

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2008年8月14日 (14.08.2008)

PCT

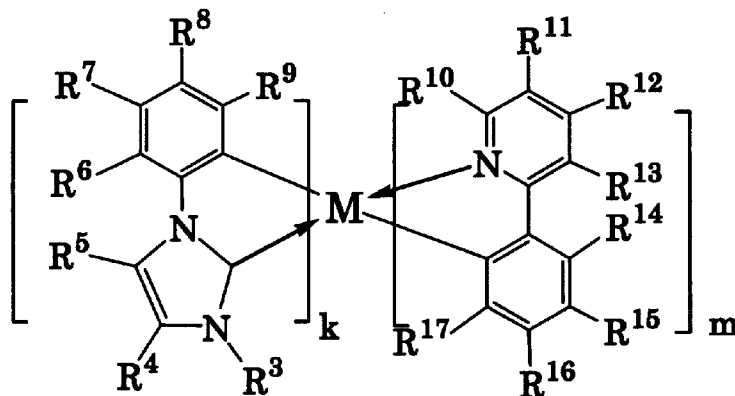
(10) 国際公開番号
WO 2008/096609 A1

- (51) 国際特許分類:
C07F 15/00 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)
C09K 11/06 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2008/050979
- (22) 国際出願日: 2008年1月24日 (24.01.2008)
- (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2007-025498 2007年2月5日 (05.02.2007) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 出光興産株式会社 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1008321 東京都千代田区丸の内三丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 渡邊 正美 (WATANABE, Masami) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 奥田 文雄 (OKUDA, Fumio) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 長島 英明 (NAGASHIMA, Hideaki) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 荻原 俊成 (OGIWARA, Toshinari) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP).
- (74) 代理人: 大谷 保, 外(OHTANI, Tamotsu et al.); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目25番2号 ブリヂストーン虎ノ門ビル6階 大谷特許事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE,

[続葉有]

(54) Title: TRANSITION METAL COMPLEX COMPOUND AND ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE USING THE SAME

(54) 発明の名称: 遷移金属錯体化合物及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子



(1)

(57) Abstract: Disclosed is a transition metal complex compound having a carbene bond and represented by the general formula (1) below. Also disclosed is an organic electroluminescent device wherein an organic thin film composed of one or more layers including at least a light-emitting layer is interposed between a pair of electrodes. In this organic electroluminescent device, at least one layer of the organic thin film contains the transition metal complex compound, and the organic electroluminescent device emits blue light with high luminous efficiency. The transition metal complex compound enables to obtain such an organic electroluminescent device. (In the general formula (1), C→M represents a metal carbene bond; M represents a metal atom of Ir or Pt; k represents an integer of 1-3, m represents an integer of 0-2, and k + m represents the atomic valence of the metal M; R³ represents an alkyl group or the like; and R⁴-R¹⁷ independently represent a hydrogen atom, a halogen atom or the like, and adjacent members of R⁴-R¹⁷ may be crosslinked with each other.)

(57) 要約: カルベン結合を有する下記一般式(1)で表される遷移金属錯体化合物、並びに、一對の電極間に少なくとも発光層を有する一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、前記遷移金属錯体化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子であり、発光効率が高く、青色発光する有機エレクトロルミネッセンス素子及びそれを実現する遷移金属錯体化合物を提供する。[一般式(1)において、C→Mは金属カルベン結合を示す。Mは、Ir又はPtの金属原子

[続葉有]

WO 2008/096609 A1



DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

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).

(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,

添付公開書類:

— 国際調査報告書

明 細 書

遷移金属錯体化合物及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子 技術分野

[0001] 本発明は、遷移金属錯体化合物及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子に関し、特に、発光効率が高く、青色発光する有機エレクトロルミネッセンス素子及びそれを実現する新規な遷移金属錯体化合物に関するものである。

背景技術

[0002] 有機エレクトロルミネッセンス(EL)素子は、電界を印加することより、陽極より注入された正孔と陰極より注入された電子の再結合エネルギーにより蛍光性物質が発光する原理を利用した自発光素子である。イーストマン・コダック社のC. W. Tangらによる積層型素子による低電圧駆動有機EL素子の報告(C.W. Tang, S.A. Vanslyke, アプライドフィジックスレターズ(Applied Physics Letters),51巻, 913頁, 1987年等)がなされて以来、有機材料を構成材料とする有機EL素子に関する研究が盛んに行われている。Tangらは、トリス(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウムを発光層に、トリフェニルジアミン誘導体を正孔輸送層に用いている。積層構造の利点としては、発光層への正孔の注入効率を高めること、陰極より注入された電子をブロックして再結合により生成する励起子の生成効率を高めること、発光層内で生成した励起子を閉じ込めること等が挙げられる。この例のように有機EL素子の素子構造としては、正孔輸送(注入)層、電子輸送発光層の2層型、又は正孔輸送(注入)層、発光層、電子輸送(注入)層の3層型等がよく知られている。こうした積層型構造素子では注入された正孔と電子の再結合効率を高めるため、素子構造や形成方法の工夫がなされている。

有機EL素子の発光材料としてはトリス(8-キノリノラート)アルミニウム錯体等のキレート錯体、クマリン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ジスチリルアリーレン誘導体、オキサジアゾール誘導体等の発光材料が知られており、それらからは青色から赤色までの可視領域の発光が得られることが報告されており、カラー表示素子の実現が期待されている(例えば、特許文献1, 特許文献2, 特許文献3等参照)。

[0003] また、近年、有機EL素子の発光層に蛍光材料の他に、りん光材料を利用することも提案されている(例えば、非特許文献1, 非特許文献2参照)。このように有機EL素子の発光層においてりん光材料の励起状態の一重項状態と三重項状態とを利用し、高い発光効率が達成されている。有機EL素子内で電子と正孔が再結合する際にはスピン多重度の違いから一重項励起子と三重項励起子とが1:3の割合で生成すると考えられているので、りん光性の発光材料を用いれば蛍光のみを使った素子に比べて3~4倍の発光効率の達成が考えられる。

このような有機EL素子においては、3重項の励起状態又は3重項の励起子が消光しないように順次、陽極, 正孔輸送層, 有機発光層, 電子輸送層(正孔阻止層), 電子輸送層, 陰極のように層を積層する構成が用いられ、有機発光層にホスト化合物とりん光発光性の化合物が用いられてきた(例えば、特許文献4, 特許文献5参照)。これらの特許文献は赤~緑色に発光するりん光材料に関する技術である。また、青色系発光色を有する発光材料に関する技術も公開されている(例えば、特許文献6, 特許文献7, 特許文献8参照)。しかし、これらは素子寿命が非常に短く、特に特許文献7及び8ではIr金属とリン原子が結合した配位子骨格が記載されており、これらは発光色が青色化するものの、結合が弱く、耐熱性が著しく乏しい。特許文献9には、同様に酸素原子と窒素原子が中心金属に結合した錯体に関して記載されているが、酸素原子に結合する基の具体的な効果について何ら記載が無く不明である。特許文献10では異なる環構造に含まれる窒素原子が1つずつ中心金属に結合した錯体が開示されており、それを利用した素子は青色発光を示すものの、外部量子効率は5%前後と低いものとなっている。さらに、特許文献6~10には、本発明の遷移金属錯体化合物についての開示や示唆はない。

[0004] 一方、近年、金属カルベン結合を有する遷移金属錯体化合物(以下、カルベン錯体ということがある)について研究がなされている(例えば、特許文献11及び非特許文献3~11参照)。

カルベンとは二配位炭素で、 sp^2 混成軌道と2p軌道に二つの電子を有するものを行い、その二つの電子が入る軌道とスピンの向きの組み合わせから4種の構造をとり得るが、通常は一重項カルベンとなり、 sp^2 混成の被占軌道と空の2p軌道からなる。

従来、カルベン錯体は短寿命・不安定であり、有機合成反応の反応中間体又はオレフィンへの付加といった合成変換試剤として利用されてきたが、1991年頃、芳香族複素環構造からなる安定カルベン錯体や、非芳香族環状構造からなる安定カルベン錯体が見出され、さらにその後、窒素とリンにより安定化することで、非環状カルベン錯体が安定に得られるに至った。また、これを配位子として遷移金属と結合させることで触媒性能が向上することから、近年、有機合成における触媒反応では、安定カルベン錯体への期待が高まっている。

特に、オレフィンメタセシス反応では、安定カルベン錯体を添加又は配位させることで顕著な性能向上が見出されている。また、近年は、鈴木カップリング反応の効率化やアルカンの酸化や選択的ヒドロホルミル化反応、また光学活性なカルベン錯体などの研究が展開されており、カルベン錯体の有機合成分野への応用は、注目を集めている。

また、具体的にカルベンイリジウム結合を有する錯体例は、以下の非特許文献12(非複素環型カルベン配位子からなるトリス(カルベン)イリジウム錯体)及び非特許文献13(単座配位型モノカルベンイリジウム錯体)に記載があるが、有機EL素子分野等への応用は記載されていない。

また、特許文献11には、カルベン結合を有するイリジウム錯体の合成とその発光波長ならびに素子性能が開示されているが、エネルギー効率、外部量子効率が低く、しかも発光波長が紫外領域に分布し、視感効率が悪い。従って、有機EL等の視覚波長域の発光デバイスには適さない。また、分解温度が低い、分子量が高いなどの理由から真空蒸着できず、蒸着時に錯体が分解するため、素子作製時に不純物が混入するという点で問題があった。

さらに、特許文献12~20には、種々のカルベン結合を有する錯体に関する記載があり、青色発光錯体が開示されている。しかし、エネルギー効率、外部量子効率が低く、また、そのいずれも発光寿命の長寿命化については言及されていない。

一方、特許文献21及び22には、トリス(2-フェニルピリジン-N, C²)イリジウム錯体の長寿命化の方法として、3つの2-フェニルピリジン-N, C²基部位を3脚型で架橋することが開示されているが、3脚型架橋部位がベンゼン環骨格を有するもののみ

報告されており、顕著な長寿命化には至っておらず、また、青色発光のための指針が示されていない。

[0005] 特許文献1:特開平8-239655号公報

特許文献2:特開平7-138561号公報

特許文献3:特開平3-200889号公報

特許文献4:米国特許第6,097,147号明細書

特許文献5:国際公開WO01/41512号公報

特許文献6:US2001/0025108号公開公報

特許文献7:US2002/0182441号公開公報

特許文献8:特開2002-170684号公報

特許文献9:特開2003-123982号公報

特許文献10:特開2003-133074号公報

特許文献11:国際公開WO05/019373号公報

特許文献12:US2005/0258433号公開公報

特許文献13:US2005/0258742号公開公報

特許文献14:US2005/0260441号公開公報

特許文献15:US2005/0260444号公開公報

特許文献16:US2005/0260445号公開公報

特許文献17:US2005/0260446号公開公報

特許文献18:US2005/0260447号公開公報

特許文献19:US2005/0260448号公開公報

特許文献20:US2005/0260449号公開公報

特許文献21:US2005/0170206号公開公報

特許文献22:US2005/0170207号公開公報

非特許文献1:D. F. OBrien and M. A. Baldo et al "Improved energy transfer in electrophosphorescent devices" Vol. 74 No. 3, pp 442-444, January 18, 1999

非特許文献2:M. A. Baldo et al "Very high-efficiency green organic li

ght-emitting devices based on electrophosphorescence”Applied Physics letters Vol. 75 No. 1, pp4-6, July5, 1999

非特許文献3:Chem. Rev. 2000, 100, p39

非特許文献4:J. Am. Chem. Soc. , 1991, 113, p361

非特許文献5:Angew. Chem. Int. Ed. , 2002, 41, p1290

非特許文献6:J. Am. Chem. Soc. , 1999, 121, p2674

非特許文献7:Organometallics, 1999, 18, p2370

非特許文献8:Angew. Chem. Int. Ed. , 2002, 41, p1363

非特許文献9:Angew. Chem. Int. Ed. , 2002, 41, p1745

非特許文献10:Organometallics, 2000, 19, p3459

非特許文献11:TetrahedronAymmetry, 2003, 14, p951

非特許文献12:J. Organomet. Chem. , 1982, 239, C26—C30

非特許文献13:Chem. Commun. , 2002, p2518

発明の開示

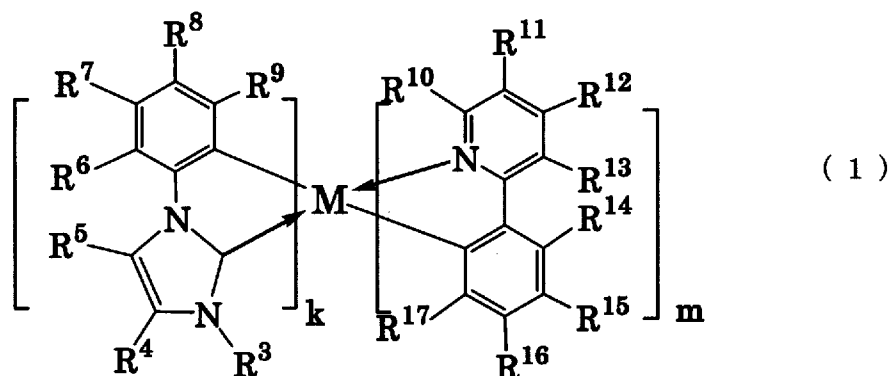
発明が解決しようとする課題

- [0006] 本発明は、前記の課題を解決するためになされたもので、発光効率が高く、青色発光する有機EL素子及びそれを実現する新規な遷移金属錯体化合物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

- [0007] 本発明者らは、前記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、遷移金属錯体化合物において、金属カルベン結合を有するものを用いることで、発光波長を長波長化させることができることを見出した。この現象は、発光波長を所望のものに調節できる技術として有用で、特に紫外領域に発光波長を有する材料を青色領域に発光を有する材料へと導く上で有用である(視覚波長領域を拡大させることができる)。この技術を利用することで、発光効率が高く、青色発光の有機EL素子が得られることを見出し、本発明を完成するに至った。
- [0008] すなわち、本発明は、下記一般式(1)～(3)で表される金属カルベン結合を有する遷移金属錯体化合物を提供するものである。

[化1]



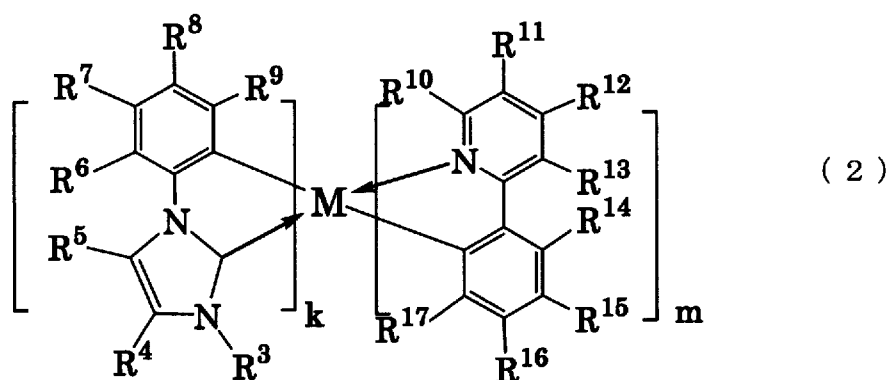
[0009] [一般式(1)において、C(炭素原子)→Mは金属カルベン結合を示す。Mは、Ir又はPtの金属原子を示す。kは1～3、mは0～2の整数を示し、k+mは金属Mの原子価を示す。

R³は、置換基を有してもよい炭素数1～30のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1～30のハロゲン化アルキル基、置換基を有してもよい核炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3～30のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数7～40のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数2～30のアルケニル基、置換基を有してもよい核原子数3～30の複素環基、置換基を有してもよい核原子数3～30のアルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数6～30のアリールシリル基、炭素数1～30のカルボキシル含有基である。

R⁴～R¹⁷は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、チオシアノ基、又はシアノ基、ニトロ基、 $-S(=O)_2R^1$ 基、又は $-S(=O)R^1$ [R¹は、水素原子、置換基を有してもよい炭素数1～30のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1～30のハロゲン化アルキル基、置換基を有してもよい核炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3～50のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数7～40のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数2～30のアルケニル基、置換基を有してもよい核原子数3～30の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1～30のアルコキシ基、置換基を有してもよい核炭素数6～30のアリールオキシ基、置換基を有してもよい炭素数3～30アルキルアミノ基、置換基を有してもよい炭素数6～30の

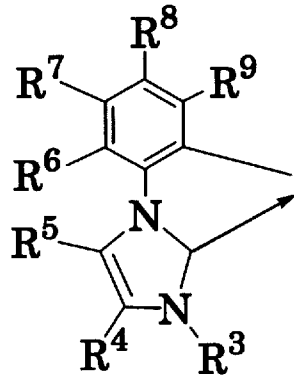
アリールアミノ基、置換基を有してもよい炭素数3～30アルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数6～30のアリールシリル基、あるいは置換基を有してもよい炭素数1～30のカルボキシル含有基である。]、置換基を有してもよい炭素数1～30のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1～30のハロゲン化アルキル基、置換基を有してもよい核炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3～30のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数7～40のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数2～30のアルケニル基、置換基を有してもよい核原子数3～30の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1～30のアルコキシ基、置換基を有してもよい核炭素数6～30のアリールオキシ基、置換基を有してもよい核原子数3～30のアルキルアミノ基、置換基を有してもよい核原子数3～30のアルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数6～30のアリールシリル基、炭素数1～30のカルボキシル含有基であり、 $R^4 \sim R^{17}$ は隣接するもの同士で架橋していてもよい。]

[0010] [化2]



[一般式(2)において、C(炭素原子)→Mは金属カルベン結合を示す。Mは、Ir又はPtの金属原子を示す。kは1～3、mは0～2の整数を示し、k+mは金属Mの原子価を示す。k+m個の

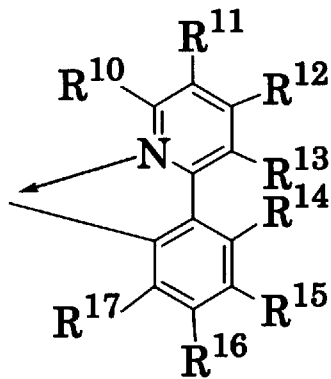
[0011] [化3]



(置換)N-フェニル-N'-R³-イミダゾール-2-イリデン-C², C^{2'}基

及び

[0012] [化4]



(置換)2-フェニルピリジン-N, C^{2'}基

のうち、少なくとも2つは架橋基-Z¹-を介して架橋している。Z¹は、置換基を含む原子数3~31の直鎖状の架橋基又は枝分れ状の架橋基であり、架橋を構成する原子は、ホウ素、炭素、ケイ素、酸素、硫黄、セレン、窒素、又はリンから構成され、置換基は、水素、ホウ素、炭素、ケイ素、酸素、硫黄、セレン、窒素、又はリンから構成される。

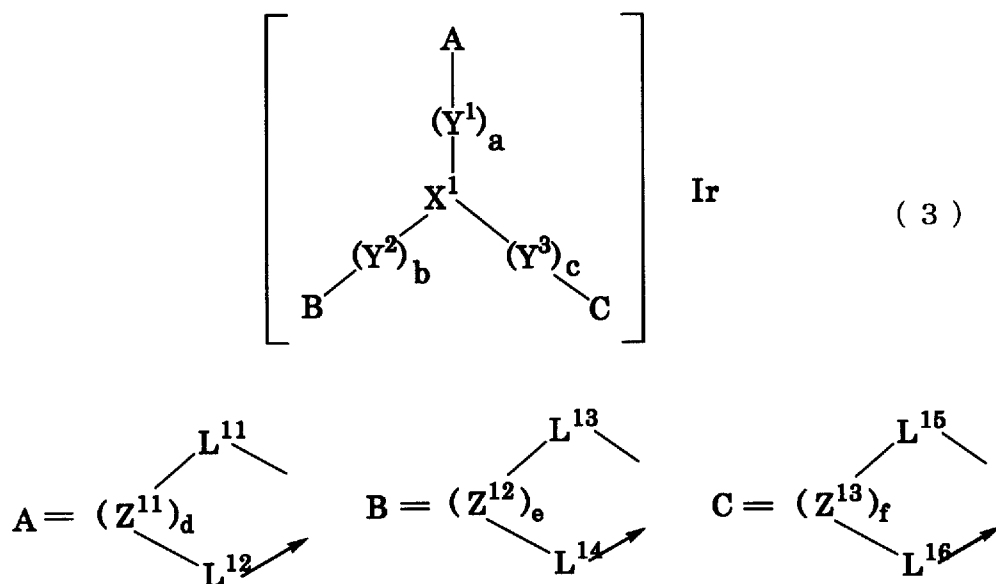
。

[0013] R³は、置換基を有してもよい炭素数1~30のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1~30のハロゲン化アルキル基、置換基を有してもよい核炭素数6~30の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3~30のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数7~40のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数2~30の

アルケニル基、置換基を有してもよい核原子数3～30の複素環基、置換基を有してもよい核原子数3～30のアルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数6～30のアリールシリル基、炭素数1～30のカルボキシル含有基である。

$R^4 \sim R^{17}$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、チオシアノ基、又はシアノ基、ニトロ基、 $-S(=O)_2 R^1$ 基、又は $-S(=O)R^1$ [R^1 は、水素原子、置換基を有してもよい炭素数1～30のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1～30のハロゲン化アルキル基、置換基を有してもよい核炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3～50のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数7～40のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数2～30のアルケニル基、置換基を有してもよい核原子数3～30の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1～30のアルコキシ基、置換基を有してもよい核炭素数6～30のアリールオキシ基、置換基を有してもよい炭素数3～30アルキルアミノ基、置換基を有してもよい炭素数6～30のアリールアミノ基、置換基を有してもよい炭素数3～30アルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数6～30のアリールシリル基、又は置換基を有してもよい炭素数1～30のカルボキシル含有基である]、置換基を有してもよい炭素数1～30のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1～30のハロゲン化アルキル基、置換基を有してもよい核炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3～30のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数7～40のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数2～30のアルケニル基、置換基を有してもよい核原子数3～30の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1～30のアルコキシ基、置換基を有してもよい核炭素数6～30のアリールオキシ基、置換基を有してもよい核原子数3～30のアルキルアミノ基、置換基を有してもよい核原子数3～30のアルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数6～30のアリールシリル基、炭素数1～30のカルボキシル含有基であり、 $R^4 \sim R^{17}$ は隣接するもの同士で架橋していてもよい。]

[0014] [化5]



[0015] [一般式(3)において、Aは $L^{11} - (Z^{11})_d - L^{12}$ からなる架橋二座配位子群を、Bは $L^{13} - (Z^{12})_e - L^{14}$ からなる架橋二座配位子群を、また、Cは $L^{15} - (Z^{13})_f - L^{16}$ からなる架橋二座配位子群を示す。 L^{11} 、 L^{13} 及び L^{15} は、それぞれIr(イリジウム)への共有結合($L^{11} - \text{Ir}$ 、 $L^{13} - \text{Ir}$ 及び $L^{15} - \text{Ir}$)を示し、 L^{12} 、 L^{14} 及び L^{16} は、それぞれIrへの配位結合($L^{12} \rightarrow \text{Ir}$ 、 $L^{14} \rightarrow \text{Ir}$ 及び $L^{16} \rightarrow \text{Ir}$)を示す。

X^1 は、置換基を有しても良い R^1C (Cは炭素原子、 R^1 は前記と同じ)、 $R^1\text{Si}$ (Siはケイ素原子、 R^1 は前記と同じ)、窒素、又はリン原子である。

Y^1 は X^1 とA、 Y^2 は X^1 とB、 Y^3 は X^1 とCを結合する架橋基を示し、 Y^1 は L^{11} 、 L^{12} 又は Z^{11} 、 Y^2 は L^{13} 、 L^{14} 又は Z^{12} 、 Y^3 は L^{15} 、 L^{16} 又は Z^{13} と結合している。 Y^1 、 Y^2 及び Y^3 は、それぞれ独立に、水素原子、炭素原子、ケイ素原子、窒素原子、硫黄原子、酸素原子、リン原子及びホウ素原子の群から選ばれる原子から構成される化合物の2価の残基であり、置換基を有していてもよい。 a 、 b 及び c は、それぞれ独立に0~10の整数を示し、 a 、 b 又は c が複数のときは、複数ある Y^1 、 Y^2 又は Y^3 は、それぞれ同じでも異なってもよい。

