

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2010-135818

(P2010-135818A)

(43) 公開日 平成22年6月17日 (2010.6.17)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
H01L 51/50 (2006.01)	H05B 33/14 B	3K107
C09K 11/06 (2006.01)	C09K 11/06 660	4C063
C07F 15/00 (2006.01)	C07F 15/00 CSPF	4H050
C07D 401/14 (2006.01)	C07D 401/14	

審査請求 未請求 請求項の数 15 O L (全 108 頁)

(21) 出願番号	特願2010-7524 (P2010-7524)	(71) 出願人	306037311 富士フイルム株式会社
(22) 出願日	平成22年1月15日 (2010.1.15)		東京都港区西麻布2丁目26番30号
(62) 分割の表示	特願2008-310220 (P2008-310220) の分割	(74) 代理人	100115107 弁理士 高松 猛
原出願日	平成20年12月4日 (2008.12.4)	(74) 代理人	100132986 弁理士 矢澤 清純
(31) 優先権主張番号	特願2008-111799 (P2008-111799)	(72) 発明者	邑上 健 神奈川県南足柄市中沼210番地 富士フイルム株式会社内
(32) 優先日	平成20年4月22日 (2008.4.22)	(72) 発明者	伊勢 俊大 神奈川県足柄上郡開成町牛島577番地 富士フイルム株式会社内
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		

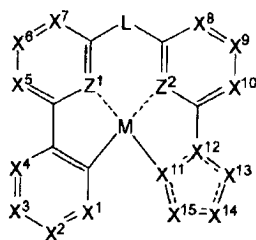
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機電界発光素子並びに新規な白金錯体化合物及びその配位子となり得る新規化合物

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 高輝度での耐久性に優れた有機電界発光素子を提供。

【解決手段】 下記一般式(1)で表される化合物を有機層の少なくともいずれかの層に含有する有機電界発光素子。一般式(1)



(1)

式中、 X^1 、 $\sim X^{12}$ は、炭素原子又は窒素原子を表し、 $X^{13} \sim X^{15}$ は、それぞれ独立に、炭素原子、窒素原子、酸素原子、又は硫黄原子を表し、Lは単結合又は2価の連結基を表す。Mは2価の金属イオンを表す。

【選択図】 なし

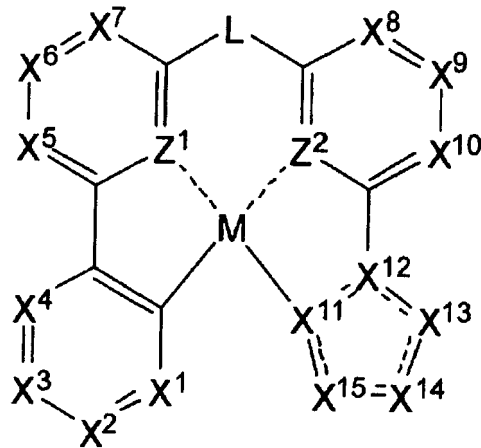
【特許請求の範囲】

【請求項 1】

一対の電極間に、少なくとも発光層を含む有機層を有する有機電界発光素子であって、下記一般式（1）で表される化合物を前記有機層の少なくともいずれかの層に含有することを特徴とする有機電界発光素子。

一般式（1）

【化 1】



(1)

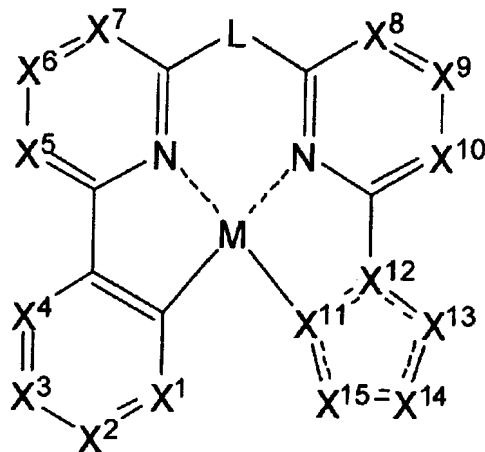
式中、 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 のうち、いずれか 1 つ以上は、窒素原子を表す。 X^5 、 X^6 、 X^7 、 X^8 、 X^9 及び X^{10} は、それぞれ独立に炭素原子又は窒素原子を表す。 X^{11} 、 X^{12} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表し、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} は、それぞれ独立に、炭素原子、窒素原子、酸素原子、又は硫黄原子を表し、 X^{11} 、 X^{12} 、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} により表される 5 員環骨格に含まれる窒素原子の数は、2 以下である。 Z^1 、 Z^2 は、それぞれ独立に窒素原子又は燐原子を表す。 L は単結合又は 2 価の連結基を表す。 M は 2 価の金属イオンを表す。

【請求項 2】

前記一般式（1）で表される化合物が、下記一般式（2）で表される化合物であることを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子。

一般式（2）

【化 2】



(2)

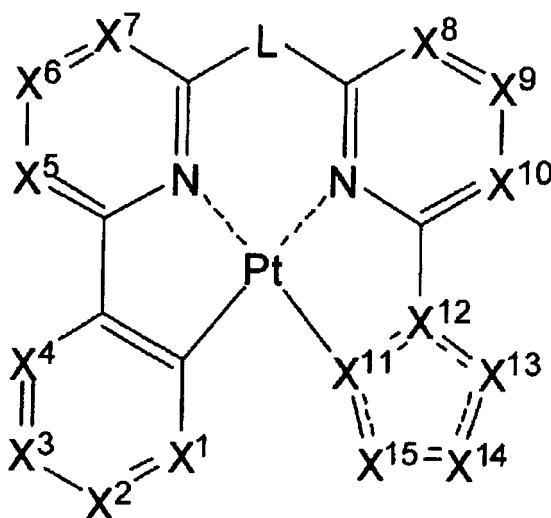
式中、 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 のうち、いずれか 1 つ以上は、窒素原子を表す。 X^5 、 X^6 、 X^7 、 X^8 、 X^9 及び X^{10} は、それぞれ独立に炭素原子又は窒素原子を表す。 X^{11} 、 X^{12} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表し、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} は、それぞれ独立に、炭素原子、窒素原子、酸素原子、又は硫黄原子を表し、 X^{11} 、 X^{12} 、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} により形成される 5 員環骨格に含まれる窒素原子の数は、2 以下である。L は単結合又は 2 価の連結基を表す。M は 2 価の金属イオンを表す。

【請求項 3】

前記一般式 (2) で表される化合物が、下記一般式 (3) で表される化合物であることを特徴とする請求項 2 に記載の有機電界発光素子。

一般式 (3)

【化 3】



(3)

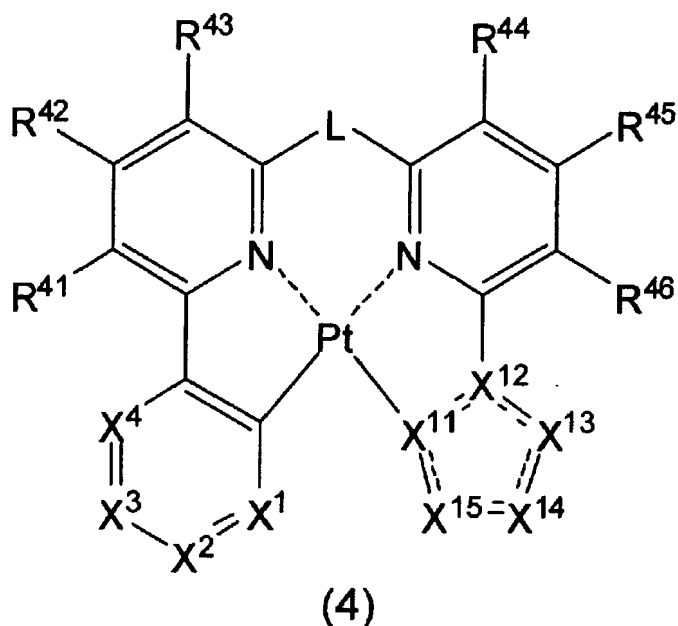
式中、 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 のうち、いずれか 1 つ以上は、窒素原子を表す。 X^5 、 X^6 、 X^7 、 X^8 、 X^9 及び X^{10} は、それぞれ独立に炭素原子又は窒素原子を表す。 X^{11} 、 X^{12} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表し、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} は、それぞれ独立に、炭素原子、窒素原子、酸素原子、又は硫黄原子を表し、 X^{11} 、 X^{12} 、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} により表される 5 員環骨格に含まれる窒素原子の数は、2 以下である。L は単結合又は 2 価の連結基を表す。

【請求項 4】

前記一般式 (3) で表される化合物が、下記一般式 (4) で表される化合物であることを特徴とする請求項 3 に記載の有機電界発光素子。

一般式 (4)

【化 4】



10

式中、 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。
 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 のうち、いずれか 1 つ以上は、窒素原子を表す。 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 及び R^{46} は、それぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。
 X^{11} 、 X^{12} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表し、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} は、それぞれ独立に、炭素原子、窒素原子、酸素原子、又は硫黄原子を表し、 X^{11} 、 X^{12} 、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} により表される 5 員環骨格に含まれる窒素原子の数は、2 以下である。 L は単結合又は 2 価の連結基を表す。

20

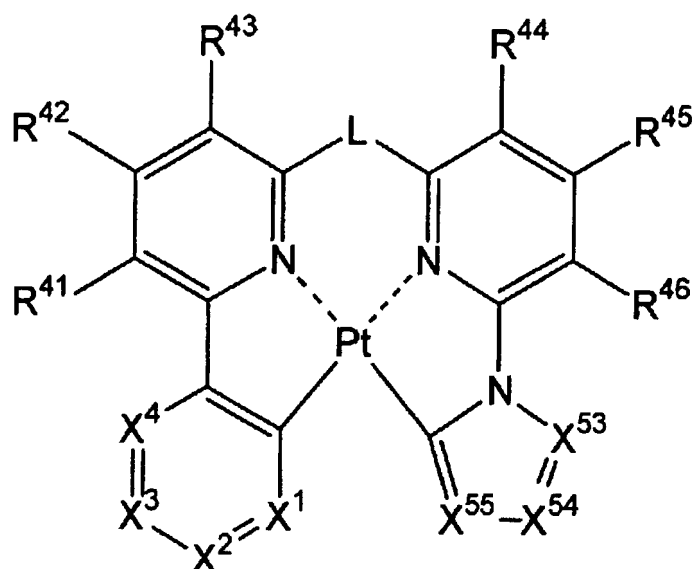
【請求項 5】

前記一般式 (4) で表される化合物が、下記一般式 (4a-1) で表される化合物であることを特徴とする請求項 4 に記載の有機電界発光素子。

一般式 (4a-1)

30

【化 5】



(4a-1)

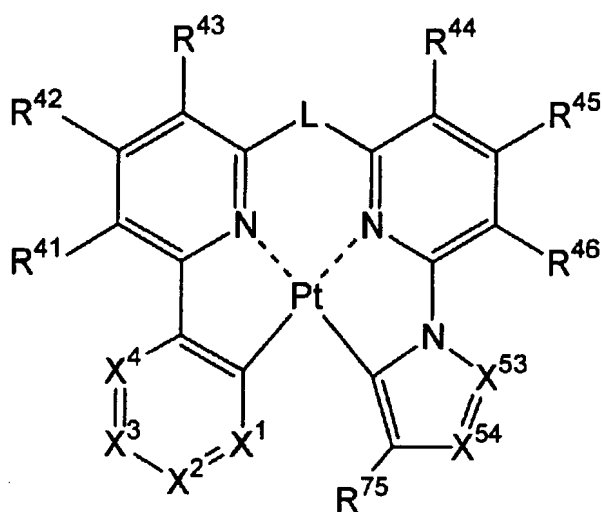
式中、 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 のうち、いずれか 1 つ以上は、窒素原子を表す。 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 及び R^{46} は、それぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 X^{53} 、 X^{54} 及び X^{55} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表し、 X^{53} 、 X^{54} 及び X^{55} を含有する 5 員環骨格に含まれる窒素原子の数は、1 又は 2 である。L は単結合又は 2 価の連結基を表す。

【請求項 6】

前記一般式 (4a-1) で表される化合物が、下記一般式 (4a-2) で表される化合物であることを特徴とする請求項 5 に記載の有機電界発光素子。

一般式 (4a-2)

【化 6】



(4a-2)

式中、 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。

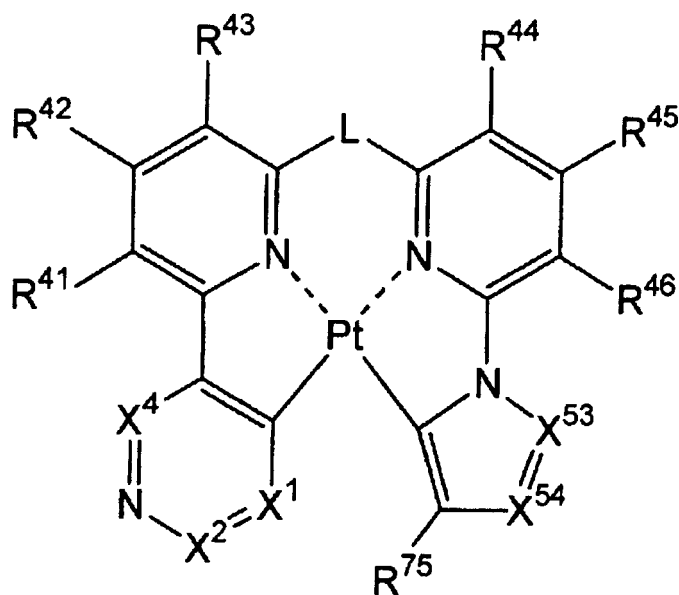
X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 のうち、いずれか 1 つ以上は、窒素原子を表す。 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 及び R^{46} は、それぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 X^{53} 及び X^{54} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表し、 X^{53} 及び X^{54} を含有する 5 員環骨格に含まれる窒素原子の数は、1 又は 2 である。 R^{75} は、水素原子又は置換基を表す。 L は単結合若しくは 2 価の連結基を表す。

【請求項 7】

前記一般式 (4a-2) で表される化合物が、下記一般式 (4a-3) で表される化合物であることを特徴とする請求項 6 に記載の有機電界発光素子。

一般式 (4a-3)

【化 7】



(4a-3)

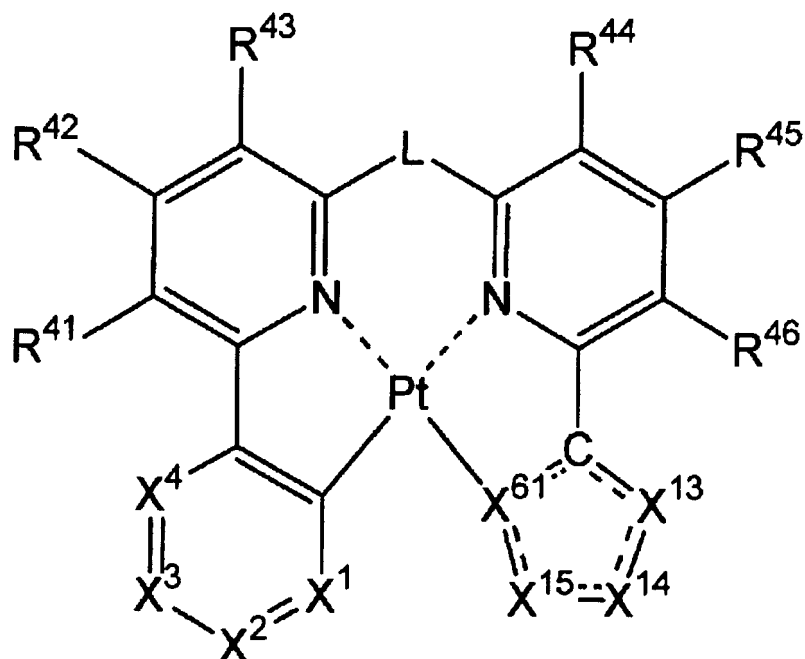
式中、 X^1 、 X^2 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 及び R^{46} は、それぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 X^{53} 及び X^{54} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表し、 X^{53} 及び X^{54} を含有する 5 員環骨格に含まれる窒素原子の数は、1 又は 2 である。 R^{75} は、水素原子又は置換基を表す。 L は単結合又は 2 価の連結基を表す。

【請求項 8】

前記一般式 (4) で表される化合物が、下記一般式 (4b-1) で表される化合物であることを特徴とする請求項 4 に記載の有機電界発光素子。

一般式 (4b-1)

【化 8】



(4b-1)

式中、 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 のうち、いずれか 1 つ以上は、窒素原子を表す。 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 及び R^{46} は、それぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 X^{61} は、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} は、それぞれ独立に、炭素原子、窒素原子、酸素原子、又は硫黄原子を表し、 X^{61} 、炭素原子、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} により表される 5 員環骨格に含まれる窒素原子の数は、2 以下である。 L は単結合又は 2 価の連結基を表す。

【請求項 9】

前記一般式 (4b-1) で表される化合物が、下記一般式 (4b-2) で表される化合物であることを特徴とする請求項 8 に記載の有機電界発光素子。

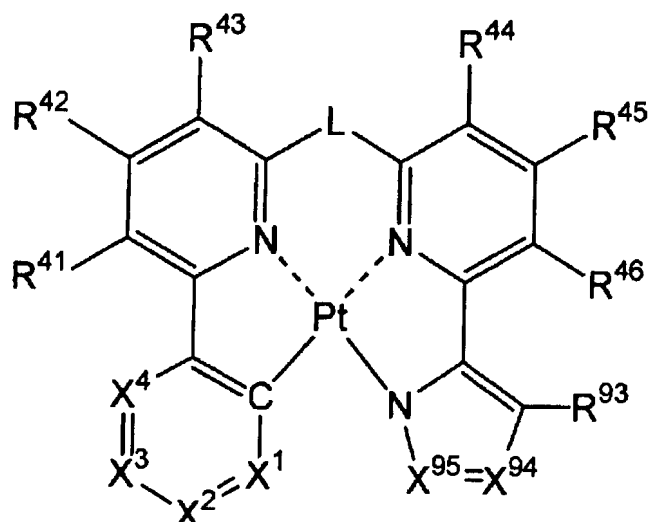
一般式 (4b-2)

10

20

30

【化 9】



10

(4b-2)

式中、 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 のうち、いずれか 1 つ以上は、窒素原子を表す。 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 及び R^{46} は、それぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 X^{94} 及び X^{95} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表し、 X^{94} 及び X^{95} の少なくともいずれか一方は、炭素原子を表す。 R^{93} は、水素原子又は置換基を表す。 L は単結合又は 2 価の連結基を表す。

20

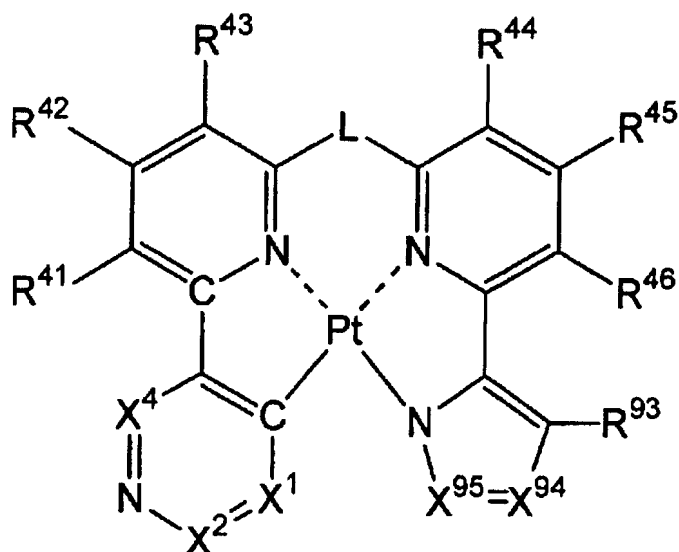
【請求項 10】

前記一般式 (4b-2) で表される化合物が、下記一般式 (4b-3) で表される化合物であることを特徴とする請求項 9 に記載の有機電界発光素子。

一般式 (4b-3)

【化 10】

30



40

(4b-3)

式中、 X^1 、 X^2 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^1 、

50

X^2 及び X^4 のうち、いずれか 1 つ以上は、窒素原子を表す。 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 及び R^{46} は、それぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 X^{94} 及び X^{95} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表し、 X^{94} 及び X^{95} の少なくともいずれか一方は、炭素原子を表す。 R^{93} は、水素原子又は置換基を表す。 L は単結合又は 2 価の連結基を表す。

【請求項 11】

前記一般式 (1) ~ (4)、(4a-1) ~ (4a-3)、(4b-1) ~ (4b-3) で表される化合物の少なくとも 1 種を前記発光層に含有することを特徴とする請求項 1 ~ 10 のいずれか 1 項に記載の有機電界発光素子。

【請求項 12】

重水素原子を少なくとも 1 つ有する材料を、前記有機層の少なくともいずれかの層に含有することを特徴とする請求項 1 ~ 11 のいずれか 1 項に記載の有機電界発光素子。

【請求項 13】

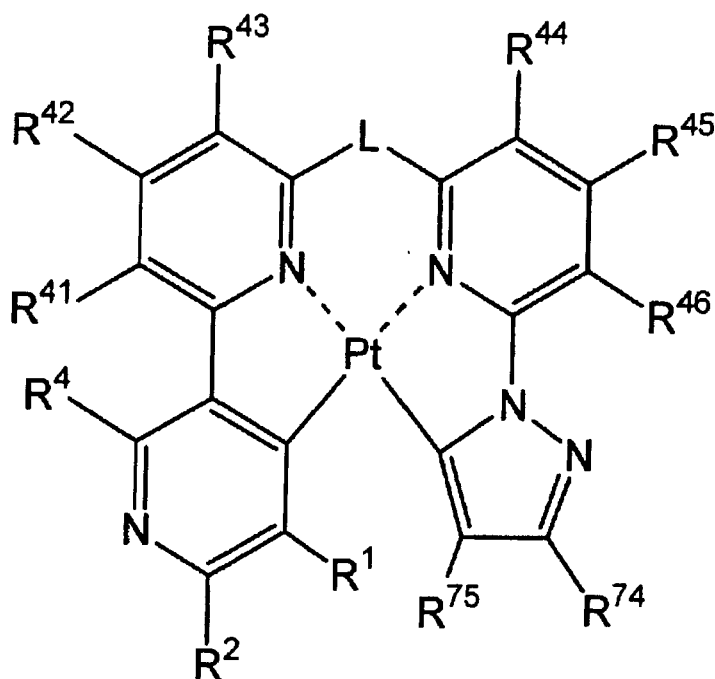
前記重水素原子を少なくとも 1 つ有する材料が、重水素原子を少なくとも 1 つ有する、カルバゾール骨格又はインドール骨格のいずれかを含む材料であることを特徴とする請求項 12 に記載の有機電界発光素子。

【請求項 14】

下記一般式 (4a-4) で表される化合物。

一般式 (4a-4)

【化 11】



(4a-4)

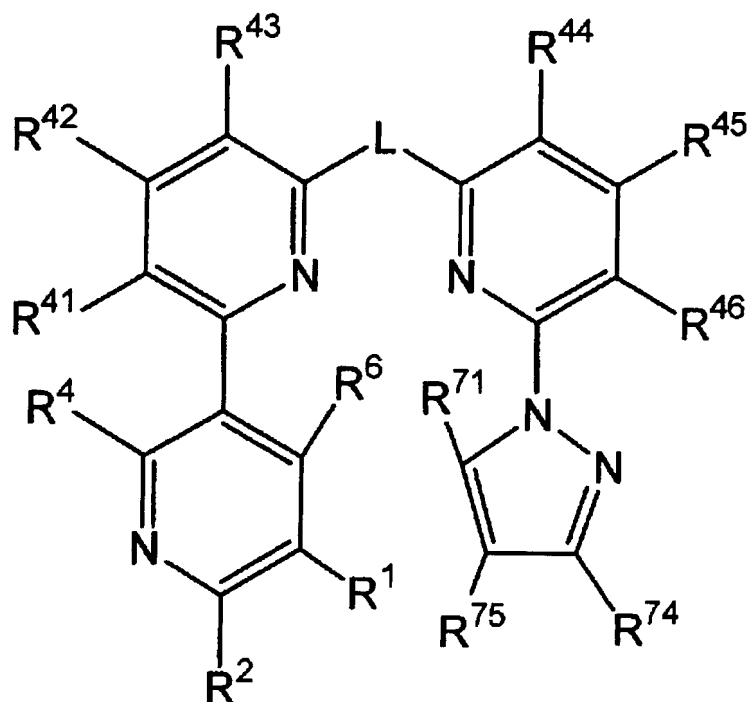
式中、 R^1 、 R^2 、 R^4 、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 、 R^{74} 、及び R^{75} は、それぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 L は単結合又は 2 価の連結基を表す。

【請求項 15】

下記一般式 (4a-4') で表される化合物。

一般式 (4a-4')

【化 1 2】



(4a-4')

10

20

式中、 R^1 、 R^2 、 R^4 、 R^6 、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 、 R^{71} 、 R^{74} 、及び R^{75} は、それぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。Lは単結合又は2価の連結基を表す。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、有機電界発光素子（以下、「素子」、「有機EL素子」ともいう）に関し、特に高輝度での耐久性に優れた有機電界発光素子に関する。

30

【背景技術】

【0002】

有機電界発光素子（有機EL素子）は、低電圧駆動で高輝度の発光が得られることから、近年活発な研究開発が行われている。一般に有機EL素子は、発光層を含む有機層及び該層を挟んだ一对の電極から構成されており、陰極から注入された電子と陽極から注入された正孔が発光層において再結合し、生成した励起子のエネルギーを発光に利用するものである。

【0003】

近年、燐光発光材料を用いることにより、素子の高効率化が進んでいる。燐光発光材料としてはイリジウム錯体や白金錯体などが知られている（例えば、特許文献1参照）。

40

4座配位子を有する白金錯体を用いることにより、有機EL素子の発光効率、耐久性の向上を向上させる技術が知られている（例えば、特許文献2参照）。このような白金錯体の中でも、ピリジルピリジン骨格を有する錯体は、フェニルピリジン骨格を有する錯体に対して、発光波長の短波化が可能であり、特に水色～青色発光材料として有望であるが、耐久性に優れた発光材料は報告されていない。

また、ピリジルピリジン骨格を有する発光材料及びそれを用いた有機EL素子が知られている（特許文献3参照）。特許文献3には、発光輝度が高く、発光効率が高く、かつ耐久性が高い有機EL素子が得られることが記載されている。

【先行技術文献】

50

【特許文献】

【0004】

【特許文献1】特開2005-220136号公報

【特許文献2】国際公開第04/108857号

【特許文献3】特開2006-261623号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

しかしながら、特に高輝度時の使用において、高効率と耐久性を両立する素子の開発に至っていない。有機EL素子のディスプレイ、照明機器への展開を考えた場合、高輝度での利用が必要となる為、特に高輝度での耐久性に優れた発光材料の開発が望まれている。

本発明の目的は、高輝度での使用において耐久性に優れた有機電界発光素子の提供することである。

また、本発明の別の目的は、高輝度での使用において優れた耐久性を実現し得る発光材料を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0006】

本発明者らは、上記課題を解決すべく検討した結果、含窒素ヘテロ6員環の炭素原子で白金と結合を形成し、かつ、含有する窒素原子が2以下である5員環の炭素原子もしくは窒素原子で白金と結合することを特徴とする金属錯体を見出し、更にこの金属錯体を有機層に添加することにより、公知の発光材料と比較して、有機EL素子の高輝度での使用において耐久性が向上することを見出した。

更に、有機層に重水素原子を少なくとも1つ有する材料を使用することにより、耐久性がより向上することを見出した。

すなわち、上記課題は以下の手段により解決することができた。

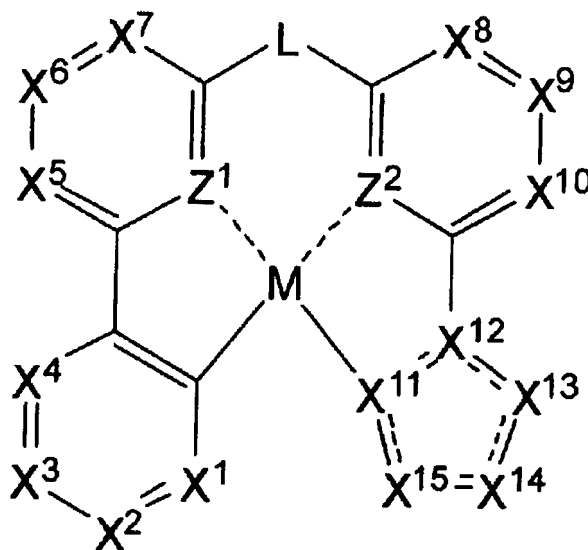
【0007】

〔1〕一対の電極間に、少なくとも発光層を含む有機層を有する有機電界発光素子であって、下記一般式(1)で表される化合物を前記有機層の少なくともいずれかの層に含有することを特徴とする有機電界発光素子。

一般式(1)

【0008】

【化1】



(1)

【0009】

式中、 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 のうち、いずれか1つ以上は、窒素原子を表す。 X^5 、 X^6 、 X^7 、 X^8 、 X^9 及び X^{10} は、それぞれ独立に炭素原子又は窒素原子を表す。 X^{11} 、 X^{12} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表し、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} は、それぞれ独立に、炭素原子、窒素原子、酸素原子、又は硫黄原子を表し、 X^{11} 、 X^{12} 、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} により表される5員環骨格に含まれる窒素原子の数は、2以下である。 Z^1 、 Z^2 は、それぞれ独立に窒素原子又は燐原子を表す。Lは単結合又は2価の連結基を表す。Mは2価の金属イオンを表す。

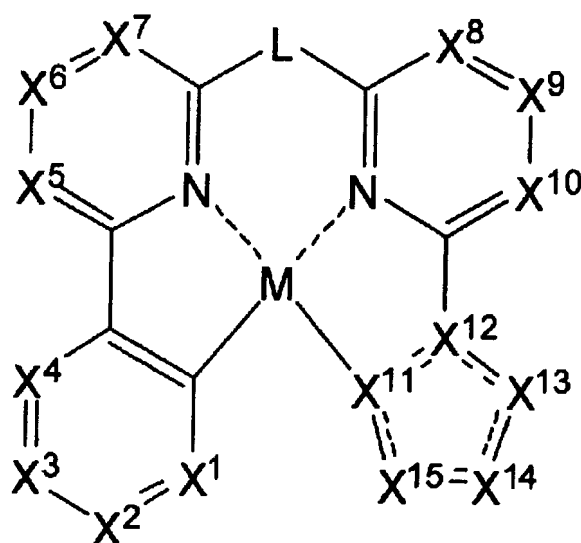
【0010】

〔2〕前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(2)で表される化合物であることを特徴とする前記〔1〕に記載の有機電界発光素子。

一般式(2)

【0011】

【化2】



(2)

【0012】

式中、 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 のうち、いずれか1つ以上は、窒素原子を表す。 X^5 、 X^6 、 X^7 、 X^8 、 X^9 及び X^{10} は、それぞれ独立に炭素原子又は窒素原子を表す。 X^{11} 、 X^{12} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表し、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} は、それぞれ独立に、炭素原子、窒素原子、酸素原子、又は硫黄原子を表し、 X^{11} 、 X^{12} 、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} により形成される5員環骨格に含まれる窒素原子の数は、2以下である。Lは単結合又は2価の連結基を表す。Mは2価の金属イオンを表す。

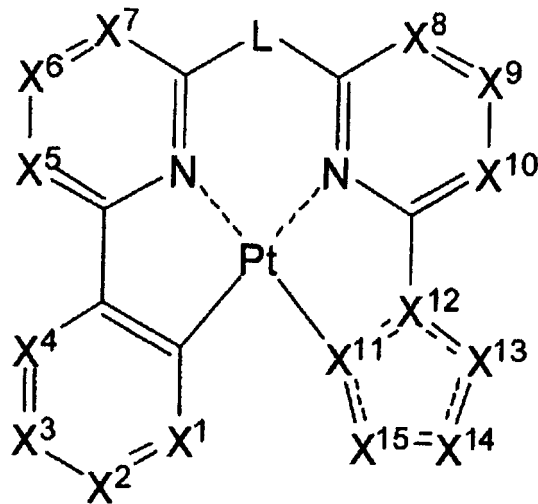
【0013】

〔3〕前記一般式(2)で表される化合物が、下記一般式(3)で表される化合物であることを特徴とする前記〔2〕に記載の有機電界発光素子。

一般式(3)

【0014】

【化 3】



(3)

【0015】

式中、 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 のうち、いずれか 1 つ以上は、窒素原子を表す。 X^5 、 X^6 、 X^7 、 X^8 、 X^9 及び X^{10} は、それぞれ独立に炭素原子又は窒素原子を表す。 X^{11} 、 X^{12} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表し、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} は、それぞれ独立に、炭素原子、窒素原子、酸素原子、又は硫黄原子を表し、 X^{11} 、 X^{12} 、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} により表される 5 員環骨格に含まれる窒素原子の数は、2 以下である。L は単結合又は 2 価の連結基を表す。

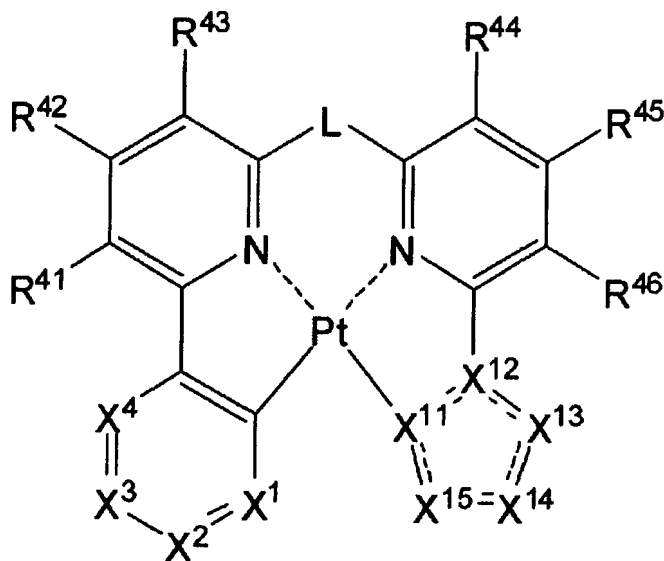
【0016】

〔4〕前記一般式 (3) で表される化合物が、下記一般式 (4) で表される化合物であることを特徴とする前記〔3〕に記載の有機電界発光素子。

一般式 (4)

【0017】

【化 4】



(4)

10

20

30

40

50

【0018】

式中、 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 のうち、いずれか1つ以上は、窒素原子を表す。 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 及び R^{46} は、それぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 X^{11} 、 X^{12} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表し、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} は、それぞれ独立に、炭素原子、窒素原子、酸素原子、又は硫黄原子を表し、 X^{11} 、 X^{12} 、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} により表される5員環骨格に含まれる窒素原子の数は、2以下である。Lは単結合又は2価の連結基を表す。

【0019】

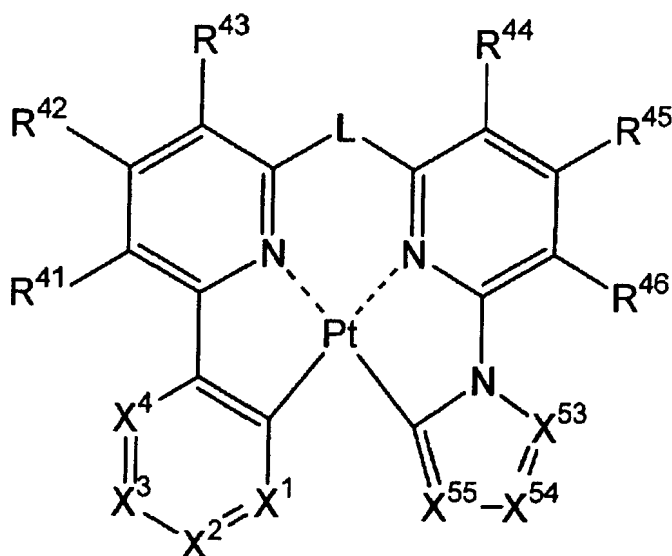
〔5〕前記一般式(4)で表される化合物が、下記一般式(4a-1)で表される化合物

10

であることを特徴とする前記〔4〕に記載の有機電界発光素子。

【0020】

【化5】



20

(4a-1)

【0021】

式中、 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 のうち、いずれか1つ以上は、窒素原子を表す。 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 及び R^{46} は、それぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 X^{53} 、 X^{54} 及び X^{55} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表し、 X^{53} 、 X^{54} 及び X^{55} を含有する5員環骨格に含まれる窒素原子の数は、1又は2である。Lは単結合又は2価の連結基を表す。

40

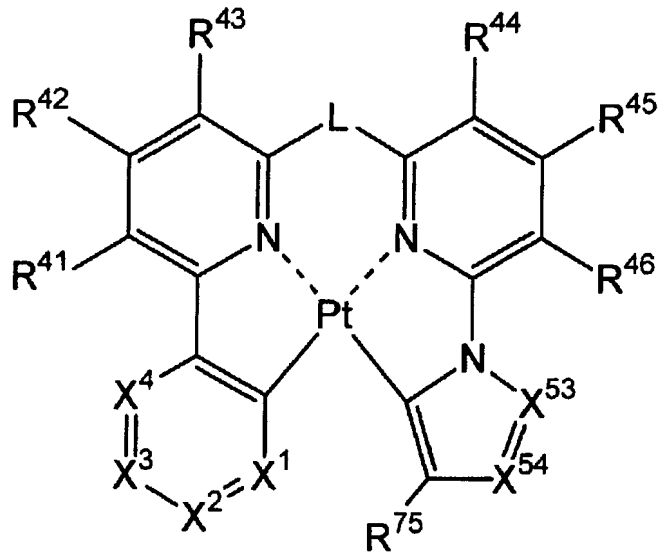
【0022】

〔6〕前記一般式(4a-1)で表される化合物が、下記一般式(4a-2)で表される化合物であることを特徴とする前記〔5〕に記載の有機電界発光素子。

一般式(4a-2)

【0023】

【化 6】



(4a-2)

【0024】

式中、 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 のうち、いずれか 1 つ以上は、窒素原子を表す。 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 及び R^{46} は、それぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 X^{53} 及び X^{54} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表し、 X^{53} 及び X^{54} を含有する 5 員環骨格に含まれる窒素原子の数は、1 又は 2 である。 R^{75} は、水素原子又は置換基を表す。L は単結合若しくは 2 価の連結基を表す。

【0025】

〔7〕前記一般式 (4a-2) で表される化合物が、下記一般式 (4a-3) で表される化合物であることを特徴とする前記〔6〕に記載の有機電界発光素子。

一般式 (4a-3)

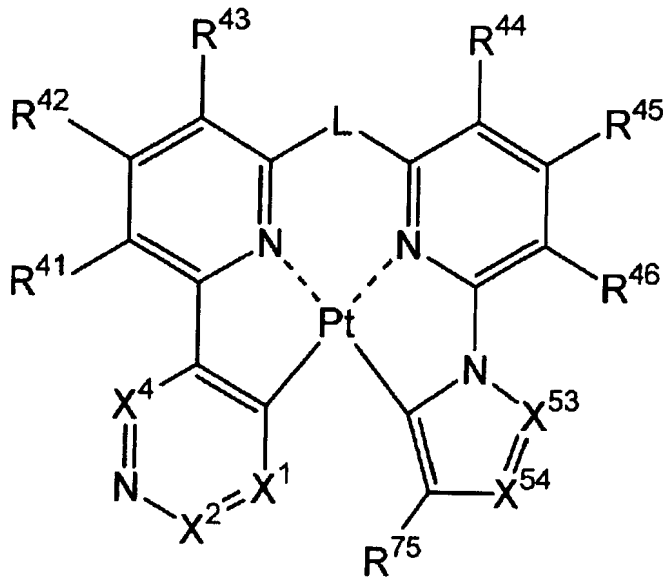
【0026】

10

20

30

【化 7】



10

(4a-3)

20

【0027】

式中、 X^1 、 X^2 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 及び R^{46} は、それぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 X^{53} 及び X^{54} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表し、 X^{53} 及び X^{54} を含有する 5 員環骨格に含まれる窒素原子の数は、1 又は 2 である。 R^{75} は、水素原子又は置換基を表す。L は単結合又は 2 価の連結基を表す。

【0028】

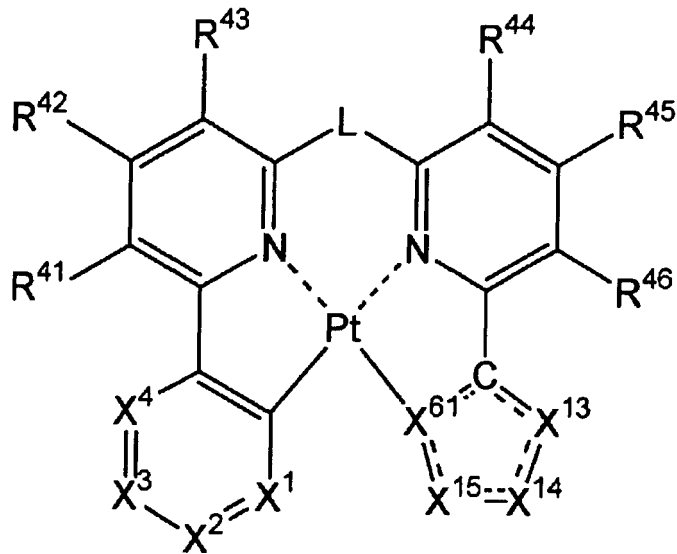
〔8〕前記一般式 (4) で表される化合物が、下記一般式 (4b-1) で表される化合物であることを特徴とする前記〔4〕に記載の有機電界発光素子。

