

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2007-538116**(P2007-538116A)**

(43) 公表日 平成19年12月27日(2007.12.27)

(51) Int.Cl.		F I			テーマコード (参考)
CO9K 11/06 (2006.01)		CO9K 11/06	660		3K107
HO1L 51/50 (2006.01)		CO9K 11/06	690		
		HO5B 33/14	B		

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 28 頁)

(21) 出願番号	特願2007-512061 (P2007-512061)	(71) 出願人	597035528
(86) (22) 出願日	平成17年5月10日 (2005.5.10)		メルク パテント ゲーエムベーハー
(85) 翻訳文提出日	平成19年1月10日 (2007.1.10)		ドイツ国, D-64293 ダルムスタット
(86) 国際出願番号	PCT/EP2005/005021		ド フランクフルター ストラッセ 25
(87) 国際公開番号	W02005/111172		O
(87) 国際公開日	平成17年11月24日 (2005.11.24)	(74) 代理人	100058479
(31) 優先権主張番号	102004023277.6		弁理士 鈴江 武彦
(32) 優先日	平成16年5月11日 (2004.5.11)	(74) 代理人	100091351
(33) 優先権主張国	ドイツ(DE)		弁理士 河野 哲
		(74) 代理人	100088683
			弁理士 中村 誠
		(74) 代理人	100108855
			弁理士 蔵田 昌俊
		(74) 代理人	100075672
			弁理士 峰 隆司

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 エレクトロルミネセンスのための材料の新規混合物

(57) 【要約】

本発明は、少なくとも1種のポリマー、さらに炭素以外の第4主族からの少なくとも1種の元素を含有する構造単位、さらに三重項状態から光を放射する構造単位を含む混合物に関する。本発明による材料は、従来技術に従う比較材料と比べて、有機リン光発光ダイオードにおける使用により適している。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

(A) 少なくとも 1 種のポリマー、

(B) 炭素以外の第 4 主族 (IUPAC による第 14 族) からの少なくとも 1 種の元素を含有する少なくとも 1 つの構造単位、並びに

(C) 少なくとも 1 種の三重項エミッタを含む混合物 (配合物)。

【請求項 2】

前記炭素以外の第 4 主族からの少なくとも 1 種の元素を含有する構造単位が、直接のケイ素 - ケイ素結合、若しくはゲルマニウム - ゲルマニウム結合、および / または式 (1) の少なくとも 1 つのサブ構造を有することを特徴とする請求項 1 に記載の混合物。 10

【化 1】



(式中、以下が、記号に適用される。すなわち、

A は、出現毎に同一であるか異なり、Si、Ge、Sn または Pb であり、

Y は、出現毎に同一であるか異なり、2 ~ 40 個の C 原子を有する芳香族環系若しくは複素環式芳香族環系 (これらは、1 個以上の R^4 基により置換されていてもよい)、ビニル基 - $CR^4 = CR^4$ - 若しくは $-CR^4 = C(R^4)_2$ 、アセチレン基 - $C \equiv C$ - 若しくは $-C \equiv CR^4$ 、またはこれらの基の 2 ~ 5 個の組み合わせであり、Y は、一価のまたは二価の基を表し、 20

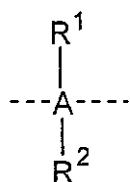
R^4 は、出現毎に同一であるか異なり、H、F、Cl、Br、I、CN、OH、 NO_2 、1 ~ 22 個の C 原子を有する直鎖の、分枝の、若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基、若しくはチオアルコキシ基 (ここで、1 個以上の非隣接の C 原子は、 $-R^5C=CR^5-$ 、 $-C \equiv C-$ 、 $Si(R^5)_2$ 、 $Ge(R^5)_2$ 、 $Sn(R^5)_2$ 、 $-NR^5-$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-CO-O-$ 、 $-O-CO-O-$ により置き換えられてもよく、1 個以上の H 原子は、F、Cl、Br、I、CN、OH または NO_2 により置き換えられてもよい)、1 ~ 40 個の C 原子を有するアリール基、ヘテロアリール基、若しくはアリールオキシ基 (これらは、1 個以上の R^5 基により置換されていてもよい)、または OH、 $N(R^5)_2$ 、 $B(R^5)_2$ 、または $Si(R^5)_3$ であり、 30

R^5 は、出現毎に同一であるか異なり、H、または 1 ~ 20 個の C 原子を有する脂肪族炭化水素基若しくは芳香族炭化水素基である)。

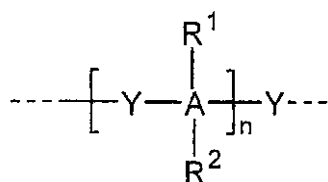
【請求項 3】

前記炭素以外の第 4 主族からの元素を含有する構造単位が、式 (2) ~ (5) の少なくとも 1 つの構造単位を有することを特徴とする請求項 1 および / または 2 に記載の混合物。

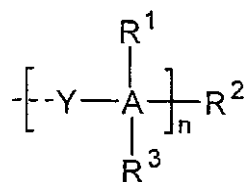
【化 2】



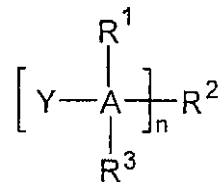
式(2)



式(3)



式(4)



式(5)

(式中、A、Y、 R^4 、および R^5 は、請求項 2 にて記載したものと同一の意味を有し、Y は、式 (3) および (4) については二価の基を、式 (5) については一価の基を表し、他の記号は、以下の意味を有する。すなわち、 50

R^1 、 R^2 、 R^3 は、出現毎に同一であるか異なり、H、F、CN、 $(NR^4)_2$ 、1 ~ 40 個の C 原子を有する直鎖の、分枝の若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基、若しくはチオアルコキシ基（これらは、 R^4 により置換されていても良い）（ここで、1 個以上の非隣接の CH_2 基は、 $-R^5C=CR^5-$ 、 $-C\equiv C-$ 、 $Si(R^5)_2$ 、 $Ge(R^5)_2$ 、 $Sn(R^5)_2$ 、 $C=O$ 、 $C=S$ 、 $C=Se$ 、 $C=NR^5$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NR^5-$ または $-CONR^5-$ により置き換えられてもよく、および 1 個以上の H 原子は、F、Cl、Br、I、CN、OH または NO_2 により置き換えられてもよい）、若しくはそれぞれ 2 ~ 40 個の芳香族 C 原子を有する芳香族環系若しくは複素環式芳香族環系、若しくはアリーロキシ基若しくはヘテロアリーロキシ基（ここで、1 個以上の H 原子は、F、Cl、Br、I、CN、OH または NO_2 により置き換えられてもよい）（またはこれらは、1 個以上の R^4 基により置換されていてもよい）、またはこれらの系の 2 ~ 5 個の組み合わせであり；2 以上の置換基 R^1 、 R^2 および / または R^3 は、互いに、さらなる単環若しくは多環の、脂肪族環系または芳香族環系を示していてもよく、
n は、出現毎に同一であるか異なり、1、2、3、または 4 であり、
破線結合は、ポリマーへの結合を表す）。

【請求項 4】

(A) 前記式 (1) 若しくは前記式 (2) ~ (4) の 1 以上の繰り返し単位 1 ~ 100 モル % を含有する、少なくとも 1 種のポリマー POLY 1 を 5 ~ 99.9 重量 %、並びに
(B) 1 種以上の三重項エミッタ (TRIP 1) を 0.1 ~ 95 重量 %
含む請求項 1 ~ 3 の一項以上に記載の混合物 BLEND 1。

【請求項 5】

前記ポリマー POLY 1 中の前記式 (1) 若しくは前記式 (2) ~ (4) の構造単位の割合が、5 ~ 80 モル % の範囲にあることを特徴とする請求項 4 に記載の混合物 BLEND 1。

【請求項 6】

(A) 1 種以上の共有結合した三重項エミッタ (TRIP 2) 0.1 ~ 100 モル % を含有する、少なくとも 1 種のポリマー POLY 2 を 0.5 ~ 99 重量 %、並びに
(B) 室温でガラス様の層を形成することができる前記式 (1) または前記式 (5) の少なくとも 1 種の化合物を 1 ~ 99.5 重量 %
含む請求項 1 ~ 3 の一項以上に記載の混合物 BLEND 2。

【請求項 7】

(A) 少なくとも 1 種のポリマー POLY 3 を 0.5 ~ 98.5 重量 %、
(B) 室温でガラス様の層を形成することができる前記式 (1) または前記式 (5) の少なくとも 1 種の化合物を 1 ~ 99 重量 %、並びに
(C) 1 種以上の三重項エミッタ (TRIP 1) を 0.1 ~ 95 重量 %
含む請求項 1 ~ 3 の一項以上に記載の混合物 BLEND 3。

【請求項 8】

配合物中の前記式 (5) の化合物の割合が、5 ~ 80 重量 % の範囲にあることを特徴とする請求項 6 または 7 に記載の混合物 BLEND 2 または BLEND 3。

