

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2019年4月4日(04.04.2019)



(10) 国際公開番号
WO 2019/065389 A1

- (51) 国際特許分類:
H05B 33/12 (2006.01) *C09K 11/06* (2006.01)
C08G 61/10 (2006.01) *H01L 51/50* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2018/034562
- (22) 国際出願日: 2018年9月19日(19.09.2018)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
 特願 2017-189922 2017年9月29日(29.09.2017) JP
- (71) 出願人: 住友化学株式会社
(SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED) [JP/JP]; 〒1048260 東京都中央区新川二丁目27番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 佐々田 敏明 (**SASADA, Toshiaki**);
 〒3003294 茨城県つくば市北原6番住友化学株式会社内 Ibaraki (JP). 浅田 浩平 (**ASADA, Kohei**); 〒3003294 茨城県つくば市北原6番住友化学株式会社内 Ibaraki (JP).

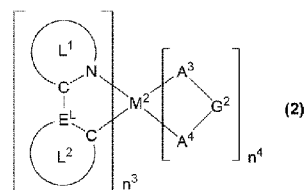
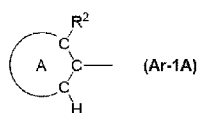
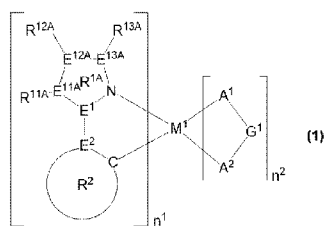
稲員 慎一 (**INAKAZU, Shinichi**); 〒3003294 茨城県つくば市北原6番住友化学株式会社内 Ibaraki (JP). 大内 一栄 (**OHUCHI, Kazuei**); 〒3003294 茨城県つくば市北原6番住友化学株式会社内 Ibaraki (JP).

(74) 代理人: 中山 亨, 外 (**NAKAYAMA, Tohru et al.**); 〒5418550 大阪府大阪市中央区北浜四丁目5番33号住友化学株式会社内 Osaka (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL,

(54) Title: LIGHT-EMITTING DEVICE

(54) 発明の名称: 発光素子



(57) **Abstract:** Provided is a light-emitting device having a positive electrode, a negative electrode, a first organic layer, and a second organic layer, wherein the first organic layer contains a metal complex represented by formula (1) and the second organic layer contains a metal complex represented by formula (2). In formula (1), M¹ represents an iridium or the like; n¹ represents an integer of 1 or more; n² represents an integer of 0 or more; ring R^{1A} represents a triazole ring or the like; ring R² represents an aromatic hydrocarbon ring or the like; E¹, E², and E^{11A} to E^{13A} represent nitrogen atoms or carbon atoms; R^{11A} to R^{13A} represent substituents or the like; and A¹-G¹-A² represents a bidentate ligand. At least one among E^{11A} to E^{13A} is a nitrogen atom, and at least one among R^{11A} to R^{13A} bonded to the nitrogen atom is a group represented by formula (Ar-1A). In formula (Ar-1A), ring A represents an aromatic hydrocarbon ring or the like; and R² represents a substituent or the like. In formula (2), M² represents an iridium atom or the like; n³ represents an integer of 1 or more; n⁴ represents an integer of 0 or more; E^L represents a carbon atom or the like; ring L¹ represents a 6-membered aromatic heterocyclic ring; ring L² represents an aromatic hydrocarbon ring or the like; and A³-G²-A⁴ represents a bidentate ligand.



WO 2019/065389 A1

SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA,
UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

- 一 国際調査報告 (条約第21条(3))

(57) 要約: 陽極と、陰極と、第1の有機層と、第2の有機層とを有し、第1の有機層が式(1)で表される金属錯体を含有する層であり、第2の有機層が式(2)で表される金属錯体を含有する層である、発光素子。 [式(1)中、 M^1 はイリジウム原子等; n^1 は1以上の整数; n^2 は0以上の整数; 環 R^{1A} はトリアゾール環等; 環 R^2 は芳香族炭化水素環等; E^1 、 E^2 及び $E^{11A} \sim E^{13A}$ は窒素原子又は炭素原子; $R^{11A} \sim R^{13A}$ は置換基等; $A^1 - G^1 - A^2$ は2座配位子を表す。 $E^{11A} \sim E^{13A}$ の少なくとも1つは窒素原子であり、該窒素原子に結合する $R^{11A} \sim R^{13A}$ の少なくとも1つは式(A r - 1 A)で表される基である。] [式(A r - 1 A)中、環Aは芳香族炭化水素環等; R^2 は置換基等を表す。] [式(2)中、 M^2 はイリジウム原子等; n^3 は1以上の整数; n^4 は0以上の整数; E^1 は炭素原子等; 環 L^1 は6員の芳香族複素環; 環 L^2 は芳香族炭化水素環等; $A^3 - G^2 - A^4$ は2座配位子を表す。]

明 細 書

発明の名称：発光素子

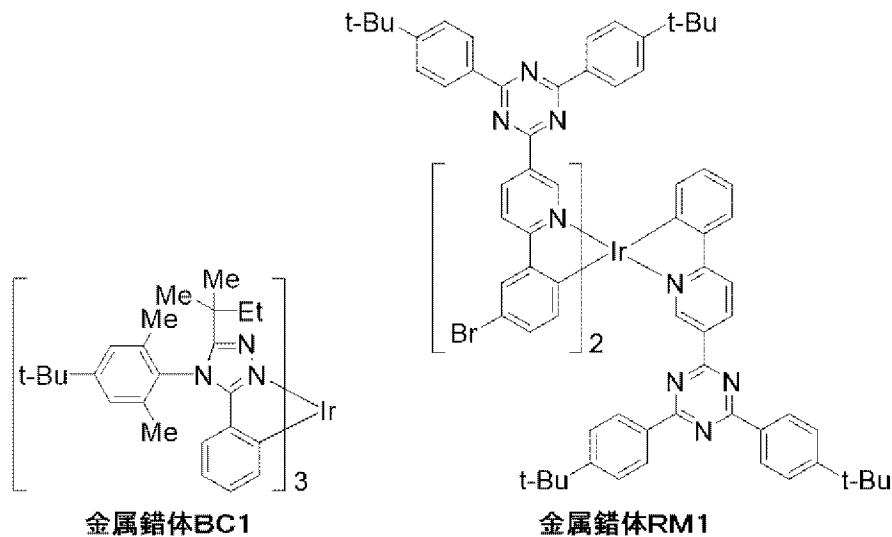
技術分野

[0001] 本発明は、発光素子に関する。

背景技術

[0002] 有機エレクトロルミネッセンス素子等の発光素子は、ディスプレイ及び照明の用途に好適に使用することが可能である。例えば、特許文献1には、金属錯体BC1を含有する発光層と、金属錯体RM1から誘導される構成単位を含む高分子化合物を含有する発光層とを有する発光素子が記載されている（特許文献1）。

[0003] [化1]



先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：国際公開第2016/185183号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] しかし、上述した発光素子は、外部量子効率が必ずしも十分ではなかった。

。

そこで、本発明は、外部量子効率が優れる発光素子を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0006] 本発明は、以下の [1] ~ [12] を提供する。

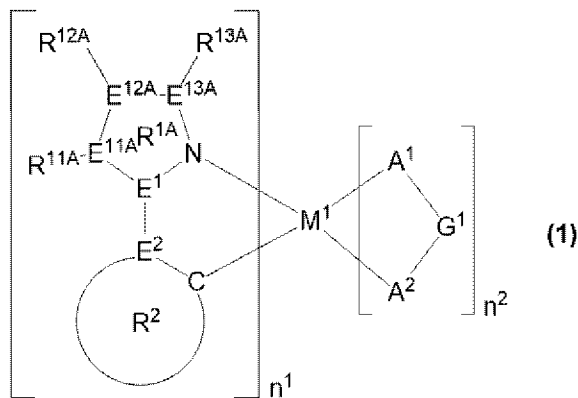
[1]

陽極と、陰極と、前記陽極及び前記陰極の間に設けられた第1の有機層及び第2の有機層と、を有する発光素子であり、

前記第1の有機層が、式(1)で表される金属錯体を含有する層であり、

前記第2の有機層が、式(2)で表される金属錯体、及び、式(2)で表される金属錯体から水素原子1個以上を除いた基を有する構成単位を含む高分子化合物からなる群より選ばれる少なくとも1種を含有する層である、前記発光素子。

[0007] [化2]



[式中、

M¹はロジウム原子、パラジウム原子、イリジウム原子又は白金原子を表す。

n¹は1以上の整数を表し、n²は0以上の整数を表す。但し、M¹がロジウム原子又はイリジウム原子の場合、n¹+n²は3であり、M¹がパラジウム原子又は白金原子の場合、n¹+n²は2である。

環R^{1A}は、ジアゾール環、トリアゾール環又はテトラゾール環を表す。

環R²は、芳香族炭化水素環又は芳香族複素環を表し、これらの環は置換基

を有していてもよい。前記置換基が複数存在する場合、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。環 R^2 が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。

E^1 、 E^2 、 E^{11A} 、 E^{12A} 及び E^{13A} は、それぞれ独立に、窒素原子又は炭素原子を表す。 E^1 、 E^2 、 E^{11A} 、 E^{12A} 及び E^{13A} が複数存在する場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。但し、 E^1 及び E^2 の少なくとも一方は炭素原子である。

R^{11A} 、 R^{12A} 及び R^{13A} は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリーロキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はハロゲン原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。 R^{11A} 、 R^{12A} 及び R^{13A} が複数存在する場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。

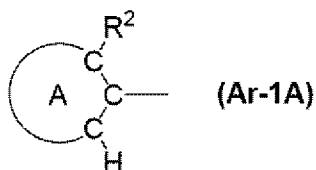
但し、 E^{11A} 、 E^{12A} 及び E^{13A} の少なくとも1つは窒素原子であり、且つ、該窒素原子に結合する R^{11A} 、 R^{12A} 及び R^{13A} の少なくとも1つは式 $(Ar-1A)$ で表される基である。

R^{11A} と R^{12A} とは、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。 R^{12A} と R^{13A} とは、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。環 R^2 が有していてもよい置換基と R^{11A} とは、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。

E^{11A} が窒素原子の場合、 R^{11A} は存在しても存在しなくてもよい。 E^{12A} が窒素原子の場合、 R^{12A} は存在しても存在しなくてもよい。 E^{13A} が窒素原子の場合、 R^{13A} は存在しても存在しなくてもよい。

$A^1-G^1-A^2$ は、アニオン性の2座配位子を表す。 A^1 及び A^2 は、それぞれ独立に、炭素原子、酸素原子又は窒素原子を表し、これらの原子は環を構成する原子であってもよい。 G^1 は、単結合、又は、 A^1 及び A^2 とともに2座配位子を構成する原子団を表す。 $A^1-G^1-A^2$ が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。]

[0008] [化3]

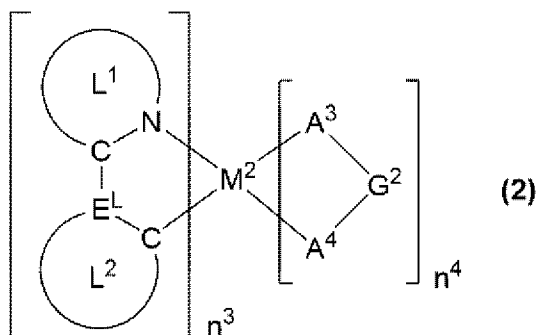


[式中、

環Aは、芳香族炭化水素環又は芳香族複素環を表し、これらの環は置換基を有していてもよい。前記置換基が複数存在する場合、それらは互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。

R²は、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はハロゲン原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。]

[0009] [化4]



[式中、

M²は、ロジウム原子、パラジウム原子、イリジウム原子又は白金原子を表す。

n³は1以上の整数を表し、n⁴は0以上の整数を表し、但し、M²がロジウム原子又はイリジウム原子の場合、n³+n⁴は3であり、M²がパラジウム原子又は白金原子の場合、n³+n⁴は2である。

E^Lは、炭素原子又は窒素原子を表す。E^Lが複数存在する場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。

環L¹は、6員の芳香族複素環を表し、この環は置換基を有していてもよい。前記置換基が複数存在する場合、互いに結合して、それぞれが結合する原

子とともに環を形成していてもよい。環 L^1 が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。

環 L^2 は、芳香族炭化水素環又は芳香族複素環を表し、これらの環は置換基を有していてもよい。前記置換基が複数存在する場合、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。環 L^2 が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。

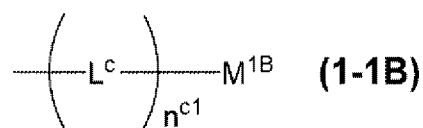
環 L^1 が有していてもよい置換基と環 L^2 が有していてもよい置換基とは、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。

$A^3-G^2-A^4$ は、アニオン性の2座配位子を表す。 A^3 及び A^4 は、それぞれ独立に、炭素原子、酸素原子又は窒素原子を表し、これらの原子は環を構成する原子であってもよい。 G^2 は、単結合、又は、 A^3 及び A^4 とともに2座配位子を構成する原子団を表す。 $A^3-G^2-A^4$ が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。]

[2]

前記第2の有機層が、前記式(2)で表される金属錯体から水素原子1個以上を除いた基を有する構成単位を含む高分子化合物として、式(1-1B)、式(1-2B)、式(1-3B)又は式(1-4B)で表される構成単位を含む高分子化合物を含む、[1]に記載の発光素子。

[0010] [化5]



[式中、

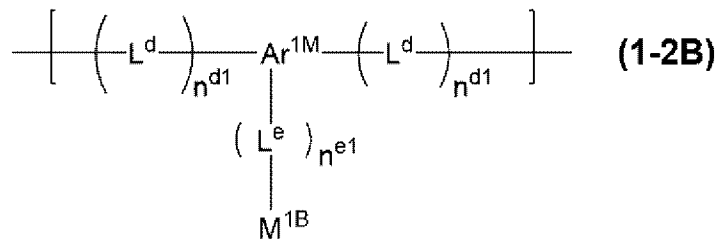
M^{1B} は、前記式(2)で表される金属錯体から水素原子1個を除いた基を表す。

L^c は、酸素原子、硫黄原子、 $-N(R^A)-$ 、 $-C(R^B)_2-$ 、 $-C(R^B)=C(R^B)-$ 、 $-C\equiv C-$ 、アリーレン基又は2価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。 R^A は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基を

有していてもよい。R^Bは、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。複数存在するR^Bは、同一でも異なってもよく、互いに結合して、それぞれが結合する炭素原子とともに環を形成していてもよい。L^cが複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。

n^{e1}は0以上の整数を表す。]

[0011] [化6]



[式中、

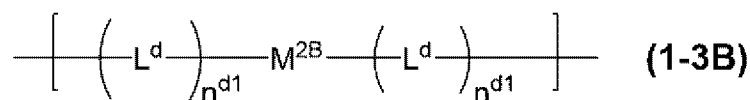
M^{1B}は、前記と同じ意味を表す。

L^d及びL^eは、それぞれ独立に、酸素原子、硫黄原子、-N(R^A)-、-C(R^B)₂-、-C(R^B)=C(R^B)-、-C≡C-、アリーレン基又は2価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。R^A及びR^Bは、前記と同じ意味を表す。L^d及びL^eが複数存在する場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。

n^{d1}及びn^{e1}は、それぞれ独立に、0以上の整数を表す。複数存在するn^{d1}は、同一でも異なってもよい。

Ar^{1M}は、芳香族炭化水素基又は複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。]

[0012] [化7]

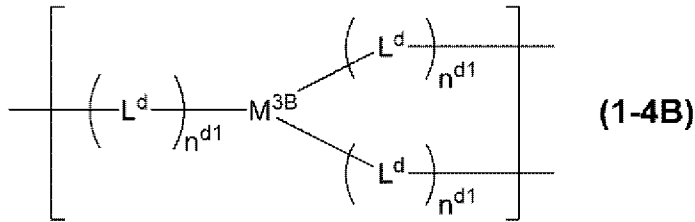


[式中、

L^d及びn^{d1}は、前記と同じ意味を表す。

M^{2B} は、前記式（2）で表される金属錯体から水素原子2個を除いた基を表す。]

[0013] [化8]



[式中、

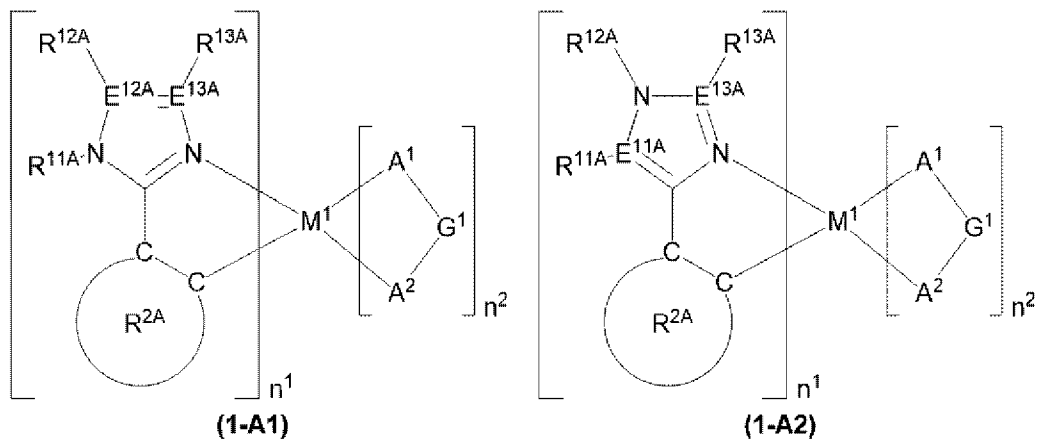
L^d 及び n^{d1} は、前記と同じ意味を表す。

M^{3B} は、前記式（2）で表される金属錯体から水素原子3個を除いた基を表す。]

[3]

前記式（1）で表される金属錯体が、式（1-A1）又は式（1-A2）で表される金属錯体である、[1]又は[2]に記載の発光素子。

[0014] [化9]



[式中、 M^1 、 n^1 、 n^2 、 R^{11A} 、 R^{12A} 、 R^{13A} 、 E^{11A} 、 E^{12A} 、 E^{13A} 及び $A^1-G^1-A^2$ は、前記と同じ意味を表す。

環 R^{2A} は、ベンゼン環、フルオレン環、スピロビフルオレン環、ジヒドロフェナントレン環、ピリジン環、ジアザベンゼン環、カルバゾール環、ジベンゾフラン環又はジベンゾチオフェン環を表し、これらの環は置換基を有していてもよい。前記置換基が複数存在する場合、互いに結合して、それぞれが

結合する原子とともに環を形成していてもよい。環 R^{2A}が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。

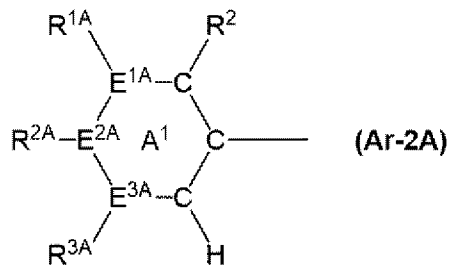
環 R^{2A}が有していてもよい置換基と R^{11A}とは、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。

但し、式 (1-A1) 中、R^{11A}の少なくとも1つは前記式 (Ar-1A) で表される基であり、式 (1-A2) 中、R^{12A}の少なくとも1つは前記式 (Ar-1A) で表される基である。]

[4]

前記式 (Ar-1A) で表される基が、式 (Ar-2A) で表される基である、[1] ~ [3] のいずれかに記載の発光素子。

[0015] [化10]



[式中、

R²は、前記と同じ意味を表す。

環 A¹は、ベンゼン環、ピリジン環又はジアザベンゼン環を表す。

E^{1A}、E^{2A}及びE^{3A}は、それぞれ独立に、窒素原子又は炭素原子を表す。E^{1A}が窒素原子の場合、R^{1A}は存在しない。E^{2A}が窒素原子の場合、R^{2A}は存在しない。E^{3A}が窒素原子の場合、R^{3A}は存在しない。

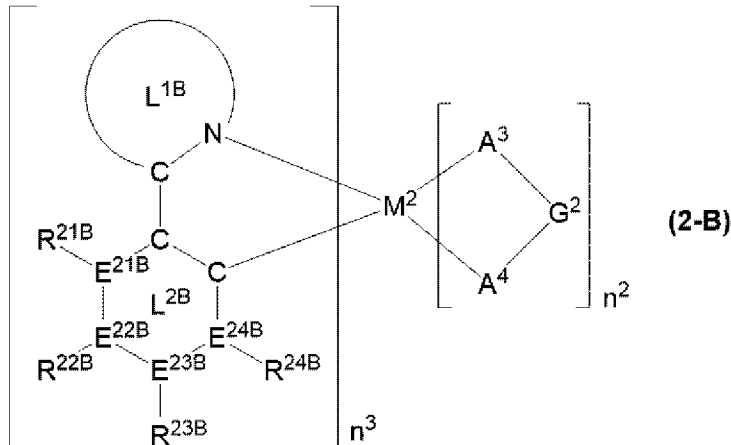
R^{1A}、R^{2A}及びR^{3A}は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はハロゲン原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。

R^{1A}とR^{2A}、及び、R^{2A}とR^{3A}は、それぞれ結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。]

[5]

前記式 (2) で表される金属錯体が、式 (2 - B) で表される金属錯体である、[1] ~ [4] のいずれかに記載の発光素子。

[0016] [化11]



[式中、

M^2 、 n^3 、 n^4 及び $A^3-G^2-A^4$ は、前記と同じ意味を表す。

環 L^{1B} は、ピリジン環、ジアザベンゼン環、アザナフタレン環又はジアザナフタレン環を表し、これらの環は置換基を有していてもよい。前記置換基が複数存在する場合、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。環 L^{1B} が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。

E^{21B} 、 E^{22B} 、 E^{23B} 及び E^{24B} は、それぞれ独立に、窒素原子又は炭素原子を表す。 E^{21B} 、 E^{22B} 、 E^{23B} 及び E^{24B} が複数存在する場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。 E^{21B} が窒素原子の場合、 R^{21B} は存在しない。 E^{22B} が窒素原子の場合、 R^{22B} は存在しない。 E^{23B} が窒素原子の場合、 R^{23B} は存在しない。 E^{24B} が窒素原子の場合、 R^{24B} は存在しない。

R^{21B} 、 R^{22B} 、 R^{23B} 及び R^{24B} は、それぞれ独立に、水素原子又は式 (1 - T) で表される基を表す。 R^{21B} 、 R^{22B} 、 R^{23B} 及び R^{24B} が複数存在する場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。 R^{21B} と R^{22B} 、 R^{22B} と R^{23B} 、 R^{23B} と R^{24B} 、及び、環 L^{1B} が有していてもよい置換基と R^{21B} は、それぞれ結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。

環 L^{2B} は、ベンゼン環、ピリジン環又はジアザベンゼン環を表す。]

[0017] [化12]



[式中、 R^{1T} は、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリーールオキシ基、アリーール基、1価の複素環基、置換アミノ基又はハロゲン原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。]

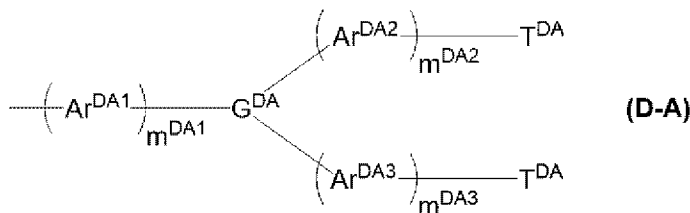
[6]

前記環 L^{1B} の少なくとも1つが前記式(1-T)で表される基を有するか、又は、前記 R^{21B} 、前記 R^{22B} 、前記 R^{23B} 及び前記 R^{24B} の少なくとも1つが前記式(1-T)で表される基である、[5]に記載の発光素子。

[7]

前記 R^{1T} が、置換基を有していてもよいアルキル基、置換基を有していてもよいシクロアルキル基、式(D-A)で表される基、式(D-B)で表される基又は式(D-C)で表される基である、[6]に記載の発光素子。

[0018] [化13]



[式中、

m^{DA1} 、 m^{DA2} 及び m^{DA3} は、それぞれ独立に、0以上の整数を表す。

G^{DA} は、窒素原子、芳香族炭化水素基又は複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。

Ar^{DA1} 、 Ar^{DA2} 及び Ar^{DA3} は、それぞれ独立に、アリーレン基又は2価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。 Ar^{DA1} 、 Ar^{DA2} 及び Ar^{DA3} が複数存在する場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。

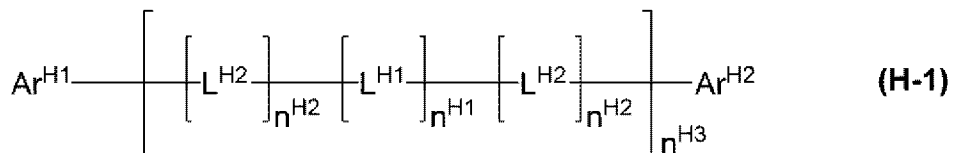
T^{DA} は、アリーール基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有し

T^{DA}は、アリール基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。]

[8]

前記第1の有機層が、式(H-1)で表される化合物、若しくは、式(Y)で表される構成単位を含む高分子化合物、又は、これらの組み合わせを更に含有する、[1]～[7]のいずれかに記載の発光素子。

[0021] [化16]



[式中、

A r^{H1}及びA r^{H2}は、それぞれ独立に、アリール基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。

n^{H1}及びn^{H2}は、それぞれ独立に、0又は1を表す。n^{H1}が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。複数存在するn^{H2}は、同一でも異なってもよい。

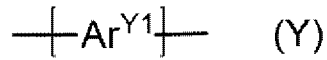
n^{H3}は、0以上10以下の整数を表す。

L^{H1}は、アリーレン基、2価の複素環基、又は、 $-\text{C}(\text{R}^{\text{H11}})_2-$ で表される基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。L^{H1}が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。n^{H11}は、1以上10以下の整数を表す。R^{H11}は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。複数存在するR^{H11}は、同一でも異なってもよく、互いに結合して、それぞれが結合する炭素原子とともに環を形成していてもよい。

L^{H2}は、 $-\text{N}(-\text{L}^{\text{H21}}-\text{R}^{\text{H21}})-$ で表される基を表す。L^{H2}が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。L^{H21}は、単結合、アリーレン基又は2価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。R^{H21}は、

水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。]

[0022] [化17]



[式中、Ar^{Y1}は、アリーレン基、2価の複素環基、又は、少なくとも1種のアリーレン基と少なくとも1種の2価の複素環基とが直接結合した2価の基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。]

[9]

前記式(1)で表される金属錯体の発光スペクトルの最大ピーク波長が380nm以上495nm未満であり、前記式(2)で表される金属錯体の発光スペクトルの最大ピーク波長が495nm以上750nm未満である、[1]～[8]のいずれかに記載の発光素子。

[10]

前記第1の有機層と前記第2の有機層とが隣接している、[1]～[9]のいずれかに記載の発光素子。

[11]

前記第2の有機層が前記陽極及び前記第1の有機層との間に設けられた層である、[1]～[10]のいずれかに記載の発光素子。

[12]

前記第1の有機層が第1の発光層であり、前記第2の有機層が第2の発光層である、[1]～[11]のいずれかに記載の発光素子。

発明の効果

[0023] 本発明によれば、外部量子効率が優れる発光素子を提供することができる。

発明を実施するための形態

[0024] 以下、本発明の好適な実施形態について詳細に説明する。

[0025] <共通する用語の説明>

本明細書で共通して用いられる用語は、特記しない限り、以下の意味である。

Meはメチル基、Etはエチル基、Buはブチル基、i-Prはイソプロピル基、t-Buはtert-ブチル基を表す。

水素原子は、重水素原子であっても、軽水素原子であってもよい。

金属錯体を表す式中、金属との結合を表す実線は、イオン結合、共有結合又は配位結合を意味する。

[0026] 「高分子化合物」とは、分子量分布を有し、ポリスチレン換算の数平均分子量が $1 \times 10^3 \sim 1 \times 10^8$ である重合体を意味する。

高分子化合物は、ブロック共重合体、ランダム共重合体、交互共重合体、グラフト共重合体のいずれであってもよいし、その他の態様であってもよい。

高分子化合物の末端基は、重合活性基がそのまま残っていると、高分子化合物を発光素子の作製に用いた場合、発光特性又は輝度寿命が低下する可能性があるため、好ましくは安定な基である。高分子化合物の末端基としては、好ましくは主鎖と共役結合している基であり、例えば、炭素-炭素結合を介して高分子化合物の主鎖と結合するアリール基又は1価の複素環基が挙げられる。

[0027] 「低分子化合物」とは、分子量分布を有さず、分子量が 1×10^4 以下の化合物を意味する。

[0028] 「構成単位」とは、高分子化合物中に1個以上存在する単位を意味する。

[0029] 「アルキル基」は、直鎖及び分岐のいずれでもよい。直鎖のアルキル基の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常1~50であり、好ましくは3~30であり、より好ましくは4~20である。分岐のアルキル基の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常3~50であり、好ましくは3~30であり、より好ましくは4~20である。

アルキル基は、置換基を有していてもよく、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、2-ブチル基、イソブチル基、ter

t-ブチル基、ペンチル基、イソアミル基、2-エチルブチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、2-エチルヘキシル基、3-プロピルヘプチル基、デシル基、3,7-ジメチルオクチル基、2-エチルオクチル基、2-ヘキシルデシル基、ドデシル基、及び、これらの基における水素原子が、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、フッ素原子等で置換された基（例えば、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、パーフルオロブチル基、パーフルオロヘキシル基、パーフルオロオクチル基、3-フェニルプロピル基、3-(4-メチルフェニル)プロピル基、3-(3,5-ジ-ヘキシルフェニル)プロピル基、6-エチルオキシヘキシル基）が挙げられる。

「シクロアルキル基」の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常3～50であり、好ましくは3～30であり、より好ましくは4～20である。

シクロアルキル基は、置換基を有していてもよく、例えば、シクロヘキシル基、シクロヘキシルメチル基、シクロヘキシルエチル基が挙げられる。

[0030] 「アリール基」は、芳香族炭化水素から環を構成する炭素原子に直接結合する水素原子1個を除いた残りの原子団を意味する。アリール基の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常6～60であり、好ましくは6～20であり、より好ましくは6～10である。

アリール基は、置換基を有していてもよく、例えば、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントラセニル基、2-アントラセニル基、9-アントラセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-フルオレニル基、3-フルオレニル基、4-フルオレニル基、2-フェニルフェニル基、3-フェニルフェニル基、4-フェニルフェニル基、及び、これらの基における水素原子が、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、フッ素原子等で置換された基が挙げられる。

[0031] 「アルコキシ基」は、直鎖及び分岐のいずれでもよい。直鎖のアルコキシ基の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常1～40であり、好ましくは4～10である。分岐のアルコキシ基の炭素原子数は、置換基の炭

素原子数を含めないで、通常3～40であり、好ましくは4～10である。

アルコキシ基は、置換基を有していてもよく、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、イソプロピルオキシ基、ブチルオキシ基、イソブチルオキシ基、tert-ブチルオキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ヘプチルオキシ基、オクチルオキシ基、2-エチルヘキシルオキシ基、ノニルオキシ基、デシルオキシ基、3,7-ジメチルオクチルオキシ基、ラウリルオキシ基、及び、これらの基における水素原子が、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、フッ素原子等で置換された基が挙げられる。

「シクロアルコキシ基」の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常3～40であり、好ましくは4～10である。

シクロアルコキシ基は、置換基を有していてもよく、例えば、シクロヘキシルオキシ基が挙げられる。

[0032] 「アリールオキシ基」の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常6～60であり、好ましくは6～48である。

アリールオキシ基は、置換基を有していてもよく、例えば、フェノキシ基、1-ナフチルオキシ基、2-ナフチルオキシ基、1-アントラセニルオキシ基、9-アントラセニルオキシ基、1-ピレニルオキシ基、及び、これらの基における水素原子が、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、フッ素原子等で置換された基が挙げられる。

[0033] 「p価の複素環基」（pは、1以上の整数を表す。）とは、複素環式化合物から、環を構成する炭素原子又はヘテロ原子に直接結合している水素原子のうちp個の水素原子を除いた残りの原子団を意味する。p価の複素環基の中でも、芳香族複素環式化合物から、環を構成する炭素原子又はヘテロ原子に直接結合している水素原子のうちp個の水素原子を除いた残りの原子団である「p価の芳香族複素環基」が好ましい。

「芳香族複素環式化合物」は、オキサジアゾール、チアジアゾール、チアゾール、オキサゾール、チオフェン、ピロール、ホスホール、フラン、ピリ

ジン、ピラジン、ピリミジン、トリアジン、ピリダジン、キノリン、イソキノリン、カルバゾール、ジベンゾホスホール等の複素環自体が芳香族性を示す化合物、及び、フェノキサジン、フェノチアジン、ジベンゾボロール、ジベンゾシロール、ベンゾピラン等の複素環自体は芳香族性を示さなくとも、複素環に芳香環が縮環されている化合物を意味する。

[0034] 1価の複素環基の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常、2~60であり、好ましくは4~20である。

1価の複素環基は、置換基を有していてもよく、例えば、チエニル基、ピロリル基、フリル基、ピリジル基、ペペリジニル基、キノリニル基、イソキノリニル基、ピリミジニル基、トリアジニル基、及び、これらの基における水素原子が、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基等で置換された基が挙げられる。

[0035] 「ハロゲン原子」とは、フッ素原子、塩素原子、臭素原子又はヨウ素原子を示す。

[0036] 「アミノ基」は、置換基を有していてもよく、置換アミノ基が好ましい。アミノ基が有する置換基としては、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基が好ましい。

置換アミノ基としては、例えば、ジアルキルアミノ基、ジシクロアルキルアミノ基及びジアリールアミノ基が挙げられる。

アミノ基としては、例えば、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ビス(4-メチルフェニル)アミノ基、ビス(4-tert-ブチルフェニル)アミノ基、ビス(3,5-ジ-tert-ブチルフェニル)アミノ基が挙げられる。

[0037] 「アルケニル基」は、直鎖及び分岐のいずれでもよい。直鎖のアルケニル基の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常2~30であり、好ましくは3~20である。分岐のアルケニル基の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常3~30であり、好ましくは4~20である。

「シクロアルケニル基」の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めない

で、通常3～30であり、好ましくは4～20である。

アルケニル基及びシクロアルケニル基は、置換基を有していてもよく、例えば、ビニル基、1-プロペニル基、2-プロペニル基、2-ブテニル基、3-ブテニル基、3-ペンテニル基、4-ペンテニル基、1-ヘキセニル基、5-ヘキセニル基、7-オクテニル基、及び、これらの基が置換基を有する基が挙げられる。

[0038] 「アルキニル基」は、直鎖及び分岐のいずれでもよい。アルキニル基の炭素原子数は、置換基の炭素原子を含めないで、通常2～20であり、好ましくは3～20である。分岐のアルキニル基の炭素原子数は、置換基の炭素原子を含めないで、通常4～30であり、好ましくは4～20である。

「シクロアルキニル基」の炭素原子数は、置換基の炭素原子を含めないで、通常4～30であり、好ましくは4～20である。

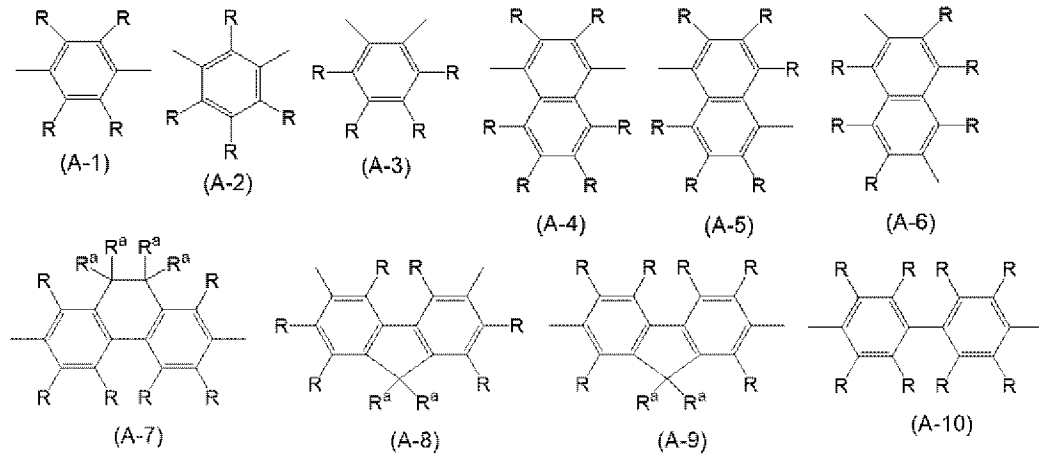
アルキニル基及びシクロアルキニル基は、置換基を有していてもよく、例えば、エチニル基、1-プロピニル基、2-プロピニル基、2-ブチニル基、3-ブチニル基、3-ペンチニル基、4-ペンチニル基、1-ヘキシニル基、5-ヘキシニル基、及び、これらの基が置換基を有する基が挙げられる。

[0039] 「アリーレン基」は、芳香族炭化水素から環を構成する炭素原子に直接結合する水素原子2個を除いた残りの原子団を意味する。アリーレン基の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常、6～60であり、好ましくは6～30であり、より好ましくは6～18である。

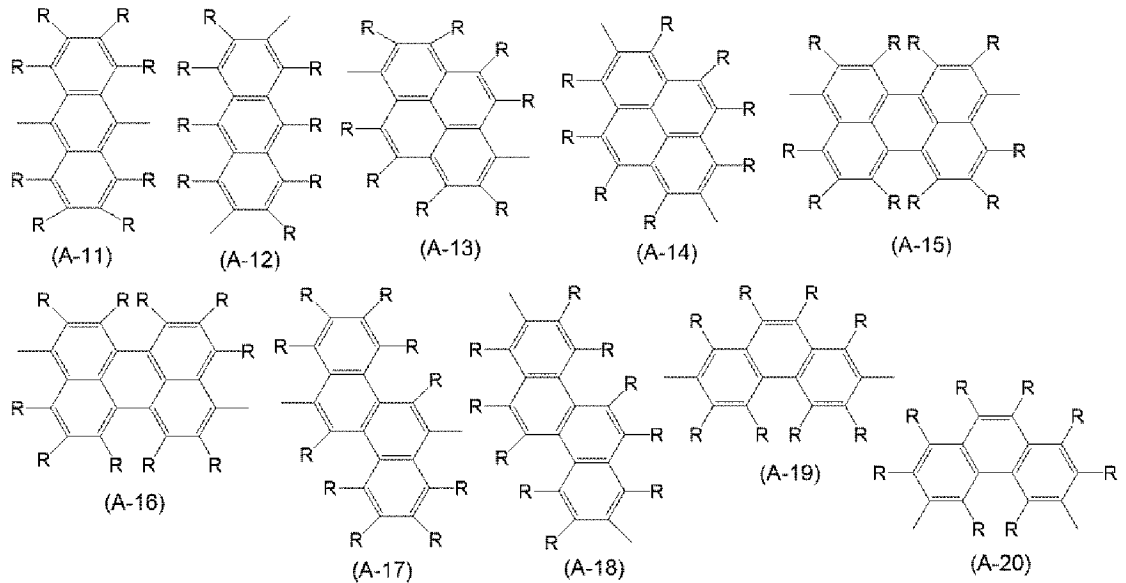
アリーレン基は、置換基を有していてもよく、例えば、フェニレン基、ナフタレンジイル基、アントラセンジイル基、フェナントレンジイル基、ジヒドロフェナントレンジイル基、ナфтаセンジイル基、フルオレンジイル基、ピレンジイル基、ペリレンジイル基、クリセンジイル基、及び、これらの基が置換基を有する基が挙げられ、好ましくは、式(A-1)～式(A-20)で表される基である。アリーレン基は、これらの基が複数結合した基を含む。

[0040]

[化18]



[0041] [化19]



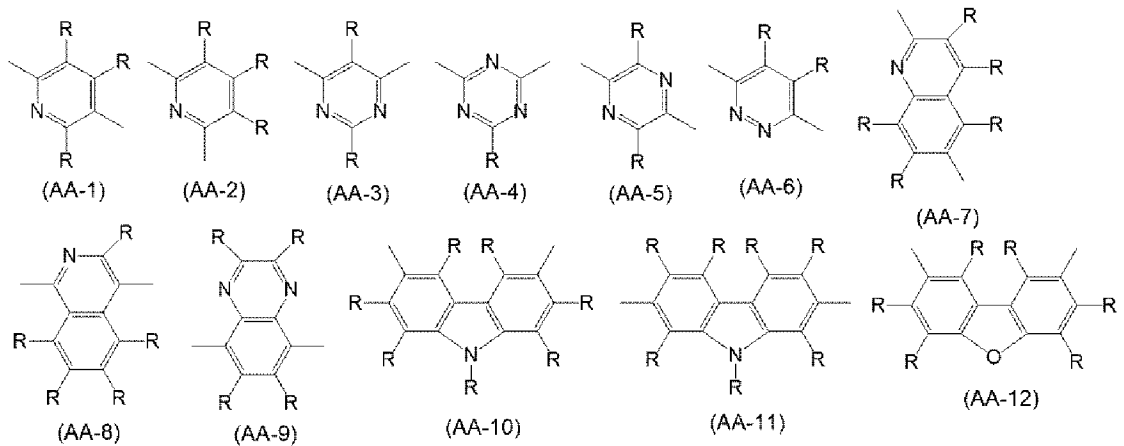
[式中、R及びR^aは、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1個の複素環基を表す。複数存在するR及びR^aは、各々、同一でも異なってもよく、R^a同士は互いに結合して、それぞれが結合する原子と共に環を形成していてもよい。]

[0042] 2個の複素環基の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常、2~60であり、好ましくは、3~20であり、より好ましくは、4~15である。

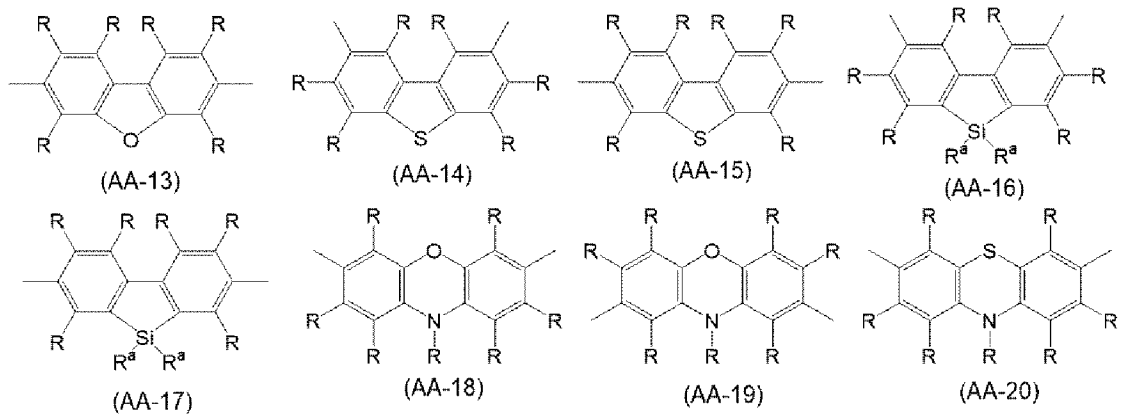
2個の複素環基は、置換基を有していてもよく、例えば、ピリジン、ジアザベンゼン、トリアジン、アザナフタレン、ジアザナフタレン、カルバゾー

ル、ジベンゾフラン、ジベンゾチオフェン、ジベンゾシロール、フェノキサジン、フェノチアジン、アクリジン、ジヒドロアクリジン、フラン、チオフェン、アゾール、ジアゾール、トリアゾールから、環を構成する炭素原子又はヘテロ原子に直接結合している水素原子のうち2個の水素原子を除いた2価の基が挙げられ、好ましくは、式(AA-1)~式(AA-34)で表される基である。2価の複素環基は、これらの基が複数結合した基を含む。

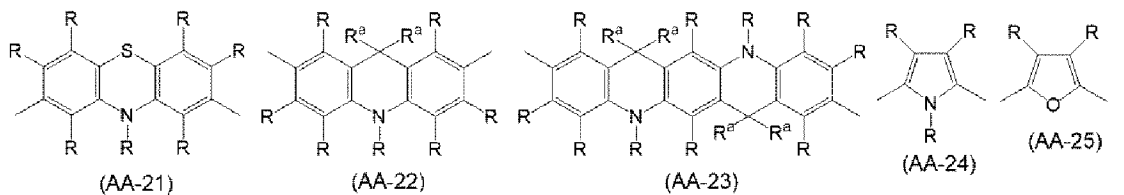
[0043] [化20]



[0044] [化21]

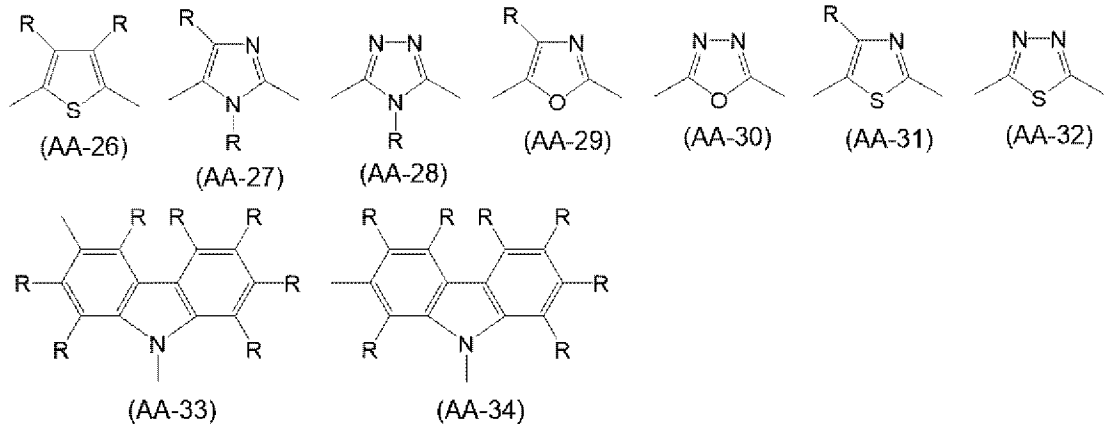


[0045] [化22]



[0046]

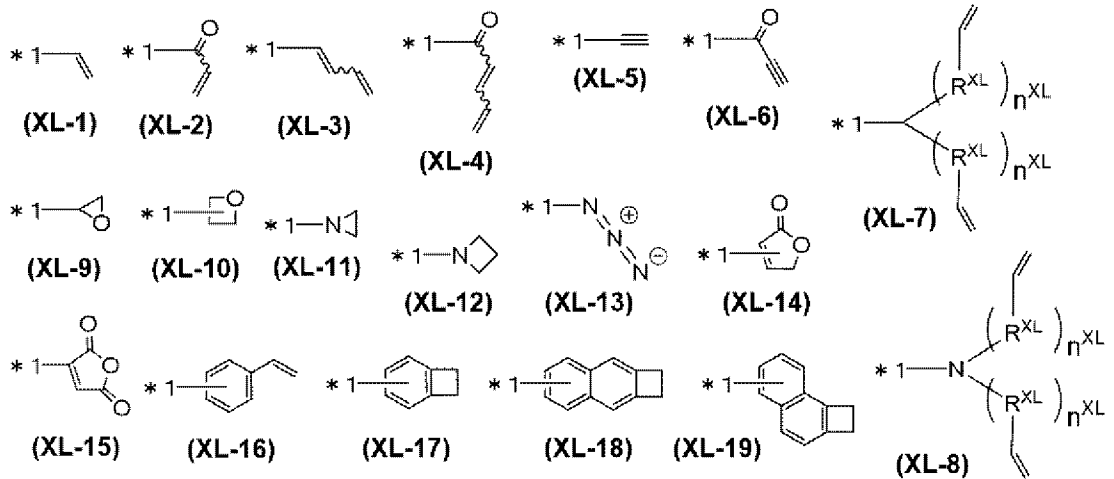
[化23]



[式中、R及びR^aは、前記と同じ意味を表す。]

[0047] 「架橋基」とは、加熱処理、紫外線照射処理、近紫外線照射処理、可視光照射処理、赤外線照射処理、ラジカル反応等に供することにより、新たな結合を生成することが可能な基であり、好ましくは、架橋基A群の式(XL-1)～式(XL-19)で表される架橋基である。

[0048] [化24]



[式中、R^{XL}は、メチレン基、酸素原子又は硫黄原子を表し、n^{XL}は、0～5の整数を表す。R^{XL}が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。n^{XL}が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。*1は結合位置を表す。これらの架橋基は置換基を有していてもよく、該置換基が複数存在する場合、互いに結合して、それぞれが結合する炭素原子とともに環を形成していてもよい。]

[0049] 「置換基」とは、ハロゲン原子、シアノ基、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、1価の複素環基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリールオキシ基、アミノ基、置換アミノ基、アルケニル基、シクロアルケニル基、アルキニル基又はシクロアルキニル基を表す。置換基は架橋基であってもよい。

[0050] <発光素子>

本発明の発光素子は、陽極と、陰極と、前記陽極及び前記陰極の間に設けられた第1の有機層及び第2の有機層と、を有する発光素子であり、前記第1の有機層が、式(1)で表される金属錯体を含有する層であり、前記第2の有機層が、式(2)で表される金属錯体、及び、式(2)で表される金属錯体から水素原子1個以上を除いた基を有する構成単位を含む高分子化合物からなる群より選ばれる少なくとも1種を含有する層である、発光素子である。

[0051] (第1の有機層)

第1の有機層は、式(1)で表される金属錯体を含有する層である。第1の有機層には、式(1)で表される金属錯体が1種単独で含有されていてもよく、2種以上含有されていてもよい。

第1の有機層における式(1)で表される金属錯体の含有量は、第1の有機層としての機能が奏される範囲であればよい。例えば、式(1)で表される金属錯体の含有量は、第1の有機層の全量基準で0.1~50質量%であってよく、1~40質量%であることが好ましく、10~30質量%であることがより好ましい。

[0052] [式(1)で表される金属錯体]

式(1)で表される金属錯体は、通常、室温(25℃)で燐光発光性を示す金属錯体であり、好ましくは、室温で三重項励起状態からの発光を示す金属錯体である。

[0053] M¹は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、イリジウム原子又は白金原子であることが好ましく、イリジウム原子であることがより好

ましい。

M¹がロジウム原子又はイリジウム原子の場合、n¹は2又は3であることが好ましく、3であることがより好ましい。

M¹がパラジウム原子又は白金原子の場合、n¹は2であることが好ましい。

E¹及びE²は、炭素原子であることが好ましい。

[0054] 環R^{1A}がジアゾール環である場合、環R^{1A}は、好ましくは、E^{11A}が窒素原子であるイミダゾール環、又は、E^{12A}が窒素原子であるイミダゾール環であり、より好ましくは、E^{11A}が窒素原子であるイミダゾール環である。

環R^{1A}がトリアゾール環である場合、環R^{1A}は、好ましくは、E^{11A}及びE^{12A}が窒素原子であるトリアゾール環、又は、E^{11A}及びE^{13A}が窒素原子であるトリアゾール環であり、より好ましくは、E^{11A}及びE^{13A}が窒素原子であるトリアゾール環である。

環R^{1A}がテトラゾール環である場合、環R^{1A}は、好ましくは、E^{11A}～E^{13A}が窒素原子であるテトラゾール環である。

環R^{1A}は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、好ましくはジアゾール環又はトリアゾール環であり、より好ましくはトリアゾール環である。

[0055] E^{11A}が窒素原子であり、且つ、R^{11A}が存在する場合、R^{11A}はアルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基であることが好ましく、アリール基又は1価の複素環基であることがより好ましく、アリール基であることが更に好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。

E^{11A}が炭素原子である場合、R^{11A}は水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基であることが好ましく、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基又はアリール基であることがより好ましく、水素原子又はアルキル基であることが更に好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0056] E^{12A}が窒素原子であり、且つ、R^{12A}が存在する場合、R^{12A}はアルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基であることが好ましく、ア

リール基又は1価の複素環基であることがより好ましく、アリール基であることが更に好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。

E^{12A} が炭素原子である場合、 R^{12A} は水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基であることが好ましく、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基又はアリール基であることがより好ましく、水素原子又はアルキル基であることが更に好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0057] E^{13A} が窒素原子であり、且つ、 R^{13A} が存在する場合、 R^{13A} はアルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基であることが好ましく、アリール基又は1価の複素環基であることがより好ましく、アリール基であることが更に好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。

E^{13A} が炭素原子である場合、 R^{13A} は水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基であることが好ましく、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基又はアリール基であることがより好ましく、水素原子又はアルキル基であることが更に好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0058] $R^{11A} \sim R^{13A}$ におけるアリール基としては、フェニル基、ナフチル基、フェナントレニル基、ジヒドロフェナントレニル基、フルオレニル基又はスピロビフルオレニル基が好ましく、フェニル基、フルオレニル基又はスピロビフルオレニル基がより好ましく、フェニル基が更に好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。

$R^{11A} \sim R^{13A}$ における1価の複素環基としては、ピリジル基、ピリミジニル基、トリアジニル基、キノリニル基、イソキノリニル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチエニル基、カルバゾリル基、アザカルバゾリル基、ジアザカルバゾリル基、フェノキサジニル基又はフェノチアジニル基が好ましく、ピリジル基、ピリミジニル基、トリアジニル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチエニル基又はカルバゾリル基がより好ましく、ピリジル基、ピリミジニル基又はトリアジニル基が更に好ましく、これらの基は置換基を有していても

よい。

R^{11A}～R^{13A}における置換アミノ基において、アミノ基が有する置換基としては、アリール基又は1価の複素環基が好ましく、アリール基がより好ましく、これらの基は更に置換基を有していてもよい。アミノ基が有する置換基におけるアリール基及び1価の複素環基の例及び好ましい範囲は、R^{11A}～R^{13A}におけるアリール基及び1価の複素環基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0059] R^{11A}～R^{13A}が有していてもよい置換基としては、好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はハロゲン原子であり、より好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基であり、更に好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基又はアリール基であり、特に好ましくは、アルキル基であり、これらの基は更に置換基を有していてもよい。

[0060] R^{11A}～R^{13A}が有していてもよい置換基が更に有していてもよい置換基としては、好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はハロゲン原子であり、より好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基であり、更に好ましくは、アルキル基又はシクロアルキル基である。これらの基は更に置換基を有していてもよいが、更に置換基を有さないことが好ましい。

[0061] R^{11A}～R^{13A}におけるアリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、好ましくは式(D-A)～式(D-C)で表される基であり、より好ましくは式(D-A)又は式(D-C)で表される基である。

[0062] [式(D-A)～式(D-C)で表される基]

m^{DA1}～m^{DA7}は、通常10以下の整数であり、好ましくは5以下の整数であり、より好ましくは2以下の整数であり、更に好ましくは0又は1である。m^{DA2}～m^{DA7}が同一の整数であることが好ましく、m^{DA1}～m^{DA7}が同一の整数であるこ