30

一般式 (4b-1)

【0029】

【化 8】



10

(4b-1)

20

【0030】

式中、 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 のうち、いずれか 1 つ以上は、窒素原子を表す。 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 及び R^{46} は、それぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 X^{61} は、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} は、それぞれ独立に、炭素原子、窒素原子、酸素原子、又は硫黄原子を表し、 X^{61} 、炭素原子、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} により表される 5 員環骨格に含まれる窒素原子の数は、2 以下である。 L は単結合又は 2 価の連結基を表す。

【0031】

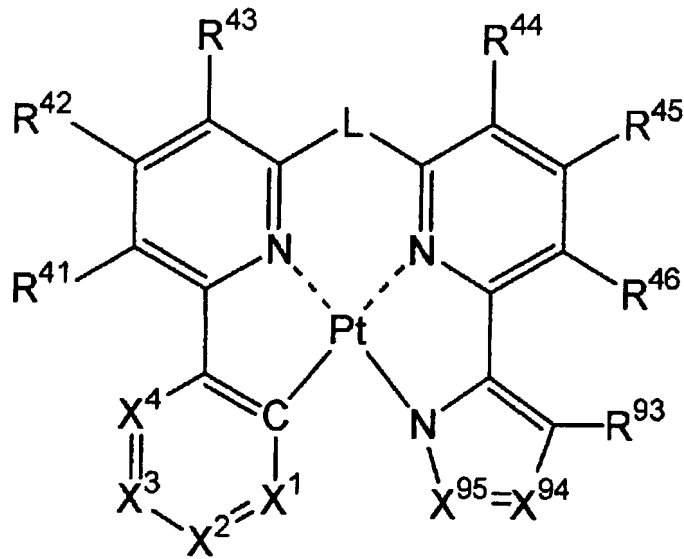
〔9〕前記一般式 (4b-1) で表される化合物が、下記一般式 (4b-2) で表される化合物であることを特徴とする前記〔8〕に記載の有機電界発光素子。

30

一般式 (4b-2)

【0032】

【化 9】



10

(4b-2)

20

【0033】

式中、 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 のうち、いずれか 1 つ以上は、窒素原子を表す。 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 及び R^{46} は、それぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 X^{94} 及び X^{95} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表し、 X^{94} 及び X^{95} の少なくともいずれか一方は、炭素原子を表す。 R^{93} は、水素原子又は置換基を表す。 L は単結合又は 2 価の連結基を表す。

【0034】

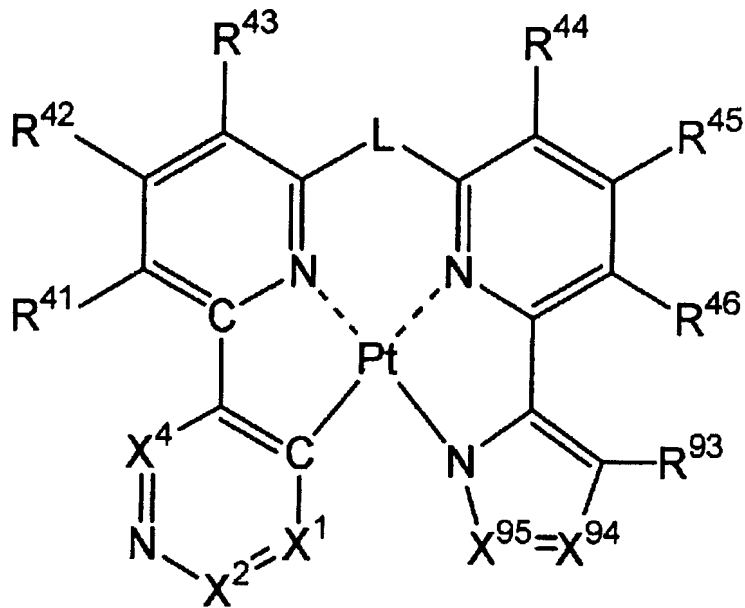
〔10〕前記一般式 (4b-2) で表される化合物が、下記一般式 (4b-3) で表される化合物であることを特徴とする前記〔9〕に記載の有機電界発光素子。

30

一般式 (4b-3)

【0035】

【化 1 0】



10

(4b-3)

20

【0036】

式中、 X^1 、 X^2 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^1 、 X^2 及び X^4 のうち、いずれか 1 つ以上は、窒素原子を表す。 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 及び R^{46} は、それぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 X^{94} 及び X^{95} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表し、 X^{94} 及び X^{95} の少なくともいずれか一方は、炭素原子を表す。 R^{93} は、水素原子又は置換基を表す。 L は単結合又は 2 価の連結基を表す。

【0037】

30

〔11〕前記一般式 (1) ~ (4)、(4a-1) ~ (4a-3)、(4b-1) ~ (4b-3) で表される化合物の少なくとも 1 種を前記発光層に含有することを特徴とする前記〔1〕~〔10〕のいずれか 1 項に記載の有機電界発光素子。

〔12〕重水素原子を少なくとも 1 つ有する材料を、前記有機層の少なくともいずれかの層に含有することを特徴とする前記〔1〕~〔11〕のいずれか 1 項に記載の有機電界発光素子。

〔13〕前記重水素原子を少なくとも 1 つ有する材料が、重水素原子を少なくとも 1 つ有する、カルバゾール骨格又はインドール骨格のいずれかを含む材料であることを特徴とする前記〔12〕に記載の有機電界発光素子。

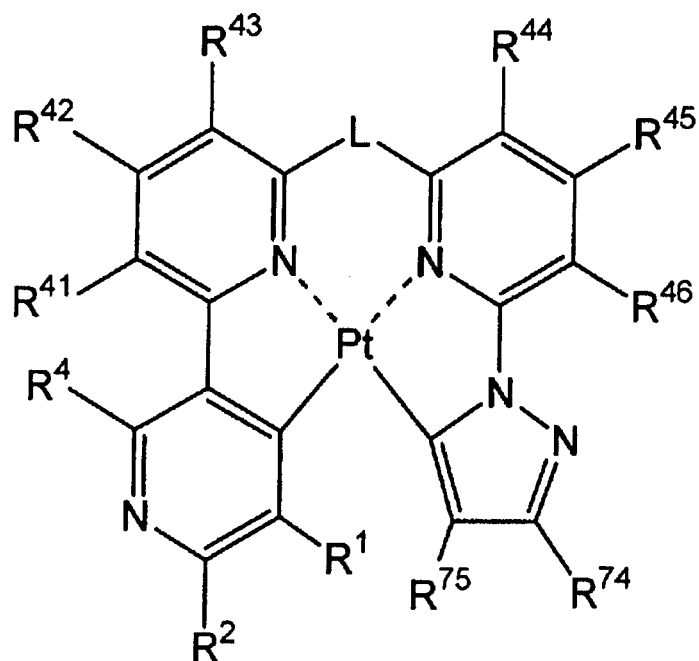
〔14〕下記一般式 (4a-4) で表される化合物。

40

一般式 (4a-4)

【0038】

【化 1 1】



(4a-4)

【 0 0 3 9 】

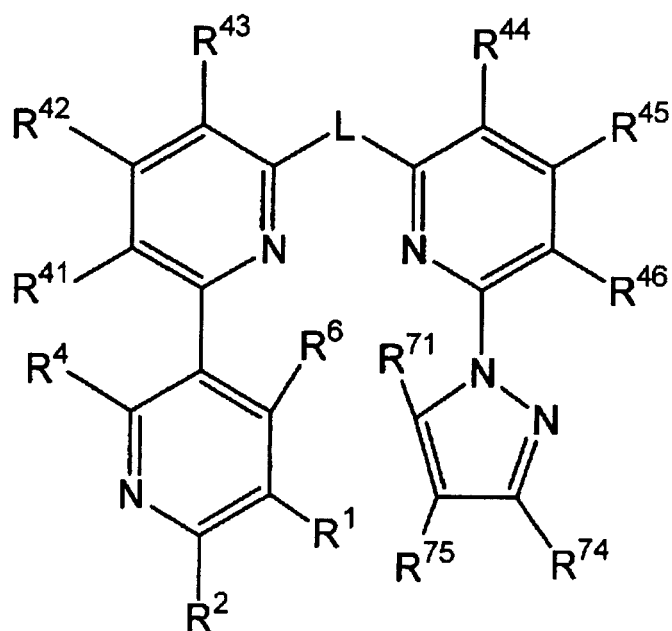
式中、 R^1 、 R^2 、 R^4 、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 、 R^{74} 、及び R^{75} は、それぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。L は単結合又は 2 価の連結基を表す。

〔 1 5 〕 下記一般式 (4a-4') で表される化合物。

一般式 (4a-4')

【 0 0 4 0 】

【化 1 2】



(4a-4')

10

20

30

40

50

【0041】

式中、 R^1 、 R^2 、 R^4 、 R^6 、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 、 R^{71} 、 R^{74} 、及び R^{75} は、それぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。Lは単結合又は2価の連結基を表す。

【発明の効果】

【0042】

本発明によれば、前記一般式(1)で表される化合物を有機層に含有することにより、特に高輝度での使用において耐久性の優れた有機電界発光素子を提供できる。

また、本発明に係る一般式(4a-4)で表される化合物及び一般式(4a-4')で表される化合物によれば、高輝度での使用において優れた耐久性を実現し得る発光材料を提供できる。

10

【発明を実施するための形態】

【0043】

以下、本発明に係る有機EL素子の好適な実施形態について説明する。

本明細書において置換基群Bとは以下のように定義される。

【0044】

(置換基群B)

アルキル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~10であり、例えばメチル、エチル、i s o-プロピル、t e r t-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、シクロヘキシルなどが挙げられる。)、アルケニル基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニルなどが挙げられる。)、アルキニル基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられる。)、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、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニル、p-メチルフェニル、ナフチル、アントラニルなどが挙げられる。)、アミノ基(好ましくは炭素数0~30、より好ましくは炭素数0~20、特に好ましくは炭素数0~10であり、例えばアミノ、メチルアミノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、ジベンジルアミノ、ジフェニルアミノ、ジトリルアミノなどが挙げられる。)、アルコキシ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~10であり、例えばメトキシ、エトキシ、ブトキシ、2-エチルヘキシロキシなどが挙げられる。)、アリーロキシ基(好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニロキシ、1-ナフチロキシ、2-ナフチロキシなどが挙げられる。)、ヘテロ環オキシ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばピリジロキシ、ピラジロキシ、ピリミジロキシ、キノリロキシなどが挙げられる。)、

20

30

【0045】

アシル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばアセチル、ベンゾイル、ホルミル、ピバロイルなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニル基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~12であり、例えばメトキシカルボニル、エトキシカルボニルなどが挙げられる。)、アリーロキシカルボニル基(好ましくは炭素数7~30、より好ましくは炭素数7~20、特に好ましくは炭素数7~12であり、例えばフェニロキシカルボニルなどが挙げられる。)、アシルオキシ基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばアセトキシ、ベンゾイルオキシなどが挙げられる。)、アシルアミノ基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばアセチルアミノ、ベンゾイルアミノなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニルア

40

50

ミノ基（好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～12であり、例えばメトキシカルボニルアミノなどが挙げられる。）、アリーロキシカルボニルアミノ基（好ましくは炭素数7～30、より好ましくは炭素数7～20、特に好ましくは炭素数7～12であり、例えばフェニルオキシカルボニルアミノなどが挙げられる。）、

【0046】

スルホニルアミノ基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメタンスルホニルアミノ、ベンゼンスルホニルアミノなどが挙げられる。）、スルファモイル基（好ましくは炭素数0～30、より好ましくは炭素数0～20、特に好ましくは炭素数0～12であり、例えばスルファモイル、メチルスルファモイル、ジメチルスルファモイル、フェニルスルファモイルなどが挙げられる。）、カルバモイル基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばカルバモイル、メチルカルバモイル、ジエチルカルバモイル、フェニルカルバモイルなどが挙げられる。）、アルキルチオ基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメチルチオ、エチルチオなどが挙げられる。）、アリールチオ基（好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、特に好ましくは炭素数6～12であり、例えばフェニルチオなどが挙げられる。）、ヘテロ環チオ基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばピリジルチオ、2-ベンズイミゾリルチオ、2-ベンズオキサゾリルチオ、2-ベンズチアゾリルチオなどが挙げられる。）、スルホニル基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメシル、トシルなどが挙げられる。）、

【0047】

スルフィニル基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメタンスルフィニル、ベンゼンスルフィニルなどが挙げられる。）、ウレイド基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばウレイド、メチルウレイド、フェニルウレイドなどが挙げられる。）、リン酸アミド基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばジエチルリン酸アミド、フェニルリン酸アミドなどが挙げられる。）、ヒドロキシ基、メルカプト基、ハロゲン原子（例えばフッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子）、シアノ基、スルホ基、カルボキシ基、ニトロ基、ヒドロキサム酸基、スルフィノ基、ヒドラジノ基、イミノ基、ヘテロ環（ヘテロアリール）基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～12であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子が挙げられ、具体的にはイミダゾリル、ピリジル、キノリル、フリル、チエニル、ペリリル、モルホリノ、ベンズオキサゾリル、ベンズイミダゾリル、ベンズチアゾリル、カルバゾリル基、アゼピニル基などが挙げられる。）、シリル基（好ましくは炭素数3～40、より好ましくは炭素数3～30、特に好ましくは炭素数3～24であり、例えばトリメチルシリル、トリフェニルシリルなどが挙げられる。）、シリルオキシ基（好ましくは炭素数3～40、より好ましくは炭素数3～30、特に好ましくは炭素数3～24であり、例えばトリメチルシリルオキシ、トリフェニルシリルオキシなどが挙げられる。）などが挙げられる。これらの置換基は更に置換されてもよく、更なる置換基としては、以上に説明した置換基群Bから選択される基を挙げることができる。

【0048】

本発明に係る有機EL素子は、一対の電極間に、少なくとも発光層を含む有機層を有するものである。前記有機層としては、発光層の他に正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層、正孔ブロック層、電子ブロック層、励起子ブロック層等を含んでいてもよい。各層は、それぞれ他の機能を兼備していてもよい。また、各層は複数の二次層に分かれていてもよい。

10

20

30

40

50

有機層の積層の態様としては、陽極側から、正孔輸送層、発光層、電子輸送層の順に積層されている態様が好ましい。更に、正孔輸送層と発光層との間、及び／又は、発光層と電子輸送層との間には、電荷ブロック層等を有していてもよい。陽極と正孔輸送層との間に、正孔注入層を有していてもよく、陰極と電子輸送層との間には、電子注入層を有していてもよい。

【0049】

前記有機層の少なくともいずれかの層は、前記一般式(1)～(4)、(4a-1)～(4a-4)、(4b-1)～(4b-3)のいずれかで表される特定構造の金属錯体(以下、これらを総称して「特定構造を有する金属錯体」という)を含有する。

前記特定構造を有する金属錯体は、その機能が限定されることはなく、発光材料、ホスト材料、励起子ブロック材料、電荷ブロック材料あるいは電荷輸送材料として利用することができ、その中でも発光材料、ホスト材料、電荷輸送材料として利用する場合がより好ましく、発光材料、ホスト材料として利用する場合が更に好ましく、発光材料として利用する場合が最も好ましい。

また、前記特定構造を有する金属錯体は、前述の有機層のうちいずれの層にも含有することができるが、発光層に含有することが好ましく、発光材料又はホスト材料として発光層に含有されることがより好ましく、発光材料として発光層に含有されることが更に好ましく、少なくとも一種のホスト材料と共に発光層に含有されることが特に好ましい。

【0050】

前記特定構造を有する金属錯体の含有量は、発光層に発光材料として含有される場合、発光層の総質量に対して、0.1質量%以上60質量%以下の範囲が好ましく、0.2質量%以上50質量%以下の範囲がより好ましく、0.3質量%以上40質量%以下の範囲が更に好ましく、0.5質量%以上30質量%以下の範囲が最も好ましい。

また、前記特定構造を有する金属錯体と他の発光材料を併用する場合は、前記特定構造を有する金属錯体の含有量は、発光材料全体の質量に対して、0.1質量%以上60質量%以下の範囲が好ましく、0.2質量%以上50質量%以下の範囲がより好ましく、0.3質量%以上40質量%以下の範囲が更に好ましく、0.5質量%以上35質量%以下の範囲が最も好ましい。

前記特定構造を有する金属錯体を発光層以外の層(例えば電荷輸送層等)に用いる場合には、該層中において10質量%～100質量%含まれることが好ましく、30質量%～100質量%含まれることがより好ましい。

【0051】

以下、前記特定構造を有する金属錯体について説明する。

なお、一般式(1)～(4)、(4a-1)～(4a-4)、(4b-1)～(4b-3)、(4a-4')において、水素原子は、同位体(重水素等)も含み、また更に置換基を構成する原子は、その同位体も含んでいるものとする。

また、前記一般式において、配位結合とは、中性の原子の非共有電子対が金属に配位して形成される結合であり、本明細書中、点線で表す。また共有結合とは、1価のアニオンが金属に配位して形成される結合であり、本明細書中、実線で表す。

【0052】

一般式(1)で表される金属錯体について説明する。

【0053】

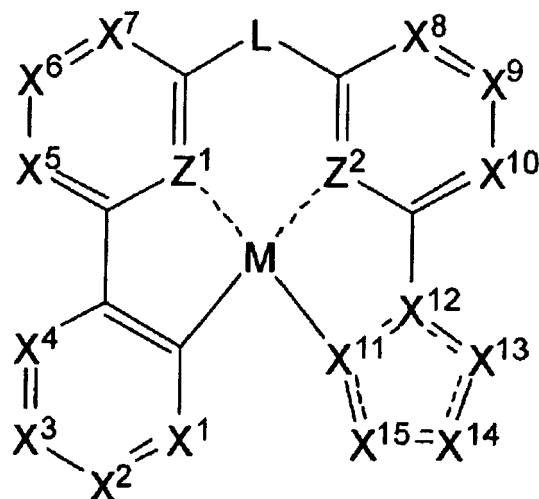
10

20

30

40

【化 1 3】



(1)

【0054】

式中、 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 のうち、いずれか 1 つ以上は、窒素原子を表す。 X^5 、 X^6 、 X^7 、 X^8 、 X^9 及び X^{10} は、それぞれ独立に炭素原子又は窒素原子を表す。 X^{11} 、 X^{12} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表し、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} は、それぞれ独立に、炭素原子、窒素原子、酸素原子、又は硫黄原子を表し、 X^{11} 、 X^{12} 、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} により表される 5 員環骨格に含まれる窒素原子の数は、2 以下である。 Z^1 、 Z^2 は、それぞれ独立に窒素原子又はリン原子を表す。 L は単結合又は 2 価の連結基を表す。 M は 2 価の金属イオンを表す。

【0055】

X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 が更に置換可能な場合は各々独立に置換基を有していてもよい。 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 が置換基を有する場合、その置換基としては、上記置換基群 B に表される置換基が挙げられる。その好ましい置換基としては、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルオキシ基、シアノ基、ハロゲン原子であり、より好ましくは、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、ジアルキルアミノ基、シアノ基、フッ素原子、更に好ましくは、アルキル基、トリフルオロメチル基、フッ素原子である。また可能な場合は置換基同士が連結して、縮環構造を形成してもよい。

【0056】

X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 のうち、いずれか 1 つ以上は、窒素原子を表す。窒素原子の数は 1～2 が好ましく、1 が更に好ましい。

窒素原子の位置は、 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 のいずれでもよいが、 X^2 又は X^3 が窒素原子であることが好ましく、 X^3 が窒素原子であることがより好ましい。

一般式 (1) 中、2 つの炭素原子、 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 から形成される 6 員環としては、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、トリアジン環は挙げられ、より好ましくは、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、特に好ましくはピリジン環である。 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 から形成される 6 員環が、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環（特に好ましくはピリジン環）であることにより、ベンゼン環と比較して、金属－炭素結合を形成する位置に存在する水素原子の酸性度が向上する為、より金属錯体を形成しやすくなるため、有利である。

【0057】

X^5 、 X^6 、 X^7 、 X^8 、 X^9 及び X^{10} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。好ましくは、 X^5 、 X^6 、 X^7 、 X^8 、 X^9 及び X^{10} は炭素原子である。

X^5 、 X^6 、 X^7 、 X^8 、 X^9 及び X^{10} が更に置換可能な場合は各々独立に置換基を有していてもよい。 X^5 、 X^6 、 X^7 、 X^8 、 X^9 及び X^{10} が置換基を有する場合、その置換基としては、上記置換基群 B に表される置換基が挙げられる。その好ましい置換基としては、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルオキシ基、シアノ基、ハロゲン原子であり、より好ましくは、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、ジアルキルアミノ基、シアノ基、フッ素原子、更に好ましくは、アルキル基、ジアルキルアミノ基、トリフルオロメチル基、フッ素原子である。また可能な場合は置換基同士が連結して、縮環構造を形成してもよい。

10

【0058】

X^{11} 、 X^{12} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^{11} 及び X^{12} は、いずれか一方が炭素原子で、他方が窒素原子であることが好ましい。

X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} は、それぞれ独立に、炭素原子、窒素原子、酸素原子、又は硫黄原子を表し、好ましくは、炭素原子又は窒素原子である。

X^{11} 、 X^{12} 、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} により表される 5 員環骨格に含まれる窒素原子の数は、2 以下 (0、1、又は 2) であり、1 又は 2 が好ましく、2 がより好ましい。

X^{11} 、 X^{12} 、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} が更に置換可能な場合は各々独立に置換基を有していてもよい。 X^{11} 、 X^{12} 、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} が置換基を有している場合、その置換基としては、上記置換基群 B に表される置換基が挙げられる。その好ましい置換基としては、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルオキシ基、シアノ基、ハロゲン原子であり、より好ましくは、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、ジアルキルアミノ基、シアノ基、フッ素原子、更に好ましくは、アルキル基、シアノ基、トリフルオロメチル基、フッ素原子である。また可能な場合は置換基同士が連結して、縮環構造を形成してもよい。

20

【0059】

X^{11} 、 X^{12} 、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} により表される 5 員環骨格における結合は単結合、二重結合のいかなる組み合わせでもよい。 X^{11} 、 X^{12} 、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} から形成される 5 員環としては、ピロール環、ピラゾール環、イミダゾール環、フラン環、チオフェン環等が挙げられ、より好ましくは、ピロール環、ピラゾール環、イミダゾール環であり、更に好ましくはピロール環、ピラゾール環である。 X^{11} 、 X^{12} 、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} から形成される 5 員環が、ピロール環、ピラゾール環、イミダゾール環 (更に好ましくはピロール環、ピラゾール環) であることにより、金属錯体の安定性が向上するため、有利である。

30

【0060】

Z^1 、 Z^2 は、それぞれ独立に窒素原子又は磷原子を表し、窒素原子が好ましい。一般式 (1) において、それぞれ Z^1 、炭素原子、 X^5 、 X^6 、 X^7 及び炭素原子で形成される 6 員環と Z^2 、炭素原子、 X^8 、 X^9 、 X^{10} 及び炭素原子で形成される 6 員環としては、ホスフィニン、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、トリアジン環は挙げられ、より好ましくは、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、特に好ましくはピリジン環である。これらの 6 員環が、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環 (特に好ましくはピリジン環) であることにより、金属に対する安定な配位結合を形成し、金属錯体の安定性が向上する。特にその中でも、ピリジン環は金属に配位する部分が 1 つの窒素原子であるため、分子内に窒素原子を複数持つピラジン環、ピリミジン環と比較して、金属錯体の合成の際に副反応を抑制することが可能であり、高収率で製造可能なため、有利である。

40

【0061】

50

Lは、単結合又は二価の連結基を表す。Lで表される二価の連結基としては、アルキレン基（メチレン、エチレン、プロピレンなど）、アリーレン基（フェニレン、ナフタレンジイル）、ヘテロアリーレン基（ピリジンジイル、チオフェンジイルなど）、イミノ基（ $-NR-$ ）（フェニルイミノ基など）、オキシ基（ $-O-$ ）、チオ基（ $-S-$ ）、ホスフィニデン基（ $-PR-$ ）（フェニルホスフィニデン基など）、シリレン基（ $-SiRR'-$ ）（ジメチルシリレン基、ジフェニルシリレン基など）、又はこれらを組み合わせたものが挙げられる。これらの連結基は、更に置換基を有していてもよい。これらの連結基が置換基を有する場合、その置換基としては、上記置換基群Bに表される置換基が挙げられる。

Lとして好ましくは単結合、アルキレン基、アリーレン基、ヘテロアリーレン基、イミノ基、オキシ基、チオ基、シリレン基であり、より好ましくは単結合、アルキレン基、アリーレン基、イミノ基であり、更に好ましくは単結合、アルキレン基、アリーレン基であり、更に好ましくは、単結合、メチレン基、フェニレン基であり、更に好ましくは単結合、ジ置換のメチレン基であり、更に好ましくは単結合、ジメチルメチレン基、ジエチルメチレン基、ジイソブチルメチレン基、ジベンジルメチレン基、エチルメチルメチレン基、メチルプロピルメチレン基、イソブチルメチルメチレン基、ジフェニルメチレン基、メチルフェニルメチレン基、シクロヘキサンジイル基、シクロペンタンジイル基、フルオレンジイル基、フルオロメチルメチレン基であり、特に好ましくは単結合、ジメチルメチレン基、ジフェニルメチレン基、シクロヘキサンジイル基であり、最も好ましくはジメチルメチレン基、ジフェニルメチレン基である。

下記に二価の連結基の具体例を示すが、これらに限定されることはない。

【0062】

10

20

The image displays a variety of chemical structures, including:

- Alkanes: Isobutane, neopentane, cyclohexane, cyclopentane, and ethane.
- Alkenes: 2,4-dimethyl-2-pentene.
- Alkynes: 2,4-dimethyl-2-pentyne.
- Alcohols: Methanol.
- Amines: Methylamine, dimethylamine, triethylamine, and triphenylamine.
- Phosphines: Triphenylphosphine.
- Silanes: Tetramethylsilane (TMS).
- Germanes: Tetramethylgermane (TMG).
- Heterocycles: Furan, thiophene, pyrrole, pyridine, and triazine.
- Other: A substituted benzene ring with a phenyl group and a substituent labeled 'Ro'.

20

30

上記 R o は前記置換基群 B から選ばれる置換基を表す。R o として好ましくはアルキル基であり、更に好ましくは炭素数 1 ～ 6 のアルキル基である。m は 1 ～ 5 の整数を表す。m は好ましくは 2 ～ 5 であり、より好ましくは 2 ～ 3 である。

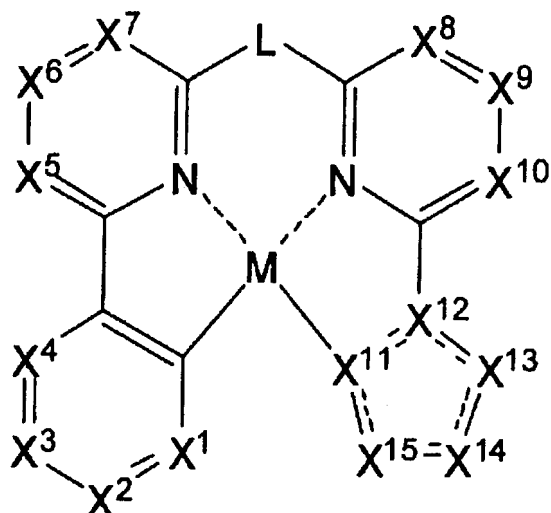
Mは、2価の金属イオンを表す。金属種としては、亜鉛イオン、銅イオン、ニッケルイオン、パラジウムイオン、白金イオンが挙げられ、より好ましくは銅イオン、パラジウムイオン、白金イオンであり、更に好ましくはパラジウムイオン、白金イオンであり、特に好ましくは白金イオンである。

40

一般式（１）で表される金属錯体は、好ましくは一般式（２）で表される金属錯体である。

【 0 0 6 6 】

【化 1 5】



(2)

10

【0067】

20

式中、 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 の内、いずれか 1 つ以上は、窒素原子を表す。 X^5 、 X^6 、 X^7 、 X^8 、 X^9 及び X^{10} は、それぞれ独立に炭素原子又は窒素原子を表す。 X^{11} 、 X^{12} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表し、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} は、それぞれ独立に、炭素原子、窒素原子、酸素原子、又は硫黄原子を表し、 X^{11} 、 X^{12} 、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} により形成される 5 員環骨格に含まれる窒素原子の数は、2 以下である。L は単結合又は 2 価の連結基を表す。M は、2 価の金属イオンを表す。

【0068】

30

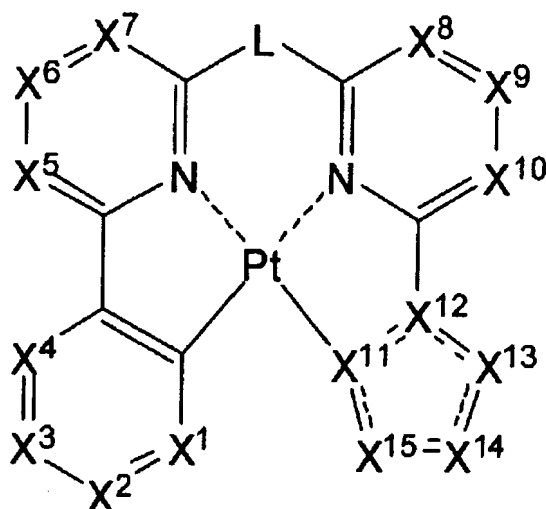
一般式 (2) における X^1 、 X^2 、 X^3 、 X^4 、 X^5 、 X^6 、 X^7 、 X^8 、 X^9 、 X^{10} 、 X^{11} 、 X^{12} 、 X^{13} 、 X^{14} 、 X^{15} 、L、及び M は、一般式 (1) における X^1 、 X^2 、 X^3 、 X^4 、 X^5 、 X^6 、 X^7 、 X^8 、 X^9 、 X^{10} 、 X^{11} 、 X^{12} 、 X^{13} 、 X^{14} 、 X^{15} 、L、及び M と同義であり、好ましい範囲も同様である。

【0069】

一般式 (2) で表される金属錯体は、好ましくは一般式 (3) で表される白金錯体である。

【0070】

【化 1 6】



10

(3)

【0071】

式中、 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 の内、いずれか 1 つ以上は、窒素原子を表す。 X^5 、 X^6 、 X^7 、 X^8 、 X^9 及び X^{10} は、それぞれ独立に炭素原子又は窒素原子を表す。 X^{11} 、 X^{12} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表し、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} は、それぞれ独立に、炭素原子、窒素原子、酸素原子、又は硫黄原子を表し、 X^{11} 、 X^{12} 、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} により表される 5 員環骨格に含まれる窒素原子の数は、2 以下である。L は単結合又は 2 価の連結基を表す。

20

【0072】

一般式 (3) における X^1 、 X^2 、 X^3 、 X^4 、 X^5 、 X^6 、 X^7 、 X^8 、 X^9 、 X^{10} 、 X^{11} 、 X^{12} 、 X^{13} 、 X^{14} 、 X^{15} 及び L は、一般式 (2) における X^1 、 X^2 、 X^3 、 X^4 、 X^5 、 X^6 、 X^7 、 X^8 、 X^9 及び X^{10} 、 X^{11} 、 X^{12} 、 X^{13} 、 X^{14} 、 X^{15} 及び L と同義であり、好ましい範囲も同様である。

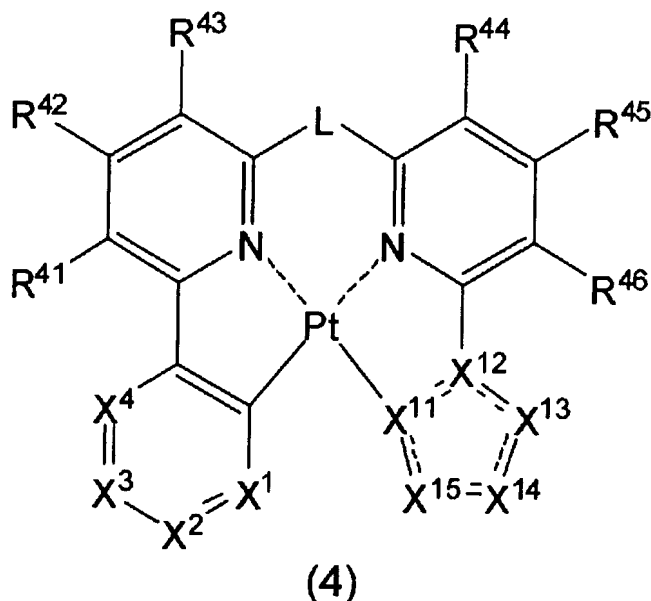
30

【0073】

一般式 (3) で表される白金錯体は、好ましくは一般式 (4) で表される白金錯体である。

【0074】

【化 17】



10

【0075】

式中、 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 のうち、いずれか1つ以上は、窒素原子を表す。 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 及び R^{46} は、それぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 X^{11} 、 X^{12} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表し、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} は、それぞれ独立に、炭素原子、窒素原子、酸素原子、又は硫黄原子を表し、 X^{11} 、 X^{12} 、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} により表される5員環骨格に含まれる窒素原子の数は、2以下である。Lは単結合又は2価の連結基を表す。

20

【0076】

一般式(4)における X^1 、 X^2 、 X^3 、 X^4 、 X^{11} 、 X^{12} 、 X^{13} 、 X^{14} 、 X^{15} 及び L は、一般式(2)における X^1 、 X^2 、 X^3 、 X^4 、 X^{11} 、 X^{12} 、 X^{13} 、 X^{14} 、 X^{15} 及び L と同義であり、好ましい範囲も同様である。

30

【0077】

一般式(4)中、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、及び R^{46} はそれぞれ独立して、水素原子又は置換基を表す。 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、及び R^{46} で表される置換基としては、置換基群Bと同義である。 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、及び R^{46} は可能であればお互いに結合して環を形成していてもよい。

【0078】

前記 R^{41} 及び R^{46} として好ましくは、水素原子、アルキル基、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、アルキルチオ基、スルホニル基、ヒドロキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヘテロ環基であり、より好ましくは、水素原子、アルキル基、アリール基、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、水素原子、メチル基、tert-ブチル基、トリフルオロメチル基、フェニル基、フッ素原子、シアノ基、ピリジル基であり、更に好ましくは、水素原子、メチル基、フッ素原子であり、特に好ましくは水素原子である。

40

【0079】

前記 R^{43} 及び R^{44} として好ましくは、前記 R^{41} 及び R^{46} の好ましい範囲と同義である。

【0080】

前記 R^{42} 及び R^{45} として好ましくは、水素原子、アルキル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、アリールチオ基、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、水素原子、アルキル基、アリール基、

50

アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、ヘテロ環基であり、更に好ましくは、水素原子、アルキル基、アミノ基、アルコキシ基、ハロゲン原子、ヘテロ環基であり、更に好ましくは、水素原子、メチル基、トープチル基、ジアルキルアミノ基、ジフェニルアミノ基、メトキシ基、フェノキシ基、フッ素原子、イミダゾリル基、ピロリル基、カルバゾリル基であり、特に好ましくは水素原子、フッ素原子、メチル基であり、最も好ましくは水素原子である。

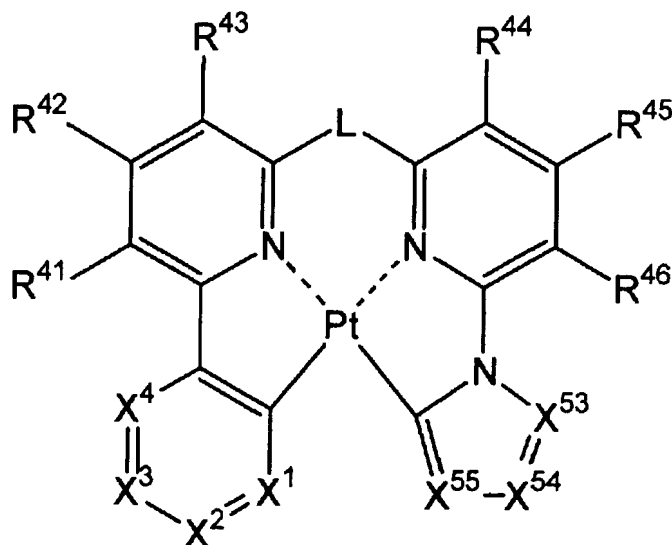
【0081】

一般式(4)で表される白金錯体の好ましい形態の1つは、一般式(4a-1)で表される白金錯体である。

【0082】

10

【化18】



20

(4a-1)

30

【0083】

式中、 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 の内、いずれか1つ以上は、窒素原子を表す。 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 及び R^{46} は、それぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 X^{53} 、 X^{54} 及び X^{55} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表し、 X^{53} 、 X^{54} 及び X^{55} を含有する5員環骨格に含まれる窒素原子の数は、1又は2である。 L は単結合又は2価の連結基を表す。

【0084】

一般式(4a-1)における X^1 、 X^2 、 X^3 、 X^4 、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 及び L は、一般式(4)における X^1 、 X^2 、 X^3 、 X^4 、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 及び L と同義であり、好ましい範囲も同様である。

40

【0085】

X^{53} 、 X^{54} 及び X^{55} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^{53} 、 X^{54} 及び X^{55} が更に置換可能な場合は各々独立に置換基を有していてもよい。 X^{53} 、 X^{54} 及び X^{55} が置換基を有する場合、その置換基としては、上記置換基群Bに表される置換基が挙げられる。その好ましい置換基としては、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルオキシ基、シアノ基、ハロゲン原子であり、より好ましくは、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、ジアルキルアミノ基、シアノ基、フッ素原子、更に好

50

ましくは、アルキル基、トリフルオロメチル基、フッ素原子である。また可能な場合は置換基同士が連結して、縮環構造を形成してもよい。

【0086】

一般式(4a-1)中、炭素原子、窒素原子、 X^{53} 、 X^{54} 及び X^{55} にて形成される5員環骨格に含まれる窒素原子の数は、1又は2であり、2が好ましい。

【0087】

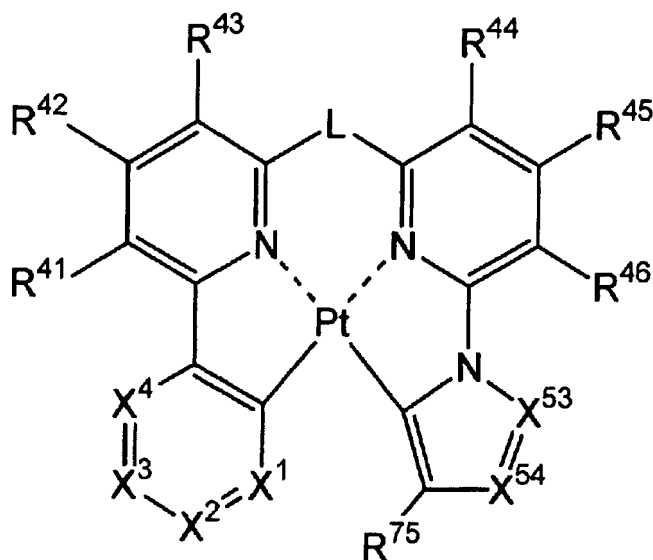
炭素原子、窒素原子、 X^{53} 、 X^{54} 及び X^{55} から形成される5員環としては、ピロール環、ピラゾール環、イミダゾール環が挙げられ、より好ましくは、ピロール環、ピラゾール環、イミダゾール環であり、更に好ましくはピロール環、ピラゾール環であり、最も好ましくは、ピラゾール環である。

【0088】

一般式(4a-1)で表される白金錯体は、好ましくは一般式(4a-2)で表される白金錯体である。

【0089】

【化19】



(4a-2)

【0090】

式中、 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 の内、いずれか1つ以上は、窒素原子を表す。 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 及び R^{46} は、それぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 X^{53} 及び X^{54} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表し、 X^{53} 及び X^{54} を含有する5員環骨格に含まれる窒素原子の数は、1又は2である。 R^{75} は、水素原子又は置換基を表す。Lは単結合若しくは2価の連結基を表す。

【0091】

一般式(4a-2)における X^1 、 X^2 、 X^3 、 X^4 、 X^{53} 、 X^{54} 、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 及びLは、一般式(4a-1)における X^1 、 X^2 、 X^3 、 X^4 、 X^{53} 、 X^{54} 、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 及びLと同義であり、好ましい範囲も同様である。

【0092】

R^{75} は水素原子又は置換基を表す。その置換基としては、上記置換基群Bに表される置換基が挙げられる。 R^{75} は、水素原子、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルオキシ基、シアノ基、ハロゲン原子であることが好ましく、より好ましくは水素原子、アルキル

