

發明專利說明書

(本申請書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：97103762

※申請日期：97年01月31日

※IPC分類：H05B 33/00

一、發明名稱：

(中) 過渡金屬錯合物及使用其之有機電致發光元件
(英)

二、申請人：(共 1 人)

1. 姓名：(中) 出光興產股份有限公司
(英) IDEMITSU KOSAN CO., LTD.
代表人：(中) 1. 天坊昭彥
(英) 1. TEMBO, AKIHIKO
地址：(中) 日本國東京都千代田區丸之內三丁目一番一號
(英) 1-1, Marunouchi 3-chome, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8321 Japan
國籍：(中英) 日本 JAPAN

三、發明人：(共 4 人)

1. 姓名：(中) 渡邊正美
(英) WATANABE, MASAMI
國籍：(中) 日本
(英) JAPAN

2. 姓名：(中) 奧田文雄
(英) OKUDA, FUMIO
國籍：(中) 日本
(英) JAPAN

3. 姓名：(中) 長島英明
(英) NAGASHIMA, HIDEAKI
國籍：(中) 日本
(英) JAPAN

4. 姓名：(中) 荻原俊成
(英) OGIWARA, TOSHINARI
國籍：(中) 日本

(英) JAPAN

四、聲明事項：

◎本案申請前已向下列國家（地區）申請專利 主張國際優先權：

【格式請依：受理國家（地區）；申請日；申請案號數 順序註記】

1. 日本 ; 2007/02/05 ; 2007-025498 有主張優先權

(英) JAPAN

四、聲明事項：

◎本案申請前已向下列國家（地區）申請專利 主張國際優先權：

【格式請依：受理國家（地區）；申請日；申請案號數 順序註記】

1. 日本 ; 2007/02/05 ; 2007-025498 有主張優先權

九、發明說明

【發明所屬之技術領域】

本發明係關於過渡金屬錯合物及使用其之有機電致發光元件，特別為發光效率較高，藍色發光之有機電致發光元件及實現此的新穎過渡金屬錯合物者。

【先前技術】

有機電致發光元件（EL）為利用藉由外加電場，由陽極注入的電洞與由陰極注入的電子之再結合能量可使螢光性物質發光的原理所成之自發光元件。自耶司特門·可達克公司的 C. W. Tang 氏們發表層合型元件之低電壓驅動有機 EL 元件的報告（C. W. Tang, S.A. Vanslyke, Applied Physics Letters）,51 卷，913 頁，1987 年等）以來，有關有機材料作為構成材料的有機電致發光元件之研究正積極地進行者。Tang 氏們將參（8-喹啉酚鋁）使用於發光層，三苯基二胺衍生物使用於電洞輸送層。作為層合結構的優點，可舉出提高對發光層的電洞注入效率、提高藉由陰極注入的電子經封止後再結合所生成的激發子之生成效率、以及封閉發光層內所生成的激發子等。如該例子作為有機電致發光元件的元件結構，已知有電洞輸送（注入）層、電子輸送發光層之 2 層型、或電洞輸送（注入）層、發光層、電子輸送（注入）層之 3 層型等。欲提高於如此層合型結構元件所注入的電洞與電子之再結合效率，必須對元件結構或形成方法下功夫。

作為有機電致發光元件之發光材料，已知有參（8-喹啉酚）鋁錯合物等螯合錯合物、香豆素衍生物、四苯基丁二烯衍生物、二苯乙烯伸芳基衍生物、氧雜二唑基衍生物等發光材料，由這些可得到於藍色至紅色的可見光區域之發光者，期待顏色表示元件的實現（例如，參照專利文獻 1、2、3）。

又，近年來有機 EL 元件的發光層可利用螢光材料以外亦利用到磷光材料者（例如參照非專利文獻 1、非專利文獻 2）。於如此有機 EL 元件之發光層中，利用磷光材料之激起狀態的一重態狀態或三重態狀態，達到高發光效率。於有機 EL 元件內的電子與電洞於再結合時，旋轉多重性之相異而生成 1：3 比率的單重態激光子與三重態激光子，故使用磷光性的發光材料與只有使用螢光的元件相比可達到 3~4 倍的發光效率。

對於如此的有機 EL 元件，欲使 3 重態的激光狀態或 3 重態激光子不會消光，使用以陽極、電洞輸送層、有機發光層、電子輸送層（電洞阻止層）、電子輸送層、陰極的順序下層合之構成，有機發光層使用主化合物與磷光發光性之化合物（例如，參照專利文獻 4、專利文獻 5）。這些專利文獻係關於可於紅色~綠色下發光的磷光材料之技術。又，亦有公開具有藍色系發光色之發光材料的相關技術（例如，參照專利文獻 6、專利文獻 7、專利文獻 8）。然而，這些元件的壽命非常短，特別於專利文獻 7 及 8 中記載 Ir 金屬與磷原子結合之配位子骨架，這些發光色與

藍色化者之結合較爲弱，耐熱性亦顯著缺乏。又，專利文獻 9 中雖記載有關同樣氧原子與氮原子與中心金屬結合之錯合物，對於結合於氧原子的基之具體效果則完全無記載亦不明。且，專利文獻 10 中揭示含於相異環結構之氮原子個別與中心金屬結合之錯合物，利用此之元件顯示藍色發光，而外部量子效率約爲 5% 左右之較低值。且專利文獻 6~10 中對於本發明之過渡金屬錯合物並無揭示及記載。

另一方面，近年來對於具有金屬碳烯 (carbene) 鍵的過渡金屬錯合物 (以下有時稱爲碳烯錯合物) 進行研究 (例如，參照專利文獻 11 及非專利文獻 3~11)。

碳烯爲以二配位碳於 sp^2 混合軌道與 2p 軌道上具有 2 個電子者，組合該 2 個電子所進入的軌道與旋轉方向可得到 4 種結構，但一般爲 1 重態碳烯，由 sp^2 混成之被佔軌道與空的 2p 軌道所成。

過去，碳烯錯合物爲壽命短且不安定，作爲有機合成反應的反應中間體或對烯烴加成的合成變換試劑而被利用，但 1991 年左右發現芳香族雜環結構所成之安定碳烯錯合物、或非芳香族環狀結構所成之安定碳烯錯合物，其後更安定化氮與磷，而穩定下得到非環狀碳烯錯合物。又，將此作爲配位子與過渡金屬結合後提高觸媒性能，故於近年來於有機合成之觸媒反應中可期待安定之碳烯錯合物。

特別爲烯烴取代反應中，發現添加或配位安定之碳烯錯合物時可顯著地提高其性能。又，近年來正發展鈴木偶

合反應之效率化或鏈烷的氧化或選擇性氫化甲醯化反應、又光學活性等碳烯錯合物等研究，碳烯錯合物對於有機合成領域之應用受到注目。

又，具體上具有碳烯銦鍵之錯合物例子記載於以下非專利文獻 12（非複數環型碳烯配位子所成之參（碳烯）銦錯合物）及非專利文獻 13（單牙配位型單碳烯銦錯合物），但對有機 EL 元件領域等之應用並無記載。

又，專利文獻 11 中揭示具有碳烯鍵的銦錯合物之合成與其發光波長及元件性能，但能量效率、外部量子效率較低，且發光波長分佈於紫外線區域，視感效率較差。因此，並不適合有機 EL 等的視覺波長區之發光元件。又，分解溫度低，分子量高等理由而無法真空蒸鍍，因蒸鍍時錯合物會分解，故元件製作時會有雜質混入之問題。

且，專利文獻 12~20 中記載具有種種的碳烯鍵之錯合物，亦揭示藍色發光錯合物。然而，能量效率、外部量子效率較為低，且皆未揭示發光壽命之長壽命化。

另一方面，專利文獻 21 及 22 中作為參（2-苯基吡啶-N,C²）銦錯合物的長壽命化之方法，揭示將 3 個 2-苯基吡啶-N,C² 基部位以 3 腳型交聯之方法，但僅揭示 3 腳型交聯部位具有苯環骨架者，且未達到顯著長壽命，又未揭示使用於藍色發光之指標。

〔專利文獻 1〕特開平 8-239655 號公報

〔專利文獻 2〕特開平 7-138561 號公報

〔專利文獻 3〕特開平 3-200889 號公報

- [專利文獻 4] 美國專利第 6,097,147 號說明書
- [專利文獻 5] 國際公開 WO01/41512 號公報
- [專利文獻 6] US2001/0025108 號公開公報
- [專利文獻 7] US2002/0182441 號公開公報
- [專利文獻 8] 特開 2002-170684 號公報
- [專利文獻 9] 特開 2003-123982 號公報
- [專利文獻 10] 特開 2003-133074 號公報
- [專利文獻 11] 國際公開 WO05/019373 號公報
- [專利文獻 12] US2005/0258433 號公開公報
- [專利文獻 13] US2005/0258742 號公開公報
- [專利文獻 14] US2005/0260441 號公開公報
- [專利文獻 15] US2005/0260444 號公開公報
- [專利文獻 16] US2005/0260445 號公開公報
- [專利文獻 17] US2005/0260446 號公開公報
- [專利文獻 18] US2005/0260447 號公開公報
- [專利文獻 19] US2005/0260448 號公開公報
- [專利文獻 20] US2005/0260449 號公開公報
- [專利文獻 21] US2005/0170206 號公開公報
- [專利文獻 22] US2005/0170207 號公開公報
- [非專利文獻 1] D.F.O'Brien and M.A.Baldo et al "Improved energy transfer in electrophosphorescent devices "Vol.74 No.3 , pp 442-444 , January 18 , 1999
- [非專利文獻 2] M.A.Baldo et al "Very high-efficiency green organic light-emitting devices

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

[非專利文獻 3] Chem.Rev.2000, 100, p39

[非專利文獻 4] J.Am.Chem.Soc., 1991, 113, p361

[非專利文獻 5] Angew.Chem.Int.Ed., 2002, 41,
p1290

[非專利文獻 6] J.Am.Chem.Soc., 1999, 121,
p2674

[非專利文獻 7] Organometallics, 1999, 18, p2370

[非專利文獻 8] Angew.Chem.Int.Ed., 2002, 41,
p1363

[非專利文獻 9] Angew.Chem.Int.Ed., 2002, 41,
p1745

[非專利文獻 10] Organometallics, 2000, 19,
p3459

[非專利文獻 11] TetrahedronAsymmetry, 2003, 14,
p951

[非專利文獻 12] J.Organomet.Chem., 1982, 239,
C26-C30

[非專利文獻 13] Chem.Comm., 2002, p2518

【發明內容】

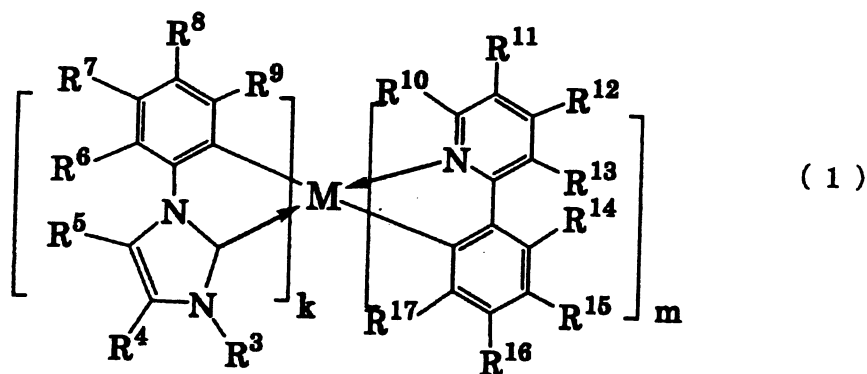
本發明為解決前述問題所成者，以提供發光效率較高，藍色發光之有機 EL 元件及實現此之新穎過渡金屬錯合

物為目的。

本發明者欲達到前述目的重複進行詳細研究結果，發現使用過渡金屬錯合物中具有金屬碳烯鍵結者，可長波長化發光波長。此現象可使用於調節發光波長為所望長度之技術上，特別可利用於將於紫外光區域中具有發光波長之材料導入於藍色需欲中具有發光之材料上（可擴大視覺波長區域）。發現藉由利用該技術，可得到發光效率較高，藍色發光之有機 EL 元件，而完成本發明。

即，本發明係關於提供具有下述一般式（1）～（3）所示金屬碳烯鍵結之過渡金屬錯合物者。

[化1]



〔一般式（1）中，C（碳原子）→M 表示金屬碳烯鍵結。M 表示 Ir 或 Pt 之金屬原子。k 表示 1～3，m 表示 0～2 之整數，k+m 表示金屬 M 之原子價。〕

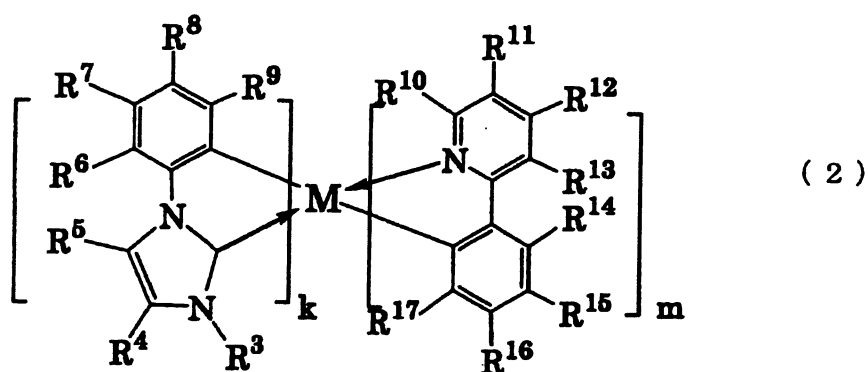
R³ 為可具有取代基之碳數 1～30 的烷基、可具有取代基之碳數 1～30 的鹵化烷基、可具有取代基之核碳數 6～30 的芳香族烴基、可具有取代基之核碳數 3～30 的環烷基

、可具有取代基之碳數 7~40 的芳烷基、可具有取代基之碳數 2~30 的烯基、可具有取代基之核原子數 3~30 的雜環基、可具有取代基之核原子數 3~30 的烷基甲矽烷基、可具有取代基之碳數 6~30 的芳基甲矽烷基、碳數 1~30 的含羧基之基。

$R^4 \sim R^{17}$ 各獨立為氫原子、鹵素原子、硫氰基，或氰基，硝基， $-S(=O)_2R^1$ 基，或 $-S(=O)R^1$ [R^1 為氫原子、可具有取代基之碳數 1~30 的烷基、可具有取代基之碳數 1~30 的鹵化烷基、可具有取代基之核碳數 6~30 的芳香族烴基、可具有取代基之核碳數 3~50 的環烷基、可具有取代基之碳數 7~40 的芳烷基、可具有取代基之碳數 2~30 的烯基、可具有取代基之核原子數 3~30 的雜環基、可具有取代基之碳數 1~30 的烷氧基、可具有取代基之核碳數 6~30 的芳氧基、可具有取代基之碳數 3~30 烷胺基、可具有取代基之碳數 6~30 的芳胺基、可具有取代基之碳數 3~30 烷基甲矽烷基、可具有取代基之碳數 6~30 的芳基甲矽烷基、或可具有取代基之碳數 1~30 的含羧基之基。]、可具有取代基之碳數 1~30 的烷基、可具有取代基之碳數 1~30 的鹵化烷基、可具有取代基之核碳數 6~30 的芳香族烴基、可具有取代基之核碳數 3~30 的環烷基、可具有取代基之碳數 7~40 的芳烷基、可具有取代基之碳數 2~30 的烯基、可具有取代基之核原子數 3~30 的雜環基、可具有取代基之碳數 1~30 的烷氧基、可具有取代基之核碳數 6~30 的芳氧基、可具有取代基之核原子數

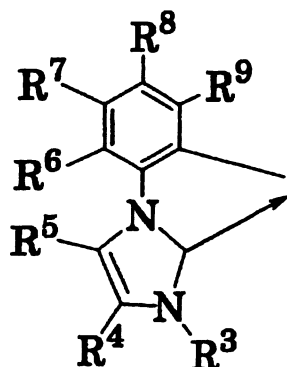
3~30 的烷基基、可具有取代基之核原子數 3~30 的烷基
甲矽烷基、可具有取代基之碳數 6~30 的芳基甲矽烷基、
碳數 1~30 的含羧基之基， $R^4 \sim R^{17}$ 為鄰接彼此下可交聯
者。]

[化2]



[一般式 (2) 中，C (碳原子) \rightarrow M 表示金屬碳烯鍵結。
M 表示 Ir 或 Pt 的金屬原子。k 表示 1~3，m 表示 0~2 之
整數， $k+m$ 表示金屬 M 之原子價。k+m 個

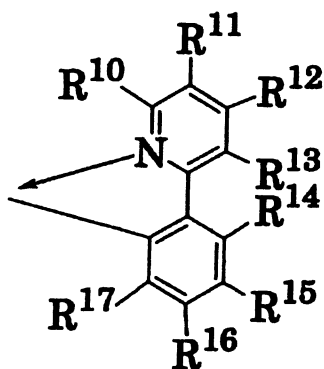
[化3]



(取代) N-苯基-N'-R³-咪唑-2-亞基-C²，C²，基

及

[化4]



(取代) 2-苯基吡啶-N, C², 基

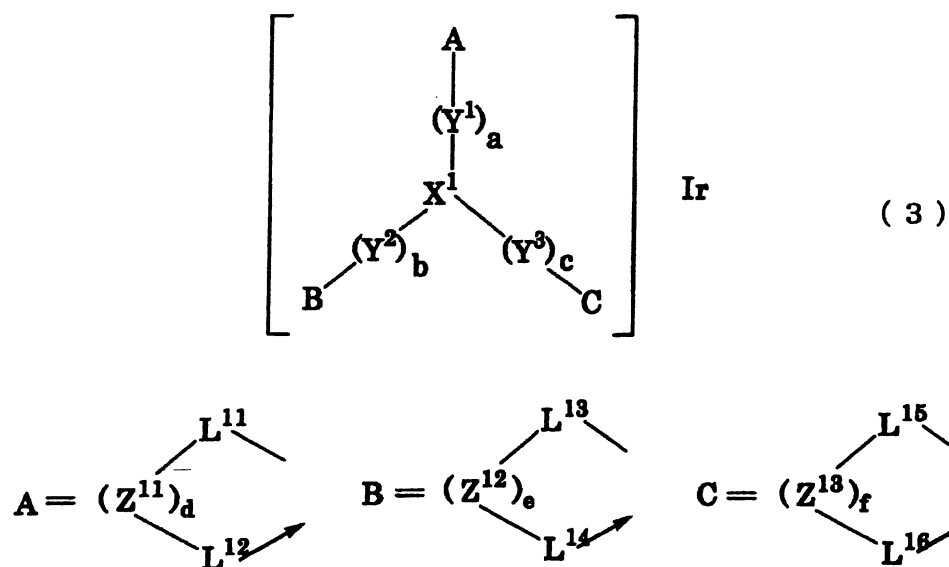
中，至少 2 個介著交聯基 -Z¹- 而交聯。Z¹ 為含有取代基之原子數 3~31 的直鏈狀交聯基或支鏈狀之交聯基，構成交聯之原子由硼、碳、矽、氧、硫、硒、氮、或磷所構成，取代基由氫、硼、碳、矽、氧、硫、硒、氮、或磷所構成。