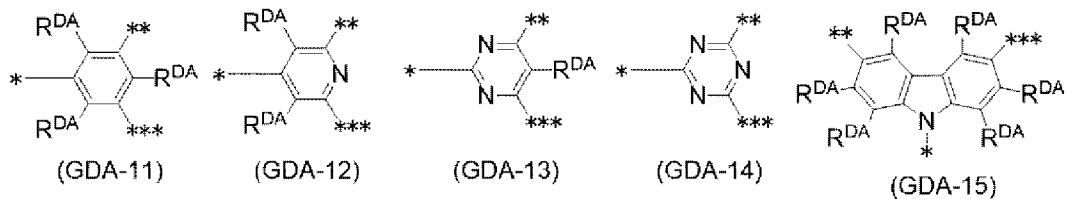
とがより好ましい。

[0063] G^{DA} は、好ましくは芳香族炭化水素基又は複素環基であり、より好ましくはベンゼン環、ピリジン環、ピリミジン環、トリアジン環又はカルbazool環から環を構成する炭素原子又は窒素原子に直接結合する水素原子3個を除いてなる基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

G^{DA} が有していてもよい置換基としては、好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基又は1価の複素環基であり、より好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基又はシクロアルコキシ基であり、更に好ましくは、アルキル基又はシクロアルキル基である。これらの基は更に置換基を有していてもよいが、更に置換基を有さないことが好ましい。

G^{DA} は、好ましくは式(GDA-11)~式(GDA-15)で表される基であり、より好ましくは式(GDA-11)~式(GDA-14)で表される基であり、更に好ましくは式(GDA-11)又は式(GDA-14)で表される基であり、特に式(GDA-11)で表される基である。

[0064] [化25]



[式中、

*は、式(D-A)における $A r^{DA1}$ 、式(D-B)における $A r^{DA1}$ 、式(D-B)における $A r^{DA2}$ 、又は、式(D-B)における $A r^{DA3}$ との結合を表す。

**は、式(D-A)における $A r^{DA2}$ 、式(D-B)における $A r^{DA2}$ 、式(D-B)における $A r^{DA4}$ 、又は、式(D-B)における $A r^{DA6}$ との結合を表す。

***は、式(D-A)における $A r^{DA3}$ 、式(D-B)における $A r^{DA3}$ 、式(D-B)における $A r^{DA5}$ 、又は、式(D-B)における $A r^{DA7}$ との結合を表す。

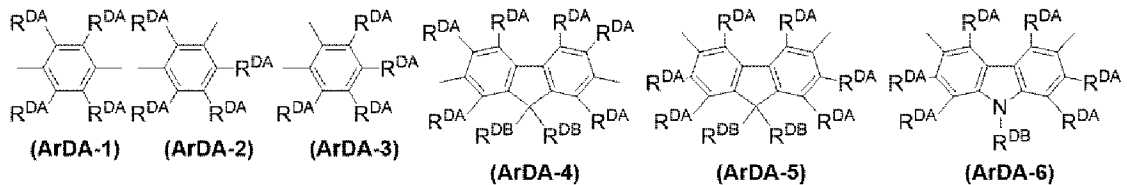
す。

R^{DA} は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基又は1価の複素環基を表し、これらの基は更に置換基を有していてもよい。 R^{DA} が複数ある場合、それらは同一でも異なってもよい。]

[0065] R^{DA} は、好ましくは水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基又はシクロアルコキシ基であり、より好ましくは水素原子、アルキル基又はシクロアルキル基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0066] $Ar^{DA1} \sim Ar^{DA7}$ は、好ましくは、フェニレン基、フルオレンジル基又はカルバゾールジイル基であり、より好ましくは式(ArDA-1)～式(ArDA-6)で表される基であり、更に好ましくは式(ArDA-1)～式(ArDA-3)で表される基であり、特に好ましくは式(ArDA-1)で表される基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0067] [化26]



[式中、

R^{DA} は前記と同じ意味を表す。

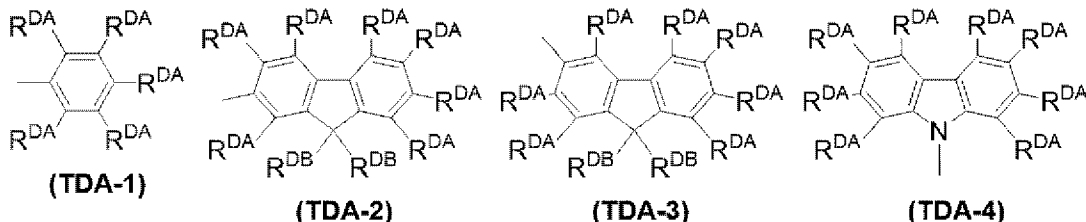
R^{DB} は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。 R^{DB} が複数ある場合、それらは同一でも異なってもよく、互いに結合して、それぞれが結合する炭素原子とともに環を形成していてもよい。]

[0068] R^{DB} は、好ましくはアルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基であり、より好ましくはアリール基又は1価の複素環基であり、更に好ましくはアリール基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0069] $Ar^{DA1} \sim Ar^{DA7}$ 、 R^{DA} 及び R^{DB} が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲は、 G^{DA} が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0070] T^{DA} は、好ましくは式(TDA-1)～式(TDA-4)で表される基であり、より好ましくは式(TDA-1)又は式(TDA-3)で表される基であり、更に好ましくは式(TDA-1)で表される基である。

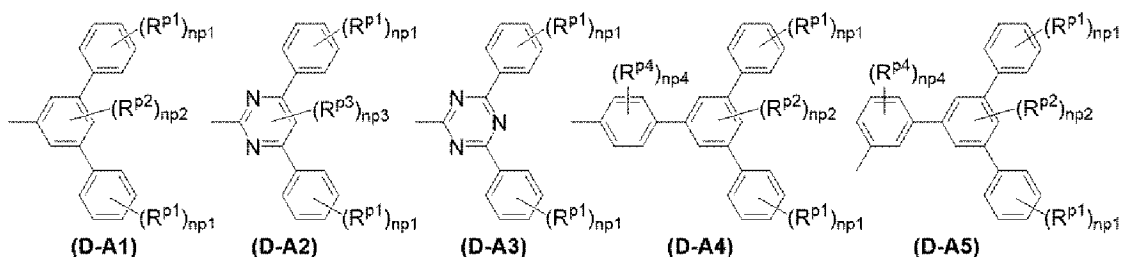
[0071] [化27]



[式中、 R^{DA} 及び R^{DB} は、前記と同じ意味を表す。]

[0072] 式(D-A)で表される基は、好ましくは式(D-A1)～式(D-A5)で表される基であり、より好ましくは式(D-A1)、式(D-A3)又は式(D-A5)で表される基であり、更に好ましくは式(D-A1)で表される基である。

[0073] [化28]



[式中、

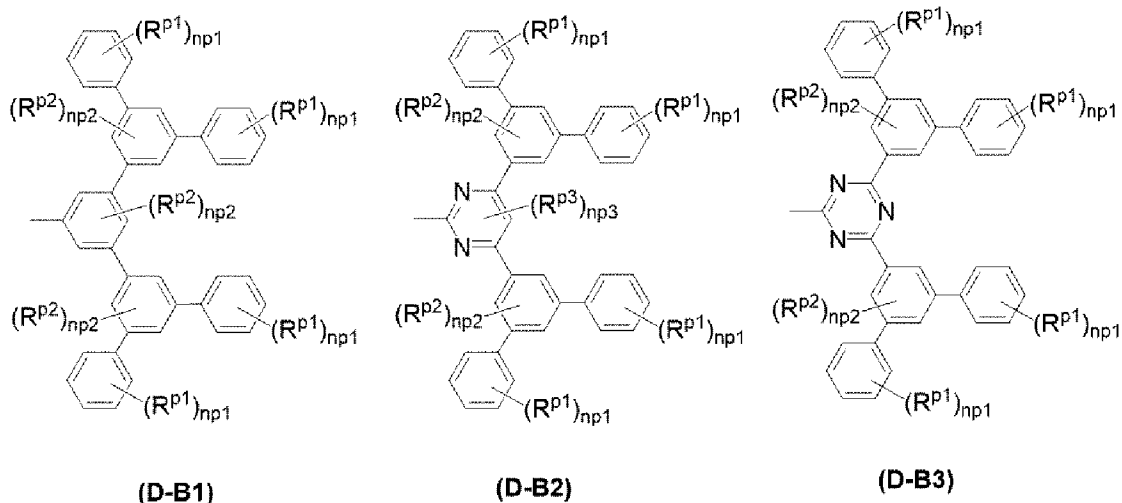
$R^{p1} \sim R^{p4}$ は、それぞれ独立に、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基又はハロゲン原子を表す。 R^{p1} 、 R^{p2} 及び R^{p4} が複数ある場合、それらはそれぞれ同一であっても異なってもよい。

n_{p1} は、0～5の整数を表し、 n_{p2} は0～3の整数を表し、 n_{p3} は0又は1を表し、 n_{p4} は0～4の整数を表す。複数ある n_{p1} は、同一でも異なってもよい。]

[0074] 式(D-B)で表される基は、好ましくは式(D-B1)～式(D-B3)で表される基であり、より好ましくは式(D-B1)で表される基である。

[0075]

[化29]



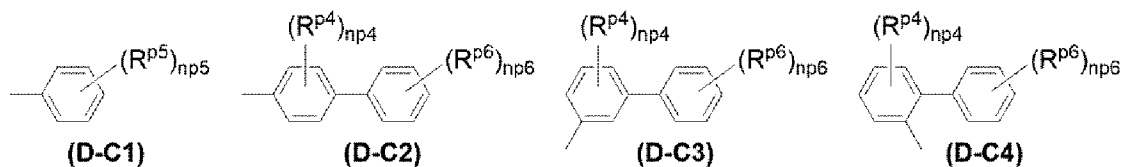
[式中、

$R^{p1} \sim R^{p3}$ は、それぞれ独立に、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基又はハロゲン原子を表す。 R^{p1} 及び R^{p2} が複数ある場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。

n_{p1} は0～5の整数を表し、 n_{p2} は0～3の整数を表し、 n_{p3} は0又は1を表す。 n_{p1} 及び n_{p2} が複数ある場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。]

[0076] 式(D-C)で表される基は、好ましくは式(D-C1)～式(D-C4)で表される基であり、より好ましくは式(D-C1)～式(D-C3)で表される基であり、更に好ましくは式(D-C1)又は式(D-C2)で表される基であり、特に好ましくは式(D-C1)で表される基である。

[0077] [化30]



[式中、

$R^{p4} \sim R^{p6}$ は、それぞれ独立に、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基又はハロゲン原子を表す。 $R^{p4} \sim R^{p6}$ が複数ある場

合、それらはそれぞれ同一であっても異なってもよい。

n_{p4} は、0～4の整数を表し、 n_{p5} は0～5の整数を表し、 n_{p6} は0～5の整数を表す。]

[0078] n_{p1} は、好ましくは0又は1である。 n_{p2} は、好ましくは0又は1であり、より好ましくは0である。 n_{p3} は好ましくは0である。 n_{p4} は、好ましくは0～2の整数である。 n_{p5} は、好ましくは1～3の整数である。 n_{p6} は、好ましくは0～2の整数である。

[0079] $R^{p1} \sim R^{p6}$ は、好ましくはアルキル基又はシクロアルキル基であり、より好ましくはメチル基、エチル基、イソプロピル基、tert-ブチル基、ヘキシル基、2-エチルヘキシル基、シクロヘキシル基又はtert-オクチル基であり、更に好ましくはメチル基、エチル基、イソプロピル基、tert-ブチル基、ヘキシル基、2-エチルヘキシル基又はtert-オクチル基である。

[0080] 環 R^{1A} において、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、 E^{11A} 及び E^{12A} の少なくとも1つが窒素原子であり、且つ、該窒素原子に結合する R^{11A} 及び R^{12A} の少なくとも1つが式 $(Ar-1A)$ で表される基であることが好ましく、 E^{11A} が窒素原子であり、且つ、該窒素原子に結合する R^{11A} が式 $(Ar-1A)$ で表される基であることがより好ましい。

[0081] 環 R^{1A} が複数存在する場合、複数存在する環 R^{1A} の少なくとも1つにおいて、 $E^{11A} \sim E^{13A}$ の少なくとも1つが窒素原子であり、且つ、該窒素原子に結合する $R^{11A} \sim R^{13A}$ の少なくとも1つが式 $(Ar-1A)$ で表される基であればよいが、式(1)で表される金属錯体の合成が容易になるので、複数存在する環 R^{1A} の少なくとも2つにおいて、 $E^{11A} \sim E^{13A}$ の少なくとも1つが窒素原子であり、且つ、該窒素原子に結合する $R^{11A} \sim R^{13A}$ の少なくとも1つが式 $(Ar-1A)$ で表される基であることが好ましく、複数存在する環 R^{1A} のすべてにおいて、 $E^{11A} \sim E^{13A}$ の少なくとも1つが窒素原子であり、且つ、該窒素原子に結合する $R^{11A} \sim R^{13A}$ の少なくとも1つが式 $(Ar-1A)$ で表される基であることがより好ましい。

[0082] 環 R²における芳香族炭化水素環の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めなくて、通常6～60であり、好ましくは6～30であり、より好ましくは6～18である。環 R²における芳香族炭化水素環としては、例えば、ベンゼン環、ナフタレン環、インデン環、フルオレン環、スピロビフルオレン環、フェナントレン環、ジヒドロフェナントレン環及びこれらの環が1個以上5個以下縮合した縮合した環が挙げられ、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、好ましくは、ベンゼン環、ナフタレン環、フルオレン環、スピロビフルオレン環、フェナントレン環又はジヒドロフェナントレン環であり、より好ましくは、ベンゼン環、フルオレン環、スピロビフルオレン環又はジヒドロフェナントレン環であり、更に好ましくは、ベンゼン環又はフルオレン環であり、特に好ましくはベンゼン環であり、これらの環は置換基を有していてもよい。

環 R²における芳香族複素環の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めなくて、通常2～60であり、好ましくは3～30であり、より好ましくは4～15である。環 R²における芳香族複素環としては、例えば、ピロール環、ジアゾール環、フラン環、チオフェン環、ピリジン環、ジアザベンゼン環及びこれらの環に芳香環が1個以上5個以下縮合した環が挙げられ、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、好ましくは、ピリジン環、ジアザベンゼン環、アザナフタレン環、ジアザナフタレン環、インドール環、ベンゾフラン環、ベンゾチオフェン環、カルバゾール環、アザカルバゾール環、ジアザカルバゾール環、ジベンゾフラン環又はジベンゾチオフェン環であり、より好ましくは、ピリジン環、ジアザベンゼン環、カルバゾール環、ジベンゾフラン環又はジベンゾチオフェン環であり、更に好ましくは、カルバゾール環、ジベンゾフラン環又はジベンゾチオフェン環であり、特に好ましくは、ジベンゾフラン環であり、これらの環は置換基を有していてもよい。環 R²が6員の芳香族複素環である場合、E²は炭素原子であることが好ましい。

[0083] 環 R²は、本発明の発光素子の外部量子効率が更に優れるので、好ましくは

、ベンゼン環、フルオレン環、スピロビフルオレン環、ジヒドロフェナントレン環、ピリジン環、ジアザベンゼン環、カルバゾール環、ジベンゾフラン環又はジベンゾチオフエン環であり、より好ましくは、ベンゼン環、フルオレン環、カルバゾール環、ジベンゾフラン環又はジベンゾチオフエン環であり、更に好ましくは、ベンゼン環又はジベンゾフラン環であり、これらの環は置換基を有していてもよい。

[0084] 環 R^2 が有していてもよい置換基としては、好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリーロキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はハロゲン原子であり、より好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基であり、更に好ましくは、アルキル基又はアリール基であり、これらの基は更に置換基を有していてもよい。

[0085] 環 R^2 が有していてもよい置換基におけるアリール基、1価の複素環基及び置換アミノ基の例及び好ましい範囲は、それぞれ、 $R^{11A} \sim R^{13A}$ におけるアリール基、1価の複素環基及び置換アミノ基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0086] 環 R^2 が有していてもよい置換基が更に有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲は、 $R^{11A} \sim R^{13A}$ が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0087] 式(1)で表される金属錯体の合成が容易になるので、 R^{11A} と R^{12A} 、 R^{12A} と R^{13A} 、及び、環 R^2 が有していてもよい置換基と R^{11A} は、それぞれ結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成しないことが好ましい。

[0088] [式(A_r-1A)で表される基]

環Aにおける芳香族炭化水素環の例及び好ましい範囲は、環 R^2 における芳香族炭化水素環の例及び好ましい範囲と同じである。環Aにおける芳香族複素環の例及び好ましい範囲は、環 R^2 における芳香族複素環の例及び好ましい範囲と同じである。

[0089] 環Aは、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、好ましくは

、ベンゼン環、フルオレン環、スピロビフルオレン環、ジヒドロフェナントレン環、ピリジン環、ジアザベンゼン環、カルバゾール環、ジベンゾフラン環又はジベンゾチオフェン環であり、より好ましくは、ベンゼン環、ピリジン環又はジアザベンゼン環であり、更に好ましくはベンゼン環であり、これらの環は置換基を有していてもよい。

[0090] 環Aが有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲は、環R²が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0091] 式(1)で表される金属錯体の合成が容易になるので、環Aが有していてもよい置換基が複数存在する場合、それらは互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成しないことが好ましい。

[0092] R²は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基であり、より好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基又はアリール基であり、更に好ましくは、アルキル基であり、これらの基は更に置換基を有していてもよい。

R²におけるアリール基、1価の複素環基及び置換アミノ基の例及び好ましい範囲は、R^{11A}~R^{13A}におけるアリール基、1価の複素環基及び置換アミノ基の例及び好ましい範囲と同じである。

R²が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲は、R^{11A}~R^{13A}が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0093] 式(A_{r-1}A)で表される基は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、好ましくは、式(A_{r-2}A)で表される基である。

[0094] E^{1A}~E^{3A}は、好ましくは、炭素原子である。

[0095] 環A¹がピリジン環である場合、E^{1A}が窒素原子であるピリジン環が好ましい。

環A¹がジアザベンゼン環である場合、E^{1A}及びE^{3A}が窒素原子であるピリミジン環が好ましい。

環A¹は、ベンゼン環が好ましい。

[0096] $R^{1A} \sim R^{3A}$ は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、好ましくは、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基であり、より好ましくは、水素原子、アルキル基又はアリール基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

R^{1A} 及び R^{3A} は、更に好ましくは、水素原子である。

R^{2A} は、更に好ましくはアルキル基又はアリール基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

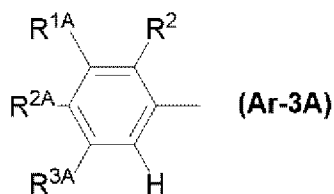
[0097] $R^{1A} \sim R^{3A}$ におけるアリール基、1価の複素環基及び置換アミノ基の例及び好ましい範囲は、それぞれ、 $R^{11A} \sim R^{13A}$ におけるアリール基、1価の複素環基及び置換アミノ基の例及び好ましい範囲と同じである。

$R^{1A} \sim R^{3A}$ が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲は、 $R^{11A} \sim R^{13A}$ が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0098] 式(1)で表される金属錯体の合成が容易になるので、 R^{1A} と R^{2A} 、及び、 R^{2A} と R^{3A} は、それぞれ結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよいが、環を形成しないことが好ましい。

[0099] 式(Ar-2A)で表される基は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、好ましくは、式(Ar-3A)で表される基である。

[0100] [化31]



[式中、 R^2 、 R^{1A} 、 R^{2A} 及び R^{3A} は、前記と同じ意味を表す。]

[0101] [アニオン性の2座配位子]

$A^1 - G^1 - A^2$ で表されるアニオン性の2座配位子としては、例えば、下記式で表される配位子が挙げられる。但し、 $A^1 - G^1 - A^2$ で表されるアニオン性の2座配位子は、添え字 n^1 でその数を定義されている配位子とは異なる。

[0102]

の複素環基であり、より好ましくはアリール基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0105] 式(1)で表される金属錯体は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、好ましくは、式(1-A1)又は式(1-A2)で表される金属錯体であり、より好ましくは式(1-A1)で表される金属錯体である。

[0106] 環 R^{2A} は、好ましくはベンゼン環、フルオレン環、カルバゾール環、ジベンゾフラン環又はジベンゾチオフエン環であり、より好ましくはベンゼン環又はジベンゾフラン環であり、これらの環は置換基を有していてもよい。

環 R^{2A} が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲は、環 R^2 が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0107] 式(1-A1)又は式(1-A2)で表される金属錯体の合成が容易になるので、環 R^{2A} が有していてもよい置換基が複数存在する場合、それらは互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成しないことが好ましい。

[0108] 式(1-A1)又は式(1-A2)で表される金属錯体の合成が容易になるので、環 R^{2A} が有していてもよい置換基と R^{11A} とは、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成しないことが好ましい。

[0109] 式(1-A1)で表される金属錯体の合成が容易になるので、式(1-A1)中、 R^{11A} が複数存在する場合、 R^{11A} の少なくとも2つは式(A r -1A)で表される基であることが好ましく、 R^{11A} のすべてが式(A r -1A)で表される基であることがより好ましい。

式(1-A1)中、 E^{12A} は炭素原子であることが好ましい。

式(1-A1)中、 E^{13A} は窒素原子であり、且つ、 R^{13A} は存在していないことが好ましい。

[0110] 式(1-A2)で表される金属錯体の合成が容易になるので、式(1-A2)中、 R^{12A} が複数存在する場合、 R^{12A} の少なくとも2つは式(A r -1A)で表される基であることが好ましく、 R^{12A} のすべてが式(A r -1A)で表される基であることがより好ましい。

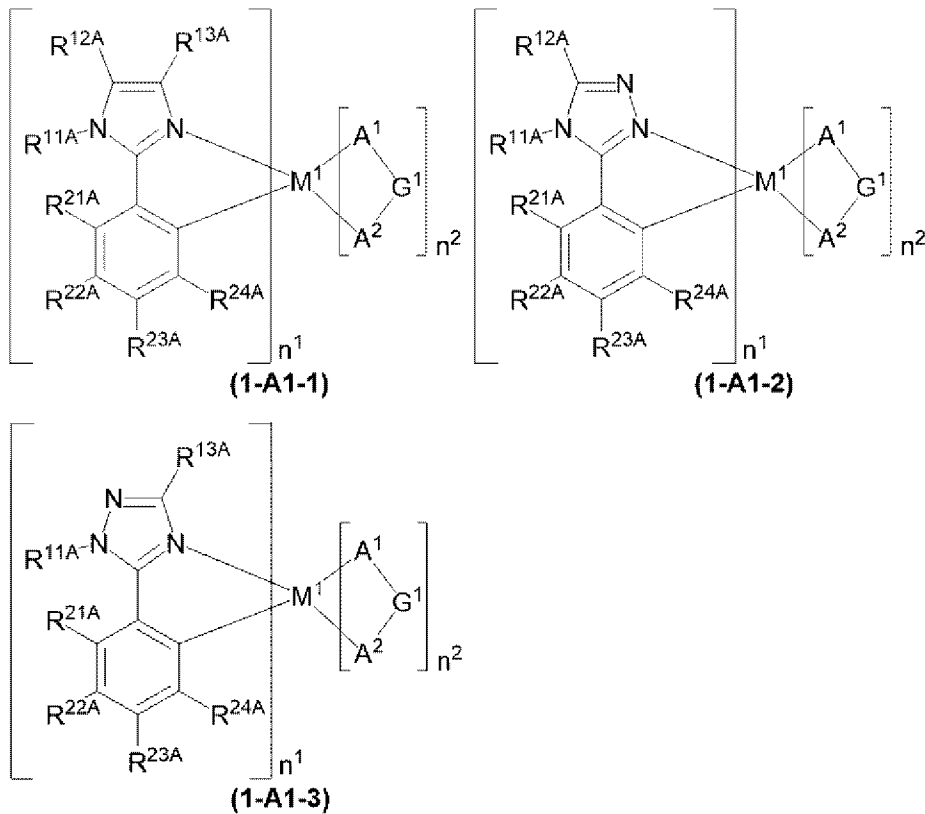
式(1-A2)中、E^{13A}は炭素原子であることが好ましい。

式(1-A2)中、E^{11A}は窒素原子であり、且つ、R^{11A}は存在していないことが好ましい。

[0111] 式(1-A1)で表される金属錯体は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、好ましくは、式(1-A1-1)～式(1-A1-3)で表される金属錯体であり、より好ましくは式(1-A1-1)又は式(1-A1-2)で表される金属錯体であり、更に好ましくは式(1-A1-2)で表される金属錯体である。

式(1-A2)で表される金属錯体は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、好ましくは、式(1-A2-1)又は式(1-A2-2)で表される金属錯体であり、より好ましくは式(1-A2-2)で表される金属錯体である。

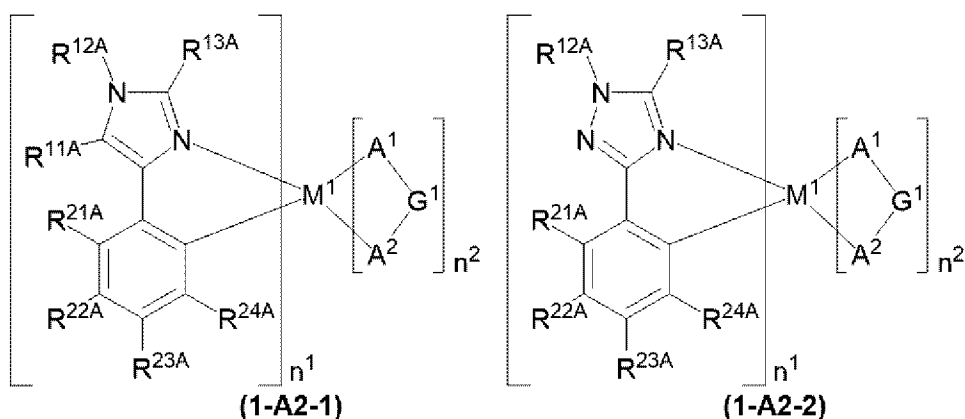
[0112] [化34]



[式中、M¹、n¹、n²、R^{11A}、R^{12A}、R^{13A}及びA¹-G¹-A²は、前記と同じ意味を表す。

R^{21A}、R^{22A}、R^{23A}及びR^{24A}は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリーロキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はハロゲン原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。R^{21A}、R^{22A}、R^{23A}及びR^{24A}が複数存在する場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。R^{21A}とR^{22A}、R^{22A}とR^{23A}、R^{23A}とR^{24A}、及び、R^{11A}とR^{21A}は、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。]

[0113] [化35]



[式中、M¹、n¹、n²、R^{11A}、R^{12A}、R^{13A}及びA¹-G¹-A²は、前記と同じ意味を表す。

R^{21A}、R^{22A}、R^{23A}及びR^{24A}は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリーロキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はハロゲン原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。R^{21A}、R^{22A}、R^{23A}及びR^{24A}が複数存在する場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。R^{21A}とR^{22A}、R^{22A}とR^{23A}、R^{23A}とR^{24A}、及び、R^{11A}とR^{21A}は、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。]

[0114] R^{21A}~R^{24A}は、好ましくは、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基であり、より好ましくは、水素原子、アルキル基又はアリール基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0115] $R^{21A} \sim R^{24A}$ におけるアリール基、1価の複素環基及び置換アミノ基の例及び好ましい範囲は、それぞれ、環 R^2 が有していてもよい置換基におけるアリール基、1価の複素環基及び置換アミノ基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0116] 式(1)で表される金属錯体の合成が容易になるので、 R^{11A} と R^{21A} とは互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成しないことが好ましい。

[0117] R^{21A} と R^{22A} 、 R^{22A} と R^{23A} 、又は、 R^{23A} と R^{24A} が、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成する場合、形成する環としては、例えば、芳香族炭化水素環又は芳香族複素環が挙げられ、好ましくは、ベンゼン環、インデン環、ピリジン環、ジアザベンゼン環、ベンゾフラン環、ベンゾチオフェン環、又は、インドール環であり、より好ましくは、インデン環、ベンゾフラン環、ベンゾチオフェン環、又は、インドール環であり、更に好ましくは、ベンゾフラン環又はベンゾチオフェン環であり、特に好ましくは、ベンゾフラン環であり、これらの環は置換基を有していてもよい。

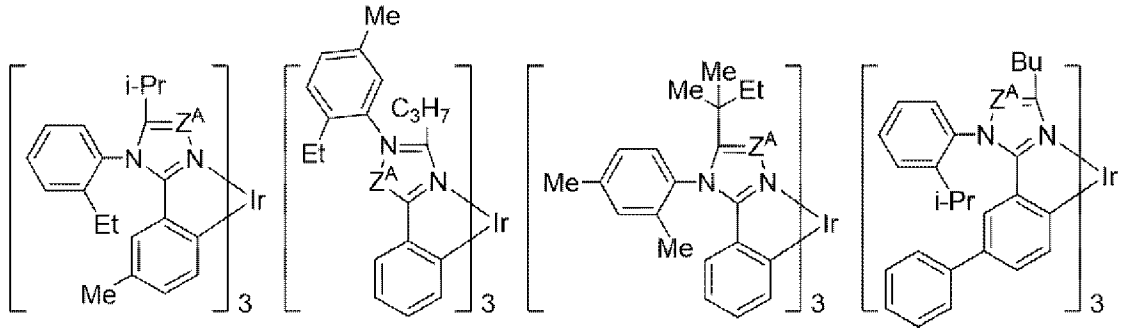
R^{21A} と R^{22A} 、 R^{22A} と R^{23A} 、又は、 R^{23A} と R^{24A} が、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成する場合、 R^{21A} と R^{22A} 、又は、 R^{22A} と R^{23A} が、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成することが好ましく、 R^{22A} と R^{23A} とが互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成することが好ましい。

[0118] $R^{21A} \sim R^{24A}$ が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲は、環 R^2 が有していてもよい置換基が更に有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲と同じである。

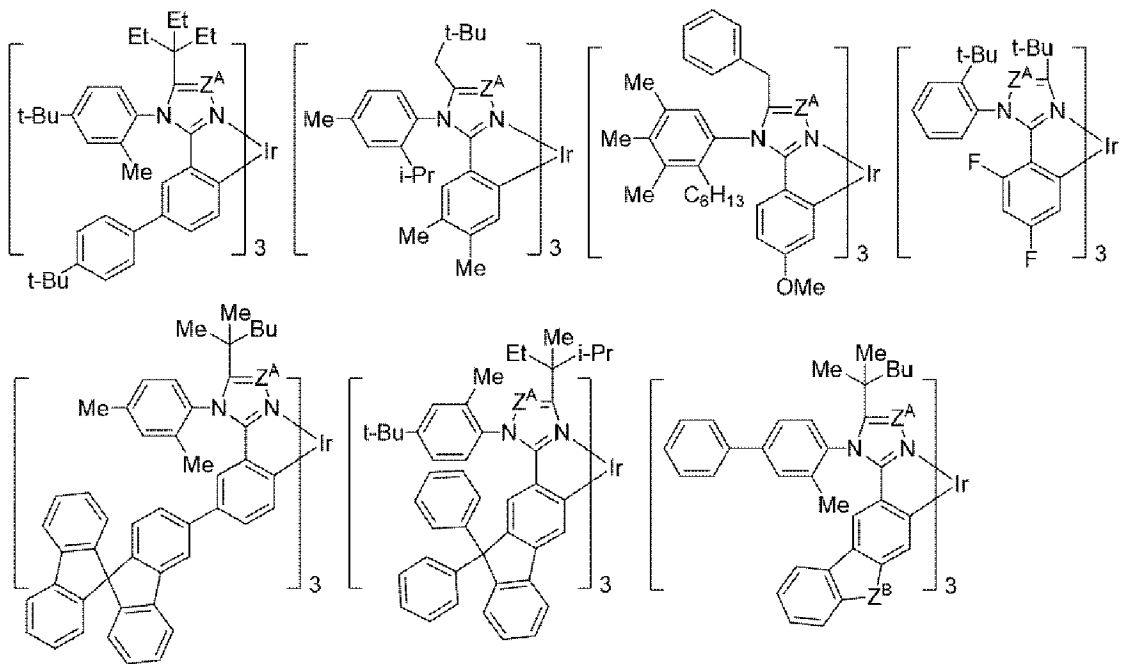
[0119] 式(1)で表される金属錯体としては、例えば、下記式で表される金属錯体が挙げられる。

[0120]

[化36]

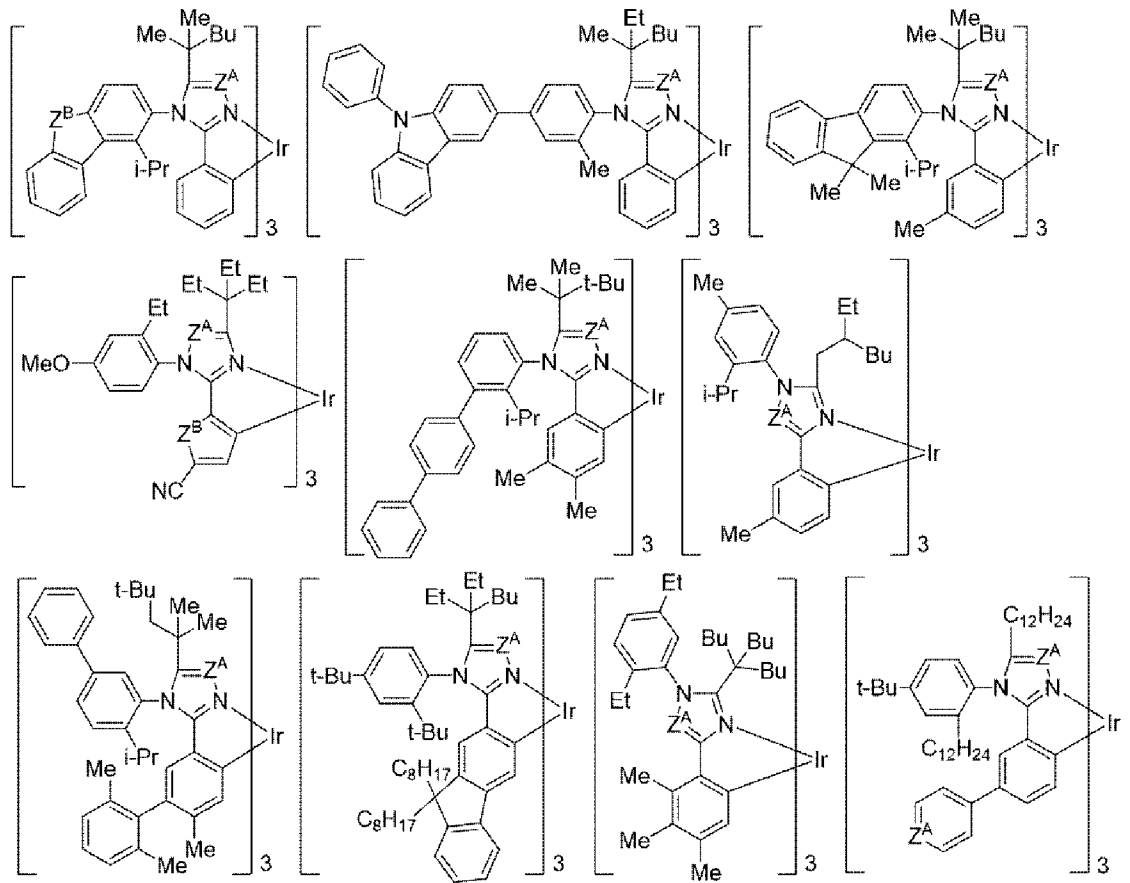


[0121] [化37]



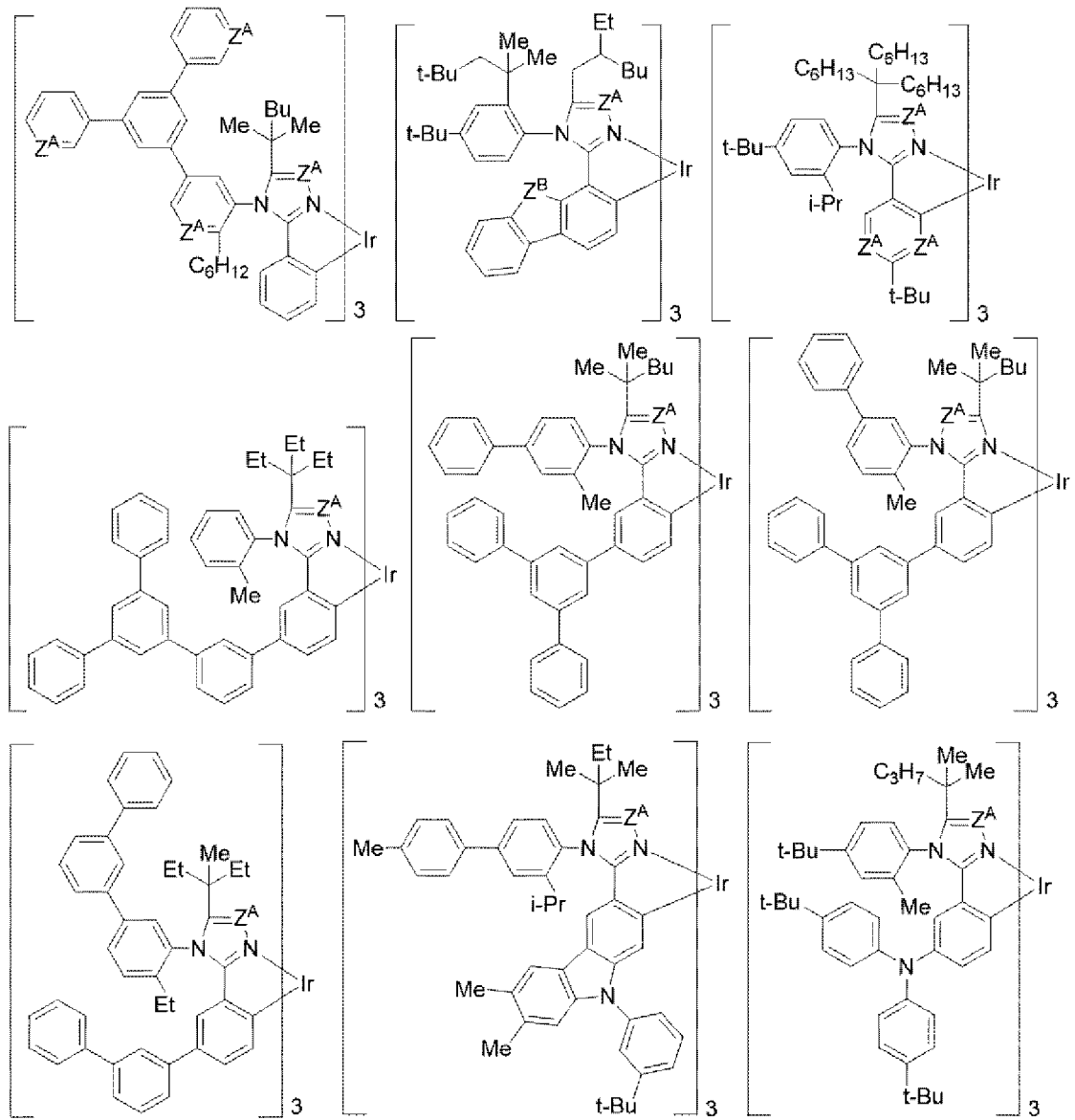
[0122]

[化38]



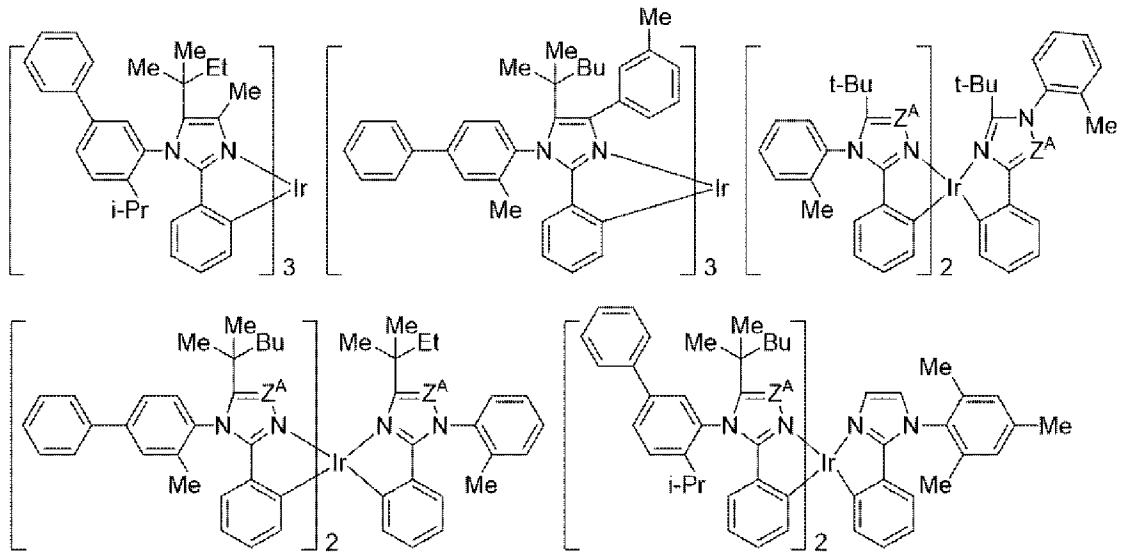
[0123]

[化39]

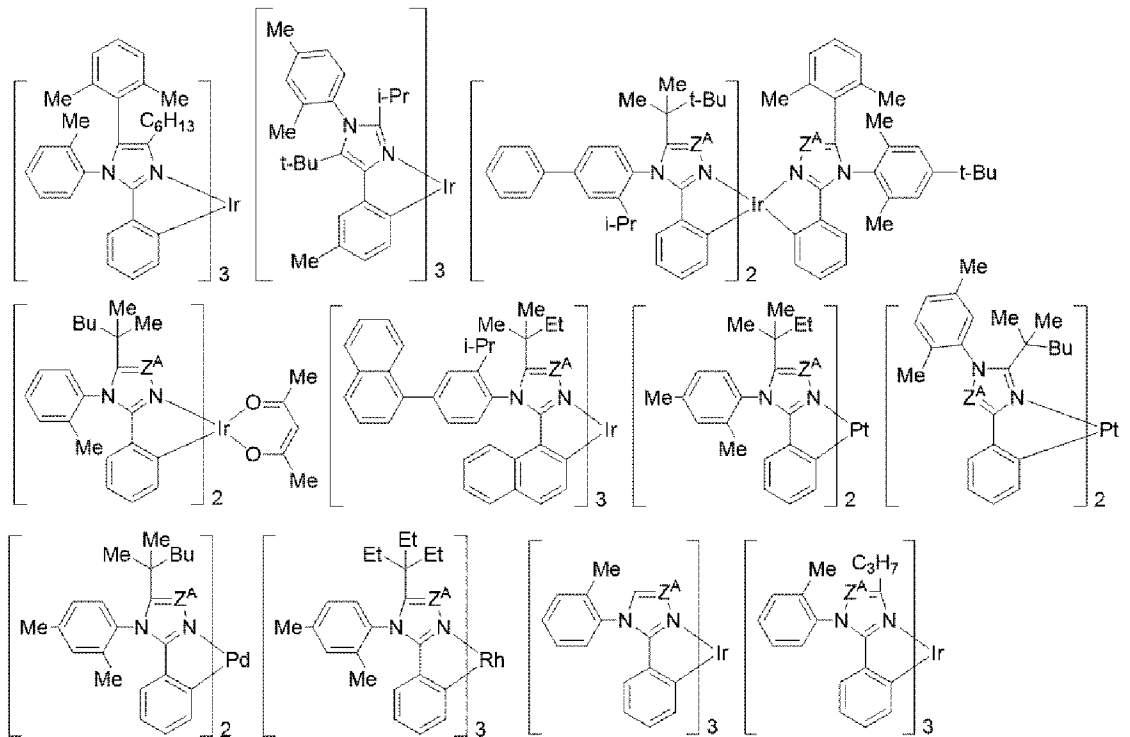


[0124]

[化40]

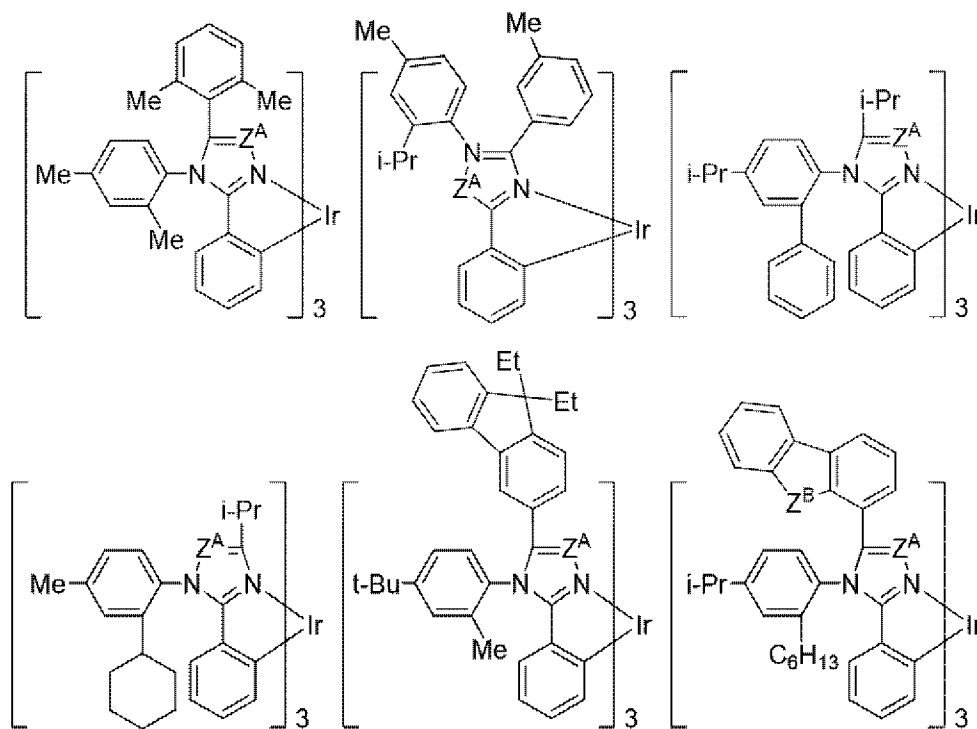


[0125] [化41]

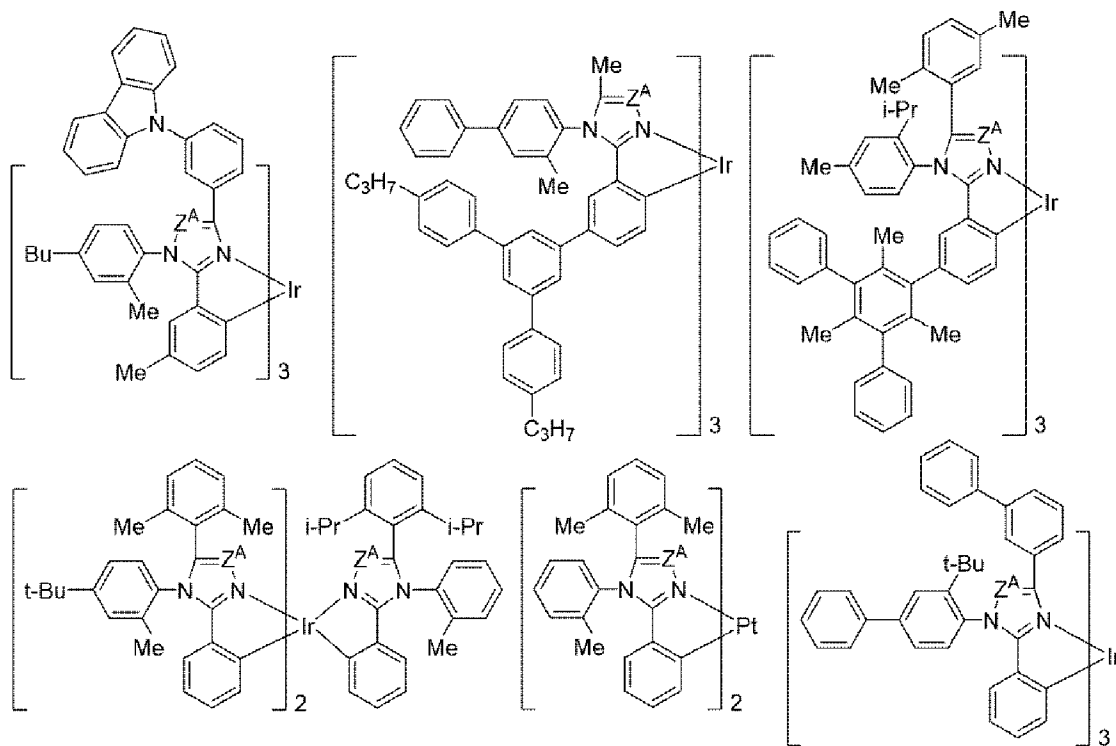


[0126]

[化42]



[0127] [化43]



[式中、

Z^A は、 $-CH=$ で表される基又は $-N=$ で表される基を表す。 Z^A が複数存

在する場合、それらは同一でも異なってもよい。

Z^B は、 $-O-$ で表される基又は $-S-$ で表される基を表す。 Z^B が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。]

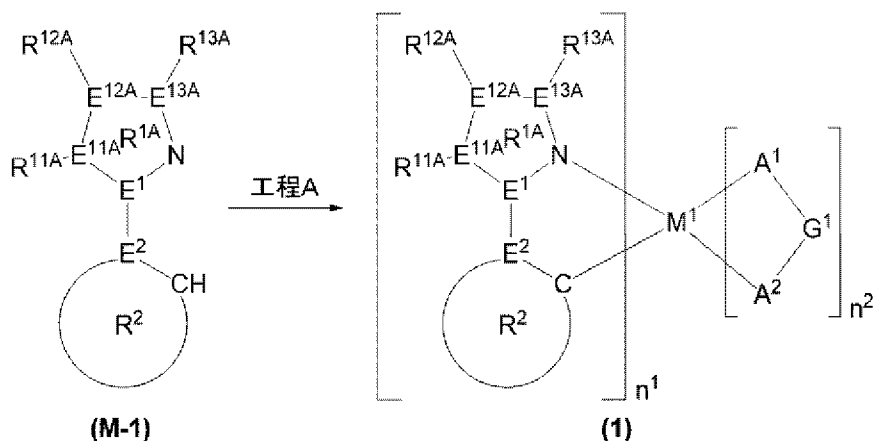
[0128] Z^A は、好ましくは $-N=$ で表される基である。 Z^B は、好ましくは $-O-$ で表される基である。

[0129] <式(1)で表される金属錯体の製造方法>

式(1)で表される金属錯体は、例えば、配位子となる化合物と金属化合物とを反応させる方法により製造することができる。必要に応じて、金属錯体の配位子の官能基変換反応を行ってもよい。

[0130] 式(1)で表される金属錯体は、例えば、式(M-1)で表される化合物と、金属化合物若しくはその水和物とを反応させる工程Aを含む方法により製造することができる。

[0131] [化44]



[式中、 M^1 、 n^1 、 n^2 、環 R^{1A} 、環 R^2 、 $R^{11A} \sim R^{13A}$ 、 E^1 、 E^2 、 $E^{11A} \sim E^{13A}$ 及び $A^1-G^1-A^2$ は、前記と同じ意味を表す。]

[0132] 工程Aにおいて、金属化合物としては、例えば、塩化イリジウム、トリス(アセチルアセトナト)イリジウム(III)、クロロ(シクロオクタジェン)イリジウム(I)ダイマー、酢酸イリジウム(III)等のイリジウム化合物；塩化白金酸カリウム等の白金化合物；塩化パラジウム、酢酸パラジウム等のパラジウム化合物；及び、塩化ロジウム等のロジウム化合物が挙げられる。金属化合物の水和物としては、例えば、塩化イリジウム・三水和物

、塩化ロジウム・三水和物が挙げられる。

[0133] 工程Aにおいて、式(M-1)で表される化合物の量は、金属化合物又はその水和物1モルに対して、通常、2~20モルである。

[0134] 工程Aは、通常、溶媒中で行う。溶媒としては、メタノール、エタノール、プロパノール、エチレングリコール、グリセリン、2-メトキシエタノール、2-エトキシエタノール等のアルコール系溶媒；ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン（THF）、ジオキサン、シクロペンチルメチルエーテル、ジグライム等のエーテル系溶媒；塩化メチレン、クロロホルム等のハロゲン系溶媒；アセトニトリル、ベンゾニトリル等のニトリル系溶媒；ヘキサン、デカリン、トルエン、キシレン、メシチレン等の炭化水素系溶媒；N，N-ジメチルホルムアミド、N，N-ジメチルアセトアミド等のアミド系溶媒；アセトン、ジメチルスルホキシド、水等が挙げられる。

[0135] 工程Aにおいて、反応時間は、通常、30分間~200時間であり、反応温度は、通常、反応系に存在する溶媒の融点から沸点の間である。

<式(1)で表される金属錯体の製造方法>で説明した反応において用いられる化合物、触媒及び溶媒は、各々、一種単独で用いても二種以上を併用してもよい。

[0136] [ホスト材料]

本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、第1の有機層は、式(1)で表される金属錯体と、正孔注入性、正孔輸送性、電子注入性及び電子輸送性から選ばれる少なくとも1つの機能を有するホスト材料とを含有する層であることが好ましい。第1の有機層は、ホスト材料の1種を単独で含有していてもよく、2種以上を含有していてもよい。

[0137] 第1の有機層が、式(1)で表される金属錯体とホスト材料とを含有する層である場合、ホスト材料の含有量は、式(1)で表される金属錯体及びホスト材料の合計を100質量部とした場合、通常、1~99質量部であり、好ましくは10~90質量部であり、より好ましくは30~85質量部であり、更に好ましくは50~80質量部である。

- [0138] ホスト材料の有する最低励起三重項状態 (T_1) は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、式 (1) で表される金属錯体の有する最低励起三重項状態 (T_1) より高いエネルギー準位であることが好ましい。
- [0139] ホスト材料としては、本発明の発光素子を湿式法で作製できるので、式 (1) で表される金属錯体を溶解することが可能な溶媒に対して溶解性を示すものが好ましい。
- [0140] ホスト材料は、低分子化合物 (低分子ホスト) と高分子化合物 (高分子ホスト) とに分類され、第 1 の有機層はいずれのホスト材料を含有していてもよい。第 1 の有機層に含有されていてもよいホスト材料としては、低分子化合物が好ましい。
- [0141] [低分子ホスト]
低分子ホストは、好ましくは、式 (H-1) で表される化合物である。
- [0142] $A r^{H1}$ 及び $A r^{H2}$ は、フェニル基、フルオレニル基、スピロビフルオレニル基、ピリジル基、ピリミジニル基、トリアジニル基、キノリニル基、イソキノリニル基、チエニル基、ベンゾチエニル基、ジベンゾチエニル基、フリル基、ベンゾフリル基、ジベンゾフリル基、ピロリル基、インドリル基、アザインドリル基、カルバゾリル基、アザカルバゾリル基、ジアザカルバゾリル基、フェノキサジニル基又はフェノチアジニル基であることが好ましく、フェニル基、フルオレニル基、スピロビフルオレニル基、ピリジル基、ピリミジニル基、トリアジニル基、ジベンゾチエニル基、ジベンゾフリル基、カルバゾリル基又はアザカルバゾリル基であることがより好ましく、フルオレニル基、スピロビフルオレニル基、ジベンゾチエニル基、ジベンゾフリル基又はカルバゾリル基であることが更に好ましく、式 (TDA-3) で表される基であることが特に好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。
- [0143] $A r^{H1}$ 及び $A r^{H2}$ が有していてもよい置換基としては、ハロゲン原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基又は 1 価の複素環基が好ましく、アルキル基、シクロアルコキシ基、アルコキシ基又はシクロアルコキシ基がより好ましく、アルキル基又はシクロア