【請求項 9】

前記ポリマー POLY 1 ~ POLY 3 が、共役しているか、あるいは部分的に共役していることを特徴とする請求項 1 ~ 8 の一項以上に記載の混合物。

【請求項 10】

前記ポリマー POLY 1、POLY 2 および POLY 3 が、(POLY 1) 中の前記式 (1) または前記式 (2) ~ (4) の単位、および (POLY 2 中の) 前記三重項エミッタ TRIP 2 に加えて、さらなる構造要素を含むことを特徴とする請求項 1 ~ 9 の一項以上に記載の混合物。

【請求項 11】

前記さらなる構造単位が、ポリマー骨格を形成するか、または電荷注入性および / 若しくは電荷輸送性を改善することを特徴とする請求項 10 に記載の混合物。

【請求項 1 2】

出現毎に同一か異なる A が、S i または G e を表すことを特徴とする請求項 1 ~ 1 1 の一項以上に記載の混合物。

【請求項 1 3】

出現毎に同一か異なる Y が、2 ~ 4 0 個の C 原子を有する芳香族環系（これは、1 個以上の R⁴ 基により置換されていてもよい）、またはスチルベン基若しくはトラン基（これらは、R⁴ により置換されるか、または置換されない）を表すことを特徴とする請求項 1 ~ 1 2 の一項以上に記載の混合物。

【請求項 1 4】

置換基 R¹ ~ R³ のうちの少なくとも 1 つが、2 ~ 4 0 個の C 原子を有する芳香族環系または複素環式芳香族環系（これらは、1 個以上の置換基 R⁴ により置換されていてもよい）を表すことを特徴とする請求項 1 ~ 1 3 の一項以上に記載の混合物。 10

【請求項 1 5】

出現毎に同一か異なる添え字 n が、1、2 または 3 であることを特徴とする請求項 1 ~ 1 4 の一項以上に記載の混合物。

【請求項 1 6】

前記式 (2) ~ (5) の単位が、対称構造を有することを特徴とする請求項 1 ~ 1 5 の一項以上に記載の混合物。

【請求項 1 7】

前記式 (2) ~ (5) の単位が、例 (1) ~ (4 8) から選択されることを特徴とする請求項 1 ~ 1 6 の一項以上に記載の混合物。 20

【請求項 1 8】

前記式 (5) の化合物が、前記 B L E N D 1 中に混合されることを特徴とする請求項 1 ~ 1 7 の一項以上に記載の混合物。

【請求項 1 9】

前記三重項エミッタが、3 6 を超える原子番号を有する、元素の周期表からの少なくとも 1 つの原子を含有することを特徴とする請求項 1 ~ 1 8 の一項以上に記載の混合物。

【請求項 2 0】

前記三重項エミッタが、d および / または f 遷移金属を含有することを特徴とする請求項 1 9 に記載の混合物。 30

【請求項 2 1】

前記三重項エミッタが、8 ~ 1 0 族からの少なくとも 1 つの元素を含有することを特徴とする請求項 2 0 に記載の混合物。

【請求項 2 2】

さらなる共役ポリマー、部分的に共役するポリマー若しくは非共役ポリマー、オリゴマー、デンドリマー、および / またはさらなる低分子量化合物が、前記 B L E N D 1 ~ B L E N D 3 中に混合されることを特徴とする請求項 1 ~ 2 1 の一項以上に記載の混合物。

【請求項 2 3】

有機電子デバイスにおける請求項 1 ~ 2 2 の一項以上に記載の混合物の使用。

【請求項 2 4】

1 以上の層を有し、これらの層のうちの少なくとも 1 つが、請求項 1 ~ 2 2 の一項以上に記載の少なくとも 1 種の混合物を含む有機電子デバイス。 40

【請求項 2 5】

有機発光ダイオード (P L E D)、有機太陽電池 (O - S C)、非線形光学デバイス、周波数二倍デバイス (device for frequency doubling)、有機光学検波器、有機電界クエンチデバイス (field-quench device)、または有機レーザーダイオード (O - l a s e r) であることを特徴とする請求項 2 4 に記載の有機電子デバイス。

【発明の詳細な説明】

【発明の開示】

【0 0 0 1】

ポリマー（有機）発光ダイオード（PLED）に基づくディスプレイおよび照明要素の商業化についての幅広い基礎研究が、約13年間行われている。この開発は、W0 90/13148に開示されている基礎開発により始まった。（フィリップスN.V社製のかみそりにおける）比較的小さいディスプレイの形態の最初の製品は、近年、市場で入手することができる。しかしながら、これらのディスプレイを、現在市場を独占している液晶ディスプレイの真の競合物とするためには、かなりの改善がなお必要である。

【0002】

とりわけ「小分子」ディスプレイの領域において、ここ数年明らかになっている開発は、三重項状態から光を放射することができ、従って蛍光の代わりにリン光を示す材料の使用であり（M. A. Baldo et al., Appl. Phys. Lett. 1999, 75, 4-6）、エネルギーおよび

10

【0003】

また、ポリマーアプリケーションのための蒸着可能な三重項エミッタの利点を利用する努力が、近年ますますなされている。従って、いわゆるハイブリッドデバイス構造が考慮され、これは、「小分子」OLEDの利点と、ポリマーOLED（＝PLED）の利点とを組み合わせ、およびポリマー中に三重項エミッタを混合することにより形成される。このことは、化合物が、溶液状態から処理することができるという利点と、低分子量化合物に基づくデバイスに関しては高価で複雑な蒸着プロセスが必要でないという利点を有する

20

【0004】

（1）エレクトロルミネセンス要素の効率を、さらに改善する必要がある。高めの効率がおおむね可能であるという事実は、小分子に基づくエレクトロルミネセンス要素の結果

30

（2）エレクトロルミネセンス要素の電圧は、高品質の電子アプリケーションについては未だにかなり高い。

（3）ある三重項エミッタと共に良好な結果を示すマトリックス材料は、しばしば、他のエミッタと共に、同程度の発光色でさえも、かなり劣る結果を示す。用いられる多様な三重項エミッタについても良好な結果を与え、および可能ならば、いくつかの、または全ての発光色を与える汎用なマトリックス材料を得ることが望ましい。

【0005】

従って、可溶性の三重項エミッタと、対応する適切なマトリックス材料の領域においての改善が非常に必要であり続けていることが明らかである。

40

【0006】

驚くべきことに、これまでは知られていなかったが、三重項エミッタと組み合わせてある種の構造単位を含むポリマー混合物が、従来技術に従う混合物と比較して、かなりの改善を生じさせるということが見出された。とりわけ、これらの材料は、広範囲の種々の赤色、および緑色発光三重項エミッタを用いて効率的な発光を示すに適している。従って、本明細書は、これらの混合物に関する。

【0007】

本発明は、

（A）少なくとも1種のポリマー、

（B）炭素以外の第4主族（IUPACによる14族）からの少なくとも1種の元素、

50

すなわち、ケイ素、ゲルマニウム、スズ、および／または鉛を含有する少なくとも１つの構造単位、並びに

(C) 少なくとも１種の三重項エミッタを含む混合物(配合物)に関する。

【0008】

本発明による混合物は、好ましくは、アモルファス混合物の形態にある。

【0009】

本発明の目的のために、三重項エミッタは、三重項状態から光を放射する、すなわち、エレクトロルミネセンスにおいて蛍光の代わりにリン光を示す化合物、好ましくは有機金属三重項エミッタを意味するものと解釈されたい。

10

【0010】

炭素以外の第４主族からの少なくとも１種の元素を含有する好ましい構造単位は、直接のケイ素-ケイ素結合またはゲルマニウム-ゲルマニウム結合を含み、および／または少なくとも１つの式(1)のサブ構造を含む

【化3】



【0011】

(式中、以下が、記号に適用される。すなわち、

20

Aは、出現毎に同一であるか異なり、Si、Ge、SnまたはPbであり、

Yは、出現毎に同一であるか異なり、2～40個のC原子を有する芳香族環系若しくは複素環式芳香族環系(これらは、1個以上の R^4 基により置換されていてもよい)、ビニル基- $CR^4=CR^4$ -若しくは- $CR^4=C(R^4)_2$ 、アセチレン基- $C\equiv C$ -若しくは- $C\equiv CR^4$ 、または例えばスチルベン基若しくはトラン基のような、これらの基の2～5個の組み合わせであり、Yは、一価のまたは二価の基を表し、

R^4 は、出現毎に同一であるか異なり、H、F、Cl、Br、I、CN、OH、 NO_2 、1～22個のC原子を有する直鎖の、分枝の、若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基、若しくはチオアルコキシ基(ここで、1個以上の非隣接のC原子は、- $R^5C=CR^5$ -、- $C\equiv C$ -、 $Si(R^5)_2$ 、 $Ge(R^5)_2$ 、 $Sn(R^5)_2$ 、- NR^5 -、-O-、-S-、-CO-O-、-O-CO-O-により置き換えられてもよく、1個以上のH原子は、F、Cl、Br、I、CNまたは NO_2 により置き換えられてもよい)、1～40個のC原子を有するアリール基、ヘテロアリール基、若しくはアリールオキシ基(これらは、1個以上の R^5 基により置換されていてもよい)、またはOH、 $N(R^5)_2$ 、 $B(R^5)_2$ 、または $Si(R^5)_3$ であり、

