{Ar}^2$ は、同一でも異なっていてもよい。〕



〔式（2）において、 $\text{Ar}^1$ は前記と同じ意味を表す。また、 $\text{Ar}^3$ は、アリール基または1価の芳香族複素環基を表す。〕。

本発明は第二に、前記高分子化合物と三重項化合物とを含む組成物を提供する。

20

本発明は第三に、前記高分子化合物または前記組成物を含む高分子発光素子を提供する。

#### 発明を実施するための形態

25 <高分子化合物>

本発明の高分子化合物は、繰り返し単位として置換基を有していてもよいフルオレンジイル基および置換基を1個以上有するフェニレン基を含み、かつ、前記式（1）で表される繰り返し単位および／または前記式（2

) で表される基を含むものである。

－フルオレンジイル基－

本発明の高分子化合物が繰り返し単位として有するフルオレンジイル基とは、フルオレンから水素原子2個を除いて誘導される2価の基をいい、

5 フルオレンの1位から9位(好ましくは、1位から8位)の水素原子の中から2個の水素原子を取り除いた基をいう。高分子化合物の重合の行いや  
すさの観点からは、フルオレンの1位から4位の水素原子の中から1個の  
水素原子を除き、かつ、5位から8位の水素原子の中から1個の水素原子  
を除いた基が好ましい。なお、フルオレンジイル基は置換基を有していて  
10 もよい。

前記フルオレンジイル基が有していてもよい置換基としては、アルキル  
基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリール基、アリールオキシ基、ア  
リールチオ基、アリールアルキル基、アリールアルコキシ基、アリールア  
ルキルチオ基、アリールアルケニル基、アリールアルキニル基、アミノ基  
15 、置換アミノ基、シリル基、置換シリル基、ハロゲン原子、アシル基、ア  
シルオキシ基、イミン残基、アミド基、酸イミド基、1価の複素環基、カ  
ルボキシル基、置換カルボキシル基、ニトロ基、シアノ基または前記式(2)  
20 ) で表される基等が挙げられる。これらの置換基に含まれる水素原子は  
、フッ素原子に置換されていてもよい。

前記アルキル基は、直鎖、分岐または環状のいずれでもよく、炭素数が  
通常1～20程度、好ましくは3～20である。アルキル基の例としては  
、メチル基、エチル基、n-プロピル基、i-プロピル基、n-ブチル基  
、i-ブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、イソアミル  
基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、2-エチ  
25 ルヘキシル基、ノニル基、デシル基、3,7-ジメチルオクチル基、ラウ  
リル基、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、高分子化合物の有機溶媒への溶解性、素子特性、高分子化合物の合成

の行いやすさ等の観点と耐熱性とのバランスからは、ペンチル基、イソアミル基、ヘキシル基、オクチル基、2-エチルヘキシル基、デシル基、3, 7-ジメチルオクチル基が好ましい。

前記アルコキシ基は、直鎖、分岐または環状のいずれでもよく、炭素数が通常1～20程度、好ましくは3～20である。アルコキシ基の例としては、メトキシ基、エトキシ基、n-プロピルオキシ基、i-プロピルオキシ基、n-ブトキシ基、i-ブトキシ基、s-ブトキシ基、t-ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、ヘプチルオキシ基、オクチルオキシ基、2-エチルヘキシルオキシ基、ノニルオキシ基、デシルオキシ基、3, 7-ジメチルオクチルオキシ基、ラウリルオキシ基、トリフルオロメトキシ基、ペンタフルオロエトキシ基、パーフルオロブトキシ基、パーフルオロヘキシルオキシ基、パーフルオロオクチルオキシ基、メトキシメチルオキシ基、2-メトキシエチルオキシ基等が挙げられ、高分子化合物の有機溶媒への溶解性、素子特性、高分子化合物の合成の行いやすさ等の観点と耐熱性とのバランスからは、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、オクチルオキシ基、2-エチルヘキシルオキシ基、デシルオキシ基、3, 7-ジメチルオクチルオキシ基が好ましい。

前記アルキルチオ基は、直鎖、分岐または環状のいずれでもよく、炭素数が通常1～20程度、好ましくは3～20である。アルキルチオ基の例としては、メチルチオ基、エチルチオ基、n-プロピルチオ基、i-プロピルチオ基、n-ブチルチオ基、i-ブチルチオ基、s-ブチルチオ基、t-ブチルチオ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基、シクロヘキシルチオ基、ヘプチルチオ基、オクチルチオ基、2-エチルヘキシルチオ基、ノニルチオ基、デシルチオ基、3, 7-ジメチルオクチルチオ基、ラウリルチオ基、トリフルオロメチルチオ基等が挙げられ、高分子化合物の有機溶媒への溶解性、素子特性、高分子化合物の合成の行いやすさ等の観点と耐熱性とのバランスからは、ペンチルチオ基、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、デシルチオ基、3,7-ジメチルオクチルチオ基が好ましい。

前記アリール基は、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、ベンゼン環をもつもの、縮合環をもつもの、独立したベンゼン環または縮合環2個以上が直接またはビニレン等の基を介して結合したものから水素原子1個を除いた原子団等が含まれる。アリール基は、炭素数が通常6～60程度、好ましくは7～48である。アリール基の例としては、フェニル基、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルコキシフェニル基（「C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルコキシ」は、アルコキシ部分の炭素数が1～12であることを意味する。以下、同様である。）、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキルフェニル基（「C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキル」は、アルキル部分の炭素数が1～12であることを意味する。以下、同様である。）、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、ペンタフルオロフェニル基等が挙げられ、高分子化合物の有機溶媒への溶解性、素子特性、高分子化合物の合成の行いやすさ等の観点からは、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルコキシフェニル基、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキルフェニル基が好ましい。

C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルコキシフェニル基としては、メトキシフェニル基、エトキシフェニル基、プロピルオキシフェニル基、i-プロピルオキシフェニル基、ブトキシフェニル基、i-ブトキシフェニル基、t-ブトキシフェニル基、ペンチルオキシフェニル基、ヘキシルオキシフェニル基、シクロヘキシルオキシフェニル基、ヘプチルオキシフェニル基、オクチルオキシフェニル基、2-エチルヘキシルオキシフェニル基、ノニルオキシフェニル基、デシルオキシフェニル基、3,7-ジメチルオクチルオキシフェニル基、ラウリルオキシフェニル基等が例示される。C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキルフェニル基としては、メチルフェニル基、エチルフェニル基、ジメチルフェニル基、プロピルフェニル基、メチル基、メチルエチルフェニル基、i-プロピルフェニル基、ブチルフェニル基、i-ブチルフェニル基、t-ブチルフェニル基、ペンチルフェニル基、イソアミルフェニル基、ヘキシル

フェニル基、ヘプチルフェニル基、オクチルフェニル基、ノニルフェニル基、デシルフェニル基、ドデシルフェニル基等が例示される。

前記アリールオキシ基は、炭素数が通常 6～60 程度、好ましくは 7～48 である。アリールオキシ基の例としては、フェノキシ基、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub> アルコキシフェノキシ基、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub> アルキルフェノキシ基、1-ナフチルオキシ基、2-ナフチルオキシ基、ペンタフルオロフェニルオキシ基等が挙げられ、高分子化合物の有機溶媒への溶解性、素子特性、高分子化合物の合成の行いやすさ等の観点からは、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub> アルコキシフェノキシ基、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub> アルキルフェノキシ基が好ましい。C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub> アルコキシフェノキシ基としては、メトキシフェノキシ基、エトキシフェノキシ基、n-プロピルオキシフェノキシ基、i-プロピルオキシフェノキシ基、n-ブトキシフェノキシ基、i-ブトキシフェノキシ基、s-ブトキシフェニル基、t-ブトキシフェノキシ基、ペンチルオキシフェノキシ基、ヘキシリオキシフェノキシ基、シクロヘキシリオキシフェノキシ基、ヘプチルオキシフェノキシ基、オクチルオキシフェノキシ基、2-エチルヘキシリオキシフェノキシ基、ノニルオキシフェノキシ基、デシルオキシフェノキシ基、3,7-ジメチルオクチルオキシフェノキシ基、ラウリルオキシフェノキシ基等が例示される。C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub> アルキルフェノキシ基としては、メチルフェノキシ基、エチルフェノキシ基、ジメチルフェノキシ基、プロピルフェノキシ基、1,3,5-トリメチルフェノキシ基、メチルエチルフェノキシ基、i-プロピルフェノキシ基、ブチルフェノキシ基、i-ブチルフェノキシ基、t-ブチルフェノキシ基、ペンチルフェノキシ基、イソアミルフェノキシ基、ヘキシリフェノキシ基、ヘプチルフェノキシ基、オクチルフェノキシ基、ノニルフェノキシ基、デシルフェノキシ基、ドデシルフェノキシ基等が例示される。

前記アリールチオ基は、炭素数が通常 6～60 程度である。アリールチオ基の例としては、フェニルチオ基、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub> アルコキシフェニルチオ基、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub> 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、高分子化合物の有機溶媒への溶解性、素子特性、高分子化合物の合成の行いやすさ等の観点からは、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルコキシフェニルチオ基、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキルフェニルチオ基が好ましい。

5 前記アリールアルキル基は、炭素数が通常7～60程度、好ましくは7～48である。

アリールアルキル基の例としては、フェニル-C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルコキシフェニル-C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキルフェニル-C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキル基、1-ナフチル-C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキル基、2-ナフチル-C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキル基等が挙げられ、高分子化合物の有機溶媒への溶解性、素子特性、高分子化合物の合成の行いやすさ等の観点からは、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルコキシフェニル-C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキルフェニル-C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキル基が好ましい。

前記アリールアルコキシ基は、炭素数が通常7～60程度、好ましくは7～48である。アリールアルコキシ基の例としては、フェニルメトキシ基、フェニルエトキシ基、フェニルブトキシ基、フェニルペンチロキシ基、フェニルヘキシロキシ基、フェニルヘプチロキシ基、フェニルオクチロキシ基等のフェニル-C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルコキシフェニル-C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキルフェニル-C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルコキシ基、1-ナフチル-C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルコキシ基、2-ナフチル-C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルコキシ基等が挙げられ、高分子化合物の有機溶媒への溶解性、素子特性、高分子化合物の合成の行いやすさ等の観点からは、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルコキシフェニル-C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキルフェニル-C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルコキシ基が好ましい。

25 前記アリールアルキルチオ基は、炭素数が通常7～60程度、好ましくは7～48である。アリールアルキルチオ基の例としては、フェニル-C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルコキシフェニル-C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキルフェニル-C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキルチオ基、1-

ナフチル- $C_1 \sim C_{12}$ アルキルチオ基、2-ナフチル- $C_1 \sim C_{12}$ アルキルチオ基等が挙げられ、高分子化合物の有機溶媒への溶解性、素子特性、高分子化合物の合成の行いやすさ等の観点からは、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェニル- $C_1 \sim C_{12}$ アルキルチオ基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルフェニル- $C_1 \sim C_{12}$ アルキルチオ基が好ましい。

前記アリールアルケニル基は、炭素数が通常8～60程度である。アリールアルケニル基の例としては、フェニル- $C_2 \sim C_{12}$ アルケニル基（「 $C_2 \sim C_{12}$ アルケニル」は、アルケニル部分の炭素数が2～12であることを意味する。以下、同様である。）、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェニル- $C_2 \sim C_{12}$ アルケニル基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルフェニル- $C_2 \sim C_{12}$ アルケニル基、1-ナフチル- $C_2 \sim C_{12}$ アルケニル基、2-ナフチル- $C_2 \sim C_{12}$ アルケニル基等が挙げられ、高分子化合物の有機溶媒への溶解性、素子特性、高分子化合物の合成の行いやすさ等の観点からは、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェニル- $C_2 \sim C_{12}$ アルケニル基、 $C_2 \sim C_{12}$ アルキルフェニル- $C_1 \sim C_{12}$ アルケニル基が好ましい。

前記アリールアルキニル基は、炭素数が通常8～60程度である。アリールアルキニル基の例としては、フェニル- $C_2 \sim C_{12}$ アルキニル基（「 $C_2 \sim C_{12}$ アルキニル」は、アルキニル部分の炭素数が2～12であることを意味する。以下、同様である。）、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェニル- $C_2 \sim C_{12}$ アルキニル基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルフェニル- $C_2 \sim C_{12}$ アルキニル基、1-ナフチル- $C_2 \sim C_{12}$ アルキニル基、2-ナフチル- $C_2 \sim C_{12}$ アルキニル基等が挙げられ、高分子化合物の有機溶媒への溶解性、素子特性、高分子化合物の合成の行いやすさ等の観点からは、 $C_1 \sim C_{12}$ アルコキシフェニル- $C_2 \sim C_{12}$ アルキニル基、 $C_1 \sim C_{12}$ アルキルフェニル- $C_2 \sim C_{12}$ アルキニル基が好ましい。

前記置換アミノ基としては、アルキル基、アリール基、アリールアルキル基及び1価の複素環基から選ばれる1個または2個の基で置換されたアミノ基が挙げられる。これらのアルキル基、アリール基、アリールアルキ

ル基及び1価の複素環基は置換基を有していてもよい。置換アミノ基の炭素数は該置換基の炭素数を含めないで、通常、1～60程度、好ましくは2～48である。置換アミノ基の例としては、メチルアミノ基、ジメチルアミノ基、エチルアミノ基、ジエチルアミノ基、プロピルアミノ基、ジプロピルアミノ基、i-プロピルアミノ基、ジイソプロピルアミノ基、ブチルアミノ基、i-ブチルアミノ基、t-ブチルアミノ基、ペンチルアミノ基、ヘキシルアミノ基、シクロヘキシルアミノ基、ヘプチルアミノ基、オクチルアミノ基、2-エチルヘキシルアミノ基、ノニルアミノ基、デシルアミノ基、3,7-ジメチルオクチルアミノ基、ラウリルアミノ基、シクロペンチルアミノ基、ジシクロペンチルアミノ基、シクロヘキシルアミノ基、ジシクロヘキシルアミノ基、ピロリジル基、ピペリジル基、ジトリフルオロメチルアミノ基フェニルアミノ基、ジフェニルアミノ基、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルコキシフェニルアミノ基、ジ(C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルコキシフェニル)アミノ基、ジ(C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキルフェニル)アミノ基、1-ナフチルアミノ基、2-ナフチルアミノ基、ペンタフルオロフェニルアミノ基、ピリジルアミノ基、ピリダジニルアミノ基、ピリミジルアミノ基、ピラジルアミノ基、トリアジルアミノ基フェニル-C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキルアミノ基、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルコキシフェニル-C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキルアミノ基、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキルフェニル-C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキルアミノ基、ジ(C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルコキシフェニル-C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキル)アミノ基、1-ナフチル-C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキルアミノ基、2-ナフチル-C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキルアミノ基等が挙げられる。

前記置換シリル基としては、アルキル基、アリール基、アリールアルキル基及び1価の複素環基から選ばれる1個、2個または3個の基で置換されたシリル基が挙げられる。置換シリル基の炭素数は、通常、1～60程度、好ましくは3～48である。これらのアルキル基、アリール基、アリールアルキル基及び1価の複素環基は置換基を有していてもよい。置換シリル基の例としては、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、トリプロ

ロピルシリル基、トリー-*i*-プロピルシリル基、ジメチル-*i*-プロピリシリル基、ジエチル-*i*-プロピルシリル基、*t*-ブチルシリルジメチルシリル基、ペンチルジメチルシリル基、ヘキシルジメチルシリル基、ヘプチルジメチルシリル基、オクチルジメチルシリル基、2-エチルヘキシル-*i*-ジメチルシリル基、ノニルジメチルシリル基、デシルジメチルシリル基、3,7-ジメチルオクチル-*i*-ジメチルシリル基、ラウリルジメチルシリル基、フェニル-C<sub>1</sub>~C<sub>12</sub>アルキルシリル基、C<sub>1</sub>~C<sub>12</sub>アルコキシフェニル-C<sub>1</sub>~C<sub>12</sub>アルキルシリル基、C<sub>1</sub>~C<sub>12</sub>アルキルフェニル-C<sub>1</sub>~C<sub>12</sub>アルキルシリル基、1-ナフチル-C<sub>1</sub>~C<sub>12</sub>アルキルシリル基、2-ナフチル-C<sub>1</sub>~C<sub>12</sub>アルキルシリル基、フェニル-C<sub>1</sub>~C<sub>12</sub>アルキルジメチルシリル基、トリフェニルシリル基、トリー-*p*-キシリルシリル基、トリベンジルシリル基、ジフェニルメチルシリル基、*t*-ブチルジフェニルシリル基、ジメチルフェニルシリル基等が挙げられる。

前記ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子が例示される。

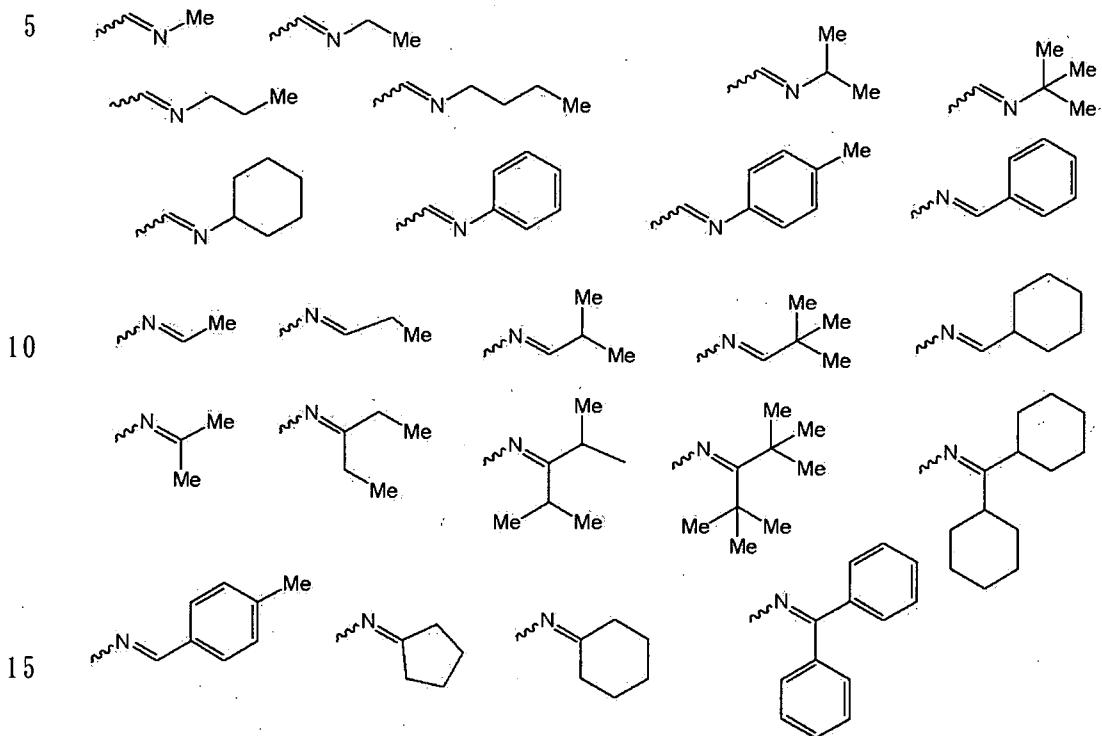
前記アシル基は、炭素数が、通常、2~20程度、好ましくは2~18である。アシル基の例としては、アセチル基、プロピオニル基、ブチリル基、イソブチリル基、ピバロイル基、ベンゾイル基、トリフルオロアセチル基、ペンタフルオロベンゾイル基等が挙げられる。

前記アシルオキシ基は、炭素数が、通常、2~20程度、好ましくは2~18である。

アシルオキシ基の例としては、アセトキシ基、プロピオニルオキシ基、ブチリルオキシ基、イソブチリルオキシ基、ピバロイルオキシ基、ベンゾイルオキシ基、トリフルオロアセチルオキシ基、ペンタフルオロベンゾイルオキシ基等が挙げられる。

前記イミン残基としては、イミン化合物（即ち、分子内に、-N=C-を持つ有機化合物）をいう。その例として、アルジミン、ケチミン及びこれらのN上の水素原子が、アルキル基等で置換された化合物等が挙げ

られる。) から水素原子 1 個を除いた残基が挙げられる。イミン残基の炭素数は、通常、2～20程度であり、好ましくは2～18である。イミン残基の例としては、以下の構造式で示される基等が挙げられる。

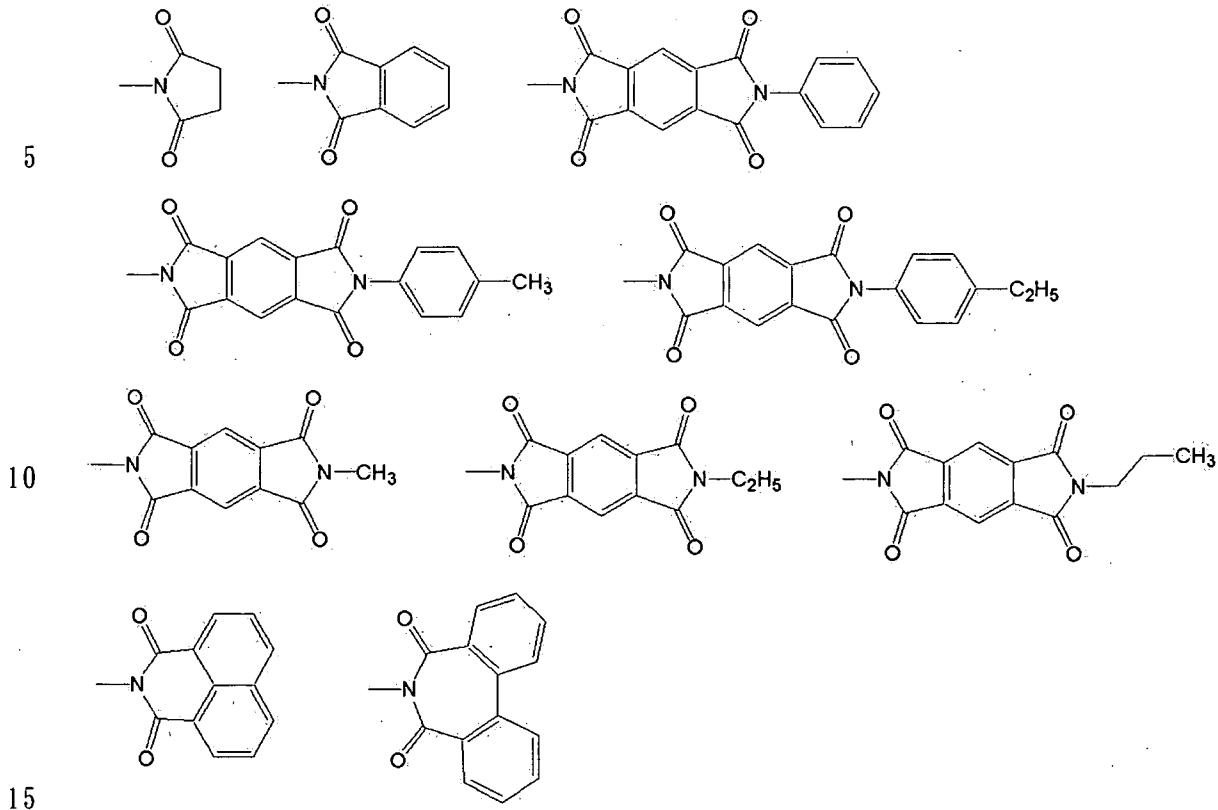


(式中、Me はメチル基を表す。また、波線は、結合手を表し、イミン残基の種類によっては、シス体、トランス体等の幾何異性体を持つ場合があることを意味する。)

前記アミド基は、炭素数が通常2～20程度、好ましくは2～18である。アミド基の例としては、ホルムアミド基、アセトアミド基、プロピオアミド基、ブチロアミド基、ベンズアミド基、トリフルオロアセトアミド基、ペンタフルオロベンズアミド基、ジホルムアミド基、ジアセトアミド基、ジプロピオアミド基、ジブチロアミド基、ジベンズアミド基、ジトリフルオロアセトアミド基、ジペンタフルオロベンズアミド基等が挙げられる。

前記酸イミド基としては、酸イミドからその窒素原子に結合した水素原子 1 個を除いて得られる残基が挙げられ、炭素数が通常4～20程度であ

る。酸イミド基の例としては、以下に示す基等が挙げられる。



15

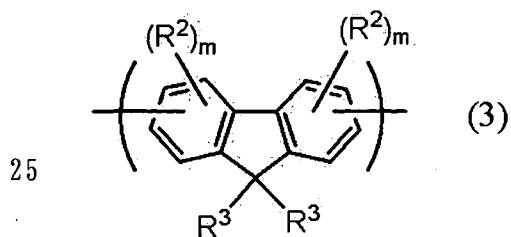
前記 1 倍の複素環基とは、複素環化合物から水素原子 1 個を除いた残りの原子団をいう。1 倍の複素環基の炭素数は通常 4 ~ 60 程度、好ましくは 4 ~ 20 である。なお、1 倍の複素環基の炭素数には、置換基の炭素数は含まれない。前記複素環化合物とは、環式構造をもつ有機化合物のうち、環を構成する元素が炭素原子だけでなく、酸素、硫黄、窒素、燐、硼素、珪素等のヘテロ原子を環内に含むものをいう。1 倍の複素環基の中では、1 倍の芳香族複素環基が好ましい。

1 倍の複素環基の例としては、チエニル基、C<sub>1</sub> ~ C<sub>12</sub> アルキルチエニル基、ピロリル基、フリル基、ピリジル基、C<sub>1</sub> ~ C<sub>12</sub> アルキルピリジル基、ピペリジル基、キノリル基、イソキノリル基等が挙げられ、チエニル基、C<sub>1</sub> ~ C<sub>12</sub> アルキルチエニル基、ピリジル基、C<sub>1</sub> ~ C<sub>12</sub> アルキルピリジル基が好ましい。

前記置換カルボキシル基としては、アルキル基、アリール基、アリール

アルキル基または1価の複素環基で置換されたカルボキシル基等が挙げられる。なお、前記のアルキル基、アリール基、アリールアルキル基または1価の複素環基は置換基を有していてもよい。置換カルボキシル基の炭素数は、通常、2～60程度、好ましくは2～48である。置換カルボキシル基の例としては、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、プロポキシカルボニル基、*i*-ブロポキシカルボニル基、ブトキシカルボニル基、*i*-ブトキシカルボニル基、*t*-ブトキシカルボニル基、ペンチルオキシカルボニル基、ヘキシロキシカルボニル基、シクロヘキシロキシカルボニル基、ヘプチルオキシカルボニル基、オクチルオキシカルボニル基、2-エチルヘキシロキシカルボニル基、ノニルオキシカルボニル基、デシロキシカルボニル基、3,7-ジメチルオクチルオキシカルボニル基、ドデシルオキシカルボニル基、トリフルオロメトキシカルボニル基、ペントフルオロエトキシカルボニル基、パーフルオロブトキシカルボニル基、パーフルオロヘキシルオキシカルボニル基、パーフルオロオクチルオキシカルボニル基、フェノキシカルボニル基、ナフトキシカルボニル基、ピリジルオキシカルボニル基等が挙げられる。これらの基はさらに置換基を有していてもよい。なお、置換カルボキシル基の炭素数には該置換基の炭素数は含まれない。

置換基を有していてもよいフルオレンジイル基としては、下記式(3)で表される基があげられる。



[式(3)において、R<sup>2</sup>は置換基を表し、R<sup>3</sup>はアルキル基、アルコキシ基、アリール基または1価の複素環基を表し、mは独立に0から3の整数

を表す。R<sup>2</sup>が複数個存在する場合には、それらは同一であっても異なっていてもよい。また、複数個のR<sup>3</sup>は同一でもあっても異なっていてもよい。]

前記式(3)中、mは独立に0から3の整数を表すが、高分子化合物の合成の行いやすさの観点からは、mが0または1であることが好ましく、両方のmが0であるかまたは両方のmが1であることがより好ましい。

R<sup>2</sup>で表される置換基としては、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アリールアルキル基、アリールアルコキシ基、アリールアルキルチオ基、アリールアルケニル基、アリールアルキニル基、アミノ基、置換アミノ基、シリル基、置換シリル基、ハロゲン原子、アシル基、アシルオキシ基、イミン残基、アミド基、酸イミド基、1価の複素環基、カルボキシル基、置換カルボキシル基、ニトロ基、シアノ基等が挙げられ、これらの基の例としては、前述のフルオレンジイル基の置換基の例示と同様の基があげられる。

これらの置換基の中では、高分子化合物の有機溶媒への溶解性、高分子化合物の合成の行いやすさの観点からは、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アリールアルキル基、アリールアルコキシ基、1価の複素環基が好ましく、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、1価の複素環基がより好ましい。

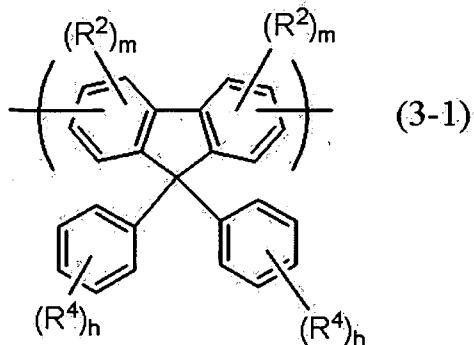
前記式(3)中、R<sup>3</sup>がアリール基である場合、高分子化合物の合成の行いやすさ、素子特性等の観点から、R<sup>3</sup>が、フェニル基、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルコキシフェニル基、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキルフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、ペンタフルオロフェニル基であることが好ましく、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルコキシフェニル基、C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキルフェニル基があることがより好ましい。また、R<sup>3</sup>が1価の複素環基である場合、高分子化合物の合成の行いやすさ、素子特性等の観点から、R<sup>3</sup>が、チエニル基、ピロリル基、フリル基、ピリジル基、ピペリジル基、キノリル基、イソキノリル基

等であることが好ましい。

素子特性等の観点からは、R<sup>3</sup>は、アルキル基またはアリール基であることが好ましい。

前記式(3)で表される基としては、高分子化合物の合成の行いやすさ

5 素子特性等の観点から、下記式(3-1)：



[式(3-1)において、R<sup>2</sup>及びmは、前記と同じ意味を表し、R<sup>4</sup>は、置換基を表し、hは、0～5の整数を表す。R<sup>2</sup>及びR<sup>4</sup>が複数個存在する場合には、それらは、各々、同一であっても異なっていてもよい。複数個存在するm及びhは、各々、同一であっても異なっていてもよい。] で表される基が好ましい。

R<sup>4</sup>で表される置換基としては、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アリールアルキル基、アリールアルコキシ基、アリールアルキルチオ基、アリールアルケニル基、アリールアルキニル基、アミノ基、置換アミノ基、シリル基、置換シリル基、ハロゲン原子、アシル基、アシルオキシ基、イミン残基、アミド基、酸イミド基、1価の複素環基、カルボキシル基、置換カルボキシル基、ニトロ基、シアノ基等が挙げられる。これらの置換基に含まれる水素原子は、フッ素原子またはその他の基で置換されていてもよい。これらの置換基の中では、高分子化合物の有機溶媒への溶解性、高分子化合物の合成の行いやすさの観点からは、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アリールアルキル基、アリールアルコキシ基、1価の複素環基が好ましく、アルキル基

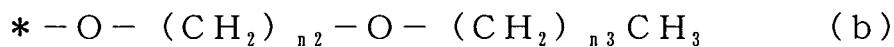
、アルコキシ基、アリール基、1価の複素環基がより好ましい。また、これらの置換基の中では、素子特性の観点からは、非置換または置換のアルキル基、非置換または置換のアルコキシ基（炭素数は、通常、1～12であり、好ましくは5～8である。）、置換カルボキシリル基が好ましい。 $R^4$ で表される置換基は、前述でフルオレンジイル基の置換基として説明し例示したものと同じである。

$R^4$ が非置換または置換のアルコキシ基の場合、素子特性等の観点から、下記式（a）：



〔式（a）において、 $n1$ は0～9の整数を表す。式中の水素原子は炭素数1～5のアルキル基で置換されていてもよい。また、\*の位置で前記式（3-1）中のベンゼン環と結合する。〕

または下記式（b）：

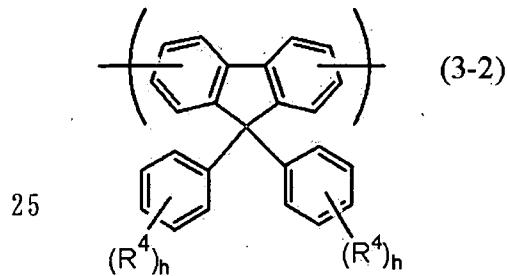


〔式（b）において、 $n2$ は1～10の整数、 $n3$ は1～9の整数を表す。式中の水素原子は炭素数1～5のアルキル基で置換されていてもよい。また、\*の位置で前記式（3-1）中のベンゼン環と結合する。〕

で表されるものが好ましい。

高分子化合物の耐熱性の観点からは、 $h$ は1～5の整数であることが好ましい。

前記式（3-1）で表される基としては、下記式（3-2）：

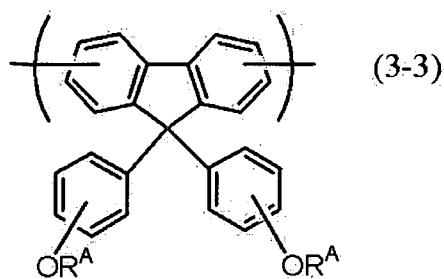


〔式（3-2）において、 $R^4$ 及び $h$ は、それぞれ独立に、前記と同じ意

味を表す。R<sup>4</sup>が複数個存在する場合には、それらは、各々、同一であっても異なっていてもよい。複数個存在するhは、同一であっても異なっていてもよい。)

で表される基、または、下記式（3-3）：

5



10 (式（3-3）において、R<sup>A</sup>は、アルキル基を表す。複数個存在するR<sup>A</sup>は、同一であっても異なっていてもよい。)

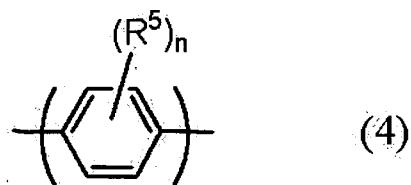
で表される基がより好ましい。

#### —置換基を1個以上有するフェニレン基—

本発明の高分子化合物が繰り返し単位として含むフェニレン基は、o-15 フェニレン基、m-フェニレン基、p-フェニレン基があり、高分子化合物の重合の行いやすさの観点からは、p-フェニレン基が好ましい。なお、本発明の高分子化合物に用いるフェニレン基は置換基を1個以上有する。

20 フェニレン基が有する置換基としては、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アリー<sup>ルアルキル基、アリールアルコキシ基、アリールアルキルチオ基、アリールアルケニル基、アリールアルキニル基、1価の複素環基または前記式（2）で表される基等があげられる。これらの置換基に含まれる水素原子は、フッ素原子に置換されていてもよい。</sup>