R³ 為可具有取代基之碳數 1~30 的烷基、可具有取代基之碳數 1~30 的鹵化烷基、可具有取代基之核碳數 6~30 的芳香族烴基、可具有取代基之核碳數 3~30 的環烷基、可具有取代基之碳數 7~40 的芳烷基、可具有取代基之碳數 2~30 的烯基、可具有取代基之核原子數 3~30 的雜環基、可具有取代基之核原子數 3~30 的烷基甲矽烷基、可具有取代基之碳數 6~30 的芳基甲矽烷基、碳數 1~30 之含羧基的基。

R⁴ ~ R¹⁷ 各獨立為氫原子、鹵素原子、硫氰基，或氰

基，硝基， $-S(=O)_2R^1$ 基，或 $-S(=O)R^1$ [R^1 為氫原子、可具有取代基之碳數 1~30 的烷基、可具有取代基之碳數 1~30 的鹵化烷基、可具有取代基之核碳數 6~30 的芳香族烴基、可具有取代基之核碳數 3~50 的環烷基、可具有取代基之碳數 7~40 的芳烷基、可具有取代基之碳數 2~30 的烯基、可具有取代基之核原子數 3~30 的雜環基、可具有取代基之碳數 1~30 的烷氧基、可具有取代基之核碳數 6~30 的芳氧基、可具有取代基之碳數 3~30 的烷基胺基、可具有取代基之碳數 6~30 的芳胺基、可具有取代基之碳數 3~30 的烷基甲矽烷基、可具有取代基之碳數 6~30 的芳基甲矽烷基、或可具有取代基之碳數 1~30 的含羧基之基]、可具有取代基之碳數 1~30 的烷基、可具有取代基之碳數 1~30 的鹵化烷基、可具有取代基之核碳數 6~30 的芳香族烴基、可具有取代基之核碳數 3~30 的環烷基、可具有取代基之碳數 7~40 的芳烷基、可具有取代基之碳數 2~30 的烯基、可具有取代基之核原子數 3~30 的雜環基、可具有取代基之碳數 1~30 的烷氧基、可具有取代基之核碳數 6~30 的芳氧基、可具有取代基之核原子數 3~30 的烷基胺基、可具有取代基之核原子數 3~30 的烷基甲矽烷基、可具有取代基之碳數 6~30 的芳基甲矽烷基、碳數 1~30 之含羧基的基， $R^4 \sim R^{17}$ 為鄰接彼此下可交聯者。

[化5]



〔一般式(3)中，A表示 $L^{11}-(Z^{11})_d-L^{12}$ 所成之交聯雙牙配位子群，B表示 $L^{13}-(Z^{12})_e-L^{14}$ 所成之交聯雙牙配位子群，又C表示 $L^{15}-(Z^{13})_f-L^{16}$ 所成之交聯雙牙配位子群。 L^{11} 、 L^{13} 及 L^{15} 各表示對Ir(銻)之共價鍵($L^{11}-\text{Ir}$ 、 $L^{13}-\text{Ir}$ 及 $L^{15}-\text{Ir}$)， $L^{12}\rightarrow$ 、 $L^{14}\rightarrow$ 及 $L^{16}\rightarrow$ 各表示對Ir之配位鍵($L^{12}\rightarrow\text{Ir}$ 、 $L^{14}\rightarrow\text{Ir}$ 及 $L^{16}\rightarrow\text{Ir}$)。

X^1 為可具有取代基之 R^1C (C為碳原子， R^1 與前述相同)， $R^1\text{Si}$ (Si為矽原子， R^1 與前述相同)、氮、或磷原子。

Y^1 表示結合 X^1 與A之交聯基， Y^2 表示結合 X^1 與B之交聯基， Y^3 表示結合 X^1 與C之交聯基， Y^1 與 L^{11} 、 L^{12} 或 Z^{11} 結合， Y^2 與 L^{13} 、 L^{14} 或 Z^{12} 結合， Y^3 與 L^{15} 、 L^{16} 或 Z^{13} 結合。 Y^1 、 Y^2 及 Y^3 各獨立為由選自氫原子、碳原子、矽原子、氮原子、硫原子、氧原子、磷原子及硼原子

之群的原子所構成之化合物的 2 價殘基，可具有取代基。
 a 、 b 及 c 各獨立表示 0~10 之整數， a 、 b 或 c 為複數時，複數之 Y^1 、 Y^2 或 Y^3 各可相同或相異。

Z^{11} 表示結合 L^{11} 與 L^{12} 之交聯基、 Z^{12} 表示結合 L^{13} 與 L^{14} 之交聯基、 Z^{13} 表示結合 L^{15} 與 L^{16} 之交聯基， Z^{11} 、 Z^{12} 及 Z^{13} 各獨立為選自氫原子、碳原子、矽原子、氮原子、硫原子、氧原子、磷原子及硼原子的群之原子所構成之化合物的 2 價殘基，可具有取代基。 Z^{11} 與 Y^1 直接結合時、 Z^{12} 與 Y^2 直接結合時、或 Z^{13} 與 Y^3 直接結合時， Z^{11} 、 Z^{12} 及 Z^{13} 各相當於 3 價基。 d 、 e 及 f 各獨立表示 0~10 之整數， d 、 e 或 f 為複數時，複數 Z^{11} 、 Z^{12} 或 Z^{13} 各可相同或相異。

L^{11} 、 L^{13} 及 L^{15} 各獨立為可具有取代基之核碳數 6~30 的 2 價芳香族烴基、可具有取代基之核原子數 3~30 的 2 價雜環基、可具有取代基之碳數 1~30 的 2 價含羧基之基、可具有取代基的 2 價胺基或含羥基之烴基、可具有取代基之核碳數 3~50 的環伸烷基、可具有取代基之碳數 1~30 的伸烷基、可具有取代基之碳數 2~30 的伸烯基、可具有取代基之碳數 7~40 的伸芳烷基， L^{11} 與 Y^1 直接結合時、 L^{13} 與 Y^2 直接結合時、或 L^{15} 與 Y^3 直接結合時， L^{11} 、 L^{13} 及 L^{15} 各相當於 3 價基。

L^{12} 、 L^{14} 及 L^{16} 各獨立為可具有取代基之 1 價的二唑或二唑-2-亞基（碳烯錯合物）， L^{12} 與 Y^1 直接結合時、 L^{14} 與 Y^2 直接結合時、或 L^{16} 與 Y^3 直接結合時， L^{12} 、 L^{14}

及 L^{16} 各相當於 2 價基。]

又，本發明為提供一種陽極與陰極間挾持至少具有發光層之一層或複數層所成之有機薄膜層之有機 EL 元件中，該有機薄膜層至少 1 層為含有前述過渡金屬錯合物之有機 EL 元件。

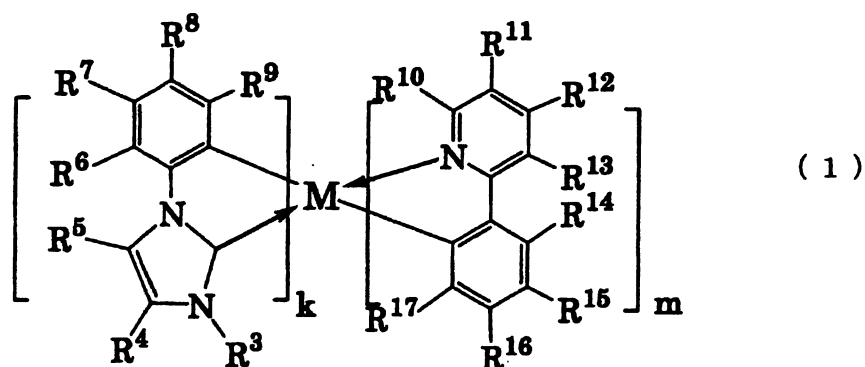
使用本發明的過渡金屬錯合物之有機 EL 元件為發光效率高，發光壽命長，其為藍色發光。

【實施方式】

本發明的過渡金屬錯合物為具有下述一般式 (1) ~ (3) 之任一所示金屬碳烯鍵結的過渡金屬錯合物。

以下，首先對一般式 (1) 做說明。

[化6]



一般式 (1) 中，C (碳原子) \rightarrow M 表示金屬碳烯鍵結。M 表示 Ir 或 Pt 之金屬原子。k 表示 1~3，m 表示 0~2 之整數，k+m 表示金屬 M 之原子價。

一般式 (1) 中， R^3 為可具有取代基之碳數 1~30

的烷基、可具有取代基之碳數 1~30 的鹵化烷基、可具有取代基之核碳數 6~30 的芳香族烴基、可具有取代基之核碳數 3~30 的環烷基、可具有取代基之碳數 7~40 的芳烷基、可具有取代基之碳數 2~30 的烯基、可具有取代基之核原子數 3~30 的雜環基、可具有取代基之核原子數 3~30 的烷基甲矽烷基、可具有取代基之碳數 6~30 的芳基甲矽烷基、碳數 1~30 的含羧基之基。

一般式 (1) 中， $R^4 \sim R^{17}$ 各獨立為氫原子、鹵素原子、硫氰基、或氰基、硝基、 $-S(=O)_2R^1$ 基、或 $-S(=O)R^1$ [R^1 為氫原子、可具有取代基之碳數 1~30 的烷基、可具有取代基之碳數 1~30 的鹵化烷基、可具有取代基之核碳數 6~30 的芳香族烴基、可具有取代基之核碳數 3~50 的環烷基、可具有取代基之碳數 7~40 的芳烷基、可具有取代基之碳數 2~30 的烯基、可具有取代基之核原子數 3~30 的雜環基、可具有取代基之碳數 1~30 的烷氧基、可具有取代基之核碳數 6~30 的芳氧基、可具有取代基之碳數 3~30 烷胺基、可具有取代基之碳數 6~30 的芳胺基、可具有取代基之碳數 3~30 烷基甲矽烷基、可具有取代基之碳數 6~30 的芳基甲矽烷基、或可具有取代基之碳數 1~30 的含羧基之基。]、可具有取代基之碳數 1~30 的烷基、可具有取代基之碳數 1~30 的鹵化烷基、可具有取代基之核碳數 6~30 的芳香族烴基、可具有取代基之核碳數 3~30 的環烷基、可具有取代基之碳數 7~40 的芳烷基、可具有取代基之碳數 2~30 的烯基、可具有取代基之核

原子數 3~30 的雜環基、可具有取代基之碳數 1~30 的烷氧基、可具有取代基之核碳數 6~30 的芳氧基、可具有取代基之核原子數 3~30 的烷胺基、可具有取代基之核原子數 3~30 的烷基甲矽烷基、可具有取代基之碳數 6~30 的芳基甲矽烷基、碳數 1~30 的含羧基之基， $R^4 \sim R^{17}$ 為鄰接彼此下可交聯者。

作為前述烷基，以碳數 1~10 者為佳，例如可舉出甲基、乙基、丙基、異丙基、正丁基、第二丁基、異丁基、第三丁基、正戊基、正己基、正庚基、正辛基、正壬基、正癸基、正十一烷基、正十二烷基、正十三烷基、正十四烷基、正十五烷基、正十六烷基、正十七烷基、正十八烷基、新戊基、1-甲基戊基、2-甲基戊基、1-戊基己基、1-丁基戊基、1-戊基辛基、3-甲基戊基、羥基甲基、1-羥基乙基、2-羥基乙基、2-羥基異丁基、1,2-二羥基乙基、1,3-二羥基異丙基、2,3-二羥基-第三丁基、1,2,3-三羥基丙基、胺基甲基、1-胺基乙基、2-胺基乙基、2-胺基異丁基、1,2-二胺基乙基、1,3-二胺基異丙基、2,3-二胺基第三丁基、1,2,3-三胺基丙基、氰基甲基、1-氰基乙基、2-氰基乙基、2-氰基異丁基、1,2-二氰基乙基、1,3-二氰基異丙基、2,3-二氰基第三丁基、1,2,3-三氰基丙基、硝基甲基、1-硝基乙基、2-硝基乙基、1,2-二硝基乙基、2,3-二硝基第三丁基、1,2,3-三硝基丙基、環戊基、環己基、環辛基、3,5-四甲基環己基等。

其中較佳為甲基、乙基、丙基、異丙基、正丁基、第

二丁基、異丁基、第三丁基、正戊基、正己基、正庚基、正辛基、正壬基、正癸基、正十一烷基、正十二烷基、正十三烷基、正十四烷基、正十五烷基、正十六烷基、正十七烷基、正十八烷基、新戊基、1-甲基戊基、1-戊基己基、1-丁基戊基、1-庚基辛基、環己基、環辛基、3,5-四甲基環己基。

作為前述鹵化烷基，以碳數 1~10 者為佳，例如可舉出氯甲基、1-氯乙基、2-氯乙基、2-氯異丁基、1,2-二氯乙基、1,3-二氯異丙基、2,3-二氯第三丁基、1,2,3-三氯丙基、溴甲基、1-溴乙基、2-溴乙基、2-溴異丁基、1,2-二溴乙基、1,3-二溴異丙基、2,3-二溴第三丁基、1,2,3-三溴丙基、碘甲基、1-碘乙基、2-碘乙基、2-碘異丁基、1,2-二碘乙基、1,3-二碘異丙基、2,3-二碘第三丁基、1,2,3-三碘丙基、氟甲基、1-氟甲基、2-氟甲基、2-氟異丁基、1,2-二氟乙基、二氟甲基、三氟甲基、五氟乙基、全氟異丙基、全氟丁基、全氟環己基等。

其中較佳為氟甲基、三氟甲基、五氟乙基、全氟異丙基、全氟丁基、全氟環己基。

作為前述芳香族烴基，以核碳數 6~18 者為佳，例如可舉出苯基、1-萘基、2-萘基、1-蒽基、2-蒽基、9-蒽基、1-菲基、2-菲基、3-菲基、4-菲基、9-菲基、1-萘並萘基、2-萘並萘基、9-萘並萘基、1-嵌二萘基、2-嵌二萘基、4-嵌二萘基、2-聯苯基、3-聯苯基、4-聯苯基、對第三苯基-4-基、對第三苯基-3-基、對第三苯基-2-基、間第三

苯基-4-基、間第三苯基-3-基、間第三苯基-2-基、鄰甲苯基、間甲苯基、對甲苯基、對第三丁基苯基、對-(2-苯基丙基)苯基、3-甲基-2-萘基、4-甲基-1-萘基、4-甲基-1-蒎基、4'-甲基聯苯基、4''-第三丁基對第三苯基-4-基、鄰枯烯基、間枯烯基、對枯烯基、2,3-二甲苯基、3,4-二甲苯基、2,5-二甲苯基、均三甲苯基、全氟苯基等。

其中以苯基、1-萘基、2-萘基、9-菲基、2-聯苯基、3-聯苯基、4-聯苯基、對甲苯基、3,4-二甲苯基為佳。

作為前述環烷基，例如可舉出環丙基、環丁基、環戊基、環己基、4-甲基環己基、1-金剛烷基、2-金剛烷基、1-原菠烷基、2-原菠烷基等。

作為前述芳烷基，以碳數 7~18 者為佳，例如可舉出苯甲基、1-苯基乙基、2-苯基乙基、1-苯基異丙基、2-苯基異丙基、苯基第三丁基、 α -萘基甲基、1- α -萘基乙基、2- α -萘基乙基、1- α -萘基異丙基、2- α -萘基異丙基、 β -萘基甲基、1- β -萘基乙基、2- β -萘基乙基、1- β -萘基異丙基、2- β -萘基異丙基、1-吡咯基甲基、2-(1-吡咯基)乙基、對甲基苯甲基、間甲基苯甲基、鄰甲基苯甲基、對氯苯甲基、間氯苯甲基、鄰氯苯甲基、對溴苯甲基、間溴苯甲基、鄰溴苯甲基、對碘苯甲基、間碘苯甲基、鄰碘苯甲基、對羥基苯甲基、間羥基苯甲基、鄰羥基苯甲基、對胺基苯甲基、間胺基苯甲基、鄰胺基苯甲基、對硝基苯甲基、間硝基苯甲基、鄰硝基苯甲基、對氰基苯甲基、間氰基苯甲基、鄰氰基苯甲基、1-羥基-2-苯基異丙基、1-

氯-2-苯基異丙基等，較佳為苯甲基、對氰基苯甲基、間氰基苯甲基、鄰氰基苯甲基、1-苯基乙基、2-苯基乙基、1-苯基異丙基、2-苯基異丙基。

作為前述烯基，以碳數 2~16 者為佳，例如可舉出乙烯基、烯丙基、1-丁烯基、2-丁烯基、3-丁烯基、1,3-丁二烯基、1-甲基乙烯基、苯乙烯、2,2-二苯基乙烯基、1,2-二苯基乙烯基、1-甲基烯丙基、1,1-二甲基烯丙基、2-甲基烯丙基、1-苯基烯丙基、2-苯基烯丙基、3-苯基烯丙基、3,3-二苯基烯丙基、1,2-二甲基烯丙基、1-苯基-1-丁烯基、3-苯基-1-丁烯基等，較佳為苯乙烯基、2,2-聯苯基乙烯基、1,2-二苯基乙烯基。

作為前述雜環基，以核原子數 3~18 者為佳，例如可舉出 1-吡咯基、2-吡咯基、3-吡咯基、吡嗪基、2-吡啶基、1-咪唑基、2-咪唑基、1-吡啶基、1-吡啶基、2-吡啶基、3-吡啶基、5-吡啶基、6-吡啶基、7-吡啶基、8-吡啶基、2-咪唑吡啶基、3-咪唑吡啶基、5-咪唑吡啶基、6-咪唑吡啶基、7-咪唑吡啶基、8-咪唑吡啶基、3-吡啶基、4-吡啶基、1-吡啶基、2-吡啶基、3-吡啶基、4-吡啶基、5-吡啶基、6-吡啶基、7-吡啶基、1-異吡啶基、2-異吡啶基、3-異吡啶基、4-異吡啶基、5-異吡啶基、6-異吡啶基、7-異吡啶基、2-呋喃基、3-呋喃基、2-苯並呋喃基、3-苯並呋喃基、4-苯並呋喃基、5-苯並呋喃基、6-苯並呋喃基、7-苯並呋喃基、1-異苯並呋喃基、3-異苯並呋喃基、4-異苯並呋喃基、5-異苯並呋喃基、6-異苯並