Z^{11} は L^{11} と L^{12} 、 Z^{12} は L^{13} と L^{14} 、 Z^{13} は L^{15} と L^{16} を結合する架橋基を示し、 Z^{11} 、 Z^{12} 及び Z^{13} は、それぞれ独立に、水素原子、炭素原子、ケイ素原子、窒素原子、硫黄原子、酸素原子、リン原子及びホウ素原子の群から選ばれる原子から構成される化合物の2価の残基であり、置換基を有していてもよい。 Z^{11} が Y^1 と直接結合した場合、 Z^{12} が Y^2

と直接結合した場合、又は Z^{13} が Y^3 と直接結合した場合、 Z^{11} 、 Z^{12} 及び Z^{13} は、それぞれ相当する3価の基となる。 d 、 e 及び f は、それぞれ独立に0～10の整数を示し、 d 、 e 又は f が複数のときは、複数ある Z^{11} 、 Z^{12} 又は Z^{13} は、それぞれ同じでも異なってもよい。

L^{11} 、 L^{13} 及び L^{15} は、それぞれ独立に、置換基を有してもよい核炭素数6～30の2価の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核原子数3～30の2価の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1～30の2価のカルボキシル含有基、置換基を有してもよい2価のアミノ基あるいは水酸基含有炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3～50のシクロアルキレン基、置換基を有してもよい炭素数1～30のアルキレン基、置換基を有してもよい炭素数2～30のアルケニレン基、置換基を有してもよい炭素数7～40のアラルキレン基であり、 L^{11} が Y^1 と直接結合した場合、 L^{13} が Y^2 と直接結合した場合、又は L^{15} が Y^3 と直接結合した場合は、 L^{11} 、 L^{13} 及び L^{15} は、それぞれ相当する3価の基となる。

L^{12} 、 L^{14} 及び L^{16} は、それぞれ独立に、置換基を有してもよい1価のジアゾール又はジアゾール-2-イリデン基(カルベン錯体)であり、 L^{12} が Y^1 と直接結合した場合、 L^{14} が Y^2 と直接結合した場合、あるいは L^{16} が Y^3 と直接結合した場合は、 L^{12} 、 L^{14} 及び L^{16} は、それぞれ相当する2価の基となる。]

[0016] また、本発明は、陽極と陰極間に少なくとも発光層を有する一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機EL素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、前記遷移金属錯体化合物を含有する有機EL素子を提供するものである。

発明の効果

[0017] 本発明の遷移金属錯体化合物を用いた有機EL素子は、発光効率が高く、発光寿命が長く、青色発光する。

図面の簡単な説明

[0018] [図1]実施例6において得られた有機EL素子のELスペクトルを示す図である。

[図2]実施例7において得られた有機EL素子のELスペクトルを示す図である。

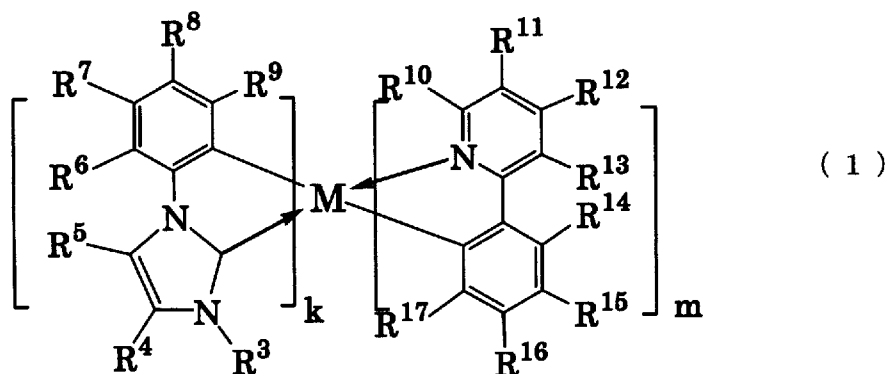
発明を実施するための最良の形態

[0019] 本発明の遷移金属錯体化合物は、下記一般式(1)～(3)のいずれかで表される金

属カルベン結合を有する遷移金属錯体化合物である。

以下、まず一般式(1)について説明する。

[0020] [化6]



[0021] 一般式(1)において、C(炭素原子)→Mは金属カルベン結合を示す。Mは、Ir又はPtの金属原子を示す。kは1~3、mは0~2の整数を示し、k+mは金属Mの原子価を示す。

一般式(1)において、R³は、置換基を有してもよい炭素数1~30のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1~30のハロゲン化アルキル基、置換基を有してもよい核炭素数6~30の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3~30のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数7~40のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数2~30のアルケニル基、置換基を有してもよい核原子数3~30の複素環基、置換基を有してもよい核原子数3~30のアルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数6~30のアリアルシリル基、炭素数1~30のカルボキシル含有基である。

[0022] 一般式(1)において、R⁴~R¹⁷は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、チオシアノ基、又はシアノ基、ニトロ基、 $-S(=O)_2R^1$ 基、又は $-S(=O)R^1$ 基[R¹は、水素原子、置換基を有してもよい炭素数1~30のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1~30のハロゲン化アルキル基、置換基を有してもよい核炭素数6~30の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3~50のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数7~40のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数2~30のアルケニル基、置換基を有してもよい核原子数3~30の複素環基、置換基を有して

もよい炭素数1~30のアルコキシ基、置換基を有してもよい核炭素数6~30のアリーロキシ基、置換基を有してもよい炭素数3~30アルキルアミノ基、置換基を有してもよい炭素数6~30のアリールアミノ基、置換基を有してもよい炭素数3~30アルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数6~30のアリールシリル基、あるいは置換基を有してもよい炭素数1~30のカルボキシル含有基である。]、置換基を有してもよい炭素数1~30のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1~30のハロゲン化アルキル基、置換基を有してもよい核炭素数6~30の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3~30のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数7~40のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数2~30のアルケニル基、置換基を有してもよい核原子数3~30の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1~30のアルコキシ基、置換基を有してもよい核炭素数6~30のアリーロキシ基、置換基を有してもよい核原子数3~30のアルキルアミノ基、置換基を有してもよい核原子数3~30のアルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数6~30のアリールシリル基、炭素数1~30のカルボキシル含有基であり、 $R^4 \sim R^{17}$ は隣接するもの同士で架橋していてもよい。

[0023] 前記アルキル基としては、炭素数1~10のものが好ましく、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、*n*-ノニル基、*n*-デシル基、*n*-ウンデシル基、*n*-ドデシル基、*n*-トリデシル基、*n*-テトラデシル基、*n*-ペンタデシル基、*n*-ヘキサデシル基、*n*-ヘプタデシル基、*n*-オクタデシル基、ネオペンチル基、1-メチルペンチル基、2-メチルペンチル基、1-ペンチルヘキシル基、1-ブチルペンチル基、1-ヘプチルオクチル基、3-メチルペンチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基

、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、1, 2-ジニトロエチル基、2, 3-ジニトロ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロオクチル基、3, 5-テトラメチルシクロヘキシル基等が挙げられる。

これらの中で好ましくは、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基、n-ノニル基、n-デシル基、n-ウンデシル基、n-ドデシル基、n-トリデシル基、n-テトラデシル基、n-ペンタデシル基、n-ヘキサデシル基、n-ヘプタデシル基、n-オクタデシル基、ネオペンチル基、1-メチルペンチル基、1-ペンチルヘキシル基、1-ブチルペンチル基、1-ヘプチルオクチル基、シクロヘキシル基、シクロオクチル基、3, 5-テトラメチルシクロヘキシル基である。

[0024] 前記ハロゲン化アルキル基としては、炭素数1~10のものが好ましく、例えば、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソプロピル基、2, 3-ジブロモ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-t-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、フルオロメチル基、1-フルオロメチル基、2-フルオロメチル基、2-フルオロイソブチル基、1, 2-ジフルオロエチル基、ジフルオロメチル基、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、パーフルオロイソプロピル基、パーフルオロブチル基、パーフルオロシクロヘキシル基等が挙げられる。

これらの中で好ましくは、フルオロメチル基、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、パーフルオロイソプロピル基、パーフルオロブチル基、パーフルオロシクロヘキシル基である。

[0025] 前記芳香族炭化水素基としては、核炭素数6~18のものが好ましく、例えば、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-t-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4"-t-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基、o-クメニル基、m-クメニル基、p-クメニル基、2,3-キシリレニル基、3,4-キシリレニル基、2,5-キシリレニル基、メシチレニル基、パーフルオロフェニル基等が挙げられる。

これらの中で好ましくは、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、9-フェナントリル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-トリル基、3,4-キシリレニル基である。

[0026] 前記シクロアルキル基としては、例えば、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、4-メチルシクロヘキシル基、1-アダマンチル基、2-アダマンチル基、1-ノルボルニル基、2-ノルボルニル基等が挙げられる。

前記アラルキル基としては、炭素数7~18のものが好ましく、例えば、ベンジル基、1-フェニルエチル基、2-フェニルエチル基、1-フェニルイソプロピル基、2-フェニルイソプロピル基、フェニル-t-ブチル基、 α -ナフチルメチル基、1- α -ナフチルエチル基、2- α -ナフチルエチル基、1- α -ナフチルイソプロピル基、2- α -ナフチルイソプロピル基、 β -ナフチルメチル基、1- β -ナフチルエチル基、2- β -ナフチルエチル基、1- β -ナフチルイソプロピル基、2- β -ナフチルイソプロピル基、1-ピロリルメチル基、2-(1-ピロリル)エチル基、p-メチルベンジル基、m-メチルベンジル基、o-メチルベンジル基、p-クロロベンジル基、m-クロ

ロベンジル基、*o*-クロロベンジル基、*p*-ブロモベンジル基、*m*-ブロモベンジル基、*o*-ブロモベンジル基、*p*-ヨードベンジル基、*m*-ヨードベンジル基、*o*-ヨードベンジル基、*p*-ヒドロキシベンジル基、*m*-ヒドロキシベンジル基、*o*-ヒドロキシベンジル基、*p*-アミノベンジル基、*m*-アミノベンジル基、*o*-アミノベンジル基、*p*-ニトロベンジル基、*m*-ニトロベンジル基、*o*-ニトロベンジル基、*p*-シアノベンジル基、*m*-シアノベンジル基、*o*-シアノベンジル基、1-ヒドロキシ-2-フェニルイソプロピル基、1-クロロ-2-フェニルイソプロピル基等が挙げられ、好ましくは、ベンジル基、*p*-シアノベンジル基、*m*-シアノベンジル基、*o*-シアノベンジル基、1-フェニルエチル基、2-フェニルエチル基、1-フェニルイソプロピル基、2-フェニルイソプロピル基である。

[0027] 前記アルケニル基としては、炭素数2~16のものが好ましく、例えば、ビニル基、アリル基、1-ブテニル基、2-ブテニル基、3-ブテニル基、1, 3-ブタンジエニル基、1-メチルビニル基、スチリル基、2, 2-ジフェニルビニル基、1, 2-ジフェニルビニル基、1-メチルアリル基、1, 1-ジメチルアリル基、2-メチルアリル基、1-フェニルアリル基、2-フェニルアリル基、3-フェニルアリル基、3, 3-ジフェニルアリル基、1, 2-ジメチルアリル基、1-フェニル-1-ブテニル基、3-フェニル-1-ブテニル基等が挙げられ、好ましくはスチリル基、2, 2-ジフェニルビニル基、1, 2-ジフェニルビニル基である。

[0028] 前記複素環基としては、核原子数3~18のものが好ましく、例えば、1-ピロリル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、1-イミダゾリル基、2-イミダゾリル基、1-ピラゾリル基、1-インドリジニル基、2-インドリジニル基、3-インドリジニル基、5-インドリジニル基、6-インドリジニル基、7-インドリジニル基、8-インドリジニル基、2-イミダゾピリジニル基、3-イミダゾピリジニル基、5-イミダゾピリジニル基、6-イミダゾピリジニル基、7-イミダゾピリジニル基、8-イミダゾピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、1-インドリル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、2-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、

3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、9-カルバゾリル基、 β -カルボリン-1-イル、 β -カルボリン-3-イル、 β -カルボリン-4-イル、 β -カルボリン-5-イル、 β -カルボリン-6-イル、 β -カルボリン-7-イル、 β -カルボリン-6-イル、 β -カルボリン-9-イル、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1, 7-フェナンスロリン-2-イル基、1, 7-フェナンスロリン-3-イル基、1, 7-フェナンスロリン-4-イル基、1, 7-フェナンスロリン-5-イル基、1, 7-フェナンスロリン-6-イル基、1, 7-フェナンスロリン-8-イル基、1, 7-フェナンスロリン-9-イル基、1, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1, 8-フェナンスロリン-2-イル基、1, 8-フェナンスロリン-3-イル基、1, 8-フェナンスロリン-4-イル基、1, 8-フェナンスロリン-5-イル基、1, 8-フェナンスロリン-6-イル基、1, 8-フェナンスロリン-7-イル基、1, 8-フェナンスロリン-9-イル基、1, 8-フェナンスロリン-10-イル基、1, 9-フェナンスロリン-2-イル基、1, 9-フェナンスロリン-3-イル基、1, 9-フェナンスロリン-4-イル基、1, 9-フェナンスロリン-5-イル基、1, 9-フェナンスロリン-6-イル基、1, 9-フェナンスロリン-7-イル基、1, 9-フェナンスロリン-8-イル基、1, 9-フェナンスロリン-10-イル基、1, 10-フェナンスロリン-2-イル基、1, 10-フェナンスロリン-3-イル基、1, 10-フェナンスロリン-4-イル基、1, 10-フェナンスロリン-5-イル基、

2, 9-フェナンスロリン-1-イル基、2, 9-フェナンスロリン-3-イル基、2, 9-フェナンスロリン-4-イル基、2, 9-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-6-イル基、2, 9-フェナンスロリン-7-イル基、2, 9-フェナンスロリン-8-イル基、2, 9-フェナンスロリン-10-イル基、2, 8-フェナンスロリン-1-イル基、2, 8-フェナンスロリン-3-イル基、2, 8-フェナンスロリン-4-イル基、2, 8-フェナンスロリン-5-イル基、2, 8-フェナンスロリン-6-イル基、2, 8-フェナンスロリン-7-イル基、2, 8-フェナンスロリン-9-イル基、2, 8-フェナンスロリン-10-イル基、2, 7-フェナンスロリン-1-イル基、2, 7-フェナンスロリン-3-イル基、2, 7-フェナンスロリン-4-イル基、2, 7-フェナンスロリン-5-イル基、2, 7-フェナンスロリン-6-イル基、2, 7-フェナンスロリン-8-イル基、2, 7-フェナンスロリン-9-イル基、2, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、10-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、10-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-t-ブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-t-ブチル1-インドリル基、4-t-ブチル1-インドリル基、2-t-ブチル3-インドリル基、4-t-ブチル3-インドリル基、ピロリジン、ピラゾリジン、ピペラリジン等が挙げられる。

これらの中で好ましくは、2-ピリジニル基、1-インドリジニル基、2-インドリジニル基、3-インドリジニル基、5-インドリジニル基、6-インドリジニル基、7-インドリジニル基、8-インドリジニル基、2-イミダゾピリジニル基、3-イミダゾピリジニル基、5

ーイミダゾピリジニル基、6-イミダゾピリジニル基、7-イミダゾピリジニル基、8-イミダゾピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、1-インドリル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、2-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、9-カルバゾリル基である。

[0029] 前記アルコキシ基及びアリールオキシ基は、 $-OX^1$ で表される基であり、 X^1 の例としては、前記アルキル基及びハロゲン化アルキル基及びアリール基で説明したものと同様の例が挙げられる。

前記アルキルアミノ基及びアリールアミノ基は、 $-NX^1X^2$ で表される基であり、 X^1 及び X^2 の例としては、それぞれ前記アルキル基及びハロゲン化アルキル基及びアリール基で説明したものと同様の例が挙げられる。

前記カルボキシル含有基としては、例えば、メチルエステル、エチルエステル、ブチルエステル等が挙げられる。

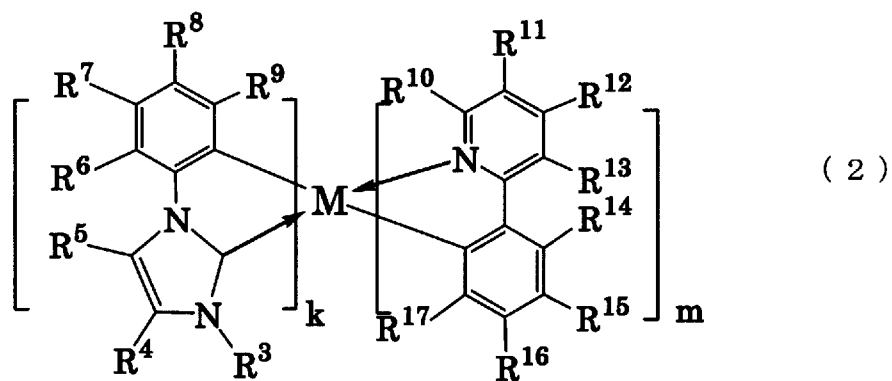
前記アルキルシリル基としては、例えば、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、t-ブチルジメチルシリル基、ビニルジメチルシリル基、プロピルジメチルシリル基等が挙げられる。

前記アリールシリル基としては、例えば、トリフェニルシリル基、フェニルジメチルシリル基、t-ブチルジフェニルシリル基等が挙げられる。

一般式(1)において、 $R^4 \sim R^{17}$ は隣接するもの同士で架橋して、例えばベンゾフランのような環状構造を形成していてもよい。

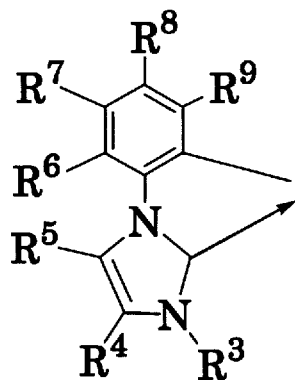
[0030] 次に、一般式(2)について説明する。

[化7]



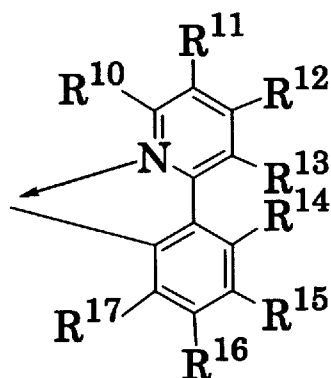
一般式(2)において、一般式(2)において、C(炭素原子)→Mは金属カルベン結合を示す。Mは、Ir又はPtの金属原子を示す。kは1~3、mは0~2の整数を示し、k+mは金属Mの原子価を示す。k+m個の

[0031] [化8]



(置換)N-フェニル-N'-R³-イミダゾール-2-イリデン-C², C^{2'}基
及び

[0032] [化9]



(置換)2-フェニルピリジン-N, C^{2'}基

のうち、少なくとも2つは架橋基-Z¹-を介して架橋している。Z¹は、置換基を含む原子数3~31の直鎖状の架橋基又は枝分れ状の架橋基であり、架橋を構成する原子は、ホウ素、炭素、ケイ素、酸素、硫黄、セレン、窒素、又はリンから構成され、置換基は、水素原子、ホウ素、炭素、ケイ素、酸素、硫黄、セレン、窒素、又はリンから構成される。

[0033] 前記Z¹がアルキレン基の場合、炭素数1~10のものが好ましく、例えば、メチレン基、エチレン基、プロピレン基、イソプロピレン基、n-ブチレン基、s-ブチレン基、イソブチレン基、t-ブチレン基、n-ペンチレン基、n-ヘキシレン基、n-ヘプチレン基、n-オクチレン基、n-ノニレン基、n-デシレン基等が挙げられる。

一般式(2)において、R³~R¹⁷は、前記一般式(1)と同じであり、具体例も同様のものが挙げられる。

一般式(2)において、R⁴~R¹⁷は隣接するもの同士で架橋して、例えばベンゾフランのような環状構造を形成していてもよい。

一般式(1)及び(2)において、MがIrであると好ましい。

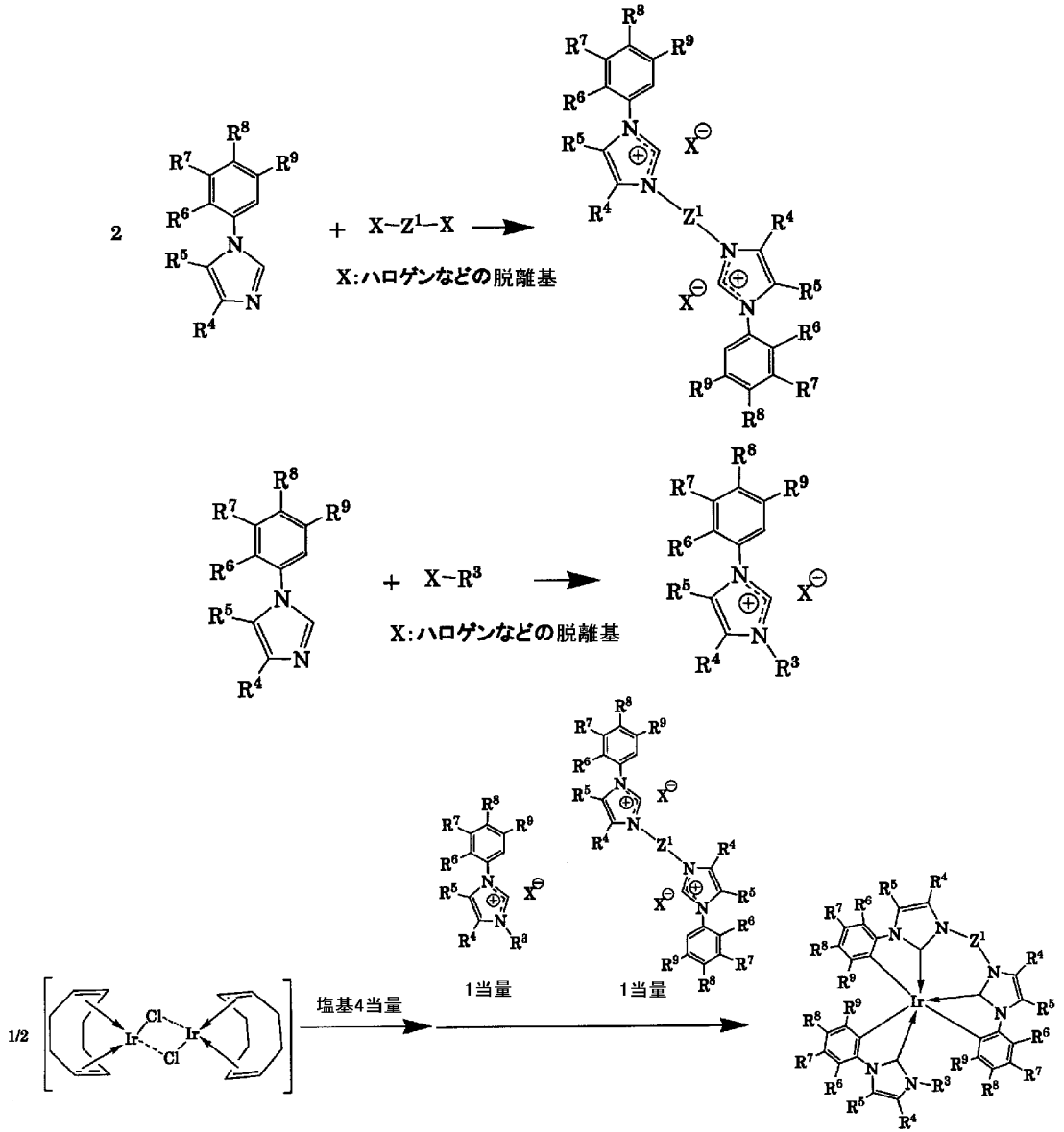
また、一般式(1)及び(2)において、前記R⁶~R⁹の少なくとも一つが、-F、-CF₃又は-CNであると、紫外領域に生じる発光波長を青色領域の発光へと変化させる作用の点で好ましい。この場合において、-CF₃は、R⁶の位置にあると特に好ましい。

