

(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2008-10649  
(P2008-10649A)

(43) 公開日 平成20年1月17日(2008.1.17)

(51) Int. Cl.

HO 1 L 51/50 (2006.01)  
CO 9 K 11/06 (2006.01)

1

HO5B 33/14 E  
CO9K 11/06 680  
CO9K 11/06 690

### テーマコード（参考）

3 K 107

審査請求 未請求 請求項の数 10 O.L. (全 45 頁)

(21) 出願番号  
(22) 出願日

特願2006-179891 (P2006-179891)  
平成18年6月29日 (2006. 6. 29)

(71) 出願人 000002004  
昭和電工株式会社  
東京都港区芝大門1丁目13番9号  
(74) 代理人 100081994  
弁理士 鈴木 俊一郎  
(74) 代理人 100103218  
弁理士 牧村 浩次  
(74) 代理人 100107043  
弁理士 高畠 ちより  
(74) 代理人 100110917  
弁理士 鈴木 亨  
(72) 発明者 大坪 昭博  
東京都港区芝大門1-13-9 昭和電工  
株式会社内

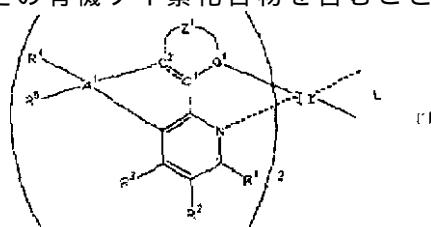
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】有機エレクトロルミネッセンス素子および表示装置

(57) 【要約】

【課題】緑～青色の発光が高い発光効率で得られ、さらには長寿命で耐久性に優れた有機EL素子および表示装置を提供すること。

【解決手段】陽極と陰極とに挟まれた1層または2層以上の有機高分子層を含む有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記有機高分子層の少なくとも1層に(A)下記一般式(1)で表されるイリジウム錯体から導かれる構造単位を含む重合体、及び(B)特定の有機ケイ素化合物を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。



【選択図】なし

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項1】

陽極と陰極とに挟まれた1層または2層以上の有機高分子層を含む有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記有機高分子層の少なくとも1層に

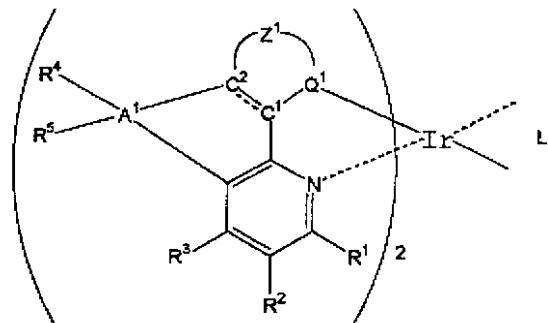
( A ) 下記一般式 ( 1 ) で表されるイリジウム錯体から導かれる構造単位を含む重合体、及び

(B) 下記一般式(2)で表される繰り返し単位を直接に、または-O-基を介して、2~20単位、直鎖状、環状、または網目状に繋ぐと共に、式(2)の繰り返し単位を直接に、または-O-基を介して直鎖状に繋いだときは、その両末端に、置換基を有してもよいアリール基を結合した構造を有していてもよい有機ケイ素化合物を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

10

### 一般式 (1)

【化 1】



20

(式中、R<sup>1</sup>～R<sup>5</sup>は、それぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、-OH、-SX<sup>1</sup>、-OCOX<sup>2</sup>、-COOX<sup>3</sup>、-SiX<sup>4</sup>X<sup>5</sup>X<sup>6</sup>、-NH<sub>2</sub>、-NHNH<sub>2</sub>、-N(X<sup>8</sup>)X<sup>9</sup>、炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数1～22の直鎖、環状もしくは分岐アルキル基又はそれらの水素原子の一部もしくは全部がハロゲン原子で置換されたハロゲン置換アルキル基、あるいは炭素数6～21のアリール基、炭素数2～20のヘテロアリール基もしくは炭素数7～21のアラルキル基又はそれらの水素原子の一部もしくは全部がハロゲン原子で置換されたハロゲン置換アリール基、ハロゲン置換ヘテロアリール基もしくはハロゲン置換アラルキル基を表す。

30

(ここで、 $X^1 \sim X^9$  は各々独立に、炭素数 1 ~ 22 の直鎖、環状もしくは分岐のアルキル基、炭素数 6 ~ 21 のアリール基、炭素数 2 ~ 20 のヘテロアリール基、または、炭素数 7 ~ 21 のアラルキル基を表す。)

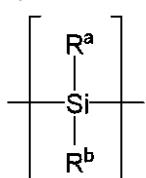
$Q^1$  は炭素原子または窒素原子を表し、 $Z^1$  は、炭素原子  $C^1$ 、 $C^2$ 、および前記  $Q^1$  と共に五員または六員の炭素環または複素環を形成するための原子群を表し、該炭素環または複素環は、置換基を有してもよく、さらに他の環との縮合環を形成してもよい。

$A^1$  は炭素原子またはケイ素原子を表す。

しは、重合性官能基を有する、1価アニオンの2座配位子を表す。)

### 一般式(2)

## 【化 2】



40

(式中、 $R^a$ はそれぞれ独立に置換基を有してもよいアリール基を示し、 $R^b$ はそれぞれ独立に置換基を有してもよいアリール基、または- $O-$ 基を示す。)

### 【請求項2】

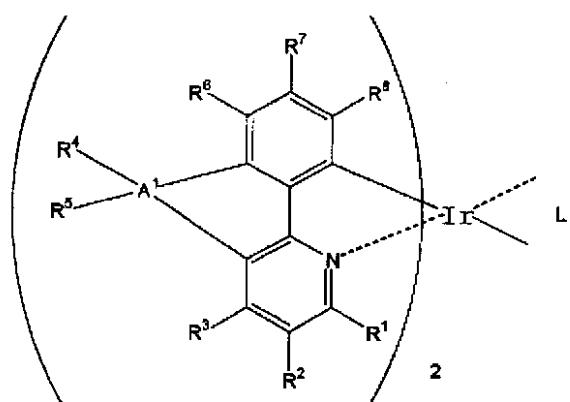
前記イリジウム錯体が、下記一般式(3)～(7)のいずれかで表されることを特徴とする。

50

する請求項 1 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

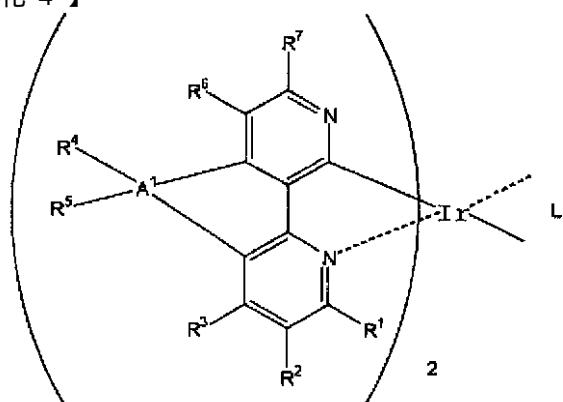
一般式 (3)

【化 3】



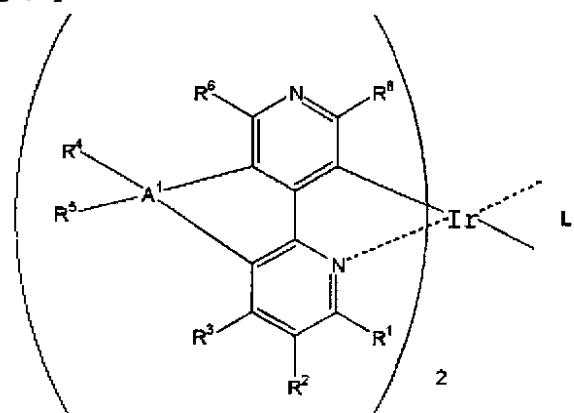
一般式 (4)

【化 4】



一般式 (5)

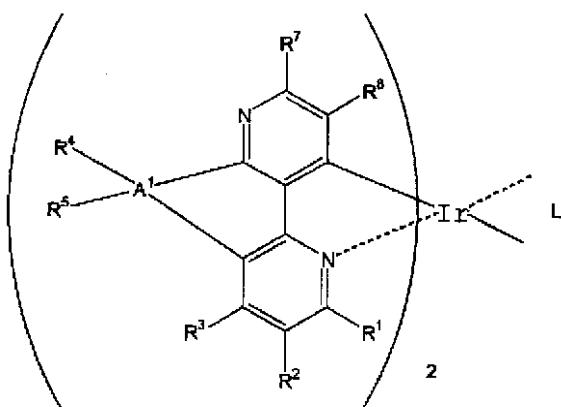
【化 5】



40

一般式 (6)

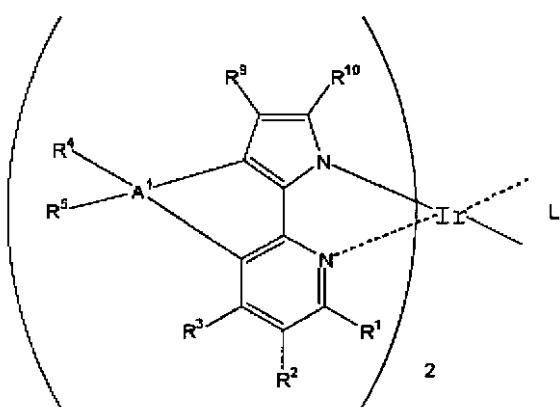
## 【化6】



10

一般式(7)

## 【化7】



20

(式中、R<sup>1</sup>～R<sup>10</sup>は、それぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、-OH、-SX<sup>1</sup>、-OCOX<sup>2</sup>、-COOX<sup>3</sup>、-SiX<sup>4</sup>X<sup>5</sup>X<sup>6</sup>、-NH<sub>2</sub>、-NHX<sup>7</sup>、-NX<sup>8</sup>X<sup>9</sup>、炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数1～22の直鎖、環状もしくは分岐アルキル基又はそれらの水素原子の一部もしくは全部がハロゲン原子で置換されたハロゲン置換アルキル基、あるいは炭素数6～21のアリール基、炭素数2～20のヘテロアリール基もしくは炭素数7～21のアラルキル基又はそれらの水素原子の一部もしくは全部がハロゲン原子で置換されたハロゲン置換アリール基、ハロゲン置換ヘテロアリール基もしくはハロゲン置換アラルキル基を表す。)

30

(ここで、X<sup>1</sup>～X<sup>9</sup>はそれぞれ独立に、炭素数1～22の直鎖、環状もしくは分岐のアルキル基、炭素数6～21のアリール基、炭素数2～20のヘテロアリール基、または、炭素数7～21のアラルキル基を表す。)

A<sup>1</sup>は炭素原子またはケイ素原子を表す。

Lは、重合性官能基を有する、1価アニオンの2座配位子を表す。)

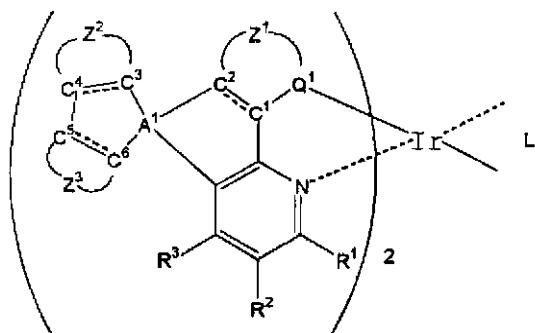
40

## 【請求項3】

前記イリジウム錯体が、下記一般式(8)で表されることを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式(8)

## 【化8】



10

(式中、R<sup>1</sup>～R<sup>3</sup>は、それぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、-OH、-SX<sup>1</sup>、-OCOX<sup>2</sup>、-COOX<sup>3</sup>、-SiX<sup>4</sup>X<sup>5</sup>X<sup>6</sup>、-NH<sub>2</sub>、-NHX<sup>7</sup>、-NX<sup>8</sup>X<sup>9</sup>、炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数1～22の直鎖、環状もしくは分岐アルキル基又はそれらの水素原子の一部もしくは全部がハロゲン原子で置換されたハロゲン置換アルキル基、あるいは炭素数6～21のアリール基、炭素数2～20のヘテロアリール基もしくは炭素数7～21のアラルキル基又はそれらの水素原子の一部もしくは全部がハロゲン原子で置換されたハロゲン置換アリール基、ハロゲン置換ヘテロアリール基もしくはハロゲン置換アラルキル基を表す。

(ここで、X<sup>1</sup>～X<sup>9</sup>はそれぞれ独立に、炭素数1～22の直鎖、環状もしくは分岐のアルキル基、炭素数6～21のアリール基、炭素数2～20のヘテロアリール基、または、炭素数7～21のアラルキル基を表す。)

Q<sup>1</sup>は炭素原子または窒素原子を表し、Z<sup>1</sup>はC<sup>1</sup>、C<sup>2</sup>、Q<sup>1</sup>と共に、Z<sup>2</sup>はC<sup>3</sup>、C<sup>4</sup>と共に、およびZ<sup>3</sup>はC<sup>5</sup>、C<sup>6</sup>と共に、それぞれ独立に五員または六員の炭素環または複素環を形成するための原子群を表し、該炭素環または複素環は、置換基を有してもよく、さらに他の環との縮合環を形成してもよい。

A<sup>1</sup>は炭素原子またはケイ素原子を表す。

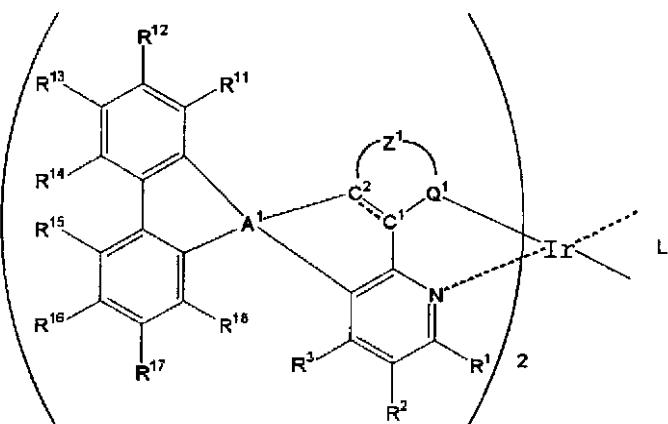
Lは、重合性官能基を有する、1価アニオンの2座配位子を表す。)

## 【請求項4】

前記イリジウム錯体が、下記一般式(9)または(10)のいずれかで表されることを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式(9)

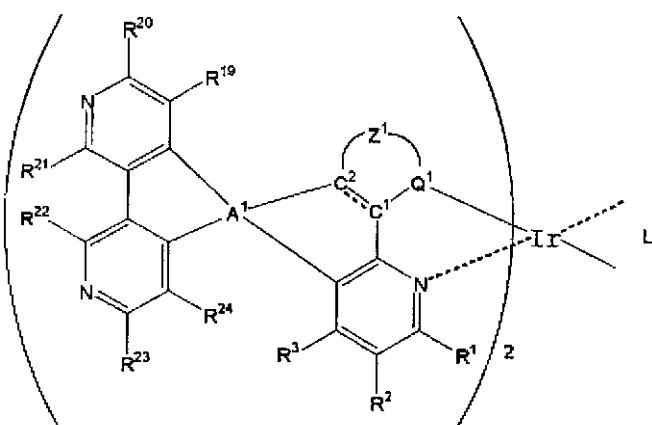
## 【化9】



40

一般式(10)

## 【化10】



10

(式中、 $R^1 \sim R^3$  および  $R^{11} \sim R^{24}$  は、それぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、-OH、-SX<sup>1</sup>、-OCOX<sup>2</sup>、-COOX<sup>3</sup>、-SiX<sup>4</sup>X<sup>5</sup>X<sup>6</sup>、-NH<sub>2</sub>、-NHNH<sup>7</sup>、-NX<sup>8</sup>X<sup>9</sup>、炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数1～22の直鎖、環状もしくは分岐アルキル基又はそれらの水素原子の一部もしくは全部がハロゲン原子で置換されたハロゲン置換アルキル基、あるいは炭素数6～21のアリール基、炭素数2～20のヘテロアリール基もしくは炭素数7～21のアラルキル基又はそれらの水素原子の一部もしくは全部がハロゲン原子で置換されたハロゲン置換アリール基、ハロゲン置換ヘテロアリール基もしくはハロゲン置換アラルキル基を表す。)

20

(ここで、 $X^1 \sim X^9$  はそれぞれ独立に、炭素数1～22の直鎖、環状もしくは分岐のアルキル基、炭素数6～21のアリール基、炭素数2～20のヘテロアリール基、または、炭素数7～21のアラルキル基を表す。)

