

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2007年2月15日 (15.02.2007)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2007/018067 A1

- (51) 国際特許分類:
C07F 15/00 (2006.01) C09K 11/06 (2006.01)
C07D 233/58 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)
C07D 235/04 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2006/315163
- (22) 国際出願日: 2006年7月31日 (31.07.2006)
- (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2005-228007 2005年8月5日 (05.08.2005) JP
特願2006-019776 2006年1月27日 (27.01.2006) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 出光興産株式会社 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1008321 東京都千代田区丸の内三丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 渡邊 正美 (WATANABE, Masami) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 松浦 正英 (MATSUURA, Masahide) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 長島 英明 (NAGASHIMA, Hideaki) [JP/JP]; 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP).
- (74) 代理人: 大谷 保, 外(OHTANI, Tamotsu et al.); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目25番2号 ブリヂストン虎ノ門ビル6階 大谷特許事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, 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, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書
- 2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

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

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

(57) Abstract: Disclosed is a transition metal complex compound having a specific structure including a crosslinked structure. Also disclosed is an organic electroluminescent device wherein an organic thin film, which is composed of one or more layers including at least a light-emitting layer, is sandwiched between a pair of electrodes. In this organic electroluminescent device, at least one layer of the organic thin film contains the transition metal complex compound. This organic electroluminescent device has high luminous efficiency and emits blue light, and the transition metal complex compound enables to realize such an organic electroluminescent device.

(57) 要約: 架橋構造を含む特定構造の遷移金属錯体化合物、並びに、一対の電極間に少なくとも発光層を有する一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、前記遷移金属錯体化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子であり、発光効率が高く、青色発光する有機エレクトロルミネッセンス素子及びそれを実現する遷移金属錯体化合物を提供する。

WO 2007/018067 A1

明 細 書

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

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

背景技術

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

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

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

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

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

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

従来、カルベン錯体は短寿命・不安定であり、有機合成反応の反応中間体又はオ

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

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

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

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

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

一方、特許文献21及び22には、トリス(2-フェニルピリジン-N, C²)イリジウム錯体の長寿命化の方法として、3つの2-フェニルピリジン-N, C²基部位を3脚型で架橋することが開示されているが、3脚型架橋部位がベンゼン環骨格を有するもののみ報告されており、顕著な長寿命化には至っておらず、また、青色発光のための指針

が示されていない。

[0005] 特許文献1:特開平8-239655号公報

特許文献2:特開平7-183561号公報

特許文献3:特開平3-200289号公報

特許文献4:米国特許第6,097,147号明細書

特許文献5:国際公開WO01/41512号公報

特許文献6:US2001/0025108号公開公報

特許文献7:US2002/0182441号公開公報

特許文献8:特開2002-170684号公報

特許文献9:特開2003-123982号公報

特許文献10:特開2003-133074号公報

特許文献11:国際公開WO05/019373号公報

特許文献12:US2005/0258433号公開公報

特許文献13:US2005/0258742号公開公報

特許文献14:US2005/0260441号公開公報

特許文献15:US2005/0260444号公開公報

特許文献16:US2005/0260445号公開公報

特許文献17:US2005/0260446号公開公報

特許文献18:US2005/0260447号公開公報

特許文献19:US2005/0260448号公開公報

特許文献20:US2005/0260449号公開公報

特許文献21:US2005/0170206号公開公報

特許文献22:US2005/0170207号公開公報

非特許文献1:D. F. OBrien and M. A. Baldo et al“Improved energy transfer in electrophosphorescent devices”Vol. 74 No. 3, pp 442-444, January18, 1999

非特許文献2:M. A. Baldo et al“Very high-efficiency green organic light-emitting devices based on electrophosphorescence”Applied Phys

ics letters Vol. 75 No. 1, pp4-6, July5, 1999

非特許文献3:Chem. Rev. 2000, 100, p39

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

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

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

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

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

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

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

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

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

非特許文献13:Chem. Commun. , 2002, p2518

発明の開示

発明が解決しようとする課題

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

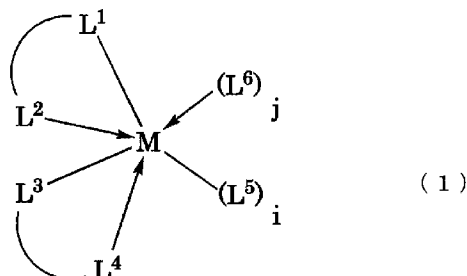
課題を解決するための手段

- [0007] 本発明者らは、前記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、遷移金属錯体化合物において、錯体の配位子を連結(架橋)させることで、発光波長を長波長化させることができることを見出した。この現象は、発光波長を所望のものに調節できる技術として有用で、特に紫外領域に発光波長を有する材料を青色領域に発光を有する材料へと導くうえで有用である(視覚波長領域を拡大させることができる)。この技術を利用することで、発光効率が高く、青色発光の有機EL素子が得られることを見出し、本発明を完成するに至った。
- [0008] すなわち、本発明は、共有結合及び／又は配位結合の組み合わせからなる三座もしくはそれ以上の配位座を有する配位子を有する遷移金属錯体化合物、並びに共有結合及び／又は配位結合の組み合わせからなる四座もしくはそれ以上の配位座

を有する配位子を有する遷移金属錯体化合物を提供するものである。

また、本発明は、下記一般式(1)又は(6)で表される金属カルベン結合を有する遷移金属錯体化合物を提供するものである。

[0009] [化1]



[0010] [一般式(1)において、実線(—)で示した結合は共有結合を、矢印(→)で示した結合は配位結合を意味し、 $L^2 \rightarrow M$ 及び $L^4 \rightarrow M$ のうち少なくとも一方は金属カルベン結合を示す。Mは、イリジウム(Ir)又は白金(Pt)の金属原子を示す。 L^1-L^2 及び L^3-L^4 は架橋二座配位子を示し、 L^5 及び L^6 は、それぞれ独立に、単座配位子又は L^5 と L^6 が架橋した架橋二座配位子(L^5-L^6)を示し、 L^1 と L^3 、 L^1 と L^4 、 L^2 と L^3 、 L^2 と L^4 、 L^1 と L^5 、 L^1 と L^6 、 L^2 と L^5 、 L^2 と L^6 、 L^3 と L^5 、 L^3 と L^6 、 L^4 と L^5 及び L^4 と L^6 のうち、少なくとも1つは架橋基 $-Z^1-$ (Z^1 は、芳香族炭化水素、複素環基、アルカン、アルケン及びこれらの炭素原子が、ケイ素原子、窒素原子、硫黄原子、酸素原子、リン原子及びホウ素原子のいずれかで置き換わった化合物から選ばれる化合物、あるいはこれらの組み合わせからなる2価の残基であり、置換基を有していてもよい)を介して架橋している。架橋基 $-Z^1-$ が複数ある場合は、それぞれ同じでも異なってもよい。iは0~1の整数で、 $2+i$ は金属Mの原子価を示す。jは0~4の整数を示す。i及びjが複数のときは、各 L^5 及び L^6 は、それぞれ同じあっても異なってもよく、隣接するもの同士で架橋していてもよい。

L^1 及び L^3 は、それぞれ独立に、置換基を有してもよい核炭素数6~30の2価の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核原子数3~30の2価の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1~30の2価のカルボキシル含有基、置換基を有してもよい2価のアミノ基あるいは水酸基含有炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3~50のシクロアルキレン基、置換基を有してもよい炭素数1~30のアルキレン基、置換

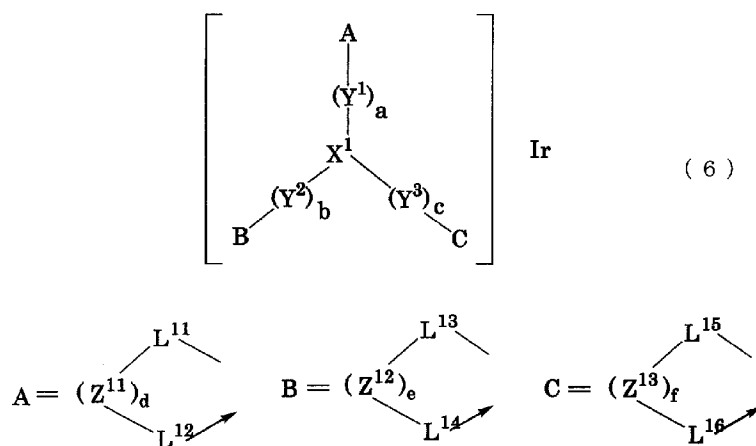
基を有してもよい炭素数2～30のアルケニレン基、置換基を有してもよい炭素数7～40のアラルキレン基であり、

L^2 及び L^4 は、それぞれ独立に、置換基を有してもよいカルベン炭素を持つ1価の基、置換基を有してもよい核炭素数6～30の1価の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核原子数3～30の1価の複素環基であり、 L^2 及び L^4 のうち少なくとも一つは置換基を有してもよいカルベン炭素を持つ1価の基である。

L^5 は、置換基を有してもよい核炭素数6～30の1価の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核原子数3～30の1価の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1～30の1価のカルボキシル基、置換基を有してもよい1価のアミノ基あるいは水酸基含有炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3～50のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1～30のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数2～30のアルケニル基、置換基を有してもよい炭素数7～40のアラルキル基、及び L^5 と L^6 が架橋した場合には、前記各基の2価の基であり、

L^6 は、置換基を有してもよい核炭素数3～30の複素環、置換基を有してもよい炭素数1～30のカルボン酸エステル、炭素数1～30のカルボン酸アミド、置換基を有してもよいアミン、置換基を有してもよいホスフィン、置換基を有してもよいイソニトリル、置換基を有してもよい炭素数1～30のエーテル、置換基を有してもよい炭素数1～30のチオエーテル、又は置換基を有してもよい炭素数1～30の二重結合含有化合物、及び L^5 と L^6 が架橋した場合には、前記各配位子の1価の基である。]

[0011] [化2]



[0012] [一般式(6)において、Aは $L^{11}-(Z^{11})_d-L^{12}$ からなる架橋二座配位子群を、Bは $L^{13}-(Z^{12})_e-L^{14}$ からなる架橋二座配位子群を、また、Cは $L^{15}-(Z^{13})_f-L^{16}$ からなる架橋二座配位子群を示す。 $L^{11}-$ 、 $L^{13}-$ 及び $L^{15}-$ は、それぞれIr(イリジウム)への共有結合($L^{11}-Ir$ 、 $L^{13}-Ir$ 及び $L^{15}-Ir$)を示し、 $L^{12}\rightarrow$ 、 $L^{14}\rightarrow$ 及び $L^{16}\rightarrow$ は、それぞれIrへの配位結合($L^{12}\rightarrow Ir$ 、 $L^{14}\rightarrow Ir$ 及び $L^{16}\rightarrow Ir$)を示す。

X^1 は、原子数が1~18の非環状構造からなる架橋基であって、水素原子、炭素原子、ケイ素原子、窒素原子、硫黄原子、酸素原子、リン原子及びホウ素原子の群から選ばれる原子から構成される化合物の3価の残基であり、置換基を有していてもよい。

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

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

L^{11} 、 L^{13} 及び L^{15} は、それぞれ独立に、置換基を有してもよい核炭素数6~30の2価の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核原子数3~30の2価の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1~30の2価のカルボキシル含有基、置換基を有してもよい2価のアミノ基あるいは水酸基含有炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3

～50のシクロアルキレン基、置換基を有してもよい炭素数1～30のアルキレン基、置換基を有してもよい炭素数2～30のアルケニレン基、置換基を有してもよい炭素数7～40のアラルキレン基であり、L¹¹がY¹と直接結合した場合、L¹³がY²と直接結合した場合、又はL¹⁵がY³と直接結合した場合は、L¹¹、L¹³及びL¹⁵は、それぞれ相当する3価の基となる。

L¹²、L¹⁴及びL¹⁶は、それぞれ独立に、置換基を有してもよいカルベン炭素を有する1価の基、又は置換基を有してもよい核原子数3～30の1価の複素環基であり、L¹²がY¹と直接結合した場合、L¹⁴がY²と直接結合した場合、あるいはL¹⁶がY³と直接結合した場合は、L¹²、L¹⁴及びL¹⁶は、それぞれ相当する2価の基となる。]

[0013] また、本発明は、陽極と陰極間に少なくとも発光層を有する一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機EL素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、前記遷移金属錯体化合物を含有する有機EL素子を提供するものである。

発明の効果

[0014] 本発明の遷移金属錯体化合物を用いた有機EL素子は、発光効率が高く、発光寿命が長く、青色発光する。

図面の簡単な説明

[0015] [図1]実施例1において得られた金属錯体化合物1の¹H-NMRスペクトルを示す図である。

[図2]比較例1において得られた比較化合物1の¹H-NMRスペクトルを示す図である。

[図3]比較例2において得られた比較化合物2の¹H-NMRスペクトルを示す図である。

[図4]金属錯体化合物1、比較化合物1及び比較化合物2の発光スペクトルを示す図である。

発明を実施するための最良の形態

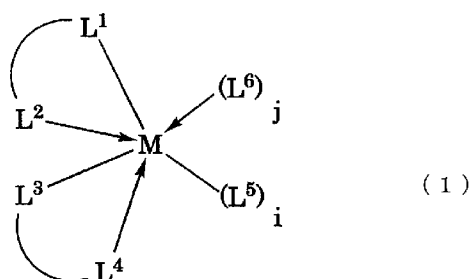
[0016] 本発明は、共有結合及び／又は配位結合の組み合わせからなる三座もしくはそれ以上の配位座を有する配位子を有する遷移金属錯体化合物、並びに共有結合及び／又は配位結合の組み合わせからなる四座もしくはそれ以上の配位座を有する配位

子を有する遷移金属錯体化合物である。前記遷移金属錯体化合物が金属カルベン結合を有すると好ましく、前記遷移金属錯体化合物の金属がイリジウムであると好ましい。

このような、遷移金属錯体化合物としては、下記一般式(1)又は(6)で表される金属カルベン結合を有する遷移金属錯体化合物が挙げられる。

以下、まず一般式(1)について説明する。

[化3]



[0017] 一般式(1)において、実線(—)で示した結合は共有結合を、矢印(→)で示した結合は配位結合を意味し、 $L^2 \rightarrow M$ 及び $L^4 \rightarrow M$ のうち少なくとも一方は金属カルベン結合を示す。

一般式(1)において、Mは、イリジウム(Ir)又は白金(Pt)の金属原子を示し、Irが好ましい。

一般式(1)において、 L^1-L^2 及び L^3-L^4 は架橋二座配位子を示し、 L^5 及び L^6 は、それぞれ独立に、単座配位子又は L^5 と L^6 が架橋した架橋二座配位子(L^5-L^6)を示す。また、 L^1 と L^3 、 L^1 と L^4 、 L^2 と L^3 、 L^2 と L^4 、 L^1 と L^5 、 L^1 と L^6 、 L^2 と L^5 、 L^2 と L^6 、 L^3 と L^5 、 L^3 と L^6 、 L^4 と L^5 及び L^4 と L^6 のうち、少なくとも1つは架橋基 $-Z^1-$ を介して架橋している。 i は0~1の整数で、 $2+i$ は金属Mの原子価を示す。 j は0~4の整数を示す。 i 及び j が複数のときは、各 L^5 及び L^6 は、それぞれ同じあっても異なってもよく、隣接するもの同士で架橋していてもよい。

[0018] Z^1 は、芳香族炭化水素、複素環基、アルカン、アルケン及びこれらの炭素原子が、ケイ素原子、窒素原子、硫黄原子、酸素原子、リン原子及びホウ素原子のいずれかで置き換わった化合物から選ばれる化合物、あるいはこれらの組み合わせからなる2価の残基であり、置換基を有していてもよい)を介して架橋している。架橋基 $-Z^1$

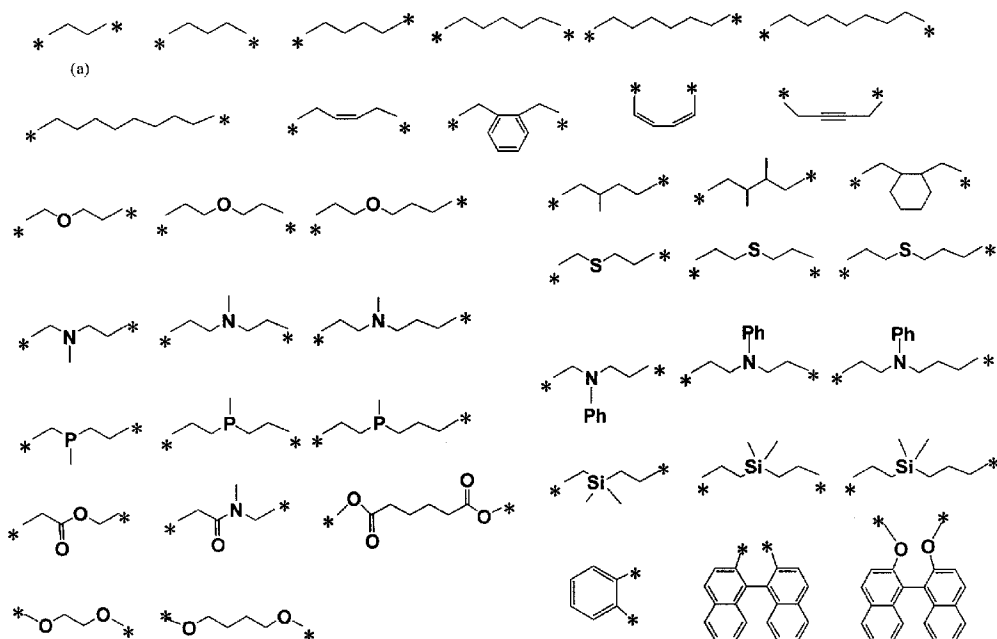
ーが複数ある場合は、それぞれ同じでも異なってもよい。

Z¹の具体例としては、炭素数1~20の α , ω -アルキレン架橋基、炭素数1~20のエーテル結合を有する α , ω -アルキレン架橋基、炭素数1~20のチオエーテル結合を有する α , ω -アルキレン架橋基、炭素数1~20の炭素ケイ素結合を有する α , ω -アルキレン架橋基、炭素数1~20の炭素窒素結合を有する α , ω -アルキレン架橋基、炭素数1~20の炭素リン結合を有する α , ω -アルキレン架橋基、炭素数1~20の炭素炭素二重結合を有する α , ω -アルキレン架橋基、炭素数1~20の炭素炭素三重結合を有する α , ω -アルキレン架橋基、炭素数1~20のアリーレン基を有する α , ω -アルキレン架橋基、核原子数1~20の複素環基を有する α , ω -アルキレン架橋基などが挙げられ、好ましくは、上記のうち、炭素原子及び水素原子のみから構成される化合物である。

前記Z¹の置換基としては、複数ある場合はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、置換基を有してもよい炭素数1~30のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1~30のハロゲン化アルキル基、置換基を有してもよい核炭素数6~30の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3~30のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数7~40のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数2~30のアルケニル基、置換基を有してもよい核原子数3~30の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1~30のアルコキシ基、置換基を有してもよい核炭素数6~30のアリーロキシ基、置換基を有してもよい核原子数3~30のアルキルアミノ基、置換基を有してもよい核原子数3~30のアルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数6~30のアリールシリル基、炭素数1~30のカルボキシル含有基であり、これらに限定されるものではない。これら各基の具体例としては下記と同様である。好ましくは、上記のうち、ハロゲン原子、又は炭素原子及び水素原子のみから構成される化合物である。

[0019] Z¹の具体例としては、以下のような構造が挙げられる(*は結合の位置を示し、たとえば、下記(a)は、1, 2-エチレン架橋を意味する。)

[化4]



[0020] 一般式(1)において、 L^1 及び L^3 は、それぞれ独立に、置換基を有してもよい核炭素数6~30の2価の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核原子数3~30の2価の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1~30の2価のカルボキシル含有基、置換基を有してもよい2価のアミノ基あるいは水酸基含有炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3~50のシクロアルキレン基、置換基を有してもよい炭素数1~30のアルキレン基、置換基を有してもよい炭素数2~30のアルケニレン基、置換基を有してもよい炭素数7~40のアラルキレン基である。

[0021] 一般式(1)において、 L^2 及び L^4 は、それぞれ独立に、置換基を有してもよいカルベン炭素を持つ1価の基、置換基を有してもよい核炭素数6~30の1価の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核原子数3~30の1価の複素環基であり、 L^2 及び L^4 のうち少なくとも一つは置換基を有してもよいカルベン炭素を持つ1価の基である。

一般式(1)において、 L^5 は、置換基を有してもよい核炭素数6~30の1価の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核原子数3~30の1価の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1~30の1価のカルボキシル基、置換基を有してもよい1価のアミノ基あるいは水酸基含有炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3~50のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1~30のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数2~30のアルケニル基、置換基を有してもよい炭素数7~40のアラルキル

基、及びL⁵とL⁶が架橋した場合には、前記各基の2価の基である。

[0022] 以下、L¹～L⁵の示す各基の具体例を説明する。

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

これらの中で好ましくは、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、9-フェナントリル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-トリル基、3,4-キシリレニル基等及びこれらを2価の基としたものである。

[0023] 前記複素環基としては、核原子数3～18のものが好ましく、例えば、1-ピロリル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、1-イミダゾリル基、2-イミダゾリル基、1-ピラゾリル基、1-インドリジニル基、2-インドリジニル基、3-インドリジニル基、5-インドリジニル基、6-インドリジニル基、7-インドリジニル基、8-インドリジニル基、2-イミダゾピリジニル基、3-イミダゾピリジニル基、5-イミダゾピリジニル基、6-イミダゾピリジニル基、7-イミダゾピリジニル基、8-イミダゾピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、1-インドリル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、2-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル

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

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

[0024] これらの中で好ましくは、2-ピリジニル基、1-インドリジニル基、2-インドリジニル基、3-インドリジニル基、5-インドリジニル基、6-インドリジニル基、7-インドリジ

ニル基、8-インドリジニル基、2-イミダゾピリジニル基、3-イミダゾピリジニル基、5-イミダゾピリジニル基、6-イミダゾピリジニル基、7-イミダゾピリジニル基、8-イミダゾピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、1-インドリル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、2-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、9-カルバゾリル基及びこれらを2価の基としたものである。

[0025] 前記カルボキシル含有基としては、例えば、エステル結合($-C(=O)O-$)、メチルエステル、エチルエステル、ブチルエステル等及びこれらを2価の基としたものが挙げられる。

前記シクロアルキル基及びシクロアルキレン基としては、例えば、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、4-メチルシクロヘキシル基、1-アダマンチル基、2-アダマンチル基、1-ノルボルニル基、2-ノルボルニル基等及びこれらを2価の基としたものが挙げられる。

[0026] 前記アルキル基及びアルキレン基としては、炭素数1~10のものが好ましく、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基、n-ノニル基、n-デシル基、n-ウンデシル基、n-ドデシル基、n-トリデシル基、n-テトラデシル基、n-ペンタデシル基、n-ヘキサデシル基、n-ヘプタデシル基、n-オクタデシル基、ネオペンチル基、1-メチルペンチル基、2-メチルペンチル基、1-ペンチルヘキシル基、1-ブチルペンチル基、1-ヘプチルオクチル基、3-メチルペンチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2

ーシアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、1, 2-ジニトロエチル基、2, 3-ジニトロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロオクチル基、3, 5-テトラメチルシクロヘキシル基等及びこれらを2価の基としたものが挙げられる。

これらの中で好ましくは、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、*n*-ノニル基、*n*-デシル基、*n*-ウンデシル基、*n*-ドデシル基、*n*-トリデシル基、*n*-テトラデシル基、*n*-ペンタデシル基、*n*-ヘキサデシル基、*n*-ヘプタデシル基、*n*-オクタデシル基、ネオペンチル基、1-メチルペンチル基、1-ペンチルヘキシル基、1-ブチルペンチル基、1-ヘプチルオクチル基、シクロヘキシル基、シクロオクチル基、3, 5-テトラメチルシクロヘキシル基及びこれらを2価の基としたものである。

