

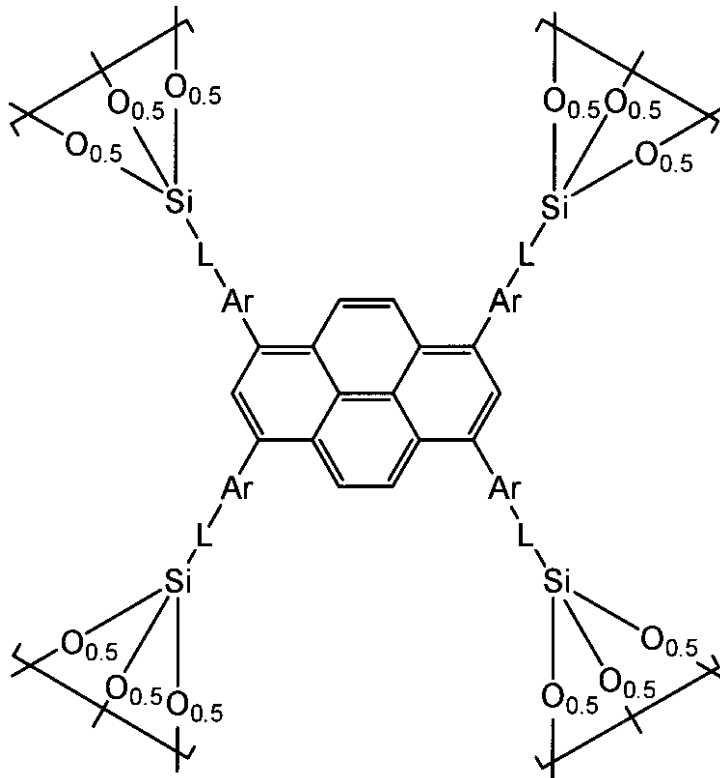
20

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

下記式（１）：

【化 1】



10

(1)

20

（式（１）中、A rはそれぞれ独立にフェニレン基、ビフェニリレン基およびナフチレン基からなる群から選択される１種を表し、Lはそれぞれ独立に、エーテル基、チオエーテル基、カルボニル基、カーボネート基、アミノ基、アミド基およびウレタン基からなる群から選択される少なくとも１種の基を含む２価の脂肪族有機基、アルキレン基または単結合を表す。）

30

で表される繰り返し単位を有する有機ケイ素化合物の重合体と、界面活性剤と、発光性化合物とを含有することを特徴とする発光材料。

【請求項 2】

前記有機ケイ素化合物の重合体がメソ構造を有するものであることを特徴とする請求項 1 に記載の発光材料。

【請求項 3】

前記有機ケイ素化合物の重合体が波長 350～410 nm または 430～500 nm に吸収帯を有するものであることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の発光材料。

【請求項 4】

さらに、重合防止剤および酸化防止剤からなる群から選択される少なくとも１種を含有することを特徴とする請求項 1～3 のうちのいずれか一項に記載の発光材料。

40

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、発光材料に関し、より詳しくは、有機ケイ素化合物の重合体を含有する発光材料に関する。

【背景技術】

【0002】

有機系発光材料は低分子系と高分子系に分類することができ、低分子系発光材料としては、アントラセン類、ベンゼン類、ビフェニル類などの芳香族蛍光色素、アルミニウム錯

50

体、イリジウム錯体、希土類などの錯体が挙げられ、高分子系発光材料としては、ポリフェニレンビニレン類、ポリフルオレン類、ポリチオフェン類、色素含有非共役系ポリマーなどが挙げられる。しかしながら、従来の有機系発光材料においては、分子間の相互作用による濃度消光や発光色の変化が大きく、十分な発光輝度、発光効率が得られないという問題点があった。また、有機系発光材料の寿命は一般的に他の発光材料と比べて短く、長期間に渡って安定な発光特性を維持することが困難であった。さらに、近年、発光領域が350～410 nmの近紫外線領域または430～500 nmの青色光線領域である高効率の発光ダイオードが開発されており、これらの光を有効に利用できる発光材料が求められている。

【0003】

そこで、これらの問題を解決するために、特開2002-63988号公報（特許文献1）には、テトラフェニルピレン骨格を有する化合物を含有する有機蛍光体（発光材料）が開示されており、また、特開2003-234190号公報（特許文献2）および特開2006-269670号公報（特許文献3）には、1, 3, 6, 8-テトラフェニルピレン化合物を含有する有機薄膜層（発光層）が開示されている。しかしながら、これらのテトラフェニルピレン骨格を有する化合物は低分子化合物である。

【0004】

C.-H. Chenら、J. Phys. Chem. B、2005年、第109巻、17887-17891頁（非特許文献1）には、オリゴフェニレンビニレン骨格またはオリゴチオフェン骨格を有する有機シラン化合物を2種類以上用いて合成した有機シリカ複合材料が開示されており、その発光特性およびエネルギー移動特性も開示されている。しかしながら、この有機シリカ複合材料には界面活性剤や他の発光性化合物は含まれておらず、また、有機シリカにはメソ構造は形成されていない。

【0005】

また、M. Ogawaら、Chem. Mater.、1998年、第10巻、1382-1385頁（非特許文献2）には、ピレンをメソポーラスシリカの細孔内に導入した系において、界面活性剤の存在により高濃度においてもピレンの会合が抑制され、濃度消光が起こりにくくなることが開示されている。しかしながら、前記メソポーラスシリカには有機基は導入されておらず、前記メソポーラスシリカ自体は発光性物質として作用せず、メソポーラスシリカからピレンへのエネルギー移動もない。

【0006】

さらに、P. N. Minoofarら、J. Am. Chem. Soc.、2005年、第127巻、2656-2665頁（非特許文献3）には、メソポーラスシリカ構造内に固定化されたランタノイド錯体からメソ細孔内部のローダミン色素にエネルギーが移動することが開示されている。しかしながら、ランタノイド錯体の励起波長は330 nmであり、近紫外線や青色光線を利用することは困難である。

【特許文献1】特開2002-63988号公報

【特許文献2】特開2003-234190号公報

【特許文献3】特開2006-269670号公報

【非特許文献1】Chih-Hsien Chenら、J. Phys. Chem. B、2005年、第109巻、17887-17891頁

【非特許文献2】M. Ogawaら、Chem. Mater.、1998年、第10巻、1382-1385頁

【非特許文献3】P. N. Minoofarら、J. Am. Chem. Soc.、2005年、第127巻、2656-2665頁

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

本発明は、上記従来技術の有する課題に鑑みてなされたものであり、耐久性に優れ、近紫外線（350～410 nm）や青色光線（430～500 nm）を吸収して高効率で発

10

20

30

40

50

光し、さらに多色発光する発光材料を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0008】

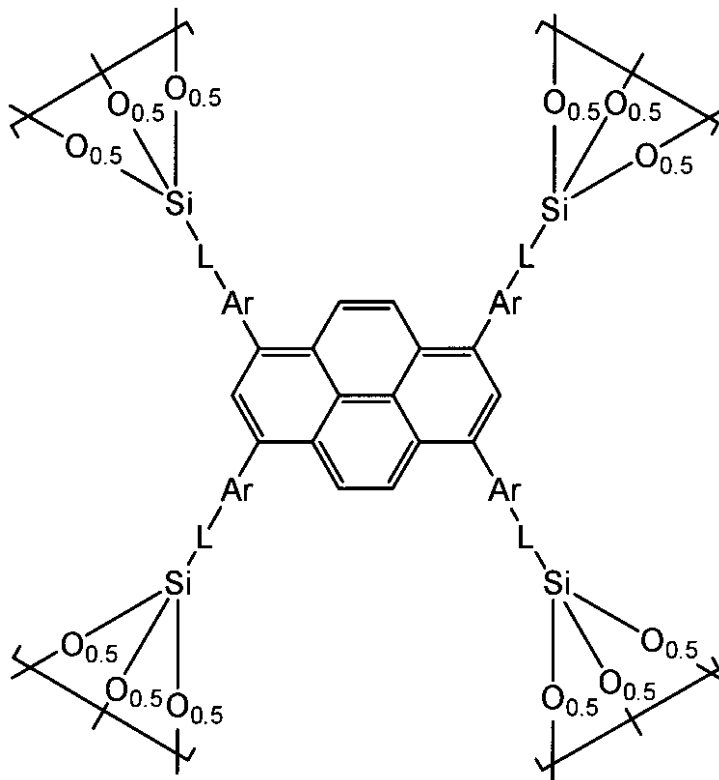
本発明者らは、上記目的を達成すべく鋭意研究を重ねた結果、テトラフェニルピレン骨格またはその誘導体骨格を有する有機ケイ素化合物の重合体と、界面活性剤と、発光性化合物とを併用することにより、これらを含む発光材料は、耐久性に優れ、近紫外線や青色光線を吸収して高効率で発光し、さらに多色発光するものであることを見出し、本発明を完成するに至った。

【0009】

すなわち、本発明の発光材料は、下記式(1)：

【0010】

【化1】



(1)

【0011】

(式(1)中、Arはそれぞれ独立にフェニレン基、ビフェニリレン基およびナフチレン基からなる群から選択される1種を表し、Lはそれぞれ独立に、エーテル基、チオエーテル基、カルボニル基、カーボネート基、アミノ基、アミド基およびウレタン基からなる群から選択される少なくとも1種の基を含む2価の脂肪族有機基、アルキレン基または単結合を表す。)

で表される繰り返し単位を有する有機ケイ素化合物の重合体と、界面活性剤と、発光性化合物とを含むことを特徴とするものである。

【0012】

前記有機ケイ素化合物の重合体としては、メソ構造を有するものが好ましく、また、波長350～410nmまたは430～500nmに吸収帯を有するものが好ましい。さらに、本発明の発光材料は、必要に応じて重合防止剤および酸化防止剤からなる群から選択される少なくとも1種を含むものであることが好ましい。