25 置換基を1個以上有するフェニレン基としては、下記式（4）で表される基があげられる。



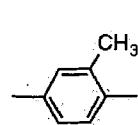
5 [式（4）において、 $R^5$ はアルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基  
、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アリールアルキル基  
、アリールアルコキシ基、アリールアルキルチオ基、アリールアルケニル  
基、アリールアルキニル基または1価の複素環基を表す。nは1から4の  
整数を表す。 $R^5$ が複数個存在する場合は、それらは同一であっても異なる  
10 つていてもよい。]

前記式（4）中、 $R^5$ としては、高分子化合物の有機溶媒への溶解性、  
高分子化合物の合成の行いやすさの観点からは、アルキル基、アルコキシ基、  
アルキルチオ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、  
アリールアルキル基、アリールアルコキシ基、1価の複素環基が好ましく  
15 、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、1価の複素環基がより好まし  
い。

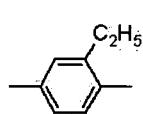
ここで、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリール基、ア  
リールオキシ基、アリールチオ基、アリールアルキル基、アリールアルコ  
キシ基、アリールアルキルチオ基、アリールアルケニル基、アリールアル  
20 キニル基、1価の複素環基の説明としては、前述でフルオレンジイル基の  
置換基として説明し例示したものと同じである。

前記式（4）中、nは1から4の整数を表すが、高分子化合物の合成の  
行いやすさの観点からは、nが1または2であることが好ましい。 $R^4$ が  
複数個存在する場合、それらは同一であっても異なっていてもよい。

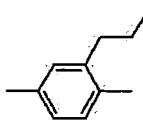
25 前記式（4）で表される基の例としては、下記の基が例示される。



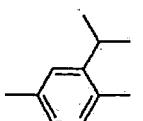
(4-A-1)



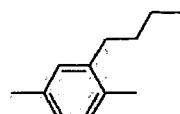
(4-A-2)



(4-A-3)

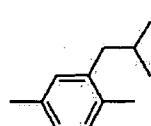


(4-A-4)

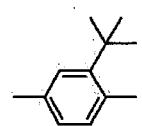


(4-A-5)

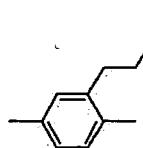
5



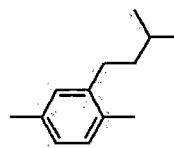
(4-A-6)



(4-A-7)

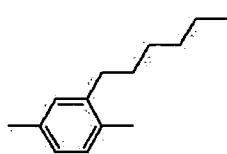


(4-A-8)

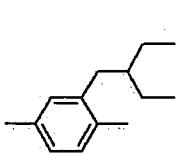


(4-A-9)

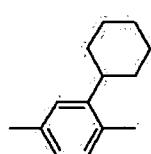
10



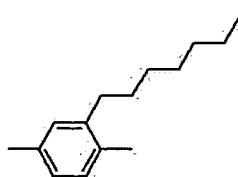
(4-A-10)



(4-A-11)

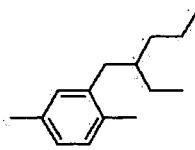


(4-A-12)

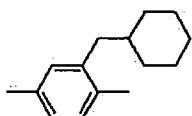


(4-A-13)

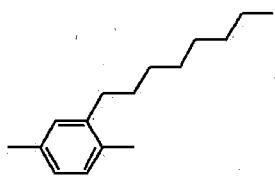
15



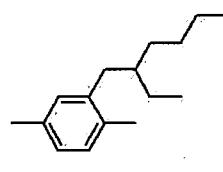
(4-A-14)



(4-A-15)



(4-A-16)

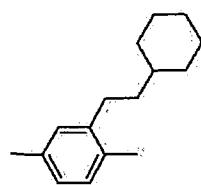


(4-A-17)

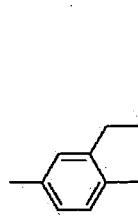
20

25

5



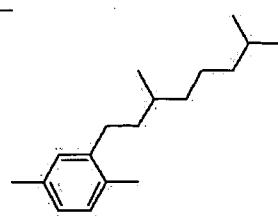
(4-A-18)



(4-A-19)

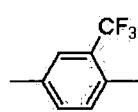


(4-A-20)

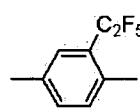


(4-A-21)

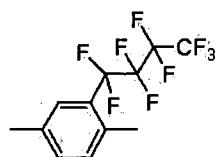
10



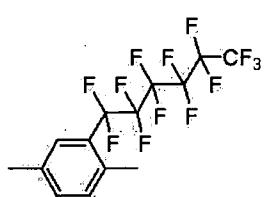
(4-A-22)



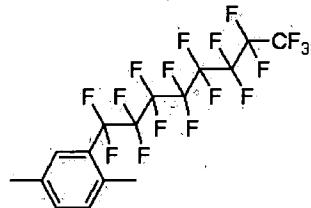
(4-A-23)



(4-A-24)



(4-A-25)

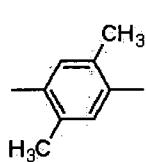


(4-A-26)

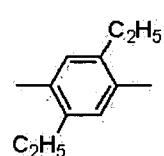
15

20

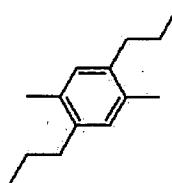
25



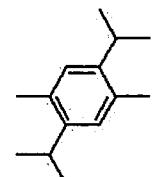
(4-B-1)



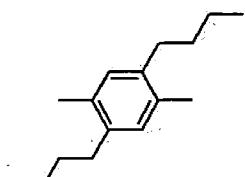
(4-B-2)



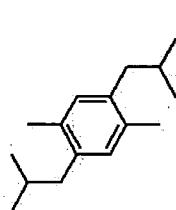
(4-B-3)



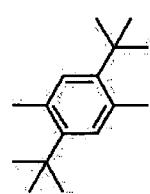
(4-B-4)



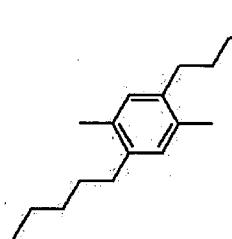
(4-B-5)



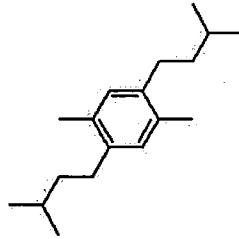
(4-B-6)



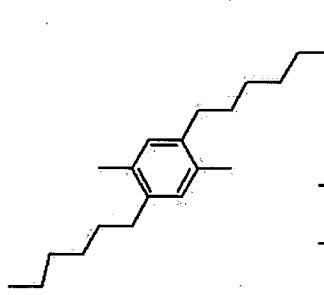
(4-B-7)



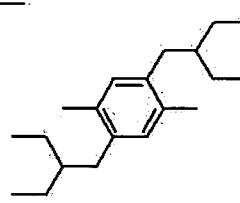
(4-B-8)



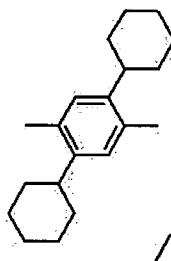
(4-B-9)



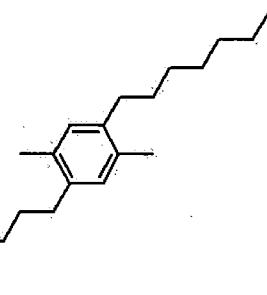
(4-B-10)



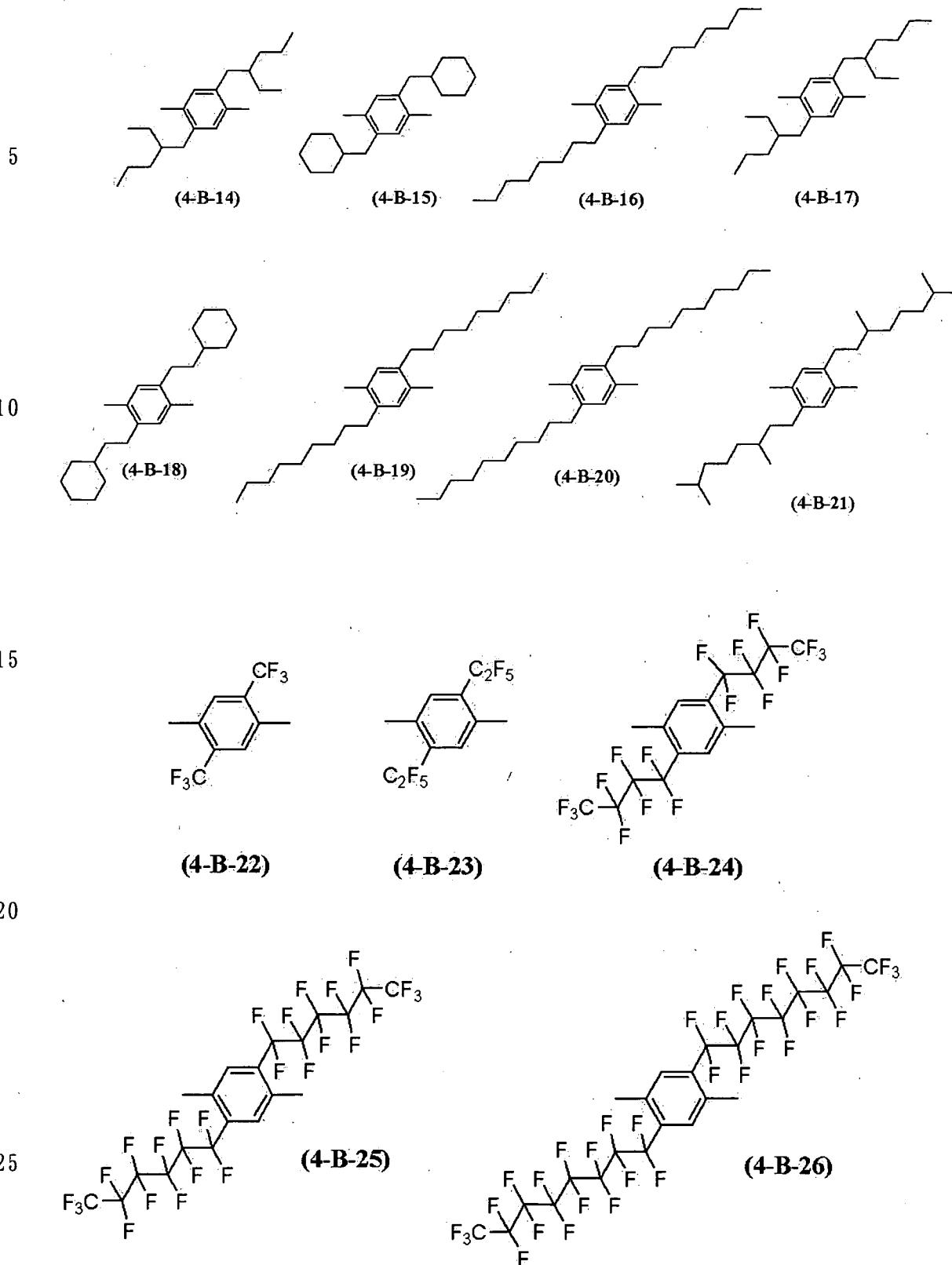
(4-B-11)

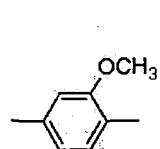


(4-B-12)

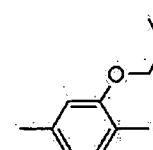
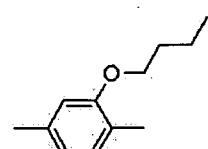
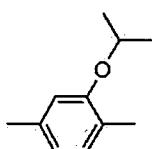
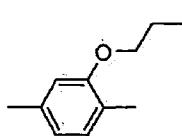
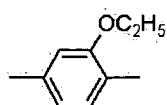


(4-B-13)

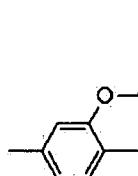
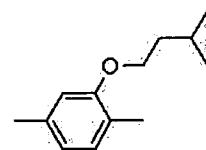
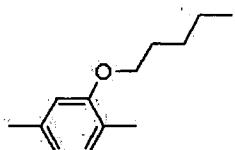
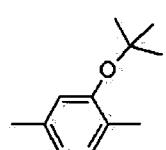




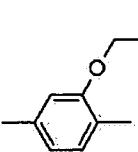
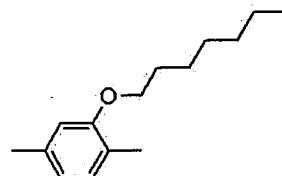
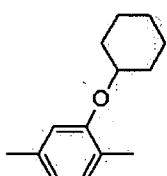
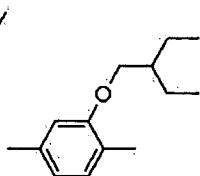
(4-C-1)



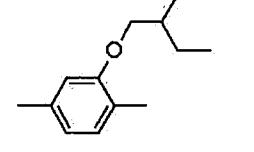
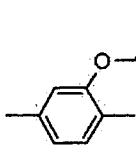
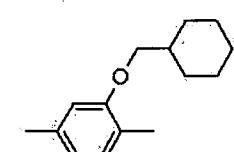
(4-C-6)

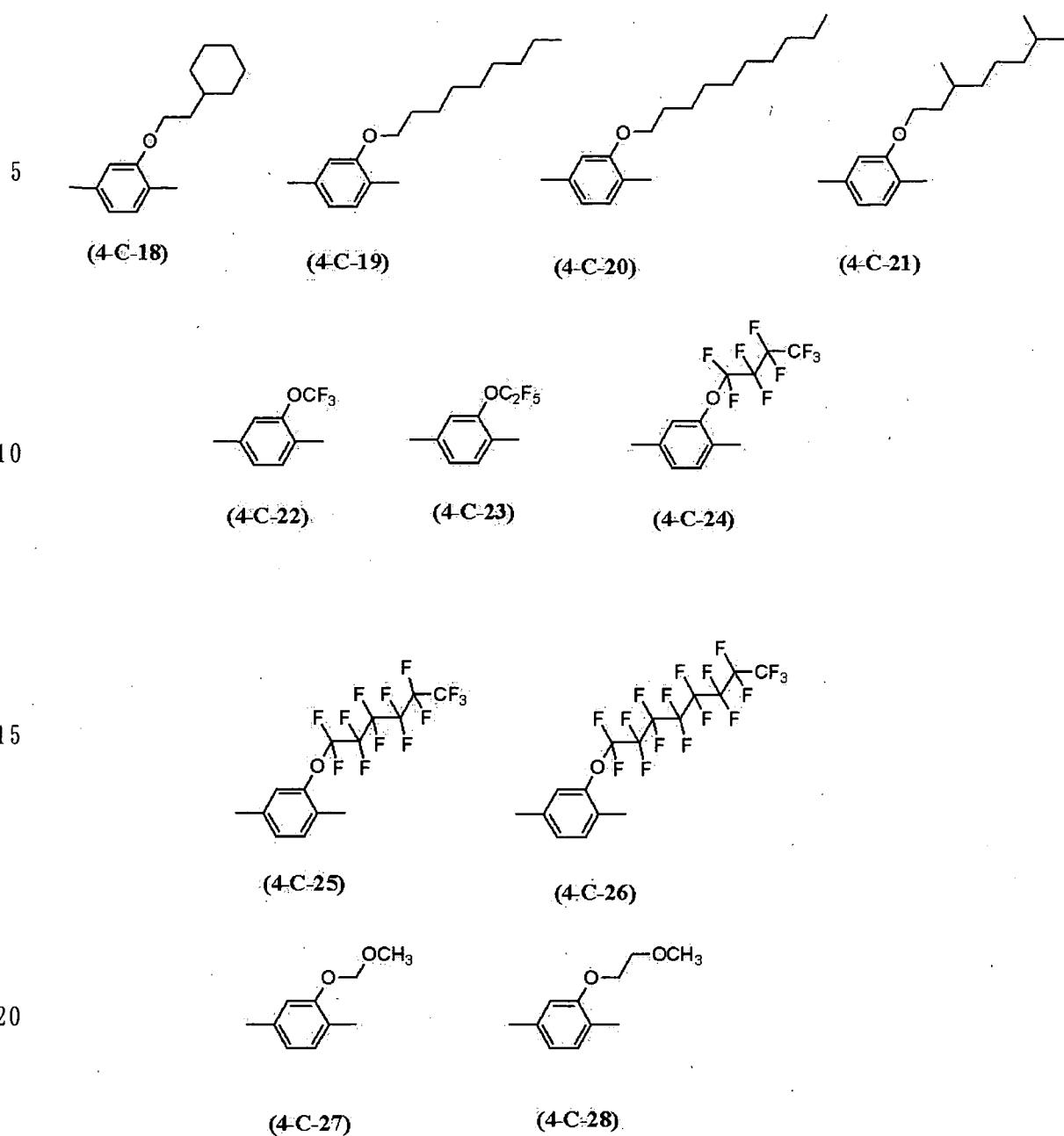


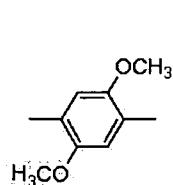
(4-C-10)



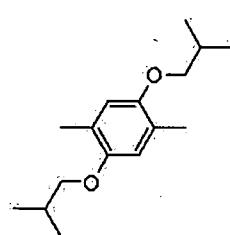
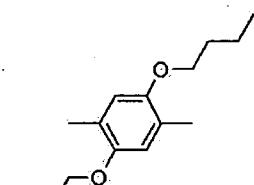
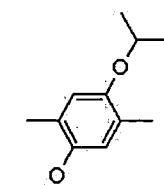
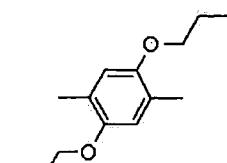
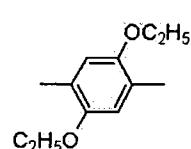
(4-C-14)



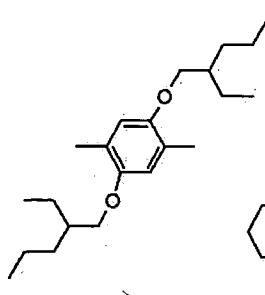
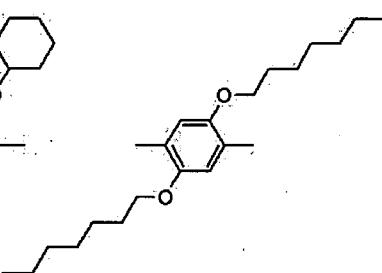
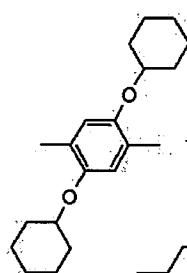
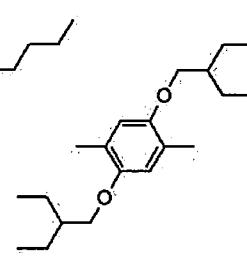
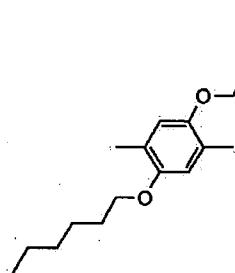
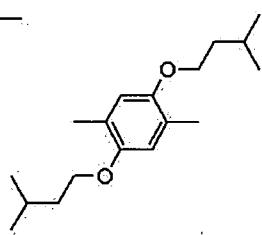
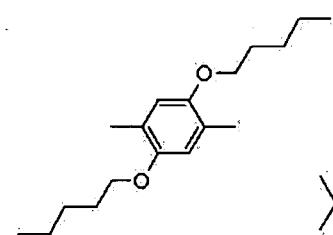
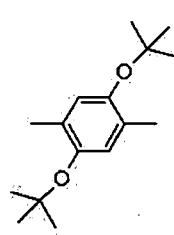




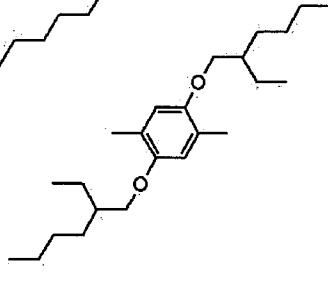
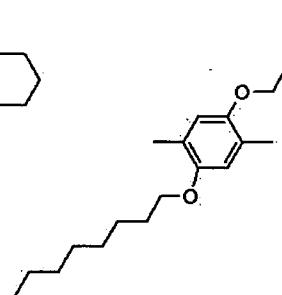
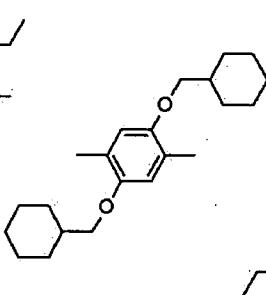
(4-D-1)

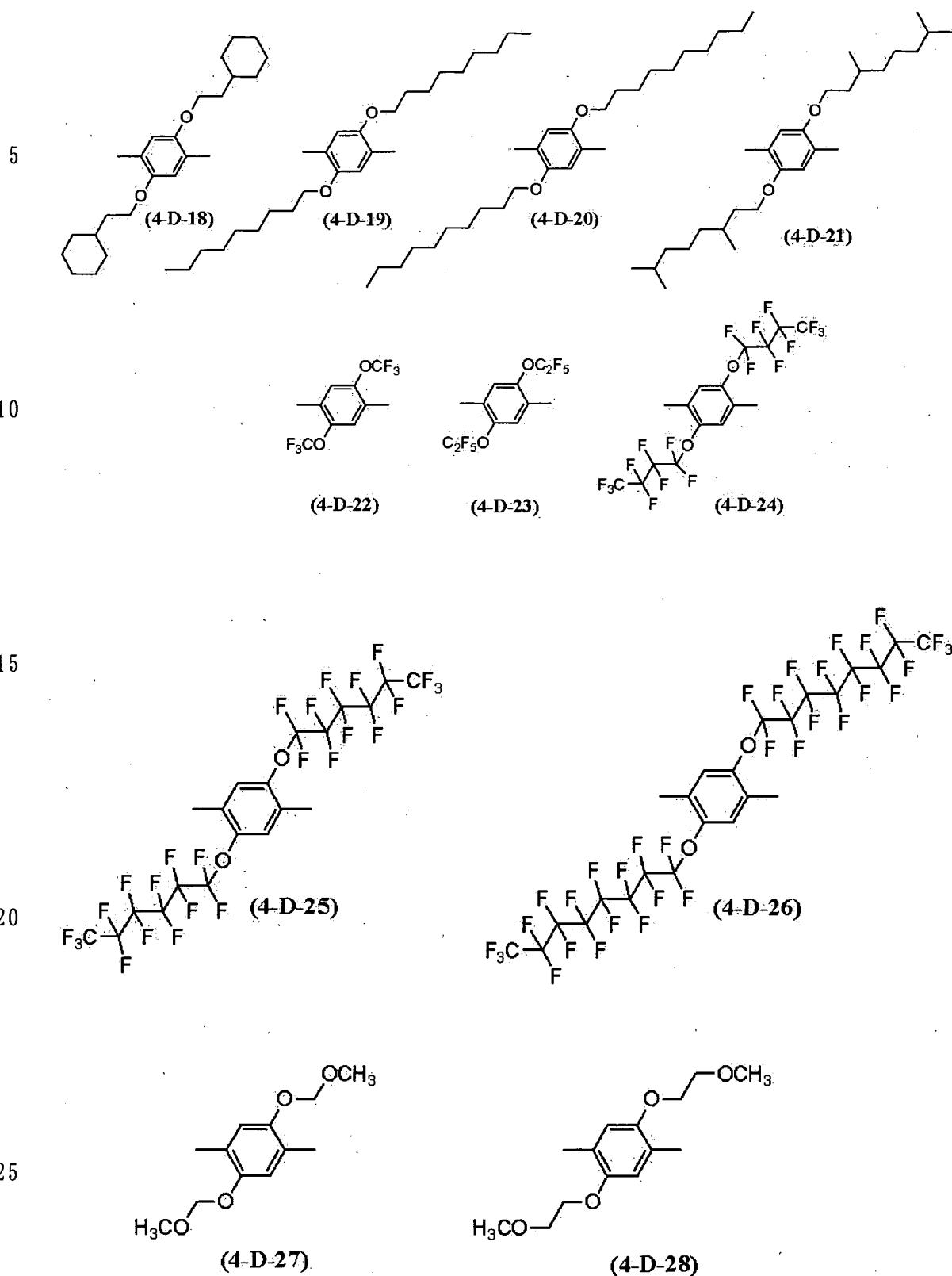


(4-D-6)



(4-D-14)





本発明の高分子化合物は、繰り返し単位として置換基を有していてよいフルオレンジイル基および置換基を1個以上有するフェニレン基を含み、かつ、前記式(1)で表される繰り返し単位および／または前記式(2)で表される基を含むことを特徴とする。前記式(1)中、Ar<sup>1</sup>およびAr<sup>2</sup>は、アリーレン基または2価の芳香族複素環基を表し、Ar<sup>1</sup>とAr<sup>2</sup>は、同一でも異なっていてよい。

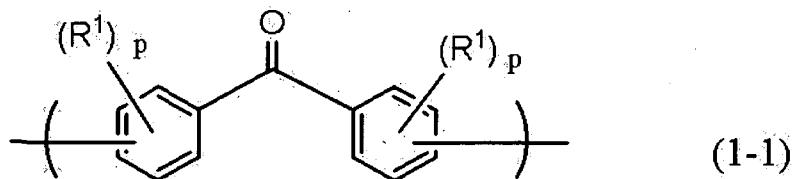
ここでアリーレン基とは、芳香族炭化水素から、水素原子2個を除いた原子団であり、独立したベンゼン環または縮合環をもつものから水素原子2個を除いた原子団等が含まれる。アリーレン基は、炭素数が通常6～60程度、好ましくは6～48であり、より好ましくは6～30であり、好ましくは6～18であり、より好ましくは6～10であり、好ましくは6である。該炭素数には置換基の炭素数は含まない。アリーレン基の例としては、1,4-フェニレン基、1,3-フェニレン基、1,2-フェニレン基、1,4-ナフタレンジイル基、1,5-ナフタレンジイル基、2,6-ナフタレンジイル基、1,4-アントラジイル基、1,5-アントラジイル基、2,6-アントラジイル基、9,10-アントラジイル基、2,7-フェナントレンジイル基、1,7-ナフタセンジイル基、2,8-ナフタセンジイル基などが挙げられ、好ましくは1,4-フェニレン基、1,3-フェニレン基、1,2-フェニレン基、1,5-ナフタレンジイル基、2,6-ナフタレンジイル基、1,4-アントラジイル基、1,5-アントラジイル基、2,6-アントラジイル基、9,10-アントラジイル基であり、より好ましくは1,4-フェニレン基、1,3-フェニレン基、1,2-フェニレン基、1,5-ナフタレンジイル基、2,6-ナフタレンジイル基であり、好ましくは1,4-フェニレン基、1,3-フェニレン基、1,2-フェニレン基であり、より好ましくは1,4-フェニレン基である。

2価の芳香族複素環基とは、芳香族複素環化合物から水素原子2個を除いた残りの原子団をいい、炭素数は通常4～60程度、好ましくは4～2

0であり、より好ましくは4～9であり、さらに好ましくは4～5である。2価の芳香族複素環基の例としては、2, 5-チオフェンジイル基、N-メチル-2, 5-ピロールジイル基、2, 5-フランジイル基、2, 5-ピリジンジイル基、2, 6-ピリジンジイル基、2, 4-キノリンジイル基、2, 6-キノリンジイル基、1, 4-イソキノリンジイル基、1, 5-イソキノリンジイル基などが例示され、2, 5-チオフェンジイル基、2, 5-ピリジンジイル基、2, 6-ピリジンジイル基、2, 4-キノリンジイル基、2, 6-キノリンジイル基、1, 4-イソキノリンジイル基、1, 5-イソキノリンジイル基が好ましく、2, 5-チオフェンジイル基、2, 5-ピリジンジイル基がより好ましく、2, 5-ピリジンジイル基、2, 6-ピリジンジイル基がさらに好ましい。

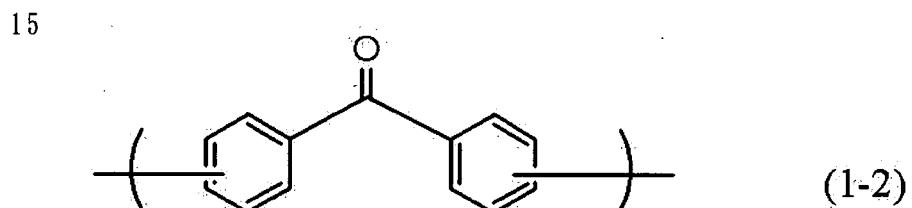
A<sub>r</sub><sup>1</sup>およびA<sub>r</sub><sup>2</sup>が置換基を有する場合、有機溶媒への溶解性、素子特性、高分子化合物の合成の行いやすさ等の観点からは、置換基が、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アリールアルキル基、アリールアルコキシ基、アリールアルキルチオ基、アリールアルケニル基、アリールアルキニル基、アミノ基、置換アミノ基、シリル基、置換シリル基、ハロゲン原子、アシル基、アシルオキシ基、イミン残基、アミド基、酸イミド基、1価の複素環基、カルボキシル基、置換カルボキシル基、ニトロ基およびシアノ基から選ばれるものであることが好ましい。より好ましくはアルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールアルキル基、アリールアルコキシ基、置換アミノ基、置換シリル基、アシル基、置換カルボキシル基およびシアノ基から選ばれるものであり、より一層好ましくは、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールアルキル基およびアリールアルコキシ基から選ばれるものであり、さらに好ましくはアルキル基、アルコキシ基、アリール基から選ばれるものであり、特に好ましくはアルキル基である。

前記式（1）で表される繰り返し単位としては、下記式（1-1）で表される繰り返し単位が好ましい。



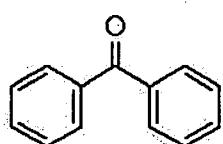
[式（1-1）において、R<sup>1</sup>は、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アリールアルキル基、アリールアルコキシ基、アリールアルキルチオ基、アリールアルケニル基、アリールアルキニル基、アミノ基または1価の複素環基を表す。pは独立に0から4の整数を表す。R<sup>1</sup>が複数個存在する場合は、それらは同一であっても異なっていてもよい。]

前記式（1-1）で表される繰り返し単位としては、下記式（1-2）で表される繰り返し単位が好ましい。



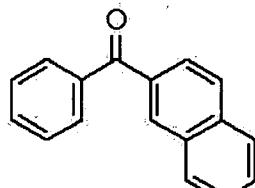
前記式（1）で表される繰り返し単位としては、以下の化合物（式A、B、C、D、E、F、G、H、I、J、K、L、M、N、O、P、Q、S、T、U、VおよびW）から水素原子を2個取り除いた残基、以下の化合物から水素原子を2個取り除いた残基であって、さらに1個以上の水素原子をアルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アリールアルキル基、アリールアルコキシ基、アリールアルキルチオ基、アリールアルケニル基、アミノ基、置換アミノ基、シリル基、置換シリル基、ハロゲン原子、アシル基、アシルオキシ基、イミン残基、アミド基、酸イミド基、1価の複素環基、カルボキシル基、置換カルボキシル基、ニトロ基およびシアノ

基等の置換基で置換した残基が挙げられる。

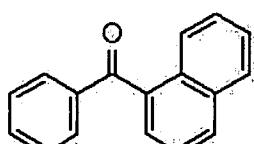


5

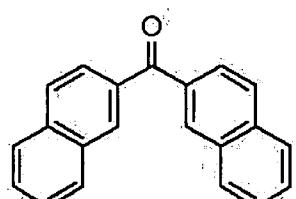
(A)



(B)

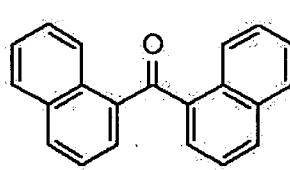


(C)

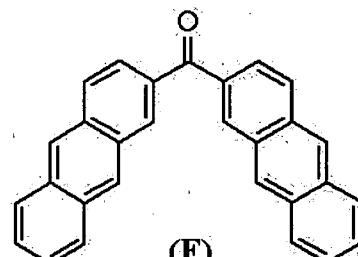


10

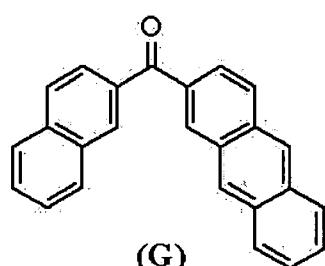
(D)



(E)

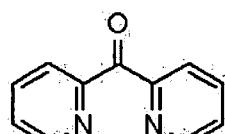


(F)

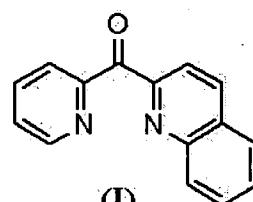


15

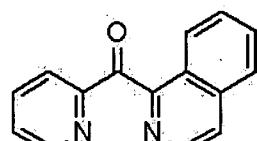
(G)



(H)

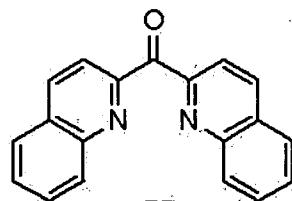


(I)

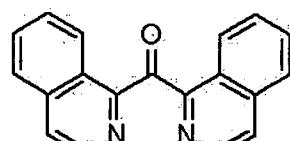


20

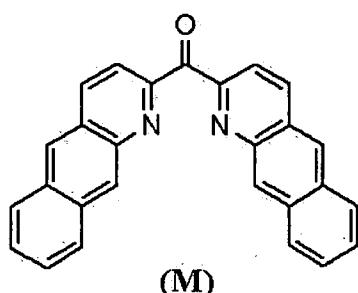
(J)



(K)

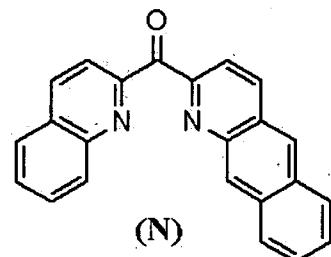


(L)

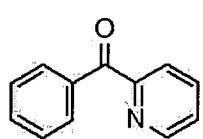


25

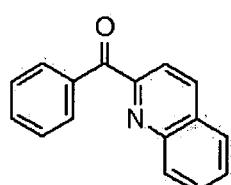
(M)



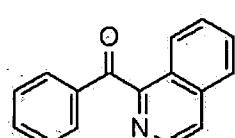
(N)



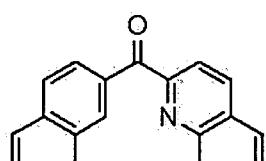
(O)



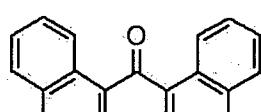
(P)



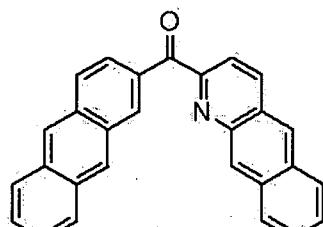
(Q)



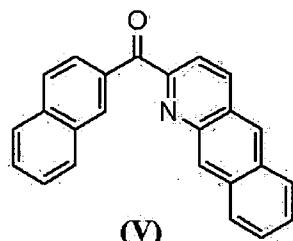
(S)