[0027] 前記アルケニル基及びアルケニレン基としては、炭素数2~16のものが好ましく、例えば、ビニル基、アリル基、1-ブテニル基、2-ブテニル基、3-ブテニル基、1, 3-ブタンジエニル基、1-メチルビニル基、スチリル基、2, 2-ジフェニルビニル基、1, 2-ジフェニルビニル基、1-メチルアリル基、1, 1-ジメチルアリル基、2-メチルアリル基、1-フェニルアリル基、2-フェニルアリル基、3-フェニルアリル基、3, 3-ジフェニルアリル基、1, 2-ジメチルアリル基、1-フェニル-1-ブテニル基、3-フェニル-1-ブテニル基等及びこれらを2価の基としたものが挙げられ、好ましくはスチリル基、2, 2-ジフェニルビニル基、1, 2-ジフェニルビニル基及びこれらを2価の基としたものである。

[0028] 前記アラルキル基及びアラルキレン基としては、炭素数7~18のものが好ましく、例えば、ベンジル基、1-フェニルエチル基、2-フェニルエチル基、1-フェニルイソプロピル基、2-フェニルイソプロピル基、フェニル-*t*-ブチル基、 α -ナフチルメチル基、1- α -ナフチルエチル基、2- α -ナフチルエチル基、1- α -ナフチルイソプロピル基、2- α -ナフチルイソプロピル基、 β -ナフチルメチル基、1- β -

ナフチルエチル基、2-β-ナフチルエチル基、1-β-ナフチルイソプロピル基、2-β-ナフチルイソプロピル基、1-ピロリルメチル基、2-(1-ピロリル)エチル基、p-メチルベンジル基、m-メチルベンジル基、o-メチルベンジル基、p-クロロベンジル基、m-クロロベンジル基、o-クロロベンジル基、p-ブロモベンジル基、m-ブロモベンジル基、o-ブロモベンジル基、p-ヨードベンジル基、m-ヨードベンジル基、o-ヨードベンジル基、p-ヒドロキシベンジル基、m-ヒドロキシベンジル基、o-ヒドロキシベンジル基、p-アミノベンジル基、m-アミノベンジル基、o-アミノベンジル基、p-ニトロベンジル基、m-ニトロベンジル基、o-ニトロベンジル基、p-シアノベンジル基、m-シアノベンジル基、o-シアノベンジル基、1-ヒドロキシ-2-フェニルイソプロピル基、1-クロロ-2-フェニルイソプロピル基等を2価の基としたものが挙げられ、好ましくは、ベンジル基、p-シアノベンジル基、m-シアノベンジル基、o-シアノベンジル基、1-フェニルエチル基、2-フェニルエチル基、1-フェニルイソプロピル基、2-フェニルイソプロピル基及びこれらを2価の基としたものである。

前記アミノ基又は水酸基含有炭化水素基としては、前記L¹~L⁵の示す各炭化水素基を有するアミノ基、及び前記炭化水素基の水素原子が水酸基で置き換わったものが挙げられる。

[0029] 一般式(1)において、L⁶は、置換基を有してもよい核炭素数3~30の複素環、置換基を有してもよい炭素数1~30のカルボン酸エステル、炭素数1~30のカルボン酸アミド、置換基を有してもよいアミン、置換基を有してもよいホスフィン、置換基を有してもよいイソニトリル、置換基を有してもよい炭素数1~30のエーテル、置換基を有してもよい炭素数1~30のチオエーテル、又は置換基を有してもよい炭素数1~30の二重結合含有化合物、及びL⁵とL⁶が架橋した場合には、前記各化合物の1価の基である。

[0030] 前記複素環としては、前記L¹~L⁵で挙げたものと同様の例の基を0価としたものが挙げられる。

前記カルボン酸エステルとしては、例えば、ギ酸メチル、ギ酸エチル、酢酸メチル、酢酸エチル、プロピオン酸メチル、プロピオン酸エチル、安息香酸メチル、安息香酸

エチル、2-ピリジンカルボン酸メチル、2-ピリジンカルボン酸エチル、3-ピリジンカルボン酸メチル、3-ピリジンカルボン酸エチル、4-ピリジンカルボン酸メチル、4-ピリジンカルボン酸エチル、フェニル酢酸メチル、フェニル酢酸エチル、2-ピリジン酢酸メチル、2-ピリジン酢酸エチル、3-ピリジン酢酸メチル、3-ピリジン酢酸エチル、4-ピリジン酢酸メチル、4-ピリジン酢酸エチル、2-ピロールカルボン酸メチル、3-ピロールカルボン酸メチル、2-チオフェンカルボン酸メチル、3-チオフェンカルボン酸メチル等が挙げられる。

[0031] 前記カルボン酸アミドとしては、例えば、N, N-ジメチルホルムアミド、N, N-ジメチルアセトアミド、N, N-ジメチル安息香酸アミド、N, N-ジメチル-2-ピリジンカルボン酸アミド、N, N-ジメチル-3-ピリジンカルボン酸アミド、N, N-ジメチル-4-ピリジンカルボン酸アミド、N, N-ジメチル-フェニル酢酸アミド、N, N-ジメチル-2-ピリジン酢酸アミド、N, N-ジメチル-3-ピリジン酢酸アミド、N, N-ジメチル-4-ピリジン酢酸アミド、N, N-ジメチル-2-ピロールカルボン酸アミド、N, N-ジメチル-3-ピロールカルボン酸アミド、N, N-ジメチル-2-チオフェンカルボン酸アミド、N, N-ジメチル-3-チオフェンカルボン酸アミド、N-メチルホルムアミド、N-メチルアセトアミド、N-メチル安息香酸アミド、N-メチル-2-ピリジンカルボン酸アミド、N-メチル-3-ピリジンカルボン酸アミド、N-メチル-4-ピリジンカルボン酸アミド、N-メチル-フェニル酢酸アミド、N-メチル-2-ピリジン酢酸アミド、N-メチル-3-ピリジン酢酸アミド、N-メチル-4-ピリジン酢酸アミド、N-メチル-2-ピロールカルボン酸アミド、N-メチル-3-ピロールカルボン酸アミド、N-メチル-2-チオフェンカルボン酸アミド、N-メチル-3-チオフェンカルボン酸アミド、アセトアミド、安息香酸アミド、2-ピリジンカルボン酸アミド、3-ピリジンカルボン酸アミド、4-ピリジンカルボン酸アミド、フェニル酢酸アミド、2-ピリジン酢酸アミド、3-ピリジン酢酸アミド、4-ピリジン酢酸アミド、2-ピロールカルボン酸アミド、3-ピロールカルボン酸アミド、2-チオフェンカルボン酸アミド、3-チオフェンカルボン酸アミド等が挙げられる。

[0032] 前記アミンとしては、例えば、トリエチルアミン、トリ-n-プロピルアミン、トリ-n-ブチルアミン、N, N-ジメチルアニリン、メチルジフェニルアミン、トリフェニルアミン、ジ

メチル(2-ピリジン)アミン、ジメチル(3-ピリジン)アミン、ジメチル(4-ピリジン)アミン、メチルビス(2-ピリジン)アミン、メチルビス(3-ピリジン)アミン、メチルビス(4-ピリジン)アミン、トリス(2-ピリジン)アミン、トリス(3-ピリジン)アミン、トリス(4-ピリジン)アミン、ジイソプロピルアミン、ジ-n-プロピルアミン、ジ-n-ブチルアミン、N-メチルアニリン、メチルフェニルアミン、ジフェニルアミン、メチル(2-ピリジン)アミン、メチル(3-ピリジン)アミン、メチル(4-ピリジン)アミン、メチル(2-ピリジン)アミン、メチル(3-ピリジン)アミン、メチル(4-ピリジン)アミン、ビス(2-ピリジン)アミン、n-プロピルアミン、n-ブチルアミン、アニリン、(2-ピリジン)アミン、(3-ピリジン)アミン、(4-ピリジン)アミン、(2-ピリジン)アミン、(3-ピリジン)アミン、(4-ピリジン)アミン、ピリジン、2-メチルピリジン、3-メチルピリジン、4-メチルピリジン、2-トリフルオロメチルピリジン、3-トリフルオロメチルピリジン、4-トリフルオロメチルピリジン、N-メチルピロール等が挙げられる。

[0033] 前記ホスフィンとしては、例えば、前記アミンの窒素をリンに置き換えたもの等が挙げられる。

前記イソニトリルとしては、例えば、ブチルイソシアニド、イソブチルイソシアニド、sec-ブチルイソシアニド、t-ブチルイソシアニド、フェニルイソシアニド、2-トリルイソシアニド、3-トリルイソシアニド、4-トリルイソシアニド、2-ピリジンイソシアニド、3-ピリジンイソシアニド、4-ピリジンイソシアニド、ベンジルイソシアニド等が挙げられる。

前記エーテルとしては、例えば、ジエチルエーテル、ジ-n-プロピルエーテル、ジ-n-ブチルエーテル、ジイソブチルエーテル、ジ-sec-ブチルエーテル、ジ-t-ブチルエーテル、アニソール、ジフェニルエーテル、フラン、テトラヒドロフラン、ジオキサン等が挙げられる。

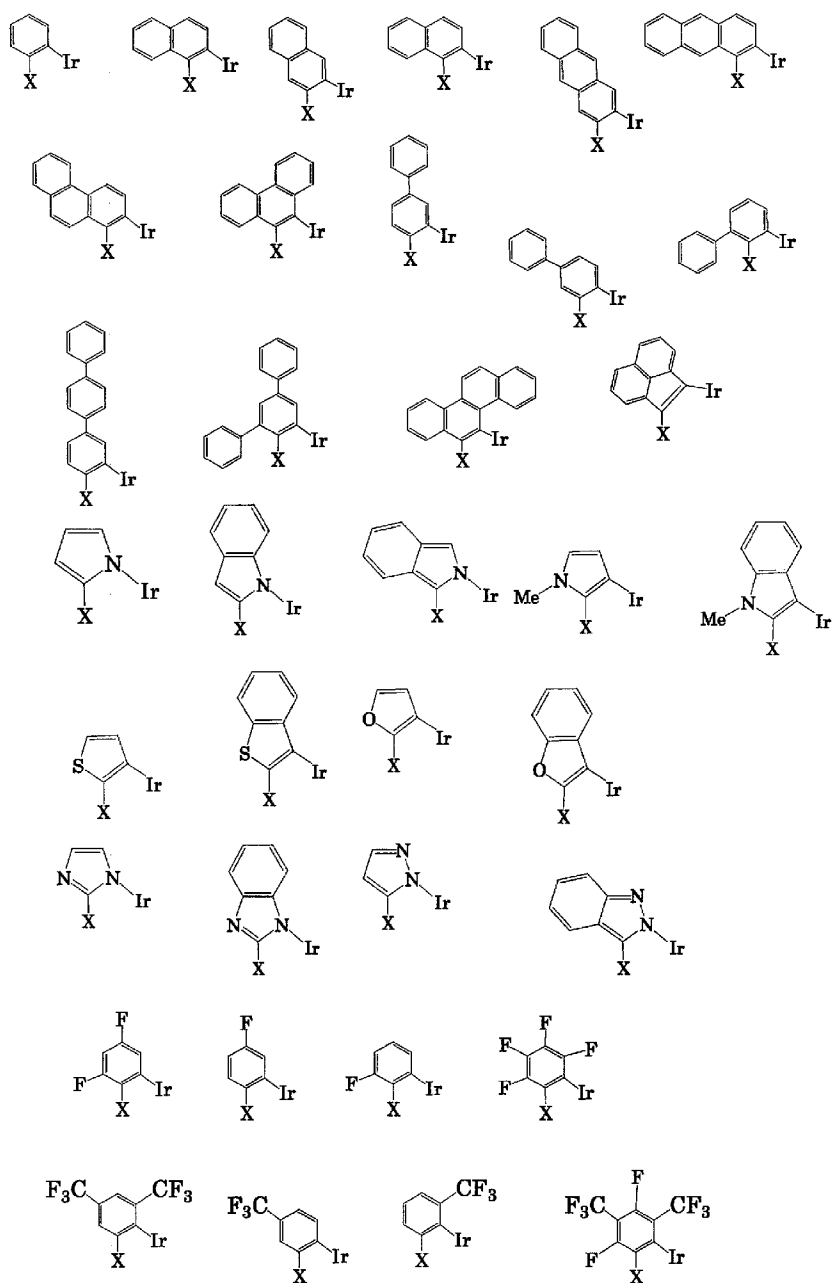
前記チオエーテルとしては、前記エーテルの酸素を硫黄に置き換えたもの等が挙げられる。

前記炭素数1~30の二重結合含有化合物としては、例えば、エチレン、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-ノネン、1-デセン、1-エイコセン、2-ブテン、2-ペンテン、2-ヘキセン、2-ヘプテン、2-オクテン、2-ノネン、2-デセン、2-エイコセン、3-ヘキセン、3-ヘプテン、3-

ーオクテン、3-ノネン、3-デセン、3-エイコセン、イソブテン、スチレン、 α -メチルスチレン、 β -メチルスチレン、ブタジエン、イソプレン、スチルベン等が挙げられる。

[0034] また、一般式(1)において、 L^1 及び L^3 は、芳香族炭化水素基又は複素環基であると好ましく、例えば、以下に示される構造が好ましく、これらの中でもフェニル基及び置換フェニル基が好ましい。なお、下記例では、MがIrとして例示するが、Ir以外の場合も同様の例が挙げられる。また、Xは隣接する結合基、すなわち L^2 又は L^4 を示す。

[0035] [化5]

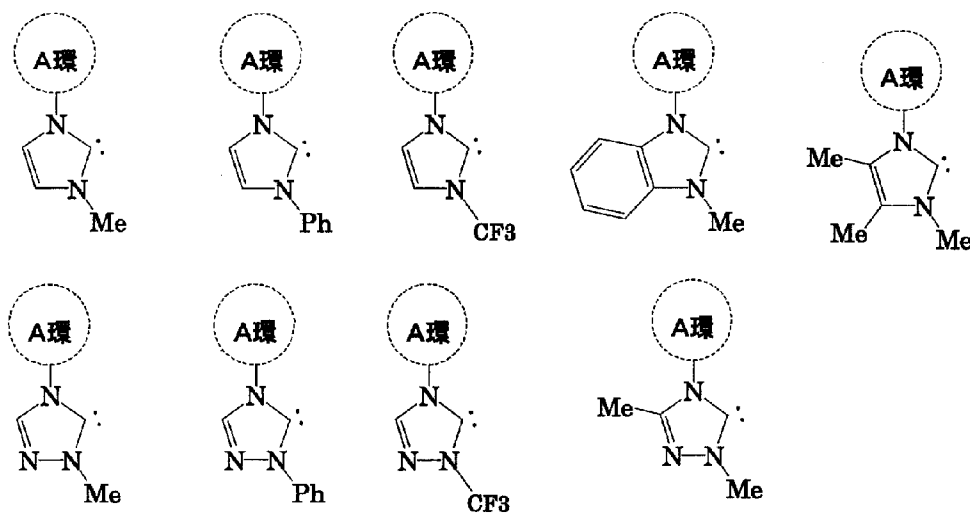


[0036] また、一般式(1)において、 L^2 及び L^4 がカルベン炭素を持つ場合、通常、金属とともに安定カルベンを形成するものと好ましく、具体的には、ジアリールカルベン、環状ジアミノカルベン、イミダゾール-2-イリデン、1,2,4-トリアゾール-3-イリデン、1,3-チアゾール-2-イリデン、非環状ジアミノカルベン、非環状アミノオキシカルベン、非環状アミノチオカルベン、環状ジボリルカルベン、非環状ジボリルカルベン、ホスフィノシリルカルベン、ホスフィノホスフィノカルベン、スルフェニルトリフルオロメチルカルベン、スルフェニルペンタフルオロチオカルベン等を挙げることができる

(参考文献 Chem. Rev. 2000, 100, p39)。

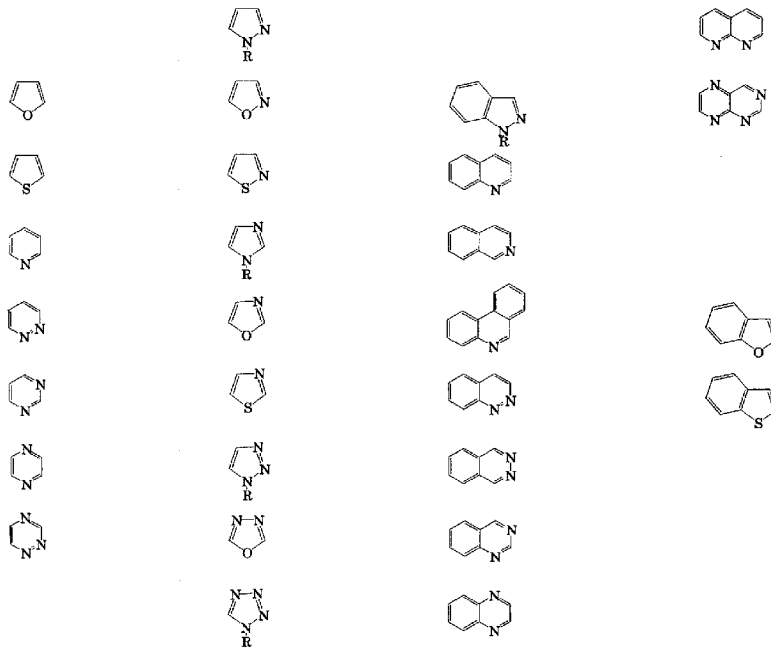
これらのうち、好ましくはイミダゾール-2-イリデン、1, 2, 4-トリアゾール-3-イリデン及び環状ジアミノカルベンであり、より好ましくはイミダゾール-2-イリデン及び1, 2, 4-トリアゾール-3-イリデンであり、その具体的な構造を以下に列挙する。なお、下記例において、A環は隣接する結合基、すなわちL¹又はL³を示す。

[0037] [化6]



[0038] さらに、L²及びL⁴がカルベン炭素を持たない基である場合の好ましい具体例を以下に列挙する。下記例において、L¹又はL³と結合する炭素は、金属Mに配位するヘテロ原子の隣であると好ましく、下記例は置換されていてもよい。

[化7]



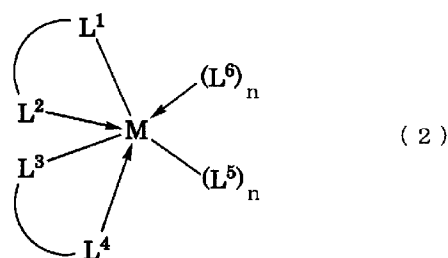
[0039] また、一般式(1)において、 L^5 の好ましい例としては、 L^1 及び L^3 で挙げた好ましい例と同様のものが挙げられ、上記例示において、Xを除いたものがさらに好ましい。

L^6 の好ましい例としては、ピリジン環含有基、ピロール環含有基、イミダゾール環含有基、ピラゾール環含有基、1, 2, 3-トリアゾール環含有基、1, 2, 4-トリアゾール環含有基、チオフェン環含有基、フラン環含有基、オキサゾール環含有基、チアゾール環含有基、 $R^{18}N$ 、 $R^{19}P$ 、 $C=N-R^{20}$ 、 $R^{21}O$ 、 $R^{22}S$ 、 $R^{23}R^{24}C=CR^{25}R^{26}$ 、 $R^{27}COOR^{28}$ 、 $R^{29}CONR^{30}R^{31}$ ($R^{18} \sim R^{31}$ は、それぞれ独立に、前記 R^1 及び R^2 と同様の例が挙げられ、それぞれ同じでも異なってもよく、架橋していてもよい。)の構造を有するものが挙げられる。

さらに、 L^5 と L^6 が架橋して、 L^5-L^6 となっている場合、前記 L^5 と L^6 の好ましい例が架橋したもの、及び前記 L^1 及び L^3 と前記 L^2 及び L^4 で挙げた好ましい例と同様のものが挙げられる。

[0040] 本発明の一般式(1)で表される遷移金属錯体化合物は、下記一般式(2)で表される金属カルベン結合を有する遷移金属錯体化合物であると好ましい。

[化8]

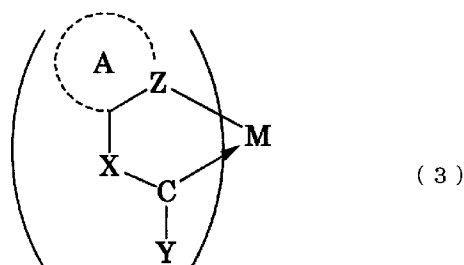


[0041] 一般式(2)において、実線で示した結合は共有結合を、矢印で示した結合は配位結合を意味し、 $L^2 \rightarrow M$ 及び $L^4 \rightarrow M$ のうち少なくとも一方は金属カルベン結合を示す。M、 $L^1 \sim L^6$ は、それぞれ前記と同じである。 $L^1 - L^2$ 及び $L^3 - L^4$ は架橋二座配位子を示し、 L^5 及び L^6 は、それぞれ独立に、単座配位子又は L^5 と L^6 が架橋した架橋二座配位子($L^5 - L^6$)を示し、 L^1 と L^3 、 L^1 と L^4 、 L^2 と L^3 、 L^2 と L^4 、 L^1 と L^5 、 L^1 と L^6 、 L^2 と L^5 、 L^2 と L^6 、 L^3 と L^5 、 L^3 と L^6 、 L^4 と L^5 及び L^4 と L^6 のうち、少なくとも1つは架橋基 $-Z^1-$ (Z^1 は前記と同じである)を介して架橋している。

一般式(2)において、nは0~1の整数で、 $2+n$ は金属Mの原子価を示す。nが複数のときは、 $L^3 \sim L^4$ は、それぞれ同じあっても異なってもよく、隣接するもの同士で架橋していてもよい。

[0042] 一般式(1)、(2)において、 $(L^1 - L^2)M$ 及び/又は $(L^3 - L^4)M$ が、下記一般式(3)で表される構造であると好ましい。

[化9]



[0043] 一般式(3)において、C(炭素原子) $\rightarrow M$ は金属カルベン結合を示し、Mは、前記と同じである。

一般式(3)において、Xは、窒素含有基($-NR^1-$)、リン含有基($-PR^1-$)、酸素($-O-$)又は硫黄($-S-$)であり、Yは、窒素含有基($-NR^1R^2$)、リン含有基($-PR^1$)、酸素含有基($-OR^1$)又は硫黄含有基($-SR^1$)であり、XとYは架橋し環構造を形

成していてもよい。

前記 R^1 及び R^2 は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい炭素数1~30のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1~30のハロゲン化アルキル基、置換基を有してもよい核炭素数6~30の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3~50のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数7~40のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数2~30のアルケニル基、置換基を有してもよい核原子数3~30の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1~30のアルコキシ基、置換基を有してもよい核炭素数6~30のアリアルオキシ基、置換基を有してもよい炭素数3~30アルキルアミノ基、置換基を有してもよい炭素数6~30のアリアルアミノ基、置換基を有してもよい炭素数3~30アルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数6~30のアリアルシリル基、置換基を有してもよい炭素数1~30のカルボキシル含有基であり、 R^1 と R^2 は架橋していてもよい。

[0044] 前記アルキル基としては、炭素数1~10のものが好ましく、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、*n*-ノニル基、*n*-デシル基、*n*-ウンデシル基、*n*-ドデシル基、*n*-トリデシル基、*n*-テトラデシル基、*n*-ペンタデシル基、*n*-ヘキサデシル基、*n*-ヘプタデシル基、*n*-オクタデシル基、ネオペンチル基、1-メチルペンチル基、2-メチルペンチル基、1-ペンチルヘキシル基、1-ブチルペンチル基、1-ヘプチルオクチル基、3-メチルペンチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、1, 2-ジニトロエチル基、2, 3-ジニトロ-*t*-

ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロオクチル基、3, 5-テトラメチルシクロヘキシル基等が挙げられる。

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

[0045] 前記ハロゲン化アルキル基としては、炭素数1~10のものが好ましく、例えば、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソプロピル基、2, 3-ジブロモ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-t-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、フルオロメチル基、1-フルオロメチル基、2-フルオロメチル基、2-フルオロイソブチル基、1, 2-ジフルオロエチル基、ジフルオロメチル基、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、パーフルオロイソプロピル基、パーフルオロブチル基、パーフルオロシクロヘキシル基等が挙げられる。