30

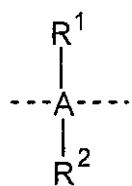
R^5 は、出現毎に同一であるか異なり、H、または1～20個のC原子を有する脂肪族炭化水素基若しくは芳香族炭化水素基である)。

【0012】

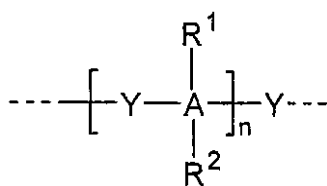
炭素以外の第４主族からの少なくとも１種の元素を含有する特に好ましい構造単位は、式(2)～(5)の少なくとも１つの構造単位を含む

40

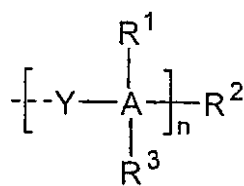
【化 4】



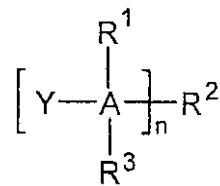
式(2)



式(3)



式(4)



式(5)

10

【0013】

(式中、A、Y、 R^4 、および R^5 は、式(1)にて記載したものと同一意味を有し、Yは、式(3)および(4)については二価の基を、式(5)については一価の基を表し、他の記号は、以下の意味を有する。すなわち、

R^1 、 R^2 、 R^3 は、出現毎に同一であるか異なり、H、F、CN、 $(NR^4)_2$ 、1~40個のC原子を有する直鎖の、分枝の若しくは環状のアルキル基、アルコキシ基、若しくはチオアルコキシ基(これらは、 R^4 により置換されていても良い)(ここで、1個以上の非隣接の CH_2 基は、 $-R^5C=CR^5-$ 、 $-C\equiv C-$ 、 $Si(R^5)_2$ 、 $Ge(R^5)_2$ 、 $Sn(R^5)_2$ 、 $C=O$ 、 $C=S$ 、 $C=Se$ 、 $C=NR^5$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NR^5-$ または $-CONR^5-$ により置き換えられてもよく、および1個以上のH原子は、F、Cl、Br、I、CN、OHまたは NO_2 により置き換えられてもよい)、若しくはそれぞれ2~40個の芳香族C原子を有する芳香族環系若しくは複素環式芳香族環系、若しくはアリーロキシ基若しくはヘテロアリーロキシ基(ここで、1個以上のH原子は、F、Cl、Br、I、CN、OHまたは NO_2 により置き換えられてもよい)(またはこれらは、1個以上の R^4 基により置換されていてもよい)、または例えばスチルベン基、アルキルアリール基若しくはトラン基のような、これらの系の2~5個の組み合わせであり; 2以上の置換基 R^1 、 R^2 および/または R^3 は、互いに、さらなる単環若しくは多環の、脂肪族環系または芳香族環系を示していてもよく、

nは、出現毎に同一であるか異なり、1、2、3、または4であり、

破線結合は、ポリマーへの結合を表し、メチル基を示すものではない)。

20

30

【0014】

式(2)の単位を含むポリマーは、2以上の元素A間の直接の結合を有していてもよい。

【0015】

個々の成分の適切な比は、例えば、式(1)または式(2)~(5)の単位を合計で1~99.5モル%、好ましくは5~80モル%、特に好ましくは10~50モル%、および1種以上の三重項エミッタを0.1~95モル%、好ましくは0.5~80モル%、特に好ましくは1~50モル%、とりわけ2~25モル%含有する混合物であり、ここで、データは、存在する全ての単位に関する(配合成分、またはポリマーにおける繰り返し単位)。これは、成分が、ポリマーに共有結合しているか、または混合されているかどうかには無関係である。特に、10~50モル%の割合の式(1)または式(2)~(5)の単位が、三重項エミッタからの高い発光をもたらすことが見出された。

40

【0016】

本発明による混合物の場合において、式(1)の単位および/または三重項エミッタが、ポリマーに混合されるか、あるいは共有結合するかのいずれかである種々の態様が存在する。式(2)~(4)の単位は、ポリマーに共有結合する。式(5)は、混合される単位を示す。ポリマーへの共有結合の場合には、元素A(すなわち、炭素以外の第4主族からの元素)は、ポリマーの主鎖中に結合される(式2および3)か、あるいは、ポリマーの側鎖中に結合される(式4)。

50

【0017】

本発明の目的のために、芳香族環系または複素環式芳香族環系とは、芳香族基または複素環式芳香族基のみを必ずしも含有するのではなく、代わりに、ここで、複数の芳香族基または複素環式芳香族基が、例えば、 sp^3 混成C、O、N等のような、非芳香族単位（H以外の10%未満の原子、好ましくはH以外の5%未満の原子）により中断されていてよい系を意味するものと解釈されたい。つまり、例えば、9,9'-スピロピフルオレン、9,9-ジアリールフルオレン、トリアリールアミン、ジアリールエーテル等のような系も、芳香族系を意味するものと解釈されたい。ここで、芳香族環系は、少なくとも6個のC原子を含有し、一方、複素環式芳香族環系は、少なくとも2個のC原子、および好ましくはN、Oおよび/またはSから選択される少なくとも1個のヘテロ原子を含有し、C原子とヘテロ原子の総数は、少なくとも5である。

10

【0018】

本発明の目的のために、 $C_1 \sim C_{40}$ -アルキル基（ここで、個々のH原子または H_2 基は、上記の基により置換されていてよい）は、特に好ましくは、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、2-メチルブチル基、 n -ペンチル基、 s -ペンチル基、シクロペンチル基、 n -ヘキシル基、シクロヘキシル基、 n -ヘプチル基、シクロヘプチル基、 n -オクチル基、シクロオクチル基、2-エチルヘキシル基、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、2,2,2-トリフルオロエチル基、エテニル基、プロペニル基、ブテニル基、ペンテニル基、シクロペンテニル基、ヘキセニル基、シクロヘキセニル基、ヘプテニル基、シクロヘプテニル基、オクテニル基、シクロオクテニル基、エチニル基、プロピニル基、ブチニル基、ペンチニル基、ヘキシニル基、またはオクチニル基を意味するものと解釈される。 $C_1 \sim C_{40}$ -アルコキシ基は、特に好ましくは、メトキシ、エトキシ、 n -プロポキシ、 i -プロポキシ、 n -ブトキシ、 i -ブトキシ、 s -ブトキシ、 t -ブトキシ、または2-メチルブトキシを意味するものと解釈される。 $C_2 \sim C_{40}$ -アリール基またはヘテロアリール基（これらは、使用に応じて一価であるかまたは二価であり、およびこれらは、それぞれの場合に、上記した R^1 基により置換されていてよく、および所望の位置により芳香族基または複素環式芳香族基に結合されていてよい）は、特に、ベンゼン、ナフタレン、アントラセン、フェナントレン、ピレン、クリセン、ペリレン、フルオランテン、テトラセン、ペンタセン、ベンゾピレン、フラン、ベンゾフラン、イソベンゾフラン、ジベンゾフラン、チオフェン、ベンゾチオフェン、イソベンゾチオフェン、ジベンゾチオフェン、ピロール、インドール、イソインドール、カルバゾール、ピリジン、キノリン、イソキノリン、アクリジン、フェナントリジン、ベンゾ-5,6-キノリン、ベンゾ-6,7-キノリン、ベンゾ-7,8-キノリン、フェノチアジン、フェノキサジン、ピラゾール、インダゾール、イミダゾール、ベンゾイミダゾール、ナフトイミダゾール、フェナントロイミダゾール、ピリジイミダゾール、ピラジンイミダゾール、キノキサリンイミダゾール、オキサゾール、ベンゾオキサゾール、ナフトオキサゾール、アントロオキサゾール、フェナントロオキサゾール、イソキサゾール、1,2-チアゾール、1,3-チアゾール、ベンゾチアゾール、ピリダジン、ベンゾピリダジン、ピリミジン、ベンゾピリミジン、キノキサリン、ナフチリジン、アザカルバゾール、ベンゾカルボリン、フェナントロリン、1,2,3-トリアゾール、1,2,4-トリアゾール、ベンゾトリアゾール、1,2,3-オキサジアゾール、1,2,4-オキサジアゾール、1,2,5-オキサジアゾール、1,3,4-オキサジアゾール、1,2,3-チアジアゾール、1,2,4-チアジアゾール、1,2,5-チアジアゾール、1,3,4-チアジアゾール、1,3,5-トリアジン、1,2,4-トリアジン、1,2,3-トリアジン、テトラゾール、1,2,4,5-テトラジン、1,2,3,4-テトラジン、1,2,3,5-テトラジン、プリン、プテリジン、インドリジン、およびベンゾチアジアゾールから誘導される基を意味するものと解釈される。また芳香族環系は、特に、ピフェニレン、テルフェニレン、フルオレン、スピロピフルオレン、ジヒドロフェナントレン、ジヒドロピレン、テトラヒドロピレン、またはシス-若しくはトランス-インデノフルオレンを