$Q^1$  は炭素原子または窒素原子を表し、 $Z^1$  は、炭素原子  $C^1$ 、 $C^2$ 、および前記  $Q^1$  と共に五員または六員の炭素環または複素環を形成するための原子群を表し、該炭素環または複素環は、置換基を有してもよく、さらに他の環との縮合環を形成してもよい。

$A^1$  は炭素原子またはケイ素原子を表す。

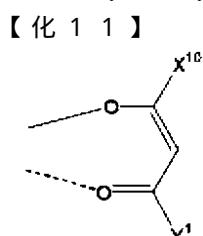
$L$  は、重合性官能基を有する、1価アニオンの2座配位子を表す。)

30

## 【請求項5】

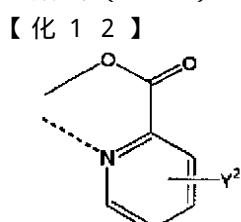
前記  $L$  が、下記一般式(11)または(12)のいずれかで表される2座配位子であることを特徴とする請求項1～4のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式(11)



40

一般式(12)



50

(式中、 $X^{10}$  は、上記式(1)中の  $R^1$  と同義であり、 $Y^1$  および  $Y^2$  はそれぞれ独立に、重合性官能基を有する置換基を表す。)

## 【請求項 6】

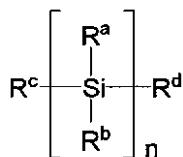
前記重合体が、さらに、ホール輸送性の重合性化合物および電子輸送性の重合性化合物からなる群より選ばれる少なくとも1種の重合性化合物から導かれる構造単位を含むことを特徴とする請求項1～5のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【請求項 7】

前記有機ケイ素化合物が、下記一般式(13)～(16)のいずれかで表されることを特徴とする請求項1～6のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式(13)

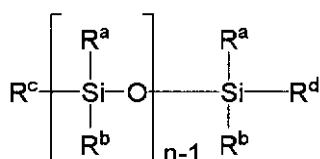
## 【化13】



(式中、R<sup>a</sup>、R<sup>b</sup>、R<sup>c</sup>、R<sup>d</sup>は、それぞれ独立に置換基を有してもよいアリール基を示す。nは2～20の整数を示す。)

一般式(14)

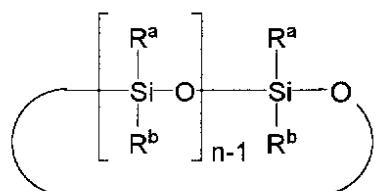
## 【化14】



(式中、R<sup>a</sup>、R<sup>b</sup>、R<sup>c</sup>、R<sup>d</sup>は、それぞれ独立に置換基を有してもよいアリール基を示す。nは2～20の整数を示す。)

一般式(15)

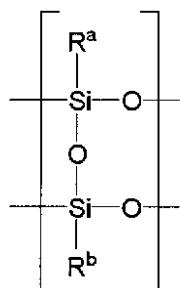
## 【化15】



(式中、R<sup>a</sup>、R<sup>b</sup>は、それぞれ独立に置換基を有してもよいアリール基を示す。nは2～20の整数を示す。)

一般式(16)

## 【化16】



10

20

30

40

50

(式中、R<sup>a</sup>、R<sup>b</sup>は置換基を有してもよいアリール基を示す。)

【請求項 8】

前記有機ケイ素化合物におけるR<sup>a</sup>、R<sup>b</sup>、R<sup>c</sup>及びR<sup>d</sup>が、それぞれ独立に置換基を有してもよいフェニル基、ナフチル基、ビフェニリル基、o-テルフェニル基、アントリル基及びフェナントリル基からなる群から選ばれるアリール基の一種であることを特徴とする請求項7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 9】

請求項1～8のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を用いた画像表示装置。

【請求項 10】

請求項1～8のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を用いた面発光光源。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、発光効率、発光輝度に優れ、しかも耐久性に優れた有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。より詳しくは、本発明は、高い純度の緑～青色光の発光効率、発光輝度を向上し、駆動寿命が長く、且つ製造工程が簡略化され、大面積化が実現できる優れた有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

【背景技術】

【0002】

近年、有機エレクトロルミネッセンス素子（本明細書において、「有機EL素子」ともいう。）に用いる材料開発が活発に行われている。たとえば、フルカラー表示を実現するためには、光の3原色（RGB）（赤色、緑色および青色）の各単色光を発光する材料が必要であるが、これらに関しては、高い発光効率とともに、様々な色の発光を有し、駆動寿命の長い材料が求められている。

【0003】

特に、緑～青色の発光材料については、赤色、緑色に比べて同等の発光効率、発光輝度を有する材料が求められているが、発光波長の短波化が難しく実用に耐えうる性能を十分に達成できていないのが現状である。

【0004】

波長の短波化に関しては、これまでフェニルピリジンにフッ素を置換基として導入すること、配位子としてピコリン酸やピラザボール系の配位子を導入することが知られている。しかし、このような置換基効果を利用して発光波長を短波化し青色を出そうとすると、オルトメタル化錯体自体の発光寿命は大幅に劣化することが知られている。

【0005】

最近、配位子と中心金属から金属錯体が形成される場合に、金属錯体の中心金属と配位子が錯形成される側とは反対側（即ち、配位子と中心金属との間で配位結合が形成される側とは逆側を示す。）に位置する配位子分子のオルト位同士が、炭素原子1個またはケイ素原子1個で連結した分子構造を有する誘導体を配位子として含むオルトメタル化イリジウム錯体が開示されている。（特許文献1）

なお、本明細書での「オルトメタル化」とは、一般式（1）でのZ<sup>1</sup>を含む環において、配位原子を有する置換基の結合位置に対してオルト位のC-H結合が、分子内反応で金属-炭素結合を含むキレート環を生成する反応をいう。

【0006】

特許文献1によれば、従来の金属錯体を含む有機EL素子材料を用いて作製された有機EL素子の問題点であった、短い発光寿命が大幅に改善されると記載されている。しかしながら、更なる素子の長寿命化が求められている。

【0007】

一方、青色の発光効率、発光輝度を高め、且つ有機EL素子の長寿命化を図る方法とし

10

20

30

40

50

て、発光層に有機ケイ素化合物を含有させる方法が開示されている。（特許文献2参照）。特許文献2によれば、青色の発光効率、発光輝度を他の色と同等まで向上することができる」とされている。

【0008】

特許文献2では、発光材料として上記錯体のような低分子化合物を用いており、いわゆるホスト-ゲスト型の発光層を形成している。一般に、発光層を形成する際に、上記錯体のような低分子化合物では、真空蒸着法が用いられるが、この方法で得られる発光層の膜厚は不均一になりやすい。

【0009】

また、真空蒸着法には素子の大型化にともない大型の設備が必要となり、その条件も厳密な制御が必要とされるなど、簡便な製造方法とは言えない。

【特許文献1】特開2005-314663号公報

【特許文献2】特開2006-066820号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0010】

本発明の目的は、高い純度の緑～青色光の発光効率、発光輝度に優れ、しかも耐久性に優れた有機エレクトロルミネッセンス素子を提供することにある。また、本発明の別の目的は、製造工程が簡略化され、大面積化が実現できるとともに、耐久性に優れた有機EL素子および表示装置を提供することにある。

10

20

【課題を解決するための手段】

【0011】

本発明者らは、上記課題を解決すべく鋭意研究した結果、特定のイリジウム錯体から導かれる構造単位を含む重合体が、特に色純度のよい高分子青色発光材料として駆動寿命の長いことを見出した。さらに、発光層を形成する際に特定の構造を有する有機ケイ素化合物を加えることで、より発光効率、発光輝度に優れ、しかも耐久性に優れた有機エレクトロルミネッセンス素子を提供できることを見いだし本発明を完成するに至った。

【0012】

すなわち、本発明は以下のとおりに要約される。

〔1〕 陽極と陰極とに挟まれた1層または2層以上の有機高分子層を含む有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記有機高分子層の少なくとも1層に

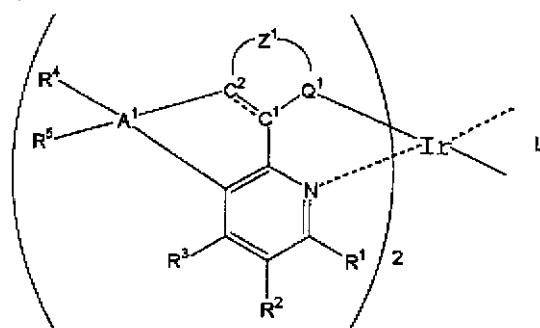
(A) 下記一般式(1)で表されるイリジウム錯体から導かれる構造単位を含む重合体、及び

(B) 下記一般式(2)で表される繰り返し単位を直接に、または-O-基を介して、2～20単位、直鎖状、環状、または網目状に繋ぐと共に、式(2)の繰り返し単位を直接に、または-O-基を介して直鎖状に繋いだときは、その両末端に、置換基を有してもよいアリール基を結合した構造を有していてもよい有機ケイ素化合物を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式(1)

【0013】

【化17】



30

40

50

## 【0014】

(式中、R<sup>1</sup>～R<sup>5</sup>は、それぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、-OH、-SX<sup>1</sup>、-OCOX<sup>2</sup>、-COOX<sup>3</sup>、-SiX<sup>4</sup>X<sup>5</sup>X<sup>6</sup>、-NH<sub>2</sub>、-NHX<sup>7</sup>、-NX<sup>8</sup>X<sup>9</sup>、炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数1～22の直鎖、環状もしくは分岐アルキル基又はそれらの水素原子の一部もしくは全部がハロゲン原子で置換されたハロゲン置換アルキル基、あるいは炭素数6～21のアリール基、炭素数2～20のヘテロアリール基もしくは炭素数7～21のアラルキル基又はそれらの水素原子の一部もしくは全部がハロゲン原子で置換されたハロゲン置換アリール基、ハロゲン置換ヘテロアリール基もしくはハロゲン置換アラルキル基を表す。)

(ここで、X<sup>1</sup>～X<sup>9</sup>は各々独立に、炭素数1～22の直鎖、環状もしくは分岐のアルキル基、炭素数6～21のアリール基、炭素数2～20のヘテロアリール基、または、炭素数7～21のアラルキル基を表す。)

Q<sup>1</sup>は炭素原子または窒素原子を表し、Z<sup>1</sup>は、炭素原子C<sup>1</sup>、C<sup>2</sup>、および前記Q<sup>1</sup>と共に五員または六員の炭素環または複素環を形成するための原子群を表し、該炭素環または複素環は、置換基を有してもよく、さらに他の環との縮合環を形成してもよい。

## 【0015】

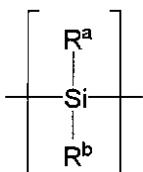
A<sup>1</sup>は炭素原子またはケイ素原子を表す。

Lは、重合性官能基を有する、1価アニオンの2座配位子を表す。)

一般式(2)

## 【0016】

## 【化18】



## 【0017】

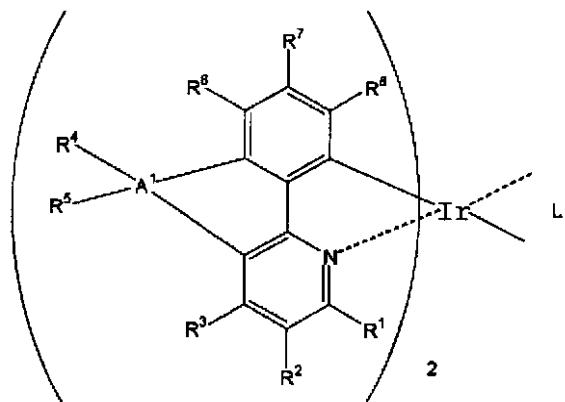
(式中、R<sup>a</sup>はそれぞれ独立に置換基を有してもよいアリール基を示し、R<sup>b</sup>はそれぞれ独立に置換基を有してもよいアリール基、または-O-基を示す。)

[2] 前記イリジウム錯体が、下記一般式(3)～(7)のいずれかで表されることを特徴とする[1]に記載の有機エレクトロミネッセンス素子。

一般式(3)

## 【0018】

## 【化19】



## 【0019】

一般式(4)

## 【0020】

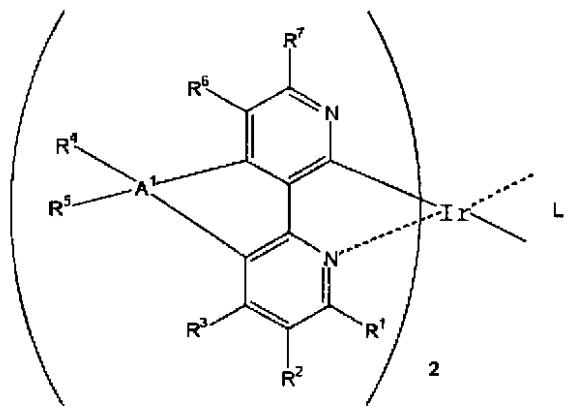
10

20

30

40

【化20】



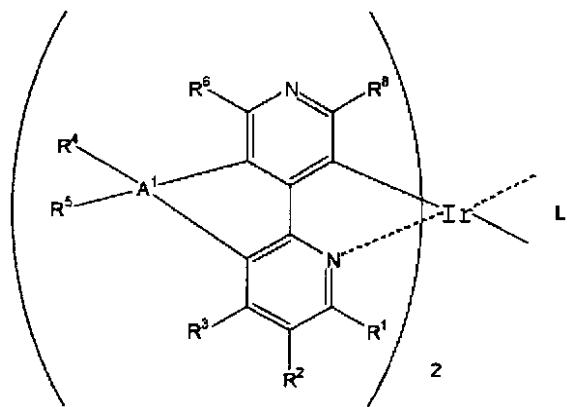
10

【0021】

一般式(5)

【0022】

【化21】



20

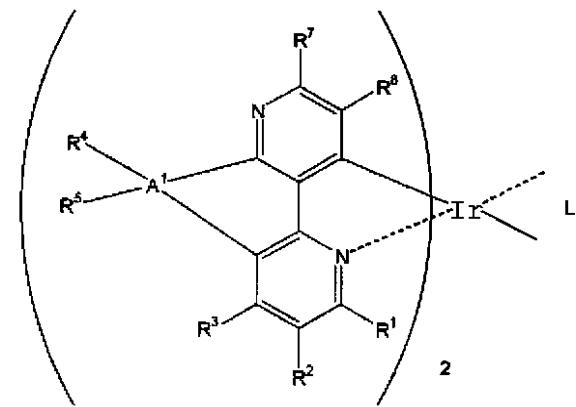
【0023】

一般式(6)

30

【0024】

【化22】



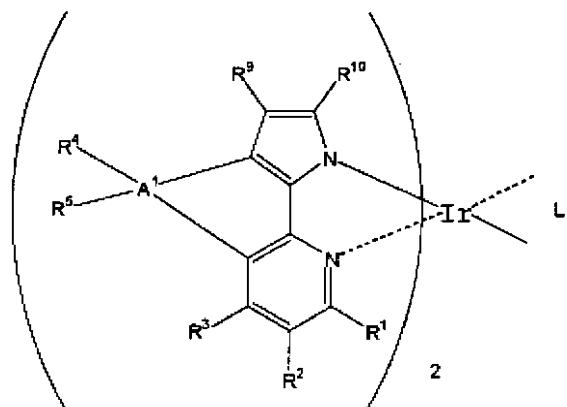
40

【0025】

一般式(7)

【0026】

## 【化23】



10

## 【0027】

(式中、R<sup>1</sup>～R<sup>10</sup>は、それぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、-OH、-SX<sup>1</sup>、-OCOX<sup>2</sup>、-COOX<sup>3</sup>、-SiX<sup>4</sup>X<sup>5</sup>X<sup>6</sup>、-NH<sub>2</sub>、-NHX<sup>7</sup>、-NX<sup>8</sup>X<sup>9</sup>、炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数1～22の直鎖、環状もしくは分岐アルキル基又はこれらの水素原子の一部もしくは全部がハロゲン原子で置換されたハロゲン置換アルキル基、あるいは炭素数6～21のアリール基、炭素数2～20のヘテロアリール基もしくは炭素数7～21のアラルキル基又はこれらの水素原子の一部もしくは全部がハロゲン原子で置換されたハロゲン置換アリール基、ハロゲン置換ヘテロアリール基もしくはハロゲン置換アラルキル基を表す。)