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

[0046] 前記芳香族炭化水素基としては、核炭素数6~18のものが好ましく、例えば、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェ

ナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-t-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4"-t-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基、o-クメニル基、m-クメニル基、p-クメニル基、2,3-キシリレニル基、3,4-キシリレニル基、2,5-キシリレニル基、メシチレニル基、パーフルオロフェニル基等が挙げられる。

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

[0047] 前記シクロアルキル基としては、例えば、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、4-メチルシクロヘキシル基、1-アダマンチル基、2-アダマンチル基、1-ノルボルニル基、2-ノルボルニル基等が挙げられる。

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

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

[0048] 前記アルケニル基としては、炭素数2~16のものが好ましく、例えば、ビニル基、アリル基、1-ブテニル基、2-ブテニル基、3-ブテニル基、1, 3-ブタンジエニル基、1-メチルビニル基、スチリル基、2, 2-ジフェニルビニル基、1, 2-ジフェニルビニル基、1-メチルアリル基、1, 1-ジメチルアリル基、2-メチルアリル基、1-フェニルアリル基、2-フェニルアリル基、3-フェニルアリル基、3, 3-ジフェニルアリル基、1, 2-ジメチルアリル基、1-フェニル-1-ブテニル基、3-フェニル-1-ブテニル基等が挙げられ、好ましくはスチリル基、2, 2-ジフェニルビニル基、1, 2-ジフェニルビニル基である。

[0049] 前記複素環基としては、核原子数3~18のものが好ましく、例えば、1-ピロリル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、1-イミダゾリル基、2-イミダゾリル基、1-ピラゾリル基、1-インドリジニル基、2-インドリジニル基、3-インドリジニル基、5-インドリジニル基、6-インドリジニル基、7-インドリジニル基、8-インドリジニル基、2-イミダゾピリジニル基、3-イミダゾピリジニル基、5-イミダゾピリジニル基、6-イミダゾピリジニル基、7-イミダゾピリジニル基、8-イミダゾピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、1-インドリル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、2-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基

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

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

これらの中で好ましくは、2-ピリジニル基、1-インドリジニル基、2-インドリジニル基、3-インドリジニル基、5-インドリジニル基、6-インドリジニル基、7-インドリジニル基、8-インドリジニル基、2-イミダゾピリジニル基、3-イミダゾピリジニル基、5-イミダゾピリジニル基、6-イミダゾピリジニル基、7-イミダゾピリジニル基、8-イミダゾピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、1-インドリル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-イン

ドリル基、1-イソインドリル基、2-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、9-カルバゾリル基である。

[0050] 前記アルコキシ基及びアリアルオキシ基は、 $-OX^1$ で表される基であり、 X^1 の例としては、前記アルキル基及びハロゲン化アルキル基及びアリアル基で説明したものと同様の例が挙げられる。

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

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

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

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

また、前記XとYが架橋して形成する環構造としては、前記複素環基で挙げたものと同様の例が挙げられる。

[0051] 一般式(3)において、 $-X-C-Y$ (L^2 及び L^4 に相当する)で表されるカルベン骨格としては、一般式(1)において、 L^2 及び L^4 がカルベン炭素を持つ場合で挙げた好ましい例と同様のものが好ましく挙げられる。

一般式(3)において、Zは、金属Mと共有結合を形成する原子で、炭素、ケイ素、窒素又はリン原子であり、Zを含むA環は、置換基を有してもよい核炭素数3~40の芳香族炭化水素基又は置換基を有してもよい核原子数3~40の芳香族複素環基である。

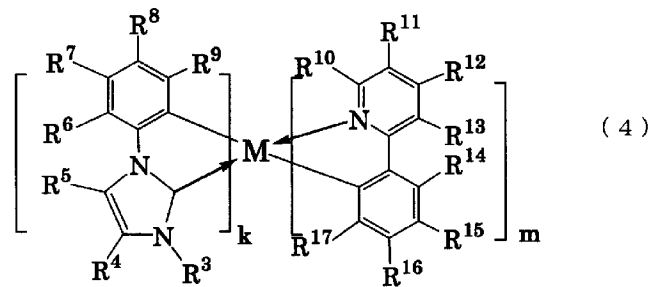
この芳香族炭化水素基は前記で挙げたものと同様の例が挙げられ、この芳香族複素環基の例としては、前記複素環基の例のうち芳香族複素環基であるものが挙げら

れる。

それらの中でも、A環としては、一般式(1)において、 L^1 及び L^3 で挙げた好ましい例と同様のものが好ましく挙げられる。

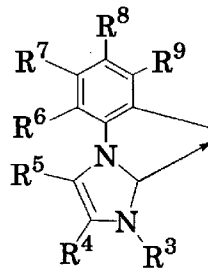
[0052] また、前記一般式(1)又は(2)で表される化合物は、下記一般式(4)で表される金属カルベン結合を有する遷移金属錯体化合物であると好ましい。

[化10]



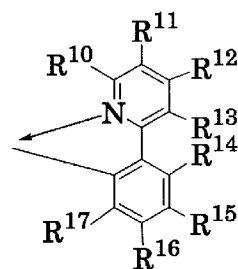
[0053] 一般式(4)において、C(炭素原子) \rightarrow Mは金属カルベン結合を示す。Mは、イリジウム(Ir)又は白金(Pt)の金属原子を示す。kは1~3、mは0~2の整数を示し、k+mは金属Mの原子価を示す。k+m個の

[化11]



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

[化12]



(置換)2-フェニルピリジン-N, C^{2'}基

のうち、少なくとも2つは架橋基-Z¹- (Z¹は前記と同じである)を介して架橋している。

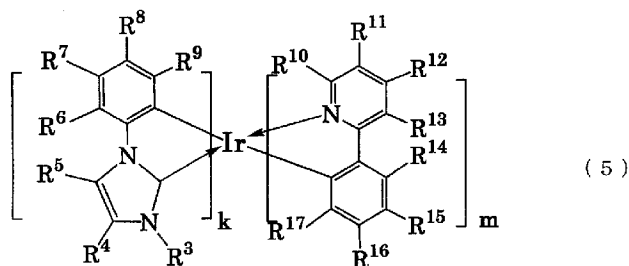
[0054] 一般式(4)において、R³は、置換基を有してもよい炭素数1~30のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1~30のハロゲン化アルキル基、置換基を有してもよい核炭素数6~30の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3~30のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数7~40のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数2~30のアルケニル基、置換基を有してもよい核原子数3~30の複素環基、置換基を有してもよい核原子数3~30のアルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数6~30のアリールシリル基、炭素数1~30のカルボキシル含有基である。

[0055] 一般式(4)において、R⁴~R¹⁷は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子(フッ素、臭素、ヨウ素、塩素等)、チオシアノ基、又はシアノ基、ニトロ基、-S(=O)₂R¹基、又は-S(=O)R¹[R¹は前記と同じ]、置換基を有してもよい炭素数1~30のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1~30のハロゲン化アルキル基、置換基を有してもよい核炭素数6~30の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3~30のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数7~40のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数2~30のアルケニル基、置換基を有してもよい核原子数3~30の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1~30のアルコキシ基、置換基を有してもよい核炭素数6~30のアリールオキシ基、置換基を有してもよい核原子数3~30のアルキルアミノ基、置換基を有してもよい核原子数3~30のアルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数6~30のアリールシリル基、炭素数1~30のカルボキシル含有基であり、R⁴~R¹⁷は隣接するもの同士で架橋していてもよい。

[0056] 前記アルキル基、ハロゲン化アルキル基、芳香族炭化水素基、シクロアルキル基、アラルキル基、アルケニル基、複素環基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、アルキルシリル基、アリールシリル基及びカルボキシル含有基の具体例としては、前記一般式(3)のR¹及びR²と同様の例が挙げられる。

[0057] 前記一般式(4)において、特に、前記MがIrである下記一般式(5)で表される遷移金属錯体化合物であると好ましい。

[化13]



[0058] 一般式(5)において、C(炭素原子)→Irは金属カルベン結合を示す。k、m及びR³～R¹⁷は、それぞれ前記と同じである。k+m個の(置換)N-フェニル-N'-R³-イミダゾール-2-イリデン-C², C^{2'}基、及び(置換)2-フェニルピリジン-N, C^{2'}基のうち、少なくとも2つは架橋基-Z¹-(Z¹は前記と同じである)を介して架橋している。

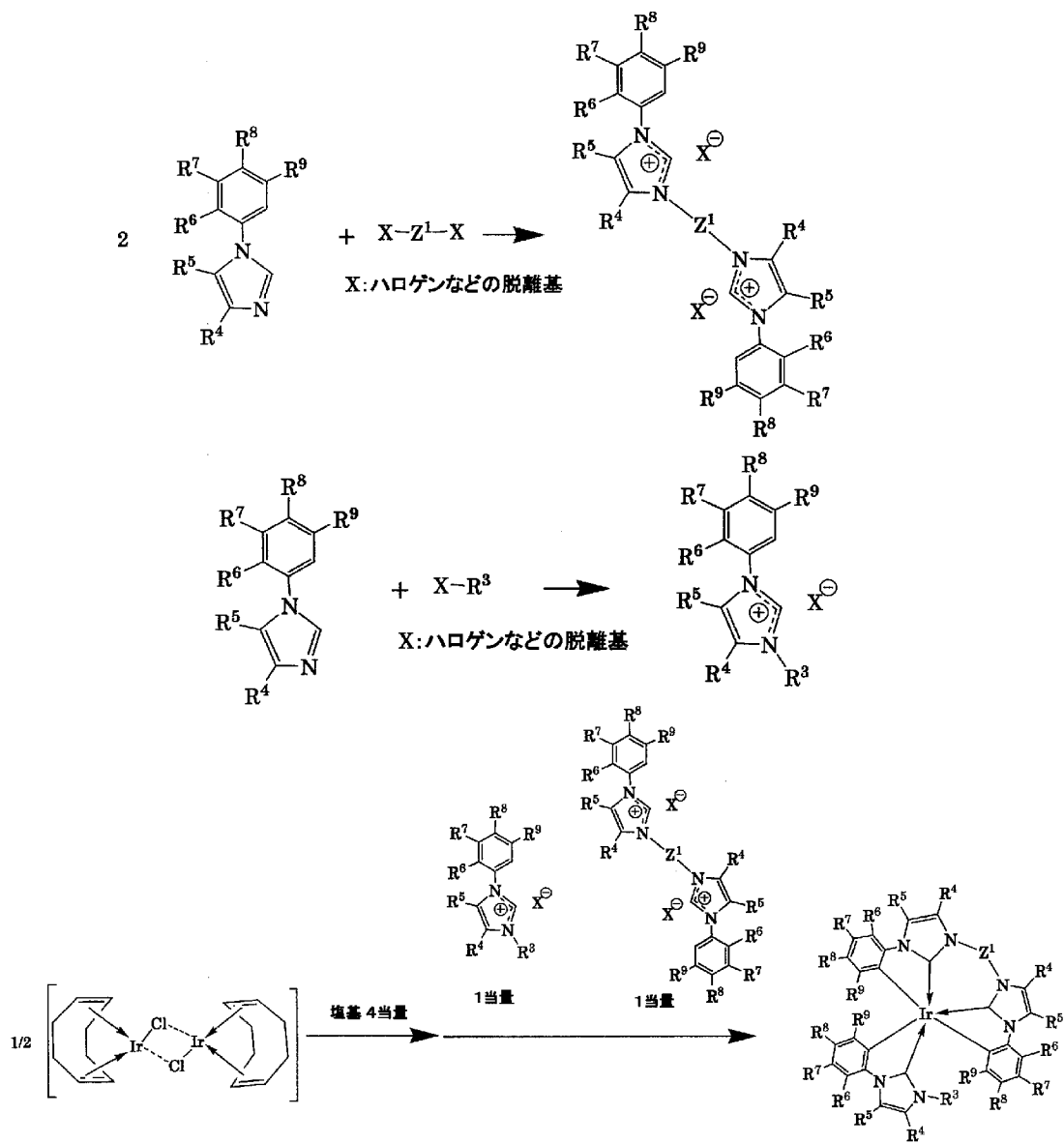
[0059] 前記一般式(1)～(5)における各基の置換基としては、置換もしくは無置換の核炭素数5～50のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の核炭素数6～50のアラルキル基、置換もしくは無置換の核炭素数5～50のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の核炭素数5～50のアリールチオ基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルコキシカルボニル基、アミノ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシル基、カルボキシル基等が挙げられる。

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

[0060] 次に、本発明の一般式(1)の遷移金属錯体化合物の製造方法について、以下、その一例を説明する。

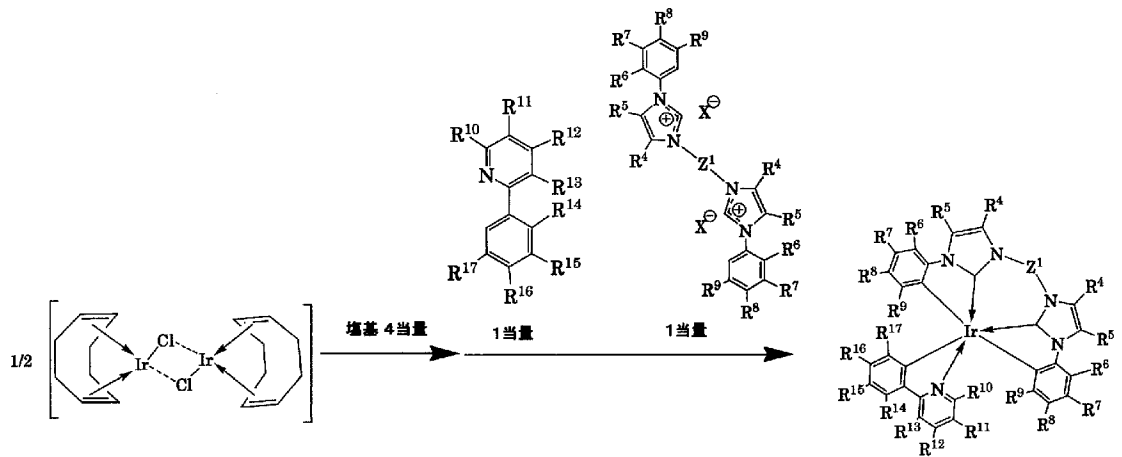
1. 一般式(5) (k=3, m=0)の遷移金属錯体化合物の合成方法

[化14]



[0061] 2. 一般式(5) (k=2、m=1)の遷移金属錯体化合物の合成方法

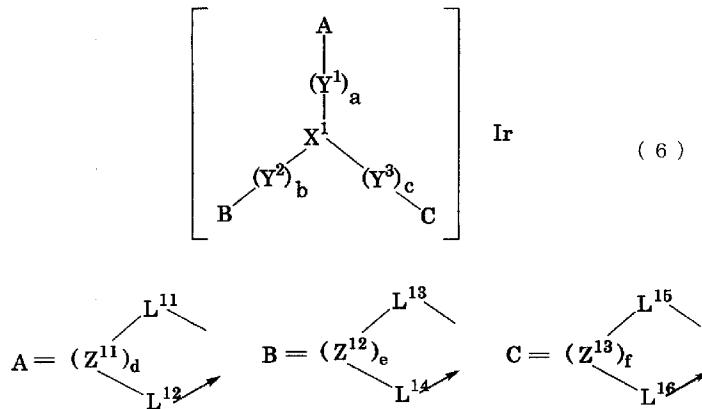
[化15]



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

[0062] 次に、一般式(6)について説明する。

[化16]

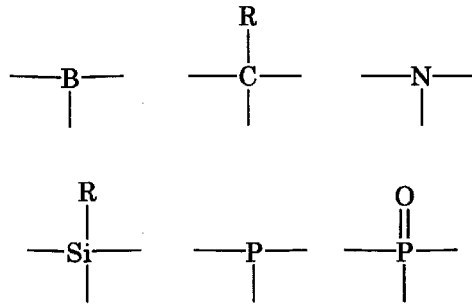


[0063] 一般式(6)において、Aは $\text{L}^{11} - (\text{Z}^{11})_d - \text{L}^{12}$ からなる架橋二座配位子群を、Bは $\text{L}^{13} - (\text{Z}^{12})_e - \text{L}^{14}$ からなる架橋二座配位子群を、また、Cは $\text{L}^{15} - (\text{Z}^{13})_f - \text{L}^{16}$ からなる架橋二座配位子群を示す。 $\text{L}^{11}-$ 、 $\text{L}^{13}-$ 及び $\text{L}^{15}-$ は、それぞれIr(イリジウム)への共有結合($\text{L}^{11}-\text{Ir}$ 、 $\text{L}^{13}-\text{Ir}$ 及び $\text{L}^{15}-\text{Ir}$)を示し、 $\text{L}^{12}\rightarrow$ 、 $\text{L}^{14}\rightarrow$ 及び $\text{L}^{16}\rightarrow$ は、それぞれIrへの配位結合($\text{L}^{12}\rightarrow\text{Ir}$ 、 $\text{L}^{14}\rightarrow\text{Ir}$ 及び $\text{L}^{16}\rightarrow\text{Ir}$)を示す。

[0064] 一般式(6)において、 X^1 は、原子数が1~18の非環状構造からなる架橋基であって、水素原子、炭素原子、ケイ素原子、窒素原子、硫黄原子、酸素原子、リン原子及びホウ素原子の群から選ばれる原子から構成される化合物の3価の残基であり、置換基を有していてもよい。

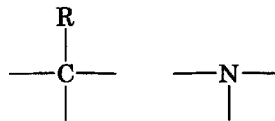
[0065] このようなX¹としては、下記のいずれかの構造が挙げられ、

[化17]



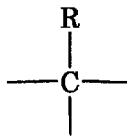
以下の構造が好ましく、

[化18]



以下の構造がさらに好ましい。

[化19]



[0066] Rは、前記R¹と同様の例が挙げられ、水素原子、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、シクロヘキシル基、フェニル基、メキシ基、エトキシ基等が好ましく、水素原子、メチル基、エチル基、t-ブチル基、フェニル基がさらに好ましい。

[0067] 一般式(6)においてY¹はXとA、Y²はXとB、Y³はXとCを結合する架橋基を示し、Y¹はL¹¹、L¹²又はZ¹¹、Y²はL¹³、L¹⁴又はZ¹²、Y³はL¹⁵、L¹⁶又はZ¹³と結合している。Y¹、Y²及びY³は、それぞれ独立に、水素原子、炭素原子、ケイ素原子、窒素原子、硫黄原子、酸素原子、リン原子及びホウ素原子の群から選ばれる原子から構成される化合物の2価の残基であり、置換基を有していてもよい。

一般式(6)において、a、b及びcは、それぞれ独立に0~10の整数を示し、0~3

であると好ましい。a、b又はcが複数のときは、複数ある Y^1 、 Y^2 又は Y^3 は、それぞれ同じでも異なってもよい。

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

Y^1 、 Y^2 及び Y^3 の好ましい具体構造としては、例えば、 $-CH_2-$ 、 $-CMe_2-$ 、 $-CMeH-$ 、 $-CEtH-$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-SiH_2-$ 、 $-SiMe_2-$ 、 $-SiMeH-$ 、 $-SiEtH-$ 、 $-NH-$ 、 $-NMe-$ 、 $-NEt-$ 、 $-PH-$ 、 $-PMe-$ 、 $-PEt-$ 、 $-BH-$ 、 $-BMe-$ 、 $-BEt-$ (Meはメチル基、Etはエチル基)等が挙げられる。

[0068] 一般式(6)において、 Z^{11} は L^{11} と L^{12} 、 Z^{12} は L^{13} と L^{14} 、 Z^{13} は L^{15} と L^{16} を結合する架橋基を示し、 Z^{11} 、 Z^{12} 及び Z^{13} は、それぞれ独立に、水素原子、炭素原子、ケイ素原子、窒素原子、硫黄原子、酸素原子、リン原子及びホウ素原子の群から選ばれる原子から構成される化合物の2価の残基であり、置換基を有していてもよい。 Z^{11} が Y^1 と直接結合した場合、 Z^{12} が Y^2 と直接結合した場合、又は Z^{13} が Y^3 と直接結合した場合、 Z^{11} 、 Z^{12} 及び Z^{13} は、それぞれ相当する3価の基となる。

一般式(6)において、d、e及びfは、それぞれ独立に0~10の整数を示し、0~3であると好ましい。d、e又はfが複数のときは、複数ある Z^{11} 、 Z^{12} 又は Z^{13} は、それぞれ同じでも異なってもよい。

[0069] 一般式(6)において、 L^{11} 、 L^{13} 及び L^{15} は、それぞれ独立に、置換基を有してもよい核炭素数6~30の2価の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核原子数3~30の2価の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1~30の2価のカルボキシル含有基、置換基を有してもよい2価のアミノ基あるいは水酸基含有炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3~50のシクロアルキレン基、置換基を有してもよい炭素数1~30のアルキレン基、置換基を有してもよい炭素数2~30のアルケニレン基、置換

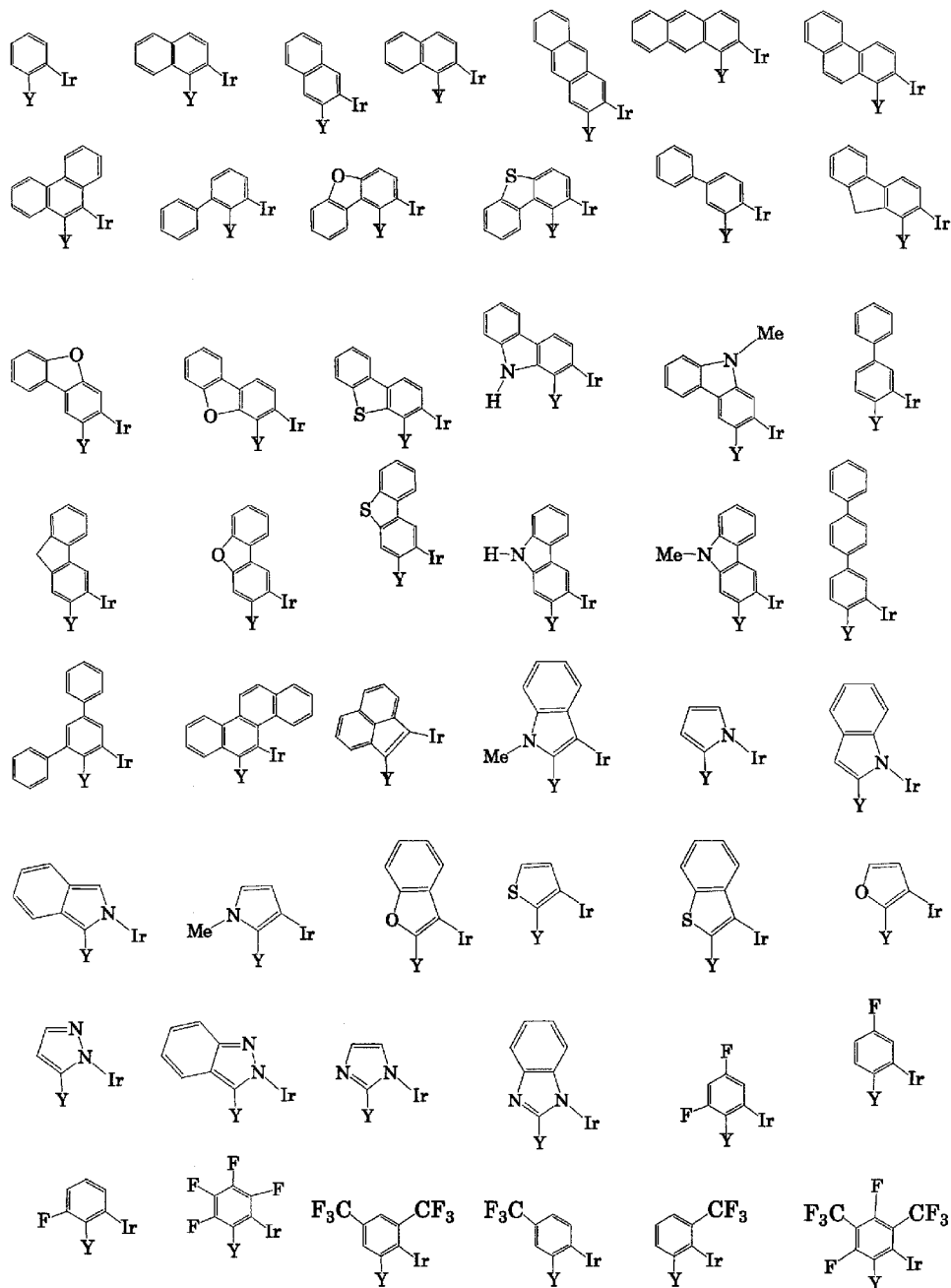
基を有してもよい炭素数7~40のアラルキレン基であり、 L^{11} が Y^1 と直接結合した場合、 L^{13} が Y^2 と直接結合した場合、又は L^{15} が Y^3 と直接結合した場合は、 L^{11} 、 L^{13} 及び L^{15} は、それぞれ相当する3価の基となる。