[0034] 次に、本発明の一般式(2)の遷移金属錯体化合物の製造方法について、以下、そ

の一例を説明する。

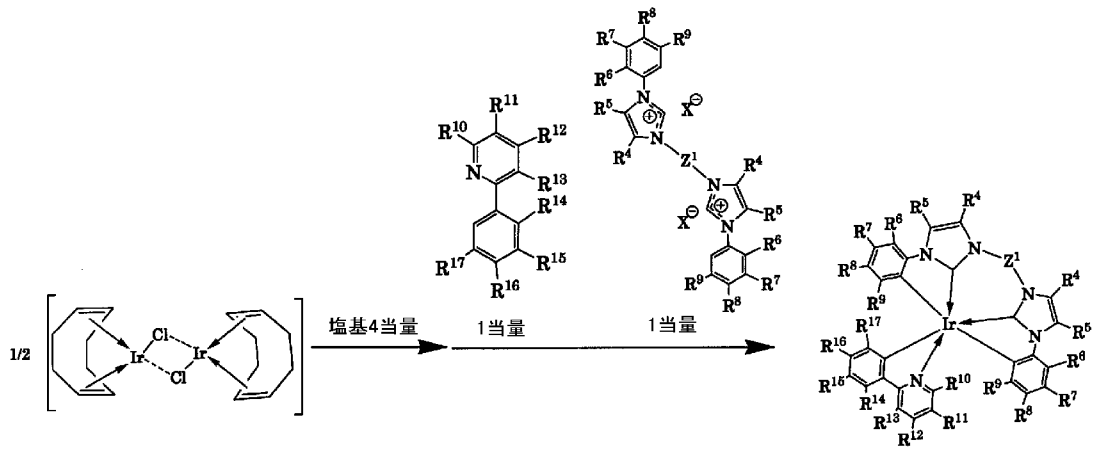
1. 一般式(2) (k=3, m=0, MがIr)の遷移金属錯体化合物の合成方法

[化10]



[0035] 2. 一般式(2) (k=2, m=1, MがIr)の遷移金属錯体化合物の合成方法

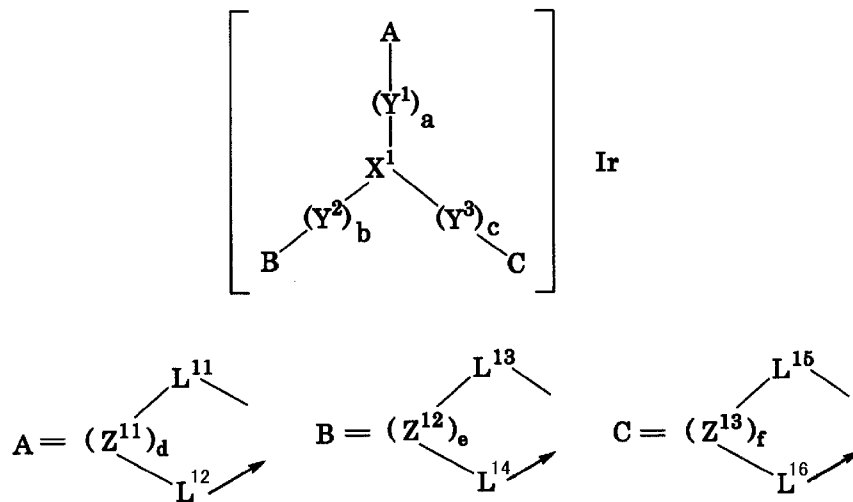
[化11]



上記例1及び2. において、配位子添加を2回に分け(順番は任意)、2段で合成してもよい。

[0036] 次に、一般式(3)について説明する。

[化12]



[0037] 一般式(3)において、Aは $L^{11} - (Z^{11})_d - L^{12}$ からなる架橋二座配位子群を、Bは $L^{13} - (Z^{12})_e - L^{14}$ からなる架橋二座配位子群を、また、Cは $L^{15} - (Z^{13})_f - L^{16}$ からなる架橋二座配位子群を示す。 L^{11} 、 L^{13} 及び L^{15} は、それぞれIr(イリジウム)への共有結合($L^{11} - Ir$ 、 $L^{13} - Ir$ 及び $L^{15} - Ir$)を示し、 L^{12} 、 L^{14} 及び L^{16} は、それぞれIrへの配位結合($L^{12} \rightarrow Ir$ 、 $L^{14} \rightarrow Ir$ 及び $L^{16} \rightarrow Ir$)を示す。

[0038] 一般式(3)において、 X^1 は、置換基を有しても良い R^1C (Cは炭素原子、 R^1 は前記と同じ)、 R^1Si (Siはケイ素原子、 R^1 は前記と同じ)、窒素、又はリン原子であり、下記

の構造が好ましい。置換基としては、前記 R^3 と同様の例が挙げられる。

[0039] [化13]



[0040] 一般式(3)において Y^1 は X^1 とA、 Y^2 は X^1 とB、 Y^3 は X^1 とCを結合する架橋基を示し、 Y^1 は L^{11} 、 L^{12} 又は Z^{11} 、 Y^2 は L^{13} 、 L^{14} 又は Z^{12} 、 Y^3 は L^{15} 、 L^{16} 又は Z^{13} と結合している。 Y^1 、 Y^2 及び Y^3 は、それぞれ独立に、水素原子、炭素原子、ケイ素原子、窒素原子、硫黄原子、酸素原子、リン原子及びホウ素原子の群から選ばれる原子から構成される化合物の2価の残基であり、置換基を有していてもよい。

一般式(3)において、a、b及びcは、それぞれ独立に0~10の整数を示し、0~3であると好ましい。a、b又はcが複数のときは、複数ある Y^1 、 Y^2 又は Y^3 は、それぞれ同じでも異なってもよい。

Y^1 、 Y^2 及び Y^3 の具体例としては、 $-\text{CR}^1\text{R}^2-$ 、 $-\text{SiR}^1\text{R}^2-$ 、 $-\text{NR}^1-$ 、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{PR}^1-$ 及び $-\text{BR}^1-$ 等が挙げられ、 R^1 及び R^2 は、前記 R^1 と同じで、それぞれ独立に同じでも異なってもよい。また、 R^1 及び R^2 は、 X^1 と架橋してもよく、 R^1 及び R^2 で架橋していてもよい。a、b、及びcが複数のときは、各 Y^1 、各 Y^2 及び各 Y^3 は、前記 $-\text{CR}^1\text{R}^2-$ 、 $-\text{SiR}^1\text{R}^2-$ 、 $-\text{NR}^1-$ 、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{PR}^1-$ 及び $-\text{BR}^1-$ から任意に選ぶことができる。また、その際、各 Y^1 、各 Y^2 及び各 Y^3 間の R^1 及び R^2 は、 X^1 と架橋してよく、 R^1 及び R^2 で架橋していてもよい。

Y^1 、 Y^2 及び Y^3 の好ましい具体構造としては、例えば、 $-\text{CH}_2-$ 、 $-\text{CMe}_2-$ 、 $-\text{CMeH}-$ 、 $-\text{CEtH}-$ 、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{SiH}_2-$ 、 $-\text{SiMe}_2-$ 、 $-\text{SiMeH}-$ 、 $-\text{SiEtH}-$ 、 $-\text{NH}-$ 、 $-\text{NMe}-$ 、 $-\text{NEt}-$ 、 $-\text{PH}-$ 、 $-\text{PMe}-$ 、 $-\text{PEt}-$ 、 $-\text{BH}-$ 、 $-\text{BMe}-$ 、 $-\text{BEt}-$ (Meはメチル基、Etはエチル基)等が挙げられる。

[0041] 一般式(3)において、 Z^{11} は L^{11} と L^{12} 、 Z^{12} は L^{13} と L^{14} 、 Z^{13} は L^{15} と L^{16} を結合する架橋基を示し、 Z^{11} 、 Z^{12} 及び Z^{13} は、それぞれ独立に、水素原子、炭素原子、ケイ素原子、窒素原子、硫黄原子、酸素原子、リン原子及びホウ素原子の群から選ばれる原子か

ら構成される化合物の2価の残基であり、置換基を有していてもよい。 Z^{11} が Y^1 と直接結合した場合、 Z^{12} が Y^2 と直接結合した場合、又は Z^{13} が Y^3 と直接結合した場合、 Z^{11} 、 Z^{12} 及び Z^{13} は、それぞれ相当する3価の基となる。

一般式(3)において、d、e及びfは、それぞれ独立に0~10の整数を示し、0~3であると好ましい。d、e又はfが複数のときは、複数ある Z^{11} 、 Z^{12} 又は Z^{13} は、それぞれ同じでも異なってもよい。

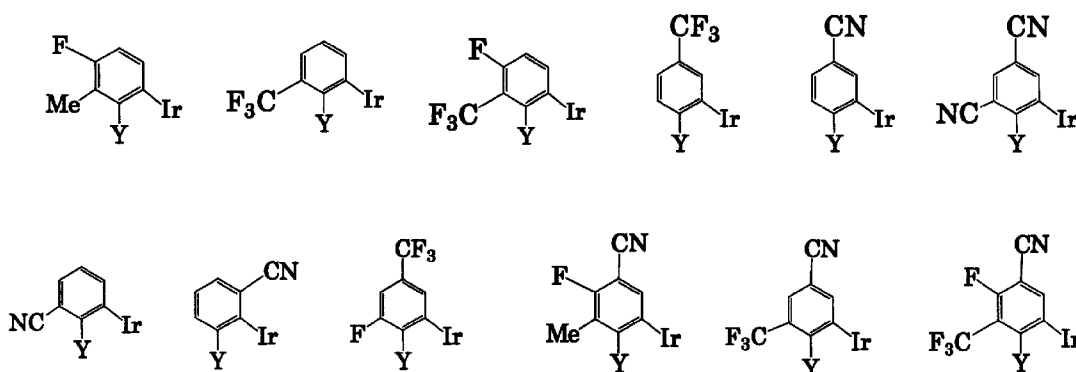
[0042] 一般式(3)において、 L^{11} 、 L^{13} 及び L^{15} は、それぞれ独立に、置換基を有してもよい核炭素数6~30の2価の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核原子数3~30の2価の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1~30の2価のカルボキシル含有基、置換基を有してもよい2価のアミノ基あるいは水酸基含有炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3~50のシクロアルキレン基、置換基を有してもよい炭素数1~30のアルキレン基、置換基を有してもよい炭素数2~30のアルケニレン基、置換基を有してもよい炭素数7~40のアラルキレン基であり、 L^{11} が Y^1 と直接結合した場合、 L^{13} が Y^2 と直接結合した場合、又は L^{15} が Y^3 と直接結合した場合は、 L^{11} 、 L^{13} 及び L^{15} は、それぞれ相当する3価の基となる。

[0043] これらの2価の芳香族炭化水素基、2価の複素環基、2価のカルボキシル含有基、シクロアルキレン基、アルキレン基、アルケニレン基及びアラルキレン基の例としては、前記 R^4 ~ R^{17} で説明した、芳香族炭化水素基、複素環基、カルボキシル含有基、シクロアルキル基、アルキル基、アルケニル基及びアラルキル基の例を2価としたものが挙げられる、好ましい基も同様のものが挙げられる。

また、2価のアミノ基あるいは水酸基含有炭化水素基の例としては、前記 L^{11} 、 L^{13} 及び L^{15} の示す各炭化水素基を有するアミノ基、及び前記炭化水素基の水素原子が水酸基で置き換わったものが挙げられる。

[0044] また、前記 L^{11} 、 L^{13} 及び L^{15} は、芳香族炭化水素基又は複素環基であると好ましく、例えば、以下に示される構造が好ましく、これらの中でもフェニル基及び置換フェニル基が好ましい。なお、下記例では、Yは隣接する結合基、すなわち L^{12} 、 L^{14} 又は L^{16} を示す。

[0045] [化14]



[0047] 一般式(3)において、 L^{11} 、 L^{13} 及び L^{15} の少なくとも一つが、 $-F$ 、 $-CF_3$ 又は $-CN$ を置換基にもつ、核炭素数6~30の2価もしくは3価の芳香族炭化水素基、核原子数3~30の2価の複素環基、炭素数1~30の2価のカルボキシル含有基、2価のアミノ基もしくは水酸基含有炭化水素基、核炭素数3~50のシクロアルキレン基、炭素数1~30のアルキレン基、炭素数2~30のアルケニレン基、又は炭素数7~40のアラルキレン基であると、紫外領域に生じる発光波長を青色領域の発光へと変化させる作用の点で好ましい。

また、一般式(3)において、 L^{11} 、 L^{13} 及び L^{15} の置換基は隣接するもの同士で架橋して、例えばベンゾフランのような環状構造を形成していてもよい。

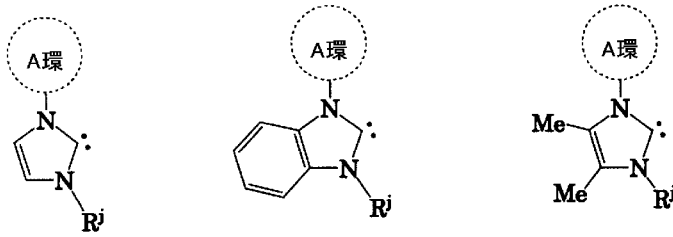
[0048] 一般式(3)において、 L^{12} 、 L^{14} 及び L^{16} は、それぞれ独立に、置換基を有してもよい1価のジアゾール又はジアゾール-2-イリデン基(カルベン錯体)であり、 L^{12} が Y^1 と直接結合した場合、 L^{14} が Y^2 と直接結合した場合、あるいは L^{16} が Y^3 と直接結合した場合は、 L^{12} 、 L^{14} 及び L^{16} は、それぞれ相当する2価の基となる。

前記ジアゾールとしては、1, 2-ジアゾール(ピラゾール)、1, 3-ジアゾール(イミダゾール)が挙げられ、1, 3-ジアゾールが好ましい。

一般式(3)において、 L^{12} 、 L^{14} 及び L^{16} のうち、少なくとも一つがカルベン炭素を有する基であると好ましく、 L^{12} 、 L^{14} 及び L^{16} がカルベン炭素を有する基であるとさらに好ましい。

また、前記カルベン錯体としては、通常、金属とともに安定カルベンを形成するものであると好ましく、具体的には以下に列挙する。なお、下記例において、A環は隣接する結合基、すなわち L^{11} 、 L^{13} 又は L^{15} 示す。 R^j は、前記 R^3 と同様である。

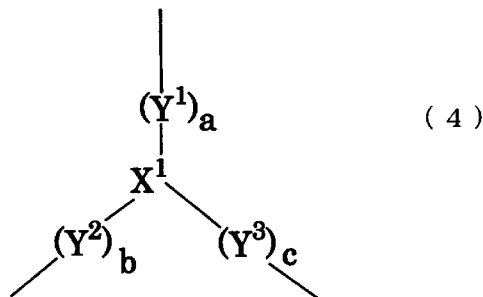
[0049] [化16]



[0050] 一般式(3)における下記架橋部位(4)を構成する原子量の合計が200以下であると好ましく、100以下であるとさらに好ましい。

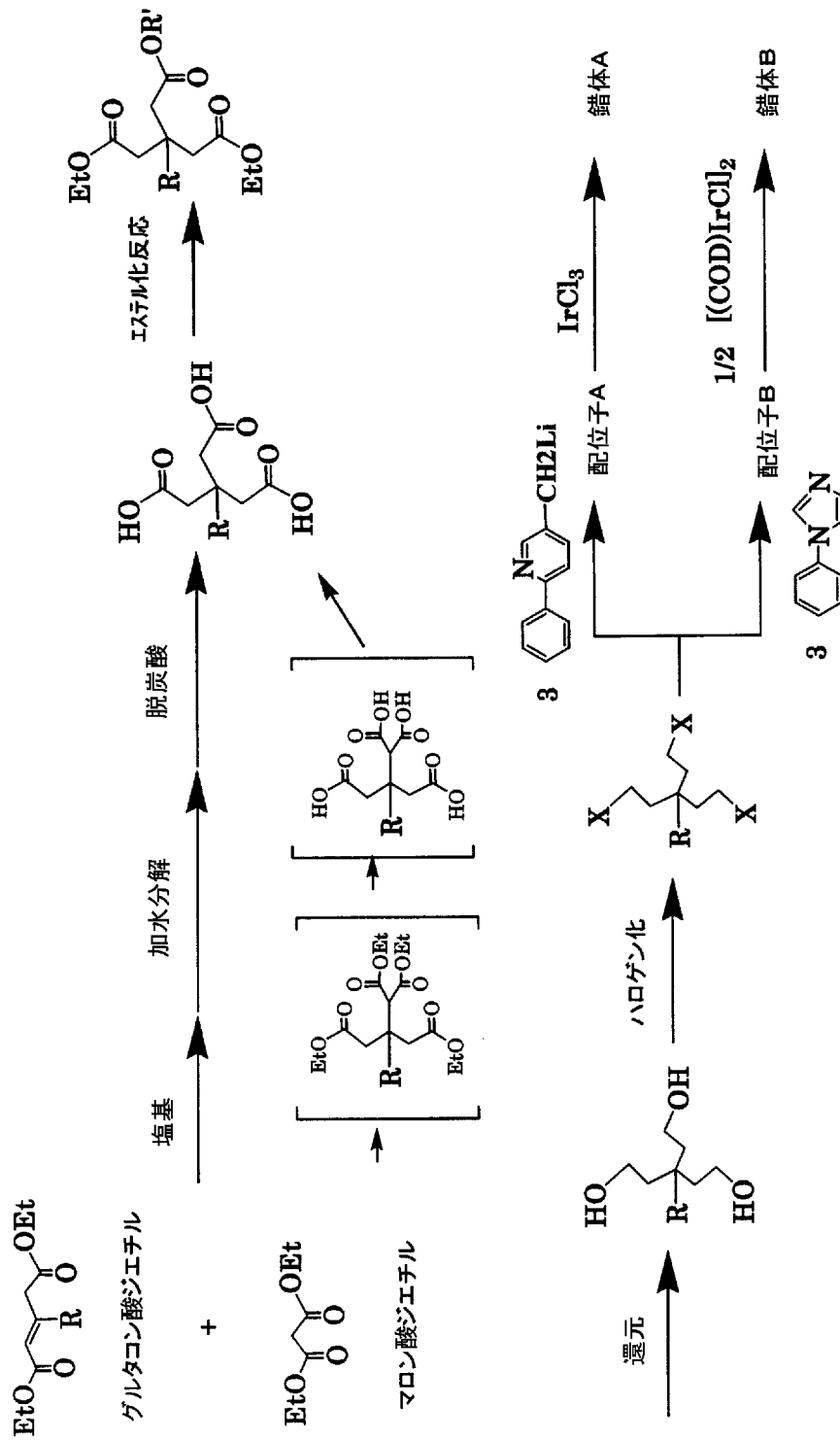
架橋部位(4)の原子量総和を小さくすると、一般式(3)におけるA、B、C部位が同じであれば、その原子量総和を小さくただけ錯体の分子量が小さくなるため、有機EL素子を作製する際の昇華プロセスにおいて純度を高く保つことが有利になる。したがって、架橋部位の原子量総和を小さくするにより、錯体の純度、あるいは有機EL素子の純度を高めるという効果を有する。

[0051] [化17]

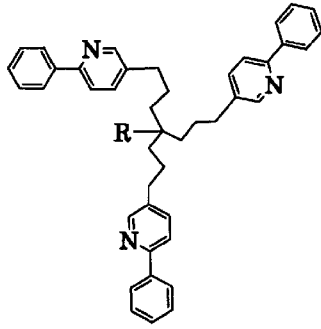


[0052] 次に、本発明の一般式(3)の遷移金属錯体化合物の製造方法について、以下、その一例の製造工程を示す。(Rは置換基、参考文献:J.Am.Chem.Soc. 第96巻, 16号, 1974年, p5189、及びBull.Chem.Soc.JAPAN 第69巻, 1996年, p3317)

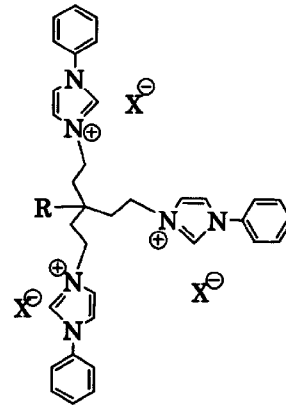
[化18]



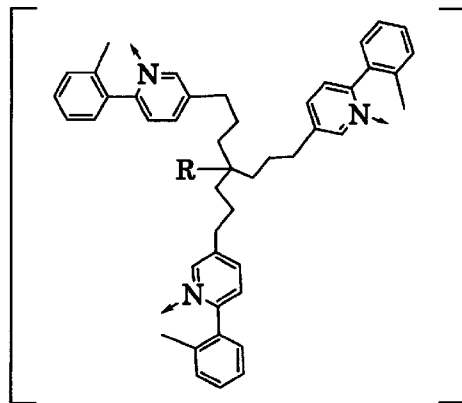
[0053] [化19]



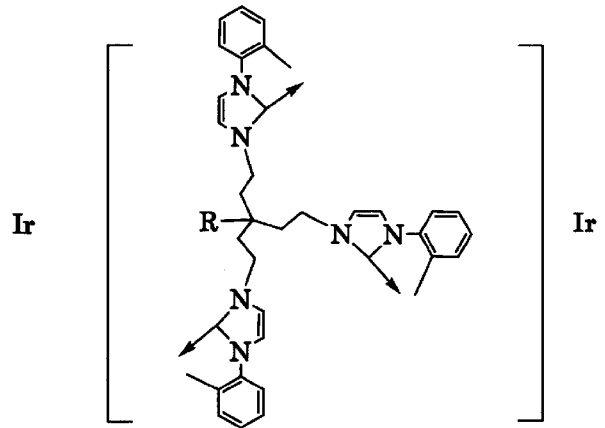
配位子A



配位子B



錯体A



錯体B

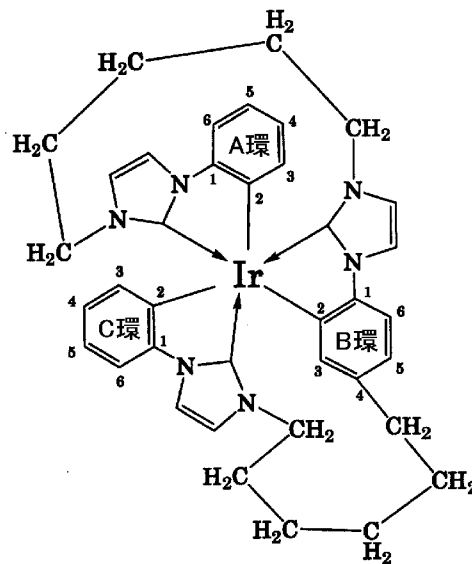
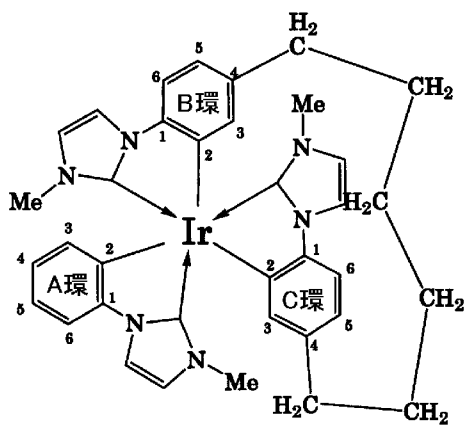
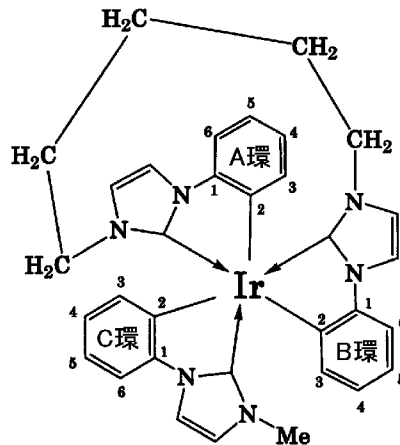
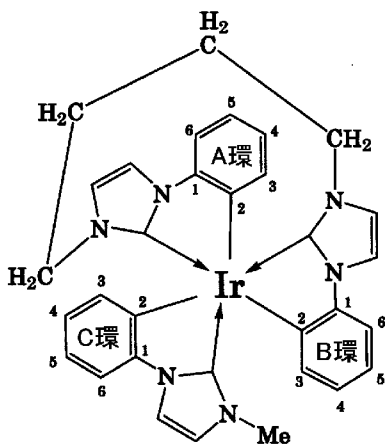
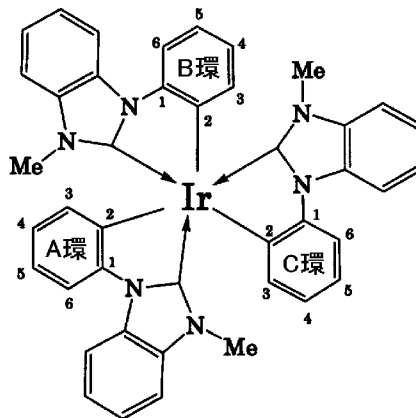
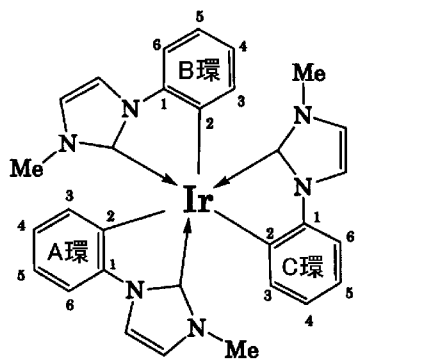
[0054] 前記一般式(1)～(3)における各基の置換基としては、置換もしくは無置換の核炭素数5～50のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の核炭素数6～50のアラルキル基、置換もしくは無置換の核炭素数5～50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の核炭素数5～50のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコシカルボニル基、アミノ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシル基、カルボキシル基等が挙げられる。