20

30

40

50

意味するものと解釈される。

【0019】

本発明の1つの態様は、

(A) 式(1)若しくは式(2)～(4)の1以上の繰り返し単位1～100モル%、好ましくは5～80モル%、特に好ましくは10～50モル%を含有する、少なくとも1種のポリマーPOLY1を5～99.9重量%、並びに

(B) 1種以上の三重項エミッタ(TRIP1)を0.1～95重量%、好ましくは0.5～80重量%、特に好ましくは1～50重量%、特に2～25重量%含む混合物BLEND1である。

【0020】

態様BLEND1において、三重項エミッタ(TRIP1)を、ポリマーPOLY1と混合する。式(1)の、若しくは式(2)～(4)の繰り返し単位は、ポリマーに共有結合される。結合によって、これらの構造単位は、ポリマーの主鎖中に取り込まれる(式2および3)か、あるいはポリマーの側鎖中に取り込まれる(式4)。

【0021】

本発明のさらなる態様は、

(A) 1種以上の共有結合された三重項エミッタ(TRIP2)0.1～100モル%を含有する、少なくとも1種のポリマーPOLY2を0.5～99重量%、並びに

(B) 式(1)の若しくは式(5)の少なくとも1種の化合物(これは、室温においてガラス様の層を形成することができ、好ましくは、80を超え、特に好ましくは100を超え、ガラス転移温度を有する)を1～99.5重量%

含む混合物BLEND2である。

【0022】

三重項エミッタTRIP2を、ポリマーPOLY2の主鎖中および/または側鎖中に取り込むことができる。

【0023】

本発明のさらなる態様は、

(A) 少なくとも1種のポリマーPOLY3を0.5～98.5重量%、

(B) 式(1)のまたは式(5)の少なくとも1種の化合物(これは、室温においてガラス様の層を形成することができ、好ましくは80を超え、特に好ましくは100を超え、ガラス転移温度を有する)を1～99重量%、並びに

(C) 1種以上の三重項エミッタ(TRIP1)を0.1～95重量%、好ましくは0.5～80重量%、特に好ましくは1～50重量%、特に2～25重量%

含む混合物BLEND3である。

【0024】

ポリマーPOLY1～POLY3は、共役していてもよいし、部分的に共役していてもよいし、あるいは非共役であってもよい。これらは、好ましくは、共役しているか、部分的に共役している。

【0025】

本発明の目的のために、共役ポリマーは、主に、主鎖中に、 sp^2 混成(または sp 混成)炭素原子(これは、対応するヘテロ原子により置き換えられてもよい)を含有するポリマーである。最も単純な場合に、これは、主鎖中での二重結合と単結合の交互の存在を意味する。共役の中断をもたらす(さらなる助けを必要とせず)自然に起こる欠損が、「共役ポリマー」という語の価値を減じることはないことを主に意味する。さらに、共役という語は、同様に、アリアルアミン単位、アリアルホスフィン単位、および/若しくはある種のヘテロ環単位(すなわち、N、O、S、またはPを介して共役)、並びに/または例えばTRIP2単位のような有機金属錯体(金属原子を介して共役)が、主鎖中に位置する場合にも、本明細書中では用いられる。共役という語は、同様に、いわゆる σ -共役、すなわち、例えばケイ素原子を介する共役についても用いられる。本発明の目的のために、部分的に共役するポリマーは、主鎖中に非共役部位により中断される比較的長い共役

10

20

30

40

50

部位を含むか、あるいは主鎖において非共役であるポリマーの側鎖中に比較的長い共役部位を含むいずれかのポリマーである。これに対して、例えば単純アルキレン鎖、(チオ)エーテル架橋、エステル、アミドまたはイミド結合のような単位は、明白に、非共役部位として定義される。

【0026】

(POLY 1における)式(1)のまたは式(2)~(4)の単位、および(POLY 2における)三重項エミッターIP2に加えて、ポリマーPOLY 1、POLY 2、およびPOLY 3は、種々のさらなる構造要素を含んでもよい。これらは、例えば、ポリマー骨格を形成することができる構造単位であるか、または電荷注入性若しくは電荷輸送性を改善する構造単位であってもよい。このタイプの単位は、例えば、WO 03/020790 および WO 05/014689 中に詳細に記載されている。

10

【0027】

ポリマーPOLY 1、POLY 2またはPOLY 3が非共役ポリマーである場合には、ポリマーが、他の配合成分が可溶である溶媒または溶媒混合物中で十分な溶解性を有する限り、いずれもの所望のクラスの化合物がおおむね適しており、従って、全ての成分を、溶液状態から共に処理することができる。

【0028】

ポリマーPOLY 1、POLY 2およびPOLY 3は、ホモポリマー(すなわち単一のモノマー構造のみを含有する)であるか、あるいはコポリマーのいずれかである。コポリマーは、ランダム構造、交互構造、またはブロック様構造を有することができ、また、交互の配列で、複数のこれらの構造を有していてもよい。ポリマーは、直線構造、分枝構造、または樹枝状構造を有してよい。複数の異なる構造要素の使用は、例えば、溶解性、固相形態等のような性質を調節することを可能にする。

20

【0029】

ポリマーPOLY 1、POLY 2およびPOLY 3を、1以上のモノマーの重合により調製する。特に共役ポリマーの合成について、C-C結合をもたらす(スズキカップリング、ヤマモトカップリング、シュティレ(STILLE)カップリング)、またはC-N結合をもたらす(ハルトビヒ-ブークウォルド(HARTWIG-BUCHWALD)カップリング)いくつかのタイプが、ここでは首尾よくいくことが判明した。重合をこれらの方法により行う方法、およびポリマーを反応媒体から分離し且つ精製する方法は、例えば、WO 04/037887 中に詳細に記載されている。ケイ素-アリーール結合の形成のための方法は、US 2003/0120124 中に記載され、アリールジアゾニウム塩と置換クロロシランとの反応が存在する。

30

【0030】

部分的に共役するポリマー、または非共役ポリマーの合成もまた、連続的に共役しない対応するモノマーを用いることにより、これらの方法によって行うことができる。しかしながら、部分的に共役するポリマーまたは非共役ポリマーについては、例えば重縮合、またはカチオン重合、アニオン重合若しくはフリーラジカル重合のようなポリマー化学から一般的に良く知られる他の合成方法も適しており、これは、例えば、アルケンの反応を経て進み、例えば、ポリスチレン誘導体等のような最も広い意味でポリエチレン誘導体をもたらす、これらは、側鎖中に任意に結合された発色団を含む。ポリシランを、例えば、相当するように置換されたジクロロシランと金属ナトリウムとの反応によるウルツ(Wurtz)合成によって製造することができる。

40

【0031】

本発明の好ましい態様において、出現毎に同一か異なる記号Aは、SiまたはGeを表し、非常に特に好ましくはSiを表す。

【0032】

記号Yは、さらに好ましくは、出現毎に同一か異なって、2~40個のC原子を有する芳香族環系(これは、1個以上のR⁴基により置換されていてもよい)、またはスチルベン基若しくはトラン基(これらは、R⁴により置換されるか、または置換されない)を表し、非常に特に好ましくは2~20個のC原子を有する芳香族環系(これは、1以上のR

50

⁴ 基により置換されていてもよい)を表す。

【0033】

置換基 $R^1 \sim R^3$ のうちの少なくとも1つは、さらに好ましくは、2～40個のC原子を有する芳香族環系(これは、1個以上の R^4 基により置換されていてもよい)を表し、特に好ましくは、全ての置換基 $R^1 \sim R^3$ が、それぞれ2～20個のC原子を有する芳香族環系(これは、1個以上の置換基 R^4 により置換されていてもよい)を表す。

【0034】

添え字 n は、さらに好ましくは、出現毎に同一であるか異なって、1、2または3であり、特に好ましくは1または2である。

【0035】

式(2)～(5)の単位は、さらに好ましくは、対称構造を有する。この好ましさは、これらの化合物のより容易な合成しやすさに起因する。従って、式(2)の化合物については、 R^1 は好ましくは、 $=R^2$ である。式(3)の化合物については、全ての Y が、同一であるように選択されること、並びに全ての $R^1 = R^2$ であることが好ましい。式(4)の化合物については、 $R^1 = R^2 = R^3$ であることが好ましい。式(5)の化合物については、 $R^1 = R^2 = R^3$ であり、任意に $=Y$ であることが好ましい。