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

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

[0070] また、前記 L^{11} 、 L^{13} 及び L^{15} は、芳香族炭化水素基又は複素環基であると好ましく、例えば、以下に示される構造が好ましく、これらの中でもフェニル基及び置換フェニル基が好ましい。なお、下記例では、 Y は隣接する結合基、すなわち L^{12} 、 L^{14} 又は L^{16} を示す。

[0071] [化20]



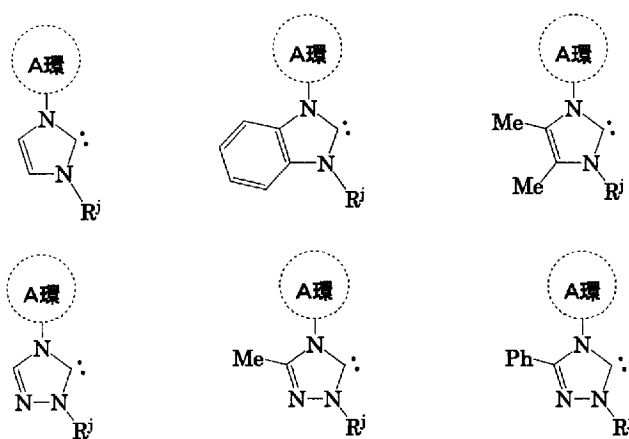
[0072] 一般式(6)において、 L^{12} 、 L^{14} 及び L^{16} は、それぞれ独立に、置換基を有してもよいカルベン炭素を有する1価の基、又は置換基を有してもよい核原子数3~30の1価の複素環基であり、 L^{12} が Y^1 と直接結合した場合、 L^{14} が Y^2 と直接結合した場合、あるいは L^{16} が Y^3 と直接結合した場合は、 L^{12} 、 L^{14} 及び L^{16} は、それぞれ相当する2価の基となる。 L^{12} 、 L^{14} 及び L^{16} のうち、少なくとも一つがカルベン炭素を有する基であると好ましく、 L^{12} 、 L^{14} 及び L^{16} がカルベン炭素を有する基であるとさらに好ましい。

また、カルベン炭素を有する1価の基としては、通常、金属とともに安定カルベンを

形成するものであると好ましく、具体的には、ジアリールカルベン、環状ジアミノカルベン、イミダゾール-2-イリデン、1, 2, 4-トリアゾール-3-イリデン、1, 3-チアゾール-2-イリデン、非環状ジアミノカルベン、非環状アミノオキシカルベン、非環状アミノチオカルベン、環状ジボリルカルベン、非環状ジボリルカルベン、ホスフィノシリルカルベン、ホスフィノホスフィノカルベン、スルフェニルトリフルオロメチルカルベン、スルフェニルペンタフルオロチオカルベン等の1価の基を挙げることができる(参考文献:Chem. Rev. 2000, 100, p39)。

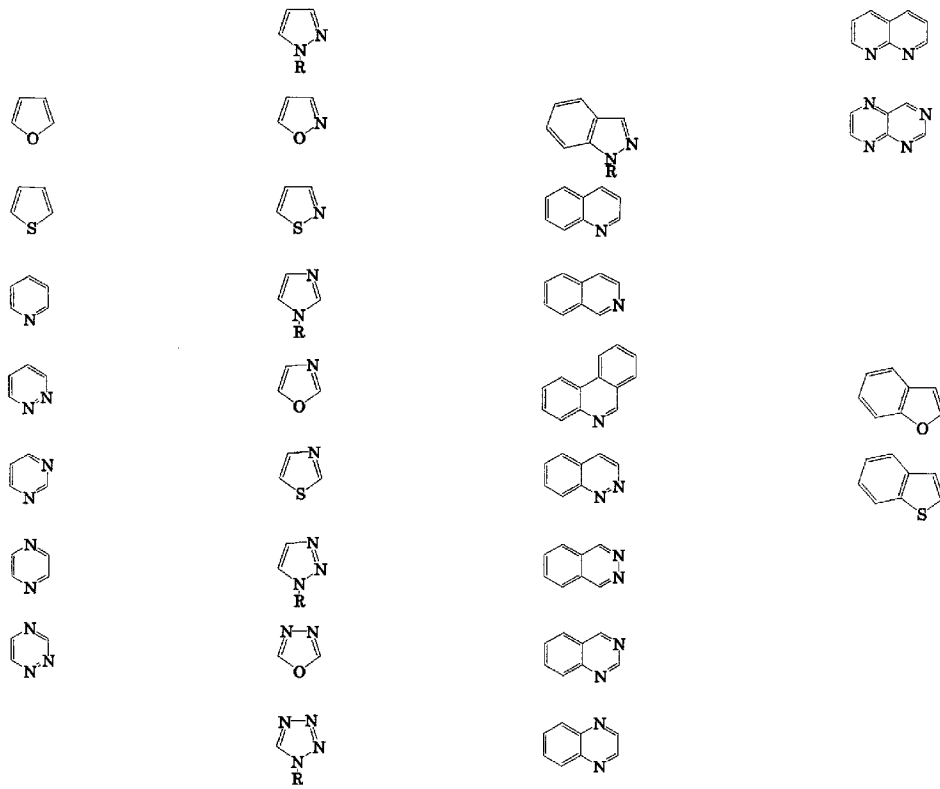
これらのうち、好ましくはイミダゾール-2-イリデン、1, 2, 4-トリアゾール-3-イリデン及び環状ジアミノカルベンであり、より好ましくはイミダゾール-2-イリデン及び1, 2, 4-トリアゾール-3-イリデンであり、その具体的な構造を以下に列挙する。なお、下記例において、A環は隣接する結合基、すなわちL¹¹、L¹³又はL¹⁵を示す。R^jは、前記R¹及びR²と同様である。

[0073] [化21]



[0074] さらに、L¹²、L¹⁴及びL¹⁶がカルベン炭素を持たない基である場合の好ましい具体例、すなわち複素環基の例を以下に列挙する。下記例において、L¹¹、L¹³又はL¹⁵と結合する炭素は、イリジウムに配位するヘテロ原子の隣であると好ましく、下記例は置換されていてもよい。

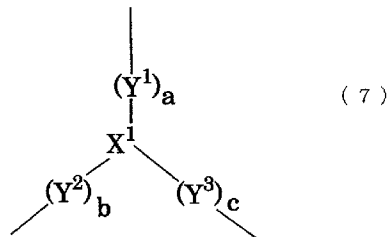
[化22]



[0075] 一般式(6)における下記架橋部位(7)を構成する原子量の合計が200以下であると好ましく、100以下であるとさらに好ましい。

架橋部位(7)の原子量総和を小さくすると、一般式(6)におけるA、B、C部位が同じであれば、その原子量総和を小さくしたただけ錯体の分子量が小さくなるため、有機EL素子を作製する際の昇華プロセスにおいて純度を高く保つことが有利になる。したがって、架橋部位の原子量総和を小さくするにより、錯体の純度、あるいは有機EL素子の純度を高めるという効果を有する。

[0076] [化23]



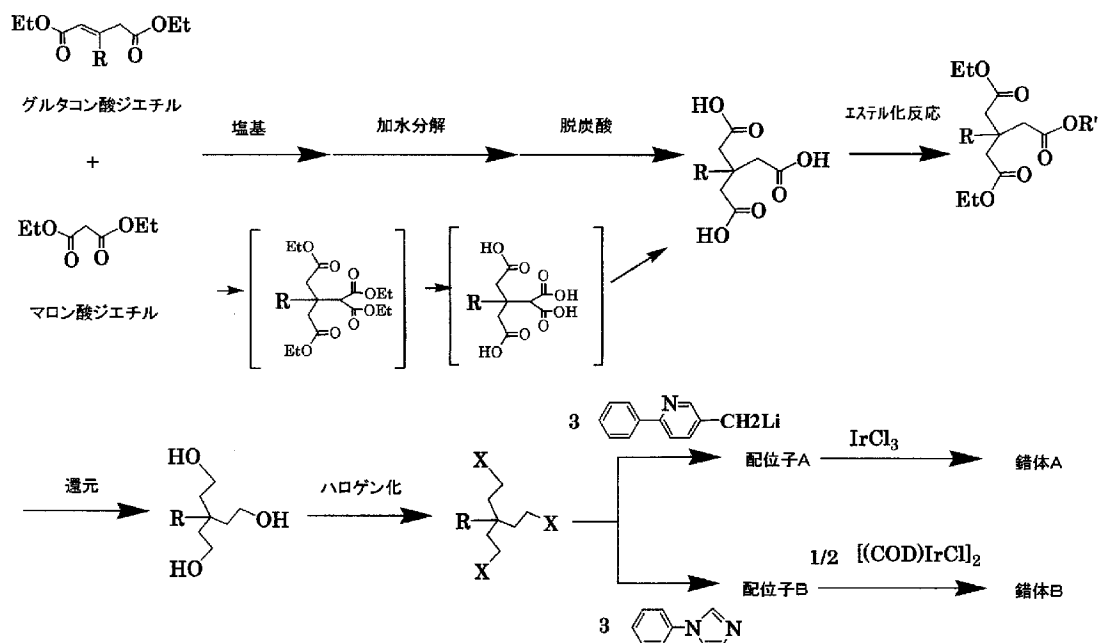
[0077] 前記一般式(6)における各基の置換基としては、置換もしくは無置換の核炭素数5～50のアリール基、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基、置換もしくは

無置換の炭素数1~50のアルコキシ基、置換もしくは無置換の核炭素数6~50のアラルキル基、置換もしくは無置換の核炭素数5~50のアリアルオキシ基、置換もしくは無置換の核炭素数5~50のアリアルチオ基、置換もしくは無置換の炭素数1~50のアルコキシカルボニル基、アミノ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシル基、カルボキシル基等が挙げられる。

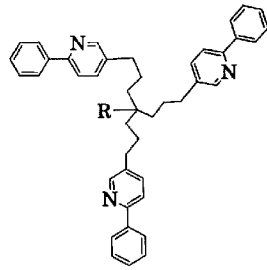
これらの中でも、炭素数1~10のアルキル基、炭素数5~7のシクロアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基が好ましく、炭素数1~6のアルキル基、炭素数5~7のシクロアルキル基がより好ましく、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基が特に好ましい。

[0078] 次に、本発明の一般式(6)の遷移金属錯体化合物の製造方法について、以下、その一例の製造工程を示す。(参考文献: JACS 96,16,1974,p5189)

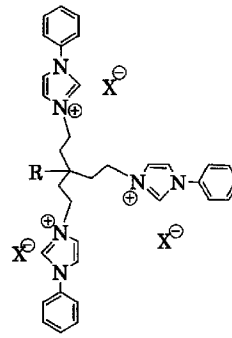
[化24]



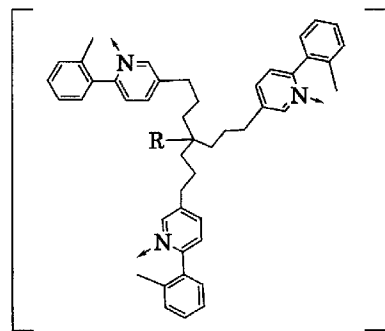
[0079] [化25]



配位子A

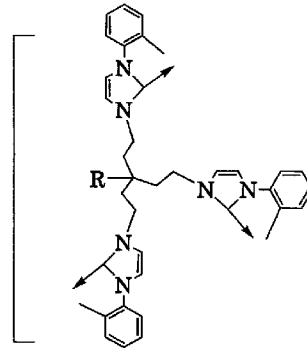


配位子B



錯体A

Ir



錯体B

Ir

[0080] 本発明の有機EL素子は、陽極と陰極からなる一対の電極間に少なくとも発光層を有する一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機EL素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、前記遷移金属錯体化合物を含有するものであり、一般式(1)、(2)、(4)、(5)及び(6)のいずれかで表される遷移金属錯体化合物を含有すると好ましく、一般式(4)又は(5)の遷移金属錯体化合物を含有するとさらに好ましい。

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

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

本発明の有機EL素子において、有機薄膜層が単層型のものとしては有機薄膜層が発光層であり、この発光層が本発明の遷移金属錯体化合物を含有する。また、多

層型の有機EL素子としては、(陽極／正孔注入層(正孔輸送層)／発光層／陰極)、(陽極／発光層／電子注入層(電子輸送層)／陰極)、(陽極／正孔注入層(正孔輸送層)／発光層／電子注入層(電子輸送層)／陰極)等が挙げられる。

[0081] 本発明の有機EL素子の陽極は、正孔注入層、正孔輸送層、発光層などに正孔を供給するものであり、4.5eV以上の仕事関数を有することが効果的である。陽極の材料としては、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、又はこれらの混合物などを用いることができる。陽極の材料の具体例としては、酸化スズ、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化インジウムスズ(ITO)等の導電性金属酸化物、又は金、銀、クロム、ニッケル等の金属、さらにこれらの導電性金属酸化物と金属との混合物又は積層物、ヨウ化銅、硫化銅などの無機導電性物質、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロールなどの有機導電性材料、及びこれらとITOとの積層物などが挙げられ、好ましくは、導電性金属酸化物であり、特に、生産性、高導電性、透明性等の点からITOを用いることが好ましい。陽極の膜厚は材料により適宜選択可能である。

[0082] 本発明の有機EL素子の陰極は、電子注入層、電子輸送層、発光層などに電子を供給するものであり、陰極の材料としては、金属、合金、金属ハロゲン化物、金属酸化物、電気伝導性化合物、又はこれらの混合物を用いることができる。陰極の材料の具体例としては、アルカリ金属(例えば、Li、Na、K等)及びそのフッ化物もしくは酸化物、アルカリ土類金属(例えば、Mg、Ca等)及びそのフッ化物もしくは酸化物、金、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウム－カリウム合金もしくはナトリウム－カリウム混合金属、リチウム－アルミニウム合金もしくはリチウム－アルミニウム混合金属、マグネシウム－銀合金もしくはマグネシウム－銀混合金属、又はインジウム、イッテルビウム等の希土類金属等が挙げられる。これらの中でも好ましくは、アルミニウム、リチウム－アルミニウム合金もしくはリチウム－アルミニウム混合金属、マグネシウム－銀合金もしくはマグネシウム－銀混合金属等である。陰極は、前記材料の単層構造であってもよいし、前記材料を含む層の積層構造であってもよい。例えば、アルミニウム／フッ化リチウム、アルミニウム／酸化リチウムの積層構造が好ましい。陰極の膜厚は材料により適宜選択可能である。

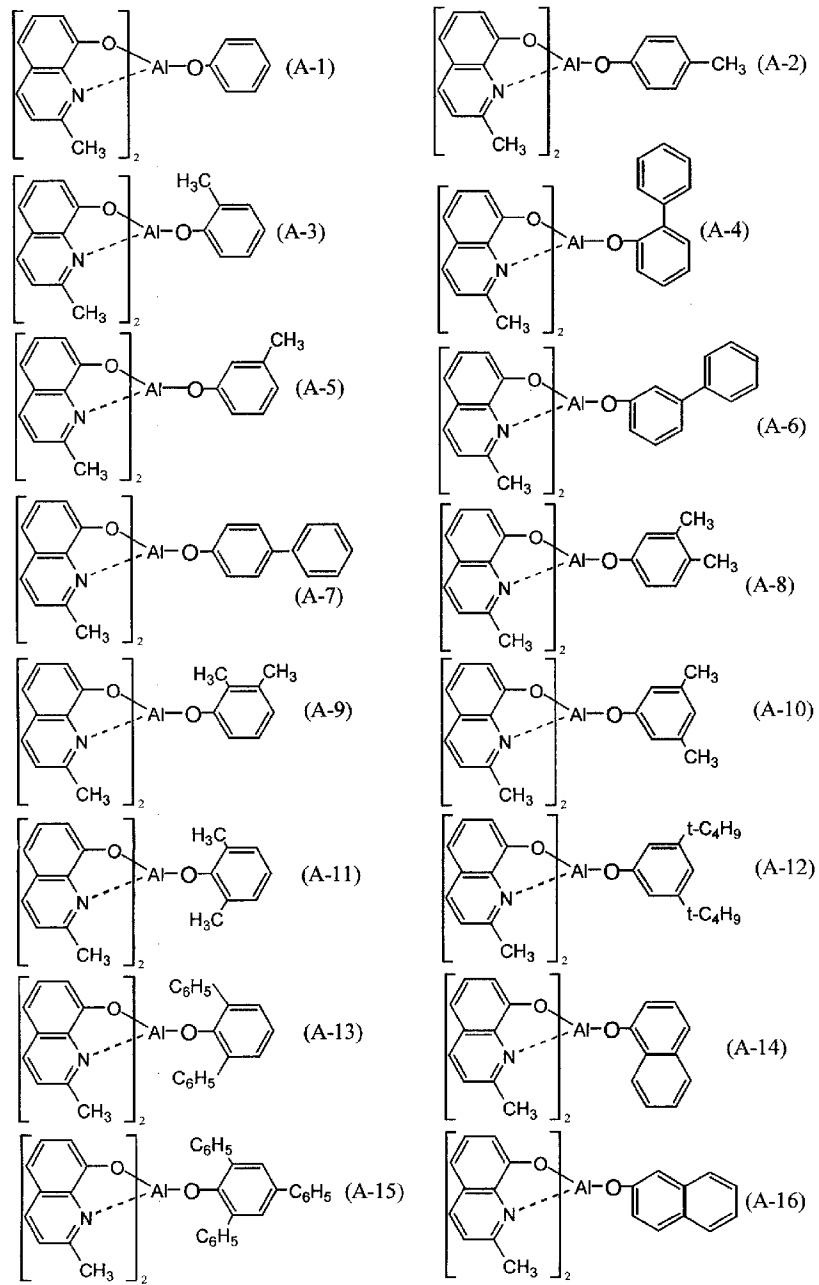
[0083] 本発明の有機EL素子の正孔注入層及び正孔輸送層は、陽極から正孔を注入する

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

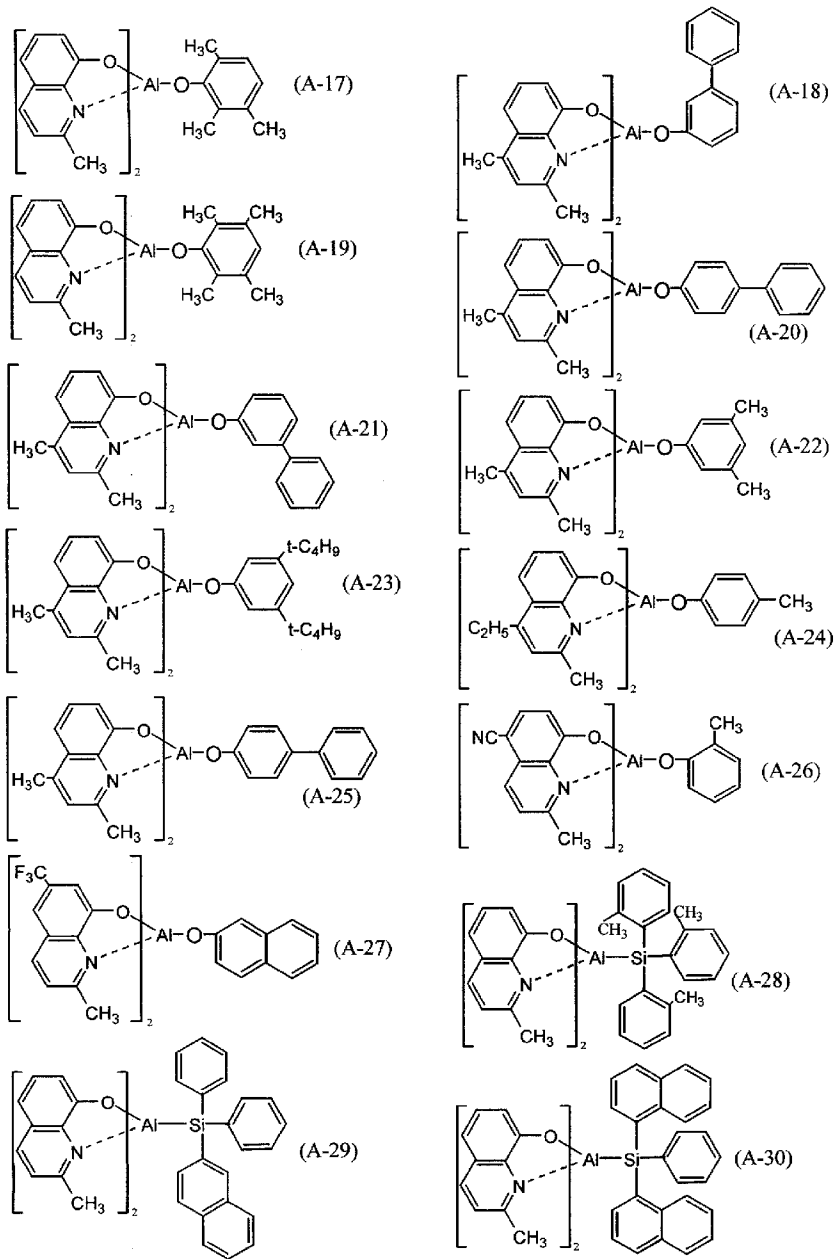
[0084] 本発明の有機EL素子の電子注入層及び電子輸送層は、陰極から電子を注入する機能、電子を輸送する機能、陽極から注入された正孔を障壁する機能のいずれかを有しているものであればよい。その具体例としては、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、フルオレノン誘導体、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノ誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレン、ペリレン等の芳香環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン誘導体、8-キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体、有機シラン誘導体、本発明の遷移金属錯体化合物等が挙げられる。また、前記電子注入層及び前記電子輸送層は、前記材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成又は異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。

[0085] さらに、電子注入層及び電子輸送層に用いる電子輸送材料としては、下記化合物が挙げられる。

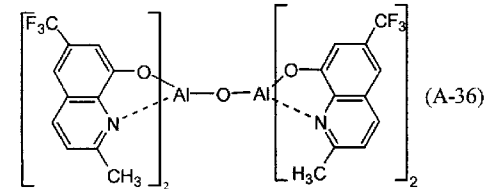
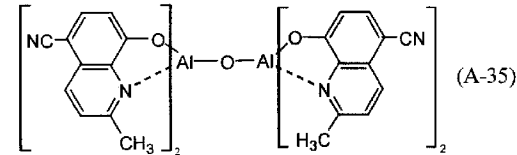
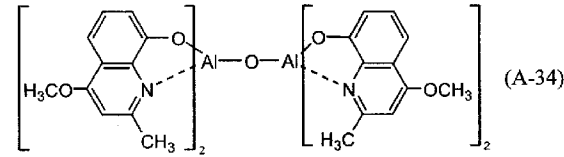
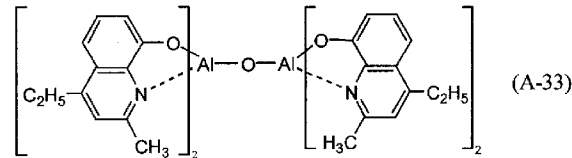
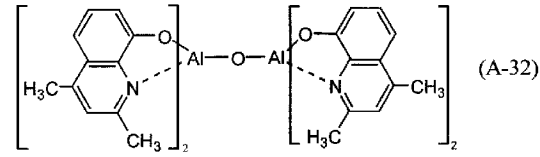
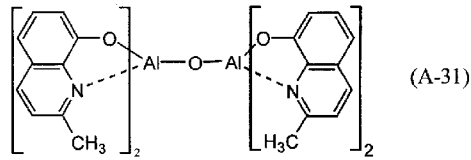
[化26]