ルコキシ基が更に好ましく、これらの基は更に置換基を有していてもよい。

[0144] n^{H1} は、好ましくは1である。 n^{H2} は、好ましくは0である。

n^{H3} は、通常、0以上10以下の整数であり、好ましくは0以上5以下の整数であり、更に好ましくは1以上3以下の整数であり、特に好ましくは1である。

n^{H11} は、好ましくは1以上5以下の整数であり、より好ましくは1以上3以下の整数であり、更に好ましくは1である。

[0145] R^{H11} は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基であることが好ましく、水素原子、アルキル基又はシクロアルキル基であることがより好ましく、水素原子又はアルキル基であることが更に好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0146] L^{H1} は、アリーレン基又は2価の複素環基であることが好ましく、これらの基は更に置換基を有していてもよい。

L^{H1} は、式(A-1)～式(A-3)、式(A-8)～式(A-10)、式(AA-1)～式(AA-6)、式(AA-10)～式(AA-21)又は式(AA-24)～式(AA-34)で表される基であることが好ましく、式(A-1)、式(A-2)、式(A-8)、式(A-9)、式(AA-1)～式(AA-4)、式(AA-10)～式(AA-15)、式(AA-33)又は式(AA-34)で表される基であることがより好ましく、式(A-1)、式(A-2)、式(A-8)、式(AA-2)、式(AA-4)、式(AA-10)、式(AA-12)、式(AA-14)又は(AA-33)で表される基であることが更に好ましく、式(A-8)、式(AA-10)、式(AA-12)又は式(AA-14)で表される基であることが特に好ましく、式(AA-14)で表される基であることがとりわけ好ましい。

[0147] L^{H1} が有していてもよい置換基としては、ハロゲン原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基又は1価の複素環基が好ましく、アルキル基、アルコキシ基、アリール基又は1価の複素環基がより好ましく、アルキル基、アリール基又は1価の複素環基が更に

好ましく、1価の複素環基が特に好ましく、これらの基は更に置換基を有していてもよい。

[0148] L^{H21} は、単結合又はアリーレン基であることが好ましく、単結合であることがより好ましく、このアリーレン基は置換基を有していてもよい。

L^{H21} で表されるアリーレン基又は2価の複素環基の定義及び例は、 L^{H1} で表されるアリーレン基又は2価の複素環基の定義及び例と同様である。

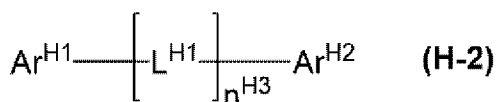
[0149] R^{H21} は、アリール基又は1価の複素環基であることが好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。

R^{H21} で表されるアリール基及び1価の複素環基の定義及び例は、 $A r^{H1}$ 及び $A r^{H2}$ で表されるアリール基及び1価の複素環基の定義及び例と同様である。

R^{H21} が有していてもよい置換基の定義及び例は、 $A r^{H1}$ 及び $A r^{H2}$ が有していてもよい置換基の定義及び例と同様である。

[0150] 式(H-1)で表される化合物は、式(H-2)で表される化合物であることが好ましい。

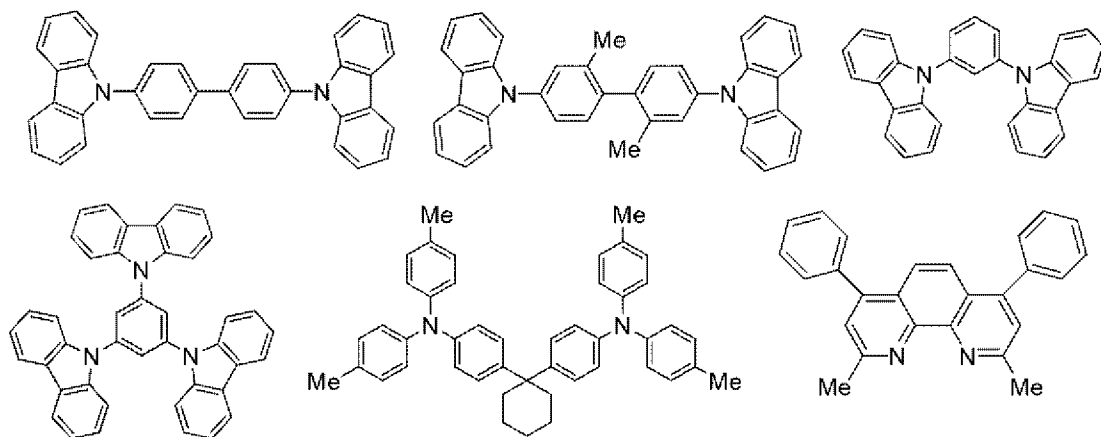
[0151] [化45]



[式中、 $A r^{H1}$ 、 $A r^{H2}$ 、 n^{H3} 及び L^{H1} は、前記と同じ意味を表す。]

[0152] 式(H-1)で表される化合物としては、下記式で表される化合物及び後述の化合物HM-1が例示される。

[0153] [化46]



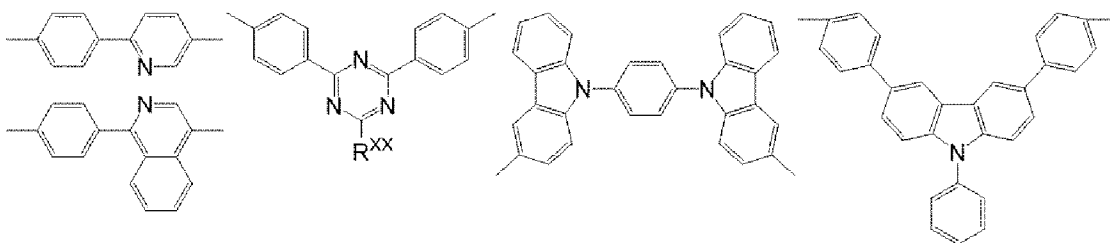
[0158] A^{rY1}で表されるアリーレン基は、より好ましくは、式(A-1)、式(A-2)、式(A-6)-式(A-10)、式(A-19)又は式(A-20)で表される基であり、更に好ましくは、式(A-1)、式(A-2)、式(A-7)、式(A-9)又は式(A-19)で表される基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0159] A^{rY1}で表される2価の複素環基は、より好ましくは、式(AA-1)-式(AA-4)、式(AA-10)-式(AA-15)、式(AA-18)-式(AA-21)、式(AA-33)又は式(AA-34)で表される基であり、更に好ましくは、式(AA-4)、式(AA-10)、式(AA-12)、式(AA-14)又は式(AA-33)で表される基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0160] A^{rY1}で表される少なくとも1種のアリーレン基と少なくとも1種の2価の複素環基とが直接結合した2価の基における、アリーレン基及び2価の複素環基のより好ましい範囲、更に好ましい範囲は、それぞれ、前述のA^{rY1}で表されるアリーレン基及び2価の複素環基のより好ましい範囲、更に好ましい範囲と同様である。

[0161] 「少なくとも1種のアリーレン基と少なくとも1種の2価の複素環基とが直接結合した2価の基」としては、例えば、下記式で表される基が挙げられ、これらは置換基を有していてもよい。

[0162] [化49]



[式中、R^{XX}は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリーール基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。]

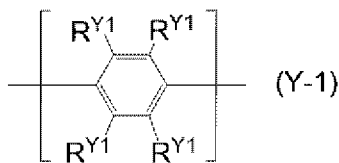
[0163] R^{XX}は、好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基又はアリーール基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0164] A^{rY1}で表される基が有してもよい置換基は、好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基又はアリーール基であり、これらの基は更に置換基を有してい

てもよい。

[0165] 式(Y)で表される構成単位としては、例えば、式(Y-1)-式(Y-10)で表される構成単位が挙げられ、本発明の発光素子の外部量子効率の観点からは、好ましくは式(Y-1)-式(Y-3)で表される構成単位であり、本発明の発光素子の電子輸送性の観点からは、好ましくは式(Y-4)-式(Y-7)で表される構成単位であり、本発明の発光素子の正孔輸送性の観点からは、好ましくは式(Y-8)-式(Y-10)で表される構成単位である。

[0166] [化50]

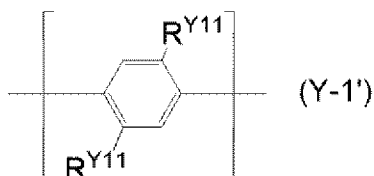


[式中、 R^{Y1} は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。複数存在する R^{Y1} は、同一でも異なってもよく、隣接する R^{Y1} 同士は互いに結合して、それぞれが結合する炭素原子と共に環を形成していてもよい。]

[0167] R^{Y1} は、好ましくは、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基又はアリール基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0168] 式(Y-1)で表される構成単位は、好ましくは、式(Y-1')で表される構成単位である。

[0169] [化51]

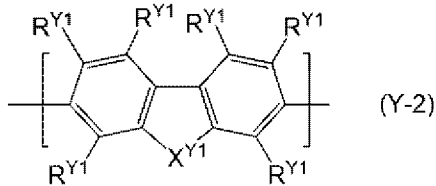


[式中、 R^{Y11} は、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。複数存在する R^{Y11} は、同一でも異なってもよい。]

[0170] R^{Y11} は、好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基又はアリール基であり

、より好ましくは、アルキル基又はシクロアルキル基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0171] [化52]



[式中、

R^{Y1} は、前記と同じ意味を表す。

X^{Y1} は、 $-C(R^{Y2})_2-$ 、 $-C(R^{Y2})=C(R^{Y2})-$ 又は $-C(R^{Y2})_2-C(R^{Y2})_2-$ で表される基を表す。 R^{Y2} は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリアル基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。複数存在する R^{Y2} は、同一でも異なってもよく、 R^{Y2} 同士は互いに結合して、それぞれが結合する炭素原子と共に環を形成していてもよい。]

[0172] R^{Y2} は、好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基、アリアル基又は1価の複素環基であり、より好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基又はアリアル基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

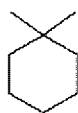
[0173] X^{Y1} において、 $-C(R^{Y2})_2-$ で表される基中の2個の R^{Y2} の組み合わせは、好ましくは両方がアルキル基もしくはシクロアルキル基、両方がアリアル基、両方が1価の複素環基、又は、一方がアルキル基もしくはシクロアルキル基で他方がアリアル基若しくは1価の複素環基であり、より好ましくは一方がアルキル基もしくはシクロアルキル基で他方がアリアル基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。2個存在する R^{Y2} は互いに結合して、それぞれが結合する原子と共に環を形成していてもよく、 R^{Y2} が環を形成する場合、 $-C(R^{Y2})_2-$ で表される基としては、好ましくは式(Y-A1)-式(Y-A5)で表される基であり、より好ましくは式(Y-A4)で表される基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0174]

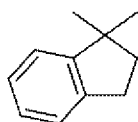
[化53]



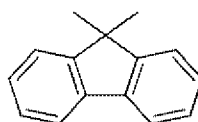
(Y-A1)



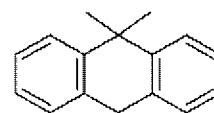
(Y-A2)



(Y-A3)



(Y-A4)

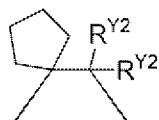


(Y-A5)

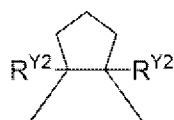
[0175] X^{Y1} において、 $-C(R^{Y2})=C(R^{Y2})-$ で表される基中の2個の R^{Y2} の組み合わせは、好ましくは両方がアルキル基もしくはシクロアルキル基、又は、一方がアルキル基もしくはシクロアルキル基で他方がアリール基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0176] X^{Y1} において、 $-C(R^{Y2})_2-C(R^{Y2})_2-$ で表される基中の4個の R^{Y2} は、好ましくは置換基を有していてもよいアルキル基又はシクロアルキル基である。複数ある R^{Y2} は互いに結合して、それぞれが結合する原子と共に環を形成していてもよく、 R^{Y2} が環を形成する場合、 $-C(R^{Y2})_2-C(R^{Y2})_2-$ で表される基は、好ましくは式(Y-B1)-(Y-B5)で表される基であり、より好ましくは式(Y-B3)で表される基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0177] [化54]



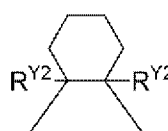
(Y-B1)



(Y-B2)



(Y-B3)



(Y-B4)

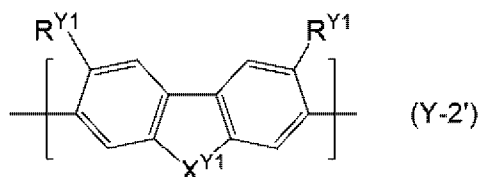


(Y-B5)

[式中、 R^{Y2} は前記と同じ意味を表す。]

[0178] 式(Y-2)で表される構成単位は、式(Y-2')で表される構成単位であることが好ましい。

[0179] [化55]

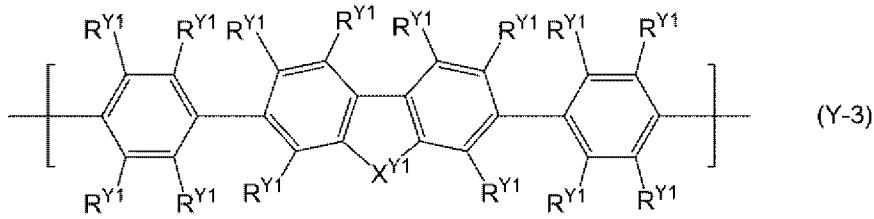


(Y-2')

[式中、 R^{Y1} 及び X^{Y1} は前記と同じ意味を表す。]

[0180]

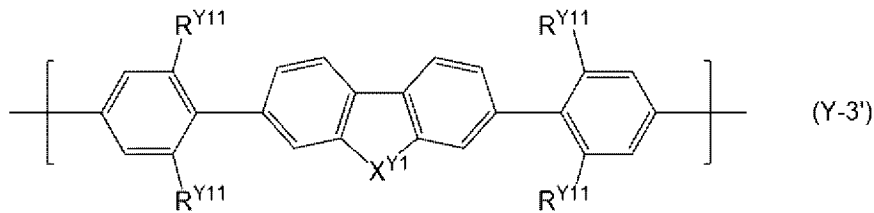
[化56]



[式中、R^{Y1}及びX^{Y1}は前記と同じ意味を表す。]

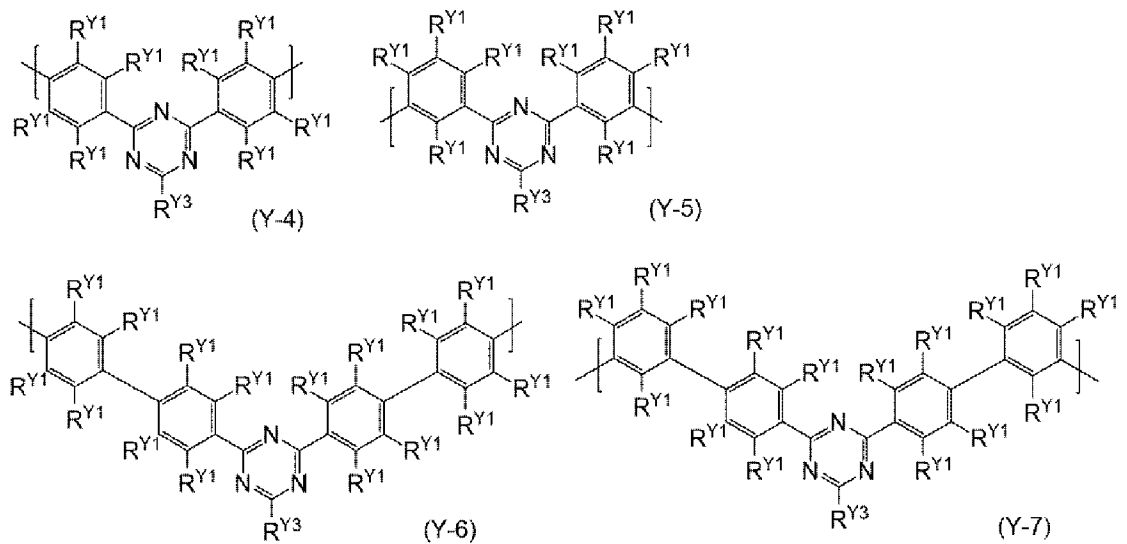
[0181] 式(Y-3)で表される構成単位は、式(Y-3')で表される構成単位であることが好ましい。

[0182] [化57]



[式中、R^{Y11}及びX^{Y1}は前記と同じ意味を表す。]

[0183] [化58]



[式中、

R^{Y1}は、前記と同じ意味を表す。

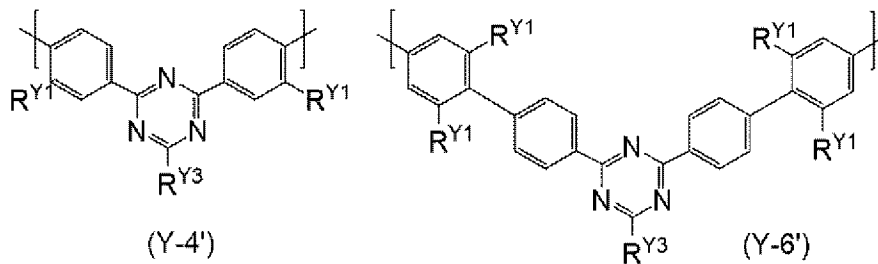
R^{Y3}は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基

を有していてもよい。]

[0184] R^{Y3}は、好ましくはアルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基又は1価の複素環基であり、より好ましくはアリール基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

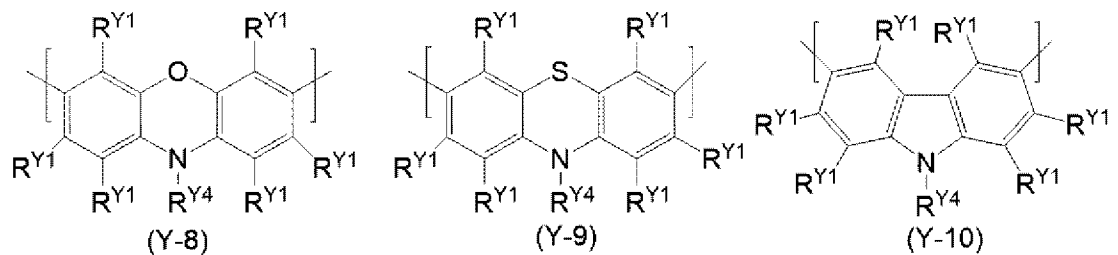
[0185] 式(Y-4)で表される構成単位は、式(Y-4')で表される構成単位であることが好ましく、式(Y-6)で表される構成単位は、式(Y-6')で表される構成単位であることが好ましい。

[0186] [化59]



[式中、R^{Y1}及びR^{Y3}は前記と同じ意味を表す。]

[0187] [化60]



[式中、

R^{Y1}は、前記を同じ意味を表す。

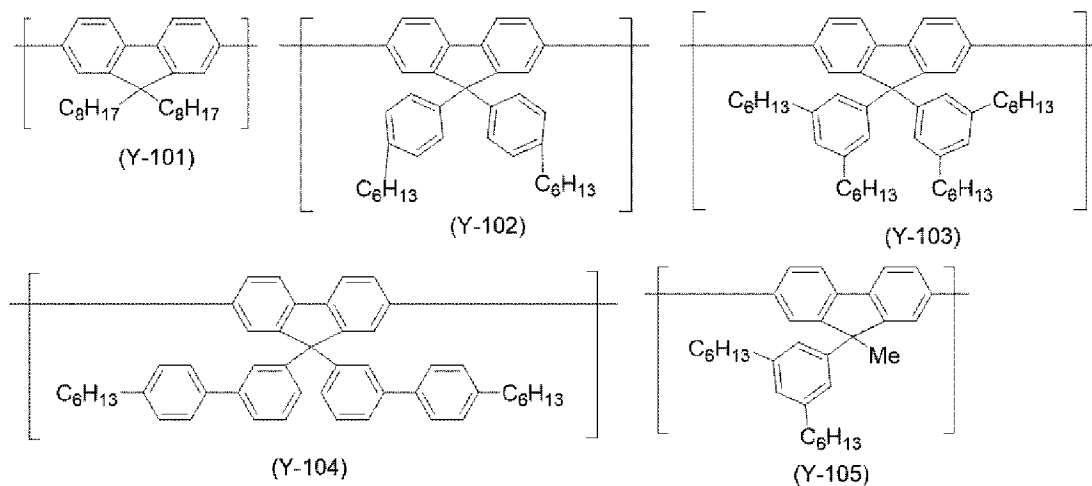
R^{Y4}は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。]

[0188] R^{Y4}は、好ましくはアルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基又は1価の複素環基であり、より好ましくはアリール基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

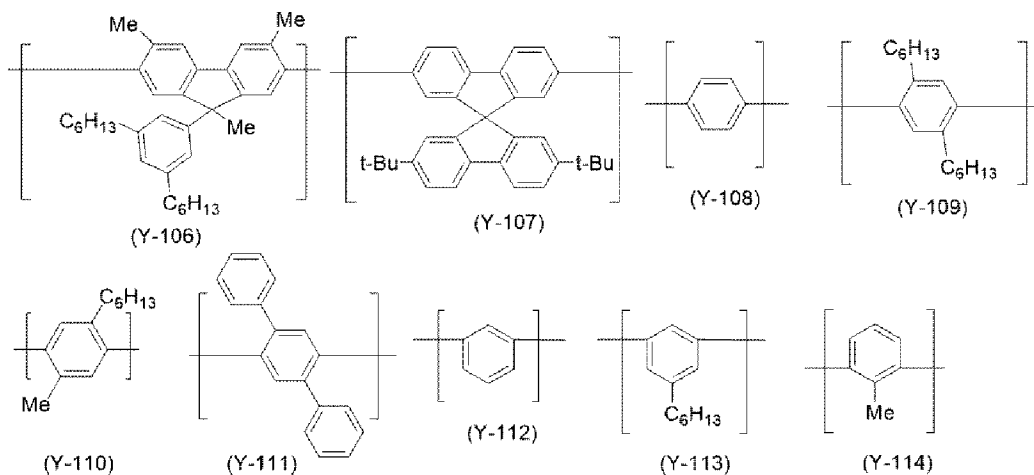
[0189] 式(Y)で表される構成単位としては、例えば、式(Y-101)-式(Y-121)で表さ

れるアリーレン基からなる構成単位、式(Y-201)-式(Y-206)で表される2価の複素環基からなる構成単位、式(Y-300)-式(Y-304)で表される少なくとも1種のアリーレン基と少なくとも1種の2価の複素環基とが直接結合した2価の基からなる構成単位が挙げられる。

[0190] [化61]

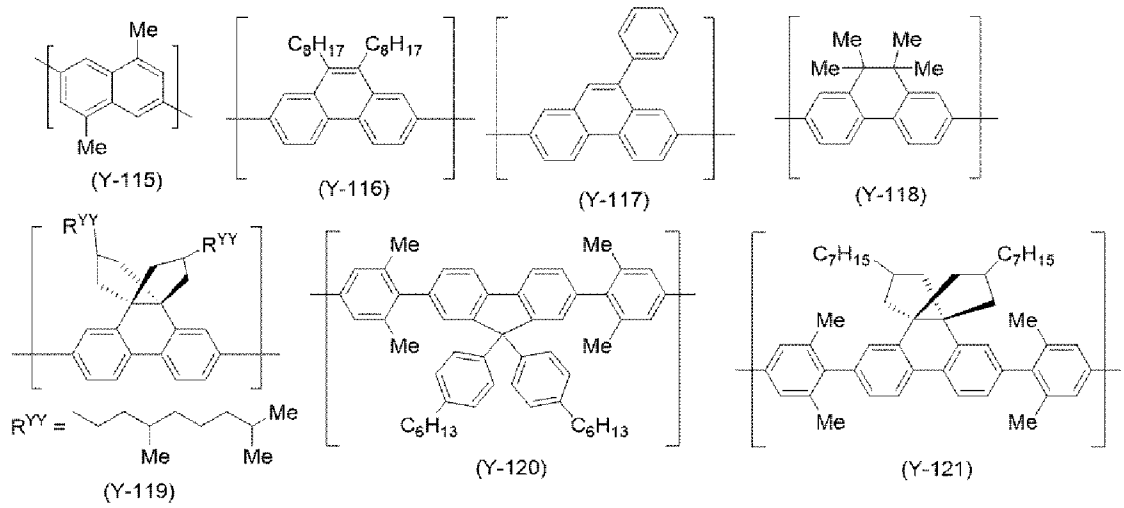


[0191] [化62]

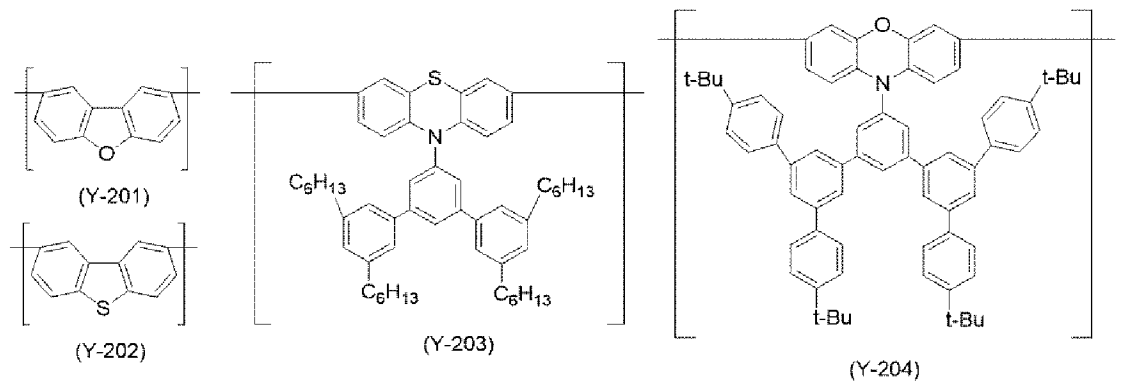


[0192]

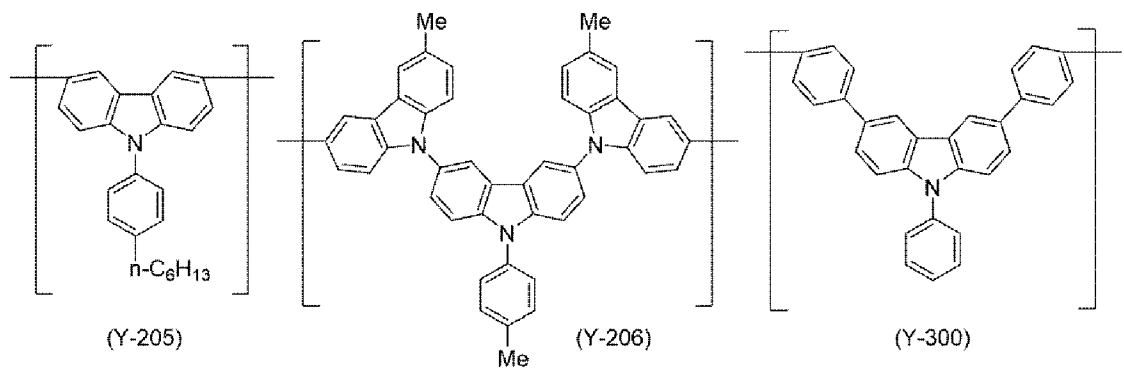
[化63]



[0193] [化64]

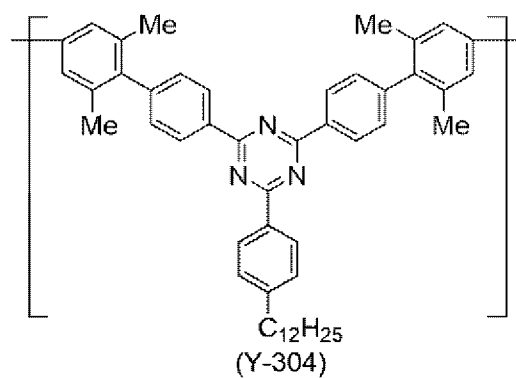
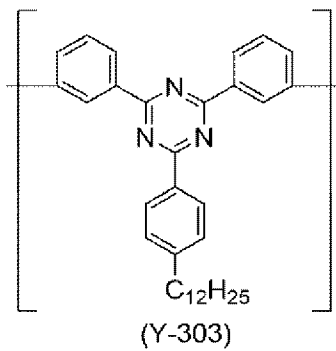
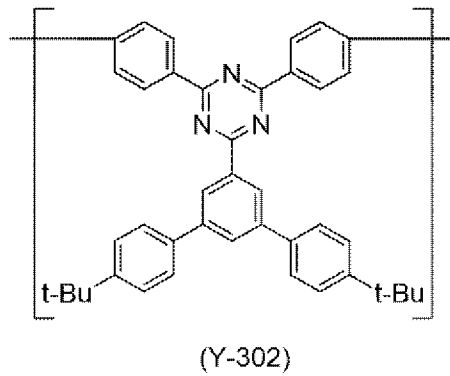
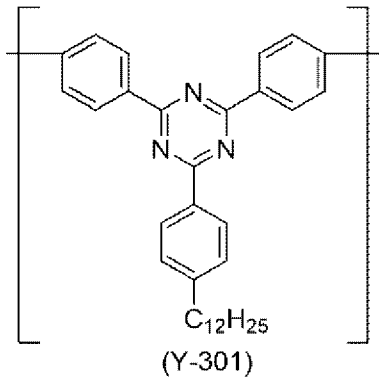


[0194] [化65]



[0195]

[化66]



[0196] 式(Y)で表される構成単位であって、 Ar^{Y1} がアリーレン基である構成単位は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、高分子ホストに含まれる構成単位の合計量に対して、好ましくは0.5~90モル%であり、より好ましくは30~80モル%である。

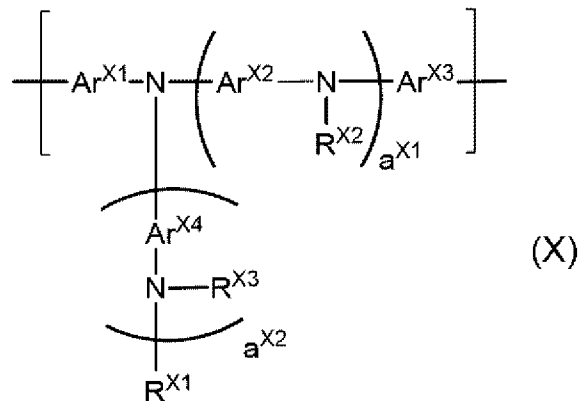
[0197] 式(Y)で表される構成単位であって、 Ar^{Y1} が2価の複素環基、又は、少なくとも1種のアリーレン基と少なくとも1種の2価の複素環基とが直接結合した2価の基である構成単位は、本発明の発光素子の電荷輸送性が優れるので、高分子ホストに含まれる構成単位の合計量に対して、好ましくは0.5~40モル%であり、より好ましくは3~30モル%である。

[0198] 式(Y)で表される構成単位は、高分子ホスト中に、1種のみ含まれていてもよく、2種以上含まれていてもよい。

[0199] 高分子ホストは、正孔輸送性が優れるので、更に、下記式(X)で表される構成単位を含むことが好ましい。

[0200]

[化67]



[式中、

a^{X1} 及び a^{X2} は、それぞれ独立に、0以上の整数を表す。

Ar^{X1} 及び Ar^{X3} は、それぞれ独立に、アリーレン基又は2価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。

Ar^{X2} 及び Ar^{X4} は、それぞれ独立に、アリーレン基、2価の複素環基、又は、少なくとも1種のアリーレン基と少なくとも1種の2価の複素環基とが直接結合した2価の基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。 Ar^{X2} 及び Ar^{X4} が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。

R^{X1} 、 R^{X2} 及び R^{X3} は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。 R^{X2} 及び R^{X3} が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。]

[0201] a^{X1} は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、好ましくは2以下であり、より好ましくは1である。

a^{X2} は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、好ましくは2以下であり、より好ましくは0である。

[0202] R^{X1} 、 R^{X2} 及び R^{X3} は、好ましくはアルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基であり、より好ましくはアリール基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0203] Ar^{X1} 及び Ar^{X3} で表されるアリーレン基は、より好ましくは式(A-1)又は式

(A-9)で表される基であり、更に好ましくは式(A-1)で表される基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0204] $A r^{X1}$ 及び $A r^{X3}$ で表される2価の複素環基は、より好ましくは式(AA-1)、式(AA-2)又は式(AA-7)-式(AA-26)で表される基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0205] $A r^{X1}$ 及び $A r^{X3}$ は、好ましくは置換基を有していてもよいアリーレン基である。

[0206] $A r^{X2}$ 及び $A r^{X4}$ で表されるアリーレン基としては、より好ましくは式(A-1)、式(A-6)、式(A-7)、式(A-9)-式(A-11)又は式(A-19)で表される基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0207] $A r^{X2}$ 及び $A r^{X4}$ で表される2価の複素環基のより好ましい範囲は、 $A r^{X1}$ 及び $A r^{X3}$ で表される2価の複素環基のより好ましい範囲と同じである。

[0208] $A r^{X2}$ 及び $A r^{X4}$ で表される少なくとも1種のアリーレン基と少なくとも1種の2価の複素環基とが直接結合した2価の基における、アリーレン基及び2価の複素環基のより好ましい範囲、更に好ましい範囲は、それぞれ、 $A r^{X1}$ 及び $A r^{X3}$ で表されるアリーレン基及び2価の複素環基のより好ましい範囲、更に好ましい範囲と同様である。

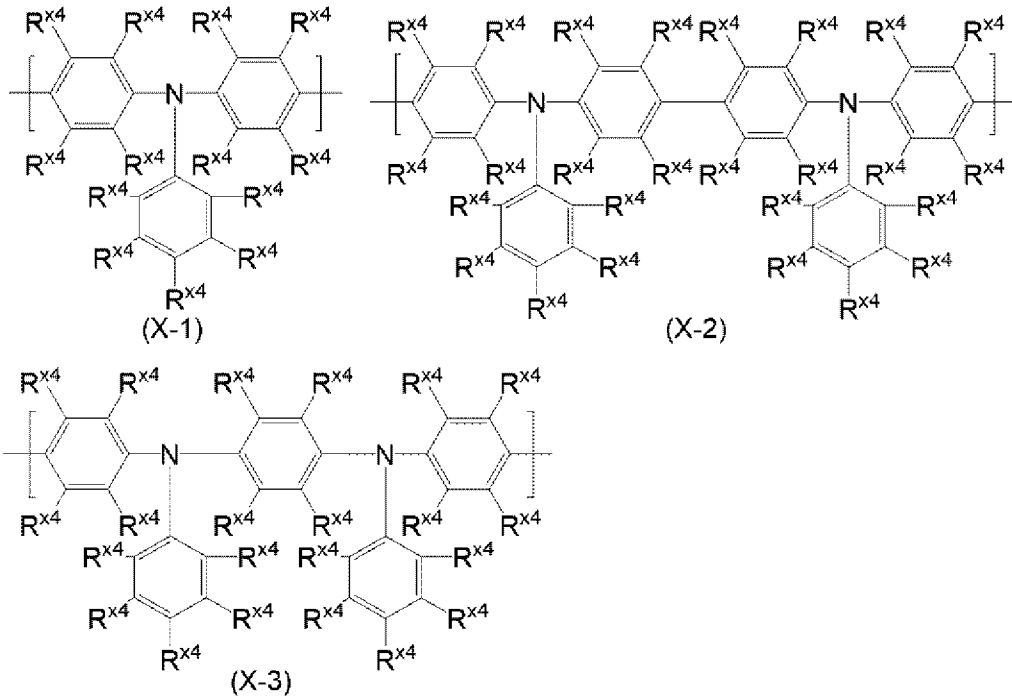
[0209] $A r^{X2}$ 及び $A r^{X4}$ で表される少なくとも1種のアリーレン基と少なくとも1種の2価の複素環基とが直接結合した2価の基としては、式(Y)の $A r^{Y1}$ で表される少なくとも1種のアリーレン基と少なくとも1種の2価の複素環基とが直接結合した2価の基と同様のものが挙げられる。

[0210] $A r^{X2}$ 及び $A r^{X4}$ は、好ましくは置換基を有していてもよいアリーレン基である。

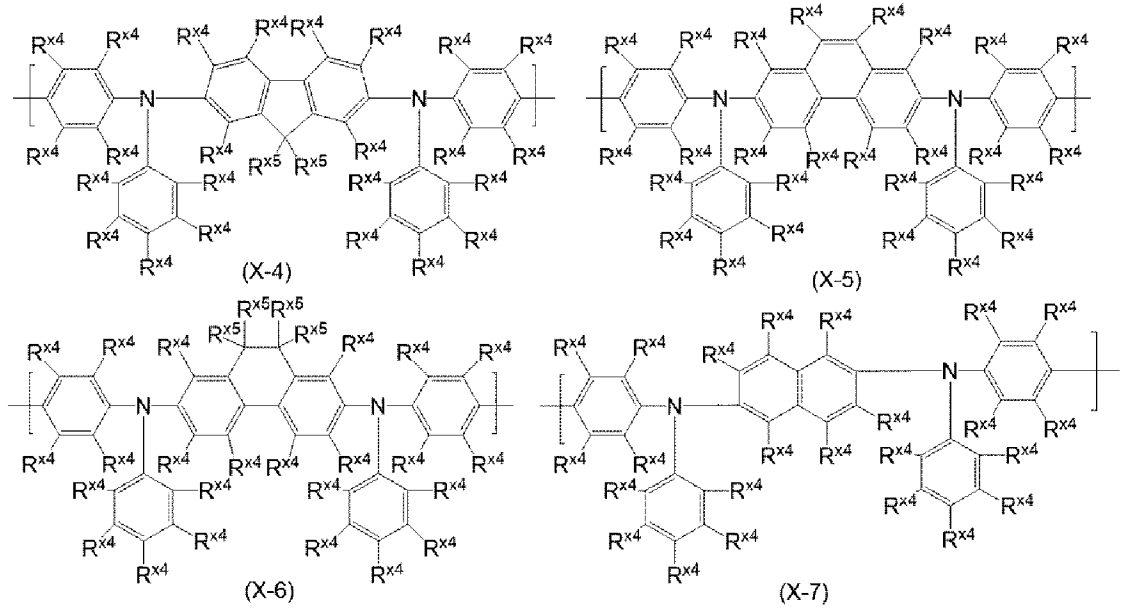
[0211] $A r^{X1} \sim A r^{X4}$ 及び $R^{X1} \sim R^{X3}$ で表される基が有してもよい置換基としては、好ましくはアルキル基、シクロアルキル基又はアリアル基であり、これらの基は更に置換基を有していてもよい。

[0212] 式(X)で表される構成単位は、好ましくは式(X-1)-式(X-7)で表される構成単位であり、より好ましくは式(X-1)-式(X-6)で表される構成単位である。

[0213] [化68]



[0214] [化69]



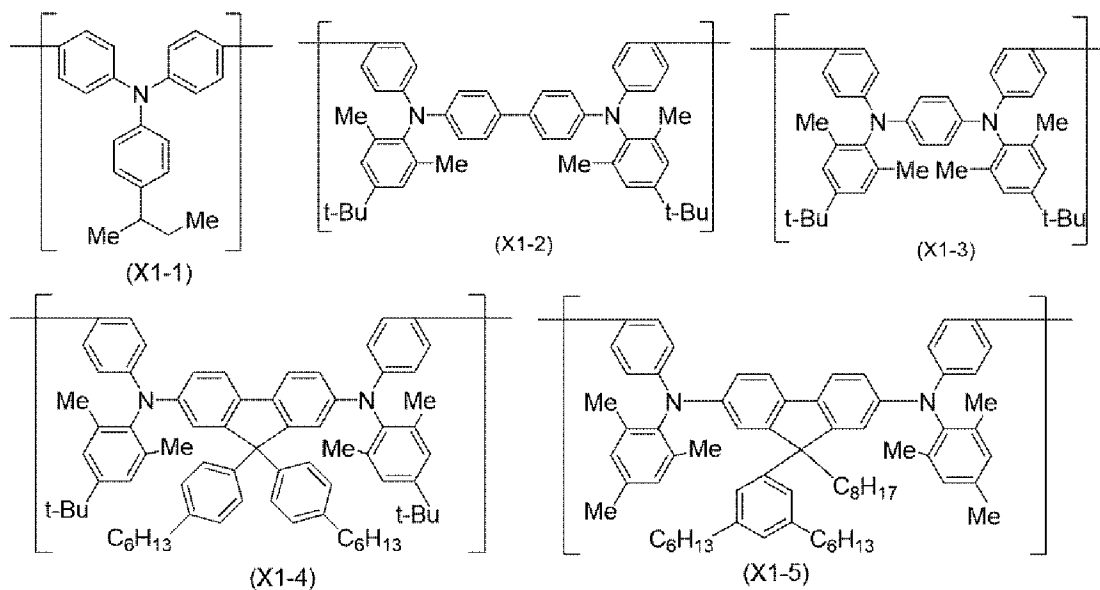
[式中、 R^{x4} 及び R^{x5} は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、1価の複素環基又はシアノ基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。複数存在する R^{x4} は、同一でも異なってもよい

。複数存在する R^{X5} は、同一でも異なっていてもよく、隣接する R^{X5} 同士は互いに結合して、それぞれが結合する炭素原子と共に環を形成していてもよい。]

[0215] 式(X)で表される構成単位は、正孔輸送性が優れるので、高分子ホストに含まれる構成単位の合計量に対して、好ましくは0.1~50モル%であり、より好ましくは1~40モル%であり、更に好ましくは5~30モル%である。

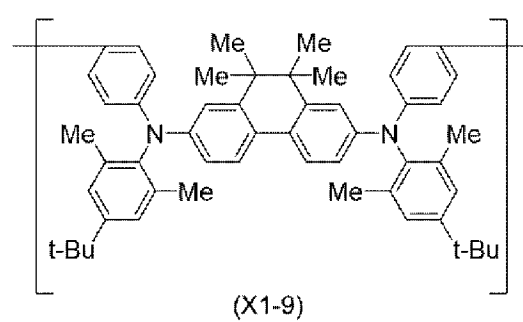
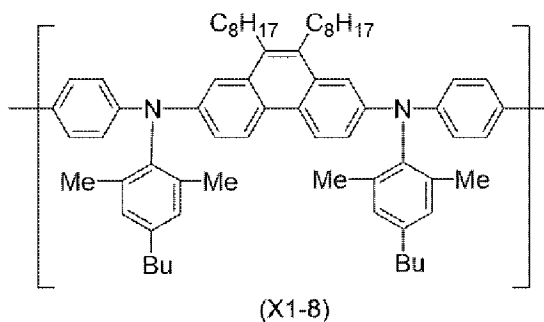
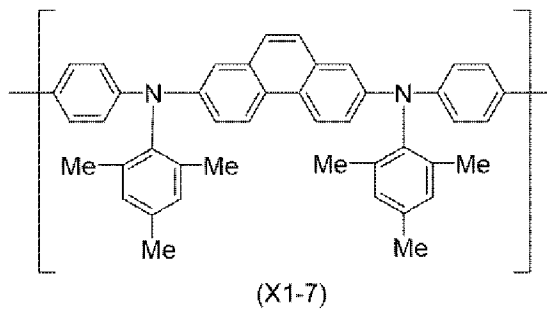
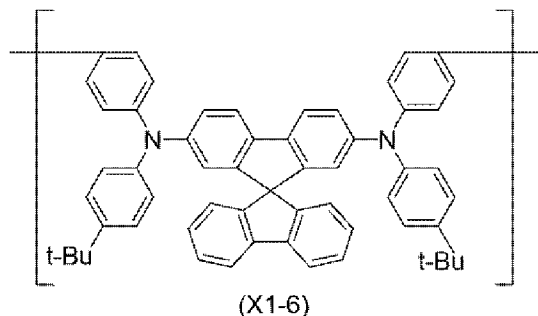
[0216] 式(X)で表される構成単位としては、例えば、式(X1-1)-式(X1-15)で表される構成単位が挙げられ、好ましくは式(X1-3)-式(X1-10)で表される構成単位である。

[0217] [化70]

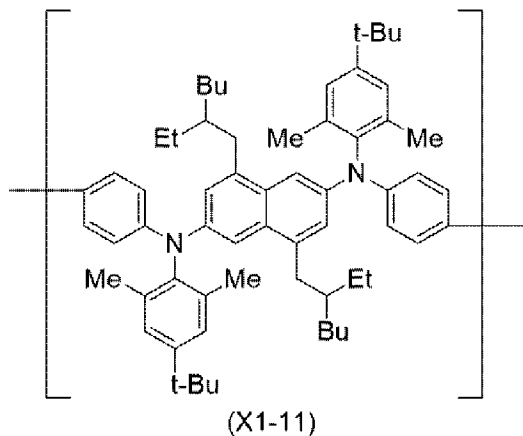
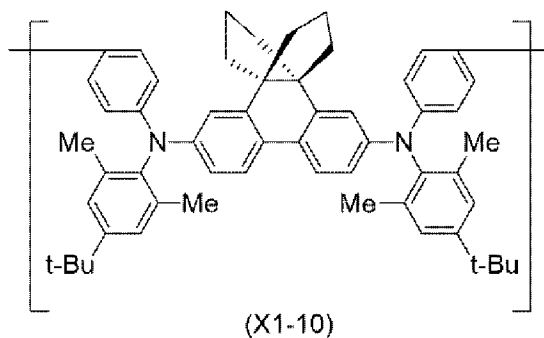


[0218]

[化71]



[0219] [化72]



[0220] 高分子ホストにおいて、式(X)で表される構成単位は、1種のみ含まれていても、2種以上含まれていてもよい。

[0221] 高分子ホストとしては、例えば、高分子化合物P-1~P-6が挙げられる。

[0222]

[表1]

高分子 化合物	構成単位とそのモル比率				
	式(Y)			式(X)	その他
	式(Y-1) ~(Y-3)	式(Y-4) ~(Y-7)	式(Y-8) ~(Y-10)	式(X-1) ~(X-7)	
	p	q	r	s	t
P-1	0.1~99.9	0.1~99.9	0	0	0~30
P-2	0.1~99.9	0	0.1~99.9	0	0~30
P-3	0.1~99.8	0.1~99.8	0	0.1~99.8	0~30
P-4	0.1~99.8	0.1~99.8	0.1~99.8	0	0~30
P-5	0.1~99.8	0	0.1~99.8	0.1~99.8	0~30
P-6	0.1~99.7	0.1~99.7	0.1~99.7	0.1~99.7	0~30

[表中、p、q、r、s及びtは、各構成単位のモル比率を示す。p + q + r + s + t = 100であり、かつ、 $100 \geq p + q + r + s \geq 70$ である。その他の構成単位とは、式(Y)で表される構成単位及び式(X)で表される構成単位以外の構成単位を意味する。]

[0223] 高分子ホストは、ブロック共重合体、ランダム共重合体、交互共重合体、グラフト共重合体のいずれであってもよいし、その他の態様であってもよいが、複数種の原料モノマーを共重合した共重合体であることが好ましい。

[0224] 高分子ホストのポリスチレン換算の数平均分子量は、好ましくは $5 \times 10^3 \sim 1 \times 10^6$ であり、より好ましくは $1 \times 10^4 \sim 5 \times 10^5$ であり、より好ましくは $1.5 \times 10^4 \sim 1.5 \times 10^5$ である。

[0225] [高分子ホストの製造方法]

高分子ホストは、ケミカルレビュー(Chem. Rev.), 第109巻, 897-1091頁(2009年)等に記載の公知の重合方法を用いて製造することができ、Suzuki反応、Yamamoto反応、Buchwald反応、Stille反応、Negishi反応及びKumada反応等の遷移金属触媒を用いるカップリング反応により重合させる方法が例示される。

[0226] 前記重合方法において、単量体を仕込む方法としては、単量体全量を反応系に一括して仕込む方法、単量体の一部を仕込んで反応させた後、残りの単量体を一括、連続又は分割して仕込む方法、単量体を連続又は分割して仕込

む方法等が挙げられる。

[0227] 遷移金属触媒としては、パラジウム触媒、ニッケル触媒等が挙げられる。

[0228] 重合反応の後処理は、公知の方法、例えば、分液により水溶性不純物を除去する方法、メタノール等の低級アルコールに重合反応後の反応液を加えて、析出させた沈殿を濾過した後、乾燥させる方法等を単独又は組み合わせて行う。高分子ホストの純度が低い場合、例えば、再結晶、再沈殿、ソックスレー抽出器による連続抽出、カラムクロマトグラフィー等の通常の方法にて精製することができる。

[0229] [第1の組成物]

第1の有機層は、式(1)で表される金属錯体と、前述のホスト材料、正孔輸送材料、正孔注入材料、電子輸送材料、電子注入材料、発光材料(但し、式(1)で表される金属錯体とは異なる)及び酸化防止剤からなる群から選ばれる少なくとも1種の材料とを含む組成物(以下、「第1の組成物」ともいう。)を含有する層であってもよい。

[0230] [正孔輸送材料]

正孔輸送材料は、低分子化合物と高分子化合物とに分類され、好ましくは架橋基を有する高分子化合物である。

低分子化合物としては、例えば、トリフェニルアミン及びその誘導体、N, N'-ジ-1-ナフチル-N, N'-ジフェニルベンジジン(α -NPD)、並びに、N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(m-トリル)ベンジジン(TPD)等の芳香族アミン化合物が挙げられる。

高分子化合物としては、例えば、ポリビニルカルバゾール及びその誘導体;側鎖又は主鎖に芳香族アミン構造を有するポリアリーレン及びその誘導体が挙げられる。高分子化合物は、フラーレン、テトラフルオロテトラシアノキノジメタン、テトラシアノエチレン及びトリニトロフルオレノン等の電子受容性部位が結合された化合物でもよい。

第1の組成物において、正孔輸送材料の配合量は、式(1)で表される金属錯体を100質量部とした場合、通常、1~400質量部である。

正孔輸送材料は、一種単独で用いても二種以上を併用してもよい。

[0231] [電子輸送材料]

電子輸送材料は、低分子化合物と高分子化合物とに分類される。電子輸送材料は、架橋基を有していてもよい。

低分子化合物としては、例えば、8-ヒドロキシキノリンを配位子とする金属錯体、オキサジアゾール、アントラキノジメタン、ベンゾキノン、ナフトキノン、アントラキノン、テトラシアノアントラキノジメタン、フルオレノン、ジフェニルジシアノエチレン及びジフェノキノン、並びに、これらの誘導体が挙げられる。

高分子化合物としては、例えば、ポリフェニレン、ポリフルオレン、及び、これらの誘導体が挙げられる。高分子化合物は、金属でドーピングされていてもよい。

第1の組成物において、電子輸送材料の配合量は、式(1)で表される金属錯体を100質量部とした場合、通常、1~400質量部である。

電子輸送材料は、一種単独で用いても二種以上を併用してもよい。

[0232] [正孔注入材料及び電子注入材料]

正孔注入材料及び電子注入材料は、各々、低分子化合物と高分子化合物とに分類される。正孔注入材料及び電子注入材料は、架橋基を有していてもよい。

低分子化合物としては、例えば、銅フタロシアニン等の金属フタロシアニン；カーボン；モリブデン、タングステン等の金属酸化物；フッ化リチウム、フッ化ナトリウム、フッ化セシウム、フッ化カリウム等の金属フッ化物が挙げられる。

高分子化合物としては、例えば、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロール、ポリフェニレンビニレン、ポリチエニレンビニレン、ポリキノリン及びポリキノキサリン、並びに、これらの誘導体；芳香族アミン構造を主鎖又は側鎖に含む重合体等の導電性高分子が挙げられる。

第1の組成物において、正孔注入材料及び電子注入材料の配合量は、各々

、式（１）で表される金属錯体を１００質量部とした場合、通常、１～４００質量部である。

正孔注入材料及び電子注入材料は、各々、一種単独で用いても二種以上を併用してもよい。

[0233] [イオンドープ]

正孔注入材料又は電子注入材料が導電性高分子を含む場合、導電性高分子の電気伝導度は、好ましくは、 $1 \times 10^{-5} \text{S/cm} \sim 1 \times 10^3 \text{S/cm}$ である。導電性高分子の電気伝導度をかかえる範囲とするために、導電性高分子に適量のイオンをドープすることができる。ドープするイオンの種類は、正孔注入材料であればアニオン、電子注入材料であればカチオンである。アニオンとしては、例えば、ポリスチレンスルホン酸イオン、アルキルベンゼンスルホン酸イオン、樟脳スルホン酸イオンが挙げられる。カチオンとしては、例えば、リチウムイオン、ナトリウムイオン、カリウムイオン、テトラブチルアンモニウムイオンが挙げられる。

ドープするイオンは、一種単独で用いても二種以上を併用してもよい。

[0234] [発光材料]

発光材料は、低分子化合物と高分子化合物とに分類される。発光材料は、架橋基を有していてもよい。

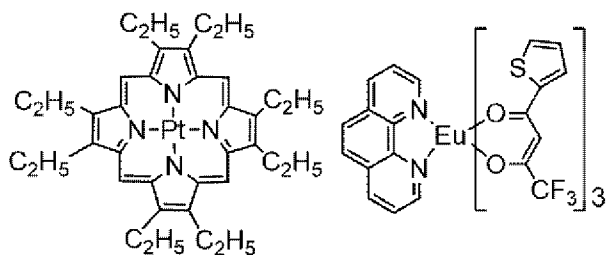
低分子化合物としては、例えば、ナフタレン及びその誘導体、アントラセン及びその誘導体、ペリレン及びその誘導体、並びに、イリジウム、白金又はユーロピウムを中心金属とする三重項発光錯体が挙げられる。

高分子化合物としては、例えば、フェニレン基、ナフタレンジイル基、フルオレンジイル基、フェナントレンジイル基、ジヒドロフェナントレンジイル基、アントラセンジイル基及びピレンジイル基等のアリーレン基；芳香族アミンから２個の水素原子を取り除いてなる基等の芳香族アミン残基；並びに、カルバゾールジイル基、フェノキサジンジイル基及びフェノチアジンジイル基等の２価の複素環基を含む高分子化合物が挙げられる。