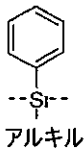
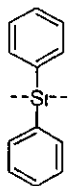
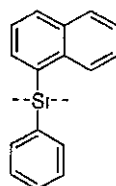
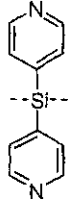
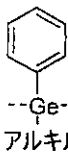
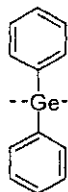
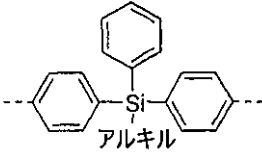
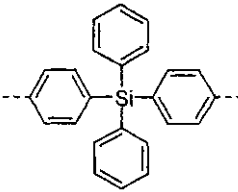
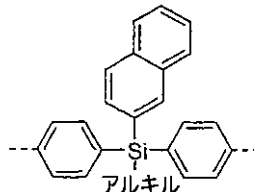
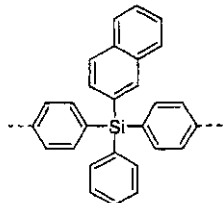
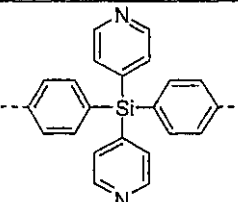
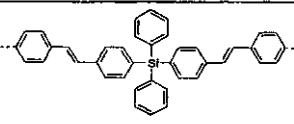
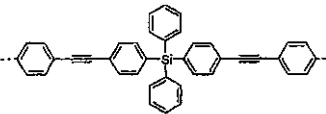
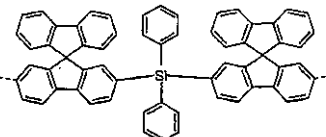
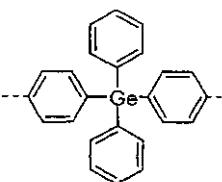
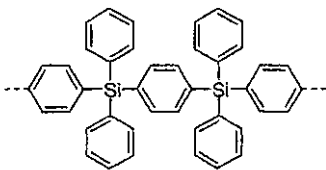
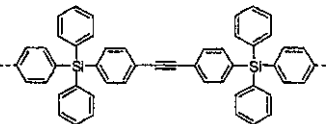
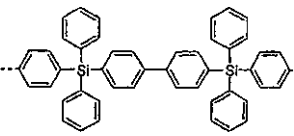
【0036】

式(2)～(5)の好ましい単位の例は、示す例(1)～(48)に従う置換されたまたは無置換の構造であり、ここで、破線結合は、ポリマーにおける結合を示し、例(1)～(6)は、一般式(2)の例であり、例(7)～(21)は、一般式(3)の例であり、例(22)～(33)は、一般式(4)の例であり、例(34)～(48)は、一般式(5)の例である。アルキルは、直鎖の、分枝のまたは環状のアルキル鎖(これらは、置換されていてもよいし、または置換されない)(ここで、1個以上のH原子は、 R^1 、 R^2 および R^3 について定義したように、フッ素により置き換えられてもよい)。考えられる置換基は、より明瞭にするために一般的に示さない。

10

20

【化 5】

 例 1	 例 2	 例 3
 例 4	 例 5	 例 6
 例 7	 例 8	 例 9
 例 10	 例 11	 例 12
 例 13	 例 14	 例 15
 例 16	 例 17	 例 18

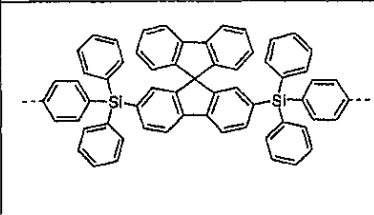
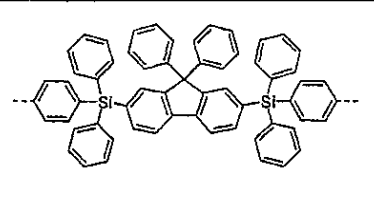
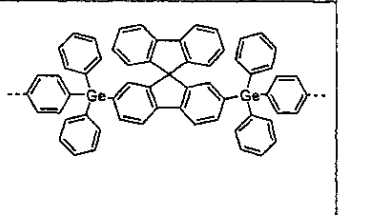
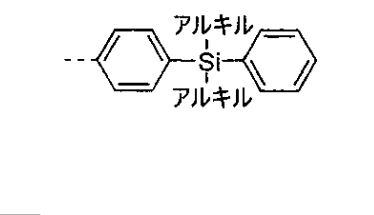
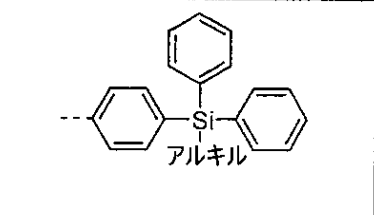
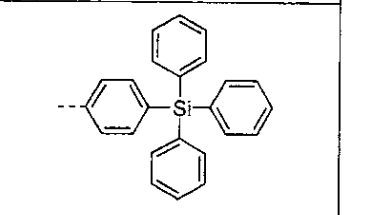
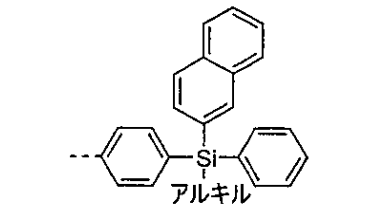
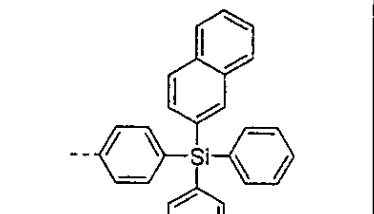
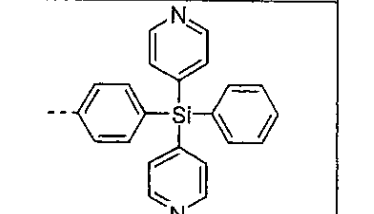
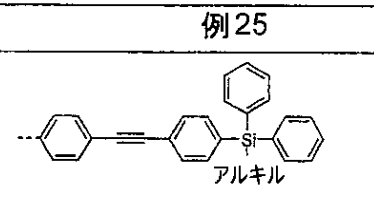
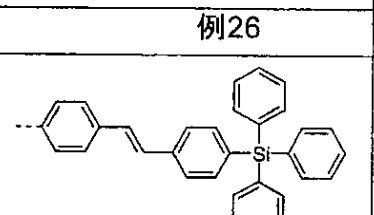
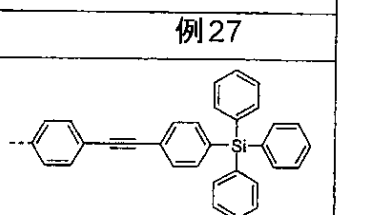
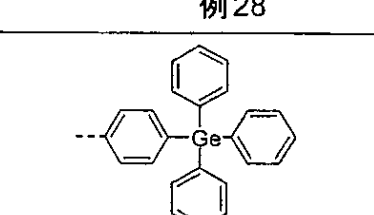
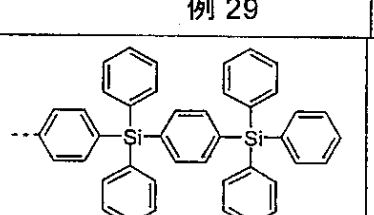
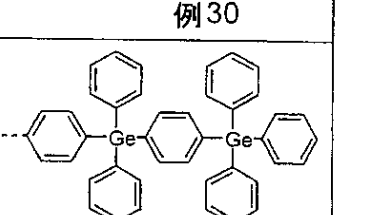
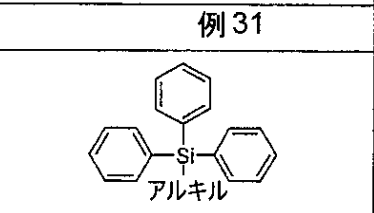
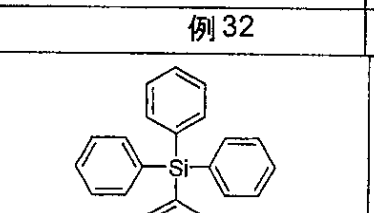
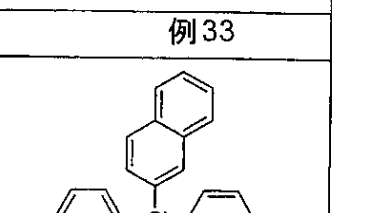
10

20

30

40

【化 6】

		
例 19	例 20	例 21
		
例 22	例 23	例 24
		
例 25	例 26	例 27
		
例 28	例 29	例 30
		
例 31	例 32	例 33
		
例 34	例 35	例 36

10

20

30

40

【化 7】

例 37	例 38	例 39
例 40	例 41	例 42
例 43	例 44	例 45
例 46	例 47	例 48

10

20

30

【 0 0 3 7 】

記載から明らかであるが、例（１）～（４８）からの構造単位は、非対称に置換されていてもよく、すなわち、異なる置換基 R^4 が、１つの単位上に存在していてもよく、あるいは異なる位置で結合していてもよいということを明示的に指摘しておく。プロキラル構造単位の場合には、全ての立体規則性またはキラリティの可能性は包含される。