呋喃基、7-異苯並呋喃基、2-喹啉基、3-喹啉基、4-喹啉
 基、5-喹啉基、6-喹啉基、7-喹啉基、8-喹啉基、1-異喹
 啉基、3-異喹啉基、4-異喹啉基、5-異喹啉基、6-異喹啉
 基、7-異喹啉基、8-異喹啉基、2-喹喔啉基、5-喹喔啉基
 、6-喹喔啉基、1-吡啶基、2-吡啶基、3-吡啶基、4-吡啶
 基、9-吡啶基、 β -吡啶-1-基、 β -吡啶-3-基、 β -吡啶-4-
 基、 β -吡啶-5-基、 β -吡啶-6-基、 β -吡啶-7-基、 β -吡
 啶-8-基、 β -吡啶-9-基、1-菲啶基、2-菲啶基、3-菲啶基
 、4-菲啶基、6-菲啶基、7-菲啶基、8-菲啶基、9-菲啶基
 、10-菲啶基、1-吡啶基、2-吡啶基、3-吡啶基、4-吡啶基
 、9-吡啶基、1,7-菲繞啉-2-基、1,7-菲繞啉-3-基、1,7-菲
 繞啉-4-基、1,7-菲繞啉-5-基、1,7-菲繞啉-6-基、1,7-菲繞
 啉-8-基、1,7-菲繞啉-9-基、1,7-菲繞啉-10-基、1,8-菲繞
 啉-2-基、1,8-菲繞啉-3-基、1,8-菲繞啉-4-基、1,8-菲繞
 啉-5-基、1,8-菲繞啉-6-基、1,8-菲繞啉-7-基、1,8-菲繞
 啉-9-基、1,8-菲繞啉-10-基、1,9-菲繞啉-2-基、1,9-菲繞
 啉-3-基、1,9-菲繞啉-4-基、1,9-菲繞啉-5-基、1,9-菲繞
 啉-6-基、1,9-菲繞啉-7-基、1,9-菲繞啉-8-基、1,9-菲繞
 啉-10-基、1,10-菲繞啉-2-基、1,10-菲繞啉-3-基、1,10-菲
 繞啉-4-基、1,10-菲繞啉-5-基、2,9-菲繞啉-1-基、2,9-菲
 繞啉-3-基、2,9-菲繞啉-4-基、2,9-菲繞啉-5-基、2,9-菲繞
 啉-6-基、2,9-菲繞啉-7-基、2,9-菲繞啉-8-基、2,9-菲繞
 啉-10-基、2,8-菲繞啉-1-基、2,8-菲繞啉-3-基、2,8-菲繞
 啉-4-基、2,8-菲繞啉-5-基、2,8-菲繞啉-6-基、2,8-菲繞

啉 -7-基、2,8-菲繞啉 -9-基、2,8-菲繞啉 -10-基、2,7-菲繞
 啉 -1-基、2,7-菲繞啉 -3-基、2,7-菲繞啉 -4-基、2,7-菲繞
 啉 -5-基、2,7-菲繞啉 -6-基、2,7-菲繞啉 -8-基、2,7-菲繞
 啉 -9-基、2,7-菲繞啉 -10-基、1-吩噻嗪基、2-吩噻嗪基、1-吩
 噻嗪基、2-吩噻嗪基、3-吩噻嗪基、4-吩噻嗪基、10-吩噻
 嗪基、1-吩噁嗪基、2-吩噁嗪基、3-吩噁嗪基、4-吩噁嗪
 基、10-吩噁嗪基、2-噁唑基、4-噁唑基、5-噁唑基、2-噁
 二唑基、5-噁二唑基、3-呋喃基、2-噻吩基、3-噻吩基、
 2-甲基吡咯 -1-基、2-甲基吡咯 -3-基、2-甲基吡咯 -4-基、
 2-甲基吡咯 -5-基、3-甲基吡咯 -1-基、3-甲基吡咯 -2-基、
 3-甲基吡咯 -4-基、3-甲基吡咯 -5-基、2-第三丁基吡咯 -4-
 基、3-(2-苯基丙基)吡咯 -1-基、2-甲基-1-吡啶基、4-甲
 基-1-吡啶基、2-甲基-3-吡啶基、4-甲基-3-吡啶基、2-第
 三丁基-1-吡啶基、4-第三丁基-1-吡啶基、2-第三丁基-3-吡
 啶基、4-第三丁基-3-吡啶基、吡咯烷、吡啶烷、哌啶烷等
 。

其中以 2-吡啶基、1-吡啶基、2-吡啶基、3-吡啶
 基、5-吡啶基、6-吡啶基、7-吡啶基、8-吡啶基、
 2-咪唑吡啶基、3-咪唑吡啶基、5-咪唑吡啶基、6-咪
 唑吡啶基、7-咪唑吡啶基、8-咪唑吡啶基、3-吡啶基、4-
 吡啶基、1-吡啶基、2-吡啶基、3-吡啶基、4-吡啶基、5-
 吡啶基、6-吡啶基、7-吡啶基、1-異吡啶基、2-異吡啶基
 、3-異吡啶基、4-異吡啶基、5-異吡啶基、6-異吡啶基、
 7-異吡啶基、1-咪唑基、2-咪唑基、3-咪唑基、4-咪唑基

、9-咪唑基。

前述烷氧基及芳氧基為 $-OX^1$ 所示基，作為 X^1 的例子可舉出與前述烷基及鹵化烷基及芳基所說明之相同例子。

前述烷胺基及芳胺基為 $-NX^1X^2$ 所示基，作為 X^1 及 X^2 的例子各可舉出與前述烷基及鹵化烷基及芳基所說明之相同例子。

作為前述含有羧基的基，例如可舉出甲酯、乙酯、丁酯等。

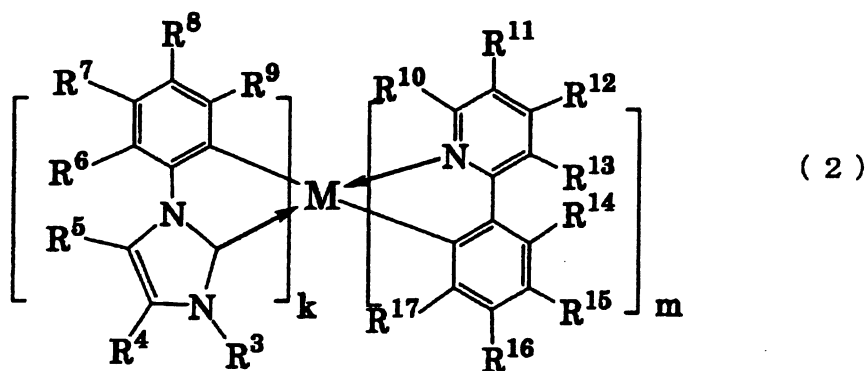
作為前述烷基甲矽烷基，例如可舉出三甲基甲矽烷基、三乙基甲矽烷基、第三丁基二甲基甲矽烷基、乙烯基二甲基甲矽烷基、丙基二甲基甲矽烷基等。

作為前述芳基甲矽烷基，例如可舉出三苯基甲矽烷基、苯基二甲基甲矽烷基、第三丁基二苯基甲矽烷基等。

一般式 (1) 中， $R^4 \sim R^{17}$ 為鄰接者彼此間交聯，例如形成如苯並咪喃之環狀結構。

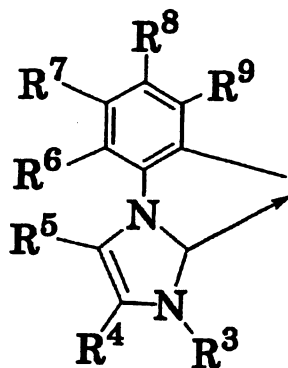
其次，對一般式 (2) 做說明。

[化7]



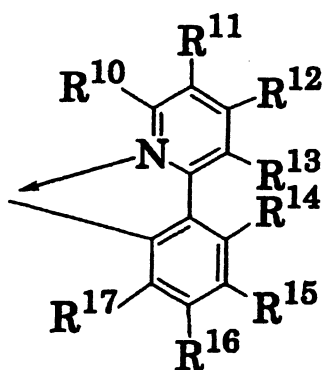
一般式 (2) 中，C (碳原子) \rightarrow M 表示金屬碳烯鍵結。
 M 表示 Ir 或 Pt 之金屬原子。k 表示 1~3，m 表示 0~2
 之整數，k+m 表示金屬 M 之原子價。k+m 個

[化8]



(取代) N-苯基-N'-R³-咪唑-2-亞基-C²,C^{2'}基
 及

[化9]



(取代) 2-苯基吡啶-N,C^{2'}基
 中，至少 2 的介著交聯基-Z¹-而交聯。Z¹ 為含有取代基之
 原子數 3~31 的直鏈狀交聯基或支鏈狀之交聯基，構成交

聯之原子係由硼、碳、矽、氧、硫、硒、氮、或磷所構成，取代基係由氫原子、硼、碳、矽、氧、硫、硒、氮、或磷所構成。

前述 Z^1 為伸烷基時，以碳數 1~10 者為佳，例如可舉出伸甲基、伸乙基、伸丙基、異伸丙基、n-伸丁基、s-伸丁基、異伸丁基、t-伸丁基、n-伸戊基、n-伸己基、n-伸庚基、n-伸辛基、n-伸壬基、n-伸癸基等。

一般式 (2) 中， $R^3 \sim R^{17}$ 與前述一般式 (1) 相同，具體例亦可舉出相同者。

一般式 (2) 中， $R^4 \sim R^{17}$ 為鄰接者彼此間交聯，例如可形成如苯並呔喃之環狀結構。

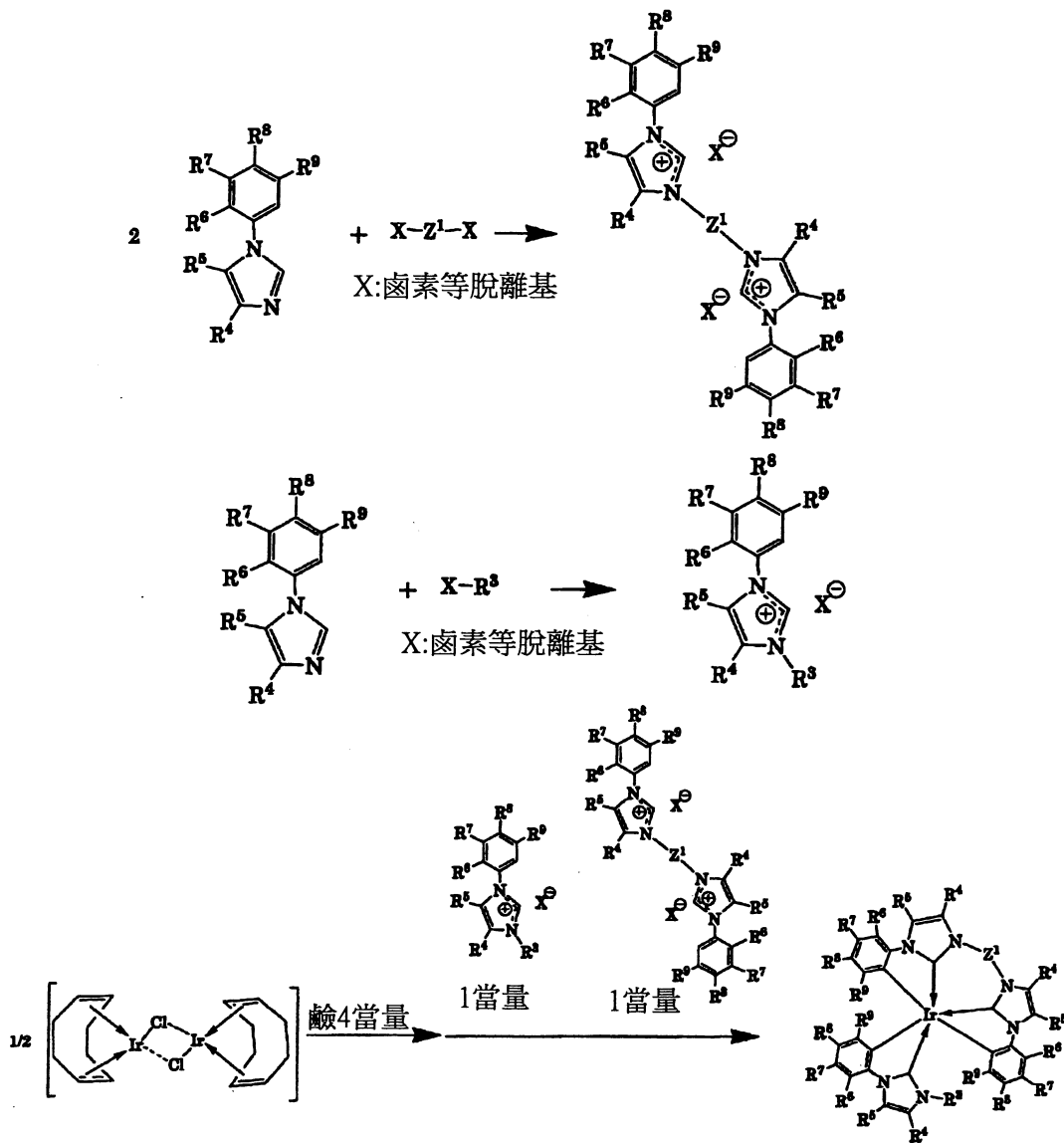
一般式 (1) 及 (2) 中，M 係 Ir 為佳。

又，一般式 (1) 及 (2) 中，前述 $R^6 \sim R^9$ 的至少 1 個為 -F、-CF₃ 或 -CN 時，其具有可將於紫外光區域所產生的發光波長變化為藍色區域的作用而較佳。此時，-CF₃ 為 R^6 之位置時為特佳。

其次，對於本發明的一般式 (2) 之過渡金屬錯合物的製造方法，如下說明其中一例子。

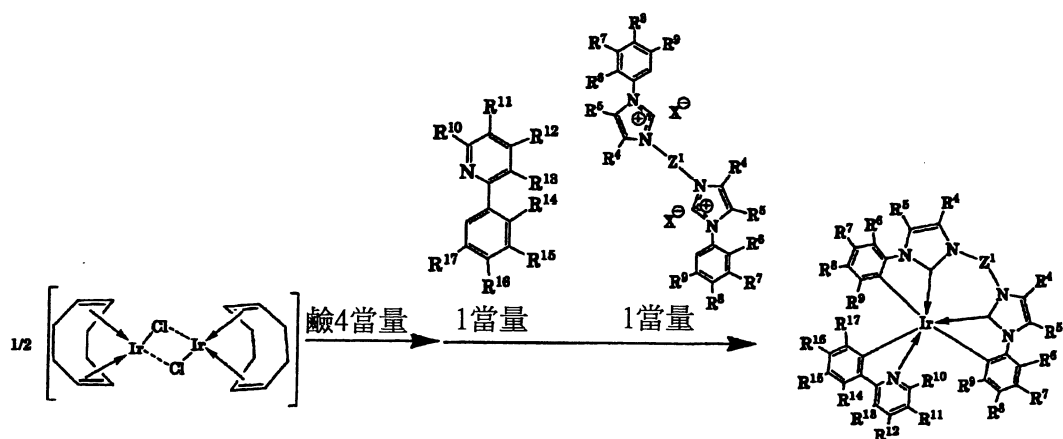
1. 一般式 (2) ($k=3$ 、 $m=0$ 、M 為 Ir) 之過渡金屬錯合物的合成方法

[化10]



2. 一般式 (2) ($k = 2$ 、 $m = 1$ 、 M 為 Ir) 之過渡金屬錯合物的合成方法

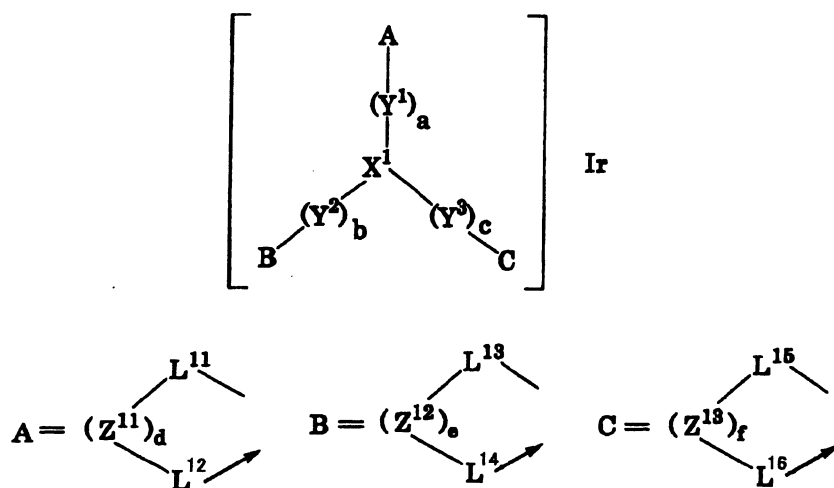
[化11]



上述例 1 及 2. 中，配位子分 2 次添加（任意順序），可進行 2 段式合成。

其次，對於一般式（3）做說明。

[化12]



一般式（3）中，A 表示 $L^{11} - (Z^{11})_d - L^{12}$ 所成之交聯雙牙配位子群，B 表示 $L^{13} - (Z^{12})_e - L^{14}$ 所成之交聯雙牙配位子群，又 C 表示 $L^{15} - (Z^{13})_f - L^{16}$ 所成之交聯雙牙配位子群。 L^{11} 、 L^{13} 及 L^{15} 各表示對 Ir（銱）之共價鍵（

$L^{11}-Ir$ 、 $L^{13}-Ir$ 及 $L^{15}-Ir$)， $L^{12}\rightarrow$ 、 $L^{14}\rightarrow$ 及 $L^{16}\rightarrow$ 各表示對 Ir 之配位鍵 ($L^{12}\rightarrow Ir$ 、 $L^{14}\rightarrow Ir$ 及 $L^{16}\rightarrow Ir$)。

一般式 (3) 中， X^1 為可具有取代基之 R^1C (C 為碳原子， R^1 與前述相同)、 R^1Si (Si 為矽原子， R^1 與前述相同)、氮、或磷原子，下述結構為佳。作為取代基可舉出與前述 R^3 同樣之例子。

[化13]



一般式 (3) 中， Y^1 表示結合 X^1 與 A 之交聯基、 Y^2 表示結合 X^1 與 B 之交聯基、 Y^3 表示結合 X^1 與 C 之交聯基， Y^1 與 L^{11} 、 L^{12} 或 Z^{11} 結合， Y^2 與 L^{13} 、 L^{14} 或 Z^{12} 結合， Y^3 與 L^{15} 、 L^{16} 或 Z^{13} 結合； Y^1 、 Y^2 及 Y^3 各獨立表示選自氫原子、碳原子、矽原子、氮原子、硫原子、氧原子、磷原子及硼原子之群的原子所構成之化合物的 2 價殘基，亦可具有取代基。

一般式 (3) 中， a 、 b 及 c 各獨立表示 0~10 的整數，以 0~3 為佳， a 、 b 或 c 為複數時，複數之 Y^1 、 Y^2 或 Y^3 可各相同或相異。

作為 Y^1 、 Y^2 及 Y^3 的具體例子，可舉出 $-CR^1R^2-$ 、 $-SiR^1R^2-$ 、 $-NR^1-$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-PR^1-$ 及 $-BR^1-$ 等。 R^1 及 R^2

與上述 R^1 相同，各自獨立為相同或相異， R^1 及 R^2 可與 X^1 交聯，或以 R^1 及 R^2 交聯。a、b、及 c 表示複數時，各 Y^1 、各 Y^2 及各 Y^3 可任意選自前述 $-CR^1R^2-$ 、 $-SiR^1R^2-$ 、 $-NR^1-$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-PR^1-$ 及 $-BR^1-$ 。又，此時各 Y^1 、各 Y^2 及各 Y^3 間之 R^1 及 R^2 可與 X^1 交聯、或以 R^1 及 R^2 交聯。