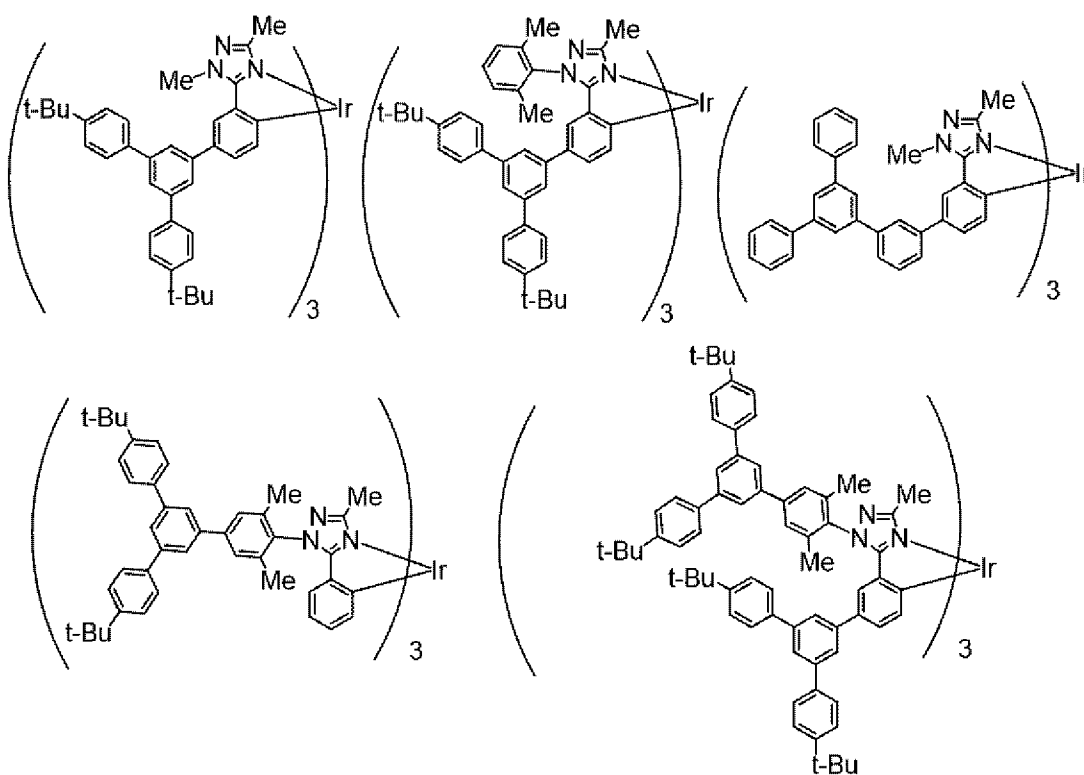
[0235] 発光材料は、好ましくは、以下に示す金属錯体、又は、式（２）で表され

る金属錯体であり、より好ましくは、式（2）で表される金属錯体である。

[0236] [化73]

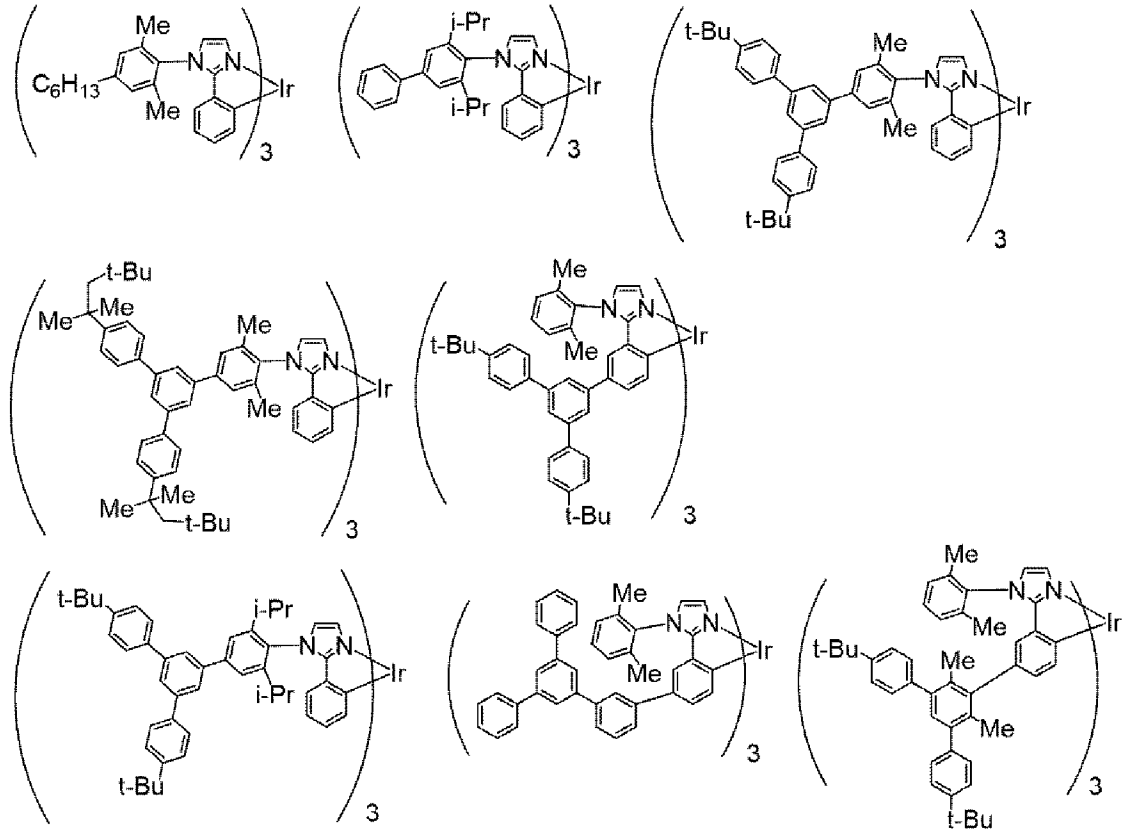


[0237] [化74]



[0238]

[化75]



[0239] 第1の組成物において、発光材料の含有量は、式(1)で表される金属錯体を100質量部とした場合、通常、0.01~400質量部であり、好ましくは0.1~100質量部であり、より好ましくは0.5~50質量部であり、更に好ましくは1~10質量部である。

発光材料は、一種単独で用いても二種以上を併用してもよい。

[0240] [酸化防止剤]

酸化防止剤は、式(1)で表される金属錯体と同じ溶媒に可溶であり、発光及び電荷輸送を阻害しない化合物であればよく、例えば、フェノール系酸化防止剤、リン系酸化防止剤が挙げられる。

第1の組成物において、酸化防止剤の配合量は、式(1)で表される金属錯体を100質量部とした場合、通常、0.001~10質量部である。

酸化防止剤は、一種単独で用いても二種以上を併用してもよい。

[0241] [第1のインク]

式(1)で表される金属錯体と、溶媒とを含有する組成物(以下、「第1

のインク」ともいう。)は、スピンコート法、キャストリング法、マイクログラビアコート法、グラビアコート法、バーコート法、ロールコート法、ワイヤーバーコート法、ディップコート法、スプレーコート法、スクリーン印刷法、フレキソ印刷法、オフセット印刷法、インクジェット印刷法、キャピラリーコート法、ノズルコート法等の湿式法に好適に使用することができる。

[0242] 第1のインクの粘度は、湿式法の種類によって調整すればよいが、インクジェット印刷法等の溶液が吐出装置を経由する印刷法に適用する場合には、吐出時の目づまりと飛行曲がりが起こりづらいので、好ましくは25℃において1~20 mPa·sである。

[0243] 第1のインクに含有される溶媒は、好ましくは、インク中の固形分を溶解又は均一に分散できる溶媒である。溶媒としては、例えば、1, 2-ジクロロエタン、1, 1, 2-トリクロロエタン、クロロベンゼン、o-ジクロロベンゼン等の塩素系溶媒；テトラヒドロフラン、ジオキサン、アニソール、4-メチルアニソール等のエーテル系溶媒；トルエン、キシレン、メシチレン、エチルベンゼン、n-ヘキシルベンゼン、シクロヘキシルベンゼン等の芳香族炭化水素系溶媒；シクロヘキサン、メチルシクロヘキサン、n-ペンタン、n-ヘキサン、n-ヘプタン、n-オクタン、n-ノナン、n-デカン、n-ドデカン、ビスシクロヘキシル等の脂肪族炭化水素系溶媒；アセトン、メチルエチルケトン、シクロヘキサノン、アセトフェノン等のケトン系溶媒；酢酸エチル、酢酸ブチル、エチルセルソルブアセテート、安息香酸メチル、酢酸フェニル等のエステル系溶媒；エチレングリコール、グリセリン、1, 2-ヘキサンジオール等の多価アルコール系溶媒；イソプロピルアルコール、シクロヘキサノール等のアルコール系溶媒；ジメチルスルホキシド等のスルホキシド系溶媒；N-メチル-2-ピロリドン、N, N-ジメチルホルムアミド等のアミド系溶媒が挙げられる。溶媒は、一種単独で用いても二種以上を併用してもよい。

[0244] 第1のインクにおいて、溶媒の含有量は、式(1)で表される金属錯体を

100質量部とした場合、通常、1000~100000質量部であり、好ましくは2000~20000質量部である。

[0245] (第2の有機層)

第2の有機層は、式(2)で表される金属錯体、及び、式(2)で表される金属錯体から水素原子1個以上を除いた基を有する構成単位(以下、「金属錯体構成単位」という。)を含む高分子化合物(以下、「第2の有機層の高分子化合物」ともいう。)からなる群より選ばれる少なくとも1種を含有する層である。第2の有機層には、式(2)で表される金属錯体が1種単独で含有されていてもよく、2種以上含有されていてもよい。第2の有機層には、第2の有機層の高分子化合物が1種単独で含有されていてもよく、2種以上含有されていてもよい。

[0246] <式(2)で表される金属錯体>

式(2)で表される金属錯体は、通常、室温(25℃)で燐光発光性を示す金属錯体であり、好ましくは、室温で三重項励起状態からの発光を示す金属錯体である。

[0247] M^2 は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、イリジウム原子又は白金原子であることが好ましく、イリジウム原子であることがより好ましい。

M^2 がロジウム原子又はイリジウム原子の場合、 n^3 は2又は3であることが好ましく、3であることがより好ましい。

M^2 がパラジウム原子又は白金原子の場合、 n^3 は2であることが好ましい。

E^4 は、炭素原子であることが好ましい。

[0248] 環 L^1 は、芳香族複素環の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常2~60であり、好ましくは3~30であり、より好ましくは4~15である。環 L^1 は、1つ以上4つ以下の窒素原子を構成原子として有する6員の芳香族複素環であることが好ましく、1つ以上2つ以下の窒素原子を構成原子として有する6員の芳香族複素環であることがより好ましく、これらの環は置換基を有していてもよい。

環L¹としては、例えば、ピリジン環、ジアザベンゼン環、トリアジン環、アザナフタレン環、ジアナフタレン環及びトリアザナフタレン環が挙げられ、ピリジン環、ジアザベンゼン環、アザナフタレン環及びジアナフタレン環が好ましく、ピリジン環、ピリミジン環、キノリン環又はイソキノリン環がより好ましく、ピリジン環又はイソキノリン環が更に好ましく、これらの環は置換基を有していてもよい。

[0249] 環L²における芳香族炭化水素環の例及び好ましい範囲は、環R²における芳香族炭化水素環の例及び好ましい範囲と同じである。

環L²における芳香族複素環の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないうで、通常2～60であり、好ましくは3～30であり、より好ましくは4～15である。環L²における芳香族複素環としては、ピロール環、ジアゾール環、フラン環、チオフェン環、ピリジン環、ジアザベンゼン環及びこれらの環に芳香環が1個以上5個以下縮合した環が挙げられ、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、好ましくは、ピリジン環、ジアザベンゼン環、アザナフタレン環、ジアザナフタレン環、インドール環、ベンゾフラン環、ベンゾチオフェン環、カルバゾール環、アザカルバゾール環、ジアザカルバゾール環、ジベンゾフラン環又はジベンゾチオフェン環であり、より好ましくは、ピリジン環、ジアザベンゼン環、カルバゾール環、ジベンゾフラン環又はジベンゾチオフェン環であり、更に好ましくは、ピリジン環又はジアザベンゼン環であり、これらの環は置換基を有していてもよい。環L²が6員の芳香族複素環である場合、E¹は炭素原子であることが好ましい。

環L²は、本発明の発光素子の外部量子効率が更に優れるので、好ましくは、ベンゼン環、フルオレン環、ジヒドロフェナントレン環、ピリジン環、ジアザベンゼン環、カルバゾール環、ジベンゾフラン環又はジベンゾチオフェン環であり、より好ましくは、ベンゼン環、ピリジン環又はジアザベンゼン環であり、更に好ましくは、ベンゼン環であり、これらの環は置換基を有していてもよい。

[0250] 本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、環L¹及び環L²のうち

、少なくとも1つは、式(1-T)で表される基を有することが好ましい。

[0251] 「環L¹及び環L²のうち、少なくとも1つは、式(1-T)で表される基を有する」とは、環L¹及び環L²を構成する原子(好ましくは、炭素原子又は窒素原子)の少なくとも1つに式(1-T)で表される基が直接結合していることを意味する。式(2)で表される金属錯体において、環L¹及び環L²が複数存在する場合、複数存在する環L¹及び環L²のうち少なくとも1つの環が式(1-T)で表される基を有していればよいが、本発明の発光素子の外部量子効率により優れるので、複数存在する環L¹の全て、複数存在する環L²の全て、又は、複数存在する環L¹及び環L²の全てが、式(1-T)で表される基を有することが好ましく、複数存在する環L¹の全て、又は、複数存在する環L²の全てが、式(1-T)で表される基を有することがより好ましい。

[0252] 式(2)で表される金属錯体において、環L¹及び環L²のうち、少なくとも1つが有する式(1-T)で表される基の個数は、通常、1個~5個であり、式(2)で表される金属錯体を容易に合成できるので、好ましくは1個~3個であり、より好ましくは1個又は2個であり、更に好ましくは1個である。

式(2)で表される金属錯体において、M²がロジウム原子又はイリジウム原子の場合、環L¹及び環L²が有する式(1-T)で表される基の合計の個数は、通常、1個~30個であり、本発明の発光素子の外部量子効率により優れるので、好ましくは1個~18個であり、より好ましくは2個~12個であり、更に好ましくは3個~6個である。

式(2)で表される金属錯体において、M²がパラジウム原子又は白金原子の場合、環L¹及び環L²が有する式(1-T)で表される基の合計の個数は、通常、1個~20個であり、本発明の発光素子の外部量子効率により優れるので、好ましくは1個~12個であり、より好ましくは1個~8個であり、更に好ましくは2個~4個である。

[0253] 環L¹及び環L²が有していてもよい、式(1-T)で表される基以外の置換基としては、シアノ基、アルケニル基又はシクロアルケニル基が好ましく、

これらの基は更に置換基を有していてもよい。

[0254] 環 L^1 が有していてもよい置換基が複数存在する場合、それらは互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成しないことが好ましい。

環 L^2 が有していてもよい置換基が複数存在する場合、それらは互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成しないことが好ましい。

環 L^1 が有していてもよい置換基と、環 L^2 が有していてもよい置換基とは、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成しないことが好ましい。

[0255] $A^3-G^2-A^4$ で表されるアニオン性の2座配位子の例及び好ましい範囲は、 $A^1-G^1-A^2$ で表されるアニオン性の2座配位子の例及び好ましい範囲と同じである。なお、 $A^3-G^2-A^4$ で表されるアニオン性の2座配位子において、上記式中の*は M^2 と結合する部位を表す。但し、 $A^3-G^2-A^4$ で表されるアニオン性の2座配位子は、添え字 n^3 でその数を規定されている配位子とは異なる。

[0256] [式(1-T)で表される基]

R^{1T} で表されるアリール基、1価の複素環基及び置換アミノ基の例及び好ましい範囲は、それぞれ、 $R^{11A} \sim R^{13A}$ におけるアリール基、1価の複素環基及び置換アミノ基の例及び好ましい範囲と同じである。

R^{1T} が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲は、 $R^{11A} \sim R^{13A}$ が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0257] R^{1T} は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基であり、より好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基、又は、式(D-A)～式(D-C)で表される基であり、更に好ましくは、アルキル基、又は、式(D-A)若しくは式(D-C)で表される基であり、特に好ましくは、式(D-A)で表される基あり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0258] ・式(2-B)で表される金属錯体

式(2)で表される金属錯体は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、式(2-B)で表される金属錯体であることが好ましい。

[0259] 環L^{1B}は、ピリジン環、ピリミジン環、キノリン環又はイソキノリン環であることが好ましく、ピリジン環又はイソキノリン環であることがより好ましく、ピリジン環であることが更に好ましく、これらの環は置換基を有していてもよい。

環L^{1B}が有していてもよい置換基としては、式(1-T)で表される基が好ましい。

環L^{1B}が有していてもよい、式(1-T)で表される基以外の置換基の例及び好ましい範囲は、環L¹及び環L²が有していてもよい、式(1-T)で表される基以外の置換基の例及び好ましい範囲と同じである。

環L^{1B}が有していてもよい置換基が複数存在する場合、それらは互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成しないことが好ましい。

[0260] 環L^{2B}がピリジン環である場合、E^{21B}が窒素原子であるピリジン環、E^{22B}が窒素原子であるピリジン環、又は、E^{23B}が窒素原子であるピリジン環が好ましく、E^{22B}が窒素原子であるピリジン環がより好ましい。

環L^{2B}がジアザベンゼン環である場合、E^{21B}及びE^{23B}が窒素原子であるピリミジン環、又は、E^{22B}及びE^{24B}が窒素原子であるピリミジン環が好ましく、E^{22B}及びE^{24B}が窒素原子であるピリミジン環がより好ましい。

[0261] E^{21B}~E^{24B}は、炭素原子であることが好ましい。

環L^{2B}は、ベンゼン環であることが好ましい。

[0262] 本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、環L^{1B}の少なくとも1つが式(1-T)で表される基を有するか、又は、R^{21B}~R²⁴の少なくとも1つが式(1-T)で表される基であることが好ましい。

[0263] 環L^{1B}の少なくとも1つが式(1-T)で表される基を有する場合、環L^{1B}を構成する原子(好ましくは、炭素原子又は窒素原子)の少なくとも1つに式(1-T)で表される基が直接結合していればよい。環L^{1B}の少なくとも1つが式(1-T)で表される基を有し、且つ、環L^{1B}が複数存在する場合、複

数存在する環 L^{1B} のうち少なくとも1つの環が式(1-T)で表される基を有していればよいが、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、複数存在する環 L^{1B} の少なくとも2つが式(1-T)で表される基を有することが好ましく、複数存在する環 L^{1B} の全てが式(1-T)で表される基を有することがより好ましい。

[0264] R^{21B} ~ R^{24B} の少なくとも1つが式(1-T)で表される基である場合、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、 R^{22B} 及び R^{23B} の少なくとも1つが式(1-T)で表される基であることが好ましく、 R^{22B} 又は R^{23B} が式(1-T)で表される基であることがより好ましく、 R^{22B} が式(1-T)で表される基であることが更に好ましい。

[0265] 式(2-B)で表される金属錯体を容易に合成できるので、 R^{21B} 及び R^{24B} の少なくとも1つは水素原子であることが好ましく、 R^{21B} 又は R^{24B} が水素原子であることがより好ましく、 R^{21B} 及び R^{24B} が水素原子であることが更に好ましい。

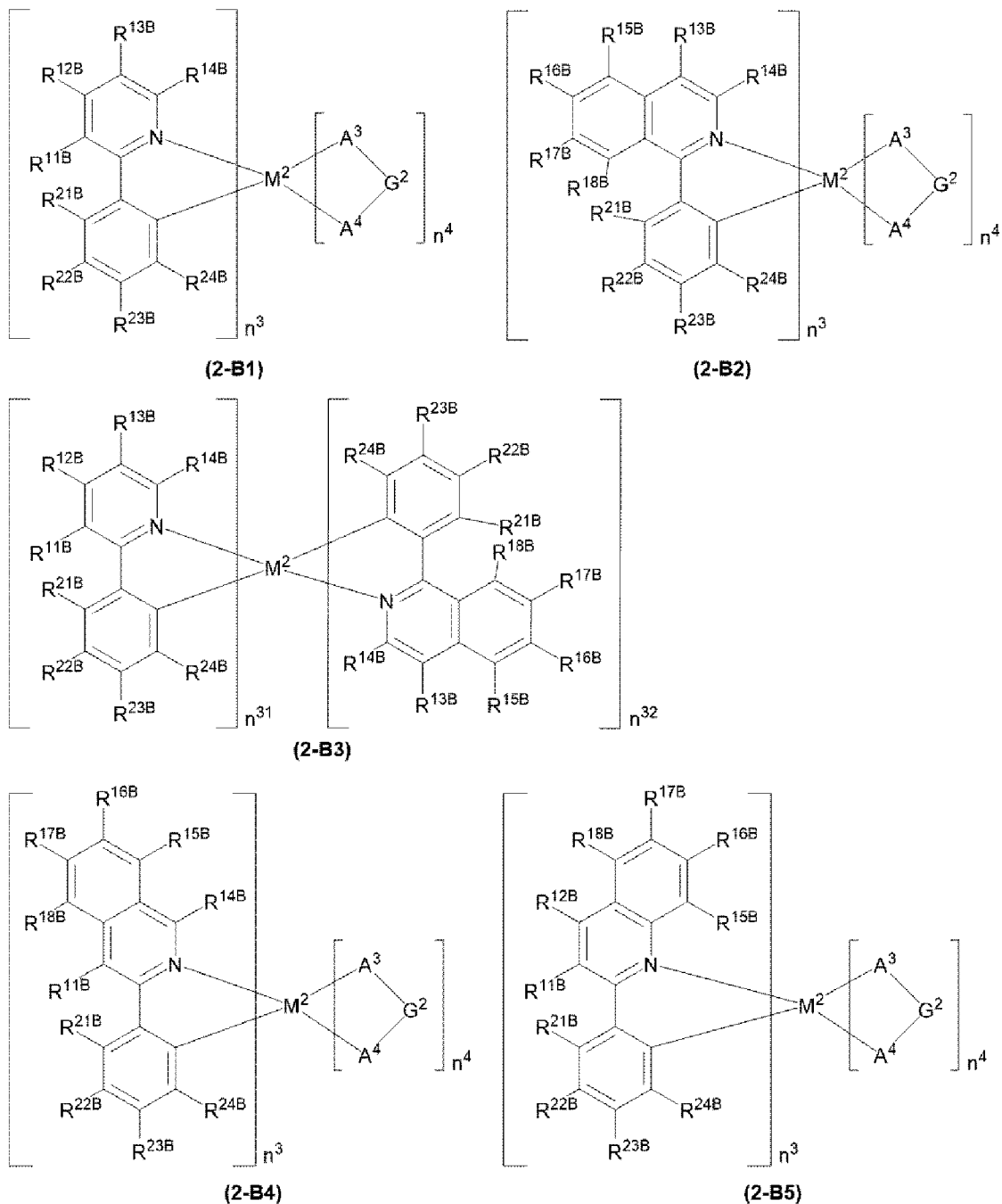
[0266] 式(2-B)で表される金属錯体が有する式(1-T)で表される基の合計の個数は、式(2)で表される金属錯体における環 L^1 及び環 L^2 が有する式(1-T)で表される基の合計の個数と同じである。

[0267] R^{21B} と R^{22B} 、 R^{22B} と R^{23B} 、 R^{23B} と R^{24B} 、及び、環 L^{1B} が有していてもよい置換基と R^{21B} は、それぞれ結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成しないことが好ましい。

[0268] 式(2-B)で表される金属錯体は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、式(2-B1)~式(2-B5)で表される金属錯体であることが好ましく、式(2-B1)~式(2-B3)で表される金属錯体であることがより好ましく、式(2-B1)又は式(2-B2)で表される金属錯体であることが更に好ましく、式(2-B1)で表される金属錯体であることが特に好ましい。

[0269]

[化76]



[式中、

M^2 、 n^3 、 n^4 、 R^{21B} 、 R^{22B} 、 R^{23B} 、 R^{24B} 及び $A^3-G^2-A^4$ は、前記と同じ意味を表す。

n^{31} 及び n^{32} は、それぞれ独立に、1以上の整数を表す。但し、 M^2 がロジウム原子又はイリジウム原子の場合、 $n^{31}+n^{32}$ は3であり、 M^2 がパラジウム原子又は白金原子の場合、 $n^{31}+n^{32}$ は2である。

R^{11B} 、 R^{12B} 、 R^{13B} 、 R^{14B} 、 R^{15B} 、 R^{16B} 、 R^{17B} 及び R^{18B} は、それぞれ独立に、水素原子又は前記式(1-T)で表される基を表す。 R^{11B} 、 R^{12B} 、 R^{13B} 、 R^{14B} 、 R^{15B} 、 R^{16B} 、 R^{17B} 及び R^{18B} が複数存在する場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。

式(2-B1)及び式(2-B3)中、 R^{11B} と R^{12B} 、 R^{12B} と R^{13B} 、 R^{13B} と R^{14B} 、及び、 R^{11B} と R^{21B} は、それぞれ結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。式(2-B2)及び式(2-B3)中、 R^{13B} と R^{14B} 、 R^{13B} と R^{15B} 、 R^{15B} と R^{16B} 、 R^{16B} と R^{17B} 、 R^{17B} と R^{18B} 、及び、 R^{18B} と R^{21B} は、それぞれ結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。式(2-B4)中、 R^{11B} と R^{18B} 、 R^{14B} と R^{15B} 、 R^{15B} と R^{16B} 、 R^{16B} と R^{17B} 、 R^{17B} と R^{18B} 、及び、 R^{11B} と R^{21B} は、それぞれ結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。式(2-B5)中、 R^{11B} と R^{12B} 、 R^{12B} と R^{18B} 、 R^{15B} と R^{16B} 、 R^{16B} と R^{17B} 、 R^{17B} と R^{18B} 、及び、 R^{11B} と R^{21B} は、それぞれ結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。]

[0270] 式(2-B1)中、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、 $R^{11B} \sim R^{14B}$ 及び $R^{21B} \sim R^{24B}$ の少なくとも1つが、式(1-T)で表される基であることが好ましい。式(2-B1)中、 $R^{11B} \sim R^{14B}$ の少なくとも1つが式(1-T)で表される基である場合、 R^{12B} 及び R^{13B} の少なくとも1つが式(1-T)で表される基であることが好ましく、 R^{12B} 又は R^{13B} が式(1-T)で表される基であることがより好ましく、 R^{13B} が式(1-T)で表される基であることが更に好ましい。

式(2-B1)中、本発明の発光素子の外部量子効率が更に優れるので、 R^{12B} 、 R^{13B} 、 R^{22B} 及び R^{23B} の少なくとも1つが、式(1-T)で表される基であることがより好ましく、 R^{13B} 、 R^{22B} 及び R^{23B} の少なくとも1つが、式(1-T)で表される基であることがより好ましく、 R^{13B} 及び R^{22B} の少なくとも1つが式(1-T)で表される基であることが更に好ましく、 R^{13B} 又は R^{22B} が式(1-T)で表される基であることが特に好ましい。

[0271] 式(2-B2)中、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、

$R^{13B} \sim R^{18B}$ 及び $R^{21B} \sim R^{24B}$ の少なくとも1つが、式(1-T)で表される基であることが好ましく、 R^{12B} 、 R^{13B} 、 R^{22B} 及び R^{23B} の少なくとも1つが、式(1-T)で表される基であることがより好ましく、 R^{22B} 及び R^{23B} の少なくとも1つが式(1-T)で表される基であることが更に好ましく、 R^{22B} 又は R^{23B} が式(1-T)で表される基であることが特に好ましい。

[0272] 式(2-B3)中、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、 $R^{11B} \sim R^{18B}$ 及び $R^{21B} \sim R^{24B}$ の少なくとも1つが、式(1-T)で表される基であることが好ましく、 R^{12B} 、 R^{13B} 、 R^{22B} 及び R^{23B} の少なくとも1つが、式(1-T)で表される基であることがより好ましく、 R^{13B} 及び R^{22B} の少なくとも1つが式(1-T)で表される基であることが更に好ましく、 R^{13B} 又は R^{22B} が式(1-T)で表される基であることが特に好ましい。

式(2-B4)中、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、 R^{11B} 、 $R^{14B} \sim R^{18B}$ 及び $R^{21B} \sim R^{24B}$ の少なくとも1つが式(1-T)で表される基であることが好ましく、 R^{22B} 及び R^{23B} の少なくとも1つが、式(1-T)で表される基であることがより好ましい。

式(2-B5)中、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、 R^{11B} 、 R^{12B} 、 $R^{15B} \sim R^{18B}$ 及び $R^{21B} \sim R^{24B}$ の少なくとも1つが式(1-T)で表される基であることが好ましく、 R^{22B} 及び R^{23B} の少なくとも1つが、式(1-T)で表される基であることが好ましい。

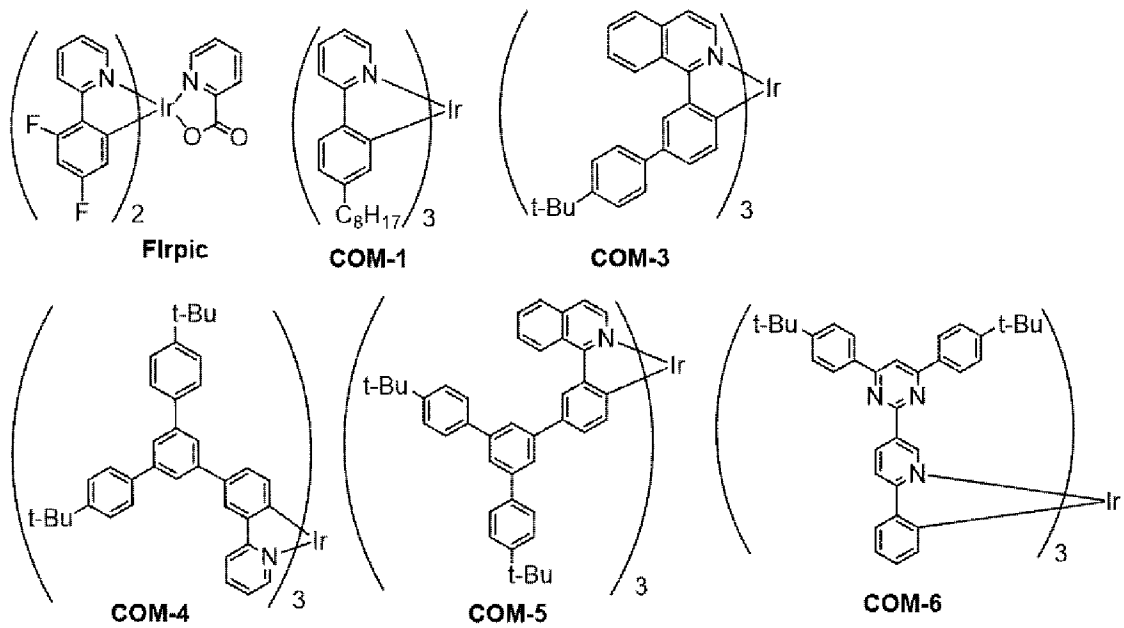
[0273] 式(2-B1)及び式(2-B3)中、 R^{11B} と R^{12B} 、 R^{12B} と R^{13B} 、 R^{13B} と R^{14B} 、及び、 R^{11B} と R^{21B} は、それぞれ結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成しないことが好ましい。式(2-B2)及び式(2-B3)中、 R^{13B} と R^{14B} 、 R^{13B} と R^{15B} 、 R^{15B} と R^{16B} 、 R^{16B} と R^{17B} 、 R^{17B} と R^{18B} 、及び、 R^{18B} と R^{21B} は、それぞれ結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成しないことが好ましい。式(2-B4)中、 R^{11B} と R^{13B} 、 R^{14B} と R^{15B} 、 R^{15B} と R^{16B} 、 R^{16B} と R^{17B} 、 R^{17B} と R^{18B} 、及び、 R^{11B} と R^{21B} は、それぞれ結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成しないことが好ましい。式(2-B5)中、 R^{11B} と R^{12B} 、 R^{12B} と R^{18B} 、 R^{15B} と R^{16B} 、 R^{16B} と R^{17B} 、 R^{17B} と R^{18B} 、及び、 R^{11B}

とR^{21B}は、それぞれ結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成しないことが好ましい。

[0274] 式(2-B1)～式(2-B5)で表される金属錯体が有する式(1-T)で表される基の合計の個数は、それぞれ、式(2)で表される金属錯体における環L¹及び環L²が有する式(1-T)で表される基の合計の個数と同じである。

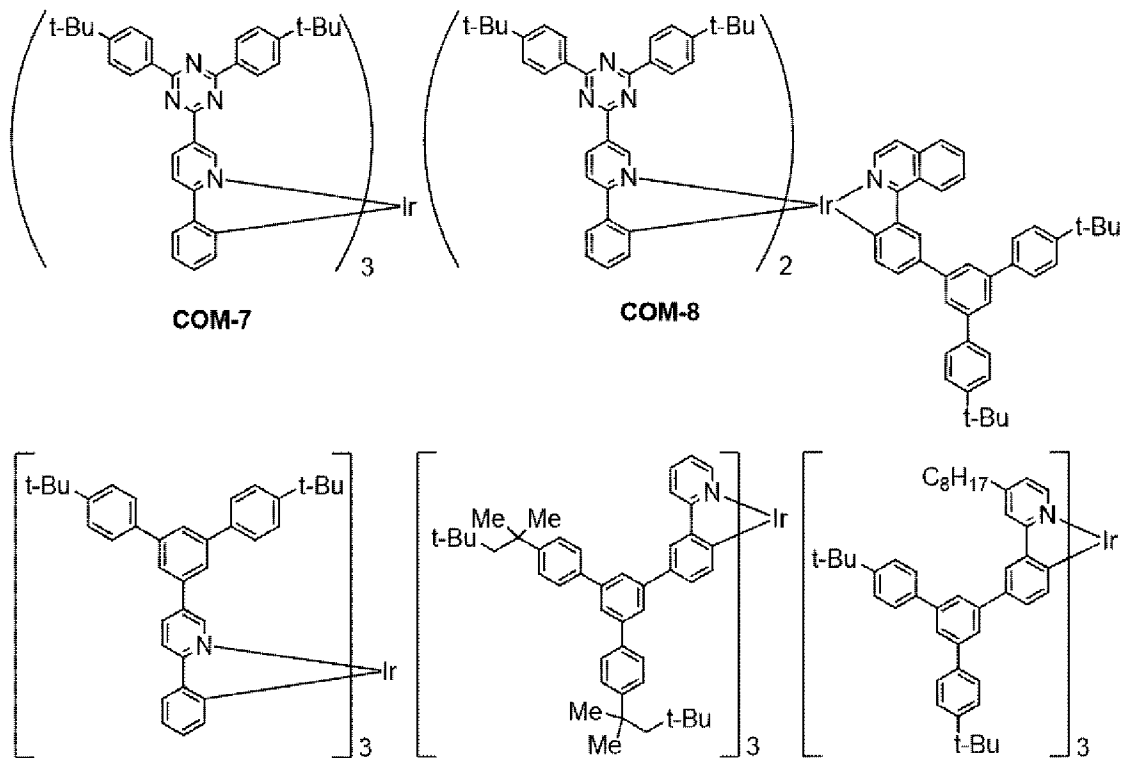
[0275] 式(2)で表される金属錯体としては、例えば、下記式で表される金属錯体並びに後述の金属錯体G1が挙げられる。

[0276] [化77]

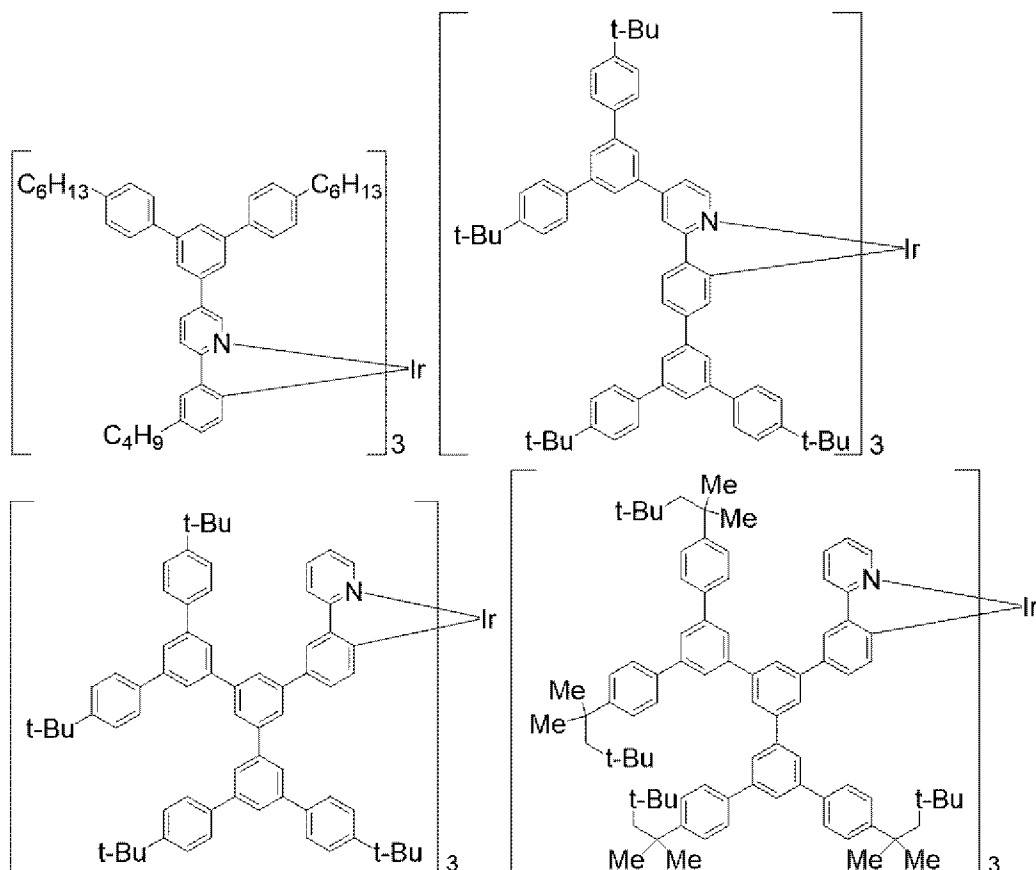


[0277]

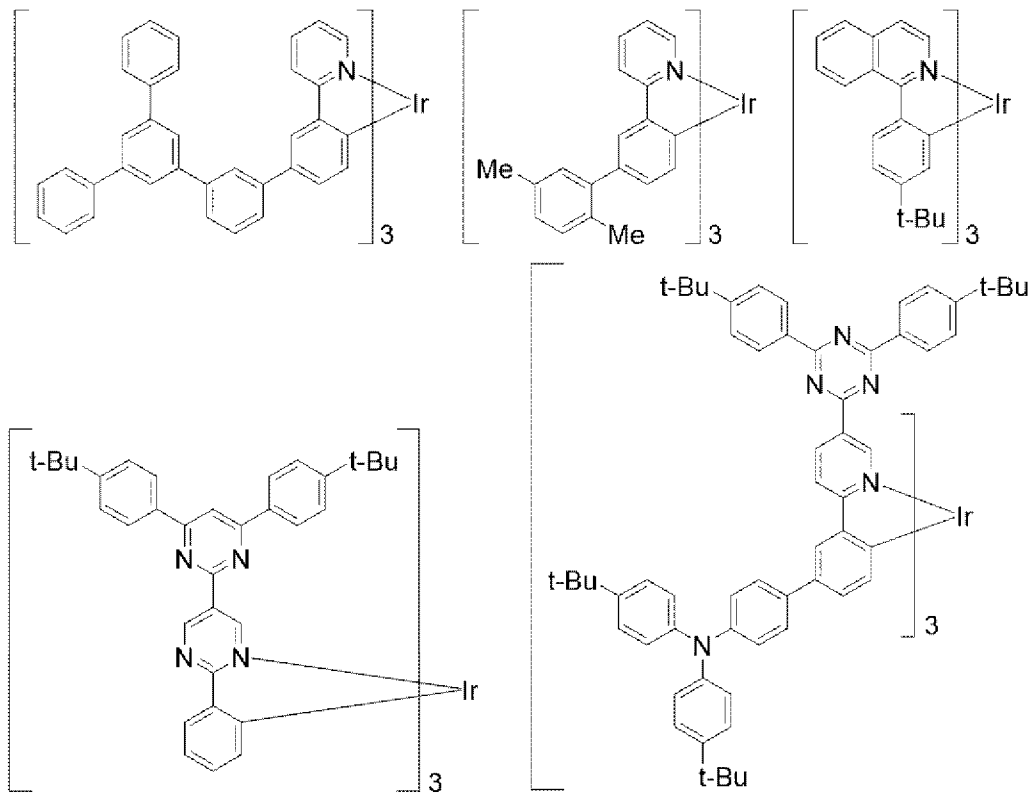
[化78]



[0278] [化79]

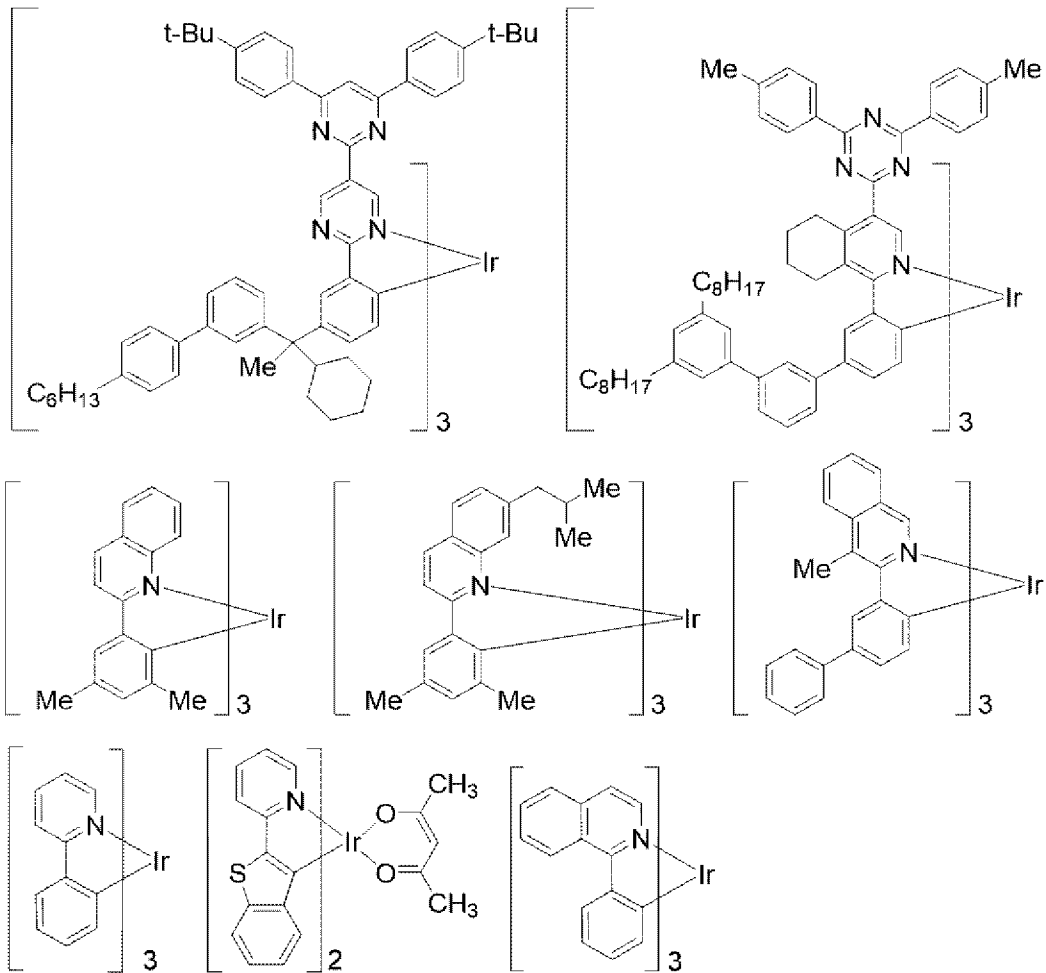


[0279] [化80]



[0280]

[化81]



[0281] 式(2)で表される金属錯体は、Aldrich、Luminescence Technology Corp.、American Dye Source等から入手可能である。その他には、例えば、「Journal of the American Chemical Society, Vol. 107, 1431-1432 (1985)」、「Journal of the American Chemical Society, Vol. 106, 6647-6653 (1984)」、特表2004-530254号公報、特開2008-179617号公報、特開2011-105701号公報、特表2007-504272号公報、国際公開第2006/121811号に記載されている方法に従って合成することができる。

[0282] 金属錯体構成単位は、本発明の発光素子の外部量子効率が優れ、かつ、合

成が容易であるので、好ましくは、式(2)で表される金属錯体から1個以上5個以下の水素原子を除いた基を含む構成単位であり、より好ましくは、式(2)で表される金属錯体から1個以上3個以下の水素原子を除いた基を含む構成単位であり、更に好ましくは式(1-1B)で表される構成単位、式(1-2B)で表される構成単位、式(1-3B)で表される構成単位又は式(1-4B)で表される構成単位であり、特に好ましくは式(1-1B)で表される構成単位、式(1-2B)で表される構成単位又は式(1-3B)で表される構成単位であり、とりわけ好ましくは式(1-3B)で表される構成単位である。

[0283] \cdot 式(1-1B)で表される構成単位

R^A は、アリール基又は1価の複素環基であることが好ましく、アリール基であることがより好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0284] R^B は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基であることが好ましく、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基又はアリール基がより好ましく、水素原子又はアルキル基が更に好ましく、水素原子であることが特に好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0285] L^C は、 $-C(R^B)_2-$ 、アリーレン基又は2価の複素環基であることが好ましく、 $-C(R^B)_2-$ 又はアリーレン基であることがより好ましく、アリーレン基であることが更に好ましく、式(A-1)又は(A-2)で表される基であることが特に好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0286] L^C で表されるアリーレン基及び2価の複素環基の例及び好ましい範囲は、それぞれ、 $A r^{VI}$ で表されるアリーレン基及び2価の複素環基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0287] R^A 、 R^B 及び L^C が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲は、それぞれ、 $A r^{VI}$ で表される基が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0288] n^{ci} は、通常、0~10の整数であり、好ましくは0~5の整数であり、よ

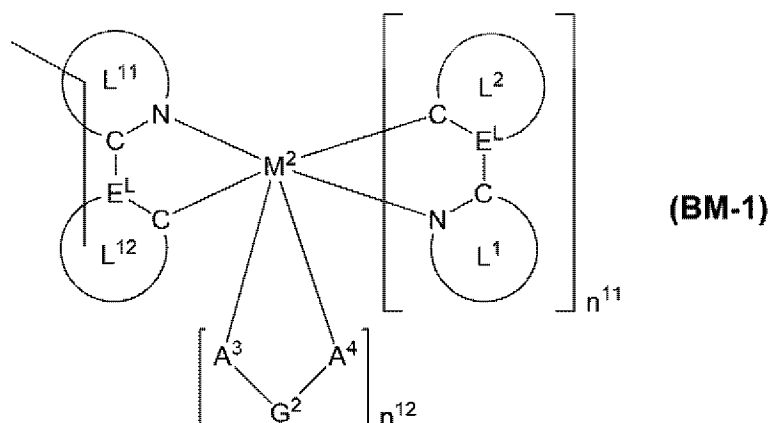
り好ましくは0～2の整数であり、更に好ましくは0又は1であり、特に好ましくは0である。

[0289] 第2の有機層の高分子化合物が式(1-1B)で表される構成単位を含む高分子化合物である場合、式(1-1B)で表される構成単位は末端の構成単位である。

[0290] 「末端の構成単位」とは、高分子化合物の末端の構成単位を意味し、該末端の構成単位は、高分子化合物の製造において、末端封止剤から誘導される構成単位であることが好ましい。

[0291] M^{1B} は、式(BM-1)で表される基であることがより好ましい。

[0292] [化82]



[式中、

M^2 、 E^L 、環 L^1 、環 L^2 及び $A^3-G^2-A^4$ は、前記と同じ意味を表す。

環 L^{11} は、6員の芳香族複素環を表し、これらの環は置換基を有していてもよい。該置換基が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよく、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。

環 L^{12} は、芳香族炭化水素環又は芳香族複素環を表し、これらの環は置換基を有していてもよい。該置換基が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよく、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。

但し、環 L^{11} 及び環 L^{12} の一方は、1つの結合手を有する。

n^{11} 及び n^{12} は、それぞれ独立に、0以上の整数を表す。但し、 $n^{11} + n^{12}$ は1又は2である。 M^2 がロジウム原子又はイリジウム原子の場合、 $n^{11} + n^{12}$ は2であり、 M^2 がパラジウム原子又は白金原子の場合、 $n^{11} + n^{12}$ は1である。

]

[0293] M^2 がロジウム原子又はイリジウム原子の場合、 n^{11} が2であることが好ましい。

M^2 がパラジウム原子又は白金原子の場合の場合、 n^{11} が1であることが好ましい。

[0294] 環 L^{11} が結合手を有さない場合、環 L^{11} の定義、例及び好ましい範囲は、前述の環 L^1 の定義、例及び好ましい範囲と同様である。

環 L^{11} が結合手を有する場合、環 L^{11} の結合手を除いた環部分の定義、例及び好ましい範囲は、前述の環 L^1 の定義、例及び好ましい範囲と同様である。

[0295] 環 L^{12} が結合手を有さない場合、環 L^{12} の定義、例及び好ましい範囲は、前述の環 L^2 の定義、例及び好ましい範囲と同様である。

環 L^{12} が結合手を有する場合、環 L^{12} の結合手を除いた環部分の定義、例及び好ましい範囲は、前述の環 L^2 の定義、例及び好ましい範囲と同様である。

[0296] 環 L^{11} 及び環 L^{12} が有していてもよい置換基の定義、例及び好ましい範囲は、環 L^1 及び環 L^2 が有していてもよい置換基の定義、例及び好ましい範囲と同様である。

[0297] [式(1-2B)で表される構成単位]

L^d は、 $-C(R^B)_2-$ 、アリーレン基又は2価の複素環基であることが好ましく、アリーレン基又は2価の複素環基であることがより好ましく、アリーレン基であることが更に好ましく、式(A-1)又は(A-2)で表される基であることが特に好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。

L^e は、 $-C(R^B)_2-$ 、アリーレン基又は2価の複素環基であることが好ましく、 $-C(R^B)_2-$ 又はアリーレン基であることがより好ましく、アリーレン基であることが更に好ましく、式(A-1)又は(A-2)で表される基であることが特に好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0298] L^d 及び L^e で表されるアリーレン基及び2価の複素環基の例及び好ましい範囲は、それぞれ、 $A r^{VI}$ で表されるアリーレン基及び2価の複素環基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0299] n^{d1} 及び n^{e1} は、通常、0~10の整数であり、好ましくは0~5の整数であり、より好ましくは0~2の整数であり、更に好ましくは0又は1であり、特に好ましくは0である。

[0300] $A r^{III}$ は、ベンゼン環、ナフタレン環、フルオレン環、フェナントレン環、ジヒドロフェナントレン環、ピリジン環、ジアザベンゼン環、トリアジン環、カルバゾール環、フェノキサジン環又はフェノチアジン環から、環を構成する炭素原子又はヘテロ原子に直接結合する水素原子3個を除いた基であることが好ましく、ベンゼン環、ナフタレン環、フルオレン環、フェナントレン環又はジヒドロフェナントレン環から、環を構成する炭素原子に直接結合する水素原子3個を除いた基であることがより好ましく、ベンゼン環又はフルオレン環から、環を構成する炭素原子に直接結合する水素原子3個を除いた基であることが更に好ましく、ベンゼン環から、環を構成する炭素原子に直接結合する水素原子3個を除いた基であることが特に好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。

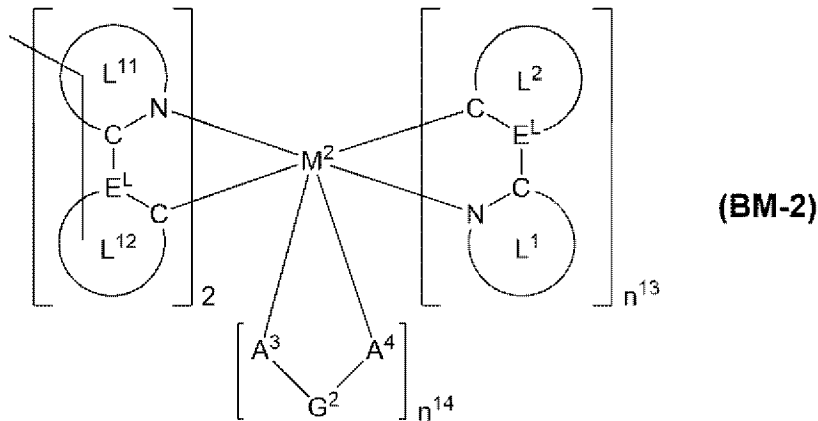
[0301] L^d 、 L^e 及び $A r^{III}$ が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲は、それぞれ、前述の $A r^{VI}$ で表される基が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0302] [式(1-3B)で表される構成単位]

M^{2B} は、式(BM-2)又は(BM-3)で表される基であることがより好ましく、式(BM-2)で表される基であることが更に好ましい。

[0303]

[化83]



[式中、

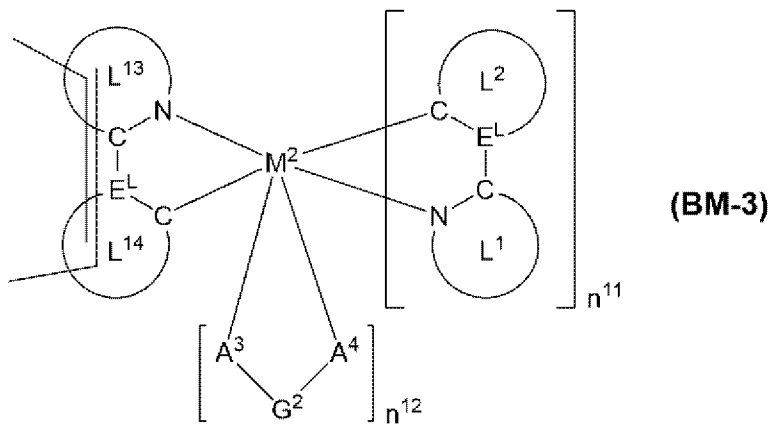
M^2 、 E^L 、環 L^1 、環 L^2 、環 L^{11} 、環 L^{12} 及び $A^3-G^2-A^4$ は前記と同じ意味を表す。複数存在する環 L^{11} は、同一でも異なってもよい。複数存在する環 L^{12} は、同一でも異なってもよい。

n^{13} 及び n^{14} は、それぞれ独立に、0 以上の整数を表す。但し、 $n^{13} + n^{14}$ は 0 又は 1 である。 M^2 がロジウム原子又はイリジウム原子の場合、 $n^{13} + n^{14}$ は 1 であり、 M^2 がパラジウム原子又は白金原子の場合、 $n^{13} + n^{14}$ は 0 である。

]

[0304] M^2 がロジウム原子又はイリジウム原子の場合、 n^{13} が 1 であることが好ましい。

[0305] [化84]



[式中、

M^2 、 E^L 、環 L^1 、環 L^2 、 $A^3-G^2-A^4$ 、 n^{11} 及び n^{12} は、前記と同じ意味を

表す。

環 L^{13} は、6員の芳香族複素環を表し、これらの環は置換基を有していてもよい。該置換基が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよく、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。