40

【 0 0 3 8 】

式（２）～（５）の構造単位は、マトリックスポリマー POLY 1 の電子対を共有する成分である。（ポリマーにおける全ての繰り返し単位に基づいて）１～１００モル％の範囲の割合のこれらの繰り返し単位が、ここでは良好な結果をもたらす。１～１００モル％の割合の式（２）～（４）の繰り返し単位が、POLY 1 には好ましい。５～８０モル％の割合の式（２）～（４）の繰り返し単位が特に好ましく、１０～５０モル％の割合の式（２）～（４）の繰り返し単位が非常に特に好ましい。

【 0 0 3 9 】

式（５）の化合物は、BLEND 2 と BLEND 3 の混合成分である。混合物中１～９９重量％の範囲の割合のこれらの化合物が、良好な結果をもたらす。１～９９重量％の割

50

合の式(5)の化合物が、B L E N D 2およびB L E N D 3には好ましい。5～80重量%の割合の式(5)が特に好ましく、10～50重量%の割合の式(5)が非常に特に好ましい。

【0040】

本発明の他の側面は、B L E N D 1への式(5)の化合物の混合である。合計で1～99モル%の割合の式(1)の構造単位、または式(2)～(5)の構造単位が、これらの単位が、ポリマーに共有結合しているか、またはポリマーに混合されているかどうかに関らず、良好な結果をもたらすことが見出された。合計で1～99モル%の割合の式(1)の構造単位、または式(2)～(5)の構造単位が好ましい。合計で5～80モル%の式(1)の構造単位、または式(2)～(5)の構造単位が特に好ましく、合計で10～50モル%の割合の式(1)の構造単位、または式(2)～(5)の構造単位が非常に特に好ましい。

10

【0041】

B L E N D 1およびB L E N D 3中に混合される三重項エミッタT R I P 1、並びにP O L Y 2(=B L E N D 2)中に共重合される三重項エミッタT R I P 2は、室温において三重項状態から光を放射することができる、すなわち、蛍光の代わりにリン光を示す種々の有機金属または無機のクラス物質から選択され得る。これらはまず、特に、重原子、すなわち、36を超える原子番号を有する、元素の周期表からの原子を含有する化合物である。上記の条件を満たすdおよびf遷移金属を含有する化合物が、この目的に特に適している。8族～10族からの元素(Ru、Os、Rh、Ir、Pd、Pt)を含有する、対応する構造単位が非常に特に好ましい。特定の理論に拘束されることを望まないが、これらの元素を含有する全ての発光化合物は、本明細書の目的のために、三重項エミッタとしてみなされる。

20

【0042】

三重項エミッタT R I P 1は、低分子量化合物、オリゴマー化合物、樹枝状化合物、またはポリマー化合物であり得る。これらは、混合成分として処理される(B L E N D 1またはB L E N D 3)ために、溶液状態からの処理が可能であるように、適切な溶媒(例えば、トルエン、キシレン、アニソール、T H F等)における十分な溶解性を有する必要がある。適切な低分子量構造単位は、例えば、出願明細書W O 02/068435、W O 02/081488、E P 1239526 および W O 04/026886 に記載される種々の錯体である。T R I P 1およびT R I P 3についての適切な樹枝状構造は、例えば、出願明細書W O 99/21935、W O 01/059030 および W O 02/066552 中に記載される錯体である。

30

【0043】

三重項エミッタT R I P 2は、P O L Y 2(B L E N D 2)のポリマー鎖中に共有結合的に取り込まれる。P O L Y 2へのT R I P 2の取り込みを容易にするために、官能性の重合可能な基が、T R I P 2上に存在する必要がある。重縮合(例えば、スズキに従う、またはヤマモトに従う)におけるモノマーとして用いることができる、対応するプロム化された錯体は、W O 02/068435、および未公開出願DE 10350606.3.中に記載される。

【0044】

本発明による混合物B L E N D 1は、三重項エミッタT R I P 1をポリマーP O L Y 1と混合することにより得られる。

40

本発明による混合物B L E N D 2は、式(5)の化合物をポリマーP O L Y 2と混合することにより得られる。

本発明による混合物B L E N D 3は、式(5)の化合物と三重項エミッタT R I P 1をポリマーP O L Y 3と混合することにより得られる。

加えて、B L E N D 1～B L E N D 3中に、さらなる共役ポリマー、部分的に共役するポリマー、若しくは非共役ポリマー、オリゴマー、デンドリマー、またはさらなる低分子量化合物を混合することも好ましい。さらなる成分の添加は、いくつかのアプリケーションについては適切であることが判明した。すなわち、対応する配合物中の正孔輸送若しくは電子輸送、または電荷平衡を、例えば、電子的に活性な物質を添加することにより調節

50

することができる。添加された成分は、一重項 - 三重項遷移を改善することもできる。しかしながら、電子的に不活性な化合物の添加も、例えば、溶液の粘度および形成されるフィルムの形態を制御するために有用であり得る。本発明は、同様に、このようにして得られた配合物に関する。

【0045】

B L E N D 1 ~ B L E N D 3 の調製を、以下のように行う。すなわち、個々の成分を適切な混合比で混ぜ合わせ、および適切な溶媒系に溶解する。適切な溶媒は、例えば、トルエン、アニソール、キシレン、メチルアニソール、メチルナフタレン、クロロベンゼン、環状エーテル（例えば、ジオキサン、T H F、メチルジオキサン）、アミド（例えば、N M P、D M F）、またはこれらの溶媒の混合物である。あるいは、配合物の成分を、個々に溶解してもよい。この場合において、配合物の溶液を、個々の溶液を適切な混合比で混ぜ合わせるにより得る。溶解操作を、好ましくは、不活性雰囲気下、および必要に応じて高温で行う。配合物を、一般的に、（沈殿を繰り返すことにより）固体として単離せず、代わりに、溶液状態から直接的にさらに処理する。個々の成分の適切な比は、例えば、式（1）の単位若しくは式（2）～（5）の単位を合計で1～99.5モル%、好ましくは5～80モル%、特に好ましくは10～50モル%、並びにT R I P 1および/若しくはT R I P 2を0.1～95モル%、好ましくは0.5～80モル%、特に好ましくは1～50モル%、特に2～25モル%含む混合物であり、ここで、データは、全ての存在する単位（配合成分またはポリマーにおける繰り返し単位）に関する。これは、成分が、ポリマーに共有結合しているか、またはポリマー中に混合されているかに関らない。

【0046】

本発明による混合物B L E N D 1 ~ B L E N D 3は、従来技術に対する以下の驚くべき利点を有する。

【0047】

- ・三重項エミッタによる発光の効率は、従来技術に従う混合物と比較して、本発明による混合物B L E N D 1 ~ B L E N D 3においてより優れる。

- ・発光ダイオードの駆動電圧は、従来技術と比較してより低い。

- ・新規の混合物を用いると、効率的な三重項デバイスが、幅広い範囲の赤色および緑色三重項エミッタについて、溶液状態から可能である。従来技術によれば、特定のマトリックスが、個々の色について（およびいくつかの場合においては、同程度の色の異なるエミッタについて）一般的に必要とされていたために、このことは驚くべき結果である。

【0048】

本発明は、さらに、1種以上の溶媒中における、本発明による配合物の溶液および調合物に関する。このタイプの溶液を調製することができる方法は、例えば、W0 02/072714、W0 03/019694 およびこれらに挙げられる文献中に記載されている。これらの溶液を、例えばエリアコーティング法（例えばスピンコーティング）、または印刷法（例えばインクジェット印刷）により、薄いポリマー層を製造するために用いることができる。

【0049】

混合物B L E N D 1 ~ B L E N D 3を、特にエレクトロルミネセンス材料（＝発光材料）として、P L E Dにおいて用いることができる。P L E Dの構造については、一般的に、通常のプロセスが用いられ、これは、個々の場合に相応して変化させるべきである。このタイプのプロセスは、例えば、W0 04/037887 中に詳細に記載されている。

【0050】

従って、本発明は、P L E Dにおけるエレクトロルミネセンス材料としての、本発明による混合物B L E N D 1 ~ B L E N D 3の使用に関する。

【0051】

本発明は、同様に、1以上の層を有し、ここで、これらの層の少なくとも1つ、好ましくは発光層が、本発明による少なくとも1種の混合物B L E N D 1、B L E N D 2および/またはB L E N D 3を含むP L E Dに関する。