【0013】

なお、本発明の発光材料が、耐久性に優れ、近紫外線や青色光線を吸収して高効率で発光し、さらに多色発光するものとなる理由は必ずしも定かではないが、本発明者らは以下のように推察する。すなわち、有機ケイ素化合物の重合体に、立体的に嵩高いテトラフェ

ニルピレニル骨格またはその誘導体骨格を導入することにより、発光材料の耐久性が向上し、また、分子間の相互作用が抑制されて効率的に近紫外線や青色光線を吸収して発光することが可能となると推察される。また、テトラフェニルピレニル骨格またはその誘導体骨格を有する有機ケイ素化合物の重合体と発光性化合物とを併用することにより、前記有機ケイ素化合物の重合体で捕集した光エネルギーを前記発光性化合物へ移動させて発光させることが可能となり、前記有機ケイ素化合物の重合体と前記発光性化合物の発光波長領域が異なる場合には多色発光が可能となるものと推察される。さらにこのとき、界面活性剤を共存させることにより前記発光性化合物の会合を抑制することができ、発光効率や発光強度の低下および濃度消光を抑制することが可能となるものと推察される。

【発明の効果】

10

【0014】

本発明によれば、耐久性に優れ、近紫外線（350～410nm）や青色光線（430～500nm）を吸収して高効率で発光し、さらに多色発光する発光材料を提供することが可能となる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0015】

以下、本発明をその好適な実施形態に即して詳細に説明する。

【0016】

先ず、本発明の発光材料について説明する。本発明の発光材料は、有機ケイ素化合物の重合体と界面活性剤と発光性化合物とを含有することを特徴とするものである。

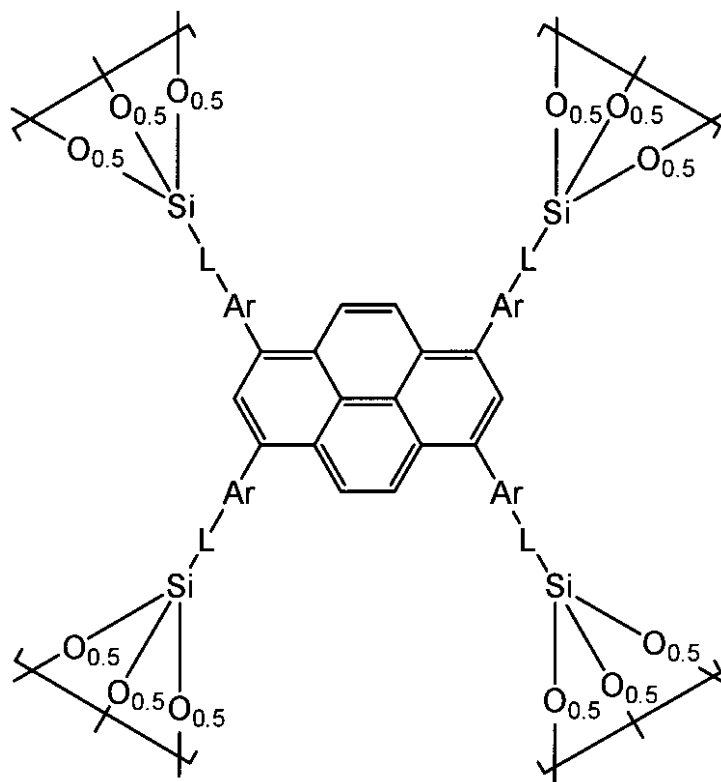
20

【0017】

本発明にかかる有機ケイ素化合物の重合体（以下、「Si系重合体」という。）は、下記式（1）：

【0018】

【化2】



30

(1)

40

【0019】

で表される繰り返し単位を有するものである。

【0020】

前記式（1）中、Arはそれぞれ独立にフェニレン基、ビフェニリレン基およびナフチ

50

レン基からなる群から選択される１種を表す。また、Lはそれぞれ独立に、エーテル基、チオエーテル基、カルボニル基、カーボネート基、アミノ基、アミド基およびウレタン基からなる群から選択される少なくとも１種を含む２価の脂肪族有機基、アルキレン基または単結合を表す。

【００２１】

前記アルキレン基の炭素数は、１～１２が好ましく、１～６がより好ましい。このようなアルキレン基のうち、メチレン基、エチレン基、プロピレン基、ブチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、が好ましく、エチレン基、プロピレン基、ブチレン基がより好ましい。また、前記２価の脂肪族有機基は、さらに、炭素数１～１２（より好ましくは１～６）の２価の炭化水素基を含むことが好ましく、前記２価の炭化水素基としてはアルキレン基が好ましい。

10

【００２２】

また、本発明にかかるＳｉ系重合体は、波長３５０～４１０ｎｍまたは４３０～５００ｎｍに吸収帯を有するものであることが好ましい。これにより、発光領域が近紫外線領域または青色光線領域である高効率の発光ダイオードを光源して使用することが可能となる。さらに、本発明にかかるＳｉ系重合体は、テトラフェニルピレン骨格またはその誘導体骨格を有するため、波長４００～６５０ｎｍの光を発光する。

【００２３】

本発明の発光材料中の前記Ｓｉ系重合体の含有率は、発光材料１００質量％に対して１０～８０質量％が好ましく、３０～７０質量％がより好ましい。Ｓｉ系重合体の含有率が前記下限未満になるとＳｉ系重合体による光の吸収量が減少したり、発光強度が低下しやすい傾向にあり、他方、前記上限を超えるとメソ構造の秩序が低下しやすい傾向にある。

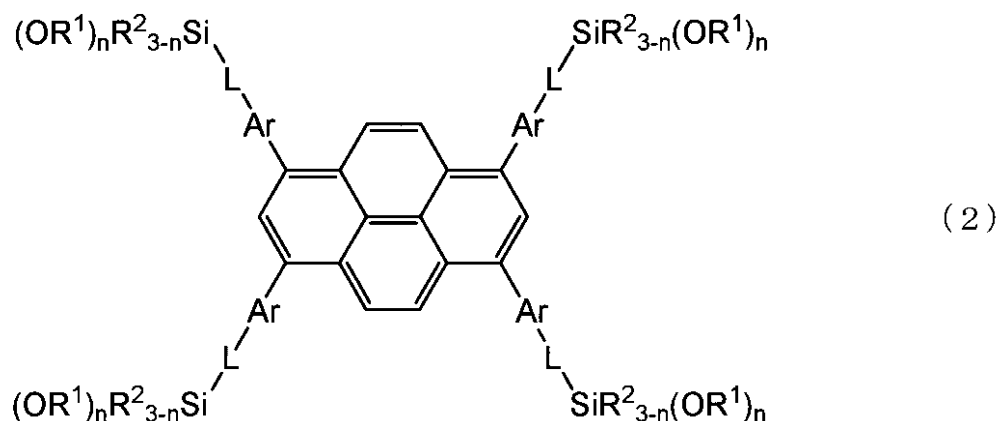
20

【００２４】

前記式（１）で表される繰り返し単位を有する本発明にかかるＳｉ系重合体は、下記式（２）：

【００２５】

【化３】



30

40

【００２６】

で表される有機シラン前駆体を重合せしめることにより形成されるものである。

【００２７】

前記式（２）中のＡｒおよびＬは前記式（１）中のＡｒおよびＬと同義である。また、Ｒ¹はメチル基またはエチル基を表し、Ｒ²はメチル基などの置換基を有していてもよいアリル基を表す。ｎは０～３の整数であるが、縮合反応が進行しやすく、縮合後の構造が安定するという観点からｎは１～３の整数が好ましい。

【００２８】

また、本発明においては、Ｓｉ系重合体として、前記式（２）で表される有機シラン前駆体と他の有機シラン化合物とを共重合せしめたものを使用することもできる。前記他の

50

有機シラン化合物としては、ジメトキシシラン、ジエトキシシランといったジアルコキシシラン；トリメトキシシラン、トリエトキシシランといったトリアルコキシシラン；テトラメトキシシラン、テトラエトキシシランといったテトラアルコキシシランなどの公知のアルコキシシラン化合物が挙げられる。

【0029】

前記有機シラン前駆体および必要に応じて前記他の有機シラン化合物（以下、これらを総称して「シランモノマー」という）を（共）重合せしめる場合、前記有機シラン前駆体の割合は、（共）重合に使用する全シランモノマー100質量%に対して10～100質量%が好ましく、50～100質量%がより好ましい。また、前記（共）重合反応の条件は特に制限されないが、水、または水と有機溶媒との混合溶媒を溶媒として使用し、酸または塩基触媒の存在下で前記シランモノマーを加水分解および縮合反応せしめることが好ましい。このとき用いられる好適な有機溶媒としてはアルコール、アセトンなどが挙げられ、混合溶媒として用いる場合の有機溶媒の含有率は5～99重量%程度が好ましい。また、前記酸触媒としては、塩酸、硝酸、硫酸といった鉱酸などが挙げられ、酸触媒を使用する場合の溶液は、pHが6以下（より好ましくは2～5）の酸性であることが好ましい。さらに、前記塩基触媒としては、水酸化ナトリウム、水酸化アンモニウム、水酸化カリウムなどが挙げられ、塩基触媒を使用する場合の溶液は、pHが8以上（より好ましくは9～11）の塩基性であることが好ましい。

10

【0030】

このような（共）重合工程における前記シランモノマーの濃度は、ケイ素濃度換算で0.0055～0.33mol/L程度であることが好ましい。また、上記重合工程における諸条件（温度、時間、等）は特に制限されず、用いるシランモノマーや目的とするSi系重合体などに応じて適宜選択されるが、一般的には0～100℃程度の温度で1～48時間程度の時間で前記シランモノマーを加水分解および縮合反応せしめることが好ましい。