環 L^{14} は、芳香族炭化水素環又は芳香族複素環を表し、これらの環は置換基を有していてもよい。該置換基が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよく、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。

但し、環 L^{13} 及び環 L^{14} の一方は2つの結合手を有するか、又は、環 L^{13} 及び環 L^{14} は、それぞれ、結合手を1つずつ有する。]

[0306] 環 L^{13} が結合手を有さない場合、環 L^{13} の定義、例及び好ましい範囲は、環 L^1 の定義、例及び好ましい範囲と同様である。

[0307] 環 L^{13} が結合手を有する場合、環 L^{13} の結合手を除いた環部分の定義、例及び好ましい範囲は、環 L^1 の定義、例及び好ましい範囲と同様である。

[0308] 環 L^{14} が結合手を有さない場合、環 L^{14} の定義、例及び好ましい範囲は、環 L^2 の定義、例及び好ましい範囲と同様である。

[0309] 環 L^{14} が結合手を有する場合、環 L^{14} の結合手を除いた環部分の定義、例及び好ましい範囲は、環 L^2 の定義、例及び好ましい範囲と同様である。

[0310] 環 L^{13} 及び環 L^{14} が有していてもよい置換基の定義、例及び好ましい範囲は、環 L^1 及び環 L^2 が有していてもよい置換基の定義、例及び好ましい範囲と同様である。

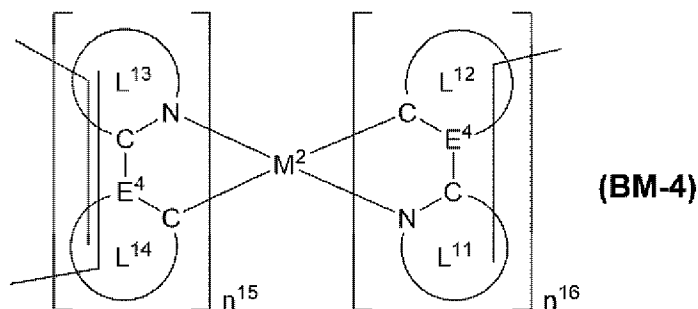
[0311] 環 L^{13} 及び環 L^{14} は、それぞれ、結合手を1つずつ有することが好ましい。

[0312] [式(1-4B)で表される構成単位]

M^{3B} は、式(BM-4)で表される基であることが好ましい。

[0313]

[化85]



[式中、

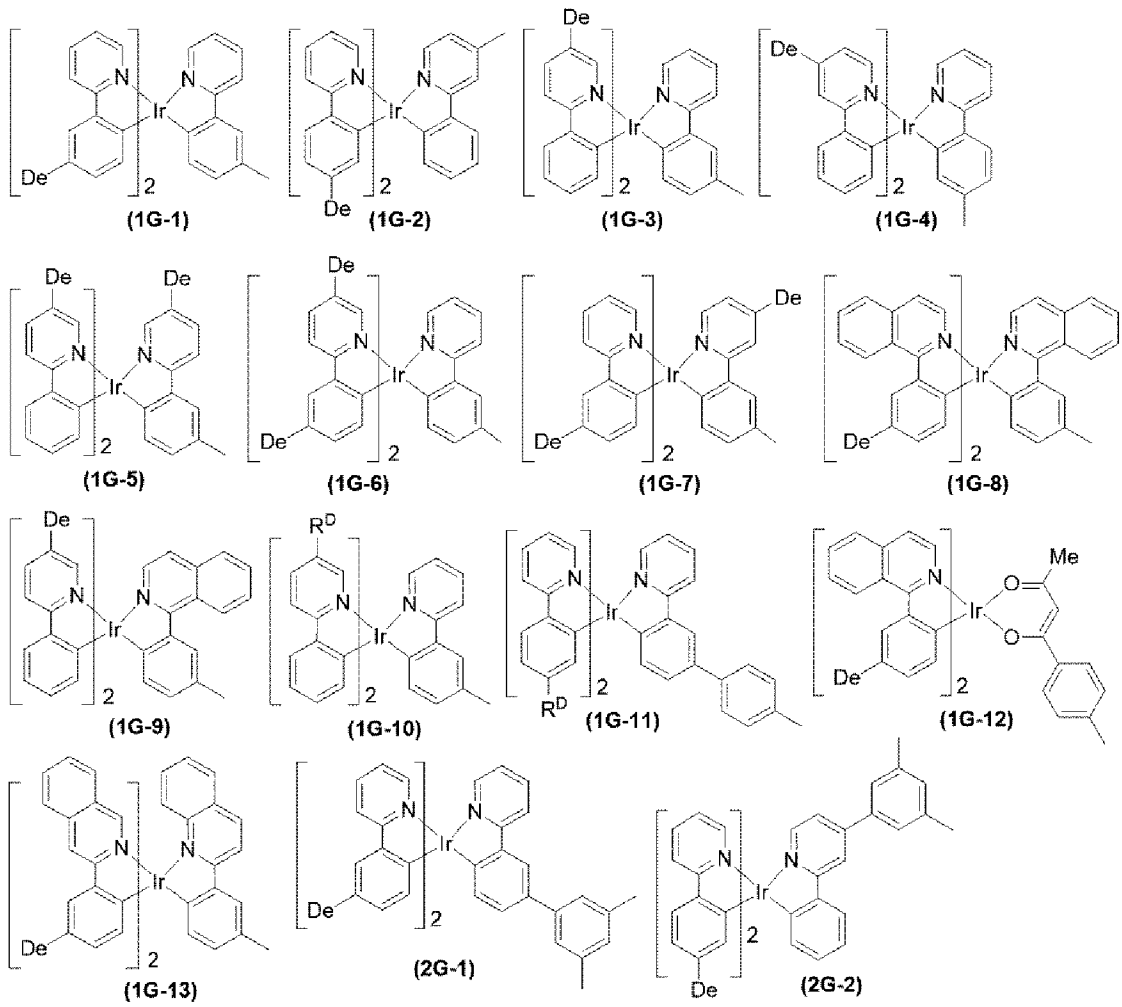
M^2 、 E^L 、環 L^{11} 、環 L^{12} 、環 L^{13} 及び環 L^{14} は、前記と同じ意味を表す。

n^{15} は0又は1を表す。 n^{16} は1又は3を表す。但し、 M^2 がロジウム原子又はイリジウム原子の場合、 n^{15} は0であり、かつ、 n^{16} は3である。 M^2 がパラジウム原子又は白金原子の場合、 n^{15} は1であり、かつ、 n^{16} は1である。]

[0314] 金属錯体構成単位としては、例えば、式(1G-1)～(1G-13)、(2G-1)～(2G-16)、(3G-1)～(3G-23)又は(4G-1)～(4G-6)で表される構成単位が挙げられる。

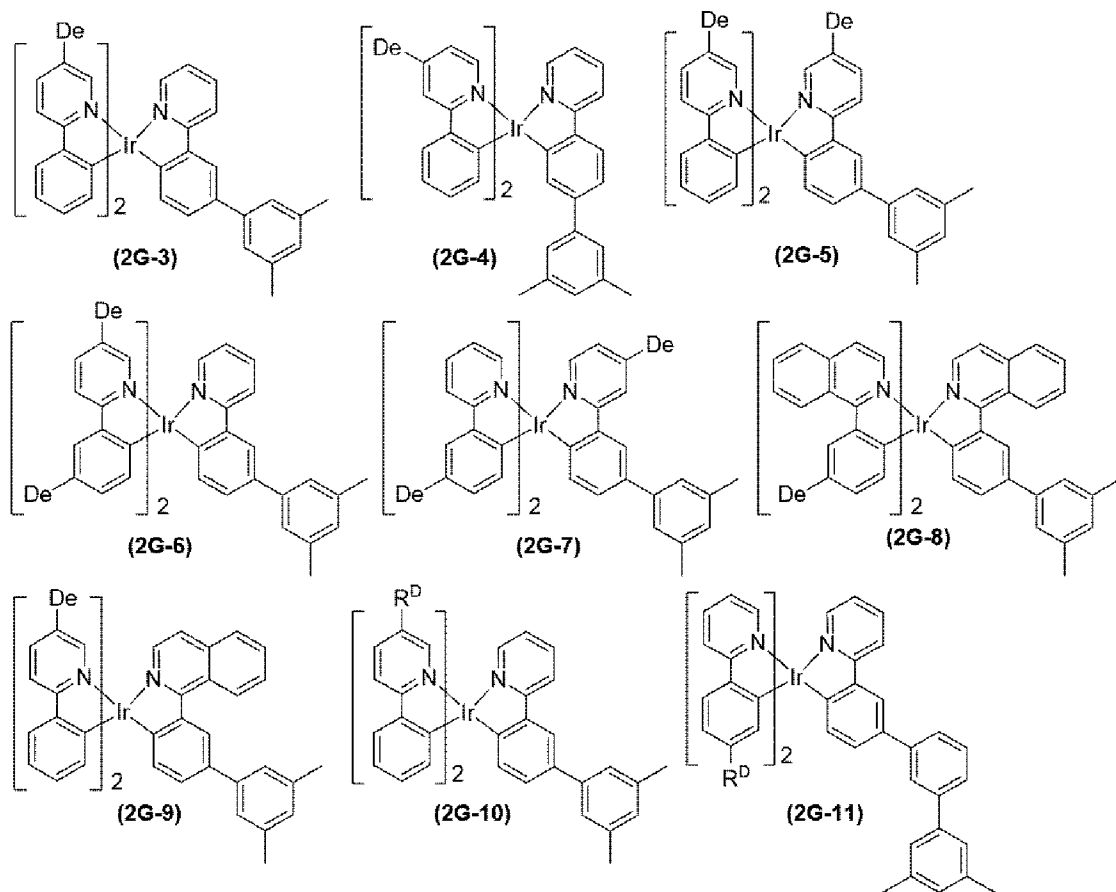
[0315]

[化86]

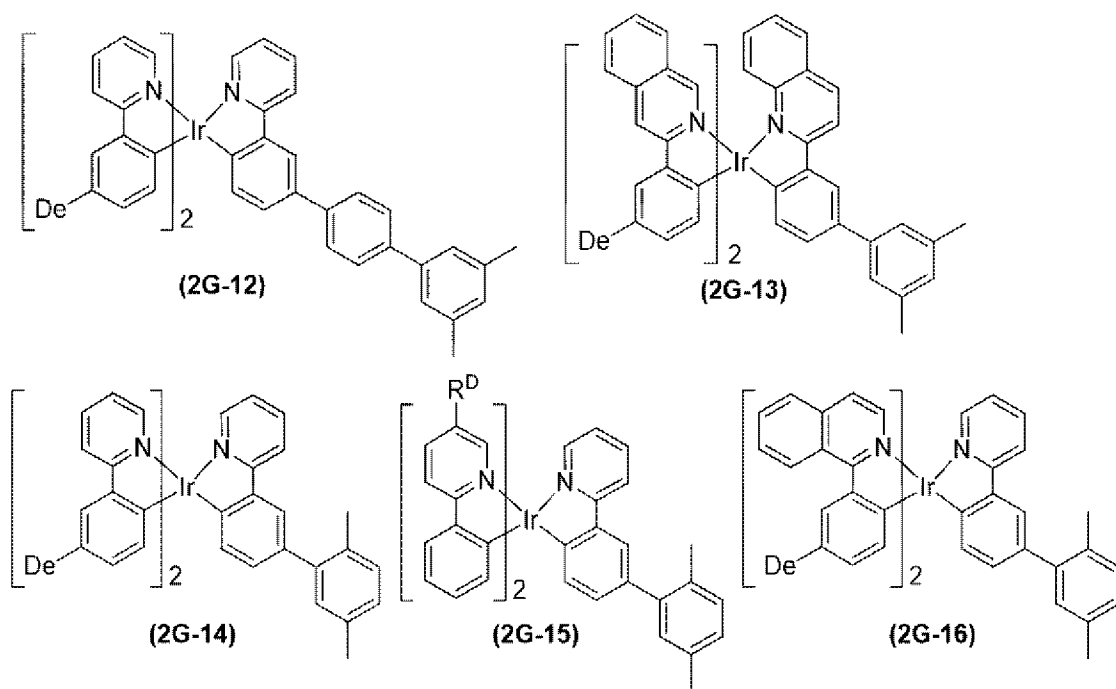


[0316]

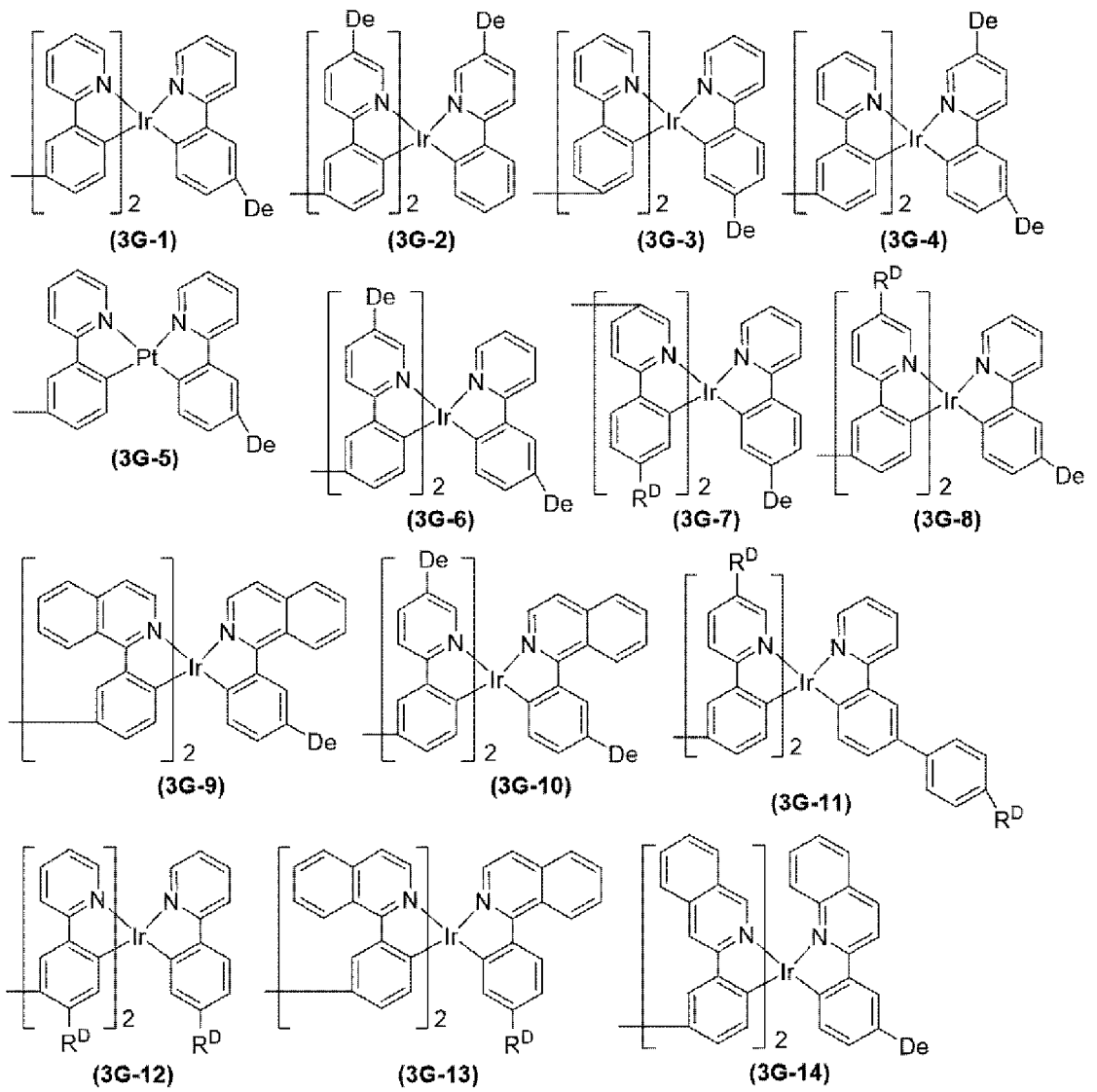
[化87]



[0317] [化88]

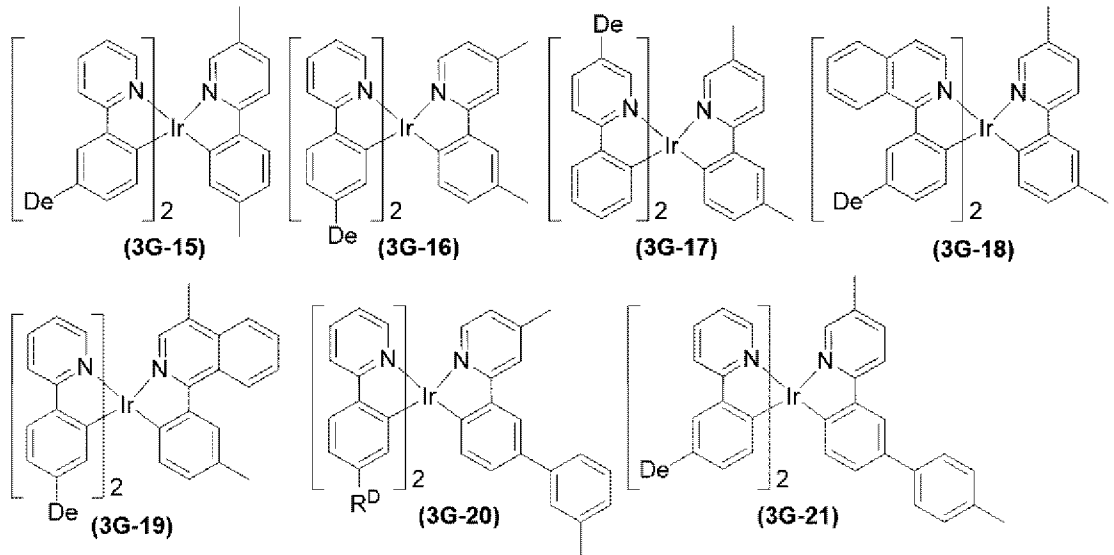


[0318] [化89]

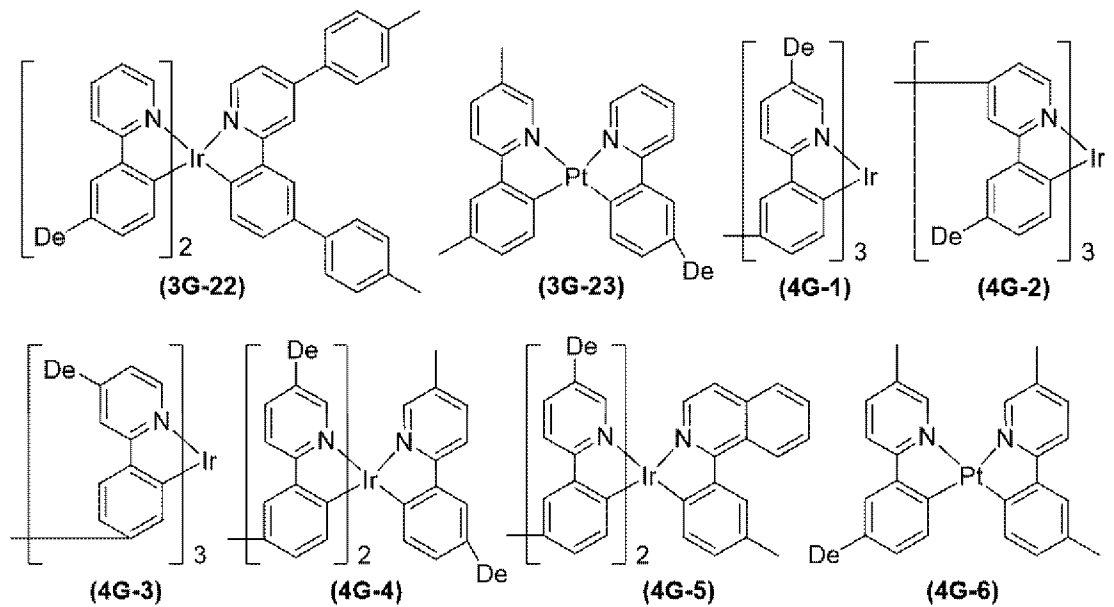


[0319]

[化90]



[0320] [化91]



[式中、R^Dは、前記と同じ意味を表す。Deは式(D-A)、(D-B)又は(D-C)で表される基を表す。]

[0321] 金属錯体構成単位は、本発明の発光素子の外部量子効率が優れるので、第2の有機層の高分子化合物に含まれる構成単位の合計量に対して、好ましくは0.01~50モル%であり、より好ましくは0.1~30モル%であり、更に好ましくは0.5~10モル%であり、特に好ましくは1~5モル%である。金属錯体構成単位は、第2の有機層の高分子化合物中に、1種のみ

含まれていてもよく、2種以上含まれていてもよい。

[0322] 第2の有機層の高分子化合物は、本発明の発光素子を湿式法で形成でき、かつ、発光素子の積層化が可能であるので、金属錯体構成単位及び架橋基を有する構成単位を含む高分子化合物（以下、「第2'の有機層の高分子化合物」という。）の架橋体であることが好ましい。

[0323] 架橋基を有する構成単位は、第2'の有機層の高分子化合物の安定性及び架橋性が優れるので、第2'の有機層の高分子化合物に含まれる構成単位の合計量に対して、好ましくは0.5～80モル%であり、より好ましくは3～65モル%であり、更に好ましくは5～50モル%である。架橋基を有する構成単位は、第2'の有機層の高分子化合物中に、1種のみ含まれていてもよく、2種以上含まれていてもよい。

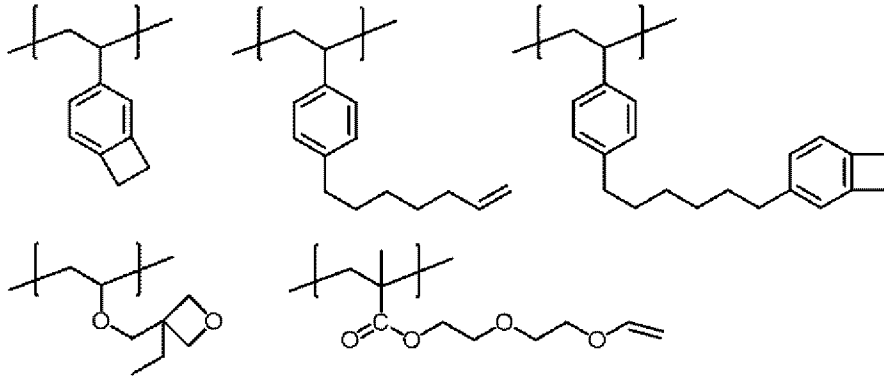
[0324] [架橋基を有する構成単位]

架橋基を有する構成単位において、架橋基は、本発明の発光素子の外部量子効率優れるので、架橋基A群から選ばれる架橋基であることが好ましい。

[0325] 架橋基A群から選ばれる架橋基としては、本発明の発光素子の外部量子効率優れるので、好ましくは、式(XL-1)～式(XL-4)、式(XL-7)～式(XL-10)又は式(XL-14)～式(XL-19)で表される架橋基であり、より好ましくは、式(XL-1)、式(XL-3)、式(XL-9)、式(XL-10)又は式(XL-16)～式(XL-19)で表される架橋基であり、更に好ましくは、式(XL-1)又は式(XL-16)～式(XL-19)で表される架橋基であり、特に好ましくは、式(XL-1)又は式(XL-17)で表される架橋基である。

[0326] 第2'の有機層の高分子化合物における架橋基A群から選ばれる少なくとも一種の架橋基を有する構成単位は、式(Z)で表される構成単位又は式(Z')で表される構成単位であることが好ましく、式(Z)で表される構成単位であることがより好ましいが、下記式で表される構成単位であってもよい。

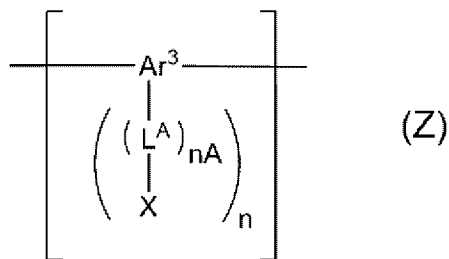
[0327] [化92]



[0328] 第2'の有機層の高分子化合物が、架橋基A群から選ばれる少なくとも1種の架橋基を有する構成単位を2種以上含む場合、架橋基A群から選ばれる少なくとも1種の架橋基を有する構成単位の少なくとも2種は、架橋基が互いに異なることが好ましい。互いに異なる架橋基の組み合わせとしては、式(XL-1)、式(XL-2)、式(XL-5)～式(XL-8)又は式(XL-14)～式(XL-16)で表される架橋基と、式(XL-3)、式(XL-4)、式(XL-13)又は式(XL-17)～式(XL-19)で表される架橋基との組み合わせが好ましく、式(XL-1)又は式(XL-16)で表される架橋基と、式(XL-17)～式(XL-19)で表される架橋基との組み合わせがより好ましく、式(XL-1)で表される架橋基と、式(XL-17)で表される架橋基との組み合わせが更に好ましい。

[0329] ・式(Z)で表される構成単位

[0330] [化93]



[式中、

$n\text{A}$ は0～5の整数を表し、 n は1又は2を表す。 $n\text{A}$ が複数存在する場合、それらは同一でも異なっていてもよい。

$A r^3$ は、芳香族炭化水素基又は複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。

L^A は、アルキレン基、シクロアルキレン基、アリーレン基、2価の複素環基、 $-NR'$ で表される基、酸素原子又は硫黄原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。 R' は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。 L^A が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。

X は、架橋基A群から選ばれる架橋基を表す。 X が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。]

[0331] n_A は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、好ましくは0~3の整数であり、より好ましくは0~2の整数であり、更に好ましくは1又は2である。

[0332] n は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、好ましくは2である。

[0333] $A r^3$ は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、好ましくは置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基である。

[0334] $A r^3$ で表される芳香族炭化水素基の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めなくて、通常6~60であり、好ましくは6~30であり、より好ましくは6~18である。

$A r^3$ で表される芳香族炭化水素基の n 個の置換基を除いたアリーレン基部分の例及び好ましい範囲は、 $A r^{Y1}$ で表されるアリーレン基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0335] $A r^3$ で表される複素環基の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めなくて、通常2~60であり、好ましくは3~30であり、より好ましくは4~18である。

$A r^3$ で表される複素環基の n 個の置換基を除いた2価の複素環基部分の例及び好ましい範囲は、 $A r^{Y1}$ で表される2価の複素環基の例及び好ましい範囲

と同じである。

$A r^3$ で表される基が有してもよい置換基の例及び好ましい範囲は、 $A r^{VI}$ で表される基が有してもよい置換基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0336] アルキレン基の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常1～20であり、好ましくは1～15であり、より好ましくは1～10である。シクロアルキレン基の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常3～20である。

アルキレン基及びシクロアルキレン基としては、例えば、メチレン基、エチレン基、プロピレン基、ブチレン基、ヘキシレン基、シクロヘキシレン基、オクチレン基が挙げられ、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0337] L^A で表されるアリーレン基の例及び好ましい範囲は、 $A r^{VI}$ で表されるアリーレン基の例及び好ましい範囲と同じであるが、本発明の発光素子の外部量子効率により優れるので、 L^A で表されるアリーレン基は、好ましくは、フェニレン基又はフルオレンジイル基であり、より好ましくは、*m*-フェニレン基、*p*-フェニレン基、フルオレン-2,7-ジイル基、フルオレン-9,9-ジイル基であり、これらの基は更に置換基を有していてもよい。

L^A で表される2価の複素環基の例及び好ましい範囲は、 $A r^{VI}$ で表される2価の複素環基の例及び好ましい範囲と同じである。

L^A は、第2'の有機層の高分子化合物の製造が容易になるので、好ましくは、アリーレン基又はアルキレン基であり、より好ましくは、フェニレン基、フルオレンジイル基又はアルキレン基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

L^A で表される基が有してもよい置換基は、好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、1価の複素環基、置換アミノ基、フッ素原子、シアノ基又は架橋基A群から選ばれる架橋基であり、より好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、1価の複素環基又は架橋基A群から選ばれる架橋基であり、更に好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基

[式中、

$m A$ は0～5の整数を表し、 m は1～4の整数を表し、 c は0又は1の整数を表す。 $m A$ が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。

$A r^5$ は、芳香族炭化水素基、複素環基、又は、芳香族炭化水素環と複素環とが直接結合した基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。

$A r^4$ 及び $A r^6$ は、それぞれ独立に、アリーレン基又は2価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。

$A r^4$ 、 $A r^5$ 及び $A r^6$ はそれぞれ、該基が結合している窒素原子に結合している該基以外の基と、直接結合又は酸素原子若しくは硫黄原子を介して結合して、環を形成していてもよい。

K^A は、アルキレン基、シクロアルキレン基、アリーレン基、2価の複素環基、 $-N R'$ で表される基、酸素原子又は硫黄原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。 R' は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。 K^A が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。

X' は、架橋基A群から選ばれる架橋基、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。 X' が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。但し、少なくとも1つの X' は、架橋基A群から選ばれる架橋基である。]

[0342] $m A$ は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、好ましくは0～3の整数であり、より好ましくは0～2の整数であり、更に好ましくは0又は1であり、特に好ましくは0である。

[0343] m は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、好ましくは1又は2であり、より好ましくは2である。

[0344] c は、第2'の有機層の高分子化合物の製造が容易になり、且つ、本発明

の発光素子の外部量子効率がより優れるので、好ましくは0である。

[0345] $A r^5$ は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、好ましくは置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基である。

$A r^5$ で表される芳香族炭化水素基のm個の置換基を除いたアリーレン基部分の定義や例は、式(X)における $A r^{X2}$ で表されるアリーレン基の定義や例と同じである。

$A r^5$ で表される複素環基のm個の置換基を除いた2価の複素環基部分の定義や例は、式(X)における $A r^{X2}$ で表される2価の複素環基部分の定義や例と同じである。

$A r^5$ で表される芳香族炭化水素環と複素環とが直接結合した基のm個の置換基を除いた2価の基の定義や例は、式(X)における $A r^{X2}$ で表されるアリーレン基と2価の複素環基とが直接結合した2価の基の定義や例と同じである。

[0346] $A r^4$ 及び $A r^6$ は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、好ましくは置換基を有していてもよいアリーレン基である。

$A r^4$ 及び $A r^6$ で表されるアリーレン基の定義や例は、式(X)における $A r^{X1}$ 及び $A r^{X3}$ で表されるアリーレン基の定義や例と同じである。

$A r^4$ 及び $A r^6$ で表される2価の複素環基の定義や例は、式(X)における $A r^{X1}$ 及び $A r^{X3}$ で表される2価の複素環基の定義や例と同じである。

[0347] $A r^4 \sim A r^6$ で表される基が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲は、 $A r^{Y1}$ で表される基が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0348] K^A で表されるアルキレン基、シクロアルキレン基、アリーレン基、2価の複素環基の定義や例は、それぞれ、 L^A で表されるアルキレン基、シクロアルキレン基、アリーレン基、2価の複素環基の定義や例と同じである。

K^A は、第2'の有機層の高分子化合物の製造が容易になるので、フェニレン基又はメチレン基であることが好ましい。

[0349] X' で表される架橋基の定義や例は、 X で表される架橋基の定義や例と同

じである。

[0350] 式 (Z') で表される構成単位は、第 2' の有機層の高分子化合物の安定性が優れ、且つ、第 2' の有機層の高分子化合物の架橋性が優れるので、第 2' の有機層の高分子化合物に含まれる構成単位の合計量に対して、好ましくは 0.5~50 モル% であり、より好ましくは 3~30 モル% であり、更に好ましくは 5~20 モル% である。

式 (Z') で表される構成単位は、第 2 の有機層の高分子化合物中に、1 種のみ含まれていてもよく、2 種以上含まれていてもよい。

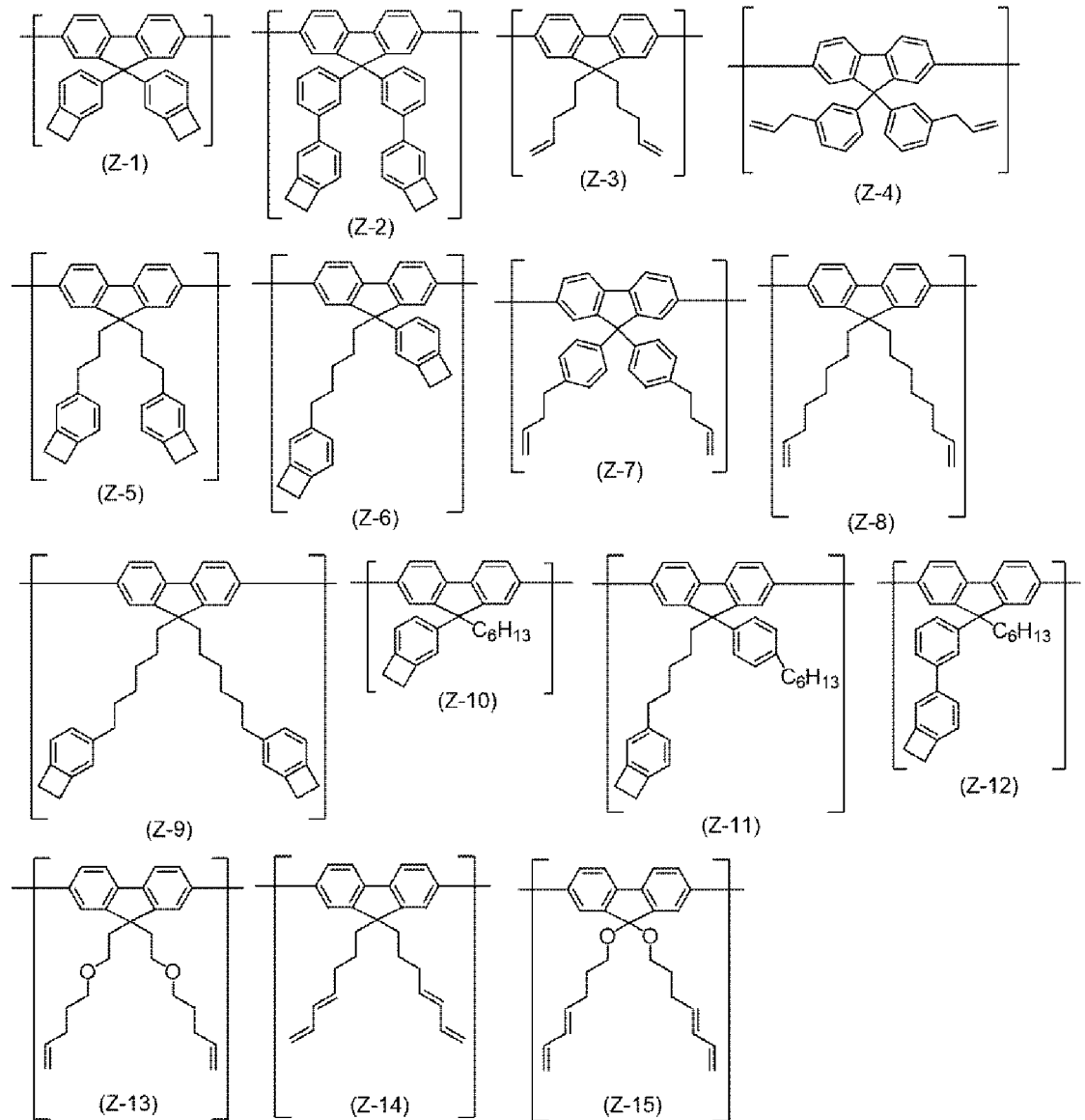
[0351] 第 2' の有機層の高分子化合物が、式 (Z') で表される構成単位を 2 種以上含む場合、式 (Z') で表される構成単位の少なくとも 2 種は、X' で表される架橋基が互いに異なることが好ましい。互いに異なる X' で表される架橋基の組み合わせの好ましい範囲は、前述の互いに異なる架橋基の組み合わせの好ましい範囲と同じである。

[0352] ・式 (Z) 又は (Z') で表される構成単位の好ましい態様

式 (Z) で表される構成単位としては、例えば、式 (Z-1) ~ 式 (Z-30) で表される構成単位が挙げられ、式 (Z') で表される構成単位としては、例えば、式 (Z'-1) ~ 式 (Z'-9) で表される構成単位が挙げられる。これらの中でも、第 2' の有機層の高分子化合物の架橋性が優れるので、好ましくは式 (Z-1) ~ 式 (Z-30) で表される構成単位であり、より好ましくは式 (Z-1) ~ 式 (Z-15)、式 (Z-19)、式 (Z-20)、式 (Z-23)、式 (Z-25) 又は式 (Z-30) で表される構成単位であり、更に好ましくは式 (Z-1) ~ 式 (Z-9) 又は式 (Z-30) で表される構成単位である。

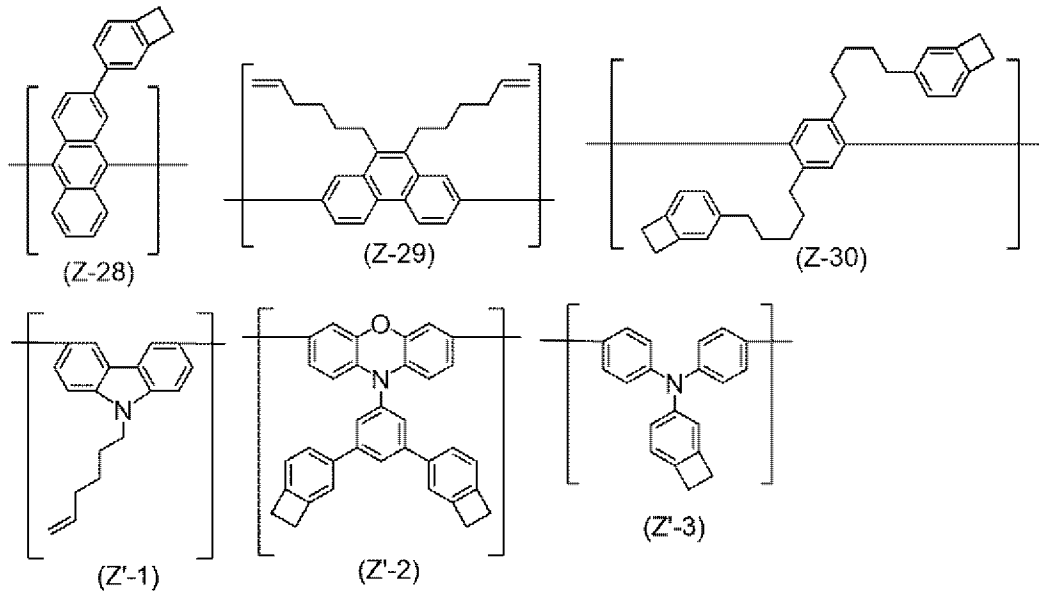
[0353]

[化95]

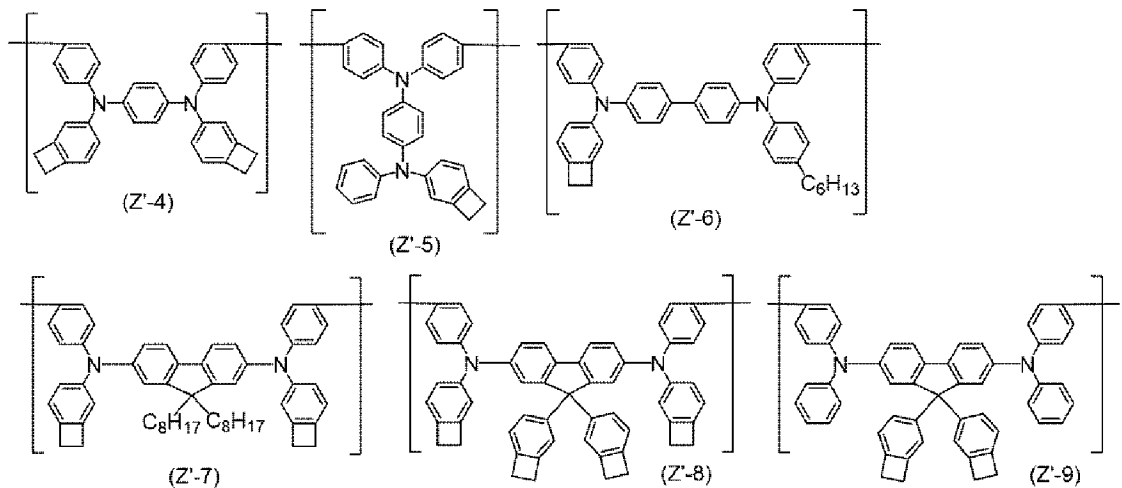


[0354]

[化97]



[0356] [化98]



[0357] 第2の有機層の高分子化合物は、正孔輸送性が優れるので、更に、式(X)で表される構成単位を含むことが好ましい。

第2の有機層の高分子化合物が含んでいてもよい式(X)で表される構成単位の定義、例及び好ましい範囲は、前述の高分子ホストが含んでいてもよい式(X)で表される構成単位の定義、例及び好ましい範囲と同じである。

第2の有機層の高分子化合物が式(X)で表される構成単位を含む場合、第2の有機層の高分子化合物に含まれる式(X)で表される構成単位は、正孔輸送性がより優れるので、第2の有機層の高分子化合物に含まれる構成単

位の合計量に対して、好ましくは1～90モル%であり、より好ましくは10～70モル%であり、更に好ましくは30～50モル%である。

[0358] 式(X)で表される構成単位は、第2の有機層の高分子化合物中に、1種のみ含まれていてもよく、2種以上含まれていてもよい。式(X)で表される構成単位は、第2'の有機層の高分子化合物中に、1種のみ含まれていてもよく、2種以上含まれていてもよい。

[0359] 第2の有機層の高分子化合物は、本発明の発光素子の外部量子効率が良いので、更に、式(Y)で表される構成単位を含むことが好ましい。

[0360] 第2の有機層の高分子化合物が含んでいてもよい式(Y)で表される構成単位の定義、例及び好ましい範囲は、前述の高分子ホストが含んでいてもよい式(Y)で表される構成単位の定義、例及び好ましい範囲と同じである。

[0361] 第2の有機層の高分子化合物が式(Y)で表される構成単位を含み、 $A r^{Y1}$ がアリーレン基である場合、第2の有機層の高分子化合物に含まれる式(Y)で表される構成単位は、本発明の発光素子の外部量子効率が良いので、第2の有機層の高分子化合物に含まれる構成単位の合計量に対して、好ましくは0.5～90モル%であり、より好ましくは30～80モル%である。

[0362] 第2の有機層の高分子化合物が式(Y)で表される構成単位を含み、 $A r^{Y1}$ が2価の複素環基、又は、アリーレン基と2価の複素環基とが直接結合した2価の基である場合、第2の有機層の高分子化合物に含まれる式(Y)で表される構成単位は、本発明の発光素子の電荷輸送性が良いので、第2の有機層の高分子化合物に含まれる構成単位の合計量に対して、好ましくは0.5～50モル%であり、より好ましくは3～30モル%である。

[0363] 式(Y)で表される構成単位は、第2の有機層の高分子化合物中に、1種のみ含まれていてもよく、2種以上含まれていてもよい。式(Y)で表される構成単位は、第2'の有機層の高分子化合物中に、1種のみ含まれていてもよく、2種以上含まれていてもよい。

[0364] 第2の有機層の高分子化合物としては、例えば、高分子化合物P-15～

P-29が挙げられる。ここで、「その他」の構成単位とは、金属錯体構成単位、架橋基を有する構成単位、式(X)で表される構成単位及び式(Y)で表される構成単位以外の構成単位を意味する。

[0365] [表2]

高分子化合物	構成単位とそのモル比率					
	金属錯体構成単位	架橋基を有する構成単位		式(X)	式(Y)	その他
		式(Z)	式(Z')			
p'''	q'''	r'''	s'''	t'''	u'''	
P-15	0.1~99.9	0	0	0.1~99.9	0	0~30
P-16	0.1~99.9	0	0	0	0.1~99.9	0~30
P-17	0.1~99.8	0	0	0.1~99.8	0.1~99.8	0~30
P-18	0.1~99.9	0.1~99.9	0	0	0	0~30
P-19	0.1~99.9	0	0.1~99.9	0	0	0~30
P-20	0.1~99.8	0.1~99.8	0.1~99.8	0	0	0~30
P-21	0.1~99.8	0.1~99.8	0	0.1~99.8	0	0~30
P-22	0.1~99.8	0.1~99.8	0	0	0.1~99.8	0~30
P-23	0.1~99.8	0	0.1~99.8	0.1~99.8	0	0~30
P-24	0.1~99.8	0	0.1~99.8	0	0.1~99.8	0~30
P-25	0.1~99.7	0.1~99.7	0.1~99.7	0.1~99.7	0	0~30
P-26	0.1~99.7	0.1~99.7	0.1~99.7	0	0.1~99.7	0~30
P-27	0.1~99.7	0.1~99.7	0	0.1~99.7	0.1~99.7	0~30
P-28	0.1~99.7	0	0.1~99.7	0.1~99.7	0.1~99.7	0~30
P-29	0.1~99.6	0.1~99.6	0.1~99.6	0.1~99.6	0.1~99.6	0~30

[表中、p'''、q'''、r'''、s'''、t'''及びu'''は、各構成単位のモル比率を表す。p''' + q''' + r''' + s''' + t''' + u''' = 100であり、且つ、70 ≤ p''' + q''' + r''' + s''' + t''' ≤ 100である。]

[0366] 第2の有機層の高分子化合物は、それぞれ、ブロック共重合体、ランダム共重合体、交互共重合体、グラフト共重合体のいずれであってもよいし、その他の態様であってもよいが、複数種の原料モノマーを共重合してなる共重合体であることが好ましい。

[0367] 第2の有機層の高分子化合物のポリスチレン換算の数平均分子量は、好ましくは $5 \times 10^3 \sim 1 \times 10^6$ であり、より好ましくは $1 \times 10^4 \sim 5 \times 10^5$ であり、より好ましくは $1.5 \times 10^4 \sim 1 \times 10^5$ である。

[0368] ・第2の有機層の高分子化合物の製造方法

第2の有機層の高分子化合物は、前述の高分子ホストの製造方法と同様の方法で製造することができる。上記以外の製造方法として、例えば、特開2003-171659号公報、国際公開第2006/003000号、特開2010-43243号公報、特開2011-105701号公報、国際公開第2013/021180号、特開2015-174931号公報、特開2015-174932号公報に記載されている方法に従って合成することができる。

[0369] 第2の有機層は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、好ましくは、式(2)で表される金属錯体及び第2の有機層の高分子化合物を含有する層、又は、第2の有機層の高分子化合物を含有する層であり、より好ましくは、第2の有機層の高分子化合物を含有する層である。

[0370] 第2の有機層が、式(2)で表される金属錯体及び第2の有機層の高分子化合物を含有する層である場合、式(2)で表される金属錯体の含有量は、式(2)で表される金属錯体及び第2の有機層の高分子化合物の合計を100質量部とした場合、通常、0.01~99質量部であり、好ましくは0.1~50質量部であり、より好ましくは0.5~20質量部であり、更に好ましくは1~10質量部である。

[0371] 第2の有機層は、式(2)で表される金属錯体及び第2の有機層の高分子化合物からなる群より選ばれる少なくとも1種と、架橋基を有する化合物の架橋体とを含む組成物(以下、「第2の組成物」という。)を含有する層であってもよく、本発明の発光素子の外部量子効率が優れ、且つ、本発明の発光素子を湿式法で作製できるので、式(2)で表される金属錯体と架橋基を有する化合物とを含む組成物を含有する層であることが好ましい。

但し、第2の有機層の高分子化合物と架橋基を有する化合物とは異なる。第2の組成物において、架橋基を有する化合物の架橋体は、1種単独で含有されていても、2種以上含有されていてもよい。

[0372] 第2の組成物において、架橋基を有する化合物の架橋体の含有量は、架橋基を有する化合物の架橋体、式(2)で表される金属錯体及び第2の有機層

の高分子化合物の合計を100質量部とした場合、通常、1～99質量部であり、好ましくは10～95質量部であり、より好ましくは30～90質量部であり、更に好ましくは50～85質量部である。

[0373] 架橋基を有する化合物としては、例えば、架橋基を有する低分子化合物及び架橋基を有する構成単位を含む高分子化合物が挙げられ、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、架橋基A群から選ばれる少なくとも1種の架橋基を有する低分子化合物（以下、「第2の組成物の低分子化合物」という。）、又は、架橋基A群から選ばれる少なくとも1種の架橋基を有する構成単位を含む高分子化合物（以下、「第2の組成物の高分子化合物」という。）であることが好ましく、第2の組成物の高分子化合物であることがより好ましい。

第2'の有機層の高分子化合物と、第2の組成物の高分子化合物とは異なる（即ち、第2の組成物の高分子化合物は、金属錯体構成単位を含まない高分子化合物である）。

[0374] 架橋基を有する化合物における架橋基の例及び好ましい範囲は、架橋基を有する構成単位における架橋基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0375] [第2の組成物の高分子化合物]

第2の組成物の高分子化合物における架橋基A群から選ばれる少なくとも1種の架橋基を有する構成単位の定義、例及び好ましい範囲は、第2'の有機層の高分子化合物における架橋基A群から選ばれる少なくとも1種の架橋基を有する構成単位の定義、例及び好ましい範囲と同じである。

[0376] 架橋基A群から選ばれる少なくとも1種の架橋基を有する構成単位は、第2の組成物の高分子化合物の安定性及び架橋性が優れるので、第2の組成物の高分子化合物に含まれる構成単位の合計量に対して、好ましくは0.5～80モル%であり、より好ましくは3～65モル%であり、更に好ましくは5～50モル%である。

[0377] 架橋基A群から選ばれる少なくとも1種の架橋基を有する構成単位は、第2の組成物の高分子化合物中に、1種のみ含まれていてもよく、2種以上含

まれていてもよい。

[0378] 第2の組成物の高分子化合物において、架橋基A群から選ばれる少なくとも1種の架橋基を有する構成単位は、好ましくは、式(Z)で表される構成単位又は式(Z')で表される構成単位であり、より好ましくは、式(Z)で表される構成単位である。

[0379] 第2の組成物の高分子化合物が式(Z)で表される構成単位を含む場合、式(Z)で表される構成単位は、第2の組成物の高分子化合物の安定性及び架橋性が優れるので、第2の組成物の高分子化合物に含まれる構成単位の合計量に対して、好ましくは0.5~80モル%であり、より好ましくは3~65モル%であり、更に好ましくは5~50モル%である。式(Z)で表される構成単位は、第2の組成物の高分子化合物中に、1種のみ含まれていてもよく、2種以上含まれていてもよい。

[0380] 第2の組成物の高分子化合物が式(Z')で表される構成単位を含む場合、式(Z')で表される構成単位は、第2の組成物の高分子化合物の安定性が優れ、且つ、第2の組成物の高分子化合物の架橋性が優れるので、第2の組成物の高分子化合物に含まれる構成単位の合計量に対して、好ましくは0.5~50モル%であり、より好ましくは3~30モル%であり、更に好ましくは5~20モル%である。式(Z')で表される構成単位は、第2の組成物の高分子化合物中に、1種のみ含まれていてもよく、2種以上含まれていてもよい。

[0381] 第2の組成物の高分子化合物は、正孔輸送性が優れるので、更に、式(X)で表される構成単位を含むことが好ましい。第2の組成物の高分子化合物が含んでいてもよい式(X)で表される構成単位の定義、例及び好ましい範囲は、前述の高分子ホストが含んでいてもよい式(X)で表される構成単位の定義、例及び好ましい範囲と同じである。

[0382] 第2の組成物の高分子化合物が式(X)で表される構成単位を含む場合、第2の組成物の高分子化合物に含まれる式(X)で表される構成単位は、正孔輸送性がより優れるので、第2の組成物の高分子化合物に含まれる構成単

位の合計量に対して、好ましくは1～90モル%であり、より好ましくは10～70モル%であり、更に好ましくは30～50モル%である。式(X)で表される構成単位は、第2の組成物の高分子化合物中に、1種のみ含まれていてもよく、2種以上含まれていてもよい。

[0383] 第2の組成物の高分子化合物は、本発明の発光素子の外部量子効率が優れるので、更に、式(Y)で表される構成単位を含むことが好ましい。第2の組成物の高分子化合物が含んでいてもよい式(Y)で表される構成単位の定義、例及び好ましい範囲は、前述の高分子ホストが含んでいてもよい式(Y)で表される構成単位の定義、例及び好ましい範囲と同じである。

[0384] 第2の組成物の高分子化合物が式(Y)で表される構成単位を含み、 $A r^{Y1}$ がアリーレン基である場合、第2の組成物の高分子化合物に含まれる式(Y)で表される構成単位は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、第2の組成物の高分子化合物に含まれる構成単位の合計量に対して、好ましくは0.5～90モル%であり、より好ましくは30～80モル%である。第2の組成物の高分子化合物が式(Y)で表される構成単位を含み、 $A r^{Y1}$ が2価の複素環基、又は、アリーレン基と2価の複素環基とが直接結合した2価の基である場合、第2の組成物の高分子化合物に含まれる式(Y)で表される構成単位は、本発明の発光素子の電荷輸送性がより優れるので、第2の組成物の高分子化合物に含まれる構成単位の合計量に対して、好ましくは0.5～50モル%であり、より好ましくは3～30モル%である。

[0385] 式(Y)で表される構成単位は、第2の組成物の高分子化合物中に、1種のみ含まれていてもよく、2種以上含まれていてもよい。

[0386] 第2の組成物の高分子化合物としては、例えば、高分子化合物P-7～P-14が挙げられる。ここで、「その他」の構成単位とは、架橋基を有する構成単位、式(X)及び式(Y)で表される構成単位以外の構成単位を意味する。

[0387]

[表3]

高分子化合物	構成単位とそのモル比率				
	架橋基を有する構成単位		式(X)	式(Y)	その他
	式(Z)	式(Z')			
	p'	q'	r'	s'	t'
P-7	0.1~99.9	0.1~99.9	0	0	0~30
P-8	0.1~99.9	0	0.1~99.9	0	0~30
P-9	0.1~99.9	0	0	0.1~99.9	0~30
P-10	0	0.1~99.9	0.1~99.9	0	0~30
P-11	0	0.1~99.9	0	0.1~99.9	0~30
P-12	0.1~99.8	0.1~99.8	0.1~99.8	0	0~30
P-13	0.1~99.8	0.1~99.8	0	0.1~99.8	0~30
P-14	0.1~99.7	0.1~99.7	0.1~99.7	0.1~99.7	0~30

[表中、p'、q'、r'、s'及びt'は、各構成単位のモル比率を表す。p' + q' + r' + s' + t' = 100であり、且つ、70 ≤ p' + q' + r' + s' ≤ 100である。]

[0388] 第2の組成物の高分子化合物は、ブロック共重合体、ランダム共重合体、交互共重合体、グラフト共重合体のいずれであってもよいし、その他の態様であってもよいが、複数種の原料モノマーを共重合してなる共重合体であることが好ましい。

[0389] 第2の組成物の高分子化合物のポリスチレン換算の数平均分子量は、好ましくは $5 \times 10^3 \sim 1 \times 10^6$ であり、より好ましくは $1 \times 10^4 \sim 5 \times 10^5$ であり、より好ましくは $1.5 \times 10^4 \sim 1 \times 10^5$ である。