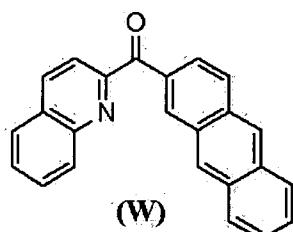
(T)



(U)



(V)



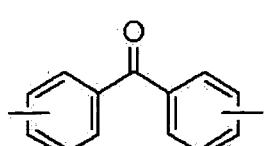
(W)

15

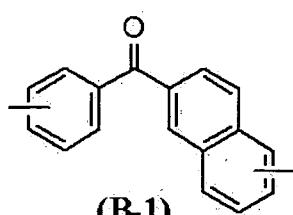
前記式（1）の例としては、下記の繰り返し単位が挙げられる。

20

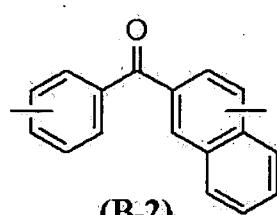
25



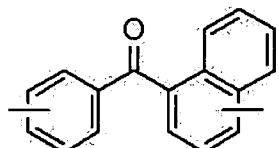
(A-1)



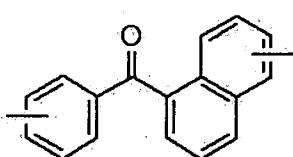
(B-1)



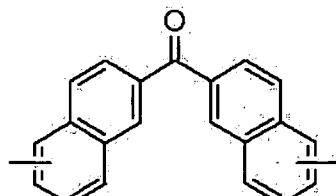
(B-2)



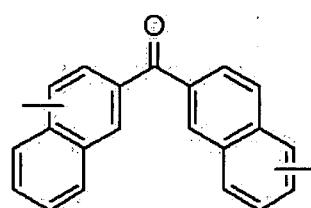
(C-1)



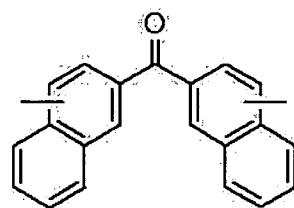
(C-2)



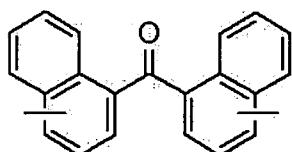
(D-1)



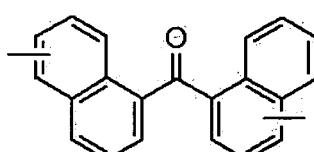
(D-2)



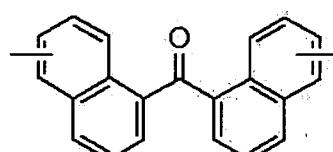
(D-3)



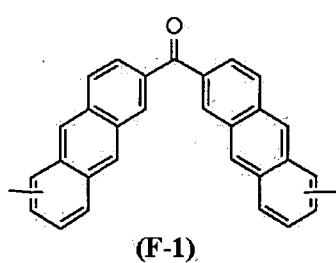
(E-1)



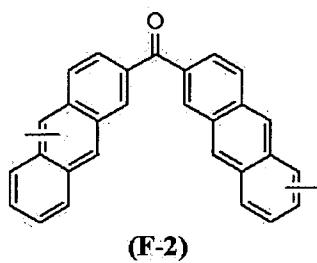
(E-2)



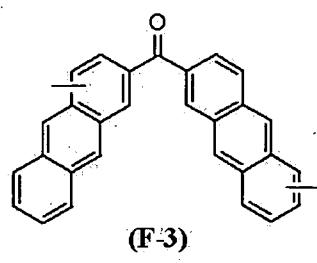
(E-3)



(F-1)

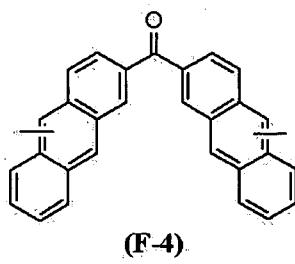


(F-2)

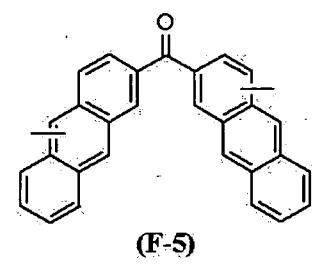


(F-3)

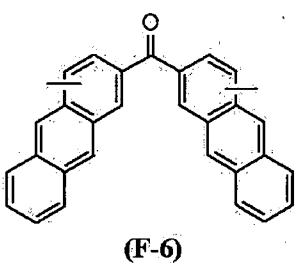
5



(F-4)

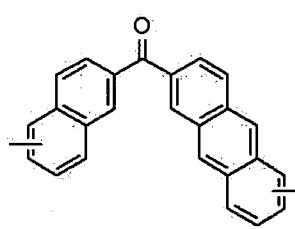


(F-5)

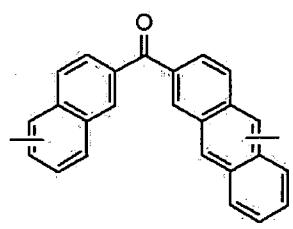


(F-6)

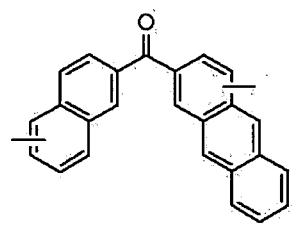
10



(G-1)



(G-2)

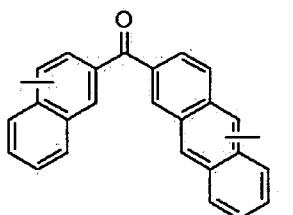


(G-3)

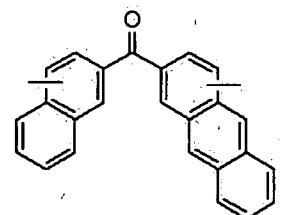
15



(G-4)



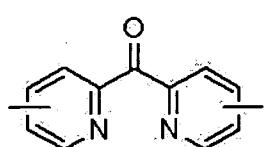
(G-5)



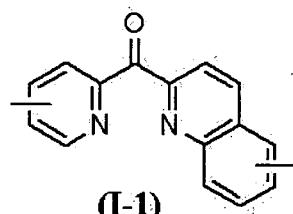
(G-6)

20

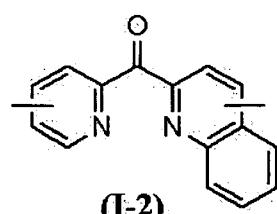
25



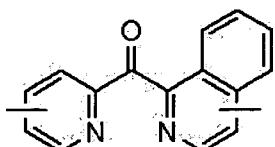
(H-1)



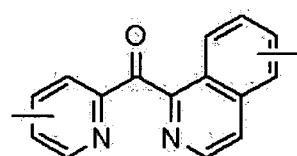
(I-1)



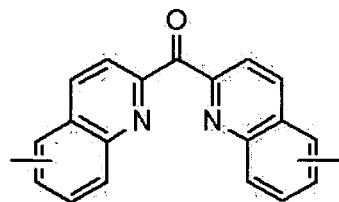
(I-2)



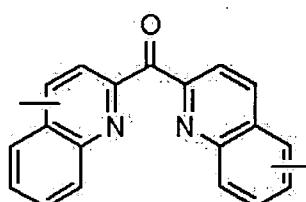
(J-1)



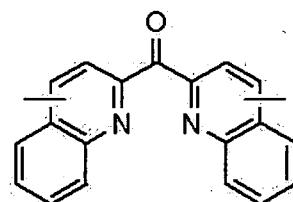
(J-2)



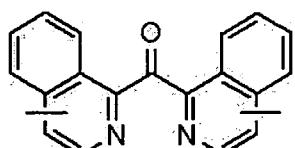
(K-1)



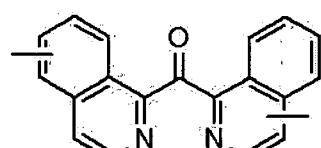
(K-2)



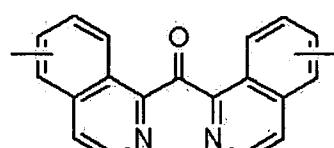
(K-3)



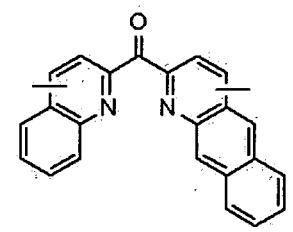
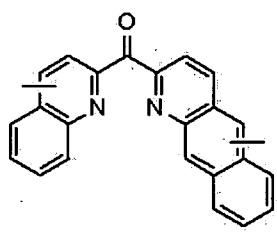
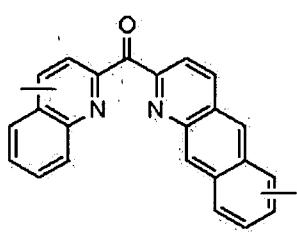
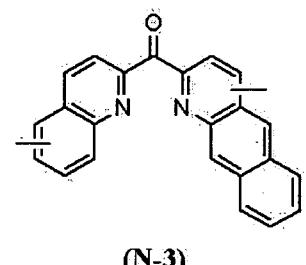
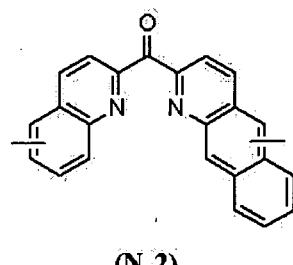
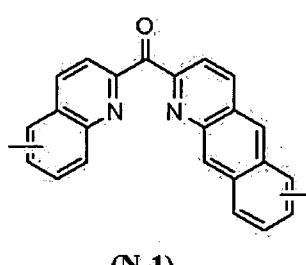
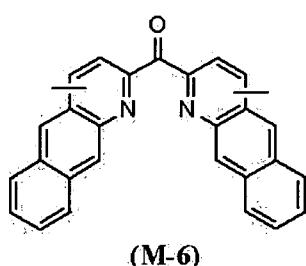
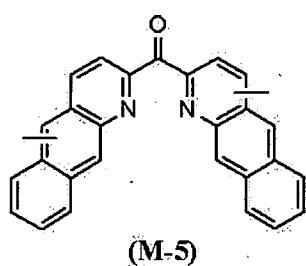
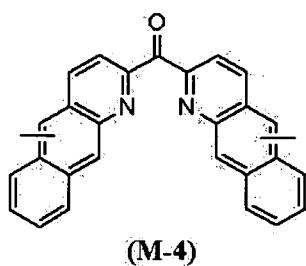
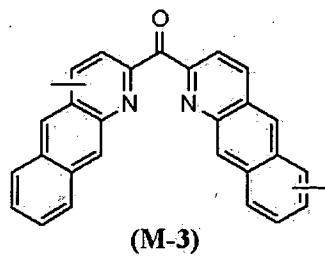
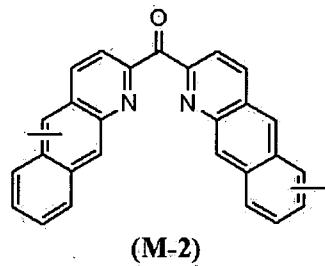
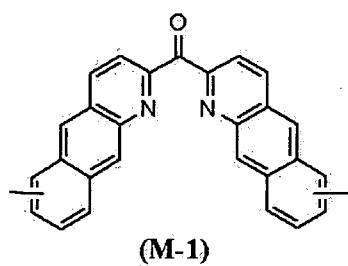
(L-1)

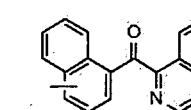
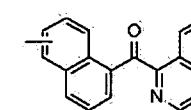
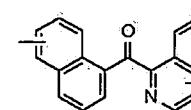
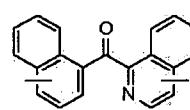
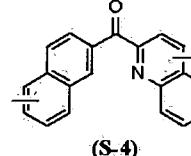
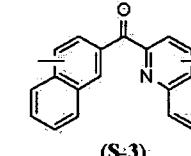
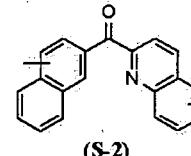
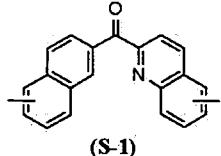
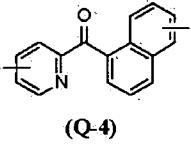
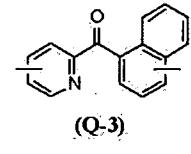
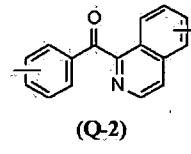
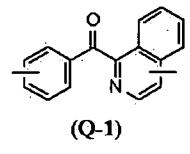
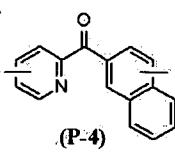
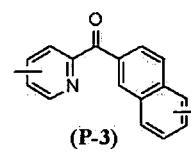
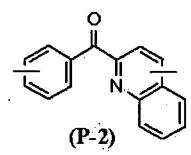
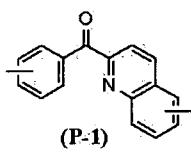
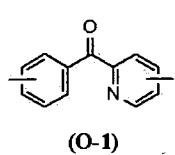


(L-2)



(L-3)



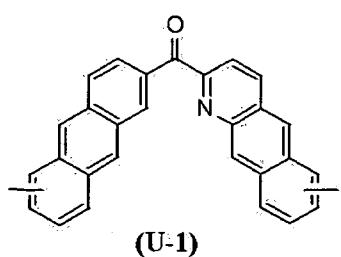


10

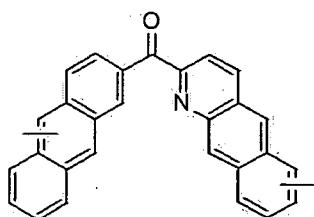
15

20

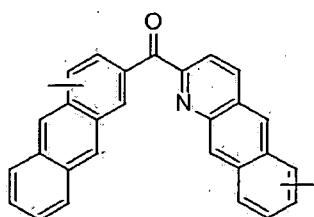
25



(U-1)

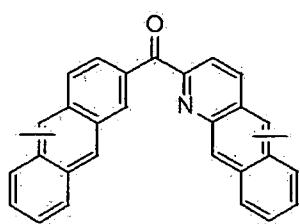


(U-2)

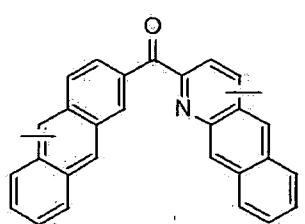


(U-3)

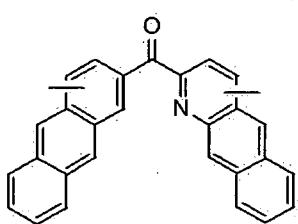
5



(U-4)

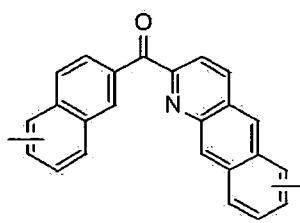


(U-5)

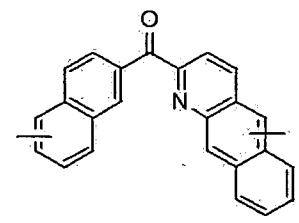


(U-6)

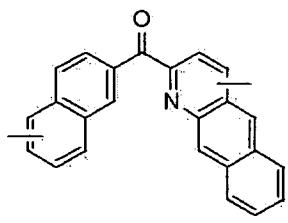
10



(V-1)

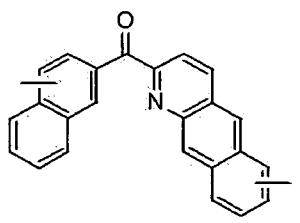


(V-2)

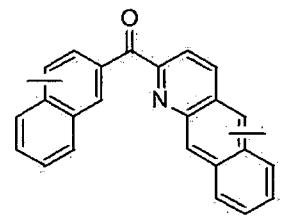


(V-3)

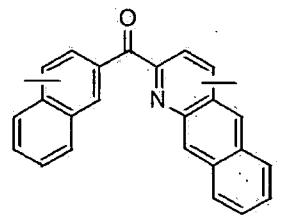
15



(V-4)



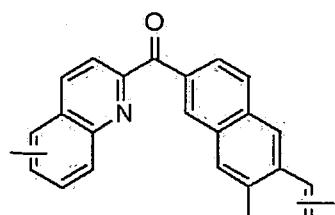
(V-5)



(V-6)

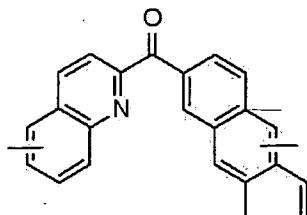
20

25

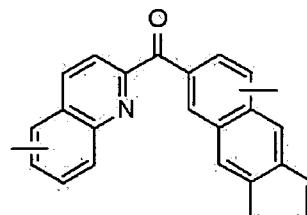


5

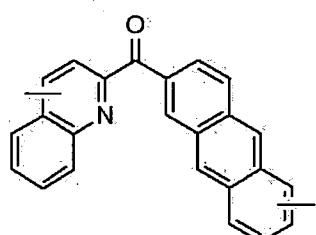
(W-1)



(W-2)

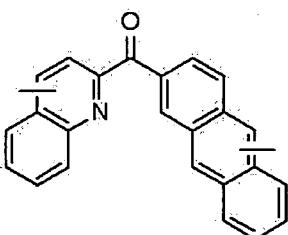


(W-3)

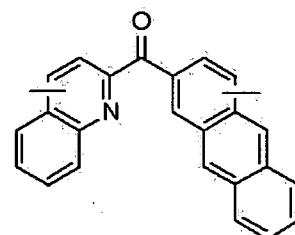


10

(W-4)



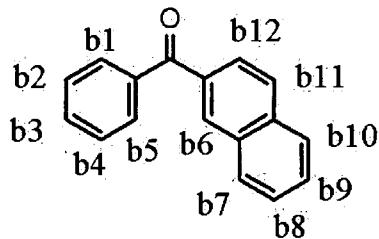
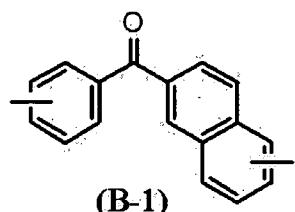
(W-5)



(W-6)

前式 (A - 1) ~ (Q - 4) および (S - 1) ~ (W - 6) 中の芳香環からでている実線は、結合手を表す。例えば上式 (B - 1) で表される繰り返し単位は、その、 b 1 ~ b 5 のいずれかの部位に 1 つの結合手を有し、 b 7 ~ b 1 0 のいずれかの部位に 1 つの結合手を有する。

20



(B-1)

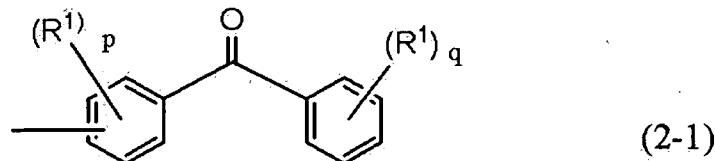
本発明の高分子化合物が前記式 (2) で表される基を含む場合、前記式 (2) における  $A r^3$  がアリール基である場合の例としては、前述でフルオレンジイル基の置換基として説明し、例示したものと同じものがあげられる。アリール基の中でも、フェニル基、ナフチル基、アントラセニル基が好ましい。

$A r^3$  が 1 価の複素環基である場合の例としては、前述でフルオレンジ

イル基の置換基として説明し、例示したものと同じものがあげられる。1価の複素環基の中でも、チエニル基、ピロリル基、フリル基、ピリジル基、ピペリジル基、キノリル基、イソキノリル基が好ましい。

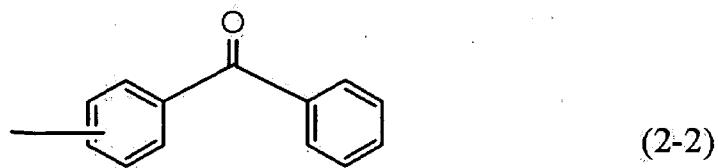
A<sub>r</sub><sup>3</sup>が置換基を有する場合、有機溶媒への溶解性、素子特性、高分子化合物の合成の行いやすさ等の観点からは、置換基が、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アリールアルキル基、アリールアルコキシ基、アリールアルキルチオ基、アリールアルケニル基、アリールアルキニル基、アミノ基、置換アミノ基、シリル基、置換シリル基、ハロゲン原子、アシル基、アシルオキシ基、イミン残基、アミド基、酸イミド基、1価の複素環基、カルボキシル基、置換カルボキシル基、ニトロ基およびシアノ基から選ばれるものであることが好ましい。より好ましくはアルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールアルキル基、アリールアルコキシ基、置換アミノ基、置換シリル基、アシル基、置換カルボキシル基およびシアノ基から選ばれるものであり、より一層好ましくは、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールアルキル基およびアリールアルコキシ基から選ばれるものであり、さらに好ましくはアルキル基、アルコキシ基、アリール基から選ばれるものであり、特に好ましくはアルキル基である。

前記式(2)で表される基としては、下記式(2-1)で表される基が好ましい。



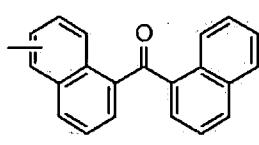
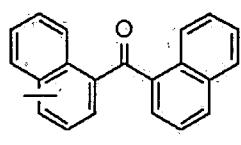
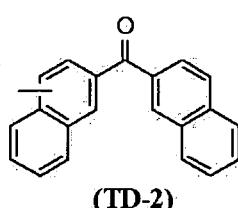
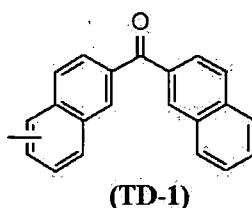
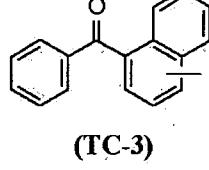
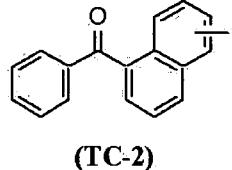
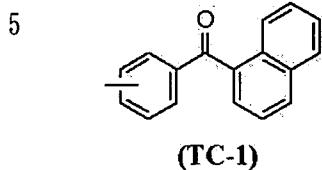
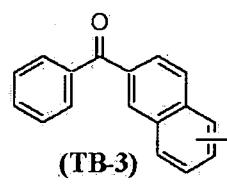
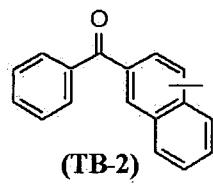
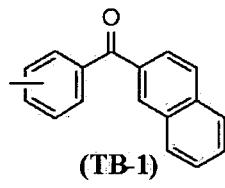
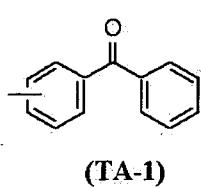
[式(2-1)において、qは0から5の整数を表す。R<sup>1</sup>およびpは前記と同じ意味を表す。]

前記式(2-1)で表される基としては、下記式(2-2)で表される基が好ましい。



5 前記式（2）で表される基の例としては、前記化合物（式A、B、C、  
D、E、F、G、H、I、J、K、L、M、N、O、P、Q、S、T、U  
、VおよびW）から水素原子を1個取り除いた残基、前記化合物から水素  
原子を1個取り除いた残基であって、さらに1個以上の水素原子をアルキ  
ル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリール基、アリールオキシ基、  
10 アリールチオ基、アリールアルキル基、アリールアルコキシ基、アリール  
アルキルチオ基、アリールアルケニル基、アリールアルキニル基、アミノ  
基、置換アミノ基、シリル基、置換シリル基、ハロゲン原子、アシル基、  
アシルオキシ基、イミン残基、アミド基、酸イミド基、1価の複素環基、  
カルボキシル基、置換カルボキシル基、ニトロ基およびシアノ基等の置換  
15 基で置換した残基が挙げられる。

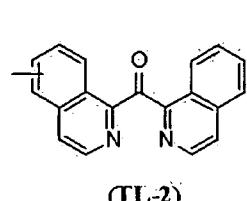
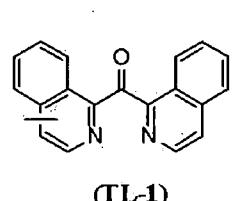
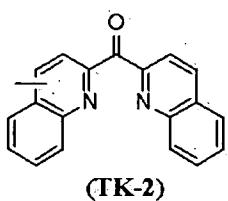
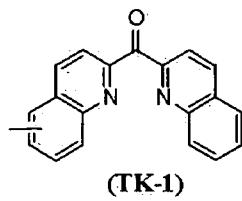
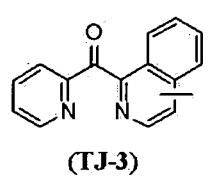
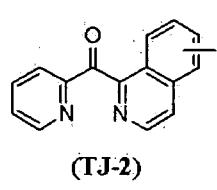
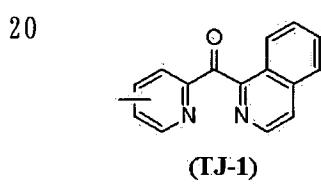
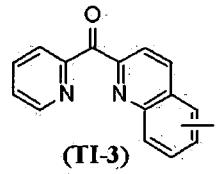
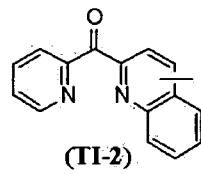
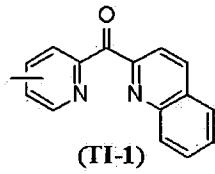
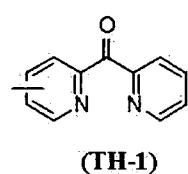
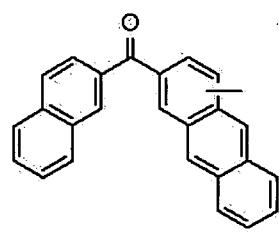
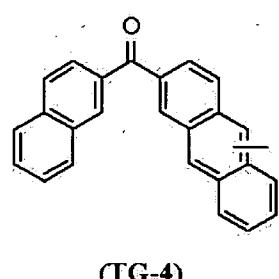
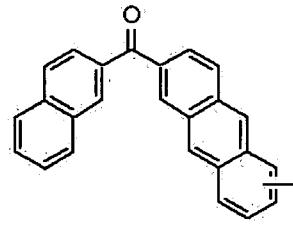
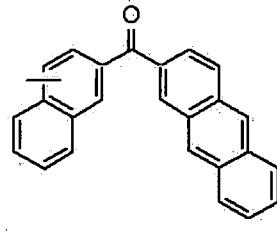
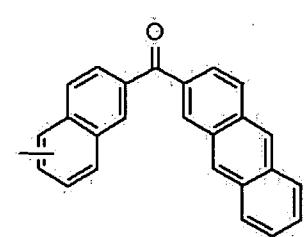
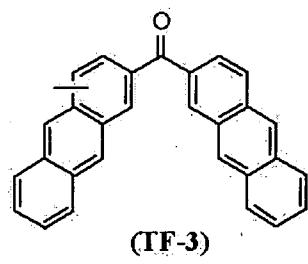
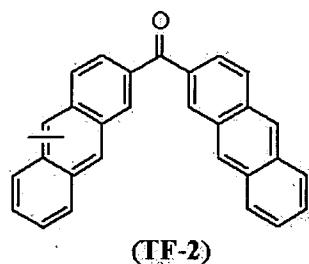
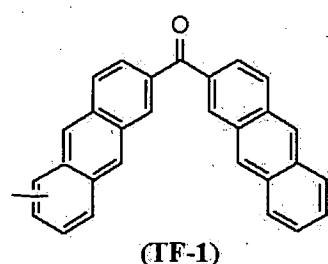
前記式（2）で表される基の例としては、下記の基が挙げられる。

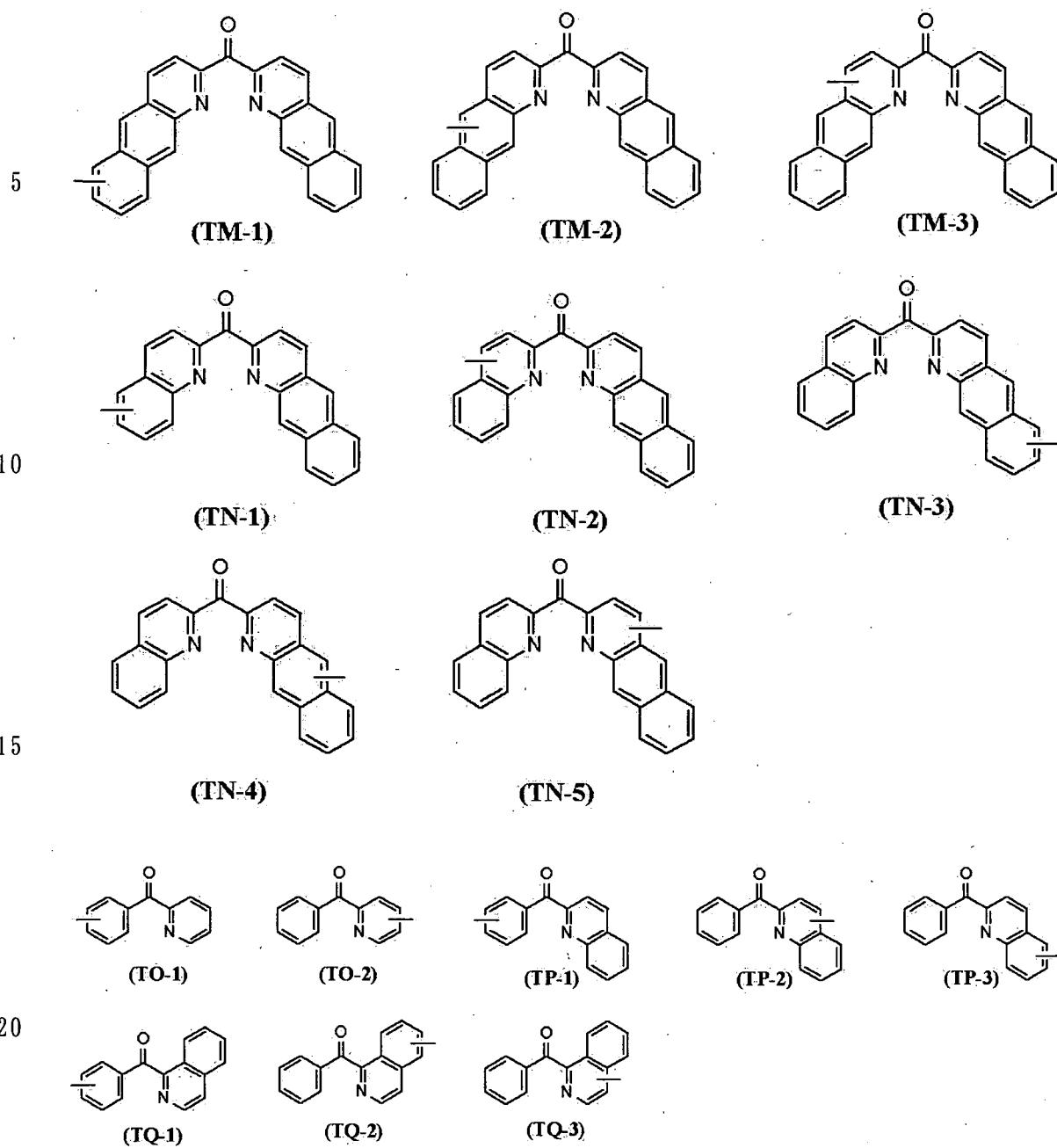


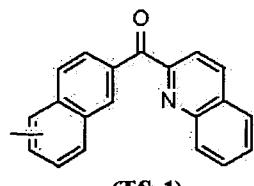
15

20

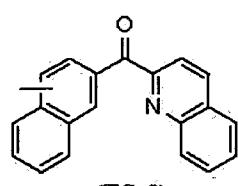
25



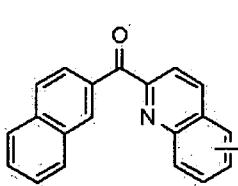




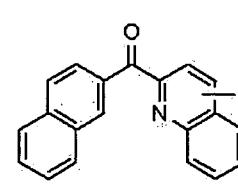
(TS-1)



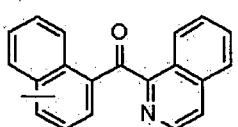
(TS-2)



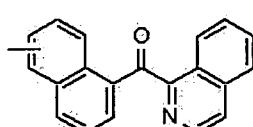
(TS-3)



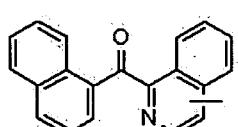
(TS-4)



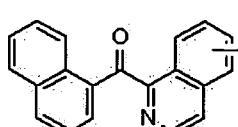
(TT-1)



(TT-2)



(TT-3)



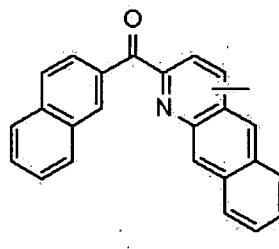
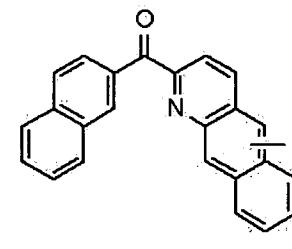
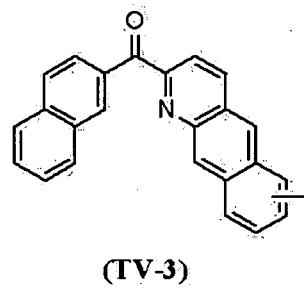
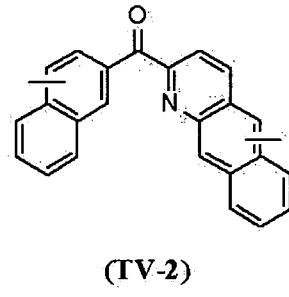
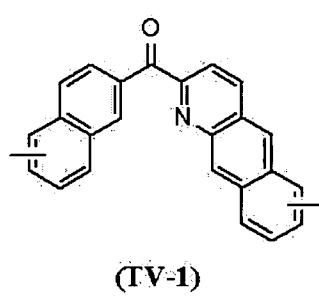
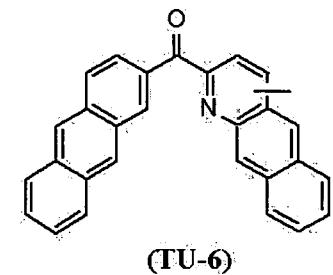
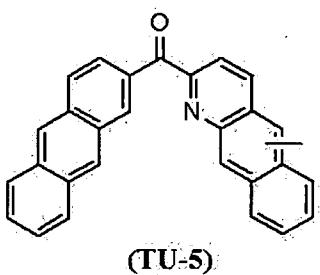
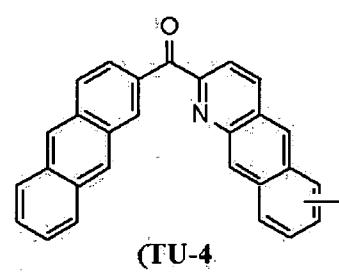
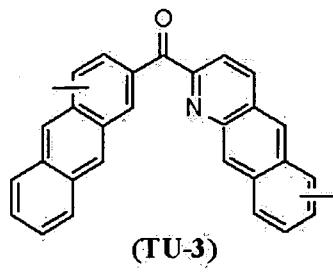
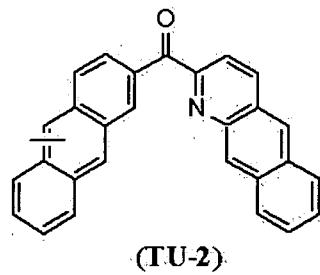
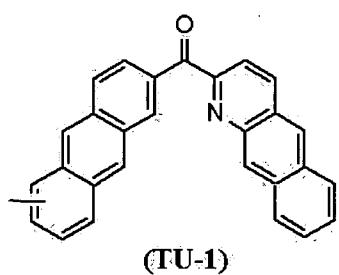
(TT-4)

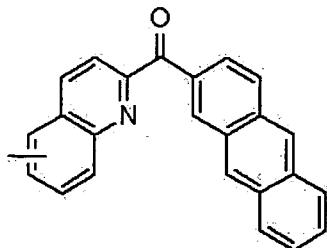
10

15

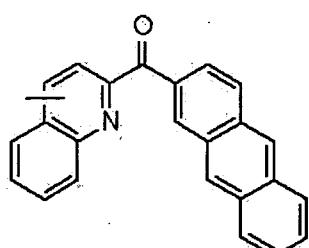
20

25

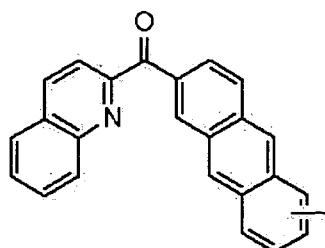




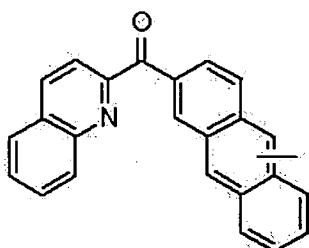
(TW-1)



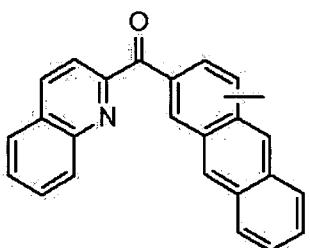
(TW-2)



(TW-3)



(TW-4)



(TW-5)

前式  $(TA - 1) \sim (TQ - 3)$  および  $(TS - 1) \sim (TW - 5)$  中  
の芳香環からでている実線は、前式  $(B - 1)$  と同じ意味である。

本発明の高分子化合物は、置換基を有していてもよいフルオレンジイル基、置換基を1個以上有するフェニレン基および前記式(1)で表される繰り返し単位以外の繰り返し単位を有していてもよい。該繰り返し単位としては、例えば、下記式(5)：



[式中、 $A_{r_4}$ は、アリーレン基、2価の複素環基、または2価の芳香族アミン基を表す。ただし、置換基を有していてもよいフルオレンジイル基、置換基を1個以上有するフェニレン基および前記式(1)で表される繰り返し単位を除く。]

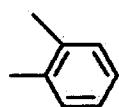
で表される繰り返し単位が挙げられる。

前記式(5)中、 $\text{Ar}_4$ で表されるアリーレン基とは、芳香族炭化水素から水素原子2個を除いた原子団であり、ベンゼン環をもつもの、縮合環

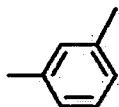
をもつもの、独立したベンゼン環または縮合環2個以上が直接またはビニレン等の基を介して結合したものから水素原子2個を除いた原子団等が、含まれる。アリーレン基は置換基を有していてもよい。アリーレン基における置換基を除いた部分の炭素数は、通常、6～60程度であり、好ましくは6～20である。また、アリーレン基の置換基を含めた全炭素数は、通常、6～100程度である。

A  $r_4$ で表されるアリーレン基としては、置換基を有さないフェニレン基（例えば下式1～3）、ナフタレンジイル基（例えば、下式4～13）、アントラセンジイル基（例えば、下式14～19）、ビフェニルージイル基（例えば、下式20～25）、ターフェニルージイル基（例えば、下式26～28）、縮合環化合物基（例えば、下式29～35）、ベンゾフルオレンジイル基（例えば、下式36～38）、ジベンゾフルオレンジイル基（例えば、下式Z）、スチルベンジイル基（下式39～42）、ジスチルベンジイル基（例えば、下式43、44）等が例示される。

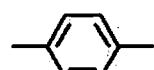
15.