20

【0031】

前記有機シラン前駆体を（共）重合せしめると前記式（2）中のシリル基が、通常、加水分解されてシラノール基（Si-OH）が形成され、その後の縮合反応によりシロキサン結合（Si-O-Si）が形成される。このとき、シラノール基の一部がシロキサン結合にまで変換されず、そのまま残存していたり、Siに結合したアシル基がそのまま残存していても発光特性には影響しない。

30

【0032】

本発明において、前記（共）重合反応は界面活性剤の存在下で実施することが好ましい。このように界面活性剤の存在下で前記（共）重合反応を実施することにより、細孔径分布曲線における中心細孔直径が1～30nmのメソ細孔を有するSi系重合体（メソ多孔体）が得られる。なお、前記中心細孔直径とは、細孔容積（V）を細孔直径（D）で微分した値（dV/dD）を細孔直径（D）に対してプロットした曲線（細孔径分布曲線）の最大ピークにおける細孔直径であり、次に述べる方法により求めることができる。すなわち、メソ多孔体を液体窒素温度（-196℃）に冷却して窒素ガスを導入し、定容量法あるいは重量法によりその吸着量を求め、次いで、導入する窒素ガスの圧力を徐々に増加させ、各平衡圧に対する窒素ガスの吸着量をプロットし、吸着等温線を得る。この吸着等温線を用い、Cranston-Inklay法、Pollimore-Heal法、BJH法などの計算法により細孔径分布曲線を求めることができる。

40

【0033】

このようなメソ多孔体は、細孔径分布曲線における中心細孔直径の±40%の範囲に全細孔容積の60%以上が含まれることが好ましい。この条件を満たすメソ多孔体は、細孔の直径が非常に均一であることを意味する。また、メソ多孔体の比表面積については特に制限はないが、700m²/g以上であることが好ましい。比表面積は、吸着等温線からBET等温吸着式を用いてBET比表面積として算出することができる。

【0034】

50

さらに、このようなメソ多孔体は、そのX線回折(XRD)パターンにおいて1.5~30.5nmのd値に相当する回折角度に1本以上のピークを有することが好ましい。X線回折ピークはそのピーク角度に相当するd値の周期構造が試料中にあることを意味する。したがって、1.5~30.5nmのd値に相当する回折角度に1本以上のピークがあることは、細孔が1.5~30.5nmの間隔で規則的に配列していることを意味する。

【0035】

本発明にかかるメソ細孔を有するSi系重合体を得る際に用いられる界面活性剤は特に制限されないが、陽イオン性、陰イオン性、非イオン性のうちのいずれであってもよく、具体的には、アルキルトリメチルアンモニウム、アルキルトリエチルアンモニウム、ジアルキルジメチルアンモニウム、ベンジルアンモニウムなどの塩化物、臭化物、ヨウ化物あるいは水酸化物；脂肪酸塩、アルキルスルホン酸塩、アルキルリン酸塩、ポリエチレンオキサイド系非イオン性界面活性剤、一級アルキルアミンなどが挙げられる。これらの界面活性剤は単独でまたは二種以上混合して用いられる。

【0036】

上記の界面活性剤のうち、ポリエチレンオキサイド系非イオン性界面活性剤としては、疎水性成分として炭化水素基、親水性部分としてポリエチレンオキサイドをそれぞれ有するポリエチレンオキサイド系非イオン性界面活性剤などが挙げられる。このような界面活性剤としては、例えば、一般式 $C_nH_{2n+1}(OCH_2CH_2)_mOH$ で表され、nが10~30、mが1~30であるものが好適に使用できる。また、このような界面活性剤としては、オレイン酸、ラウリン酸、ステアリン酸、パルミチン酸などの脂肪酸とソルビタンとのエステル、あるいはこれらのエステルにポリエチレンオキサイドが付加した化合物を用いることもできる。

【0037】

さらに、このような界面活性剤としては、トリブロックコポリマー型のポリアルキレンオキサイドを用いることもできる。このような界面活性剤としては、ポリエチレンオキサイド(EO)とポリプロピレンオキサイド(PO)からなり、一般式 $(EO)_x(PO)_y(EO)_x$ で表されるものが挙げられる。x、yはそれぞれEO、POの繰り返し数を表すが、xは5~110、yは15~70であることが好ましく、xは13~106、yは29~70であることがより好ましい。上記のトリブロックコポリマーとしては、 $(EO)_{19}(PO)_{29}(EO)_{19}$ 、 $(EO)_{13}(PO)_{70}(EO)_{13}$ 、 $(EO)_5(PO)_{70}(EO)_5$ 、 $(EO)_{13}(PO)_{30}(EO)_{13}$ 、 $(EO)_{20}(PO)_{30}(EO)_{20}$ 、 $(EO)_{26}(PO)_{39}(EO)_{26}$ 、 $(EO)_{17}(PO)_{56}(EO)_{17}$ 、 $(EO)_{17}(PO)_{58}(EO)_{17}$ 、 $(EO)_{20}(PO)_{70}(EO)_{20}$ 、 $(EO)_{80}(PO)_{30}(EO)_{80}$ 、 $(EO)_{106}(PO)_{70}(EO)_{106}$ 、 $(EO)_{100}(PO)_{39}(EO)_{100}$ 、 $(EO)_{19}(PO)_{33}(EO)_{19}$ 、 $(EO)_{26}(PO)_{36}(EO)_{26}$ が挙げられる。これらのトリブロックコポリマーはBASF社、アルドリッチ社などから入手可能であり、また、小規模製造レベルで所望のx値とy値を有するトリブロックコポリマーを得ることができる。

【0038】

また、エチレンジアミンの2個の窒素原子にそれぞれ2本のポリエチレンオキサイド(EO)鎖-ポリプロピレンオキサイド(PO)鎖が結合したスターダイブロックコポリマーも使用することができる。このようなスターダイブロックコポリマーとしては、一般式 $((EO)_x(PO)_y)_2NCH_2CH_2N((PO)_y(EO)_x)_2$ で表されるものが挙げられる。ここでx、yはそれぞれEO、POの繰り返し数を表すが、xは5~110、yは15~70であることが好ましく、xは13~106、yは29~70であることがより好ましい。

【0039】

このような界面活性剤の中では、細孔の秩序性が高いメソ多孔体を得ることができることから、アルキルトリメチルアンモニウム $[C_pH_{2p+1}N(CH_3)_3]$ の塩(好ましくはハロゲン化物塩)を用いることが好ましい。また、その場合は、アルキルトリメチ

10

20

30

40

50

ルアンモニウム中のアルキル基の炭素数は8～22であることがより好ましい。このようなものとしては、塩化オクタデシルトリメチルアンモニウム、塩化ヘキサデシルトリメチルアンモニウム、塩化テトラデシルトリメチルアンモニウム、臭化ドデシルトリメチルアンモニウム、臭化デシルトリメチルアンモニウム、臭化オクチルトリメチルアンモニウム、塩化ドコシルトリメチルアンモニウムなどが挙げられる。

【0040】

上記のような界面活性剤を用いて本発明にかかるSi系重合体を製造する場合においては、前記界面活性剤を含有する溶媒中において前記式(2)で表される有機シラン前駆体を加水分解および縮合反応せしめることにより前記Si系重合体中に前記界面活性剤が導入されてなる多孔体前駆体を得る。前記溶液中の界面活性剤の濃度は1～20質量%であることが好ましい。前記界面活性剤の濃度が前記下限未満になると細孔の形成が不完全となりやすい傾向にあり、他方、前記上限を超えると未反応で溶液中に残留する界面活性剤の量が増大して細孔の均一性が低下しやすい傾向にある。

10

【0041】

本発明の発光材料は、前記式(1)で表される繰り返し単位を有するSi系重合体の他に、界面活性剤を含有するものである。この界面活性剤により発光性化合物の会合を抑制することができ、発光効率や発光強度の低下および濃度消光を抑制することが可能となる。このような界面活性剤としては、前記Si系重合体において例示したものが挙げられる。

【0042】

本発明の発光材料においては、前記Si系重合体に前記界面活性剤を添加してもよいが、前記(共)重合の際に界面活性剤を使用した場合には、それを除去せず、そのまま発光材料に残存させることが好ましい。

20

【0043】

本発明の発光材料中の前記界面活性剤の含有率は、発光材料100質量%に対して20～90質量%が好ましく、30～70質量%がより好ましい。界面活性剤の含有率が前記下限未満になると発光性化合物の会合を十分に抑制できない傾向にあり、他方、前記上限を超えると光の吸収率および発光強度が低下しやすい傾向にある。

【0044】

また、本発明の発光材料は、前記Si系重合体および前記界面活性剤の他に、発光性化合物を含有するものである。なお、この発光性化合物は前記Si系重合体とは異なるものであり、特に発光波長領域が前記Si系重合体と異なるものが好ましい。これにより多色発光が可能となる。

30

【0045】

本発明にかかる発光性化合物としては、特に制限されず、有機色素、金属錯体および無機ナノ粒子が挙げられる。前記有機色素としては、ポルフィリン類、アントラセン類、フルオレセイン、ローダミン(B, 6Gなど)、クマリン、ピレン、ダンシル酸、シアニン色素、メロシアニン色素、スチリル色素、ベンズスチリル色素などが挙げられる。前記金属錯体としては、アルミニウム錯体、希土類元素およびその錯体などが挙げられる。前記無機ナノ粒子としては、CdSに代表される半導体ナノ粒子、YAG:CeやY₂O₂S:Euといった酸化物ナノ粒子などが挙げられる。これらの発光性化合物は1種単独で用いても2種以上を併用してもよい。

40

【0046】

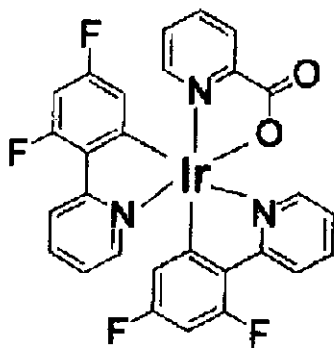
また、本発明にかかる発光性化合物として燐光性化合物を用いてもよい。このような燐光性化合物には、蛍光性化合物と比較して吸収と発光波長の差が大きいものがある。したがって、このような燐光性化合物を使用することによって、短波長の光を吸収して長波長の発光を効率的に出すことが可能となる。このような燐光性化合物を例えば近紫外線領域や青色光線領域に吸収帯を有する本発明にかかるSi系重合体と組み合わせることによって、高効率の発光ダイオードが発する近紫外線または青色光線を効率よく吸収し、高い発光効率を達成することが可能となる。前記燐光性化合物としては、特に限定されないが、