20

(ここで、X<sup>1</sup>～X<sup>9</sup>はそれぞれ独立に、炭素数1～22の直鎖、環状もしくは分岐のアルキル基、炭素数6～21のアリール基、炭素数2～20のヘテロアリール基、または、炭素数7～21のアラルキル基を表す。)

A<sup>1</sup>は炭素原子またはケイ素原子を表す。

## 【0028】

Lは、重合性官能基を有する、1価アニオンの2座配位子を表す。)

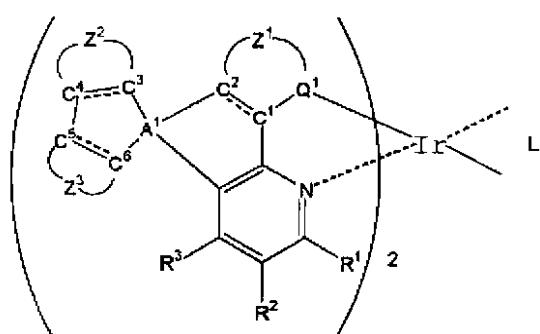
30

[3] 前記イリジウム錯体が、下記一般式(8)で表されることを特徴とする[1]に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式(8)

## 【0029】

## 【化24】



40

## 【0030】

(式中、R<sup>1</sup>～R<sup>3</sup>は、それぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、-OH、-SX<sup>1</sup>、-OCOX<sup>2</sup>、-COOX<sup>3</sup>、-SiX<sup>4</sup>X<sup>5</sup>X<sup>6</sup>、-NH<sub>2</sub>、-NHX<sup>7</sup>、-NX<sup>8</sup>X<sup>9</sup>、炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数1～22の直鎖、環状もしくは分岐アルキル基又はこれらの水素原子の一部もしくは全部がハロゲン原子で置換されたハロゲン置換アルキル基、あるいは炭素数6～21のアリール基、炭素数2～20のヘテロアリール基もしくは炭素数7～21のアラルキル基又はこれらの水素原子の一部もしくは全部がハロゲン原子で置換されたハロゲン置換アリール基、ハロゲン置換ヘテロアリール基もしくはハロゲン置換アラルキル基を表す。)

50

しくはハロゲン置換アラルキル基を表す。

(ここで、 $X^1 \sim X^9$ はそれぞれ独立に、炭素数1～22の直鎖、環状もしくは分岐のアルキル基、炭素数6～21のアリール基、炭素数2～20のヘテロアリール基、または、炭素数7～21のアラルキル基を表す。)

$Q^1$ は炭素原子または窒素原子を表し、 $Z^1$ は $C^1$ 、 $C^2$ 、 $Q^1$ と共に、 $Z^2$ は $C^3$ 、 $C^4$ と共に、および $Z^3$ は $C^5$ 、 $C^6$ と共に、それぞれ独立に五員または六員の炭素環または複素環を形成するための原子群を表し、該炭素環または複素環は、置換基を有してもよく、さらに他の環との縮合環を形成してもよい。

【0031】

$A^1$ は炭素原子またはケイ素原子を表す。

10

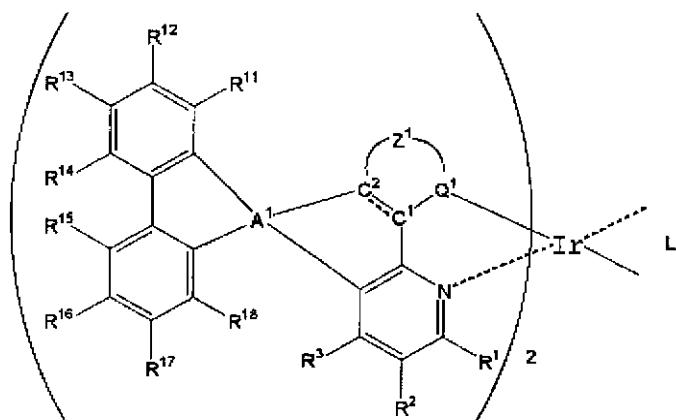
$L$ は、重合性官能基を有する、1価アニオンの2座配位子を表す。)

(4) 前記イリジウム錯体が、下記一般式(9)または(10)のいずれかで表されることを特徴とする〔1〕に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式(9)

【0032】

【化25】



20

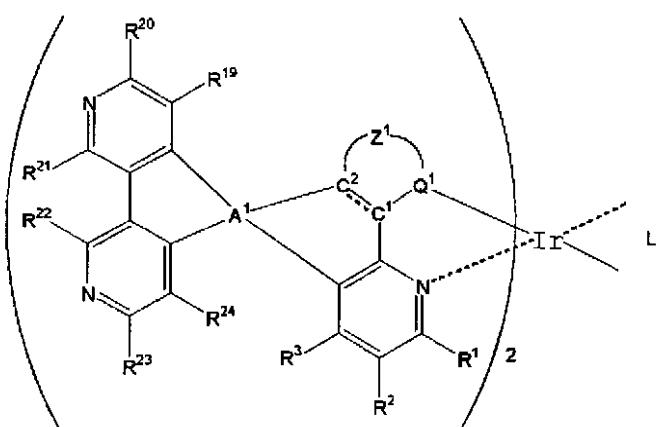
【0033】

30

一般式(10)

【0034】

【化26】



40

【0035】

(式中、 $R^1 \sim R^3$ および $R^{11} \sim R^{24}$ は、それぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、-OH、-SX<sup>1</sup>、-OCOX<sup>2</sup>、-COOX<sup>3</sup>、-SiX<sup>4</sup>X<sup>5</sup>X<sup>6</sup>、-NH<sub>2</sub>、-NHNH<sup>7</sup>、-N(X<sup>8</sup>)<sub>2</sub>X<sup>9</sup>、炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数1～22の直鎖、環状もしくは分岐アルキル基又はこれらの水素原子の一部もしくは全部がハロゲン原子で

50

置換されたハロゲン置換アルキル基、あるいは炭素数6～21のアリール基、炭素数2～20のヘテロアリール基もしくは炭素数7～21のアラルキル基又はそれらの水素原子の一部もしくは全部がハロゲン原子で置換されたハロゲン置換アリール基、ハロゲン置換ヘテロアリール基もしくはハロゲン置換アラルキル基を表す。

(ここで、 $X^1$ ～ $X^9$ はそれぞれ独立に、炭素数1～22の直鎖、環状もしくは分岐のアルキル基、炭素数6～21のアリール基、炭素数2～20のヘテロアリール基、または、炭素数7～21のアラルキル基を表す。)

$Q^1$ は炭素原子または窒素原子を表し、 $Z^1$ は、炭素原子 $C^1$ 、 $C^2$ 、および前記 $Q^1$ と共に五員または六員の炭素環または複素環を形成するための原子群を表し、該炭素環または複素環は、置換基を有してもよく、さらに他の環との縮合環を形成してもよい。

10

## 【0036】

$A^1$ は炭素原子またはケイ素原子を表す。

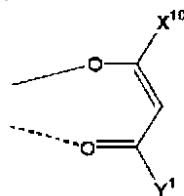
$L$ は、重合性官能基を有する、1価アニオンの2座配位子を表す。)

〔5〕 前記 $L$ が、下記一般式(11)または(12)のいずれかで表される2座配位子であることを特徴とする〔1〕～〔4〕のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式(11)

## 【0037】

## 【化27】



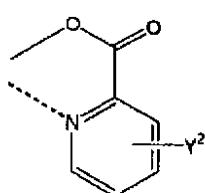
20

## 【0038】

一般式(12)

## 【0039】

## 【化28】



30

## 【0040】

(式中、 $X^{10}$ は、上記式(1)中の $R^1$ と同義であり、 $Y^1$ および $Y^2$ はそれぞれ独立に、重合性官能基を有する置換基を表す。)

〔6〕 前記重合体が、さらに、ホール輸送性の重合性化合物および電子輸送性の重合性化合物からなる群より選ばれる少なくとも1種の重合性化合物から導かれる構造単位を含むことを特徴とする〔1〕～〔5〕のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

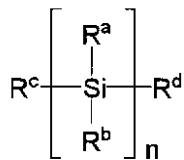
40

〔7〕 前記有機ケイ素化合物が、下記一般式(13)～(16)のいずれかで表されることを特徴とする〔1〕～〔6〕のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式(13)

## 【0041】

## 【化29】



## 【0042】

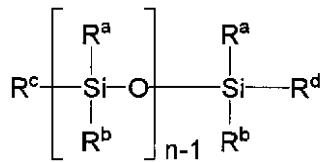
(式中、R<sup>a</sup>、R<sup>b</sup>、R<sup>c</sup>、R<sup>d</sup>は、それぞれ独立に置換基を有してもよいアリール基を示す。nは2～20の整数を示す。)

10

一般式(14)

## 【0043】

## 【化30】



## 【0044】

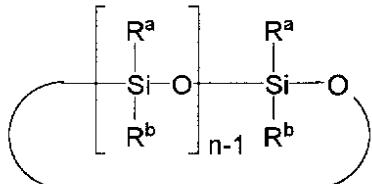
(式中、R<sup>a</sup>、R<sup>b</sup>、R<sup>c</sup>、R<sup>d</sup>は、それぞれ独立に置換基を有してもよいアリール基を示す。nは2～20の整数を示す。)

20

一般式(15)

## 【0045】

## 【化31】



30

## 【0046】

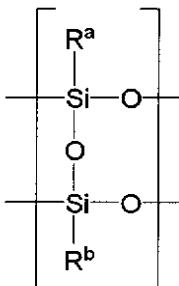
(式中、R<sup>a</sup>、R<sup>b</sup>は、それぞれ独立に置換基を有してもよいアリール基を示す。nは2～20の整数を示す。)

40

一般式(16)

## 【0047】

## 【化32】



## 【0048】

(式中、R<sup>a</sup>、R<sup>b</sup>は置換基を有してもよいアリール基を示す。)

[8] 前記有機ケイ素化合物におけるR<sup>a</sup>、R<sup>b</sup>、R<sup>c</sup>及びR<sup>d</sup>が、それぞれ独立に置換基

50

を有してもよいフェニル基、ナフチル基、ビフェニリル基、o-テルフェニル基、アントリル基及びフェナントリル基からなる群から選ばれるアリール基の一種であることを特徴とする〔7〕に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

〔9〕 〔1〕～〔8〕のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を用いた画像表示装置。

〔10〕 〔1〕～〔8〕のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を用いた面発光光源。

#### 【発明の効果】

#### 【0049】

本発明によれば、様々な色の発光、特に色純度のよい緑～青色発光が高効率、高輝度で可能で、また駆動寿命の長い有機EL素子および表示装置を提供することができる。また、本発明によれば、製造工程が簡略化され、大面積化が実現できるとともに、耐久性に優れた有機EL素子および表示装置を提供することができる。

#### 【発明を実施するための最良の形態】

#### 【0050】

有機EL素子において、一般に励起三重項状態の寿命が励起一重項の寿命に比べて長く、分子が高エネルギー状態に長く留まるため、周辺物質との反応、分子自体の構造変化、励起子同士の反応などが起こるため、これまでの金属配位化合物ではりん光発光素子の駆動寿命が短かったのではないかと考えられる。

#### 【0051】

そこで、本発明者らは種々の検討を行い、特定のイリジウム錯体から導かれる構造単位を含む重合体からなることを特徴とする高分子発光材料が、有機EL素子の長寿命化に有効であることを見出した。その原因については現在調査中であるが、配位子の芳香環を架橋することで耐久性が向上したことが一つの要素ではないかと考えられる。

#### 【0052】

さらに、該重合体が、特定の構造を有する有機ケイ素化合物を加えることで、より発光効率、発光輝度に優れ、しかも耐久性に優れた有機エレクトロルミネッセンス素子を提供できることを見いだした。

#### 【0053】

以下、本発明について具体的に説明する。

#### 1. 高分子発光材料

本発明に係る高分子発光材料は、特定のイリジウム錯体から導かれる構造単位を含む重合体からなる。このような材料では、イリジウム錯体の三重項励起状態からの発光が得られる。上記高分子発光材料は、さらに、ホール輸送性の重合性化合物および電子輸送性の重合性化合物からなる群から選択される少なくとも1種の重合性化合物から導かれる構造単位を含む重合体からなることが好ましい。

#### <イリジウム錯体から導かれる構造単位を含む重合体>

本発明に用いられる重合体は、上記式(1)、(3)～(12)で表されるイリジウム錯体を含む単量体を重合して得られる。上記重合体において、上記イリジウム錯体の単量体は、1種単独で、または2種以上を組み合わせて用いてもよい。本明細書において、上記重合体には、上記錯体の単独重合体、および2種以上の該錯体の共重合体も含む。

#### 【0054】

上記式(1)、(3)～(12)で表されるイリジウム錯体は、配位子と中心金属から金属錯体が形成される場合に、金属錯体の中心金属と配位子が錯形成される側とは反対側(即ち、配位子と中心金属との間で配位結合が形成される側とは逆側を示す。)に位置する配位子分子のオルト位同士が、炭素1個またはケイ素1個で連結した分子構造を有する誘導体を配位子として含む。該錯体を用いた高分子発光材料は様々な色を発光する。また、この高分子発光材料によれば、優れた耐久性を有する有機EL素子を製造できる。

#### 【0055】

上記一般式(1)、(3)～(12)に記載した記号( $R^1 \sim R^{24}$ 、 $X^{10}$ 、 $A^1$ 、 $Q^1$ 、

10

20

30

40

50

$Z^1$ 、 $Z^2$ 、 $Z^3$ 、 $L$ 、 $Y^1$ 、 $Y^2$ )について以下により具体的に説明する。

式中、 $R^1 \sim R^4$ は、それぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、 $-OH$ 、 $-SX^1$ 、 $-OCOX^2$ 、 $-COOX^3$ 、 $-SiX^4X^5X^6$ 、 $-NH_2$ 、 $-NHX^7$ 、 $-NX^8X^9$ 、炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数1～22の直鎖、環状もしくは分岐アルキル基又はそれらの水素原子の一部もしくは全部がハロゲン原子で置換されたハロゲン置換アルキル基、あるいは炭素数6～21のアリール基、炭素数2～20のヘテロアリール基もしくは炭素数7～21のアラルキル基又はそれらの水素原子の一部もしくは全部がハロゲン原子で置換されたハロゲン置換アリール基、ハロゲン置換ヘテロアリール基もしくはハロゲン置換アラルキル基を表す。

(ここで、 $X^1 \sim X^9$ はそれぞれ独立に、炭素数1～22の直鎖、環状もしくは分岐のアルキル基、炭素数6～21のアリール基、炭素数2～20のヘテロアリール基、または、炭素数7～21のアラルキル基を表す。)

ここで、 $X^1 \sim X^9$ は置換基を有していてもよく、置換基の例として、ハロゲン原子、シアノ基、アルデヒド基、アミノ基、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、カルボキシル基、スルホン酸基、ニトロ基等を挙げることができる。これらの置換基は、さらにハロゲン原子、メチル基等によって置換されていてもよい。

#### 【0056】

直鎖、環状もしくは分岐のアルキル基の例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、シクロプロピル基、ブチル基、イソブチル基、*tert*-ブチル基、シクロブチル基、ペンチル基、イソペンチル基、ネオペンチル基、シクロペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、ヘプチル基、シクロヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基を挙げることができる。

#### 【0057】

アリール基もしくはヘテロアリール基の例としては、フェニル基、トリル基、キシリル基、メシチル基、クメニル基、ベンジル基、フェネチル基、メチルベンジル基、ジフェニルメチル基、スチリル基、シンナミル基、ビフェニル残基、ターフェニル残基、ナフチル基、アントリル基、フルオレニル基、フラン残基、チオフェン残基、ピロール残基、オキサゾール残基、チアゾール残基、イミダゾール残基、ピリジン残基、ピリミジン残基、ピラジン残基、トリアジン残基、キノリン残基、キノキサリン残基を挙げることができる。

#### 【0058】

アルコキシ基の例としては、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、*tert*-ブトキシ基、オクチルオキシ基、*tert*-オクチルオキシ基、フェノキシ基、4-*tert*-ブチルフェノキシ基、1-ナフチルオキシ基、2-ナフチルオキシ基、9-アンスリルオキシ基を挙げることができる。

#### 【0059】

$-SX^1$ の例としては、メチルチオ基、エチルチオ基、*tert*-ブチルチオ基、ヘキシルチオ基、オクチルチオ基、フェニルチオ基、2-メチルフェニルチオ基、4-*tert*-ブチルフェニルチオ基を挙げることができる。

#### 【0060】

$-OCOX^2$ の例としては、アセトキシ基、ベンゾイルオキシ基を挙げることができる。

$-COOX^3$ の例としては、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、*tert*-ブトキシカルボニル基、フェノキシカルボニル基、ナフチルオキシカルボニル基等を挙げることができる。