[0390] ・第2の組成物の高分子化合物の製造方法

第2の組成物の高分子化合物は、前述の高分子ホストの製造方法と同様の方法で製造することができる。

[0391] [第2の組成物の低分子化合物]

第2の組成物の低分子化合物は、式(3)で表される低分子化合物が好ましい。

[0392]

好ましくは0～5の整数であり、より好ましくは0～3の整数であり、更に好ましくは1又は2であり、特に好ましくは1である。

[0395] m^{B3} は、通常、0～5の整数であり、第2の組成物の低分子化合物の合成が容易であるので、好ましくは0～4の整数であり、より好ましくは0～2の整数であり、更に好ましくは0である。

[0396] $A r^7$ で表される芳香族炭化水素基の m^{B3} 個の置換基を除いたアリーレン基部分の定義や例は、式(X)における $A r^{X2}$ で表されるアリーレン基の定義や例と同じである。

[0397] $A r^7$ で表される複素環基の m^{B3} 個の置換基を除いた2価の複素環基部分の定義や例は、式(X)における $A r^{X2}$ で表される2価の複素環基部分の定義や例と同じである。

[0398] $A r^7$ で表される芳香族炭化水素環と複素環とが直接結合した基の m^{B3} 個の置換基を除いた2価の基の定義や例は、式(X)における $A r^{X2}$ で表されるアリーレン基と2価の複素環基とが直接結合した2価の基の定義や例と同じである。

[0399] $A r^7$ で表される基が有してもよい置換基の定義や例は、式(X)における $A r^{X2}$ で表される基が有してもよい置換基の定義や例と同じである。

[0400] $A r^7$ は、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、好ましくは芳香族炭化水素基であり、この芳香族炭化水素基は置換基を有していてもよい。

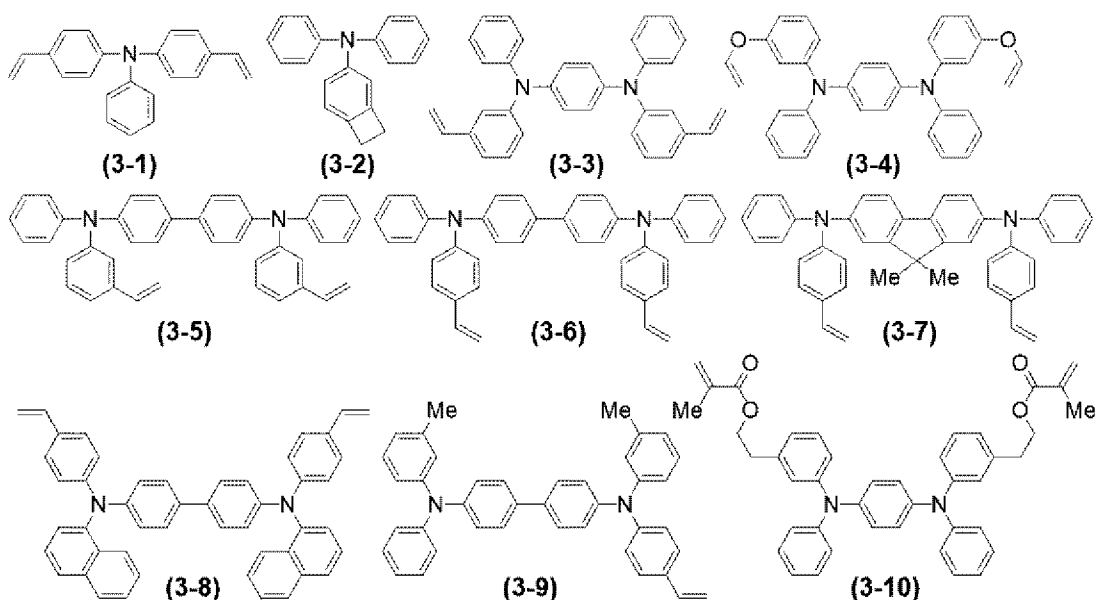
[0401] L^{B1} で表されるアルキレン基、シクロアルキレン基、アリーレン基、2価の複素環基の定義や例は、それぞれ、 L^A で表されるアルキレン基、シクロアルキレン基、アリーレン基、2価の複素環基の定義や例と同じである。

[0402] L^{B1} は、第2の組成物の低分子化合物の合成が容易になるので、好ましくは、アルキレン基、アリーレン基又は酸素原子であり、より好ましくはアルキレン基又はアリーレン基であり、更に好ましくはフェニレン基、フルオレンジル基又はアルキレン基であり、特に好ましくはフェニレン基又はアルキレン基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0403] X'は、好ましくは、式(XL-1)～式(XL-19)のいずれかで表される架橋基、アリール基又は1価の複素環基であり、より好ましくは、式(XL-1)、式(XL-3)、式(XL-7)～式(XL-10)若しくは式(XL-16)～式(XL-19)で表される架橋基、又は、アリール基であり、更に好ましくは、式(XL-1)若しくは式(XL-16)～式(XL-19)で表される架橋基、フェニル基、ナフチル基又はフルオレニル基であり、特に好ましくは、式(XL-16)若しくは式(XL-17)で表される架橋基、フェニル基又はナフチル基であり、とりわけ好ましくは、式(XL-16)で表される架橋基、又は、ナフチル基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

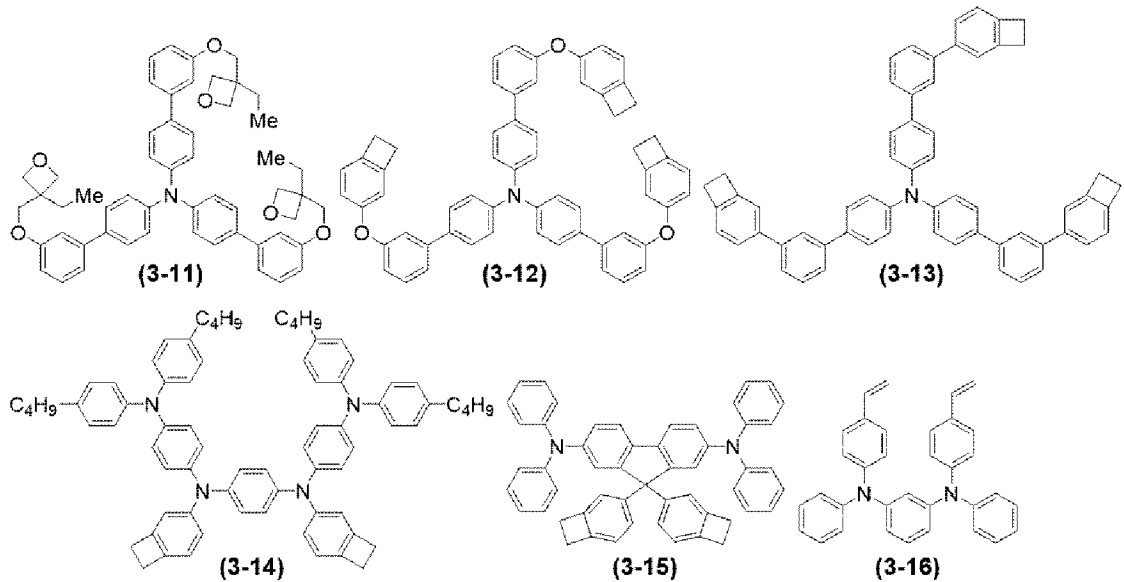
[0404] 第2の組成物の低分子化合物としては、例えば、式(3-1)～式(3-16)で表される低分子化合物が挙げられ、好ましくは式(3-1)～式(3-10)で表される低分子化合物であり、より好ましくは式(3-5)～式(3-9)で表される低分子化合物である。

[0405] [化100]



[0406]

[化101]



[0407] 第2の組成物の低分子化合物は、Aldrich、Luminescence Technology Corp.、American Dye Source等から入手可能である。その他には、例えば、国際公開第1997/033193号、国際公開第2005/035221号、国際公開第2005/049548号に記載されている方法に従って合成することができる。

[0408] ・第3の組成物

第2の有機層は、式(2)で表される金属錯体及び第2の有機層の高分子化合物からなる群より選ばれる少なくとも1種と、前述の架橋基を有する化合物の架橋体、正孔輸送材料、正孔注入材料、電子輸送材料、電子注入材料、発光材料(式(2)で表される金属錯体及び第2の有機層の高分子化合物とは異なる。)及び酸化防止剤からなる群から選ばれる少なくとも1種とを含む組成物(以下、「第3の組成物」ともいう。)を含有する層であってもよい。但し、架橋基を有する化合物の架橋体は、正孔輸送材料、正孔注入材料、電子輸送材料、電子注入材料及び発光材料とは異なる。

[0409] 第3の組成物に含有される正孔輸送材料、電子輸送材料、正孔注入材料、電子注入材料及び発光材料の例及び好ましい範囲は、第1の組成物に含有さ

れる正孔輸送材料、電子輸送材料、正孔注入材料、電子注入材料及び発光材料の例及び好ましい範囲と同じである。第3の組成物において、正孔輸送材料、電子輸送材料、正孔注入材料、電子注入材料及び発光材料の含有量は、各々、式(2)で表される金属錯体及び第2の有機層の高分子化合物の合計を100質量部とした場合、通常、1~1000質量部であり、好ましくは5~500質量部である。

[0410] 第3の組成物に含有される酸化防止剤の例及び好ましい範囲は、第1の組成物に含有される酸化防止剤の例及び好ましい範囲と同じである。第3の組成物において、酸化防止剤の含有量は、式(2)で表される金属錯体及び第2の有機層の高分子化合物の合計を100質量部とした場合、通常、0.001~10質量部である。

[0411] ・第2のインク

第2の有機層は、例えば、式(2)で表される金属錯体及び第2の有機層の高分子化合物と、溶媒とを含有する組成物(以下、「第2のインク」という。)を用いて形成することができる。第2のインクは、第1のインクの項で説明した湿式法に好適に使用することができる。第2のインクの粘度の好ましい範囲は、第1のインクの粘度の好ましい範囲と同じである。第2のインクに含有される溶媒の例及び好ましい範囲は、第1のインクに含有される溶媒の例及び好ましい範囲と同じである。

[0412] 第2のインクにおいて、溶媒の含有量は、第2の有機層の高分子化合物を100質量部とした場合、通常、1000~100000質量部であり、好ましくは2000~20000質量部である。

[0413] <発光素子の層構成>

本発明の発光素子は、陽極、陰極、第1の有機層及び第2の有機層以外の層を有していてもよい。

[0414] 本発明の発光素子において、第1の有機層と第2の有機層とは、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、隣接していることが好ましい。

本発明の発光素子において、第2の有機層は、本発明の発光素子の外部量

子効率がより優れるので、陽極及び第1の有機層の間に設けられた層であることが好ましい。

[0415] 本発明の発光素子において、第1の有機層は、発光層（以下、「第1の発光層」と言う。）であることが好ましい。

本発明の発光素子において、第2の有機層は、通常、正孔輸送層、発光層（即ち、第1の発光層とは別個の発光層であり、以下、「第2の発光層」と言う。）又は電子輸送層であり、好ましくは正孔輸送層又は第2の発光層であり、より好ましくは第2の発光層である。

[0416] 本発明の発光素子において、第1の発光層及び第2の発光層を有する場合、第1の発光層の発光色と、第2の発光層の発光色とを調整することにより、発光素子の発光色を調整することが可能であり、発光色を白色に調整することも可能である。

例えば、第1の発光層が第1の有機層であり、且つ、第2の発光層が第2の有機層である場合、第1の有機層における式(1)で表される金属錯体の含有量と、第2の有機層における式(2)で表される金属錯体又は第2の有機層の高分子化合物の含有量とを調整することにより、発光色を調整することが可能であり、発光色を白色に調整することも可能である。

[0417] 発光素子の発光色は、発光素子の発光色度を測定して色度座標（CIE色度座標）を求めることで確認することができる。白色の発光色とは、例えば、色度座標のXが0.20～0.55の範囲内であり、かつ、色度座標のYが0.20～0.55の範囲内であり、色度座標のXが0.30～0.50の範囲内であり、かつ、色度座標のYが0.30～0.50の範囲内であることが好ましい。

[0418] 本発明の発光素子の発光色を調整（特に、発光色を白色に調整する観点を意味する。以下、単に「同様の観点」と言う。）する観点からは、式(1)で表される金属錯体の発光スペクトルの最大ピーク波長は、好ましくは380nm以上495nm未満であり、より好ましくは400nm以上495nm未満であり、更に好ましくは420nm以上490nm以下であり、特に

好ましくは440nm以上490nm以下である。

[0419] 同様の観点から、第1の有機層は、式(1)で表される金属錯体及び発光材料を含有する層であることが好ましい。この場合、発光材料の発光スペクトルの最大ピーク波長は、好ましくは495nm以上750nm未満であり、より好ましくは500nm以上570nm以下であり、更に好ましくは505nm以上550nm以下である。

[0420] 同様の観点から、第2の有機層は、式(2)で表される金属錯体を含有する層であることが好ましい。この場合、式(2)で表される金属錯体の発光スペクトルの最大ピーク波長は、好ましくは495nm以上750nm未満であり、より好ましくは550nm以上680nm以下であり、更に好ましくは570nm以上640nm以下である。

同様の観点から、第2の有機層は、第2の有機層の高分子化合物を含有する層であることが好ましい。この場合、式(2)で表される金属錯体の残基に対応する金属錯体の発光スペクトルの極大ピーク波長は、好ましくは495nm以上750nm未満であり、より好ましくは550nm以上680nm以下であり、更に好ましくは570nm以上640nm以下である。

[0421] 化合物の発光スペクトルの最大ピーク波長及び極大波長は、化合物を、キシレン、トルエン、クロロホルム、テトラヒドロフラン等の有機溶媒に溶解させ、希薄溶液を調製し(1×10⁻⁶~1×10⁻³質量%)、該希薄溶液のPLスペクトルを室温で測定することで評価することができる。化合物を溶解させる有機溶媒としては、トルエン又はキシレンが好ましい。

[0422] 本発明の発光素子において、第2の有機層が陽極及び第1の有機層の間に設けられた第2の発光層である場合、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、陽極と第2の有機層との間に、正孔注入層及び正孔輸送層のうちの少なくとも1つの層を更に有することが好ましい。また、第2の有機層が陽極及び第1の有機層の間に設けられた第2の発光層である場合、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、陰極と第1の有機層との間に、電子注入層及び電子輸送層のうちの少なくとも1つの層を更に有するこ

とが好ましい。

[0423] 本発明の発光素子において、第2の有機層が陰極及び第1の有機層の間に設けられた第2の発光層である場合、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、陽極と第1の有機層との間に、正孔注入層及び正孔輸送層のうちの少なくとも1つの層を更に有することが好ましい。また、第2の有機層が陰極及び第1の有機層の間に設けられた第2の発光層である場合、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、陰極と第2の有機層との間に、電子注入層及び電子輸送層のうちの少なくとも1つの層を更に有することが好ましい。

[0424] 本発明の発光素子において、第2の有機層が陽極及び第1の有機層の間に設けられた正孔輸送層である場合、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、陽極と第2の有機層との間に、正孔注入層を更に有することが好ましい。また、第2の有機層が陽極及び第1の有機層の間に設けられた正孔輸送層である場合、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、陰極と第1の有機層との間に、電子注入層及び電子輸送層のうちの少なくとも1つの層を更に有することが好ましい。

[0425] 本発明の発光素子において、第2の有機層が陰極及び第1の有機層の間に設けられた電子輸送層である場合、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、陽極と第1の有機層との間に、正孔注入層及び正孔輸送層のうちの少なくとも1つの層を更に有することが好ましい。また、第2の有機層が陰極及び第1の有機層の間に設けられた電子輸送層である場合、本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、陰極と第2の有機層との間に、電子注入層を更に有することが好ましい。

[0426] 本発明の発光素子の具体的な層構成としては、例えば、下記の(D1)～(D15)で表される層構成が挙げられる。本発明の発光素子は、通常、基板を有するが、基板上に陽極から積層されていてもよく、基板上に陰極から積層されていてもよい。

[0427] (D1) 陽極／第2の発光層(第2の有機層)／第1の発光層(第1の有機

層) / 陰極

(D 2) 陽極 / 正孔輸送層 (第 2 の有機層) / 第 1 の発光層 (第 1 の有機層) / 陰極

(D 3) 陽極 / 正孔注入層 / 第 2 の発光層 (第 2 の有機層) / 第 1 の発光層 (第 1 の有機層) / 陰極

(D 4) 陽極 / 正孔注入層 / 第 2 の発光層 (第 2 の有機層) / 第 1 の発光層 (第 1 の有機層) / 電子輸送層 / 陰極

(D 5) 陽極 / 正孔注入層 / 第 2 の発光層 (第 2 の有機層) / 第 1 の発光層 (第 1 の有機層) / 電子注入層 / 陰極

(D 6) 陽極 / 正孔注入層 / 第 2 の発光層 (第 2 の有機層) / 第 1 の発光層 (第 1 の有機層) / 電子輸送層 / 電子注入層 / 陰極

(D 7) 陽極 / 正孔注入層 / 正孔輸送層 (第 2 の有機層) / 第 1 の発光層 (第 1 の有機層) / 陰極

(D 8) 陽極 / 正孔注入層 / 正孔輸送層 (第 2 の有機層) / 第 1 の発光層 (第 1 の有機層) / 電子輸送層 / 陰極

(D 9) 陽極 / 正孔注入層 / 正孔輸送層 (第 2 の有機層) / 第 1 の発光層 (第 1 の有機層) / 電子注入層 / 陰極

(D 10) 陽極 / 正孔注入層 / 正孔輸送層 (第 2 の有機層) / 第 1 の発光層 (第 1 の有機層) / 電子輸送層 / 電子注入層 / 陰極

(D 11) 陽極 / 正孔注入層 / 正孔輸送層 / 第 2 の発光層 (第 2 の有機層) / 第 1 の発光層 (第 1 の有機層) / 電子輸送層 / 電子注入層 / 陰極

(D 12) 陽極 / 正孔注入層 / 正孔輸送層 (第 2 の有機層) / 第 1 の発光層 (第 1 の有機層) / 第 2 の発光層 / 電子輸送層 / 電子注入層 / 陰極

(D 13) 陽極 / 正孔注入層 / 正孔輸送層 / 第 1 の発光層 (第 1 の有機層) / 第 2 の発光層 (第 2 の有機層) / 電子輸送層 / 電子注入層 / 陰極

(D 14) 陽極 / 正孔注入層 / 正孔輸送層 / 第 1 の発光層 (第 1 の有機層) / 電子輸送層 (第 2 の有機層) / 電子注入層 / 陰極

(D 15) 陽極 / 正孔注入層 / 正孔輸送層 (第 2 の有機層) / 第 2 の発光層

／第1の発光層（第1の有機層）／電子輸送層／電子注入層／陰極

[0428] 上記の(D1)～(D15)中、「／」は、その前後の層が隣接して積層していることを意味する。例えば、「第2の発光層（第2の有機層）／第1の発光層（第1の有機層）」とは、第2の発光層（第2の有機層）と第1の発光層（第1の有機層）とが隣接して積層していることを意味する。

[0429] 本発明の発光素子の外部量子効率がより優れるので、(D3)～(D12)で表される層構成が好ましく、(D3)～(D10)で表される層構成がより好ましく、(D3)～(D6)で表される層構成がより好ましく

[0430] 本発明の発光素子において、陽極、正孔注入層、正孔輸送層、第2の発光層、電子輸送層、電子注入層及び陰極は、それぞれ、必要に応じて、2層以上設けられていてもよい。

陽極、正孔注入層、正孔輸送層、第2の発光層、電子輸送層、電子注入層及び陰極が複数存在する場合、それらを構成する材料はそれぞれ同一でも異なってもよい。

[0431] 陽極、正孔注入層、正孔輸送層、第1の有機層、第2の有機層、第2の発光層、電子輸送層、電子注入層及び陰極の厚さは、通常、1nm～1μmであり、好ましくは2nm～500nmであり、更に好ましくは5nm～150nmである。

[0432] 本発明の発光素子において、積層する層の順番、数、及び厚さは、発光素子の発光効率及び素子寿命を勘案して調整すればよい。

[0433] [第2の発光層]

第2の発光層は、第2の有機層又は発光材料を含有する層である。第2の発光層が発光材料を含有する層である場合、第2の発光層に含有される発光材料としては、例えば、前述の第1の組成物が含有していてもよい発光材料が挙げられる。第2の発光層に含有される発光材料は、1種単独で含有されていても、2種以上が含有されていてもよい。

本発明の発光素子が第2の発光層を有し、且つ、後述の正孔輸送層及び後述の電子輸送層が第2の有機層ではない場合、第2の発光層は第2の有機層

であることが好ましい。

[0434] [正孔輸送層]

正孔輸送層は、第2の有機層又は正孔輸送材料を含有する層である。正孔輸送層が正孔輸送材料を含有する層である場合、正孔輸送材料としては、例えば、前述の第1の組成物が含有していてもよい正孔輸送材料が挙げられる。正孔輸送層に含有される正孔輸送材料は、1種単独で含有されていても、2種以上が含有されていてもよい。

本発明の発光素子が正孔輸送層を有し、且つ、前述の第2の発光層及び後述の電子輸送層が第2の有機層ではない場合、正孔輸送層は第2の有機層であることが好ましい。

[0435] [電子輸送層]

電子輸送層は、第2の有機層又は電子輸送材料を含有する層であり、好ましくは、電子輸送材料を含有する層である。電子輸送層が電子輸送材料を含有する層である場合、電子輸送層に含有される電子輸送材料としては、例えば、前述の第1の組成物が含有していてもよい電子輸送材料が挙げられる。電子輸送層に含有される電子輸送材料は、1種単独で含有されていても、2種以上が含有されていてもよい。

本発明の発光素子が電子輸送層を有し、且つ、前述の第2の発光層及び前述の正孔輸送層が第2の有機層ではない場合、電子輸送層は第2の有機層であることが好ましい。

[0436] [正孔注入層及び電子注入層]

正孔注入層は、正孔注入材料を含有する層である。正孔注入層に含有される正孔注入材料としては、例えば、前述の第1の組成物が含有していてもよい正孔注入材料が挙げられる。正孔注入層に含有される正孔注入材料は、1種単独で含有されていても、2種以上が含有されていてもよい。

[0437] 電子注入層は、電子注入材料を含有する層である。電子注入層に含有される電子注入材料としては、例えば、前述の第1の組成物が含有していてもよい電子注入材料が挙げられる。電子注入層に含有される電子注入材料は、1

種単独で含有されていても、2種以上が含有されていてもよい。

[0438] [基板／電極]

発光素子における基板は、電極の形成及び有機層の形成の際に、化学的に変化しない基板であることが好ましい。基板は、例えば、ガラス、プラスチック、シリコン等の材料からなる基板であってよい。不透明な基板を使用する場合には、基板から最も遠くにある電極が透明又は半透明であることが好ましい。

[0439] 陽極の材料としては、例えば、導電性の金属酸化物、半透明の金属が挙げられ、好ましくは、酸化インジウム、酸化亜鉛、酸化スズ；インジウム・スズ・オキサイド（ITO）、インジウム・亜鉛・オキサイド等の導電性化合物；銀とパラジウムと銅との複合体（APC）；NESEA、金、白金、銀、銅である。

[0440] 陰極の材料としては、例えば、リチウム、ナトリウム、カリウム、ルビジウム、セシウム、ベリリウム、マグネシウム、カルシウム、ストロンチウム、バリウム、アルミニウム、亜鉛、インジウム等の金属；それらのうち2種以上の合金；それらのうち1種以上と、銀、銅、マンガン、チタン、コバルト、ニッケル、タングステン、錫のうち1種以上との合金；並びに、グラファイト及びグラファイト層間化合物が挙げられる。合金としては、例えば、マグネシウム－銀合金、マグネシウム－インジウム合金、マグネシウム－アルミニウム合金、インジウム－銀合金、リチウム－アルミニウム合金、リチウム－マグネシウム合金、リチウム－インジウム合金、カルシウム－アルミニウム合金が挙げられる。

[0441] 本発明の発光素子において、陽極及び陰極の少なくとも一方は、通常、透明又は半透明であるが、陽極が透明又は半透明であることが好ましい。

[0442] 陽極及び陰極の形成方法としては、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、メッキ法及びラミネート法が挙げられる。

[0443] [発光素子の製造方法]

本発明の発光素子において、第1の有機層、第2の有機層、その他の層の

形成方法としては、低分子化合物を用いる場合、例えば、粉末からの真空蒸着法、溶液又は熔融状態からの成膜による方法が挙げられ、高分子化合物を用いる場合、例えば、溶液又は熔融状態からの成膜による方法が挙げられる。

- [0444] 第1の有機層、第2の有機層、その他の層は、上述した各種インク、各種材料を含むインクを用いて、スピコート法、インクジェット印刷法等の湿式法により形成することができる。なお、第1の有機層、第2の有機層は、真空蒸着法等の乾式法により形成してもよい。
- [0445] 第1の有機層を湿式法により形成する場合、第1のインクを用いることが好ましい。
- [0446] 第2の有機層を湿式法により形成する場合、第2のインクを用いることが好ましい。例えば、第2のインクに第2'の有機層の高分子化合物又は架橋基を有する化合物を含有する場合、第2の有機層を形成後、加熱又は光照射することで、第2の有機層に含有される第2'の有機層の高分子化合物又は架橋基を有する化合物を架橋させることができる。第2'の有機層の高分子化合物が架橋した状態（第2'の有機層の高分子化合物の架橋体）又は架橋基を有する化合物が架橋した状態（架橋基を有する化合物の架橋体）で、第2の有機層に含有されている場合、第2の有機層は溶媒に対して実質的に不溶化されている。そのため、第2の有機層は、発光素子の積層化に好適に使用することができる。
- [0447] 第2の有機層が層C'であり、且つ、層C'を湿式法により形成する場合、層C'のインクを用いることが好ましい。層C'のインクを用いて、第2の有機層を湿式法により形成する場合、層形成後、加熱又は光照射（好ましくは、加熱）することで、第2の有機層に含有される架橋基を有する化合物を架橋させることができる。架橋基を有する化合物が架橋した状態（架橋基を有する化合物の架橋体）で、第2の有機層に含有されている場合、第2の有機層は溶媒に対して実質的に不溶化されている。そのため、第2の有機層は、発光素子の積層化に好適に使用することができる。

[0448] 架橋させるための加熱の温度は、通常、25℃～300℃であり、好ましくは50℃～260℃であり、より好ましくは130℃～230℃であり、更に好ましくは180℃～210℃である。

加熱の時間は、通常、0.1分～1000分であり、好ましくは0.5分～500分であり、より好ましくは1分～120分であり、更に好ましくは10分～60分である。

光照射に用いられる光の種類は、例えば、紫外光、近紫外光、可視光である。

[0449] 第1の有機層又は第2の有機層に含有される成分の分析方法としては、例えば、抽出等の化学的分離分析法、赤外分光法（IR）、核磁気共鳴分光法（NMR）、質量分析法（MS）等の機器分析法、並びに、化学的分離分析法及び機器分析法を組み合わせた分析法が挙げられる。

[0450] 第1の有機層又は第2の有機層に対して、トルエン、キシレン、クロロホルム、テトラヒドロフラン等の有機溶媒を用いた固液抽出を行うことで、有機溶媒に対して実質的に不溶な成分（不溶成分）と、有機溶媒に対して溶解する成分（溶解成分）とに分離することが可能である。不溶成分は赤外分光法又は核磁気共鳴分光法により分析することが可能であり、溶解成分は核磁気共鳴分光法又は質量分析法により分析することが可能である。

[0451] [発光素子の用途]

発光素子を用いて面状の発光を得るためには、面状の陽極と陰極が重なり合うように配置すればよい。パターン状の発光を得るためには、面状の発光素子の表面にパターン状の窓を設けたマスクを設置する方法、非発光部にしたい層を極端に厚く形成し実質的に非発光とする方法、陽極若しくは陰極、又は両方の電極をパターン状に形成する方法がある。

これらのいずれかの方法でパターンを形成し、いくつかの電極を独立にON/OFFできるように配置することにより、数字、文字等を表示できるセグメントタイプの表示装置が得られる。ドットマトリックス表示装置とするためには、陽極と陰極を共にストライプ状に形成して直交するように配置すればよい。複数の種類の発光色の異なる高分子化合物を塗り分ける方法、カラ

ーフィルター又は蛍光変換フィルターを用いる方法により、部分カラー表示、マルチカラー表示が可能となる。ドットマトリクス表示装置は、パッシブ駆動も可能であるし、TFT等と組み合わせてアクティブ駆動も可能である。これらの表示装置は、コンピュータ、テレビ、携帯端末等のディスプレイに用いることができる。面状の発光素子は、液晶表示装置のバックライト用の面状光源、又は、面状の照明用光源として好適に用いることができる。フレキシブルな基板を用いれば、曲面状の光源及び表示装置としても使用できる。

実施例

[0452] 以下、実施例によって本発明を更に詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

[0453] 実施例において、高分子化合物のポリスチレン換算の数平均分子量(Mn)及びポリスチレン換算の重量平均分子量(Mw)は、移動相にテトラヒドロフランを用い、下記のサイズエクスクルージョンクロマトグラフィー(SEC)により求めた。

測定する高分子化合物を約0.05質量%の濃度でテトラヒドロフランに溶解させ、SECに10 μ L注入した。移動相は、1.0mL/分の流量で流した。カラムとして、PLGel MIXED-B(ポリマーラボラトリーズ製)を用いた。検出器にはUV-VIS検出器(東ソー製、商品名:UV-8320GPC)を用いた。

[0454] LC-MSは、下記の方法で測定した。

測定試料を約2mg/mLの濃度になるようにクロロホルム又はテトラヒドロフランに溶解させ、LC-MS(Agilent製、商品名:1290 Infinity LC及び6230 TOF LC/MS)に約1 μ L注入した。LC-MSの移動相には、アセトニトリル及びテトラヒドロフランの比率を変化させながら用い、1.0mL/分の流量で流した。カラムは、SUMIPAX ODS Z-CLUE(住化分析センター製、内径:4.6mm、長さ:250mm、粒径3 μ m)を用いた。

[0455] TLC-MSは、下記の方法で測定した。

測定試料をトルエン、テトラヒドロフラン又はクロロホルムのいずれかの溶媒に任意の濃度で溶解させ、DART用TLCプレート（テクノアプリケーションズ社製、商品名：YSK5-100）上に塗布し、TLC-MS（日本電子製、商品名：JMS-T100TD（The AccuTOF TLC））を用いて測定した。測定時のヘリウムガス温度は、200～400℃の範囲で調節した。

[0456] NMRは、下記の方法で測定した。

5～10mgの測定試料を約0.5mLの重クロロホルム（ CDCl_3 ）、重テトラヒドロフラン、重ジメチルスルホキシド、重アセトン、重N,N-ジメチルホルムアミド、重トルエン、重メタノール、重エタノール、重2-プロパノール又は重塩化メチレンに溶解させ、NMR装置（JEOL RESONANCE製、商品名：JNM-ECZ400S/L1、又は、ブルカー製、商品名：AVANCE600）を用いて測定した。

[0457] 化合物の純度の指標として、高速液体クロマトグラフィー（HPLC）面積百分率の値を用いた。この値は、特に記載がない限り、HPLC（島津製作所製、商品名：LC-20A）でのUV=254nmにおける値とする。この際、測定する化合物は、0.01～0.2質量%の濃度になるようにテトラヒドロフラン又はクロロホルムに溶解させ、濃度に応じてHPLCに1～10 μL 注入した。HPLCの移動相には、アセトニトリル／テトラヒドロフランの比率を100/0～0/100（容積比）まで変化させながら用い、1.0mL/分の流量で流した。カラムは、SUMIPAX ODS Z-CLUE（住化分析センター製、内径：4.6mm、長さ：250mm、粒径3 μm ）又は同等の性能を有するODSカラムを用いた。検出器には、フォトダイオードアレイ検出器（島津製作所製、商品名：SPD-M20A）を用いた。

[0458] 本実施例において、金属錯体の発光スペクトルの最大ピーク波長は、分光光度計（日本分光株式会社製、FP-6500）により室温にて測定した。

化合物をキシレンに、約 0.8×10^{-4} 質量%の濃度で溶解させたキシレン溶液を試料として用いた。励起光としては、波長325 nmのUV光を用いた。

[0459] <合成例M1> 化合物M1～M5及びCM1～CM5の合成

化合物M1、M2及びM3は、国際公開第2013/146806号に記載の方法に従って合成した。

化合物M4は、国際公開第2015/145871号に記載の方法に従って合成した。

化合物M5は、国際公開第2005/049546号に記載の方法に従って合成した。

化合物CM1は、特開2010-189630号公報に記載の方法に従って合成した。

化合物CM2は、特開2008-106241号公報に記載の方法に従って合成した。

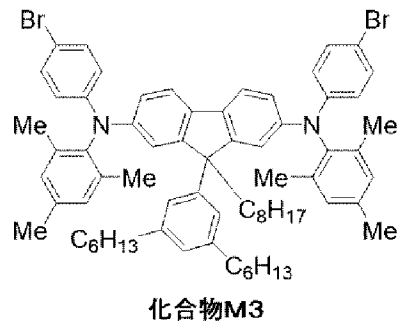
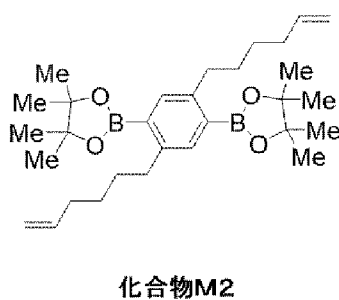
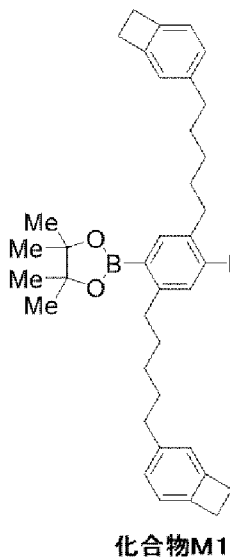
化合物CM3は、特開2010-215886号公報に記載の方法に従って合成した。

化合物CM4は、国際公開第2002/045184号に記載の方法に準じて合成した。

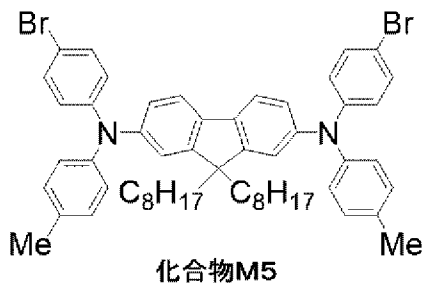
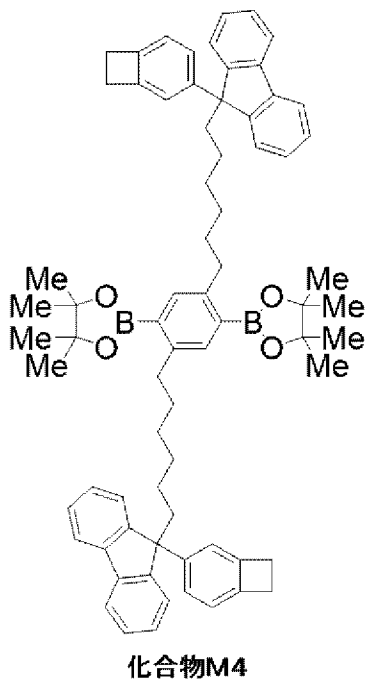
化合物CM5は、国際公開第2011/049241号に記載の方法に従って合成した。

[0460]

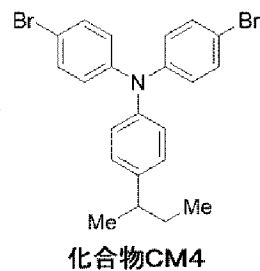
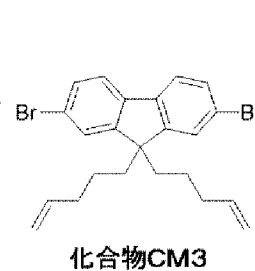
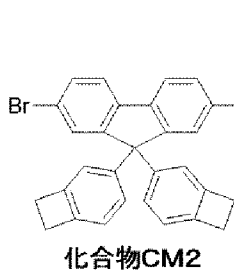
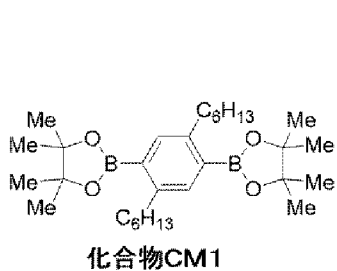
[化102]



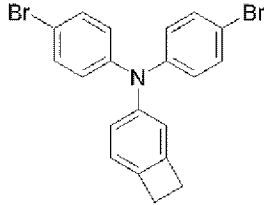
[0461] [化103]



[0462] [化104]



[0463] [化105]



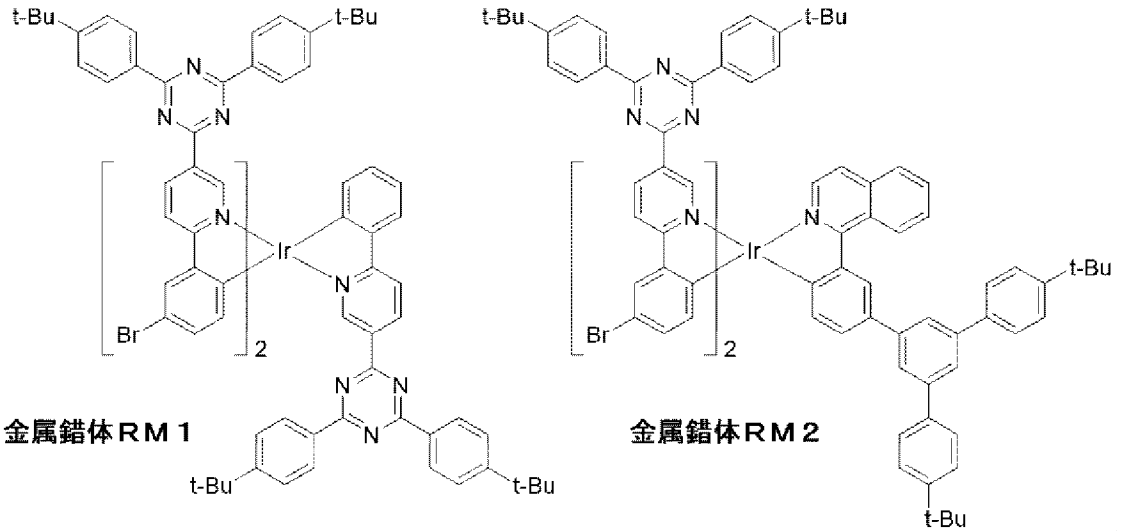
化合物CM5

[0464] <合成例RM1> 金属錯体RM1及びRM2の合成

金属錯体RM1は、国際公開第2009/157424号に記載の方法に従って合成した。

金属錯体RM2は、特開2011-105701号公報に記載の方法に従って合成した。

[0465] [化106]



金属錯体RM1

金属錯体RM2

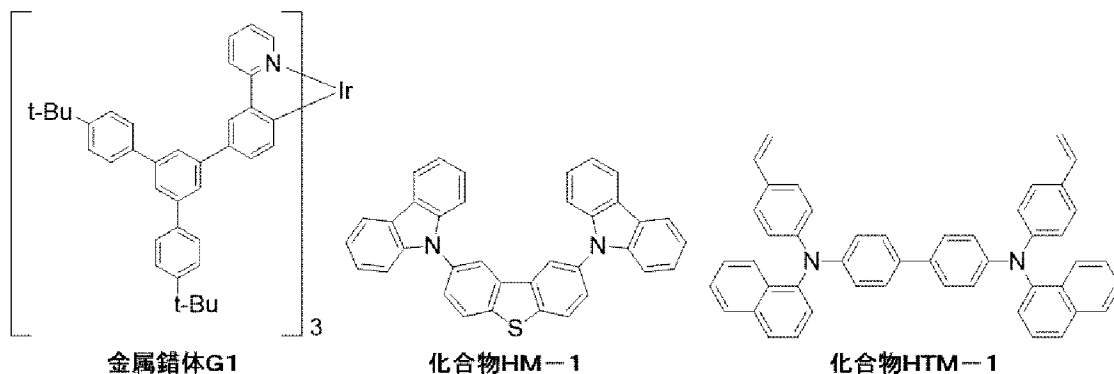
[0466] <金属錯体G1> 金属錯体G1の合成

金属錯体G1は国際公開第2009/131255号に記載の方法に準じて合成した。化合物G1の発光スペクトルの最大ピーク波長は514nmであった。

[0467] <化合物HM-1及び化合物HTM-1> 化合物HM-1及び化合物HTM-1の入手

化合物HM-1及び化合物HTM-1はLuminescence Technology社より購入した。

[0468] [化107]



[0469] <合成例 R 1> 金属錯体 R 1～R 4 合成

金属錯体 R 1はAmerican Dye Source社より購入した。

金属錯体 R 2は特開2006-188673号公報に記載の方法に準じて合成した。

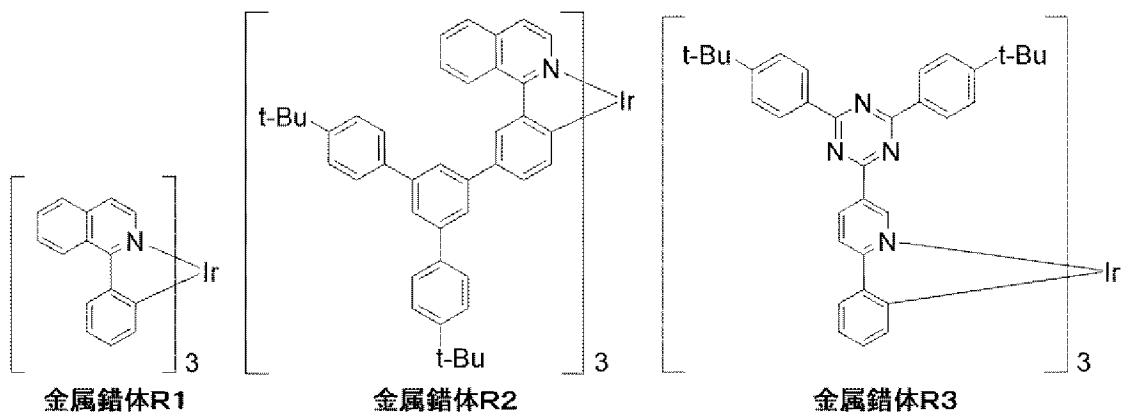
金属錯体 R 3は特開2008-179617号公報に記載の方法に従って合成した。

金属錯体 R 4は特開2011-105701号公報に記載の方法に従って合成した。

[0470] <金属錯体 R 5> 金属錯体 R 5の入手

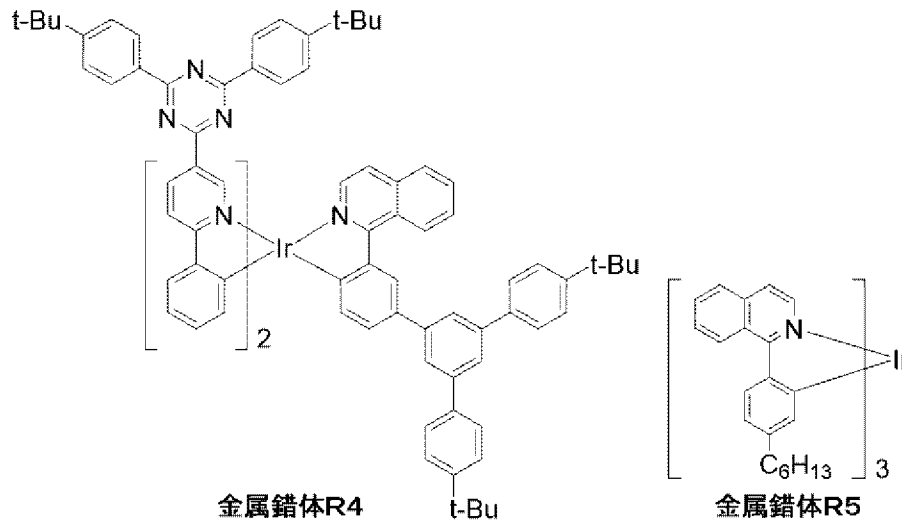
金属錯体 R 5はLuminescence Technology社より購入した。

[0471] [化108]



[0472]

[化109]



- [0473] 金属錯体 R 1 の発光スペクトルの最大ピーク波長は 6 1 8 n m であった。
 金属錯体 R 2 の発光スペクトルの最大ピーク波長は 6 1 9 n m であった。
 金属錯体 R 3 の発光スペクトルの最大ピーク波長は 5 9 4 n m であった。
 金属錯体 R 4 の発光スペクトルの最大ピーク波長は 6 1 1 n m であった。
 金属錯体 R 5 の発光スペクトルの最大ピーク波長は 6 2 0 n m であった。

[0474] <合成例HTL1> 高分子化合物HTL-1の合成

反応容器内を不活性ガス雰囲気とした後、化合物M1(2.52g)、化合物M2(0.470g)、化合物M3(4.90g)、金属錯体RM1(0.530g)、ジクロロビス(トリス-*o*-メトキシフェニルホスフィン)パラジウム(4.2mg)及びトルエン(158mL)を加え、100℃に加熱した。反応液に、20質量%水酸化テトラエチルアンモニウム水溶液(16mL)を滴下し、8時間還流させた。反応後、そこに、フェニルボロン酸(116mg)及びジクロロビス(トリス-*o*-メトキシフェニルホスフィン)パラジウム(4.2mg)を加え、15時間還流させた。その後、そこに、ジエチルジチアカルバミン酸ナトリウム水溶液を加え、85℃で2時間攪拌した。冷却後、反応液を、3.6質量%塩酸、2.5質量%アンモニア水、水で洗浄し、得られた溶液をメタノールに滴下したところ、沈澱が生じた。沈澱物をトルエンに溶解させ、アルミナカラム、シリカゲルカラムの順番で通すことにより精製した。得られた溶液をメタノール

に滴下し、攪拌した後、得られた沈殿物をろ取し、乾燥させることにより、高分子化合物HTL-1を6.02g得た。高分子化合物HTL-1のMnは 3.8×10^4 であり、Mwは 4.5×10^5 であった。

[0475] 高分子化合物HTL-1は、仕込み原料の量から求めた理論値では、化合物M1から誘導される構成単位と、化合物M2から誘導される構成単位と、化合物M3から誘導される構成単位と、金属錯体RM1から誘導される構成単位とが、40:10:47:3のモル比で構成されてなる共重合体である。

[0476] 高分子化合物HTL-1の発光スペクトルは404nm及び600nmに極大ピーク波長を有し、高分子化合物HTL-1の発光スペクトルの最大ピーク波長は404nmであった。なお、600nmの極大ピーク波長は、金属錯体RM1の残基に対応する金属錯体の発光スペクトルの極大ピーク波長である。

[0477] <合成例HTL2> 高分子化合物HTL-2の合成

高分子化合物HTL-2は、化合物M4、化合物M2及び化合物M5を用いて、国際公開第2015/145871号に記載の方法に従って合成した。高分子化合物HTL-2のMn= 2.3×10^4 であり、Mwは 1.2×10^5 であった。

高分子化合物HTL-2は、仕込み原料の量から求めた理論値では、化合物M4から誘導される構成単位と、化合物M2から誘導される構成単位と、化合物M5から誘導される構成単位とが、45:5:50のモル比で構成された共重合体である。

[0478] <合成例HTL3> 高分子化合物HTL-3の合成

高分子化合物HTL-3は、化合物M4、化合物M2、化合物M5及び金属錯体RM1を用いて、特開2016-111355号公報に記載の方法に従って合成した。高分子化合物HTL-3のMn= 3.0×10^4 であり、Mwは 2.7×10^5 であった。

高分子化合物HTL-3は、仕込み原料の量から求めた理論値では、化合物M4から誘導される構成単位と、化合物M2から誘導される構成単位と、

化合物M5から誘導される構成単位と、金属錯体RM1から誘導される構成単位とが、40 : 10 : 47 : 3のモル比で構成された共重合体である。

[0479] 高分子化合物HTL-3の発光スペクトルは407 nm及び599 nmに極大ピーク波長を有し、高分子化合物HTL-3の発光スペクトルの最大ピーク波長は407 nmであった。なお、599 nmの極大ピーク波長は、金属錯体RM1の残基に対応する金属錯体の発光スペクトルの極大ピーク波長である。

[0480] <合成例HTL4> 高分子化合物HTL-4の合成

高分子化合物HTL-4は、化合物CM1、化合物CM4、化合物CM2及び化合物CM3を用いて、特開2015-110751号公報に記載の方法に従って合成した。高分子化合物HTL-4のMnは 5.5×10^4 であり、Mwは 1.9×10^5 であった。

[0481] 高分子化合物HTL-4は、仕込み原料の量から求めた理論値では、化合物CM1から誘導される構成単位と、化合物CM4から誘導される構成単位と、化合物CM2から誘導される構成単位と、化合物CM3から誘導される構成単位とが、50 : 40 : 5 : 5のモル比で構成された共重合体である。

[0482] <合成例HTL5> 高分子化合物HTL-5の合成

高分子化合物HTL-5は、化合物CM1、化合物CM4、化合物CM5、化合物CM3及び金属錯体RM1を用いて、国際公開第2017/099012号に記載の方法に従って合成した。高分子化合物HTL-5のMnは 3.3×10^4 であり、Mwは 2.4×10^5 であった。

[0483] 高分子化合物HTL-5は、仕込み原料の量から求めた理論値では、化合物CM1から誘導される構成単位と、化合物CM4から誘導される構成単位と、化合物CM5から誘導される構成単位と、化合物CM3から誘導される構成単位と、金属錯体RM1から誘導される構成単位とが、50 : 32 : 10 : 5 : 3のモル比で構成された共重合体である。

[0484] 高分子化合物HTL-5の発光スペクトルは399 nm及び599 nmに極大ピーク波長を有し、高分子化合物HTL-5の発光スペクトルの最大ピ

ーク波長は399 nmであった。なお、599 nmの極大ピーク波長は、金属錯体RM1の残基に対応する金属錯体の発光スペクトルの極大ピーク波長である。

[0485] <合成例HTL6> 高分子化合物HTL-6の合成

高分子化合物HTL-6は、化合物CM1、化合物CM4、化合物CM5、化合物CM3及び金属錯体RM2を用いて、国際公開第2017/099012号に記載の方法に従って合成した。高分子化合物HTL-6のMnは 6.0×10^4 であり、Mwは 4.9×10^5 であった。

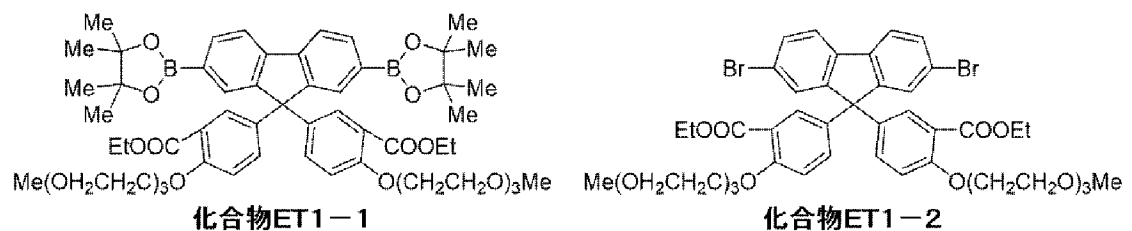
[0486] 高分子化合物HTL-6は、仕込み原料の量から求めた理論値では、化合物CM1から誘導される構成単位と、化合物CM4から誘導される構成単位と、化合物CM5から誘導される構成単位と、化合物CM3から誘導される構成単位と、金属錯体RM2から誘導される構成単位とが、50 : 32 : 10 : 5 : 3のモル比で構成された共重合体である。

[0487] 高分子化合物HTL-6の発光スペクトルは399 nm及び614 nmに極大ピーク波長を有し、高分子化合物HTL-6の発光スペクトルの最大ピーク波長は399 nmであった。なお、614 nmの極大ピーク波長は、金属錯体RM2の残基に対応する金属錯体の発光スペクトルの極大ピーク波長である。

[0488] <合成例ET1> 高分子化合物ET1の合成

特開2012-33845号公報に記載の方法に従って、化合物ET1-1及び化合物ET1-2を合成し、それを用いて、高分子化合物ET1aを合成した。高分子化合物ET1aのMnは 5.2×10^4 であった。

[0489] [化110]

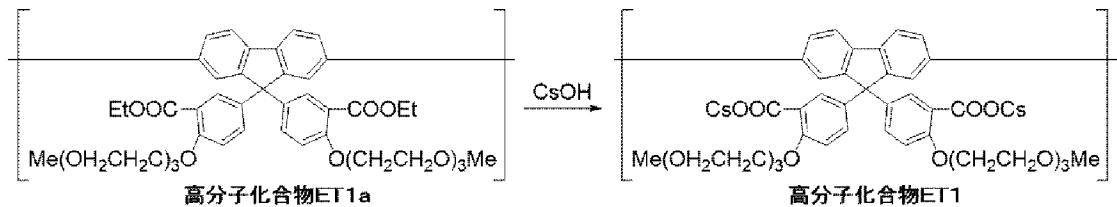


[0490] 高分子化合物ET1aは、仕込み原料の量から求めた理論値では、化合物

ET1-1から誘導される構成単位と、化合物ET1-2から誘導される構成単位とが、50：50のモル比で構成された共重合体である。

[0491] 反応容器内を不活性ガス雰囲気とした後、高分子化合物ET1a（200 mg）、テトラヒドロフラン（20 mL）及びエタノール（20 mL）を加え、55℃に加熱した。その後、そこへ、水（2 mL）に溶解させた水酸化セシウム（200 mg）を加え、55℃で6時間攪拌した。その後、室温まで冷却した後、減圧濃縮することにより、固体を得た。得られた固体を水で洗浄した後、減圧乾燥させることにより、高分子化合物ET1（150 mg、薄黄色固体）を得た。得られた高分子化合物ET1のNMRスペクトルにより、高分子化合物ET1aのエチルエステル部位のエチル基由来のシグナルが完全に消失していることを確認した。

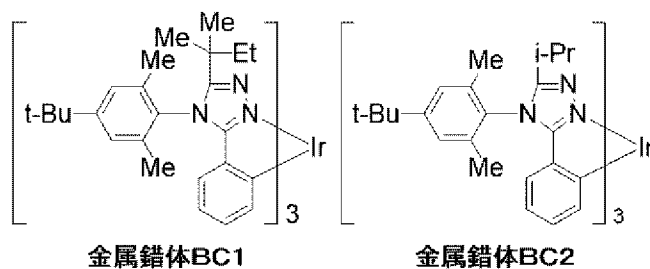
[0492] [化111]



[0493] <合成例B1> 金属錯体B1の合成

金属錯体BC1及びBC2は国際公開第2016/185183号に記載の方法に従って合成した。金属錯体BC1及びBC2の発光スペクトルの最大ピーク波長は463 nmであった。

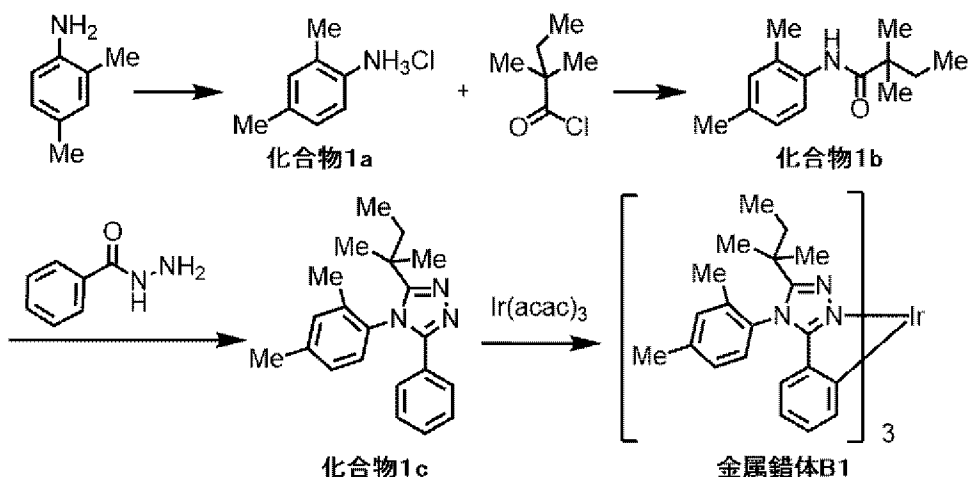
[0494] [化112]



[0495] <合成例B1> 金属錯体B1の合成

[0496]

[化113]



[0497] 反応容器内を窒素ガス雰囲気とした後、2,4-ジメチルアニリン (200 g) 及びシクロペンチルメチルエーテル (400 mL) を加え、攪拌した。その後、反応容器を氷浴を用いて冷却した後、そこへ、16質量%塩化水素シクロペンチルメチルエーテル溶液 (357 g) を滴下した。滴下後、室温で1時間攪拌を継続し、析出した固体をろ取し、得られた固体をヘキサン (150 mL) で洗浄した。得られた固体を2-プロパノールを用いて晶析し、更に、室温で減圧乾燥させることで、化合物1a (220 g、薄赤色固体) を得た。

[0498] 反応容器内を窒素ガス雰囲気とした後、化合物1a (140 g)、クロロホルム (2100 mL) 及びトリエチルアミン (267 mL) を加え、攪拌した。その後、反応容器を氷浴を用いて冷却した後、そこへ、2,2-ジメチルブチリルクロリド (113 mL) を滴下した。滴下後、室温で1時間攪拌を継続した後、そこへ、飽和炭酸ナトリウム水溶液 (400 mL) を加え、室温で攪拌した。得られた反応混合物を分液した後、得られた有機層を飽和炭酸ナトリウム水溶液及びイオン交換水で順次洗浄した。その後、得られた有機層を硫酸マグネシウムで乾燥させた後、ろ過した。得られたろ液を濃縮した後、そこへ、ヘプタンを加え、1時間攪拌し、得られた固体をろ取した。その後、得られた固体を40℃で減圧乾燥させることで、化合物1b (164 g、白色固体) を得た。化合物1bのHPLC面積百分率値は99。

5%以上であった。

[0499] 化合物1bのNMR測定結果は、以下のとおりであった。

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , 400MHz) δ (ppm) : 0.94 (3H, t), 1.29 (6H, s), 1.67 (2H, q), 2.21 (3H, s), 2.28 (3H, s), 6.99 (1H, s), 7.00 (1H, d), 7.12 (1H, br), 7.65 (1H, d).