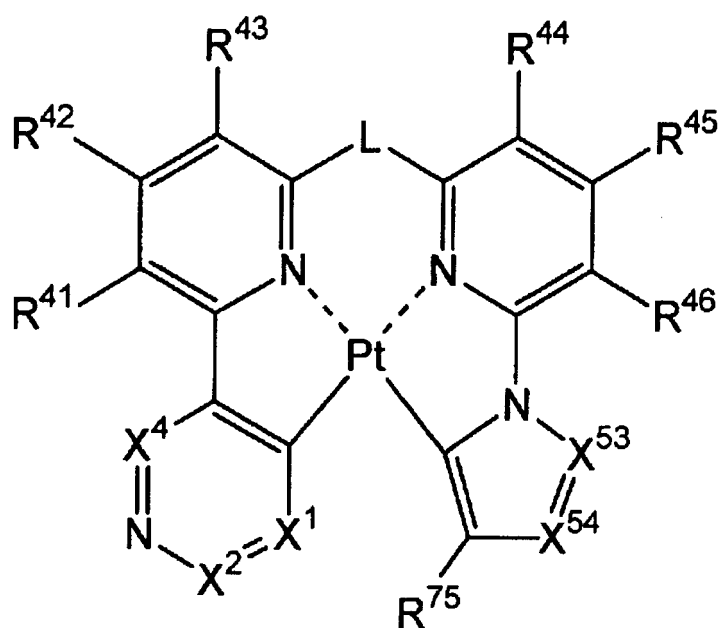
基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、ジアルキルアミノ基、シアノ基、フッ素原子、更に好ましくは、水素原子、アルキル基、トリフルオロメチル基、シアノ基、フッ素原子であり、最も好ましくはシアノ基、フッ素原子、水素原子である。また可能な場合は、 X^{54} 若しくは X^{53} の置換基と連結して、縮環構造を形成してもよい。

【0093】

一般式(4a-2)で表される白金錯体は、好ましくは一般式(4a-3)で表される白金錯体である。

【0094】

【化20】



(4a-3)

【0095】

式中、 X^1 、 X^2 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 及び R^{46} は、それぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 X^{53} 及び X^{54} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表し、 X^{53} 及び X^{54} を含有する5員環骨格に含まれる窒素原子の数は、1又は2である。 R^{75} は、水素原子又は置換基を表す。Lは単結合又は2価の連結基を表す。

【0096】

一般式(4a-3)における X^1 、 X^2 、 X^4 、 X^{53} 、 X^{54} 、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 、 R^{75} 及びLは、一般式(4a-2)における X^1 、 X^2 、 X^4 、 X^{53} 、 X^{54} 、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 、 R^{75} 及びLと同義であり、好ましい範囲も同様である。

【0097】

一般式(4a-3)中、 X^1 、 X^2 、窒素原子、 X^4 、炭素原子、炭素原子から形成される6員環骨格に含まれる窒素原子の数は1以上3以下であることが好ましく、1、2がより好ましく、1が更に好ましい。具体的な6員環としては、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、トリアジン環は挙げられ、より好ましくは、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、更に好ましくは、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環であり、特に好ましくはピリジン環である。

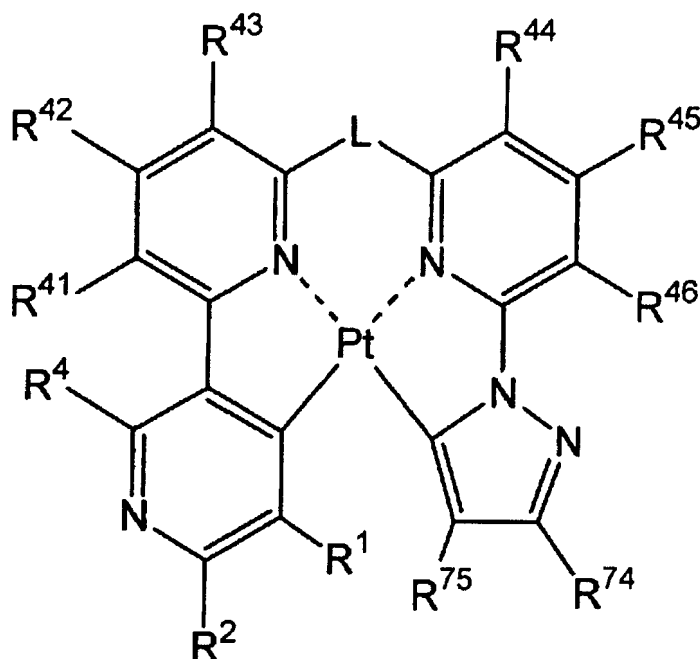
【0098】

一般式(4a-3)で表される白金錯体は、好ましくは下記一般式(4a-4)で表さ

れる白金錯体である。この一般式（４a－４）で表される白金錯体は、新規の化合物である。

【００９９】

【化２１】



(4a-4)

【０１００】

式中、 R^1 、 R^2 、 R^4 、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 、 R^{74} 、及び R^{75} は、それぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。Lは単結合又は２価の連結基を表す。

【０１０１】

一般式（４a－４）における R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 、 R^{74} 、及びLは、一般式（４a－３）における R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 、 R^{74} 、及びLと同義であり、好ましい範囲も同様である。

【０１０２】

R^1 、 R^2 、 R^4 、及び R^{74} はそれぞれ独立して、水素原子又は置換基を表す。その置換基としては、上記置換基群Bに表される置換基が挙げられる。また可能な場合は、 R^4 と R^{41} 及び R^1 と R^2 は、置換基同士が連結して、縮環構造を形成してもよいし、 R^1 と R^{75} の置換基同士が連結して、配位子全体が環状構造を形成してもよい。

【０１０３】

R^1 として好ましくは、水素原子、アルキル基、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、アルキルチオ基、スルホニル基、ヒドロキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヘテロ環基であり、より好ましくは、水素原子、アルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、ハロゲン原子、シアノ基であり、更に好ましくは、水素原子、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、ハロゲン原子、シアノ基であり、更に好ましくは、水素原子、メチル基、トリフルオロメチル基、シアノ基であり、特に好ましくは、水素原子、トリフルオロメチル基、フッ素原子、シアノ基である。

【０１０４】

R^2 と R^4 として好ましくは、水素原子、ハロゲン原子、フッ素原子で置換されたフェニル基、フッ素で置換されたアルコキシ基、パーフルオロアルキル基、シアノ基、ニトロ

基、アリールオキシ基であり、より好ましくは、水素原子、フッ素原子、フッ素原子で置換されたフェニル基、トリフルオロメトキシ基、トリフルオロメチル基、シアノ基、フェノキシ基であり、更に好ましくは、水素原子、フッ素原子、パーフルオロフェニル基、トリフルオロメチル基、シアノ基、電子求引性置換基で置換されたフェノキシ基であり、特に好ましくは、水素原子、フッ素原子であり、最も好ましくはフッ素原子である。

【0105】

R⁷⁴として好ましくは、水素原子、アルキル基、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、アルキルチオ基、スルホニル基、ヒドロキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヘテロ環基であり、より好ましくは、水素原子、アルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、ハロゲン原子、シアノ基であり、更に好ましくは、水素原子、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、ハロゲン原子、シアノ基であり、更に好ましくは、水素原子、メチル基、トリフルオロメチル基、シアノ基であり、特に好ましくは、水素原子、トリフルオロメチル基、フッ素原子、シアノ基であり、最も好ましくはトリフルオロメチル基、シアノ基である。

【0106】

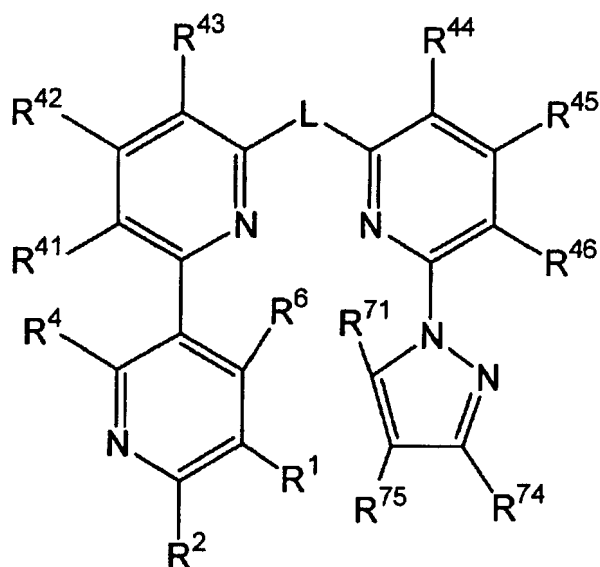
一般式(4a-4)で表される白金錯体は、有機EL素子に用いる各種材料のほか、表示素子、ディスプレイ、バックライト、電子写真、照明光源、記録光源、露光光源、読み取り光源、標識、看板、インテリア等の分野において好適に使用可能な発光材料、医療用途、蛍光増白剤、写真用材料、UV吸収材料、レーザー色素、記録メディア用材料、インクジェット用顔料、カラーフィルター用染料、色変換フィルター、分析用途、太陽電池用材料、有機薄膜トランジスタ用材料等として用いることができる。

【0107】

次に、一般式(4a-4')で表される化合物について説明する。一般式(4a-4')で表される化合物は、前記一般式(4a-4)で表される白金錯体の配位子となり得る、新規の化合物である。

【0108】

【化22】



(4a-4')

【0109】

式中、R¹、R²、R⁴、R⁶、R⁴¹、R⁴²、R⁴³、R⁴⁴、R⁴⁵、R⁴⁶、R⁷¹、R⁷⁴、及びR⁷⁵は、それぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。Lは単結合又は2価の連結基を表す。

【0110】

一般式(4a-4')における R^1 、 R^2 、 R^4 、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 、 R^{74} 、 R^{75} 、及びLは、一般式(4a-4)における R^1 、 R^2 、 R^4 、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 、 R^{74} 、 R^{75} 、及びLと同義であり、好ましい範囲も同様である。 R^6 、 R^{71} は、それぞれ独立に水素原子若しくは置換基を表す。その置換基としては、上記置換基群Bに表される置換基が挙げられる。 R^6 、 R^{71} として、好ましくはハロゲン原子、水素原子であり、より好ましくは水素原子である。

【0111】

一般式(4a-4')で表される化合物は、前記一般式で表される金属錯体の配位子として利用できるほか、蛍光材料、電荷輸送材料、医薬、農薬等の中間体等として利用することができる。

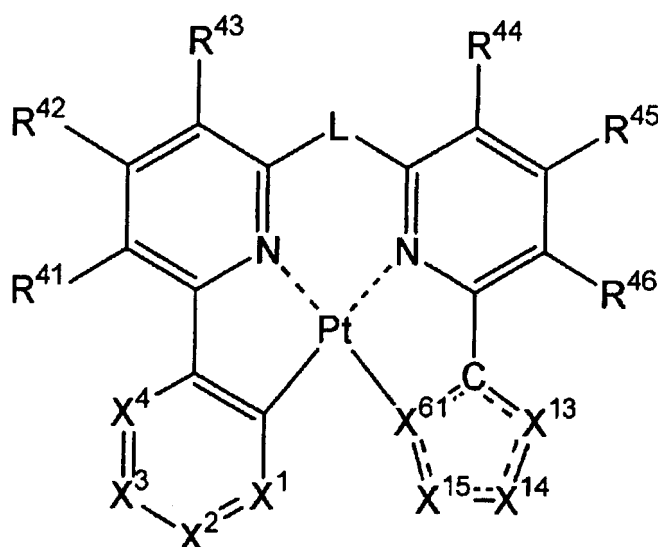
10

【0112】

一般式(4)で表される白金錯体の好ましい形態の別の形態は、一般式(4b-1)で表される白金錯体である。

【0113】

【化23】



20

30

(4b-1)

【0114】

式中、 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 のうち、いずれか1つ以上は、窒素原子を表す。 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 及び R^{46} は、それぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 X^{61} は、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} は、それぞれ独立に、炭素原子、窒素原子、酸素原子、又は硫黄原子を表し、 X^{61} 、炭素原子、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} により表される5員環骨格に含まれる窒素原子の数は、2以下である。Lは単結合又は2価の連結基を表す。

40

【0115】

一般式(4b-1)における X^1 、 X^2 、 X^3 、 X^4 、 X^{13} 、 X^{14} 、 X^{15} 、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 、及びLは、一般式(4)における X^1 、 X^2 、 X^3 、 X^4 、 X^{13} 、 X^{14} 、 X^{15} 、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 、及びLと同義であり、好ましい範囲も同様である。

【0116】

X^{61} は炭素原子若しくは窒素原子を表す。好ましくは窒素原子である。

50

【0117】

一般式(4b-1)中、 X^{61} 、炭素原子、 X^{13} 、 X^{14} 、 X^{15} にて形成される5員環骨格に含まれる窒素原子の数は、0、1、又は2であり、1又は2が好ましく、2がより好ましい。

【0118】

X^{61} 、炭素原子、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} により形成される5員環骨格における結合は単結合、二重結合のいかなる組み合わせでもよい。 X^{61} 、炭素原子、 X^{13} 、 X^{14} 及び X^{15} により形成される5員環としては、ピロール環、ピラゾール環、イミダゾール環、フラン環、チオフェン環等が挙げられ、より好ましくは、ピロール環、ピラゾール環、イミダゾール環であり、更に好ましくピラゾール環である。

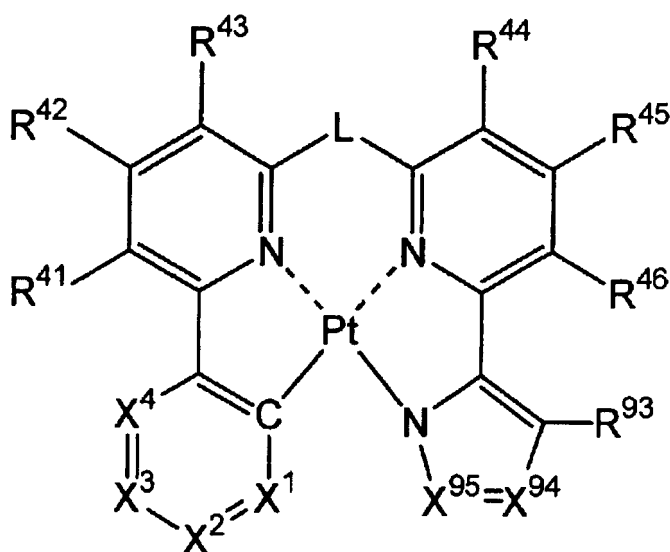
10

【0119】

一般式(4b-1)で表される白金錯体は、好ましくは一般式(4b-2)で表される白金錯体である。

【0120】

【化24】



20

(4b-2)

30

【0121】

式中、 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。 X^1 、 X^2 、 X^3 及び X^4 のうち、いずれか1つ以上は、窒素原子を表す。 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 及び R^{46} は、それぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。 X^{94} 及び X^{95} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表し、 X^{94} 及び X^{95} の少なくともいずれか一方は、炭素原子を表す。 R^{93} は、水素原子又は置換基を表す。Lは単結合又は2価の連結基を表す。

40

【0122】

一般式(4b-2)における X^1 、 X^2 、 X^3 、 X^4 、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 、及びLは、一般式(4b-1)における X^1 、 X^2 、 X^3 、 X^4 、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 、及びLと同義であり、好ましい範囲も同様である。

【0123】

X^{94} 及び X^{95} はそれぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。但し、 X^{94} 及び X^{95} のいずれか一方は、炭素原子を表す。好ましくは、 X^{94} が炭素原子で、 X^{95} が窒素原子である。

X^{94} 及び X^{95} が更に置換可能な場合は各々独立に置換基を有していてもよい。 X^9

50

⁴ 及び X^{9 5} が置換基を有する場合、その置換基としては、上記置換基群 B に表される置換基が挙げられる。その好ましい置換基としては、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルオキシ基、シアノ基、ハロゲン原子であり、より好ましくは、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、ジアルキルアミノ基、シアノ基、フッ素原子、更に好ましくは、アルキル基、トリフルオロメチル基、フッ素原子である。また可能な場合は置換基同士が連結して、縮環構造を形成してもよい。

【0124】

一般式 (4b-2) 中、窒素原子、炭素原子、炭素原子、X^{9 4} 及び X^{9 5} により形成される 5 員環としては、ピロール環、ピラゾール環、イミダゾール環が挙げられ、より好ましくは、ピラゾール環、イミダゾール環であり、更に好ましくピラゾール環である。

【0125】

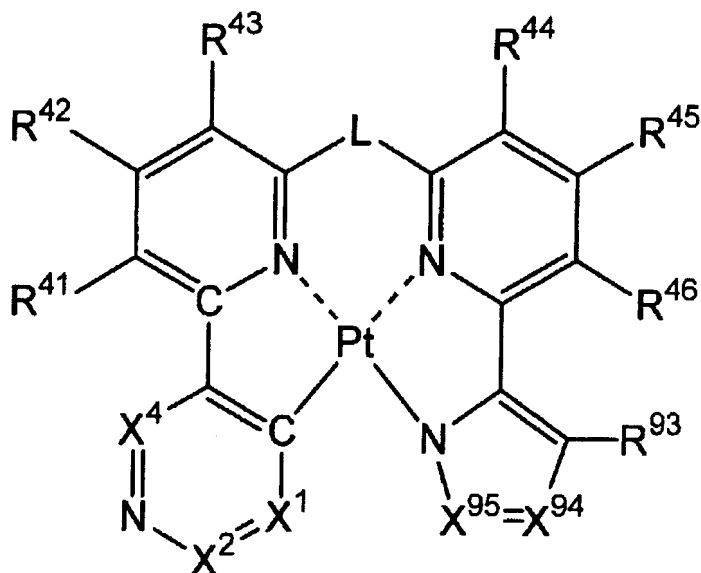
R^{9 3} は水素原子又は置換基を表す。その置換基としては、上記置換基群 B に表される置換基が挙げられる。R^{9 3} としては、水素原子、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルオキシ基、シアノ基、ハロゲン原子であり、より好ましくは水素原子、アルキル基、ペルフルオロアルキル基、アリール基、ジアルキルアミノ基、シアノ基、フッ素原子、更に好ましくは、水素原子、アルキル基、トリフルオロメチル基、フッ素原子であり、最も好ましくはフッ素原子、水素原子である。また可能な場合は、X^{9 4}、X^{9 5} の置換基同士が連結して、縮環構造を形成してもよい。

【0126】

一般式 (4b-2) で表される白金錯体は、好ましくは一般式 (4b-3) で表される白金錯体である。

【0127】

【化25】



(4b-3)

【0128】

式中、X¹、X² 及び X⁴ は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。X¹、X² 及び X⁴ のうち、いずれか 1 つ以上は、窒素原子を表す。R^{4 1}、R^{4 2}、R^{4 3}、R^{4 4}、R^{4 5} 及び R^{4 6} は、それぞれ独立に水素原子又は置換基を表す。X^{9 4} 及び X^{9 5} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表し、X^{9 4} 及び X^{9 5} の少なくとも

いずれか一方は、炭素原子を表す。 $R^{9\ 3}$ は、水素原子又は置換基を表す。 L は単結合又は2価の連結基を表す。

【0129】

一般式(4b-3)における X^1 、 X^2 、 X^4 、 $X^{9\ 4}$ 、 $X^{9\ 5}$ 、 $R^{4\ 1}$ 、 $R^{4\ 2}$ 、 $R^{4\ 3}$ 、 $R^{4\ 4}$ 、 $R^{4\ 5}$ 、 $R^{4\ 6}$ 、 $R^{9\ 3}$ 及び L は、一般式(4b-2)における X^1 、 X^2 、 X^4 、 $X^{9\ 4}$ 、 $X^{9\ 5}$ 、 $R^{4\ 1}$ 、 $R^{4\ 2}$ 、 $R^{4\ 3}$ 、 $R^{4\ 4}$ 、 $R^{4\ 5}$ 、 $R^{4\ 6}$ 、 $R^{9\ 3}$ 及び L と同義であり、好ましい範囲も同様である。

【0130】

一般式(4b-3)中、 X^1 、 X^2 、窒素原子、 X^4 、炭素原子、炭素原子から形成される6員環骨格に含まれる窒素原子の数は1以上3以下であり、1、2がより好ましく、1が好ましい。具体的な6員環としては、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、トリアジン環は挙げられ、より好ましくは、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、更に好ましくは、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環であり、特に好ましくはピリジン環である。

【0131】

前記特定構造を有する金属錯体は、低分子量化合物であってもよいし、残基がポリマー主鎖に接続された高分子量化合物(好ましくは質量平均分子量1000~5000000、より好ましくは5000~2000000、更に好ましくは10000~1000000)若しくは、前記特定構造を有する金属錯体の構造を主鎖に持つ高分子量化合物(好ましくは質量平均分子量1000~5000000、より好ましくは5000~2000000、更に好ましくは10000~1000000)であってもよいが、低分子量化合物であることが好ましい。

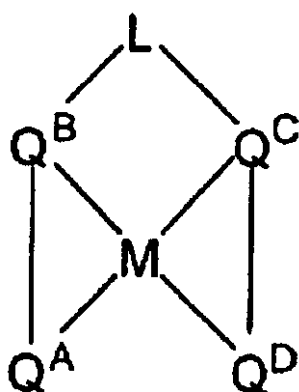
高分子量化合物の場合はホモポリマーであってもよいし、他のポリマーとの共重合体であってもよく、共重合体である場合はランダム共重合体であっても、ブロック共重合体であってもよい。更に共重合体の場合、発光機能を有する化合物及び／又は電荷輸送機能を有する化合物をポリマー内に有してもよい。

【0132】

以下に、一般式(1)で表される化合物を下記一般式(I)で表したときに、 Q^A 、 Q^B 、 Q^C 、 Q^D 、及び L に用いることのできる部分構造を示す。

【0133】

【化26】



一般式 (I)

【0134】

Q^A に用いることのできる部分構造は〔QB61CC〕で表される部分構造群である。

Q^B に用いることのできる部分構造は〔QT60CN〕で表される部分構造群である。

Q^C に用いることのできる部分構造は〔QT60CN〕で表される部分構造群である。

Q^D に用いることのできる部分構造は〔QB51CC〕、〔QB51CN〕、〔QB51NC〕で表される部分構造群である。

Lに用いることのできる部分構造は〔L〕で表される部分構造群である。

以下の式中、M、Lはそれぞれ一般式（I）のM、Lに対応し、Qは、〔 Q^A で表される部分構造〕中のQは Q^B を表し、〔 Q^B で表される部分構造〕中のQは Q^A を表し、〔 Q^C で表される部分構造〕中のQは Q^D を表し、〔 Q^D で表される部分構造〕中のQは Q^C を表す。

連結基Lの部分構造〔L〕中の2個のQは左側のQが Q^B を、右側のQが Q^C を表す。

【0 1 3 5】

・ Q^A に用いることのできる部分構造

〔QB61CC〕

【0 1 3 6】

【化 27】



QB61CC-1



QB61CC-2



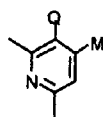
QB61CC-3



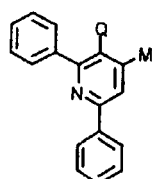
QB61CC-4



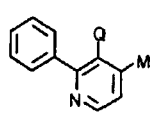
QB61CC-5



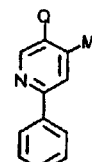
QB61CC-6



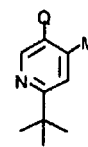
QB61CC-7



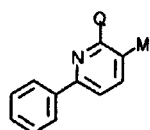
QB61CC-8



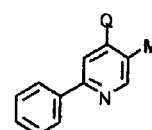
QB61CC-9



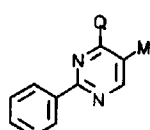
QB61CC-10



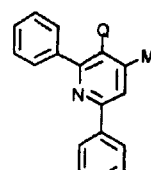
QB61CC-11



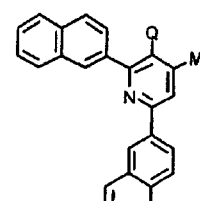
QB61CC-12



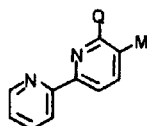
QB61CC-13



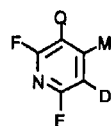
QB61CC-14



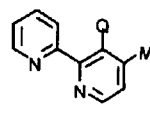
QB61CC-15



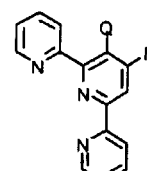
QB61CC-16



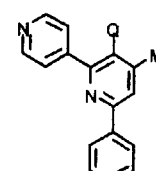
QB61CC-17



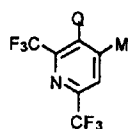
QB61CC-18



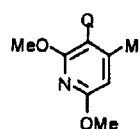
QB61CC-19



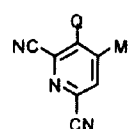
QB61CC-20



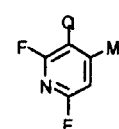
QB61CC-21



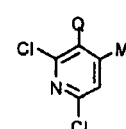
QB61CC-22



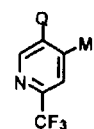
QB61CC-23



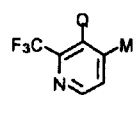
QB61CC-24



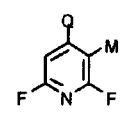
QB61CC-25



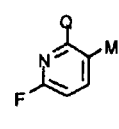
QB61CC-26



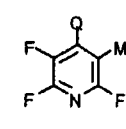
QB61CC-27



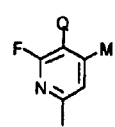
QB61CC-28



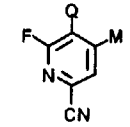
QB61CC-29



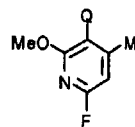
QB61CC-30



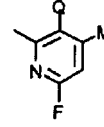
QB61CC-31



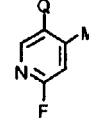
QB61CC-32



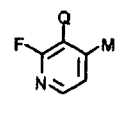
QB61CC-33



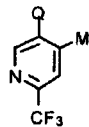
QB61CC-34



QB61CC-35



QB61CC-36



QB61CC-37

10

20

30

40

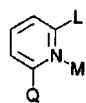
【0137】

・ Q^B、Q^Cに用いることのできる部分構造
[QT60CN]

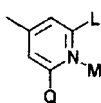
50

【 0 1 3 8 】

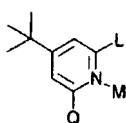
【 化 2 8 】



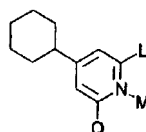
QT60CN-1



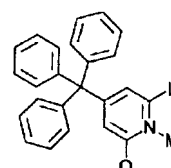
QT60CN-2



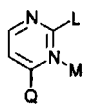
QT60CN-3



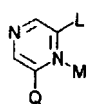
QT60CN-4



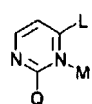
QT60CN-5



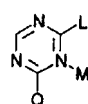
QT60CN-6



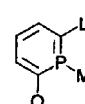
QT60CN-7



QT60CN-8

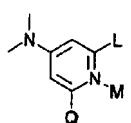


QT60CN-9

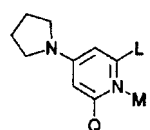


QT60CN-10

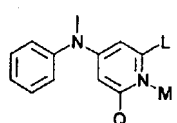
10



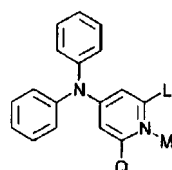
QT60CN-11



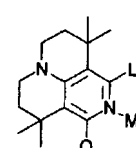
QT60CN-12



QT60CN-13

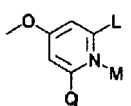


QT60CN-14

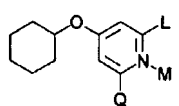


QT60CN-15

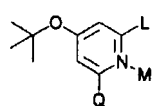
20



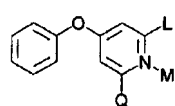
QT60CN-16



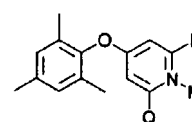
QT60CN-17



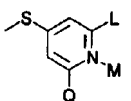
QT60CN-18



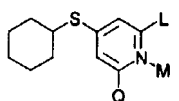
QT60CN-19



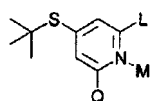
QT60CN-20



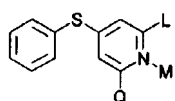
QT60CN-21



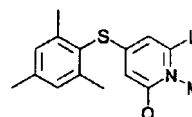
QT60CN-22



QT60CN-23

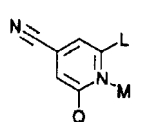


QT60CN-24

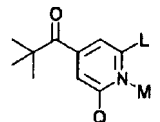


QT60CN-25

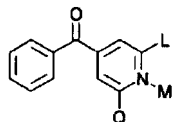
30



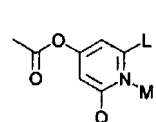
QT60CN-26



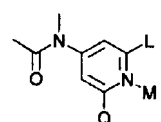
QT60CN-27



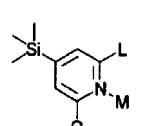
QT60CN-28



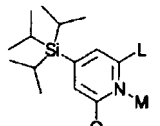
QT60CN-29



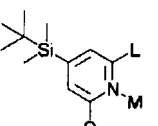
QT60CN-30



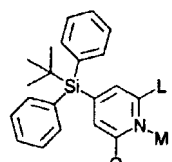
QT60CN-31



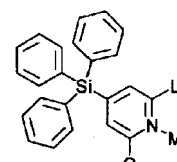
QT60CN-32



QT60CN-33

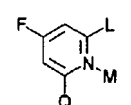


QT60CN-34

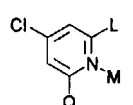


QT60CN-35

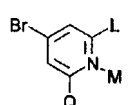
40



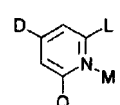
QT60CN-36



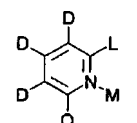
QT60CN-37



QT60CN-38



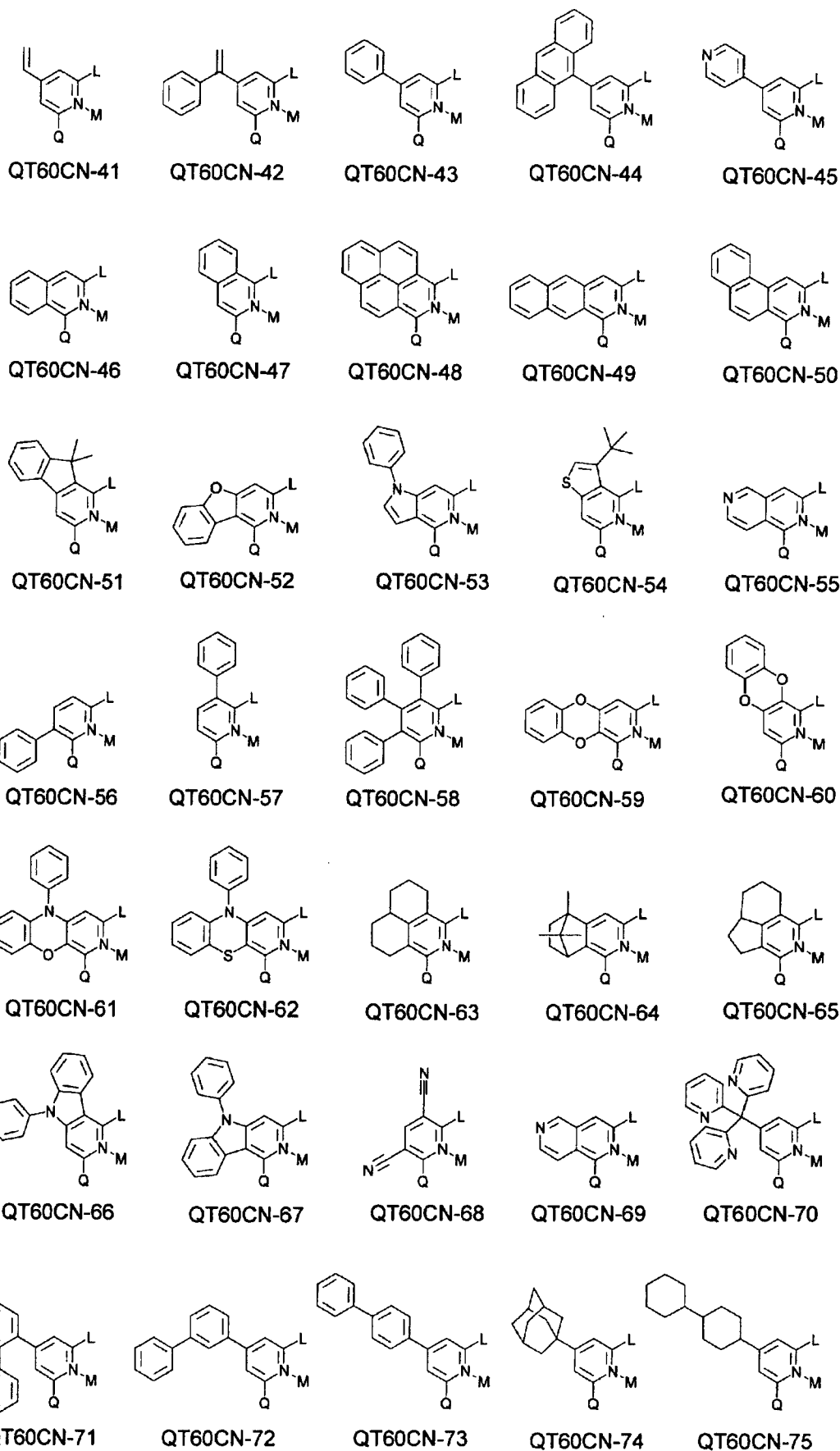
QT60CN-39



QT60CN-40

【 0 1 3 9 】

【化 29】

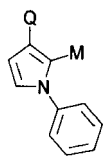


【0140】

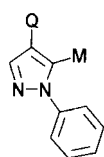
・ Q^Dに用いることのできる部分構造
[QB51CC]