これらの中でも、炭素数1～10のアルキル基、炭素数5～7のシクロアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基が好ましく、炭素数1～6のアルキル基、炭素数5～7のシクロアルキル基がより好ましく、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、

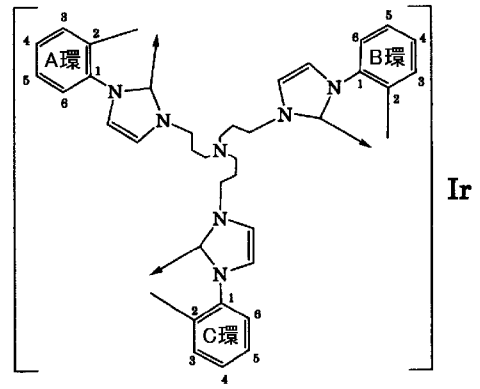
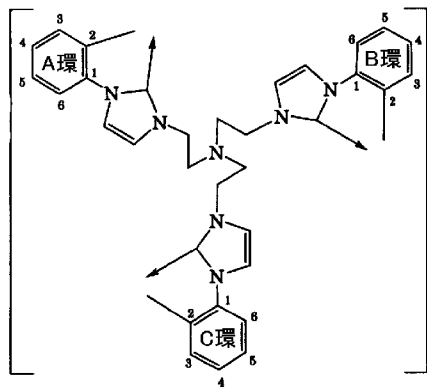
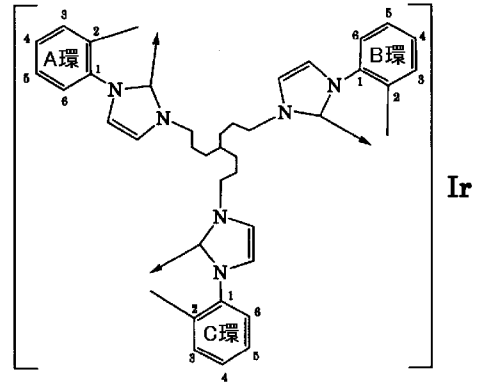
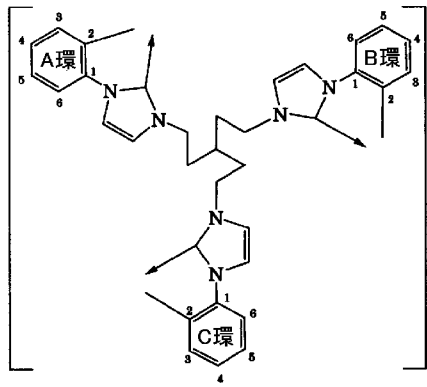
シクロペンチル基、シクロヘキシル基が特に好ましい。

[0055] 前記一般式(1)～(3)で表される遷移金属錯体化合物の具体例を以下に列挙するが、これらに限定されるものではない。

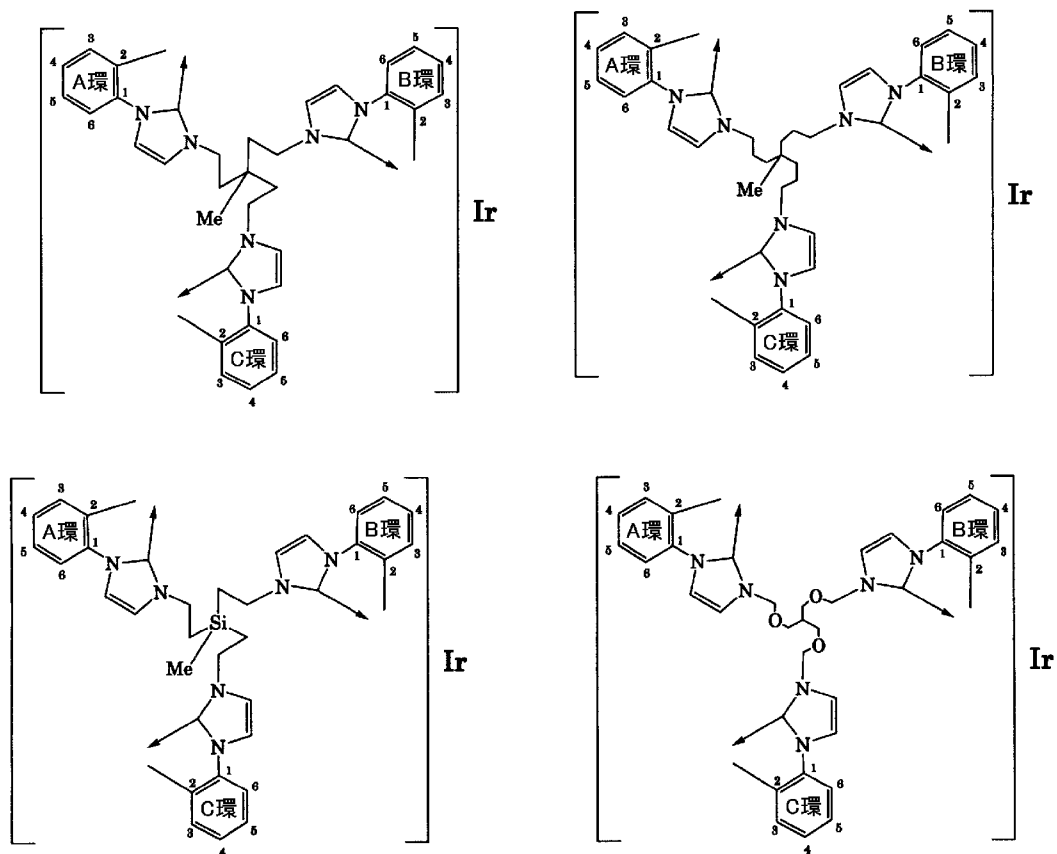
[化20]



[0056] [化21]



[0057] [化22]



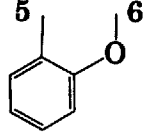
[0058] [化23]

置換基の位置	3位	4位	5位	6位
A環	-H	-CN	-H	-H
B環	-H	-CN	-H	-H
C環	-H	-CN	-H	-H

置換基の位置	3位	4位	5位	6位
A環	-H	-H	-H	-CF ₃
B環	-H	-H	-H	-CF ₃
C環	-H	-H	-H	-CF ₃

置換基の位置	3位	4位	5位	6位
A環	-H	-H	-F	-Me
B環	-H	-H	-F	-Me
C環	-H	-H	-F	-Me

[0059] [化24]

置換基の位置	3位	4位	5位	6位
A環	-H	-H	5, 6-BF:	
B環	-H	-H	5, 6-BF:	
C環	-H	-H	5, 6-BF:	

置換基の位置	3位	4位	5位	6位
A環	-H	-CN	-H	-CN
B環	-H	-CN	-H	-CN
C環	-H	-CN	-H	-CN

置換基の位置	3位	4位	5位	6位
A環	-H	-CN	-H	-CF ₃
B環	-H	-CN	-H	-CF ₃
C環	-H	-CN	-H	-CF ₃

置換基の位置	3位	4位	5位	6位
A環	-H	-CF ₃	-H	-CF ₃
B環	-H	-CF ₃	-H	-CF ₃
C環	-H	-CF ₃	-H	-CF ₃

置換基の位置	3位	4位	5位	6位
A環	-H	-CN	-F	-H
B環	-H	-CN	-F	-H
C環	-H	-CN	-F	-H

置換基の位置	3位	4位	5位	6位
A環	-H	-H	-F	-CF ₃
B環	-H	-H	-F	-CF ₃
C環	-H	-H	-F	-CF ₃

置換基の位置	3位	4位	5位	6位
A環	-H	-CN	-F	-CN
B環	-H	-CN	-F	-CN
C環	-H	-CN	-F	-CN

置換基の位置	3位	4位	5位	6位
A環	-H	-CF ₃	-F	-CF ₃
B環	-H	-CF ₃	-F	-CF ₃
C環	-H	-CF ₃	-F	-CF ₃

[0060] [化25]

置換基の位置	3位	4位	5位	6位
A環	-H	-CN	-H	-H
B環	-H	-CN	-H	-H
C環	-H	-H	-H	-CF ₃

置換基の位置	3位	4位	5位	6位
A環	-H	-CN	-H	-H
B環	-H	-H	-H	-CF ₃
C環	-H	-H	-H	-CF ₃

置換基の位置	3位	4位	5位	6位
A環	-H	-H	-H	-H
B環	-H	-H	-H	-H
C環	-H	-CN	-H	-H

置換基の位置	3位	4位	5位	6位
A環	-H	-H	-H	-H
B環	-H	-H	-H	-H
C環	-H	-H	-H	-CF ₃

置換基の位置	3位	4位	5位	6位
A環	-H	-H	-H	-H
B環	-H	-H	-H	-H
C環	-H	-H	-F	-Me

置換基の位置	3位	4位	5位	6位
A環	-H	-H	-H	-H
B環	-H	-H	-H	-H
C環	-H	-H	5, 6-BF	

置換基の位置	3位	4位	5位	6位
A環	-H	-CN	-H	-H
B環	-H	-H	-H	-CF ₃
C環	-H	-H	5, 6-BF	

置換基の位置	3位	4位	5位	6位
A環	-H	-CF ₃	-H	-H
B環	-H	-H	-H	-CF ₃
C環	-H	-H	5, 6-BF	

置換基の位置	3位	4位	5位	6位
A環	-H	-CN	-H	-H
B環	-H	-H	-H	-CF ₃
C環	-H	-H	-F	-Me

[0061] 本発明の有機EL素子は、陽極と陰極からなる一对の電極間に少なくとも発光層を有する一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機EL素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、前記遷移金属錯体化合物を含有するものであり、一般式(1)～(3)のいずれかで表される遷移金属錯体化合物を含有すると好ましい。

前記有機薄膜層中の本発明の金属錯体化合物の含有量としては、発光層全体の質量に対し、通常0.1～100重量%であり、1～30重量%であると好ましい。

本発明の有機EL素子は、前記発光層が、本発明の遷移金属錯体化合物を発光材料又はドーパントとして含有すると好ましい。また、通常、前記発光層は真空蒸着又は塗布により薄膜化するが、塗布の方が製造プロセスが簡略化できることから、本発明の遷移金属錯体化合物を含有する層が、塗布により成膜されてなると好ましい。

本発明の有機EL素子において、有機薄膜層が単層型のものとしては有機薄膜層が発光層であり、この発光層が本発明の遷移金属錯体化合物を含有する。また、多層型の有機EL素子としては、(陽極/正孔注入層(正孔輸送層)/発光層/陰極)、(陽極/発光層/電子注入層(電子輸送層)/陰極)、(陽極/正孔注入層(正孔輸送層)/発光層/電子注入層(電子輸送層)/陰極)等が挙げられる。

[0062] 本発明の有機EL素子の陽極は、正孔注入層、正孔輸送層、発光層などに正孔を供給するものであり、4.5eV以上の仕事関数を有することが効果的である。陽極の材料としては、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、又はこれらの混合物などを用いることができる。陽極の材料の具体例としては、酸化スズ、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化インジウムスズ(ITO)等の導電性金属酸化物、又は金、銀、クロム、ニッケル等の金属、さらにこれらの導電性金属酸化物と金属との混合物又は積層物、ヨウ化銅、硫化銅などの無機導電性物質、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロールなどの有機導電性材料、及びこれらとITOとの積層物などが挙げられ、好ましくは、導電性金属酸化物であり、特に、生産性、高導電性、透明性等の点からITOを用いることが好ましい。陽極の膜厚は材料により適宜選択可能である。

[0063] 本発明の有機EL素子の陰極は、電子注入層、電子輸送層、発光層などに電子を供給するものであり、陰極の材料としては、金属、合金、金属ハロゲン化物、金属酸

化物、電気伝導性化合物、又はこれらの混合物を用いることができる。陰極の材料の具体例としては、アルカリ金属(例えば、Li、Na、K等)及びそのフッ化物もしくは酸化物、アルカリ土類金属(例えば、Mg、Ca等)及びそのフッ化物もしくは酸化物、金、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウム-カリウム合金もしくはナトリウム-カリウム混合金属、リチウム-アルミニウム合金もしくはリチウム-アルミニウム混合金属、マグネシウム-銀合金もしくはマグネシウム-銀混合金属、又はインジウム、イッテルビウム等の希土類金属等が挙げられる。これらの中でも好ましくは、アルミニウム、リチウム-アルミニウム合金もしくはリチウム-アルミニウム混合金属、マグネシウム-銀合金もしくはマグネシウム-銀混合金属等である。陰極は、前記材料の単層構造であってもよいし、前記材料を含む層の積層構造であってもよい。例えば、アルミニウム/フッ化リチウム、アルミニウム/酸化リチウムの積層構造が好ましい。陰極の膜厚は材料により適宜選択可能である。

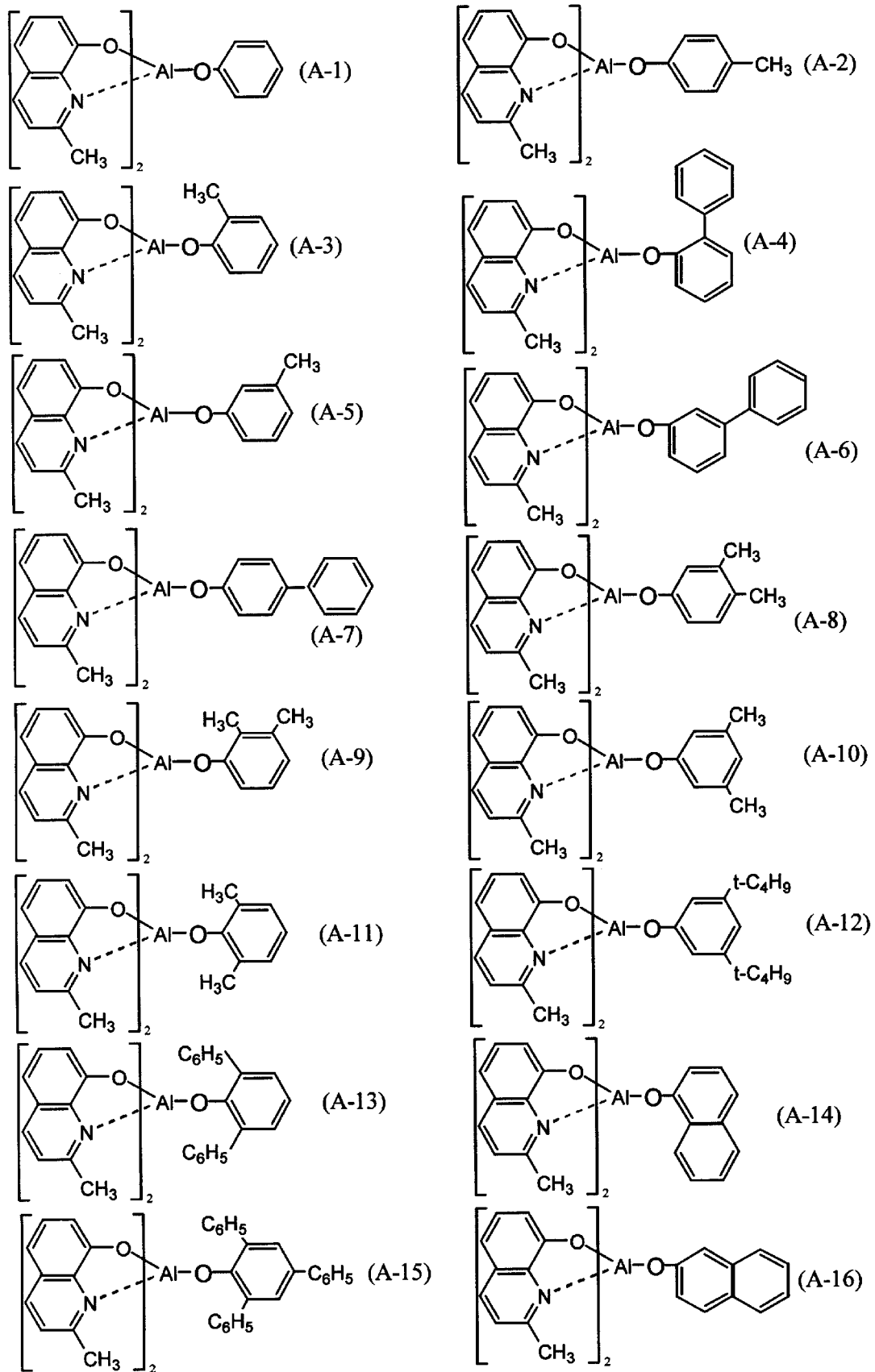
[0064] 本発明の有機EL素子の正孔注入層及び正孔輸送層は、陽極から正孔を注入する機能、正孔を輸送する機能、陰極から注入された電子を障壁する機能のいずれかを有しているものであればよい。その具体例としては、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリーールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリーールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリディン系化合物、ポルフィリン系化合物、ポリシラン系化合物、ポリ(N-ビニルカルバゾール)誘導体、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリゴマー、有機シラン誘導体、本発明の遷移金属錯体化合物等が挙げられる。また、前記正孔注入層及び前記正孔輸送層は、前記材料の1種又は2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成又は異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。

[0065] 本発明の有機EL素子の電子注入層及び電子輸送層は、陰極から電子を注入する機能、電子を輸送する機能、陽極から注入された正孔を障壁する機能のいずれかを

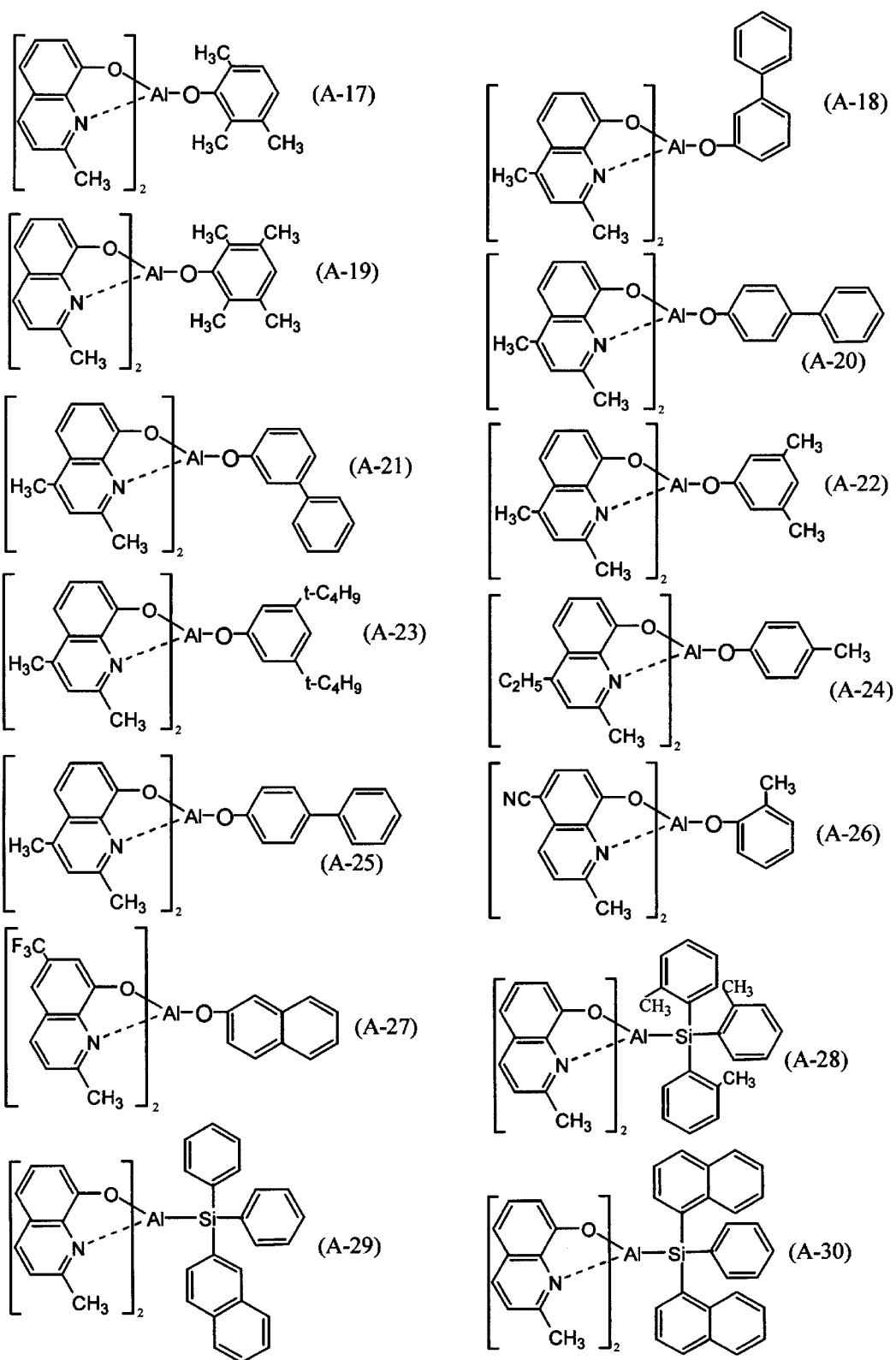
有しているものであればよい。その具体例としては、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、フルオレノン誘導体、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノ誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレン、ペリレン等の芳香環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン誘導体、8-キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体、有機シラン誘導体、本発明の遷移金属錯体化合物等が挙げられる。また、前記電子注入層及び前記電子輸送層は、前記材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成又は異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。

[0066] さらに、電子注入層及び電子輸送層に用いる電子輸送材料としては、下記化合物が挙げられる。

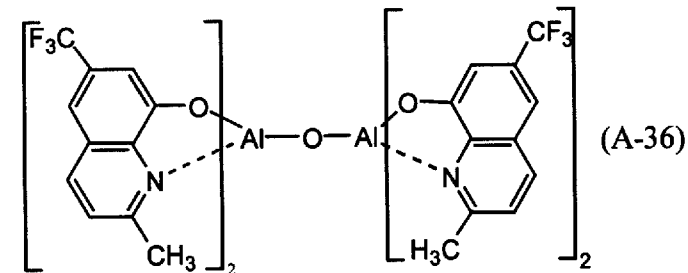
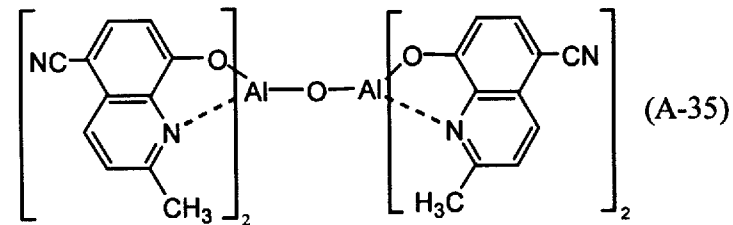
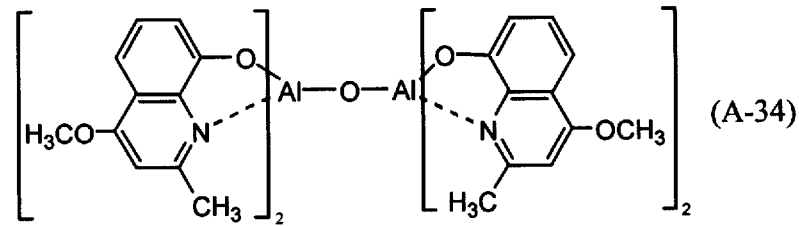
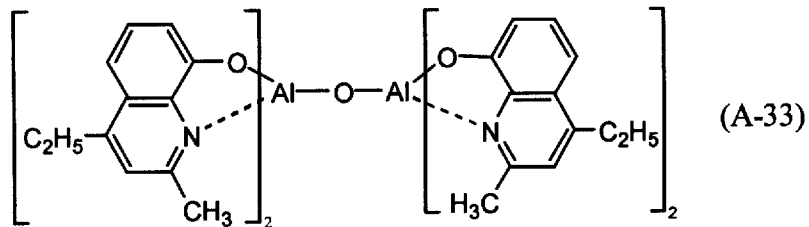
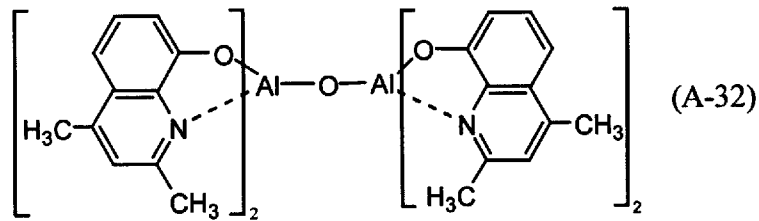
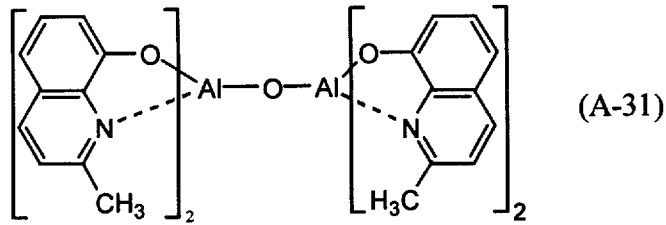
[化26]