#### 【0061】

$-SiX^4X^5X^6$ の例としては、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、トリフェニルシリル基等を挙げることができる。

$-NHX^7$ の例としては、N-メチルアミノ基、N-エチルアミノ基、N-ベンジルアミノ基、N-フェニルアミノ基等を挙げることができる。

#### 【0062】

10

20

30

40

50

-  $N \times 8 \times 9$  の例としては、 $N, N$  - ジメチルアミノ基、 $N, N$  - ジエチルアミノ基、 $N, N$  - ジイソプロピルアミノ基、 $N, N$  - ジブチルアミノ基、 $N, N$  - ジベンジルアミノ基、 $N, N$  - ジフェニルアミノ基等を挙げることができる。

## 【0063】

$Z^1, Z^2$  および  $Z^3$  が形成する 5 員環、6 員環としては、芳香族または複素芳香族環が好ましく、例えば、イミダゾール環、チアゾール環、オキサゾール環、ピロール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、ピラゾール環、1, 2, 3 - トリアゾール環、1, 2, 4 - トリアゾール環、セレナゾール環、フラン環、チオフェン環、ベンゼン環、ナフチル環、ピリジン環、ピリミジン環、ピラジン環およびピリダジン環が挙げられる。これらのうち、チアゾール環、ピロール環、ベンゼン環、ナフチル環、およびピリジン環が好ましい。合成の容易さなどから  $Z^2$  および  $Z^3$  は、同じ環状構造を持つことが好ましく、具体的にはビフェニル構造あるいはビピリジル構造を挙げることができる。

10

## 【0064】

$A^1$  は炭素原子またはケイ素原子を、 $Q^1$  は炭素原子または窒素原子を表す。

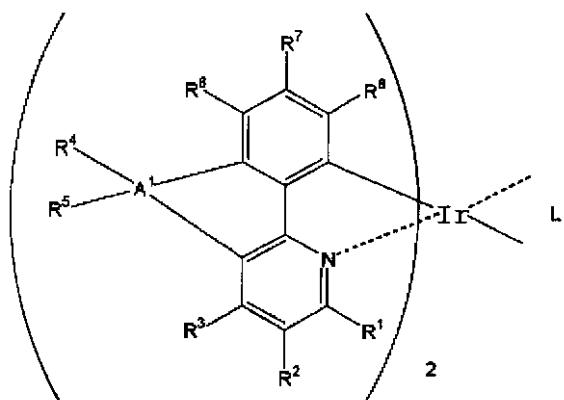
一般式 (1) で表されるイリジウム錯体の誘導体としては、合成の容易さや作成した素子の寿命および色純度の点から、以下の一般式 (3) ~ (7) のいずれかで示されるイリジウム錯体がより好ましい。

一般式 (3)

## 【0065】

## 【化33】

20



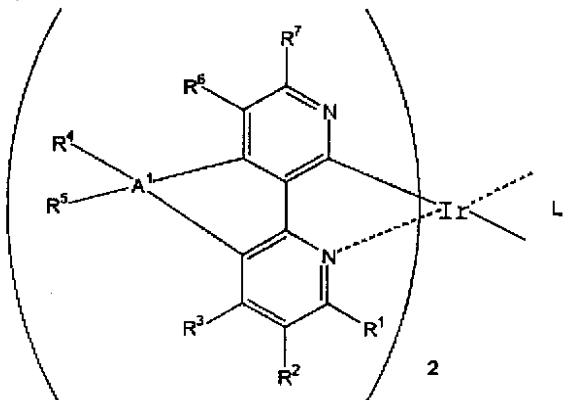
30

## 【0066】

一般式 (4)

## 【0067】

## 【化34】



40

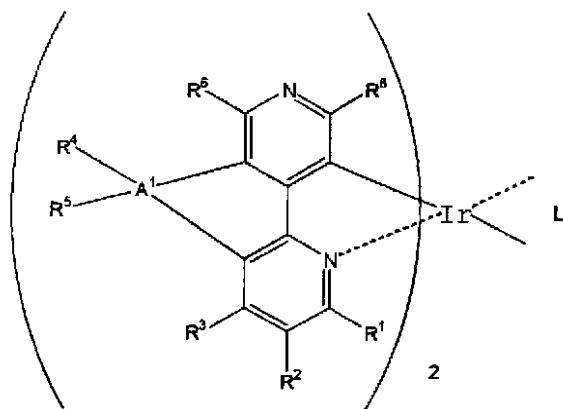
## 【0068】

一般式 (5)

## 【0069】

50

【化35】

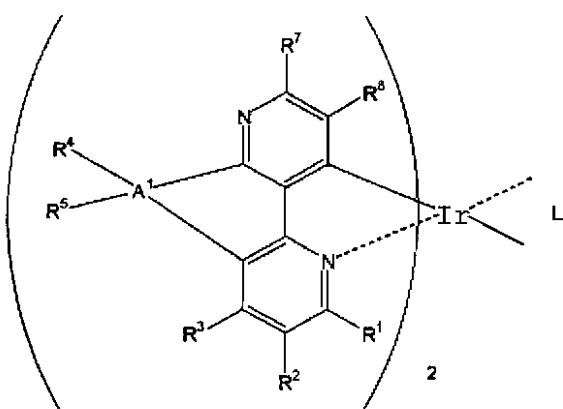


【0070】

一般式(6)

【0071】

【化36】

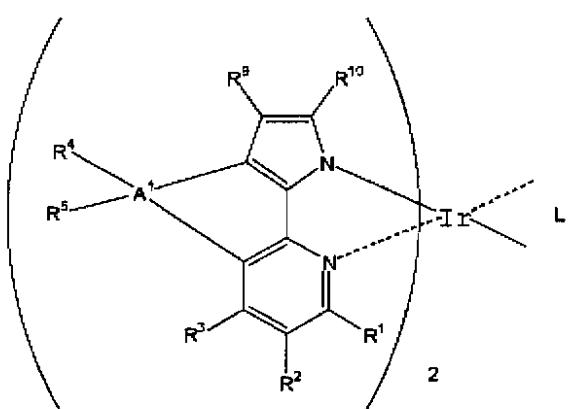


【0072】

一般式(7)

【0073】

【化37】



【0074】

本発明である上記式(1)で表されるイリジウム錯体の構造的特徴、すなわち金属錯体の中心金属と配位子が錯形成される側とは反対側に位置する配位子分子のオルト位同士が、炭素1個またはケイ素1個で連結した分子構造を形成する、例えば上記式(1)におけるA<sup>1</sup>の置換基であるR<sup>4</sup>およびR<sup>5</sup>は、その一部が互いに結合してさらに環状構造を形成することが好ましい。

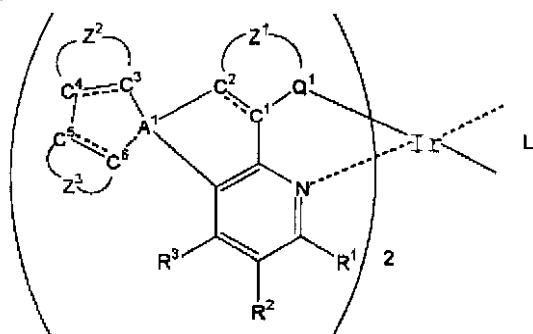
## 【0075】

具体的には、例えば、下記一般式(8)で表される構造を挙げることができる。

上記式(8)

## 【0076】

## 【化38】



10

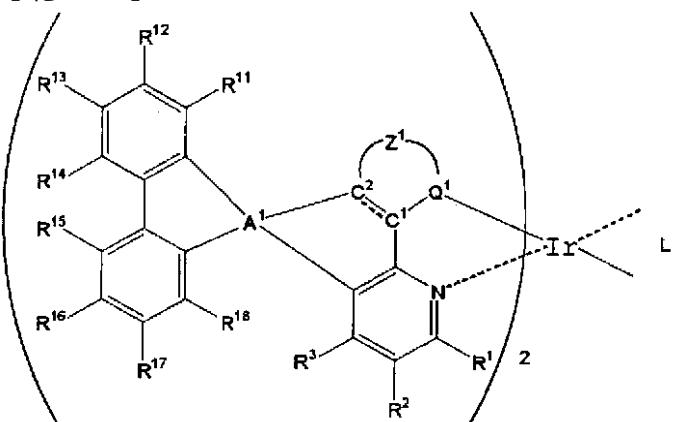
## 【0077】

一般式(8)で表されるイリジウム錯体の誘導体としては、合成の容易さや作成した素子の寿命および色純度の点から、以下の一般式(9)または(10)で示されるイリジウム錯体がより好ましい。

一般式(9)

## 【0078】

## 【化39】



20

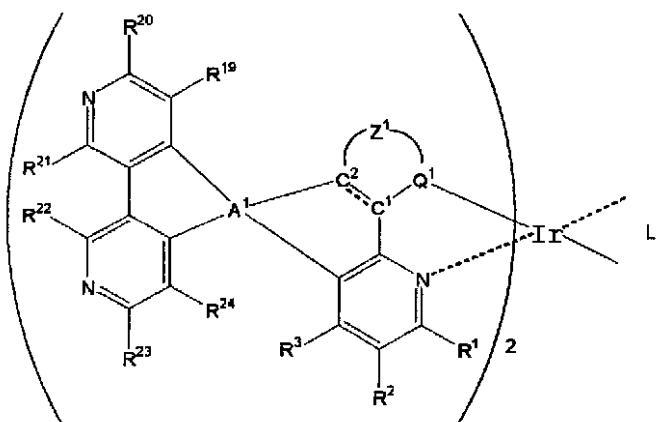
30

## 【0079】

一般式(10)

## 【0080】

## 【化40】



40

## 【0081】

50

上記式(1)、(3)～(10)において、Lは、重合性官能基を有する、1価アニオンの2座配位子を表す。

1価アニオンの2座配位子としては、例えば、水素イオンが1つ脱離する際、2つの配位座を含む共役構造が、全体として1価アニオン性となり得る構造を有する化合物から、水素イオンが1つ脱離し、1価のアニオンとなった化合物；または、分子内にピリジン環、カルボニル基、イミン基等の非イオン性の配位座と、水酸基、カルボキシル基等の水素イオンが1つ脱離して1価のアニオン性配位座になり得る部位とを有する化合物などが挙げられる。

【0082】

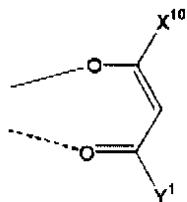
好ましくは、一般式(11)または一般式(12)で表される2座配位子である。

10

一般式(11)

【0083】

【化41】



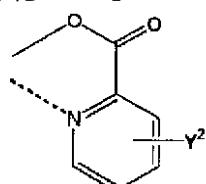
20

【0084】

一般式(12)

【0085】

【化42】



30

(式中、X¹⁰は、上記式(1)中のR¹と同義であり、Y¹およびY²はそれぞれ独立に、重合性官能基を有する置換基を表す。)

上記式(11)または(12)で表される2座配位子は、Y¹或いはY²で示される重合性官能基を有する。該官能基は、ラジカル重合性、カチオン重合性、アニオン重合性、付加重合性、および縮合重合性の官能基のいずれであってもよい。これらのうちで、ラジカル重合性の官能基は、重合体の製造が容易であるため好ましい。

【0087】

上記重合性官能基としては、例えば、アリル基、アルケニル基、アクリレート基、メタクリレート基、メタクリロイルオキシエチルカルバメート基等のウレタン(メタ)アクリレート基、ビニルアミド基およびこれらの誘導体などを挙げることができる。これらのうちで、アルケニル基が好ましい。

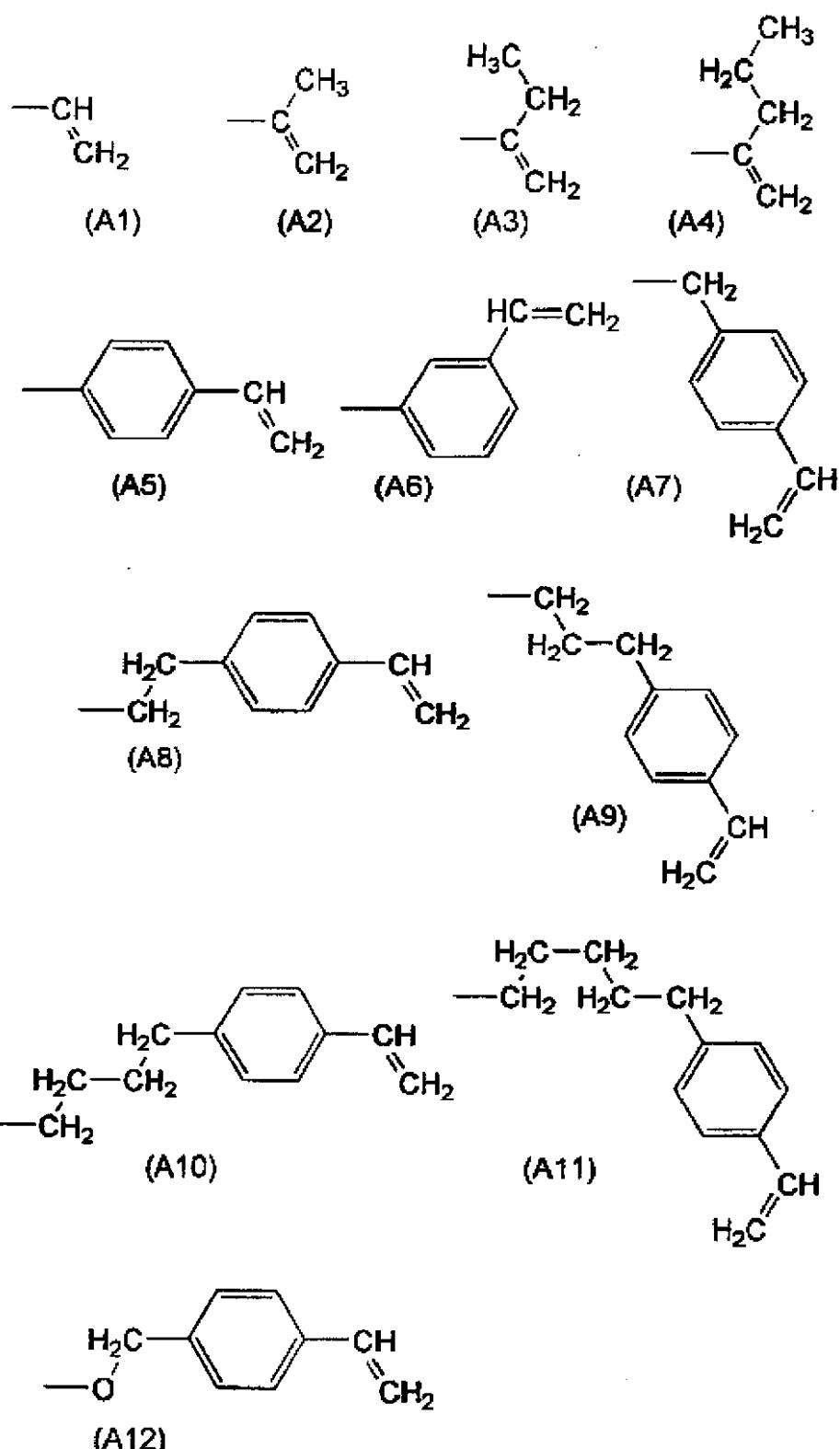
40

【0088】

Lは、具体的には、上記官能基を、下記一般式(A1)～(A12)で表される置換基として有することがより好ましい。これらのうちで、下記式(A1)、(A5)、(A8)、(A12)で表される置換基は、イリジウム錯体に官能基が容易に導入できるため、さらに好ましい。

【0089】

【化43】

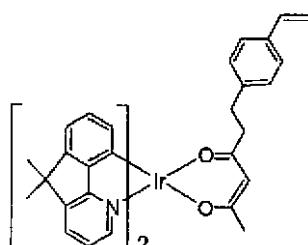


【0090】

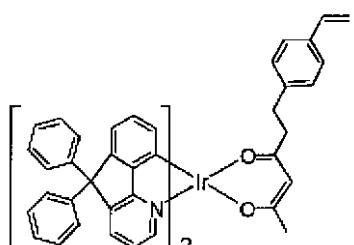
これらの配位子を有し、上記式(1)、(3)～(10)のいずれかで表されるイリジウム錯体としては、もっとも好ましくは以下のイリジウム錯体(C1)～(C22)が挙げられる。