【 0 1 4 1 】

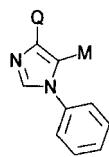
【 化 3 0 】



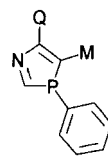
QB51CC-1



QB51CC-2



QB51CC-3



QB51CC-4



QB51CC-5



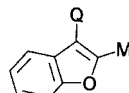
QB51CC-6



QB51CC-7



QB51CC-8



QB51CC-9



QB51CC-10



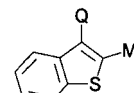
QB51CC-11



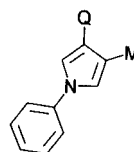
QB51CC-12



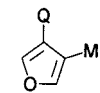
QB51CC-13



QB51CC-14



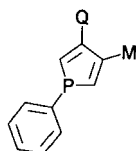
QB51CC-15



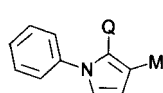
QB51CC-16



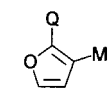
QB51CC-17



QB51CC-18



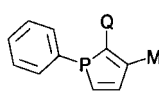
QB51CC-20



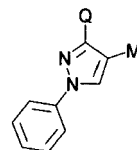
QB51CC-21



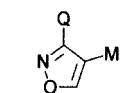
QB51CC-22



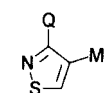
QB51CC-23



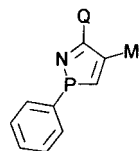
QB51CC-25



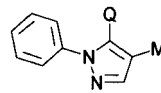
QB51CC-26



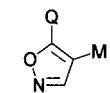
QB51CC-27



QB51CC-28



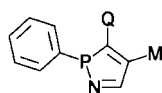
QB51CC-30



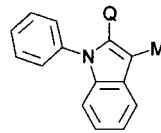
QB51CC-31



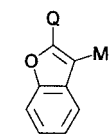
QB51CC-32



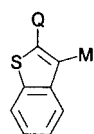
QB51CC-33



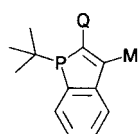
QB51CC-35



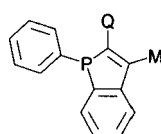
QB51CC-36



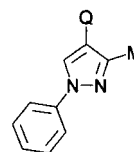
QB51CC-37



QB51CC-38



QB51CC-39



QB51CC-40

10

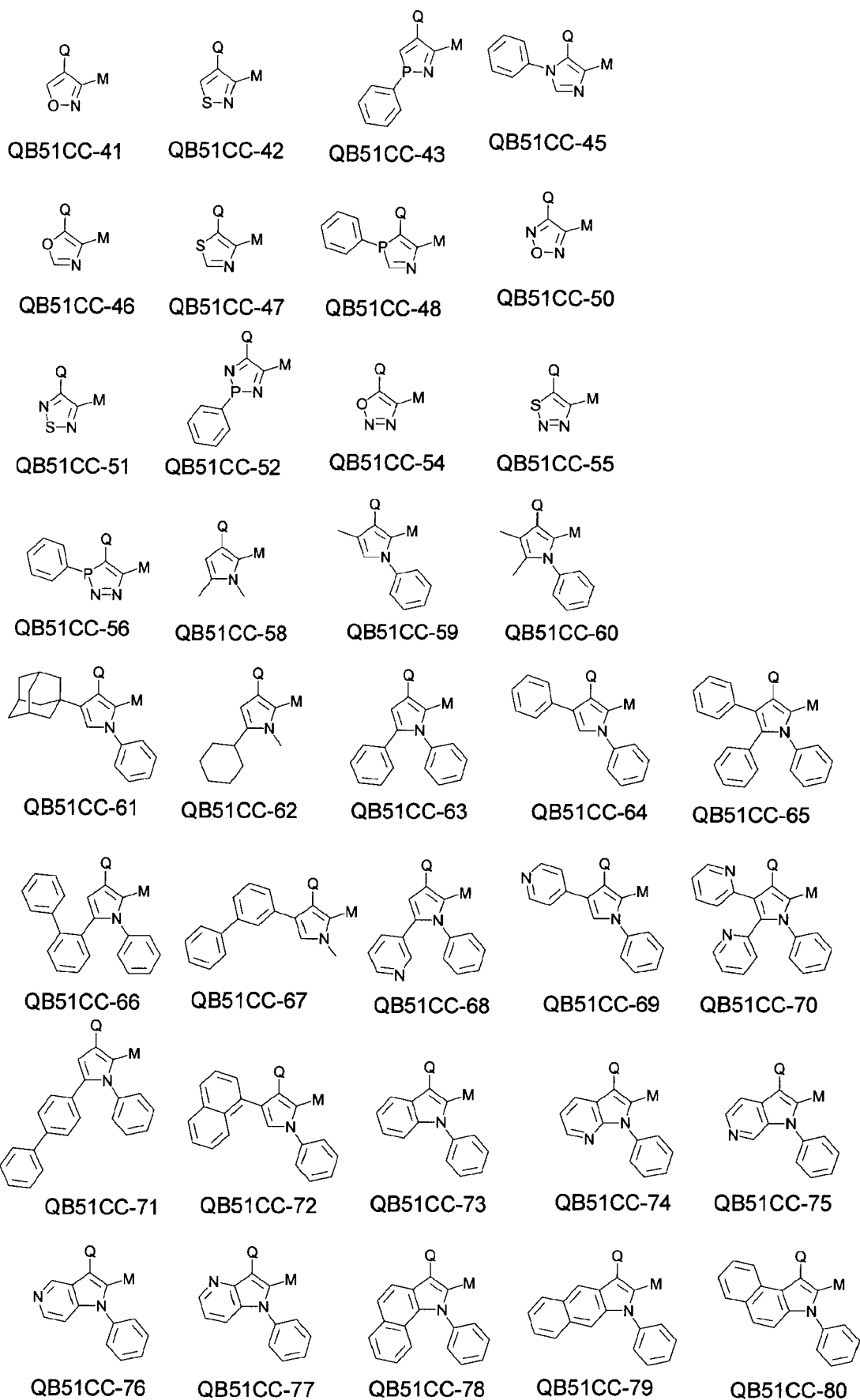
20

30

40

【 0 1 4 2 】

【化 3 1】



10

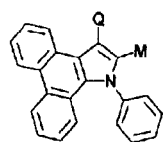
20

30

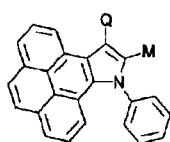
40

【0 1 4 3】

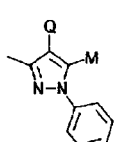
【化 3 2】



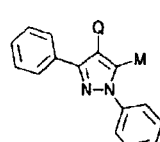
QB51CC-81



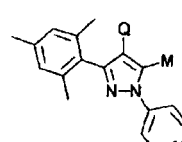
QB51CC-82



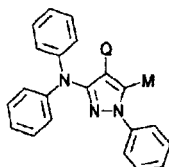
QB51CC-83



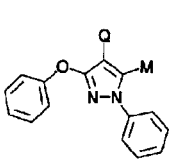
QB51CC-84



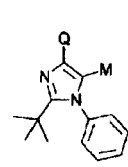
QB51CC-85



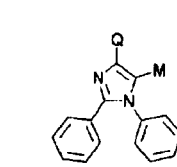
QB51CC-86



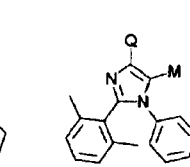
QB51CC-87



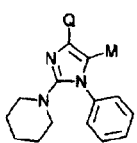
QB51CC-88



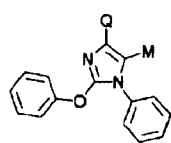
QB51CC-89



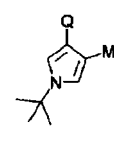
QB51CC-90



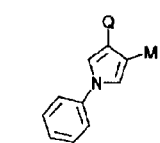
QB51CC-91



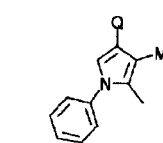
QB51CC-92



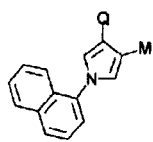
QB51CC-93



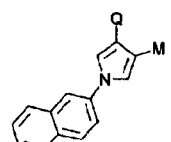
QB51CC-94



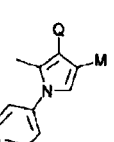
QB51CC-95



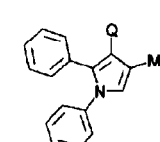
QB51CC-96



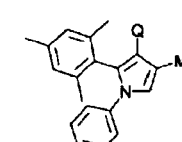
QB51CC-97



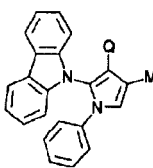
QB51CC-98



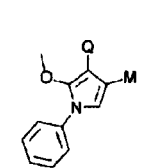
QB51CC-99



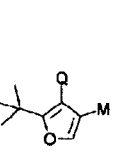
QB51CC-100



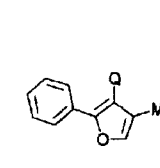
QB51CC-101



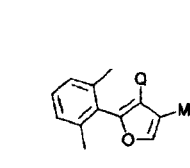
QB51CC-102



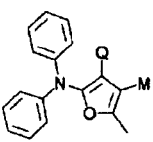
QB51CC-103



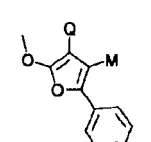
QB51CC-104



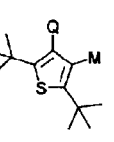
QB51CC-105



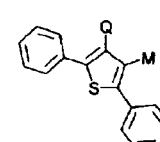
QB51CC-106



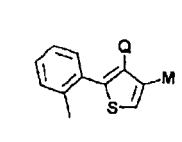
QB51CC-107



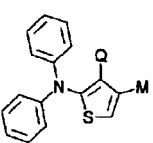
QB51CC-108



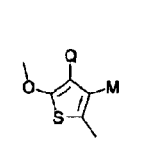
QB51CC-109



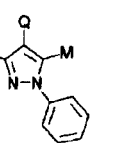
QB51CC-110



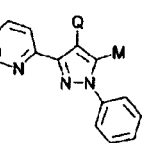
QB51CC-111



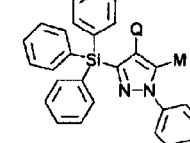
QB51CC-112



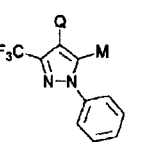
QB51CC-113



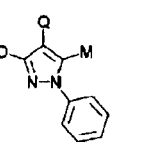
QB51CC-114



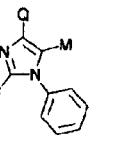
QB51CC-115



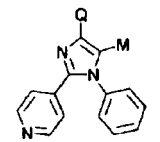
QB51CC-116



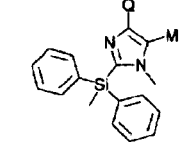
QB51CC-117



QB51CC-118



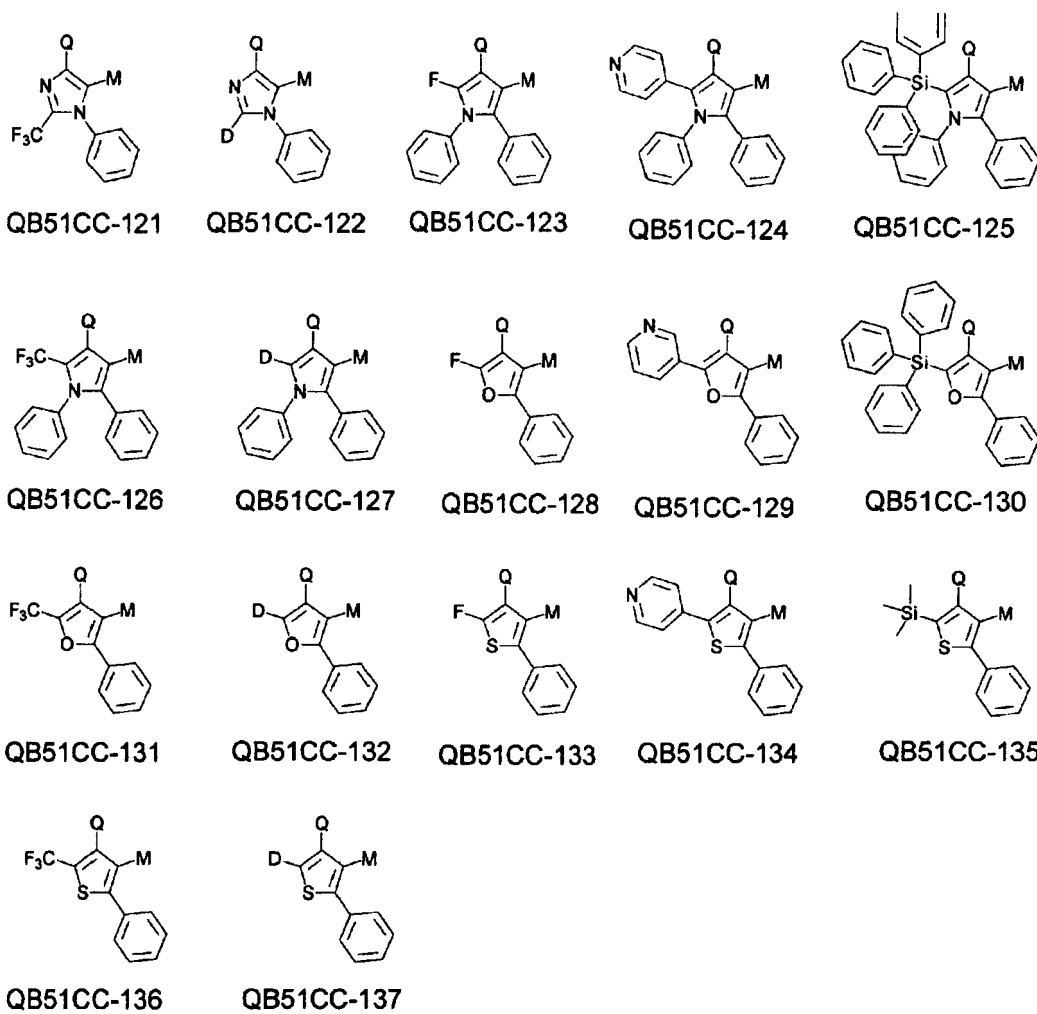
QB51CC-119



QB51CC-120

【 0 1 4 4】

【化 3 3】



10

20

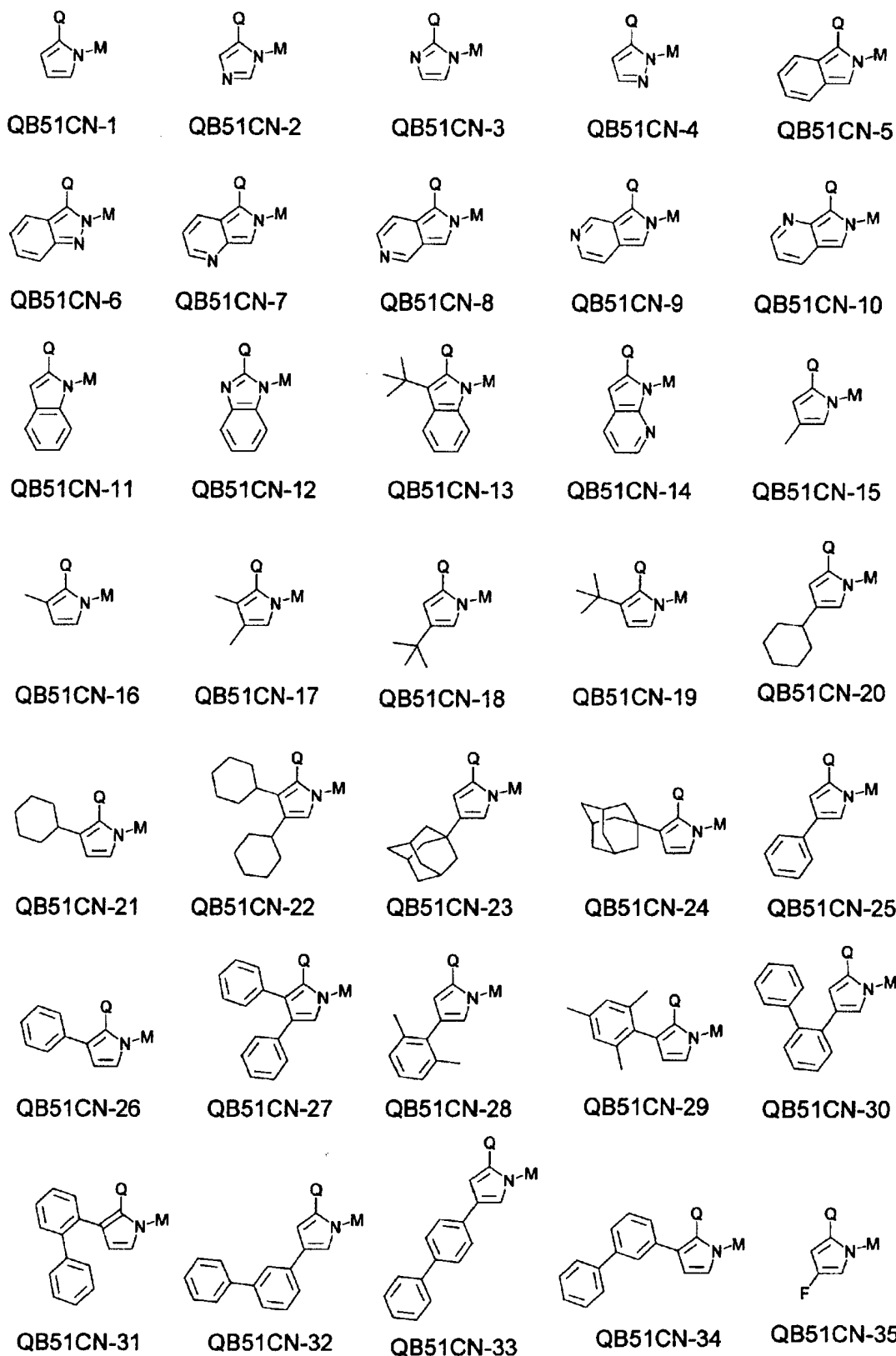
【 0 1 4 5】

[QB51CN]

【 0 1 4 6】

30

【化 3 4】



10

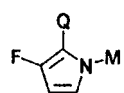
20

30

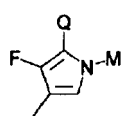
40

【 0 1 4 7 】

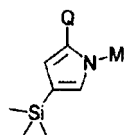
【化 3 5】



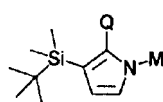
QB51CN-36



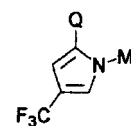
QB51CN-37



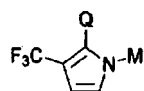
QB51CN-38



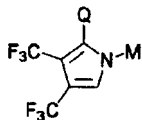
QB51CN-39



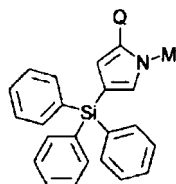
QB51CN-40



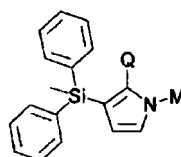
QB51CN-41



QB51CN-42



QB51CN-43



QB51CN-44

【 0 1 4 8 】

〔QB51NC〕

【 0 1 4 9 】

【化 3 6】



QB51NC-1



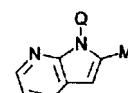
QB51NC-2



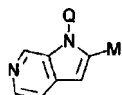
QB51NC-3



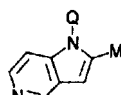
QB51NC-4



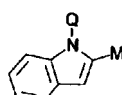
QB51NC-5



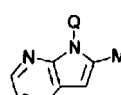
QB51NC-6



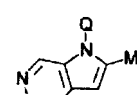
QB51NC-7



QB51NC-8

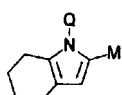


QB51NC-9

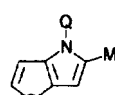


QB51NC-10

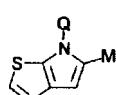
10



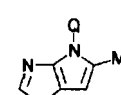
QB51NC-11



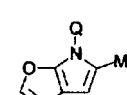
QB51NC-12



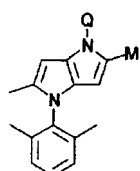
QB51NC-13



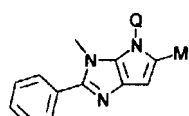
QB51NC-14



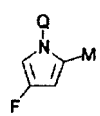
QB51NC-15



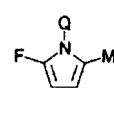
QB51NC-16



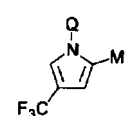
QB51NC-17



QB51NC-18

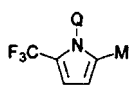


QB51NC-19



QB51NC-20

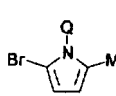
20



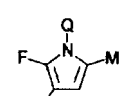
QB51NC-21



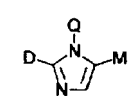
QB51NC-22



QB51NC-23

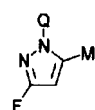


QB51NC-24

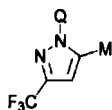


QB51NC-25

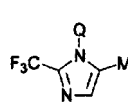
30



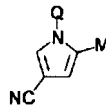
QB51NC-26



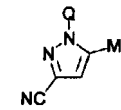
QB51NC-27



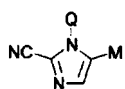
QB51NC-28



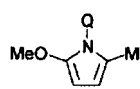
QB51NC-29



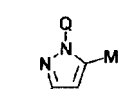
QB51NC-30



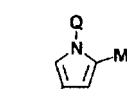
QB51NC-31



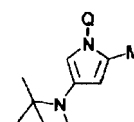
QB51NC-32



QB51NC-33



QB51NC-34

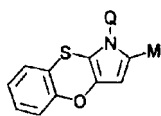


QB51NC-35

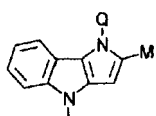
40

【 0 1 5 0 】

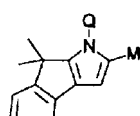
【化 37】



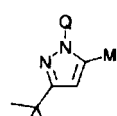
QB51NC-36



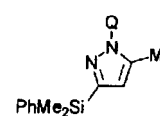
QB51NC-37



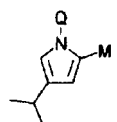
QB51NC-38



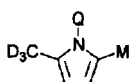
QB51NC-39



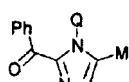
QB51NC-40



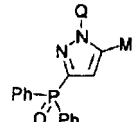
QB51NC-41



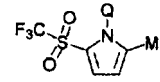
QB51NC-42



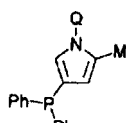
QB51NC-43



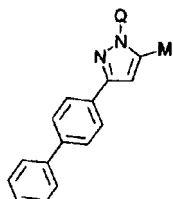
QB51NC-44



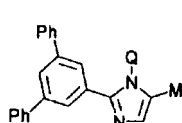
QB51NC-45



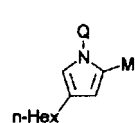
QB51NC-46



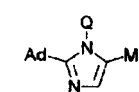
QB51NC-47



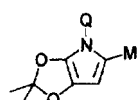
QB51NC-48



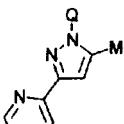
QB51NC-49



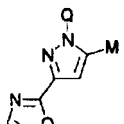
QB51NC-50



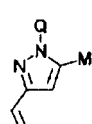
QB51NC-51



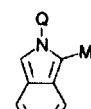
QB51NC-52



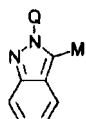
QB51NC-53



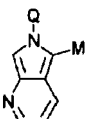
QB51NC-54



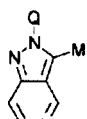
QB51NC-55



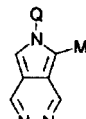
QB51NC-56



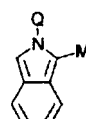
QB51NC-57



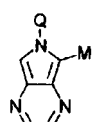
QB51NC-58



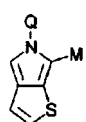
QB51NC-59



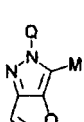
QB51NC-60



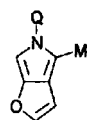
QB51NC-64



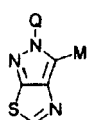
QB51NC-65



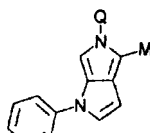
QB51NC-66



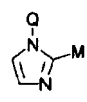
QB51NC-67



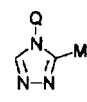
QB51NC-68



QB51NC-69



QB51NC-70



QB51NC-71



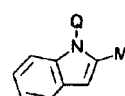
QB51NC-72



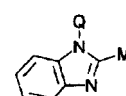
QB51NC-73



QB51NC-74



QB51NC-75



QB51NC-76

【0151】

・連結基 L に用いることのできる部分構造

[L]

10

20

30

40

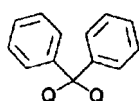
50

【 0 1 5 2 】

【 化 3 8 】



L-1



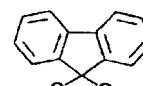
L-2



L-3



L-4



L-5



L-6



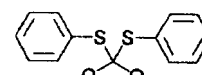
L-7



L-8



L-9

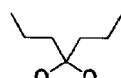


L-10

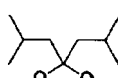
10



L-11



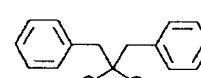
L-12



L-13



L-14



L-15



L-16



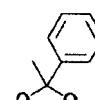
L-17



L-18



L-19



L-20

20



L-21



L-22



L-23



L-24



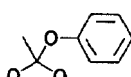
L-25



L-26



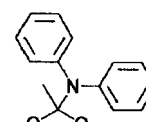
L-27



L-28



L-29



L-30

30



L-31



L-32



L-33



L-34



L-35

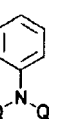
40



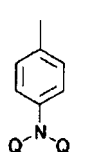
L-36



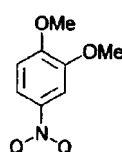
L-37



L-38



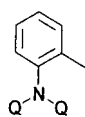
L-39



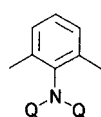
L-40

【 0 1 5 3 】

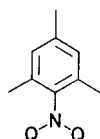
【化 3 9】



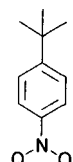
L-41



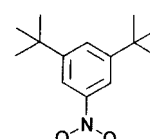
L-42



L-43



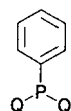
L-44



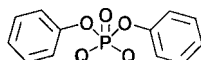
L-45



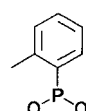
L-46



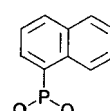
L-47



L-48



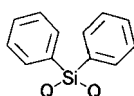
L-49



L-50



L-51



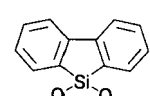
L-52



L-53



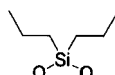
L-54



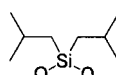
L-55



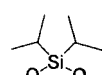
L-56



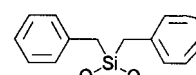
L-57



L-58



L-59



L-60



L-61



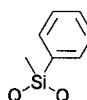
L-62



L-63



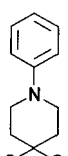
L-64



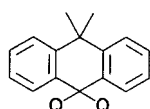
L-65



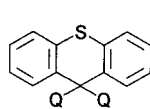
L-66



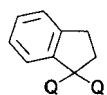
L-67



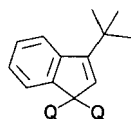
L-68



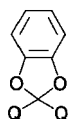
L-70



L-71



L-72



L-73



L-74



L-75

10

20

30

40

【 0 1 5 4 】

【化 4 0】



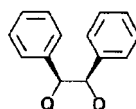
L-76



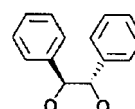
L-77



L-78



L-79



L-80



L-81



L-82



L-83



L-84



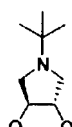
L-85



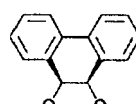
L-86



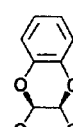
L-87



L-88



L-89



L-90



L-91



L-92



L-93



L-94



L-95



L-96



L-97



L-98



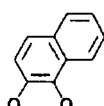
L-99



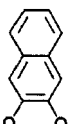
L-100



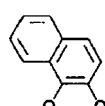
L-101



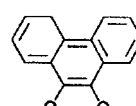
L-102



L-103



L-104



L-105



L-106



L-107



L-108



L-109



L-110

10

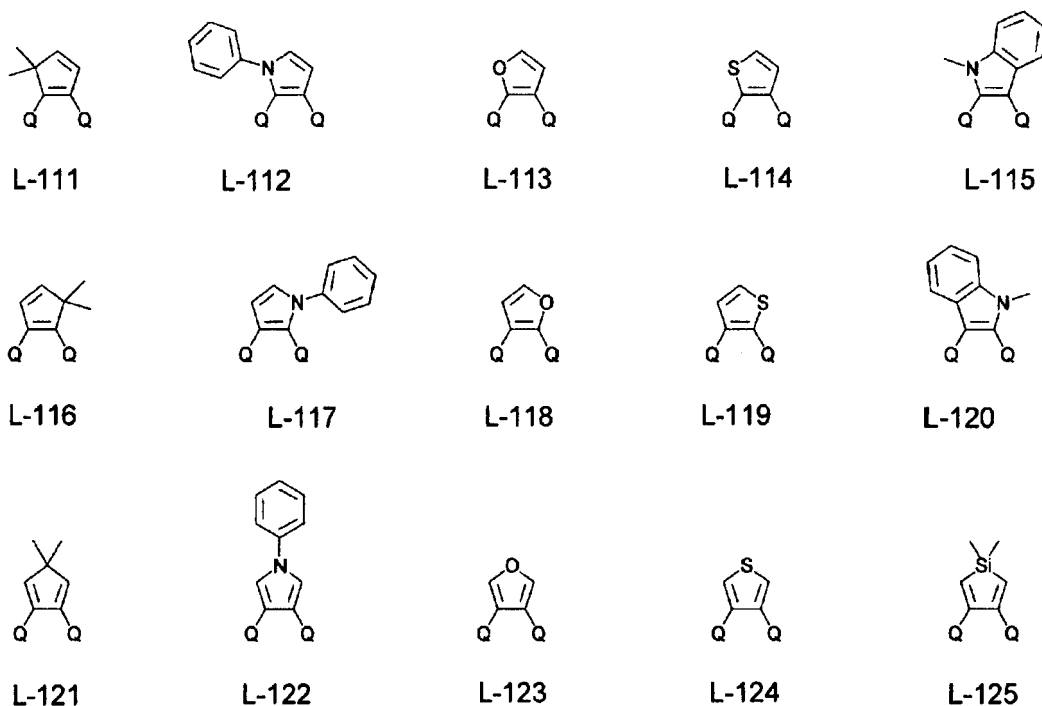
20

30

40

【 0 1 5 5】

【化 4 1】



10

20

【0156】

本発明の一般式（1）で表される化合物は、一般式（I）において、表1に示されるQ^A、Q^B、Q^C、Q^Dに対応する部分構造群の組み合わせ1～3で、表すことができる。

【0157】

【表1】

	Q ^A	Q ^B	Q ^C	Q ^D
組み合わせ1	QB61CC	QT60CN	QT60CN	QB51CC
組み合わせ2	QB61CC	QT60CN	QT60CN	QB51CN
組み合わせ3	QB61CC	QT60CN	QT60CN	QB51NC

30

【0158】

以下に、一般式（1）で表される金属錯体の好ましい具体例を例示するが、本発明はこれらに限定されることはない。

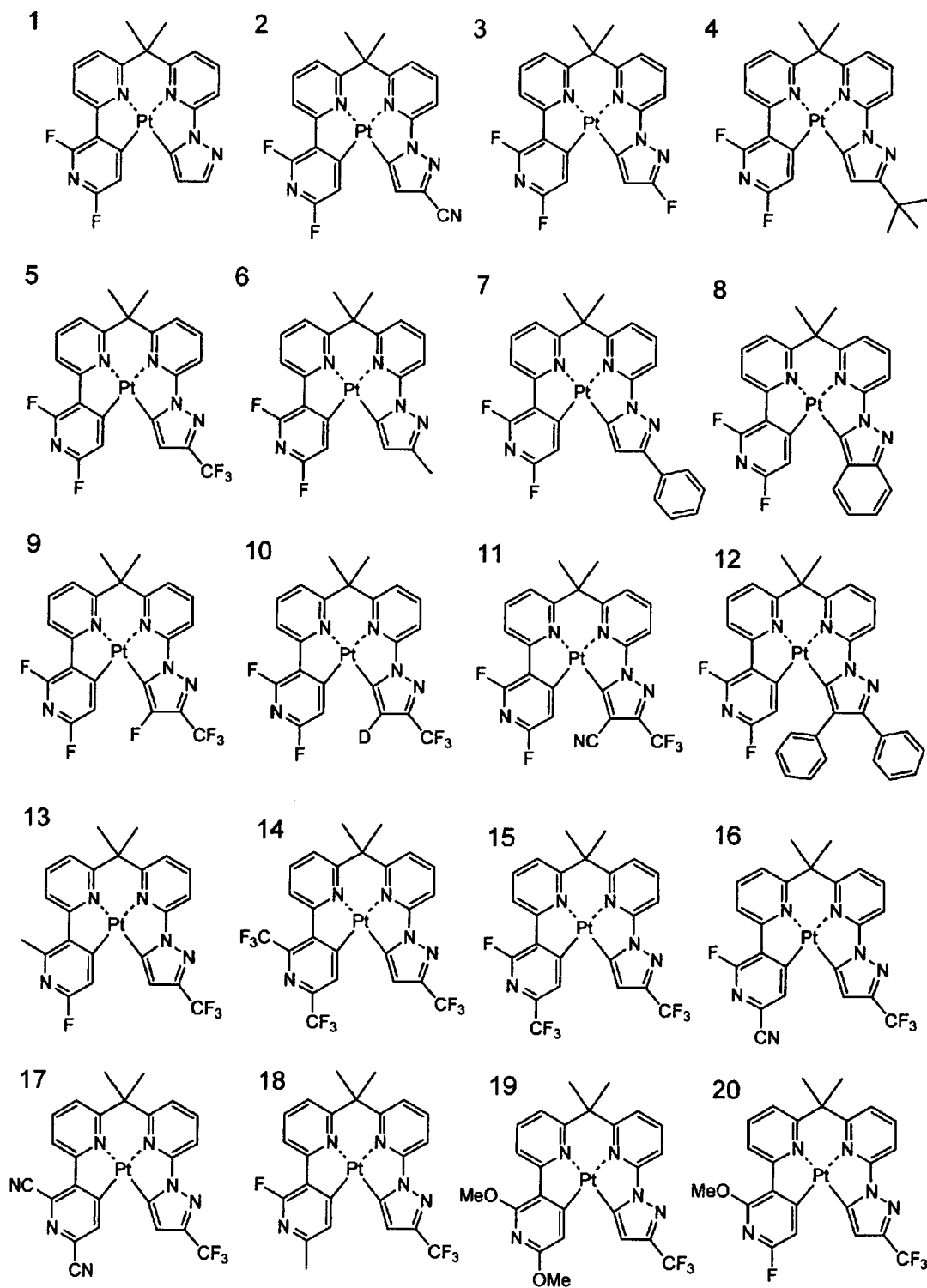
【0159】

本明細書において、化合物番号は、「金属種－化合物例に記載の化合物番号」を使用する。例えば、化合物例に記載の化合物番号が「1」かつ金属種が「白金」の場合、「Pt-1」と表記する。