[0067] [化27]



[0068] [化28]



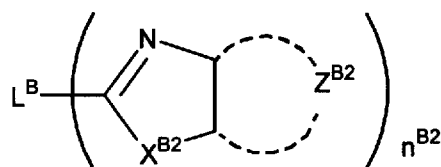
[0069] 本発明の有機EL素子において、該電子注入層及び／又は電子輸送層が π 電子欠乏性含窒素ヘテロ環誘導体を主成分として含有すると好ましい。

π 電子欠乏性含窒素ヘテロ環誘導体としては、ベンツイミダゾール環、ベンズトリア

ゾール環、ピリジノイミダゾール環、ピリミジノイミダゾール環、ピリダジノイミダゾール環から選ばれた含窒素5員環の誘導体や、ピリジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環で構成される含窒素6員環誘導体が好ましい例として挙げられ、含窒素5員環誘導体として下記一般式B-I式で表される構造が好ましく挙げられ、含窒素6員環誘導体としては、下記一般式C-I、C-II、C-III、C-IV、C-V及びC-VIで表される構造が好ましく挙げられ、特に好ましくは、一般式C-I及びC-IIで表される構造である。

[0070] [化29]

(B-I)

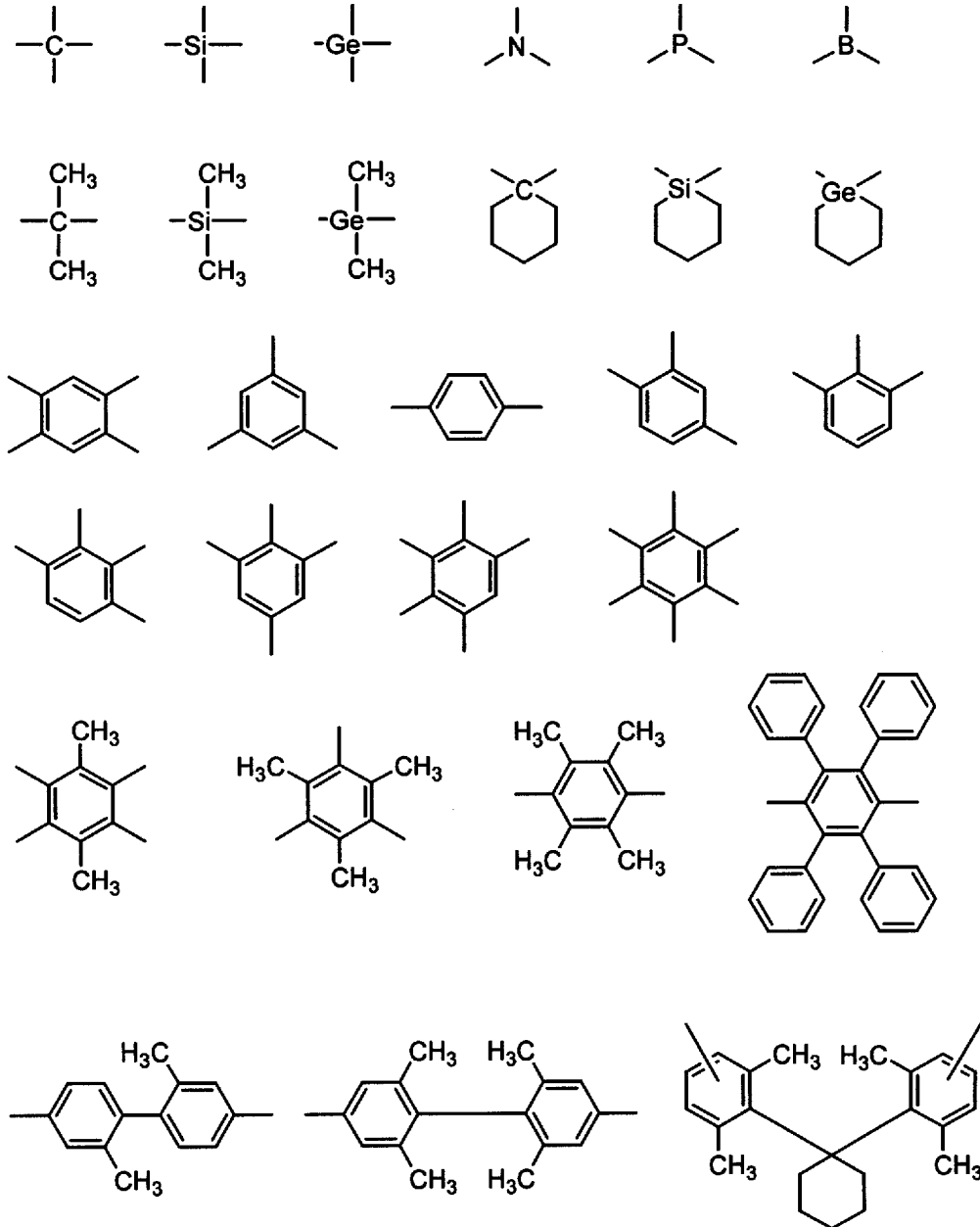


一般式(B-I)において、 L^B は二価以上の連結基を表し、好ましくは、炭素、ケイ素、窒素、ホウ素、酸素、硫黄、金属、金属イオンなどで形成される連結基であり、より好ましくは炭素原子、窒素原子、ケイ素原子、ホウ素原子、酸素原子、硫黄原子、芳香族炭化水素環、芳香族ヘテロ環であり、さらに好ましくは炭素原子、ケイ素原子、芳香族炭化水素環、芳香族ヘテロ環である。

[0071] L^B は置換基を有していてもよく、置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、芳香族炭化水素基、アミノ基、アルコキシ基、アリーロキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリーロキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリーロキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族複素環基であり、より好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリーロキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族複素環基であり、さらに好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリーロキシ基、芳香族複素環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、芳香族複素環基である。

[0072] L^B で表される連結基の具体例としては以下のものが挙げられる。

[化30]



[0073] 一般式(B-I)において、 X^{B2} は、 $-O-$ 、 $-S-$ 又は $=N-R^{B2}$ を表す。 R^{B2} は、水素原子、脂肪族炭化水素基、アール基、ヘテロ環基を表す。

R^{B2} の表す脂肪族炭化水素基は、直鎖、分岐又は環状のアルキル基(好ましくは、炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12、特に好ましくは炭素数1~8のアルキル基であり、例えば、メチル、エチル、iso-プロピル、tert-ブチル、n-オクチル、n-

デシル、*n*-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシル等が挙げられる。)、アルケニル基(好ましくは、炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~12、特に好ましくは炭素数2~8のアルケニル基であり、例えばビニル基、アリル基、2-ブテニル基、3-ペンテニル基等が挙げられる。)、アルキニル基(好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~12、特に好ましくは炭素数2~8のアルキニル基であり、例えばプロパルギル基、3-ペンチニル基等が挙げられる。)であり、より好ましくはアルキル基である。

R^{B2}の表すアリアル基は、単環又は縮環のアリアル基であり、好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、さらに好ましくは炭素数6~12のアリアル基であり、例えば、フェニル、2-メチルフェニル、3-メチルフェニル、4-メチルフェニル、2-メトキシフェニル、3-トリフルオロメチルフェニル、ペンタフルオロフェニル、1-ナフチル、2-ナフチル等が挙げられる。

[0074] R^{B2}の表すヘテロ環基は、単環又は縮環のヘテロ環基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12、更に好ましくは炭素数2~10のヘテロ環基)であり、好ましくは窒素原子、酸素原子、硫黄原子、セレン原子の少なくとも一つを含む芳香族ヘテロ環基であり、例えば、ピロリジン、ピペリジン、ピペラジン、モルフォリン、チオフェン、セレノフェン、フラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリダジン、ピリミジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、プリン、チアゾリン、チアゾール、チアジアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、テトラゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデン、カルバゾール、アゼピン等が挙げられ、好ましくは、フラン、チオフェン、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、キノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリンであり、より好ましくはフラン、チオフェン、ピリジン、キノリンであり、さらに好ましくはキノリンである。

R^{B2}の表す脂肪族炭化水素基、アリアル基、ヘテロ環基は置換基を有していてもよく、前記L^Bと同様のものが挙げられる。

R^{B2} として好ましくは、アルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基であり、より好ましくはアリール基、芳香族ヘテロ環基であり、さらに好ましくはアリール基である。

[0075] X^{B2} として好ましくは、 $-O-$ 、 $=N-R^{B2}$ であり、より好ましくは $=N-R^{B2}$ であり、特に好ましくは $=N-Ar^{B2}$ (Ar^{B2} は、アリール基(好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、更に好ましくは炭素数6~12のアリール基)、芳香族ヘテロ環基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12、更に好ましくは炭素数2~10の芳香族ヘテロ環基)であり、好ましくはアリール基である。)である。

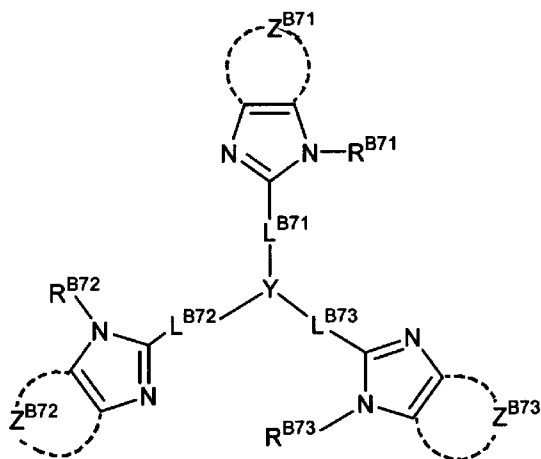
[0076] Z^{B2} は芳香族環を形成するに必要な原子群を表す。 Z^{B2} で形成される芳香族環は芳香族炭化水素環、芳香族ヘテロ環のいずれでもよく、具体例としては、例えばベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、トリアジン環、ピロール環、フラン環、チオフェン環、セレンフェン環、テルロフェン環、イミダゾール環、チアゾール環、セレナゾール環、テルラゾール環、チアジアゾール環、オキサジアゾール環、ピラゾール環などが挙げられ、好ましくはベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環であり、より好ましくはベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環であり、さらに好ましくはベンゼン環、ピリジン環であり、特に好ましくはピリジン環である。 Z^{B2} で形成される芳香族環はさらに他の環と縮合環を形成してもよく、また置換基を有していてもよい。置換基として、好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリールオキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、より好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、芳香族ヘテロ環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、芳香族ヘテロ環基である。

n^{B2} は、1~4の整数であり、2~3であると好ましい。

[0077] 前記一般式(B-I)で表される化合物のうち、さらに好ましくは下記一般式(B-II)

で表される化合物である。

[化31]



[0078] 一般式(B-II)中、 R^{B71} 、 R^{B72} 及び R^{B73} は、それぞれ一般式(B-I)における R^{B2} と同義であり、また好ましい範囲も同様である。

Z^{B71} 、 Z^{B72} 及び Z^{B73} は、それぞれ一般式(B-I)における Z^{B2} と同義であり、また好ましい範囲も同様である。

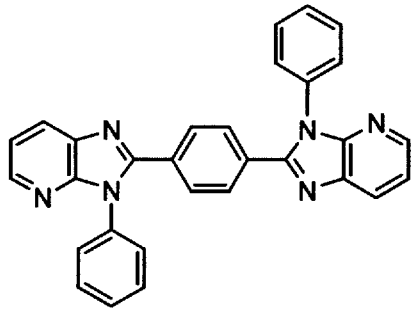
L^{B71} 、 L^{B72} 及び L^{B73} は、それぞれ連結基を表し、一般式(B-I)における L^B の例を二価としたものが挙げられ、好ましくは、単結合、二価の芳香族炭化水素環基、二価の芳香族ヘテロ環基、及びこれらの組み合わせからなる連結基であり、より好ましくは単結合である。 L^{B71} 、 L^{B72} 及び L^{B73} は置換基を有していてもよく、置換基としては一般式(B-I)の L^B と同様のものか挙げられる。

Yは、窒素原子、1, 3, 5-ベンゼントリイル基又は2, 4, 6-トリアジントリイル基を表す。1, 3, 5-ベンゼントリイル基は2, 4, 6-位に置換基を有していてもよく、置換基としては、例えばアルキル基、芳香族炭化水素環基、ハロゲン原子などが挙げられる。

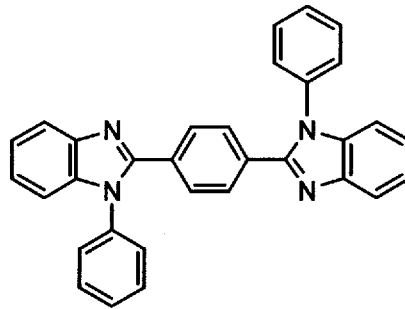
[0079] 一般式(B-I)又は(B-II)で表される含窒素5員環誘導体の具体例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。

[化32]

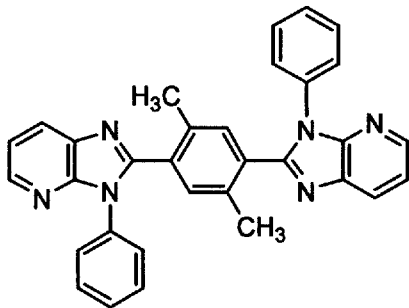
(B-1)



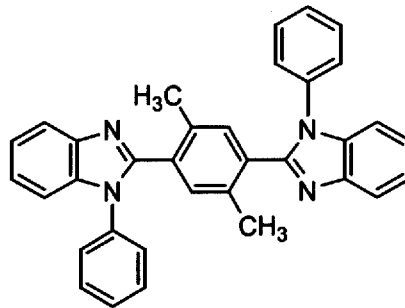
(B-5)



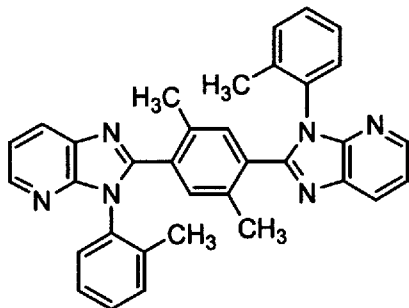
(B-2)



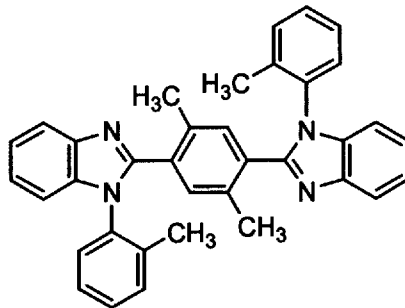
(B-6)



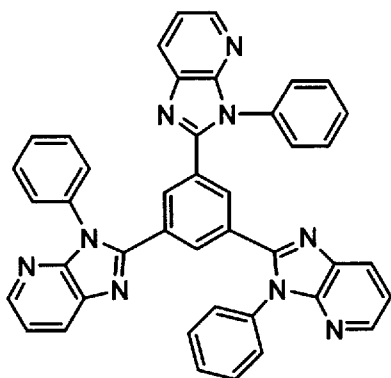
(B-3)



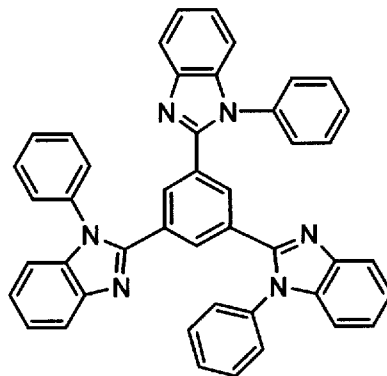
(B-7)



(B-4)

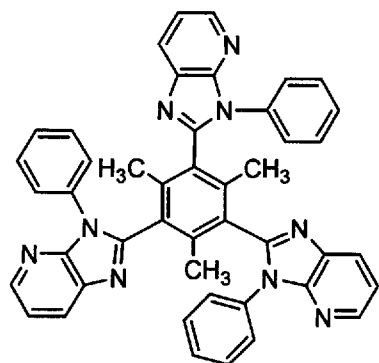


(B-8)

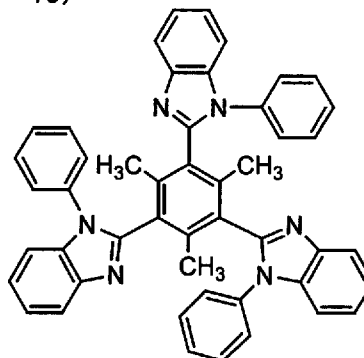


[0080] [化33]

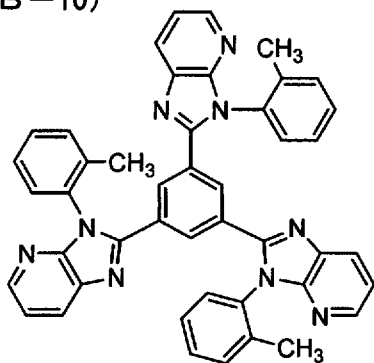
(B-9)



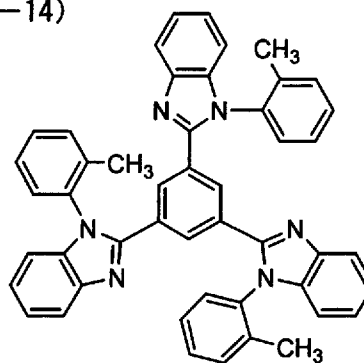
(B-13)



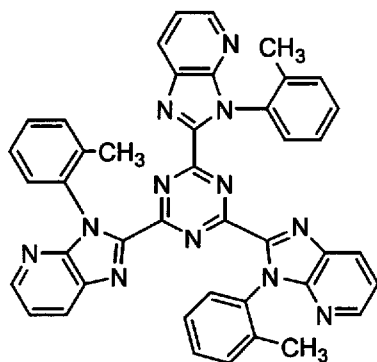
(B-10)



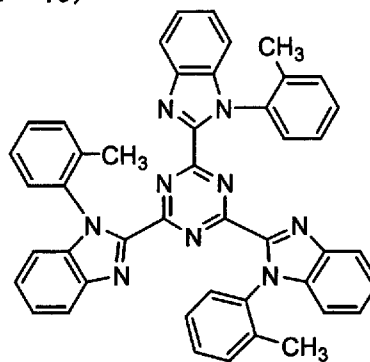
(B-14)



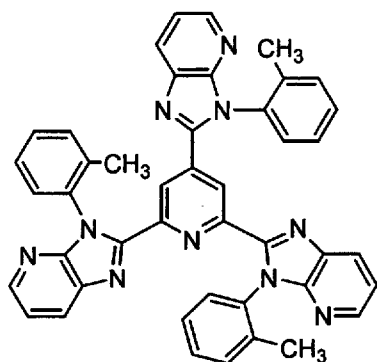
(B-11)



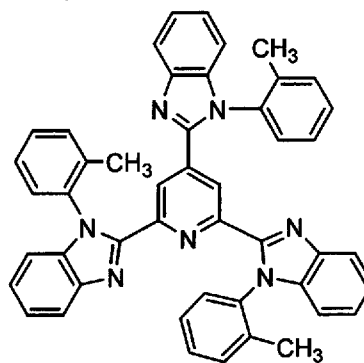
(B-15)

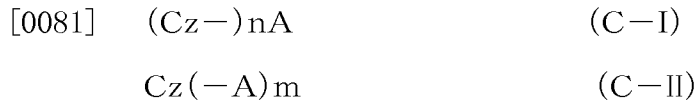


(B-12)

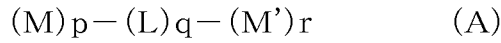


(B-16)





[式中、Czは置換もしくは無置換のカルバズリル基、アリールカルバズリル基又はカルバズリルアルキレン基、Aは下記一般式(A)で表される部位より形成される基である。n, mはそれぞれ1~3の整数である。



(M及びM'は、それぞれ独立に、環を形成する炭素数が2~40の窒素含有ヘテロ芳香族環であり、環に置換基を有していても有していなくても良い。またM及びM'は、同一でも異なっても良い。Lは単結合、炭素数6~30のアリーレン基、炭素数5~30のシクロアルキレン基又は炭素数2~30のヘテロ芳香族環であり、環に結合する置換基を有していても有していなくても良い。pは0~2、qは1~2、rは0~2の整数である。ただし、p+rは1以上である。)]

[0082] 前記一般式(C-I)及び(C-II)の結合様式はパラメータn, mの数により、具体的には以下の表中記載のように表される。

[表1]

n = m = 1	n = 2	n = 3	m = 2	m = 3
Cz—A	Cz—A—Cz	Cz—A—Cz Cz	A—Cz—A	A—Cz—A A

[0083] また、一般式(A)で表される基の結合様式は、パラメータp, q, rの数により、具体的には以下の表中(1)から(16)に記載された形である。

[表2]

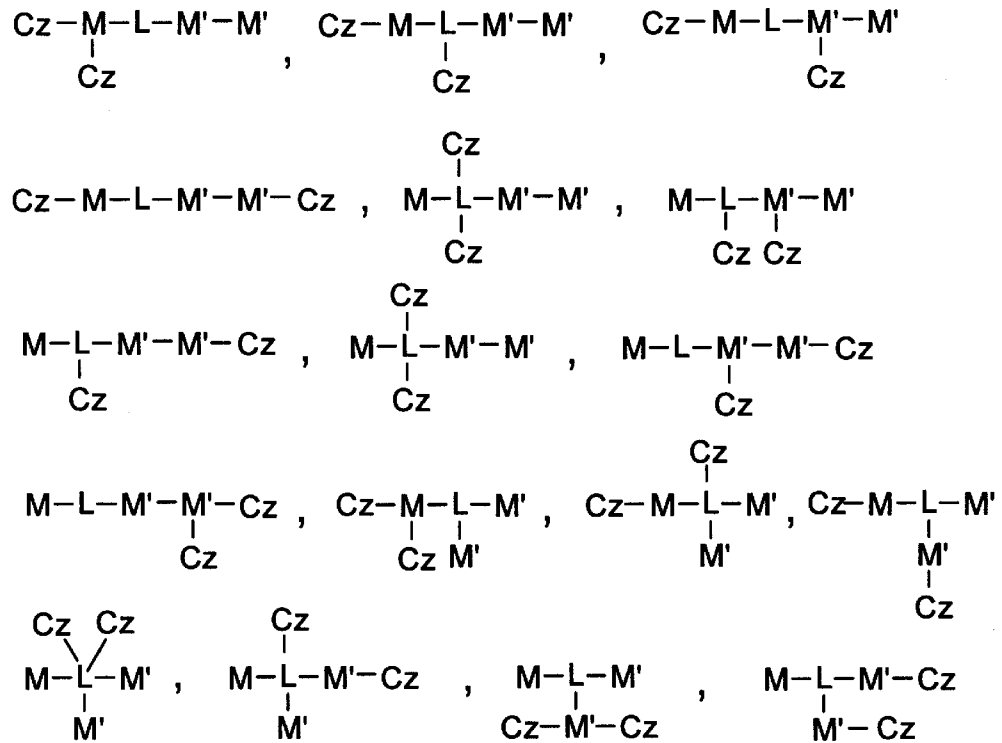
No	p	q	r	結合様式
(1)	0	1	1	$L - M'$
(2)	0	1	2	$L - M' - M'$, $M' - L - M'$
(3)	0	2	1	$L - L - M'$, $L - M' - L$
(4)	0	2	2	$L - L - M' - M'$, $M' - L - L - M'$, $L - \underset{\substack{ \\ L}}{M'} - \underset{\substack{ \\ L}}{M'} - L$, $M' - \underset{\substack{ \\ L}}{L} - M'$, $L - \underset{\substack{ \\ M'}}{M'} - L$
(5)	1	1	0	(1)に同じ (M' をMと読み替える)
(6)	1	1	1	$M - L - M'$
(7)	1	1	2	$M - L - M' - M'$, $M - \underset{\substack{ \\ M'}}{L} - M'$
(8)	1	2	0	(3)に同じ (M' をMと読み替える)
(9)	1	2	1	$M - L - L - M'$, $L - M - L - M'$, $M - L - M'$
(10)	1	2	2	$M - L - L - M' - M'$, $M' - L - M - L - M'$, $M' - M' - L - M - L$, $M - \underset{\substack{ \\ M'}}{L} - \underset{\substack{ \\ M'}}{L} - M$, $M - \underset{\substack{ \\ M'}}{L} - \underset{\substack{ \\ M'}}{L} - M'$, $L - \underset{\substack{ \\ M}}{L} - M' - M'$, $L - M - \underset{\substack{ \\ M'}}{L} - M'$, $M - \underset{\substack{ \\ M'}}{L} - L$
(11)	2	1	0	(2)に同じ (M' をMと読み替える)