50

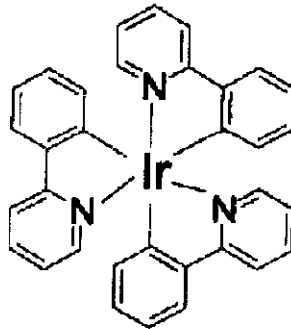
室温において比較的高効率の発光が可能な以下の構造式のものが好適なものとして挙げられる。

【0047】

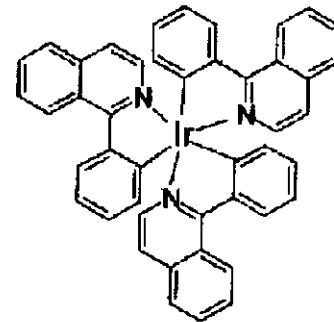
【化4】



FIrpic(水色)

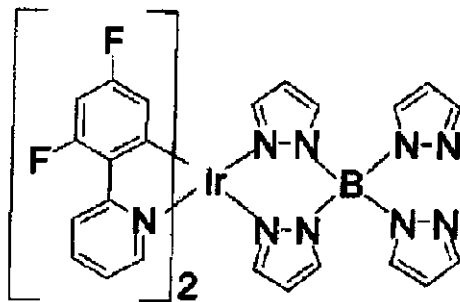


Ir(ppy)3(緑色)



Ir(piq)3(赤色)

10



FIr6(青色)

20

30

【0048】

本発明の発光材料中の前記発光性化合物の含有率は、発光材料100質量%に対して0.01~10質量%が好ましく、0.1~5質量%がより好ましい。発光性化合物の含有率が前記下限未満になると発光性化合物による発光が不十分となり、十分に多色発光されない傾向にあり、他方、前記上限を超えると発光性化合物の分散が不十分となり消光しやすい傾向にある。また、前記発光性化合物の含有率を調整することにより発光材料の発光色を容易に調整することが可能となる。

【0049】

本発明の発光材料は、前記Si系重合体、前記界面活性剤および前記発光性化合物の他に、必要に応じて重合防止剤および／または酸化防止剤を含有するものである。前記重合防止剤および酸化防止剤としては、従来公知のものをを用いることが可能であり、例えば、フェノール系化合物が好ましく、ヒドロキノンおよびその誘導体が好ましい。このような重合防止剤および／または酸化防止剤を添加することによって、発光材料の安定性、例えば、光照射（特に紫外線照射）に対する発光材料の耐久性が向上する。

40

【0050】

本発明の発光材料中の前記重合防止剤および酸化防止剤の含有率は、発光材料100質量%に対して0.01~30質量%が好ましく、0.2~20質量%がより好ましい。重合防止剤および酸化防止剤の含有率が前記下限未満になると発光材料の安定性が十分に向上しない傾向にあり、他方、前記上限を超えると発光効率が低下しやすい傾向にある。

50

【0051】

本発明の発光材料においては、前記Si系重合体の形態は特に限定されず、例えば、粒子状、薄膜状、さらにはその薄膜を所定の形状にパターンニングしたパターン状などが挙げられる。また、本発明の発光材料においては、前記Si系重合体をFSMなどのメソポーラスシリカに担持してもよい。

【0052】

本発明の発光材料を製造する場合、前記シランモノマーと前記界面活性剤と前記発光性化合物とを混合した後、前記シランモノマーを重合せしめてもよい。これにより前記シランモノマーの重合体の細孔内に前記界面活性剤と前記発光性化合物と充填することが可能となり、発光材料を効率的に発光させることができる。また、前記シランモノマーと前記界面活性剤とを混合して前記シランモノマーを（部分）重合せしめた後、この溶液に前記発光性化合物を添加してもよい。このとき、前記発光性化合物は適当な溶媒に溶解させて前記溶液に添加することが好ましい。これにより前記溶液に前記発光性化合物を均一に混合することが可能となり、発光材料を効率的に発光させることができる。

10

【0053】

例えば、薄膜状の発光材料を得る場合には、先ず、前記界面活性剤を含む酸性溶液（塩酸、硝酸等の水溶液またはアルコール溶液など）に前記シランモノマーを添加し、この溶液を攪拌して反応（部分加水分解および部分縮合反応）せしめてその部分重合体を含むゾル溶液を製造する。このような前記シランモノマーの加水分解反応はpHが低い領域で起こりやすいことから、系のpHを低くすることにより部分重合を促進することができる。このとき、pHは2以下であることが好ましく、1.5以下であることがより好ましい。また、その際の反応温度は15～25℃程度が好ましく、反応時間は30分間～1日間程度が好ましい。

20

【0054】

次に、このようにして得られたゾル溶液に前記発光性化合物を添加し、これを基板に塗布することにより薄膜状の発光材料を作製することができる。前記ゾル溶液を基板に塗布する方法としては特に制限されず、各種コーティング方法を適宜採用することができる。例えば、溶液キャスト法や、バーコーター、ロールコーター、グラビアコーターなどを用いて塗布する方法、ディップコーティング、スピンコーティング、スプレーコーティングといった方法などが挙げられる。さらに、ゾル溶液をインクジェット法により塗布することにより、基板にパターン状の発光材料を形成することも可能である。

30

【0055】

次いで、得られた薄膜を25～120℃程度で乾燥せしめ、前記部分重合体の重縮合反応を進めて三次元的な架橋構造を形成させることが好ましい。得られる薄膜の平均膜厚は2μm以下であることが好ましく、0.1～0.5μmであることがより好ましい。

【0056】

また、このような薄膜状の発光材料は、特開2001-130911号公報等に記載の方法に準拠して得ることが可能である。

【実施例】

【0057】

以下、実施例および比較例に基づいて本発明をより具体的に説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。なお、得られた薄膜の紫外／可視吸収スペクトルおよび発光スペクトルは、JASCO社製「FP-6600 Spectrofluorometer」を用いて測定した。

40

【0058】

（合成例1）

<1, 3, 6, 8-テトラキス[4-(3-トリエトキシシリルプロピルアミノカルボニルオキシ)フェニル]ピレンの合成>

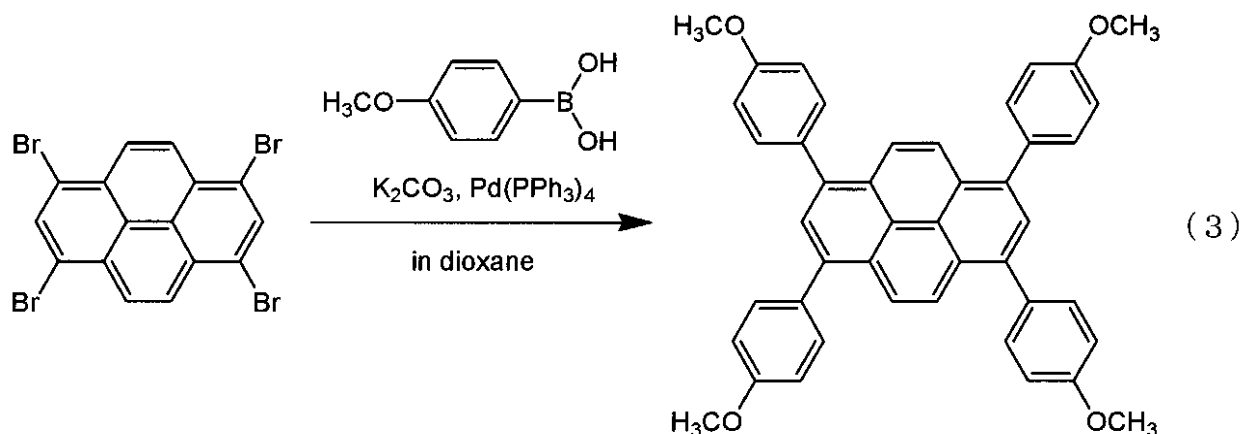
先ず、アルゴン雰囲気下で、1, 3, 6, 8-テトラプロモピレン（4.14g、8.0mmol）、4-メトキシフェニルボロン酸（7.29g、48.0mmol）、K₂

50

CO_3 (8.85 g、64.0 mmol) および $\text{Pd}(\text{PPh}_3)_4$ (0.148 g、0.128 mmol) を混合し、この混合物に脱水 1, 4-ジオキサン (80 ml) を添加した。この混合物を、アルゴン雰囲気下、85℃で70時間攪拌して下記反応式 (3) :

【0059】

【化5】



【0060】

で表される反応を実施した。次いで、室温まで冷却した後、反応生成物を濃塩酸と水の混合物 (体積比 1 : 3) に注ぎ、0.5時間攪拌した。その後、クロロホルムを用いて有機相を抽出し、無水 MgSO_4 を添加して乾燥した。この有機相からろ過により MgSO_4 を除去し、ロータリーエバポレーターで溶媒を留去した。残渣をトルエンで再結晶して黄色結晶の 1, 3, 6, 8-テトラキス (4-メトキシフェニル) ピレン (4.65 g、収率 93%) を得た。

20

【0061】

この 1, 3, 6, 8-テトラキス (4-メトキシフェニル) ピレンを $^1\text{H-NMR}$ 測定により同定した。その結果を以下に示す。

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz, CDCl_3) : δ 8.16 (s, 4H)、7.96 (s, 2H)、7.59 (d, $J = 8.7 \text{ Hz}$, 8H)、7.07 (d, $J = 8.7 \text{ Hz}$, 8H)、3.91 (s, 12H)。