40

【0160】

【化 4 2】



10

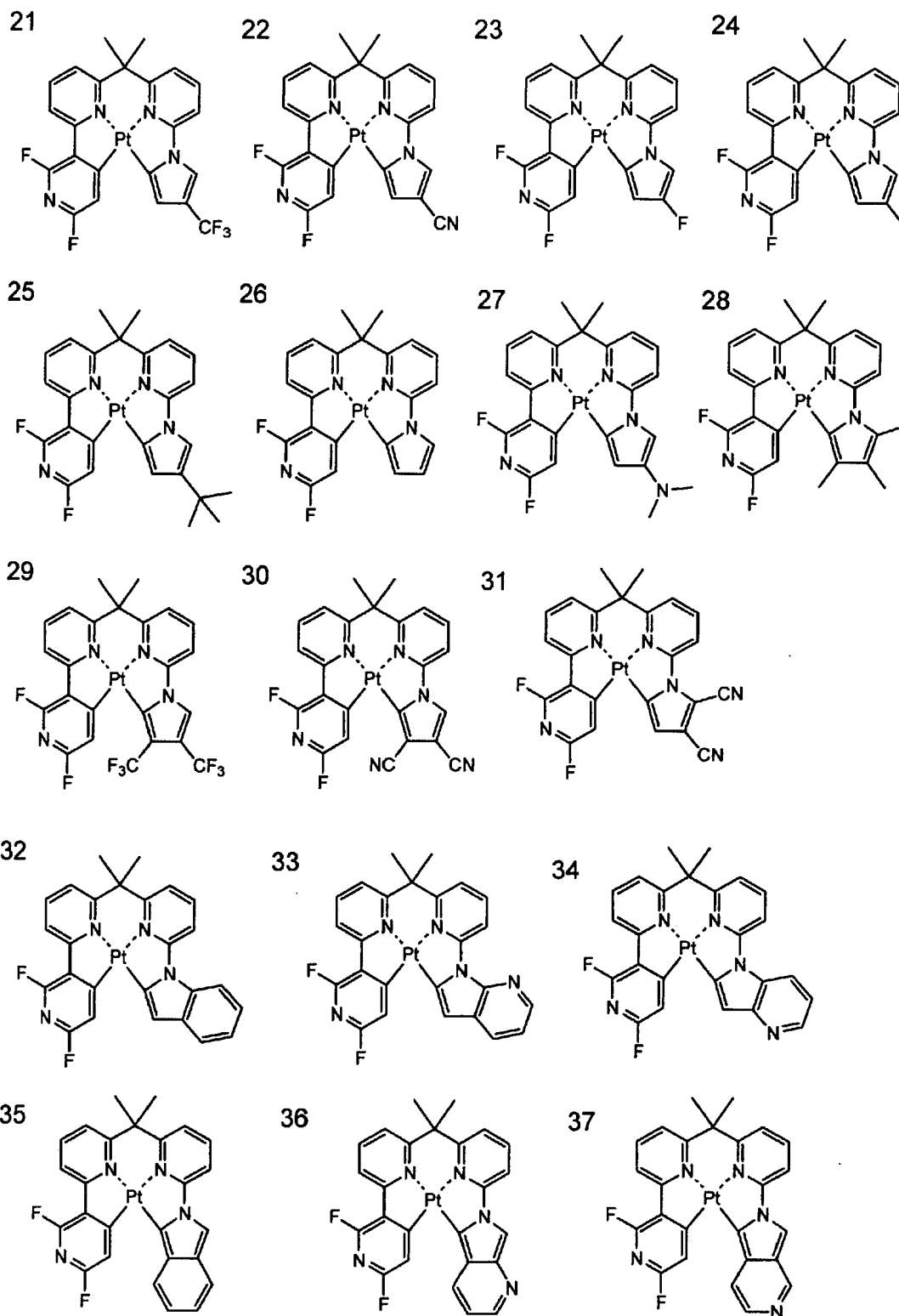
20

30

40

【0161】

【化 4 3】



10

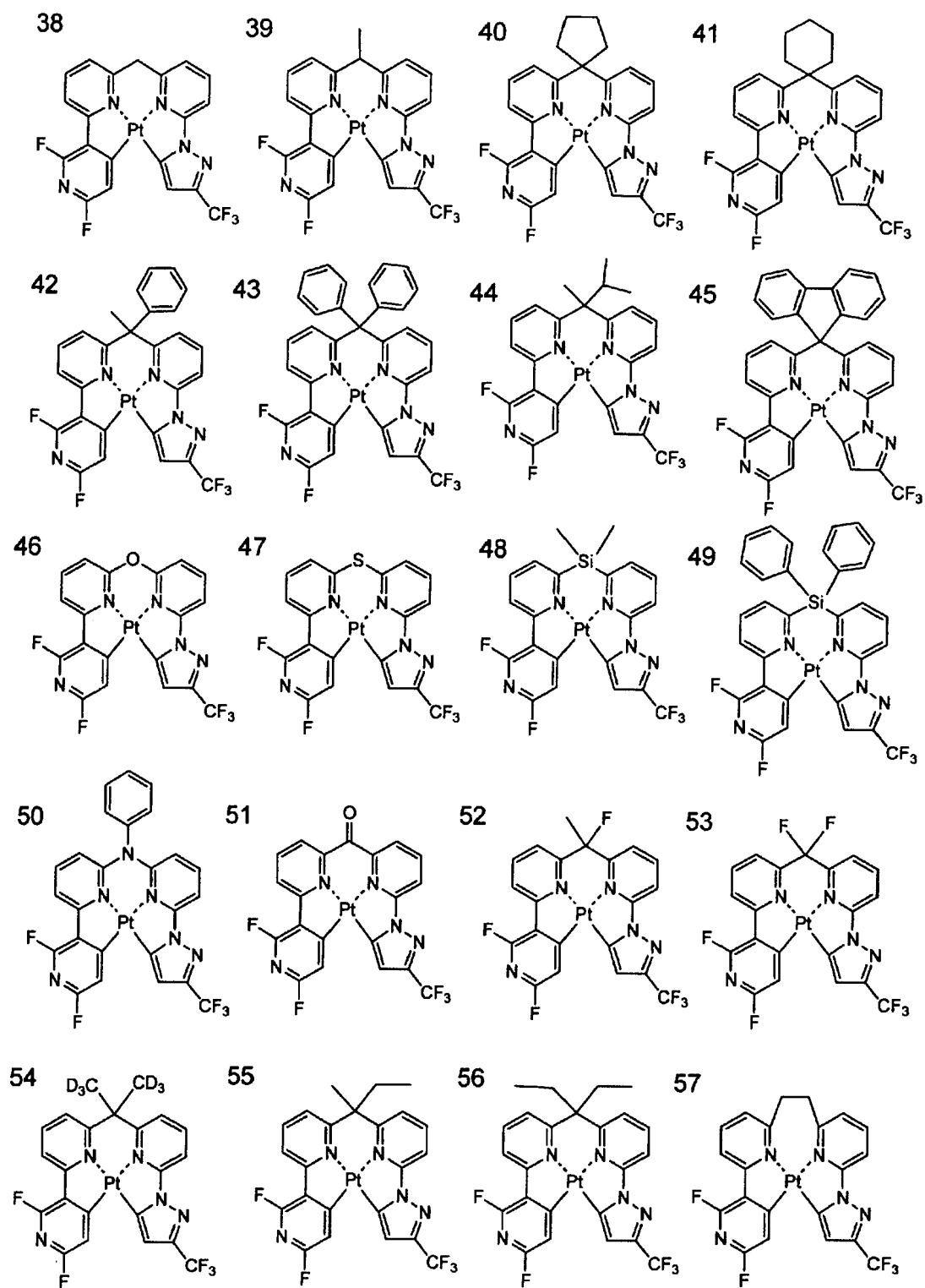
20

30

40

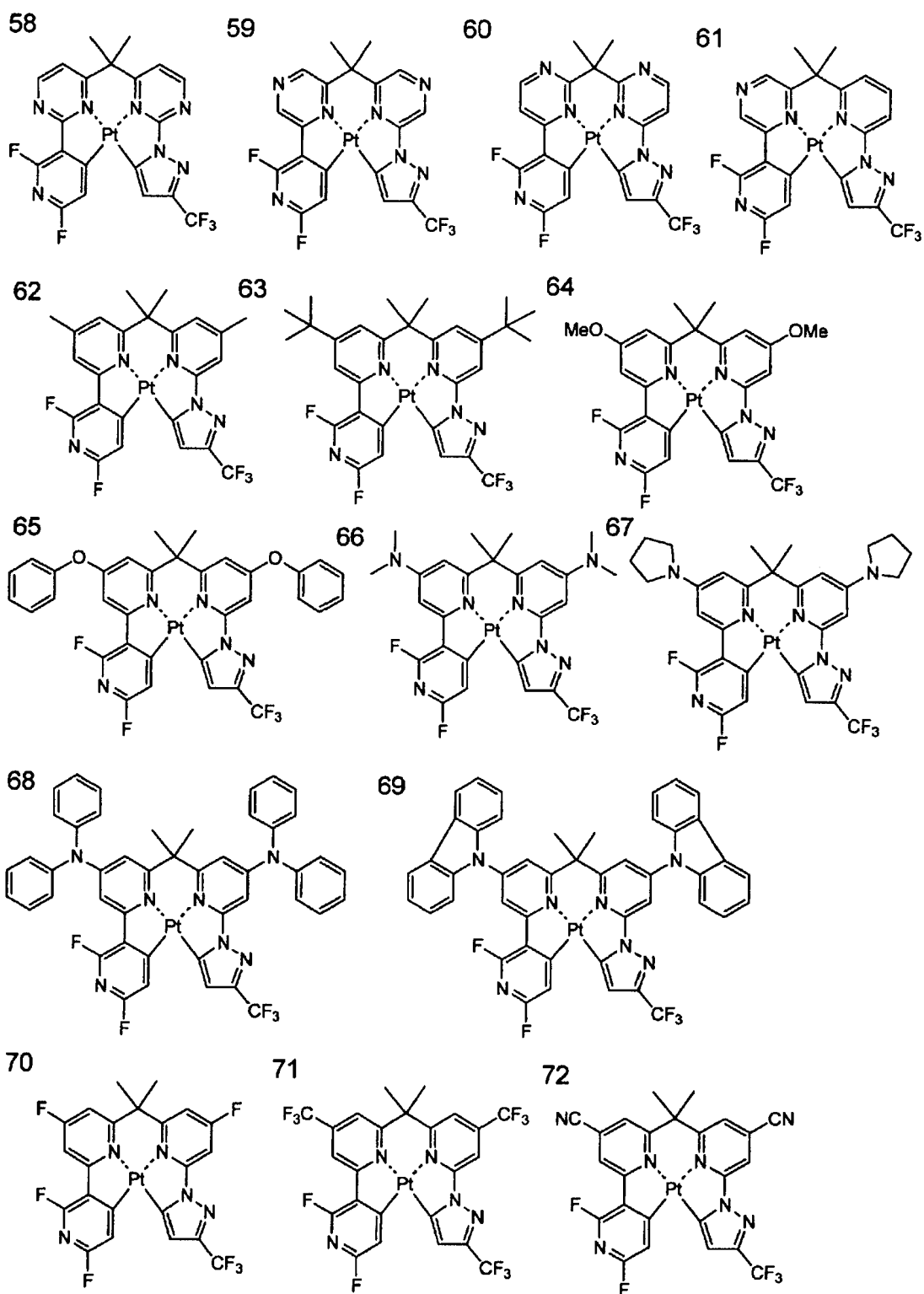
【 0 1 6 2】

【化 4 4】



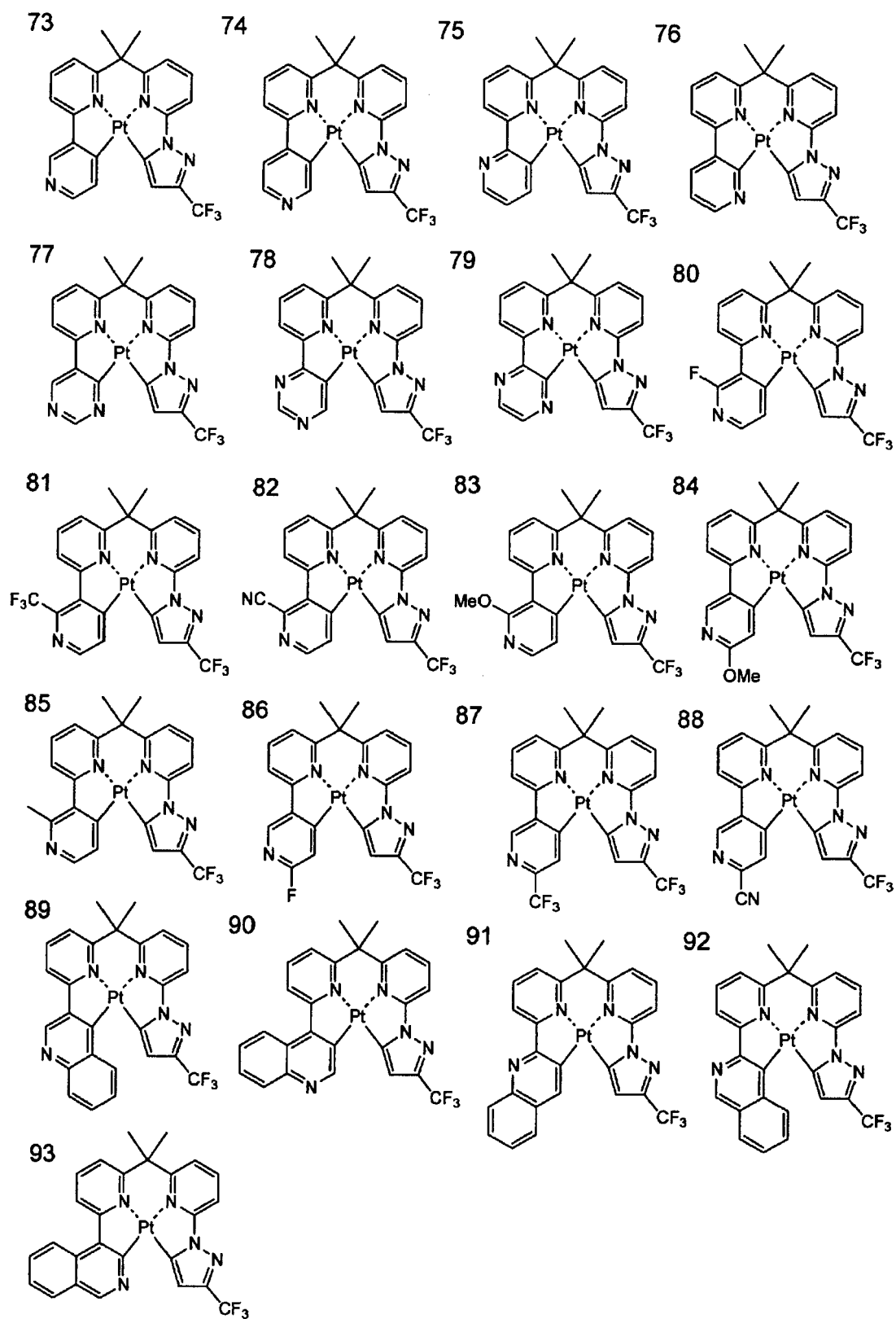
【 0 1 6 3 】

【化 4 5】



【 0 1 6 4 】

【化 4 6】



10

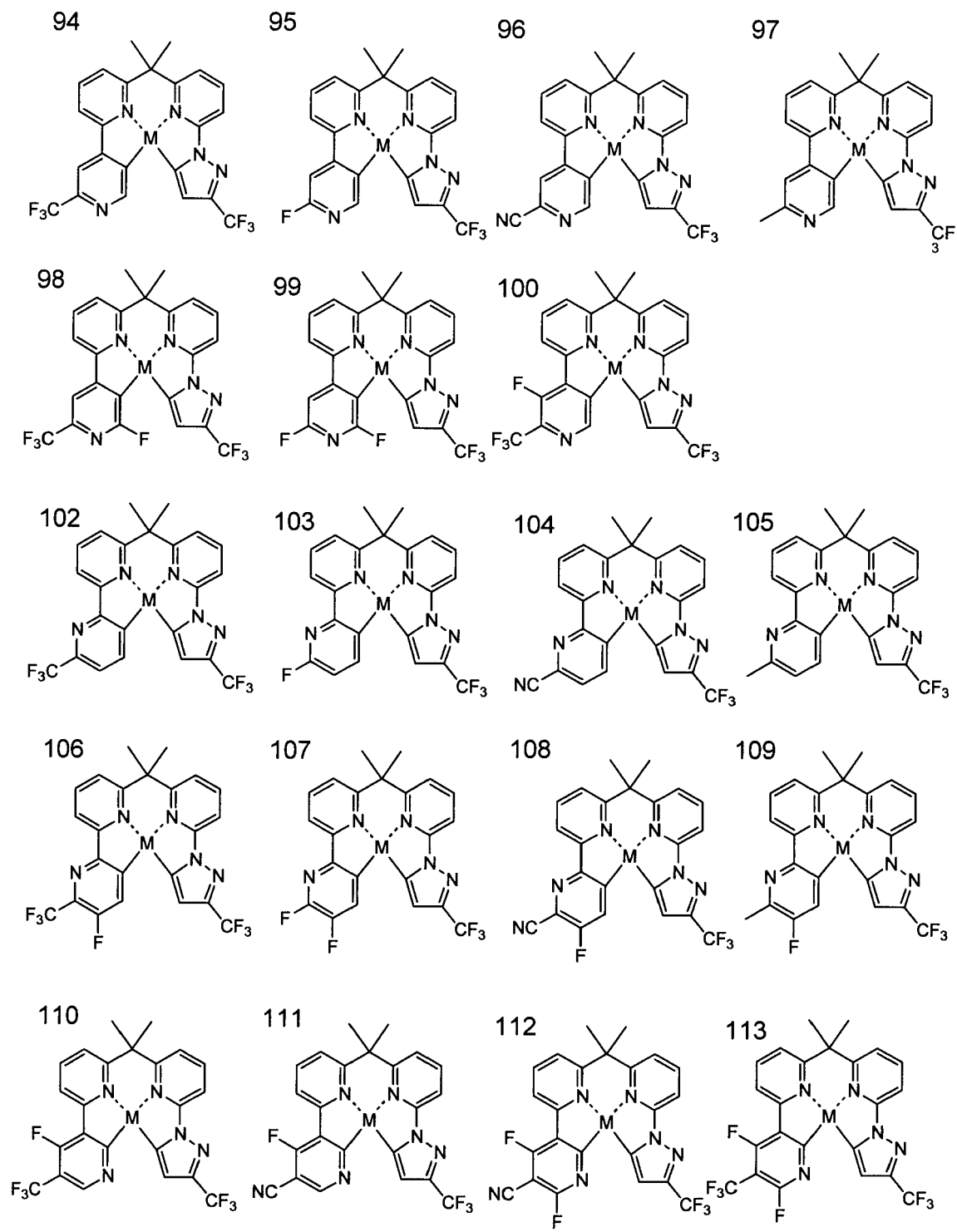
20

30

40

【 0 1 6 5】

【化 4 7】



10

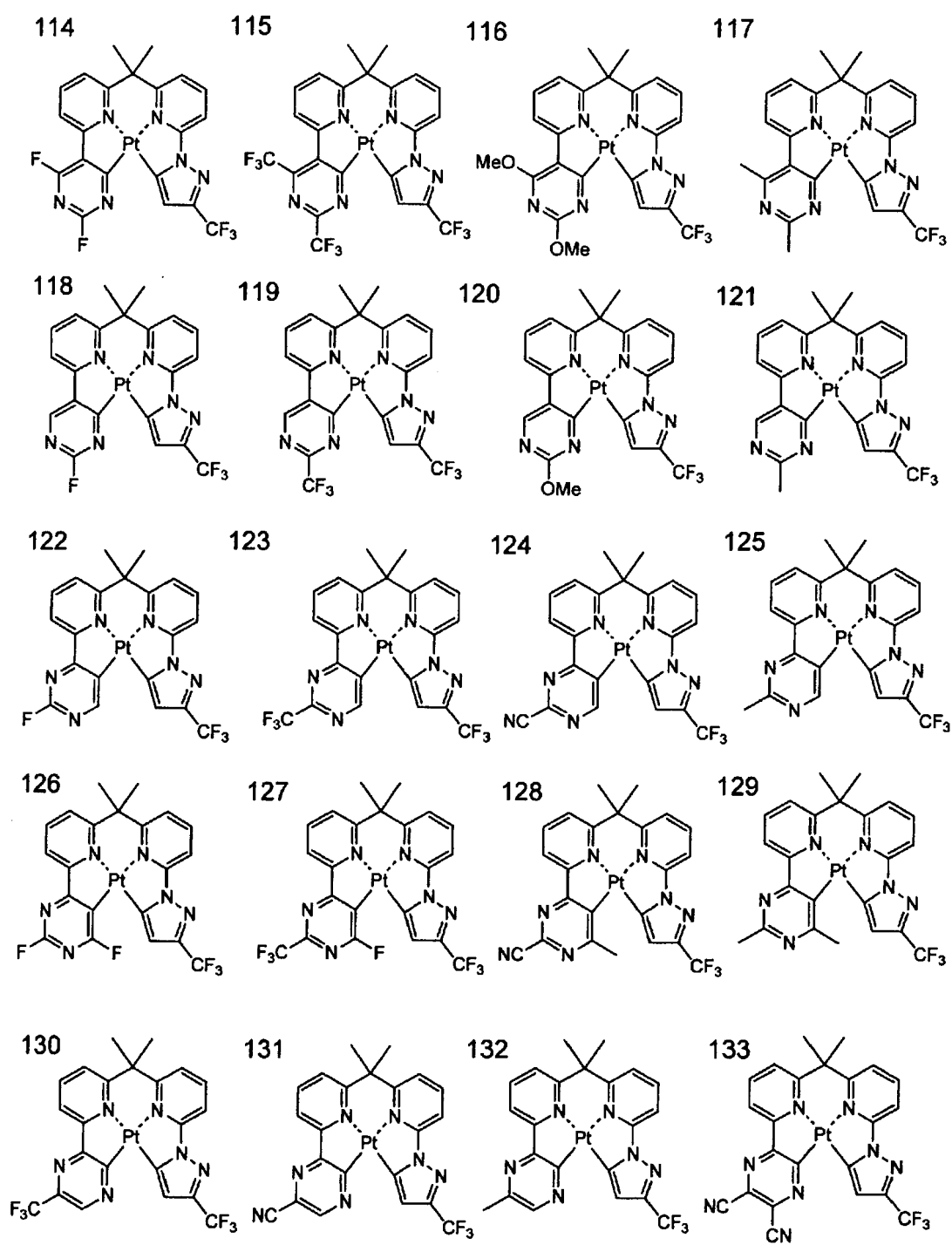
20

30

40

【 0 1 6 6 】

【化 4 8】



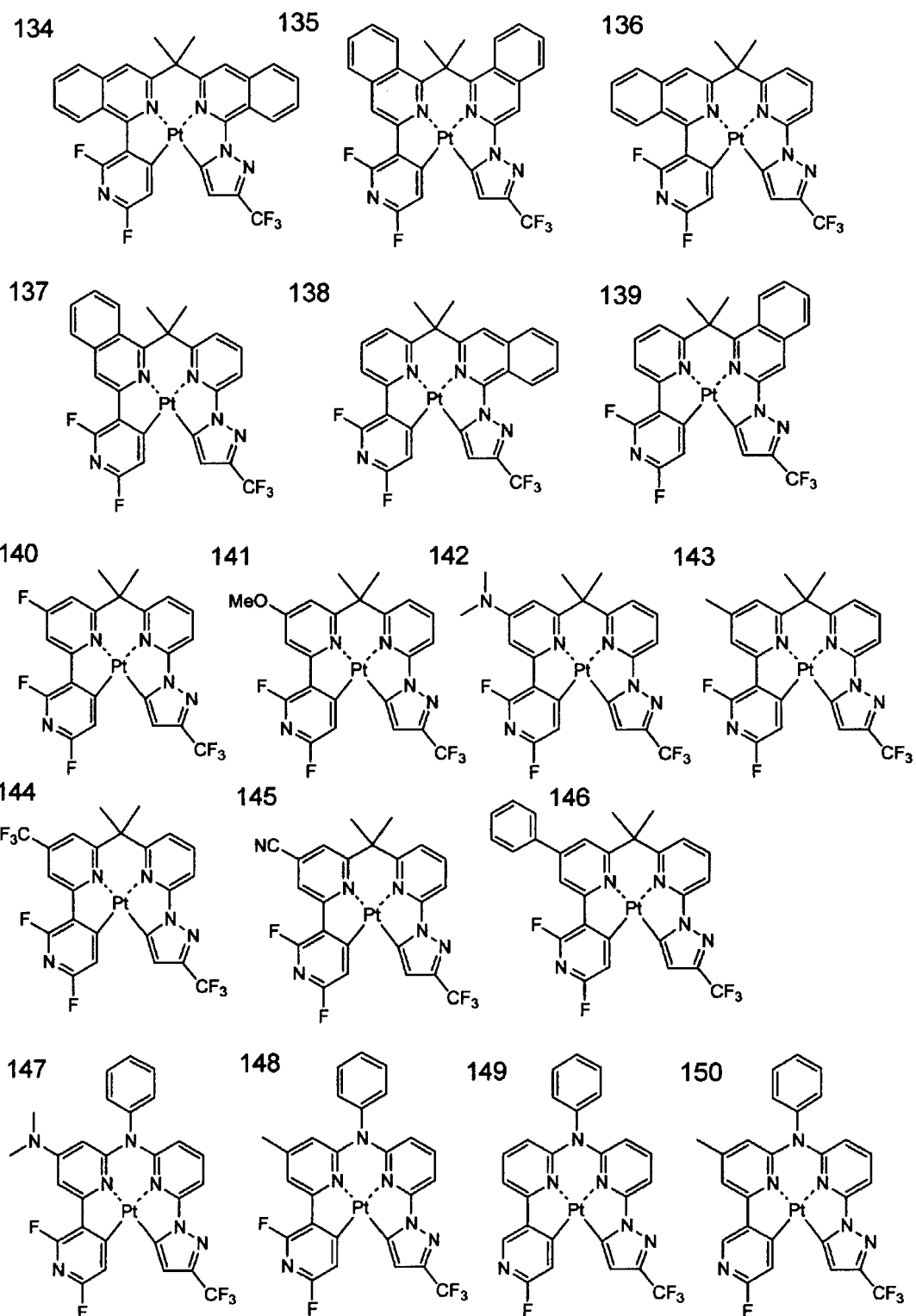
10

20

30

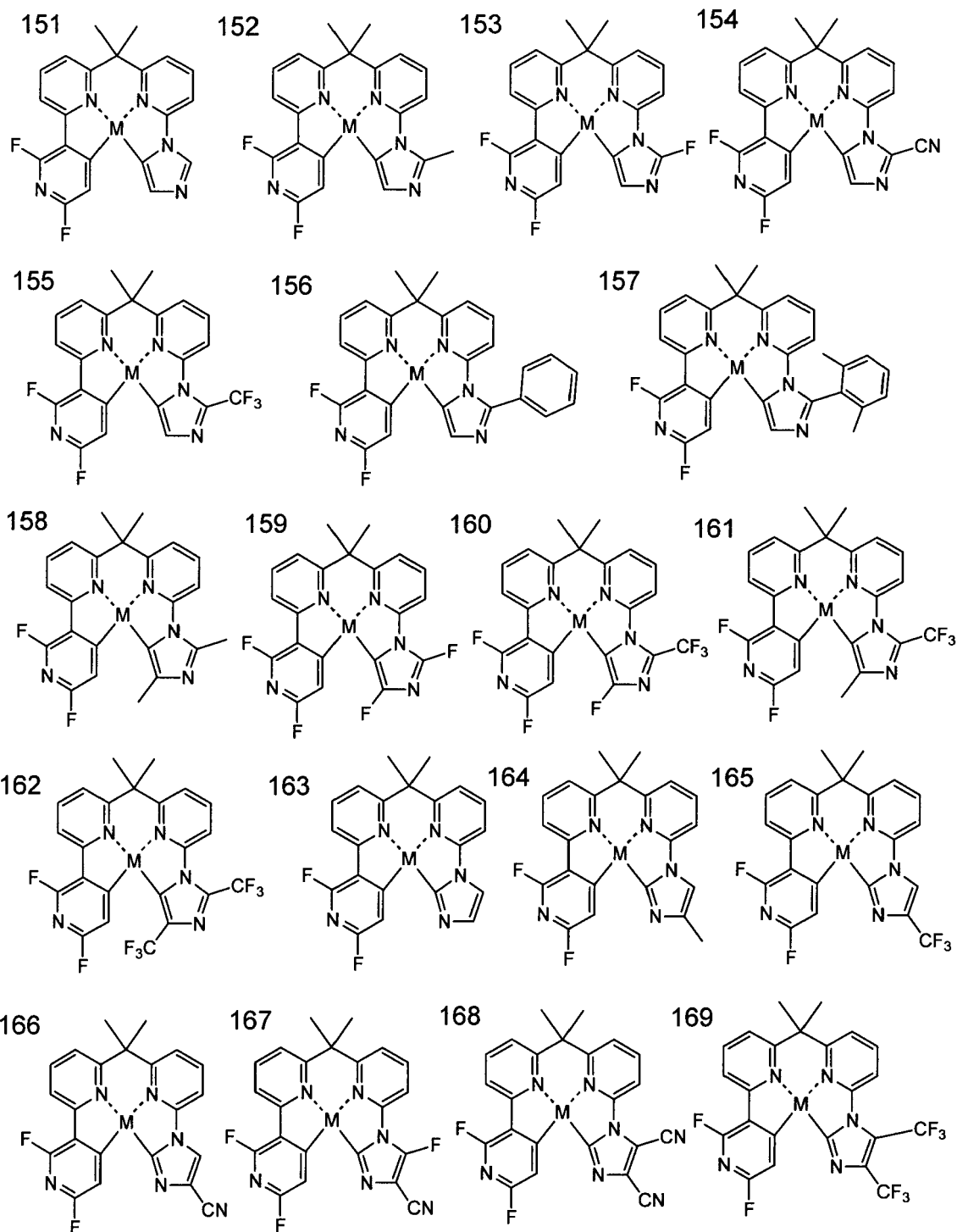
【 0 1 6 7 】

【化 4 9】



【 0 1 6 8 】

【化 5 0】



【 0 1 6 9】

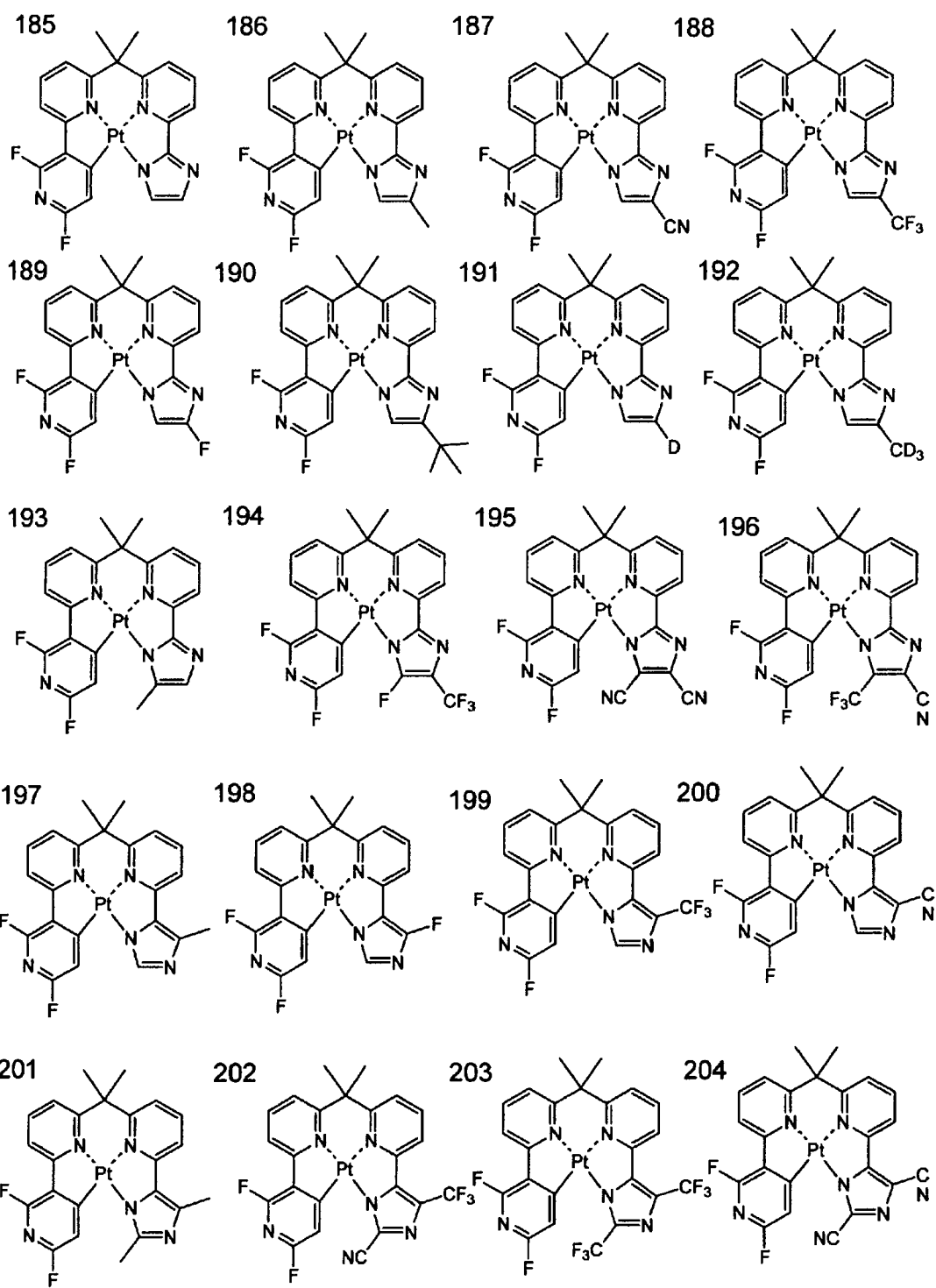
10



30

【 0 1 7 0 】

【化 5 2】



10

20

30

40

【0171】

10

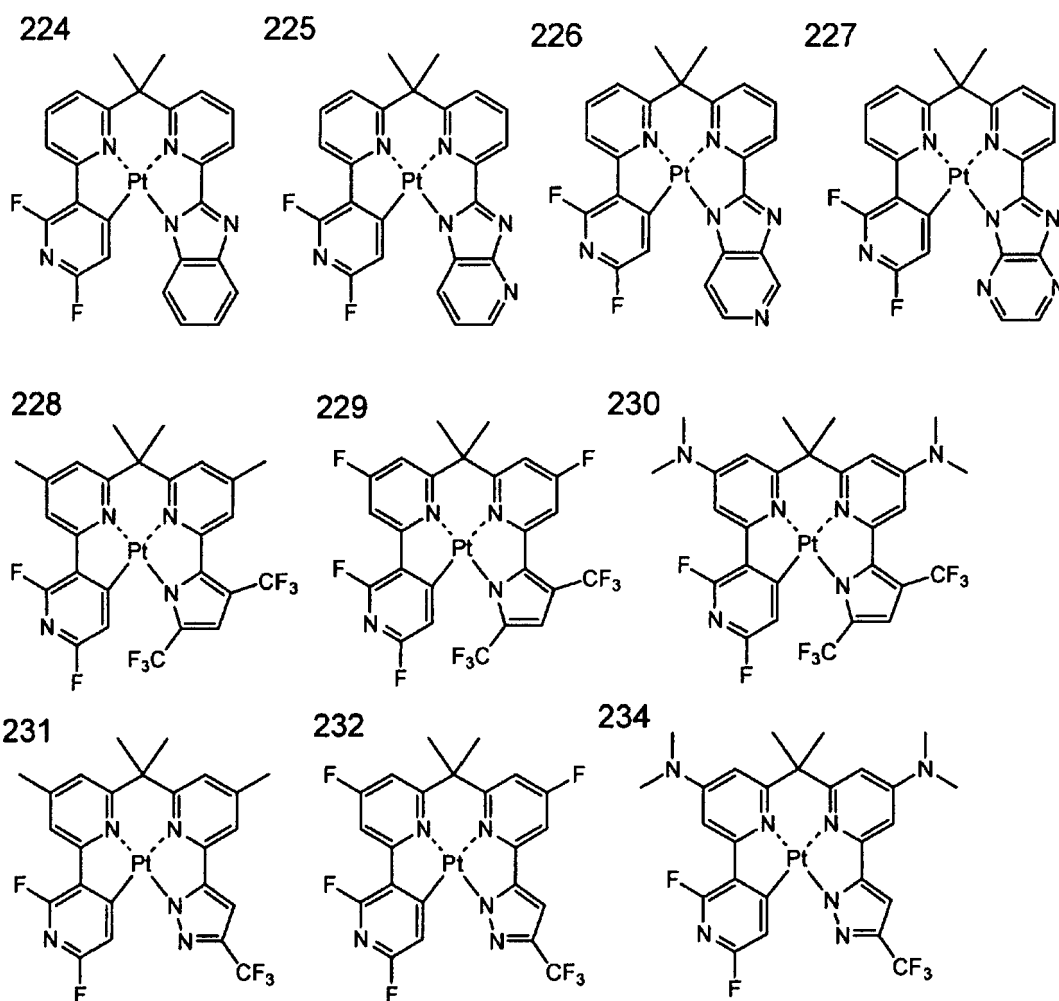


30

40

【 0 1 7 2 】

【化 5 4】



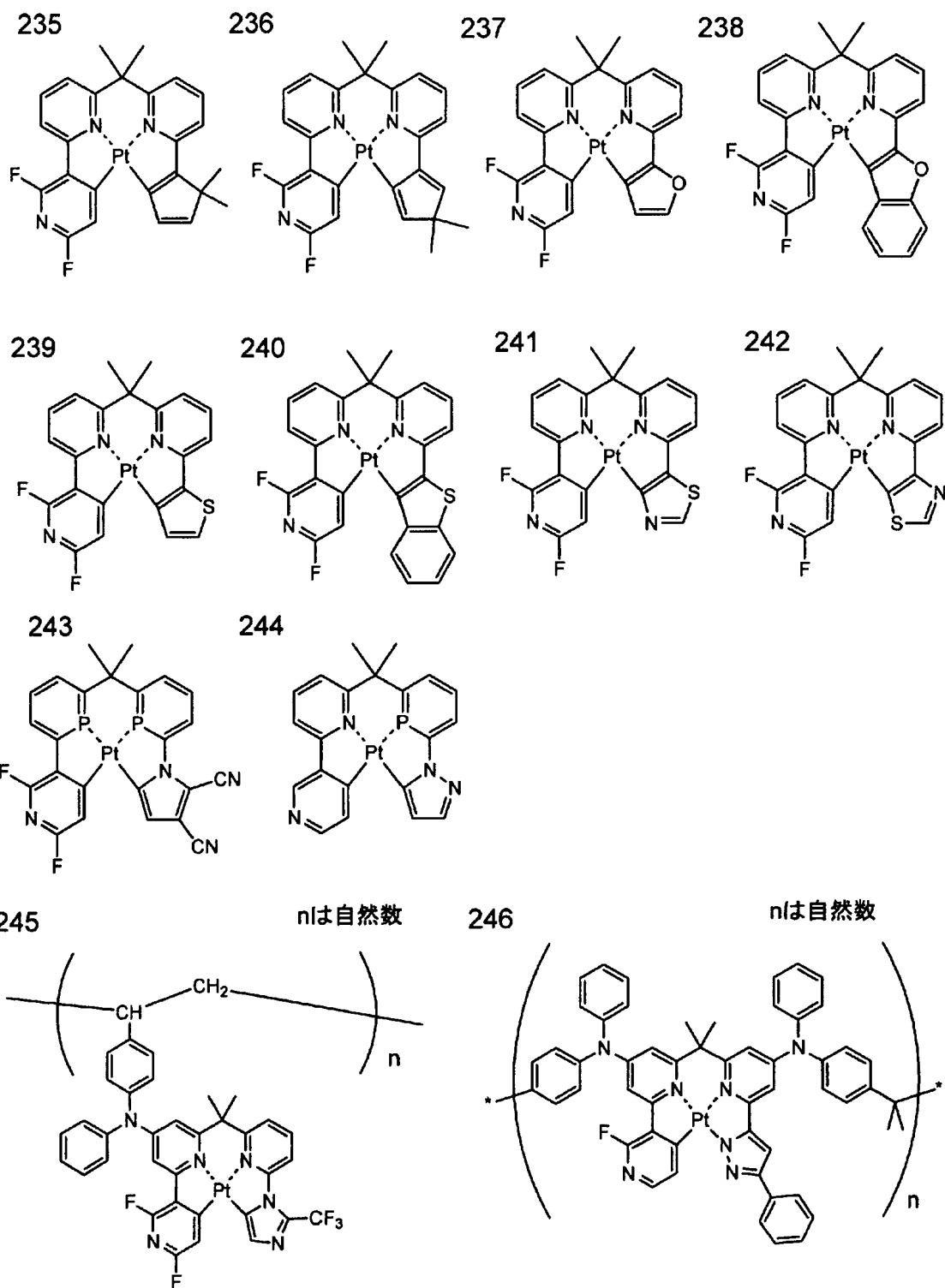
10

20

【 0 1 7 3 】

30

【化 5 5】



10

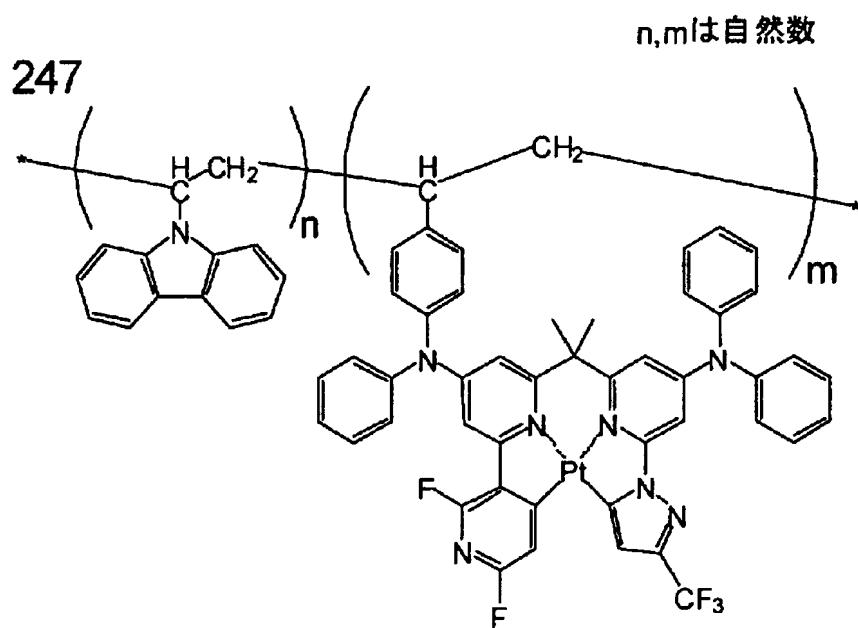
20

30

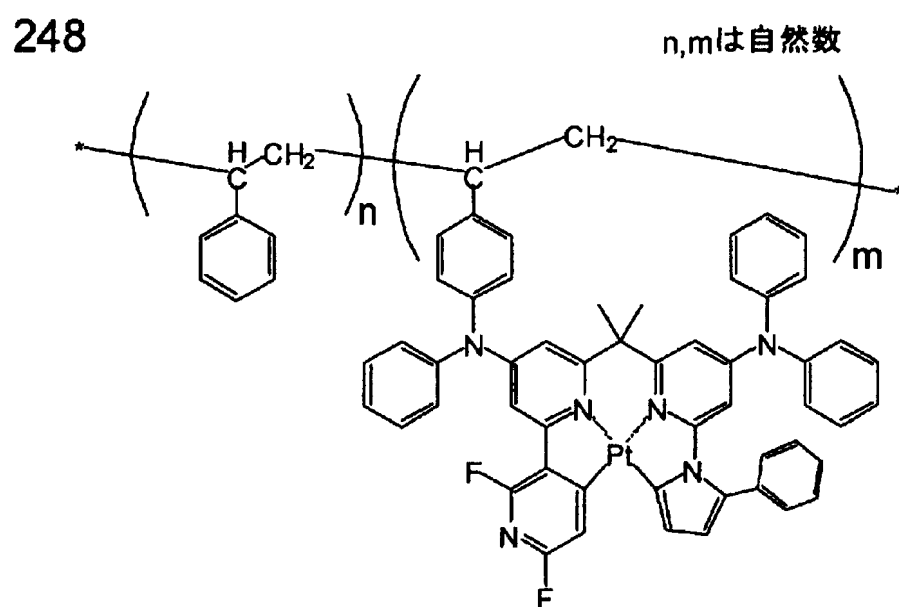
40

【 0 1 7 4】

【化 5 6】



10

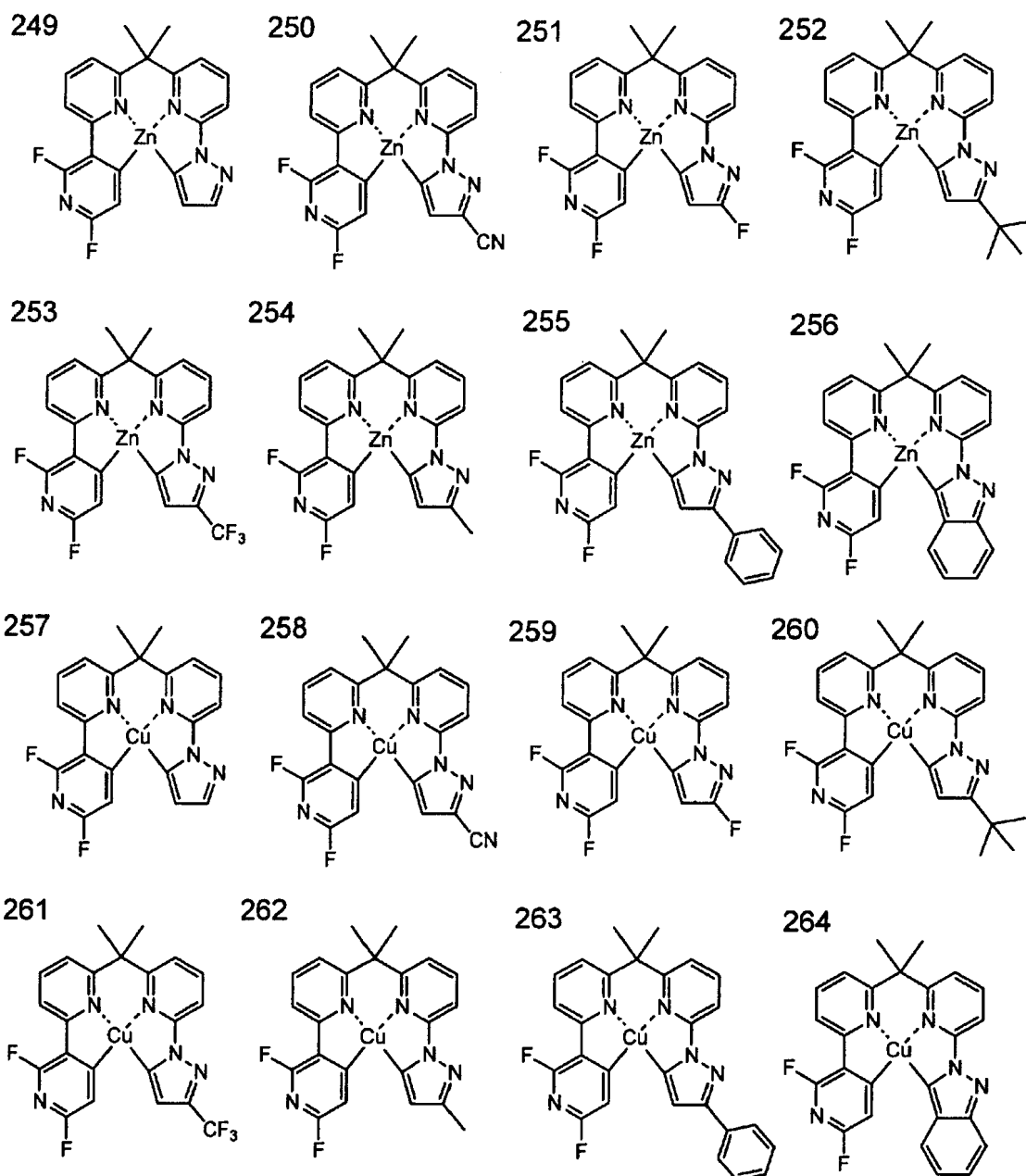


20

30

【 0 1 7 5 】

【化 5 7】



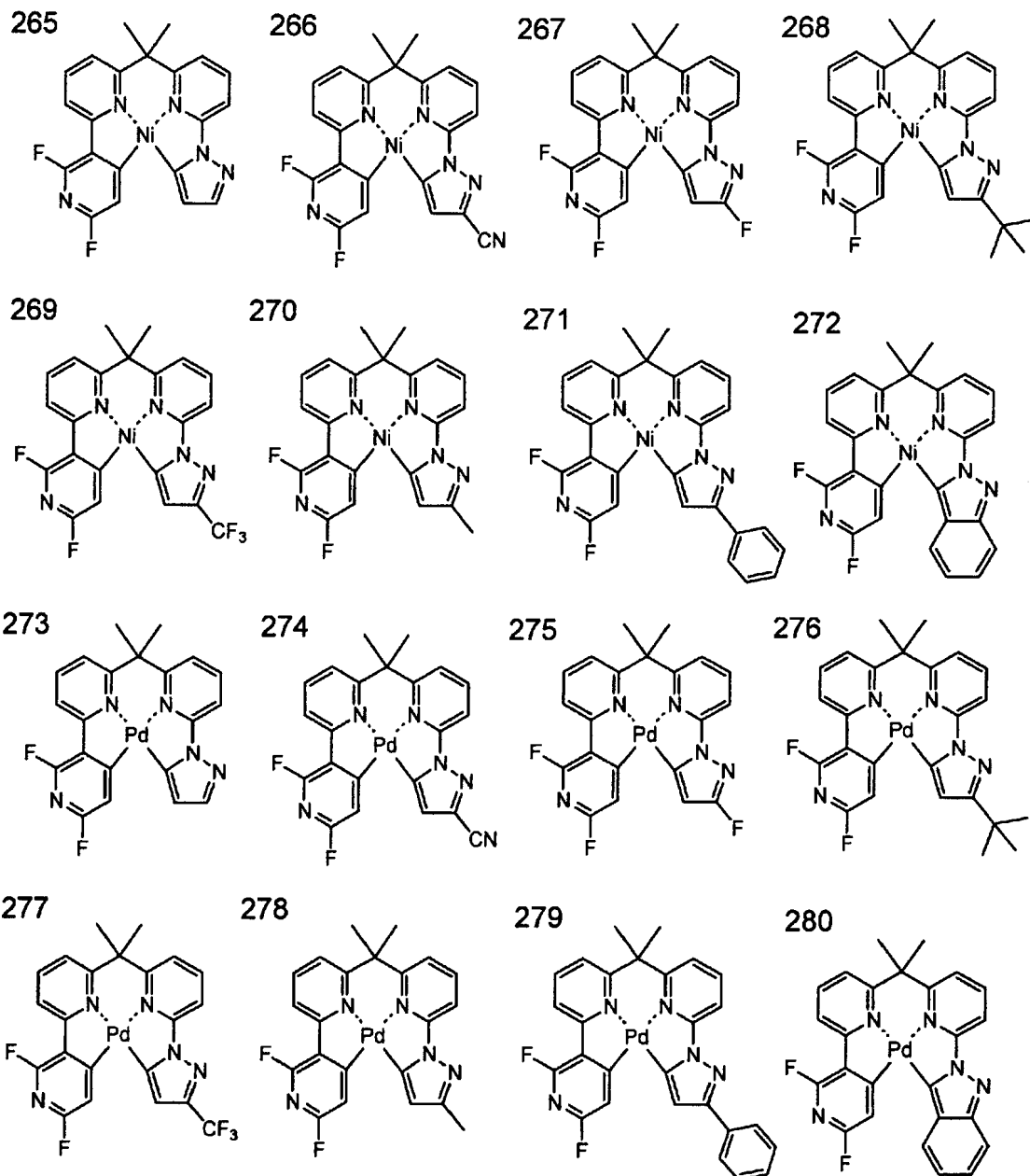
10

20

30

【 0 1 7 6 】

【化 5 8】



10

20

30

【0177】

次に、一般式(1)で表される金属錯体の製造方法を説明する。

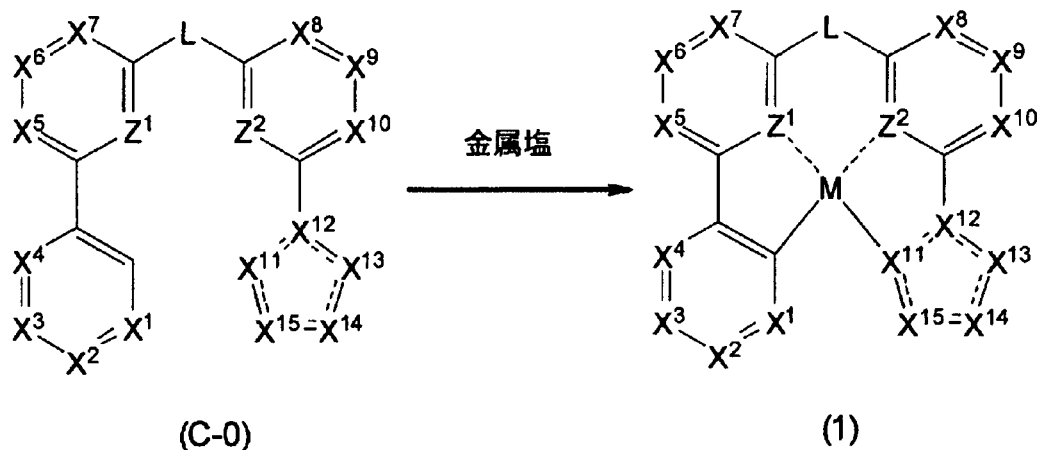
【0178】

一般式(1)で表される金属錯体は、溶媒存在下、一般式(C-0)(以下、配位子とも呼ぶ)で表される化合物と金属塩とを反応させることにより得ることができる。

40

【0179】

【化 5 9】



10

【0180】

一般式 (C-0) 中、 X^1 、 X^2 、 X^3 、 X^4 、 X^5 、 X^6 、 X^7 、 X^8 、 X^9 、 X^{10} 、 X^{11} 、 X^{12} 、 X^{13} 、 X^{14} 、 X^{15} 、 Z^1 、 Z^2 、 L 、及び M は、前記一般式 (1) の X^1 、 X^2 、 X^3 、 X^4 、 X^5 、 X^6 、 X^7 、 X^8 、 X^9 、 X^{10} 、 X^{11} 、 X^{12} 、 X^{13} 、 X^{14} 、 X^{15} 、 Z^1 、 Z^2 、 L 、及び M と同義であり、好ましい範囲も同様である。