[表3]

(12)	2	1	1	(7)に同じ (M' をMと読み替える)
(13)	2	1	2	$M-L \begin{array}{c} M' \\ \\ M-L-M \\ \\ M' \end{array}, \begin{array}{c} M-L-M-M' \\ \\ M \end{array}$
(14)	2	2	0	(4)に同じ (M' をMと読み替える)
(15)	2	2	1	(10)に同じ (M' をMと読み替える)
(16)	2	2	2	$M-M-L-L-M'-M',$ $\begin{array}{c} M-M-L-M-M' \\ \\ L \end{array}, \begin{array}{c} M-L-L-M-M' \\ \\ M \end{array}, \begin{array}{c} M \\ \\ M-L-L \\ \\ M' \end{array},$ $\begin{array}{c} M-M-L-L-M' \\ \\ M' \end{array}, \begin{array}{c} M \\ \\ L-L-M-M' \\ \\ M \end{array}, \begin{array}{c} M-L-L-M \\ \\ M' \end{array} \begin{array}{c} \\ M' \end{array}$

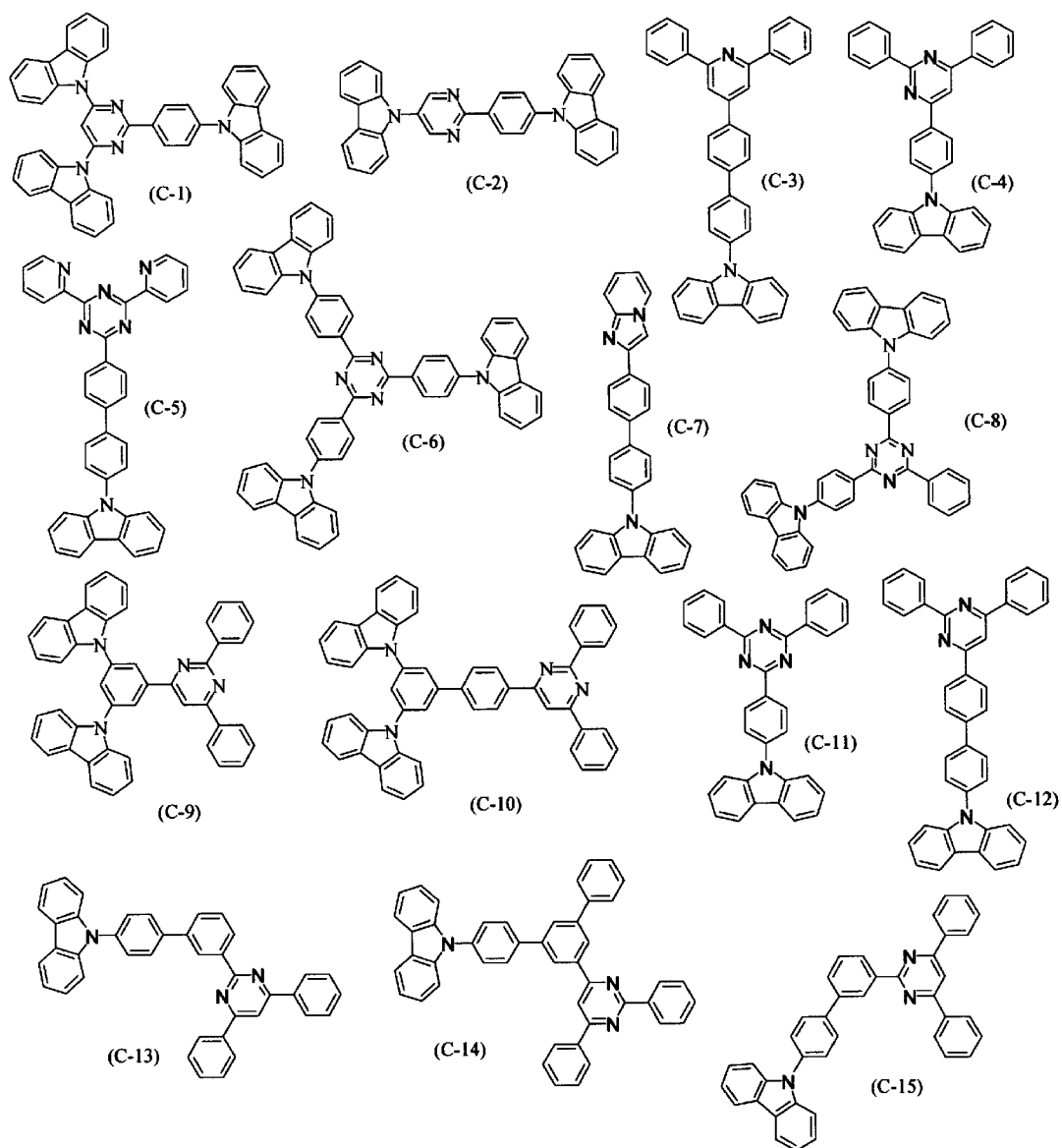
[0084] 前記一般式(C-I)及び(C-II)において、Czが、Aと結合している場合、Aを表すM, L, M'のどの部分に結合してもよい。例えば、m=n=1であるCz-Aではp=q=r=1(表中(6))の場合、AはM-L-M'となりCz-M-L-M', M-L(-Cz)-M', M-L-M'-Czの3つの結合様式として表される。また同様に、例えば一般式(C-I)においてn=2であるCz-A-Czでは、p=q=1, r=2(表中(7))の場合AはM-L-M'-M'もしくはM-L(-M')-M'となり、下記の結合様式として表される。

[0085] [化34]



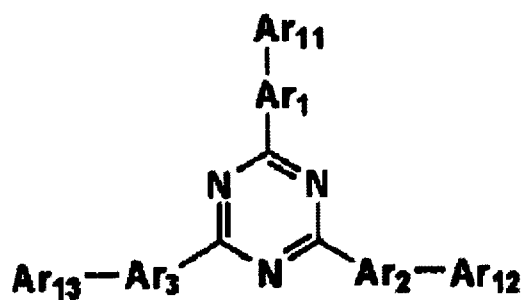
[0086] 前記一般式(C-I)及び(C-II)で表される具体例としては下記のような構造が挙げられるが、この例に限定されるものではない。

[化35]



[0087] [化36]

(C-III)

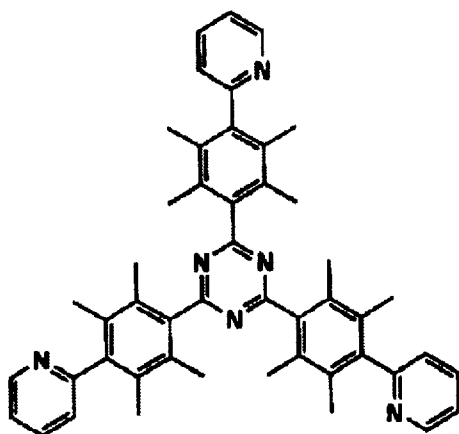


(式中、Ar₁₁ ~ Ar₁₃ は、それぞれ一般式(B-I)のR^{B2}と同様の基を示し、具体例も同

様であり、 $Ar_1 \sim Ar_3$ は、一般式(B-I)の R^{B2} と同様の基を2価にしたものを示し、具体例も同様である。)

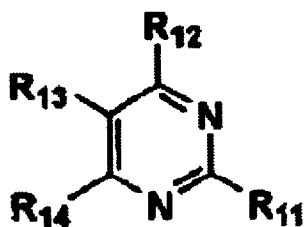
一般式(C-III)の具体例を以下に示すが、これに限定されない。

[化37]



[0088] [化38]

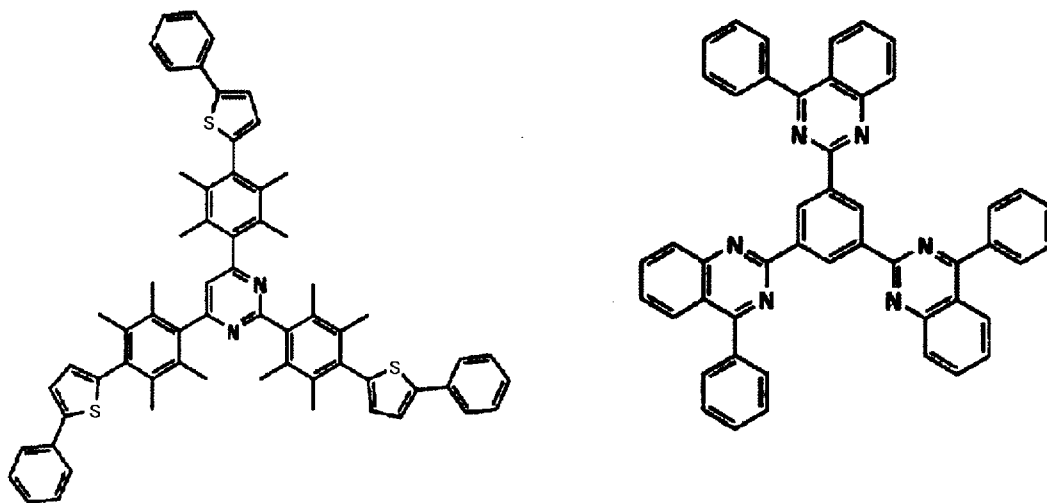
(C-IV)



(式中、 $R_{11} \sim R_{14}$ は、それぞれ一般式(B-I)の R^{B2} と同様の基を示し、具体例も同様である。)

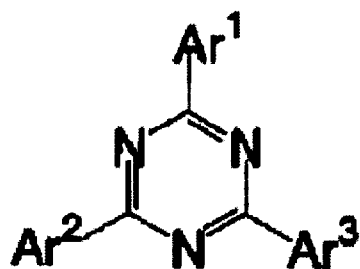
一般式(C-IV)の具体例を以下に示すが、これらに限定されない。

[化39]



[0089] [化40]

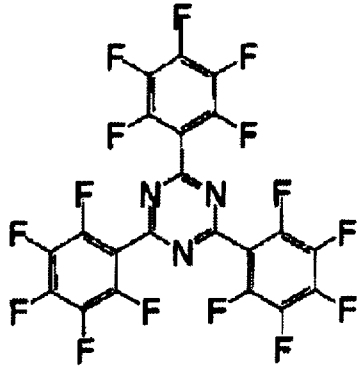
(C-V)



(式中、 $Ar^1 \sim Ar^3$ は、それぞれ一般式(B-I)の R^{B2} と同様の基を示し、具体例も同様である。)

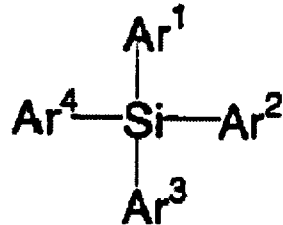
一般式(C-V)の具体例を以下に示すが、これに限定されない。

[化41]



[0090] [化42]

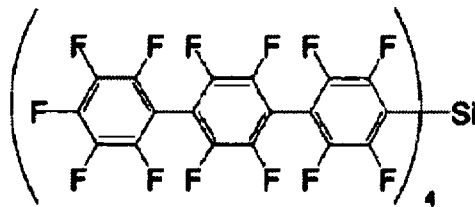
(C-VI)



(式中、 $Ar^1 \sim Ar^4$ は、それぞれ一般式(B-I)の R^{B2} と同様の基を示し、具体例も同様である。)

一般式(C-VI)の具体例を以下に示すが、これに限定されない。

[化43]



[0091] また、本発明の有機EL素子において、電子注入・輸送層を構成する物質として、絶縁体又は半導体の無機化合物を使用することも好ましい。電子注入・輸送層が絶縁体や半導体で構成されていれば、電流のリークを有効に防止して、電子注入性を向上させることができる。このような絶縁体としては、アルカリ金属カルコゲナイド、アルカリ土類金属カルコゲナイド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属

のハロゲン化物からなる群から選択される少なくとも一つの金属化合物を使用するのが好ましい。電子注入・輸送層がこれらのアルカリ金属カルコゲナイド等で構成されていれば、電子注入性をさらに向上させることができる点で好ましい。

具体的に、好ましいアルカリ金属カルコゲナイドとしては、例えば、 Li_2O 、 LiO 、 Na_2S 、 Na_2Se 及び NaO が挙げられ、好ましいアルカリ土類金属カルコゲナイドとしては、例えば、 CaO 、 BaO 、 SrO 、 BeO 、 BaS 及び CaSe が挙げられる。また、好ましいアルカリ金属のハロゲン化物としては、例えば、 LiF 、 NaF 、 KF 、 LiCl 、 KCl 及び NaCl 等が挙げられる。また、好ましいアルカリ土類金属のハロゲン化物としては、例えば、 CaF_2 、 BaF_2 、 SrF_2 、 MgF_2 及び BeF_2 といったフッ化物や、フッ化物以外のハロゲン化物が挙げられる。

[0092] また、電子注入・輸送層を構成する半導体としては、Ba、Ca、Sr、Yb、Al、Ga、In、Li、Na、Cd、Mg、Si、Ta、Sb及びZnの少なくとも一つの元素を含む酸化物、窒化物または酸化窒化物等の一種単独又は二種以上の組み合わせが挙げられる。また、電子輸送層を構成する無機化合物が、微結晶又は非晶質の絶縁性薄膜であることが好ましい。電子輸送層がこれらの絶縁性薄膜で構成されていれば、より均質な薄膜が形成されるために、ダークスポット等の画素欠陥を減少させることができる。なお、このような無機化合物としては、上述したアルカリ金属カルコゲナイド、アルカリ土類金属カルコゲナイド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物等が挙げられる。

さらに、本発明の有機EL素子において、電子注入層及び／又は電子輸送層は、仕事関数が2.9eV以下の還元性ドーパントを含有していてもよい。本発明において、還元性ドーパントは電子注入効率を上昇させる化合物である。

[0093] また、本発明においては、陰極と有機薄膜層との界面領域に還元性ドーパントが添加されていることも好ましく、界面領域に含有される有機層の少なくとも一部を還元しアニオン化する。好ましい還元性ドーパントとしては、アルカリ金属、アルカリ土類金属の酸化物、アルカリ土類金属、希土類金属、アルカリ金属の酸化物、アルカリ金属のハロゲン化物、アルカリ土類金属の酸化物、アルカリ土類金属のハロゲン化物、希土類金属の酸化物または希土類金属のハロゲン化物、アルカリ金属錯体、アルカリ

土類金属錯体、希土類金属錯体の群から選ばれる少なくとも一つの化合物である。より具体的に、好ましい還元性ドーパントとしては、Na(仕事関数:2.36eV)、K(仕事関数:2.28eV)、Rb(仕事関数:2.16eV)及びCs(仕事関数:1.95eV)からなる群から選択される少なくとも一つのアルカリ金属や、Ca(仕事関数:2.9eV)、Sr(仕事関数:2.0~2.5eV)及びBa(仕事関数:2.52eV)からなる群から選択される少なくとも一つのアルカリ土類金属が挙げられ、仕事関数が2.9eVのものが特に好ましい。これらのうち、より好ましい還元性ドーパントは、K、Rb及びCsからなる群から選択される少なくとも一つのアルカリ金属であり、さらに好ましくは、Rb又はCsであり、最も好ましくは、Csである。これらのアルカリ金属は、特に還元能力が高く、電子注入域への比較的少量の添加により、有機EL素子における発光輝度の向上や長寿命化が図られる。

[0094] 前記アルカリ土類金属酸化物としては、例えば、BaO、SrO、CaO及びこれらを混合した $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{O}$ ($0 < x < 1$) や、 $\text{Ba}_x\text{Ca}_{1-x}\text{O}$ ($0 < x < 1$) を好ましいものとして挙げる事ができる。アルカリ酸化物又はアルカリフッ化物としては、LiF、 Li_2O 、NaF等が挙げられる。アルカリ金属錯体、アルカリ土類金属錯体、希土類金属錯体としては金属イオンとしてアルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオン、希土類金属イオンの少なくとも一つ含有するものであれば特に限定はない。また配位子としては、例えば、キノリノール、ベンゾキノリノール、アクリジノール、フェナントリジノール、ヒドロキシフェニルオキサゾール、ヒドロキシフェニルチアゾール、ヒドロキシジアリールオキサジアゾール、ヒドロキシジアリールチアジアゾール、ヒドロキシフェニルピリジン、ヒドロキシフェニルベンゾイミダゾール、ヒドロキシベンゾトリアゾール、ヒドロキシフルボラン、ビピリジル、フェナントロリン、フタロシアニン、ポルフィリン、シクロペンタジエン、 β -ジケトン類、アゾメチン類、及びそれらの誘導体等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

[0095] また、還元性ドーパントの他の好ましい形態としては、層状または島状に形成する。層状に用いる際の好ましい膜厚としては0.05~8nmである。

還元性ドーパントを含む電子注入・輸送層の形成手法としては、抵抗加熱蒸着法により還元性ドーパントを蒸着しながら、界面領域を形成する発光材料または電子注

入材料である有機物を同時に蒸着させ、有機物中に還元性ドーパントを分散する方法が好ましい。分散濃度としてはモル比として100:1~1:100、好ましくは5:1~1:5である。還元性ドーパントを層状に形成する際は、界面の有機層である発光材料または電子注入材料を層状に形成した後に、還元性ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは膜厚0.5nm~15nmで形成する。還元性ドーパントを島状に形成する際は、界面の有機層である発光材料又は電子注入材料を形成した後に、還元性ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは膜厚0.05~1nmで形成する。

[0096] 本発明の有機EL素子の発光層は、電界印加時に陽極又は正孔注入層より正孔を注入することができ、陰極又は電子注入層より電子を注入することができる機能、注入した電荷(電子と正孔)を電界の力で移動させる機能、電子と正孔の再結合の場を提供し、これを発光につなげる機能を有するものである。本発明の有機EL素子の発光層は、少なくとも本発明の遷移金属錯体化合物を含有すると好ましく、この遷移金属錯体化合物をゲスト材料とするホスト材料を含有させてもよい。前記ホスト材料としては、例えば、カルバゾール骨格を有するもの、ジアリールアミン骨格を有するもの、ピリジン骨格を有するもの、ピラジン骨格を有するもの、トリアジン骨格を有するもの及びアリアルシラン骨格を有するもの等が挙げられる。前記ホスト材料のT1(最低三重項励起状態のエネルギーレベル)は、ゲスト材料のT1レベルより大きいことが好ましい。前記ホスト材料は低分子化合物であっても、高分子化合物であってもよい。また、前記ホスト材料と前記遷移金属錯体化合物等の発光材料とを共蒸着等することによって、前記発光材料が前記ホスト材料にドーパされた発光層を形成することができる。

[0097] 本発明の有機EL素子において、前記各層の形成方法としては、特に限定されるものではないが、真空蒸着法、LB法、抵抗加熱蒸着法、電子ビーム法、スパッタリング法、分子積層法、コーティング法(スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など)、インクジェット法、印刷法などの種々の方法を利用することができ、本発明においては、真空蒸着法や塗布法であるコーティング法が好ましい。

また、本発明の遷移金属錯体化合物を含有する有機薄膜層は、真空蒸着法、分子

線蒸着法(MBE法)あるいは溶媒に解かした溶液のディッピング法、スピンコーティング法、キャストリング法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法による公知の方法で形成することができる。

前記コーティング法では、本発明の遷移金属錯体化合物を溶媒に溶解して塗布液を調製し、該塗布液を所望の層(あるいは電極)上に、塗布・乾燥することによって形成することができる。塗布液中には樹脂を含有させてもよく、樹脂は溶媒に溶解状態とすることも、分散状態とすることもできる。前記樹脂としては、非共役系高分子(例えば、ポリビニルカルバゾール)、共役系高分子(例えば、ポリオレフィン系高分子)を使用することができる。より具体的には、例えば、ポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリブタジエン、ポリ(N-ビニルカルバゾール)、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エチルセルロース、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂等が挙げられる。

また、本発明の有機EL素子の各有機層の膜厚は特に制限されないが、一般に膜厚が薄すぎるとピンホール等の欠陥が生じやすく、逆に厚すぎると高い印加電圧が必要となり効率が悪くなるため、通常は数nmから1 μ mの範囲が好ましい。

実施例

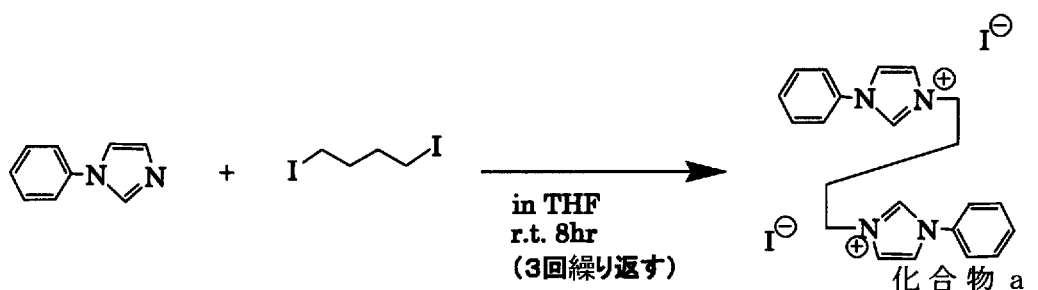
[0098] 次に、実施例を用いて本発明をさらに詳しく説明する。

実施例1(遷移金属錯体化合物1の合成)

以下の経路にて、化合物1(化合物1-A:mer. 体、化合物2-B:fac. 体)を合成した

(1)架橋配位子前駆体(化合物a)の合成

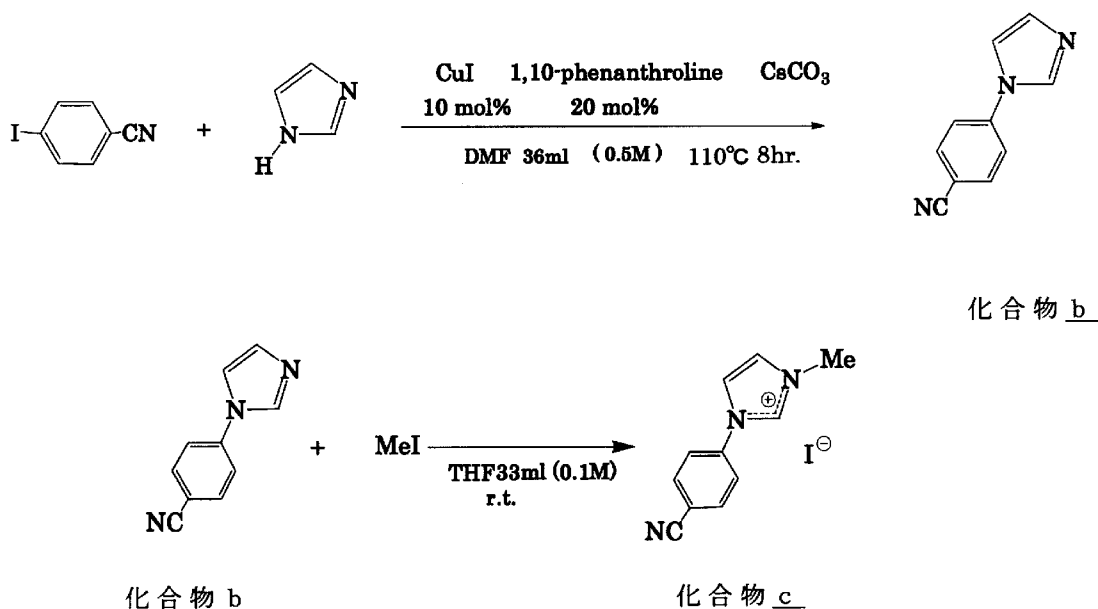
[化44]