[0086] [化27]



[0087] [化28]

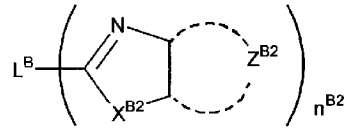


[0088] 本発明の有機EL素子において、該電子注入層及び／又は電子輸送層が π 電子欠乏性含窒素ヘテロ環誘導体を主成分として含有すると好ましい。

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

[0089] [化29]

(B-1)

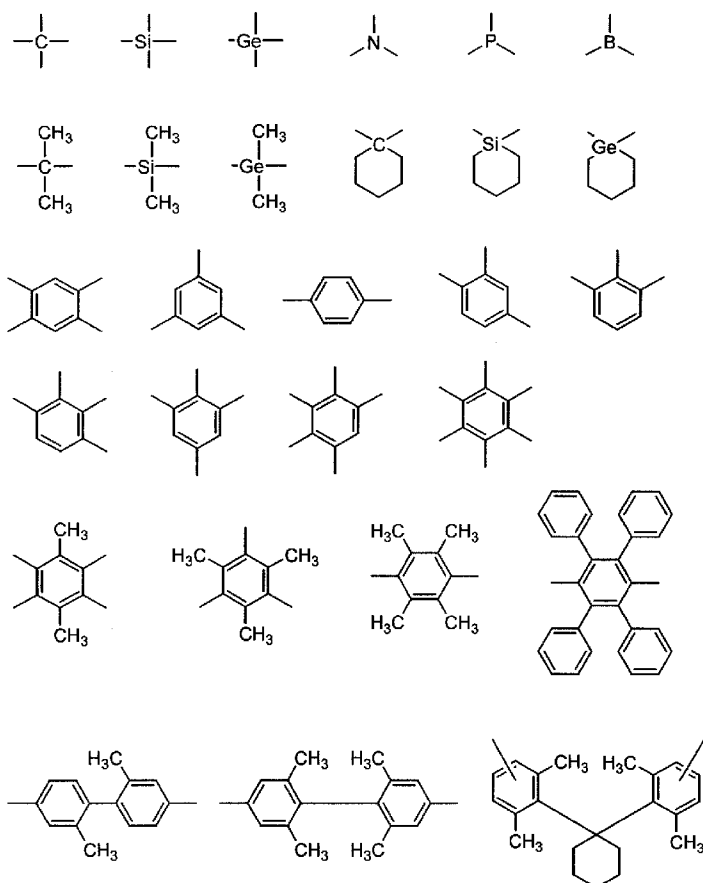


一般式(B-1)において、 L^B は二価以上の連結基を表し、好ましくは、炭素、ケイ素、窒素、ホウ素、酸素、硫黄、金属、金属イオンなどで形成される連結基であり、より好ましくは炭素原子、窒素原子、ケイ素原子、ホウ素原子、酸素原子、硫黄原子、芳香族炭化水素環、芳香族ヘテロ環であり、さらに好ましくは炭素原子、ケイ素原子、芳香族炭化水素環、芳香族ヘテロ環である。

[0090] L^B は置換基を有していてもよく、置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、芳香族炭化水素基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリールオキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族複素環基であり、より好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族複素環基であり、さらに好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、芳香族複素環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、芳香族複素環基である。

[0091] L^B で表される連結基の具体例としては以下のものが挙げられる。

[化30]



[0092] 一般式(B-I)において、 X^{B2} は、 $-O-$ 、 $-S-$ 又は $=N-R^{B2}$ を表す。 R^{B2} は、水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基、ヘテロ環基を表す。

R^{B2} の表す脂肪族炭化水素基は、直鎖、分岐又は環状のアルキル基(好ましくは、炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12、特に好ましくは炭素数1~8のアルキル基であり、例えば、メチル、エチル、iso-プロピル、tert-ブチル、n-オクチル、n-デシル、n-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシル等が挙げられる。)、アルケニル基(好ましくは、炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~12、特に好ましくは炭素数2~8のアルケニル基であり、例えばビニル基、アリル基、2-ブテニル基、3-ペンテニル基等が挙げられる。)、アルキニル基(好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~12、特に好ましくは炭素数2~8のアルキニル基であり、例えばプロパルギル基、3-ペンチニル基等が挙げられる。)であり、より好ましくはアルキル基である。

R^{B2} の表すアリール基は、単環又は縮環のアリール基であり、好ましくは炭素数6~

30、より好ましくは炭素数6~20、さらに好ましくは炭素数6~12のアリール基であり、例えば、フェニル、2-メチルフェニル、3-メチルフェニル、4-メチルフェニル、2-メトキシフェニル、3-トリフルオロメチルフェニル、ペンタフルオロフェニル、1-ナフチル、2-ナフチル等が挙げられる。

[0093] R^{B2} の表すヘテロ環基は、単環又は縮環のヘテロ環基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12、更に好ましくは炭素数2~10のヘテロ環基)であり、好ましくは窒素原子、酸素原子、硫黄原子、セレン原子の少なくとも一つを含む芳香族ヘテロ環基であり、例えば、ピロリジン、ピペリジン、ピペラジン、モルフォリン、チオフェン、セレノフェン、フラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリダジン、ピリミジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、プリン、チアゾリン、チアゾール、チアジアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イノキノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、テトラゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデン、カルバゾール、アゼピン等が挙げられ、好ましくは、フラン、チオフェン、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、キノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリンであり、より好ましくはフラン、チオフェン、ピリジン、キノリンであり、さらに好ましくはキノリンである。

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

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

[0094] X^{B2} として好ましくは、 $-O-$ 、 $=N-R^{B2}$ であり、より好ましくは $=N-R^{B2}$ であり、特に好ましくは $=N-Ar^{B2}$ (Ar^{B2} は、アリール基(好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、更に好ましくは炭素数6~12のアリール基)、芳香族ヘテロ環基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12、更に好ましくは炭素数2~10の芳香族ヘテロ環基)であり、好ましくはアリール基である。)である。

[0095] Z^{B2} は芳香族環を形成するに必要な原子群を表す。 Z^{B2} で形成される芳香族環は芳

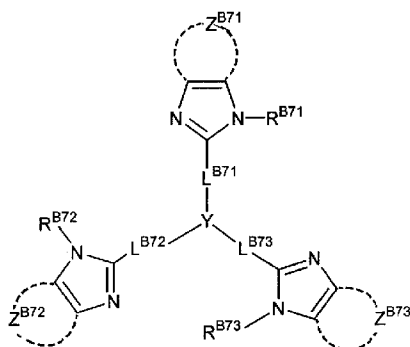
香族炭化水素環、芳香族ヘテロ環のいずれでもよく、具体例としては、例えばベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、トリアジン環、ピロール環、フラン環、チオフェン環、セレンフェン環、テルロフェン環、イミダゾール環、チアゾール環、セリナゾール環、テルラゾール環、チアジアゾール環、オキサジアゾール環、ピラゾール環などが挙げられ、好ましくはベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環であり、より好ましくはベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環であり、さらに好ましくはベンゼン環、ピリジン環であり、特に好ましくはピリジン環である。 Z^{B^2} で形成される芳香族環はさらに他の環と縮合環を形成してもよく、また置換基を有していてもよい。置換基として、好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリールオキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、より好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、芳香族ヘテロ環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、芳香族ヘテロ環基である。

n^{B^2} は、1~4の整数であり、2~3であると好ましい。

[0096] 前記一般式(B-I)で表される化合物のうち、さらに好ましくは下記一般式(B-II)で表される化合物である。

[化31]

(B-II)



[0097] 一般式(B-II)中、 R^{B71} 、 R^{B72} 及び R^{B73} は、それぞれ一般式(B-I)における R^{B72} と同義であり、また好ましい範囲も同様である。

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

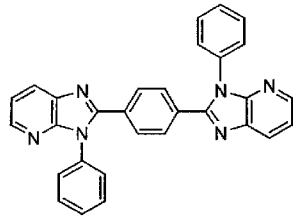
L^{B71} 、 L^{B72} 及び L^{B73} は、それぞれ連結基を表し、一般式(B-I)における L^B の例を二価としたものが挙げられ、好ましくは、単結合、二価の芳香族炭化水素環基、二価の芳香族ヘテロ環基、およびこれらの組み合わせからなる連結基であり、より好ましくは単結合である。 L^{B71} 、 L^{B72} 及び L^{B73} は置換基を有していてもよく、置換基としては一般式(B-I)の L^B と同様のものか挙げられる。

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

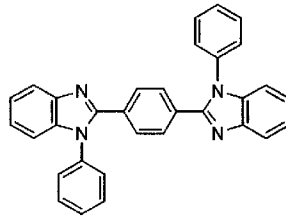
[0098] 一般式(B-I)又は(B-II)で表される含窒素5員環誘導体の具体例を以下に示すが、これら例示化合物に限定されるものではない。

[化32]

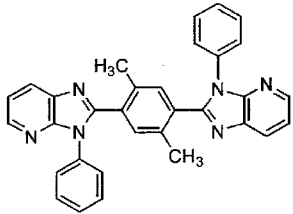
(B-1)



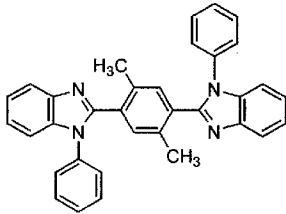
(B-5)



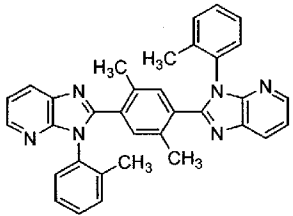
(B-2)



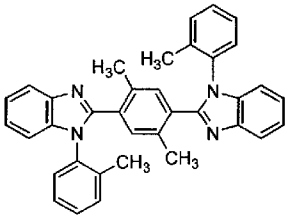
(B-6)



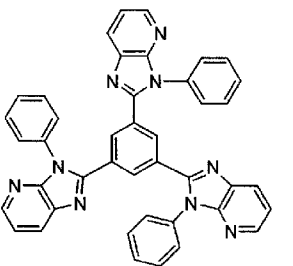
(B-3)



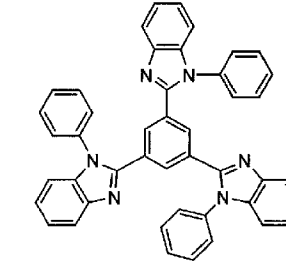
(B-7)



(B-4)

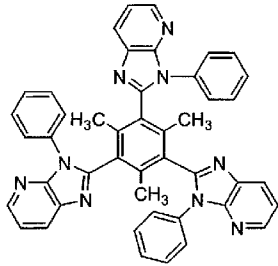


(B-8)

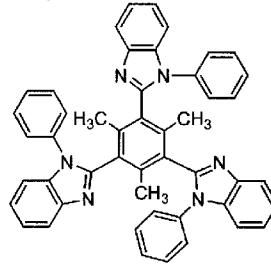


[0099] [化33]

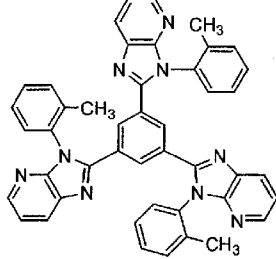
(B-9)



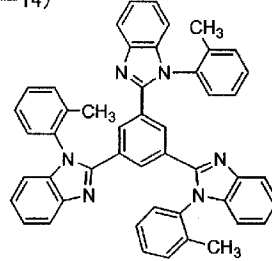
(B-13)



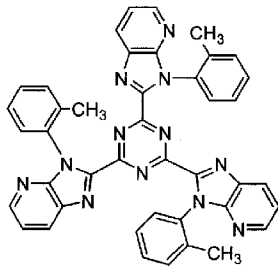
(B-10)



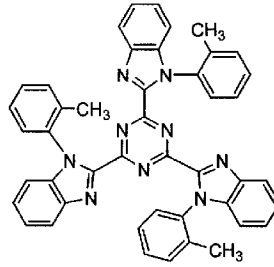
(B-14)



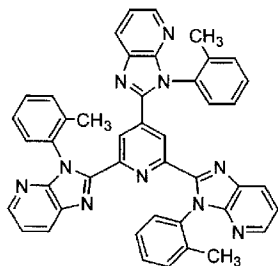
(B-11)



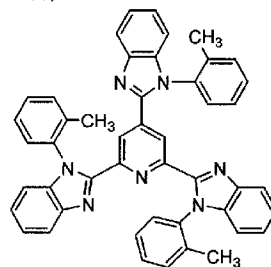
(B-15)



(B-12)



(B-16)



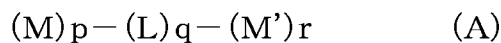
[0100] (Cz-)nA

(C-I)

Cz(-A)m

(C-II)

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



(M及びM'は、それぞれ独立に、環を形成する炭素数が2~40の窒素含有ヘテロ芳香族環であり、環に置換基を有していても有していなくても良い。またMおよびM'

は、同一でも異なっても良い。Lは単結合、炭素数6～30のアリーレン基、炭素数5～30のシクロアルキレン基又は炭素数2～30のヘテロ芳香族環であり、環に結合する置換基を有していても有していなくても良い。pは0～2、qは1～2、rは0～2の整数である。ただし、p+rは1以上である。)]

[0101] 前記一般式(C-I)及び(C-II)の結合様式はパラメータn, mの数により、具体的には以下の表中記載のように表される。

[表1]

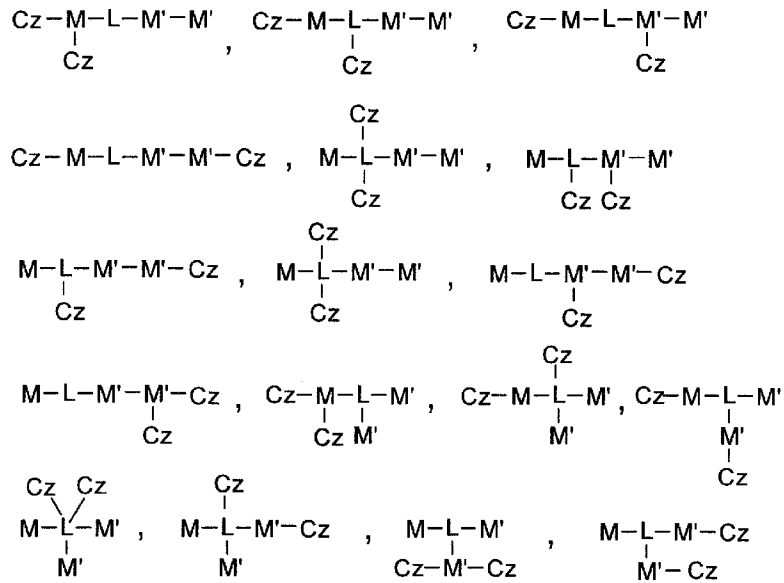
n = m = 1	n = 2	n = 3	m = 2	m = 3
Cz—A	Cz—A—Cz	$\begin{array}{c} \text{Cz—A—Cz} \\ \\ \text{Cz} \end{array}$	A—Cz—A	$\begin{array}{c} \text{A—Cz—A} \\ \\ \text{A} \end{array}$

[0102] また、一般式(A)で表される基の結合様式は、パラメータp, q, rの数により、具体的には以下の表中(1)から(16)に記載された形である。

[表2]

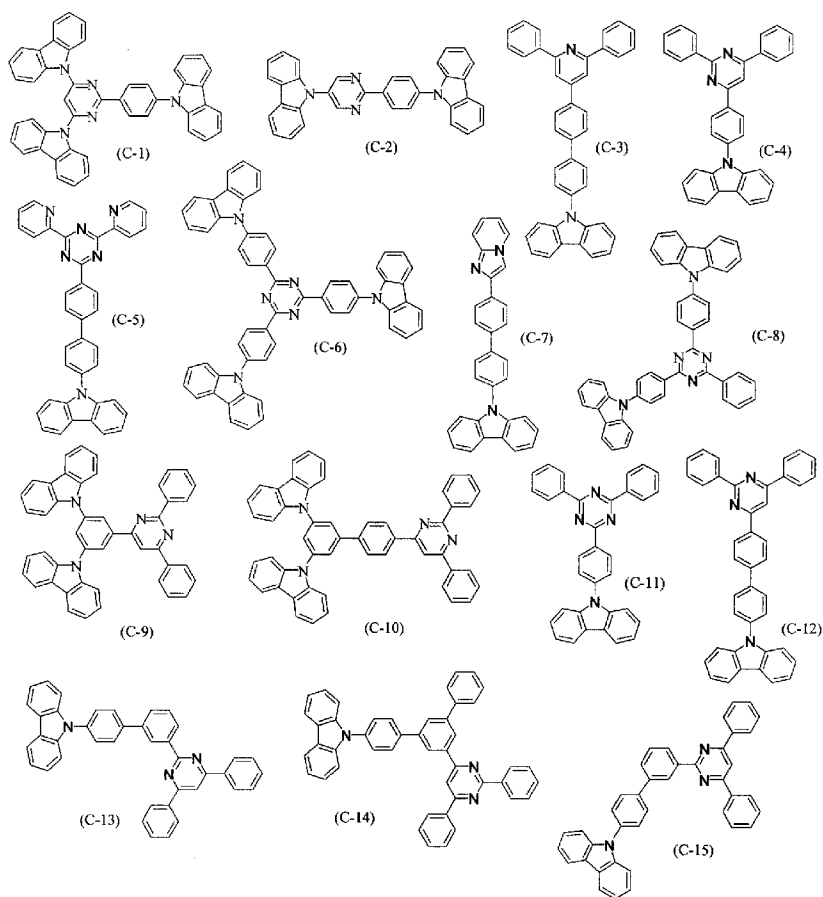
M', M-L-M'-Czの3つの結合様式として表される。また同様に、例えば一般式(C-I)においてn=2であるCz-A-Czでは、p=q=1, r=2(表中(7))の場合AはM-L-M'-M'もしくはM-L(-M')-M'となり、下記の結合様式として表される。

[0104] [化34]



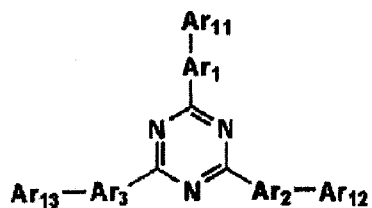
[0105] 前記一般式(C-I)及び(C-II)で表される具体例としては下記のような構造が挙げられるが、この例に限定されるものではない。

[化35]



[0106] [化36]

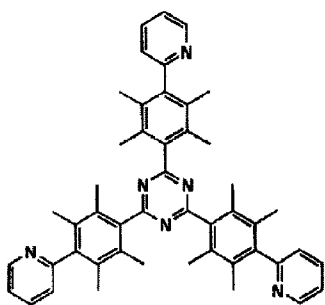
(C-III)



(式中、Ar₁₁ ~ Ar₁₃ は、それぞれ一般式(B-I)のR^{B2}と同様の基を示し、具体例も同様であり、Ar₁ ~ Ar₃ は、一般式(B-I)のR^{B2}と同様の基を2価にしたものを示し、具体例も同様である。)

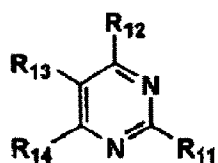
一般式(C-III)の具体例を以下に示すが、これに限定されない。

[化37]



[0107] [化38]

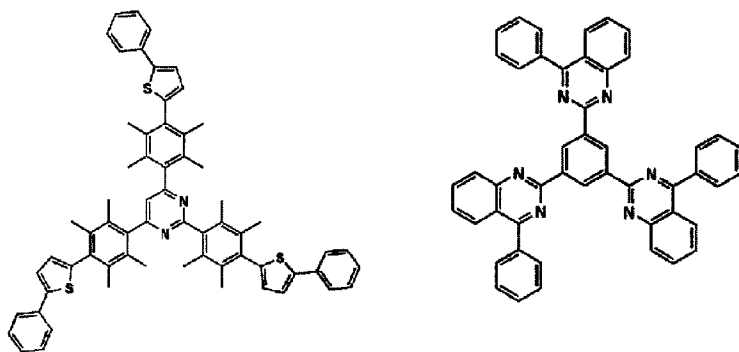
(C-IV)



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

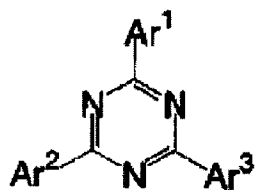
一般式(C-IV)の具体例を以下に示すが、これらに限定されない。

[化39]



[0108] [化40]

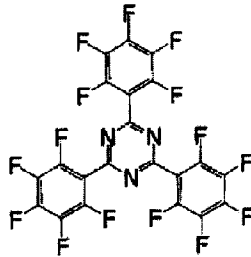
(C-V)



(式中、Ar¹~Ar³は、それぞれ一般式(B-I)のR^{B2}と同様の基を示し、具体例も同様である。)

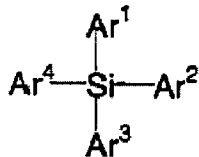
一般式(C-V)の具体例を以下に示すが、これに限定されない。

[化41]



[0109] [化42]

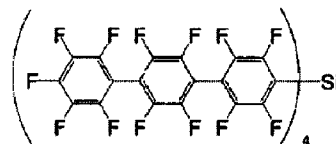
(C-VI)



(式中、Ar¹~Ar⁴は、それぞれ一般式(B-I)のR^{B2}と同様の基を示し、具体例も同様である。)

一般式(C-VI)の具体例を以下に示すが、これに限定されない。

[化43]



[0110] また、本発明の有機EL素子において、電子注入・輸送層を構成する物質として、絶縁体又は半導体の無機化合物を使用することが好ましい。電子注入・輸送層が絶縁体や半導体で構成されていれば、電流のリークを有効に防止して、電子注入性を向上させることができる。このような絶縁体としては、アルカリ金属カルコゲナイド、アルカリ土類金属カルコゲナイド、アルカリ金属のハロゲン化物及びアルカリ土類金属のハロゲン化物からなる群から選択される少なくとも一つの金属化合物を使用するのが好ましい。電子注入・輸送層がこれらのアルカリ金属カルコゲナイド等で構成され

ていれば、電子注入性をさらに向上させることができる点で好ましい。

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

[0111] また、電子注入・輸送層を構成する半導体としては、Ba、Ca、Sr、Yb、Al、Ga、In、Li、Na、Cd、Mg、Si、Ta、Sb及びZnの少なくとも一つの元素を含む酸化物、窒化物または酸化窒化物等の一種単独又は二種以上の組み合わせが挙げられる。また、電子輸送層を構成する無機化合物が、微結晶又は非晶質の絶縁性薄膜であることが好ましい。電子輸送層がこれらの絶縁性薄膜で構成されていれば、より均質な薄膜が形成されるために、ダークスポット等の画素欠陥を減少させることができる。なお、このような無機化合物としては、上述したアルカリ金属カルコゲナイド、アルカリ土類金属カルコゲナイド、アルカリ金属のハロゲン化物およびアルカリ土類金属のハロゲン化物等が挙げられる。

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

[0112] また、本発明においては、陰極と有機薄膜層との界面領域に還元性ドーパントが添加されていると好ましく、界面領域に含有される有機層の少なくとも一部を還元しアニオン化する。好ましい還元性ドーパントとしては、アルカリ金属、アルカリ土類金属の酸化物、アルカリ土類金属、希土類金属、アルカリ金属の酸化物、アルカリ金属のハロゲン化物、アルカリ土類金属の酸化物、アルカリ土類金属のハロゲン化物、希土類金属の酸化物または希土類金属のハロゲン化物、アルカリ金属錯体、アルカリ土類金属錯体、希土類金属錯体の群から選ばれる少なくとも一つの化合物である。より具体的に、好ましい還元性ドーパントとしては、Na(仕事関数:2.36eV)、K(仕事関