1

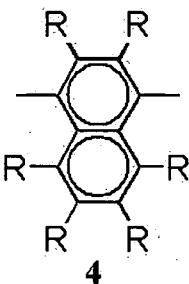


2

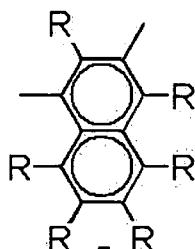


3

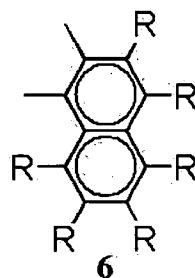
20



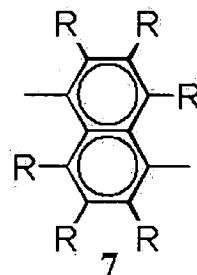
4



5

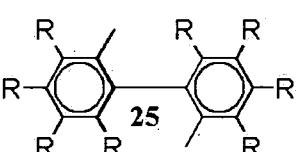
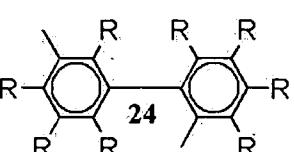
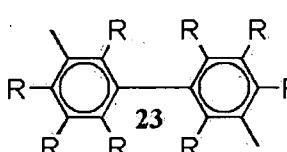
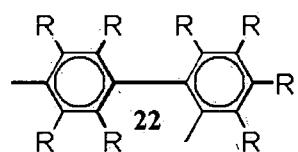
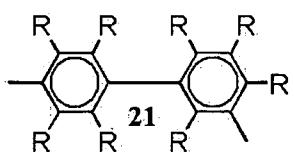
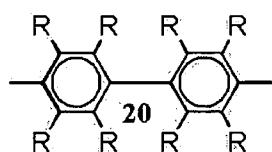
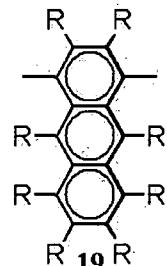
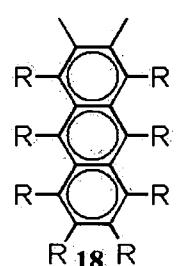
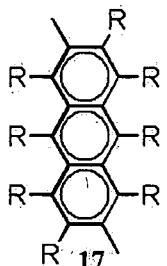
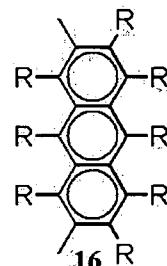
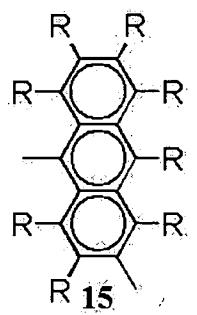
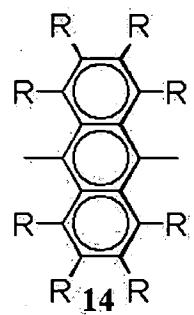
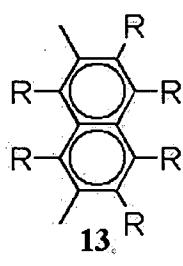
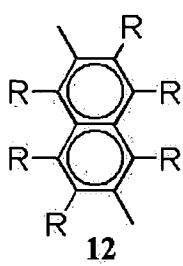
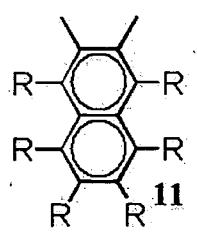
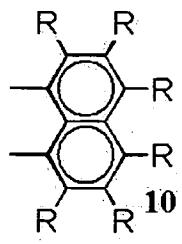
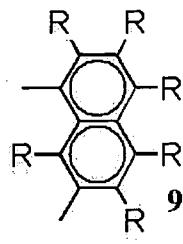
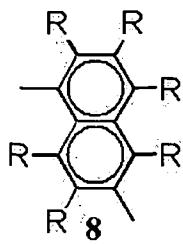


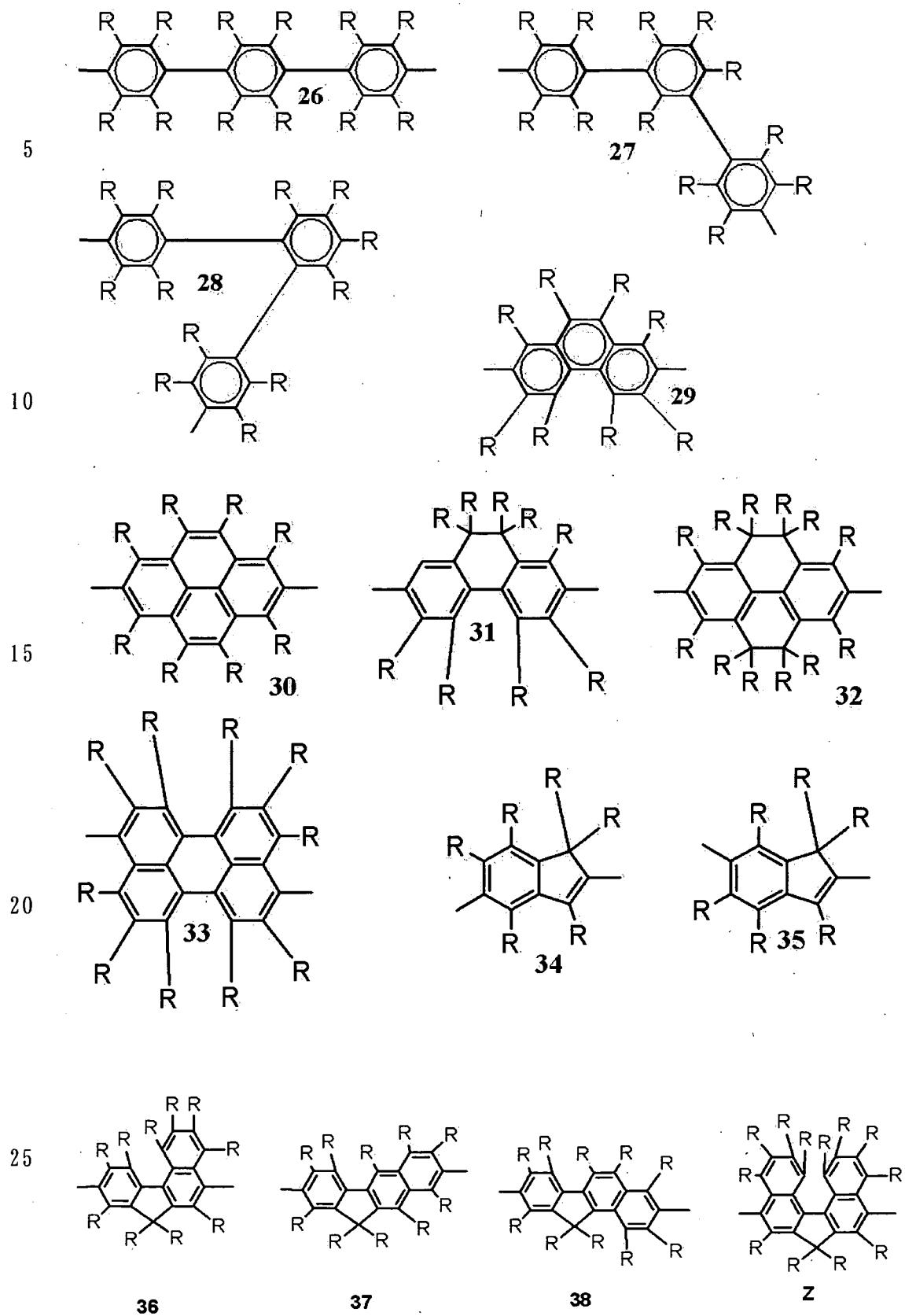
6

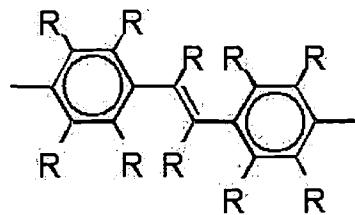
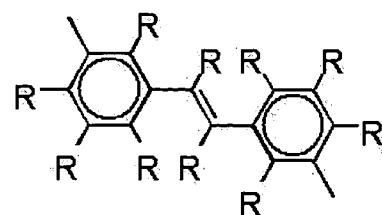


7

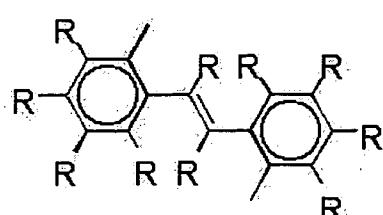
25.



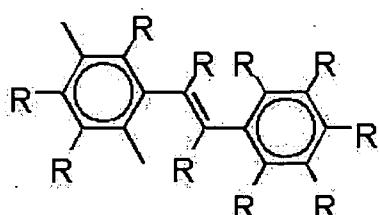
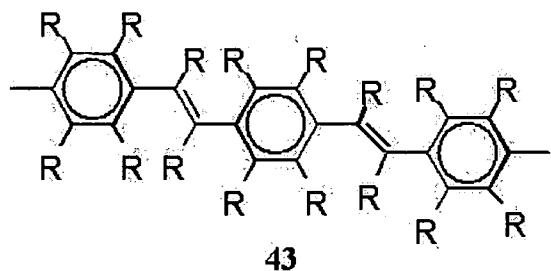


5  
39

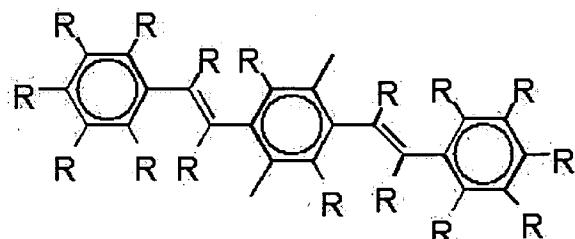
40



41

10  
42

43

15  
44

(式中、Rは、水素原子または置換基を表す。複数個存在するRは、同一

20 であっても異なっていてもよい。)

上式1～44及びZ中、Rで表される置換基としては、例えば、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アリールアルキル基、アリールアルコキシ基、アリールアルキルチオ基、アリールアルケニル基、アリールアルキニル基、アミノ基、置換アミノ基、シリル基、置換シリル基、ハロゲン原子、アシル基、アシルオキシ基、イミン残基、アミド基、酸イミド基、1価の複素環基、カルボキシル基、置換カルボキシル基、シアノ基または前記式(2)で表

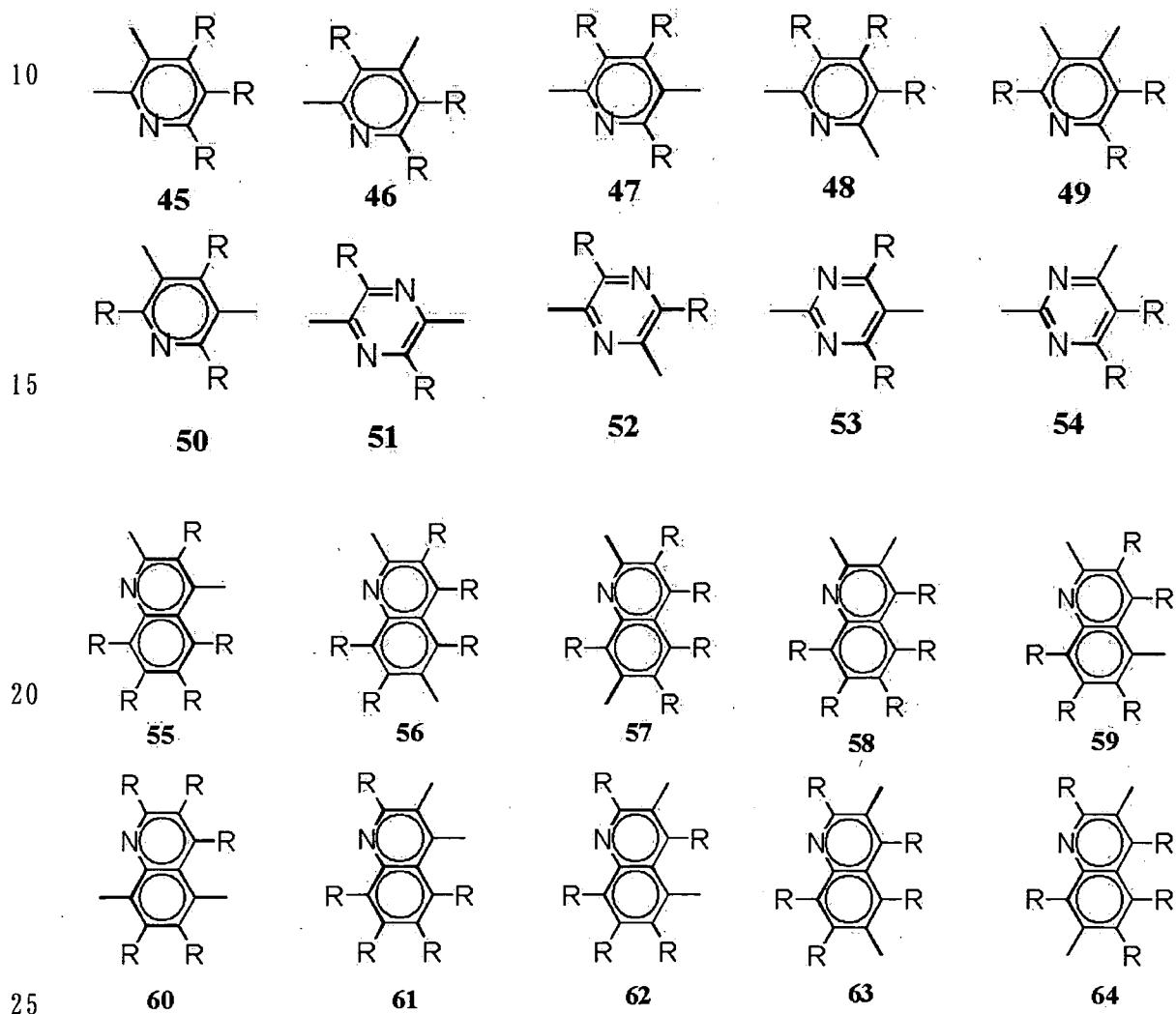
される基等が挙げられる。これらの置換基に含まれる水素原子は、フッ素原子に置換されていてもよい。これらの基、残基、原子は、前記フルオレンジイル基の置換基の項で説明し例示したものと同じである。Rで表される置換基は、高分子化合物の有機溶媒への溶解性、素子特性の観点から、少なくとも1個のRが水素原子以外であることが好ましい。また、Rで表される置換基は、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アリールアルキル基、アリールアルコキシ基、1価の複素環基が好ましく、アルキル基、アルコキシ基、アリール基がより好ましい。

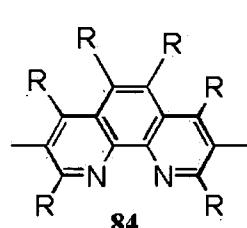
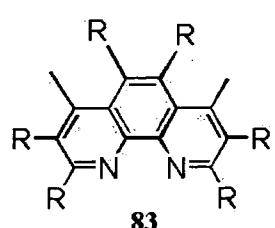
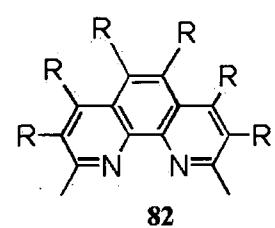
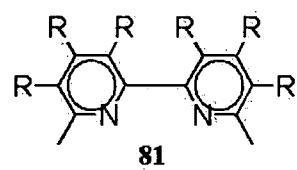
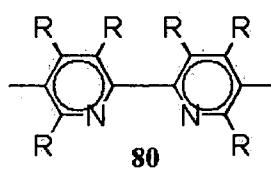
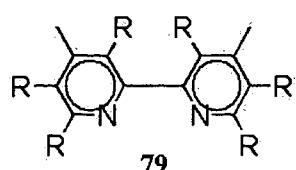
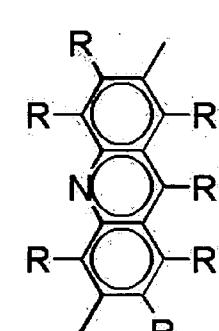
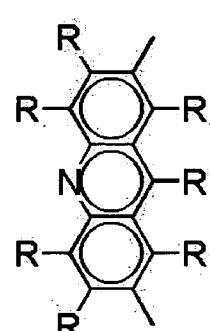
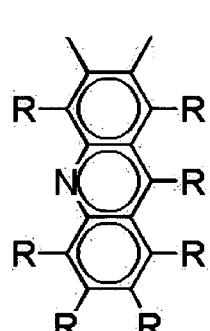
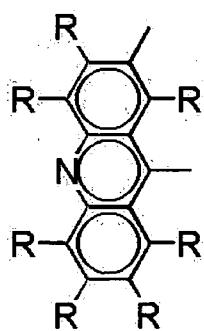
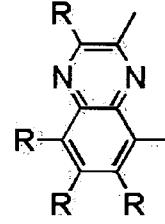
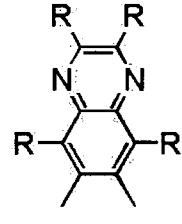
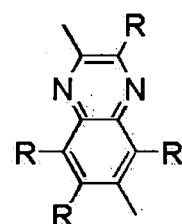
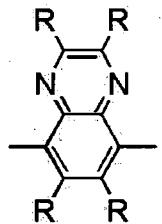
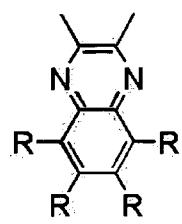
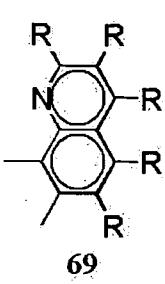
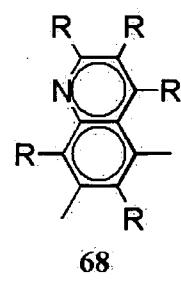
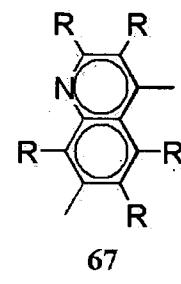
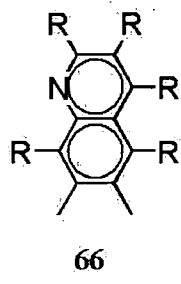
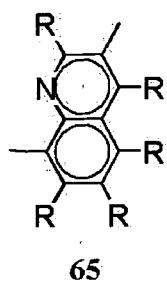
10

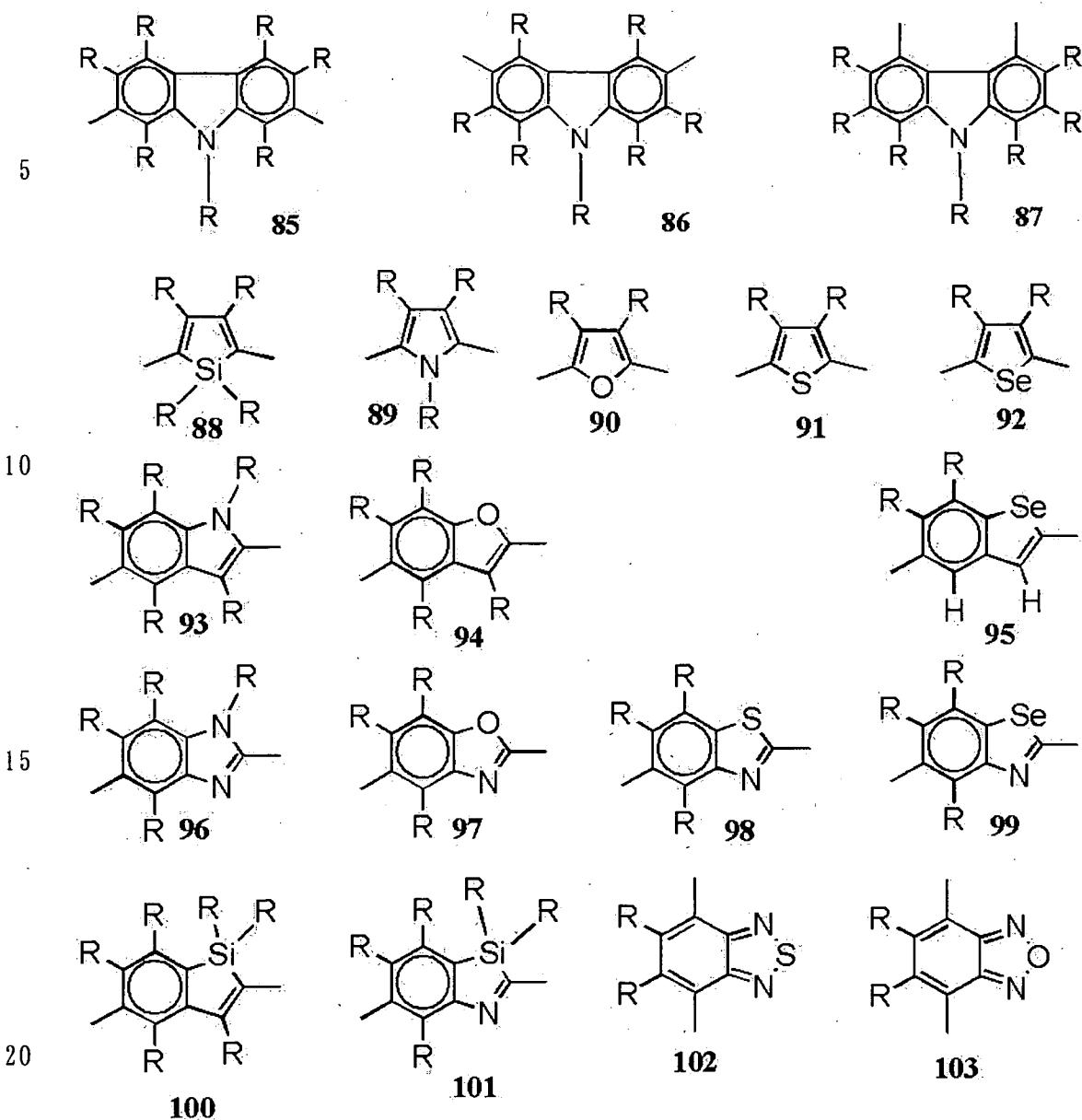
A<sub>r</sub><sub>4</sub>で表される2価の複素環基とは、複素環化合物から水素原子2個を除いた残りの原子団をいう。2価の複素環基は置換基を有していてよい。前記複素環化合物とは、環式構造をもつ有機化合物のうち、環を構成する元素が炭素原子だけでなく、酸素、硫黄、窒素、リン、ホウ素、ヒ素等のヘテロ原子を環内に含むものをいう。2価の複素環基の中では、芳香族複素環基が好ましい。2価の複素環基における置換基を除いた部分の炭素数は通常3～60程度である。また、2価の複素環基の置換基を含めた全炭素数は、通常3～100程度である。

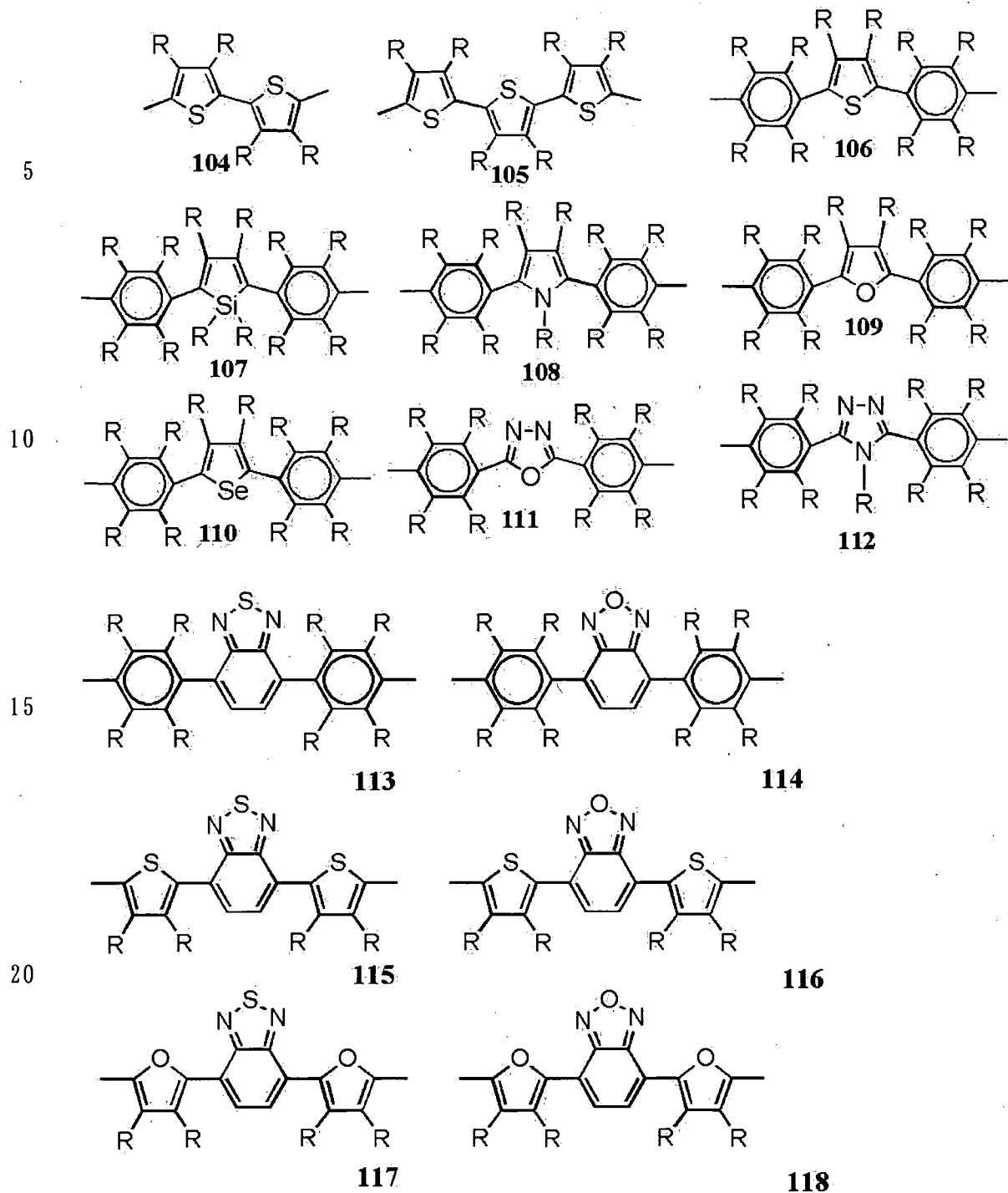
A<sub>r</sub><sub>4</sub>で表される2価の複素環基としては、例えば、ピリジンジイル基（例えば、下式45～50）、ジアザフェニレン基（例えば、下式51～54）、キノリンジイル基（例えば、下式55～69）、キノキサリンジイル基（例えば、下式70～74）、アクリジンジイル基（例えば、下式75～78）、ビピリジルジイル基（例えば、下式79～81）、フェナントロリンジイル基（例えば、下式82～84）、カルバゾール構造を有する基（例えば、下式85～87）等の、ヘテロ原子として窒素を含む2価の複素環基；ヘテロ原子として酸素、けい素、窒素、硫黄、セレン等を含む5員環複素環基（例えば、下式88～92）；ヘテロ原子として酸素、けい素、窒素、セレン等を含む5員環縮合複素環基（例えば、下式9

3～103)；ヘテロ原子として酸素、けい素、窒素、硫黄、セレン等を含む5員環複素環基でそのヘテロ原子の $\alpha$ 位で結合し2量体やオリゴマーになっている基(例えば、下式104～105)；ヘテロ原子として酸素、けい素、窒素、硫黄、セレン等を含む5員環複素環基でそのヘテロ原子の $\alpha$ 位でフェニル基に結合している基(例えば、下式106～112)；ヘテロ原子として酸素、窒素、硫黄等を含む5員環縮合複素環基にフェニル基やフリル基、チエニル基が置換した基(例えば、下式113～118)等が挙げられる。







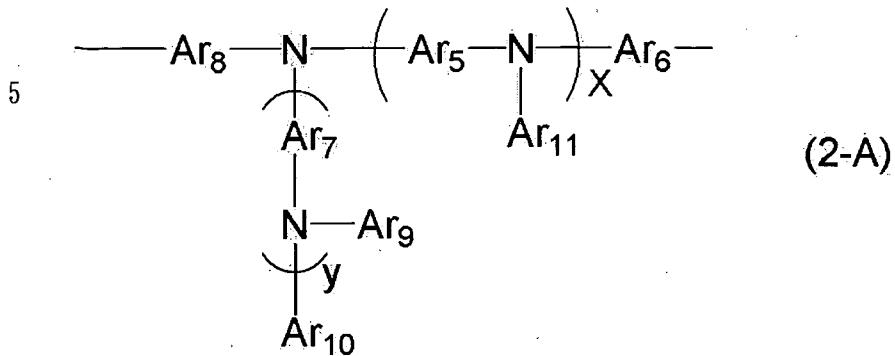


25

(式中、Rは、前記で定義したとおりである。複数個存在するRは、同一であっても異なっていててもよい。)

A r<sub>4</sub>で表される2価の芳香族アミン基としては、芳香族第三級アミン

または芳香族第三級アミンから誘導される化合物の芳香環から水素原子を2個除いて得られる原子団が挙げられる。2価の芳香族アミン基の中では、下記式(2-A)：



10

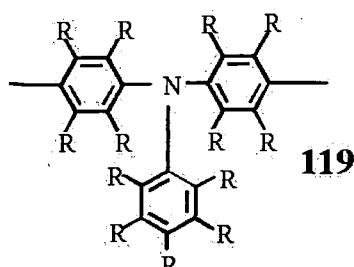
[式中、 $\text{Ar}_5$ 、 $\text{Ar}_6$ 、 $\text{Ar}_7$ 及び $\text{Ar}_8$ は、それぞれ独立に、アリーレン基または2価の複素環基を表す。 $\text{Ar}_9$ 、 $\text{Ar}_{10}$ 及び $\text{Ar}_{11}$ は、それぞれ独立に、アリール基または1価の複素環基を表す。 $x$ 及び $y$ は、それぞれ独立に、0または正の整数である。]

15 で表される基が、発光波長を変化させる観点、電荷のバランスを取る観点、最大発光効率を高める観点、耐熱性を向上させる観点から好ましい。

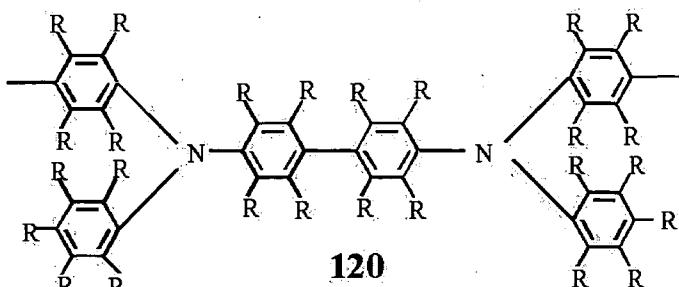
前記式(2-A)中、 $x$ は、最大発光効率、輝度半減寿命等の素子特性や高分子化合物の合成の行いやすさから、0～2の整数であることが好ましく、0または1であることがより好ましい。また、前記式(2-A)中  
20 、 $y$ は、最大発光効率、輝度半減寿命等の素子特性や高分子化合物の合成の行いやすさから、0～2の整数であることが好ましく、0または1であることがより好ましい。