[0099] N-フェニルイミダゾール5.00g(分子量144.18、34.7ミリモル)及び1, 4-ジヨードブタン5.05g(分子量309.92、16.3ミリモル)にテトラヒドロフラン100ミリリットルを加え、室温にて8時間攪拌した。生成した白色固体(化合物a)をろ別し、ろ液をさらに8時間攪拌させた(この操作を2回繰り返す)。化合物aを合計5.50g(収率56%)得た。

[0100] (2)配位子前駆体(化合物c)の合成

[化45]



[0101] 反応は窒素ガス雰囲気下にて行なった。

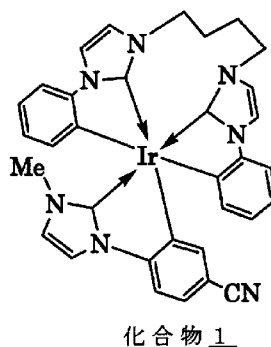
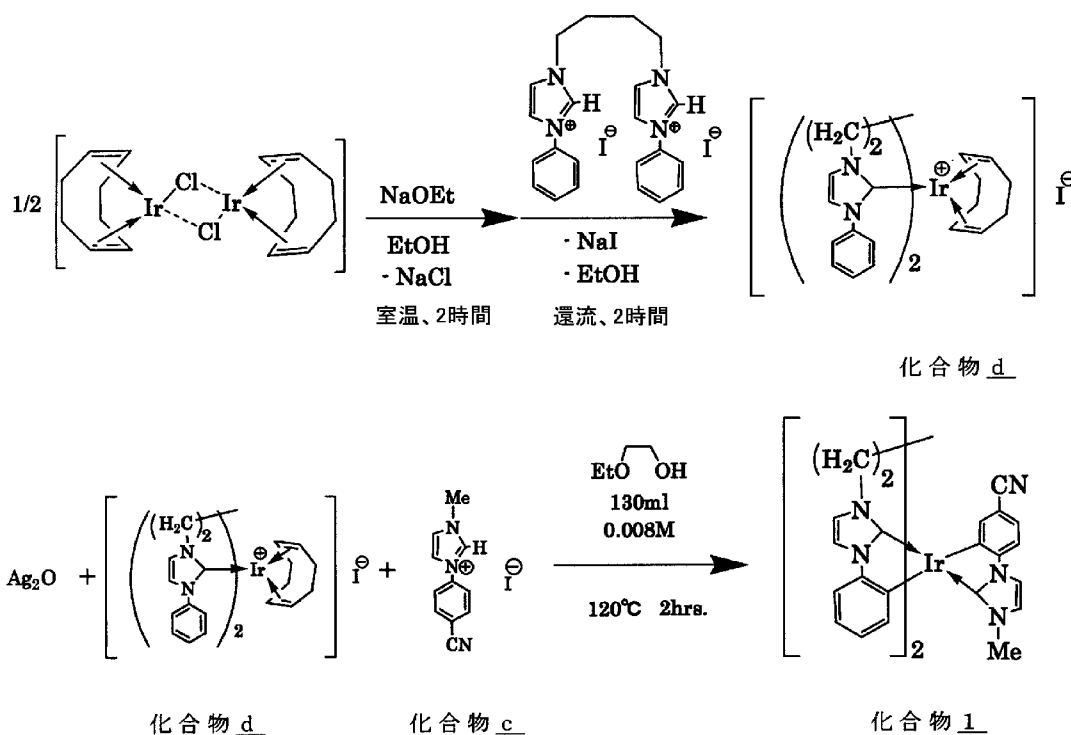
イミダゾール1.35g(分子量68.08、19.8ミリモル)、ヨウ化銅0.343g(分子量190.45、18.0ミリモル)、炭酸セシウム11.7g(分子量325.80、36ミリモル)、4-ヨードベンズニトリル4.12g(分子量229.02、18ミリモル)、1, 10-フェナントロリン0.648g(分子量180.21、3.6ミリモル)、及び溶媒DMF(ジメチルホルムアミド)36ミリリットルを順次入れ、8時

間還流させた。反応終了後、これを室温に戻し、酢酸エチルを100ミリリットル加え固体成分をろ別した。減圧下、ろ液から溶媒を留去し、残留成分をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:酢酸エチル)により精製し、目的化合物**h**(Rf値:約0.2)を1.38g(分子量169.18、8.16ミリモル)得た(収率45%)。

化合物**h** 0.56g(分子量169.18、3.31ミリモル)に溶媒として脱水THF(テトラヒドロフラン)33ミリリットル、続いてヨウ化メチル4.7g(分子量141.94、33.1ミリモル)を加え、室温にて24時間反応させた。液体成分はろ過で除き、固体成分をTHFで洗浄し、減圧下で乾燥することで、目的化合物**c**を0.96g(薄黄色固体、分子量311.12、3.09ミリモル)得た(収率93%)。

[0102] (3)化合物**1**の合成

[化46]



[0103] 反応は窒素ガス雰囲気下にて行なった。

$[(\text{COD})\text{IrCl}]_2$ (COD: 1, 5-シクロオクタジエン) 0.561g (分子量671.70、0.835ミリモル)、ナトリウムエトキシド0.569g (分子量68.05、8.36ミリモル)、及び溶媒エタノール50ミリリットルを加え、室温にて2時間攪拌し、続いて還流下2時間反応させた。反応液から液体成分をろ過で除き、真空下で乾燥させ、目的化合物dを0.39g (褐色固体、分子量769.74、0.50ミリモル) 得た (収率30%)。

酸化銀(I) 1.94g (分子量231.74、8.40ミリモル)、化合物d 0.808g (分子量769.74、1.05ミリモル)、化合物c 0.327g (分子量311.12、1.05ミリモル)、及び溶媒として2-エトキシエタノール130ミリリットルを加え、還流下2時間反応させた。反応後、溶媒成分は

減圧下留去し、残留成分をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:塩化メチレン)により精製し、目的化合物1(mer.体:化合物1-A、fac.体:化合物1-B、Rf値:mer.体約0.25、fac.体約0.20)を0.080g(mer./fac. 1/1、分子量714.84、1.12ミリモル)得た(収率11%)。

[0104] 得られた化合物1-Aについて、FD-MSの測定を行なった結果、最大ピーク値は715で計算値と一致した(計算値 M^+ (分子イオンピーク)=715)。また、室温における発光スペクトル測定の結果、極大発光ピーク波長(λ_{max})は、461nmであった。また、この化合物の量子収率は、0.16で、高い量子収率を示した。高い量子収率が得られたことから、この化合物を発光材料として使用する有機EL素子の発光寿命は長いと推定される。

また、得られた化合物1-Bについて、FD-MSの測定を行なった結果、最大ピーク値は715で計算値と一致した(計算値 M^+ (分子イオンピーク)=715)。また、室温における発光スペクトル測定の結果、蛍光発光に由来するピーク(331nm極大発光ピーク(極大発光ピーク))と燐光発光に由来するピーク(極大発光ピーク:450nm付近)が観測された。また、この化合物の量子収率は、0.27で、高い量子収率を示した。高い量子収率が得られたことから、この化合物を発光材料として使用する有機EL素子の発光寿命は長いと推定される。

(1)FD-MS測定(電界脱離イオン化質量分析法)

装置:HX110(日本電子社製)

条件:加速電圧 8kV

スキャンレンジ $m/z=50\sim 1500$

エミッタ種 カーボン

エミッタ電流 0mA→2mA/分→40mA(10分保持)

(2)発光スペクトル測定:

装置:F-4500形分光蛍光光度計

測定溶媒:塩化メチレン

(3)量子収率測定

装置:浜松ホトニクス(株)製の量子収率測定装置C9920-01

方法:積分球を用いた絶対法により、材料が吸収する光子数に対する発光により放出される光の光子数の割合として算出。石英製のシャーレを用い、試料(粉末)を積分球内に配置し測定した。

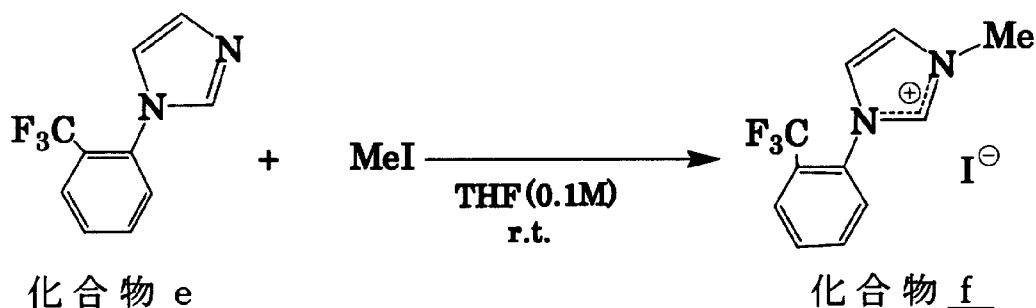
[0105] 実施例2(遷移金属錯体化合物2の合成)

以下の経路にて、化合物2(mer.体、fac.体の混合)を合成した。

(1)架橋配位子前駆体(化合物d)の合成:実施例1と同様

(2)配位子前駆体(化合物f):化合物eは市販品を用いた

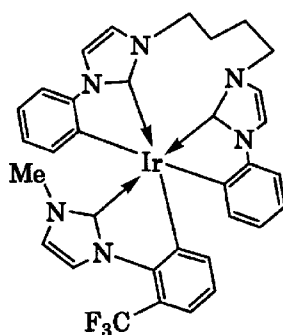
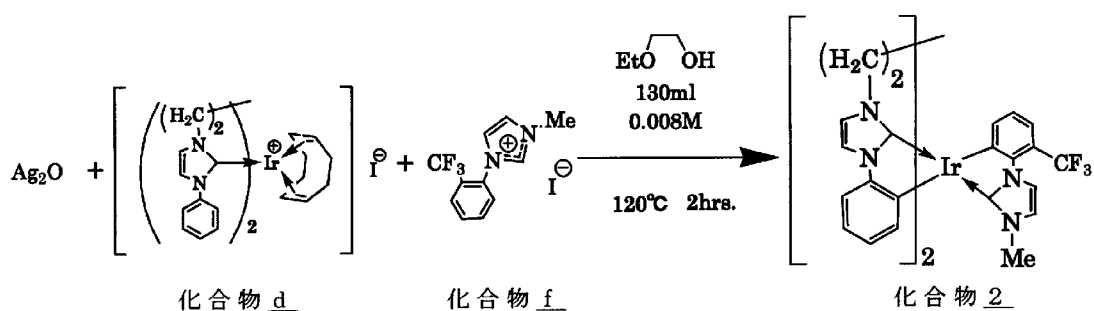
[化47]



[0106] 化合物e 1.00g(分子量212.17、4.71ミリモル)に溶媒として脱水THF(テトラヒドロフラン)47.1ミリリットル、続いてヨウ化メチル3.35g(分子量141.94、23.6ミリモル)を加え、室温にて24時間反応させた。液体成分はろ過で除き、固体成分をTHFで洗浄し、減圧下で乾燥することで、目的化合物fを1.50g(白色固体、分子量354.11、4.24ミリモル)得た(収率90%)。

[0107] (3)化合物2の合成

[化48]

化合物 2

[0108] 酸化銀(I) 7.74g (分子量231.74、66.8ミリモル)、化合物d 3.22g (分子量769.74、4.18ミリモル)、化合物f 1.48g (分子量354.11、4.18ミリモル)、及び溶媒として2-エトキシエタノール105ミリリットルを加え、還流下2時間反応させた。反応後、溶媒成分は減圧下留去し、残留成分をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:塩化メチレン)により精製し、目的化合物2(Rf値:約0.8)を0.50g (分子量757.83、0.66ミリモル)得た(収率16%)。

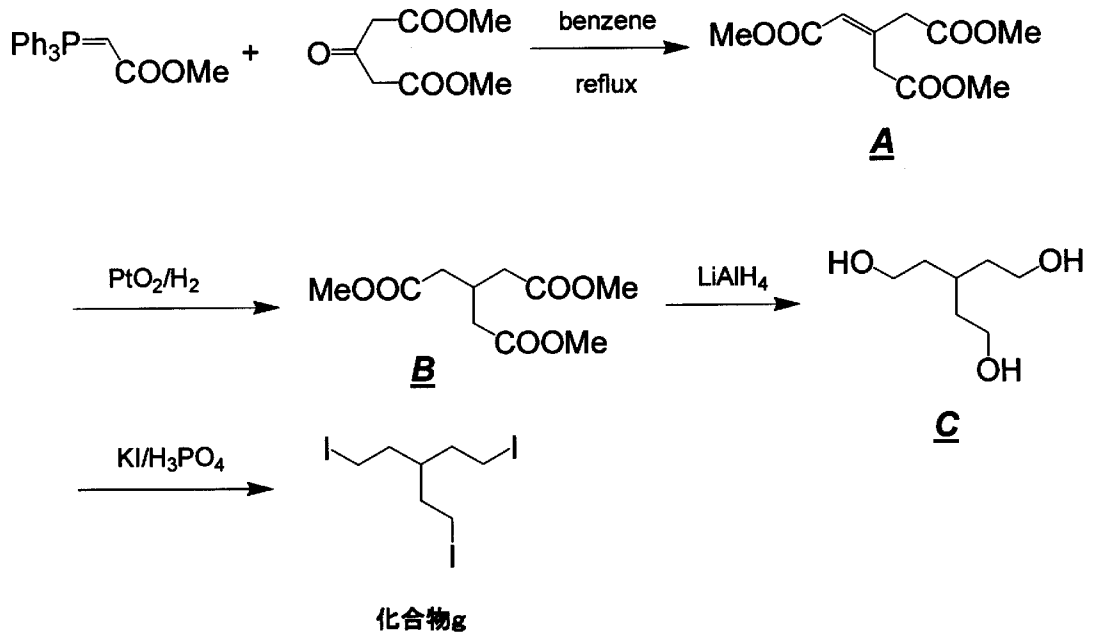
得られた化合物2について、FD-MSの測定を行なった結果、最大ピーク値は758で計算値と一致した(計算値 M^+ (分子イオンピーク)=758)。また、室温における発光スペクトル測定の結果、極大発光ピーク波長(λ_{max})は、439nmであった。また、この化合物の量子収率は、0.20で、高い量子収率を示した。高い量子収率が得られたことから、この化合物を発光材料として使用する有機EL素子の発光寿命は長いと推定される。

[0109] 実施例3(遷移金属錯体化合物3の合成)

以下の経路にて、化合物3を合成した。

(1)架橋配位子前駆体(化合物g)の合成

[化49]



[0110] 化合物Cまでの合成は、以下の文献に従い合成した。

Bull.Chem.Soc.JAPAN 第69巻,1996年, p3317

500ミリリットルナスフラスコに化合物C23.7mmol(3.52g)、ヨウ化カリウム 142mmol(23.6g)及びリン酸(80%溶液)80ミリリットルを入れ、攪拌しながら100°Cで約8時間加熱した。

得られた濃褐色溶液に水150ミリリットルを入れて、塩化メチレン200ミリリットルで抽出した。有機層をさらにチオ硫酸ナトリウム飽和溶液100ミリリットルで3回洗浄して、硫酸マグネシウムで乾燥させた。溶媒を減圧留去したのち、シリカカラム精製(塩化メチレン)を行うことにより、化合物gを褐色オイルとして4.3g(収率38%)得た。

[0111] (2)配位子前駆体(化合物h):化合物eは市販品を用いた

[化50]

れに化合物hを0.223g(分子量1114.41、0.20ミリモル)を加え、還流下2時間反応させた。得られた反応液から溶媒2-エトキシエタノールを減圧下加熱留去した。この残渣を、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:塩化メチレン、Rf値約0.8)にて精製した。その結果、化合物3を7mg(分子量919.86、0.0076ミリモル、収率4%)得た。

得られた化合物3について、FD-MSの測定を行なった結果、最大ピーク値は920で計算値と一致した(計算値M⁺(分子イオンピーク)=920)。また、77Kにおける発光スペクトル測定の結果、極大発光ピーク波長(λ_{max})は、406nmであった。また、この化合物の量子収率は、0.10で、高い量子収率を示した。高い量子収率が得られたことから、この化合物を発光材料として使用する有機EL素子の発光寿命は長いと推定される。

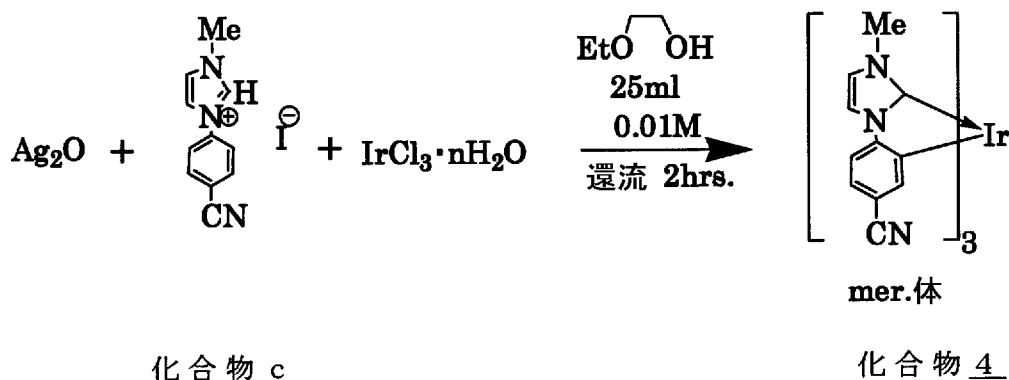
[0115] 実施例4(遷移金属錯体化合物4の合成)

以下の経路にて、化合物4(mer.体)を合成した。

(1) 化合物cの合成: 実施例1と同じ

(2) 化合物4の合成

[化52]



[0116] 酸化銀(I)0.463g(分子量231.74、2.0ミリモル)、化合物c 0.311g(分子量311.12、1.0ミリモル)、IrCl₃·nH₂O 0.0746g(分子量298.56、0.25ミリモル)、及び溶媒として2-エトキシエタノール25ミリリットルを加え、還流下2時間反応させた。反応後、溶媒成分は減圧下留去し、残留成分をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:塩化メチレン)により精製し、目的化合物4(Rf値:約0.1)を0.020g(分子量739.18、0.027ミリモル)を得た。

ル)得た(収率11%)。

得られた化合物4について、FD-MSの測定を行なった結果、最大ピーク値は739で計算値と一致した(計算値 M^+ (分子イオンピーク)=739)。また、室温における発光スペクトル測定の結果、極大発光ピーク波長(λ_{max})は、439nm及び456nmであった。また、この化合物の量子収率は0.01であった。

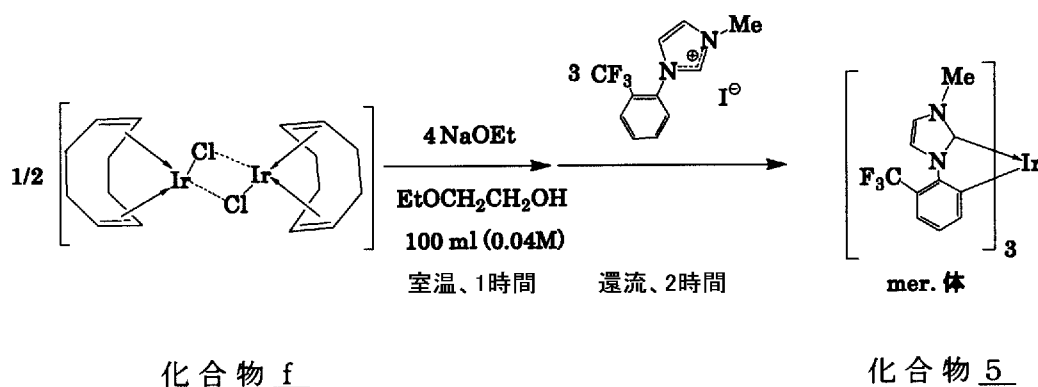
[0117] 実施例5(遷移金属錯体化合物5の合成)

以下の経路にて、化合物5(mer.体)を合成した。

(1)配位子前駆体(化合物f):実施例2と同じ

(2)化合物5の合成

[化53]



[0118] 反応はすべてアルゴン気流下で行なった。[(COD)IrCl]₂ 1.344g(分子量671.70、2.00ミリモル)に溶媒2-エトキシエタノールを100ミリリットル加え、次にナトリウムエトキシド1.256g(分子量68.05、18.4ミリモル)を加え、室温にて1時間攪拌させた。これに化合物fを5.10g(分子量354.11、14.4ミリモル)を加え、還流下2時間反応させた。得られた反応液から溶媒2-エトキシエタノールを減圧下加熱留去し、冷却後、これに塩化メチレン200ミリリットルを加え、固体成分をろ別した。次に、ろ液を減圧下留去し、その残渣成分を、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:塩化メチレン、Rf値約0.8)にて精製した。その結果、化合物5を0.847g(分子量867.79、0.98ミリモル、収率24%)得た。

得られた化合物5について、FD-MSの測定を行なった結果、最大ピーク値は868で計算値と一致した(計算値 M^+ (分子イオンピーク)=868)。また、室温における発

光スペクトル測定の結果、極大発光ピーク波長(λ_{\max})は、424nm。また、この化合物の量子収率は0.02であった。

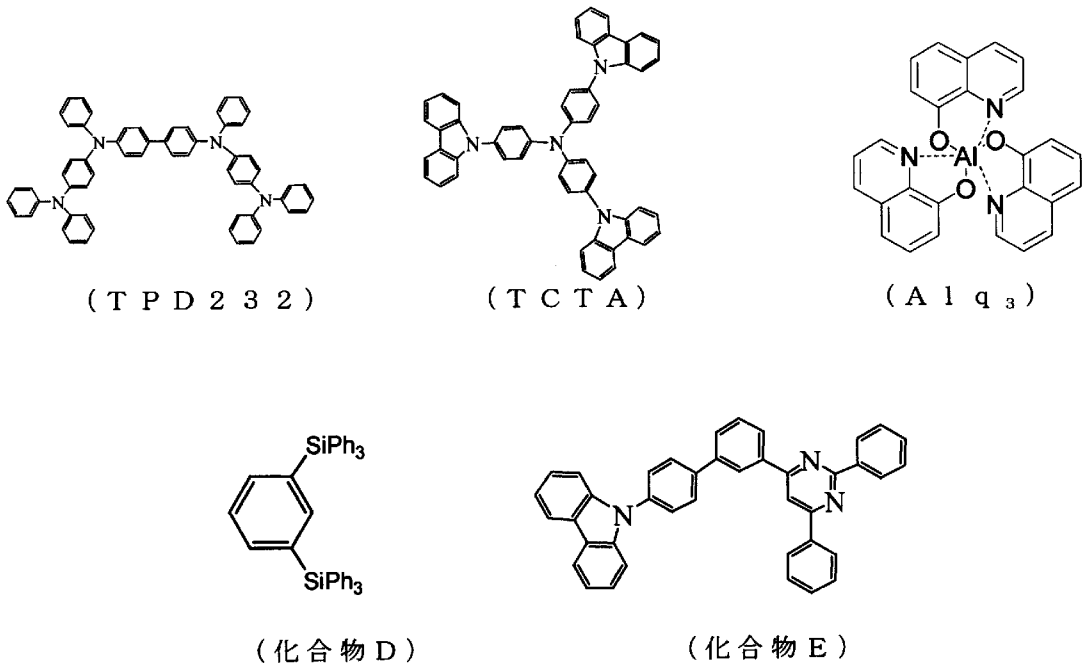
[0119] 実施例6(化合物5を用いた有機EL素子の作製)

化合物5を用いて、ガラス基板/陽極/正孔注入層/正孔輸送層/発光層/正孔阻止層/電子輸送層/電子注入層/陰極からなる有機エレクトロルミネッセンス素子を作製した。

25mm×75mm×1.1mm厚のITO透明電極付きガラス基板をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を5分間行なった後、UVオゾン洗浄を30分間行なった。洗浄後のITO透明電極が形成されている側の面上に、真空蒸着法で正孔注入層に用いるTPD232を85nm及び正孔輸送層に用いる4,4',4''-トリス(カルバゾール-9-イル)トリフェニルアミン(TCTA)を10nmの膜厚で成膜した。ついで発光層に用いる化合物5及び下記化合物Dとの混合物(化合物5と下記化合物Dとの質量比は1.5:20)をTCTAの正孔輸送層上に真空蒸着法で成膜し、発光層を得た。この発光層の膜厚は30nmとした。続いて、膜厚25nmの下記化合物E、続いて膜厚5nmのトリス(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム(Alq_3)を真空蒸着法により成膜した。この下記化合物Eは正孔阻止層として機能し、 Alq_3 膜は電子輸送層として機能する。更に、膜厚1nmのフッ化リチウムを真空蒸着法により成膜し、電子注入層とした。最後に膜厚150nmのアルミニウム(Al)陰極を真空蒸着法により成膜し、有機EL素子を作製した。