【0091】

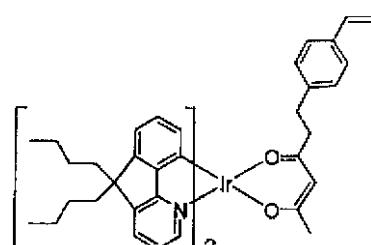
【化44】



(C1)

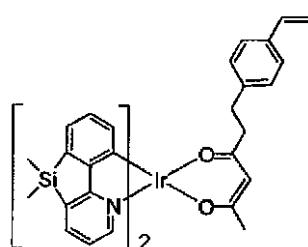


(C2)

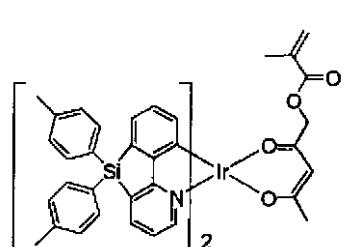


(C3)

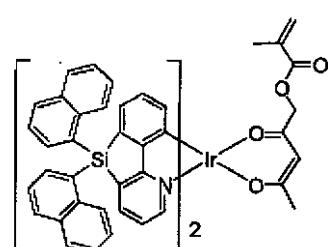
10



(C4)

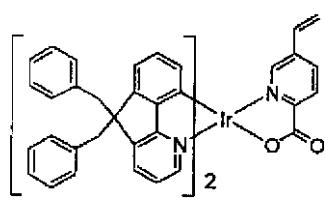


(C5)

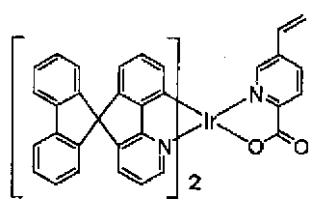


(C6)

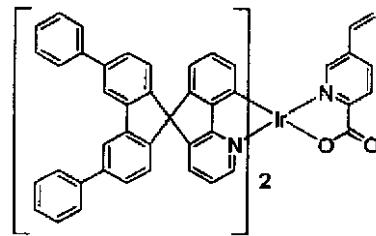
20



(C7)



(C8)

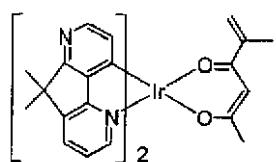


(C9)

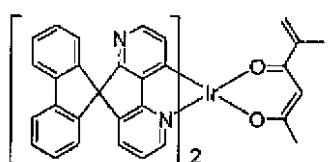
30

【0092】

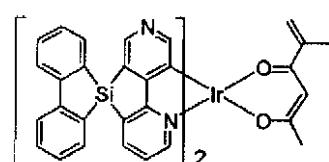
## 【化45】



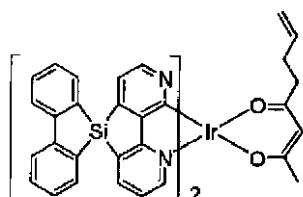
(C10)



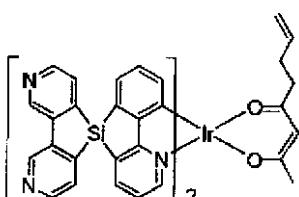
(C11)



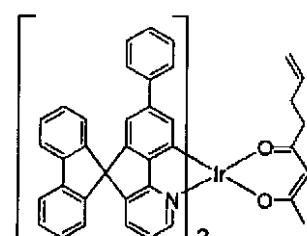
(C12)



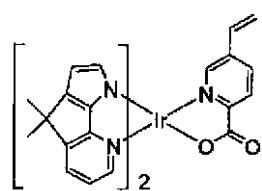
(C13)



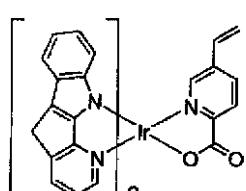
(C14)



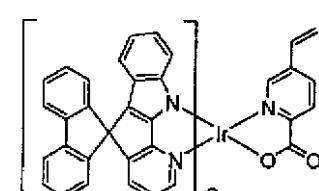
(C15)



(C16)



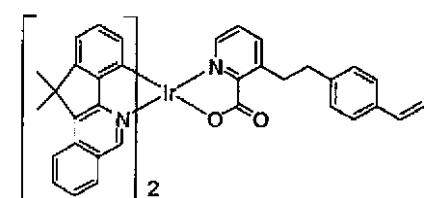
(C17)



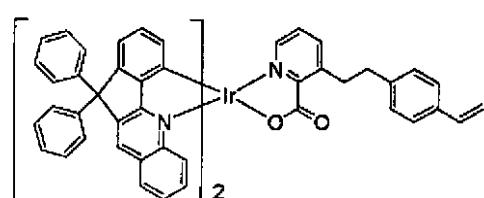
(C18)

## 【0093】

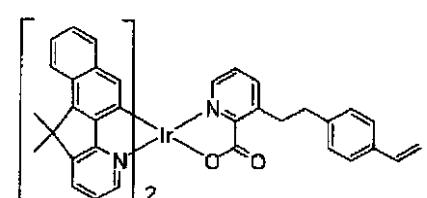
## 【化46】



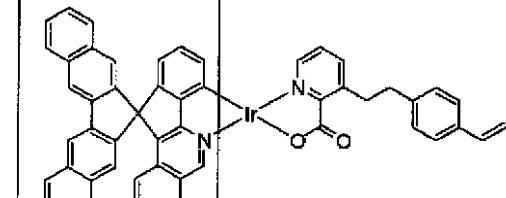
(C19)



(C20)



(C21)



(C22)

## 【0094】

上記式(1)、(3)～(10)のいずれかで表されるイリジウム錯体は、例えば、以下のように製造することができる。

ピラジン環を有する誘導体と、塩化イリジウムなどのイリジウム化合物(0.5当量) 50

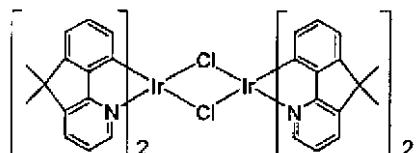
とを、2-エトキシエタノールなどの溶媒中で反応させる。次いで、得られたイリジウム2核錯体と、重合性官能基を有する、1価アニオンの2座配位子の誘導体とを、炭酸ナトリウムと共に、2-エトキシエタノールなどの溶媒中で加熱した後、精製して上記式で表されるイリジウム錯体を得ることができる。

## 【0095】

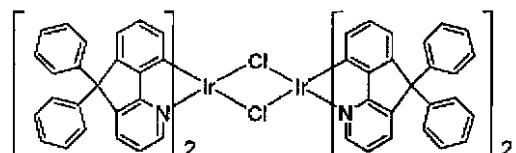
イリジウム2核錯体の合成法としては、例えば、Inorganic Chemistry, 2001年, 40巻, 1704頁に記載の方法が挙げられる。以下に、本発明でイリジウム錯体の原料として用いられるイリジウム2核錯体の代表例(D1)~(D12)を示す。

## 【0096】

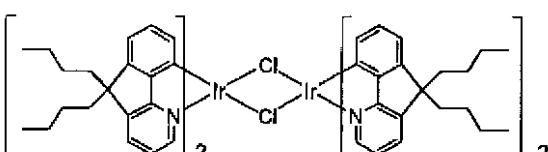
## 【化47】



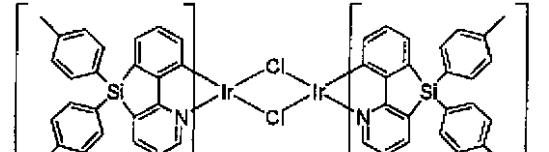
(D1)



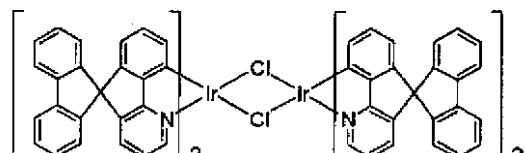
(D2)



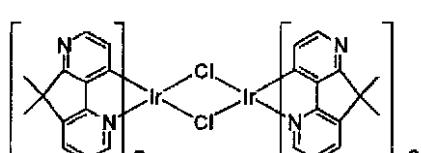
(D3)



(D4)



(D5)



(D6)

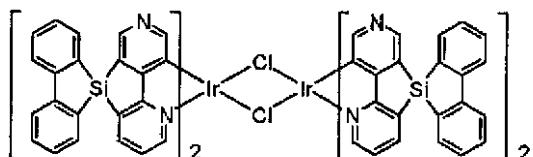
## 【0097】

10

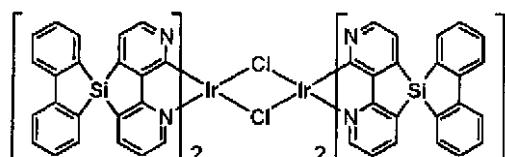
20

30

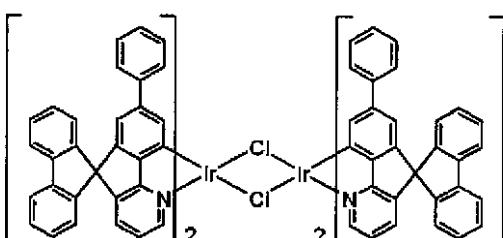
## 【化48】



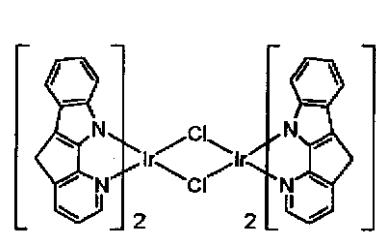
(D7)



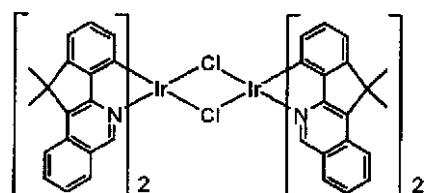
(D8)



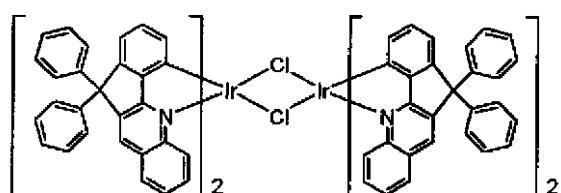
(D9)



(D10)



(D11)



(D12)

10

20

30

40

50

## 【0098】

一般式(1)、一般式(3)～一般式(10)のいずれかで表されるイリジウム錯体から導かれる構造単位を含む重合体の重量平均分子量は、1,000～2,000,000であることが好ましく、5,000～1,000,000であることがより好ましい。本明細書における分子量は、GPC(ゲルパーキエーションクロマトグラフィー)法を用いて測定されるポリスチレン換算分子量をいう。上記分子量がこの範囲にあると、重合体が有機溶媒に可溶であり、均一な薄膜を得られるため好ましい。

## 【0099】

上記重合体は、ランダム共重合体、プロック共重合体、および交互共重合体のいずれであってもよい。

上記重合体の重合方法は、ラジカル重合、カチオン重合、アニオン重合、および付加重合のいずれであってもよいが、ラジカル重合が好ましい。

<キャリア輸送性の重合性化合物から導かれる構造単位を有する重合体>

本発明に用いられる重合体は、1種または2種以上の上記イリジウム錯体の単量体と共に、ホール輸送性の重合性化合物および電子輸送性の重合性化合物からなる群より選択される少なくとも1種の重合性化合物を含む単量体を共重合して得られる重合体であることが好ましい。なお、本明細書において、ホール輸送性の重合性化合物および電子輸送性の重合性化合物を併せて、キャリア輸送性の重合性化合物ともいう。

## 【0100】

すなわち、上記高分子発光材料は、1種または2種以上の上記イリジウム錯体から導かれる構造単位と共に、1種または2種以上のホール輸送性の重合性化合物から導かれる構造単位、または1種または2種以上の電子輸送性の重合性化合物から導かれる構造単位を含む重合体からなることが好ましい。このような高分子発光材料では、上記イリジウム錯

体から導かれる構造単位上で、ホールと電子とが効率よく再結合するため、高い発光効率が得られる。

【0101】

また、上記高分子発光材料は、1種または2種以上の上記イリジウム錯体から導かれる構造単位と共に、1種または2種以上のホール輸送性の重合性化合物から導かれる構造単位と、1種または2種以上の電子輸送性の重合性化合物から導かれる構造単位とを含む重合体からなることがより好ましい。このような高分子発光材料は、発光性、ホール輸送性および電子輸送性のすべての機能を備えているため、イリジウム錯体上で、ホールと電子とがさらに効率よく再結合するため、より高い発光効率が得られる。

【0102】

上記ホール輸送性の重合性化合物および上記電子輸送性の重合性化合物は、重合性官能基を有することのほか、特に制限されず、公知のキャリア輸送性の化合物が用いられる。

上記重合性官能基は、ラジカル重合性、カチオン重合性、アニオン重合性、付加重合性、および縮合重合性の官能基のいずれであってもよい。これらのうちで、ラジカル重合性の官能基は、重合体の製造が容易であるため好ましい。

【0103】

上記重合性官能基としては、例えば、アリル基、アルケニル基、アクリレート基、メタクリレート基、メタクリロイルオキシエチルカルバメート基等のウレタン(メタ)アクリレート基、ビニルアミド基およびこれらの誘導体などを挙げることができる。これらのうちで、アルケニル基が好ましい。

【0104】

上記重合性化合物は、具体的には、上記官能基を、上記式(A1)～(A12)で表される置換基として有することがより好ましい。

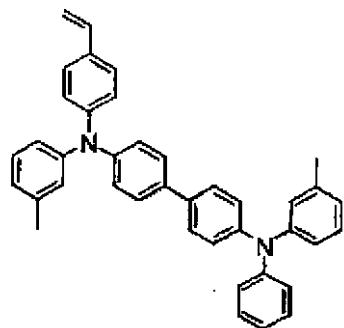
上記ホール輸送性の重合性化合物としては、具体的には、下記式(E1)～(E6)で表される化合物が好ましく、共重合体におけるキャリア移動度が高いため、下記式(E1)～(E3)で表される化合物がより好ましい。

【0105】

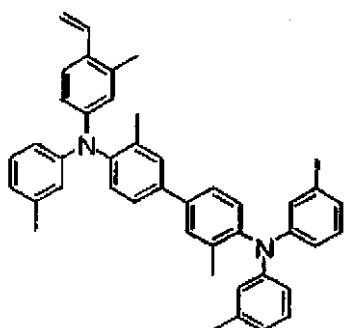
10

20

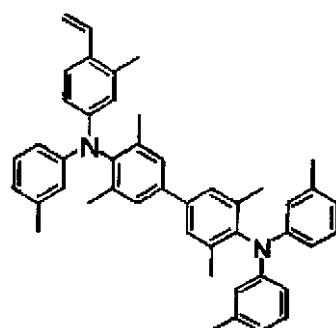
## 【化49】



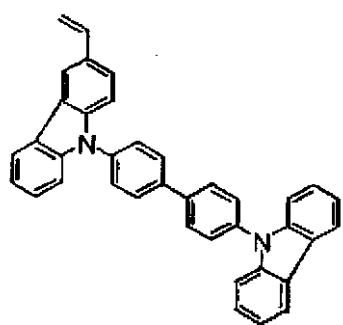
(E1)



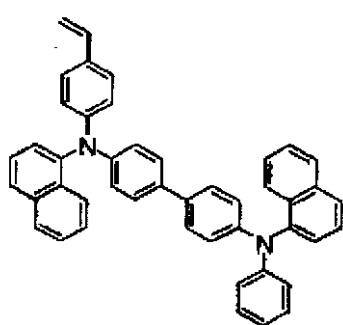
(E2)



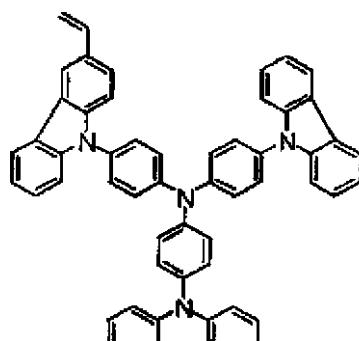
(E3)



(E4)



(E5)



(E6)

## 【0106】

上記電子輸送性の重合性化合物としては、具体的には、下記式(E7)～(E15)で表される化合物が好ましく、共重合体におけるキャリア移動度が高いため、下記式(E7)、(E12)～(E14)で表される化合物がより好ましい。