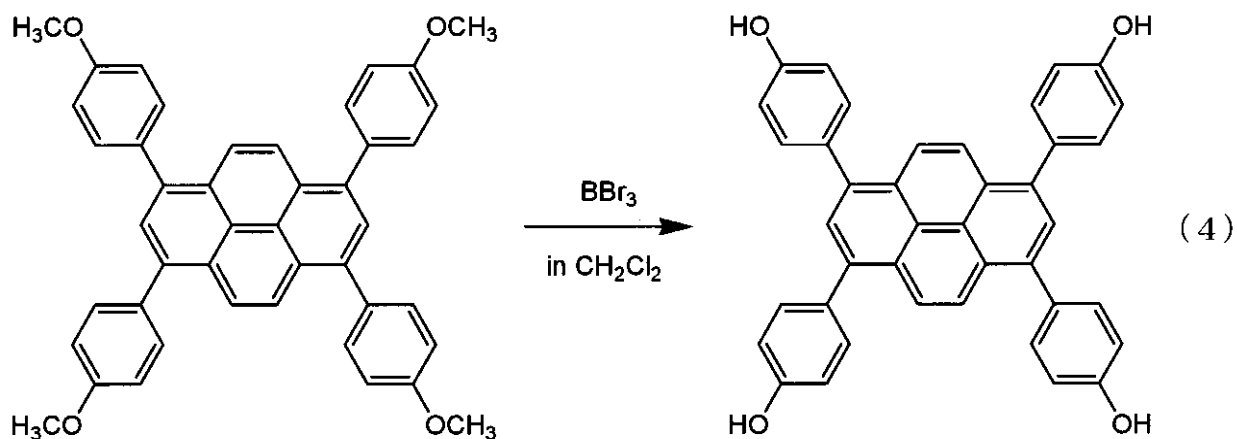
30

【0062】

次に、1, 3, 6, 8-テトラキス (4-メトキシフェニル) ピレン (4.00 g、6.38 mmol) を蒸留ジクロロメタン (300 ml) に溶解した後、0℃に冷却した。この溶液に 1 mol/L の BBr_3 ジクロロメタン溶液 (32 ml) を徐々に滴下し、0℃で0.5時間、その後、室温で15時間攪拌して、下記反応式 (4) :

【0063】

【化 6】



10

【0064】

で表される反応を実施した。次いで、2時間加熱還流した後、反応生成物を室温まで冷却し、水(200ml)を添加して反応を停止した。生じた沈澱を吸引ろ過により回収し、エタノールに溶解し、水を加えて再沈澱させた。その後、沈澱を吸引ろ過により回収し、真空乾燥して、黄緑色固体の1, 3, 6, 8-テトラキス(4-ヒドロキシフェニル)ピレン(3.40g、収率93%)を得た。

20

【0065】

この1, 3, 6, 8-テトラキス(4-ヒドロキシフェニル)ピレンを $^1\text{H-NMR}$ 測定により同定した。その結果を以下に示す。

$^1\text{H-NMR}$ (400MHz, CDCl_3): δ 9.68(s, 4H)、8.11(s, 4H)、7.84(s, 2H)、7.48(d, $J=8.5\text{Hz}$, 8H)、6.97(d, $J=8.5\text{Hz}$, 8H)。

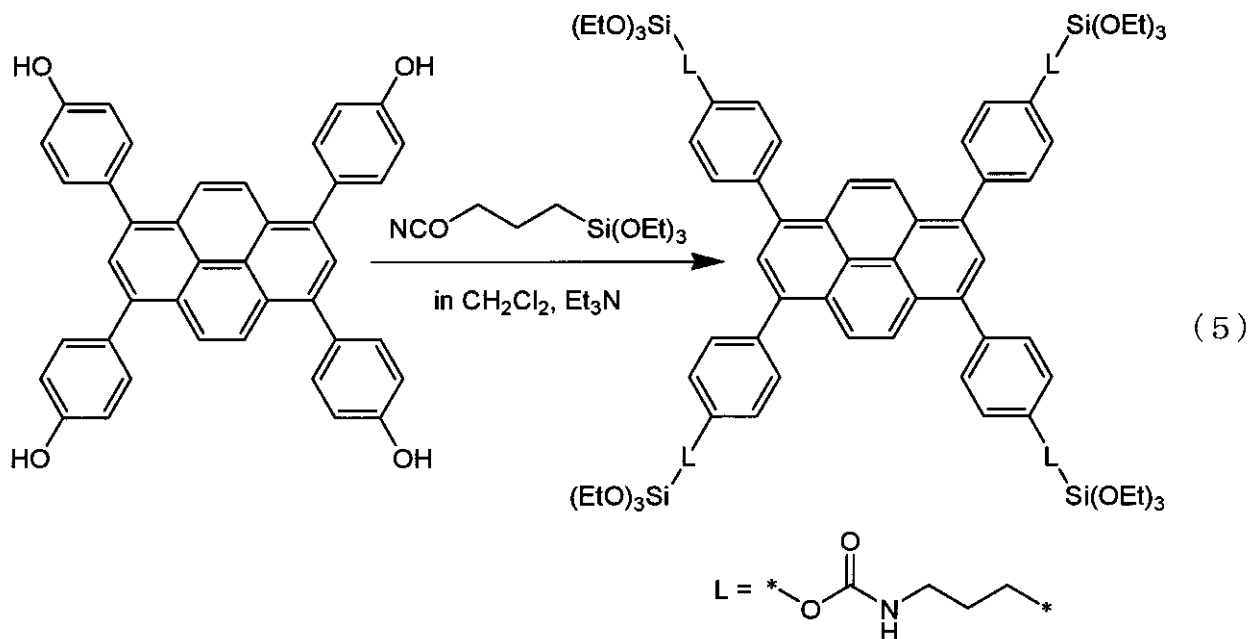
【0066】

次に、1, 3, 6, 8-テトラキス(4-ヒドロキシフェニル)ピレン(0.80g、1.40mmol)、蒸留ジクロロメタン(80ml)およびトリエチルアミン(10ml)を混合し、この混合物に3-トリエトキシシリルプロピルイソシアネート(1.98g、8.00mmol)を添加し、室温で24時間攪拌した後、2時間加熱還流して下記反応式(5)：

30

【0067】

【化 7】



10

【0068】

20

で表される反応を実施した。得られた溶液からロータリーエバポレーターで溶媒を留去した後、トルエンを添加して攪拌し、ろ過により不溶物を除去した。得られたトルエン溶液にヘキサンを加えて再沈澱させる操作を2回繰り返した後、吸引ろ過により沈澱を回収し、真空乾燥して淡黄色固体の1, 3, 6, 8-テトラキス[4-(3-トリエトキシシリルプロピルアミノカルボニルオキシ)フェニル]ピレン(1.62 g、収率74%)を得た。

【0069】

30

この1, 3, 6, 8-テトラキス[4-(3-トリエトキシシリルプロピルアミノカルボニルオキシ)フェニル]ピレンを $^1\text{H-NMR}$ 測定、 $^{13}\text{C-NMR}$ 測定、IR測定およびMS測定により同定した。その結果を以下に示す。

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz, CDCl_3) : δ 8.16 (s, 4H)、7.97 (s, 2H)、7.63 (d, $J=8.3\text{ Hz}$, 8H)、7.31 (d, $J=8.3\text{ Hz}$, 8H)、5.59 (t, $J=5.9\text{ Hz}$, 4H)、3.87 (q, $J=7.0\text{ Hz}$, 24H)、3.33 (m, 8H)、1.76 (m, 8H)、1.27 (t, $J=7.0\text{ Hz}$, 36H)、0.73 (t, $J=8.0\text{ Hz}$, 8H)。

$^{13}\text{C-NMR}$ (100 MHz, CDCl_3) : δ 154.5、150.5、137.7、136.4、131.3、129.6、128.0、125.8、125.2、121.4、58.4、43.5、23.0、18.2、7.6

IR (ATR, cm^{-1}) : 3329 (NH s t)、3039、2974、2928、2885、1716 (C=O s t)、1533、1489、1203、1165、1070。

MS (MALDI, m/z) : calcd for 1558.6790 $[\text{M}]^+$, found 1558.6809。

【0070】

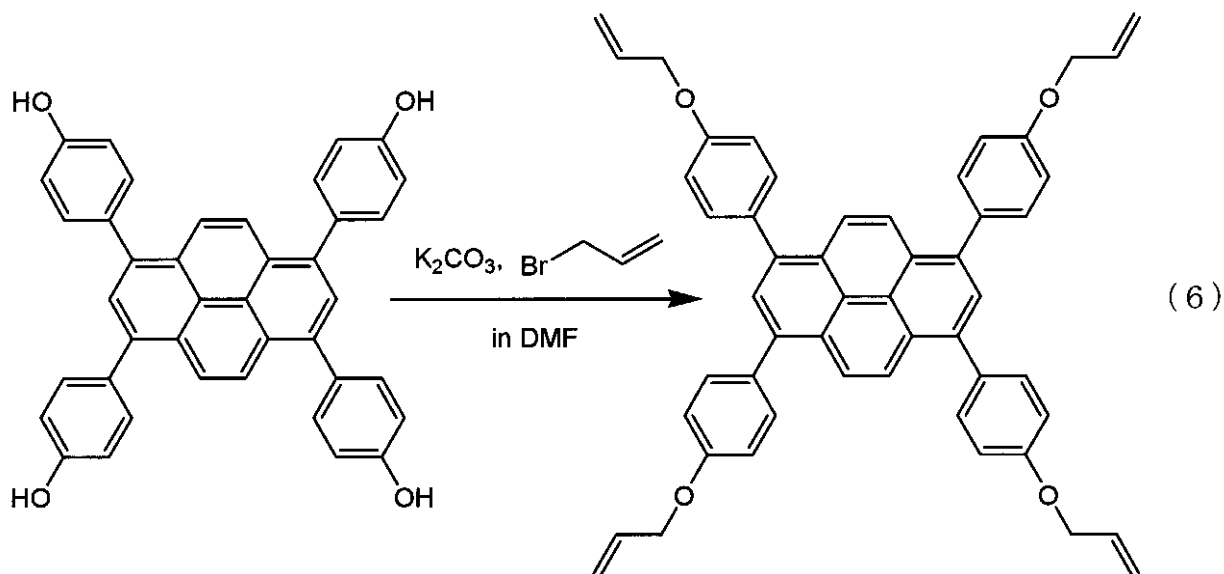
(合成例2)