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

[0113] 前記アルカリ土類金属酸化物としては、例えば、 $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{O}$ ($0 < x < 1$) や、 $\text{Ba}_x\text{Ca}_{1-x}\text{O}$ ($0 < x < 1$) を好ましいものとして挙げる事ができる。アルカリ酸化物又はアルカリフッ化物としては、 LiF 、 Li_2O 、 NaF 等が挙げられる。アルカリ金属錯体、アルカリ土類金属錯体、希土類金属錯体としては金属イオンとしてアルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオン、希土類金属イオンの少なくとも一つ含有するものであれば特に限定はない。また配位子としては、例えば、キノリノール、ベンゾキノリノール、アクリジノール、フェナントリジノール、ヒドロキシフェニルオキサゾール、ヒドロキシフェニルチアゾール、ヒドロキシジアリールオキサジアゾール、ヒドロキシジアリールチアジアゾール、ヒドロキシフェニルピリジン、ヒドロキシフェニルベンゾイミダゾール、ヒドロキシベンゾトリアゾール、ヒドロキシフルボラン、ビピリジル、フェナントロリン、フタロシアニン、ポルフィリン、シクロペンタジエン、 β -ジケトン類、アゾメチン類、およびそれらの誘導体等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

[0114] また、還元性ドーパントの好ましい形態としては、層状または島状に形成する。層状に用いる際の好ましい膜厚としては0.05~8nmである。

還元性ドーパントを含む電子注入・輸送層の形成手法としては、抵抗加熱蒸着法により還元性ドーパントを蒸着しながら、界面領域を形成する発光材料または電子注入材料である有機物を同時に蒸着させ、有機物中に還元性ドーパントを分散する方法が好ましい。分散濃度としてはモル比として100:1~1:100、好ましくは5:1~1:5で

ある。還元性ドーパントを層状に形成する際は、界面の有機層である発光材料または電子注入材料を層状に形成した後に、還元性ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは膜厚0.5nm～15nmで形成する。還元性ドーパントを島状に形成する際は、界面の有機層である発光材料又は電子注入材料を形成した後に、還元性ドーパントを単独で抵抗加熱蒸着法により蒸着し、好ましくは膜厚0.05～1nmで形成する。

[0115] 本発明の有機EL素子の発光層は、電界印加時に陽極又は正孔注入層より正孔を注入することができ、陰極又は電子注入層より電子を注入することができる機能、注入した電荷(電子と正孔)を電界の力で移動させる機能、電子と正孔の再結合の場を提供し、これを発光につなげる機能を有するものである。本発明の有機EL素子の発光層は、少なくとも本発明の遷移金属錯体化合物を含有すると好ましく、この遷移金属錯体化合物をゲスト材料とするホスト材料を含有させてもよい。前記ホスト材料としては、例えば、カルバゾール骨格を有するもの、ジアリールアミン骨格を有するもの、ピリジン骨格を有するもの、ピラジン骨格を有するもの、トリアジン骨格を有するもの及びアリアルシラン骨格を有するもの等が挙げられる。前記ホスト材料のT1(最低三重項励起状態のエネルギーレベル)は、ゲスト材料のT1レベルより大きいことが好ましい。前記ホスト材料は低分子化合物であっても、高分子化合物であってもよい。また、前記ホスト材料と前記遷移金属錯体化合物等の発光材料とを共蒸着等することによって、前記発光材料が前記ホスト材料にドーパされた発光層を形成することができる。

[0116] 本発明の有機EL素子において、前記各層の形成方法としては、特に限定されるものではないが、真空蒸着法、LB法、抵抗加熱蒸着法、電子ビーム法、スパッタリング法、分子積層法、コーティング法(スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など)、インクジェット法、印刷法などの種々の方法を利用することができ、本発明においては塗布法であるコーティング法が好ましい。

また、本発明の遷移金属錯体化合物を含有する有機薄膜層は、真空蒸着法、分子線蒸着法(MBE法)あるいは溶媒に解かした溶液のディッピング法、スピンコーティング法、キャスト法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法による公知の方法

で形成することができる。

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

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

実施例

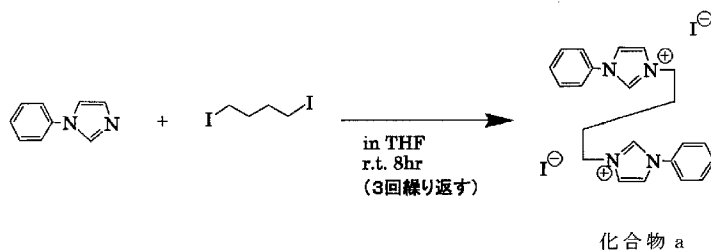
[0117] 次に、実施例を用いて本発明をさらに詳しく説明する。

実施例1(遷移金属錯体化合物1の合成)

(i) 架橋配位子前駆体(化合物a)の合成

以下の反応工程にて、架橋配位子前駆体(化合物a)を合成した。

[化44]



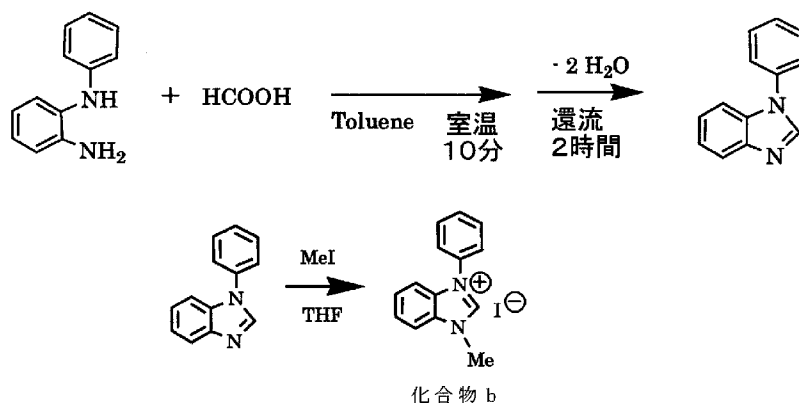
[0118] N-フェニルイミダゾール5.00g(分子量144.18、34.7ミリモル)及び1,4-ジオードブタン5.05g(分子量309.92、16.3ミリモル)にテトラヒドロフラン(THF)100

mlを加え、室温にて8時間攪拌した。生成した白色固体(化合物a)をろ別し、ろ液をさらに8時間攪拌させ(この操作を2回繰り返す)、化合物aを合計5.50g(収率56%)得た。

[0119] (ii)配位子前駆体(化合物b)の合成

以下の反応工程にて、配位子前駆体(化合物b)を合成した。

[化45]



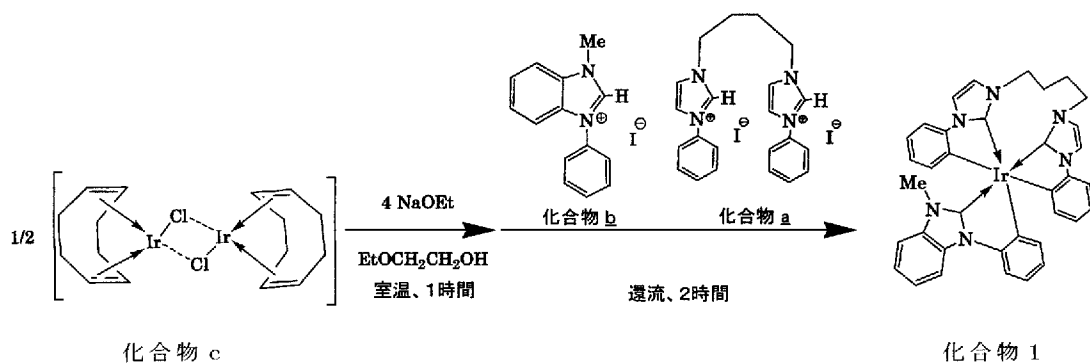
[0120] N-フェニル-1,2-フェニレンジアミン 9.21g(分子量184.24、50ミリモル)にトルエン100mlを加え、次にギ酸4.60g(分子量46.03、100ミリモル)を加える。室温にて攪拌させることで、直ちに固体が生成してくる。その後、還流下で2時間反応させる。反応終了後、減圧下でトルエンを留去し、目的生成物(N-フェニルベンゾイミダゾール)をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:塩化メチレン95%/メタノール5%、Rf値約0.2)にて精製した。回収量は5.60g(分子量194.24、収率58%)であった。

得られたN-フェニルベンゾイミダゾール1.60g(分子量194.24、8.24ミリモル)に溶媒テトラヒドロフラン50mlを加え、次に沃化メチル2.34g(分子量141.94、16.5ミリモル)を加え、室温にて8時間攪拌した。生成した白色固体(化合物b)をろ別し、ろ液をさらに8時間攪拌させ(この操作を2回繰り返す)、化合物bを合計2.22g(分子量336.18、収率80%)得た。

[0121] (iii)遷移金属錯体化合物1の合成

以下の反応工程にて、遷移金属錯体化合物1を合成した。

[化46]



[0122] 反応はすべてアルゴン気流下で行なった。化合物c 0.672g(分子量671.70、1.00ミリモル)に溶媒2-エトキシエタノールを150ml加え、次にナトリウムエトキシド0.626g(分子量68.05、9.20ミリモル)を加え、室温にて1時間攪拌させた。これに化合物bを0.807g(分子量336.18、2.40ミリモル)、次に化合物aを1.44g(分子量598.26、2.40ミリモル)加え、還流下2時間反応させた。得られた反応液から溶媒2-エトキシエタノールを減圧下加熱留去し、冷却後、これに塩化メチレン100mlを加え、固体成分をろ別した。次に、ろ液を減圧下留去し、塩化メチレン5mlに溶解させ、続いてヘキサン100mlを加えて固体を析出させた。この固体成分を、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:塩化メチレン、Rf値約0.8)にて精製した。その結果、化合物1を0.34g(分子量739.89、収率23%)得た。得られた遷移金属錯体化合物1は、2種の異性体の混合物であった。

[0123] 得られた化合物について、下記(1)~(4)を測定した。

<各種測定結果>

(1)FD-MS(フィールドディソープションマスペクトル)測定:最大ピーク値は740で計算値と一致した(計算値 M^+ (分子イオンピーク)=740)。

FD-MS測定(電界脱離イオン化質量分析法)の測定条件は以下のようにした。
装置:HX110(日本電子社製)

条件:加速電圧 8kV

キャンレンジ $m/z=50\sim 1500$

エミッタ種 カーボン

エミッタ電流 $0\text{mA}\rightarrow 2\text{mA}/\text{分}\rightarrow 40\text{mA}$ (10分保持)

(2) $^1\text{H-NMR}$ (500MHz)スペクトル測定:図1参照

装置:DRX500(日本電子社製)

測定溶媒:溶媒 CD_2Cl_2 (重水素化塩化メチレン)、基準5.32ppm

上記(1)及び(2)の結果から、化合物1の構造が同定された。

(3) ^{13}C -NMR(125MHz)スペクトル測定:第1表参照

装置:DRX500(日本電子社製)

測定溶媒:溶媒 CD_2Cl_2 (重水素化塩化メチレン)、基準54.0ppm

^{13}C -NMRでは、合計72種のピークが観測され(第1表参照)、これは、環境の異なる炭素を36種持つ化合物1が2種の異性体混合物で得られたことを示す。そのうち、ブチレン鎖架橋部位に由来する合計8本のピークが観測され、窒素の α 位の4種(52.63ppm、50.88ppm、48.56ppm、48.34ppm)と窒素の β 位の4種(30.46ppm、29.96ppm、27.01ppm、25.33ppm)に分類された。また、カルベン炭素については、合計6種観測され、イミダゾール-2-イリデン部位のカルベン炭素種(177.42ppm、175.77ppm、175.07ppm、173.22ppm)とベンゾイミダゾール-2-イリデン部位のカルベン炭素2種(190.38ppm、185.84ppm)に分類された。

[0124] [表4]

第1表

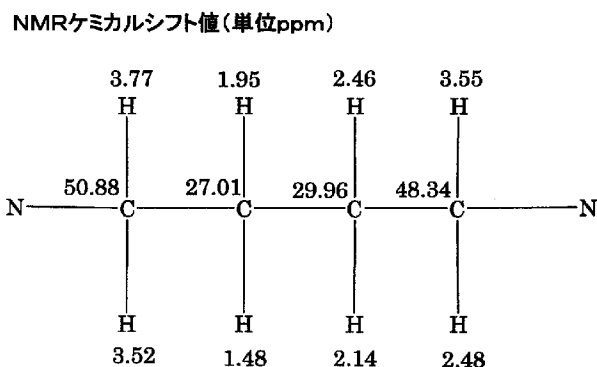
No	^{13}C -NMR(ppm)	No	^{13}C -NMR(ppm)	No	^{13}C -NMR(ppm)	No	^{13}C -NMR(ppm)
#1	25.33	#19	111.95	#37	122.87	#55	147.02
#2	27.01	#20	112.04	#38	122.96	#56	147.58
#3	29.96	#21	114.41	#39	124.02	#57	148.00
#4	30.46	#22	114.58	#40	124.20	#58	148.08
#5	33.18	#23	116.02	#41	125.02	#59	148.56
#6	33.48	#24	116.36	#42	125.29	#60	148.77
#7	48.34	#25	120.19	#43	125.50	#61	149.76
#8	48.56	#26	120.39	#44	125.52	#62	150.00
#9	50.88	#27	120.45	#45	133.00	#63	150.52
#10	52.63	#28	120.57	#46	133.47	#64	150.67
#11	109.91	#29	120.64	#47	136.76	#65	151.06
#12	110.05	#30	120.82	#48	137.49	#66	152.26
#13	110.77	#31	120.95	#49	137.59	#67	173.22
#14	110.84	#32	121.05	#50	137.79	#68	175.07
#15	111.01	#33	121.09	#51	138.51	#69	175.77
#16	111.20	#34	121.19	#52	138.54	#70	177.42
#17	111.40	#35	122.04	#53	140.18	#71	185.84
#18	111.45	#36	122.04	#54	140.22	#72	190.38

[0125] (4)二次元NMR(C-H COSY及びH-H COSY)測定:

ブチレン鎖部位の二次元NMR(C-H COSY及びH-H COSY)を測定し、2種の異性体のケミカルシフト値を以下のように決定した。

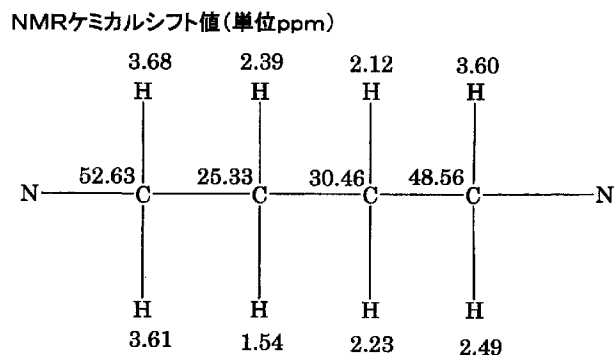
<異性体1>

[化47]



<異性体2>

[化48]



[0126] 上記(1)～(4)の結果から、化合物1の構造を確認できた。

(5)発光スペクトルの測定(室温):図4参照

装置:F-4500形分光蛍光光度計

測定溶媒:塩化メチレン

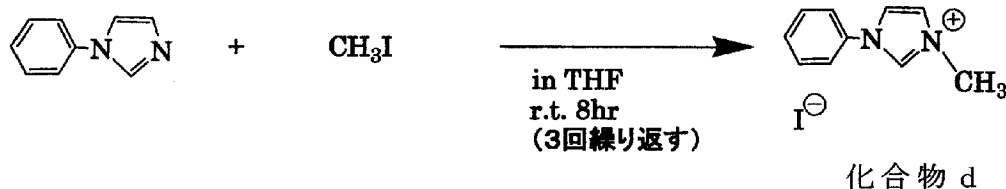
図4より、溶液状態で紫外領域から青色領域に発光することがわかった。

[0127] 比較例1(比較化合物1の合成)

(i)配位子(化合物d)の合成

以下の反応工程にて、配位子(化合物d)を合成した。

[化49]

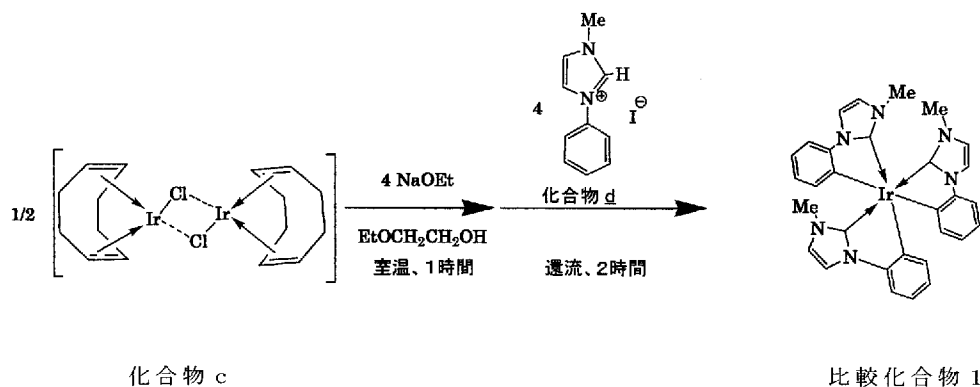


[0128] N-フェニルイミダゾール5.00g(分子量144.18、34.7ミリモル)及び沃化メチル9.85g(分子量141.94、69.4ミリモル)にテトラヒドロフラン100mlを加え、室温にて8時間攪拌した。生成した白色固体(化合物d)をろ別し、ろ液をさらに8時間攪拌させ(この操作を2回繰り返す)、化合物dを合計9.93g(分子量286.12、収率95%)得た。

[0129] (ii)比較化合物1の合成

以下の反応工程にて、比較化合物1を合成した。

[化50]



[0130] 反応はすべてアルゴン気流下で行なった。化合物c 0.672g(分子量671.70、1.00ミリモル)に溶媒2-エトキシエタノールを50ml加え、次にナトリウムエトキシド0.626g(分子量68.05、9.20ミリモル)を加え、室温にて1時間攪拌させた。これに化合物dを2.06g(分子量286.11、7.20ミリモル)を加え、還流下2時間反応させた。得られた反応液から溶媒2-エトキシエタノールを減圧下加熱留去し、冷却後、これに塩化メチレン100mlを加え、固体成分をろ別した。次に、ろ液を減圧下留去し、塩化メチレン5mlに溶解させ、続いてヘキサン100mlを加えて固体を析出させた。この固体成分を、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:塩化メチレン、Rf値約0.8)にて精製した。その結果、比較化合物1を0.850g(分子量663.79、収率64

%)得た。得られた比較化合物1は、2種の異性体 (facial体とmeridional体)の混合物であった。

facial体: 正八面体構造からなる遷移金属錯体化合物において、3つの等価な配位子が存在するとき、それぞれが互いに90度の角度をなし、同じ側にある構造

meridional体: 正八面体構造からなる遷移金属錯体化合物において、3つ等価な配位子のうち、2つが互いに180度の角度をなしている構造

[0131] 得られた化合物について、実施例1と同様の条件で下記(1)～(3)を測定した。

<各種測定結果>

(1)FD-MS測定: 最大ピーク値は644で計算値と一致した(計算値 M^+ (分子イオンピーク)=644)。

(2) $^1\text{H-NMR}$ (500MHz)スペクトル測定: 図2参照

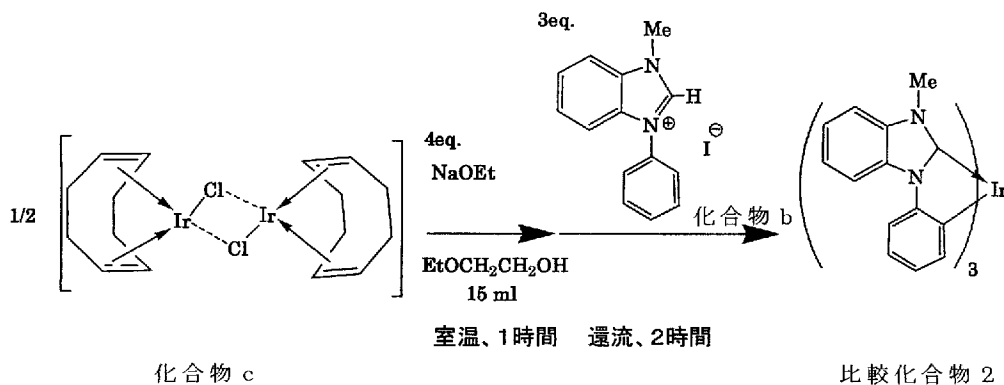
上記(1)及び(2)の結果から、比較化合物1の構造が同定された。

(3)発光スペクトルの測定(室温): 図4参照

[0132] 比較例2(比較化合物2の合成)

以下の反応工程にて、比較化合物2を合成した。

[化51]



[0133] 反応はすべてアルゴン気流下で行なった。化合物c 0.302g(分子量671.70、0.45ミリモル)に溶媒2-エトキシエタノールを50ml加え、次にナトリウムエトキド0.306g(分子量68.05、4.50ミリモル)を加え、室温にて1時間攪拌させた。これに化合物bを1.08g(分子量300.14、3.60ミリモル)を加え、還流下2時間反応させた。得られた反応液から固体成分をろ別し、その固体成分を2-エトキシエタノール、エ

タノール、ヘキサンにて充分洗浄し、目的生成物の比較化合物2を0.45g(分子量813.97、収率61%)得た。得られた比較化合物2は、facial体であった。

[0134] 得られた化合物について、実施例1と同様の条件で下記(1)～(3)を測定した。

<各種測定結果>

(1)FD-MS測定:最大ピーク値は814で計算値と一致した(計算値 M^+ (分子イオンピーク)=814)。

(2) ^1H-NMR (500MHz)スペクトル測定:図3参照

上記(1)及び(2)の結果から、比較化合物2の構造が同定された。

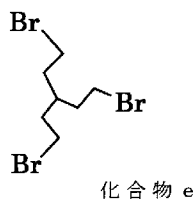
(3)発光スペクトルの測定(室温):図4参照

[0135] 実施例2(遷移金属錯体化合物2の合成)

(i)架橋基部位(化合物e)の合成

文献(J.Am.Chem.Soc. 第96巻, 16号, 1974年, p5189、及びBull.Chem.Soc. JAPAN 第69巻, 1996年, p3317)記載の方法に準じて、下記化合物e 1.25g(分子量336.89、3.71mmol)合成した。

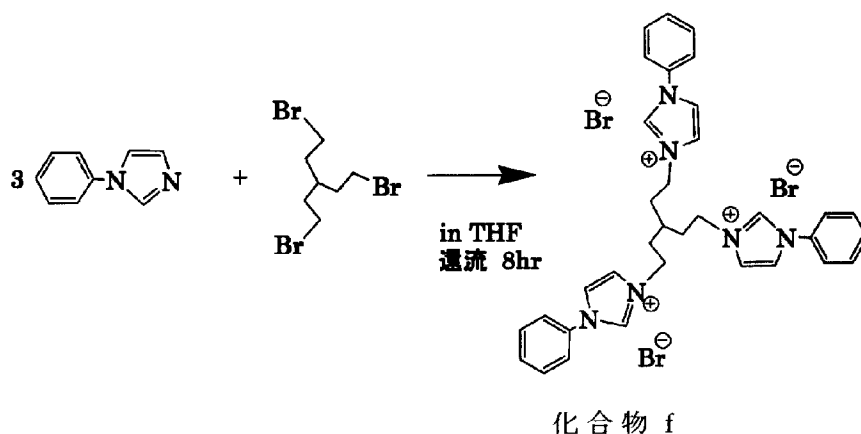
[化52]



[0136] (ii)配位子(化合物f)の合成

以下の反応工程にて、配位子(化合物f)を合成した。

[化53]