20

【0181】

金属錯体の製造において、配位子との錯体形成反応時に用いられる 2 価の亜鉛を含むものとして、ジクロロ (N, N, N', N'-テトラメチレンジアミン) 亜鉛、酢酸亜鉛、銅アセチルアセトナート、臭化亜鉛、塩化亜鉛、フッ化亜鉛等が挙げられ、より好ましい銅塩としては、臭化亜鉛、塩化亜鉛等のハロゲン化亜鉛が挙げられる。

【0182】

金属錯体の製造において、配位子との錯体形成反応時に用いられる 2 価の銅を含むものとして、酢酸銅、銅アセチルアセトナート、臭化銅、塩化銅、フッ化銅、炭酸銅、シアニ化銅、水酸化銅、酸化銅、硫酸銅、トリフルオロ酢酸銅等が挙げられ、より好ましい銅塩としては、臭化銅、塩化銅、フッ化銅等のハロゲン化銅が挙げられる。

30

【0183】

金属錯体の製造において、配位子との錯体形成反応時に用いられる 2 価のニッケルを含むものとしては、酢酸ニッケル、ニッケルアセチルアセトナート、塩化ニッケル、臭化ニッケル、フッ化ニッケル、ヨウ化ニッケル、硝酸ニッケル、硫酸ニッケル等が挙げられ、より好ましいニッケル塩としては、塩化ニッケル、臭化ニッケル等のハロゲン化ニッケルが挙げられる。

【0184】

金属錯体の製造において、配位子との錯体形成反応時に用いられる 2 価のパラジウムを含むものとして、塩化パラジウム、臭化パラジウム、ヨウ化パラジウム、酢酸パラジウム、パラジウムアセチルアセトナート、パラジウムヘキサフルオロアセチルアセトナート、パラジウムトリフルオロアセテート、アリルパラジウムクロライドダイマー、(2, 2'-ビピリジン) ジクロロパラジウム、ビス (ベンゾニトリル) ジクロロパラジウム、ビス (アセトニトリル) ジクロロパラジウム、(ビシクロ [2. 2. 1] ヘプター-2, 5-ジエン) ジクロロパラジウム、ジクロロ (1, 5-シクロオクタジエン) パラジウム、ジプロモビス (トリフェニルホスフィン) パラジウム、ジクロロ (N, N, N', N'-テトラメチルエチレンジアミン) パラジウム、ジクロロ (1, 10-フェナントロリン) パラジウム、ジクロロビス (トリフェニルホスフィン) パラジウム、アンモニウムテトラクロロパラデート、ジアンミンジプロモパラジウム、ジアンミンジクロロパラジウム、ジアンミンジヨードパラジウム、ポタッシウムテトラプロモパラデート、ポタッシウムテトラクロロパラデート、ソジウムテトラクロロパラデート等、0 価のパラジウムを含むものと

40

50

しては、テトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム、トリス（ジベンジリデンアセトン）ジパラジウム等が挙げられる。

【0185】

より好ましいパラジウム塩としては、塩化パラジウム、臭化パラジウム等のハロゲン化パラジウム、ビス（ベンゾニトリル）ジクロロパラジウム、ビス（アセトニトリル）ジクロロパラジウム等のニトリル錯体、（ビスクロ〔2. 2. 1〕ヘプター2, 5-ジエン）ジクロロパラジウム、ジクロロ（1, 5-シクロオクタジエン）パラジウム等のオレフィン錯体が挙げられ、この中でも塩化白金、臭化白金等のハロゲン化パラジウム、ビス（ベンゾニトリル）ジクロロパラジウム、ビス（アセトニトリル）ジクロロパラジウム等のニトリル錯体が更に好ましい。

10

【0186】

金属錯体の製造において、配位子との錯体形成反応時に、用いられる白金塩としては、2価の白金を含むものとして、塩化白金、臭化白金、ヨウ化白金、プラチナアセチルアセトナート、ビス（ベンゾニトリル）ジクロロプラチナ、ビス（アセトニトリル）ジクロロプラチナ、ジクロロ（1, 5-シクロオクタジエン）プラチナ、ジプロモビス（トリフェニルホスフィン）プラチナ、ジクロロ（1, 10-フェナントロリン）プラチナ、ジクロロビス（トリフェニルホスフィン）プラチナ、アンモニウムテトラクロロパラデート、ジアミンジプロモパラジウム、ジアミンジクロロプラチナ、ジアミンジヨードプラチナ、ポタッシウムテトラプロモプラチナート、ポタッシウムテトラクロロプラチナート、ソジウムテトラクロロプラチナート、ジメチルビス（ジメチルスルホキシド）白金、ジメチルビス（ジメチルスルフィド）白金、ジメチル（ビスクロ〔2. 2. 1〕ヘプター2, 5-ジエン）白金等が挙げられる。

20

【0187】

より好ましい白金塩としては、塩化白金、臭化白金、ヨウ化白金等のハロゲン化白金、ビス（ベンゾニトリル）ジクロロプラチナ、ビス（ベンゾニトリル）、ジクロロプラチナビス（アセトニトリル）ジクロロプラチナ等のニトリル錯体、ジクロロ（1, 5-シクロオクタジエン）プラチナ等のオレフィン錯体、が挙げられ、この中でも塩化白金、臭化白金等のハロゲン化白金、ビス（ベンゾニトリル）ジクロロプラチナ、ビス（アセトニトリル）ジクロロプラチナ等のニトリル錯体が更に好ましい。

30

【0188】

金属錯体の製造において使用する金属塩は、結晶水、結晶溶媒、配位溶媒を含んでいてもよい。金属の価数は、特に問わないが、金属が、2価と0価が好ましく、より好ましくは2価である。

【0189】

金属錯体の製造において、金属塩と配位子の錯体形成反応時に用いる金属塩の使用量は、該金属塩中に錯体を形成する金属原子が1つ含まれる場合は、通常、配位子1モルに対して0. 1～10モル、好ましくは0. 5～5モル、更に好ましくは、1～3モルである。なお、金属塩に錯体を形成する金属原子が、n個含まれる場合は、その使用量は、1/n倍でよい。

40

【0190】

金属錯体の製造において、金属塩と配位子の錯体形成反応時に使用される溶媒としては、例えば、N, N-ジメチルホルムアミド、ホルムアミド、N, N-ジメチルアセトアミド等のアミド類、アセトニトリル、プロピオニトリル、ブチロニトリル、ベンゾニトリル等のニトリル類、ジクロロメタン、1, 2-ジクロロエタン、クロロホルム、4塩化炭素、クロロベンゼン、o-ジクロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類、ペンタン、ヘキサン、オクタン、デカン等の脂肪族炭化水素類、ベンゼン、トルエン、キシレン、メシチレン等の芳香族炭化水素類、ジエチルエーテル、ジイソプロピルエーテル、ブチルエーテル、tert-ブチルメチルエーテル、1, 2-ジメトキシエタン、テトラヒドロフラン、1, 4-ジオキサン等のエーテル類、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン等のケトン類、メタノール、エタノール、1-プロパノール、2-プロパノール、

50

t e r t -ブチルアルコール、2-メトキシエタノール、2-エトキシエタノール、エチレングリコール、グリセリン等のアルコール類、水等が挙げられる。

【0191】

より好ましい溶媒としては、アセトニトリル、プロピオニトリル、ブチロニトリル、ベンゾニトリル等のニトリル類、ベンゼン、トルエン、キシレン、メシチレン等の芳香族炭化水素類、メタノール、エタノール、1-プロパノール、2-プロパノール、t e r t -ブチルアルコール、2-メトキシエタノール、2-エトキシエタノール、エチレングリコール、グリセリン等のアルコール類が挙げられ、この中でもアセトニトリル、プロピオニトリル、ブチロニトリル、ベンゾニトリル等のニトリル類、ベンゼン、トルエン、キシレン、メシチレン等の芳香族炭化水素類が更に好ましい。

10

【0192】

これらの溶媒は、単独で使用しても、2種類以上混合して使用しても構わない。

【0193】

金属錯体の製造において、金属塩と配位子の錯体形成反応時に用いられる溶媒の量としては、反応が十分に進行できる量であれば特に制限されないが、通常は使用する配位子に対して、1~200倍体積量、好ましくは5~100倍体積量が好ましい。

【0194】

金属錯体の製造において、金属塩と配位子の錯体形成反応時に、ハロゲン化水素等の酸性物質が生成する場合、塩基性物質の存在下で反応を行っても構わない。塩基性物質としては、トリエチルアミン、ジイソプロピルエチルアミン、ピリジン、1,8-ジメチルアミノナフタレン等の3級アミン類、ナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド等の金属アルコキシド類、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸カリウム、炭酸水素ナトリウム等の無機塩基類が挙げられる。

20

【0195】

金属錯体の製造において、金属塩と配位子の錯体形成反応は、不活性ガス雰囲気下で行うことが好ましい。不活性ガスとしては、窒素、アルゴン等が挙げられる。

【0196】

金属錯体の製造において、金属塩と配位子の錯体形成反応時における反応温度、反応時間、反応圧力は、原料、溶媒などによって異なるが、通常、20℃~300℃、好ましくは50℃~250℃、更に好ましくは80℃~220℃の範囲である。反応時間は、通常30分~24時間であるが、好ましくは1~12時間、更に好ましくは2~10時間であり、反応圧力に関しては、通常、常圧であるが、必要に応じて加圧下でも減圧下でも差し支えない。

30

【0197】

金属錯体の製造において、金属塩と配位子の錯体形成反応時の、加熱手段は特に限定されない。具体的には、オイルバス、マントルヒーターによる加熱や、マイクロ波照射による加熱を使用することができる。

【0198】

このようにして得られた金属錯体は、必要に応じて単離、精製を行うことができる。単離、精製の方法としては、カラムクロマトグラフィー、再結晶、再沈殿、昇華等が挙げられる。これらは単独で用いても併用しても構わない。

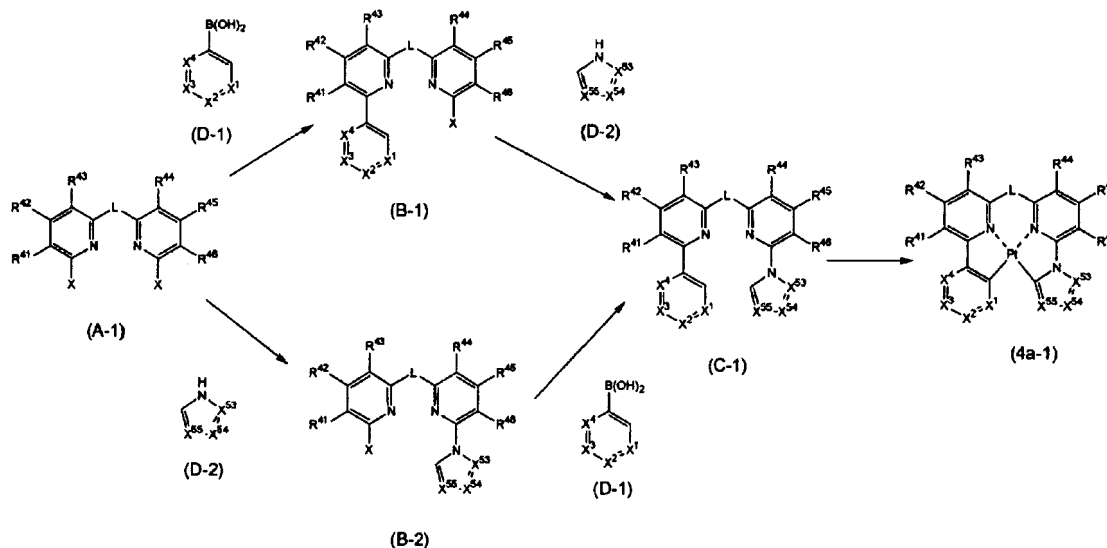
40

【0199】

なお、一般式(1)で表される金属錯体のうち、一般式(4a-1)で表される金属錯体は以下の製造方法によっても合成可能である。ただし、下記方法に限定されることはない。

【0200】

【化 60】



10

【0201】

上記式中、 X^1 、 X^2 、 X^3 、 X^4 、 X^{53} 、 X^{54} 、 X^{55} 、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 、及びLは、前記一般式(4a-1)におけるそれらと同義である。

20

【0202】

(A-1) から (B-1) を得る工程及び (B-2) から (C-1) を得る工程として、Synth. Commun., 11, 513 (1981)に記載の方法等を用いることにより、目的の化合物を合成することができる。

【0203】

(B-1) から (C-1) を得る工程及び (A-1) から (B-2) を得る工程として、Angew. Chem. Int. Ed., 42, 2051-2053 (2003)に記載の方法等を利用することにより、目的の化合物を合成することができる。

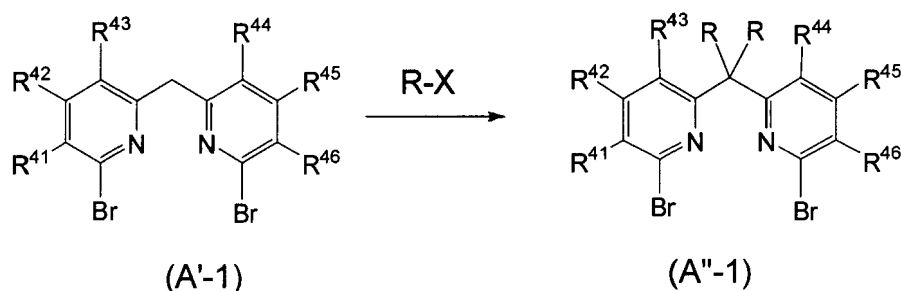
【0204】

前記一般式(A-1)において連結基Lが、メチレン基である化合物(A'-1)はJournal of Organic Chemistry 53, 786, 1988に記載の方法などにより得ることができる。更に化合物(A'-1)をテトラヒドロフラン、N, N-ジメチルホルムアミドなどの溶媒に溶かし、リチウムジイソプロピルアミド、カリウムt-ブトキシド、水素化ナトリウムなどの塩基存在下、アルキルハライドR-X (Rはアルキル基、Xは、臭素、ヨウ素などのハロゲン原子を表す)と反応させることにより、連結基がジアルキルメチレン基である化合物(A''-1)を合成することができる。

30

【0205】

【化 61】



40

【0206】

上記式中、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、及び R^{46} は前記一般式(A-1)におけるそれらと同義である。

50

【0207】

(C-1) から一般式 (4a-1) で表される白金錯体を得る工程として、化合物 (C-1) と、1～1.5 当量の塩化第一白金をベンゾニトリルに溶解させ、130℃～加熱還流温度 (ベンゾニトリルの沸点: 191℃) に加熱し、30分～4時間攪拌することにより目的の化合物を合成することができる。一般式 (4a-1) で表される金属錯体はクロロホルム、ジクロロメタン、トルエン、キシレン、アセトニトリル、ブチロニトリル、ベンゾニトリル、酢酸エチル等を用いた再結晶や、シリカゲルカラムクロマトグラフィー、昇華精製などにより精製することができる。

【0208】

なお、上記に示した製造方法において、定義された置換基が、ある合成方法の条件下で変化するか、又は該方法を実施するのに不適切な場合、官能基の保護、脱保護 (例えば、プロテクティブ・グループ・イン・オーガニック・シンセシス (Protective Groups in Organic Synthesis)、グリーン (T. W. Greene) 著、ジョン・ワイリー・アンド・サンズ・インコーポレイテッド (John Wiley & Sons Inc.) (1981年) 等) 等の手段により容易に製造が可能である。また、必要に応じて適宜置換基導入等の反応工程の順序を変化させることも可能である。

【0209】

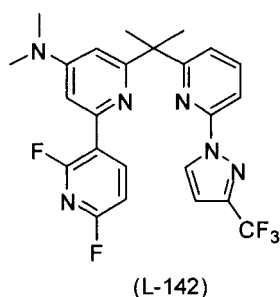
下記に化合物 (C-1) の合成に関しより具体的な例を挙げて説明するが、下記方法に限定されることはない。

【0210】

<化合物 L-142 の合成>

【0211】

【化62】



【0212】

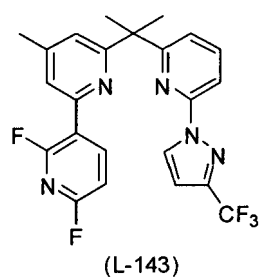
上記、一般式 (A'-1) において、 R^{41} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、及び R^{46} が水素原子、 R^{42} がジメチルアミノ基、 R がメチル基である化合物を使用し、例示化合物 Pt-5 の合成で示した反応条件を使用して、3-トリフルオロメチルピラゾール、2,6-ジフルオロピリジル-3-ホウ酸と反応させることにより、化合物 L-142 を合成することができる。

【0213】

<化合物 L-143 の合成>

【0214】

【化 6 3】



10

【0 2 1 5】

一般式 (A' '-1) において、 R^{41} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、及び R^{46} が水素原子、 R^{42} 及びRがメチル基である化合物を使用し、例示化合物 P t - 5 の合成で示した反応条件を使用して、3-トリフルオロメチルピラゾール、2, 6-ジフルオロピリジール-3-ホウ酸と反応させることにより、化合物 L - 1 4 3 を合成することができる。

【0 2 1 6】

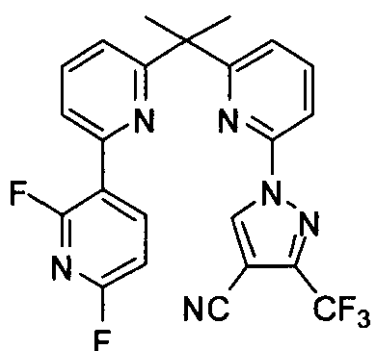
<化合物 L - 1 1 の合成>

一般式 (A' '-1) において、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、及び R^{46} が水素原子、Rがメチル基である化合物を使用し、例示化合物 P t - 5 の合成で使した反応条件などを用いて、4-シアノ-3-トリフルオロメチルピラゾール及び2, 6-ジフルオロピリジール-3-ホウ酸と反応させることにより化合物 L - 1 1 を合成することができる。

20

【0 2 1 7】

【化 6 4】



(L-11)

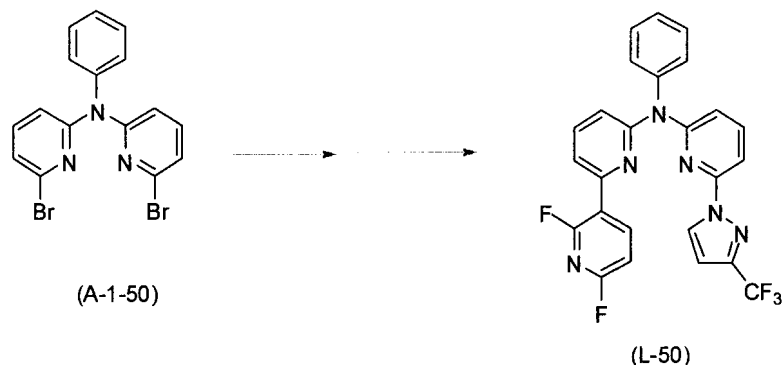
30

【0 2 1 8】

<化合物 L - 5 0 の合成>

【0 2 1 9】

【化 6 5】



10

【0 2 2 0】

化合物 A-1-50 は、Syn. Lett. 2, (2005), 263 に記載の方法などを利用することにより、合成することができる。また配位子 L-50 は、例示化合物 Pt-5 の合成などで使用した反応条件を用いて、化合物 A-1-50 と 3-トリフルオロメチルピラゾール及び 2,6-ジフルオロピリジル-3-ホウ酸と反応させることにより合成することができる。

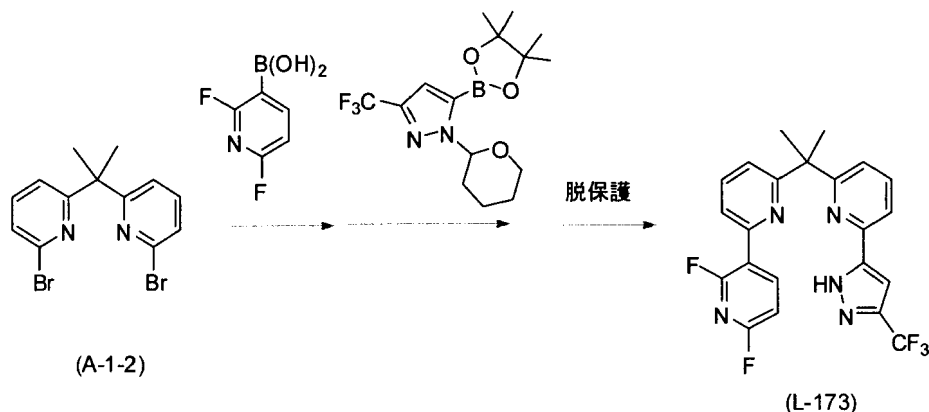
【0 2 2 1】

また、前記一般式 (4b-1) で表される金属錯体を得るために用いられる化合物も以下のように合成することができる。

20

【0 2 2 2】

【化 6 6】



30

【0 2 2 3】

化合物 L-173 は、化合物 A-1-2 と該当するホウ酸若しくはホウ酸エステルとを反応させた後、窒素上の保護基を脱保護することにより合成することができる。

【0 2 2 4】

前述したとおり、前記特定構造を有する金属錯体は、少なくとも一種のホスト材料と共に発光層に含有することが特に好ましい。

40

ホスト材料とは、発光層において主に電荷の注入、輸送を担う化合物であり、また、それ自体は実質的に発光しない化合物のことである。本明細書において「実質的に発光しない」とは、該実質的に発光しない化合物からの発光量が好ましくは素子全体での全発光量の 5% 以下であり、より好ましくは 3% 以下であり、更に好ましくは 1% 以下であることをいう。

【0 2 2 5】

発光層中のホスト材料の使用量は、特に限定されないが、発光層中において主成分（含有量が一番多い成分）であることが好ましく、50 質量%以上 99.9 質量%以下がより好ましく、70 質量%以上 99.8 質量%以下が更に好ましく、80 質量%以上 99.7

50

質量%以下が特に好ましく、85質量%以上99.5質量%以下が最も好ましい。

【0226】

ホスト材料のガラス転移点は、100℃以上500℃以下であることが好ましく、110℃以上300℃以下であることがより好ましく、120℃以上250℃以下であることが更に好ましい。

【0227】

ホスト材料の膜状態での蛍光波長は、400nm以上650nm以下の範囲であることが好ましく、420nm以上600nm以下の範囲であることがより好ましく、440nm以上550nm以下の範囲であることが更に好ましい。

【0228】

ホスト材料としては、例えば、特開2002-100476号公報の段落0113～0161に記載の化合物及び特開2004-214179号公報の段落0087～0098に記載の化合物を好適に用いることができるが、これらに限定されることはない。

【0229】

また、ホスト材料としては、三級アミン骨格を有するもの、カルバゾール骨格を有するもの、インド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や、後述の正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層の項で例示されている材料が挙げられ、この中でも、カルバゾール骨格、若しくはインドール骨格を有するものがより好ましく、カルバゾール骨格を有する材料が特に好ましい。

【0230】

前記有機層には、重水素原子を少なくともひとつ有する材料を含有することが好ましい。

重水素原子を少なくともひとつ有する材料を用いることにより、耐久性をより向上させることができる。

【0231】

炭素－水素（C－H）結合に対して、炭素－重水素（C－D）結合の結合エネルギーは、大きいことが知られているため、炭素－水素結合が切断されるような劣化機構を抑制することができたため、水素原子を重水素原子に置き換えることが、耐久性向上に有効であると考えられる。

【0232】

重水素原子を少なくとも1つ有する材料は、有機材料であっても、無機材料であっても、その両方であってもよいが、有機材料であることが好ましい。

【0233】

重水素原子を少なくとも1つ有する有機材料とは、有機材料における水素原子又は重水素原子が結合し得る位置において、重水素原子と水素原子の比率（重水素原子の原子数：水素原子の原子数）が、100：0から1：99の範囲に含まれていることを意味する。ここで、水素原子又は重水素原子が結合し得る位置は、1分子中、少なくとも特定の1箇所から全部の範囲の何れでもよい。言い換えれば、上記比率は水素原子又は重水素原子が結合し得る位置の総和において、重水素原子が占める割合（重水素化率）が1～100%であることと同義である。

従って、上記比率の状態は、当該位置に重水素を含む化合物と重水素を含まない化合物を、適当な比率で同時に使用することによって実現できる。

【0234】

重水素原子と水素原子の組成の範囲として、好ましくは100：0から5：95であり、より好ましくは100：0から50：50であり、特に好ましくは100：0から80：20である。

【0235】

重水素原子を少なくとも1つ有する有機材料は、有機電界発光素子のいずれの層に含まれていてもよいが、ホール注入層、ホール輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層、励

10

20

30

40

50

起子ブロック層、電荷ブロック層のいずれか、若しくは複数に含有されるのが好ましく、発光層、励起子ブロック層、電荷ブロック層のいずれか、若しくは複数に含有されるのがより好ましく、発光層に含有されるのが更に好ましく、特に発光層中のホスト材料として含有されるのが好ましい。ホスト材料として用いる場合、重水素原子を少なくとも1つ有する有機材料の使用量は、前述のホスト材料で述べた使用量と同じである。

【0236】

重水素原子を少なくとも1つ有する有機材料としては、例えば、国際公開第02-47440号パンフレットに記載の化合物が挙げられるが、これに限定されるものではない。

【0237】

重水素原子を少なくともひとつ有する有機材料として、特に好ましいものの例としては、窒素原子を含む材料が好ましく、なかでも、三級アミン骨格、カルバゾール骨格、若しくは、インドール骨格を含む材料が好ましく、カルバゾール骨格、若しくは、インドール骨格を含む材料がより好ましく、カルバゾール骨格を含む材料が特に好ましい。

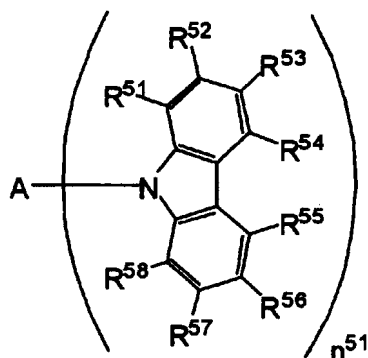
【0238】

カルバゾール骨格を含む材料で、特に好ましい例は、一般式(V)で表される化合物である。以下、一般式(V)で表される化合物について説明する。

【0239】

【化67】

一般式(V)



【0240】

(一般式(V)中、 $R^{51} \sim R^{58}$ は水素原子、若しくは、置換基であり、 $R^{51} \sim R^{58}$ は隣接する置換基どうしで縮合環を形成しても良い。Aは連結基を表し、 n^{51} は2～6の整数を表す。一般式(V)で表される化合物は、少なくともひとつの重水素原子を含む。)

【0241】

置換基としては、重水素原子、及び前記置換基群Bに示したものが挙げられる。

【0242】

$R^{51} \sim R^{58}$ の置換基として好ましくは重水素原子、アルキル基、アリール基、ヘテロアリール基、ハロゲン基、シアノ基、シリル基であり、より好ましくは重水素原子、アルキル基、ヘテロアリール基、ハロゲン基、シアノ基、シリル基であり、特に好ましくは重水素原子、アルキル基、ヘテロアリール基、シリル基である。これらの置換基は、更に他の置換基によって置換されてもよく、また、これらの置換基同士が結合し、環を形成していてもよい。

【0243】

$R^{51} \sim R^{58}$ のアルキル基として好ましくはメチル、エチル、*n*-プロピル、イソプロピル、*n*-ブチル、*tert*-ブチル、*n*-オクチル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシル、1-アダマンチル、トリフルオロメチルであり、より好ましくはメチル、イソプロピル、*tert*-ブチル、*n*-オクチル、シクロペンチル、シクロヘキシル、1-アダマンチル、トリフルオロメチルであり、特に好ましくは*tert*-ブチル、シクロ

ヘキシル、1-アダマンチル、トリフルオロメチルである。これらの置換基は、更に他の置換基によって置換されてもよく、また、これらの置換基同士が結合し、環を形成していてもよい。

【0244】

R⁵¹~R⁵⁸のヘテロアリール基として好ましくはイミダゾリル、ピラゾリル、ピリジル、キノリル、イソキノリニル、ピロリル、インドリル、フリル、チエニル、ベンズオキサゾリル、ベンズイミダゾリル、ベンズチアゾリル、カルバゾリル、アゼピニルであり、より好ましくはイミダゾリル、ピラゾリル、キノリル、インドリル、フリル、チエニル、ベンズイミダゾリル、カルバゾリル、アゼピニルであり、特に好ましくはインドリル、フリル、チエニル、ベンズイミダゾリル、カルバゾリル、アゼピニルである。これらの置換基は、更に他の置換基によって置換されてもよく、縮環構造を形成していてもよく、また、これらの置換基同士が結合し、環を形成していてもよい。

10

【0245】

R⁵¹~R⁵⁸のシリル基として好ましくはトリメチルシリル、トリエチルシリル、トリイソプロピルシリル、メチルジフェニルシリル、ジメチル-tert-ブチルシリル、ジメチルフェニルシリル、ジフェニル-tert-ブチルシリル、トリフェニルシリルであり、より好ましくはトリメチルシリル、トリイソプロピルシリル、ジメチル-tert-ブチルシリル、ジフェニル-tert-ブチルシリル、トリフェニルシリルであり、特に好ましくはトリメチルシリル、ジメチル-tert-ブチルシリル、トリフェニルシリルである。これらの置換基は、更に他の置換基によって置換されてもよく、また、これらの置換基同士が結合し、環を形成していてもよい。

20

【0246】

R⁵²、R⁵⁷の置換基として特に好ましいのは、アルキル基、アリール基、シリル基、重水素原子であり、より好ましいのは、アルキル基、シリル基、重水素原子であり、特に好ましいのは、tert-ブチル基、アダマンチル基、トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基、重水素原子である。

【0247】

R⁵³、R⁵⁶の置換基として特に好ましいのは、アルキル基、アリール基、シリル基、重水素原子であり、より好ましいのは、アルキル基、シリル基、重水素原子であり、特に好ましいのは、tert-ブチル基、アダマンチル基、トリメチルシリル基、トリフェニルシリル基、重水素原子である。

30

【0248】

n⁵¹として好ましくは、2~4であり、より好ましくは、2~3であり、特に好ましくは2である。

【0249】

Aで表される連結基としては、好ましくは、アルキレン、アリーレン、ヘテロアリーレン、シリレン、ビフェニル構造を有する2価の連結基（ビフェニルジイル）であり、より好ましくは、アリーレン、ヘテロアリーレン、ビフェニル構造を有する2価の連結基（ビフェニルジイル）であり、特に好ましくは、アリーレン、ビフェニル構造を有する2価の連結基（ビフェニルジイル）であり、これらの連結基は、重水素原子、若しくは、前述の置換基群Bで表される置換基により、更に置換されていても良い。

40

【0250】

アリーレンとして好ましくは、フェニレン、ナフチレン、ビフェニレン、ターフェニレンであり、より好ましくは、フェニレン、ビフェニレンであり、特に好ましくは、フェニレンである。

【0251】

フェニレンとして好ましくは、1,2,3,4,5,6-六置換フェニレン、1,2,4,5-四置換フェニレン、1,3,5-三置換フェニレン、1,2-二置換フェニレン、1,3-二置換フェニレン、1,4-二置換フェニレンであり、より好ましくは、1,2-二置換フェニレン、1,3-二置換フェニレン、1,4-二置換フェニレンであり、特に好ましくは、1,3-二置換フェニレン、1,

50

4-二置換フェニレンである。

【0252】

ヘテロアリーレンとして好ましくは、二置換ピリジレン、二置換N-フェニルカルバゾリレンであり、より好ましくは、2,6-二置換ピリジレン、3,5-二置換ピリジレン、3,6-二置換N-フェニルカルバゾリレンであり、特に好ましくは、3,6-二置換N-フェニルカルバゾリレンである。

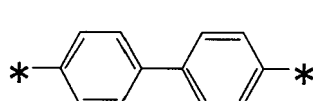
【0253】

ビフェニル構造を有する2価の連結基（ビフェニルジイル）として、以下に示すものが挙げられ、その中でも、BP-1、BP-2、BP-6が好ましく、BP-1、BP-2がより好ましく、BP-2が更に好ましい。

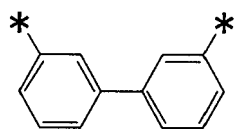
10

【0254】

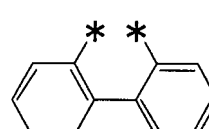
【化68】



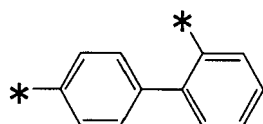
BP-1



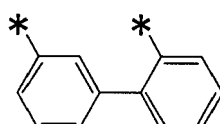
BP-2



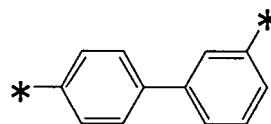
BP-3



BP-4



BP-5



BP-6

20

【0255】

構造式中、*は、カルバゾールの窒素原子と結合する位置を表す。

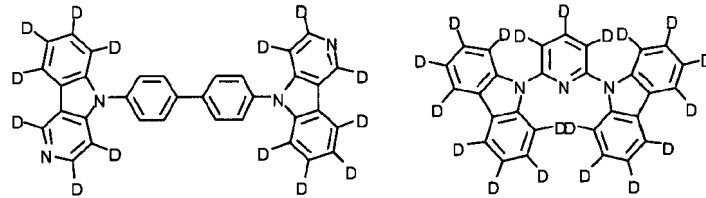
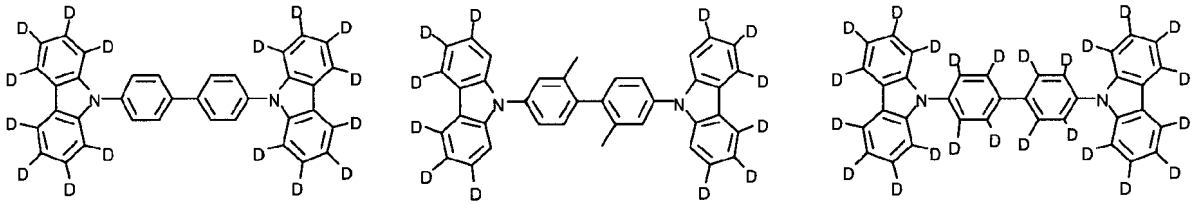
【0256】

重水素原子を少なくともひとつ有するカルバゾール骨格又はインドール骨格を含む材料としては、例えば、以下に示すものが挙げられる。

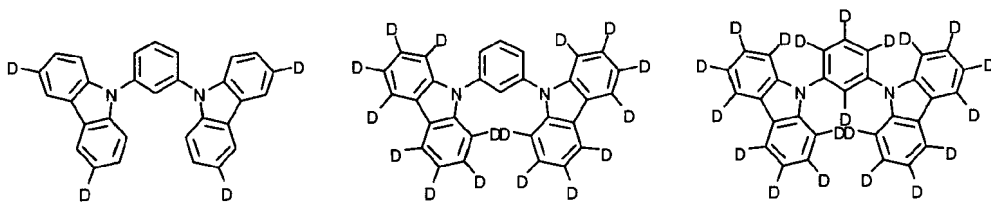
30

【0257】

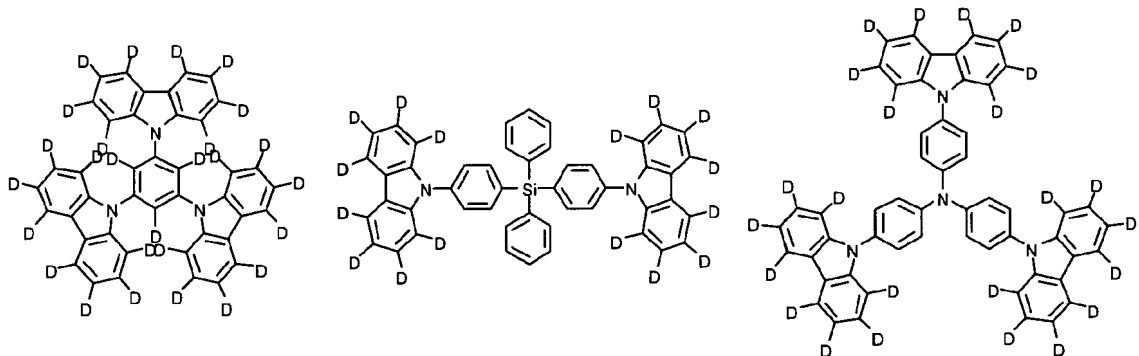
【化 6 9】



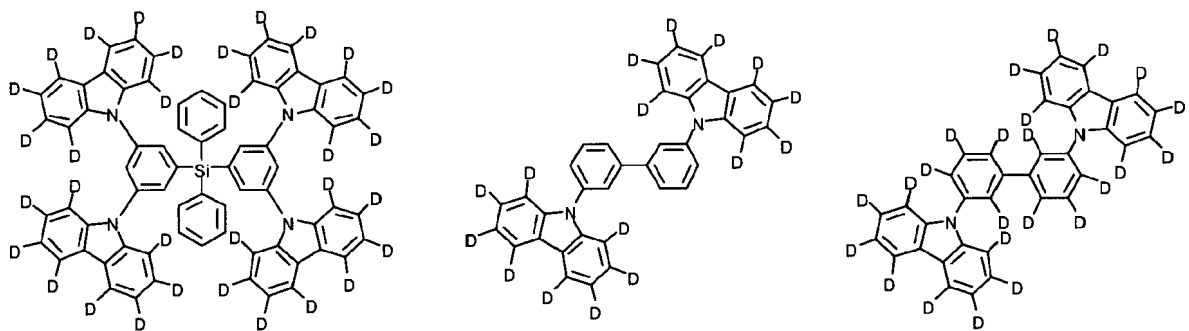
10



20



30



40

【0258】

本発明の有機電界発光素子（有機EL素子）は前記一般式（1）～（4）、（4a-1）～（4a-3）、（4b-1）～（4b-3）で表される化合物の少なくとも1種を前記発光層に含有することが好ましい。

次に、有機EL素子を構成する各要素について説明する。

【0259】

<有機層>

本発明における有機層について説明する。本発明の素子は、発光層を含む少なくとも一層の有機層を有しており、有機発光層以外の他の有機層としては、前述したごとく、正孔

50

輸送層、電子輸送層、正孔ブロック層、電子ブロック層、正孔注入層、電子注入層等の各層が挙げられる。

【0260】

－有機層の形成－

各有機層は、蒸着法やスパッタ法等の乾式製膜法、転写法、印刷法等いずれによっても好適に形成することができる。

【0261】

－発光層－

発光層は、電界印加時に、陽極、正孔注入層、又は正孔輸送層から正孔を受け取り、陰極、電子注入層、又は電子輸送層から電子を受け取り、正孔と電子の再結合の場を提供して発光させる機能を有する層である。

10

【0262】

発光層は、発光材料のみで構成されていてもよく、ホスト材料と発光材料の混合層とした構成でもよい。発光材料は蛍光発光材料でも燐光発光材料であってもよく、発光材料は一種であっても二種以上であってもよい。ホスト材料は電荷輸送材料であることが好ましい。ホスト材料は一種であっても二種以上であってもよく、例えば、電子輸送性のホスト材料とホール輸送性のホスト材料を混合した構成が挙げられる。更に、発光層中に電荷輸送性を有さず、発光しない材料を含んでいてもよい。

【0263】

また、発光層は一層であっても二層以上であってもよく、それぞれの層が異なる発光色で発光してもよい。

20

【0264】

蛍光発光材料の例としては、例えば、ベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、スチリルベンゼン誘導体、ポリフェニル誘導体、ジフェニルブタジエン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ナフタルイミド誘導体、クマリン誘導体、縮合芳香族化合物、ペリノン誘導体、オキサジアゾール誘導体、オキサジン誘導体、アルダジン誘導体、ピラリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、ビススチリルアントラセン誘導体、キナクリドン誘導体、ピロロピリジン誘導体、チアジアプロピリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、スチリルアミン誘導体、ジケトピロロピロール誘導体、芳香族ジメチリデン化合物、8-キノリノール誘導体の錯体やピロメテン誘導体の錯体に代表される各種錯体等、ポリチオフェン、ポリフェニレン、ポリフェニレンビニレン等のポリマー化合物、有機シラン誘導体などの化合物等が挙げられる。