合成例1と同様にして1, 3, 6, 8-テトラキス(4-ヒドロキシフェニル)ピレンを合成した後、この1, 3, 6, 8-テトラキス(4-ヒドロキシフェニル)ピレン(0.6 g、1.05 mmol)、蒸留ジメチルホルムアミド(20 ml)および炭酸カリウム(2.49 g、18.0 mmol)を混合し、この混合物にアシルブロミド(1.45 g、12.0 mmol)を添加し、室温で20時間攪拌して下記反応式(6)：

50

【0071】

【化8】



10

【0072】

で表される反応を実施した。得られた反応溶液に水（100ml）を添加し、析出した沈澱物を吸引ろ過により回収した後、水およびエタノールで洗浄した。ろ液をエタノール中で加熱・攪拌した後、吸引ろ過を施し、真空乾燥して淡黄色固体の1, 3, 6, 8-テトラキス〔4-（アリルオキシ）フェニル〕ピレン（0.67g、収率87%）を得た。

20

【0073】

この1, 3, 6, 8-テトラキス〔4-（アリルオキシ）フェニル〕ピレンを¹H-NMR測定により同定した。その結果を以下に示す。

¹H-NMR（400MHz, CDCl₃）：δ 8.15（s, 4H）、7.95（s, 2H）、7.58（d, J=8.7Hz, 8H）、7.08（d, J=8.7Hz, 8H）、6.13（ddt, J=17.4, 10.4, 5.4Hz, 4H）、5.49（dd, J=17.4, 3.0Hz, 4H）、5.34（dd, J=10.4, 3.0Hz, 4H）、4.65（d, J=5.4Hz, 8H）。

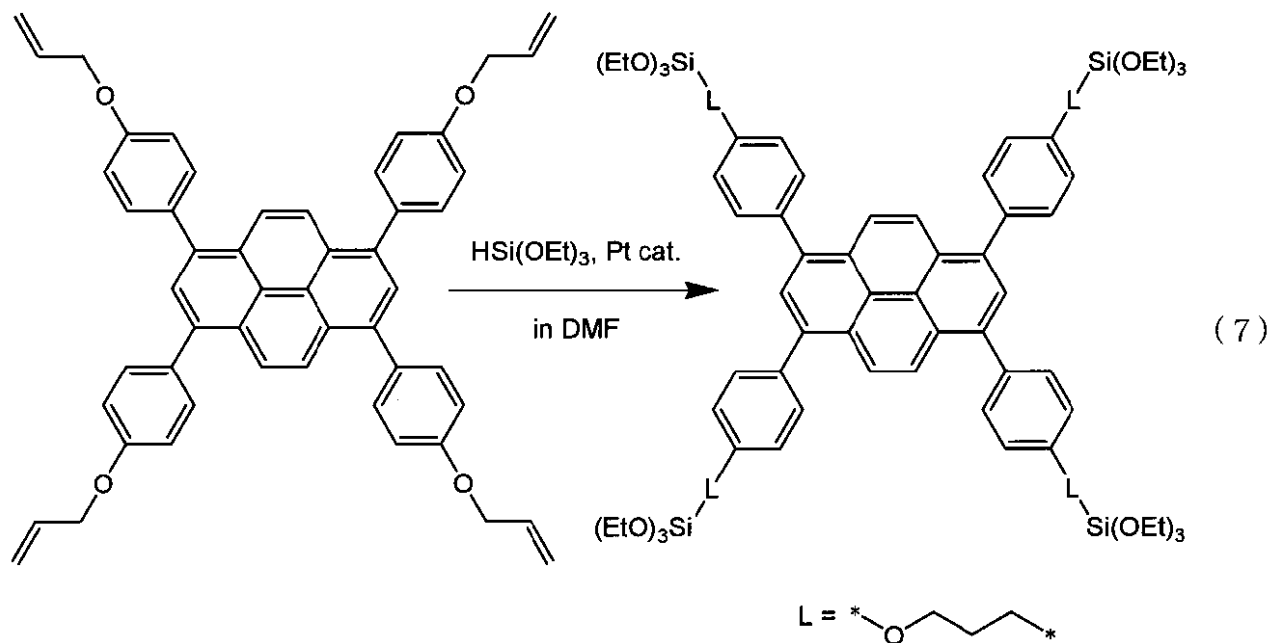
30

【0074】

次に、1, 3, 6, 8-テトラキス〔4-（アリルオキシ）フェニル〕ピレン（0.6g、0.82mmol）、蒸留テトラヒドロフラン（20ml）およびトリエトキシシラン（0.82g、5.00mmol）を混合し、この混合物に白金触媒（白金（0）-1, 3-ジビニル-1, 1, 3, 3-テトラメチルジシロキサン錯体の3質量%キシレン溶液、50mg）を添加し、60℃で20時間攪拌して下記反応式（7）：

【0075】

【化 9】



10

【0076】

20

で表される反応を実施した。得られた溶液を室温まで冷却してセライトおよび活性炭でろ過した後、溶媒をロータリーエバポレーターで除去し、真空乾燥して淡黄色固体の1, 3, 6, 8-テトラキス[4-(3-トリエトキシシリルプロピルオキシ)フェニル]ピレン(1.07 g、収率94%)を得た。

【0077】

この1, 3, 6, 8-テトラキス[4-(3-トリエトキシシリルプロピルオキシ)フェニル]ピレンを¹H-NMR測定により同定した。その結果を以下に示す。

¹H-NMR(400 MHz, CDCl₃): δ 8.16 (s, 4H)、7.96 (s, 2H)、7.57 (d, J = 8.4 Hz, 8H)、7.07 (d, J = 8.4 Hz, 8H)、4.06 (t, J = 6.5 Hz, 8H)、3.88 (q, J = 7.0 Hz, 24H)、2.0 (m, 8H)、1.76 (m, 8H)、1.27 (t, J = 7.0 Hz, 36H)、0.85 (m, 8H)。

30

【0078】

(参考例1)

＜テトラフェニルピレン骨格含有Si系重合体／界面活性剤からなる薄膜の作製＞

テトラヒドロフランとエタノールとの混合溶媒(質量比1:1、1.0 g)に、合成例1で得た1, 3, 6, 8-テトラキス[4-(3-トリエトキシシリルプロピルオキシ)フェニル]ピレン(15 mg)、テトラエトキシシラン(15 mg)、ノニオン性界面活性剤P123(商品名、アルドリッチ社製、化学式: HO(CH₂CH₂O)₂₀(CH₂CH(CH₃)O)₇₀(CH₂CH₂O)₂₀H、20 mg)、2 mol/L塩酸(4 μl)および純水(20 μl)を添加して混合し、この混合物を室温で24時間攪拌してゾル溶液を調製した。

40

【0079】

得られたゾル溶液を、スピンキャスト法(回転数: 4000 rpm、30秒)または溶液キャスト法により石英基板上およびガラス基板上にそれぞれ塗布し、テトラフェニルピレン骨格含有Si系重合体／界面活性剤からなる薄膜を得た。

【0080】

この薄膜の紫外／可視吸収スペクトル(点線)および発光スペクトル(実線)を図1に、X線回折パターンを図2に示す。得られた薄膜は390 nm付近を中心として近紫外から可視光域に吸収を持つものであり、また、450 nm付近の青色発光を示すものであ

50

た。400 nmの光で励起した場合の蛍光量子収率は0.75であった。また、図2に示した結果から明らかなように、この薄膜は周期約8.5 nmのメソ構造を有するものであることが確認された。

【0081】

(実施例1)

<テトラフェニルピレン骨格含有Si系重合体／界面活性剤／蛍光色素からなる薄膜の作製>

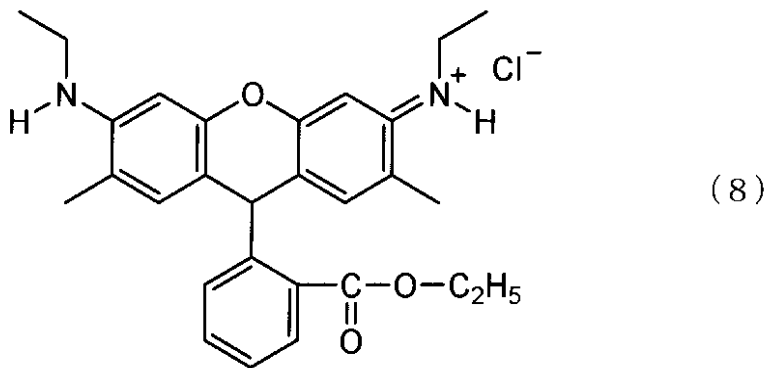
テトラヒドロフランとエタノールとの混合溶媒（質量比1：1、10 ml）に、合成例1で得た1, 3, 6, 8-テトラキス〔4-（3-トリエトキシシリルプロピルアミノカルボニルオキシ）フェニル〕ピレン（300 mg）、テトラエトキシシラン（300 mg）、ノニオン性界面活性剤P123（400 mg）、2 mol/L塩酸（80 μ l）および純水（400 μ l）を添加して混合し、さらにテトラヒドロフランとエタノールとの混合溶媒（質量比1：1）を添加して全量が20 mlとなるように混合物を調製した。次に、この混合物を室温で24時間攪拌してゾル溶液（テトラフェニルピレン骨格の濃度：9.6 mmol/L）を調製した。