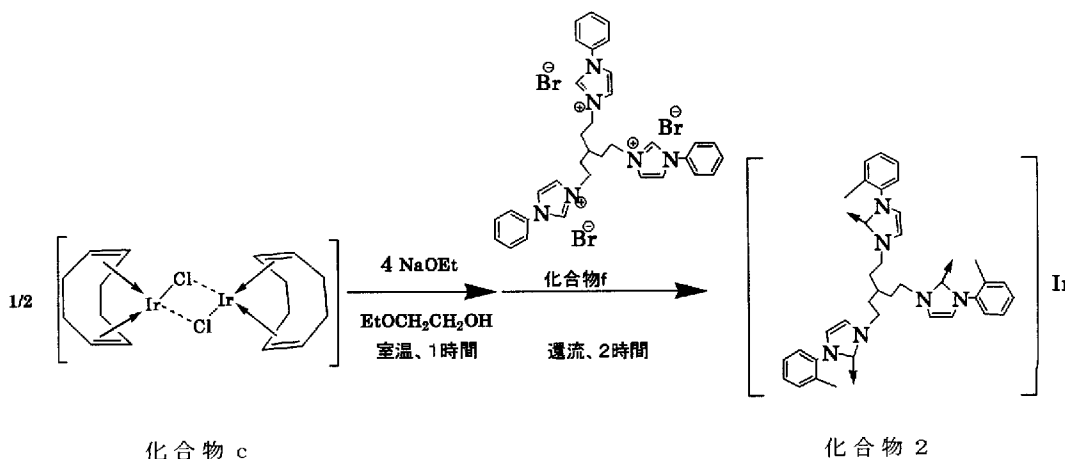


[0137] N-フェニルイミダゾール1.93g(分子量144.18、13.4ミリモル)及び化合物e 1.25g(分子量336.89、3.71ミリモル)にテトラヒドロフラン40mlを加え、8時間還流した。生成した白色固体をろ別し、化合物fを1.19g(分子量769.41、1.54ミリモル、収率32%)得た。

[0138] (iii) 遷移金属錯体化合物2の合成

以下の反応工程にて、遷移金属錯体化合物2を合成した。

[化54]



[0139] 反応はすべてアルゴン気流下で行なった。化合物c 0.517g(分子量671.70、0.77ミリモル)に溶媒2-エトキシエタノールを30ml加え、次にナトリウムエトキシド0.419g(分子量68.05、6.16ミリモル)を加え、室温にて1時間攪拌させた。これに化合物fを1.19g(分子量769.41、1.54ミリモル)を加え、還流下2時間反応させた。得られた反応液から溶媒2-エトキシエタノールを減圧下加熱留去し、冷却後、これ

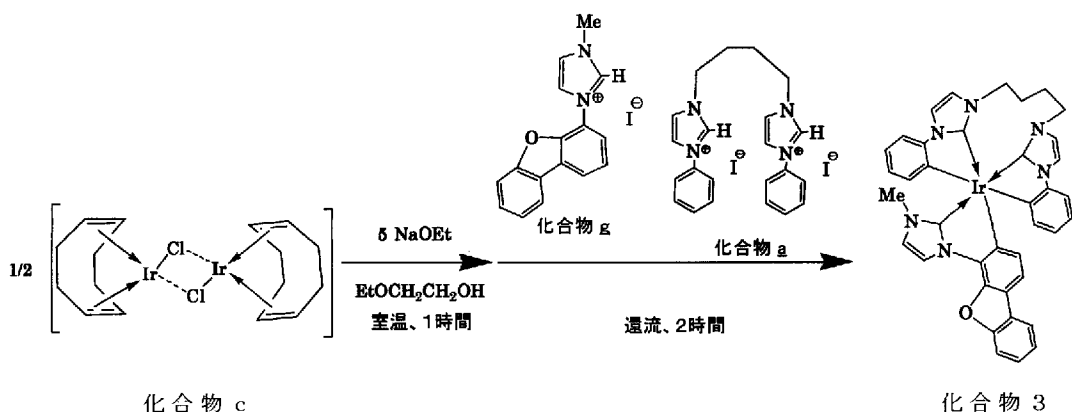
に塩化メチレン60mlを加え、固体成分をろ別した。次に、ろ液を減圧下留去し、塩化メチレン10mlに溶解させ、続いてヘキサン50mlを加えて固体を析出させた。この固体成分を、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:塩化メチレン、Rf値約0.8)にて精製した。その結果、化合物2を0.069g(分子量715.87、0.096ミリモル、収率5%)得た。

得られた化合物2について、FD-MSの測定を行なった結果、最大ピーク値は716で計算値と一致した(計算値 M^+ (分子イオンピーク)=716)。また、室温における発光スペクトルの結果、極大発光ピーク波長(λ_{max})は、388nm及び407nmであった。

[0140] 実施例3(遷移金属錯体化合物3の合成)

以下の反応工程にて、遷移金属錯体化合物3を合成した。

[化55]



[0141] 反応はすべてアルゴン気流下で行なった。化合物c 0.140g(分子量671.70、0.209ミリモル)に溶媒2-エトキシエタノールを21ml加え、次にナトリウムエトキシド0.142g(分子量68.05、2.09ミリモル)を加え、室温にて1時間攪拌させた。これに化合物gを0.157g(分子量376.19、0.418ミリモル)、次に化合物aを0.250g(分子量598.26、0.418ミリモル)加え、還流下2時間反応させた。得られた反応液から溶媒2-エトキシエタノールを減圧下加熱留去し、得られた固体成分を、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:塩化メチレン、Rf値約0.8)にて精製した。その結果、化合物3を0.013g(分子量779.91、収率4%)得た。

得られた化合物3について、FD-MSの測定を行った結果、最大ピーク値は780

で計算値(M^+)と一致した(計算値 $M^+ = 780$)。また、室温における発光スペクトルを測定したところ、最大発光ピーク波長は449nmであった。得られた遷移金属錯体化合物3は、2種の異性体(facial体とmeridional体)の混合物であった。

[0142] 以上の測定結果から、錯体の配位子を連結(架橋)させることで、発光波長を長波長化させることができることが明らかとなった。この現象は、発光波長を所望のものに調節できる技術として有用で、とりわけ紫外領域に発光波長を有する材料を青色領域に発光を有する材料へと導くうえで有用である。この技術を利用することで、発光効率に優れた青色発光する有機エレクトロルミネッセンス素子用材料を提供できる。

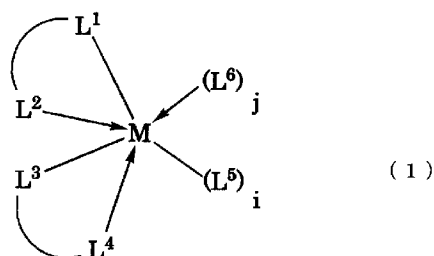
産業上の利用可能性

[0143] 以上詳細に説明したように、本発明の遷移金属錯体化合物を用いた有機EL素子は、発光効率が高く、発光寿命が長く、青色発光が求められる有機EL素子用の材料として極めて有用である。また、本発明の遷移金属錯体化合物は、従来、紫外領域に発光波長を有する材料の分子骨格を変換することにより、青色領域に発光を有する材料へと導いた化合物である。

請求の範囲

- [1] 共有結合及び／又は配位結合の組み合わせからなる三座もしくはそれ以上の配位座を有する配位子を有する遷移金属錯体化合物。
- [2] 共有結合及び／又は配位結合の組み合わせからなる四座もしくはそれ以上の配位座を有する配位子を有する遷移金属錯体化合物。
- [3] 前記遷移金属錯体化合物が金属カルベン結合を有する請求項1又は2に記載の遷移金属錯体化合物。
- [4] 前記遷移金属錯体化合物の金属がイリジウムである請求項3に記載の遷移金属錯体化合物。
- [5] 下記一般式(1)で表される金属カルベン結合を有する遷移金属錯体化合物。

[化1]



[一般式(1)において、実線(—)で示した結合は共有結合を、矢印(→)で示した結合は配位結合を意味し、 $L^2 \rightarrow M$ 及び $L^4 \rightarrow M$ のうち少なくとも一方は金属カルベン結合を示す。Mは、イリジウム(Ir)又は白金(Pt)の金属原子を示す。 L^1-L^2 及び L^3-L^4 は架橋二座配位子を示し、 L^5 及び L^6 は、それぞれ独立に、単座配位子又は L^5 と L^6 が架橋した架橋二座配位子(L^5-L^6)を示し、 L^1 と L^3 、 L^1 と L^4 、 L^2 と L^3 、 L^2 と L^4 、 L^1 と L^5 、 L^1 と L^6 、 L^2 と L^5 、 L^2 と L^6 、 L^3 と L^5 、 L^3 と L^6 、 L^4 と L^5 及び L^4 と L^6 のうち、少なくとも1つは架橋基 $-Z^1-$ (Z^1 は、芳香族炭化水素、複素環基、アルカン、アルケン及びこれらの炭素原子が、ケイ素原子、窒素原子、硫黄原子、酸素原子、リン原子及びホウ素原子のいずれかで置き換わった化合物から選ばれる化合物、あるいはこれらの組み合わせからなる2価の残基であり、置換基を有していてもよい)を介して架橋している。架橋基 $-Z^1-$ が複数ある場合は、それぞれ同じでも異なってもよい。iは0~1の整数で、 $2+i$ は金属Mの原子価を示す。jは0~4の整数を示す。i及びjが複数の

ときは、各 L^5 及び L^6 は、それぞれ同じあっても異なってもよく、隣接するもの同士で架橋していてもよい。

L^1 及び L^3 は、それぞれ独立に、置換基を有してもよい核炭素数6~30の2価の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核原子数3~30の2価の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1~30の2価のカルボキシル含有基、置換基を有してもよい2価のアミノ基あるいは水酸基含有炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3~50のシクロアルキレン基、置換基を有してもよい炭素数1~30のアルキレン基、置換基を有してもよい炭素数2~30のアルケニレン基、置換基を有してもよい炭素数7~40のアラルキレン基であり、

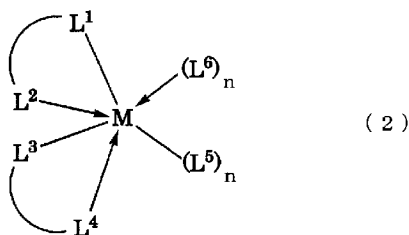
L^2 及び L^4 は、それぞれ独立に、置換基を有してもよいカルベン炭素を持つ1価の基、置換基を有してもよい核炭素数6~30の1価の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核原子数3~30の1価の複素環基であり、 L^2 及び L^4 のうち少なくとも一つは置換基を有してもよいカルベン炭素を持つ1価の基である。

L^5 は、置換基を有してもよい核炭素数6~30の1価の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核原子数3~30の1価の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1~30の1価のカルボキシル基、置換基を有してもよい1価のアミノ基あるいは水酸基含有炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3~50のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1~30のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数2~30のアルケニル基、置換基を有してもよい炭素数7~40のアラルキル基、及び L^5 と L^6 が架橋した場合には、前記各基の2価の基であり、

L^6 は、置換基を有してもよい核炭素数3~30の複素環、置換基を有してもよい炭素数1~30のカルボン酸エステル、炭素数1~30のカルボン酸アミド、置換基を有してもよいアミン、置換基を有してもよいホスフィン、置換基を有してもよいイソニトリル、置換基を有してもよい炭素数1~30のエーテル、置換基を有してもよい炭素数1~30のチオエーテル、又は置換基を有してもよい炭素数1~30の二重結合含有化合物、及び L^5 と L^6 が架橋した場合には、前記各化合物の1価の基である。]

- [6] 下記一般式(2)で表される請求項5に記載の金属カルベン結合を有する遷移金属錯体化合物。

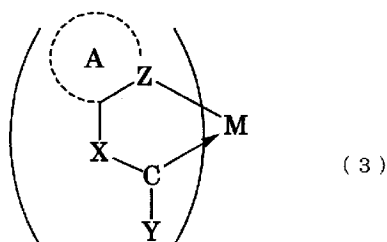
[化2]



[一般式(2)において、実線で示した結合は共有結合を、矢印で示した結合は配位結合を意味し、 $L^2 \rightarrow M$ 及び $L^4 \rightarrow M$ のうち少なくとも一方は金属カルベン結合を示す。M、 $L^1 \sim L^6$ は、それぞれ前記と同じである。 $L^1 - L^2$ 及び $L^3 - L^4$ は架橋二座配位子を示し、 L^5 及び L^6 は、それぞれ独立に、単座配位子又は L^5 と L^6 が架橋した架橋二座配位子($L^5 - L^6$)を示し、 L^1 と L^3 、 L^1 と L^4 、 L^2 と L^3 、 L^2 と L^4 、 L^1 と L^5 、 L^1 と L^6 、 L^2 と L^5 、 L^2 と L^6 、 L^3 と L^5 、 L^3 と L^6 、 L^4 と L^5 及び L^4 と L^6 のうち、少なくとも1つは架橋基 $-Z^1-$ (Z^1 は前記と同じである)を介して架橋している。nは0~1の整数で、 $2+n$ は金属Mの原子価を示す。]

[7] ($L^1 - L^2$)M及び/ $(L^3 - L^4)$ Mが、下記一般式(3)で表される構造である請求項5に記載の金属カルベン結合を有する遷移金属錯体化合物。

[化3]



[一般式(3)において、C(炭素原子) $\rightarrow M$ は金属カルベン結合を示し、Mは、Ir又はPtの金属原子を示す。Xは窒素含有基($-NR^1-$)、リン含有基($-PR^1-$)、酸素($-O-$)、又は硫黄($-S-$)であり、Yは窒素含有基($-NR^1R^2$)、リン含有基($-PR^1$)、酸素含有基($-OR^1$)又は硫黄含有基($-SR^1$)であり、XとYは架橋し環構造を形成しているもよい。

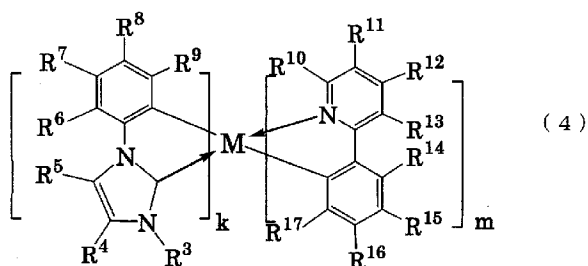
(R^1 及び R^2 は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい炭素数1~30のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1~30のハロゲン化アルキル基、置換基

を有してもよい核炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3～50のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数7～40のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数2～30のアルケニル基、置換基を有してもよい核原子数3～30の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1～30のアルコキシ基、置換基を有してもよい核炭素数6～30のアリアルオキシ基、置換基を有してもよい炭素数3～30アルキルアミノ基、置換基を有してもよい炭素数6～30のアリアルアミノ基、置換基を有してもよい炭素数3～30アルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数6～30のアリアルシリル基、置換基を有してもよい炭素数1～30のカルボキシル含有基であり、R¹とR²は架橋していてもよい。）

Zは、金属Mと共有結合を形成する原子で、炭素、ケイ素、窒素又はリン原子であり、Zを含むA環は、置換基を有してもよい核炭素数3～40の芳香族炭化水素基又は置換基を有してもよい核原子数3～40の芳香族複素環基である。]

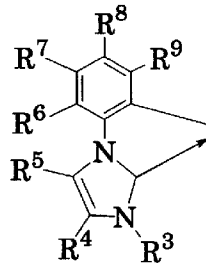
- [8] 前記MがIrである請求項5に記載の金属カルベン結合を有する遷移金属錯体化合物。
- [9] 下記一般式(4)で表される請求項5に記載の金属カルベン結合を有する遷移金属錯体化合物。

[化4]



[一般式(4)において、C(炭素原子)→Mは金属カルベン結合を示す。Mは、Ir又はPtの金属原子を示す。kは1～3、mは0～2の整数を示し、k+mは金属Mの原子価を示す。k+m個の

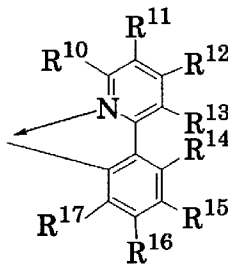
[化5]



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

及び

[化6]



(置換)2-フェニルピリジン-N, C^{2'}基

のうち、少なくとも2つは架橋基-Z¹- (Z¹は前記と同じである)を介して架橋している。

。

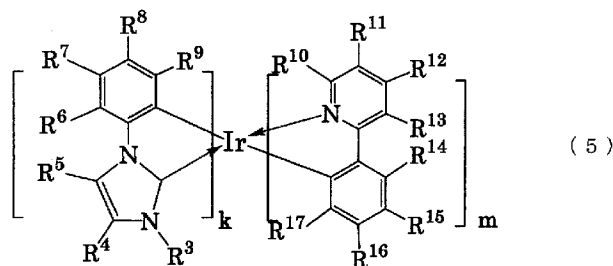
R³は、置換基を有してもよい炭素数1~30のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1~30のハロゲン化アルキル基、置換基を有してもよい核炭素数6~30の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3~30のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数7~40のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数2~30のアルケニル基、置換基を有してもよい核原子数3~30の複素環基、置換基を有してもよい核原子数3~30のアルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数6~30のアリールシリル基、炭素数1~30のカルボキシル含有基である。

R⁴~R¹⁷は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、チオシアノ基、又はシアノ基、ニトロ基、 $-S(=O)_2R^1$ 基、又は $-S(=O)R^1$ [R¹は前記と同じ]、置換基を有してもよい炭素数1~30のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1~30のハロゲン化アルキル基、置換基を有してもよい核炭素数6~30の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3~30のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数

7~40のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数2~30のアルケニル基、置換基を有してもよい核原子数3~30の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1~30のアルコキシ基、置換基を有してもよい核炭素数6~30のアリアルオキシ基、置換基を有してもよい核原子数3~30のアルキルアミノ基、置換基を有してもよい核原子数3~30のアルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数6~30のアリアルシリル基、炭素数1~30のカルボキシル含有基であり、 $R^4 \sim R^{17}$ は隣接するもの同士で架橋していてもよい。]

- [10] 前記MがIrである下記一般式(5)で表される請求項9記載の金属カルベン結合を有する遷移金属錯体化合物。

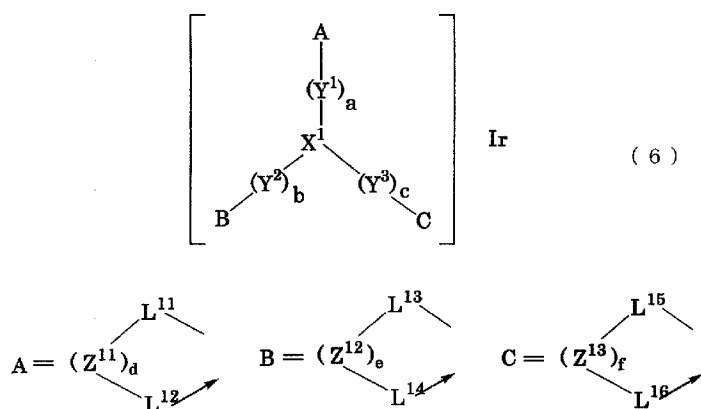
[化7]



[一般式(5)において、C(炭素原子)→Irは金属カルベン結合を示す。k、m及び $R^3 \sim R^{17}$ は、それぞれ前記と同じである。k+m個の(置換)N-フェニル-N'-R3-イミダゾール-2-イリデン-C2, C2'基、及び(置換)2-フェニルピリジン-N, C2'基のうち、少なくとも2つは架橋基-Z¹- (Z¹は前記と同じである)を介して架橋している。]

- [11] 下記一般式(6)で表される遷移金属錯体化合物。

[化8]



[一般式(6)において、Aは $\text{L}^{11} - (\text{Z}^{11})_d - \text{L}^{12}$ からなる架橋二座配位子群を、Bは $\text{L}^{13} - (\text{Z}^{12})_e - \text{L}^{14}$ からなる架橋二座配位子群を、また、Cは $\text{L}^{15} - (\text{Z}^{13})_f - \text{L}^{16}$ からなる架橋二座配位子群を示す。 L^{11} 、 L^{13} 及び L^{15} は、それぞれIr(イリジウム)への共有結合($\text{L}^{11} - \text{Ir}$ 、 $\text{L}^{13} - \text{Ir}$ 及び $\text{L}^{15} - \text{Ir}$)を示し、 L^{12} 、 L^{14} 及び L^{16} は、それぞれIrへの配位結合($\text{L}^{12} \rightarrow \text{Ir}$ 、 $\text{L}^{14} \rightarrow \text{Ir}$ 及び $\text{L}^{16} \rightarrow \text{Ir}$)を示す。

X^1 は、原子数が1~18の非環状構造からなる架橋基であって、水素原子、炭素原子、ケイ素原子、窒素原子、硫黄原子、酸素原子、リン原子及びホウ素原子の群から選ばれる原子から構成される化合物の3価の残基であり、置換基を有していてもよい。

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

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

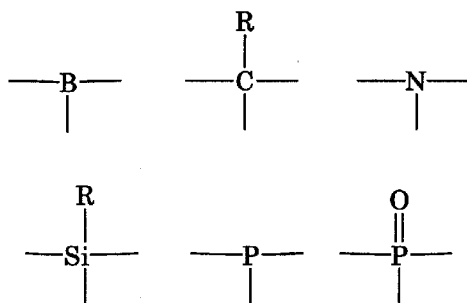
れ相当する3価の基となる。d、e及びfは、それぞれ独立に0～10の整数を示し、d、e又はfが複数のときは、複数ある Z^{11} 、 Z^{12} 又は Z^{13} は、それぞれ同じでも異なってもよい。

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

L^{12} 、 L^{14} 及び L^{16} は、それぞれ独立に、置換基を有してもよいカルベン炭素を有する1価の基、又は置換基を有してもよい核原子数3～30の1価の複素環基であり、 L^{12} が Y^1 と直接結合した場合、 L^{14} が Y^2 と直接結合した場合、あるいは L^{16} が Y^3 と直接結合した場合は、 L^{12} 、 L^{14} 及び L^{16} は、それぞれ相当する2価の基となる。]

- [12] 架橋基Xが、下記のいずれかの構造からなる請求項11に記載の遷移金属錯体化合物。

[化9]

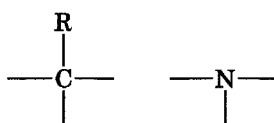


(Rは、水素原子、置換基を有してもよい炭素数1～30のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1～30のハロゲン化アルキル基、置換基を有してもよい核炭素数6～30の芳香族炭化水素基、置換基を有してもよい核炭素数3～50のシクロアルキル基

、置換基を有してもよい炭素数7～40のアラルキル基、置換基を有してもよい炭素数2～30のアルケニル基、置換基を有してもよい核原子数3～30の複素環基、置換基を有してもよい炭素数1～30のアルコキシ基、置換基を有してもよい核炭素数6～30のアリアルオキシ基、置換基を有してもよい炭素数3～30アルキルアミノ基、置換基を有してもよい炭素数6～30のアリアルアミノ基、置換基を有してもよい炭素数3～30アルキルシリル基、置換基を有してもよい炭素数6～30のアリアルシリル基、置換基を有してもよい炭素数1～30のカルボキシル含有基である。)

- [13] 架橋基Xが、下記のいずれかの構造からなる請求項11に記載の遷移金属錯体化合物。

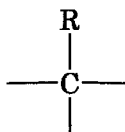
[化10]



(Rは前記と同じである。)

- [14] 架橋基Xが、下記の構造からなる請求項11に記載の遷移金属錯体化合物。

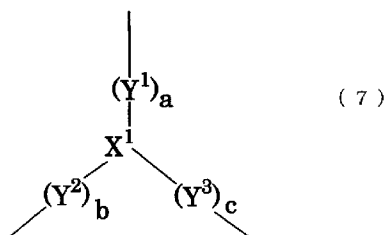
[化11]



(Rは前記と同じである。)

- [15] 一般式(6)における下記架橋部位(7)を構成する原子量の合計が200以下である請求項11に記載の遷移金属錯体化合物。

[化12]