作為 Y^1 、 Y^2 及 Y^3 的較佳具體結構，例如可舉出 $-CH_2-$ 、 $-CMe_2-$ 、 $-CMeH-$ 、 $-CEtH-$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-SiH_2-$ 、 $-SiMe_2-$ 、 $-SiMeH-$ 、 $-SiEtH-$ 、 $-NH-$ 、 $-NMe-$ 、 $-NEt-$ 、 $-PH-$ 、 $-PMe-$ 、 $-PEt-$ 、 $-BH-$ 、 $-BMe-$ 、 $-BEt-$ （Me 表示甲基、Et 表示乙基）等。

一般式 (3) 中， Z^{11} 表示結合 L^{11} 與 L^{12} 之交聯基， Z^{12} 表示結合 L^{13} 與 L^{14} 之交聯基、 Z^{13} 表示結合 L^{15} 與 L^{16} 之交聯基， Z^{11} 、 Z^{12} 及 Z^{13} 各獨立為選自氫原子、碳原子、矽原子、氮原子、硫原子、氧原子、磷原子及硼原子之群的原子所構成之化合物的 2 價殘基，可具有取代基。 Z^{11} 與 Y^1 直接結合時、 Z^{12} 與 Y^2 直接結合時、或 Z^{13} 與 Y^3 直接結合時， Z^{11} 、 Z^{12} 及 Z^{13} 各相當於 3 價基。

一般式 (3) 中，d、e 及 f 各獨立表示 0~10 的整數，以 0~3 為佳，d、e 或 f 為複數時，複數之 Z^{11} 、 Z^{12} 或 Z^{13} 可各相同或相異。

一般式 (3) 中， L^{11} 、 L^{13} 或 L^{15} 各獨立表示可具有取代基的核碳數 6~30 的 2 價芳香族烴基、可具有取代基的核原子數 3~30 的 2 價雜環基、可具有取代基的碳數 1~30 的 2 價含羧基的基、可具有取代基的 2 價胺基或含有羥

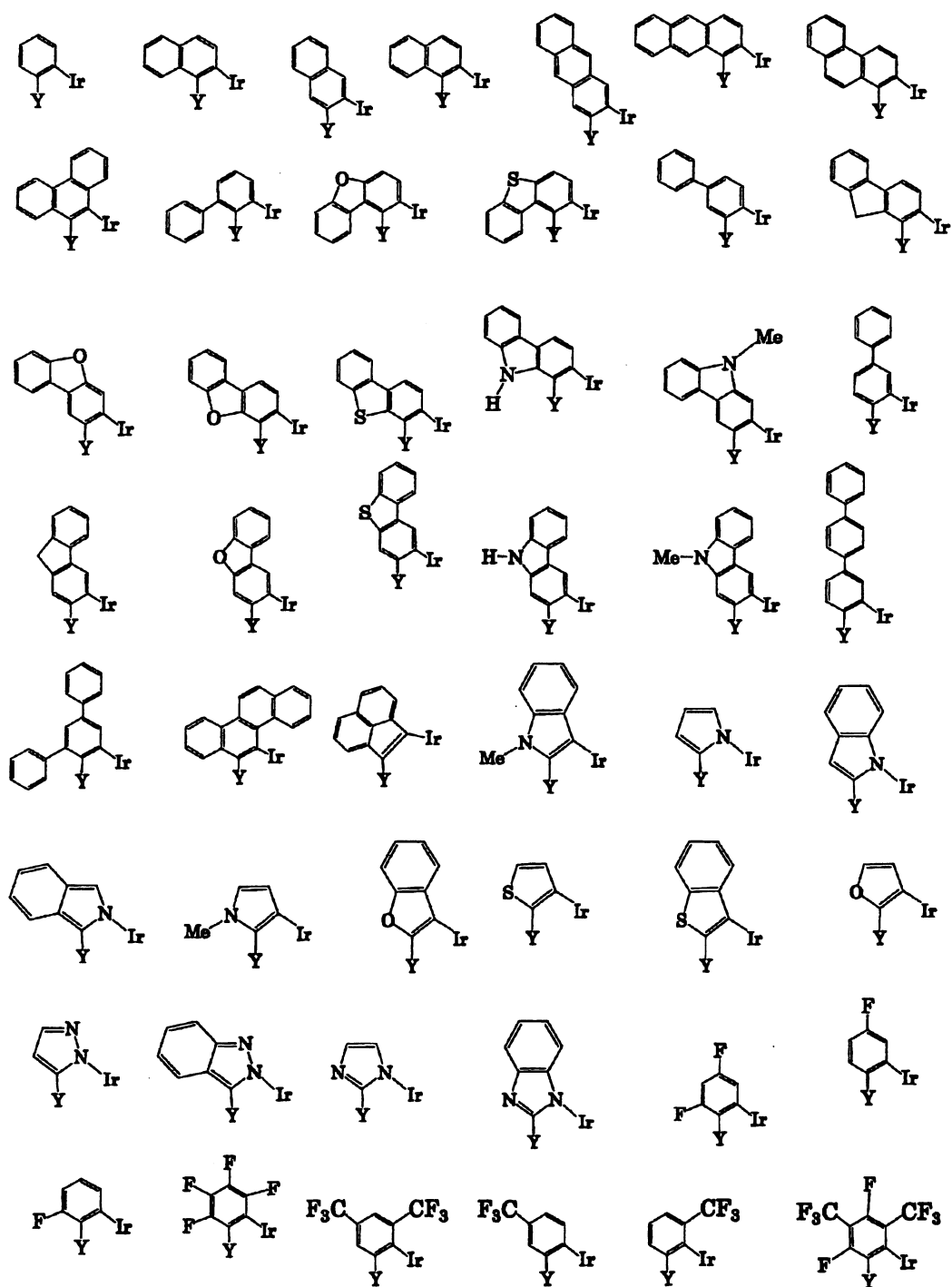
基的烴基、可具有取代基的核碳數 3~50 的環伸烷基、可具有取代基的碳數 1~30 的伸烷基、可具有取代基的碳數 2~30 的伸烯基、可具有取代基的碳數 7~40 的伸芳烷基， L^{11} 與 Y^1 直接結合時、 L^{13} 與 Y^2 直接結合時、或 L^{15} 與 Y^3 直接結合時， L^{11} 、 L^{13} 或 L^{15} 為各相當之 3 價基。

作為這些 2 價的芳香族烴基、2 價雜環基、2 價含有羧基的基、環伸烷基、伸烷基、伸烯基及伸芳基的例子，可舉出將前述 $R^4 \sim R^{17}$ 所說明的芳香族烴基、雜環基、含有羧基的基、環烷基、烷基、烯基及芳烷基之例子成為 2 價者，較佳基亦相同。

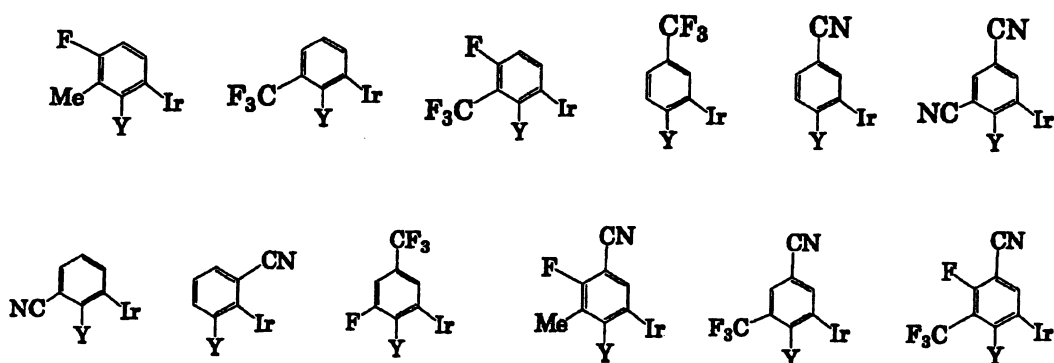
又，作為 2 價的胺基或含有羥基的烴基之例子可舉出前述 L^{11} 、 L^{13} 及 L^{15} 所示具有各烴基之胺基、及前述烴基的氫原子由羥基所取代者。

又，前述 L^{11} 、 L^{13} 及 L^{15} 為芳香族烴基或雜環基為佳，例如以下述所示的結構為佳。其中以苯基及取代苯基為佳。且下述例子中 Y 表示鄰接的鍵結基、即 L^{12} 、 L^{14} 或 L^{16} 。

[化14]



[化15]



一般式 (3) 中， L^{11} 、 L^{13} 及 L^{15} 的至少 1 個具有 -F、 $-CF_3$ 或 -CN 之取代基、核碳數 6~30 的 2 價或 3 價芳香族烴基、核原子數 3~30 的 2 價雜環基、碳數 1~30 的 2 價含羧基之基、2 價胺基或含烴基之烴基、核碳數 3~50 的環伸烷基、碳數 1~30 的伸烷基、碳數 2~30 的伸烯基、或碳數 7~40 的伸芳烷基時，因具有將於紫外光區域所產生的發光波長變化為藍色區域的發光之作用而較佳。

又，一般式 (3) 中， L^{11} 、 L^{13} 及 L^{15} 的取代基為鄰接者彼此間交聯，例如亦可形成如苯並吡喃之環狀結構。

一般式 (3) 中， L^{12} 、 L^{14} 及 L^{16} 各獨立為可具有取代基之 1 價二唑或二唑-2-亞基（碳烯錯合物）， L^{12} 與 Y^1 直接結合時、 L^{14} 與 Y^2 直接結合時，或 L^{16} 與 Y^3 直接結合時， L^{12} 、 L^{14} 及 L^{16} 各相當於 2 價基。

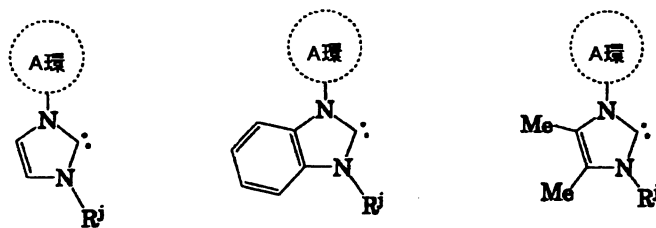
作為前述二唑可舉出 1,2-二唑（吡唑）、1,3-二唑（咪唑），以 1,3-二唑為佳。

一般式 (3) 中， L^{12} 、 L^{14} 及 L^{16} 中，至少 1 個為具有碳烯碳之基為佳， L^{12} 、 L^{14} 及 L^{16} 為具有碳烯碳之基為更

佳。

又，作為前述碳烯錯合物，一般與金屬同時形成安定碳烯者為佳，具體可舉出以下例子。且，下述例子中，A環為鄰接之結合基，即表示 L^{11} 、 L^{13} 或 L^{15} 。R^j 與前述 R³ 相同。

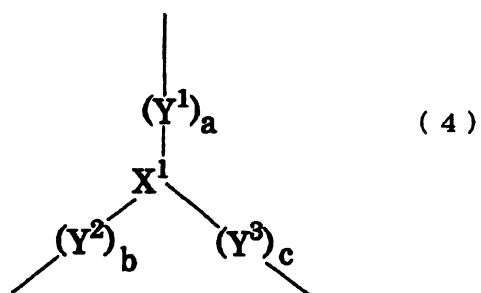
[化16]



一般式 (3) 中，構成下述交聯部位 (4) 之原子量總計以 200 以下為佳，以 100 以下為更佳。

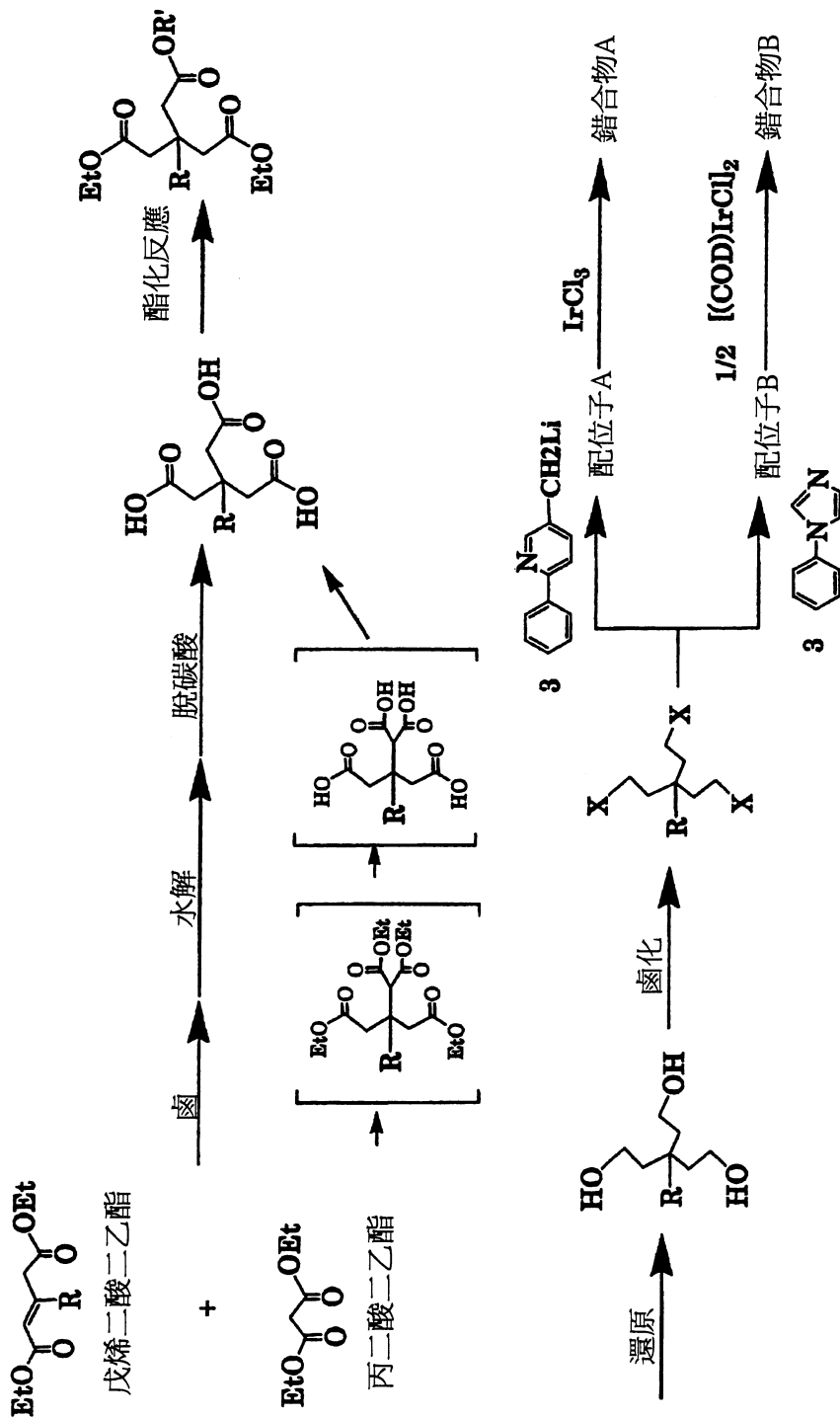
若使交聯部位 (4) 的原子量總和變小時，僅一般式 (3) 中之 A、B、C 部位相同，僅使該原子量總和變小，錯合物之分子量亦可變小，可保持製造有機 EL 元件時的昇華過程中之高純度故較佳。因此，具有藉由使交聯部位之原子量總和變小，提高錯合物之純度、或有機 EL 元件之純度的效果。

[化17]

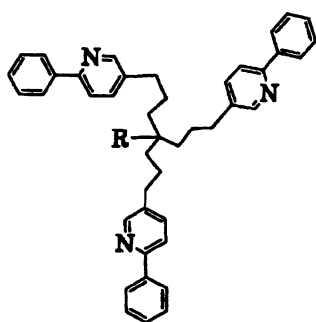


其次，本發明的一般式(3)之過渡金屬錯合物的製造方法中，以下為製造步驟之一例子。(R表示取代基，參考文獻：J.Am.Chem.Soc. 第96卷，16號，1974年，p5189、及 Bull.Chem.Soc.JAPAN 第69卷，1996年，p3317)

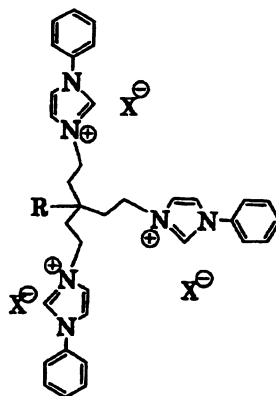
[化18]



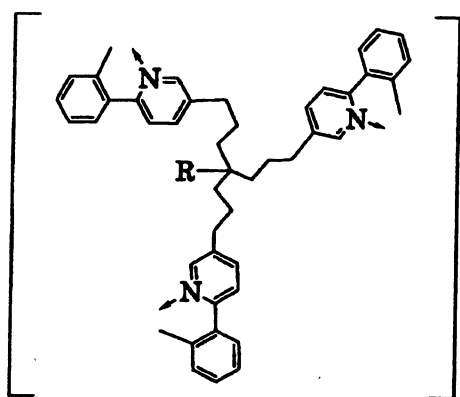
[化19]



配位子A

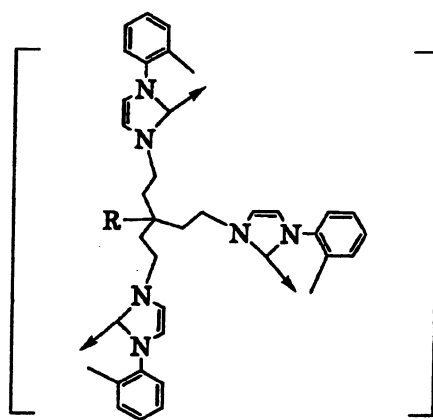


配位子B



錯合物A

Ir



錯合物B

Ir

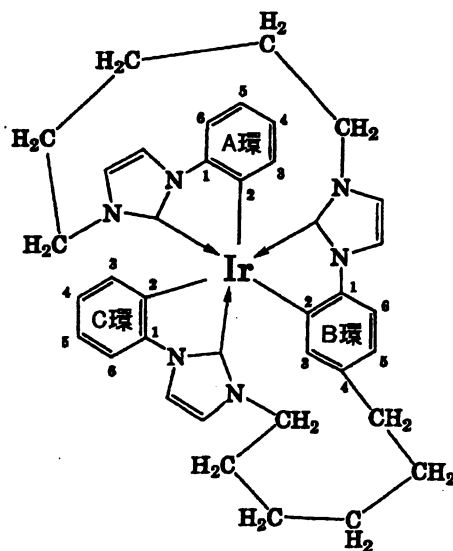
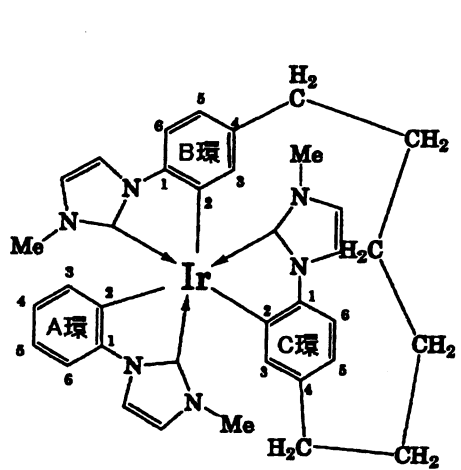
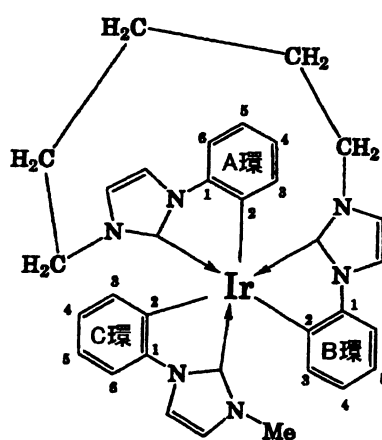
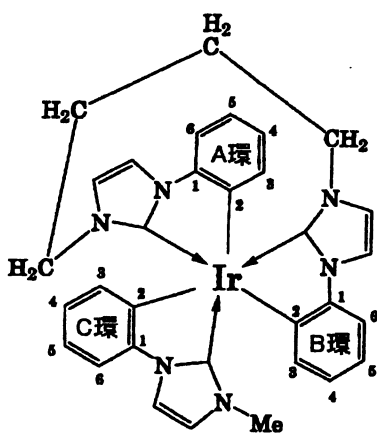
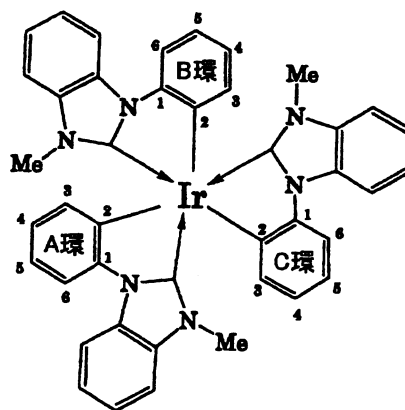
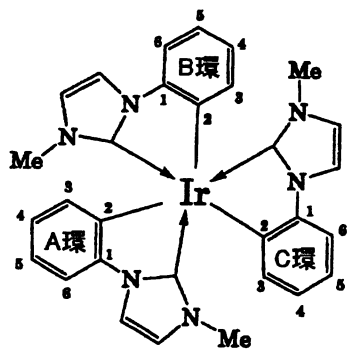
作為前述一般式(1)~(3)中之各基的取代基，可舉出取代或無取代之核碳數5~50的芳基、取代或無取代之碳數1~50的烷基、取代或無取代之碳數1~50的烷氧基、取代或無取代之核碳數6~50的芳烷基、取代或無取代之核碳數5~50的芳氧基、取代或無取代之核碳數5~50的芳基硫基、取代或無取代之碳數1~50的烷氧基羰基、胺基、鹵素原子、氰基、硝基、羥基、羧基等。