【0082】

得られたゾル溶液に、下記式（8）：

【0083】

【化10】



【0084】

で表される蛍光色素ローダミン6Gのエタノール溶液（濃度：9.6 mmol/L）を、テトラフェニルピレン骨格100モルに対してローダミン6Gが0.2、0.5、1または2モルとなるように添加した。この蛍光色素を含むゾル溶液をスピncキャスト法（回転数：4000 rpm、30秒）により石英基板上に塗布し、テトラフェニルピレン骨格含有Si系重合体／界面活性剤／蛍光色素からなる薄膜を得た。この薄膜の400 nmの励起光に対する発光スペクトルを図3に、発光色の色度図を図4に、色度座標を表1に示す。

【0085】

【表1】

ローダミン6G添加量(モル)	色度座標(x, y)
0	(0.148, 0.135)
0.2	(0.211, 0.219)
0.5	(0.264, 0.282)
1	(0.320, 0.338)
2	(0.360, 0.367)

【0086】

図 3 に示した結果から明らかなように、前記薄膜においては、450 nm 付近のテトラフェニルピレン骨格からの発光に加えて、テトラフェニルピレン骨格からローダミン 6 G への励起エネルギー移動によるローダミン 6 G からの発光 (560 nm 付近) が観察された。

【0087】

また、図 4 および表 1 に示した結果から明らかなように、前記薄膜はローダミン 6 G の添加量に応じて青色から白色の発光を示した。ローダミン 6 G の添加量が 0.2 モルの薄膜の 400 nm 励起時における量子収率は 0.68 であった。

【0088】

(実施例 2)

<テトラフェニルピレン骨格含有 Si 系重合体／界面活性剤／蛍光色素／ヒドロキノンからなる薄膜の作製>

実施例 1 で調製したローダミン 6 G を含むゾル溶液に、さらにヒドロキノンのテトラヒドロフラン溶液 (濃度: 9.6 mmol/L) を、テトラフェニルピレン骨格に対してヒドロキノンが等モルになるように添加した。界面活性剤と蛍光色素とを含むゾル溶液の代わりにこの界面活性剤と蛍光色素とヒドロキノンとを含むゾル溶液を用いた以外は実施例 1 と同様にしてテトラフェニルピレン骨格含有 Si 系重合体／界面活性剤／蛍光色素／ヒドロキノンからなる薄膜を作製した。この薄膜の 400 nm の励起光に対する発光スペクトルを図 5 に、発光色の色度図を図 6 に、色度座標を表 2 に示す。

【0089】

【表 2】

ローダミン6G添加量(モル)	色度座標(x, y)
0	(0.148, 0.130)
0.2	(0.198, 0.196)
0.5	(0.247, 0.256)
1	(0.289, 0.297)
2	(0.334, 0.329)

【0090】

図 5 に示した結果から明らかなように、前記薄膜においては、450 nm 付近のテトラフェニルピレン骨格からの発光に加えて、テトラフェニルピレン骨格からローダミン 6 G への励起エネルギー移動によるローダミン 6 G からの発光 (560 nm 付近) が観察された。

【0091】

また、図 6 および表 2 に示した結果から明らかなように、前記薄膜はローダミン 6 G の添加量に応じて青色から白色の発光を示した。ローダミン 6 G の添加量が 0.2 モルの薄膜の 400 nm 励起時における量子収率は 0.61 であった。

【0092】

(比較例 1)

<テトラフェニルピレン骨格含有 Si 系重合体／蛍光色素からなる薄膜の作製>

テトラヒドロフランとエタノールとの混合溶媒 (質量比 1:1、1 ml) に、合成例 1 で得た 1, 3, 6, 8-テトラキス [4-(3-トリエトキシシリルプロピルアミノカルボニルオキシ)フェニル]ピレン (30 mg)、テトラエトキシシラン (30 mg)、2 mol/L 塩酸 (4 μ l) および純水 (20 μ l) を添加して混合し、さらにテトラヒドロフランとエタノールとの混合溶媒 (質量比 1:1) を添加して全量が 2 ml となるように混合物を調製した。次に、この混合物を室温で 24 時間攪拌して界面活性剤を含まないゾル溶液 (テトラフェニルピレン骨格の濃度: 9.6 mmol/L) を調製した。

【0093】

得られたゾル溶液にローダミン 6 G のエタノール溶液（濃度：9.6 mmol/L）を、テトラフェニルピレン骨格 100 モルに対してローダミン 6 G が 0.2 モルまたは 1 モルとなるように添加した。界面活性剤を含むゾル溶液の代わりにこの界面活性剤を含まないゾル溶液を用いた以外は実施例 1 と同様にしてテトラフェニルピレン骨格含有 Si 系重合体／蛍光色素からなる薄膜（界面活性剤なし）を作製した。この薄膜は 400 nm の光を吸収して蛍光を発した。図 7 には、ローダミン 6 G の添加量が 0.2 モルの薄膜の 400 nm 励起時における発光スペクトルを示す。

【0094】

図 7 に示した結果から明らかなように、前記薄膜においては、450 nm 付近のテトラフェニルピレン骨格からの発光に加えて、テトラフェニルピレン骨格からローダミン 6 G への励起エネルギー移動によるローダミン 6 G からの発光（560 nm 付近）が観察された。ローダミン 6 G の添加量が 0.2 モルの場合には、界面活性剤を含まない薄膜の 400 nm 励起時における量子収率は 0.23 であり、界面活性剤を添加した場合（実施例 1）に比べて大きく低下した。

【0095】

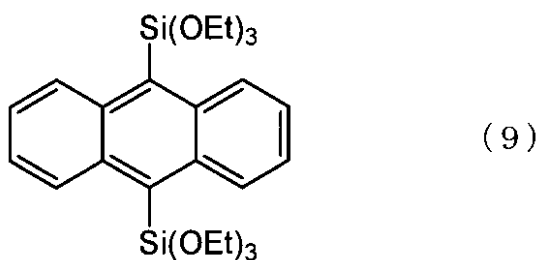
（比較例 2）

＜アントラセン骨格含有 Si 系重合体／蛍光色素からなる薄膜の作製＞

テトラヒドロフランとエタノールとの混合溶媒（質量比 1：1、1 ml）に、下記式（9）：

【0096】

【化 11】



【0097】

で表される 9,10-ビス（トリエトキシシリル）アントラセン（9.7 mg）、テトラエトキシシラン（9.7 mg）、2 mmol/L 塩酸塩酸（8 μl）および純水（40 μl）を添加して混合し、さらにテトラヒドロフランとエタノールとの混合溶媒（質量比 1：1）を添加して全量が 2 ml となるように混合物を調製した。次に、この混合物を室温で 24 時間攪拌して界面活性剤を含まないゾル溶液（アントラセン骨格の濃度：9.6 mmol/L）を調製した。

【0098】

得られたゾル溶液にローダミン 6 G のエタノール溶液（濃度：9.6 mmol/L）を、アントラセン骨格 100 モルに対してローダミン 6 G が 0.2 モルまたは 1 モルとなるように添加した。テトラフェニルピレン骨格含有 Si 系重合体のゾル溶液（界面活性剤なし）の代わりにこのアントラセン骨格含有 Si 系重合体のゾル溶液（界面活性剤なし）を用いた以外は比較例 1 と同様にしてアントラセン骨格含有 Si 系重合体／蛍光色素からなる薄膜（界面活性剤なし）を作製した。この薄膜は 400 nm の光を吸収して蛍光を発した。図 8 には、ローダミン 6 G の添加量が 0.2 モルの薄膜の 400 nm 励起時における発光スペクトルを示す。

【0099】

図 8 に示した結果から明らかなように、前記薄膜においては、アントラセン骨格からの発光は 500 nm 付近にわずかに観察されるのみであり、アントラセン骨格からローダミン 6 G への励起エネルギー移動によるローダミン 6 G からの発光（560 nm 付近）が観察された。ローダミン 6 G の添加量が 0.2 モルの場合には、アントラセン骨格を有する

薄膜の400nm励起時における量子収率は0.04であり、テトラフェニルピレン骨格を有する薄膜の場合（比較例1）に比べて大きく低下した。

【0100】

（比較例3）

＜アントラセン骨格含有Si系重合体／界面活性剤／蛍光色素からなる薄膜の作製＞

テトラヒドロフランとエタノールとの混合溶媒（質量比1：1、1ml）に、9,10-ビス（トリエトキシシリル）アントラセン（9.7mg）、テトラエトキシシラン（9.7mg）、ノニオン性界面活性剤P123（20mg）、2mol/L塩酸（8μl）および純水（40μl）を添加して混合し、さらにテトラヒドロフランとエタノールとの混合溶媒（質量比1：1）を添加して全量が2mlとなるように混合物を調製した。次に、この混合物を室温で24時間攪拌してゾル溶液（アントラセン骨格の濃度：9.6mmol/L）を調製した。

10

【0101】

得られたゾル溶液にローダミン6Gのエタノール溶液（濃度：9.6mmol/L）を、アントラセン骨格100モルに対してローダミン6Gが0.2モルまたは1モルとなるように添加した。テトラフェニルピレン骨格含有Si系重合体のゾル溶液（界面活性剤あり）の代わりにこのアントラセン骨格含有Si系重合体のゾル溶液（界面活性剤あり）を用いた以外は実施例1と同様にしてアントラセン骨格含有Si系重合体／界面活性剤／蛍光色素からなる薄膜を作製した。この薄膜は400nmの光を吸収して蛍光を発した。図9には、ローダミン6Gの添加量が0.2モルの薄膜の400nm励起時における発光スペクトルを示す。

20

【0102】

図9に示した結果から明らかなように、前記薄膜においては、アントラセン骨格からの発光は500nm付近にわずかに観察されるのみであり、アントラセン骨格からローダミン6Gへの励起エネルギー移動によるローダミン6Gからの発光（560nm付近）が観察された。ローダミン6Gの添加量が0.2モルの場合には、アントラセン骨格を有する薄膜の400nm励起時における量子収率は0.25であり、テトラフェニルピレン骨格を有する薄膜の場合（実施例1）に比べて大きく低下した。