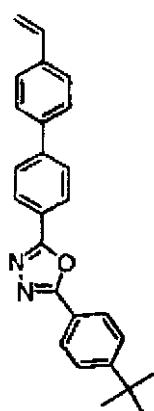
## 【0107】

10

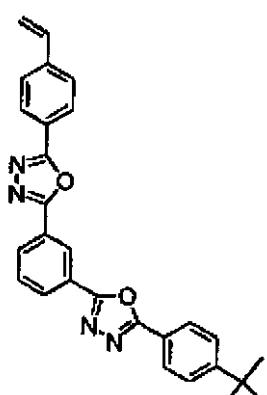
20

30

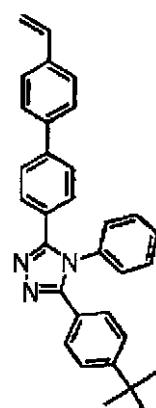
## 【化50】



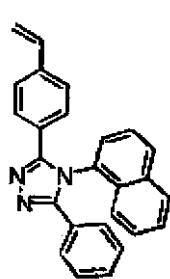
(E7)



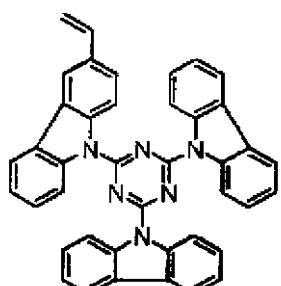
(E8)



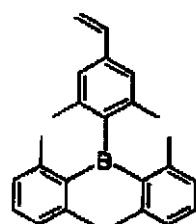
(E9)



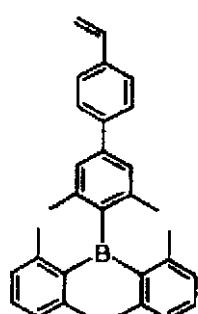
(E10)



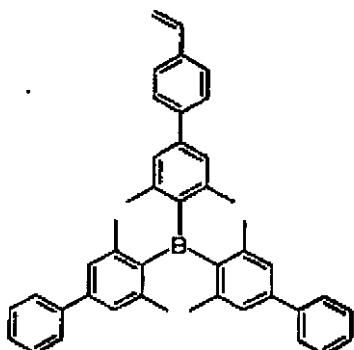
(E11)



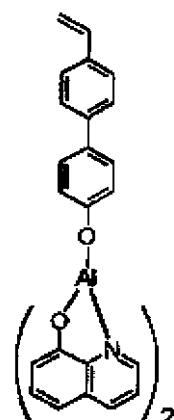
(E12)



(E13)



(E14)



(E15)

10

20

30

40

50

## 【0108】

なお、上記式(E1)～(E15)において、上記式(A1)で表される置換基を、上記一般式(A2)～(A12)で表される置換基に代えた化合物も好適に用いられるが、重合性化合物に官能基を容易に導入できるため、上記式(A1)、(A5)で表される置換基を有する化合物が特に好ましい。

## 【0109】

これらのうちで、上記ホール輸送性の重合性化合物として、上記式(E1)～(E3)のいずれかで表される化合物と、上記電子輸送性の重合性化合物として、上記式(E7)～(E12)～(E14)のいずれかで表される化合物とを、上記イリジウム錯体と組み合わせて共重合させることができがより好ましい。このような高分子発光材料は、高い発光効率および高い最高到達輝度を有し、耐久性にも優れる。

## 【0110】

この場合に、上記イリジウム錯体として、より長寿命化が図れるため上記式（C3）、（C17）、（C19）で表される錯体を用いることが特に好ましい。

上記式（E1）～（E15）で表される重合性化合物は、公知の方法によって製造することができる。

## 【0111】

なお、上記重合体は、さらに、他の重合性化合物から導かれる構造単位を有していてもよい。上記他の重合性化合物としては、例えば、アクリル酸メチル、メタクリル酸メチル等の（メタ）アクリル酸アルキルエステル、スチレンおよびその誘導体などのキャリア輸送性を有さない化合物が挙げられるが、何らこれらに制限されるものではない。

10

## 【0112】

また、上記重合体の重量平均分子量は、1,000～2,000,000であることが好ましく、5,000～1,000,000であることがより好ましい。上記分子量がこの範囲にあると、重合体が有機溶媒に可溶であり、均一な薄膜を得られるため好ましい。

## 【0113】

イリジウム錯体と、キャリア輸送性の重合性化合物（ホール輸送性および／または電子輸送性の重合性化合物）との比率を適宜設定すれば、所望の上記重合体が得られ、該重合体は、ランダム共重合体、ブロック共重合体、および交互共重合体のいずれであってもよい。

20

## 【0114】

上記重合体における、上記イリジウム錯体から導かれる構造単位数をmとし、キャリア輸送性化合物から導かれる構造単位数（ホール輸送性の重合性化合物および／または電子輸送性の重合性化合物から導かれる構造単位の総数）をnとしたとき（m、nは1以上の整数を示す）、全構造単位数に対する上記イリジウム錯体から導かれる構造単位数の割合、すなわちm / (m + n)の値は、0.001～0.5の範囲にあることが好ましく、0.001～0.2の範囲にあることがより好ましい。m / (m + n)の値がこの範囲にあると、キャリア移動度が高く、濃度消光の影響が小さい、高い発光効率の有機EL素子が得られる。

## 【0115】

また、上記重合体が、ホール輸送性化合物から導かれる構造単位と電子輸送性化合物から導かれる構造単位とを含む場合、ホール輸送性化合物から導かれる構造単位数をx、電子輸送性化合物から導かれる構造単位数をyとすると（x、yは1以上の整数を示す）、上記nとの間に、n = x + yの関係が成り立つ。キャリア輸送性化合物から導かれる構造単位数に対する、ホール輸送性化合物から導かれる構造単位数の割合x / n、および電子輸送性化合物から導かれる構造単位数の割合y / nの最適値は、各構造単位の電荷輸送能、イリジウム錯体から導かれる構造単位の電荷輸送性、濃度などによって決まる。この重合体を有機EL素子の発光層を形成する唯一の化合物として用いる場合、x / nおよびy / nの値は、それぞれ0.05～0.95の範囲にあることが好ましく、0.20～0.80の範囲にあることがより好ましい。なお、ここで、x / n + y / n = 1が成り立つ。

30

## 【0116】

上記重合体の重合方法は、ラジカル重合、カチオン重合、アニオン重合、および付加重合のいずれでもよいが、ラジカル重合が好ましい。

## 2. 有機ケイ素化合物

本発明の有機EL素子では、発光効率、発光輝度を高め且つ素子の長寿命化を図るために、特定構造を有する有機ケイ素化合物を有機高分子層に含んでいることが必要である。

## 【0117】

当該有機ケイ素化合物は、下記一般式（2）で表される繰り返し単位を直接に、または-O-基を介して、2～20単位、直鎖状、環状、または網目状に繋ぐと共に、式（2）の繰り返し単位を直接に、または-O-基を介して直鎖状に繋いだときは、その両末端に、置換基を有してもよいアリール基を結合した構造を有していてもよい。

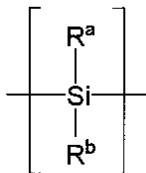
40

50

一般式 (2)

【0 1 1 8】

【化5 1】



【0 1 1 9】

(式中、R<sup>a</sup>はそれぞれ独立に置換基を有してもよいアリール基を示し、R<sup>b</sup>はそれぞれ独立に置換基を有してもよいアリール基、または-O-基を示す。)

当該有機ケイ素化合物により、有機EL素子の発光効率、発光輝度が向上する理由について詳細は不明だが、アリール基が、いずれもケイ素原子を介して結合していることから、複数のアリール基に亘る大きな電子共役系が形成されず、層中でそれぞれのアリール基が、独立した芳香族化合物と同等の挙動をする。例えば、アリール基がフェニル基である有機ケイ素化合物によって形成した層は、その融点以上では固体膜化することが不可能な、ベンゼンの膜と同等の機能を有し、これが発光効率、発光輝度が向上に寄与していることが考えられる。

【0 1 2 0】

各アリール基は、発光層中でそれぞれ独立した芳香族化合物と同等の挙動をすることから、当該アリール基として発光材料の発光波長と近い発光スペクトルを有する芳香族化合物に相当する基を選択すれば、素子の発光効率及び発光輝度をさらに向上することもできると考えられる。

【0 1 2 1】

また、上記式(2)で表される有機ケイ素化合物の基本骨格であるシロキサンまたはシランは、強固で、かつ耐熱性、安定性等に優れていることから、該有機ケイ素化合物を含む有機高分子層そのもの、そして当該有機高分子層を有する有機EL素子の耐久性を向上することも可能となるものと考えられる。

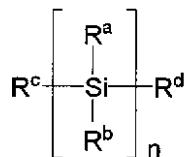
【0 1 2 2】

上記式(2)で表される有機ケイ素化合物としては、例えば、一般式(1 3)で表される直鎖シラン化合物、

一般式(1 3)

【0 1 2 3】

【化5 2】



【0 1 2 4】

(式中、R<sup>a</sup>、R<sup>b</sup>、R<sup>c</sup>、R<sup>d</sup>は、それぞれ独立に置換基を有してもよいアリール基を示す。nは2~20の整数を示す。)

一般式(1 4)で表される直鎖シロキサン化合物、

一般式(1 4)

【0 1 2 5】

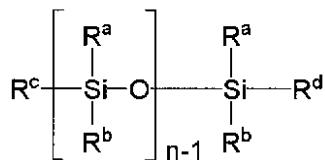
10

20

30

40

## 【化53】



## 【0126】

(式中、R<sup>a</sup>、R<sup>b</sup>、R<sup>c</sup>、R<sup>d</sup>は、それぞれ独立に置換基を有してもよいアリール基を示す。nは2～20の整数を示す。)

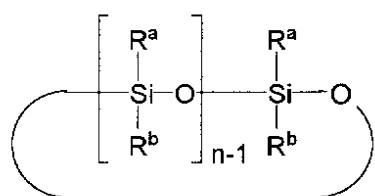
10

一般式(15)で表される環状シロキサン化合物

一般式(15)

## 【0127】

## 【化54】



20

## 【0128】

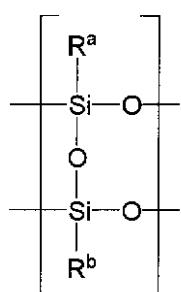
(式中、R<sup>a</sup>、R<sup>b</sup>は、それぞれ独立に置換基を有してもよいアリール基を示す。nは2～20の整数を示す。)

および一般式(16)で表される繰り返し単位からなり、その単位数が1～10である網目状シロキサン化合物

一般式(16)

## 【0129】

## 【化55】



30

## 【0130】

(式中、R<sup>a</sup>、R<sup>b</sup>は置換基を有してもよいアリール基を示す。)

40

などが挙げられる。

これらの有機ケイ素化合物は、すでに公知の方法で合成することができる。

## 【0131】

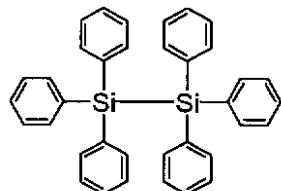
有機ケイ素化合物としてより具体的には、以下の化合物を挙げることができる。

上記式(13)で表される直鎖シラン化合物の具体例としては、一般式(13-1)で表される化合物が挙げられる。

一般式(13-1)

## 【0132】

## 【化56】



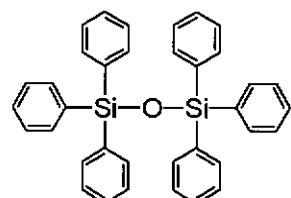
## 【0133】

また、上記式(14)で表される直鎖シロキサン化合物の具体例としては、一般式(14-1)で表される化合物が挙げられる。

一般式(14-1)

## 【0134】

## 【化57】



20

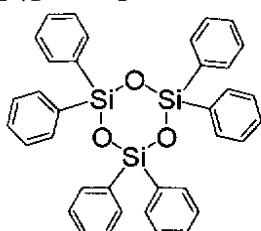
## 【0135】

さらに、上記式(15)で表される環状シロキサン化合物の具体例としては、一般式(15-1)で表される化合物(DPSiO<sub>3</sub>)、および一般式(15-2)で表される化合物(DPSiO<sub>4</sub>)が挙げられる。

一般式(15-1)

## 【0136】

## 【化58】



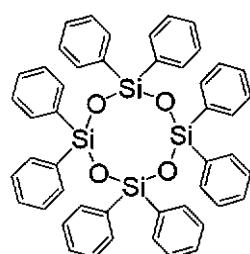
30

## 【0137】

一般式(15-2)

## 【0138】

## 【化59】



40

## 【0139】

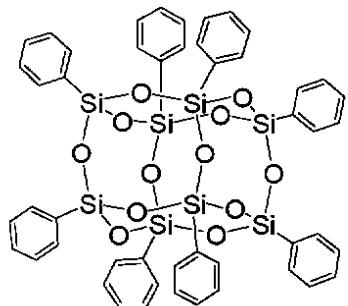
そして、上記式(16)で表される網目状シロキサン化合物の具体例としては、一般式(16-1)で表される化合物が挙げられる。

一般式(16-1)

50

【0140】

【化60】



10

【0141】

## 3. 有機エレクトロルミネッセンス素子

本発明に係る一般式(1)で表されるイリジウム錯体から導かれる構造単位を含む重合体及び一般式(2)で表される有機ケイ素化合物を含む混合物は、有機EL素子の高効率且つ高輝度の緑～青色発光材料として好適である。上記有機EL素子は、陽極と陰極とに挟まれた1層または2層以上の有機高分子層を含み、該有機高分子層の少なくとも1層に、上記高分子発光材料が含まれる。本発明に係る高分子発光材料は、簡便な塗布法で発光層を成膜でき、素子の大面積化が図れる。

【0142】

20

## 本発明の有機EL素子の有機高分子層における

(A) 一般式(1)で表されるイリジウム錯体から導かれる構造単位を含む重合体及び

## (B) 一般式(2)で表される有機ケイ素化合物

の割合は、それぞれの構造によりその最適な範囲は異なるが、一般に(A)の量が(A)と(B)の総量に対して10～90重量%の範囲である。より好ましくは30～80重量%の範囲である。さらに好ましくは40～70%の範囲である。

【0143】

30

(A)の含有割合がこの範囲未満では、素子の発光効率および発光輝度が低下して、十分な発光が得られないおそれがあり、この範囲を超える場合には、相対的に、一般式(2)で表される有機ケイ素化合物の量が不足するため、却って、素子の発光効率および発光輝度が低下して、十分な発光が得られないおそれがある。また、素子の耐久性が低下するおそれもある。

【0144】

40

本発明に係る有機EL素子の構成の一例を図1に示すが、本発明に係る有機EL素子の構成は、これに制限されない。図1では、透明基板(1)上に設けた陽極(2)および陰極(6)の間に、ホール輸送層(3)、発光層(4)および電子輸送層(5)を、この順で設けている。上記有機EL素子では、例えば、陽極(2)と陰極(6)の間に、1)ホール輸送層/発光層、2)発光層/電子輸送層のいずれかを設けてもよい。また、3)ホール輸送材料、発光材料、電子輸送材料を含む層、4)ホール輸送材料、発光材料を含む層、5)発光材料、電子輸送材料を含む層、6)発光材料の単独層のいずれかの層を1層のみ設けてもよい。さらに、発光層を2層以上積層してもよい。

【0145】

上記のような素子において、本発明に係る高分子発光材料が、上記イリジウム錯体から導かれる構造単位と、ホール輸送性の重合性化合物から導かれる構造単位と、電子輸送性の重合性化合物から導かれる構造単位とを含む重合体からなる場合は、該材料を含む上記有機高分子層は、ホール輸送性および電子輸送性を併せ持つ発光層として利用できる。このため、他の有機材料の層を設けない場合であっても、高い発光効率および耐久性を有する有機EL素子を作製できる。また、製造工程がさらに簡略化できる。

【0146】

50

上記の各層は、バインダとして高分子材料などを混合して、形成してもよい。上記高分子材料としては、例えば、ポリメチルメタクリレート、ポリカーボネート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキサイドなどが挙げられる。もちろん、上記式(2)で表される有機ケイ素化合物をバインダとして用いることも可能である。

【0147】

また、上記の各層に用いられる発光材料、ホール輸送材料および電子輸送材料は、それぞれ単独で各層を形成しても、機能の異なる材料を混合して、各層を形成していくてもよい。その各層のそれぞれに上記式(2)で表される有機ケイ素化合物を含んでも、いずれか一層に含んでも良い。

【0148】

本発明に係る有機EL素子における発光層においても、本発明に係る高分子発光材料の他に、キャリア輸送性を補う目的で、さらに他のホール輸送材料および/または電子輸送材料が含まれていてもよい。このような輸送材料としては、低分子化合物であっても、高分子化合物であってもよい。