[0500] 反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、化合物1b (60g)、モノクロロベンゼン (480mL)、2-フルオロピリジン (26mL) 及びトリフルオロメタンスルホン酸無水物 (50mL) を加え、室温下で30分撹拌した。その後、そこへ、ベンズヒドラジド (41g) を加えた後、90°Cで3時間撹拌した。その後、得られた反応液を室温まで冷却した後、そこへ、炭酸水素ナトリウム水溶液 (500mL) を加え、有機層を抽出した。得られた有機層をイオン交換水で洗浄した後、得られた有機層を減圧濃縮することで固体を得た。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (クロロホルム及びテトラヒドロフランの混合溶媒) で精製した後、2-プロパノール及びヘプタンの混合溶媒を用いて晶析した。その後、得られた固体を50°Cで減圧乾燥させることにより、化合物1c (70g、収率80%) を白色固体として得た。化合物1cのHPLC面積百分率値は99.5%以上であった。

[0501] 化合物1cのLC-MS及びNMRの測定結果は、以下のとおりであった。

LC-MS (APCI, positive) : $m/z = 320$ [M+H]⁺
 $^1\text{H-NMR}$ (600MHz, CD_2Cl_2) δ (ppm) : 7.42-7.37 (m, 2H), 7.35-7.31 (m, 2H), 7.29-7.25 (m, 2H), 7.19 (d, 1H), 7.07 (s, 1H), 2.40 (s, 3H), 1.79-1.72 (m, 4H), 1.57-1.45 (m, 1H), 1.34 (s, 3H), 1.15 (s, 3H), 0.89 (t, 3H).

[0502] 反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、トリスアセチルアセトナトイリジウム（15.3g）、化合物1c（40.0g）及びペンタデカン（40mL）を加え、加熱還流下で50時間攪拌した。その後、そこへ、トルエンを加え、シリカゲルを敷いたろ過器でろ過した後、得られたシリカゲルから、トルエン及び酢酸エチルの混合溶媒を用いて、金属錯体B1を含む黄色溶液を抽出した。得られた溶液を減圧濃縮することで固体を得た。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエン溶媒）で精製した後、トルエン及びメタノールの混合溶媒を用いて晶析した。その後、得られた固体を50℃で減圧乾燥させることにより、金属錯体B1（30.5g）を得た。金属錯体B1のHPLC面積百分率値は99.3%であった。

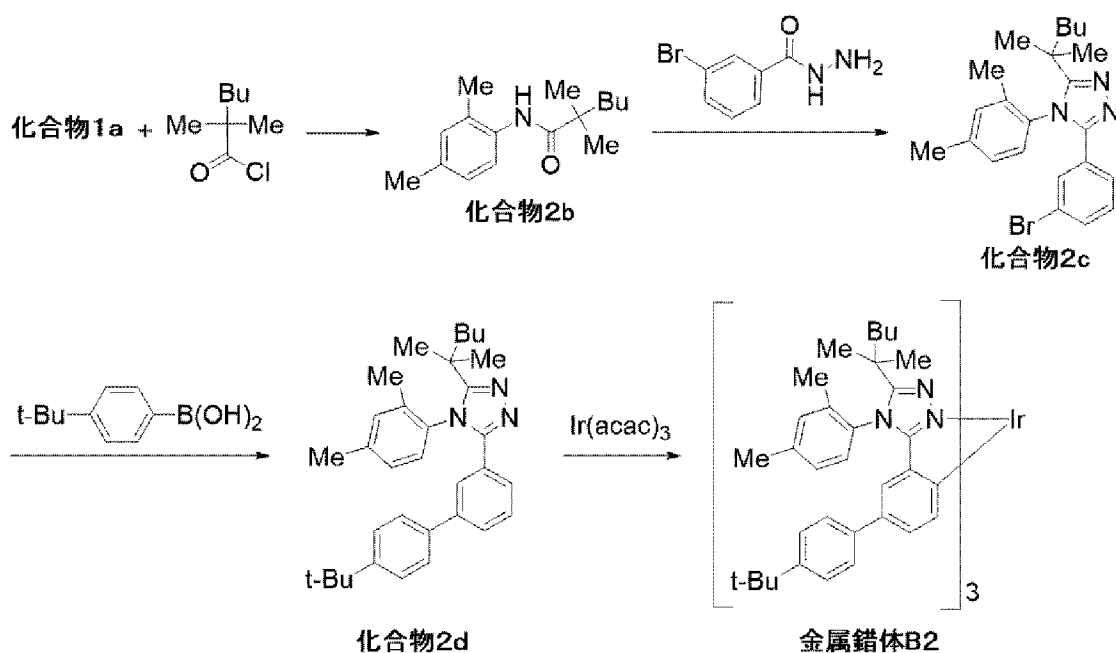
[0503] 金属錯体B1のLC-MSの測定結果は、以下のとおりであった。

LC-MS (APCI, positive) : $m/z = 1149$ [M+H]⁺

金属錯体B1の発光スペクトルの最大ピーク波長は463nmであった。

[0504] <合成例B2> 金属錯体B2の合成

[0505] [化114]



[0506] 反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、2, 2'-ジメチルヘキサン

酸 (40 g)、クロロホルム (240 mL)、N, N'-ジメチルホルムアミド (0.21 mL) 及び塩化チオニル (20 mL) を加え、45°Cで3時間攪拌した。その後、反応容器を水浴を用いて冷却することにより、2, 2'-ジメチルヘキサノイルクロライドを含む反応液を得た。

別途用意した反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、化合物 1 a (41.5 g)、クロロホルム (400 mL) 及びトリエチルアミン (75 mL) を加え、反応容器を氷浴を用いて冷却した。その後、そこへ、上記で得られた 2, 2'-ジメチルヘキサノイルクロライドを含む反応液を滴下した。滴下後、室温で1時間攪拌を継続した後、そこへ、2 mol/L 炭酸ナトリウム水溶液 (280 mL) を加え、室温で攪拌した。得られた反応混合物を分液し、有機層を得た。得られた有機層をイオン交換水 (280 mL) で洗浄した。その後、得られた有機層を無水硫酸マグネシウムで乾燥させた後、ろ過した。得られたろ液を減圧濃縮することにより、化合物 2 b (60 g、収率 88%) を薄黄色の油状物として得た。上記操作を繰り返すことにより、必要量の化合物 2 b を確保した。化合物 2 b の HPLC 面積百分率値は 99.5% 以上であった。

化合物 2 b の TLC-MS 測定結果は、以下のとおりであった。

TLC/MS (DART, positive) : $m/z = 248$ [M+H]⁺

[0507] 反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、化合物 2 b (40 g)、モノクロロベンゼン (320 mL)、2-フルオロピリジン (14 mL) 及びトリフルオロメタンスルホン酸無水物 (27 mL) を加え、室温下で30分攪拌した。その後、そこへ、3-ブロモベンズヒドラジド (35 g) を加えた後、90°Cで7時間攪拌した。その後、得られた反応液を室温まで冷却した後、そこへ、2 mol/L 炭酸水素ナトリウム水溶液 (160 mL) を加えて、攪拌した後、有機層を抽出した。得られた有機層をイオン交換水で洗浄した。その後、得られた有機層を減圧濃縮することで油状物を得た。得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (クロロホルム及びエタノール) で精製した。

ールの混合溶媒)で精製することにより、固体を得た。得られた固体を、ヘプタンを用いて晶析した後、更に、50℃で減圧乾燥させることにより、化合物2c(48g、収率77%)を白色固体として得た。化合物2cのHPLC面積百分率値は99.5%以上であった。

[0508] 化合物2cのLC-MS及びNMRの測定結果は、以下のとおりであった。

LC/MS (APPI, positive) : $m/z = 426 [M+H]^+$
 $^1\text{H-NMR}$ (400MHz, CD_2Cl_2) δ (ppm) = 7.60–7.55 (m, 1H), 7.41 (d, 1H), 7.25 (d, 1H), 7.21–7.13 (m, 2H), 7.09–7.03 (m, 2H), 2.36 (s, 3H), 1.76–1.59 (m, 4H), 1.43–1.07 (m, 1H), 0.84 (t, 3H).

[0509] 反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、化合物2c(2.2g)、4-tert-ブチルフェニルボロン酸(1.0g)、トルエン(22mL)及び(ジ-tert-ブチル(4-ジメチルアミノフェニル)ホスフィン)ジクロロパラジウム(II)(18mg)を加え、80℃に昇温した。その後、そこへ、20質量%のテトラブチルアンモニウムヒドロキシド水溶液(16mL)を加えた後、加熱還流下で18時間攪拌した。その後、得られた反応液を室温まで冷却した後、そこへ、トルエンを加え、有機層を抽出した。得られた有機層をイオン交換水で洗浄した。その後、得られた有機層を無水硫酸マグネシウムで乾燥させた後、シリカゲル及びセライトを敷いたろ過器でろ過した。得られたろ液を減圧濃縮することで、固体を得た。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(クロロホルム及びエタノールの混合溶媒)で精製した後、ヘプタンを用いて晶析した。その後、得られた固体を50℃で減圧乾燥させることにより、化合物2d(2.2g、収率85%)を白色固体として得た。化合物2dのHPLC面積百分率値は99.5%以上であった。

[0510] 化合物2dのLC-MS及びNMRの測定結果は、以下のとおりであった

。

LC-MS (APPI, positive) : $m/z = 480 [M+H]^+$
 $^1\text{H-NMR}$ (400MHz, CD_2Cl_2) δ (ppm) = 7.53–7.48 (m, 1H), 7.46–7.39 (m, 2H), 7.40–7.37 (m, 2H), 7.34–7.29 (m, 2H), 7.26–7.19 (m, 3H), 7.07 (s, 1H), 2.40 (s, 3H), 1.74 (s, 3H), 1.70–1.61 (m, 1H), 1.47–1.36 (m, 1H), 1.34–1.30 (m, 12H), 1.29–1.14 (m, 4H), 1.12 (s, 3H), 0.86 (t, 3H)

[0511] 反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、トリスアセチルアセトナトリジウム (1.0 g)、化合物 2 d (2.0 g) 及びペンタデカン (3 mL) を加え、加熱還流下で 46 時間攪拌した。その後、そこへ、トルエンを加え、シリカゲルを敷いたろ過器でろ過した後、得られたシリカゲルから、トルエン及び酢酸エチルの混合溶媒を用いて、金属錯体 B 2 を含む黄色溶液を抽出した。得られた溶液を減圧濃縮することで固体を得た後、得られた固体をアセトニトリル及びヘプタンで洗浄し、更に、シリカゲルカラムクロマトグラフィー (トルエン及び酢酸エチルの混合溶媒) で精製した。その後、得られた固体をトルエン及びアセトニトリルの混合溶媒を用いて晶析した後、更に、50°C で減圧乾燥させることにより、金属錯体 B 2 (1.0 g) を黄色固体として得た。金属錯体 B 2 の HPLC 面積百分率値は 98.8% であった。

[0512] 金属錯体 B 2 の LC-MS 及び NMR の測定結果は、以下のとおりであった。

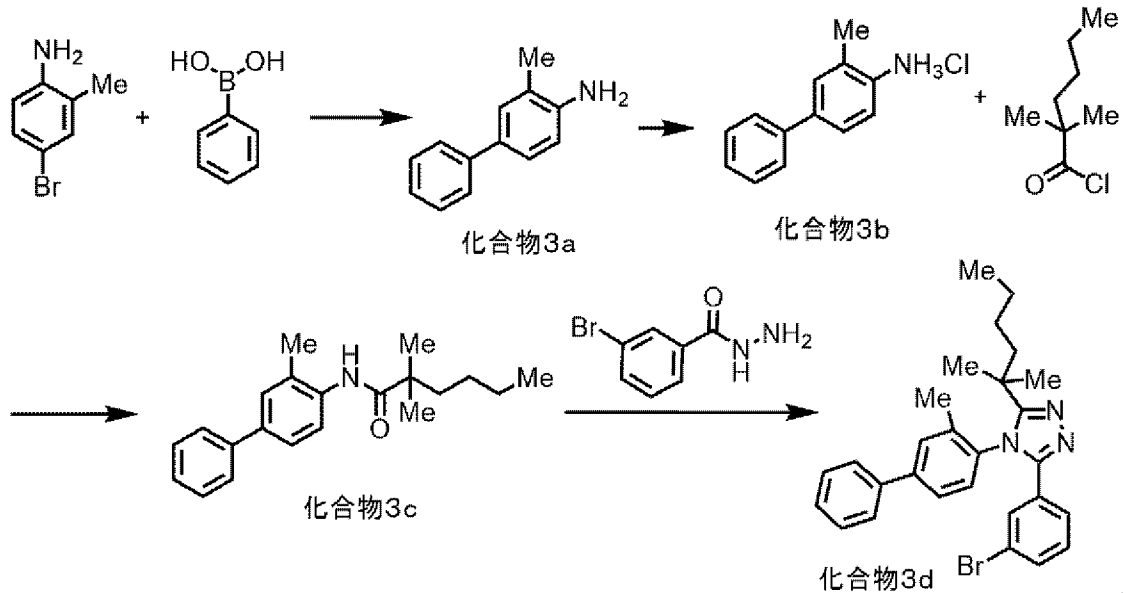
LC-MS (APCI, positive) : $m/z = 1629 [M+H]^+$
 $^1\text{H-NMR}$ (400MHz, CD_2Cl_2) δ (ppm) = 7.41–7.16 (m, 15H), 7.10–6.64 (m, 12H), 6.19–6.04 (m, 3H), 2.54–2.43 (m, 9H), 2.16–1.67 (

m, 9 H), 1.62–1.03 (m, 63 H), 0.85–0.63 (m, 9 H).

金属錯体 B 2 の発光スペクトルの最大ピーク波長は 476 nm であった。

[0513] <合成例 B 3> 金属錯体 B 3 の合成

[0514] [化115]



[0515] 反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、2-フェニル-4,4,5,5-テトラメチル-1,3,2-ジオキサボロラン (50 g)、2-メチル-4-ブロモアニリン (46 g)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0) (3 g)、2-ジシクロヘキシルホスフィノ-2',6'-ジメトキシビフェニル (4 g) 及びトルエン (1 L) を加え、室温で攪拌した。その後、そこへ、20質量%テトラエチルアンモニウムヒドロキシド水溶液を室温で滴下した後、70℃で5時間攪拌した。得られた反応液を室温まで冷却後、得られた反応液を分液し、有機層を得た。得られた有機層をイオン交換水で洗浄した。その後、得られた有機層を硫酸マグネシウムで乾燥させた後、ろ過した。得られたろ液を濃縮した後、そこへ、テトラヒドロフラン及び活性白土を加え、室温で30分間攪拌した後、セライトを敷いたろ過器でろ過する操作を2回繰り返した。得られたろ液を減圧濃縮した後、そこへ、トルエン及び活性炭を加え、室温で30分間攪拌した。その後、セラ

イトを敷いたろ過器でろ過し、得られたろ液を濃縮した。上記操作を繰り返すことで、化合物 3 a (92 g、赤茶色油状物) を得た。化合物 3 a の GC 面積百分率値は 99.5% 以上であった。

[0516] 反応容器内を窒素ガス雰囲気とした後、化合物 3 a (92 g) 及びシクロペンチルメチルエーテル (214 mL) を加え、攪拌した。その後、反応容器を氷浴を用いて冷却した後、そこへ、16 質量%塩化水素シクロペンチルメチルエーテル溶液 (114 g) を滴下し、次いで、ヘプタン (649 mL) を滴下した。滴下後、室温で1時間攪拌を継続した後、析出した固体をろ取り、得られた固体をヘプタン及びアセトンで洗浄した。得られた固体を2-プロパノール、メタノール、エタノール及びヘプタンを用いて複数回晶析した後、得られた固体を室温で減圧乾燥させることで、化合物 3 b (37 g、薄赤色固体) を得た。上記操作を繰り返すことにより、必要量の化合物 3 b を確保した。

[0517] 化合物 3 b の NMR の測定結果は、以下のとおりであった。

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz, CDCl_3) δ (ppm) = 7.33–7.65 (8H, m), 4.85 (3H, s), 2.46 (3H, s).

[0518] 反応容器内をアルゴン雰囲気とした後、2, 2'-ジメチルヘキサン酸 (29 g)、クロロホルム (174 mL) 及び N, N'-ジメチルホルムアミド (0.14 g) を加え、50°C で攪拌した。その後、そこへ、塩化チオニル (24 g) を滴下した後、50°C で4時間攪拌した。その後、反応容器を氷浴を用いて冷却することにより、2, 2'-ジメチルヘキサノイルクロライドを含む反応液を調製した。

別途用意した反応容器内を窒素ガス雰囲気とした後、化合物 3 b (39 g)、クロロホルム (290 mL) 及びトリエチルアミン (47 mL) を加え、攪拌した。その後、反応容器を氷浴を用いて冷却した後、そこへ、上記で調製した 2, 2'-ジメチルヘキサノイルクロライドを含む反応液を滴下した。滴下後、室温で2時間攪拌を継続した後、そこへ、飽和炭酸ナトリウム水溶液 (300 mL) を加え、室温で攪拌した。得られた反応混合物を分液

することにより、有機層を得た。得られた有機層を飽和炭酸ナトリウム水溶液及びイオン交換水で順次洗浄した。その後、得られた有機層を硫酸マグネシウムで乾燥させた後、ろ過した。得られたろ液を減圧濃縮した後、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（ヘキサン及び酢酸エチルの混合溶媒）で分取精製することにより、油状物を得た。得られた油状物にヘキサンを加えた後、得られた混合物を、ドライアイスを加えたアセトンバスを用いて冷却しながら、1時間攪拌することにより、固体が析出した。その後、得られた固体をろ取し、得られた固体を50℃で減圧乾燥させることで、化合物3c（40g、白色固体）を得た。上記操作を繰り返すことにより、必要量の化合物3cを確保した。化合物3cのHPLC面積百分率値は99.5%以上であった。

[0519] 化合物3cのNMRの測定結果は、以下のとおりであった。

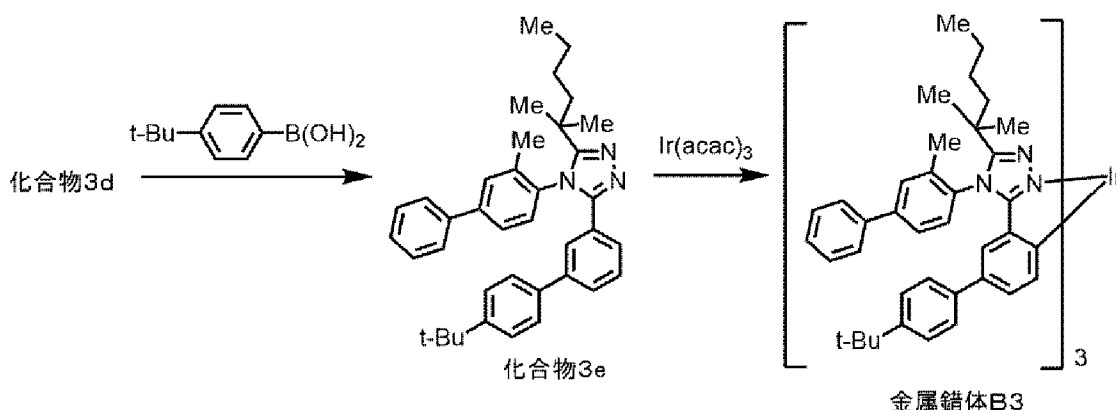
$^1\text{H-NMR}$ (400MHz, CDCl_3) δ (ppm) = 7.98 (1H, d), 7.55 (1H, d), 7.42 (1H, t), 7.41 (4H, m), 7.31 (1H, t), 2.32 (3H, s), 1.62 (2H, s), 1.35 (10H, s), 0.91 (3H, s).

[0520] 反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、化合物3c（30g）、モノクロロベンゼン（300mL）、2-フルオロピリジン（9mL）及びトリフルオロメタンスルホン酸無水物（18mL）を加え、室温下で30分攪拌した。その後、そこへ、2-プロモベンゾイルヒドラジン（23g）を加えた後、90℃で3時間攪拌した。その後、得られた反応液を室温まで冷却した後、そこへ、炭酸水素ナトリウム水溶液（300mL）を加え、有機層を抽出した。得られた有機層をイオン交換水で洗浄した。その後、得られた有機層を減圧濃縮することで固体を得た。得られた固体をヘキサンで洗浄した後、更に、2-プロパノール、ヘプタン及びアセトニトリルを用いて複数回晶析した。その後、得られた固体を50℃で減圧乾燥させることにより、化合物3d（31g）を白色固体として得た。化合物3dのHPLC面積百分率値は99.5%以上であった。

[0521] 化合物3dのLC-MS及びNMRの測定結果は、以下のとおりであった。

LC-MS (APCI, positive) : $m/z = 488 [M+H]^+$
 $^1\text{H-NMR}$ (400MHz, CDCl_3) δ (ppm) = 7.57–7.64 (m, 4H), 7.38–7.49 (m, 6H), 7.28–7.30 (d, 1H), 7.07 (t, 1H), 1.85 (3H, s), 1.67–1.74 (2H, m), 1.42–1.50 (1H, m), 1.39 (3H, s), 1.14–1.36 (3H, m), 1.17 (3H, s), 0.88 (3H, t).

[0522]



[0523] 反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、化合物3d (10g)、4-tert-ブチルフェニルボロン酸 (4g) 及びトルエンを加え、室温で攪拌した。その後、そこへ、ビス(ジ-tert-ブチル(4-ジメチルアミノフェニル)ホスフィン)ジクロロパラジウム (72mg) を加えた後、90℃に加熱した。その後、そこへ、20質量%テトラブチルアンモニウムヒドロキシド水溶液 (64g) を滴下した後、90℃で3時間攪拌した。その後、反応容器を室温まで冷却した後、得られた反応混合物を分液した。得られた有機層をイオン交換水で2回洗浄した。その後、得られた有機層を硫酸マグネシウムで乾燥させた後、ろ過した。得られたろ液に活性炭を加え、室温で30分間攪拌した後、セライトを敷いたろ過器でろ過した。得られたろ液を減圧濃縮した後、そこへ、ヘキサンを加え、固体をろ取した。得られた固体をヘキサン及び2-プロパノールを用いて複数回晶析した後、得られ

た固体を50℃で減圧乾燥させることで化合物3e(9g、白色固体)を得た。化合物3eのHPLC面積百分率値は99.5%以上であった。

[0524] 化合物3eのLC-MS及びNMRの測定結果は、以下のとおりであった。

LC-MS (APCI, positive) : $m/z = 542 [M+H]^+$
 $^1\text{H-NMR}$ (400MHz, CDCl_3) δ (ppm) = 7.63–7.68 (m, 4H), 7.31–7.52 (m, 8H), 7.25 (d, 2H), 7.15–7.17 (d, 2H), 1.88 (s, 3H), 1.43 (s, 3H), 1.28 (s, 9H), 1.21 (s, 3H), 1.45–1.78 (m, 1H), 1.17–1.39 (m, 5H), 0.88 (3H, t)

[0525] 反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、トリスアセチルアセトナトリウム(1.1g)、化合物3e(5.0g)及びペンタデカン(13mL)を加え、加熱還流下で48時間攪拌した。その後、そこへ、トルエンを加え、シリカゲルを敷いたろ過器でろ過した後、得られたシリカゲルから、トルエン及び酢酸エチルの混合溶媒を用いて、金属錯体B3を含む黄色溶液を抽出した。得られた溶液を減圧濃縮することで固体を得た後、得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(トルエン及び酢酸エチルの混合溶媒)で精製することにより、固体を得た。得られた固体をトルエン及びアセトニトリルの混合溶媒を用いた晶析、並びに、トルエン及びヘキサンの混合溶媒を用いた晶析を、それぞれ、複数回繰り返した。その後、得られた固体を50℃で減圧乾燥させることにより、金属錯体B3(1.7g、黄色固体)を得た。金属錯体B3のHPLC面積百分率値は98.3%であった。

[0526] 金属錯体B3のNMRの測定結果は、以下のとおりであった。

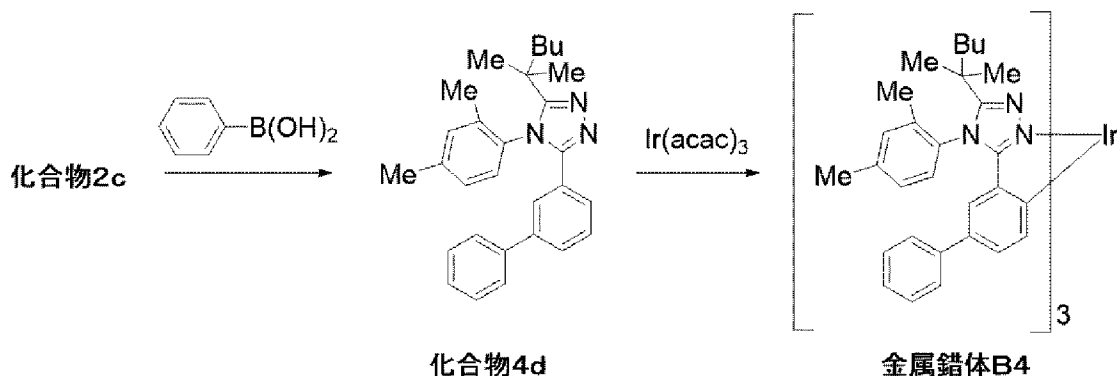
$^1\text{H-NMR}$ (400MHz, CD_2Cl_2) δ (ppm) = 7.42–7.73 (24H, m), 6.97–7.11 (18H, m), 6.13–6.26 (3H, m), 2.23–2.27 (4H, m), 2.01 (1H, s), 1.94 (1H, s), 0.97–1.89 (34H, m), 1.88 (2

H, d), 1.56 (3H, s), 1.20 (27H, s), 0.70–0.84 (9H, m).

金属錯体B3の発光スペクトルの最大ピーク波長は478nmであった。

[0527] <合成例B4> 金属錯体B4の合成

[0528] [化116]



[0529] 反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、化合物2c (7.0g)、フェニルボロン酸 (2.1g)、トルエン (70mL) 及び (ジ-tert-ブチル (4-ジメチルアミノフェニル) ホスフィン) ジクロロパラジウム (II) (58mg) を加え、80℃に昇温した。その後、そこへ、20質量%のテトラブチルアンモニウムヒドロキシド水溶液 (51g) を加えた後、加熱還流下で18時間攪拌した。その後、得られた反応液を室温まで冷却した後、そこへ、トルエンを加え、有機層を抽出した。得られた有機層をイオン交換水で洗浄し、更に、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた後、シリカゲル及びセライトを敷いたろ過器でろ過した。その後、得られたろ液を減圧濃縮することで粗生成物を得た。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (クロロホルム及びエタノールの混合溶媒) で精製した後、更に、50℃で減圧乾燥させることにより、化合物4d (4.7g、収率48%) を無色油状物として得た。化合物4dのHPLC面積百分率値は99.5%以上であった。

[0530] 化合物4dのLC-MS及びNMRの測定結果は、以下のとおりであった。

LC-MS (APPI, positive) : $m/z = 480 [M+H]^+$

$^1\text{H-NMR}$ (400MHz, $\text{CD}_2\text{Cl}_2-d_2$) δ (ppm) = 7.54–7.46 (m, 2H), 7.43–7.39 (m, 1H), 7.39–7.27 (m, 7H), 7.21 (d, 1H), 7.07 (s, 1H), 2.39 (s, 3H), 1.75 (s, 3H), 1.71–1.62 (m, 1H), 1.46–1.36 (m, 1H), 1.33 (s, 3H), 1.32–1.14 (m, 4H), 1.13 (s, 3H), 0.86 (t, 3H).

[0531] 反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、トリスアセチルアセトナトリジウム (1.5g)、化合物4d (4.5g) 及びペンタデカン (14mL) を加え、加熱還流下で46時間攪拌した。その後、そこへ、トルエンを加え、シリカゲルを敷いたろ過器でろ過した後、得られたシリカゲルから、トルエン及び酢酸エチルの混合溶媒を用いて、金属錯体B4を含む黄色溶液を抽出した。得られた溶液を減圧濃縮することで固体を得た後、得られた固体をアセトニトリル及びヘプタンで洗浄し、次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー (トルエン及び酢酸エチルの混合溶媒) で精製した。その後、得られた固体をトルエン及びアセトニトリルの混合溶媒を用いて晶析した後、得られた固体を50°Cで減圧乾燥させることにより、金属錯体B4 (3.2g) を黄色固体として得た。金属錯体B4のHPLC面積百分率値は96.3%であった。

[0532] 金属錯体B4のLC-MS及びNMRの測定結果は、以下のとおりであった。

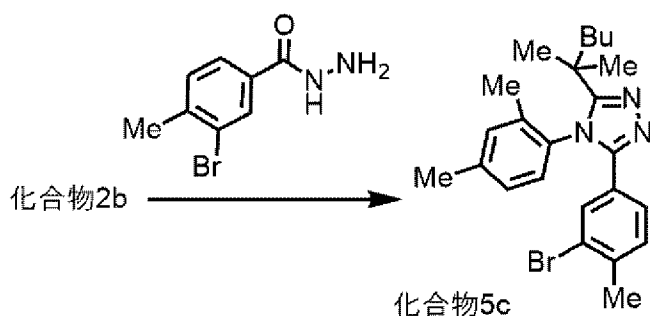
LC-MS (APCI, positive) : $m/z = 1629$ [M+H]⁺

$^1\text{H-NMR}$ (400MHz, CD_2Cl_2) δ (ppm) = 7.41–7.17 (m, 15H), 7.15–6.67 (m, 15H), 6.21–6.06 (m, 3H), 2.53–2.43 (m, 9H), 2.16–2.05 (m, 5H), 1.90–1.67 (m, 4H), 1.62–0.99 (m, 36H), 0.83–0.62 (m, 9H).

金属錯体B4の発光スペクトルの最大ピーク波長は476nmであった。

[0533] <合成例 B 5> 金属錯体 B 5 の合成

[0534] [化117]



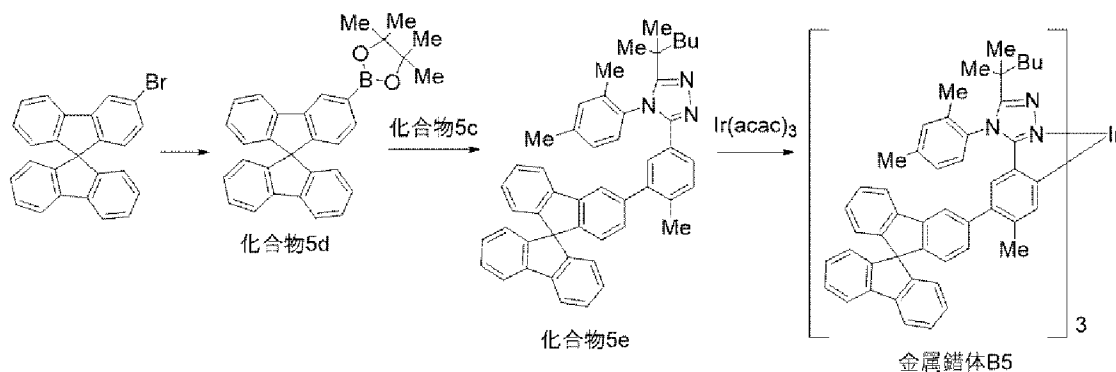
[0535] 反応容器をアルゴンガス雰囲気とした後、化合物 2 b (2 5 . 2 g) 、 2-フルオロピリジン (1 0 . 8 g) 、 クロロベンゼン (2 0 2 m L) 及びトリフルオロ酢酸無水物 (3 1 . 3 g) を加え、攪拌した。その後、反応容器を水浴を用いて冷却した後、そこへ、2-ブromo3-メチルベンゾイルヒドラジン (2 5 . 4 g) を加え、室温で 1 0 分間攪拌した。その後、反応液を少量取り出し、クロロホルムで希釈した後、H P L C 測定を実施することにより、化合物 2 b の残存量が 2 % 未満 (H P L C 面積百分率値) になったことを確認した後、反応液を、更に、9 0 ° C で 7 時間攪拌した。その後、反応容器を室温まで冷却後、そこへ、炭酸水素ナトリウム水溶液 (1 0 0 m L) を加え、有機層を抽出した。得られた有機層をイオン交換水で洗浄した。その後、得られた有機層に硫酸マグネシウムを加え、乾燥させた。その後、乾燥させた有機層に、活性炭 1 2 . 6 g を加えて、攪拌した後、セライトを敷いたろ過器でろ過した。得られたろ液を減圧濃縮することにより、固体を得た。得られた固体に、クロロホルム及びテトラヒドロフランを加えた後、シリカゲル及びセライトを敷いたろ過器でろ過した。その後、得られたろ液を減圧濃縮することにより、固体を得た。得られた固体を、トルエン及びヘプタンの混合溶媒を用いて晶析した。その後、得られた固体を 5 0 ° C で減圧乾燥させることにより、化合物 5 c (3 6 . 2 g) を白色固体として得た。化合物 5 c の H P L C 面積百分率値は 9 9 . 5 % 以上であった。

[0536] 化合物 5 c の N M R の測定結果は、以下のとおりであった。

$^1\text{H-NMR}$ (4 0 0 M H z , $\text{CD}_2\text{Cl}_2-d_2$) δ (p p m) = 7 . 6 1 -

7.53 (m, 1H), 7.28–7.21 (m, 1H), 7.21–7.12 (m, 1H), 7.12–7.01 (m, 3H), 2.34 (s, 3H), 2.30 (s, 3H), 1.75–1.60 (m, 5H), 1.42–1.08 (m, 10H), 85 (t, 3H).

[0537] [化118]



[0538] 反応容器内を窒素ガス雰囲気とした後、3-ブロモスピロフルオレン (5.0 g)、ビスピナコラートジボロン (4.1 g)、酢酸カリウム (4.9 g) 及びシクロペンチルメチルエーテル (125 mL) を加え、攪拌した。その後、そこへ、[1,1'-ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン]パラジウム(II)ジクロリド ジクロロメタン (0.3 g) を加えた後、90℃で16時間攪拌を継続した。その後、反応容器を室温まで冷却した後、得られた反応液を分液した。得られた有機層をイオン交換水 (50 mL) で2回洗浄した。その後、得られた有機層を硫酸マグネシウムで乾燥させた後、ろ過し、得られたろ液を減圧濃縮することで固体を得た。得られた固体に、トルエン及び活性炭 (1.4 g) を加え、室温で1時間攪拌した後、セライトを敷いたろ過器でろ過した。得られたろ液を濃縮することで、白色固体を得た。得られた白色固体を、トルエン及びアセトニトリルを用いて晶析し、次いで、得られた固体を50℃で減圧乾燥させることで化合物5d (4.5 g、白色固体) を得た。

[0539] 化合物5dの¹H-NMR測定結果は、以下のとおりであった。

¹H-NMR (CD₂Cl₂, 400MHz) : δ (ppm) = 1.33 (12 H, m), 6.64 (4 H, m), 7.06–7.23 (3 H, m), 7.

3.5 (3H, t), 7.51 (1H, d), 7.86 (2H, d), 7.91 (1H, d), 8.26 (1H, s).

[0540] 反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、化合物5c (1.7g)、化合物5d (2.0g)、40質量%テトラブチルアンモニウムヒドロキシド水溶液 (5.9g)、イオン交換水 (5.9g) 及びトルエン (19.9g) を加え、室温で攪拌した。その後、そこへ、ビス(ジ-tert-ブチル(4-ジメチルアミノピフェニル)ホスフィン)ジクロロパラジウム (0.03g) を加えた後、80℃で19時間攪拌した。その後、反応容器を室温まで冷却した後、得られた反応液を分液した。得られた有機層をイオン交換水 (27.0g) で2回洗浄した。その後、得られた有機層を硫酸マグネシウムで乾燥させた後、ろ過した。得られたろ液に活性炭 (0.5g) を加え、室温で1時間攪拌した後、セライトを敷いたろ過器でろ過した。得られたろ液を減圧濃縮することにより、固体を得た。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ヘキサン及び酢酸エチルの混合溶媒) で分取精製することにより、固体を得た。得られた固体をトルエン及びヘプタンの混合溶媒、並びに、トルエン及びアセトニトリルの混合溶媒を用いて複数回晶析した。その後、得られた固体を50℃で減圧乾燥させた。上記の操作を繰り返すことにより、化合物5e (2.6g、白色固体) を得た。化合物5eのHPLC面積百分率値は99.5%以上であった。

[0541] 化合物5eの¹H-NMR測定結果は、以下のとおりであった。

¹H-NMR (CD₂Cl₂, 400MHz) : δ (ppm) = 7.89-7.85 (m, 2H), 7.84-7.80 (m, 1H), 7.60-7.57 (m, 1H), 7.40-7.35 (m, 3H), 7.30-7.26 (m, 2H), 7.23 (d, 1H), 7.18-7.08 (m, 5H), 7.05 (br, 1H), 6.82 (dd, 1H), 6.74-6.63 (m, 4H), 2.32 (s, 3H), 2.27 (s, 3H), 1.76 (s, 3H), 1.69-1.59 (m, 1H), 1.44-1.37 (m, 1H), 1.32 (s, 3H), 1.29-1.15 (m, 4H), 1.09 (s

, 3 H), 0.85 (t, 3 H).

[0542] 反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、トリスアセチルアセトナトリジウム (0.5 g)、化合物 5 e (2.5 g) 及びペンタデカン (7.2 g) を加え、加熱還流下で 46 時間攪拌した。その後、そこへ、トルエン (9.0 g) を加え、シリカゲル (22.6 g) を敷いたろ過器でろ過した後、得られたシリカゲルから、トルエン及び酢酸エチルの混合溶媒を用いて、金属錯体 B 5 を含む黄色溶液を抽出した。得られた溶液を減圧濃縮することで固体を得た後、得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (トルエン及び酢酸エチルの混合溶媒) で精製することにより、固体を得た。得られた固体をトルエン及びアセトニトリルの混合溶媒を用いて晶析し、次いで、50°C で減圧乾燥させることにより、金属錯体 B 5 (0.7 g、黄色固体) を得た。金属錯体 B 5 の HPLC 面積百分率値は 99.0% であった。

[0543] 金属錯体 B 5 の LC/MS 及び $^1\text{H-NMR}$ 測定結果は、以下のとおりであった。

LC/MS (APCI, positive) : $m/z = 2218$ [M+H]⁺

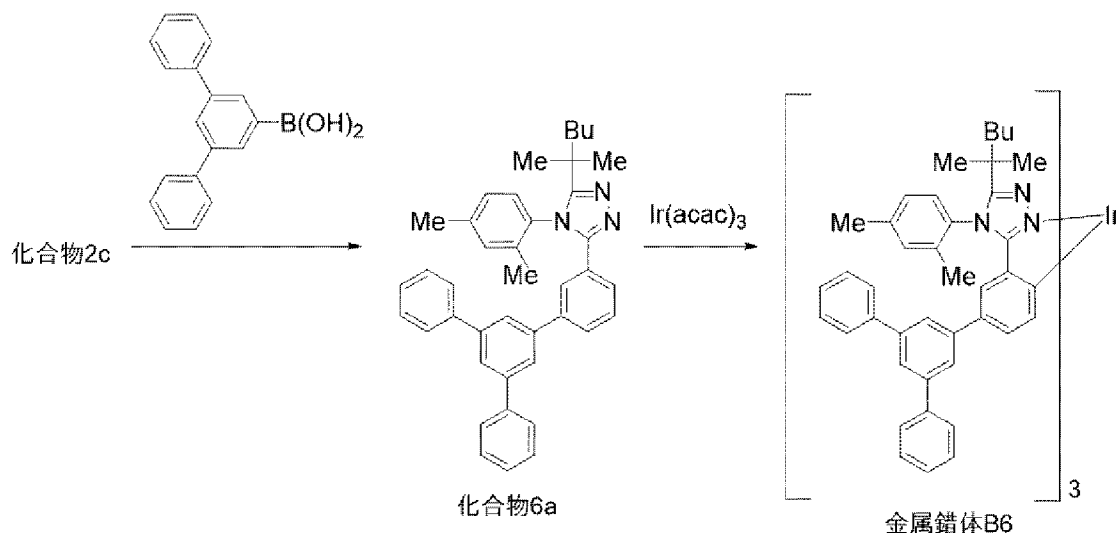
$^1\text{H-NMR}$ (CD_2Cl_2 , 400 MHz) : δ (ppm) = 7.90–7.82 (m, 9H), 7.51–7.34 (m, 15H), 7.27–7.09 (m, 15H), 6.90–6.78 (m, 3H), 6.75–6.59 (m, 12H), 6.57–6.51 (m, 3H), 5.88–5.78 (m, 3H), 2.25–2.05 (m, 27H), 2.01–1.83 (m, 6H), 1.47–1.06 (m, 30H), 0.89–0.72 (m, 9H).

金属錯体 B 5 の発光スペクトルの最大ピーク波長は 467 nm であった。

[0544] <合成例 B 6> 金属錯体 B 6 の合成

[0545]

[化119]



[0546] 反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、化合物2c(13.0g)、5'-m-テルフェニルボロン酸(9.2g)、ビス(ジ-t-ブチル(4-ジメチルアミノピフェニル)ホスフィン)ジクロロパラジウム(0.1g)及びトルエン(100mL)を加え、室温で攪拌した。その後、そこへ、40質量%テトラブチルアンモニウムヒドロキシド水溶液(49mL)を加えた後、90℃で21時間攪拌した。その後、反応容器を室温まで冷却した後、得られた反応液を分液した。得られた有機層をイオン交換水で洗浄した。その後、得られた有機層を硫酸マグネシウムで乾燥させた後、ろ過した。得られたろ液に活性炭(3.0g)を加え、室温で1時間攪拌した後、セライトを敷いたろ過器でろ過した。得られたろ液を減圧濃縮することにより、粗生成物を得た。得られた粗生成物を、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(クロロホルム及びエタノールの混合溶媒)で分取精製することにより、油状物を得た。得られた油状物にメタノール及び活性炭を加え、室温で1時間攪拌した後、セライトを敷いたろ過器でろ過した。得られたろ液を減圧濃縮することにより、白色固体を得た。得られた固体をヘプタン及び2-プロパノールの混合溶媒を用いて晶析し、得られた固体を50℃で減圧乾燥することにより、化合物6a(11.3g、白色固体)を得た。化合物6aのHPLC面積百分率値は99.5%以上であった。

化合物 6 a の¹H-NMR測定結果は、以下のとおりであった。

¹H-NMR (400MHz、CD₂Cl₂) δ (ppm) = 7.80–7.25 (m, 18H), 7.20–7.07 (m, 1H), 7.01 (t, 1H), 2.19–2.09 (t, 3H), 1.84–1.56 (m, 5H), 1.45–1.06 (m, 10H), 0.94–0.86 (m, 3H).

[0547] 反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、トリスアセチルアセトナトリウム (2.1g)、化合物 6 a (10g) 及びペンタデカン (50mL) を加えた後、加熱還流下で63時間攪拌した。その後、反応容器を室温まで冷却し、そこへ、2-プロパノール (100mL) を加え、析出した固体をろ取した。得られた固体をジクロロメタン及びアセトニトリルの混合溶媒で洗浄することにより、黄色固体 (5.5g) を得た。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (トルエン及び酢酸エチルの混合溶媒) で分取精製した後、ジクロロメタン及びエタノールの混合溶媒、トルエン及びアセトニトリルの混合溶媒、並びに、トルエン及びヘプタンの混合溶媒を用いて晶析した。更に、得られた固体を逆相シリカゲルカラムクロマトグラフィー (塩化メチレン及びアセトニトリルの混合溶媒) で分取精製した後、トルエン及びエタノールの混合溶媒を用いて晶析した。その後、得られた固体を50°Cで減圧乾燥させることにより、金属錯体 B 6 (3.0g、黄色固体) を得た。金属錯体 B 6 のHPLC面積百分率値は99.5%以上であった。

金属錯体 B 6 の¹H-NMR測定結果は、以下のとおりであった。

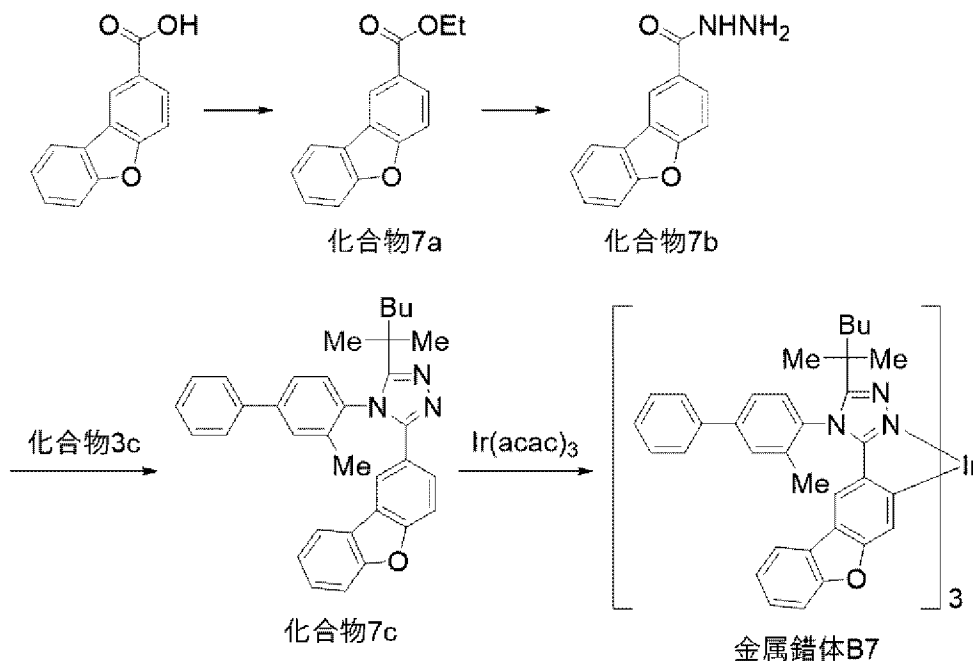
¹H-NMR (400MHz、CD₂Cl₂) δ (ppm) = 7.66–7.56 (m, 15H), 7.51–7.19 (m, 27H), 7.17–6.80 (m, 12H), 6.41–6.26 (m, 3H), 2.34–2.49 (m, 6H), 1.96–1.80 (m, 12H), 1.63–1.00 (m, 36H), 0.89–0.65 (m, 9H).

金属錯体 B 6 の発光スペクトルの最大ピーク波長は477nmであった。

[0548] <合成例 B 7> 金属錯体 B 7 の合成

[0549]

[化120]



[0550] 反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、2-ジベンゾフランカルボン酸（20.0g）、硫酸（1.8g）及びエタノール（600mL）を加え、80℃で45時間攪拌した後、得られた反応液を室温にした。上記の操作を2回繰り返した後、得られた2回の反応液を合一した。得られた合一した反応液を濃縮した後、そこへ、酢酸エチル（400mL）を加え、濃縮した。得られた濃縮物に、酢酸エチル（200mL）及びイオン交換水（200mL）を加え、有機層を抽出した。得られた有機層を炭酸ナトリウム水溶液（200mL）で洗浄した後、得られた有機層をイオン交換水（200mL）で洗浄した。その後、得られた有機層を硫酸マグネシウムで乾燥させた後、セライト及びシリカゲルを敷いたろ過器でろ過した。得られたろ液を減圧濃縮することにより、油状物を得た。その後、得られた油状物を50℃で減圧乾燥させることにより、化合物7a（39.4g）を薄黄色の油状物として得た。化合物7aのHPLC面積百分率値は99.0%であった。

化合物7aの¹H-NMR測定結果は、以下のとおりであった。

¹H-NMR（400MHz、CD₂Cl₂）δ（ppm）=1.40（3H, t）, 4.39（2H, q）, 7.38（1H, dt）, 7.50（1H,

d t), 7.59 (2H, d), 8.02 (1H, dd), 8.16 (1H, dd), 8.67 (1H, d).

[0551] 反応容器をアルゴン雰囲気下とした後、化合物7a (40.0g)、エタノール (360mL)、イオン交換水 (40mL) 及びヒドラジーン水和物 (125.0g) を加えた後、80°Cで6時間攪拌した。その後、反応液を室温まで冷却した後、そこへ、イオン交換水 (300mL) を加え、0°Cで1時間攪拌したところ、固体が生じた。得られた固体をろ取した後、得られた固体をイオン交換水 (200mL) で2回洗浄し、更に、50%エタノール水 (200mL) で1回洗浄した。得られた固体に、2-プロパノール (565mL) を加えた後、懸濁攪拌した。その後、固体をろ取し、得られた固体を50°Cで減圧乾燥させることにより、化合物7b (34.5g) を白色固体として得た。化合物7bのHPLC面積百分率値は97.1%であった。

化合物7bの¹H-NMR測定結果は、以下のとおりであった。

¹H-NMR (400MHz, CD₃OD) δ (ppm) = 4.84 (2H, s), 7.39 (1H, dt), 7.52 (1H, dt), 7.60 (1H, dd), 7.64 (1H, d), 7.93 (1H, dd), 8.07 (1H, dd), 8.48 (1H, d).

[0552] 反応容器をアルゴン雰囲気下とした後、化合物3c (22.0g)、モノクロロベンゼン (220mL)、2-フルオロピリジン (6.7mL) 及びトリフルオロメタンスルホン酸無水物 (12.8mL) を加え、室温で攪拌した。その後、そこへ、化合物7b (17.7g) を加えた後、85°Cで3時間攪拌した。その後、得られた反応液を室温まで冷却した後、そこへ、炭酸水素ナトリウム水溶液 (78mL) を加え、有機層を抽出した。得られた有機層をイオン交換水 (88mL) で洗浄した。その後、得られた有機層を硫酸マグネシウムで乾燥させた後、ろ過した。得られたろ液を減圧濃縮した後、得られた固体をヘキサンで洗浄した。その後、得られた固体を、アセトニトリルを用いて晶析した後、更に、50°Cで減圧乾燥させることにより、化合物7c (28.2g) を白色固体として得た。化合物7cのHPLC面積百分

率値は99.5%以上であった。

化合物7cの¹H-NMR測定結果は、以下のとおりであった。

¹H-NMR (400MHz, CD₂Cl₂) δ (ppm) = 0.89 (3H, t), 1.18 (3H, s), 1.20-1.35 (3H, m), 1.39 (3H, m), 1.46 (1H, dt), 1.63 (1H, m), 1.66-1.75 (1H, m), 1.83 (3H, s), 7.29 (1H, dt), 7.34-7.66 (12H, m), 7.80 (1H, dd), 8.02 (1H, d).