彼等中，亦以碳數1~10的烷基、碳數5~7的環烷基、碳數1~10的烷氧基為佳，碳數1~6的烷基、碳數5

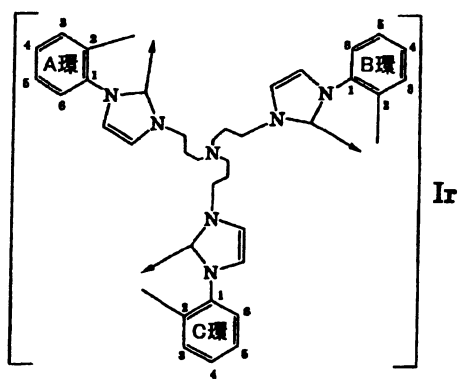
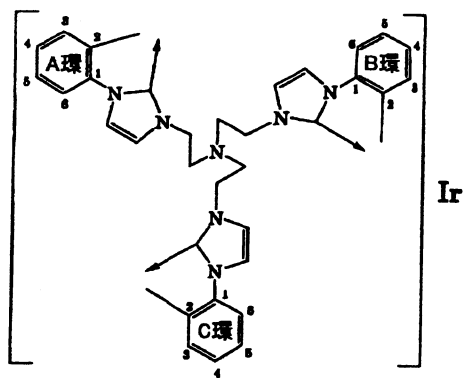
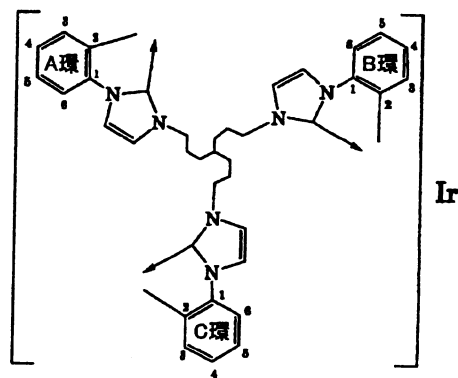
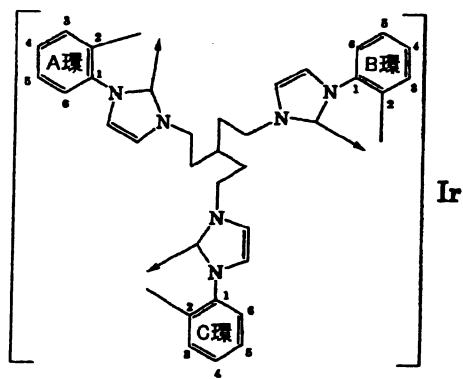
~ 7 的環烷基為較佳，甲基、乙基、n-丙基、異丙基、n-丁基、sec-丁基、tert-丁基、n-戊基、n-己基、環戊基、環己基為特佳。

可舉出以下的前述一般式 (1) ~ (3) 所示過渡金屬錯合物之具體例，但未限定於這些。

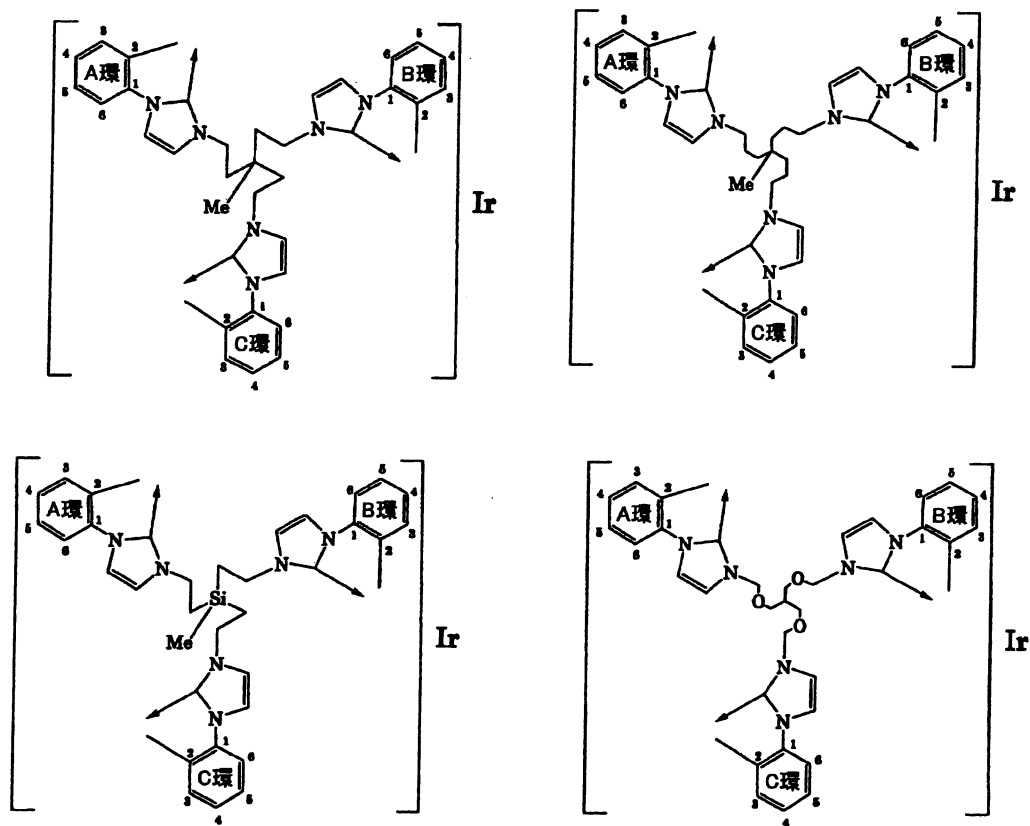
[化20]



[化21]



[化22]



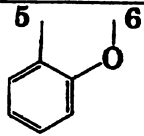
[化23]

取代基之位置	3 位	4 位	5 位	6 位
A環	-H	-CN	-H	-H
B環	-H	-CN	-H	-H
C環	-H	-CN	-H	-H

取代基之位置	3 位	4 位	5 位	6 位
A環	-H	-H	-H	-CF ₃
B環	-H	-H	-H	-CF ₃
C環	-H	-H	-H	-CF ₃

取代基之位置	3 位	4 位	5 位	6 位
A環	-H	-H	-F	-Me
B環	-H	-H	-F	-Me
C環	-H	-H	-F	-Me

[化24]

取代基之位置	3 位	4 位	5 位	6 位
A環	-H	-H	5, 6-BF:	
B環	-H	-H	5, 6-BF:	
C環	-H	-H	5, 6-BF:	

取代基之位置	3 位	4 位	5 位	6 位
A環	-H	-CN	-H	-CN
B環	-H	-CN	-H	-CN
C環	-H	-CN	-H	-CN

取代基之位置	3 位	4 位	5 位	6 位
A環	-H	-CN	-H	-CF ₃
B環	-H	-CN	-H	-CF ₃
C環	-H	-CN	-H	-CF ₃

取代基之位置	3 位	4 位	5 位	6 位
A環	-H	-CF ₃	-H	-CF ₃
B環	-H	-CF ₃	-H	-CF ₃
C環	-H	-CF ₃	-H	-CF ₃

取代基之位置	3 位	4 位	5 位	6 位
A環	-H	-CN	-F	-H
B環	-H	-CN	-F	-H
C環	-H	-CN	-F	-H

取代基之位置	3 位	4 位	5 位	6 位
A環	-H	-H	-F	-CF ₃
B環	-H	-H	-F	-CF ₃
C環	-H	-H	-F	-CF ₃

取代基之位置	3 位	4 位	5 位	6 位
A環	-H	-CN	-F	-CN
B環	-H	-CN	-F	-CN
C環	-H	-CN	-F	-CN

取代基之位置	3 位	4 位	5 位	6 位
A環	-H	-CF ₃	-F	-CF ₃
B環	-H	-CF ₃	-F	-CF ₃
C環	-H	-CF ₃	-F	-CF ₃

[化25]

取代基之位置	3 位	4 位	5 位	6 位
A環	-H	-CN	-H	-H
B環	-H	-CN	-H	-H
C環	-H	-H	-H	-CF ₃

取代基之位置	3 位	4 位	5 位	6 位
A環	-H	-CN	-H	-H
B環	-H	-H	-H	-CF ₃
C環	-H	-H	-H	-CF ₃

取代基之位置	3 位	4 位	5 位	6 位
A環	-H	-H	-H	-H
B環	-H	-H	-H	-H
C環	-H	-CN	-H	-H

取代基之位置	3 位	4 位	5 位	6 位
A環	-H	-H	-H	-H
B環	-H	-H	-H	-H
C環	-H	-H	-H	-CF ₃

取代基之位置	3 位	4 位	5 位	6 位
A環	-H	-H	-H	-H
B環	-H	-H	-H	-H
C環	-H	-H	-F	-Me

取代基之位置	3 位	4 位	5 位	6 位
A環	-H	-H	-H	-H
B環	-H	-H	-H	-H
C環	-H	-H	5, 6-BF	

取代基之位置	3 位	4 位	5 位	6 位
A環	-H	-CN	-H	-H
B環	-H	-H	-H	-CF ₃
C環	-H	-H	5, 6-BF	

取代基之位置	3 位	4 位	5 位	6 位
A環	-H	-CF ₃	-H	-H
B環	-H	-H	-H	-CF ₃
C環	-H	-H	5, 6-BF	

取代基之位置	3 位	4 位	5 位	6 位
A環	-H	-CN	-H	-H
B環	-H	-H	-H	-CF ₃
C環	-H	-H	-F	-Me

本發明的有機 EL 元件為陽極與陰極所成之一對電極間挾持至少含有發光層的一層或複數層所成的有機薄膜層之有機 EL 元件中，該有機薄膜層的至少一層為含有前述過渡金屬錯合物，以含有本發明一般式 (1) ~ (3) 之任一者所示之過渡金屬錯合物為佳。

作為前述有機薄膜層中的本發明的金屬錯合物之含有量，對於發光層全體之質量而言，一般為 0.1 ~ 100 重量%，1 ~ 30 重量% 為佳。

本發明的有機 EL 元件為，前述發光層含有本發明的過渡金屬錯合物作為發光材料或摻雜物為佳。又，一般前述發光層為藉由真空蒸鍍或塗佈而薄膜化，但塗佈於製造過程上可簡略化，故含有本發明的過渡金屬錯合物的層可藉由塗佈而成膜而較佳。

本發明的有機 EL 元件中，作為有機薄膜層為單層型者時有機薄膜層為發光層，該發光層含有本發明的金屬錯合物。又，作為多層型的有機 EL 元件，可舉出（陽極/電洞注入層（電洞輸送層）/發光層/陰極）、（陽極/發光層/電子注入層（電子輸送層）/陰極）、（陽極/電洞注入層（電洞輸送層）/發光層/電子注入層（電子輸送層）陰極）等。

本發明的有機 EL 元件之陽極為將電洞供給於電洞注入層、電洞輸送層、發光層等者，具有 4.5 eV 以上的功函數時具有效果。作為陽極材料，可使用金屬、合金、金屬氧化物、電傳導性化合物、或這些混合物等。作為陽極材

料的具體例子，可舉出氧化錫、氧化鋅、氧化銦、氧化銦錫（ITO）等導電性金屬氧化物、或金、銀、鉻、鎳等金屬、及與這些導電性金屬氧化物與金屬之混合物或層合物、碘化銅、硫化銅等有機導電性物質、聚苯胺、聚噻吩、聚吡咯等有機導電性材料、及這些與ITO之層合物等，較佳為導電性金屬氧化物，特別為生產性、高導電性、透明性等觀點來看使用ITO為佳。陽極的膜厚可依材料做適宜選擇。

本發明的有機EL元件的陰極為將電子供給於電子注入層、電子輸送層、發光層等者，作為陰極的材料，可使用金屬、合金、金屬鹵素化合物、金屬氧化物、電傳導性化合物、或這些混合物。作為陰極的材料之具體例子，可舉出鹼金屬（例如，Li、Na、K等）及其氟化物或氧化物、鹼土類金屬（例如，Mg、Ca等）及其氟化合物或氧化物、金、銀、鉛、鋁、鈉-鉀合金或鈉-鉀混合金屬、鋰-鋁合金或鋰-鋁混合金屬、鎂-銀合金或鎂-銀混合金屬、或銦、鐿等稀土類金屬等。其中較佳為鋁、鋰-鋁合金或鋰-鋁混合金屬、鎂-銀合金或鎂-銀混合金屬等。陰極可為前述材料的單層結構，或含有前述材料的層之層合結構亦可。例如鋁/氟化鋰、鋁/氧化鋰之層合結構為佳。陰極的膜厚可依材料做適當選擇。

本發明的有機EL元件之電洞注入層及電洞輸送層僅為，具有由陽極注入電洞之功能、輸送電洞的功能、障礙由陰極注入之電子的功能之任一者。作為其具體例子為呋

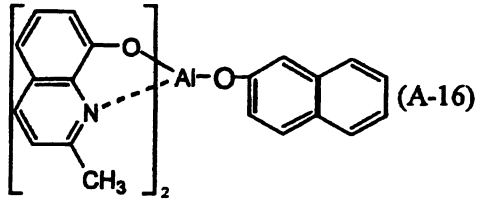
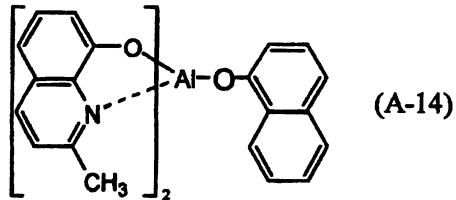
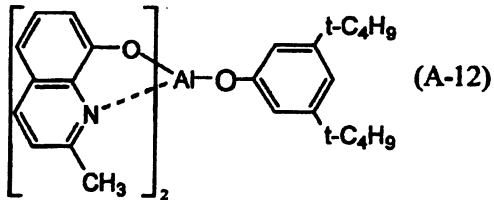
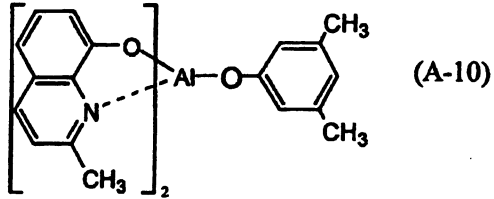
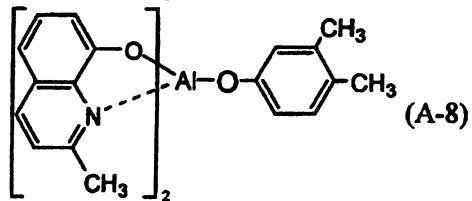
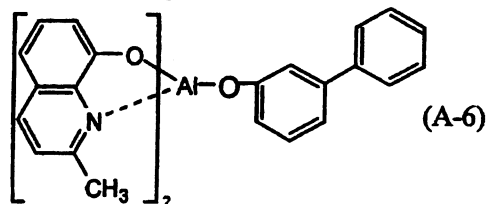
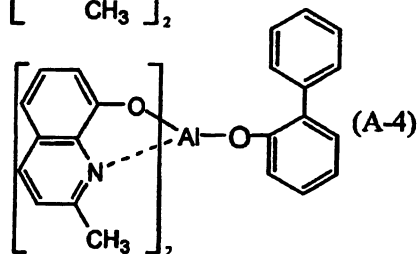
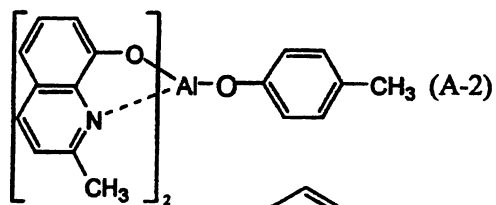
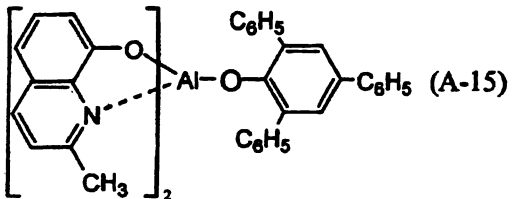
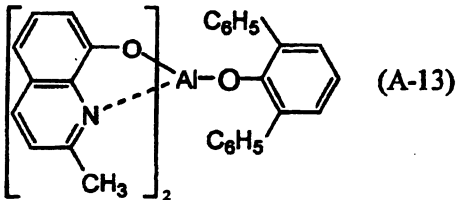
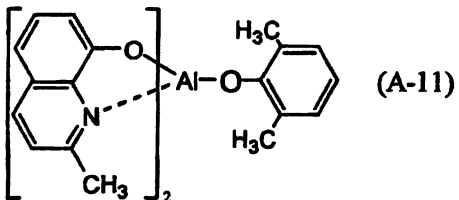
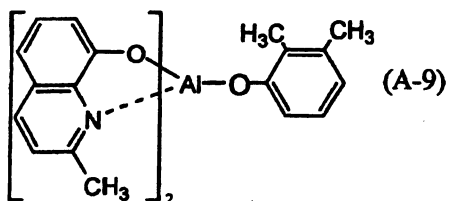
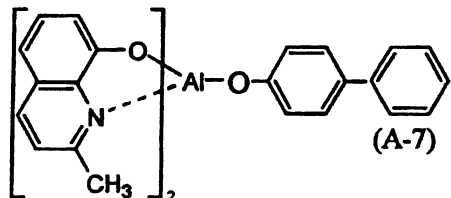
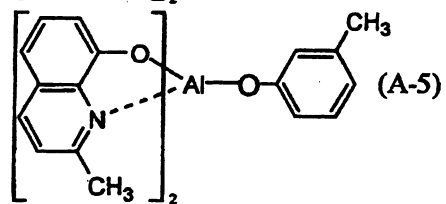
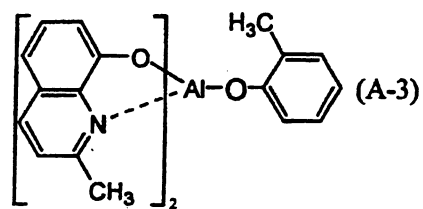
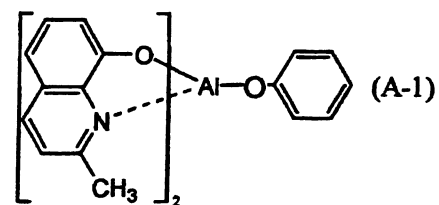
唑衍生物、三唑衍生物、噁唑衍生物、噁二唑衍生物、咪唑衍生物、聚芳基鏈烷衍生物、吡啶衍生物、吡啶-5-酮衍生物、仲苯基二胺衍生物、芳基胺衍生物、胺取代苯丙烯醯苯衍生物、苯乙烯蔥衍生物、9-芴酮衍生物、腺衍生物、芪衍生物、矽胺烷衍生物、芳香族第三級胺化合物、苯乙烯胺化合物、芳香族二甲川系化合物、卟啉系化合物、聚矽烷系化合物、聚(N-乙炔基咪唑)衍生物、苯胺系共聚物、噻吩寡聚物、聚噻吩等導電性高分子寡聚糖、有機矽烷衍生物、本發明的過渡金屬錯合物等。又，前述電洞注入層及前述電洞輸送層可為1種或2種以上的前述材料所成之單層結構，或同一組成或異種組成之複數層所成的多層結構。