前記式(2-A)で表される基の例としては、以下の式119～126で表されるものが挙げられる。

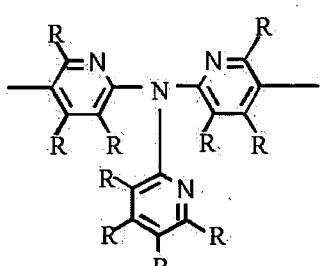
25



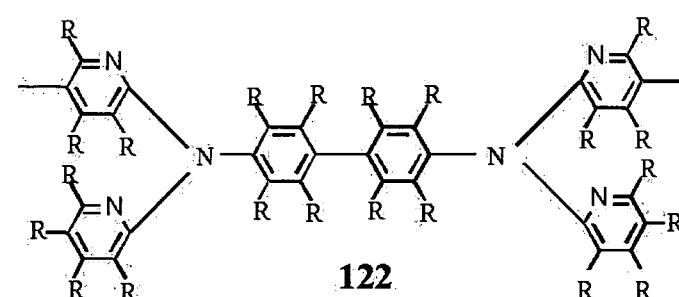
119



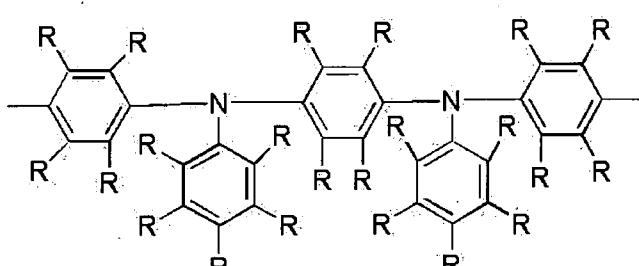
120



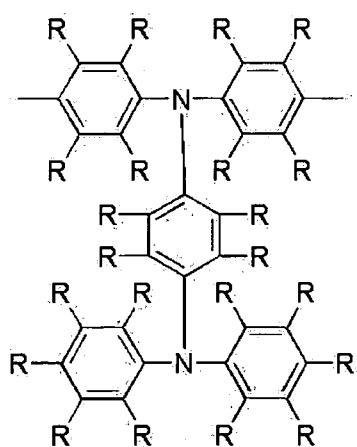
121



122

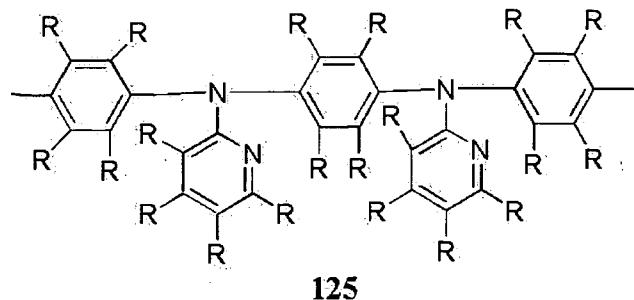


123

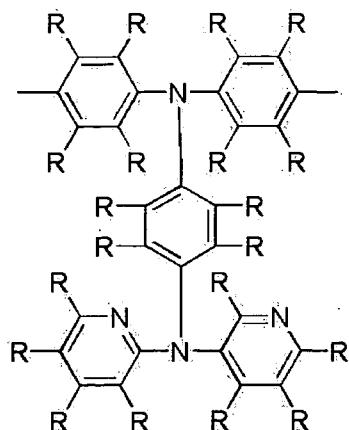


124

5



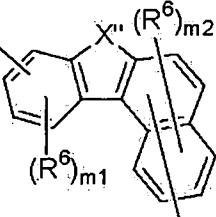
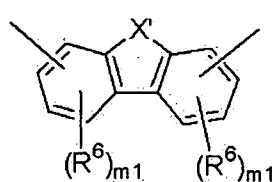
10



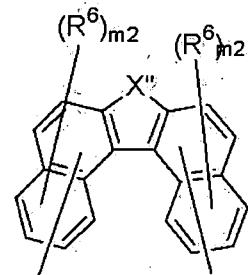
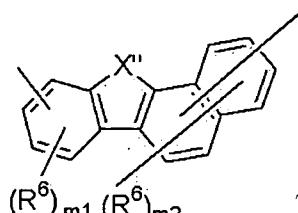
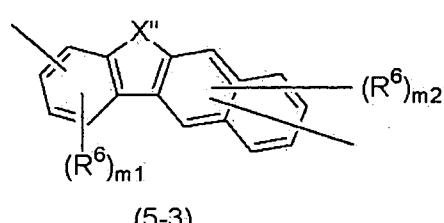
(式中、Rは、前記で定義したとおりである。複数個存在するRは、同一であっても異なっていててもよい。)

式(5)で示される繰り返し単位におけるA<sub>r4</sub>の中では、下記式(5-1)～(5-5)：

20



25



[式中、R<sup>6</sup>は置換基を表し、m1は0～3の整数を表し、m2は0～5

の整数を表す。

$R^6$ が複数個存在する場合には、それらは同一であっても異なっていてよい。式(5-1)において、 $X'$ は、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-S (=O)-$ 、 $-S (=O)_2-$ 、 $-Si(R^7)_2-$ 、 $-Si(R^7)_3-$ 、 $-Si(R^7)_4-$ 、 $-B(R^7)-$ 、 $-P(R^7)-$ 、 $-P (=O)(R^7)-$ 、 $-O-C(R^7)_2-$ または $N=C(R^7)-$ を表し、式(5-2)、(5-3)、(5-4)及び(5-5)において、 $X''$ は、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-S (=O)-$ 、 $-S (=O)_2-$ 、 $-C(R^7)_2-$ 、 $-Si(R^7)_2-Si(R^7)_3-$ 、 $-Si(R^7)_4-$ 、 $-B(R^7)-$ 、 $-P(R^7)-$ 、 $-P (=O)(R^7)-$ 、 $-O-C(R^7)_2-$ 、 $-C(R^7)_2-O-$ 、 $-C(R^7)=N-$ または $N=C(R^7)-$ を表し、 $R^7$ は水素原子または置換基を表す。 $R^7$ が複数個存在する場合には、それらは同一であっても異なっていてよい。]

で表される繰り返し単位、及び前記式102、103、119、120、123、124で表される基（該基を繰り返し単位とするもの）が、最大発光効率等の素子特性の観点から好ましい。

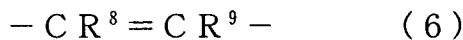
$R^6$ で表される置換基としては、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アリールアルキル基、アリールアルコキシ基、アリールアルキルチオ基、アリールアルケニル基、アリールアルキニル基、アミノ基、置換アミノ基、シリル基、置換シリル基、ハロゲン原子、アシル基、アシルオキシ基、イミン残基、アミド基、酸イミド基、1価の複素環基、カルボキシル基、置換カルボキシル基、ニトロ基、シアノ基等が挙げられる。これらの基、残基に含まれる水素原子は、フッ素原子に置換されていてよい。これらの基は、フルオレンジイル基の置換基として説明し例示したものと同じである。

$R^7$ は置換基であることが好ましく、 $R^7$ で表される置換基としては、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アリールアルキル基、アリールアルコキシ基、アリ

ールアルキルチオ基、アリールアルケニル基、アリールアルキニル基、アミノ基、置換アミノ基、シリル基、置換シリル基、ハロゲン原子、アシル基、アシルオキシ基、イミン残基、アミド基、酸イミド基、1価の複素環基、カルボキシル基、置換カルボキシル基、ニトロ基、シアノ基等が挙げられる。これらの基、残基に含まれる水素原子は、フッ素原子に置換されていてもよい。前記R<sup>7</sup>の中では、輝度半減寿命等の素子特性の観点からは、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アリールアルキル基、アリールアルコキシ基、1価の複素環基が好ましく、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、1価の複素環基がより好ましく、アルキル基、アリール基が特に好ましい。これらの基は、フルオレンジイル基の置換基として説明し例示したものと同じである。

本発明の高分子化合物は、置換基を有していてもよいフルオレンジイル基を2種類以上含んでいてもよく、また置換基を1個以上有するフェニレン基を2種類以上含んでいてもよく、前記式(1)で表される繰り返し単位を2種類以上含んでいてもよい。また、前記式(2)で表される基を2種類以上含んでいてもよい。

本発明の高分子化合物は、さらに下記式(6)：



(式中、R<sup>8</sup>及びR<sup>9</sup>は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アリール基、1価の複素環基、カルボキシル基、置換カルボキシル基またはシアノ基を表す。)

で表される繰り返し単位、および／または下記式(7)：



で表される繰り返し単位を含んでいてもよい。

前記式(6)中、R<sup>8</sup>及びR<sup>9</sup>で表されるアルキル基、アリール基、1価の複素環基、置換カルボキシル基は、フルオレンジイル基の置換基の項で説明し例示したとおりである。

本発明の高分子化合物は、末端基の少なくとも1つとして三重項励起状態からの発光を示す化合物の1価の残基を含んでいてもよい。

—三重項励起状態からの発光を示す化合物（三重項化合物）—

ここで、三重項化合物は、通常、室温（即ち、25°C）で三重項励起状態からの発光を示す化合物であり、例えば、燐光発光や、この燐光発光に加えて蛍光発光が観測される錯体も含まれる。

前記三重項化合物としては、中心金属が遷移金属またはランタノイドである金属錯体が挙げられ、その例として、イリジウムを中心金属とするIr(ppy)<sub>3</sub>、Btp<sub>2</sub>Ir(acac)、白金を中心金属とするPtOEP、ユーロピウムを中心金属とするEu(TTA)<sub>3</sub>phen等が挙げられる。

三重項化合物のなかで、錯体化合物としては（以下、「三重項発光錯体化合物」と略す場合がある。）、例えば、従来から低分子系のEL発光性材料として利用されてきた金属錯体化合物があげられる。これらは、例えばNature, (1998), 395, 151、Appl. Phys. Lett. (1999), 75(1), 4、Proc. SPIE-Int. Soc. Opt. Eng. (2001), 4105(Organic Light-Emitting Materials and Devices I V), 119、J. Am. Chem. Soc., (2001), 123, 4304、Appl. Phys. Lett., (1997), 71(18), 2596、Syn. Met., (1998), 94(1), 103、Syn. Met., (1999), 99(2), 1361、Adv. Mater., (1999), 11(10), 852等に開示されている。

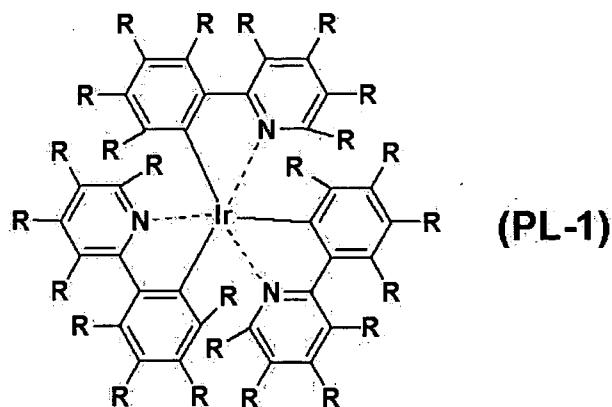
三重項発光錯体化合物の中心金属としては、通常、原子番号50以上の原子で、該錯体にスピン-軌道相互作用があり、一重項状態と三重項状態間の項間交差を起こしうる金属であり、その例としては、レニウム、イリジウム、オスミウム、スカンジウム、イットリウム、白金、金、およびランタノイド類のユーロピウム、テルビウム、ツリウム、ディスプロシウム、サマリウム、プラセオジウム、ガドリニウムなどが挙げられ、レニウム、イリジウム、白金、金、ユーロピウム、テルビウムが好ましい。

三重項発光錯体化合物の配位子としては、例えば、8-キノリノールおよびその誘導体、ベンゾキノリノールおよびその誘導体、2-フェニル-

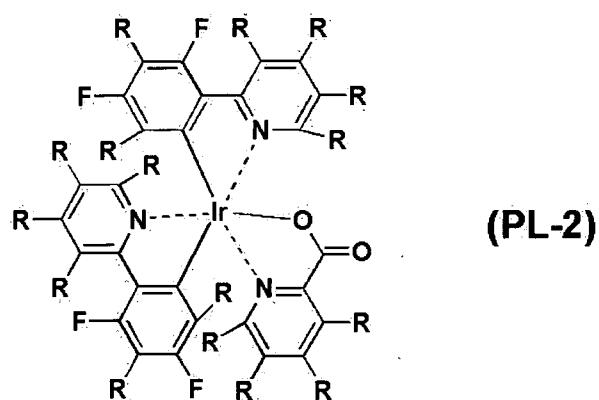
ピリジンおよびその誘導体、2-フェニルベンゾチアゾールおよびその誘導体、2-フェニルベンゾオキサゾールおよびその誘導体、ポルフィリンおよびその誘導体などが挙げられる。

三重項発光錯体化合物としては、例えば、以下のものがあげられる。

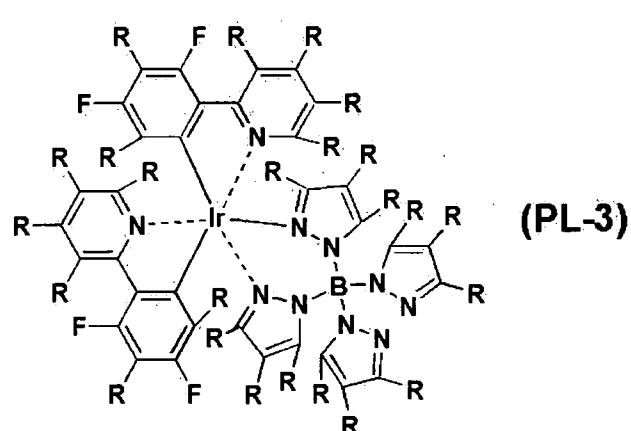
5



10

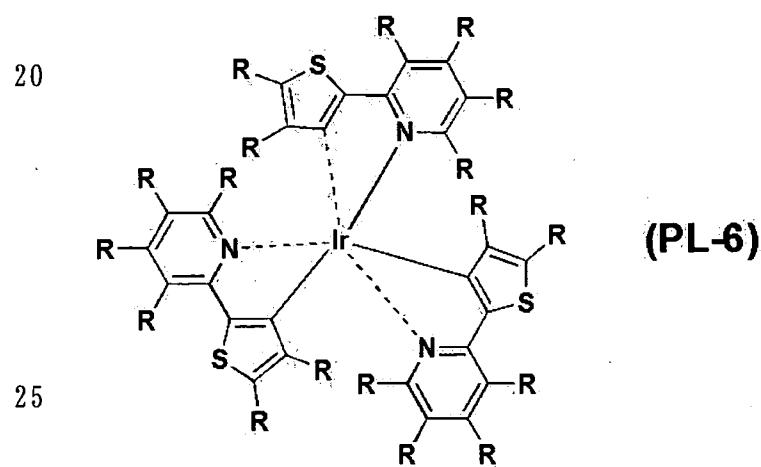
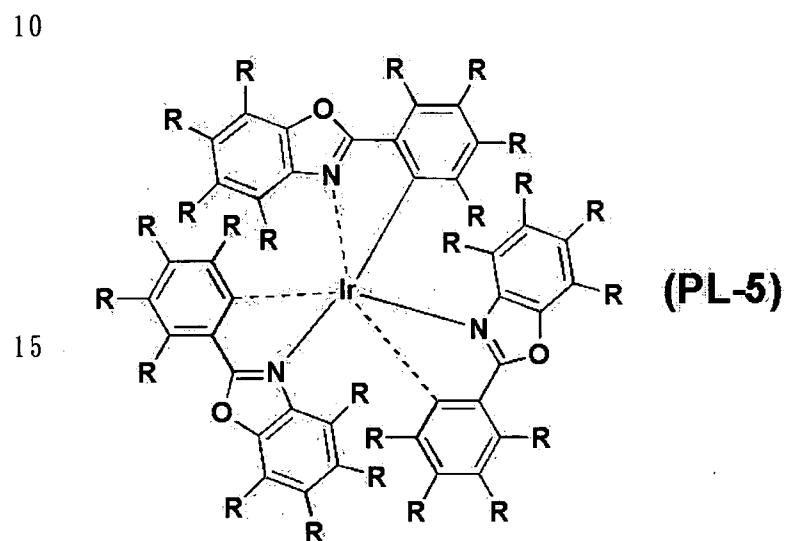
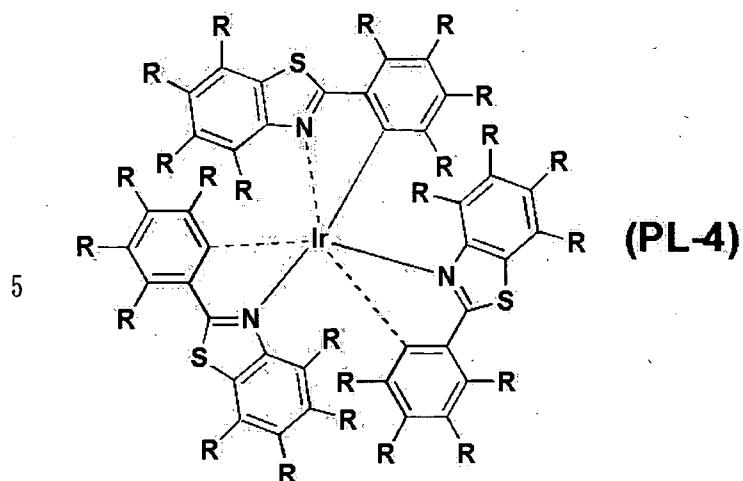


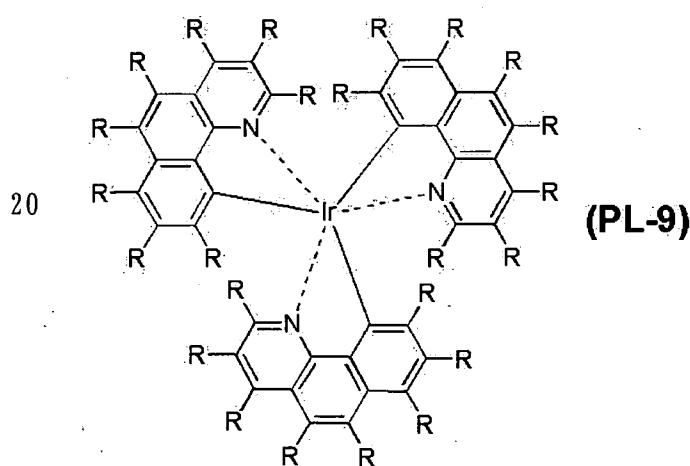
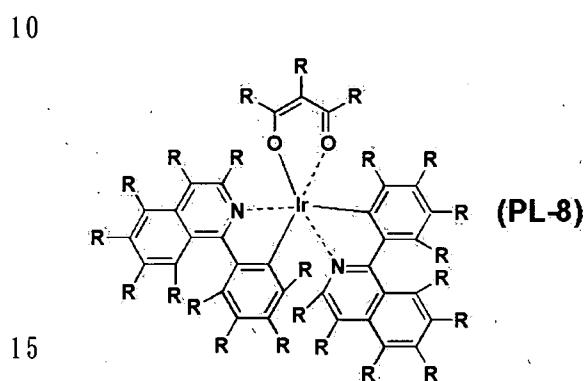
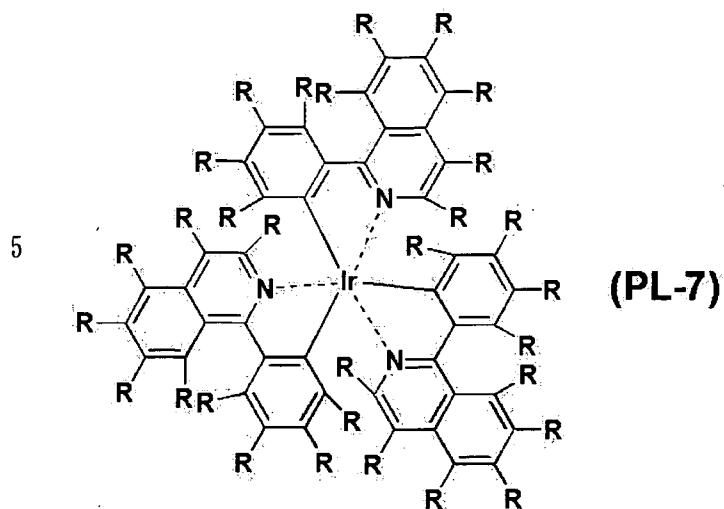
15

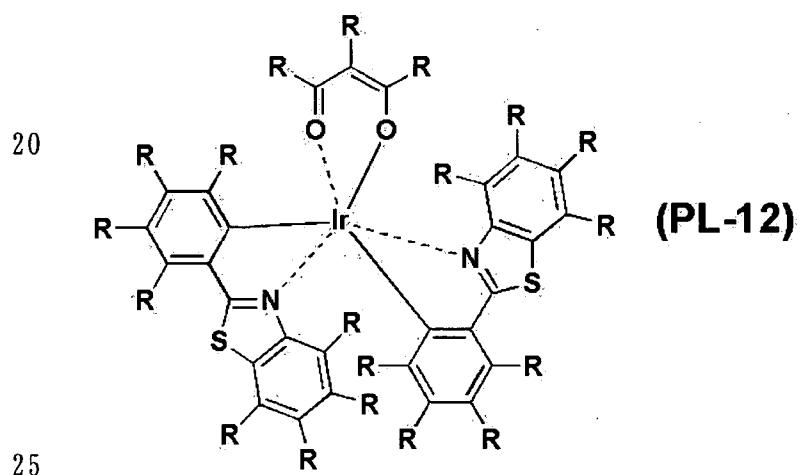
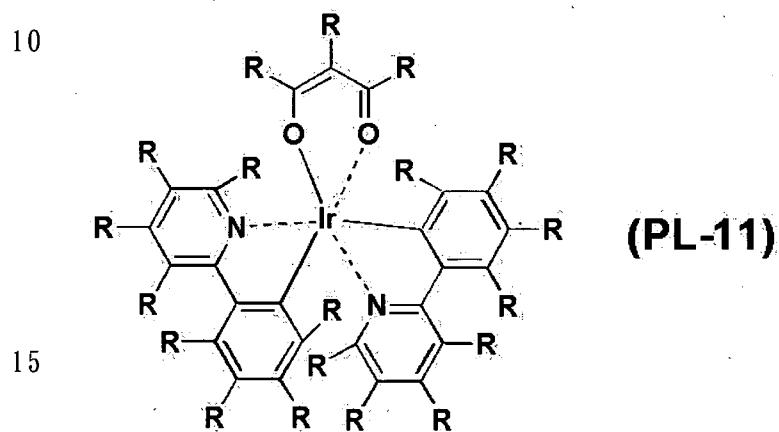
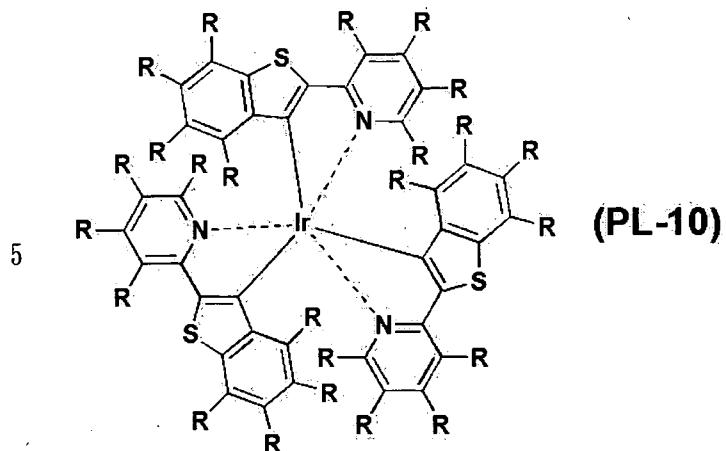


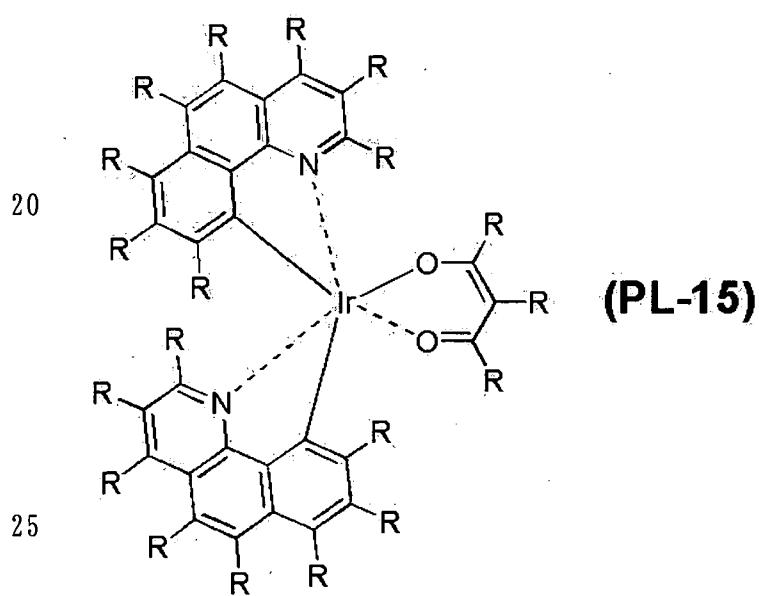
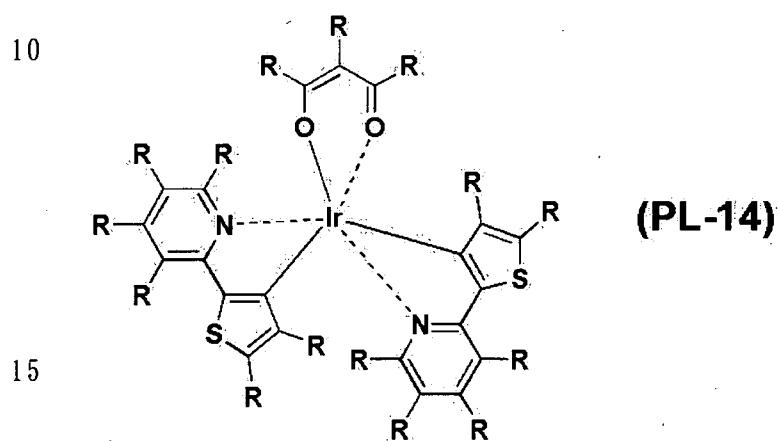
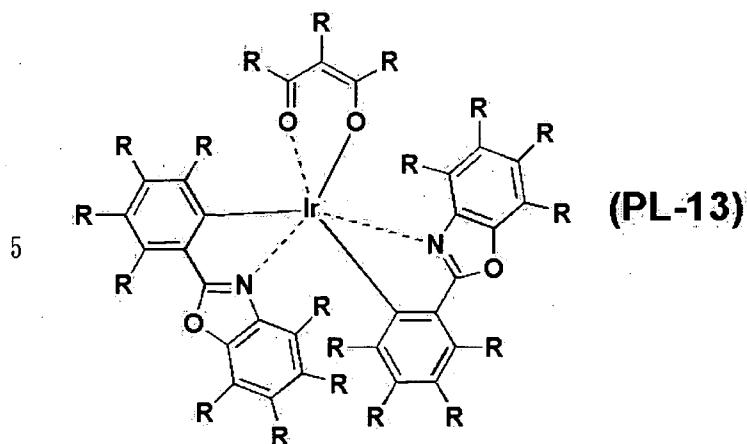
20

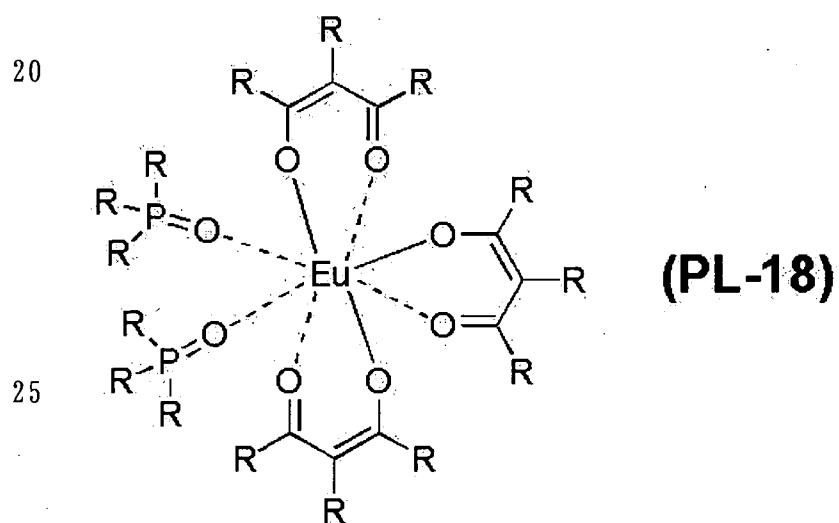
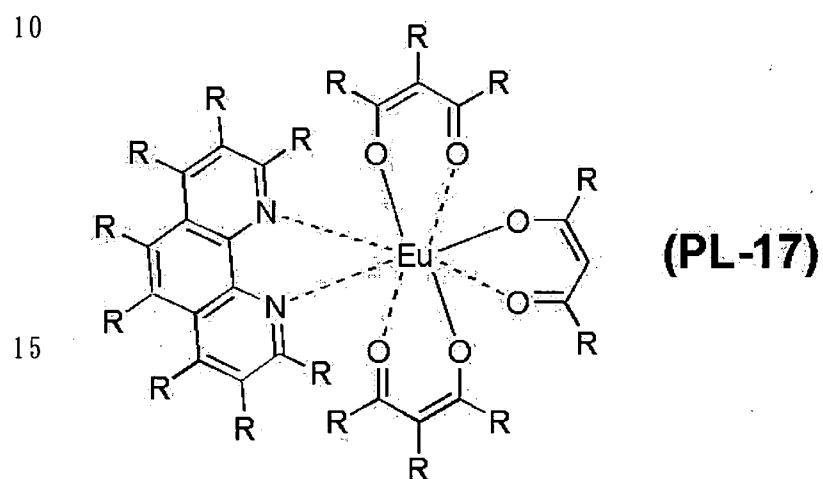
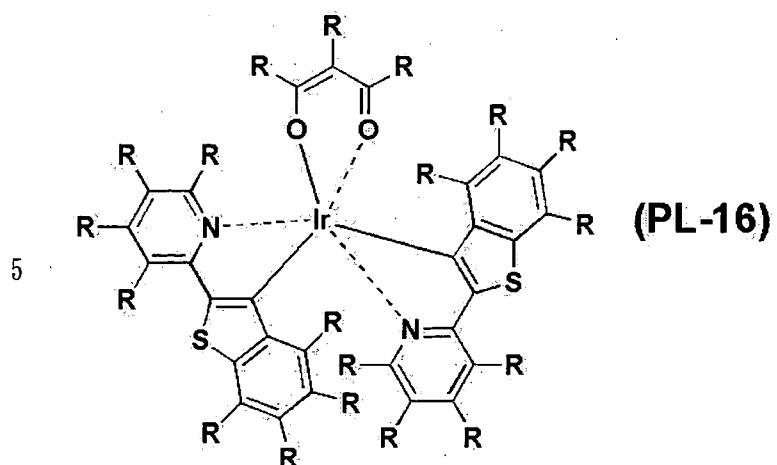
25

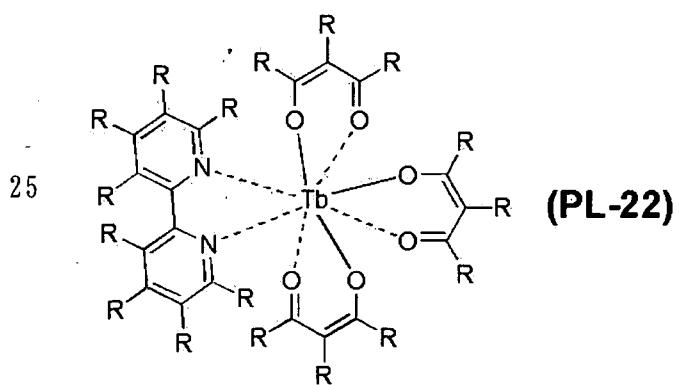
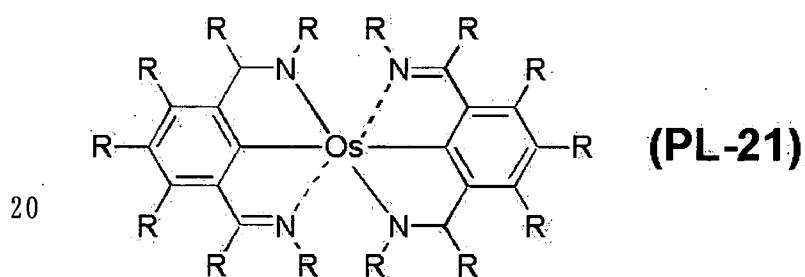
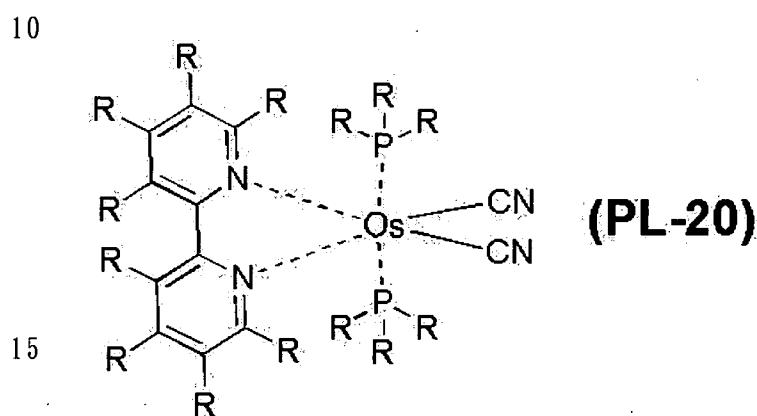
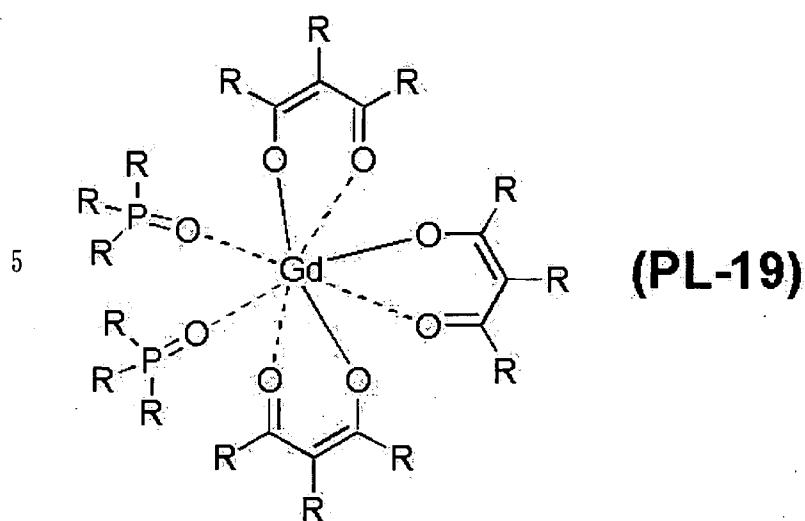