【0103】

＜耐久性試験＞

実施例1～2および比較例2～3で作製したSi系重合体薄膜のうち、テトラフェニルピレン骨格100モルまたはアントラセン骨格100モルに対してローダミン6Gの添加量が1モルのSi系重合体薄膜に対して、400nmの光を大気中で3J/cm²（0.05mW/cm²、16.7時間）照射した。光照射後の400nmにおける吸収強度を光照射前の吸収強度に対する相対値（光照射前の吸収強度を100とする。）として求めた。その結果を図10に示す。

30

【0104】

図10に示した結果から明らかなように、ヒドロキノンを含まない本発明のSi系重合体薄膜の場合（実施例1）には光照射による吸収強度の低下は約4%であったのに対して、ヒドロキノンを含む場合（実施例2）には2%未満であった。他方、アントラセン骨格を有するSi系重合体薄膜（ヒドロキノンなし）においては、光照射による吸収強度の低下は、界面活性剤を含まない場合（比較例2）には30%以上、界面活性剤を含む場合（比較例3）には60%以上であった。

40

【産業上の利用可能性】

【0105】

以上説明したように、本発明によれば、発光材料に、近紫外線や青色光線を吸収させて高効率で発光させ、さらに多色発光させることが可能となる。

【0106】

したがって、本発明の発光材料は、耐久性に優れるため、発光ダイオードなどの発光素子などに有用であり、特に多色発光が必要な発光ダイオードに有用である。

50

【図面の簡単な説明】

【0107】

【図1】 参考例1で得たSi系重合体薄膜の紫外／可視吸収スペクトルおよび発光スペクトルを示すグラフである。

【図2】 参考例1で得たSi系重合体薄膜のX線回折パターンを示すグラフである。

【図3】 実施例1で得たSi系重合体薄膜の400nmの励起光に対する発光スペクトルを示すグラフである。

【図4】 実施例1で得たSi系重合体薄膜の発光の色度を示すグラフである。

【図5】 実施例2で得たSi系重合体薄膜の400nmの励起光に対する発光スペクトルを示すグラフである。

【図6】 実施例2で得たSi系重合体薄膜の発光の色度を示すグラフである。

【図7】 比較例1で得た蛍光色素の添加量が0.2モルのSi系重合体薄膜の400nmの励起光に対する発光スペクトルを示すグラフである。

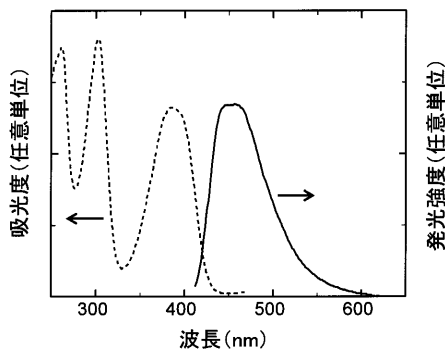
【図8】 比較例2で得た蛍光色素の添加量が0.2モルのSi系重合体薄膜の400nmの励起光に対する発光スペクトルを示すグラフである。

【図9】 比較例3で得た蛍光色素の添加量が0.2モルのSi系重合体薄膜の400nmの励起光に対する発光スペクトルを示すグラフである。

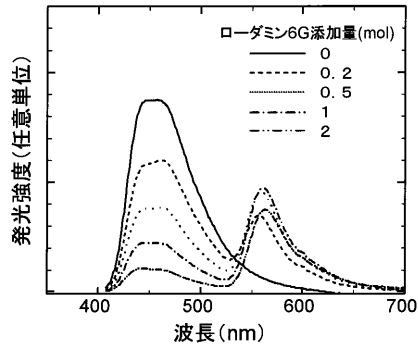
【図10】 実施例1～2および比較例2～3で得た蛍光色素の添加量が1モルのSi系重合体薄膜の光照射前後の吸収強度を示すグラフである。

10

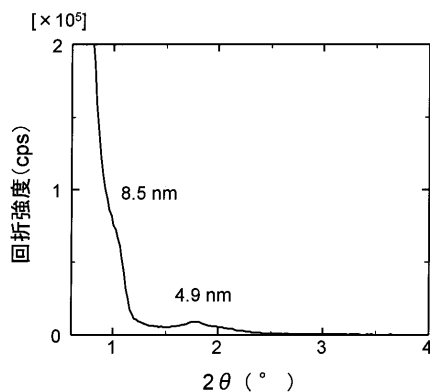
【図1】



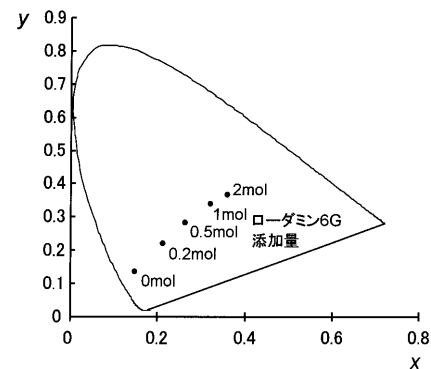
【図3】



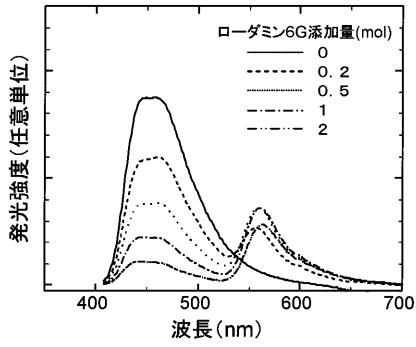
【図2】



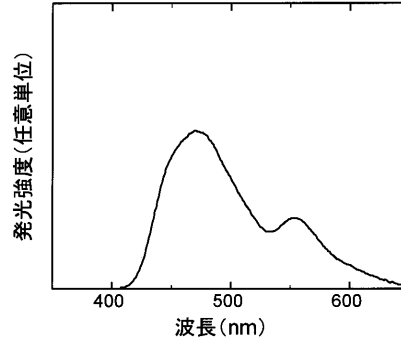
【図4】



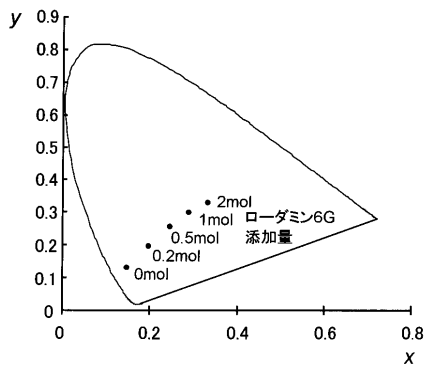
【図 5】



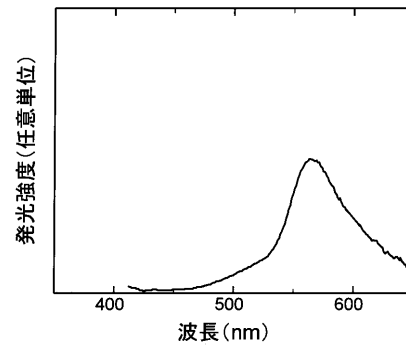
【図 7】



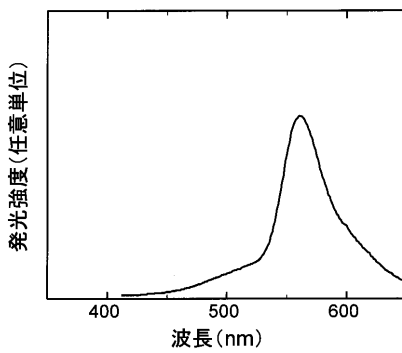
【図 6】



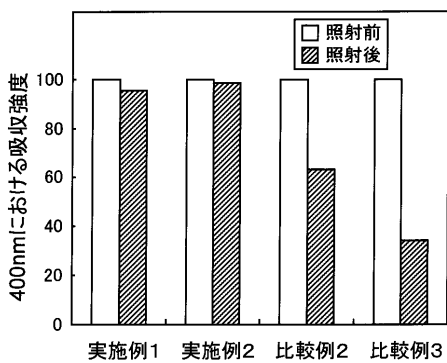
【図 8】



【図 9】



【図 10】



フロントページの続き

(72)発明者 谷 孝夫

愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道4 1 番地の1 株式会社豊田中央研究所内

(72)発明者 稲垣 伸二

愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道4 1 番地の1 株式会社豊田中央研究所内

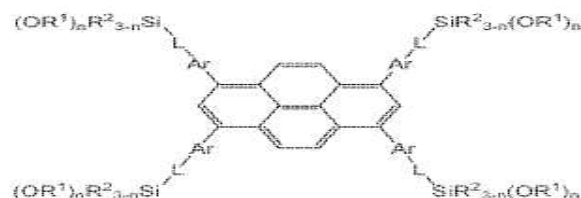
【要約の続き】

【選択図】なし

专利名称(译)	发光材料		
公开(公告)号	JP2009249504A	公开(公告)日	2009-10-29
申请号	JP2008099394	申请日	2008-04-07
[标]申请(专利权)人(译)	株式会社豊田中央研究所		
申请(专利权)人(译)	株式会社豊田中央研究所		
[标]发明人	溝下 倫大 後藤 康友 堀井 満正 谷 孝夫 稲垣 伸二		
发明人	溝下 倫大 後藤 康友 堀井 満正 谷 孝夫 稲垣 伸二		
IPC分类号	C09K11/06		
FI分类号	C09K11/06.690		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

解决的问题：提供一种具有优异的耐久性，吸收近紫外线和蓝光，高效发光并发出多色光的发光材料。 解决方案：以下公式 发光材料，其包含通过使以表面活性剂为代表的有机硅烷前体与发光化合物聚合而得到的含四苯基py骨架的Si聚合物。 [选择图]无



(2)