本發明的有機EL元件之電子注入層及電子輸送層具有由陰注入電子之功能、輸送電子的功能、障礙由陽極注入之電洞的功能之任一者。作為其具體例子為三唑衍生物、噁唑衍生物、噁二唑衍生物、咪唑衍生物、9-芴酮衍生物、蔥二甲烷衍生物、蔥酮衍生物、二苯基醯衍生物、噻喃二氧化物衍生物、碳化二亞胺衍生物、亞芴甲烷衍生物、二苯乙烯吡嗪衍生物、萘、二萘嵌苯等芳香環四胺酸酐、酞菁衍生物、8-喹啉酚衍生物之金屬錯合物或金屬酞菁、苯並噁唑或苯並噻唑作為配位子的金屬錯合物為代表的各種金屬錯合物、有機矽烷衍生物、本發明的過渡金屬錯合物等。又，前述電子注入層及前述電子輸送層可為1種或2種以上的前述材料所成之單層結構，或同一組成或異

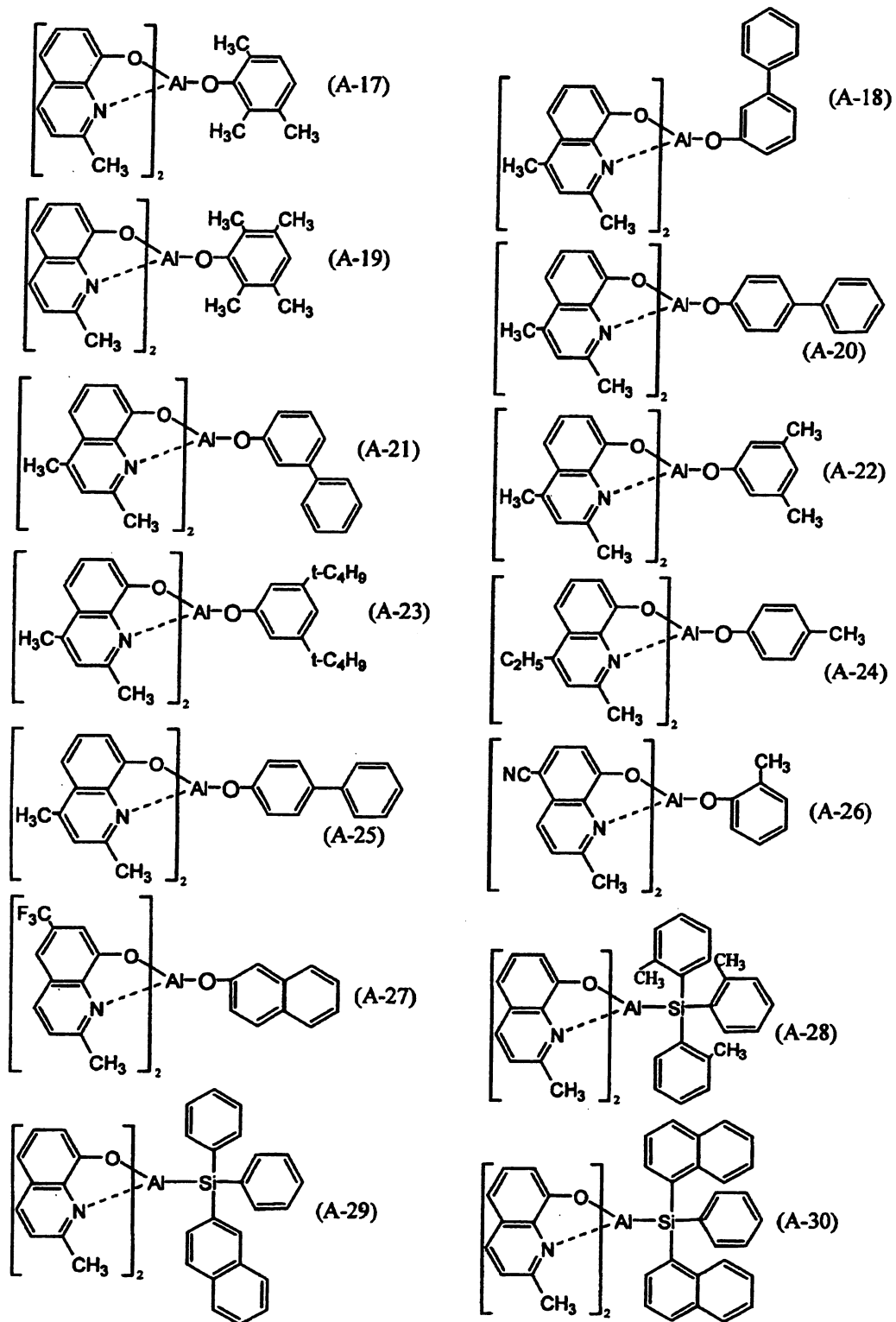
種組成之複數層所成的多層結構。

且，作為使用於電子注入層及電子輸送層的電子輸送材料，可舉出下述化合物。

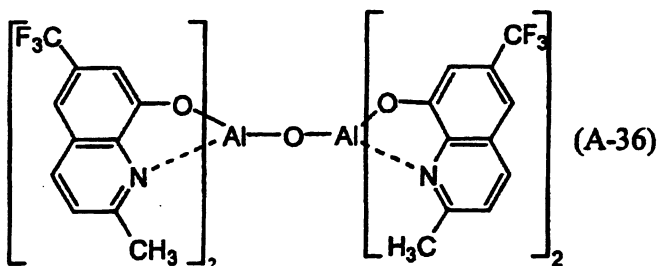
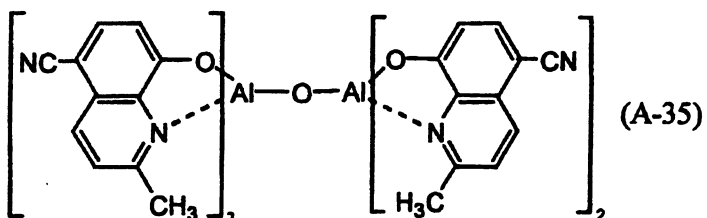
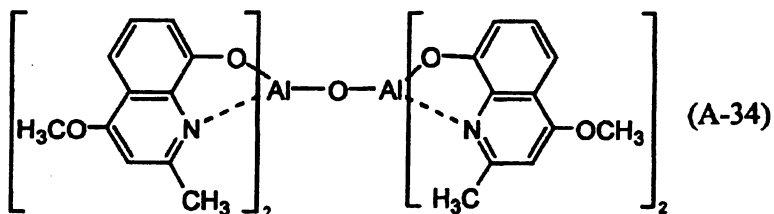
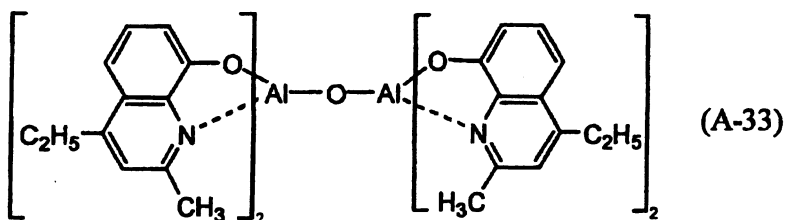
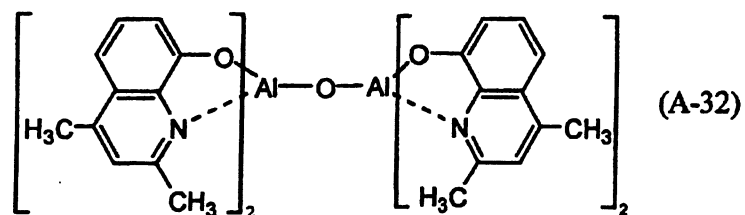
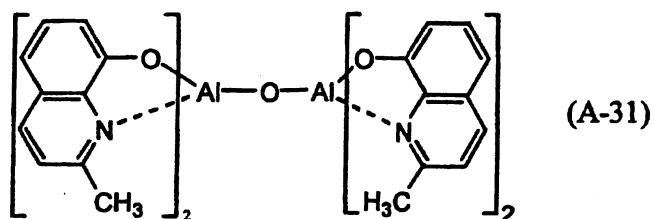
[化26]



[化27]



[化28]

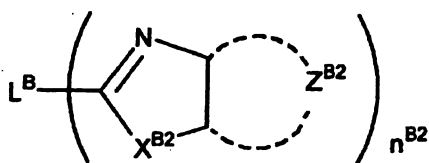


本發明的有機 EL 元件中，該電子注入層及/或電子輸送層含有以 π 電子欠缺性含氮雜環衍生物作為主成分為佳

作為 π 電子欠缺性含氮雜環衍生物，可舉出選自苯並咪唑環、苯甲三唑環、吡啶咪唑環、嘧啶咪唑環等含氮 5 員環之衍生物或吡啶環、嘧啶環、吡嗪環、三嗪環所構成的含氮 6 員環衍生物為較佳例子，作為含氮 5 員環衍生物，可舉出下述一般式 B-I 式所表示的結構為佳。作為含氮 6 員環衍生物，可舉出下述一般式 C-I、C-II、C-III、C-IV、C-V 及 C-VI 所表示的結構為佳，特佳為一般式 C-I 及 C-II 所表示的結構。

[化29]

(B-I)



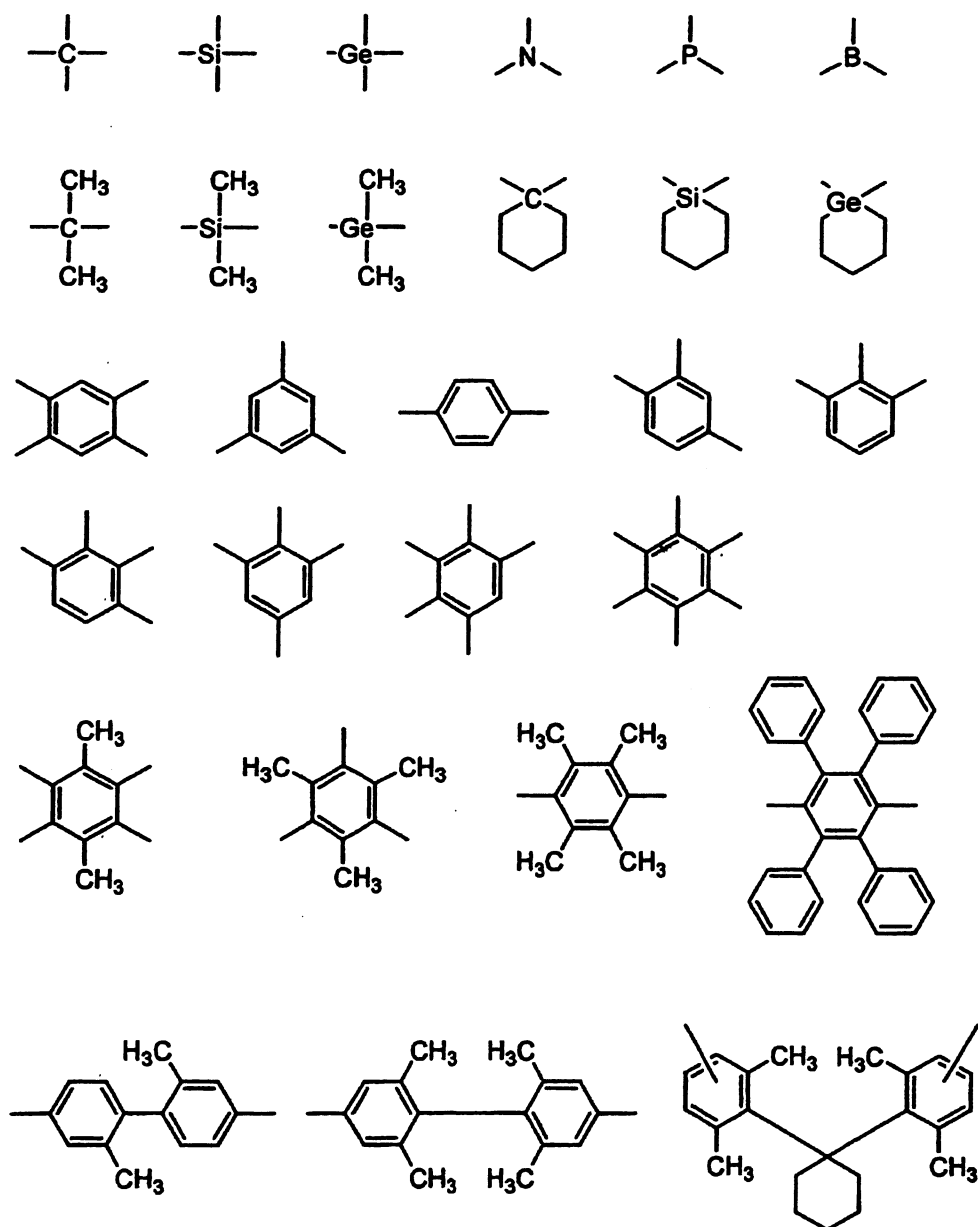
一般式 (B-I) 中， L^B 表示二價以上的鍵結基，較佳為碳、矽、氮、硼、氧、硫、金屬、金屬離子等所形成的鍵結基，較佳為碳原子、氮原子、矽原子、硼原子、氧原子、硫原子、芳香族烴環、芳香族雜環、更佳為碳原子、矽原子、芳香烴環、芳香族雜環。

L^B 表示可具有取代基，作為較佳的取代基可舉出烷基、烯基、炔基、芳香族烴基、胺基、烷氧基、芳基氧基、醯基、烷氧基羰基、芳基氧基羰基、醯基氧基、醯基胺基、烷氧基羰基胺基、芳基氧基羰基胺基、磺醯基胺基、胺

磺醯基、胺基甲醯基、烷基硫代基、芳基硫代基、磺醯基、鹵素原子、氰基、芳香族雜環基，較佳為烷基、芳基、烷氧基、芳基氧基、鹵素原子、氰基、芳香族雜環基、更佳為烷基、芳基、烷氧基、芳基氧基、芳香族雜環基、特佳為烷基、芳基、烷氧基、芳香族雜環基。

作為 L^B 所表示的鍵結基之具體例子可舉出以下者。

[化30]



一般式 (B-I) 中， X^{B^2} 表示 -O-、-S- 或 =N- R^{B^2} 。 R^{B^2} 表示氫原子、脂肪族烴基、芳基、雜環基。

R^{B^2} 所表示的脂肪族烴基可舉出直鏈、支鏈或環狀烴基 (較佳為碳數 1~20，更佳為碳數 1~12，特佳為碳數 1~8 的烴基，例如可舉出甲基、乙基、異丙基、第三丁基、正辛基、正癸基、正十六烷基、環丙基、環戊基、環己基等。)、烯基 (較佳為碳數 2~20，更佳為碳數 2~12，特佳為碳數 2~8 的烯基，例如可舉出乙烯基、烯丙基、2-丁烯基、3-戊烯基等)、炔基 (較佳為碳數 2~20，更佳為碳數 2~12，特佳為碳數 2~8 的炔基，例如可舉出炔丙基、3-戊炔基等)，較佳為烴基。

R^{B^2} 所表示的芳基可為單環或縮環之芳基，較佳為碳數 6~30，更佳為碳數為 6~20，特佳為碳數 6~12，例如可舉出苯基、2-甲基苯基、3-甲基苯基、4-甲基苯基、2-甲氧基苯基、3-三氟甲基苯基、五氟苯基、1-萘基、2-萘基等。

R^{B^2} 所表示的雜環基可為單環或縮環之雜環基 (較佳為碳數 1~20，更佳為碳數 1~12，特佳為碳數 2~10 的雜環基)，較佳為含有至少 1 個氮原子、氧原子、硫原子、硒原子之芳香族雜環基，例如可舉出吡咯烷、哌啶、哌嗪、嗎啉、噁吩、硒吩、呋喃、吡咯、咪唑、吡唑、吡啶、吡嗪、噻吩、噻唑、噻二唑、三唑、三嗪、吡啶、吡嗪、噁唑、噁二唑、噁唑啉、噁二唑、噁啉、異噁啉、酞嗪、茶錠、喹啉、喹啉、噻啉、蝶啶、吡

啖、菲繞啞、吩嗪、四唑、苯並咪唑、苯並噁唑、苯並噻唑、苯並三唑、TAI、吡唑、吡庚因等，較佳為呋喃、噻吩、吡啶、吡嗪、嘧啶、噻嗪、三嗪、喹啞、酞嗪、萘啞、喹啞啞、喹啞啞，較佳為呋喃、噻吩、吡啶、喹啞，更佳為喹啞。

R^{B^2} 所表示的脂肪族烴基、芳基、雜環基可具有取代基之與前述 L^B 相同者。

作為 R^{B^2} 的較佳例子為烷基、芳基、芳基族雜環基，更佳為芳基、芳香族雜環基、特佳為芳基。

作為 X^{B^2} 的較佳例子為 $-O-$ 、 $=N-R^{B^2}$ ，更佳為 $=N-R^{B^2}$ ，特佳為 $=N-Ar^{B^2}$ (Ar^{B^2} 表示芳基 (較佳為碳數 6~30，更佳為碳數 6~20，特佳為碳數 6~12 之芳基)、芳香族雜環基 (較佳為碳數 1~20，更佳為碳數 1~12，特佳為碳數 2~10 的芳香族雜環基))，較佳為芳基)。