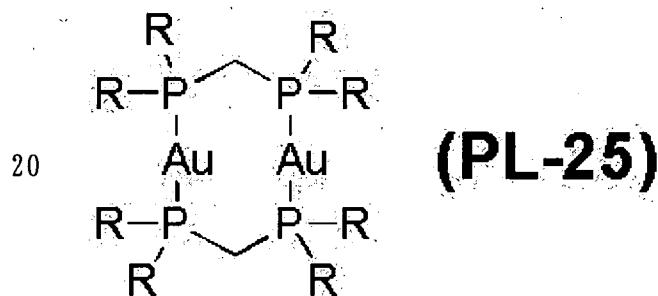
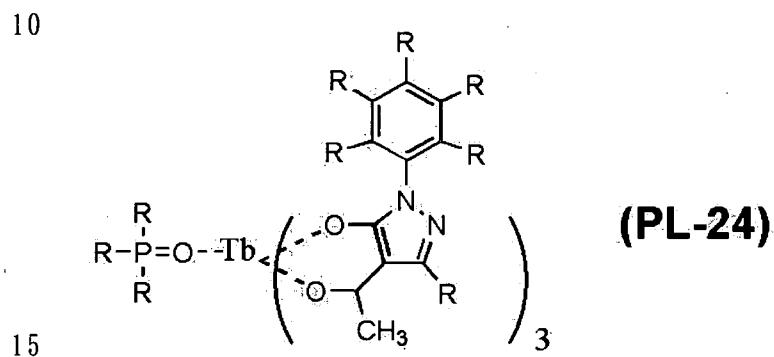
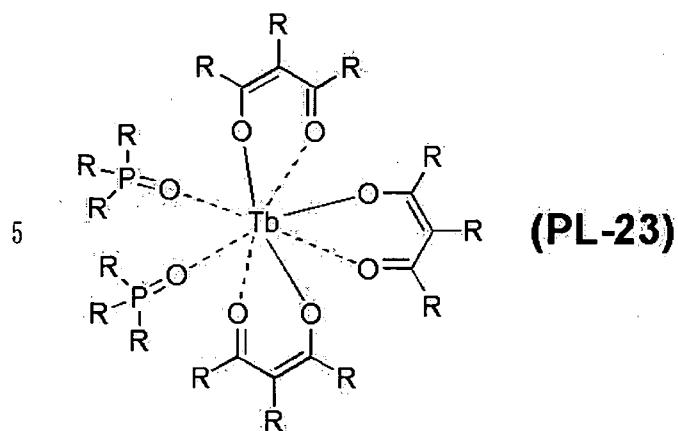


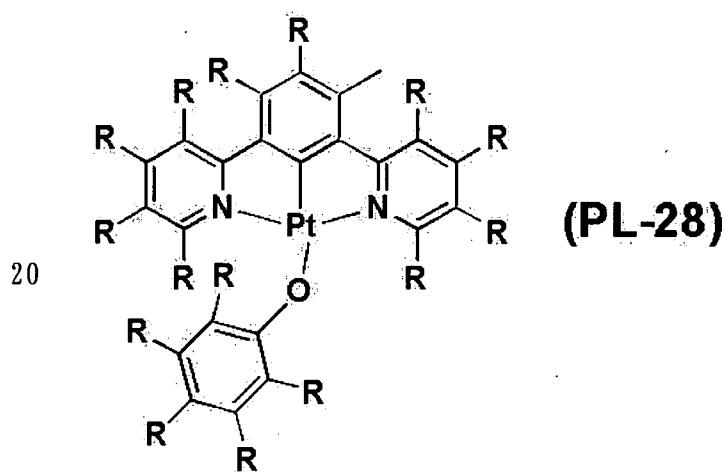
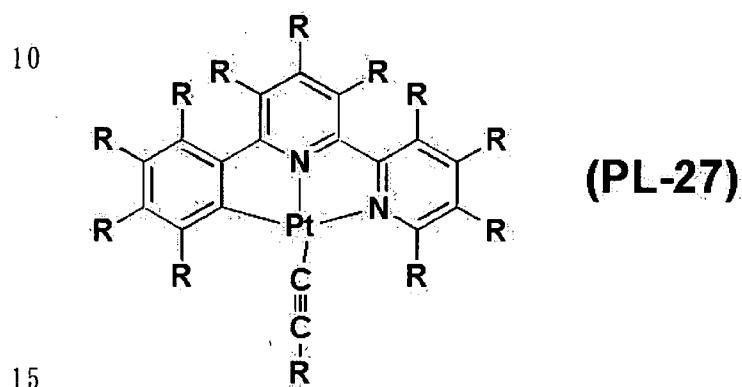
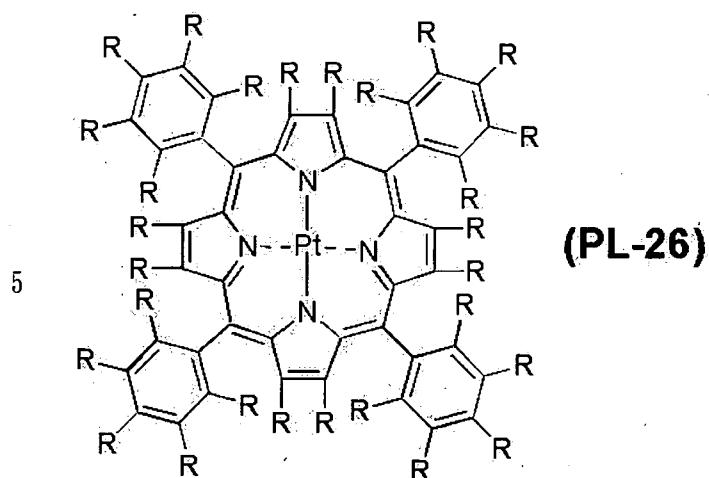


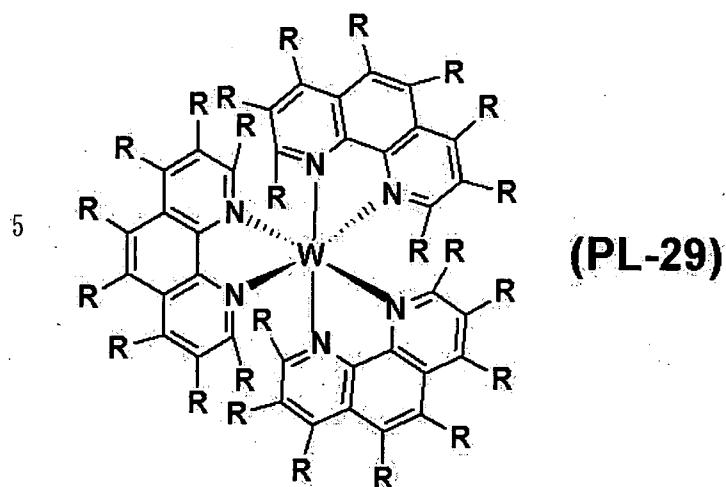




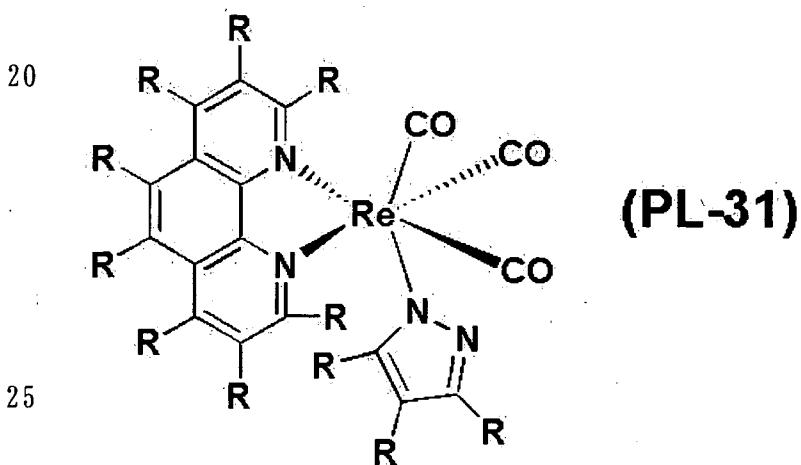
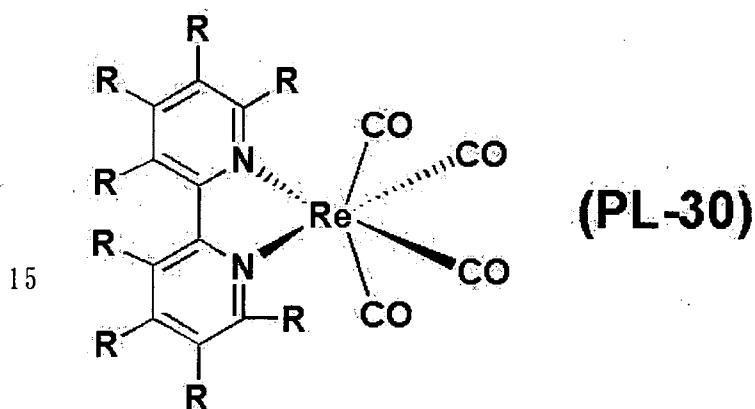


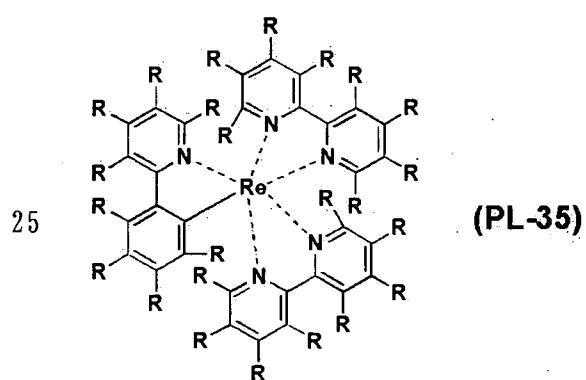
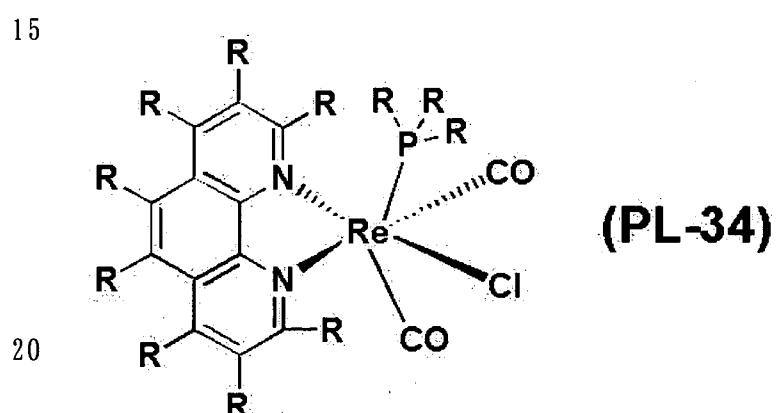
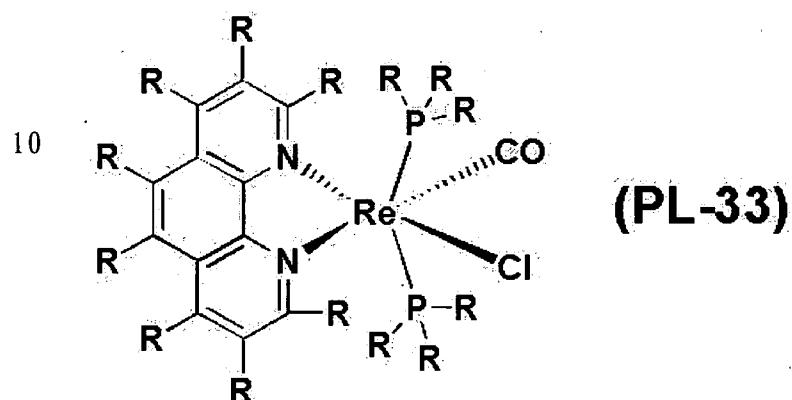
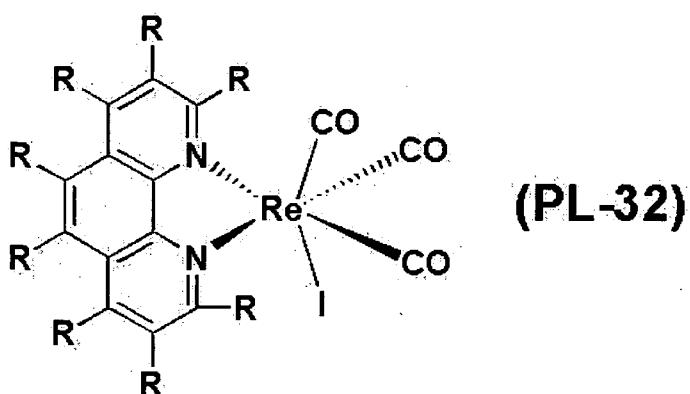


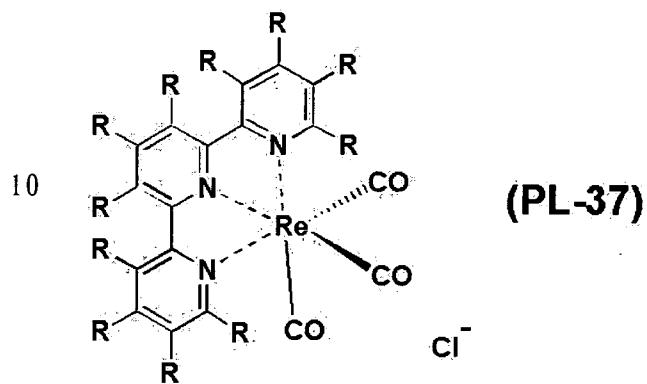
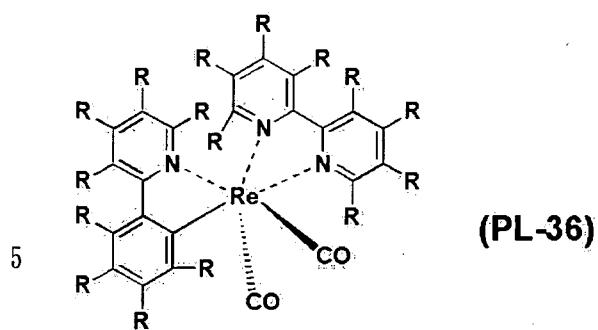




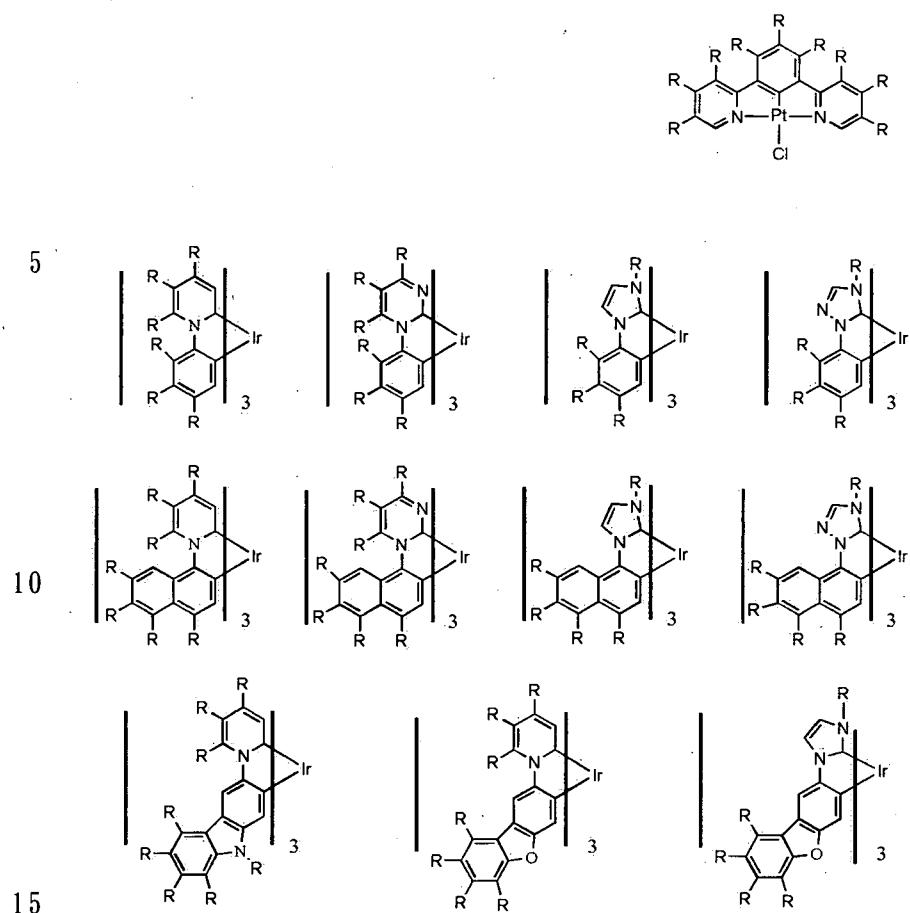
10







15 その他にも、Jpn. J. Appl. Phys., 34, 1883 (1995)、W001/41512、W003/3  
3617、04-2有機EL研究会予稿集 (2004)、W02005113704、W02006014599等  
に記載されている公知のもの、下記の構造式で表されるもの等が例示され  
る。

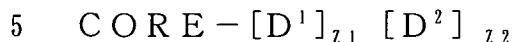


(式中、Rは前述と同じ意味を表す。複数個存在するRは、同一であっても異なっていてもよい。)

さらに、三重項化合物としては、三重項励起状態からの発光を示すデンドリマーがより好ましい。ここに三重項励起状態からの発光を示すデンドリマーとしては、例えば、燐光発光や、この燐光発光に加えて蛍光発光が観測される化合物も含まれる。デンドリマーの例としては、たとえばWO 02/066552に開示されている。また、デンドリマーの発光部としては、たとえば、上記に示した金属錯体構造が例としてあげられる。

ここでデンドリマーは、コア(core)と呼ばれる中心分子と、デンドロン(dendron)と呼ばれる側鎖部分から構成される。また、デンドロン部分の分岐回数を世代(generation)という。デンドリマーの例としては、たとえ

ば文献(高分子第47巻11月号812頁、1998年)やWO 02/066575に紹介されており、さまざまな機能を目的として設計、合成されている。デンドリマーの例として、下式のものがあげられる。



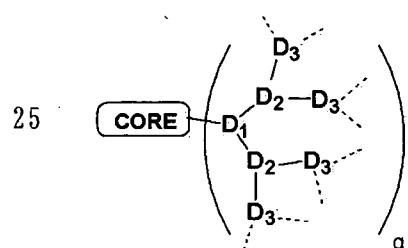
〔式中、COREは(Z<sub>1</sub>+Z<sub>2</sub>)価の原子または原子団を表し、Z<sub>1</sub>およびZ<sub>2</sub>は1以上の整数を表す。D<sup>1</sup>およびD<sup>2</sup>は、それぞれ独立に樹枝構造を有するデンドロンを表し、D<sup>1</sup>およびD<sup>2</sup>が複数個存在する場合、それらは同一でも異なっていてもよく、D<sup>1</sup>およびD<sup>2</sup>の少なくとも1つはヘテロ原子を含んでいてもよい芳香環を含む共役系である。〕

COREは(Z<sub>1</sub>+Z<sub>2</sub>)価の原子または原子団を表し、たとえばIEE 2002, p195 (Conference Proceedings)、W002/066575、W002/066552に記載されているものが例として挙げられる。

15 また、上記樹枝構造とは、たとえば高分子52巻、8月号、p578 (2003年)、M&BE、vol. 14、No 3、p169 (2003)に示されており、分岐構造とも表現されることがある。

20 ヘテロ原子を含んでいてもよい芳香環としては、ベンゼン環、ピリジン環、ピリミジン環、ナフタレン環、キノリン環、イソキノリン環、カルバゾール、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン等であらわされるような環が例としてあげられる。

デンドリマーをさらに、模式的に表すと下記のように表される。



上図中、COREは発光性の構造単位をあらわし、たとえば金属錯体構造

を有する。D<sub>1</sub>、D<sub>2</sub>、D<sub>3</sub>はデンドロンを表し、分岐単位である。上図ではD<sub>3</sub>までを記載しているが、D<sub>3</sub>以降も分岐単位が繰り返されていてよい。また分岐単位は同じでもよいし、異なる構造でもよい。gは1以上の整数で、gが2以上の場合に、各々のグループに属する分岐単位は同じでも異なっていてよい。分岐単位は、たとえば3価の芳香環、縮合環、複素環などの構造を有する。また、分岐が終了する末端に、表面基を有していてよい。表面基は水素以外の原子、アルキル基、アルコキシ基などである。

溶解性向上の点でデンドリマーの表面基の少なくとも1つが、水素原子以外であることが好ましい。

デンドリマーのなかで発光性デンドリマーとしては、発光性の構造単位を中心(上図のCORE)に有する樹枝状多分岐構造からなるものである。

本発明の高分子化合物の末端基として含まれる三重項化合物の1価の残基とは、前記三重項化合物の水素原子を1個除いた残りの基を意味する。

本発明の高分子化合物は、さらに三重項励起状態からの発光を示す化合物の2価または3価の残基を主鎖に含んでいてよい。ここで、三重項化合物の2価または3価の残基とは、前記三重項化合物の水素原子を2個または3個除いた残りの基を意味する。

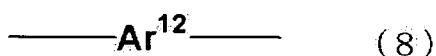
本発明の高分子化合物が、前記三重項化合物の3価の残基を主鎖に含む場合、該三重項化合物の3価の残基の部位で、本発明の高分子化合物は分岐している。

本発明の高分子化合物が、前記三重項化合物の2価または3価の残基を主鎖に含む場合主鎖に含まれる三重項化合物の2価または3価の残基の数は、1個でもよく、繰り返し単位として2個以上含んでいてよい。

本発明の高分子化合物が三重項化合物の2価または3価の残基を繰り返し単位として有する場合、置換基を有していてよいフルオレンジイル基からなる繰り返し単位と置換基を1個以上有するフェニレン基からなる繰り返し単位との合計を100モルとすると、三重項化合物2価または3価

の残基を0.01～60モル含むことが好ましく、0.1～25モル含むことがより好ましい。

本発明の高分子化合物は、さらにアリーレン基または2価の複素環基であって、三重項励起状態からの発光を示す化合物の1価の残基を有する基を含んでいてもよい。ここで、アリーレン基または2価の複素環基であつて、三重項励起状態からの発光を示す化合物の1価の残基を有する基としては、例えば、下記式(8)で示される基があげられる。



10

[式中、 $\text{Ar}^{12}$ は、アリーレン基、または酸素原子、ケイ素原子、ゲルマニウム原子、スズ原子、リン原子、ホウ素原子、硫黄原子、セレン原子及びテルル原子からなる群から選ばれる原子を一個以上有する2価の複素環基を表す。但し、 $\text{Ar}^{12}$ は、 $-\text{L}-\text{X}$ で表される基を1～4個有する。こ

15 こで、Xは独立に、三重項化合物の1価の残基を表し、Lは、複数個存在する場合には同一であっても異なっていてもよく、単結合、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、

$-\text{CO}-$ 、 $-\text{CO}_2-$ 、 $-\text{SO}-$ 、 $-\text{SO}_2-$ 、 $-\text{SiR}^{10}\text{R}^{10}-$ 、 $\text{NR}^{10}-$ 、 $-\text{BR}^{10}-$ 、 $-\text{PR}^{10}-$ 、 $-\text{P}(=\text{O})(\text{R}^{10})-$ 、置換されていてもよいアルキレン基、置換されていてもよいアルケニレン基、置換さ

20 れていてもよいアルキニレン基、置換されていてもよいアリーレン基、または置換されていてもよい2価の複素環基を表す。但し、該アルキレン基、

該アルケニレン基、該アルキニレン基が $-\text{CH}_2-$ 基を含む場合、該アルキレン基に含まれる $-\text{CH}_2-$ 基の一箇以上、該アルケニレン基に含まれる $-\text{CH}_2-$ 基の一箇以上、該アルキニレン基に含まれる $-\text{CH}_2-$ 基の一箇以上が、各々、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{CO}-$ 、 $-\text{CO}_2-$ 、 $-\text{SO}-$ 、

$-\text{SO}_2-$ 、 $-\text{SiR}^{11}\text{R}^{11}-$ 、 $\text{NR}^{11}-$ 、 $-\text{BR}^{11}-$ 、 $-\text{PR}^{11}-$ 及び $-\text{P}(=\text{O})(\text{R}^{11})-$ からなる群から選ばれる基で置換されていてもよい。ここで、 $\text{R}^{10}$ および $\text{R}^{11}$ は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、

アリール基、1価の複素環基及びシアノ基からなる群より選ばれる基を表し、前述でフルオレンジイル基の置換基として説明し例示したものと同じである。Ar<sup>12</sup>は、-L-Xで表される基以外に、さらに、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アリールアルキル基、アリールアルコキシ基、アリールアルキルチオ基、アリールアルケニル基、アリールアルキニル基、アミノ基、置換アミノ基、シリル基、置換シリル基、ハロゲン原子、アシル基、アシルオキシ基、イミン残基、アミド基、酸イミド基、1価の複素環基、カルボキシル基、置換カルボキシル基及びシアノ基からなる群から選ばれる置換基を有していてもよい。これらの置換基の例は、前述でフルオレンジイル基の置換基として説明し例示したものと同じである。Ar<sup>12</sup>が複数の置換基を有する場合には、それらは、同一であってもよいし、それぞれ異なっていてもよい。】

Ar<sup>12</sup>で表される2価の基におけるアリーレン基としては、例えば、フェニレン基、フルオレンジイル基、ベンゾフルオレンジイル基、ナフチレン基等が、2価の複素環基としては、ピリジニレン基、ピリミジレン基等が挙げられる。

本発明の高分子化合物が、前記式(8)で示される基を含む場合、前記式(8)を高分子化合物中に1個含んでいてもよく、繰り返し単位として2個以上含んでいてもよい。

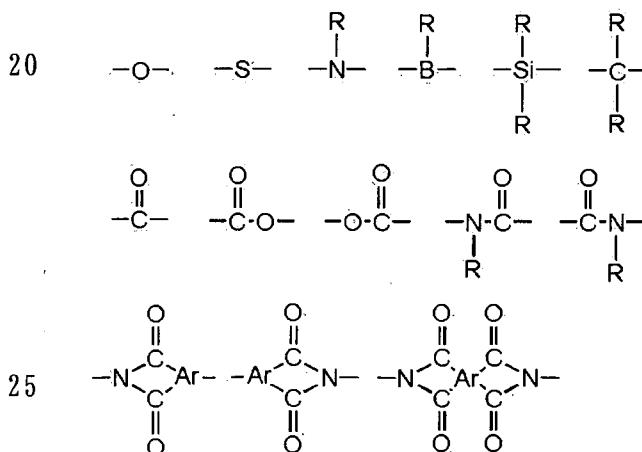
本発明の高分子化合物が前記式(8)を表される基を繰り返し単位として有する場合、置換基を有していてもよいフルオレンジイル基からなる繰り返し単位と置換基を1個以上有するフェニレン基からなる繰り返し単位との合計を100モルとすると、前記式(8)で表される繰り返し単位を0.01~60モル含むことが好ましく、0.1~25モル含むことがより好ましい。

本発明の高分子化合物は、三重項化合物の1価の残基を高分子化合物の末端基の少なくとも1つとして有し、かつ、三重項化合物の2価または3

価の残基を主鎖に含んでいてもよく、さらにアリーレン基または2価の複素環基であって、三重項化合物の1価の残基を置換基として有する基を含んでいてもよい。また、三重項化合物の2価または3価の残基を主鎖に含んでおり、かつ、アリーレン基または2価の複素環基であって、三重項励起状態からの発光を示す化合物の1価の残基を置換基として有する基を含んでいてもよく、三重項化合物の1価の残基を高分子化合物の末端基の少なくとも1つとして有し、かつ、アリーレン基または2価の複素環基であって、三重項励起状態からの発光を示す化合物の1価の残基を置換基として有する基を含んでいてもよい。

10 本発明の高分子化合物は、発光特性や電荷輸送特性を損なわない範囲で、さらに、置換基を有していてもよいフルオレンジイル基、置換基を1個以上有するフェニレン基、前記式(1)、(5)～(8)で表される繰り返し単位以外の繰り返し単位を含んでいてもよく、前記式(2)で表される基以外の基を含んでいてもよい。

15 本発明の高分子化合物中の繰り返し単位は、非共役構造で連結されてもよいし、該繰り返し単位の中に該非共役構造が含まれていてもよい。この非共役構造としては、以下に示すもの、及びそれらを2個以上組み合わせたもの等が例示される。



(式中、Rは独立に、前記で定義したとおりであり、Arはヘテロ原子を

含んでいてもよい炭素数 6 ~ 60 の炭化水素基を表す。R が複数個存在する場合には、それらは同一であっても異なっていてもよい。)

前記式中、前記ヘテロ原子としては、酸素、硫黄、窒素、珪素、硼素、燐、セレン等が挙げられる。

5 本発明の高分子化合物は、ランダム共重合高分子化合物、グラフト共重合高分子化合物、交互共重合高分子化合物のいずれであってもよい。また、主鎖に枝分かれがあり、末端基が 3 個以上ある場合やデンドリマーも含まれる。

本発明の高分子化合物が、置換基を有していてもよいフルオレンジイル  
10 基、置換基を 1 個以上有するフェニレン基および前記式（1）で表される  
繰り返し単位を含む場合、高分子化合物が有する全繰り返し単位の合計を  
100 モルとすると、置換基を有していてもよいフルオレンジイル基は 1  
15 0 ~ 48 モルであることが好ましく、20 ~ 45 モルであることがより好  
ましい。置換基を 1 個以上有するフェニレン基は 50 ~ 80 モルであるこ  
とが好ましく、50 ~ 70 モルであることがより好ましい。前記式（1）  
で表される繰り返し単位は 2 ~ 30 モルであることが好ましい。

本発明の高分子化合物が、置換基を有していてもよいフルオレンジイル  
基、置換基を 1 個以上有するフェニレン基および前記式（2）で表される  
基を含む場合、高分子化合物が有する全繰り返し単位の合計を 100 モル  
20 とすると置換基を有していてもよいフルオレンジイル基は 20 ~ 50 モル  
であることが好ましく、置換基を 1 個以上有するフェニレン基は 50 ~ 8  
0 モルであることが好ましい。また、高分子化合物が含む前記式（2）で  
表される基の数は全繰り返し単位の合計数を 100 とすると 0.1 ~ 4 で  
あることが好ましい。

25 最大発光効率の高さの観点からは、本発明の高分子化合物の好ましい 1  
つの態様として、前記式（1 - 2）で表される繰り返し単位、前記式（3  
- 2）で表される繰り返し単位および前記式（4 - 1）で表される繰り返  
し単位を含む高分子化合物があげられる。

最大発光効率の高さの観点からは、本発明の高分子化合物の好ましい他の態様として、前記式（3-2）で表される繰り返し単位および前記式（4-1）で表される繰り返し単位を含み、かつ、前記式（2-2）で表される基を高分子化合物の末端基の少なくとも1つとして有する高分子化合物があげられる。

本発明の高分子化合物のポリスチレン換算の数平均分子量は、通常、 $1 \times 10^3 \sim 1 \times 10^8$ 程度であり、好ましくは $1 \times 10^4 \sim 1 \times 10^6$ である。また、ポリスチレン換算の重量平均分子量は、通常、 $3 \times 10^3 \sim 1 \times 10^8$ 程度であり、成膜性の観点及び素子にした場合の発光効率の観点から、好ましくは $5 \times 10^4$ 以上であり、 $1 \times 10^5$ 以上がさらに好ましいが、高分子化合物の有機溶媒への溶解性の観点からは、 $1 \times 10^5 \sim 5 \times 10^6$ であることが好ましい。数平均分子量及び重量平均分子量がかかる範囲の高分子化合物を1種単独で素子に用いた場合でも該高分子化合物の2種類以上を併用して素子に用いた場合でも、得られる素子は高発光効率である。また、本発明の組成物の成膜性を向上させる観点から、重量平均分子量／数平均分子量で規定される分散度が3以下であることが好ましい。

本発明の高分子化合物の分子鎖末端に位置する基（即ち、末端基）に重合に関与する基（通常、重合活性基と呼ばれる。）が残っていると、該組成物を発光素子に用いたときの発光特性、寿命が低下する可能性があるので、前記式（2）で表される基または三重項化合物の1価の残基で保護されていることが好ましい。これらの基以外であっても、重合に関与しない安定な基であればよく、分子鎖主鎖の共役構造と連続した共役結合を有しているものが好ましい。例えば、炭素-炭素結合を介してアリール基または複素環基と結合している構造が例示される。具体的には、特開平9-45478号公報の化10に記載の置換基等が例示される。

本発明の高分子化合物の分子鎖末端を、前記式（2）で表される基または三重項化合物の1価の残基、1価の複素環基、1価の芳香族アミン基およびアリール基から選ばれる芳香族末端基で封止することにより、高分子

化合物に様々な特性を付加することが期待される。このような特性としては、素子の輝度低下に要する時間を長くする効果、電荷注入性、電荷輸送性、発光特性等を高める効果、高分子化合物間の相溶性や相互作用を高める効果、アンカー的な効果等が挙げられる。

5 本発明の高分子化合物の製造方法は、モノマーとなる、反応性置換基を複数有する化合物を、必要に応じ、有機溶媒に溶解し、例えばアルカリや適当な触媒を用い、有機溶媒の融点以上沸点以下で行うことができる。例えば、“オルガニック リアクションズ (Organic Reactions)”, 第14巻, 270-490頁, ジョンワイリー アンド サンズ (John Wiley & Sons, Inc.), 1965年, “オルガニック シンセシス (Organic Syntheses)”, コレクティブ第6巻 (Collective Volume VI), 407-411頁, ジョンワイリー アンド サンズ (John Wiley & Sons, Inc.), 1988年、ケミカル レビュー (Chemical Review.), 第95巻, 2457頁 (1995年)、ジャーナル オブ 10 オルガノメタリック ケミストリー (J. Organometal. Chem.), 第576巻, 147頁 (1999年)、マクロモレキュラー ケミストリー マクロモレキュラー シンポジウム (Macromol. Chem., Macromol. Symp.), 第12巻, 229頁 (1987年) などに記載の公知の方法を用いることができる。

15

20

本発明の高分子化合物の製造方法において、縮合重合させる方法としては、既知の縮合反応を用いることにより製造できる。縮合重合において、二重結合を生成する場合は、例えば特開平5-202355号公報に記載の方法が挙げられる。すなわち、ホルミル基を有する化合物とホスホニウムメチル基を有する化合物との、もしくはホルミル基とホスホニウムメチル基とを有する化合物のWittig反応による重合、ビニル基を有する化合物とハロゲン原子を有する化合物とのHeck反応による重合、モノハロゲン化メチル基を2つあるいは2つ以上有する化合物の脱ハロゲン化