【0052】

本明細書と以下の例は、PLEDおよび対応するディスプレイに関する本発明による混合物 BLEND 1 ~ BLEND 3 の使用に向けられる。この記載の制限に関らず、当業者は、さらなる発明を必要とすることなく、本発明によるポリマーまたは配合物を、他の電子デバイスにおけるさらなる使用、例えば、ほんのわずかなアプリケーションを挙げると、有機太陽電池 (O - S C)、非線形光学素子、周波数二倍器 (frequency doubling) (アップコンバージョン)、有機光学検波器、有機電界クエンチデバイス (field-quench device) (O - F Q D)、または有機レーザダイオード (O - l a s e r) について、本発明によるポリマーまたは配合物を使用することができる。本発明は、また、これらにも関する。

【0053】

10

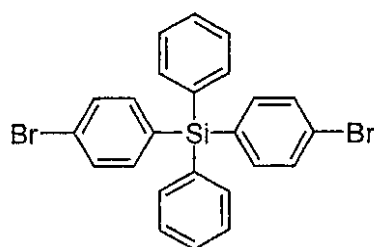
本発明を、以下の例により詳細に説明するが、これらに制限されることを望まない。

【0054】

例

例 1 : 4 , 4 ' - ジブロモテトラフェニルシラン (モノマー S i 1) の合成

【化 8】



Si1

20

【0055】

1000 ml の 4 つ首フラスコ中 (加熱により乾燥し、内部温度計、スターラーバー、アルゴン雰囲気、および滴下漏斗を備える) に、33.9 g (144 mmol) の 1,4 - ジブロモベンゼンを溶解し、75 にまで冷却した。90 ml (144 mmol) の n - ブチルリチウム (ヘキサン分画中 1.6 M) を、30 分に渡って滴下して加え、続いてこの混合物を、この温度で 1 時間攪拌した。60 ml の THF 中の 15.3 ml (18.3 g、72 mmol) のジフェニルジクロロシランを、-75 で滴下して加え、この混合物を終夜で、室温にまで昇温した。溶媒を除去し、残渣を、ジクロロメタン中に懸濁させ、および混合物をろ過した。溶媒をろ液から除去し、生成物を、ブタノールから 2 回、およびヘプタン/トルエンから 2 回再結晶すると、HPLC によれば 99.9% の純度で、16.8 g (理論の 47%) を与えた。

30

【0056】

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) : [ppm] = 7.51 (m, 8H), 7.55 (t, $^3J_{\text{HH}} = 7.7\text{ Hz}$, 2H), 7.38 (m, 8H)。

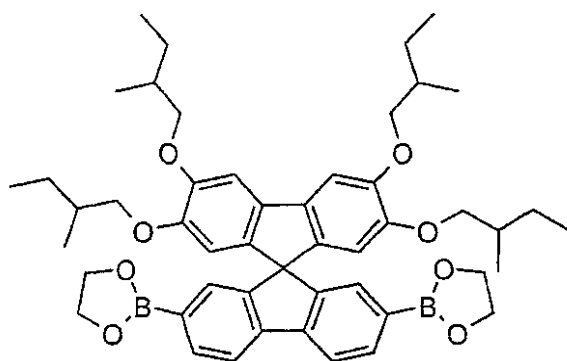
40

【0057】

例 2 : ポリマーのためのコモノマーの合成

用いられる他のコモノマーの合成は、WO 02/077060 およびここに挙げられる文献中に詳細に記載されている。以下で用いたモノマー M 1 を、明瞭にするために重ねて示す。

【化 9】



M1

10

【0058】

例 3：ポリマー P 1 (POLY 1) の合成

合成を、W0 03/048224 中に記載される方法により行った。以下を用いた：19 ml のジオキサン、6 ml のトルエンおよび 12 ml の H_2O 中の、1.6013 g (2 mmol) のモノマー M 1、0.9886 g (2 mmol) のモノマー Si 1、および 2.03 g (2.2 当量) のリン酸カリウム水和物。以下を触媒として用いた：0.45 mg の Pd(OAc)₂ および 3.65 mg の P(O-トリル)₃。処理すると、57,000 の分子量 M_n および 192,000 の分子量 M_w (ポリスチレン標準を用いる THF 中での GPC) を有する 1.44 g のポリマーを与えた。ポリマー P 2 の合成を、同様に行った。

20

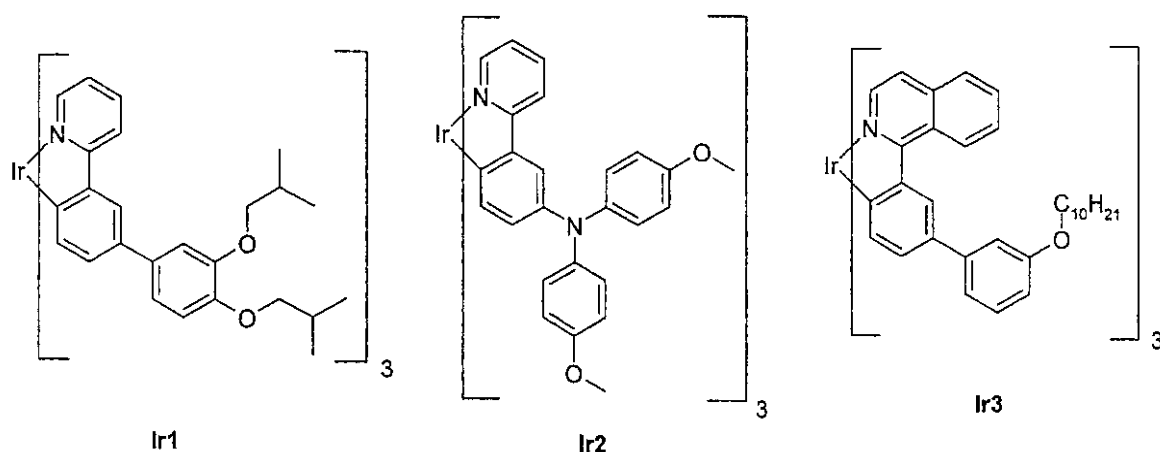
【0059】

例 4：配合物中で使用するための構造単位 TRIP 1

一例としてここで用いられる化合物 TRIP 1 は、トリス(フェニルピリジル)イリジウム(III)の誘導体である。これらの化合物の合成は、W0 02/081488 および W0 04/026886 中に記載されている。明瞭にするために、ここで用いるイリジウム錯体を、重ねて以下に示す。

30

【化 10】



40

【0060】

例 5：配合物の調製

混合物を、所望の比率、および適切な溶媒中での所望の濃度で、配合成分を溶解することにより調製した。ここで用いた溶媒は、トルエンであった。ここでの溶解プロセスを、

50

不活性雰囲気下、60℃で行った。この溶液を、混合物の単離（固体成分を繰り返し沈殿させる）を伴うことなく、直接的に処理した。

【0061】

例6：ポリマー発光ダイオード（PLED）の製造

PLEDを製造することができる方法は、WO 04/037887 およびここに挙げられる文献中に詳細に記載されている。

【0062】

例7：デバイス例

表1は、ポリマーの種々の配合物の総覧を与え、ここで、それぞれの場合において、ポリマーの組成、および三重項エミッタも示す。

【表 1】

配合物	ポリマー	ポリマー組成	三重項エミッタ ^a	最大効率	U @ 100 cd/m ²	CIE x/y ^b	寿命 (100) ^c
配合物 1	P1	50% Si1, 50% M1	8% Ir1	20.7 cd/A	6.9 V	0.39 / 0.58	700 hrs
配合物 2	P1	50% Si1, 50% M1	20% Ir1	23.4 cd/A	5.3 V	0.39 / 0.58	2000 hrs
配合物 3	P1	50% Si1, 50% M1	8% Ir2	4.21 cd/A	10.5 V	0.60 / 0.40	100 hrs
配合物 4	P1	50% Si1, 50% M1	20% Ir2	10.8 cd/A	6.6 V	0.62 / 0.38	
配合物 5	P2	10% Si1, 80% M1, 10% M2	20% Ir2	9.0 cd/A	5.3 V	0.62 / 0.38	64 hrs
配合物 6	P1	50% Si1, 50% M1	8% Ir3	3.78 cd/A	8.1 V	0.68 / 0.32	90 hrs
配合物 7	P1	50% Si1, 50% M1	20% Ir3	3.17 cd/A	9.0 V	0.68 / 0.32	110 hrs
配合物 8	P2	10% Si1, 80% M1, 10% M2	8% Ir3	4.69 cd/A	4.8 V	0.68 / 0.32	1700 hrs

10

20

30

40

50

表 1 : 本発明による配合物を有するデバイス結果

^a マトリックス中の三重項エミッタの濃度を、重量 % で与える。すなわち、ポリマー P 1 または P 2 中の 20 % の三重項エミッタとは、20 重量部のエミッタと 80 重量部の P 1 を意味する。