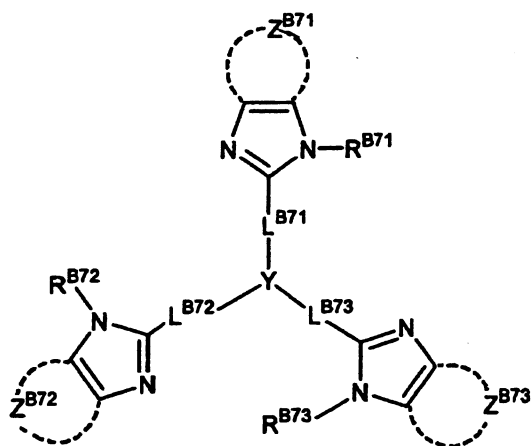
Z^{B^2} 表示形成芳香族還所必須的原子群。 Z^{B^2} 所形成的芳香族環為芳香族烴環、芳香族雜環之任一皆可，作為具體可舉出苯環、吡啶環、吡嗪環、嘧啶環、噻嗪環、三唑環、吡咯環、呋喃環、噻吩環、噻吩環、噻吩環、咪唑環、噻唑環、噻唑環、四唑環、噻二唑環、噁二唑環、吡啞環等，較佳為苯環、吡啶環、吡嗪環、嘧啶環、噻嗪環，更佳為苯環、吡啶環、吡嗪環，特佳為苯環、吡啶環。 Z^{B^2} 所形成的芳香族環可再與其他環形成縮合環，且可具有取代基。作為取代基，較佳為烷基、烯基、炔基、芳基、胺基、烷氧基、芳基氧基、醯基、烷氧基羰基、芳基氧

基羰基、醯基氧基、醯基胺基、烷氧基羰基胺基、芳基氧基羰基胺基、磺醯基胺基、胺磺醯基、胺基甲醯基、烷基硫代基、芳基硫代基、磺醯基、鹵素原子、氰基、雜環基、較佳為烷基、芳基、烷氧基、芳基氧基、鹵素原子、氰基、雜環基，更佳為烷基、芳基、烷氧基、芳基氧基、芳香族雜環基，特佳為烷基、芳基、烷氧基、芳香族雜環基。

n^{B2} 表示 1~4 的整數，2~3 為較佳。

前述一般式 (B-I) 所表示的化合物之中，較佳為下述一般式 (B-II) 所表示的化合物。

[化31]



一般式 (B-II) 中， R^{B71} 、 R^{B72} 及 R^{B73} 各表示與一般式 (B-I) 中的 R^{B2} 相同意義，又較佳範圍亦相同。

Z^{B71} 、 Z^{B72} 及 Z^{B73} 各表示與一般式 (B-I) 中的 Z^{B2} 相同意義，又較佳範圍亦相同。

L^{B71} 、 L^{B72} 及 L^{B73} 各表示鍵結基，可舉出一般式 (B-

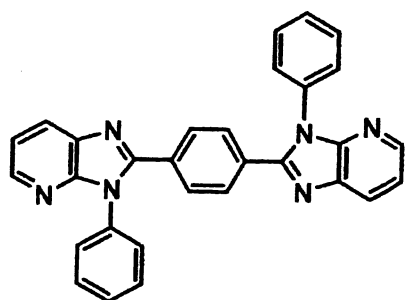
I) 中 L^B 為二價的例子，較佳為單鍵、二價之芳香族烴環基、二價的芳香族雜環基、及這些組合所成之鍵結基，較佳為單鍵。 L^{B71} 、 L^{B72} 及 L^{B73} 可具有取代基，作為取代基可舉出與一般式 (B-I) 之 L^B 相同者。

Y 表示氮原子、1,3,5-苯三基或 2,4,6-三嗪三基。1,3,5-苯三基可於 2,4,6-位置上具有取代基，作為取代基可舉出烷基、芳香族烴環基、鹵素原子等。

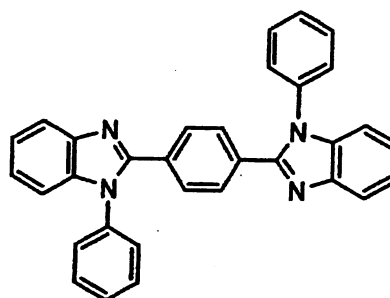
一般式 (B-I) 或 (B-II) 所表示的含氮 5 員環衍生物之具體例子如以下所示，但並不限定於這些例舉的化合物。

[化32]

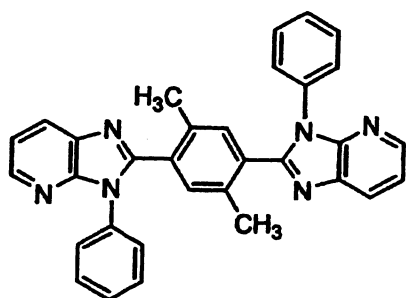
(B-1)



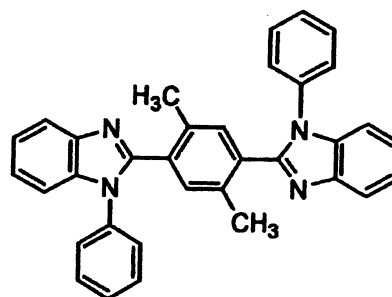
(B-5)



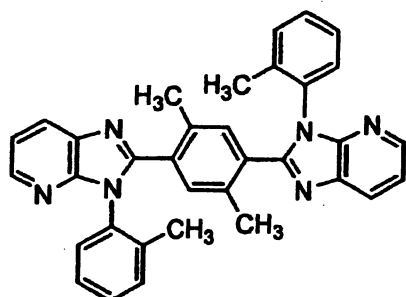
(B-2)



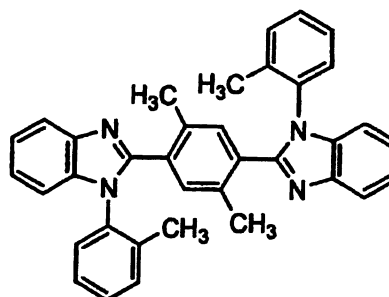
(B-6)



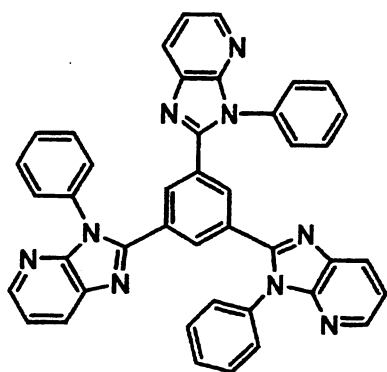
(B-3)



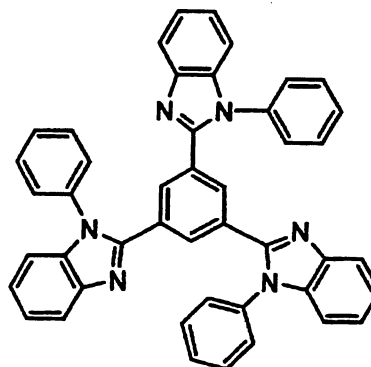
(B-7)



(B-4)

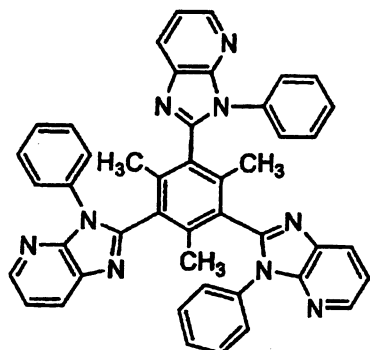


(B-8)

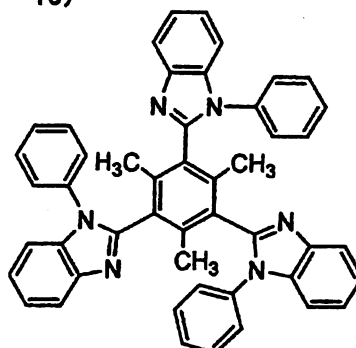


[化33]

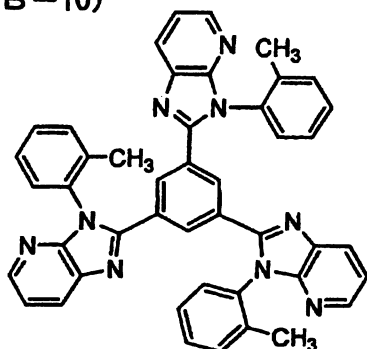
(B-9)



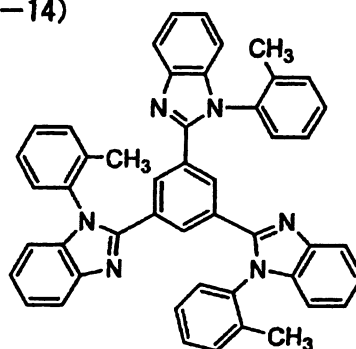
(B-13)



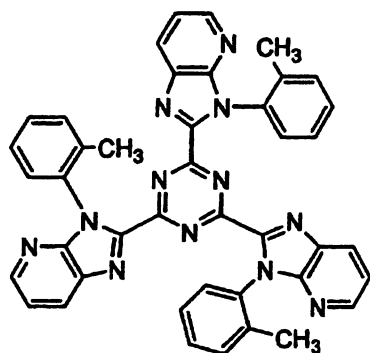
(B-10)



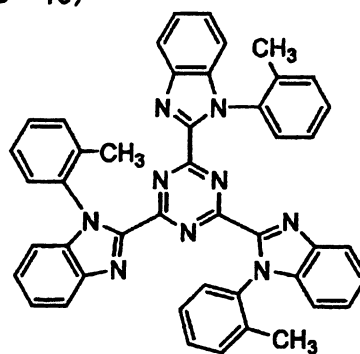
(B-14)



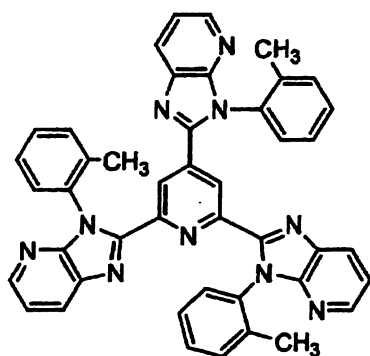
(B-11)



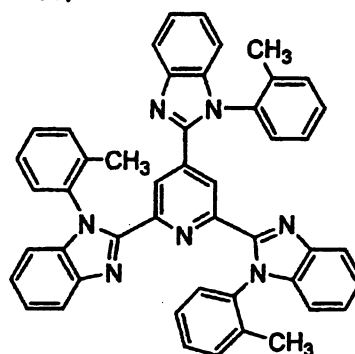
(B-15)



(B-12)



(B-16)





[式中，Cz 表示取代或無取代之咪唑基、芳基咪唑基或咪唑伸烷基、A 表示下述一般式 (A) 所表示的部位所形成的基。

n, m 各表示 1~3 的整數。



(M 及 M' 各獨立表示形成環之碳數 2~40 的含氮雜芳香族環，環上可具有或不具有取代基。又，M 及 M' 可表示相同或相異。L 表示單鍵、碳數 6~30 的伸烷基、碳數 5~30 的環伸烷基或碳數 2~30 的雜芳香族環，可具有或不具有結合於環上的取代基。p 表示 0~2，q 表示 1~2，r 表示 0~2 的整數。但 p+r 表示 1 以上)]。

前述一般式 (C-I) 及 (C-II) 的鍵結樣式可依參數 n、m 的數，具體如下表中所記載。

[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	$\begin{array}{c} \text{A—Cz—A} \\ \\ \text{A} \end{array}$

又，一般式 (A) 所示基的結合樣式係由參數 p ， q ， r 之數目，具體為如以下表中 (1) 至 (16) 所示記載之形式。

[表2]

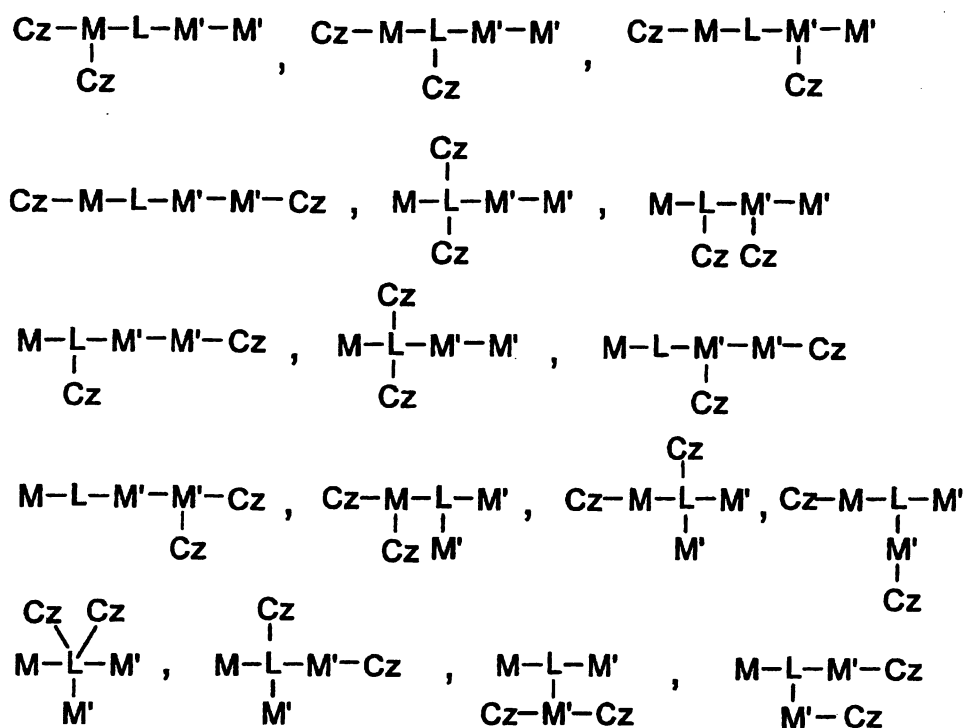
No	p	q	r	結合様式
(1)	0	1	1	$L - M'$
(2)	0	1	2	$L - M' - M', M' - L - M'$
(3)	0	2	1	$L - L - M', L - M' - L$
(4)	0	2	2	$L - L - M' - M', M' - L - L - M',$ $\begin{array}{c} L - M' - M' - L \\ \quad \\ L \quad L \end{array}, \begin{array}{c} M' - L - M' \\ \\ L \end{array}, \begin{array}{c} L - M' - L \\ \\ M' \end{array}$
(5)	1	1	0	與(1)同(M'由M取代)
(6)	1	1	1	$M - L - M'$
(7)	1	1	2	$M - L - M' - M',$ $\begin{array}{c} M - L - M' \\ \\ M' \end{array}$
(8)	1	2	0	與(3)同(M'由M取代)
(9)	1	2	1	$M - L - L - M', L - M - L - M', M - L - M'$
(10)	1	2	2	$M - L - L - M' - M', M' - L - M - L - M',$ $M' - M' - L - M - L,$ $\begin{array}{c} M - L - L - M - L - L - M' - L - L - M' - M' - L - M - L - M' \\ \quad \quad \quad \quad \quad \quad \quad \\ M' \quad M' \quad M' \quad M' \quad M' \quad M' \quad M' \quad M' \end{array}, \begin{array}{c} M' \\ \\ M - L - L \\ \\ M' \end{array}$
(11)	2	1	0	與(2)同(M'由M取代)

[表3]

(12)	2	1	1	與(7)同(M'由M取代)
(13)	2	1	2	$M-L \begin{array}{c} M' \\ \\ M-L-M \\ \\ M' \end{array}, \begin{array}{c} M-L-M-M' \\ \\ M \end{array}$
(14)	2	2	0	與(4)同(M'由M取代)
(15)	2	2	1	與(10)同(M'由M取代)
(16)	2	2	2	$M-M-L-L-M'-M',$ $M-M-L-M-M', M-L-L-M-M', \begin{array}{c} M \\ \\ M-L-L \\ \\ M' \end{array},$ $M-M-L-L-M', \begin{array}{c} M \\ \\ L-L-M-M' \\ \\ M \end{array}, \begin{array}{c} M-L-L-M \\ \\ M' \end{array}$

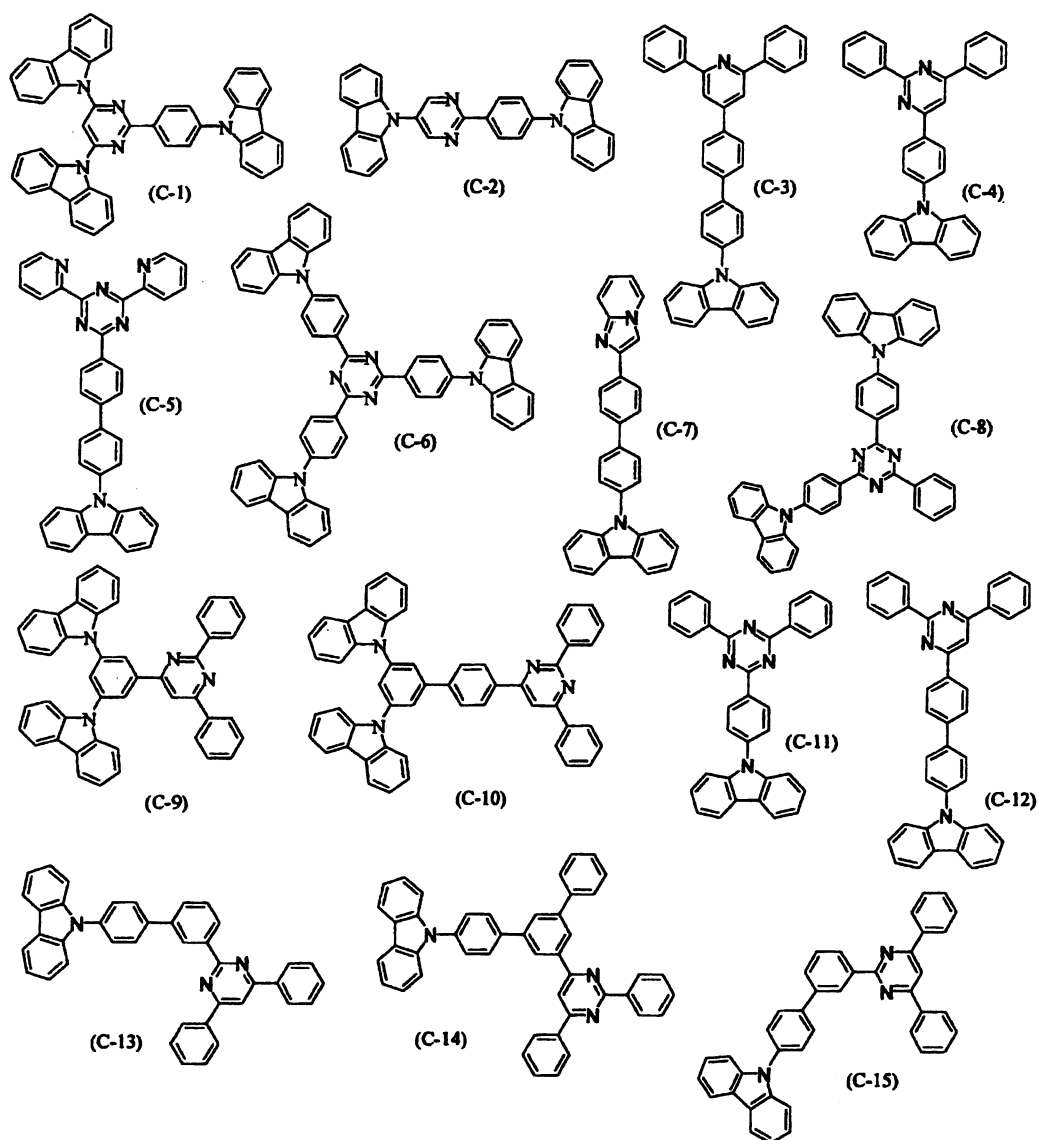
前述一般式(C-I)及(C-II)中，Cz與A結合時，可結合於A表示的M,L,M'的任一部位。例如 $m=n=1$ 之Cz-A中 $p=q=r=1$ (表中(6))時，A成爲M-L-M'可表示Cz-M-L-M'、M-L(-Cz)-M'、M-L-M'-Cz之3種結合樣式。又同樣地，例如一般式(C-I)中， $n=2$ 之Cz-A-Cz時， $p=q=1, r=2$ (表中(7))時的A成爲M-L-M'-M'或M-L(-M')-M'，如下所示之結合樣式。