水素法による重縮合、スルホニウムメチル基を2つあるいは2つ以上有する化合物のスルホニウム塩分解法による重縮合、ホルミル基を有する化合物とシアノ基を有する化合物とのKnoevenagel反応による重合などの方法、ホルミル基を2つあるいは2つ以上有する化合物のMcMurry反応による重合などの方法が例示される。

本発明の高分子化合物が縮合重合によって主鎖に三重結合を生成する場合には、例えば、Heck反応が利用できる。

また、二重結合や三重結合を生成しない場合には、例えば該当するモノマーからSuzukiカップリング反応により重合する方法、Grignard反応により重合する方法（共立出版、高分子機能材料シリーズ第2巻、高分子の合成と反応（2）、432～433頁）、Ni（0）錯体により重合する方法（プログレッシブ ポリマー サイエンス（Prog. Polym. Sci.），第17巻，1153～1205頁，1992年）、FeCl<sub>3</sub>等の酸化剤により重合する方法、電気化学的に酸化重合する方法（丸善、実験化学講座第4版、28巻、339～340頁）、あるいは適当な脱離基を有する中間体高分子の分解による方法などが例示される。

これらのうち、Wittig反応による重合、Heck反応による重合、Knoevenagel反応による重合、およびSuzukiカップリング反応により重合する方法、Grignard反応により重合する方法、ニッケルゼロ価錯体により重合する方法が、構造制御がしやすいので好ましい。

本発明に用いる高分子化合物の原料モノマーが有する反応性置換基が、ハロゲン原子、アルキルスルホネート基、アリールスルホネート基またはアリールアルキルスルホネート基である場合は、ニッケルゼロ価錯体存在下で縮合重合する製造方法が好ましい。

原料化合物としては、ジハロゲン化化合物、ビス（アルキルスルホネート）化合物、ビス（アリールスルホネート）化合物、ビス（アリールアルキルスルホネート）化合物あるいはハロゲンーアルキルスルホネート化合

物、ハロゲンーアリールスルホネート化合物、ハロゲンーアリールアルキルスルホネート化合物、アルキルスルホネートーアリールスルホネート化合物、アルキルスルホネートーアリールアルキルスルホネート化合物、アリールスルホネートーアリールアルキルスルホネート化合物が挙げられる

5 。

また、本発明に用いる高分子化合物の原料モノマーが有する反応性置換基が、ハロゲン原子、アルキルスルホネート基、アリールスルホネート基、アリールアルキルスルホネート基、ホウ酸基、またはホウ酸エステル基である場合は、ハロゲン原子、アルキルスルホネート基、アリールスルホネート基およびアリールアルキルスルホネート基のモル数の合計と、ホウ酸基およびホウ酸エステル基のモル数の合計の比が実質的に 1（通常 0.7～1.2 の範囲）であり、ニッケル触媒またはパラジウム触媒を用いて縮合重合する製造方法が好ましい。

原料化合物の組み合わせの例としては、ジハロゲン化合物、ビス（アルキルスルホネート）化合物、ビス（アリールスルホネート）化合物またはビス（アリールアルキルスルホネート）化合物とジホウ酸化合物またはジホウ酸エステル化合物との組み合わせが挙げられる。

また、ハロゲンーホウ酸化合物、ハロゲンーホウ酸エステル化合物、アルキルスルホネートーホウ酸化合物、アルキルスルホネートーホウ酸エステル化合物、アリールスルホネートーホウ酸化合物、アリールスルホネートーホウ酸エステル化合物、アリールアルキルスルホネートーホウ酸化合物、アリールアルキルスルホネートーホウ酸エステル化合物挙げられる。

有機溶媒としては、用いる化合物や反応によっても異なるが、一般に副反応を抑制するために、用いる溶媒は十分に脱酸素処理を施し、不活性雰囲気化で反応を進行させることが好ましい。また、同様に脱水処理を行うことが好ましい。但し、Suzuki カップリング反応のような水との2相系での反応の場合にはその限りではない。

反応させるために適宜アルカリや適当な触媒を添加する。これらは用いる反応に応じて選択すればよい。該アルカリまたは触媒は、反応に用いる溶媒に十分に溶解するものが好ましい。アルカリまたは触媒を混合する方法としては、反応液をアルゴンや窒素などの不活性雰囲気下で攪拌しながらゆっくりとアルカリまたは触媒の溶液を添加するか、逆にアルカリまたは触媒の溶液に反応液をゆっくりと添加する方法が例示される。

本発明の高分子化合物を高分子発光素子等に用いる場合、高分子化合物の純度が発光特性等の素子の性能に影響を与えるため、重合前のモノマーを蒸留、昇華精製、再結晶等の方法で精製した後に重合することが好ましい。また、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処理をすることが好ましい。

#### ＜組成物＞

本発明の組成物は、前記高分子化合物と前記三重項励起状態からの発光を示す化合物（三重項化合物）を含む。

本発明の組成物において、前記高分子化合物と前記三重項化合物との割合は、組み合わせる高分子化合物の種類や、最適化したい特性により異なるので、特に限定されないが、前記高分子化合物 100 重量部に対して、前記三重項化合物は、通常、0.01～50 重量部であり、好ましくは 0.1～40 重量部、より好ましくは 5～40 重量部である。

本発明の組成物において、前記高分子化合物及び前記三重項化合物は、各々、一種単独で用いても二種以上を併用してもよい。

本発明の組成物は、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 種類の材料をさらに含んでいてもよい。

本発明の組成物が含んでいてもよい発光材料としては、低分子蛍光材料または前記式（1）で表される繰り返し単位および前記式（2）で表される基を有しない高分子化合物が挙げられる。

本発明の組成物が含んでいてもよい低分子蛍光材料は、通常、400～700 nmの波長範囲に光ルミネッセンス発光ピークを有するものである。低分子蛍光材料の分子量は、通常、3000未満であり、好ましくは100～1000程度であり、より好ましくは100～500程度である。

5 前記低分子蛍光材料としては、例えば、ナフタレン誘導体、アントラセン、アントラセン誘導体、ペリレン、ペリレン誘導体、ポリメチル系色素、キサンテン系色素、クマリン系色素、シアニン系色素、8-ヒドロキシキノリンの金属錯体を配位子として有する金属錯体、8-ヒドロキシキノリン誘導体を配位子として有する金属錯体、その他の蛍光性金属錯体、芳香族アミン、テトラフェニルシクロペンタジエン、テトラフェニルシクロペンタジエン誘導体、テトラフェニルシクロブタジエン、テトラフェニルシクロブタジエン誘導体、スチルベン系、含ケイ素芳香族系、オキサゾール系、フロキサン系、チアゾール系、テトラアリールメタン系、チアジアゾール系、ピラゾール系、メタシクロファン系、アセチレン系等の低分子化合物の蛍光性材料が挙げられる。具体的には、例えば、特開昭57-51781号公報、特開昭59-194393号公報等に記載されているもの、公知のものが挙げられる。以下、該低分子蛍光材料の例示において、式中のRは前述と同じ意味を表し、中でも、水素原子、アルキル基、1価の複素環基、置換アミノ基、シアノ基またはハロゲン原子であることが好ましい。また、これらの基に含まれる水素原子は、フッ素原子に置換されていてもよい。

また、前記式(1)で表される繰り返し単位および前記式(2)で表される基を共に有しない高分子化合物としては、前記式(3)で表される繰り返し単位のみを有する高分子化合物、前記式(3)で表される繰り返し単位および前記式(4)で表される繰り返し単位のみを有する高分子化合物、前記式(3)で表される繰り返し単位および前記式(5)で表される繰り返し単位のみを有する高分子化合物、前記式(3)で表される繰り返し単位および前記式(5)で表される繰り返し単位のみを有する高分子化合物等があげられる。

本発明の組成物が含有してもよい正孔輸送材料としては、例えば、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、側鎖また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)及びその誘導体等が挙げられる。  
5

本発明の組成物が含有してもよい電子輸送材料としては、例えば、オキサジアゾール誘導体、アントラキノジメタン及びその誘導体、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る。  
10  
15

その他にも、本発明の組成物は、溶媒、安定剤、粘度及び／または表面張力を調節するための添加剤、酸化防止剤等を含んでいてもよい。これらの任意成分は、各々、一種単独で用いても二種以上を併用してもよい。

本発明の組成物が含有してもよい安定剤としては、例えば、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。  
20

本発明の組成物が含有してもよい粘度及び／または表面張力を調節するための添加剤としては、例えば、粘度を高めるための高分子量の化合物（増粘剤）や貧溶媒、粘度を下げるための低分子量の化合物、表面張力を下げるための界面活性剤等を適宜組み合わせて使用すればよい。

前記の高分子量の化合物としては、発光や電荷輸送を阻害しないものであればよく、組成物が溶媒を含む場合には、通常、該溶媒に可溶性のものである。高分子量の化合物としては、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。前記の高  
25

分子量の化合物のポリスチレン換算の重量平均分子量は50万以上が好ましく、100万以上がより好ましい。また、貧溶媒を増粘剤として用いることもできる。即ち、本発明の組成物が溶媒を含む場合（即ち、後述の液状組成物である場合）、該組成物中の固形分に対して少量の貧溶媒を添加することで、該組成物の粘度を高めることができる。この目的で貧溶媒を添加する場合、該組成物中の固形分が析出しない範囲で、貧溶媒の種類と添加量を選択すればよい。保存時の安定性も考慮すると、貧溶媒の量は、組成物全体に対して50重量%以下であることが好ましく、30重量%以下であることがより好ましい。

10 本発明の組成物が含有してもよい酸化防止剤としては、発光や電荷輸送を阻害しないものであればよく、組成物が溶媒を含む場合には、通常、該溶媒に可溶性のものである。酸化防止剤としては、フェノール系酸化防止剤、リン系酸化防止剤等が例示される。酸化防止剤を用いることにより、本発明の組成物、溶媒の保存安定性を改善し得る。

15 本発明の組成物が正孔輸送材料を含有する場合には、該組成物中の正孔輸送材料の割合は、通常、1重量%～80重量%であり、好ましくは5重量%～60重量%である。本発明の組成物が電子輸送材料を含有する場合には、該組成物中の電子輸送材料の割合は、通常、1重量%～80重量%であり、好ましくは5重量%～60重量%である。

#### 20 <液状組成物>

本発明の組成物は、特に液状組成物として高分子発光素子等の発光素子に有用である。

液状組成物は、本発明の組成物が必要に応じて溶媒を含んでなるものである。本明細書において、「液状組成物」とは、素子作製時において液状であるものを意味し、典型的には、常圧（即ち、1気圧）、25℃において液状のものを意味する。また、液状組成物は、一般的には、インク、インク組成物、溶液等と呼ばれることがある。

高分子発光素子の作製の際に、この液状組成物（例えば、溶液状態の組成物）を用いて成膜する場合、該液状組成物を塗布した後、乾燥により溶媒を除去するだけによく、また電荷輸送材料や発光材料を混合した場合においても同様な手法が適用できるので、製造上非常に有利である。なお、  
5 乾燥の際には、50～150°C程度に加温した状態で乾燥してもよく、また、1  
 $0^{-3}$  Pa程度に減圧して乾燥させてもよい。

液状組成物からの成膜方法としては、スピンドルコート法、キャスティング法、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、スリットコート法、キャピラリーコート法、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、ノズルコート法、ディスペンサー法、マイクロディスペンサー法、等の塗布法を用いることができる。

パターン形成や多色の塗分けが容易であるという点で、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印刷法が好ましい。

また、溶液の使用効率の点で、インクジェットプリント法、ノズルコート法、ディスペンサー法が好ましい。

さらに、成膜速度の観点からは、マイクログラビアコート法、スピンドルコート法、フレキソ印刷法、オフセット印刷法が好ましい。

液状組成物中の溶媒の割合は、該液状組成物の全重量に対して、通常、1重量%～99.9重量%であり、好ましくは60重量%～99.9重量%であり、さらに好ましく90重量%～99.8重量%である。液状組成物の粘度は印刷法によって異なるが、25°Cにおいて0.5～500mPa・sの範囲が好ましく、インクジェットプリント法等液状組成物が吐出装置を経由するものの場合は、吐出時の目づまりや飛行曲がりを防止するために粘度が25°Cにおいて0.5～20mPa・sの範囲であることが好ましい。また、前記式(1)で表される繰り返し単位を含む高分子化合物及び低分子蛍光材料の重量の和が液

状組成物から溶媒を除いた全成分の合計重量に対して、通常は20重量%～100重量%であり、好ましくは40重量%～100重量%である。

液状組成物に含まれる溶媒としては、該組成物中の該溶媒以外の成分を

溶解または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、

5 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、オージクロロベンゼン等の塩素系溶媒、テトラヒドロ  
フラン、ジオキサン等のエーテル系溶媒、トルエン、キシレン、トリメチ  
ルベンゼン、メシチ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-  
10 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、シクロヘキサノン等のケトン系溶媒、酢酸エチル  
、酢酸ブチル、メチルベンゾエート、エチルセルソルブアセテート等のエ  
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  
15 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-ヘキサン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-  
20 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  
媒が例示される。また、これらの溶媒は、1種単独で用いても複数組み合  
わせて用いてもよい。前記溶媒のうち、ベンゼン環を少なくとも1個以上  
含む構造を有し、かつ融点が0℃以下、沸点が100℃以上である有機溶  
媒を1種類以上含むことが、粘度、成膜性等の観点から好ましい。

25 溶媒の種類としては、液状組成物中の溶媒以外の成分の有機溶媒への溶  
解性、成膜時の均一性、粘度特性等の観点から、芳香族炭化水素系溶媒、  
脂肪族炭化水素系溶媒、エステル系溶媒、ケトン系溶媒が好ましく、トル  
エン、キシレン、エチルベンゼン、ジエチルベンゼン、トリメチルベンゼ

ン、メシチレン、n-プロピルベンゼン、i-プロピルベンゼン、n-ブチルベンゼン、i-ブチルベンゼン、s-ブチルベンゼン、アニソール、エトキシベンゼン、1-メチルナフタレン、シクロヘキサン、シクロヘキサノン、シクロヘキシリベンゼン、ビシクロヘキシル、シクロヘキセニルシクロヘキサノン、n-ヘプチルシクロヘキサン、n-ヘキシリシクロヘキサン、メチルベンゾエート、2-プロピルシクロヘキサノン、2-ヘプタノン、3-ヘプタノン、4-ヘプタノン、2-オクタノン、2-ノナン、2-デカノン、ジシクロヘキシリケトンが好ましく、キシレン、アニソール、メシチレン、シクロヘキシリベンゼン、ビシクロヘキシリメチルベンゾエートのうち少なくとも1種類を含むことがより好ましい。

液状組成物に含まれる溶媒の種類は、成膜性の観点や素子特性等の観点から、2種類以上であることが好ましく、2～3種類であることがより好ましく、2種類であることがさらに好ましい。

液状組成物に2種類の溶媒が含まれる場合、そのうちの1種類の溶媒は15 25℃において固体状態でもよい。成膜性の観点から、1種類の溶媒は沸点が180℃以上のものであり、他の1種類の溶媒は沸点が180℃未満のものであることが好ましく、1種類の溶媒は沸点が200℃以上のものであり、他の1種類の溶媒は沸点が180℃未満のものであることがより好ましい。また、粘度の観点から、60℃において、液状組成物から溶媒を除いた成分の20 0.2重量%以上が溶媒に溶解することが好ましく、2種類の溶媒のうちの1種類の溶媒には、25℃において、液状組成物から溶媒を除いた成分の0.2重量%以上が溶解することが好ましい。

液状組成物に3種類の溶媒が含まれる場合、そのうちの1～2種類の溶媒は25℃において固体状態でもよい。成膜性の観点から、3種類の溶媒のうちの少なくとも1種類の溶媒は沸点が180℃以上の溶媒であり、少なくとも1種類の溶媒は沸点が180℃未満の溶媒であることが好ましく、3種類の溶媒のうちの少なくとも1種類の溶媒は沸点が200℃以上300℃以下の溶媒であり、少なくとも1種類の溶媒は沸点が180℃未満の溶媒であるこ

とがより好ましい。また、粘度の観点から、3種類の溶媒のうちの2種類の溶媒には、60°Cにおいて、液状組成物から溶媒を除いた成分の0.2重量%以上が溶媒に溶解することが好ましく、3種類の溶媒のうちの1種類の溶媒には、25°Cにおいて、液状組成物から溶媒を除いた成分の0.2重量%以上が溶媒に溶解することが好ましい。

液状組成物に2種類以上の溶媒が含まれる場合、粘度及び成膜性の観点から、最も沸点が高い溶媒が、液状組成物に含まれる全溶媒の重量の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%であることがさらに好ましい。

液状組成物に含まれる溶媒としては、粘度及び成膜性の観点から、アニソール及びビシクロヘキシルの組み合わせ、アニソール及びシクロヘキシリベンゼンの組み合わせ、キシレン及びビシクロヘキシルの組み合わせ、キシレン及びシクロヘキシリベンゼンの組み合わせ、メチレン及メチルベンゾエートの組み合わせが好ましい。

液状組成物に含まれる溶媒以外の成分の溶媒への溶解性の観点から、溶媒の溶解度パラメータと、本発明の組成物に含まれる高分子化合物の溶解度パラメータとの差が10以下であることが好ましく、7以下であることがより好ましい。これらの溶解度パラメータは、「溶剤ハンドブック（講談社刊、1976年）」に記載の方法で求めることができる。

20

### <薄膜>

次いで、本発明の薄膜について説明する。この薄膜は、前記組成物、前記高分子化合物または前記液状組成物を用いてなるものである。薄膜の種類としては、発光性薄膜、導電性薄膜、有機半導体薄膜が例示される。

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50%以上であることが好ましく、60%以上であることがより好ましく、70%以上であることがさらに好ましい。

導電性薄膜は、表面抵抗が1KΩ/□以下であることが好ましい。薄膜

に、ルイス酸、イオン性化合物等をドープすることにより、電気伝導度を高めることができる。表面抵抗が $100\Omega/\square$ 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。

有機半導体薄膜は、電子移動度または正孔移動度のいずれかの値が大きいほうが好ましく、その値として、好ましくは $10^{-5}\text{ cm}^2/\text{V s}$ 以上であり、より好ましくは $10^{-3}\text{ cm}^2/\text{V s}$ 以上であり、さらに好ましくは $10^{-1}\text{ cm}^2/\text{V s}$ 以上である。

#### ＜高分子化合物、組成物の用途＞

次に本発明の高分子化合物、組成物（液状組成物を含む。）の用途について説明する。

本発明の高分子化合物、組成物は、通常、固体状態で発光し、高分子発光体（即ち、高分子量の発光材料）として用いることができる。また、本発明の組成物は優れた電荷輸送能を有しており、高分子化合物を含む有機EL素子（以下、「高分子発光素子」と略する場合がある。）用材料や電荷輸送材料として好適に用いることができる。該高分子発光体を用いた高分子発光素子は低電圧、高発光効率で駆動できる高性能の高分子発光素子である。従って、本発明の組成物は、曲面状光源、平面状光源等の面状光源（例えば、照明等）；セグメント表示装置（例えば、セグメントタイプの表示素子等）、ドットマトリックス表示装置（例えば、ドットマトリックスのフラットディスプレイ等）、液晶表示装置（例えば、液晶表示装置、液晶ディスプレイのバックライト等）等の表示装置等の材料として有用である。また、本発明の組成物は、レーザー用色素、有機太陽電池用材料、導電性薄膜、有機半導体薄膜等の伝導性薄膜用材料、発光性薄膜材料等としても用いることができる。

#### ＜高分子発光素子＞

次に、本発明の高分子発光素子について説明する。

本発明の高分子発光素子は、陽極及び陰極からなる電極と、該電極間に設けられ前記組成物及び／または前記高分子化合物を含む有機層（即ち、有機物を含む層）とを有するものである。前記有機層は、発光層、正孔輸送層、電子輸送層等のいずれであってもよいが、有機層が発光層であることが好ましい。本発明の高分子発光素子は、本発明の組成物が正孔輸送層及び／または電子輸送層に含まれているものも含む。

発光層とは、発光する機能を有する層をいう。正孔輸送層とは、正孔を輸送する機能を有する層をいう。電子輸送層とは、電子を輸送する機能を有する層をいう。なお、正孔輸送層と電子輸送層を総称して電荷輸送層といふ。発光層、正孔輸送層、電子輸送層は、それぞれ独立に2層以上存在してもよい。

本発明の高分子発光素子が発光層を有する場合、該発光層の厚さは、用いる材料によって最適値が異なり、駆動電圧と発光効率が適度な値となるように選択すればよいが、例えば、1 nm～1 μmであり、好ましくは2 nm～500 nm、さらに好ましくは5 nm～200 nmである。

発光層の形成方法としては、例えば、液状組成物からの成膜による方法が挙げられる。

液状組成物からの成膜には、スピンドルコート法、キャスティング法、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。パターン形成や多色の塗分けが容易であるという点で、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印刷法が好ましい。

本発明の高分子発光素子は、素子の輝度等の観点から陽極と陰極との間に電圧を印加したときの最大外部量子収率が1%以上であることが好ましく、1.5%以上であることがより好ましい。

本発明の高分子発光素子としては、例えば、陰極と発光層との間に電子

輸送層を設けた高分子発光素子、陽極と発光層との間に正孔輸送層を設けた高分子発光素子、陰極と発光層との間に電子輸送層を設け、かつ陽極と発光層との間に正孔輸送層を設けた高分子発光素子等が挙げられる。

本発明の高分子発光素子としては、以下の a) ~ d) の構造が例示され  
る。

- 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。)

本発明の組成物が正孔輸送層に用いられる場合には、本発明の組成物が正孔輸送性基（例えば、芳香族アミノ基、チエニル基等）を有する高分子化合物を含むか、または前記式（1）で表される繰り返し単位を含む高分子化合物が該正孔輸送性基を有することが好ましい。正孔輸送性基を含む高分子化合物の例としては、芳香族アミンを含む高分子化合物、スチルベンを含む高分子化合物等が挙げられる。

本発明の組成物が電子輸送層に用いられる場合には、本発明の組成物が電子輸送性基（例えば、オキサジアゾール基、オキサチアジアゾール基、ピリジル基等）を有する高分子化合物を含むか、または前記式（1）で表される繰り返し単位を含む高分子化合物が該電子輸送性基を有することが好ましい。電子輸送性基を含む高分子化合物の例としては、オキサジアゾールを含む高分子化合物、トリアゾールを含む高分子化合物、キノリンを含む高分子化合物、キノキサリンを含む高分子化合物、ベンゾチアジアゾールを含む高分子化合物等が挙げられる。

本発明の高分子発光素子が正孔輸送層を有する場合、通常、該正孔輸送層には正孔輸送材料（低分子、高分子のものがある。）が用いられる。この正孔輸送材料としては、前述の本発明の組成物が含有してもよい正孔輸送材料で例示したものが挙げられる。

該正孔輸送材料としては、特開昭63-70257号公報、特開昭63-175860号公報、特開平2-135359号公報、特開平2-135361号公報、特開平2-209988号公報、特開平3-37992号公報、特開平3-152184号公報に記載されているもの等が例示される。

5 これらの中で、正孔輸送層に用いる正孔輸送材料としては、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、側鎖また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（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）及びその誘導体等の高分子の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、側鎖または主鎖に芳香族アミンを有するポリシロキサン誘導体がさらに好ましい。

10 15 また、低分子の正孔輸送材料としては、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が例示される。低分子の正孔輸送材料の場合には、高分子バインダーに分散させて用いることが好ましい。

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。高分子バインダーとしては、ポリ（N-ビニルカルバゾール）、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（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、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例示される。

25 ポリビニルカルバゾール及びその誘導体は、例えば、ビニルモノマーからカチオン重合またはラジカル重合によって得られる。

ポリシラン及びその誘導体としては、ケミカル・レビュー（Chem. Rev.）第89巻、1359頁（1989年）、英國特許第2300196号公開明細書に記載の

化合物等が例示される。合成方法もこれらに記載の方法を用いることができるが、特にキッピング法が好適に用いられる。

ポリシロキサン及びその誘導体は、シロキサン骨格構造には正孔輸送性がほとんどないので、側鎖または主鎖に上記低分子の正孔輸送材料の構造を有するものが好適に用いられる。特に正孔輸送性の芳香族アミンを側鎖または主鎖に有するものが例示される。

正孔輸送層の成膜の方法に制限はないが、低分子の正孔輸送材料では、高分子バインダーとの混合溶液からの成膜による方法が例示される。高分子の正孔輸送材料では、溶液（即ち、正孔輸送材料を溶媒と混合したもの）からの成膜による方法が例示される。

溶液からの成膜に用いる溶媒としては、正孔輸送材料を溶解また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、0-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、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-ヘキサン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、シクロヘキサン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例示される。これらの有機溶媒は、一種単独で用いても二種以

上を併用してもよい。

溶液からの成膜には、溶液からのスピンドルコート法、キャスティング法、マイクログラビアコート法、グラビアコート法、バーコート法、ロールコート法、ワイヤーバーコート法、ディップコート法、スプレーコート法、  
5 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。

正孔輸送層の膜厚は、用いる材料によって最適値が異なり、駆動電圧と発光効率が適度な値となるように選択すればよいが、少なくとも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  
10 高くなることがあり好ましくない。従って、正孔輸送層の膜厚は、通常、  
1 nm～1 μmであり、好ましくは2 nm～500 nm、さらに好ましくは  
5 nm～200 nmである。

本発明の高分子発光素子が電子輸送層を有する場合、通常、該電子輸送層には電子輸送材料（低分子、高分子のものがある。）が用いられる。この電子輸送材料としては、前述の本発明の組成物が含有してもよい電子輸送材料で例示したものが挙げられる。

該電子輸送材料としては、特開昭63-70257号公報、特開昭63-175860号公報、特開平2-135359号公報、特開平2-135361号公報、特開平2-209988号公報、特開平3-37992号公報、特開平3-152184号公報に記載されているもの等が例示される。

これらのうち、オキサジアゾール誘導体、ベンゾキノン及びその誘導体、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-ビフェニリル)-5-(4-t-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、ポリキノリンがさらに好ましい。

電子輸送層の成膜法としては特に制限はないが、低分子の電子輸送材料

では、粉末からの真空蒸着法、及び溶液または溶融状態からの成膜による方法が例示され、高分子電子輸送材料では溶液または溶融状態からの成膜による方法が例示される。溶液または溶融状態からの成膜時には、前記高分子バインダーを併用してもよい。

- 5 溶液からの成膜に用いる溶媒としては、電子輸送材料及び／または高分子バインダーを溶解または均一に分散できるものが好ましい。溶媒の例としては、前記正孔輸送層の項において、正孔輸送層の溶液からの成膜に用いる溶媒として例示したものが挙げられる。この溶媒は、一種単独で用いても二種以上を併用してもよい。
- 10 溶液または溶融状態からの成膜方法としては、前記正孔輸送層の項において、正孔輸送層の溶液からの成膜方法として例示したものが挙げられる。

- 電子輸送層の膜厚としては、用いる材料によって最適値が異なり、駆動電圧と発光効率が適度な値となるように選択すればよいが、少なくとも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、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、さらに好ましくは5 nm～200 nmである。

- また、電極に隣接して設けた正孔輸送層、電子輸送層のうち、電極からの電荷注入効率を改善する機能を有し、素子の駆動電圧を下げる効果を有するものは、それぞれ、特に正孔注入層、電子注入層（以下、これらの総称を「電荷注入層」ということがある。）と一般に呼ばれることがある。

- 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、電極に隣接して前記の電荷注入層または絶縁層を設けてもよく、また、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ー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適宜調整することができる。

本発明において、電荷注入層を設けた高分子発光素子としては、例えば、陰極に隣接して電荷注入層を設けた高分子発光素子、陽極に隣接して電荷注入層を設けた高分子発光素子が挙げられる。高分子発光素子の構造の例としては、以下の e) ~ p) の構造が挙げられる。

- 5    e) 陽極／正孔注入層／発光層／陰極
- f) 陽極／発光層／電子注入層／陰極
- g) 陽極／正孔注入層／発光層／電子注入層／陰極
- h) 陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／陰極
- i) 陽極／正孔輸送層／発光層／電子注入層／陰極
- 10   j) 陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子注入層／陰極
- k) 陽極／正孔注入層／発光層／電子輸送層／陰極
- l) 陽極／発光層／電子輸送層／電子注入層／陰極
- m) 陽極／正孔注入層／発光層／電子輸送層／電子注入層／陰極
- n) 陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／陰極
- 15   o) 陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層／陰極
- p) 陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層／陰極

本発明の高分子発光素子としては、前述のとおり、本発明の組成物が正孔輸送層及び／または電子輸送層に含まれているものも含む。また、本発明の高分子発光素子としては、本発明の組成物が正孔注入層及び／または電子注入層に含まれているものも含む。

本発明の組成物が正孔注入層に用いられる場合には、電子受容性化合物と同時に用いられることが好ましい。本発明の組成物が電子輸送層に用いられる場合には、電子供与性化合物と同時に用いられることが好ましい。ここで、同時に用いるためには、混合、共重合、側鎖としての導入等の方法がある。

電荷注入層の例としては、導電性高分子を含む層、陽極と正孔輸送層との間に設けられ、陽極材料と正孔輸送層に含まれる正孔輸送材料との中間

の値のイオン化ポテンシャルを有する材料を含む層、陰極と電子輸送層との間に設けられ、陰極材料と電子輸送層に含まれる電子輸送材料との中間の値の電子親和力を有する材料を含む層等が挙げられる。

電荷注入層が導電性高分子を含む層の場合、該導電性高分子の電気伝導度は、 $10^{-5}$  S/cm以上 $10^3$  S/cm以下であることが好ましく、発光画素間のリーク電流を小さくするために、 $10^{-5}$  S/cm以上 $10^2$  S/cm以下がより好ましく、 $10^{-5}$  S/cm以上 $10^1$  S/cm以下がさらに好ましい。通常、該導電性高分子の電気伝導度を $10^{-5}$  S/cm以上 $10^3$  S/cm以下とするために、該導電性高分子に適量のイオンをドープする。

ドープするイオンの種類は、正孔注入層であればアニオン、電子注入層であればカチオンである。アニオンの例としては、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、樟脑スルホン酸イオン等が挙げられる。カチオンの例としては、リチウムイオン、ナトリウムイオン、カリウムイオン、テトラブチルアンモニウムイオン等が挙げられる。

電荷注入層の膜厚は、通常、1 nm～100 nmであり、2 nm～50 nmが好ましい。

電荷注入層に用いる材料は、電極や隣接する層の材料との関係で適宜選択すればよく、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、ポリピロール及びその誘導体、ポリフェニレンビニレン及びその誘導体、ポリチエニレンビニレン及びその誘導体、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、芳香族アミン構造を主鎖または側鎖に含む高分子化合物等の導電性高分子、金属フタロシアニン（銅フタロシアニン等）、カーボン等が例示される。

絶縁層は、通常、膜厚0.5～4.0 nmであり、電荷注入を容易にする機能を有するものである。絶縁層の材料としては、金属フッ化物、金属酸化物、有機絶縁材料等が挙げられる。

絶縁層を設けた高分子発光素子としては、陰極に隣接して絶縁層を設けた高分子発光素子、陽極に隣接して絶縁層を設けた高分子発光素子が挙げ

られ、その例として、以下の q) ~ a b) の構造の素子が挙げられる。

q) 陽極／絶縁層／発光層／陰極

r) 陽極／発光層／絶縁層／陰極

s) 陽極／絶縁層／発光層／絶縁層／陰極

5 t) 陽極／絶縁層／正孔輸送層／発光層／陰極

u) 陽極／正孔輸送層／発光層／絶縁層／陰極

v) 陽極／絶縁層／正孔輸送層／発光層／絶縁層／陰極

w) 陽極／絶縁層／発光層／電子輸送層／陰極

x) 陽極／発光層／電子輸送層／絶縁層／陰極

10 y) 陽極／絶縁層／発光層／電子輸送層／絶縁層／陰極

z) 陽極／絶縁層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／陰極

a a) 陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／絶縁層／陰極

a b) 陽極／絶縁層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／絶縁層／陰極

15 本発明の高分子発光素子は、上記 a) ~ a b) に例示した素子構造において、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層のうちのいずれかに、本発明の組成物を含む。

本発明の高分子発光素子は、通常、基板上に形成される。この基板は、電極を形成し、有機物の層を形成する際に変化しないものであればよい。

20 基板の材料としては、例えば、ガラス、プラスチック、高分子フィルム、シリコン等が挙げられる。不透明な基板の場合には、反対の電極（即ち、基板から遠い方の電極）が透明または半透明であることが好ましい。通常、本発明の高分子発光素子が有する陽極及び陰極の少なくとも一方が透明または半透明である。陽極側が透明または半透明であることが好ましい。

25 陽極の材料としては、導電性の金属酸化物膜、半透明の金属薄膜等が用いられ、その例として、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ガラスを用いて作製された膜（NE

S A等)や、金、白金、銀、銅等が用いられ、ITO、インジウム・亜鉛・オキサイド、酸化スズが好ましい。陽極の作製方法としては、真空蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法、メッキ法等が挙げられる。また、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。

陽極の膜厚は、光の透過性と電気伝導度とを考慮して、適宜調整することができるが、通常、 $10\text{ nm} \sim 10\mu\text{m}$ であり、好ましくは $20\text{ nm} \sim 1\mu\text{m}$ 、さらに好ましくは $50\text{ nm} \sim 500\text{ nm}$ である。

陽極上に、電荷注入を容易にするために、フタロシアニン誘導体、導電性高分子、カーボン等からなる層、または金属酸化物や金属フッ化物、有機絶縁材料等からなる層を設けてもよい。

陰極の材料としては、仕事関数の小さい材料が好ましい。例えば、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、及びそれらのうち2つ以上の合金、またはそれらのうち1つ以上と、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つ以上の合金、グラファイトまたはグラファイト層間化合物等が用いられる。合金の例としては、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-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してもよい。

陰極の膜厚は、電気伝導度や耐久性を考慮して、適宜調整することができるが、例えば、 $10\text{ nm} \sim 10\mu\text{m}$ であり、好ましくは $20\text{ nm} \sim 1\mu\text{m}$ 、さらに好ましくは $50\text{ nm} \sim 500\text{ nm}$ である。

陰極の作製方法としては、真空蒸着法、スパッタリング法、また金属薄膜を熱圧着するラミネート法等が用いられる。また、陰極と有機層との間に、導電性高分子からなる層、または金属酸化物や金属フッ化物、有機絶縁材料等からなる層を設けてもよく、陰極作製後、該高分子発光素子を保護する保護層を設けてもよい。高分子発光素子を長期安定的に用いるためには、素子を外部から保護するために、保護層及び／または保護カバーを設けることが好ましい。

保護層としては、高分子化合物、金属酸化物、金属フッ化物、金属ホウ化物、金属窒化物、有機無機ハイブリッド材料等を用いることができる。

保護カバーとしては、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、該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好適に用いられる。スペーサーを用いて空間を維持すれば、素子がキズつくるの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なガスを封入すれば、陰極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が素子にダメージ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つ以上の方策をとることが好ましい。