【0149】

上記ホール輸送層を形成するホール輸送材料、または発光層と混合させるホール輸送材料としては、例えば、TPD(N,N'-ジメチル-N,N'-((3-メチルフェニル)-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン); -NPD(4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル); m-MTDATA(4,4',4''-トリス(3-メチルフェニルフェニルアミノ)トリフェニルアミン)等の低分子トリフェニルアミン誘導体；ポリビニルカルバゾール；上記トリフェニルアミン誘導体に重合性官能基を導入して重合した高分子化合物；ポリパラフェニレンビニレン、ポリジアルキルフルオレン等の蛍光発光性高分子化合物などが挙げられる。上記高分子化合物としては、例えば、特開平8-157575号公報に開示されているトリフェニルアミン骨格の高分子化合物などが挙げられる。上記ホール輸送材料は、1種単独でも、2種以上を混合して用いてもよく、異なるホール輸送材料を積層して用いてもよい。ホール輸送層の厚さは、ホール輸送層の導電率などに依存するが、通常、好ましくは1nm~5μm、より好ましくは5nm~1μm、特に好ましくは10nm~500nmであることが望ましい。

【0150】

上記電子輸送層を形成する電子輸送材料、または発光層と混合させる電子輸送材料としては、例えば、Alq3(アルミニウムトリスキノリノレート)等のキノリノール誘導体金属錯体、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、トリアジン誘導体、トリアリールボラン誘導体等の低分子化合物；上記の低分子化合物に重合性置換基を導入して重合した高分子化合物を挙げることができる。上記高分子化合物としては、例えば、特開平10-1665号公報に開示されているポリPBDなどが挙げられる。上記電子輸送材料は、1種単独でも、2種以上を混合して用いてもよく、異なる電子輸送材料を積層して用いてもよい。電子輸送層の厚さは、電子輸送層の導電率などに依存するが、通常、好ましくは1nm~5μm、より好ましくは5nm~1μm、特に好ましくは10nm~500nmであることが望ましい。

【0151】

また、発光層の陰極側に隣接して、ホールが発光層を通過することを抑え、発光層内でホールと電子とを効率よく再結合させる目的で、ホール・ブロック層が設けられていてよい。上記ホール・ブロック層の形成には、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、フェナントロリン誘導体などの公知の材料が用いられる。

【0152】

陽極とホール輸送層との間、または陽極と陽極に隣接して積層される有機層との間に、ホール注入において注入障壁を緩和するために、バッファ層が設けられていてよい。上記バッファ層を形成するためには、銅フタロシアニン、ポリエチレンジオキシチオフェン(PEDOT)とポリスチレンスルホン酸(PSS)との混合物などの公知の材料が用いられる。

10

20

30

40

50

## 【0153】

陰極と電子輸送層との間、または陰極と陰極に隣接して積層される有機層との間に、電子注入効率を向上するために、厚さ0.1~10nmの絶縁層が設けられていてもよい。上記絶縁層を形成するためには、フッ化リチウム、フッ化マグネシウム、酸化マグネシウム、アルミナなどの公知の材料が用いられる。

## 【0154】

本発明に係る有機EL素子に用いる陽極材料としては、例えば、ITO(酸化インジウムスズ)、酸化錫、酸化亜鉛、ポリチオフェン、ポリピロール、ポリアニリン等の導電性高分子など、公知の透明導電材料が好適に用いられる。この透明導電材料によって形成された電極の表面抵抗は、1~50 / (オーム/スクエア)であることが好ましい。陽極の厚さは50~300nmであることが好ましい。

## 【0155】

本発明に係る有機EL素子に用いる陰極材料としては、例えば、Li、Na、K、Cs等のアルカリ金属；Mg、Ca、Ba等のアルカリ土類金属；Al；MgAg合金；AlLi、AlCa等のAlとアルカリ金属との合金など、公知の陰極材料が好適に用いられる。陰極の厚さは、好ましくは10nm~1μm、より好ましくは50~500nmであることが望ましい。アルカリ金属、アルカリ土類金属などの活性の高い金属を使用する場合には、陰極の厚さは、好ましくは0.1~100nm、より好ましくは0.5~50nmであることが望ましい。また、この場合には、上記陰極金属を保護する目的で、この陰極上に、大気に対して安定な金属層が積層される。上記金属層を形成する金属として、例えば、Al、Ag、Au、Pt、Cu、Ni、Crなどが挙げられる。上記金属層の厚さは、好ましくは10nm~1μm、より好ましくは50~500nmであることが望ましい。

## 【0156】

本発明に係る有機EL素子の基板としては、上記発光材料の発光波長に対して透明な絶縁性基板が好適に用いられ、具体的には、ガラスのほか、PET(ポリエチレンテレフタレート)、ポリカーボネート等の透明プラスチックなどが用いられる。

## 【0157】

上記のホール輸送層、発光層および電子輸送層の成膜方法としては、例えば、抵抗加熱蒸着法、電子ビーム蒸着法、スパッタリング法、インクジェット法、スピンドル法、印刷法、スプレー法、ディスペンサー法などを用いることができる。低分子化合物の場合は、抵抗加熱蒸着または電子ビーム蒸着が好適に用いられ、高分子材料の場合は、インクジェット法、スピンドル法、または印刷法が好適に用いられる。

## 【0158】

本発明に係る高分子発光材料を用いて発光層を成膜する場合は、インクジェット法、スピンドル法、ディップコート法または印刷法が好ましく用いられるため、製造工程が簡略化され、素子の大面積化も図れる。

## 【0159】

また、上記陽極材料の成膜方法としては、例えば、電子ビーム蒸着法、スパッタリング法、化学反応法、コーティング法などが用いられ、上記陰極材料の成膜方法としては、例えば、抵抗加熱蒸着法、電子ビーム蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法などが用いられる。

## 4. 用途

本発明に係る有機EL素子は、公知の方法で、マトリックス方式またはセグメント方式による画素として画像表示装置に好適に用いられる。また、上記有機EL素子は、画素を形成せずに、面発光光源としても好適に用いられる。

## 【0160】

本発明に係る有機EL素子は、具体的には、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、光通信などに好適に用いられる。

10

20

30

40

50

## [実施例]

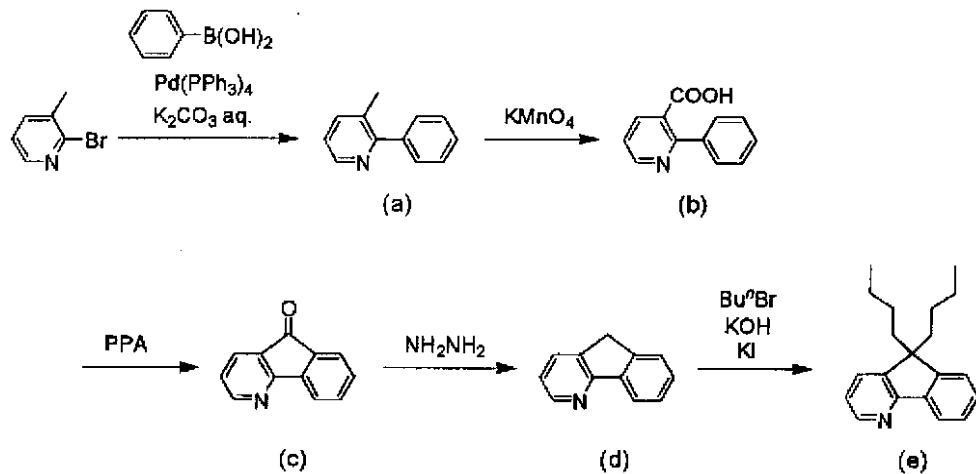
以下、実施例に基づいて本発明をさらに具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

## [合成例 1] イリジウム錯体 (C3) の合成

## (1-1) 化合物 (e) の合成

## 【0161】

## 【化61】



## 【0162】

上記スキームを参照しながら説明する。

2-ブロモ-3-ピコリン 50 g (0.29 mol)、フェニルボロン酸 35 g (0.29 mol) およびテトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム 5 g (4.3 mmol) の混合物に 300 ml の 1,2-ジメトキシエタンおよび炭酸カリウム 100 g (0.72 mol) の 300 ml 水溶液を加えて、5 時間加熱還流した。反応液を室温にまで冷却後、有機層を抽出し、減圧蒸留することで化合物 (a) を得た。次に化合物 (a) 40 g (0.24 mol) および過マンガン酸カリウム 112 g (0.71 mol) の混合物に 1000 ml の水を加え、4 時間加熱還流した。不溶物をセライトで除き、酢酸を加えて溶液を酸性にした後、ジクロロメタンで抽出した。減圧で溶媒を留去した後、ジエチルエーテルで再結晶することによって化合物 (b) を得た。次に化合物 (b) 25 g (0.13 mol) に 500 g のポリリン酸を加え、210 °C で 3 時間加熱攪拌した。反応液を水に注ぎ、水酸化ナトリウム水溶液を加えて生じた沈殿を濾取し、水洗後減圧乾燥することで化合物 (c) を得た。次に化合物 (c) 20 g (0.11 mol) にヒドラジン-水和物 14 g (0.44 mol) およびジエチレングリコール 500 ml を加え、180 °C で 5 時間加熱攪拌した。反応液を水に注ぎ、生じた沈殿を濾取して水洗後、減圧乾燥することで化合物 (d) を得た。次に化合物 (d) 10 g (60 mmol)、水酸化カリウム 13 g (0.23 mol)、ヨウ化カリウム 0.80 g (4.8 mmol) およびジメチルスルホキシド 100 ml の混合物に臭化ブチル 20 g (0.15 mol) を滴下し、室温で 12 時間攪拌した。反応液を水に注ぎ、生じた沈殿を濾取して水洗後、減圧乾燥した。得られた固体をヘキサンから再結晶することによって化合物 (e) を得た。

## (1-2) イリジウム錯体 (C3) の合成

## 【0163】

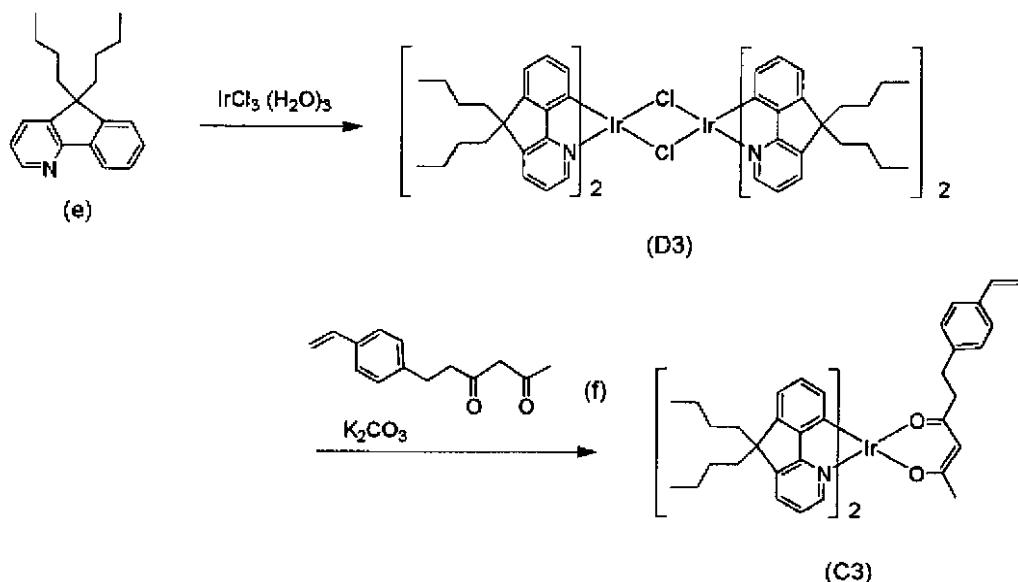
10

20

30

40

## 【化62】



## 【0164】

上記スキームを参照しながら説明する。

化合物(e) 10 g (36 mmol)、塩化イリジウム(III)三水和物 6.3 g (18 mmol)、2-エトキシエタノール 90 ml および水 30 ml をナスフラスコに入れ、マイクロ波発振装置 (CEM社製、Discover) を用いてマイクロ波 (2450 MHz) を20分間照射した。減圧で溶媒を留去することで二核錯体(D3)を得た。得られた錯体(D3) 0.50 g (0.32 mmol) に 10 ml の N,N-ジメチルホルムアミドを加え、化合物(f) (特開2003-113246に記載の方法に従って合成した) 0.50 g (2.3 mmol) および炭酸カリウム 0.32 g (2.3 mmol) を加えて、90°で4時間加熱攪拌した。得られた反応液を水中に投入し、生じた沈殿を水洗後、減圧乾燥した。シリカゲルのカラムクロマトグラフィーによって精製することにより、イリジウム錯体(C3) 0.35 g (0.36 mmol)を得た。

## 【0165】

30

化合物(C3)の同定データは以下の通りである。

元素分析： 計算値 (C<sub>54</sub>H<sub>63</sub>IrN<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) C, 67.26; H, 6.59; N, 2.91. 測定値 C, 66.90; H, 6.81; N, 3.14.

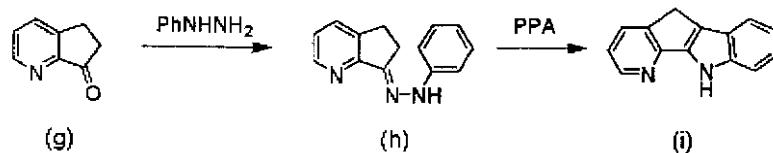
質量分析(FAB<sup>+</sup>)： 964 (M<sup>+</sup>).

## [合成例2] イリジウム錯体(C17)の合成

## (2-1) 化合物(i)の合成

## 【0166】

## 【化63】



40

## 【0167】

上記スキームを参照しながら説明する。

化合物(g) 10 g (75 mmol) を 100 ml のエタノールに溶解し、フェニルヒドラジン 10 g (92 mmol) を 1 時間加熱還流した。反応液を 0°まで徐々に冷却し、生じた沈殿をエタノールで洗浄後、減圧乾燥することによって化合物(h)を得た。次に化合物(h) 10 g (45 mmol) に 100 g のポリリン酸を加え、100°で 2 時間加熱攪拌した。反応液を室温にまで冷却し、水酸化ナトリウム水溶液を加えて塩基性に

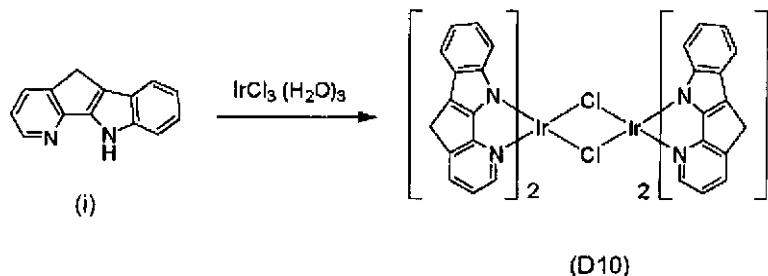
50

てジクロロメタンで抽出した。減圧で溶媒を留去することによって化合物(i)を得た。

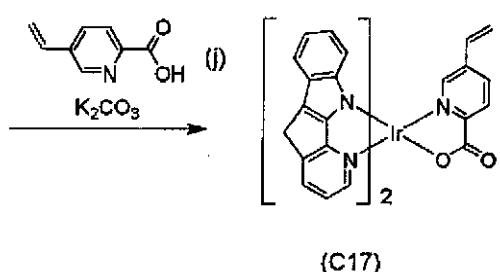
(2-2) イリジウム錯体(C17)の合成

【0168】

【化64】



10



20

【0169】

上記スキームを参照しながら説明する。

化合物(i) 5.0 g (24 mmol) と塩化イリジウム(III)三水和物 4.0 g (19 mmol) の混合物に 150 ml の 2-エトキシエタノールおよび 50 ml の水を加え、12時間加熱還流した。生成した沈殿を冷メタノールで洗浄し、減圧乾燥することによって二核錯体(D10)を得た。得られた錯体(D10) 1.0 g (0.78 mmol) に 20 ml の N,N-ジメチルホルムアミドを加え、化合物(j) (特開2003-206320に記載の方法に従って合成した) 0.30 g (2.0 mmol) および炭酸カリウム 0.30 g (2.2 mmol) を加えて、90°で4時間加熱攪拌した。得られた反応液を水中に投入し、生じた沈殿を水洗後、減圧乾燥した。シリカゲルのカラムクロマトグラフィーによって精製することにより、イリジウム錯体(C17) 0.50 g (0.67 mmol)を得た。

【0170】

化合物(C17)の同定データは以下の通りである。

元素分析： 計算値 ( $\text{C}_{36}\text{H}_{24}\text{IrN}_5\text{O}_2$ ) C, 57.59; H, 3.22; N, 9.33. 測定値 C, 57.34; H, 3.51; N, 9.44.