【 0 0 6 4 】

^b C I E 座標 : Commission Internationale de l'Eclairage from 1931 の色度座標。

【 0 0 6 5 】

^c 寿命は、2 の加速係数を用いて、 $100 \text{ cd} / \text{m}^2$ の一定の初期光束密度にまで外挿した。

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.
PCT/EP2005/005021

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 C09K11/06 H01L33/00 H05B33/14		
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) IPC 7 C09K H05B H01L C07F		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) EPO-Internal		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 03/092334 A (NIPPON HOSO KYOKAI; SHOWA DENKO K.K; TOKITO, SHIZUO; SHIRANE, KORO; KA) 6 November 2003 (2003-11-06) page 6, line 11 - line 14 page 10, line 18 - page 11, line 4 page 18, line 13 - line 31 page 19, line 10 - line 24 page 30, line 1 - page 31, line 5 page 37, line 15 - page 38, line 19 page 46, line 1 - page 47, line 5 examples (5-1)-(6-2)	1-17, 19-25
A	WO 2004/015025 A (E. I. DU PONT DE NEMOURS AND COMPANY) 19 February 2004 (2004-02-19) page 31; example 8 claims 1,26	1-25
-/-		
☒ Further documents are listed in the continuation of box C.		
☒ Patent family members are listed in 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 document 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. *A* document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 9 November 2005		Date of mailing of the international search report 16/11/2005
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 LV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3010		Authorized officer Kövecs, M

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/EP2005/005021

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WONG W-Y ET AL: "Triplet emission in platinum-containing Poly(alkynylsilanes)" MACROMOLECULES, ACS, WASHINGTON, DC, US, vol. 36, 2003, pages 983-990, XP002337028 ISSN: 0024-9297 page 983, paragraph 1 page 984, paragraph 2-4 page 985; figure 1	1-25

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No.

PCT/EP2005/005021

Patent document cited in search report		Publication date		Patent family member(s)	Publication date
WO 03092334	A	06-11-2003	AU	2003231528 A1	10-11-2003
WO 2004015025	A	19-02-2004	AU	2003256975 A1	25-02-2004
			CA	2494086 A1	19-02-2004
			CN	1671818 A	21-09-2005
			EP	1554361 A1	20-07-2005

INTERNATIONALES RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2005/005021

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES IPK 7 C09K11/06 H01L33/00 H05B33/14		
Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK		
B. RECHERCHIERTE GEBIETE Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationsymbole) IPK 7 C09K H05B H01L C07F		
Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen		
Während der Internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe) EPO-Internal		
C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 03/092334 A (NIPPON HOSO KYOKAI; SHOWA DENKO K.K.; TOKITO, SHIZUO; SHIRANE, KORO; KA) 6. November 2003 (2003-11-06) Seite 6, Zeile 11 - Zeile 14 Seite 10, Zeile 18 - Seite 11, Zeile 4 Seite 18, Zeile 13 - Zeile 31 Seite 19, Zeile 10 - Zeile 24 Seite 30, Zeile 1 - Seite 31, Zeile 5 Seite 37, Zeile 15 - Seite 38, Zeile 19 Seite 46, Zeile 1 - Seite 47, Zeile 5 Beispiele (5-1)-(6-2)	1-17, 19-25
A	WO 2004/015025 A (E. I. DU PONT DE NEMOURS AND COMPANY) 19. Februar 2004 (2004-02-19) Seite 31; Beispiel 8 Ansprüche 1,26	1-25
-/-		
☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen		
☒ Siehe Anhang Patentfamilie		
* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen : *A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist *E* Älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem Internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist *L* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt) *O* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht *P* Veröffentlichung, die vor dem Internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist *T* Spätere Veröffentlichung, die nach dem Internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist *X* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden *Y* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist *Z* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist		
Datum des Abschlusses der Internationalen Recherche		Absenddatum des internationalen Recherchenberichts
9. November 2005		16/11/2005
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentaan 2 NL - 2200 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Bevollmächtigter Beauftragter Kövecs, M

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2005/005021

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	WONG W-Y ET AL: "Triplet emission in platinum-containing Poly(alkynylsilanes)" MACROMOLECULES, ACS, WASHINGTON, DC, US, Bd. 36, 2003, Seiten 983-990, XP002337028 ISSN: 0024-9297 Seite 983, Absatz 1 Seite 984, Absatz 2-4 Seite 985; Abbildung 1	1-25

INTERNATIONALE RESEARCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2005/005021

Im Recherchenbericht angeführtes Patentedokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
WO 03092334	A	06-11-2003	AU	2003231528 A1	10-11-2003
WO 2004015025	A	19-02-2004	AU	2003256975 A1	25-02-2004
			CA	2494086 A1	19-02-2004
			CN	1671818 A	21-09-2005
			EP	1554361 A1	20-07-2005

フロントページの続き

(81)指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), EP(AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW

(74)代理人 100109830

弁理士 福原 淑弘

(74)代理人 100095441

弁理士 白根 俊郎

(74)代理人 100084618

弁理士 村松 貞男

(74)代理人 100103034

弁理士 野河 信久

(74)代理人 100140176

弁理士 砂川 克

(74)代理人 100092196

弁理士 橋本 良郎

(74)代理人 100100952

弁理士 風間 鉄也

(72)発明者 ビュシン、アルネ

ドイツ連邦共和国、6 5 9 2 9 フランクフルト、リーデルバッヒャーシュトラッセ 5

(72)発明者 ショイリッヒ、レネ

ドイツ連邦共和国、6 4 8 4 6 グロス - ジムメルン、ベルタ・フォン・シュットナー・シュトラッセ 3 4

(72)発明者 ホイン、スザンヌ

ドイツ連邦共和国、6 5 8 1 2 バド・ソデン、アム・カールシュバウム 2 3

(72)発明者 バッハ、イングリッド

ドイツ連邦共和国、6 5 8 1 2 バド・ソデン、ガルテンシュトラッセ 2

Fターム(参考) 3K107 AA01 CC03 DD53 DD62 DD64 DD67 DD68 FF14

专利名称(译)	用于电致发光的新型材料混合物		
公开(公告)号	JP2007538116A	公开(公告)日	2007-12-27
申请号	JP2007512061	申请日	2005-05-10
申请(专利权)人(译)	默克专利有限公司		
[标]发明人	ビュシナルネ ショイリッヒレネ ホインズザンヌ バッハイングリッド		
发明人	ビュシン、アルネ ショイリッヒ、レネ ホイン、スザンヌ バッハ、イングリッド		
IPC分类号	C09K11/06 H01L51/50 C07F5/00 C09K11/00 H01L51/00 H01L51/30 H05B33/14		
CPC分类号	H05B33/14 C07F5/003 C09B23/148 C09B57/007 C09K2211/1433 C09K2211/185 H01L51/0035 H01L51/0039 H01L51/0043 H01L51/0052 H01L51/0085 H01L51/0094 H01L51/5016 Y02E10/549 Y10S428/917		
FI分类号	C09K11/06.660 C09K11/06.690 H05B33/14.B		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/CC03 3K107/DD53 3K107/DD62 3K107/DD64 3K107/DD67 3K107/DD68 3K107/FF14		
代理人(译)	河野 哲 中村 誠		
优先权	102004023277 2004-05-11 DE		
其他公开文献	JP4988558B2 JP2007538116A5		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

本发明涉及包含至少一种聚合物的混合物，此外还包含含有除碳以外的第四主族的至少一种元素的结构单元，以及从三重态发光的结构单元。与根据现有技术的对比材料相比，根据本发明的材料更适合用于有机磷光发光二极管。

(19) 日本国特許庁(JP)	(12) 公表特許公報(A)	(11) 特許出願公表番号 特表2007-53811 (P2007-53811)
		(43) 公表日 平成19年12月27日(2007.12.27)
(51) Int. Cl.	F I	テーマコード(参考) 3 K 1 0 7
C 0 9 K 1 1 / 0 6 (2006.01)	C 0 9 K 1 1 / 0 6 6 6 0	
H 0 1 L 5 1 / 5 0 (2006.01)	C 0 9 K 1 1 / 0 6 6 9 0	
	H 0 5 B 3 3 / 1 4 B	
審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全28頁)		
(21) 出願番号 特願2007-512061 (P2007-512061)	(71) 出願人 597035528	
(86) (22) 出願日 平成17年5月10日(2005.5.10)	メルク パテント ゲーエムベーハー	
(85) 翻訳文提出日 平成19年1月10日(2007.1.10)	ドイツ国, D-64293 ダルムシュタット	
(86) 国際出願番号 PCT/EP2005/005021	フラנקフルター ストラッセ 20	
(87) 国際公開番号 W02005/111172		
(87) 国際公開日 平成17年11月24日(2005.11.24)	(74) 代理人 100058479	
(31) 優先権主張番号 102004023277.6	弁理士 鈴江 武彦	
(32) 優先日 平成16年5月11日(2004.5.11)	(74) 代理人 100091351	
(33) 優先権主張国 ドイツ(DE)	弁理士 河野 哲	
	(74) 代理人 10008683	
	弁理士 中村 誠	
	(74) 代理人 100108855	
	弁理士 蔵田 昌俊	
	(74) 代理人 100075672	
	弁理士 峰 隆司	
最終頁に続く		