30

【0265】

燐光発光材料としては、前記特定構造を有する金属錯体の他、例えば、US 6 303 238 B1、US 6 097 147、WO 00/57 676、WO 00/70 655、WO 01/08 230、WO 01/39 234 A2、WO 01/41 512 A1、WO 02/02 714 A2、WO 02/15 645 A1、WO 02/44 189 A1、WO 05/19 373 A2、特開 2001-247859、特開 2002-302671、特開 2002-117978、特開 2003-133074、特開 2002-235076、特開 2003-123982、特開 2002-170684、EP 1211257、特開 2002-226495、特開 2002-234894、特開 2001-247859、特開 2001-298470、特開 2002-173674、特開 2002-203678、特開 2002-203679、特開 2004-357791、特開 2006-256999、特開 2007-19462、特開 2007-84635、特開 2007-96259 等の特許文献に記載の燐光発光化合物などが挙げられ、中でも、更に好ましい発光材料としては、Ir 錯体、Pt 錯体、Cu 錯体、Re 錯体、W 錯体、Rh 錯体、Ru 錯体、Pd 錯体、Os 錯体、Eu 錯体、Tb 錯体、Gd 錯体、Dy 錯体、及びCe 錯体が挙げられる。特に好ましくは、Ir 錯体、Pt 錯体、又はRe 錯体であり、中でも金属-炭素結合、金属-窒素結合、金属-酸素結合、金属-硫黄結合の少なくとも一つの配位様式を含むIr 錯体、Pt 錯体、又はRe 錯体が好ましい。更に、発光効率、駆動耐久性、色度等の観点で

40

50

、3座以上の多座配位子を含むIr錯体、Pt錯体、又はRe錯体が特に好ましい。

【0266】

また、発光層に含有されるホスト材料としては、前述のものを使用できる。

【0267】

発光層の厚さは、特に限定されるものではないが、通常、1nm～500nmであるのが好ましく、5nm～200nmであるのがより好ましく、10nm～100nmであるのが更に好ましい。

【0268】

－正孔注入層、正孔輸送層－

正孔注入層、正孔輸送層は、陽極又は陽極側から正孔を受け取り陰極側に輸送する機能を有する層である。正孔注入層、正孔輸送層は、具体的には、カルバゾール誘導体、アザカルバゾール誘導体、インドール誘導体、アザインドール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラズロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリアルアミン誘導体、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、芳香族ジメチリデン系化合物、ポルフィリン系化合物、有機シラン誘導体、カーボン、フェニルアゾールやフェニルアジンを配位子に有するIr錯体に代表される各種金属錯体等を含有する層であることが好ましい。

正孔注入層あるいは正孔輸送層には、電子受容性ドーパントを含有させることができる。正孔注入層、あるいは正孔輸送層に導入する電子受容性ドーパントとしては、電子受容性で有機化合物を酸化する性質を有するものであれば、無機化合物でも有機化合物でも使用できる。

【0269】

具体的には、無機化合物としては塩化第二鉄や塩化アルミニウム、塩化ガリウム、塩化インジウム、五塩化アンチモンなどのハロゲン化金属、五酸化バナジウム、及び三酸化モリブデンなどの金属酸化物などが挙げられる。

【0270】

有機化合物としては、置換基としてニトロ基、ハロゲン、シアノ基、トリフルオロメチル基などを有する化合物、キノン系化合物、酸無水物系化合物、フラーレンなどを好適に用いることができる。

この他にも、特開平6-212153、特開平11-111463、特開平11-251067、特開2000-196140、特開2000-286054、特開2000-315580、特開2001-102175、特開2001-160493、特開2002-252085、特開2002-56985、特開2003-157981、特開2003-217862、特開2003-229278、特開2004-342614、特開2005-72012、特開2005-166637、特開2005-209643等に記載の化合物を好適に用いることが出来る。

このうちヘキサシアノブタジエン、ヘキサシアノベンゼン、テトラシアノエチレン、テトラシアノキノジメタン、テトラフルオロテトラシアノキノジメタン、p-フルオラニル、p-クロラニル、p-ブロマニル、p-ベンゾキノン、2,6-ジクロロベンゾキノン、2,5-ジクロロベンゾキノン、1,2,4,5-テトラシアノベンゼン、1,4-ジシアノテトラフルオロベンゼン、2,3-ジクロロ-5,6-ジシアノベンゾキノン、p-ジニトロベンゼン、m-ジニトロベンゼン、o-ジニトロベンゼン、1,4-ナフトキノン、2,3-ジクロロナフトキノン、1,3-ジニトロナフタレン、1,5-ジニトロナフタレン、9,10-アントラキノン、1,3,6,8-テトラニトロカルバゾール、2,4,7-トリニトロ-9-フルオレノン、2,3,5,6-テトラシアノピリジン、又はフラーレンC60が好ましく、ヘキサシアノブタジエン、ヘキサシアノベンゼン、テトラシアノエチレン、テトラシアノキノジメタン、テトラフルオロテトラシアノキノジメタン、p-フルオラニル、p-クロラニル、p-ブロマニル、2,6-ジクロロベンゾキ

ノン、2, 5-ジクロロベンゾキノン、2, 3-ジクロロナフトキノン、1, 2, 4, 5-テトラシアノベンゼン、2, 3-ジクロロ-5, 6-ジシアノベンゾキノン、又は2, 3, 5, 6-テトラシアノピリジンがより好ましく、テトラフルオロテトラシアノキノジメタンが特に好ましい。

【0271】

これらの電子受容性ドーパントは、単独で用いてもよいし、2種以上を用いてもよい。電子受容性ドーパントの使用量は、材料の種類によって異なるが、正孔輸送層材料に対して0.01質量%~50質量%であることが好ましく、0.05質量%~20質量%であることが更に好ましく、0.1質量%~10質量%であることが特に好ましい。

【0272】

正孔注入層、正孔輸送層の厚さは、駆動電圧を下げるという観点から、各々500nm以下であることが好ましい。

【0273】

正孔輸送層の厚さとしては、1nm~500nmであるのが好ましく、5nm~200nmであるのがより好ましく、10nm~100nmであるのが更に好ましい。また、正孔注入層の厚さとしては、0.1nm~200nmであるのが好ましく、0.5nm~100nmであるのがより好ましく、1nm~100nmであるのが更に好ましい。

【0274】

正孔注入層、正孔輸送層は、上述した材料の一種又は二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。

【0275】

—電子注入層、電子輸送層—

電子注入層、電子輸送層は、陰極又は陰極側から電子を受け取り陽極側に輸送する機能を有する層である。電子注入層、電子輸送層は、具体的には、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、ジフェニルキノン誘導体、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錯体に代表される各種錯体、有機シラン誘導体、等を含有する層であることが好ましい。

【0276】

電子注入層あるいは電子輸送層には、電子供与性ドーパントを含有させることができる。電子注入層、あるいは電子輸送層に導入される電子供与性ドーパントとしては、電子供与性で有機化合物を還元する性質を有していればよく、Liなどのアルカリ金属、Mgなどのアルカリ土類金属、希土類金属を含む遷移金属や還元性有機化合物などが好適に用いられる。金属としては、特に仕事関数が4.2eV以下の金属が好適に使用でき、具体的には、Li、Na、K、Be、Mg、Ca、Sr、Ba、Y、Cs、La、Sm、Gd、及びYbなどが挙げられる。また、還元性有機化合物としては、例えば、含窒素化合物、含硫黄化合物、含リン化合物などが挙げられる。

この他にも、特開平6-212153、特開2000-196140、特開2003-68468、特開2003-229278、特開2004-342614等に記載の材料を用いることが出来る。

【0277】

これらの電子供与性ドーパントは、単独で用いてもよいし、2種以上を用いてもよい。電子供与性ドーパントの使用量は、材料の種類によって異なるが、電子輸送層材料に対して0.1質量%~99質量%であることが好ましく、1.0質量%~80質量%であることが更に好ましく、2.0質量%~70質量%であることが特に好ましい。

【0278】

電子注入層、電子輸送層の厚さは、駆動電圧を下げるという観点から、各々500nm

10

20

30

40

50

以下であることが好ましい。

電子輸送層の厚さとしては、1 nm～500 nmであるのが好ましく、5 nm～200 nmであるのがより好ましく、10 nm～100 nmであるのが更に好ましい。また、電子注入層の厚さとしては、0.1 nm～200 nmであるのが好ましく、0.2 nm～100 nmであるのがより好ましく、0.5 nm～50 nmであるのが更に好ましい。

電子注入層、電子輸送層は、上述した材料の一種又は二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。

【0279】

－正孔ブロック層－

正孔ブロック層は、陽極側から発光層に輸送された正孔が、陰極側に通りぬけることを防止する機能を有する層である。本発明において、発光層と陰極側で隣接する有機層として、正孔ブロック層を設けることができる。

正孔ブロック層を構成する有機化合物の例としては、アルミニウム(III)ビス(2-メチル-8-キノリナト)4-フェニルフェノレート (Aluminum(III)bis(2-methyl-8-quinolinato) 4-phenylphenolate (略号BALQ)) 等のアルミニウム錯体、トリアゾール誘導体、2,9-ジメチル-4,7-ジフェニル-1,10-フェナントロリン (2,9-dimethyl-4,7-diphenyl-1,10-phenanthroline(略号:BCP)) 等のフェナントロリン誘導体、等が挙げられる。正孔ブロック層の厚さとしては、1 nm～500 nmであるのが好ましく、5 nm～200 nmであるのがより好ましく、10 nm～100 nmであるのが更に好ましい。

正孔ブロック層は、上述した材料の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。

【0280】

－電荷発生層－

発光効率を向上させるため、複数の発光層の間に電荷発生層が設けることができる。

前記電荷発生層は、電界印加時に電荷(正孔及び電子)を発生する機能を有すると共に、発生した電荷を電荷発生層と隣接する層に注入させる機能を有する層である。

【0281】

前記電荷発生層を形成する材料は、上記の機能を有する材料であれば何でもよく、単一化合物で形成されていても、複数の化合物で形成されていてもよい。

具体的には、導電性を有するものであっても、ドーピングされた有機層のように半導電性を有するものであっても、また、電気絶縁性を有するものであってもよく、特開平11-329748号公報や、特開2003-272860号公報や、特開2004-39617号公報に記載の材料が挙げられる。

更に具体的には、ITO、IZO(インジウム亜鉛酸化物)などの透明導電材料、C60等のフラーレン類、オリゴチオフェン等の導電性有機物、金属フタロシアニン類、無金属フタロシアニン類、金属ポルフィリン類、無金属ポルフィリン類等などの導電性有機物、Ca、Ag、Al、Mg:Ag合金、Al:Li合金、Mg:Li合金などの金属材料、正孔伝導性材料、電子伝導性材料、及びそれらを混合させたものを用いてもよい。

前記正孔伝導性材料は、例えば2-TNATA、NPDなどの正孔輸送有機材料にF4-TCNQ、TCNQ、FeCl₃などの電子求引性を有する酸化剤をドーピングさせたものや、P型導電性高分子、P型半導体などが挙げられ、前記電子伝導性材料は電子輸送有機材料に4.0 eV未満の仕事関数を有する金属若しくは金属化合物をドーピングしたものや、N型導電性高分子、N型半導体などが挙げられる。N型半導体としては、N型Si、N型CdS、N型ZnSなどが挙げられ、P型半導体としては、P型Si、P型CdTe、P型CuOなどが挙げられる。

また、前記電荷発生層として、V₂O₅などの電気絶縁性材料を用いることもできる。

【0282】

前記電荷発生層は、単層でも複数積層させたものでもよい。複数積層させた構造としては、透明伝導材料や金属材料などの導電性を有する材料と正孔伝導性材料、又は、電子伝

導性材料を積層させた構造、上記の正孔伝導性材料と電子伝導性材料を積層させた構造の層などが挙げられる。

【0283】

前記電荷発生層は、一般に、可視光の透過率が50%以上になるよう、膜厚・材料を選択することが好ましい。また膜厚は、特に限定されるものではないが、0.5~200nmが好ましく、1~100nmがより好ましく、3~50nmが更に好ましく、5~30nmが特に好ましい。

電荷発生層の形成方法は、特に限定されるものではなく、前述した有機化合物層の形成方法を用いることができる。

【0284】

電荷発生層は前記二層以上の発光層間に形成するが、電荷発生層の陽極側及び陰極側には、隣接する層に電荷を注入する機能を有する材料を含んでいてもよい。陽極側に隣接する層への電子の注入性を上げるため、例えば、BaO、SrO、Li₂O、LiCl、LiF、MgF₂、MgO、CaF₂などの電子注入性化合物を電荷発生層の陽極側に積層させてもよい。

以上で挙げられた内容以外にも、特開2003-45676号公報、米国特許第6337492号、同第6107734号、同第6872472号等に記載を元にして、電荷発生層の材料を選択することができる。

【0285】

<保護層>

有機EL素子全体は、保護層によって保護されていてもよい。

保護層に含まれる材料としては、水分や酸素等の素子劣化を促進するものが素子内に入ることを抑止する機能を有しているものであればよい。

その具体例としては、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Ti、Ni等の金属、MgO、SiO、SiO₂、Al₂O₃、GeO、NiO、CaO、BaO、Fe₂O₃、Y₂O₃、TiO₂等の金属酸化物、SiN_x、SiN_xO_y等の金属窒化物、MgF₂、LiF、AlF₃、CaF₂等の金属フッ化物、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリウレア、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレンとジクロロジフルオロエチレンとの共重合体、テトラフルオロエチレンと少なくとも1種のモノマーとを含むモノマー混合物を共重合させて得られる共重合体、共重合主鎖に環状構造を有する含フッ素共重合体、吸水率1%以上の吸水性物質、吸水率0.1%以下の防湿性物質等が挙げられる。

【0286】

保護層の形成方法については、特に限定はなく、例えば、真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、MBE（分子線エピタキシ）法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法（高周波励起イオンプレーティング法）、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、ガスソースCVD法、コーティング法、印刷法、転写法を適用できる。

【0287】

<陽極>

陽極は、通常、有機層に正孔を供給する電極としての機能を有していればよく、その形状、構造、大きさ等については特に制限はなく、発光素子の用途、目的に応じて、公知の電極材料の中から適宜選択することができる。前述のごとく、陽極は、通常透明陽極として設けられる。

【0288】

陽極の材料としては、例えば、金属、合金、金属酸化物、導電性化合物、又はこれらの混合物が好適に挙げられる。陽極材料の具体例としては、アンチモンやフッ素等をドーブした酸化錫（ATO、FTO）、酸化錫、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化インジウム錫（ITO）、酸化亜鉛インジウム（IZO）等の導電性金属酸化物、金、銀、クロム、ニ

10

20

30

40

50

ッケル等の金属、更にこれらの金属と導電性金属酸化物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る。この中で好ましいのは、導電性金属酸化物であり、特に、生産性、高導電性、透明性等の点からはITOが好ましい。

【0289】

陽極は、例えば、印刷方式、コーティング方式等の湿式方式、真空蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法等の物理的方式、CVD、プラズマCVD法等の化学的方式などの中から、陽極を構成する材料との適性を考慮して適宜選択した方法に従って、前記基板上に形成することができる。例えば、陽極の材料として、ITOを選択する場合には、陽極の形成は、直流又は高周波スパッタ法、真空蒸着法、イオンプレーティング法等に従って行うことができる。

10

【0290】

陽極の形成位置としては特に制限はなく、発光素子の用途、目的に応じて適宜選択することができるが、基板上に形成されるのが好ましい。この場合、陽極は、基板における一方の表面の全部に形成されていてもよく、その一部に形成されていてもよい。

【0291】

なお、陽極を形成する際のパターニングとしては、フォトリソグラフィーなどによる化学的エッチングによって行ってもよいし、レーザーなどによる物理的エッチングによって行ってもよく、また、マスクを重ねて真空蒸着やスパッタ等をして行ってもよいし、リフトオフ法や印刷法によって行ってもよい。

20

【0292】

陽極の厚みとしては、陽極を構成する材料により適宜選択することができ、一概に規定することはできないが、通常、10nm～50μm程度であり、50nm～20μmが好ましい。

【0293】

陽極の抵抗値としては、 $10^3 \Omega/\square$ 以下が好ましく、 $10^2 \Omega/\square$ 以下がより好ましい。陽極が透明である場合は、無色透明であっても、有色透明であってもよい。透明陽極側から発光を取り出すためには、その透過率としては、60%以上が好ましく、70%以上がより好ましい。

30

【0294】

なお、透明陽極については、沢田豊監修「透明導電膜の新展開」シーエムシー刊（1999）に詳述があり、ここに記載される事項を本発明に適用することができる。耐熱性の低いプラスチック基材を用いる場合は、ITO又はIZOを使用し、150℃以下の低温で成膜した透明陽極が好ましい。

【0295】

<陰極>

陰極は、通常、有機層に電子を注入する電極としての機能を有していればよく、その形状、構造、大きさ等については特に制限はなく、発光素子の用途、目的に応じて、公知の電極材料の中から適宜選択することができる。

40

【0296】

陰極を構成する材料としては、例えば、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、これらの混合物などが挙げられる。具体例としてはアルカリ金属（たとえば、Li、Na、K、Cs等）、アルカリ土類金属（たとえばMg、Ca等）、金、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウム－カリウム合金、リチウム－アルミニウム合金、マグネシウム－銀合金、インジウム、イッテルビウム等の希土類金属、などが挙げられる。これらは、1種単独で使用してもよいが、安定性と電子注入性とを両立させる観点からは、2種以上を好適に併用することができる。

【0297】

これらの中でも、陰極を構成する材料としては、電子注入性の点で、アルカリ金属やア

50

ルカリ土類金属が好ましく、保存安定性に優れる点で、アルミニウムを主体とする材料が好ましい。

アルミニウムを主体とする材料とは、アルミニウム単独、アルミニウムと0.01～10質量%のアルカリ金属又はアルカリ土類金属との合金若しくはこれらの混合物（例えば、リチウム－アルミニウム合金、マグネシウム－アルミニウム合金など）をいう。

【0298】

なお、陰極の材料については、特開平2-15595号公報、特開平5-121172号公報に詳述されており、これらの公報に記載の材料は、本発明においても適用することができる。

【0299】

陰極の形成方法については、特に制限はなく、公知の方法に従って行うことができる。例えば、印刷方式、コーティング方式等の湿式方式、真空蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法等の物理的方式、CVD、プラズマCVD法等の化学的方式などの中から、前記した陰極を構成する材料との適性を考慮して適宜選択した方法に従って形成することができる。例えば、陰極の材料として、金属等を選択する場合には、その1種又は2種以上を同時又は順次にスパッタ法等に従って行うことができる。

【0300】

陰極を形成するに際してのパターニングは、フォトリソグラフィーなどによる化学的エッチングによって行ってもよいし、レーザーなどによる物理的エッチングによって行ってもよく、マスクを重ねて真空蒸着やスパッタ等をして行ってもよいし、リフトオフ法や印刷法によって行ってもよい。

【0301】

陰極形成位置は特に制限はない。有機層上の全部に形成することができ、その一部に形成されていてもよい。

また、陰極と前記有機層との間に、アルカリ金属又はアルカリ土類金属のフッ化物、酸化物等による誘電体層を0.1～5nmの厚みで挿入してもよい。この誘電体層は、一種の電子注入層と見ることにもできる。誘電体層は、例えば、真空蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法等により形成することができる。

【0302】

陰極の厚みは、陰極を構成する材料により適宜選択することができ、一概に規定することはできないが、通常10nm～5μm程度であり、50nm～1μmが好ましい。

また、陰極は、透明であってもよいし、不透明であってもよい。なお、透明な陰極は、陰極の材料を1～10nmの厚さに薄く成膜し、更にITOやIZO等の透明な導電性材料を積層することにより形成することができる。

なお、素子の性質上、陽極及び陰極のうち少なくとも一方の電極は、透明若しくは半透明であることが好ましい。

【0303】

<基板>

前記電極及び有機層は基板上に作製することができる。

基板は、有機層から発せられる光を散乱又は減衰させない基板であることが好ましい。その具体例としては、イットリア安定化ジルコニア（YSZ）、ガラス等の無機材料、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート等のポリエステル、ポリスチレン、ポリカーボネート、ポリエーテルスルホン、ポリアリレート、ポリイミド、ポリシクロオレフィン、ノルボルネン樹脂、ポリ（クロロトリフルオロエチレン）等の有機材料が挙げられる。

【0304】

例えば、基板としてガラスを用いる場合、その材質については、ガラスからの溶出イオンを少なくするため、無アルカリガラスを用いることが好ましい。また、ソーダライムガラスを用いる場合には、シリカなどのバリアコートを施したものを使用することが好ましい。有機材料の場合には、耐熱性、寸法安定性、耐溶剤性、電気絶縁性、及び加工性に優

10

20

30

40

50

れていることが好ましい。

【0305】

基板の形状、構造、大きさ等については、特に制限はなく、発光素子の用途、目的等に応じて適宜選択することができる。一般的には、基板の形状としては、板状であることが好ましい。基板の構造としては、単層構造であってもよいし、積層構造であってもよく、また、単一部材で形成されていてもよいし、2以上の部材で形成されていてもよい。

【0306】

基板は、無色透明であっても、有色透明であってもよいが、有機発光層から発せられる光を散乱又は減衰等させることがない点で、無色透明であることが好ましい。

【0307】

基板には、その表面又は裏面に透湿防止層（ガスバリア層）を設けることができる。

【0308】

透湿防止層（ガスバリア層）の材料としては、窒化珪素、酸化珪素などの無機物が好適に用いられる。透湿防止層（ガスバリア層）は、例えば、高周波スパッタリング法などにより形成することができる。熱可塑性基板を用いる場合には、更に必要に応じて、ハードコート層、アンダーコート層などを設けてもよい。

【0309】

<封止容器>

本発明の有機EL素子は、封止容器を用いて素子全体を封止したものであってもよい。封止容器と素子の間の空間に水分吸収剤又は不活性液体を封入してもよい。水分吸収剤としては、特に限定されることはないが、例えば、酸化バリウム、酸化ナトリウム、酸化カリウム、酸化カルシウム、硫酸ナトリウム、硫酸カルシウム、硫酸マグネシウム、五酸化燐、塩化カルシウム、塩化マグネシウム、塩化銅、フッ化セシウム、フッ化ニオブ、臭化カルシウム、臭化バナジウム、モレキュラーシーブ、ゼオライト、酸化マグネシウム等を挙げることができる。不活性液体としては、特に限定されることはないが、例えば、パラフィン類、流動パラフィン類、パーフルオロアルカンやパーフルオロアミン、パーフルオロエーテル等のフッ素系溶剤、塩素系溶剤、シリコンオイル類が挙げられる。

【0310】

<駆動方法>

本発明の有機EL素子は、陽極と陰極との間に直流（必要に応じて交流成分を含んでもよい）電圧（通常2ボルト～15ボルト）、又は直流電流を印加することにより、発光を得ることができる。

【0311】

本発明の有機EL素子の駆動方法については、特開平2-148687号、同6-301355号、同5-29080号、同7-134558号、同8-234685号、同8-241047号の各公報、特許第2784615号、米国特許5828429号、同6023308号の各明細書、等に記載の駆動方法を適用することができる。

【0312】

本発明の素子は、表示素子、ディスプレイ、バックライト、電子写真、照明光源、記録光源、露光光源、読み取り光源、標識、看板、インテリア、光通信等に好適に利用できる。

【実施例】

【0313】

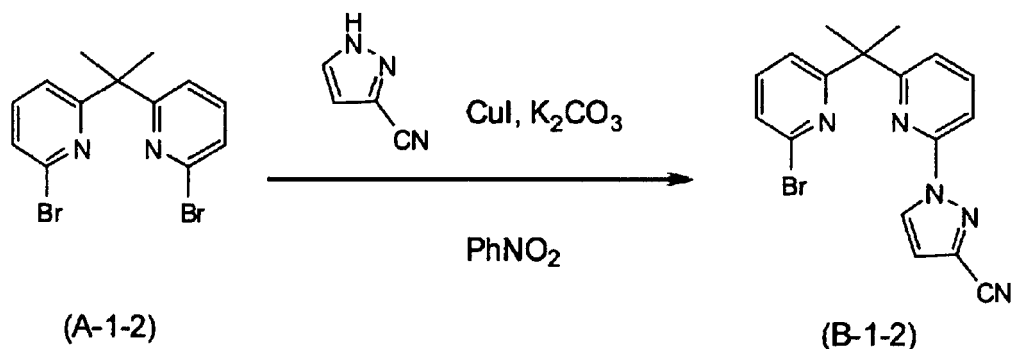
以下に本発明を実施例に基づき詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されない。

【0314】

<化合物B-1-2の合成>

【0315】

【化 70】



10

【0316】

窒素雰囲気下、3ツ口フラスコに、化合物 A-1-2 (14.24 g、40.0 mmol)、3-シアノピラゾール (1.86 g、20.0 mmol)、ヨウ化銅 (0.38 g、2.0 mmol)、炭酸カリウム (8.29 g、30.0 mmol)、ニトロベンゼン (80 mL) を加え、6 時間、攪拌しながら加熱還流した。ニトロベンゼンを減圧留去した後、水を加え、酢酸エチルで抽出し、得られた有機層を硫酸ナトリウムで乾燥、濾過、濃縮した。得られた残渣をカラムクロマトグラフィーで精製することにより、化合物 B-1-2 を 2.60 g 得た。

【0317】

20

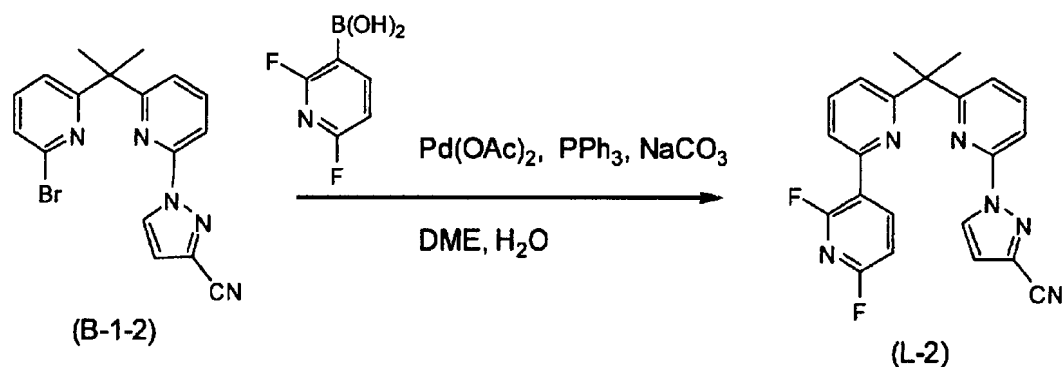
$^1\text{H-NMR}$ (CDCl₃, 300 MHz) δ : 1.84 (s, 6H)、6.82 (s, 1H)、7.12 (d, $J=4.5$ Hz, 1H)、7.20 (d, $J=3.0$ Hz, 1H)、7.31 (d, $J=4.5$ Hz, 1H)、7.44 (t, $J=9.0$ Hz, 1H)、7.77 (d, $J=4.0$ Hz, 1H)、7.82 (t, $J=9.6$ Hz, 1H)、8.56 (s, 1H)

【0318】

<化合物 L-2 の合成>

【0319】

【化 71】



30

【0320】

40

窒素雰囲気下、3ツ口フラスコに得られた化合物 B-1-2 (1.84 g、5.0 mmol)、2,6-ジフルオロピリジル-3-ホウ酸 (0.93 g、6.0 mmol)、酢酸パラジウム (28 mg、0.125 mmol)、トリフェニルホスフィン (0.13 g、0.5 mmol)、炭酸ナトリウム (2.65 g、25 mmol)、1,2-ジメトキシエタン (25 mL)、水 (25 mL) を加え、4 時間 30 分間、攪拌しながら加熱還流した。室温まで冷却し、水を加え酢酸エチルで抽出し、得られた有機層を硫酸ナトリウムで乾燥、濾過、濃縮した。得られた残渣をカラムクロマトグラフィーで精製することにより、化合物 L-2 を 1.91 g 得た。

【0321】

$^1\text{H-NMR}$ (DMSO-d₆, 300 MHz) δ : 1.88 (s, 6H)、7.26

50

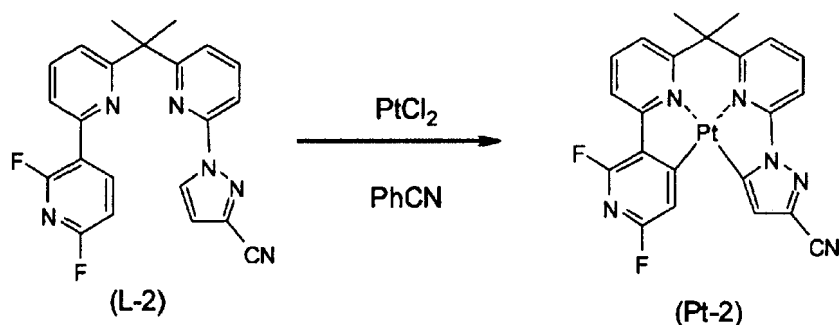
(s, 1H)、7.32 (d, J=4.5 Hz, 1H)、7.39 (d, J=4.5 Hz, 1H)、7.43 (d, J=6.0 Hz, 1H)、7.72 (d, J=3.0 Hz, 1H)、7.81 (d, J=6.0 Hz, 1H)、7.89 (t, J=6.0 Hz, 1H)、8.00 (t, J=9.0 Hz, 1H)、8.67 (dd, J=6.0, 4.5 Hz, 1H)、8.81 (s, 1H)

【0322】

<例示化合物 Pt-2 の合成>

【0323】

【化72】



10

【0324】

窒素雰囲気下、フラスコに化合物 L-2 (1.60 g、4.0 mmol)、塩化第一白金 (1.07 g、4.0 mmol)、ベンズニトリル (50 mL) を加え、3 時間、攪拌しながら 180 °C で加熱を行った。室温まで冷却後、溶媒を濃縮し、析出した結晶を濾過することにより、例示化合物を黄色結晶として、1.27 g (収率 53%) を得た。

20

【0325】

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl₃, 300 MHz) δ : 2.06 (s, 6H)、6.83 (s, $J_{\text{Pt-H}} = 6.0 \text{ Hz}$, 1H)、7.41 (dd, $J = 0.9, 1.2 \text{ Hz}$, $J_{\text{Pt-H}} = 2.8 \text{ Hz}$, 1H)、7.58 (d, $J = 3.9 \text{ Hz}$, 1H)、7.63 (d, $J = 3.9 \text{ Hz}$, 1H)、7.89 (d, $J = 4.5 \text{ Hz}$, 1H)、8.00 (t, $J = 9.0 \text{ Hz}$, 1H)、8.07 (t, $J = 9.0 \text{ Hz}$, 1H)、8.13 (d, $J = 4.5 \text{ Hz}$, 1H)

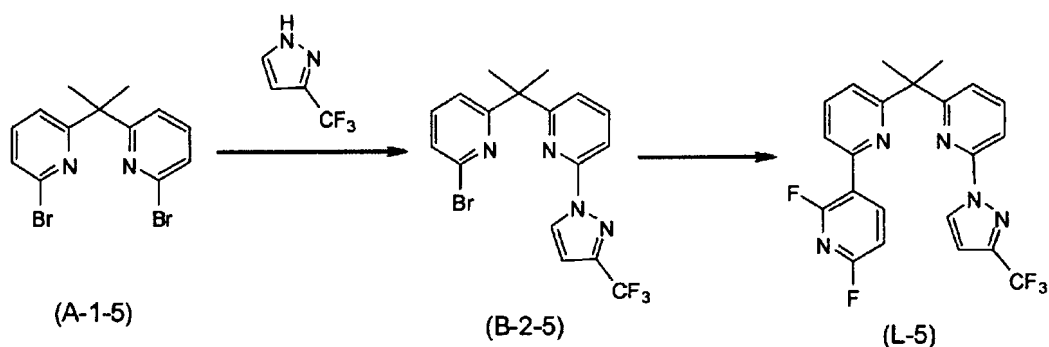
【0326】

30

<化合物 L-5 の合成>

【0327】

【化73】



40

【0328】

窒素雰囲気下、3ツ口フラスコに、化合物 (A-1-5) (10.0 g、28.09 mmol)、3-トリフルオロメチルピラゾール (1.91 g、14.05 mmol)、ヨウ化銅 (0.267 g、1.40 mmol)、炭酸カリウム (5.82 g、42.1 mmol)、ブチロニトリル (200 mL) を加え、7 時間 30 分間、攪拌しながら加熱還流した。室温まで冷却した後、水を加え酢酸エチルで抽出し、得られた有機層を硫酸ナトリウムで乾燥、濾過、濃縮した。得られた生成物の半量をそのまま次の反応に使用した。

50

【0329】

窒素雰囲気下、3ツ口フラスコに得られた生成物 5.0 g、2,6-ジフルオロピリジン-3-ホウ酸 (5.00 g、31.5 mmol)、酢酸パラジウム (137 mg、0.608 mmol)、トリフェニルホスフィン (0.638 g、2.43 mmol)、炭酸ナトリウム (12.9 g、121.6 mmol)、1,2-ジメトキシエタン (150 mL)、水 (200 mL) を加え、4 時間 30 分間、攪拌しながら加熱還流した。室温まで冷却し、水を加え酢酸エチルで抽出し、得られた有機層を硫酸ナトリウムで乾燥、濾過、濃縮した。得られた残渣をカラムクロマトグラフィーで精製することにより、化合物 L-5 を 1.74 g 得た。

【0330】

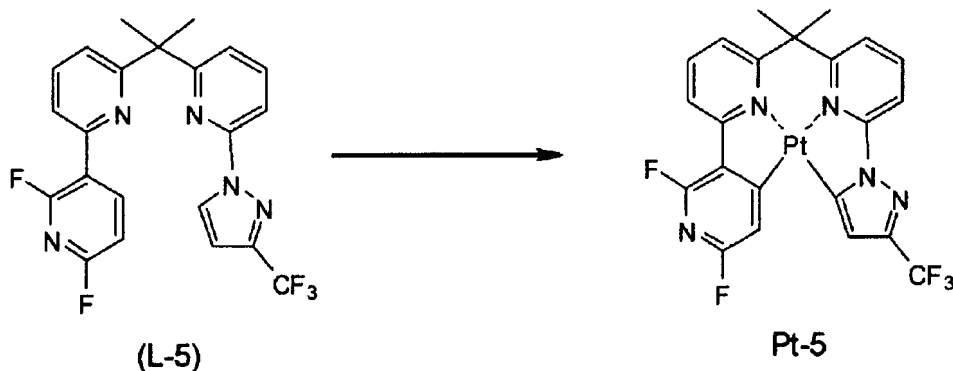
$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 、300 MHz) δ : 1.89 (s, 6H)、6.67 (d, $J=2.4\text{ Hz}$, 1H)、6.94 (dd, $J=3, 8.4\text{ Hz}$, 1H)、7.15–7.25 (m, 2H)、7.60–7.90 (m, 4H)、8.50–8.59 (m, 1H)、8.69 (dt, $J=8.1, 9.6\text{ Hz}$, 1H)

【0331】

<例示化合物 Pt-5 の合成>

【0332】

【化74】



【0333】

窒素雰囲気下、フラスコに化合物 L-5 (1.70 g、3.82 mmol)、塩化第一白金 (1.02 g、3.82 mmol)、ベンズニトリル (50 mL) を加え、3 時間、攪拌しながら 180 °C で加熱を行った。室温まで冷却後、溶媒を濃縮し、析出した結晶を濾過することにより、例示化合物 Pt-5 を黄色結晶として、1.84 g (収率 75%) を得た。

【0334】

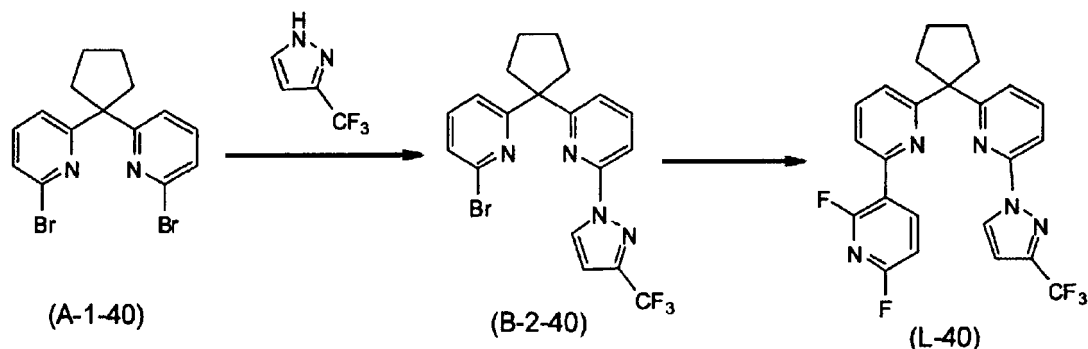
$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 、300 MHz) δ : 2.05 (s, 6H)、6.72 (s, $J_{\text{Pt-H}}=12\text{ Hz}$, 1H)、7.45 (s, $J_{\text{Pt-H}}=60\text{ Hz}$, 1H)、7.52 (dd, $J=0.6, 7.2\text{ Hz}$, 1H)、7.62 (d, $J=7.2\text{ Hz}$, 1H)、7.89 (d, $J=7.5\text{ Hz}$, 1H)、7.95–8.20 (m, 3H)

【0335】

<化合物 L-40 の合成>

【0336】

【化 7 5】



10

【0337】

窒素雰囲気下、3ツ口フラスコに、化合物 (A-1-40) (5.00 g、13.00 mmol)、3-トリフルオロメチルピラゾール (0.88 g、6.5 mmol)、ヨウ化銅 (0.124 g、0.65 mmol)、炭酸カリウム (2.70 g、20 mmol)、ブチロニトリル (100 mL) を加え、7時間30分間、攪拌しながら加熱還流した。室温まで冷却した後、水を加え酢酸エチルで抽出し、得られた有機層を硫酸ナトリウムで乾燥、濾過、濃縮した。得られた生成物をそのまま次の反応に使用した。

【0338】

窒素雰囲気下、3ツ口フラスコに、得られた生成物 2.7 g、2,6-ジフルオロピリジル-3-ホウ酸 (1.47 g、9.3 mmol)、酢酸パラジウム (69 mg、0.3 mmol)、トリフェニルホスフィン (0.33 g、1.2 mmol)、炭酸ナトリウム (3.29 g、31 mmol)、1,2-ジメトキシエタン (75 mL)、水 (100 mL) を加え、4時間30分間、攪拌しながら加熱還流した。室温まで冷却し、水を加え酢酸エチルで抽出し、得られた有機層を硫酸ナトリウムで乾燥、濾過、濃縮した。得られた残渣をカラムクロマトグラフィーで精製することにより、化合物 L-40 を 1.8 g 得た。

20

【0339】

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 、300 MHz) δ : 1.79 (m, 4H), 2.64 (m, 4H), 6.70 (d, $J=2.6$ Hz, 1H), 6.97 (dd, $J=2.8, 8.2$ Hz, 1H), 7.19 (d, $J=7.4$ Hz, 1H), 7.23 (dd, $J=1.3, 7.3$ Hz, 1H), 7.67 (t, $J=7.7$ Hz, 1H), 7.72 (dd, $J=1.5, 8.0$ Hz, 1H), 7.73 (d, $J=7.8$ Hz, 1H), 7.82 (d, $J=7.7$ Hz, 1H), 8.65 (d, $J=1.6$ Hz, 1H), 8.77 (dt, $J=8.1, 9.5$ Hz, 1H)

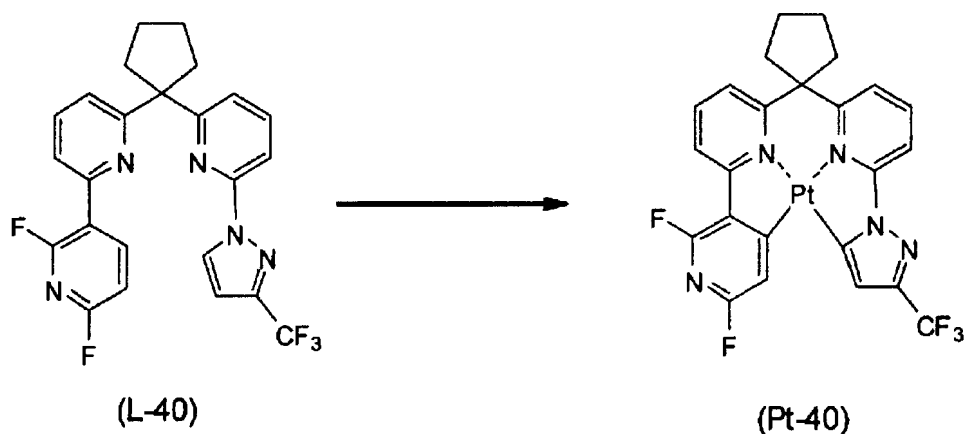
30

【0340】

<例示化合物 Pt-40 の合成>

【0341】

【化 7 6】



40

50

【0342】

窒素雰囲気下、フラスコに化合物 L-40 (1.70 g、3.6 mmol)、塩化第一白金 (0.96 g、3.6 mmol)、ベンズニトリル (50 mL) を加え、3 時間、攪拌しながら 180 °C で加熱を行った。室温まで冷却後、溶媒を濃縮し、析出した結晶を濾過することにより、例示化合物 Pt-40 を黄色結晶として、1.56 g (収率 65%) を得た。

【0343】

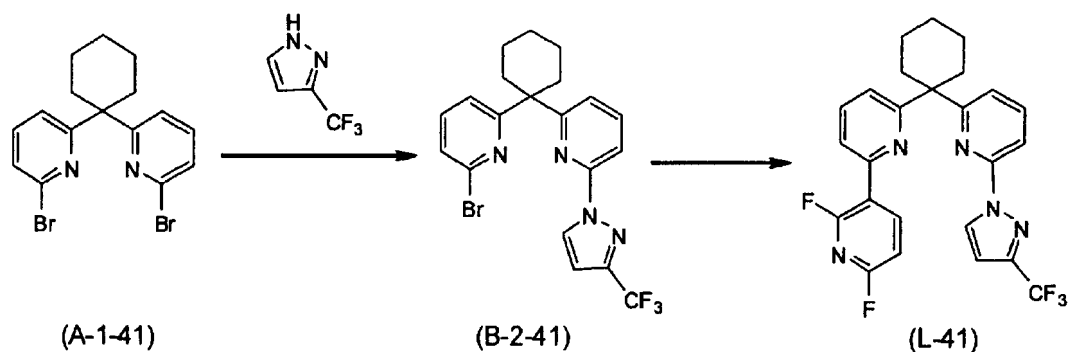
$^1\text{H-NMR}$ (CD_2Cl_2 , 300 MHz) δ : 1.76 (m, 4H), 2.71 (m, 4H), 6.74 (s, $J_{\text{Pt-H}} = 11.7 \text{ Hz}$, 1H), 7.45 (t, $J = 2.2 \text{ Hz}$, $J_{\text{Pt-H}} = 64.0 \text{ Hz}$, 1H), 7.52 (dd, $J = 0.6, 7.8 \text{ Hz}$, 1H), 7.60 (dd, $J = 1.0, 7.8 \text{ Hz}$, 1H), 7.84 (dd, $J = 0.7, 8.2 \text{ Hz}$, 1H), 8.01 (t, $J = 8.0 \text{ Hz}$, 1H), 8.06 (t, $J = 8.1 \text{ Hz}$, 1H), 8.07 (d, $J = 8.0 \text{ Hz}$, 1H)

【0344】

<化合物 L-41 の合成>

【0345】

【化77】



【0346】

化合物 A-1-41 (4.7 g、11.9 mmol)、3-トリフルオロメチルピラゾール (0.8 g、5.9 mmol)、ヨウ化銅 (113.0 mg、0.6 mmol)、炭酸カリウム (2.5 g、17.9 mmol)、ノルマルブチロニトリル (80.0 mL) からなる混合物を、窒素雰囲気下 115 °C で 7 時間攪拌した。反応液を室温にまで冷却、濾過した後に濃縮し、カラムクロマトグラフィーにより精製することで淡黄色固体を 5.0 g 得た。

【0347】

得られた淡黄色固体 (5.0 g)、2,6-ジフルオロピリジル-3-ほう酸 (4.5 g、28.3 mmol)、酢酸パラジウム (212 mg、0.94 mmol)、トリフェニルホスフィン (991 mg、3.8 mmol)、炭酸ナトリウム (9.2 g、86 mmol)、1,2-ジメトキシエタン (200.0 mL) 及び水 (200.0 mL) からなる混合物を、窒素雰囲気下 80 °C で 1 時間半攪拌した。反応液を室温にまで冷却、濾過した後に酢酸エチルで抽出を行った。有機層をまとめて乾燥、濃縮し、得られた残渣をカラムクロマトグラフィーにて精製することで、化合物 L-41 を白色固体として 1.0 g 得た。

【0348】

$^1\text{H-NMR}$ (300 MHz, CDCl_3) δ : 1.60-1.66 (br, 6H), 2.53-2.60 (br, 4H), 6.69 (d, $J = 2.4 \text{ Hz}$, 1H), 6.97 (dd, $J = 3.0, 8.4 \text{ Hz}$, 1H), 7.18 (d, $J = 7.2 \text{ Hz}$, 1H), 7.23-7.28 (m, 1H), 7.56-7.53 (m, 4H), 8.62 (s, 1H), 8.74 (dt, $J = 8.1, 9.6 \text{ Hz}$, 1H).