質量分析(FAB<sup>+</sup>)： 751 ( $\text{M}^+$ ).

【合成例3】イリジウム錯体(C19)の合成

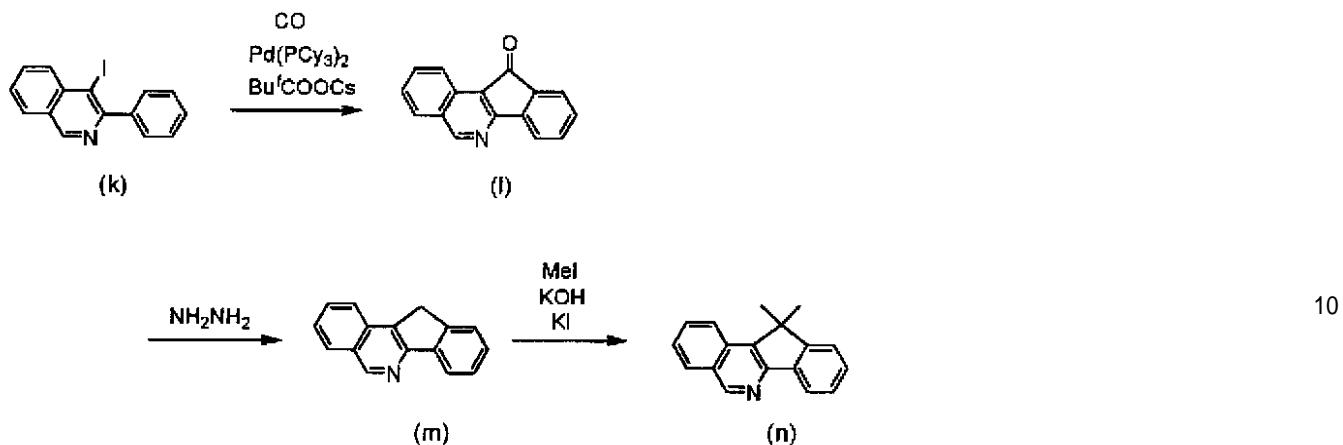
(3-1) 化合物(n)の合成

【0171】

30

40

## 【化65】



## 【0172】

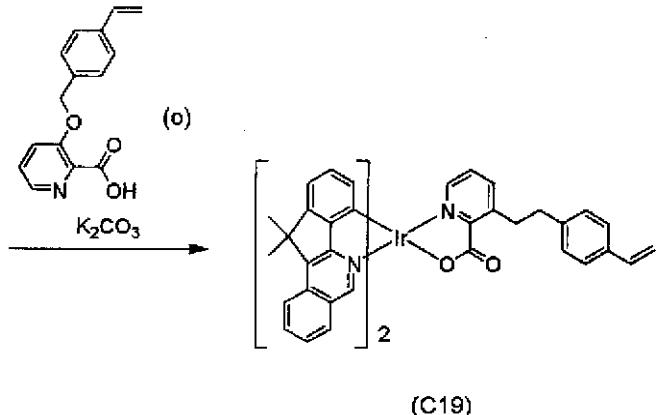
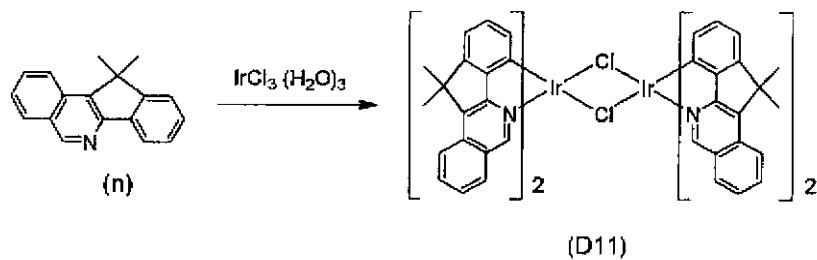
上記スキームを参照しながら説明する。

化合物 (k) (Organic Letters, 2001年, 3巻, 2973頁に記載された方法と同様の方法で合成した) 5.0 g (15 mmol)、ビス(トリシクロヘキシル)ホスフィンパラジウム 0.50 g (0.75 mmol)、ピバリン酸セシウム 7.0 g (30 mmol) および N,N-ジメチルホルムアミド 100 ml の混合物に一酸化炭素を吹き込んだ後、1気圧の一酸化炭素雰囲気下、110 で 10 時間加熱攪拌した。反応液を水に注ぎ、ジエチルエーテルで抽出した後、シリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することによって化合物 (l)を得た。次に化合物 (l) 3.0 g (13 mmol) にヒドラジン-水和物 2.6 g (52 mmol) およびジエチレングリコール 50 ml を加え、180 で 5 時間加熱攪拌した。反応液を水に注ぎ、生じた沈殿を濾取して水洗後、減圧乾燥することで化合物 (m)を得た。次に化合物 (m) 2.0 g (9.2 mmol)、水酸化カリウム 2.0 g (36 mmol)、ヨウ化カリウム 0.15 g (0.90 mmol) およびジメチルスルホキシド 20 ml の混合物にヨウ化メチル 3.3 g (23 mmol) を滴下し、室温で 12 時間攪拌した。反応液を水に注ぎ、生じた沈殿を濾取して水洗後、減圧乾燥した。得られた固体をジエチルエーテルから再結晶することによって化合物 (n)を得た。

(3-2) イリジウム錯体 (C19) の合成

## 【0173】

## 【化66】



10

20

30

40

50

## 【0174】

上記スキームを参照しながら説明する。

化合物 (n) 1.5 g (6.1 mmol)、塩化イリジウム (III) 三水和物 1.1 g (3.1 mmol)、2-エトキシエタノール 30 mL および水 10 mL をナスフラスコに入れ、マイクロ波 (2450 MHz) を 20 分間照射した。減圧で溶媒を留去することで二核錯体 (D11) を得た。得られた錯体 (D11) 0.50 g (0.35 mmol) に 10 mL の N,N-ジメチルホルムアミドを加え、化合物 (o) (特開 2003-1113246 に記載の方法に従って合成した) 0.50 g (2.3 mmol) および炭酸カリウム 0.32 g (2.3 mmol) を加えて、90°で 4 時間加熱攪拌した。得られた反応液を水中に投入し、生じた沈殿を水洗後、減圧乾燥した。シリカゲルのカラムクロマトグラフィーによって精製することにより、イリジウム錯体 (C19) 0.29 g (0.31 mmol) を得た。

## 【0175】

化合物 (C19) の同定データは以下の通りである。

元素分析： 計算値 (C<sub>52</sub>H<sub>42</sub>IrN<sub>3</sub>O<sub>2</sub>) C, 66.93; H, 4.54; N, 4.50. 測定値 C, 67.31; H, 4.29; N, 4.44.

質量分析 (FAB+): 933 (M<sup>+</sup>).

## 【実施例1】

## 【0176】

## 共重合体 (I) の合成

密閉容器に、イリジウム錯体 (C3) 80 mg、上記式 (E1) で表される化合物 460 mg、および上記式 (E7) で表される化合物 460 mg を入れ、脱水トルエン (9.9 mL) を加えた。次いで、V-601 (和光純薬工業(株)製) のトルエン溶液 (0.1 M, 198 μL) を加え、凍結脱気操作を 5 回繰り返した。真空のまま密閉し、60°で 60 時間攪拌した。反応後、反応液をアセトン 500 mL 中に滴下し、沈殿を得た。さらにトルエン-アセトンでの再沈殿精製を 2 回繰り返した後、50°で一晩真空乾燥して、共重合体 (I) を得た。共重合体 (I) の重量平均分子量 (M<sub>w</sub>) は 42500、分子量分布指数 (M<sub>w</sub> / M<sub>n</sub>) は 2.31 であった。ICP 元素分析および<sup>13</sup>C-NMR 測定の結果から見積もった共重合体における m / (m + n) の値は 0.030 であった。また、共重合体 (I) において、x / n の値は、0.41 であり、y / n の値は、0.59 で

あつた。

【実施例 2】

【0177】

共重合体(II)の合成

イリジウム錯体(C3)の代わりにイリジウム錯体(C17)を、上記式(E1)で表される化合物の代わりに上記式(E2)で表される化合物を、上記式(E7)で表される化合物の代わりに上記式(E14)で表される化合物を用いた他は、実施例1と同様にして、共重合体(II)を得た。共重合体(II)の重量平均分子量(Mw)は48700、分子量分布指数(Mw/Mn)は2.11であった。ICP元素分析および<sup>13</sup>C-NMR測定の結果から見積もった共重合体におけるm/(m+n)の値は0.029であった。また、共重合体(II)において、x/nの値は、0.49であり、y/nの値は、0.51であった。  
10

【実施例3】

【0178】

共重合体(III)の合成

イリジウム錯体(C3)の混合物の代わりにイリジウム錯体(C19)を用いた他は、実施例1と同様にして、共重合体(III)を得た。共重合体(III)の重量平均分子量(Mw)は39000、分子量分布指数(Mw/Mn)は2.05であった。ICP元素分析および<sup>13</sup>C-NMR測定の結果から見積もった共重合体におけるm/(m+n)の値は0.029であった。また、共重合体(III)において、x/nの値は、0.41であり、y/nの値は、0.59であった。  
20

【実施例4】

【0179】

有機EL素子の作製および発光特性の評価

ITO付き基板(ニッポ電機(株)製)を用いた。これは、25mm角のガラス基板の一方の面に、幅4mmのITO(酸化インジウム錫)電極(陽極)が、ストライプ状に2本形成された基板であった。

【0180】

まず、上記ITO付き基板上に、ポリ(3,4-エチレンジオキシチオフェン)・ポリスチレンスルホン酸(バイエル(株)製、商品名「バイトロンP」)を、回転数3500rpm、塗布時間40秒の条件で、スピンドル法により塗布した。その後、真空乾燥器で減圧下、60で2時間乾燥し、陽極バッファ層を形成した。得られた陽極バッファ層の膜厚は、約50nmであった。次に、共重合体(I)90mg及びDPSiO<sub>3</sub>60mgをトルエン(和光純薬工業(株)製、特級)2910mgに溶解し、この溶液を孔径0.2μmのフィルターでろ過し、塗布溶液を調製した。次いで、上記陽極バッファ層上に、上記塗布溶液を、回転数3000rpm、塗布時間30秒の条件で、スピンドル法により塗布した。塗布後、室温(25)で30分間乾燥し、発光層を形成した。得られた発光層の膜厚は、約100nmであった。  
30

【0181】

次に、発光層を形成した基板を蒸着装置内に載置した。次いで、カルシウムおよびアルミニウムを重量比1:10で共蒸着し、陽極の延在方向に対して直交するように、幅3mmの陰極をストライプ状に2本形成した。得られた陰極の膜厚は、約50nmであった。  
40

【0182】

最後に、アルゴン雰囲気中で、陽極と陰極とにリード線(配線)を取り付けて、縦4mm×横3mmの有機EL素子を4個作製した。上記有機EL素子に、プログラマブル直流電圧/電流源(TR6143、(株)アドバンテスト社製)を用いて電圧を印加して発光させた。その発光輝度を、輝度計(BM-8、(株)トプコン社製)を用いて測定した。

【0183】

作製した有機EL素子は、青緑色の発光を示した。

最大発光外部量子効率は7.2%、最高輝度は35000cd/m<sup>2</sup>であった。また初  
50

期輝度  $100 \text{ cd} / \text{m}^2$  で電流値を一定にして通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで、4300時間であった。

【比較例1】

DPSiO<sub>3</sub>を加えなかった他は実施例4と同様にして、有機EL素子を作製し、発光色などの測定を行った。

【0184】

作製した有機EL素子は、青緑色の発光を示した。

最大発光外部量子効率は6.9%、最高輝度は $32000 \text{ cd} / \text{m}^2$ であった。また初期輝度  $100 \text{ cd} / \text{m}^2$  で電流値を一定にして通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで、4000時間であった。

10

【実施例5】

【0185】

有機EL素子の作製および発光特性の評価

共重合体(I)の代わりに共重合体(II)を用いたほかは、実施例4と同様にして、有機EL素子を作製し、発光色などの測定を行った。

【0186】

作製した有機EL素子は、緑色の発光を示した。

【比較例2】

共重合体(I)の代わりに共重合体(II)を用いたほかは、比較例1と同様にして、有機EL素子を作製し、発光色などの測定を行った。

20

【0187】

作製した有機EL素子は、緑色の発光を示した。

最大発光外部量子効率は6.5%、最高輝度は $25000 \text{ cd} / \text{m}^2$ であった。また初期輝度  $100 \text{ cd} / \text{m}^2$  で電流値を一定にして通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで、3500時間であった。

20

【実施例6】

【0188】

有機EL素子の作製および発光特性の評価

共重合体(I)の代わりに共重合体(III)を用いたほかは、実施例4と同様にして、有機EL素子を作製し、発光色などの測定を行った。

30

【0189】

作製した有機EL素子は、黄色の発光を示した。

【比較例3】

共重合体(I)の代わりに共重合体(III)を用いたほかは、比較例1と同様にして、有機EL素子を作製し、発光色などの測定を行った。

40

【0190】

作製した有機EL素子は、黄色の発光を示した。

最大発光外部量子効率は5.8%、最高輝度は $22000 \text{ cd} / \text{m}^2$ であった。また初期輝度  $100 \text{ cd} / \text{m}^2$  で電流値を一定にして通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで、3800時間であった。

【実施例7】

【0191】

有機EL素子の作製および発光特性の評価

DPSiO<sub>3</sub>の代わりにDPSiO<sub>4</sub>を用いたほかは、実施例4と同様にして、有機EL素子を作製し、発光色などの測定を行った。

【0192】

作製した有機EL素子は、青緑色の発光を示した。

最大発光外部量子効率は7.1%、最高輝度は $36000 \text{ cd} / \text{m}^2$ であった。また初期輝度  $100 \text{ cd} / \text{m}^2$  で電流値を一定にして通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで、4100時間であった。

50

## 【図面の簡単な説明】

## 【0193】

【図1】図1は、本発明に係る有機EL素子の例の断面図である。

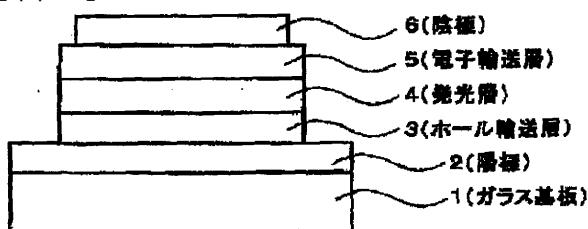
## 【符号の説明】

## 【0194】

- 1 : ガラス基板  
2 : 陽極  
3 : ホール輸送層  
4 : 発光層  
5 : 電子輸送層  
6 : 陰極

10

## 【図1】



---

フロントページの続き

(72)発明者 高橋 良明

千葉県千葉市緑区大野台 1 - 1 - 1 昭和電工株式会社研究開発センター内

F ターム(参考) 3K107 AA01 BB01 BB02 CC02 CC04 CC07 CC21 CC42 CC45 DD53  
DD60 DD64 DD67

专利名称(译)	有机电致发光器件和显示器件		
公开(公告)号	<a href="#">JP2008010649A</a>	公开(公告)日	2008-01-17
申请号	JP2006179891	申请日	2006-06-29
[标]申请(专利权)人(译)	昭和电工株式会社		
申请(专利权)人(译)	昭和电工株式会社		
[标]发明人	大坪 昭博 高橋 良明		
发明人	大坪 昭博 高橋 良明		
IPC分类号	H01L51/50 C09K11/06		
FI分类号	H05B33/14.B C09K11/06.680 C09K11/06.690		
F-TERM分类号	3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/BB02 3K107/CC02 3K107/CC04 3K107/CC07 3K107/CC21 3K107/CC42 3K107/CC45 3K107/DD53 3K107/DD60 3K107/DD64 3K107/DD67		
代理人(译)	鈴木 俊一郎 鈴木 亨		
外部链接	<a href="#">Espacenet</a>		

## 摘要(译)

要解决的问题：提供一种有机EL器件和显示装置，其能够获得具有高发光效率的绿色至蓝色发光，并且还具有长寿命和优异的耐久性。解决方案：有机电致发光元件包括夹在阳极和阴极之间的一个或多个有机聚合物层。在有机电致发光元件中，至少一层有机聚合物层(A)含有衍生自通式(1)表示的铱络合物的结构单元和(B)特定有机硅化合物的聚合物。【选择图】无