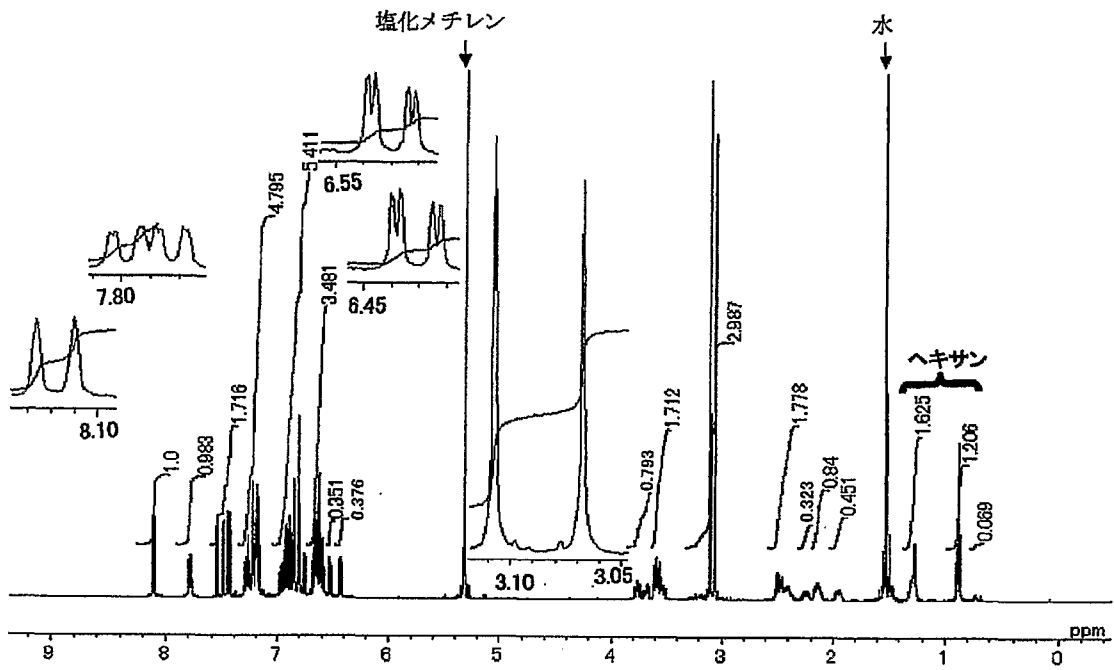


- [16] 前記架橋部位(7)を構成する原子量の合計が100以下である請求項15に記載の

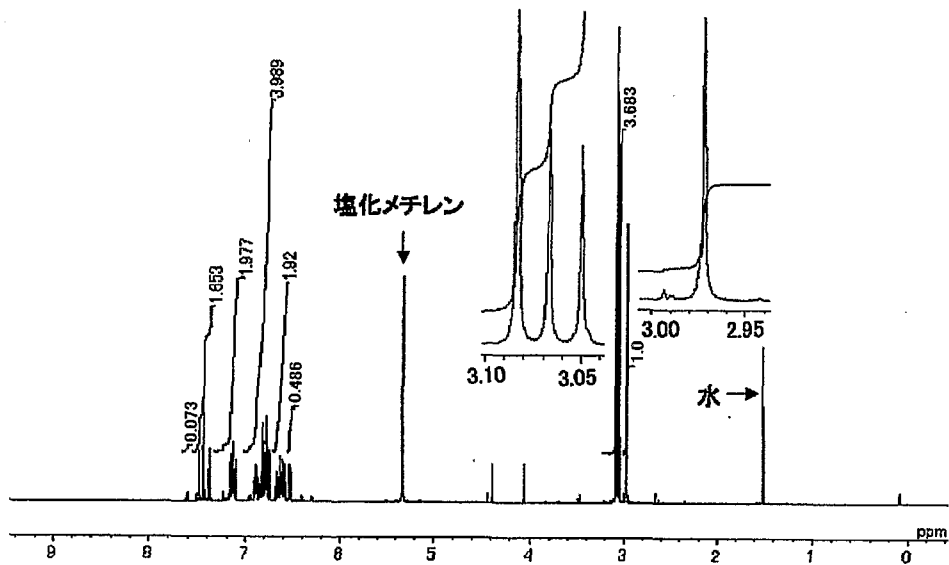
遷移金属錯体化合物。

- [17] 陽極と陰極間に少なくとも発光層を有する一層又は複数層からなる有機薄膜層が挟持されている有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機薄膜層の少なくとも1層が、請求項1、2、5又は11に記載の遷移金属錯体化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [18] 前記発光層が、請求項1、2、5又は11に記載の遷移金属錯体化合物を発光材料として含有する請求項17に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [19] 前記発光層が、請求項1、2、5又は11に記載の遷移金属錯体化合物をドーパントとして含有する請求項17に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [20] 前記発光層と陰極との間に電子注入層及び／又は電子輸送層を有し、該電子注入層及び／又は電子輸送層が π 電子欠乏性含窒素ヘテロ環誘導体を主成分として含有する請求項17に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [21] 陰極と前記有機薄膜層との界面領域に、還元性ドーパントが添加されている請求項17に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [22] 前記遷移金属錯体化合物が、請求項9に記載の一般式(4)で表される遷移金属錯体化合物である請求項17に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [23] 前記遷移金属錯体化合物が、請求項10に記載の一般式(5)で表される遷移金属錯体化合物である請求項17に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

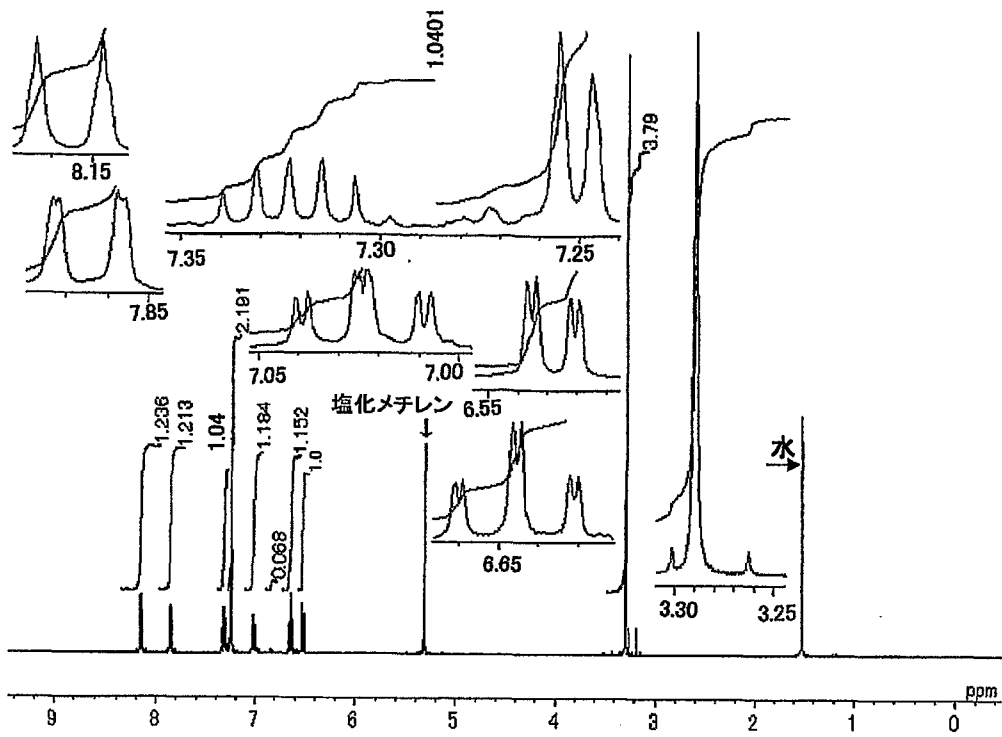
[図1]



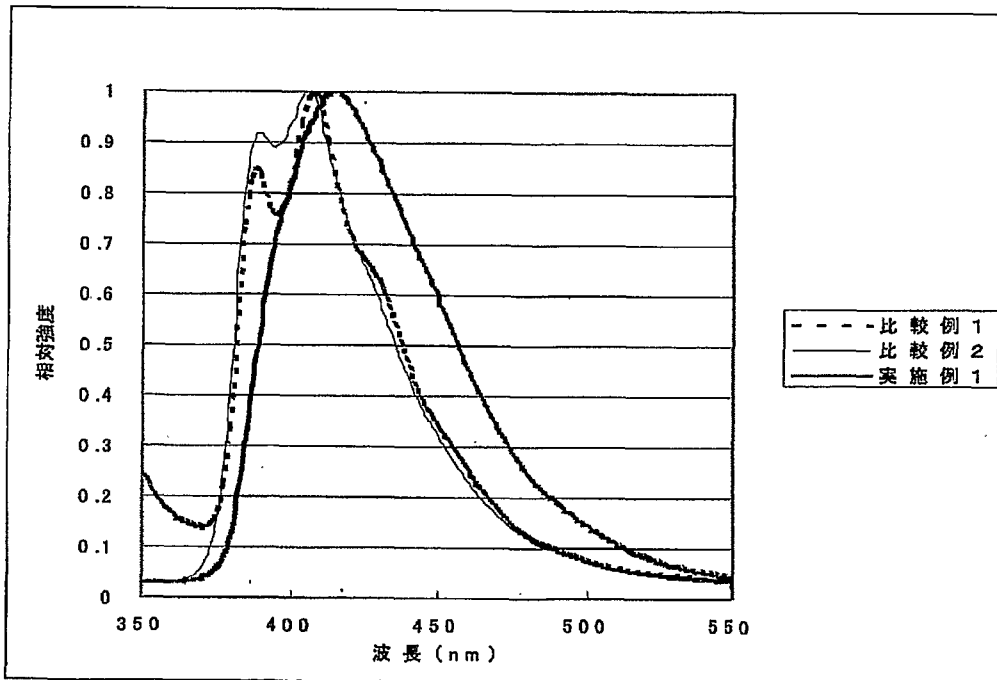
[図2]



[図3]



[図4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/315163

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C07F15/00(2006.01) i, C07D233/58(2006.01) i, C07D235/04(2006.01) i,
C09K11/06(2006.01) i, H01L51/50(2006.01) i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C07F15/00, C07D233/58, C07D235/04, C09K11/06, H01L51/50

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2006
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2006	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2006

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

Caplus (STN), 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 A	BIANCHINI, Claudio et al., Asymmetric hydrogen-transfer reduction of prochiral and α, β -unsaturated ketones by iridium complexes containing optically pure aminodiphosphine ligands, Journal of Molecular Catalysis A: Chemical, 1998, 132(1), p.13-19	1-2, 4 3, 5-16
X A	SLUGOVC, Christian et al., Investigation of the C-H activation potential of [hydrotris(1H-pyrazolato- κ N1)borato(1-)]iridium(IrTpx) fragments featuring aromatic substituents x at the 3-position of the pyrazole rings. Part 1. The choice of the precursor, Helvetica Chimica Acta, 2001, 84(10), p.2868-2883	1-2, 4 3, 5-16

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
 "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
 "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
17 November, 2006 (17.11.06)

Date of mailing of the international search report
28 November, 2006 (28.11.06)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/315163

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	KROGH-JESPERSEN, Karsten et al., On the Mechanism of (PCP)Ir-Catalyzed Acceptorless Dehydrogenation of Alkanes: A Combined Computational and Experimental Study, Journal of the American Chemical Society, 2002, 124(38), p.11404-11416	1,4 2-3,5-16
X A	HAENEL, Matthias W. et al., Thermally stable homogeneous catalysts for alkane dehydrogenation, Angewandte Chemie, International Edition, 2001, 40(19), p.3596-3600	1,4 2-3,5-16
X A	WO 2004/039914 A1 (Takasago International Corp.), 13 May, 2004 (13.05.04), & AU 2003/275645 A1	1,17-23 2-16
X A	JP 2004-284986 A (TDK Corp.), 14 October, 2004 (14.10.04), (Family: none)	1,17-23 2-16
A	WO 2005/019373 A2 (BASF AG.), 03 March, 2005 (03.03.05), & DE 10338550 A1 & EP 1658349 A2	1-23
X A	WO 2005/021679 A1 (E.I. DUPONT DE NEMOURS AND CO.), 10 March, 2005 (10.03.05), & US 2005/048312 A1	1,4,17-23 2-3,5-16
X A	WO 2005/042444 A2 (Takasago International Corp.), 12 May, 2005 (12.05.05), & EP 1683804 A2	1-2,17-23 3-16
X A	WO 2005/056717 A1 (EAST-MAN KODAK CO.), 23 June, 2005 (23.06.05), & US 2005/123788 A1	1,17-23 2-16
X A	WO 2005/056720 A1 (EAST-MAN KODAK CO.), 23 June, 2005 (23.06.05), & US 6824895 B1	1,17-23 2-16
P,X P,A	THEWISSEN, Simone et al., Instability of Square Planar N3-Ligand Iridium(I) Ethene Complexes, Organometallics, 2005, 24(24), p.5964-5972	1-2,4 3,5-16
P,X	WO 2005/113704 A2 (THE UNIVERSITY OF SOUTHERN CALIFORNIA), 01 December, 2005 (01.12.05), & US 2005/258433 A1	1-23

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/315163

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P,X P,A	WO 2005/076380 A2 (UNIVERSAL DISPLAY CORP.), 18 August, 2005 (18.08.05), & US 2005/170206 A1	1-2,4,17-23 3,5-16
P,X P,A	WO 2005/113563 A1 (Covion Organic Semiconductors GmbH), 01 December, 2005 (01.12.05), (Family: none)	1-2,4,11-12, 15-16 3,5-10,13-14
P,X P,A	WO 2006/008069 A1 (Covion Organic Semiconductors GmbH), 26 January, 2006 (26.01.06), & DE 102004034517 A1	1-2,4,11-23 3,5-10
P,X P,A	JP 2006-32758 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 02 February, 2006 (02.02.06), (Family: none)	1-2,17-23 3-16
P,X P,A	JP 2006-160724 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 22 June, 2006 (22.06.06), & WO 2006/051806 A1 & US 2006/115675 A1	1,4,17-23 2-3,5-16
P,X P,A	JP 2006-93197 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 06 April, 2006 (06.04.06), (Family: none)	1-2,4,17-23 3,5-16
P,X P,A	JP 2006-121032 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 11 May, 2006 (11.05.06), & US 2006/068222 A1	1-2,4,17-23 3,5-16
P,X P,A	JP 2006-128634 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 18 May, 2006 (18.05.06), & US 2006/073360 A1	1-2,4,17-23 3,5-16
P,X P,A	WO 2006/051806 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 18 May, 2006 (18.05.06), & JP 2006-160724 A & US 2006/115675 A1	1,4,17-23 2-3,5-16
P,X P,A	JP 2006-131524 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 25 May, 2006 (25.05.06), & US 2006/093854 A1 & EP 1667493 A1	1,17-23 2-16
E,X E,A	WO 2006/082742 A1 (Konica Minolta Holdings Kabushiki Kaisha), 10 August, 2006 (10.08.06), (Family: none)	1-2,4,17-23 3,5-16
E,X E,A	JP 2006-261623 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 28 September, 2006 (28.09.06), & WO 2006/033440 A1	1-2,17-23 3-16

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/315163

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

The inventions of the claims of this application are divided into the following groups.

1. Claims 1-4, 17-23
Invention related to a transition metal complex compound having a tridentate or higher dentate ligand
2. Claims 5-10
Invention related to a transition metal complex compound having a bidentate ligand

(Continued to extra sheet)

1. As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest
the

- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, payment of a protest fee..
- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/315163

Continuation of Box No.III of continuation of first sheet (2)

3. Claims 11-16

Invention related to a transition metal complex compound having three groups of bidentate ligands

Since there is no technical relationship among these groups of inventions involving a common special technical feature, these groups of inventions are not considered so linked as to form a single general inventive concept.

Consequently, the claims of this international application are considered to define three inventions.

<p>A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))</p> <p>Int.Cl. C07F15/00(2006.01)i, C07D233/58(2006.01)i, C07D235/04(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i</p>														
<p>B. 調査を行った分野</p> <p>調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))</p> <p>Int.Cl. C07F15/00, C07D233/58, C07D235/04, C09K11/06, H01L51/50</p>														
<p>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</p> <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2006年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2006年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2006年</td> </tr> </table>			日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2006年	日本国実用新案登録公報	1996-2006年	日本国登録実用新案公報	1994-2006年				
日本国実用新案公報	1922-1996年													
日本国公開実用新案公報	1971-2006年													
日本国実用新案登録公報	1996-2006年													
日本国登録実用新案公報	1994-2006年													
<p>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)</p> <p>CAplus(STN), REGISTRY(STN)</p>														
<p>C. 関連すると認められる文献</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の カテゴリー*</th> <th>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</th> <th>関連する 請求の範囲の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>X A</td> <td>BIANCHINI, Claudio et al., Asymmetric hydrogen-transfer reduction of prochiral and α, β-unsaturated ketones by iridium complexes containing optically pure aminodiphosphine ligands, Journal of Molecular Catalysis A: Chemical, 1998, 132(1), p.13-19</td> <td>1-2, 4 3, 5-16</td> </tr> </tbody> </table>			引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号	X A	BIANCHINI, Claudio et al., Asymmetric hydrogen-transfer reduction of prochiral and α, β -unsaturated ketones by iridium complexes containing optically pure aminodiphosphine ligands, Journal of Molecular Catalysis A: Chemical, 1998, 132(1), p.13-19	1-2, 4 3, 5-16						
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号												
X A	BIANCHINI, Claudio et al., Asymmetric hydrogen-transfer reduction of prochiral and α, β -unsaturated ketones by iridium complexes containing optically pure aminodiphosphine ligands, Journal of Molecular Catalysis A: Chemical, 1998, 132(1), p.13-19	1-2, 4 3, 5-16												
<p><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。</p>														
<table border="0"> <tr> <td>* 引用文献のカテゴリー</td> <td>の日の後に公表された文献</td> </tr> <tr> <td>「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</td> <td>「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</td> </tr> <tr> <td>「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</td> <td>「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</td> </tr> <tr> <td>「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)</td> <td>「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</td> </tr> <tr> <td>「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</td> <td>「&」同一パテントファミリー文献</td> </tr> <tr> <td>「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願</td> <td></td> </tr> </table>			* 引用文献のカテゴリー	の日の後に公表された文献	「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	「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	「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	「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	「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)	「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	「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」同一パテントファミリー文献	「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	
* 引用文献のカテゴリー	の日の後に公表された文献													
「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	「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													
「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	「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													
「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)	「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													
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」同一パテントファミリー文献													
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願														
<p>国際調査を完了した日</p> <p>17. 11. 2006</p>	<p>国際調査報告の発送日</p> <p>28. 11. 2006</p>													
<p>国際調査機関の名称及びあて先</p> <p>日本国特許庁 (ISA/J P)</p> <p>郵便番号100-8915</p> <p>東京都千代田区霞が関三丁目4番3号</p>	<p>特許庁審査官 (権限のある職員)</p> <p>本堂 裕司</p> <p>電話番号 03-3581-1101 内線 3443</p>	<p>4H 9049</p>												

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 請求の範囲の番号
X A	SLUGOVIC, Christian et al., Investigation of the C-H activation potential of [hydrotris(1H-pyrazolato- κ N1)borato(1-)]iridium (IrTpx) fragments featuring aromatic substituents x at the 3-position of the pyrazole rings. Part 1. The choice of the precursor, Helvetica Chimica Acta, 2001, 84(10), p.2868-2883	1-2, 4 3, 5-16
X A	KROGH-JESPERSEN, Karsten et al., On the Mechanism of (PCP)Ir-Catalyzed Acceptorless Dehydrogenation of Alkanes: A Combined Computational and Experimental Study, Journal of the American Chemical Society, 2002, 124(38), p.11404-11416	1, 4 2-3, 5-16
X A	HAENEL, Matthias W. et al., Thermally stable homogeneous catalysts for alkane dehydrogenation, Angewandte Chemie, International Edition, 2001, 40(19), p.3596-3600	1, 4 2-3, 5-16
X A	WO 2004/039914 A1 (高砂香料工業株式会社) 2004.05.13 & AU 2003/275645 A1	1, 17-23 2-16
X A	JP 2004-284986 A (TDK株式会社) 2004.10.14 (ファミリーなし)	1, 17-23 2-16
A	WO 2005/019373 A2 (BASF Aktiengesellschaft) 2005.03.03 & DE 10338550 A1 & EP 1658349 A2	1-23
X A	WO 2005/021679 A1 (E. I. DUPONT DE NEMOURS AND COMPANY) 2005.03.10 & US 2005/048312 A1	1, 4, 17-23 2-3, 5-16
X A	WO 2005/042444 A2 (高砂香料工業株式会社) 2005.05.12 & EP 1683804 A2	1-2, 17-23 3-16
X A	WO 2005/056717 A1 (EAST-MAN KODAK COMPANY) 2005.06.23 & US 2005/123788 A1	1, 17-23 2-16
X A	WO 2005/056720 A1 (EAST-MAN KODAK COMPANY) 2005.06.23 & US 6824895 B1	1, 17-23 2-16
P, X P, A	THEWISSEN, Simone et al., Instability of Square Planar N ₃ -Ligand Iridium(I) Ethene Complexes, Organometallics, 2005, 24(24), p.5964-5972	1-2, 4 3, 5-16

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 請求の範囲の番号
P, X	WO 2005/113704 A2 (THE UNIVERSITY OF SOUTHERN CALIFORNIA) 2005. 12. 01 & US 2005/258433 A1	1-23
P, X P, A	WO 2005/076380 A2 (UNIVERSAL DISPLAY CORPORATION) 2005. 08. 18 & US 2005/170206 A1	1-2, 4, 17-23 3, 5-16
P, X P, A	WO 2005/113563 A1 (Covion Organic Semiconductors GmbH) 2005. 12. 01 (ファミリーなし)	1-2, 4, 11-12, 15-16 3, 5-10, 13-14
P, X P, A	WO 2006/008069 A1 (Covion Organic Semiconductors GmbH) 2006. 01. 26 & DE 102004034517 A1	1-2, 4, 11-23 3, 5-10
P, X P, A	JP 2006-32758 A (富士写真フイルム株式会社) 2006. 02. 02 (ファ ミリーなし)	1-2, 17-23 3-16
P, X P, A	JP 2006-160724 A (出光興産株式会社) 2006. 06. 22 & WO 2006/051806 A1 & US 2006/115675 A1	1, 4, 17-23 2-3, 5-16
P, X P, A	JP 2006-93197 A (富士写真フイルム株式会社) 2006. 04. 06 (ファ ミリーなし)	1-2, 4, 17-23 3, 5-16
P, X P, A	JP 2006-121032 A (富士写真フイルム株式会社) 2006. 05. 11 & US 2006/068222 A1	1-2, 4, 17-23 3, 5-16
P, X P, A	JP 2006-128634 A (富士写真フイルム株式会社) 2006. 05. 18 & US 2006/073360 A1	1-2, 4, 17-23 3, 5-16
P, X P, A	WO 2006/051806 A1 (出光興産株式会社) 2006. 05. 18 & JP 2006-160724 A & US 2006/115675 A1	1, 4, 17-23 2-3, 5-16
P, X P, A	JP 2006-131524 A (富士写真フイルム株式会社) 2006. 05. 25 & US 2006/093854 A1 & EP 1667493 A1	1, 17-23 2-16
E, X E, A	WO 2006/082742 A1 (コニカミノルタホールディングス株式会社) 2006. 08. 10 (ファミリーなし)	1-2, 4, 17-23 3, 5-16
E, X E, A	JP 2006-261623 A (富士写真フイルム株式会社) 2006. 09. 28 & WO 2006/033440 A1	1-2, 17-23 3-16

第II欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（PCT17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第III欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるところの国際調査機関は認めた。

請求の範囲に記載された発明はそれぞれ、

- ①請求の範囲1～4, 17～23
三座以上の配位子の遷移金属錯体化合物に関する発明
- ②請求の範囲5～10
二座配位子の遷移金属錯体化合物に関する発明
- ③請求の範囲11～16
三組の二座配位子の遷移金属錯体化合物に関する発明

の群に区分され、それぞれの群の間は共通する特別な技術的特徴を含む関係にないから、単一の一般的発明概念を形成するように連関しているものとは認められない。
したがって、請求の範囲に記載されている国際出願の発明の数は3である。

1. 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- 追加調査手数料及び、該当する場合には、異議申立手数料の納付と共に、出願人から異議申立てがあった。
- 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあったが、異議申立手数料が納付命令書に示した期間内に支払われなかった。
- 追加調査手数料の納付を伴う異議申立てがなかった。