【0349】

10

20

30

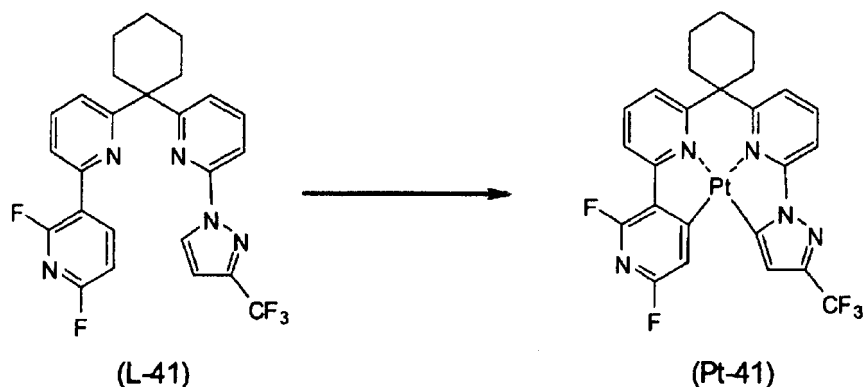
40

50

<例示化合物 Pt-41 の合成>

【0350】

【化78】



10

【0351】

窒素雰囲気下、フラスコに化合物 L-41 (1.00 g、2.1 mmol)、塩化第一白金 (0.55 g、2.1 mmol)、ベンズニトリル (20 mL) を加え、8 時間、攪拌しながら 180 °C で加熱を行った。室温まで冷却後、析出した結晶を濾過することにより、例示化合物 Pt-41 を黄色結晶として、0.91 g (収率 65%) を得た。

【0352】

$^1\text{H-NMR}$ (CD_2Cl_2 、300 MHz) δ : $^1\text{H-NMR}$ (300 MHz, CD_2Cl_2) δ : 1.39 (br, 6H), 2.51 (br, 2H), 2.82 (br, 2H), 6.61 (s, 1H), 7.32 (t, $J = 2.1$ Hz, $J_{\text{Pt-H}} = 63.6$ Hz, 1H), 7.45 (d, $J = 8.4$ Hz, 1H), 7.54 (dd, $J = 1.8, 4.5$ Hz, 1H), 7.72 (d, $J = 8.1$ Hz, 1H), 7.93–8.01 (m, 3H).

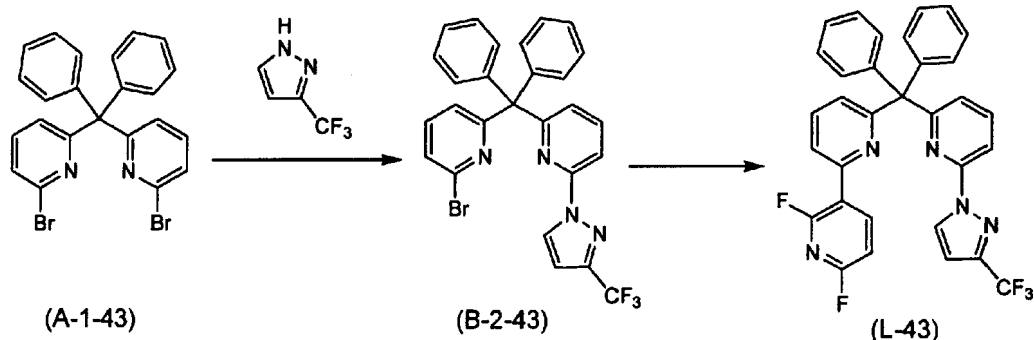
20

【0353】

<化合物 L-43 の合成>

【0354】

【化79】



30

【0355】

窒素雰囲気下、3ツ口フラスコに、化合物 A-1-43 (9.46 g、19.7 mmol)、3-トリフルオロメチルピラゾール (1.34 g、9.85 mmol)、ヨウ化銅 (0.187 g、0.98 mmol)、炭酸カリウム (4.00 g、29.55 mmol)、ブチロニトリル (50 mL) を加え、6 時間、攪拌しながら加熱還流した。室温まで冷却した後、水を加え酢酸エチルで抽出し、得られた有機層を硫酸ナトリウムで乾燥、濾過、濃縮した。得られた生成物をそのまま次の反応に使用した。

窒素雰囲気下、3ツ口フラスコに、得られた生成物 5.85 g、2,6-ジフルオロピリジル-3-ホウ酸 (3.47 g、21.85 mmol)、酢酸パラジウム (122 mg、0.54 mmol)、トリフェニルホスフィン (0.571 g、2.1 mmol)、炭

40

50

酸ナトリウム (11.55 g、109 mmol)、1,2-ジメトキシエタン (100 mL)、水 (100 mL) を加え、4 時間 30 分間、攪拌しながら加熱還流した。室温まで冷却し、水を加え酢酸エチルで抽出し、得られた有機層を硫酸ナトリウムで乾燥、濾過、濃縮した。得られた残渣をカラムクロマトグラフィーで精製することにより、化合物 L-43 を 1.75 g 得た。

【0356】

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 、300 MHz) δ : 6.58 (d, 1H), 6.80 (d, 1H), 7.10–7.40 (m, 13H), 7.70–7.90 (m, 3H), 8.15 (d, 1H), 8.40 (dt, 1H)

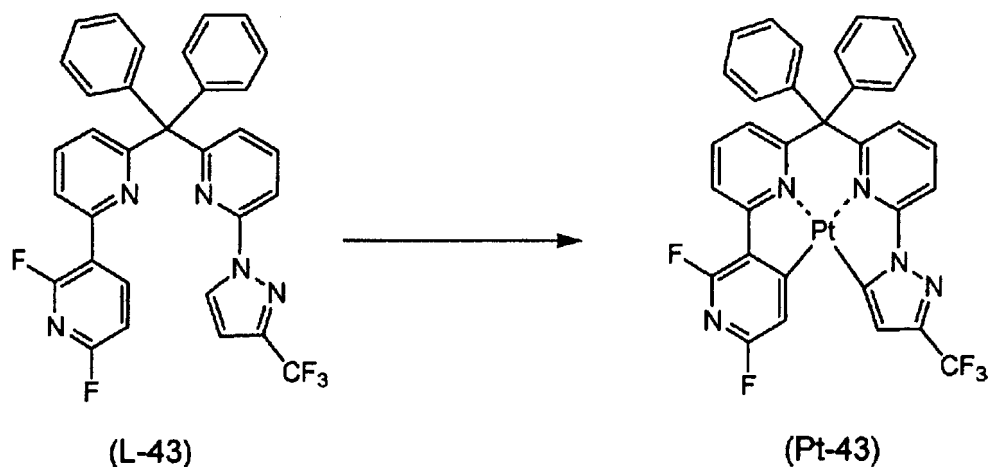
【0357】

10

<例示化合物 Pt-43 の合成>

【0358】

【化80】



20

【0359】

窒素雰囲気下、フラスコに化合物 L-43 (1.75 g、3.07 mmol)、塩化第一白金 (0.817 g、3.07 mmol)、ベンゾニトリル (20 mL) を加え、2 時間、攪拌しながら 180 °C で加熱を行った。室温まで冷却後、溶媒を濃縮し、析出した結晶を濾過することにより、例示化合物 Pt-43 を黄色結晶として、1.72 g (収率 73%) を得た。

30

【0360】

$^1\text{H-NMR}$ (CD_2Cl_2 、300 MHz) δ : 6.55 (dd, 3H), 6.64 (s, 1H), 6.91 (dd, 1H), 7.03 (dd, 1H), 7.20–7.40 (m, 6H), 7.40–7.52 (m, 1H), 7.57–7.70 (m, 1H), 7.80–8.00 (m, 3H), 8.12 (d, 1H)

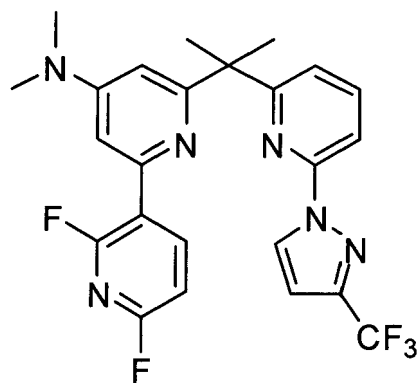
【0361】

<化合物 L-142 の合成>

40

【0362】

【化 8 1】



(L-142)

10

【0363】

例示化合物 Pt-5 の合成と同様にして化合物 L-142 を合成した。

【0364】

$^1\text{H-NMR}$ (300 MHz, CDCl_3) δ : 1.88 (s, 6H), 3.04 (s, 6H), 6.41 (s, 1H), 6.72 (s, 1H), 6.90 (d, $J=8.1$ Hz, 1H), 7.04 (s, 1H), 7.18 (d, $J=8.9$ Hz, 1H), 7.75 (t, $J=7.2$ Hz, 1H), 7.84 (d, $J=7.2$ Hz, 1H), 8.63–8.73 (m, 2H).

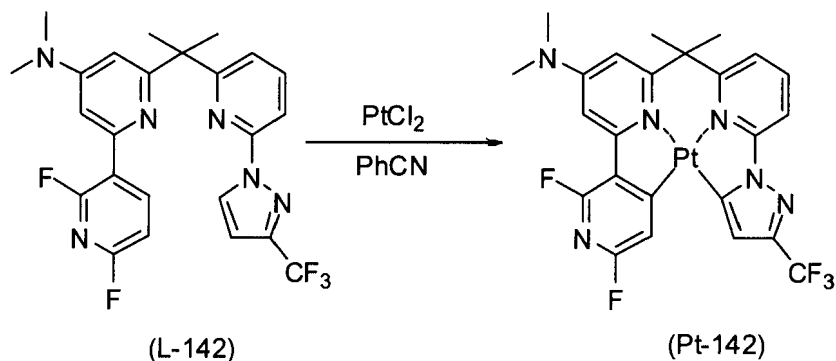
20

【0365】

< 例示化合物 Pt-142 の合成 >

【0366】

【化 8 2】



30

【0367】

塩化第一白金 (871 mg、3.3 mmol) 及び化合物 L-142 (1.6 g、3.3 mmol) をベンゾニトリル (100 mL) 中、窒素雰囲気下加熱還流条件にて 8 時間攪拌した。反応液を室温まで放冷し、メタノールを加えることで析出した固体を濾過、メタノールにて、洗浄することで、例示化合物 Pt-142 を明黄色粉末として 1.2 g 得た。収率 54%。

40

【0368】

$^1\text{H-NMR}$ (300 MHz, CD_2Cl_2) δ : 1.99 (s, 6H), 3.19 (s, 6H), 6.68 (t, $J=6.0$ Hz, 1H), 6.76 (d, $J=2.4$ Hz, 1H), 7.25 (t, $J=2.4$ Hz, 1H), 7.41 (t, $J(\text{H-F})=2.1$ Hz, $J(\text{Pt-H})=64.2$ Hz, 1H), 7.52 (d, $J=7.8$ Hz, 1H), 7.82 (d, $J=8.1$ Hz, 1H), 8.03 (t, $J=8.1$ Hz, 1H).

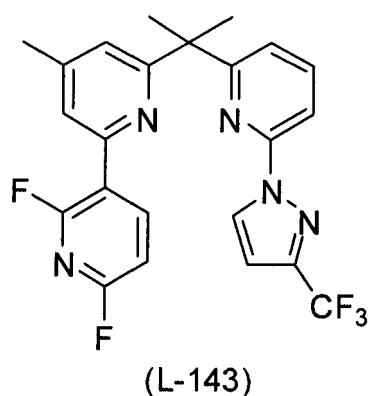
【0369】

< 化合物 L-143 の合成 >

50

【0370】

【化83】



10

【0371】

例示化合物 Pt-5 の合成と同様にして化合物 L-143 を合成した。

【0372】

$^1\text{H-NMR}$ (300 MHz, CDCl_3) δ : 1.87 (s, 6H), 2.37 (s, 3H), 6.67 (d, $J=2.4$ Hz, 1H), 6.92 (dd, $J=1.8, 8.4$ Hz, 1H), 7.00 (s, 1H), 7.16 (t, $J=7.2$ Hz, 1H), 7.56 (s, 1H), 7.75 (t, $J=7.8$ Hz, 1H), 7.85 (d, $J=7.5$ Hz, 1H), 8.59 (s, 1H), 8.68 (dd, $J=8.4, 17.1$ Hz, 1H).

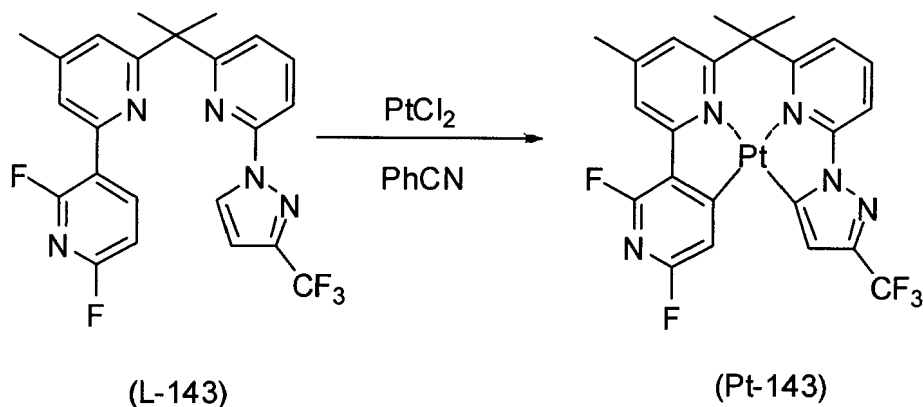
20

【0373】

<例示化合物 Pt-143 の合成>

【0374】

【化84】



30

【0375】

40

塩化第一白金 (266 mg、1.0 mmol、1.05 当量) 及び化合物 L-143 (400 mg、0.95 mmol、1.0 当量) をベンズニトリル (4 mL) 中、窒素雰囲気下加熱還流条件にて4時間攪拌した。反応液を室温まで放冷し、メタノールを加えることで析出した固体を濾過、メタノールにて洗浄することで、例示化合物 Pt-143 を明黄色粉末として380 mg 得た。収率65%。

【0376】

$^1\text{H-NMR}$ (300 MHz, CD_2Cl_2) δ : 2.05 (s, 6H), 2.56 (s, 3H), 6.74 (t, $J=6.0$ Hz, 1H), 7.46 (t, $J(\text{H-F})=2.4$ Hz, $J(\text{Pt-H})=64.2$ Hz, 1H), 7.51 (s, 1H), 7.59 (d, $J=7.2$ Hz, 1H), 7.87 (d, $J=7.5$ Hz, 1H), 7.95 (s, 1H)

50

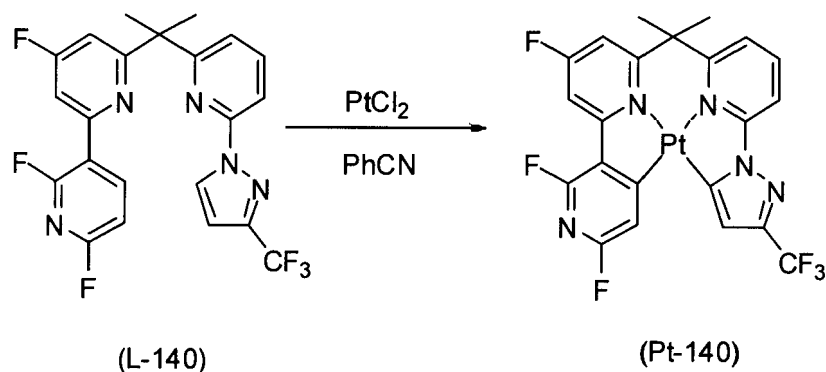
), 8.09 (t, J = 8.1 Hz, 1H).

【0377】

<例示化合物 Pt-140 の合成>

【0378】

【化85】



10

【0379】

塩化第一白金 (980 mg、3.7 mmol) 及び化合物 L-140 (1.72 g、3.7 mmol) をベンゾニトリル (80 mL) 中、窒素雰囲気下加熱還流条件にて18時間攪拌した。反応液を室温まで放冷し、メタノールを加えることで析出した固体を濾過、メタノール洗浄することで、例示化合物 Pt-140 を明黄色粉末として1.22 g 得た。収率50%。

20

【0380】

$^1\text{H-NMR}$ (300 MHz, CD_2Cl_2) δ : 2.06 (s, 6H), 7.35 ~ 7.52 (m, 2H), 7.60 (dd, J = 0.6, 7.8 Hz, 1H), 7.82 ~ 7.94 (m, 2H), 8.12 (t, J = 8.1 Hz, 1H).

【0381】

<化合物 L-11 の合成>

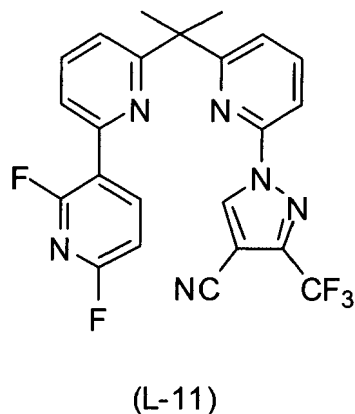
【0382】

一般式 (A'-1) において、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、及び R^{46} が水素原子、Rがメチル基である化合物を使用し、例示化合物 Pt-5 の合成で使用した反応条件などを用いて、4-シアノ-3-トリフルオロメチルピラゾール及び2,6-ジフルオロピリジール-3-ホウ酸と反応させることにより合成することができる。

30

【0383】

【化86】



40

【0384】

$^1\text{H-NMR}$ (300 MHz, CD_2Cl_2) δ : 1.94 (s, 6H), 6.99

50

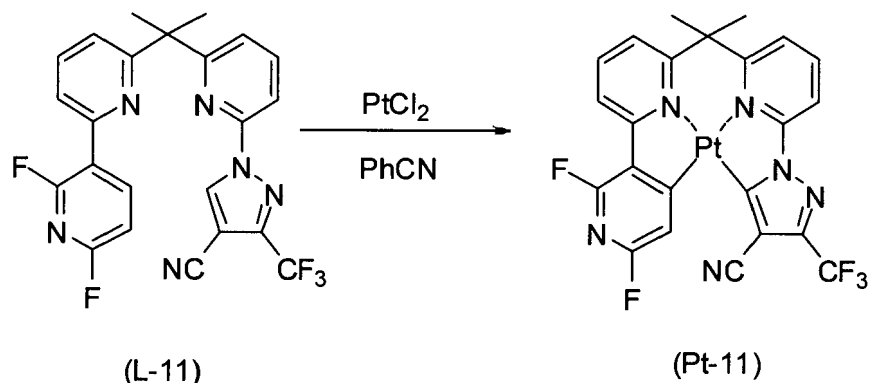
(ddd, $J = 0.9, 3.0, 8.4$ Hz, 1H), 7.36 (ddd, $J = 1.5, 6.9, 15$ Hz, 2H), 7.70~8.00 (m, 4H), 8.65 (dt, $J = 8.1, 9.6$ Hz, 1H), 9.04 (d, $J = 0.9$ Hz, 1H).

【0385】

<例示化合物 Pt-11 の合成>

【0386】

【化87】



10

【0387】

20

塩化第一白金 (791 mg、2.98 mmol) 及び化合物 L-11 (1.4 g、2.98 mmol) をベンゾニトリル (50 mL) 中、窒素雰囲気下加熱還流条件にて3時間攪拌した。反応液を室温まで放冷し、メタノールを加えることで析出した固体を濾過、メタノールにて洗浄することで、例示化合物 Pt-11 を明黄色粉末として1.49 g 得た。収率 75%。

$^1\text{H-NMR}$ (300 MHz, CD_2Cl_2) δ : 2.10 (s, 6H), 7.63~7.72 (m, 2H), 7.95 (dd, $J = 0.6, 8.1$ Hz, 1H), 8.07 (t, $J = 8.1$ Hz, 1H), 8.12~8.23 (m, 2H), 8.31 (t, $J(\text{H-F}) = 1.5$ Hz, $J(\text{Pt-H}) = 63.0$ Hz, 1H).

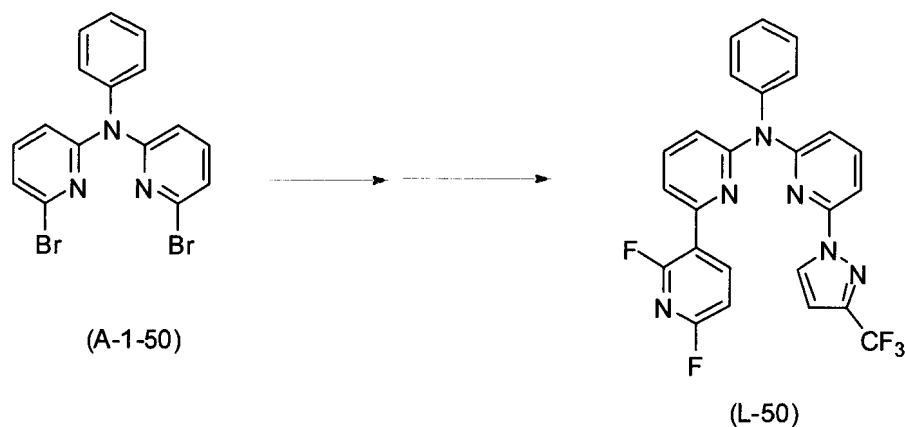
【0388】

30

<化合物 L-50 の合成>

【0389】

【化88】



40

【0390】

化合物 A-1-50 は、Syn. Lett. 2, (2005), 263 に記載の方法などを利用することにより合成した。

例示化合物 Pt-5 の合成と同様にして化合物 L-50 を合成した。

50

【0391】

$^1\text{H-NMR}$ (300MHz, CDCl_3) δ : 6.56 (d, $J=2.7\text{ Hz}$, 1H), 6.82 (ddd, $J=0.6, 3.0, 8.4\text{ Hz}$, 1H), 7.01 (d, $J=8.4\text{ Hz}$, 1H), 7.10 (d, $J=8.4\text{ Hz}$, 1H), 7.25~7.37 (m, 3H), 7.46 (t, $J=7.5\text{ Hz}$, 2H), 7.56~7.63 (m, 2H), 7.71 (dt, $J=1.5, 8.1\text{ Hz}$, 2H), 8.11 (dd, $J=0.9, 2.7\text{ Hz}$, 1H), 8.32 (dt, $J=7.8, 8.1\text{ Hz}$, 1H).

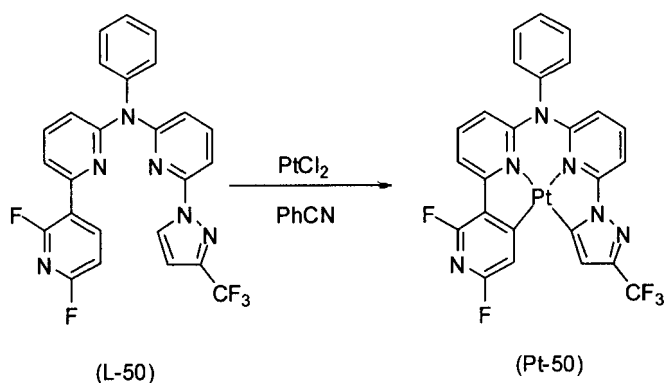
【0392】

<例示化合物 Pt-50 の合成>

【0393】

10

【化89】



20

【0394】

塩化第一白金 (45mg、0.172mmol) 及び化合物 L-50 (85mg、0.172mmol) をベンズニトリル (5mL) 中、窒素雰囲気下加熱還流条件にて3時間攪拌した。反応液を室温まで放冷し、メタノールを加えることで析出した固体を濾過、メタノールにて洗浄することで、例示化合物 Pt-50 を明黄色粉末として93mg得た。収率79%。

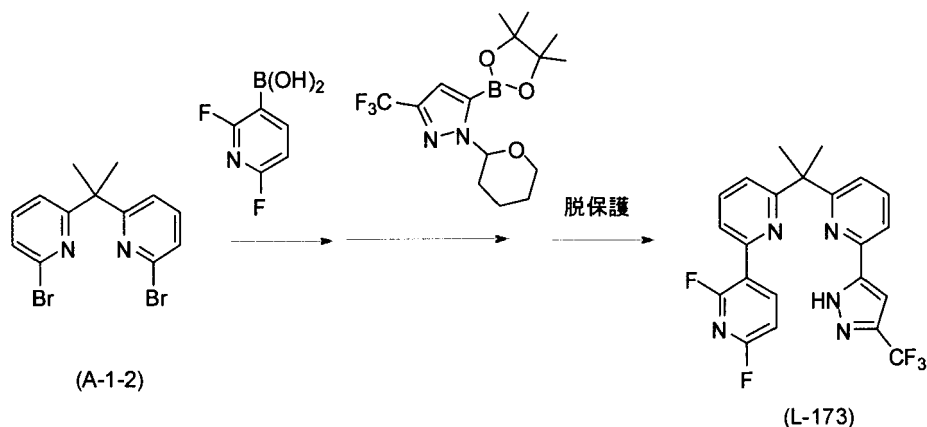
【0395】

30

$^1\text{H-NMR}$ (300MHz, CD_2Cl_2) δ : 6.45 (d, $J=8.7\text{ Hz}$, 1H), 6.64 (d, $J=8.7\text{ Hz}$, 1H), 6.75 (s, 1H), 7.46~7.56 (m, 3H), 7.66 (d, $J=7.5\text{ Hz}$, 1H), 7.75~7.90 (m, 6H)

【0396】

【化90】



40

【0397】

50

化合物 L-173 は、化合物 A-1-2 とホウ酸エステルとを反応させた後、窒素上の保護基を脱保護することにより合成した。

【0398】

$^1\text{H-NMR}$ (300 MHz, CD_2Cl_2) δ : 1.85 (s, 6H), 6.85 (dd, $J=0.9, 3.0\text{ Hz}$, 1H), 6.88 (s, 1H), 7.21 (dt, $J=0.9, 7.8\text{ Hz}$, 2H), 7.43 (dd, $J=0.9, 7.8\text{ Hz}$, 1H), 7.60~7.72 (m, 3H), 8.55 (dt, $J=9.6, 10.8\text{ Hz}$, 1H), 11.7 (brs, 1H).

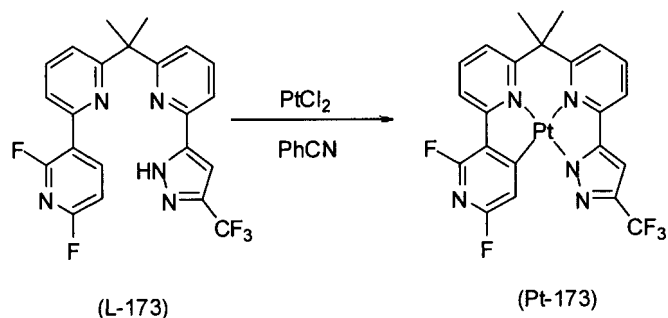
【0399】

<例示化合物 Pt-173 の合成>

10

【0400】

【化91】



20

【0401】

塩化第一白金 (537 mg、2.02 mmol) 及び化合物 L-173 (900 mg、2.02 mmol) をベンゾニトリル (50 mL) 中、窒素雰囲気下加熱還流条件にて3時間攪拌した。反応液を室温まで放冷し、メタノールを加えることで析出した固体を濾過、メタノールにて洗浄することで、例示化合物 Pt-173 を明黄色粉末として1.06 g 得た。収率82%。

【0402】

$^1\text{H-NMR}$ (300 MHz, CD_2Cl_2) δ : 2.07 (s, 6H), 6.97 (s, 1H), 7.60~7.67 (m, 2H), 7.71 (dd, $J=0.9, 8.1\text{ Hz}$), 7.90~8.08 (m, 3H), 8.17 (t, $J=2.1\text{ Hz}$, $J(\text{Pt-H})=46.8\text{ Hz}$, 1H).

30

【0403】

<有機EL素子の評価>

洗浄したITO基板を蒸着装置に入れ、銅フタロシアニン10nm蒸着し、この上に、NPD ((N, N'-ジ- α -ナフチル-N, N'-ジフェニル)-ベンジジン)を40nm蒸着した。この上に、ホスト材料と発光材料を85:15の比率(質量比)で40nm蒸着し、この上に、BALqを10nm、更にこの上にAlqを30nm蒸着した。この上に、フッ化リチウムを3nm蒸着した後、アルミニウム60nmを蒸着し、有機EL素子を作製した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用いて、直流定電圧を有機EL素子に印加して発光させた結果、発光材料に由来する発光が得られた。更に 360 cd/m^2 (発光面積 4 mm^2)と更に高輝度条件である 1000 cd/m^2 (発光面積 4 mm^2)で駆動した素子の輝度半減時間を測定した。実施例8、9においては、Alqの代わりに、重水素化を行ったAlq (D-Alq)を用いて、同様に素子を作製した。その結果を表2に示す。

40

【0404】

【表 2】

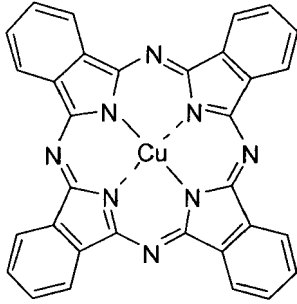
発光素子	発光層に用いた ホスト材料	発光層に用いた 発光材料	輝度半減時間 (360cd/m ² 開始)	輝度半減時間 (1000cd/m ² 開始)
比較例 1	mCP	化合物 I	810	176
比較例 2	mCP	化合物 I I	750	162
実施例 1	mCP	Pt- 2	850	230
実施例 2	mCP	Pt- 5	890	230
実施例 3	mCP	Pt-40	850	220
実施例 4	mCP	Pt-41	850	230
実施例 5	mCP	Pt-43	972	246
実施例 6	Host1	Pt- 5	1053	300
実施例 7	Host2	Pt- 5	970	246
実施例 8	mCP	Pt- 5	930	246
実施例 9	Host1	Pt- 5	1134	316
実施例 10	mCP	Pt - 11	900	240
実施例 11	mCP	Pt-50	850	235
実施例 12	mCP	Pt-140	950	250
実施例 13	mCP	Pt-142	850	220
実施例 14	mCP	Pt-143	910	260
実施例 15	mCP	Pt-173	850	240
実施例 16	Host1	Pt-11	1100	310
実施例 17	Host1	Pt-140	1170	330
実施例 18	Host1	Pt-143	1200	340
実施例 19	Host2	Pt-11	1010	250
実施例 20	Host2	Pt-140	1080	260
実施例 21	Host2	Pt-143	1100	270
実施例 22	Host3	Pt-5	1155	320
実施例 23	Host3	Pt-11	1200	325
実施例 24	Host3	Pt-140	1270	338
実施例 25	Host3	Pt-143	1300	350

【0405】

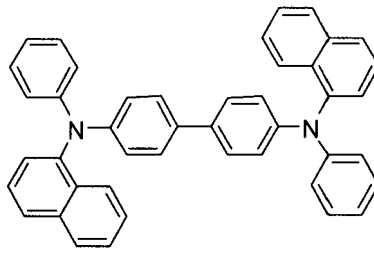
以上で用いた化合物の化学構造を以下に示す。

【0406】

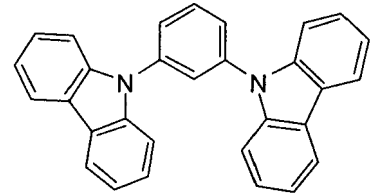
【化 9 2】



銅フタロシアニン

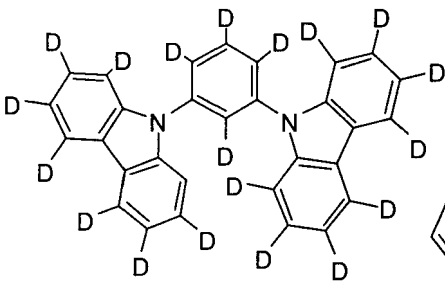


NPD

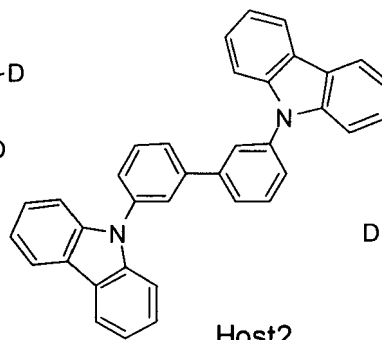


mCP

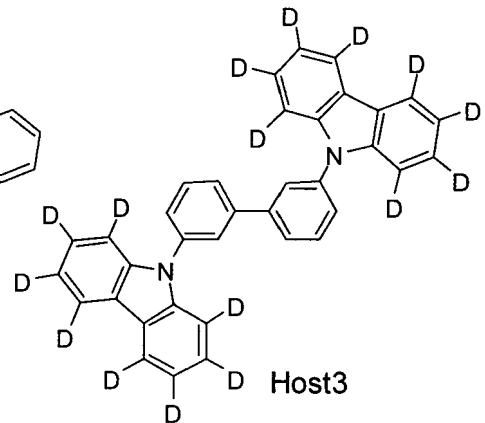
10



Host1

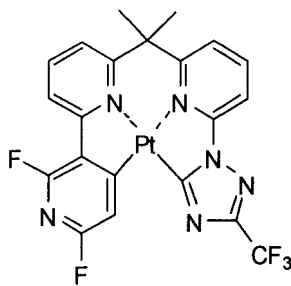


Host2

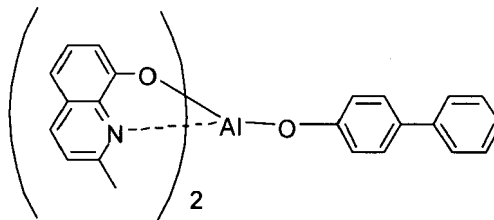


Host3

20

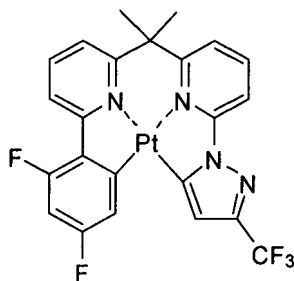


化合物 I

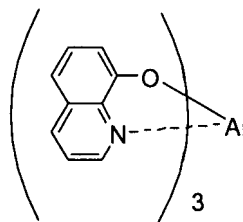
特開2006-261623号公報
に記載の化合物130

BAQ

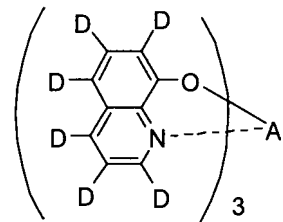
30



化合物 II

特開2006-261623号公報
に記載の化合物176

Alq



D-Alq

40

【0407】

上記実施例により、本発明によれば特に高輝度での耐久性に優れた有機電界発光素子が得られることが明らかとなった。

50

フロントページの続き

(72)発明者 木下 郁雄
神奈川県足柄上郡開成町牛島 5 7 7 番地 富士フイルム株式会社内

(72)発明者 高田 早
神奈川県足柄上郡開成町牛島 5 7 7 番地 富士フイルム株式会社内

(72)発明者 武田 玲
神奈川県足柄上郡開成町牛島 5 7 7 番地 富士フイルム株式会社内

(72)発明者 滝沢 裕雄
神奈川県足柄上郡開成町牛島 5 7 7 番地 富士フイルム株式会社内

F ターム(参考) 3K107 AA01 BB01 BB02 CC02 CC04 CC06 CC22 DD53 DD59 DD64
DD67 DD68 DD69
4C063 AA05 BB02 CC22 DD12 EE05
4H050 AA01 AA03 AB92 WB11 WB14 WB21

专利名称(译)	有机电致发光器件和新型铂络合物化合物和能够成为其配体的新化合物		
公开(公告)号	JP2010135818A	公开(公告)日	2010-06-17
申请号	JP2010007524	申请日	2010-01-15
[标]申请(专利权)人(译)	富士胶片株式会社		
申请(专利权)人(译)	富士胶片株式会社		
[标]发明人	邑上健 伊勢俊大 木下郁雄 高田早 武田玲 滝沢裕雄		
发明人	邑上 健 伊勢 俊大 木下 郁雄 高田 早 武田 玲 滝沢 裕雄		
IPC分类号	H01L51/50 C09K11/06 C07F15/00 C07D401/14		
FI分类号	H05B33/14.B C09K11/06.660 C07F15/00.CSP.F C07D401/14 C07F15/00.FCS.P		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/BB02 3K107/CC02 3K107/CC04 3K107/CC06 3K107/CC22 3K107/DD53 3K107/DD59 3K107/DD64 3K107/DD67 3K107/DD68 3K107/DD69 4C063/AA05 4C063/BB02 4C063/CC22 4C063/DD12 4C063/EE05 4H050/AA01 4H050/AA03 4H050/AB92 4H050/WB11 4H050/WB14 4H050/WB21		
优先权	2008111799 2008-04-22 JP		
其他公开文献	JP2010135818A5 JP4613249B2		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

解决的问题：提供一种具有高亮度和优异耐久性的有机电致发光器件。
 一种有机电致发光器件，在至少一个有机层中包含由以下通式（1）表示的化合物。通式（1）式中，X₁、~X₁₂表示碳原子或氮原子，X₁₃~X₁₅分别独立地为碳原子，氮原子，L表示氧原子或硫原子，L表示单键或二价连接基团。M表示二价金属离子。[选择图]无