得られた有機EL素子を用い、Al電極をマイナス、ITO透明電極をプラスにして直流電圧Vを印加した。その結果、電圧11.2V、電流密度10mA/cm²にて3.1cd/m²の青紫色発光が得られ、発光効率0.031cd/Aであった。実施例6のELスペクトルを図1に示す。

[0120] [化54]



[0121] 実施例7(化合物2を用いた有機EL素子の作製)

化合物2を用いて、ガラス基板／陽極／正孔注入層／発光層／正孔阻止層／電子輸送層／電子注入層／陰極からなる有機EL素子を作製した。

25mm×75mm×1.1mm厚のITO透明電極付きガラス基板をイソプロピルアルコール中で超音波洗浄を5分間行なった後、UVオゾン洗浄を30分間行なった。洗浄後のITO透明電極が形成されている側の面上に、真空蒸着法で正孔注入層に用いる4,4',4''-トリス(カルバゾール-9-イル)トリフェニルアミン(TCTA)を95nmの膜厚で成膜した。ついで発光層に用いる化合物2及び上記化合物Dとの混合物(化合物2と上記化合物Dとの質量比は1.5:20)をTCTAの正孔注入層上に真空蒸着法で成膜し、発光層を得た。この発光層の膜厚は30nmとした。続いて、膜厚25nmの上記化合物E、続いて膜厚5nmのトリス(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム(Alq₃)を真空蒸着法により成膜した。この上記化合物Eは正孔阻止層として機能し、Alq₃膜は電子輸送層として機能する。更に、膜厚1nmのフッ化リチウムを真空蒸着法により成膜し、電子注入層とした。最後に膜厚150nmのアルミニウム(AI)陰極を真空蒸着法により成膜し、有機EL素子を作製した。

得られた有機EL素子を用い、Al電極をマイナス、ITO透明電極をプラスにして直

流電圧Vを印加した。その結果、電圧15V、電流密度10mA/cm²にて28.2cd/m²の青色発光が得られ、発光効率0.28cd/Aであった。実施例7のELスペクトルを図2に示す。

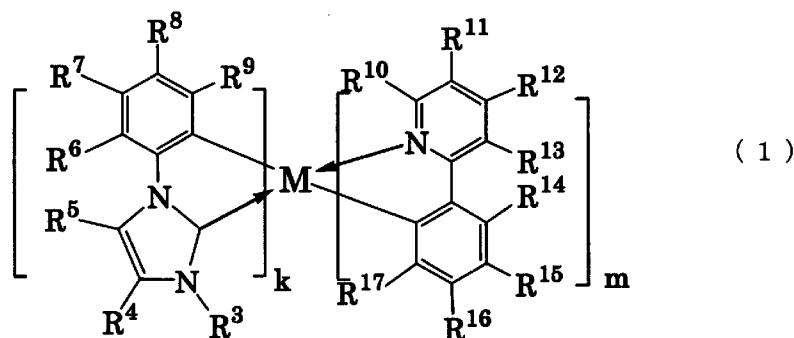
産業上の利用可能性

[0122] 以上詳細に説明したように、本発明の遷移金属錯体化合物を用いた有機EL素子は、発光効率が高く、発光寿命が長く、青色発光が求められる有機EL素子用の材料として極めて有用である。また、本発明の遷移金属錯体化合物は、従来、紫外領域に発光波長を有する材料の分子骨格を変換することにより、青色領域に発光を有する材料へと導いた化合物である。

請求の範囲

[1] 下記一般式(1)で表される金属カルベン結合を有する遷移金属錯体化合物。

[化1]



[一般式(1)において、C(炭素原子)→Mは金属カルベン結合を示す。Mは、Ir又はPtの金属原子を示す。kは1～3、mは0～2の整数を示し、k+mは金属Mの原子価を示す。

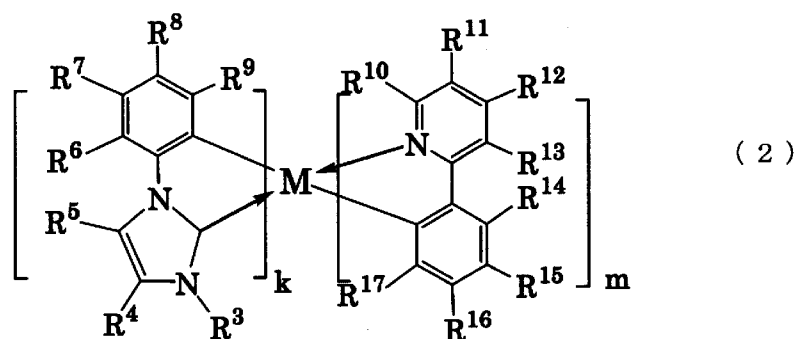
R³は、置換基を有してもよい炭素数1～30のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1～30のハロゲン化アルキル基、置換基を有してもよい核炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3～30のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数7～40のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数2～30のアルケニル基、置換基を有してもよい核原子数3～30の複素環基、置換基を有してもよい核原子数3～30のアルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数6～30のアリールシリル基、炭素数1～30のカルボキシル含有基である。

R⁴～R¹⁷は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、チオシアノ基、又はシアノ基、ニトロ基、 $-S(=O)_2R^1$ 基、又は $-S(=O)R^1$ 基[R¹は、水素原子、置換基を有してもよい炭素数1～30のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1～30のハロゲン化アルキル基、置換基を有してもよい核炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3～50のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数7～40のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数2～30のアルケニル基、置換基を有してもよい核原子数3～30の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1～30のアルコキシ基、置換基を有してもよい核炭素数6～30のアリールオキシ基、置換基を有してもよい炭素数3～30アルキルアミノ基、置換基を有してもよい炭素数6～30の

アリールアミノ基、置換基を有してもよい炭素数3～30アルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数6～30のアリールシリル基、あるいは置換基を有してもよい炭素数1～30のカルボキシル含有基である]、置換基を有してもよい炭素数1～30のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1～30のハロゲン化アルキル基、置換基を有してもよい核炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3～30のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数7～40のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数2～30のアルケニル基、置換基を有してもよい核原子数3～30の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1～30のアルコキシ基、置換基を有してもよい核炭素数6～30のアリールオキシ基、置換基を有してもよい核原子数3～30のアルキルアミノ基、置換基を有してもよい核原子数3～30のアルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数6～30のアリールシリル基、炭素数1～30のカルボキシル含有基であり、 $R^4 \sim R^{17}$ は隣接するもの同士で架橋していてもよい。]

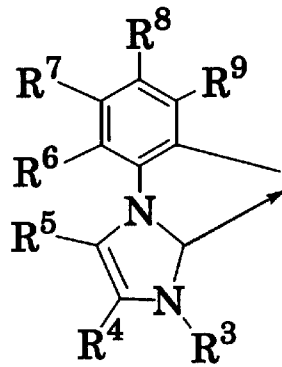
[2] 下記一般式(2)で表される金属カルベン結合を有する遷移金属錯体化合物。

[化2]



[一般式(2)において、C(炭素原子)→Mは金属カルベン結合を示す。Mは、Ir又はPtの金属原子を示す。kは1～3、mは0～2の整数を示し、k+mは金属Mの原子価を示す。k+m個の

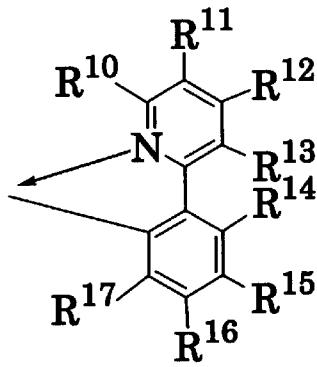
[化3]



(置換)N-フェニル-N'-R³-イミダゾール-2-イリデン-C², C^{2'}基

及び

[化4]



(置換)2-フェニルピリジン-N, C^{2'}基

のうち、少なくとも2つは架橋基-Z¹-を介して架橋している。Z¹は、置換基を含む原子数3~31の直鎖状の架橋基又は枝分れ状の架橋基であり、架橋を構成する原子は、ホウ素、炭素、ケイ素、酸素、硫黄、セレン、窒素、又はリンから構成され、置換基は、水素、ホウ素、炭素、ケイ素、酸素、硫黄、セレン、窒素、又はリンから構成される。

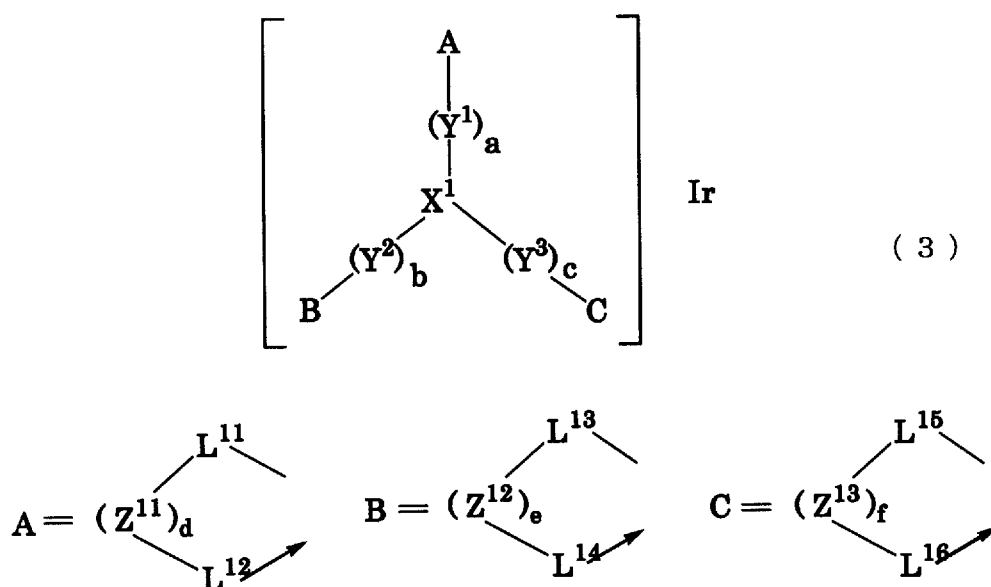
R³は、置換基を有してもよい炭素数1~30のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1~30のハロゲン化アルキル基、置換基を有してもよい核炭素数6~30の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3~30のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数7~40のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数2~30のアルケニル基、置換基を有してもよい核原子数3~30の複素環基、置換基を有して

もよい核原子数3～30のアルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数6～30のアリールシリル基、炭素数1～30のカルボキシル含有基である。

$R^4 \sim R^{17}$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、チオシアノ基、又はシアノ基、ニトロ基、 $-S(=O)_2 R^1$ 基、又は $-S(=O)R^1$ [R^1 は前記と同じ]、置換基を有してもよい炭素数1～30のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1～30のハロゲン化アルキル基、置換基を有してもよい核炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3～30のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数7～40のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数2～30のアルケニル基、置換基を有してもよい核原子数3～30の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1～30のアルコキシ基、置換基を有してもよい核炭素数6～30のアリールオキシ基、置換基を有してもよい核原子数3～30のアルキルアミノ基、置換基を有してもよい核原子数3～30のアルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数6～30のアリールシリル基、炭素数1～30のカルボキシル含有基であり、 $R^4 \sim R^{17}$ は隣接するもの同士で架橋していてもよい。]

- [3] 前記MがIrである請求項1又は2に記載の金属カルベン結合を有する遷移金属錯体化合物。
- [4] 前記 $R^6 \sim R^9$ の少なくとも一つが、 $-F$ 、 $-CF_3$ 又は $-CN$ である請求項1又は2に記載の金属カルベン結合を有する遷移金属錯体化合物。
- [5] 下記一般式(3)で表される請求項1に記載の金属カルベン結合を有する遷移金属錯体化合物。

[化5]



[一般式(3)において、Aは $L^{11}-(Z^{11})_d-L^{12}$ からなる架橋二座配位子群を、Bは $L^{13}-(Z^{12})_e-L^{14}$ からなる架橋二座配位子群を、また、Cは $L^{15}-(Z^{13})_f-L^{16}$ からなる架橋二座配位子群を示す。 $L^{11}-$ 、 $L^{13}-$ 及び $L^{15}-$ は、それぞれIr(イリジウム)への共有結合($L^{11}-\text{Ir}$ 、 $L^{13}-\text{Ir}$ 及び $L^{15}-\text{Ir}$)を示し、 $L^{12}\rightarrow$ 、 $L^{14}\rightarrow$ 及び $L^{16}\rightarrow$ は、それぞれIrへの配位結合($L^{12}\rightarrow\text{Ir}$ 、 $L^{14}\rightarrow\text{Ir}$ 及び $L^{16}\rightarrow\text{Ir}$)を示す。

X^1 は、置換基を有しても良い R^1C (Cは炭素原子、 R^1 は前記と同じ)、 $R^1\text{Si}$ (Siはケイ素原子、 R^1 は前記と同じ)、窒素、又はリン原子である。

Y^1 は X^1 とA、 Y^2 は X^1 とB、 Y^3 は X^1 とCを結合する架橋基を示し、 Y^1 は L^{11} 、 L^{12} 又は Z^{11} 、 Y^2 は L^{13} 、 L^{14} 又は Z^{12} 、 Y^3 は L^{15} 、 L^{16} 又は Z^{13} と結合している。 Y^1 、 Y^2 及び Y^3 は、それぞれ独立に、水素原子、炭素原子、ケイ素原子、窒素原子、硫黄原子、酸素原子、リン原子及びホウ素原子の群から選ばれる原子から構成される化合物の2価の残基であり、置換基を有していてもよい。 a 、 b 及び c は、それぞれ独立に0~10の整数を示し、 a 、 b 又は c が複数のときは、複数ある Y^1 、 Y^2 又は Y^3 は、それぞれ同じでも異なってもよい。

Z^{11} は L^{11} と L^{12} 、 Z^{12} は L^{13} と L^{14} 、 Z^{13} は L^{15} と L^{16} を結合する架橋基を示し、 Z^{11} 、 Z^{12} 及び Z^{13} は、それぞれ独立に、水素原子、炭素原子、ケイ素原子、窒素原子、硫黄原子、酸素原子、リン原子及びホウ素原子の群から選ばれる原子から構成される化合物の2価の残基であり、置換基を有していてもよい。 Z^{11} が Y^1 と直接結合した場合、 Z^{12} が Y^2

と直接結合した場合、又は Z^{13} が Y^3 と直接結合した場合、 Z^{11} 、 Z^{12} 及び Z^{13} は、それぞれ相当する3価の基となる。d、e及びfは、それぞれ独立に0～10の整数を示し、d、e又はfが複数のときは、複数ある Z^{11} 、 Z^{12} 又は Z^{13} は、それぞれ同じでも異なってもよい。

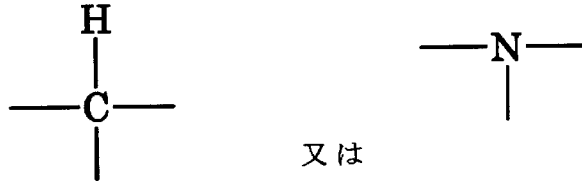
L^{11} 、 L^{13} 及び L^{15} は、それぞれ独立に、置換基を有してもよい核炭素数6～30の2価の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核原子数3～30の2価の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1～30の2価のカルボキシル含有基、置換基を有してもよい2価のアミノ基あるいは水酸基含有炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3～50のシクロアルキレン基、置換基を有してもよい炭素数1～30のアルキレン基、置換基を有してもよい炭素数2～30のアルケニレン基、置換基を有してもよい炭素数7～40のアラルキレン基であり、 L^{11} が Y^1 と直接結合した場合、 L^{13} が Y^2 と直接結合した場合、又は L^{15} が Y^3 と直接結合した場合は、 L^{11} 、 L^{13} 及び L^{15} は、それぞれ相当する3価の基となる。

L^{12} 、 L^{14} 及び L^{16} は、それぞれ独立に、置換基を有してもよい1価のジアゾール又はジアゾール-2-イリデン基(カルベン錯体)であり、 L^{12} が Y^1 と直接結合した場合、 L^{14} が Y^2 と直接結合した場合、あるいは L^{16} が Y^3 と直接結合した場合は、 L^{12} 、 L^{14} 及び L^{16} は、それぞれ相当する2価の基となる。]

- [6] 前記 L^{11} 、 L^{13} 及び L^{15} の少なくとも一つが、 $-F$ 、 $-CF_3$ 又は $-CN$ を置換基にもつ、核炭素数6～30の2価もしくは3価の芳香族炭化水素基、核原子数3～30の2価の複素環基、炭素数1～30の2価のカルボキシル含有基、2価のアミノ基もしくは水酸基含有炭化水素基、核炭素数3～50のシクロアルキレン基、炭素数1～30のアルキレン基、炭素数2～30のアルケニレン基、又は炭素数7～40のアラルキレン基である請求項5に記載の金属カルベン結合を有する遷移金属錯体化合物。

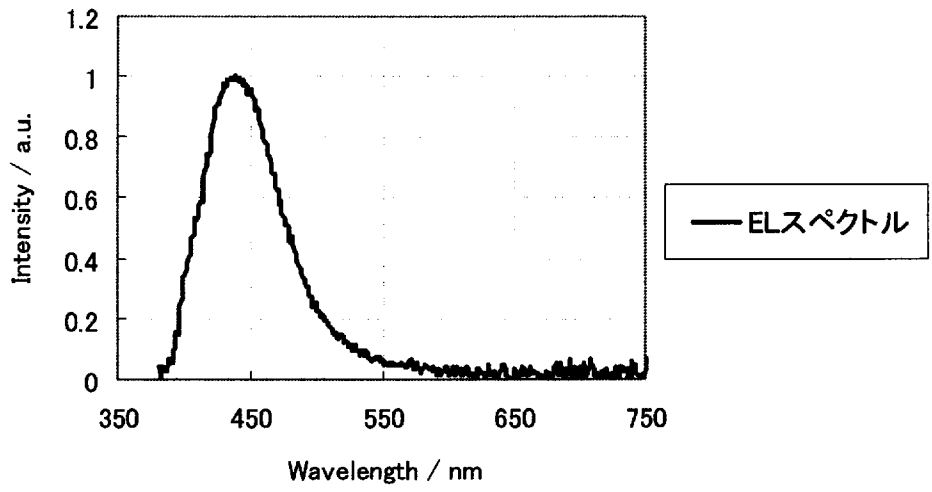
- [7] 架橋基 X^1 が、下記の構造からなる請求項5に記載の遷移金属錯体化合物。

[化6]

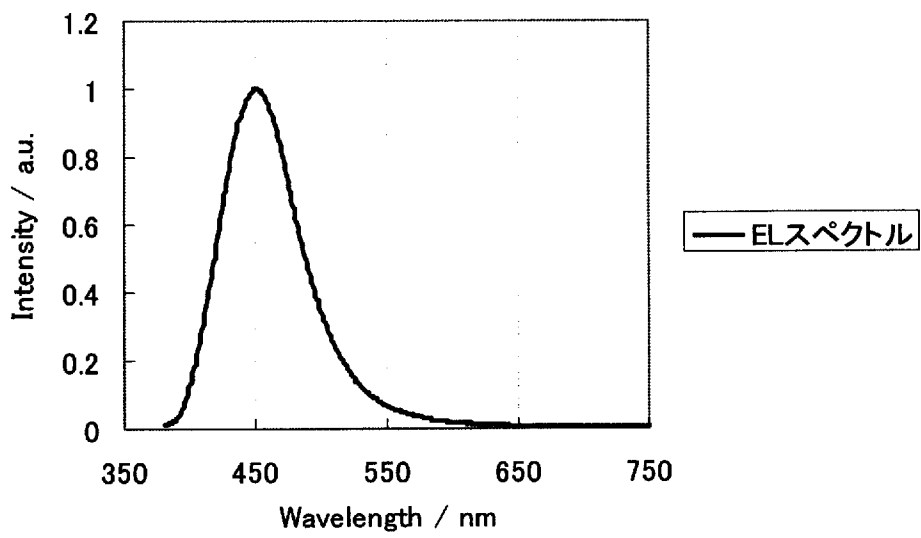


- [8] 陽極と陰極間に少なくとも発光層を有する一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、請求項1、2又は5に記載の遷移金属錯体化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [9] 前記発光層が、前記遷移金属錯体化合物を発光材料として含有する請求項8に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [10] 前記発光層が、前記遷移金属錯体化合物をドーパントとして含有する請求項8に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [11] 前記発光層と陰極との間に電子注入層及び／又は電子輸送層を有し、該電子注入層及び／又は電子輸送層が π 電子欠乏性含窒素ヘテロ環誘導体を主成分として含有する請求項8に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [12] 陰極と前記有機薄膜層との界面領域に、還元性ドーパントが添加されている請求項8に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[図1]



[図2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/050979

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER C07F15/00(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) C07F15/00, C09K11/06, H01L51/50		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2008 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2008 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2008		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	WO 2005/019373 A2 (BASF AG.), 03 March, 2005 (03.03.05), Claim 16; page 3, lines 31 to 38; Ir-complexes (5) to (8) on page 50 to 55 & US 2006/0258043 A1 & EP 001658349 A & DE 010338550 A	1, 3, 8-9 10-12
X Y	WO 2006/106842 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 12 October, 2006 (12.10.06), Claims 7 to 8, 13 to 17; examples (Family: none)	1-4, 8-12 9-12
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> 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 18 March, 2008 (18.03.08)		Date of mailing of the international search report 25 March, 2008 (25.03.08)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer
Facsimile No.		Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/050979

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	WO 2005/113704 A2 (THE UNIVERSITY OF SOUTHERN CALIFORNIA), 01 December, 2005 (01.12.05), Claims; Par. Nos. [0202], [0208], [0211], [0232]; examples 11, 13, 14 & US 2005/0260444 A1 & US 2005/0260445 A1 & US 2005/0260446 A1 & US 2005/0258742 A1 & US 2005/0260447 A1 & US 2005/0260448 A1 & US 2005/0258433 A1 & US 2006/0154106 A1 & US 2005/0260449 A1 & US 2005/0260441 A1 & US 2006/0024522 A1	1-8 9-12
P,X	WO 2007/018067 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 15 February, 2007 (15.02.07), Full descriptions (Family: none)	1-12
P,A	WO 2007/086505 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 02 August, 2007 (02.08.07), Claims; examples (Family: none)	1-12

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. C07F15/00(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. C07F15/00, C09K11/06, H01L51/50		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 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)		
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
X	WO 2005/019373 A2 (BASF AKTIENGESELLSCHAFT) 2005.03.03, 請求の範囲 16, 3頁 31~38行, 50~55頁の Ir 錯体(5)~(8) & US 2006/0258043 A1 & EP 001658349 A & DE 010338550 A	1, 3, 8-9
Y		10-12
X	WO 2006/106842 A1 (出光興産株式会社) 2006.10.12, 請求の範囲 7-8, 13-17, 実施例 (ファミリーなし)	1-4, 8-12
Y		9-12
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列举されている。 <input type="checkbox"/> 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 18.03.2008	国際調査報告の発送日 25.03.2008	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 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) 関 美祝 電話番号 03-3581-1101 内線 3443	4H 9045

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリ*	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
X	WO 2005/113704 A2 (THE UNIVERSITY OF SOUTHERN CALIFORNIA) 2005. 12. 01,	1-8
Y	請求の範囲, 段落[0202], [0208], [0211], [0232], 実施例 11, 13, 14 & US 2005/0260444 A1 & US 2005/0260445 A1 & US 2005/0260446 A1 & US 2005/0258742 A1 & US 2005/0260447 A1 & US 2005/0260448 A1 & US 2005/0258433 A1 & US 2006/0154106 A1 & US 2005/0260449 A1 & US 2005/0260441 A1 & US 2006/0024522 A1	9-12
P, X	WO 2007/018067 A1 (出光興産株式会社) 2007. 02. 15, 明細書全文 (ファミリーなし)	1-12
P, A	WO 2007/086505 A1 (出光興産株式会社) 2007. 08. 02, 特許請求の範囲, 実施例 (ファミリーなし)	1-12