本発明の高分子発光素子は、例えば、曲面状光源、平面状光源等の面状光源（例えば、照明等）；セグメント表示装置（例えば、セグメントタイプの表示素子等）、ドットマトリックス表示装置（例えば、ドットマトリックスのフラットディスプレイ等）、液晶表示装置（例えば、液晶表示装置、液晶ディスプレイのバックライト等）等の表示装置等に用いることができる。

本発明の高分子発光素子を用いて面状の発光を得るために、面状の陽極と陰極が重なり合うように配置すればよい。パターン状の発光を得るために、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、陽極または陰極のいずれか一方、また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ればよい。複数の種類の発光色の異なる高分子蛍光体を塗り分ける方法や、カラーフィルターまた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。

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、または面状の照明用光源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。

#### 20 <有機トランジスタ（高分子電界効果トランジスタ）>

本発明の高分子化合物は、有機トランジスタの材料としても用いることができる。有機トランジスタは、前記薄膜を有するものである。本発明の高分子化合物は、高分子電界効果トランジスタの材料として、中でも活性層として好適に用いることができる。高分子電界効果トランジスタの構造としては、通常は、ソース電極及びドレイン電極が高分子からなる活性層に接して設けられており、さらに活性層に接した絶縁層を挟んでゲート電極が設けられていればよい。

高分子電界効果トランジスタは、通常は支持基板上に形成される。支持

基板としては電界効果トランジスタとしての特性を阻害しなければ材質は特に制限されないが、ガラス基板やフレキシブルなフィルム基板やプラスチック基板も用いることができる。

高分子電界効果トランジスタは、公知の方法、例えば、特開平5-110069号公報に記載の方法により製造することができる。

活性層を形成する際に、有機溶媒可溶性の高分子化合物を用いることが製造上非常に有利であり好ましい。有機溶媒可溶性の高分子化合物が溶媒を含んでなる液状組成物からの成膜には、スピンドルコート法、キャスティング法、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、インクジェット印刷法等の塗布法を用いることができる。

高分子電界効果トランジスタを作製後、封止してなる封止高分子電界効果トランジスタが好ましい。これにより、高分子電界効果トランジスタが15、大気から遮断され、高分子電界効果トランジスタの特性の低下を抑えることができる。

封止する方法としては、紫外線（UV）硬化樹脂、熱硬化樹脂や無機のSiON<sub>x</sub>膜等でカバーする方法、ガラス板やフィルムをUV硬化樹脂、熱硬化樹脂等で張り合わせる方法等が挙げられる。大気との遮断を効果的に行うため高分子電界効果トランジスタを作製後、封止するまでの工程を20大気に曝すことなく（例えば、乾燥した窒素雰囲気中、真空中等）行うことが好ましい。

以下、本発明をさらに詳細に説明するために実施例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

なお、下記実施例において、フォトルミネッセンス測定は、堀場製作所社製のFluorologまたは(株)オプテル社製 有機EL発光特性評価装置IES-150を用い、励起波長は350nmにて測定した。また、ポリスチレン換算の数平均分子量は、テトラヒドロフランを溶媒として

、ゲルパーキューションクロマトグラフィー（G P C : H L C - 8 2 2 0 G P C、東ソー製若しくはS C L - 1 0 A、島津製作所製）により求めた。

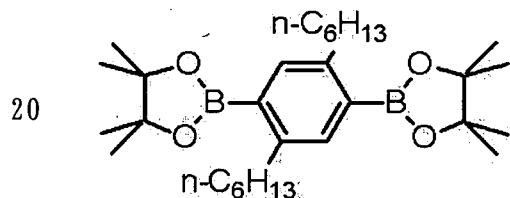
（実施例 1）

5 高分子化合物（P O - 1）の合成

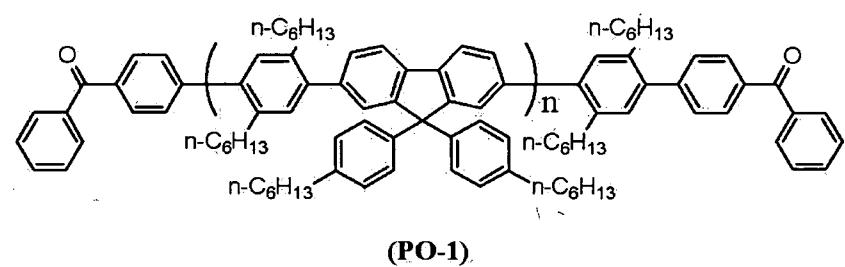
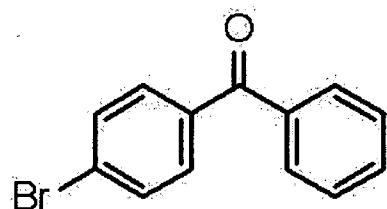
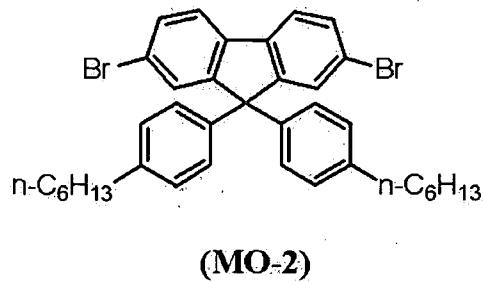
高分子化合物（P O - 1）は、特表 2 0 0 5 - 5 0 6 4 3 9 号公報記載の方法に準拠して製造した。

不活性ガス雰囲気下、化合物M O - 1（0. 4 9 8 4 g）、化合物M O - 2（0. 6 0 3 1 g）および化合物M O - 3（0. 0 2 1 5 g）をあらかじめ不活性ガスでバブリングしたトルエン 7. 7 mL に溶解した。次に反応マスを 8 5 ℃まで昇温し、酢酸パラジウム（0. 4 5 m g）及びトリス（2-メトキシフェニル）フォスфин（7. 0 5 m g）を加え、1 0 0 ℃まで昇温後、2 m o 1 % 炭酸ナトリウム水溶液を 2. 1 m l 加え、7 時間還流した。メタノール（1 5 5 m l）に注ぎ込むことで、高分子化合物（P O - 1）0. 4 0 g を得た。

また、ポリスチレン換算の数平均分子量及び重量平均分子量は、それぞれ  $M_n = 2. 9 \times 10^4$ 、 $M_w = 6. 1 \times 10^4$  であった。



(MO-1)



20

(実施例 2)

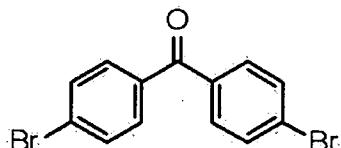
高分子化合物（PO-2）の合成

不活性ガス雰囲気下、化合物MO-1（0.4984g）、化合物MO-2（0.5154g）および化合物MO-4（0.0680g）をあらかじめ不活性ガスでバブリングしたトルエン10.0mLに溶解した。次に反応マスを85℃まで昇温し、酢酸パラジウム（0.70mg）及びトリス（2-メトキシフェニル）fosfin（7.40mg）を加え、100℃まで昇温後、17.5重量%炭酸ナトリウム水溶液を2.7mL加

え、7時間還流した。メタノール(155mL)に注ぎ込むことで高分子化合物(PO-2)0.29gを得た。

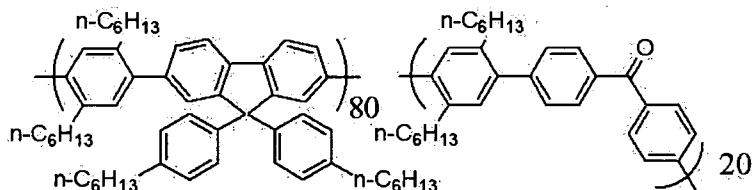
ポリスチレン換算の数平均分子量及び重量平均分子量は、それぞれM<sub>n</sub>=9.6×10<sup>4</sup>、M<sub>w</sub>=2.5×10<sup>5</sup>であった。

5



(MO-4)

10



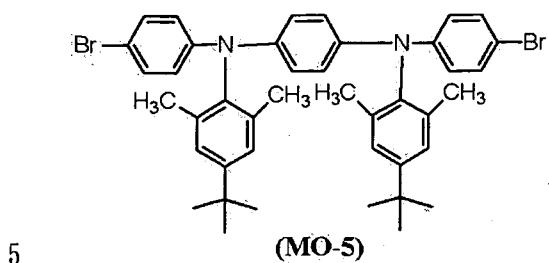
(PO-2)

15

## (実施例3)

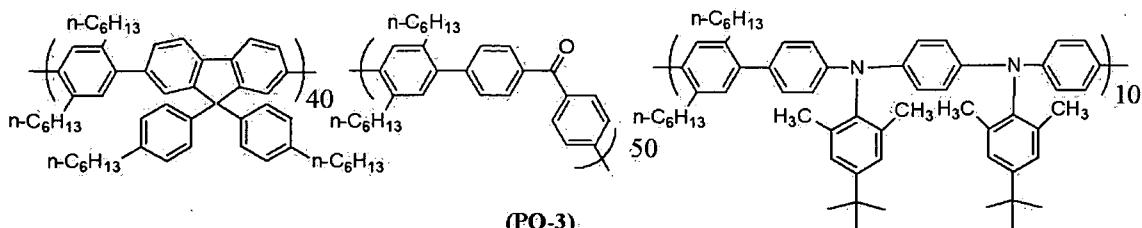
高分子化合物(PO-3)の合成

不活性ガス雰囲気下、化合物MO-1(0.9917g)、化合物MO-2(0.5156g)、化合物MO-4(0.3400g)および化合物MO-5(0.1477g)をあらかじめ不活性ガスでバブリングしたトルエン10.0mLに溶解した。次に反応マスを85℃まで昇温し、酢酸パラジウム(1.30mg)及びトリス(2-メトキシフェニル)フォスフィン(14.80mg)を加え、100℃まで昇温後、17.5重量%炭酸ナトリウム水溶液を5.4mL加え、7時間還流した。メタノール(300mL)に注ぎ込むことで高分子化合物(PO-3)0.36gを得た。ポリスチレン換算の数平均分子量及び重量平均分子量は、それぞれM<sub>n</sub>=6.6×10<sup>4</sup>、M<sub>w</sub>=1.4×10<sup>5</sup>であった。



10

(PO-3)

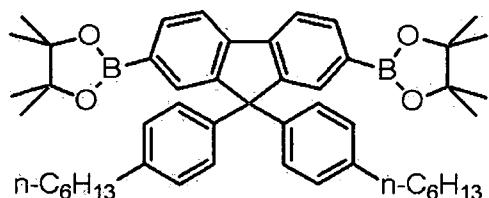


## (合成例 1)

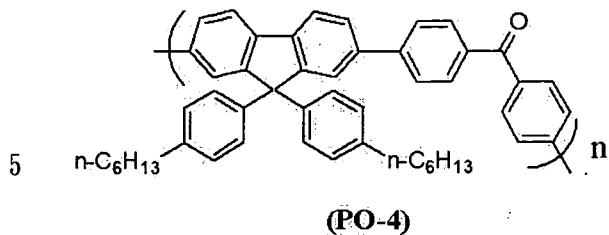
高分子化合物（PO-4）の合成

不活性ガス雰囲気下、化合物MO-6（0.7387g）および化合物  
15 MO-4（0.3383g）をあらかじめ不活性ガスでバブリングしたト  
ルエン10.0mLに溶解した。次に反応マスを85℃まで昇温し、酢酸  
パラジウム（0.70mg）及びトリス（2-メトキシフェニル） fos  
20 fin（7.40mg）を加え、100℃まで昇温後、17.5重量%炭  
酸ナトリウム水溶液を2.7mL加え、7時間還流した。メタノール（1  
25 5.5mL）に注ぎ込むことで高分子化合物（PO-4）0.04gを得た。  
。ポリスチレン換算の数平均分子量及び重量平均分子量は、それぞれMn  
= 3.0 x 10<sup>4</sup>、Mw = 4.9 x 10<sup>4</sup>であった。

25



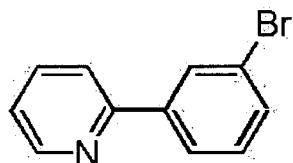
(MO-6)



### イリジウム錯体 (CO-1) の合成

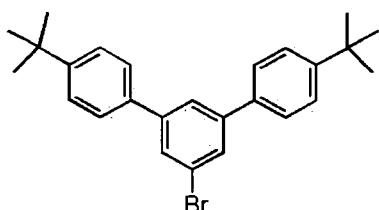
WO 02/066552 に記載の合成法に準拠して合成した。即ち、不活性ガス雰囲気下、2-ブロモピリジンと1.2当量の3-ブロモフェニルホウ酸との鈴木カップリング（触媒：テトラキス（トリフェニルfosfin）パラジウム（0）、塩基：2M炭酸ナトリウム水溶液、溶媒：エタノール、トルエン）により、2-(3'-ブロモフェニル)ピリジンを得た。

15



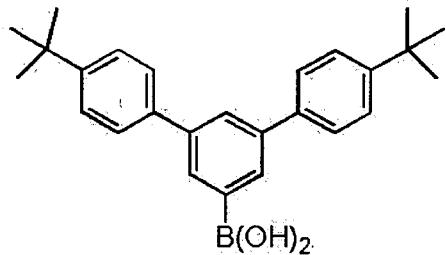
次に、不活性ガス雰囲気下、トリブロモベンゼンと2.2当量の4-tertブチルフェニルホウ酸との鈴木カップリング（触媒：テトラキス（トリフェニルfosfin）パラジウム（0）、塩基：2M炭酸ナトリウム水溶液、溶媒：エタノール、トルエン）により下記プロモ化合物を得た。

25



不活性ガス雰囲気下、このプロモ化合物を、無水T H Fに溶解後、-78 °Cに冷却し、小過剰の t e r t -B u L i を滴下した。冷却下、さらに、B(O C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>)<sub>3</sub>を滴下し、室温にて反応させた。3 M 塩酸水により後処理し、下記ホウ酸化合物を得た。

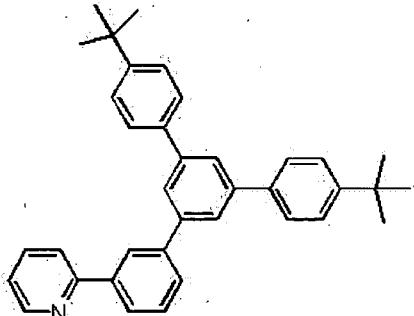
5



10

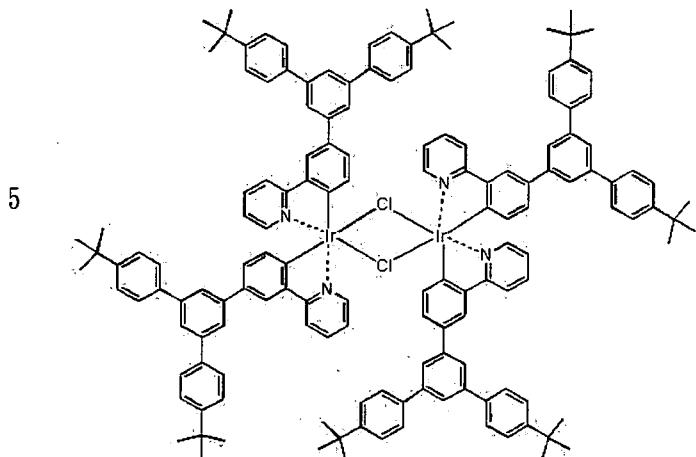
2-(3'-ブロモフェニル)ピリジンと、1.2当量の上記ホウ酸化合物との鈴木カップリング（触媒：テトラキス（トリフェニルfosfin）パラジウム（0）、塩基：2 M炭酸ナトリウム水溶液、溶媒：エタノール、トルエン）により、下記配位子を得た。

15



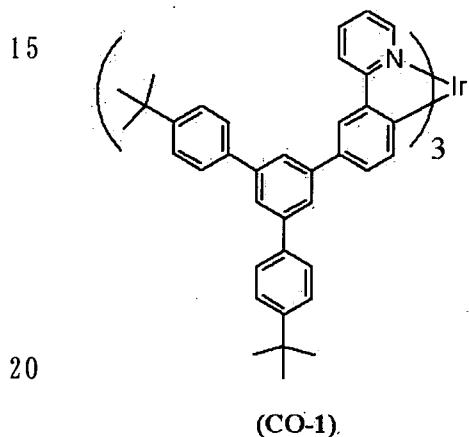
20

アルゴン雰囲気下、上記配位子と、4当量の I r C l<sub>3</sub> · 3 H<sub>2</sub>O、2-E t O E t O H、イオン交換水を仕込み還流させた。析出した固体を吸引濾過した。得られた固体をエタノール、イオン交換水で洗浄後、乾燥し、黄色粉体を得た。



10

アルゴン雰囲気下、上記で得られた黄色粉体に、2当量の配位子を加え、グリコール系溶媒中で加熱することにより、下記イリジウム錯体（CO-1）を得た。



(実施例 4)

－組成物 1 の調製－

25 上記高分子化合物（PO-1）と上記イリジウム錯体（CO-1）とを重量比 80 : 20 で混合してなる混合物の、1.9 重量% キシレン溶液（以下、「組成物 1」という。）を調製した。

## (実施例 5)

## -発光素子の作製-

スパッタ法により 150 nm の厚みで ITO 膜を付けたガラス基板に、ポリ(エチレンジオキシチオフェン) / ポリスチレンスルホン酸の溶液(バイエル社、 Baytron P ) を用いてスピンドルコートにより 65 nm の厚みで成膜し、ホットプレート上で 200 °C で 10 分間乾燥した。次に、上記調製した組成物 1 を用いてスピンドルコートにより 1800 rpm の回転速度で成膜した。膜厚は約 80 nm であった。これを窒素ガス雰囲気下 130 °C で 1 時間乾燥した後、陰極としてバリウムを約 5 nm 、次いでアルミニウムを約 80 nm 蒸着して、EL 素子を作製した。なお真空度が、  $1 \times 10^{-4}$  Pa 以下に到達したのち、金属の蒸着を開始した。

得られた素子に電圧を引加することにより、緑色の EL 発光(ピーク波長 515 nm) が得られた。該素子は 8.5 V で 100 cd/m<sup>2</sup> の発光を示し、 37.9 cd/A の最大効率を示した。

15

## (実施例 6)

## -組成物 2 の調製-

上記高分子化合物 (PO-2) と上記イリジウム錯体 (CO-1) とを重量比 80 : 20 で混合してなる混合物の、 1.5 重量 % キシレン溶液(以下、「組成物 2」という。) を調製した。

## (実施例 7)

## -発光素子の作製-

組成物 2 を用いて、実施例 5 と同様に EL 素子を作製した。発光層は、スピンドルコートにより 1800 rpm の回転速度で成膜した。膜厚は約 80 nm であった。得られた素子に電圧を引加することにより、緑色の EL 発光(ピーク波長 515 nm) が得られた。該素子は 6.9 V で 100 cd/m<sup>2</sup> の発光を示し、 36.1 cd/A の最大効率を示した。

## (実施例 8)

## -組成物 3 の調製-

上記高分子化合物（PO-3）と上記イリジウム錯体（CO-1）とを  
5 重量比 80 : 20 で混合してなる混合物の、1.5 重量% キシレン溶液（以下、「組成物 3」という。）を調製した。

## (実施例 9)

## -発光素子の作製-

10 組成物 3 を用いて、実施例 5 と同様に EL 素子を作製した。発光層は、スピンコートにより 1200 rpm の回転速度で成膜した。膜厚は約 80 nm であった。得られた素子に電圧を引加することにより、緑色の EL 発光（ピーク波長 515 nm）が得られた。該素子は 5.2 V で 100 cd/m<sup>2</sup> の発光を示し、29.9 cd/A の最大効率を示した。

15

## (比較例 1)

## -組成物 4 の調製-

高分子化合物（PO-1）の代わりに、上記高分子化合物（PO-4）  
を用いて、高分子化合物（PO-4）と上記イリジウム錯体（CO-1）  
20 とを重量比 80 : 20 で混合してなる混合物の、1.0 重量% クロロホルム溶液（以下、「組成物 4」という。）を調製した。

## (比較例 2)

## -発光素子の作製-

25 組成物 4 を用いて、実施例 5 と同様に EL 素子を作製した。発光層は、スピンコートにより 1000 rpm の回転速度で成膜した。膜厚は約 280 nm であった。得られた素子に電圧を印加することにより、緑色の EL 発光（ピーク波長 525 nm）が得られた。該素子に電圧を 12 V まで印加

したが  $3 \text{ cd/m}^2$  でしか発光しなかった。該素子は、 $1 \text{ cd/A}$  の最大効率を示した。

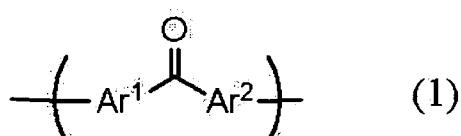
### 産業上の利用可能性

5 本発明の高分子化合物、組成物は、有機EL素子の作製に用いた場合に、最大発光効率が高くなる。このように、本発明の高分子化合物、組成物は、発光材料として有用である。

したがって、本発明の高分子化合物、組成物を用いてなる有機EL素子は、曲面状光源、平面状光源等の面状光源（例えば、照明等）；セグメント表示装置（例えば、セグメントタイプの表示素子等）、ドットマトリックス表示装置（例えば、ドットマトリックスのフラットディスプレイ等）、液晶表示装置（例えば、液晶表示装置、液晶ディスプレイのバックライト等）等の表示装置等に好適である。

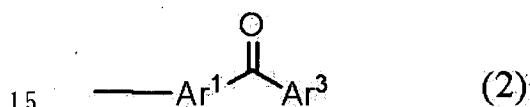
## 請求の範囲

1. 繰り返し単位として置換基を有していてもよいフルオレンジイル基および置換基を1個以上有するフェニレン基を含み、かつ、下記式(1)で表される繰り返し単位および／または下記式(2)で表される基を含む高分子化合物。



10

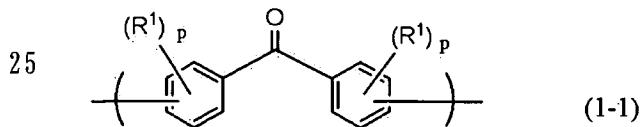
[式(1)において、Ar<sup>1</sup>およびAr<sup>2</sup>は、アリーレン基または2価の芳香族複素環基を表し、Ar<sup>1</sup>とAr<sup>2</sup>は、同一でも異なっていてもよい。]



[式(2)において、Ar<sup>1</sup>は前記と同じ意味を表す。また、Ar<sup>3</sup>は、アリール基または1価の芳香族複素環基を表す。]

2. 前記式(1)で表される繰り返し単位を含む請求項1に記載の高分子化合物。

3. 前記式(1)で表される繰り返し単位が、下記式(1-1)で表される請求項2に記載の高分子化合物。

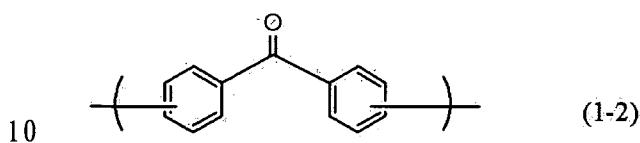


[式(1-1)において、R<sup>1</sup>は、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アリールアル

キル基、アリールアルコキシ基、アリールアルキルチオ基、アリールアルケニル基、アリールアルキニル基または1価の複素環基を表す。pは独立に0から4の整数を表す。R<sup>1</sup>が複数個存在する場合は、それらは同一であっても異なっていてもよい。】

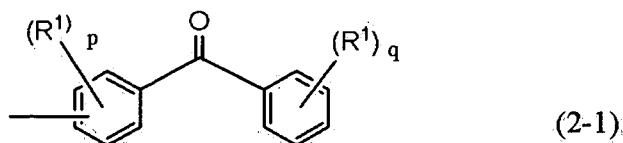
5

4. 前記式（1-1）で表される繰り返し単位が、下記式（1-2）で表される請求項3記載の高分子化合物。



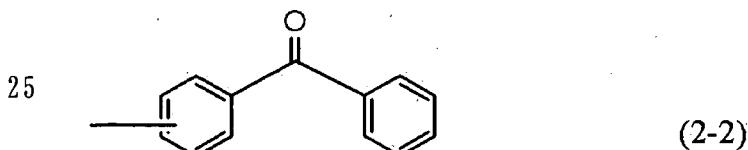
5. 前記式（2）で表される基を、高分子化合物の末端基の少なくとも1つとして有する請求項1に記載の高分子化合物。

15 6. 記式（2）で表される基が、下記式（2-1）で表される請求項5に記載の高分子化合物。



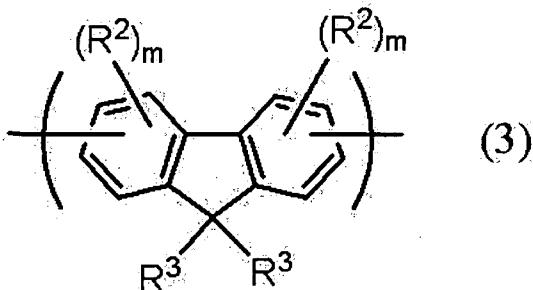
20 【式（2-1）において、qは0から5の整数を表す。R<sup>1</sup>およびpは前記と同じ意味を表す。】

7. 前記式（2-1）で表される基が、下記式（2-2）で表される請求項6に記載の高分子化合物。



8. 置換基を有していてもよいフルオレンジイル基が下記式(3)で表される請求項1～7のいずれかに記載の高分子化合物。

5



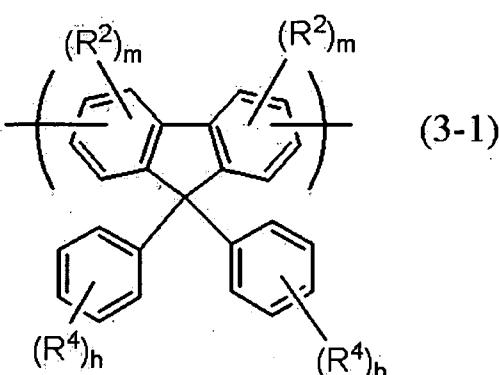
10

[式(3)において、R<sup>2</sup>は置換基を表し、R<sup>3</sup>はアルキル基、アルコキシ基、アリール基または1価の複素環基を表し、mは独立に0から3の整数を表す。R<sup>2</sup>が複数個存在する場合には、それらは同一であっても異なっていてもよい。また、複数個のR<sup>3</sup>は同一であっても異なっていてもよい。]

15

9. 前記式(3)が、下記式(3-1)で表される請求項8に記載の高分子化合物。

20



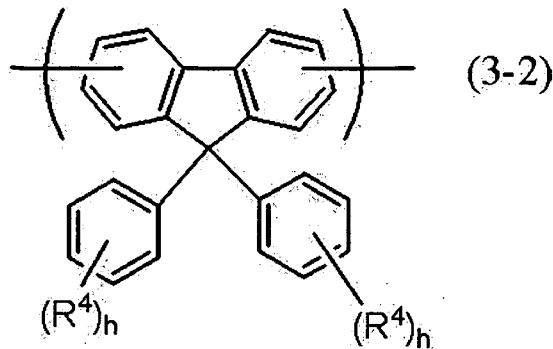
25

[式(3-1)において、R<sup>2</sup>及びmは、前記と同じ意味を表し、R<sup>4</sup>は、置換基を表し、hは、0～5の整数を表す。R<sup>2</sup>及びR<sup>4</sup>が複数個存在する場合には、それらは、各々、同一であっても異なっていてもよい。複数個

存在するm及びhは、各々、同一であっても異なっていてもよい。]

10. 前記式(3-1)が、下記式(3-2)で表される請求項  
9に記載の高分子化合物。

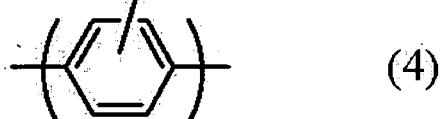
5



10

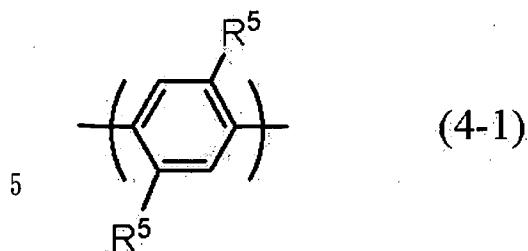
[式(3-2)において、R<sup>4</sup>およびhは、前記と同じ意味を表す。R<sup>4</sup>が複数個存在する場合には、それらは、同一であっても異なっていてもよい。複数個存在するhは、各々、同一であっても異なっていてもよい。]

11. 置換基を1個以上有するフェニレン基が下記式(4)で表される  
15 請求項1～10のいずれかに記載の高分子化合物。

 $(R^5)_n$ 

20 [式(4)において、R<sup>5</sup>はアルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アリールアルキル基、アリールアルコキシ基、アリールアルキルチオ基、アリールアルケニル基、アリールアルキニル基または1価の複素環基を表す。nは1から4の整数を表す。R<sup>5</sup>が複数個存在する場合は、それらは同一であっても異なるっていてもよい。]

12. 前記式(4)が、下記式(4-1)で表される請求項11に記載の  
高分子化合物。



[式中、R<sup>5</sup>は、前記と同じ意味を表す。]

13. 前記式（1-2）で表される繰り返し単位、前記式（3-2）で表  
10 される繰り返し単位および前記式（4-1）で表される繰り返し単位を含  
む請求項1に記載の高分子化合物。

14. 前記式（3-2）で表される繰り返し単位および前記式（4-1）  
で表される繰り返し単位を含み、かつ、前記式（2-2）で表される基を  
、高分子化合物の末端基の少なくとも1つとして有する請求項1に記載の  
15 高分子化合物。

15. さらに三重項励起状態からの発光を示す化合物の1価の残基を、高  
分子化合物の末端基の少なくとも1つとして有する請求項1～14のいず  
れかに記載の高分子化合物。

16. さらに三重項励起状態からの発光を示す化合物の2価または3価  
20 の残基を主鎖に含む請求項1～15のいずれかに記載の高分子化合物。

17. さらにアリーレン基または2価の複素環基であって、三重項励起状  
態からの発光を示す化合物の1価の残基を置換基として有する基を含む請  
求項1～16のいずれかに記載の高分子化合物。

18. ポリスチレン換算の重量平均分子量が $3 \times 10^3 \sim 1 \times 10^8$ である  
25 請求項1～17のいずれかに記載の高分子化合物。

19. 請求項1～18のいずれかに記載の高分子化合物と三重項励起状態  
からの発光を示す化合物とを含む組成物。

20. 前記三重項励起状態からの発光を示す化合物の含有量が、前記高

分子化合物 100 重量部に対して、0.01～50 重量部である請求項 1  
9 に記載の組成物。

21. 正孔輸送材料、電子輸送材料および発光材料からなる群から選ば  
れる少なくとも 1 種類の材料をさらに含む請求項 19 または 20 に記載の  
5 組成物。

22. 前記式 (1) で表される繰り返し単位および前記式 (2) で表さ  
れる基を有しない高分子化合物を含む請求項 19～21 のいずれかに記載  
の組成物。

23. 溶媒と請求項 1～18 のいずれかに記載の高分子化合物を含む液  
10 状組成物。

24. 溶媒と請求項 19～22 のいずれかに記載の組成物を含む液状組成  
物。

25. 請求項 1～18 のいずれかに記載の高分子化合物を含む薄膜。

26. 請求項 19～22 のいずれかに記載の組成物を含む薄膜。

15 27. 陽極および陰極からなる電極と、該電極間に請求項 25 または 26  
に記載の薄膜を有する高分子発光素子。

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/054684

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**

*C08G61/12 (2006.01)i, C08K5/56 (2006.01)i, C08L65/00 (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*

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

<i>Jitsuyo Shinan Koho</i>	<i>1922-1996</i>	<i>Jitsuyo Shinan Toroku Koho</i>	<i>1996-2008</i>
<i>Kokai Jitsuyo Shinan Koho</i>	<i>1971-2008</i>	<i>Toroku Jitsuyo Shinan Koho</i>	<i>1994-2008</i>

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

*CA (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.
A	<p>WO 2005/040302 A1 (COVION ORGANIC SEMICONDUCTORS GMBH), 06 May, 2005 (06.05.05), Full text &amp; JP 2007-517079 A &amp; DE 10345140 A1</p>	1-27
A	<p>JP 2002-338665 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 27 November, 2002 (27.11.02), Full text &amp; US 6905785 B2 &amp; EP 1229063 A2 &amp; KR 10-2002-0065365 A</p>	1-27

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

04 April, 2008 (04.04.08)

Date of mailing of the international search report

15 April, 2008 (15.04.08)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2008/054684

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 2003-155476 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 30 May, 2003 (30.05.03), Full text & US 2003/0064247 A1 & EP 1281745 A1 & DE 60201231 T1 & TW 586332 B & KR 10-2003-0011640 A	1-27
A	WO 2006/003000 A1 (COVION ORGANIC SEMICONDUCTORS GMBH), 12 January, 2006 (12.01.06), Full text & JP 2008-505239 A & EP 1763566 A & WO 2006/003000 A1 & DE 102004032527 A & CN 1997722 A	1-27
A	JP 2002-527554 A (Celanese Ventures GmbH), 27 August, 2002 (27.08.02), Full text & US 6541602 B1 & EP 1123337 A1 & DE 19846768 A1 & AU 5857499 A & TW 229096 B & CN 1329627 A	1-27
P, A	JP 2008-27903 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 07 February, 2008 (07.02.08), Full text & WO 2007/148814 A1	1-27

## A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))

Int.Cl. C08G61/12(2006.01)i, C08K5/56(2006.01)i, C08L65/00(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(IPC))

Int.Cl. C08G61/00-61/12

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2008年
日本国実用新案登録公報	1996-2008年
日本国登録実用新案公報	1994-2008年

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

CA(STN), REGISTRY(STN)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	WO 2005/040302 A1 (COVION ORGANIC SEMICONDUCTORS GMBH) 2005.05.06, 全文 & JP 2007-517079 A & DE 10345140 A1	1-27
A	JP 2002-338665 A (住友化学工業株式会社) 2002.11.27, 全文 & US 6905785 B2 & EP 1229063 A2 & KR 10-2002-0065365 A	1-27
A	JP 2003-155476 A (住友化学工業株式会社) 2003.05.30, 全文 & US 2003/0064247 A1 & EP 1281745 A1 & DE 60201231 T1 & TW 586332 B & KR 10-2003-0011640 A	1-27

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

04.04.2008

## 国際調査報告の発送日

15.04.2008

## 国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官(権限のある職員)

4J	9640
----	------

小出直也

電話番号 03-3581-1101 内線 3457

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	WO 2006/003000 A1 (COVION ORGANIC SEMICONDUCTORS GMBH) 2006.01.12, 全文 & JP 2008-505239 A & EP 1763566 A & WO 2006/003000 A1 & DE 102004032527 A & CN 1997722 A	1-27
A	JP 2002-527554 A (セラニーズ・ヴェンチャーズ・ゲーエムベーハー) 2002.08.27, 全文 & US 6541602 B1 & EP 1123337 A1 & DE 19846768 A1 & AU 5857499 A & TW 229096 B & CN 1329627 A	1-27
P, A	JP 2008-27903 A (住友化学株式会社) 2008.02.07, 全文 & WO 2007/148814 A1	1-27