[0553] 反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、トリスアセチルアセトナトリジウム (4.4g)、化合物7c (18.0g) 及びペンタデカン (90mL) を加え、加熱還流下で66時間攪拌した。その後、得られた反応液を室温まで冷却した後、そこへ、2-プロパノール (90mL) を加えたところ、固体が生じた。得られた固体をろ取した後、得られた固体にトルエン (15mL) を加え、シリカゲル (76g) を敷いたろ過器でろ過した。その後、得られたシリカゲルから、トルエン及び酢酸エチルの混合溶媒を用いて、金属錯体B7を含む黄色溶液を抽出した。得られた溶液を減圧濃縮した後、得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (トルエン及び酢酸エチルの混合溶媒) で分取精製することで、固体を得た。得られた固体をトルエン及びエタノールの混合溶媒で晶析した後、更に、50℃で減圧乾燥させることにより、金属錯体B7 (7.0g、黄色固体) を得た。金属錯体B7のHPLC面積百分率値は98.3%であった。

金属錯体B7のLC/MS及び¹H-NMR測定結果は、以下のとおりであった。

LC/MS (APCI, positive) : m/z = 1688.8 [M+H]⁺

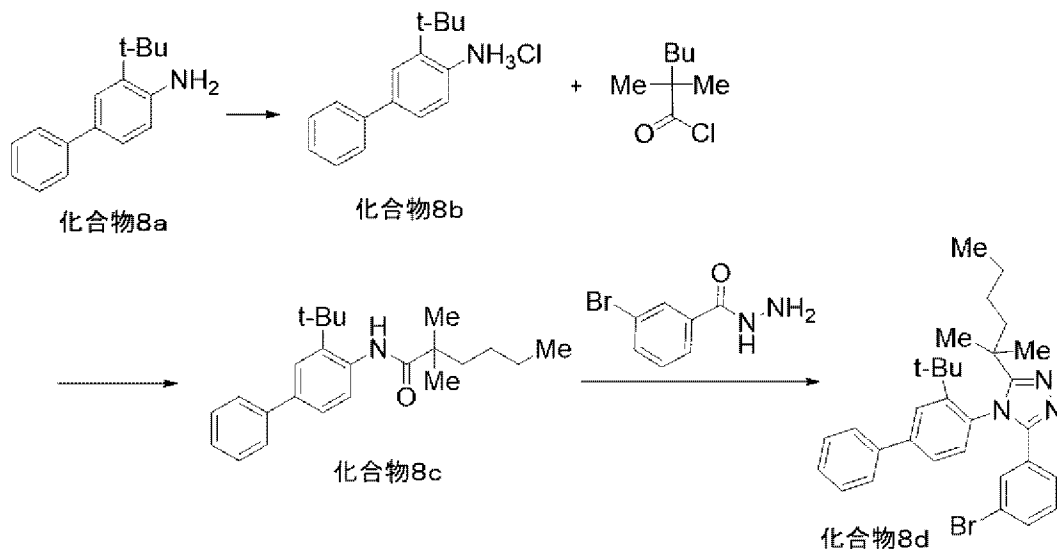
¹H-NMR (400MHz, CD₂Cl₂) δ (ppm) = 0.49-0.86 (10H, m), 0.94-1.70 (35H, m), 1.81-1.91 (4H, m), 2.23-2.32 (5H, m), 6.51-6.59 (3

H, m), 6.78–7.27 (15 H, m), 7.43–7.81 (24 H, m).

金属錯体 B 7 の発光スペクトルの最大ピーク波長は 452 nm であった。

[0554] <合成例 B 8> 金属錯体 B 8 の合成

[0555] [化121]



[0556] 反応容器内を窒素ガス雰囲気とした後、化合物 8 a (27.5 g) 及びシクロペンチルメチルエーテル (55 g) を加え、攪拌した。その後、反応容器を氷浴を用いて冷却した後、そこへ、16質量%塩化水素シクロペンチルメチルエーテル溶液 (27.8 g) を滴下した。その後、そこへ、ヘプタン (110 g) を滴下した後、室温で1時間攪拌を継続し、析出した固体をろ取した。得られた固体を、ヘプタン及びシクロペンチルメチルエーテルで洗浄した後、更に、減圧乾燥させることで、化合物 8 b (29 g) を得た。

[0557] 反応容器内を窒素ガス雰囲気とした後、2, 2' -ジメチルヘキサノ酸 (17.3 g)、クロロホルム (114 g) 及び N, N' -ジメチルホルムアミド (0.04 g) を加え、50℃で攪拌した。その後、そこへ、塩化チオニル (15.0 g) を滴下した後、40℃で3時間攪拌することにより、2, 2' -ジメチルヘキサノイルクロライドを発生させた。その後、反応容器を水浴を用いて冷却し、2, 2' -ジメチルヘキサノイルクロライドを含む反応液を得た。

別途用意した反応容器内を窒素ガス雰囲気とした後、化合物 8 b (28.5 g)、クロロホルム (114 g) 及びトリエチルアミン (39.7 g) を加え、攪拌した。その後、反応容器を氷浴を用いて冷却した後、そこへ、上記で調製した 2, 2'-ジメチルヘキサノイルクロライドを含む反応液を滴下した後、40℃で5時間攪拌した。その後、得られた反応液を室温まで冷却した後、そこへ、イオン交換水を滴下した。その後、水層を除去した後、得られた有機層をイオン交換水で洗浄し、更に、減圧濃縮することにより、粗生成物を得た。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (トルエン及び酢酸エチルの混合溶媒) で分取精製した後、更に、ヘプタンを用いて晶析した。その後、得られた固体を50℃で減圧乾燥させることで、化合物 8 c (26.4 g) を得た。化合物 8 c の HPLC 面積百分率値は 99.5%以上であった。

化合物 8 c の NMR の測定結果は、以下のとおりであった。

$^1\text{H-NMR}$ (CD_2Cl_2 , 400 MHz) : δ (ppm) = 7.64–7.60 (m, 2H), 7.59–7.55 (m, 2H), 7.44–7.39 (m, 3H), 7.36 (br, 1H), 7.34–7.29 (m, 1H), 1.65–1.57 (m, 2H), 1.43 (s, 9H), 1.36–1.27 (m, 10H), 0.92–0.87 (m, 3H).

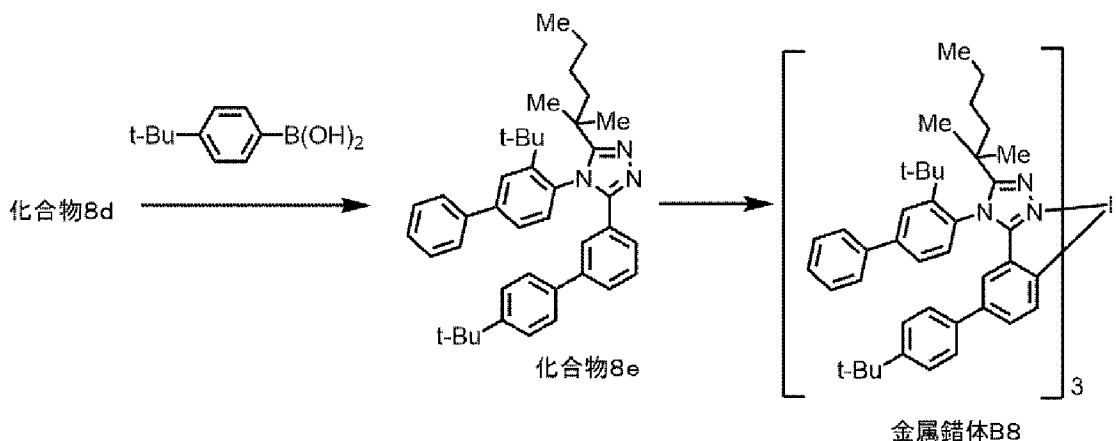
[0558] 反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、化合物 8 c (5.5 g)、モノクロロベンゼン (28 g)、2-フルオロピリジン (1.7 g) 及びトリフルオロメタンスルホン酸無水物 (4.9 g) を加え、室温下で1時間攪拌した。その後、そこへ、3-ブロモベンズヒドラジド (3.7 g) を加えた後、110℃で17時間攪拌した。その後、得られた反応液を室温まで冷却した後、そこへ、2 mol/L 炭酸水素ナトリウム水溶液 (30 g) を加えた。その後、水層を除去した後、得られた有機層をイオン交換水で洗浄し、更に、減圧濃縮することにより、粗生成物を得た。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ヘキサン及び酢酸エチルの混合溶媒) で分取精製した後、更に、50℃で減圧乾燥させることで、化合物 8 d (5.

3 g) を得た。化合物 8 d の H P L C 面積百分率値は 99.1% であった。

化合物 8 d の N M R の測定結果は、以下のとおりであった。

$^1\text{H-NMR}$ (CD_2Cl_2 , 400 MHz) : δ (ppm) = 7.79 (d, 1H), 7.69–7.64 (m, 2H), 7.61 (dd, 1H), 7.55 (dd, 1H), 7.53–7.47 (m, 2H), 7.46–7.39 (m, 2H), 7.35 (d, 1H), 7.34–7.27 (m, 1H), 7.12 (t, 1H), 2.00–1.86 (m, 1H), 1.59–1.50 (m, 1H), 1.44–1.26 (m, 6H), 1.25–1.13 (m, 4H), 0.99–0.88 (m, 12H).

[0559] [化122]



[0560] 反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、化合物 8 d (5.2 g)、4-tert-ブチルフェニルボロン酸 (2.1 g)、トルエン (52 g) 及び (ジ-tert-ブチル (4-ジメチルアミノフェニル) ホスフィン) ジクロロパラジウム (II) (67 mg) を加え、80°C に昇温した。その後、そこへ、20 質量% のテトラブチルアンモニウムヒドロキシド水溶液 (30 mL) を加えた後、加熱還流下で 70 時間攪拌した。その後、得られた反応液を室温まで冷却した後、そこへ、トルエンを加え、シリカゲル及びセライトを敷いたろ過器でろ過した。得られたろ液を減圧濃縮することで固体を得た。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ヘキサン及びクロロホルムの混合溶媒) で精製し、更に、トルエン及びヘプタンの混合溶媒を用いて晶析した後、得られた固体を 50°C で減圧乾燥させることにより

、化合物 8 e (3 . 9 g) を得た。化合物 8 e の H P L C 面積百分率値は 9 9 . 5 % 以上であった。

化合物 8 e の N M R の測定結果は、以下のとおりであった。

$^1\text{H-NMR}$ (CD_2Cl_2 , 400MHz) : δ (ppm) = 7.82 (d, 1H), 7.73–7.66 (m, 3H), 7.64 (dd, 1H), 7.55–7.47 (m, 3H), 7.47–7.35 (m, 3H), 7.23–7.16 (m, 3H), 7.09–7.03 (m, 2H), 2.01–1.90 (m, 1H), 1.60–1.50 (m, 1H), 1.44–1.16 (m, 19H), 0.95–0.84 (m, 12H) .

[0561] 反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、トリスアセチルアセトナトリジウム (0 . 8 6 g) 、化合物 8 e (3 . 6 g) 及びペンタデカン (1 0 g) を加え、加熱還流下で 6 7 時間攪拌した。その後、得られた反応液を室温まで冷却した後、そこへ、トルエンを加え、シリカゲルを敷いたろ過器でろ過した。得られたろ液を減圧濃縮することで固体を得た。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (トルエン及び酢酸エチルの混合溶媒) で精製し、更に、トルエン及びアセトニトリルの混合溶媒を用いて晶析した後、50°Cで減圧乾燥させることにより、金属錯体 B 8 (1 . 0 g) を得た。金属錯体 B 8 の H P L C 面積百分率値は 9 5 . 3 % であった。

[0562] 金属錯体 B 8 の L C - M S 及び N M R の測定結果は、以下のとおりであった。

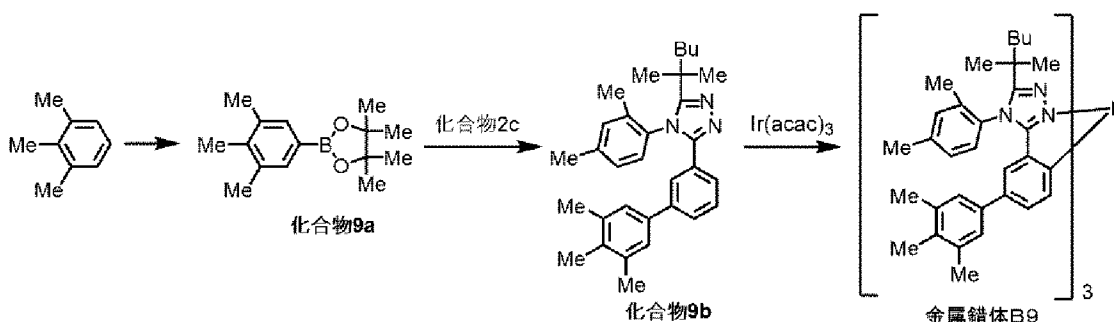
L C - M S (A P C I , p o s i t i v e) : $m/z = 1941$ [M+H]⁺

$^1\text{H-NMR}$ (CD_2Cl_2 , 400MHz) : δ (ppm) = 8.05–7.93 (m, 3H), 7.77–7.31 (m, 21H), 7.17–6.81 (m, 18H), 6.29–6.16 (m, 3H), 2.00–1.77 (m, 2H), 1.75–1.52 (m, 2H), 1.50–1.15 (m, 64H), 1.12–0.80 (m, 28H), 0.54–0.42 (m, 3H) .

金属錯体 B 8 の発光スペクトルの最大ピーク波長は 4 7 9 n m であった。

[0563] <合成例 B 9> 金属錯体 B 9 の合成

[0564] [化123]



[0565] 反応容器内を窒素ガス雰囲気とした後、1, 2, 3-トリメチルベンゼン (168 g)、ビスピナコラートジボロン (384 g)、(1, 5-シクロオクタジエン)(メトキシ)イリジウム(I) (ダイマー) (8 g) 及びシクロペンチルメチルエーテル (1681 mL) を加え、攪拌した。その後、そこへ、(1, 5-シクロオクタジエン)(メトキシ)イリジウム(I) (ダイマー) (10 g) を加えた後、95℃で6時間攪拌を継続した。その後、反応容器を室温まで冷却することにより、反応混合物を得た。

窒素ガス雰囲気とした反応容器を別途用意し、そこへ、メタノール (2391 g) を加え、氷浴で冷却し、攪拌した。その後、そこへ、上記で得られた反応混合物をゆっくりと加えた。その後、そこへ、活性白土 (336 g) を加え、30分間攪拌した後、ろ過器でろ過した。得られたろ液を濃縮することにより、固体を得た。得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (トルエン及びヘキサンの混合溶媒) で分取精製し、更に、アセトニトリルを用いて晶析した。その後、得られた固体を50℃で減圧乾燥させることで、化合物9a (165 g、白色固体) を得た。

化合物9aの¹H-NMR測定結果は、以下のとおりであった。

¹H-NMR (400MHz、CDCl₃) δ (ppm) = 7.46 (s, 2H), 2.29 (s, 6H), 2.19 (s, 3H), 1.34 (s, 12H).

[0566] 反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、化合物2c (9.0 g)、化合物9a (6.2 g)、40質量%テトラブチルアンモニウムヒドロキシド水

溶液 (32.9 g)、イオン交換水 (32.9 g) 及びトルエン (108.0 g) を加え、室温で攪拌した。その後、そこへ、ビス (ジ-tert-ブチル (4-ジメチルアミノピフェニル) ホスフィン) ジクロロパラジウム (0.2 g) を加えた後、80°Cで2時間攪拌した。その後、反応容器を室温まで冷却した後、得られた反応液を分液した。得られた有機層をイオン交換水 (91.0 g) で2回洗浄した。その後、得られた有機層を硫酸マグネシウムで乾燥させた後、ろ過した。得られたろ液に活性炭 (1.6 g) を加え、室温で1時間攪拌した後、セライトを敷いたろ過器でろ過した。得られたろ液を減圧濃縮することにより、トルエン溶液を得た。

反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、上記で得られたトルエン溶液 (49.9 g)、化合物9a (5.2 g)、40質量%テトラブチルアンモニウムヒドロキシド水溶液 (32.9 g)、イオン交換水 (32.9 g) 及びトルエン (108.0 g) を加え、室温で攪拌した。その後、そこへ、ビス (ジ-tert-ブチル (2-ブテニル) ホスフィン) ジクロロパラジウム (0.2 g) を加えた後、80°Cで27時間攪拌した。その後、反応容器を室温まで冷却した後、得られた反応液を分液した。得られた有機層をイオン交換水で2回洗浄した。その後、得られた有機層を硫酸マグネシウムで乾燥させた後、ろ過した。得られたろ液に活性炭を加え、室温で1時間攪拌した後、セライトを敷いたろ過器でろ過した。得られたろ液を濃縮した後、そこへ、ヘプタンを加え、1時間攪拌した後、固体をろ取した。得られた固体を、トルエン及びヘプタンの混合溶媒を用いて晶析し、更に、50°Cで減圧乾燥させることで、化合物9b (6.2 g、白色固体) を得た。化合物9bのHPLC面積百分率値は99.5%以上であった。

化合物9bのLC/MS及び¹H-NMR測定結果は、以下のとおりであった。

LC/MS (APCI, positive) : m/z = 466 [M+H]⁺
¹H-NMR (CD₂Cl₂, 400MHz) : δ (ppm) = 7.51-7.45 (m, 2H), 7.40 (t, 1H), 7.35-7.28 (m, 2H)

), 7.24–7.19 (m, 1H), 7.09–7.06 (m, 1H), 6.91 (s, 2H), 2.40 (s, 3H), 2.28 (s, 6H), 2.16 (s, 3H), 1.75 (s, 3H), 1.70–1.61 (m, 1H), 1.45–1.35 (m, 1H), 1.33 (s, 3H), 1.30–1.16 (m, 4H), 1.11 (s, 3H), 0.89–0.83 (m, 3H).

[0567] 反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、トリスアセチルアセトナトリジウム (1.6 g)、化合物9b (6.0 g) 及びペンタデカン (14.2 g) を加え、加熱還流下で45時間攪拌した。その後、そこへ、トルエン (31.6 g) を加え、シリカゲル (18.9 g) を敷いたろ過器でろ過した後、得られたシリカゲルから、トルエン及び酢酸エチルの混合溶媒を用いて、金属錯体B9を含む黄色溶液を抽出した。得られた溶液を減圧濃縮することで、固体を得た後、得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (トルエン及び酢酸エチルの混合溶媒) で分取精製することにより、固体を得た。得られた固体をトルエン及びアセトニトリルの混合溶媒を用いて晶析し、更に、50°Cで減圧乾燥させることにより、金属錯体B9 (3.2 g、黄色固体) を得た。金属錯体B9のHPLC面積百分率値は99.1%であった。

金属錯体B9のLC/MS及び¹H-NMR測定結果は、以下のとおりであった。

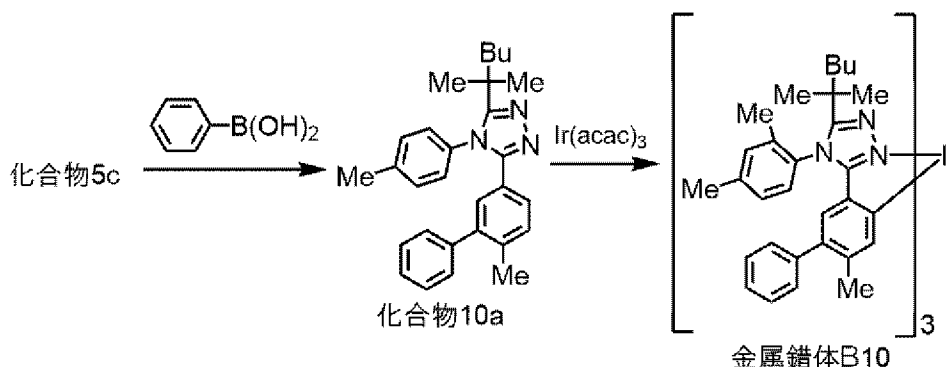
LC/MS (APCI, positive) : m/z = 1585 [M+H]⁺

¹H-NMR (CD₂Cl₂, 400MHz) : δ (ppm) = 7.42–7.16 (m, 9H), 6.99–6.62 (m, 12H), 6.31–6.12 (m, 3H), 2.53–2.41 (m, 9H), 2.31–2.00 (m, 36H), 1.86–1.77 (m, 3H), 1.44–0.98 (m, 33H), 0.85–0.62 (m, 9H).

金属錯体B9の発光スペクトルの最大ピーク波長は478nmであった。

[0568] <合成例 B 1 0> 金属錯体 B 1 0 の合成

[0569] [化124]



[0570] 反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、化合物5c(15.0g)、フェニルホウ酸(4.4g)、ビス(ジ-tert-ブチル(4-ジメチルアミノピフェニル)ホスフィン)ジクロロパラジウム(0.1g)及びトルエン(75mL)を加え、80℃で攪拌した。その後、そこへ、40質量%テトラブチルアンモニウムヒドロキシド水溶液(55mL)を加えた後、80℃で40時間攪拌した。その後、反応容器を室温まで冷却した後、得られた反応液を分液した。得られた有機層をイオン交換水(75mL)で2回洗浄した後、得られた有機層を硫酸マグネシウムで乾燥させた。その後、乾燥させた有機層に、活性炭(15.0g)を加え、室温で1時間攪拌した後、セライトを敷いたろ過器でろ過した。得られたろ液を減圧濃縮することにより、油状物を得た。得られた油状物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(クロロホルム及びエタノールの混合溶媒)で分取精製することにより、固体を得た。得られた固体を、ヘプタン及び2-プロパノールの混合溶媒を用いて晶析し、更に、50℃で減圧乾燥させることにより、化合物10a(4.0g、白色固体)を得た。化合物10aのHPLC面積百分率値は99.5%以上であった。

[0571] 化合物10aの $^1\text{H-NMR}$ 測定結果は、以下のとおりであった。

$^1\text{H-NMR}$ (400MHz、 CD_2Cl_2) δ (ppm) = 7.40–6.94 (m, 11H), 2.42–2.34 (m, 3H), 2.23–2.15 (m, 3H), 1.78–1.48 (m, 6H), 1.42–1.16 (m

, 6 H), 1.13–1.06 (m, 3 H), 0.92–0.77 (m, 3 H).

[0572] 反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、トリスアセチルアセトナトリウム (1.1 g)、化合物 10a (4.0 g) 及びペンタデカン (50 mL) を加え、加熱還流下で 52 時間攪拌した。その後、そこへ、トルエン (32 mL) を加え、シリカゲル (16.0 g) を敷いたろ過器でろ過した後、得られたシリカゲルから、トルエン及び酢酸エチルの混合溶媒を用いて、金属錯体 10 を含む黄色溶液を抽出した。得られた溶液を減圧濃縮することで固体を得た後、得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (トルエン及び酢酸エチルの混合溶媒) で分取精製し、更に、得られた固体をエタノールで洗浄した。次いで、得られた固体を逆相シリカゲルカラムクロマトグラフィー (塩化メチレン及びアセトニトリルの混合溶媒) で分取精製し、更に、得られた固体をアセトニトリルで洗浄した。その後、得られた固体をトルエン及びエタノールの混合溶媒を用いて晶析し、更に、50°C で減圧乾燥させることにより、金属錯体 B10 (1.5 g、黄色固体) を得た。金属錯体 B10 の HPLC 面積百分率値は 99.4% であった。

[0573] 金属錯体 B10 の $^1\text{H-NMR}$ 測定結果は、以下のとおりであった。

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz, CD_2Cl_2) δ (ppm) = 7.33–7.08 (m, 18 H), 7.02–6.93 (m, 6 H), 6.73–6.48 (m, 3 H), 5.81–5.71 (m, 3 H), 2.43–2.32 (m, 9 H), 2.16–1.97 (m, 15 H), 1.91–1.79 (m, 3 H), 1.58–1.03 (m, 36 H), 0.84–0.67 (m, 9 H).

金属錯体 B10 の発光スペクトルの最大ピーク波長は 466 nm であった。

[0574] <実施例 D1> 発光素子 D1 の作製と評価
(陽極及び正孔注入層の形成)

ガラス基板にスパッタ法により 45 nm の厚みで ITO 膜を付けることに

より陽極を形成した。該陽極上に、ポリチオフェン・スルホン酸系の正孔注入剤であるAQ-1200 (Plextronics社製) をスピコート法により35nmの厚さで成膜し、大気雰囲気下において、ホットプレート上で170℃、15分間加熱することにより正孔注入層を形成した。

[0575] (第2の有機層の形成)

キシレンに、高分子化合物HTL-1を0.7質量%の濃度で溶解させた。得られたキシレン溶液を用いて、正孔注入層の上にスピコート法により20nmの厚さで成膜し、窒素ガス雰囲気下において、ホットプレート上で180℃、60分間加熱させることにより第2の有機層(第2の発光層)を形成した。この加熱により、高分子化合物HTL-1は、架橋体となった。

[0576] (第1の有機層の形成)

トルエンに、化合物HM-1、金属錯体B1及び金属錯体G1(化合物HM-1/金属錯体B1/金属錯体G1=74質量%/25質量%/1質量%)を2質量%の濃度で溶解させた。得られたトルエン溶液を用いて、第2の有機層の上にスピコート法により75nmの厚さで成膜し、窒素ガス雰囲気下において、130℃、10分間加熱させることにより第1の有機層(第1の発光層)を形成した。

[0577] (電子輸送層の形成)

2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロ-1-ペンタノールに、高分子化合物ET1を0.25質量%の濃度で溶解させた。得られた2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロ-1-ペンタノール溶液を用いて、発光層の上にスピコート法により10nmの厚さで成膜し、窒素ガス雰囲気下において、130℃、10分間加熱させることにより電子輸送層を形成した。

[0578] (陰極の形成)

電子輸送層を形成した基板を蒸着機内において、 1.0×10^{-4} Pa以下にまで減圧した後、陰極として、電子輸送層の上にフッ化ナトリウムを約4nm、次いで、フッ化ナトリウム層の上にアルミニウムを約80nm蒸着した

。蒸着後、ガラス基板を用いて封止することにより、発光素子D 1 を作製した。

[0579] (発光素子の評価)

発光素子D 1 に電圧を印加することによりEL発光が観測された。電流密度が5 mA/cm²における外部量子効率 [%] 及びCIE色度座標(x, y)を測定した。結果を表4に示す。

[0580] <実施例D 2～D 10及び比較例CD 1～CD 2> 発光素子D 2～10、CD 1及びCD 2の作製と評価

実施例D 1の(第1の有機層の形成)における「化合物HM-1、金属錯体B 1及び金属錯体G 1(化合物HM-1/金属錯体B 1/金属錯体G 1=74質量%/25質量%/1質量%)」に代えて、表4に記載の材料を用いた以外は、実施例D 1と同様にして、発光素子D 2～10、CD 1及びCD 2を作製した。

発光素子D 2～10、CD 1及びCD 2に電圧を印加することによりEL発光が観測された。電流密度が5 mA/cm²における外部量子効率 [%] 及びCIE色度座標(x, y)を測定した。結果を表4に示す。

[0581] [表4]

	発光素子	第2の有機層の形成		第1の有機層の形成		外部量子効率(%) (5mA/cm ²)	CIE色度座標(x,y) (5mA/cm ²)
		材料	組成比(質量%)	材料	組成比(質量%)		
実施例D1	D1	HTL-1	100	HM-1/B1/G1	74/25/1	19.0	(0.43,0.46)
実施例D2	D2	HTL-1	100	HM-1/B2/G1	74/25/1	21.1	(0.42,0.47)
実施例D3	D3	HTL-1	100	HM-1/B3/G1	74/25/1	22.0	(0.40,0.47)
実施例D4	D4	HTL-1	100	HM-1/B4/G1	74/25/1	21.6	(0.40,0.48)
実施例D5	D5	HTL-1	100	HM-1/B5/G1	74/25/1	20.5	(0.40,0.45)
実施例D6	D6	HTL-1	100	HM-1/B6/G1	74/25/1	21.9	(0.41,0.47)
実施例D7	D7	HTL-1	100	HM-1/B7/G1	74/25/1	22.3	(0.42,0.47)
実施例D8	D8	HTL-1	100	HM-1/B8/G1	74/25/1	20.8	(0.40,0.47)
実施例D9	D9	HTL-1	100	HM-1/B9/G1	74/25/1	20.2	(0.42,0.47)
実施例D10	D10	HTL-1	100	HM-1/B10/G1	74/25/1	19.8	(0.42,0.45)
比較例CD1	CD1	HTL-1	100	HM-1/BC1/G1	74/25/1	15.7	(0.43,0.43)
比較例CD2	CD2	HTL-1	100	HM-1/BC2/G1	74/25/1	12.1	(0.42,0.44)

[0582] <実施例D11及び比較例CD3> 発光素子D11及びCD3の作製と評価

実施例D1の（第1の有機層の形成）における「化合物HM-1、金属錯体B1及び金属錯体G1（化合物HM-1／金属錯体B1／金属錯体G1＝74質量％／25質量％／1質量％）」に代えて、表5に記載の材料を用いた以外は、実施例D1と同様にして、発光素子D11及びCD3を作製した。

発光素子D11及びCD3に電圧を印加することによりEL発光が観測された。電流密度が10mA/cm²における外部量子効率 [%] 及びCIE色度座標(x, y)を測定した。結果を表5に示す。

[0583] [表5]

	発光素子	第2の有機層の形成		第1の有機層の形成		外部量子効率(%) (10mA/cm ²)	CIE色度座標(x,y) (10mA/cm ²)
		材料	組成比(質量%)	材料	組成比(質量%)		
実施例D11	D11	HTL-1	100	HM-1/B1	75/25	18.0	(0.39,0.37)
比較例CD3	CD3	HTL-1	100	HM-1/BC1	75/25	15.5	(0.42,0.37)

[0584] <実施例D12～D21及び比較例CD4> 発光素子D12～D21及びCD4の作製と評価

実施例D1の（第2の有機層の形成）における「高分子化合物HTL-1」に代えて、表6に記載の材料を用い、更に、実施例D1の（第1の有機層の形成）における「化合物HM-1、金属錯体B1及び金属錯体G1（化合物HM-1／金属錯体B1／金属錯体G1＝74質量％／25質量％／1質量％）」に代えて、表6に記載の材料を用いた以外は、実施例D1と同様にして、発光素子D12～D21及びCD4を作製した。

なお、実施例D12～D21及び比較例CD4の（第2の有機層の形成）において、加熱により、高分子化合物HTL-2～HTL-6は、架橋体となった。

[0585] 発光素子D12～D21及びCD4に電圧を印加することによりEL発光

が観測された。電流密度が 0.1 mA/cm^2 における外部量子効率 [%] 及び CIE 色度座標 (x, y) を測定した。結果を表 6 に示す。

[0586] [表6]

	発光素子	第2の有機層の形成		第1の有機層の形成		外部量子効率(%) (0.1 mA/cm^2)	CIE色度座標(x,y) (0.1 mA/cm^2)
		材料	組成比(質量%)	材料	組成比(質量%)		
比較例CD4	CD4	HTL-2	100	HM-1/B1/R3	74/25/1	3.6	(0.48,0.42)
実施例D12	D12	HTL-2/R3	65/35	HM-1/B1	75/25	14.2	(0.34,0.36)
実施例D13	D13	HTL-2/R4	65/35	HM-1/B1	75/25	13.4	(0.31,0.34)
実施例D14	D14	HTL-2/R2	65/35	HM-1/B1	75/25	13.4	(0.32,0.34)
実施例D15	D15	HTL-2/R5	65/35	HM-1/B1	75/25	7.0	(0.26,0.35)
実施例D16	D16	HTL-2/R1	65/35	HM-1/B1	75/25	5.0	(0.25,0.32)
実施例D17	D17	HTL-3	100	HM-1/B1	75/25	19.9	(0.41,0.37)
実施例D18	D18	HTL-4/R3	65/35	HM-1/B1	75/25	8.3	(0.28,0.35)
実施例D19	D19	HTL-5	100	HM-1/B1	75/25	12.7	(0.50,0.37)
実施例D20	D20	HTL-4/R4	65/35	HM-1/B1	75/25	8.1	(0.28,0.35)
実施例D21	D21	HTL-6	100	HM-1/B1	75/25	13.0	(0.47,0.35)

[0587] <実施例D22~D25> 発光素子D22~D25の作製と評価

実施例D1の(第2の有機層の形成)における「高分子化合物HTL-1」に代えて、表7に記載の材料を用い、更に、実施例D1の(第1の有機層の形成)における「化合物HM-1、金属錯体B1及び金属錯体G1(化合物HM-1/金属錯体B1/金属錯体G1=74質量%/25質量%/1質量%)」に代えて、表7に記載の材料を用いた以外は、実施例D1と同様にして、発光素子D22~D25を作製した。

なお、実施例D22~D25の(第2の有機層の形成)において、加熱により、化合物HTM-1は、架橋体となった。

[0588] 発光素子D22~D25に電圧を印加することによりEL発光が観測された。電流密度が 1 mA/cm^2 における外部量子効率 [%] 及び CIE 色度座標 (x, y) を測定した。結果を表 7 に示す。

[0589]

[表7]

	発光素子	第2の有機層の形成		第1の有機層の形成		外部量子効率(%) (1mA/cm ²)	CIE色度座標 (x,y) (1mA/cm ²)
		材料	組成比 (質量%)	材料	組成比 (質量%)		
実施例D22	D22	HTM-1/R3	65/35	HM-1/B1	75/25	9.7	(0.31,0.35)
実施例D23	D23	HTM-1/R2	65/35	HM-1/B1	75/25	7.3	(0.31,0.32)
実施例D24	D24	HTM-1/R5	65/35	HM-1/B1	75/25	6.0	(0.30,0.34)
実施例D25	D25	HTM-1/R1	65/35	HM-1/B1	75/25	3.9	(0.25,0.38)

産業上の利用可能性

[0590] 本発明によれば、外部量子効率が優れる発光素子を提供することができる

。

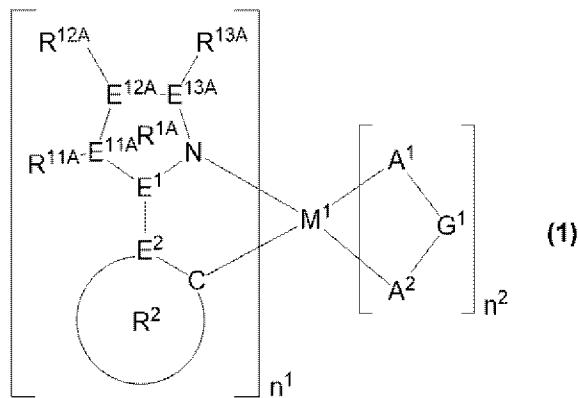
請求の範囲

[請求項1] 陽極と、陰極と、前記陽極及び前記陰極の間に設けられた第1の有機層及び第2の有機層と、を有する発光素子であり、

前記第1の有機層が、式(1)で表される金属錯体を含有する層であり、

前記第2の有機層が、式(2)で表される金属錯体、及び、式(2)で表される金属錯体から水素原子1個以上を除いた基を有する構成単位を含む高分子化合物からなる群より選ばれる少なくとも1種を含有する層である、前記発光素子。

[化1]



[式中、

M¹はロジウム原子、パラジウム原子、イリジウム原子又は白金原子を表す。

n¹は1以上の整数を表し、n²は0以上の整数を表す。但し、M¹がロジウム原子又はイリジウム原子の場合、n¹+n²は3であり、M¹がパラジウム原子又は白金原子の場合、n¹+n²は2である。

環R^{1A}は、ジアゾール環、トリアゾール環又はテトラゾール環を表す。

環R²は、芳香族炭化水素環又は芳香族複素環を表し、これらの環は置換基を有していてもよい。前記置換基が複数存在する場合、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよ

い。環 R^2 が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。

E^1 、 E^2 、 E^{11A} 、 E^{12A} 及び E^{13A} は、それぞれ独立に、窒素原子又は炭素原子を表す。 E^1 、 E^2 、 E^{11A} 、 E^{12A} 及び E^{13A} が複数存在する場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。但し、 E^1 及び E^2 の少なくとも一方は炭素原子である。

R^{11A} 、 R^{12A} 及び R^{13A} は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はハロゲン原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。 R^{11A} 、 R^{12A} 及び R^{13A} が複数存在する場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。

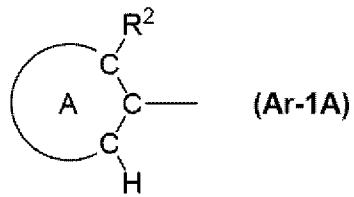
但し、 E^{11A} 、 E^{12A} 及び E^{13A} の少なくとも1つは窒素原子であり、且つ、該窒素原子に結合する R^{11A} 、 R^{12A} 及び R^{13A} の少なくとも1つは式 $(A^r - 1 A)$ で表される基である。

R^{11A} と R^{12A} とは、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。 R^{12A} と R^{13A} とは、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。環 R^2 が有していてもよい置換基と R^{11A} とは、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。

E^{11A} が窒素原子の場合、 R^{11A} は存在しても存在しなくてもよい。 E^{12A} が窒素原子の場合、 R^{12A} は存在しても存在しなくてもよい。 E^{13A} が窒素原子の場合、 R^{13A} は存在しても存在しなくてもよい。

$A^1 - G^1 - A^2$ は、アニオン性の2座配位子を表す。 A^1 及び A^2 は、それぞれ独立に、炭素原子、酸素原子又は窒素原子を表し、これらの原子は環を構成する原子であってもよい。 G^1 は、単結合、又は、 A^1 及び A^2 とともに2座配位子を構成する原子団を表す。 $A^1 - G^1 - A^2$ が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。]

[化2]

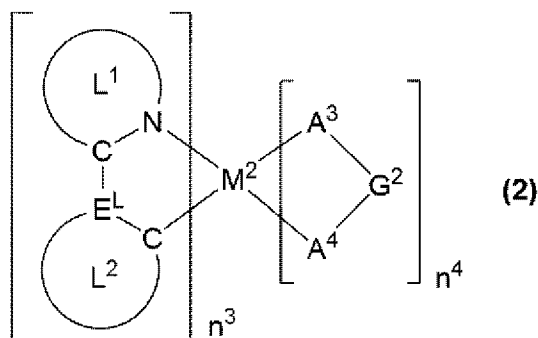


[式中、

環Aは、芳香族炭化水素環又は芳香族複素環を表し、これらの環は置換基を有していてもよい。前記置換基が複数存在する場合、それらは互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。

R²は、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はハロゲン原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。]

[化3]



[式中、

M²は、ロジウム原子、パラジウム原子、イリジウム原子又は白金原子を表す。

n³は1以上の整数を表し、n⁴は0以上の整数を表し、但し、M²がロジウム原子又はイリジウム原子の場合、n³+n⁴は3であり、M²がパラジウム原子又は白金原子の場合、n³+n⁴は2である。

E^Lは、炭素原子又は窒素原子を表す。E^Lが複数存在する場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。

環L¹は、6員の芳香族複素環を表し、この環は置換基を有していてもよい。前記置換基が複数存在する場合、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。環L¹が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。

環L²は、芳香族炭化水素環又は芳香族複素環を表し、これらの環は置換基を有していてもよい。前記置換基が複数存在する場合、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。環L²が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。

環L¹が有していてもよい置換基と環L²が有していてもよい置換基とは、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。

A³-G²-A⁴は、アニオン性の2座配位子を表す。A³及びA⁴は、それぞれ独立に、炭素原子、酸素原子又は窒素原子を表し、これらの原子は環を構成する原子であってもよい。G²は、単結合、又は、A³及びA⁴とともに2座配位子を構成する原子団を表す。A³-G²-A⁴が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。]

[請求項2]

前記第2の有機層が、前記式(2)で表される金属錯体から水素原子1個以上を除いた基を有する構成単位を含む高分子化合物として、式(1-1B)、式(1-2B)、式(1-3B)又は式(1-4B)で表される構成単位を含む高分子化合物を含む、請求項1に記載の発光素子。

[化4]



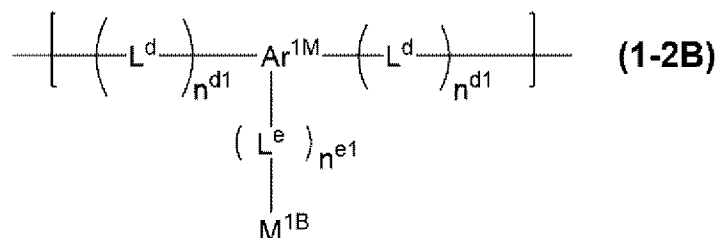
[式中、

M^{1B}は、前記式(2)で表される金属錯体から水素原子1個を除いた基を表す。

L^c は、酸素原子、硫黄原子、 $-N(R^A)-$ 、 $-C(R^B)_2-$ 、 $-C(R^B)=C(R^B)-$ 、 $-C\equiv C-$ 、アリーレン基又は2価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。 R^A は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。 R^B は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。複数存在する R^B は、同一でも異なってもよく、互いに結合して、それぞれが結合する炭素原子とともに環を形成していてもよい。 L^c が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。

n^{c1} は0以上の整数を表す。]

[化5]



[式中、

M^{1B} は、前記と同じ意味を表す。

L^d 及び L^e は、それぞれ独立に、酸素原子、硫黄原子、 $-N(R^A)-$ 、 $-C(R^B)_2-$ 、 $-C(R^B)=C(R^B)-$ 、 $-C\equiv C-$ 、アリーレン基又は2価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。 R^A 及び R^B は、前記と同じ意味を表す。 L^d 及び L^e が複数存在する場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。

n^{d1} 及び n^{e1} は、それぞれ独立に、0以上の整数を表す。複数存在する n^{d1} は、同一でも異なってもよい。

Ar^{1M} は、芳香族炭化水素基又は複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。]

[式中、 M^1 、 n^1 、 n^2 、 R^{11A} 、 R^{12A} 、 R^{13A} 、 E^{11A} 、 E^{12A} 、 E^{13A} 及び $A^1-G^1-A^2$ は、前記と同じ意味を表す。

環 R^{2A} は、ベンゼン環、フルオレン環、スピロビフルオレン環、ジヒドロフェナントレン環、ピリジン環、ジアザベンゼン環、カルバゾール環、ジベンゾフラン環又はジベンゾチオフェン環を表し、これらの環は置換基を有していてもよい。前記置換基が複数存在する場合、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。環 R^{2A} が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。

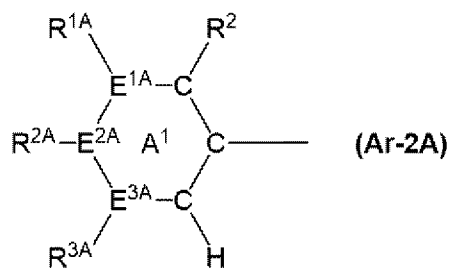
環 R^{2A} が有していてもよい置換基と R^{11A} とは、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。

但し、式(1-A1)中、 R^{11A} の少なくとも1つは前記式(Ar-1A)で表される基であり、式(1-A2)中、 R^{12A} の少なくとも1つは前記式(Ar-1A)で表される基である。]

[請求項4]

前記式(Ar-1A)で表される基が、式(Ar-2A)で表される基である、請求項1～3のいずれか一項に記載の発光素子。

[化9]



[式中、

R^2 は、前記と同じ意味を表す。

環 A^1 は、ベンゼン環、ピリジン環又はジアザベンゼン環を表す。

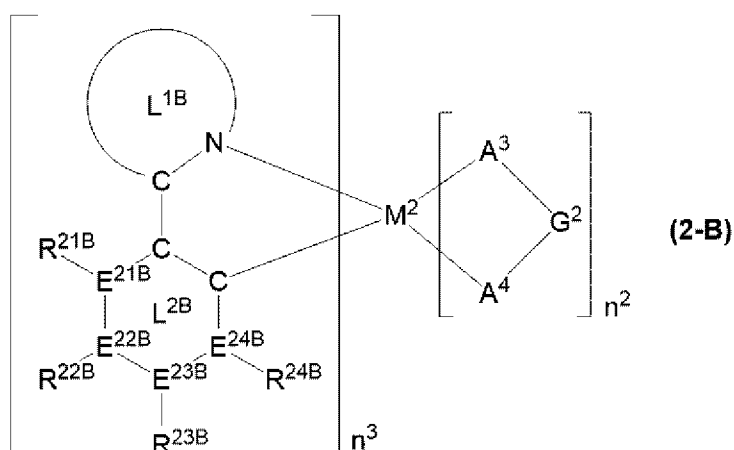
E^{1A} 、 E^{2A} 及び E^{3A} は、それぞれ独立に、窒素原子又は炭素原子を表す。 E^{1A} が窒素原子の場合、 R^{1A} は存在しない。 E^{2A} が窒素原子の場合、 R^{2A} は存在しない。 E^{3A} が窒素原子の場合、 R^{3A} は存在しない。

R^{1A} 、 R^{2A} 及び R^{3A} は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はハロゲン原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。

R^{1A} と R^{2A} 、及び、 R^{2A} と R^{3A} は、それぞれ結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。]

[請求項5] 前記式(2)で表される金属錯体が、式(2-B)で表される金属錯体である、請求項1~4のいずれか一項に記載の発光素子。

[化10]



[式中、

M^2 、 n^3 、 n^4 及び $A^3-G^2-A^4$ は、前記と同じ意味を表す。

環 L^{1B} は、ピリジン環、ジアザベンゼン環、アザナフタレン環又はジアザナフタレン環を表し、これらの環は置換基を有していてもよい。前記置換基が複数存在する場合、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。環 L^{1B} が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。

E^{21B} 、 E^{22B} 、 E^{23B} 及び E^{24B} は、それぞれ独立に、窒素原子又は炭素原子を表す。 E^{21B} 、 E^{22B} 、 E^{23B} 及び E^{24B} が複数存在する場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。 E^{21B} が窒素原子の場合、 R^{21B} は存在しない。 E^{22B} が窒素原子の場合、 R^{22B} は存在しない。 E^{23B} が窒素原子の場合、 R^{23B} は存在しない。 E^{24B} が窒素原子の場合、 R^{24B} は

存在しない。

R^{21B} 、 R^{22B} 、 R^{23B} 及び R^{24B} は、それぞれ独立に、水素原子又は式(1-T)で表される基を表す。 R^{21B} 、 R^{22B} 、 R^{23B} 及び R^{24B} が複数存在する場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。 R^{21B} と R^{22B} 、 R^{22B} と R^{23B} 、 R^{23B} と R^{24B} 、及び、環 L^{1B} が有していてもよい置換基と R^{21B} は、それぞれ結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。

環 L^{2B} は、ベンゼン環、ピリジン環又はジアザベンゼン環を表す。

]

[化11]



[式中、 R^{1T} は、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリーールオキシ基、アリーール基、1価の複素環基、置換アミノ基又はハロゲン原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。]

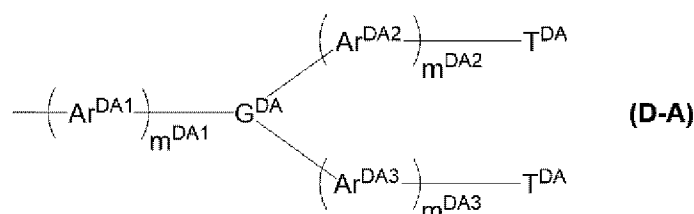
[請求項6]

前記環 L^{1B} の少なくとも1つが前記式(1-T)で表される基を有するか、又は、前記 R^{21B} 、前記 R^{22B} 、前記 R^{23B} 及び前記 R^{24B} の少なくとも1つが前記式(1-T)で表される基である、請求項5に記載の発光素子。

[請求項7]

前記 R^{1T} が、置換基を有していてもよいアルキル基、置換基を有していてもよいシクロアルキル基、式(D-A)で表される基、式(D-B)で表される基又は式(D-C)で表される基である、請求項6に記載の発光素子。

[化12]



[式中、

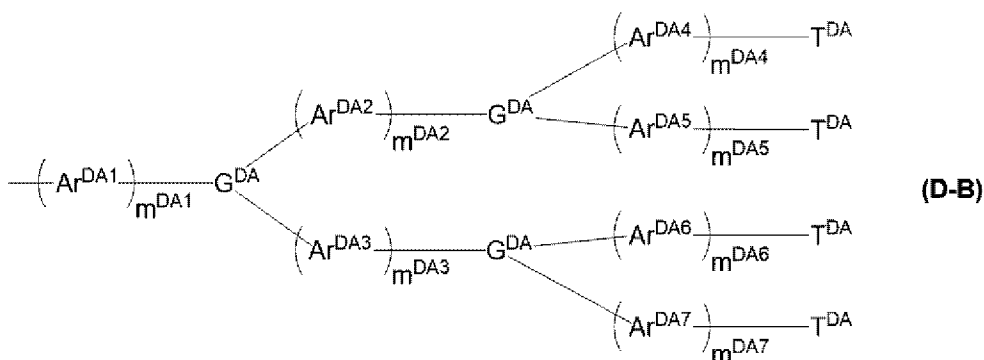
m^{DA1} 、 m^{DA2} 及び m^{DA3} は、それぞれ独立に、0以上の整数を表す。

G^{DA} は、窒素原子、芳香族炭化水素基又は複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。

$A r^{DA1}$ 、 $A r^{DA2}$ 及び $A r^{DA3}$ は、それぞれ独立に、アリーレン基又は2価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。 $A r^{DA1}$ 、 $A r^{DA2}$ 及び $A r^{DA3}$ が複数存在する場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。

T^{DA} は、アリール基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。複数存在する T^{DA} は、同一でも異なってもよい。]

[化13]



[式中、

m^{DA1} 、 m^{DA2} 、 m^{DA3} 、 m^{DA4} 、 m^{DA5} 、 m^{DA6} 及び m^{DA7} は、それぞれ独立に、0以上の整数を表す。

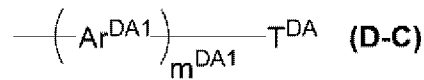
G^{DA} は、窒素原子、芳香族炭化水素基又は複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。複数存在する G^{DA} は、同一でも異なってもよい。

$A r^{DA1}$ 、 $A r^{DA2}$ 、 $A r^{DA3}$ 、 $A r^{DA4}$ 、 $A r^{DA5}$ 、 $A r^{DA6}$ 及び $A r^{DA7}$ は、それぞれ独立に、アリーレン基又は2価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。 $A r^{DA1}$ 、 $A r^{DA2}$ 、 $A r^{DA3}$ 、 $A r^{DA4}$ 、 $A r^{DA5}$ 、 $A r^{DA6}$ 及び $A r^{DA7}$ が複数存在する場合、それらはそれぞれ同一

でも異なってもよい。

T^{DA} は、アリール基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。複数存在する T^{DA} は、同一でも異なってもよい。]

[化14]



[式中、

m^{DA1} は、0以上の整数を表す。

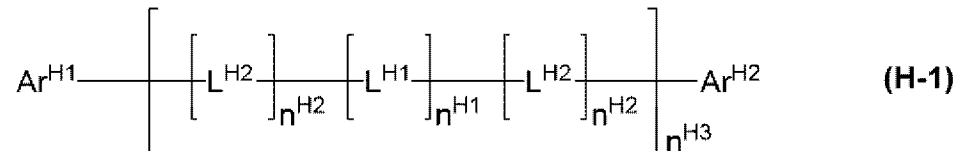
Ar^{DA1} は、アリーレン基又は2価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。 Ar^{DA1} が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。

T^{DA} は、アリール基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。]

[請求項8]

前記第1の有機層が、式(H-1)で表される化合物、若しくは、式(Y)で表される構成単位を含む高分子化合物、又は、これらの組み合わせを更に含有する、請求項1~7のいずれか一項に記載の発光素子。

[化15]



[式中、

Ar^{H1} 及び Ar^{H2} は、それぞれ独立に、アリール基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。

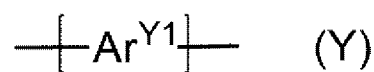
n^{H1} 及び n^{H2} は、それぞれ独立に、0又は1を表す。 n^{H1} が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。複数存在する n^{H2} は、同一でも異なってもよい。

n^{H3} は、0以上10以下の整数を表す。

L^{H1} は、アリーレン基、2価の複素環基、又は、 $-[C(R^{H1})_2]$
 n^{H1} で表される基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。
 L^{H1} が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。
 n^{H1} は、1以上10以下の整数を表す。 R^{H1} は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリーレン基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。複数存在する R^{H1} は、同一でも異なってもよく、互いに結合して、それぞれが結合する炭素原子とともに環を形成していてもよい。

L^{H2} は、 $-N(-L^{H21}-R^{H21})-$ で表される基を表す。 L^{H2} が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。 L^{H21} は、単結合、アリーレン基又は2価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。 R^{H21} は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリーレン基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。]

[化16]



[式中、 Ar^{Y1} は、アリーレン基、2価の複素環基、又は、少なくとも1種のアリーレン基と少なくとも1種の2価の複素環基とが直接結合した2価の基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。]

[請求項9] 前記式(1)で表される金属錯体の発光スペクトルの最大ピーク波長が380nm以上495nm未満であり、前記式(2)で表される金属錯体の発光スペクトルの最大ピーク波長が495nm以上750nm未満である、請求項1～8のいずれか一項に記載の発光素子。

[請求項10] 前記第1の有機層と前記第2の有機層とが隣接している、請求項1～9のいずれか一項に記載の発光素子。

- [請求項11] 前記第2の有機層が前記陽極及び前記第1の有機層との間に設けられた層である、請求項1～10のいずれか一項に記載の発光素子。
- [請求項12] 前記第1の有機層が第1の発光層であり、前記第2の有機層が第2の発光層である、請求項1～11のいずれか一項に記載の発光素子。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/034562

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. H05B33/12 (2006.01) i, C08G61/10 (2006.01) i, C09K11/06 (2006.01) i,
H01L51/50 (2006.01) i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl. H05B33/12, C08G61/10, C09K11/06, H01L51/50

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2018
Registered utility model specifications of Japan	1996-2018
Published registered utility model applications of Japan	1994-2018

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CAplus/REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	WO 2013/031794 A1 (KONICA MINOLTA HOLDINGS, INC.) 07 March 2013, paragraphs [0035], [0171]-[0172], [0289], [0338]-[0339], [0344] (Family: none)	1, 3-10, 12 11
X Y	JP 2015-113283 A (KONICA MINOLTA, INC.) 22 June 2015, paragraphs [0097], [0154], [0156], [0273]- [0274], [0282] (Family: none)	1, 3-12 2, 11

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
13 December 2018 (13.12.2018)

Date of mailing of the international search report
25 December 2018 (25.12.2018)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/034562

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2017/104325 A1 (KONICA MINOLTA, INC.) 22 June 2017, paragraphs [0291], [0296]-[0303], [0307] (Family: none)	1, 3-9, 11
Y	WO 2017/146083 A1 (SUMITOMO CHEMICAL CO., LTD.) 31 August 2017, paragraphs [0477], [0510], [0556]-[0557] (Family: none)	2

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. H05B33/12(2006.01)i, C08G61/10(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. H05B33/12, C08G61/10, C09K11/06, H01L51/50		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2018年 日本国実用新案登録公報 1996-2018年 日本国登録実用新案公報 1994-2018年		
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語) CPlus/REGISTRY (STN)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	WO 2013/031794 A1 (コニカミノルタホールディングス株式会社) 2013.03.07, 段落 [0035]、[0171] - [0172]、[0289]、[0338] - [0339]、[0344] (ファミリーなし)	1, 3-10, 12
Y		11
X	JP 2015-113283 A (コニカミノルタ株式会社) 2015.06.22, 段落 [0097]、[0154]、[0156]、[0273] - [0274]、[0282] (ファミリーなし)	1, 3-12
Y		2, 11
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 13.12.2018	国際調査報告の発送日 25.12.2018	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 中山 佳美 電話番号 03-3581-1101 内線 3271	20 3911

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	WO 2017/104325 A1 (コニカミノルタ株式会社) 2017.06.22, 段落 [0291]、[0296] - [0303]、[0307] (ファミリーなし)	1, 3-9, 11
Y	WO 2017/146083 A1 (住友化学株式会社) 2017.08.31, 段落 [0477]、[0510]、[0556] - [0557] (ファミリーなし)	2