[化34]



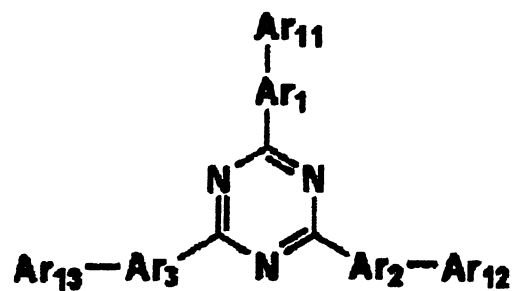
作為前述一般式 (C-I) 及 (C-II) 所表示的具體例，
可舉出如下述結構者，但並未限定於這些例子。

[化35]



[化36]

(C-III)

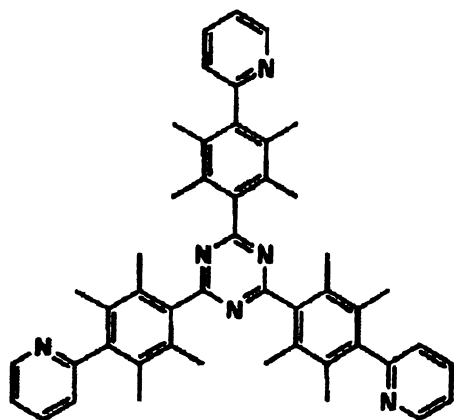


(式中， $Ar_{11} \sim Ar_{13}$ 各表示與一般式 (B-I) 之 R^{B2} 相同的

基，具體例子亦相同， $Ar_1 \sim Ar_3$ 表示與一般式 (B-I) 的 R^{B2} 相同之 2 價基者，具體例亦相同)。

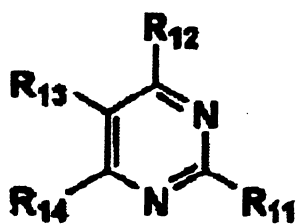
一般式 (C-III) 的具體例子如以下所示，但不限定於此。

[化37]



[化38]

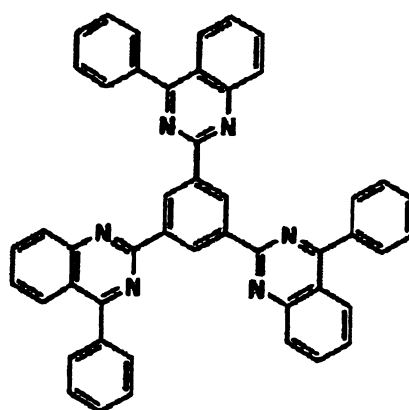
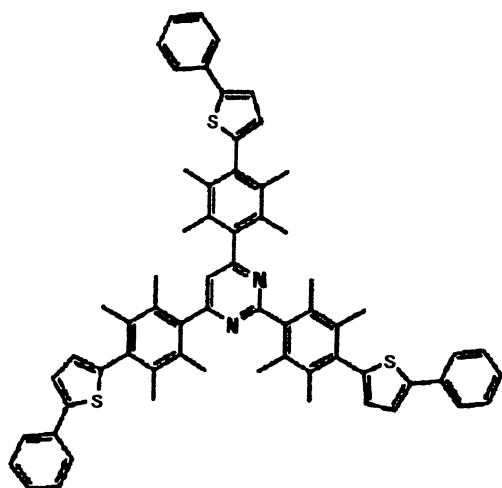
(C-IV)



(式中， $R_{11} \sim R_{14}$ 各表示與一般式 (B-I) 之 R^{B2} 相同的基，具體例子亦相同。)

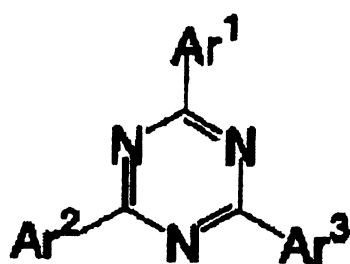
一般式 (C-IV) 的具體例子如以下所示，但不限定於此。

[化39]



[化40]

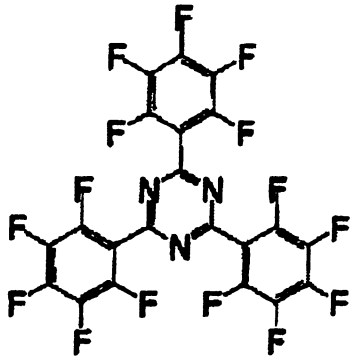
(C-V)



(式中， $Ar^1 \sim Ar^3$ 各表示與一般式 (B-I) 之 R^{B2} 相同的基，具體例子亦相同)。

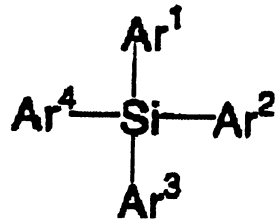
一般式 (C-V) 的具體例子如以下所示，但不限定於此。

[化41]



[化42]

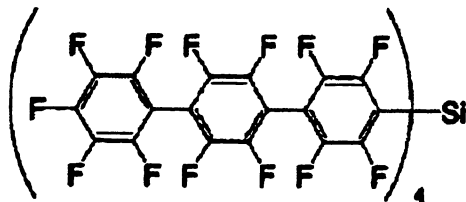
(C-VI)



(式中， $Ar^1 \sim Ar^4$ 各表示與一般式 (B-I) 之 R^{B2} 相同的基，具體例子亦相同)。

一般式 (C-VI) 的具體例子如以下所示，但不限定於此。

[化43]



又，於本發明的有機電致發光元件中，作為構成電子

注入・輸送層之物質，使用絕緣體或半導體之無機化合物為佳。僅電子注入・輸送層係由絕緣體或半導體所構成即可，可有效地防止電流的洩漏，進而提高電子注入性。作為如此絕緣體，可使用至少 1 種選自鹼金屬硫屬化物（Chalcogenide）、鹼土類金屬硫屬化物、鹼金屬的鹵化合物及鹼土類金屬的鹵化合物所成群之金屬化合物為佳。僅電子注入・輸送層由這些鹼金屬硫屬化物等所構成即可，可更提高電子注入性，故較佳。

具體而言，作為較佳的鹼金屬硫屬化物，例如可舉出 Li_2O 、 LiO 、 Na_2S 、 Na_2Se 及 NaO ，作為較佳鹼土類金屬硫屬化物，例如可舉出 CaO 、 BaO 、 SrO 、 BeO 、 BaS 及 CaSe 。又，較佳的鹼金屬的鹵化合物，例如可舉出 LiF 、 NaF 、 KF 、 LiCl 、 KCl 及 NaCl 等。又，作為較佳的鹼土類金屬之鹵化合物，例如可舉出 CaF_2 、 BaF_2 、 SrF_2 、 MgF_2 及 BeF_2 之氟化合物或氟化合物以外的鹵化合物。

又，作為構成電子注入・輸送層之半導體，可舉出單獨 1 種或組合 2 種以上的含有至少 1 個 Ba 、 Ca 、 Sr 、 Yb 、 Al 、 Ga 、 In 、 Li 、 Na 、 Cd 、 Mg 、 Si 、 Ta 、 Sb 及 Zn 之氧化物、氮化物或氧化氮化物等。又，構成電子輸送層之無機化合物為微晶或非晶質之絕緣性薄膜為佳。僅電子輸送層由這些絕緣性薄膜所構成即可，可形成更均質的薄膜，故可減少黑點等畫素缺陷。且作為如此無機化合物，可舉出上述的鹼金屬硫屬化物、鹼土類金屬硫屬化物、鹼金屬的鹵化合物及鹼土類金屬的鹵化合物等。

且，本發明的有機電致發光元件中，電子注入層及/或電子輸入層亦可含有功函數為 2.9eV 以下的還原性摻雜物。本發明中還原性摻雜物係為提升電子注入效率之化合物。

又，本發明中，陰極與有機薄膜層之界面區域裡添加還原性摻雜物為佳，含於界面區域的有機層之至少 1 部分經還原後陰離子化。作為較佳的還原性摻雜物可舉出至少 1 種選自鹼金屬、鹼土類金屬之氧化物、鹼土類金屬、稀土類金屬、鹼金屬之氧化物、鹼金屬的鹵化物、鹼土類金屬氧化物、鹼土類金屬鹵化物、稀土類金屬的氧化物或稀土類金屬的鹵化物、鹼金屬錯合物、鹼土類金屬錯合物、稀土類金屬錯合物所成群之化合物。更具體而言，作為較佳的還原性摻雜物，可舉出至少 1 種選自 Na（功函數： 2.36eV ）、K（功函數： 2.28eV ）、Rb（功函數： 2.16eV ）及 Cs（功函數： 1.95eV ）所成群之鹼金屬、或至少 1 種選自 Ca（功函數： 2.9eV ）、Sr（功函數： $2.0\sim 2.5\text{eV}$ ）及 Ba（功函數： 2.52eV ）所成群之鹼土類金屬、功函數以 2.9eV 者為特佳。其中較佳的還原性摻雜物為，至少 1 種選自 K、Rb 及 Cs 所成群之鹼金屬，更佳為 Rb 或 Cs，最佳為 Cs。這些鹼金屬因還原能力特強，故經較少量添加於電子注入區，可提高有機 EL 元件之發光亮度或延長壽命。

作為前述鹼土類金屬氧化物，例如可舉出 BaO、SrO、CaO 及這些混合之 $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{O}$ ($0 < x < 1$) 及 $\text{Ba}_x\text{Ca}_{1-x}\text{O}$

($0 < x < 1$) 之較佳者。作為鹼氧化物或鹼氟化物可舉出 LiF 、 Li_2O 、 NaF 等。作為鹼金屬錯合物、鹼土類金屬錯合物、稀土類金屬錯合物含有至少 1 種作為金屬離子的鹼金屬離子、鹼土類金屬離子、稀土類金屬離子者即可，並無特別限定。又，作為配位子，例如可舉出喹啉酚、苯並喹啉酚、吡啶酚、菲啶酚、羥基苯基噁唑、羥基苯基噻唑、羥基二芳基噁二唑、羥基二芳基噻二唑、羥基苯基吡啶、羥基苯基苯並咪唑、羥基苯並三唑、羥基全硼、聯二吡啶、菲繞啉、酞菁、卟啉、環戊二烯、 β -二酮類、甲亞胺類、及這些衍生物等，但並未僅限定於此。

又，作為還原性摻雜物的較佳型態，可形成層狀或島狀。使用層狀時的較佳膜厚為 $0.05 \sim 8 \text{ nm}$ 。

作為含有還原性摻雜物之電子注入・輸送層之形成方法為，電阻加熱蒸鍍法使還原性摻雜物蒸鍍下，同時蒸鍍形成界面區域之發光材料或電子注入材料之有機物，於有機物中分散還原性摻雜物之方法為佳。作為分散濃度之莫耳比為 $100 : 1 \sim 1 : 100$ ，較佳為 $5 : 1 \sim 1 : 5$ 。還原性摻雜物形成層狀時，形成界面有機層之發光材料或電子注入材料成層狀後，還原性摻雜物單獨下藉由電阻加熱蒸鍍法進行蒸鍍，較佳為形成膜厚 $0.5 \text{ nm} \sim 15 \text{ nm}$ 。還原性摻雜物形成島狀時，形成界面有機層之發光材料或電子注入材料後，還原性摻雜物單獨下藉由電阻加熱蒸鍍法進行蒸鍍，較佳為形成膜厚 $0.05 \text{ nm} \sim 1 \text{ nm}$ 。

本發明的有機電致發光元件之發光層為具有，於外加

電場時可藉由陽極或電洞注入層注入電洞，藉由陰極或電子注入層注入電子之功能、注入後的電荷（電子與電洞）以電場力使其移動的功能、提供電子與電洞的再結合的場地，將此與發光連結之功能者。本發明的有機電致發光元件之發光層，至少含有本發明的過渡金屬錯合物為佳，可含有使該過渡金屬錯合物成為客材料之主材料。作為前述主材料，例如可舉出可具有卟啉骨架者、具有二芳基胺基骨架者、具有吡啶骨架者、具有吡嗪骨架者、具有三嗪骨架者及具有芳基矽烷骨架者等。前述主材料之 T1（最低三重態激起狀態之能量水準）比客材料之 T1 水準大故較佳。前述客材料為低分子化合物或高分子化合物皆可。又，藉由前述主材料與前述過渡金屬錯合物等發光材料進行共同蒸鍍等，可形成前述發光材料被膠漿於前述主材料之發光層。

本發明的有機 EL 元件中，作為前述各層的形成方法，雖無特別限定，但可使用真空蒸鍍法、LB 法、電阻加熱蒸鍍法、電子束法、濺射法、分子層合法、塗佈法（滾動塗佈法、澆鑄法、滴塗佈法等）、墨水噴射法、印刷法等種種方法，本發明中以真空蒸鍍法或塗佈法的塗佈法為佳。

又，含有本發明的過渡金屬錯合物之有機薄膜層，可藉由真空蒸鍍法、分子線蒸鍍法（MBE 法）或溶解於溶劑中之溶液滴下法、滾動塗佈法、澆鑄法、棒塗佈法、輥塗佈法等公知塗佈法形成。

前述塗佈法中，將本發明的過渡金屬錯合物溶解於溶劑中調製出塗佈液後，將該塗佈液於所望的層（或電極）上藉由塗佈、乾燥等而形成。塗佈液中可含有樹脂、或樹脂溶解於溶劑的狀態、或分散狀態皆可。作為前述樹脂，可使用非共軛性高分子（例如，聚乙烯吡啶）、共軛性高分子（例如聚烯烴系高分子）。較具體為例如聚氯乙烯、聚碳酸酯、聚苯乙烯、聚甲基己基丙烯酸酯、聚丁基甲基丙烯酸酯、聚酯、聚砜、聚伸苯基氧化物、聚丁二烯、聚（N-乙烯吡啶）、碳化氫樹脂、酮樹脂、苯氧基樹脂、聚醯胺樹脂、乙基纖維素、乙酸乙烯酯、ABS樹脂、聚尿烷、三聚氰胺樹脂、不飽和聚酯樹脂、醇酸樹脂、環氧樹脂、矽樹脂等。

又，本發明的有機電致發光元件各有機層膜厚並無特別限定，一般若膜厚過薄時較易產生針孔等缺陷，相反地若過厚時必須要較高外加電壓而使得效率不佳，一般為數nm至1 μ m的範圍較佳。

〔實施例〕

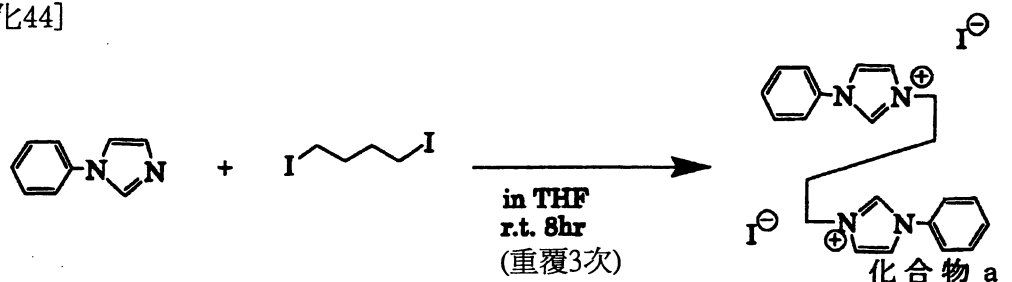
其次，使用實施例對本發明做更詳細說明。

實施例 1（過渡金屬錯合物 1 之合成）

藉由以下流程合成化合物 1（化合物 1-A：mer.體、化合物 2-B：fac.體）

(1) 交聯配位子前驅物 (化合物 a) 之合成

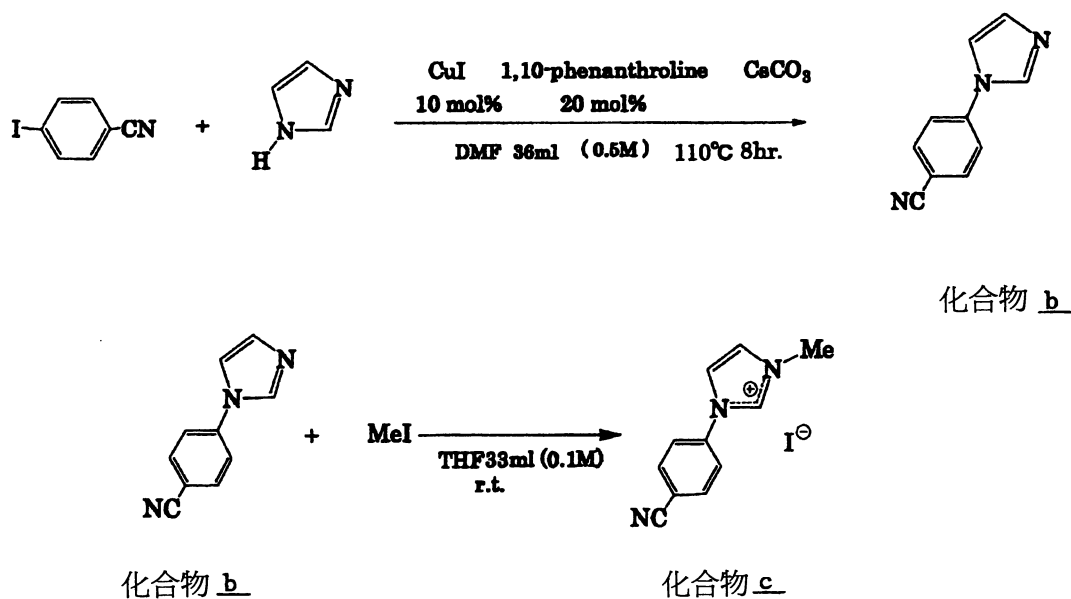
[化44]



N-苯基咪唑 5.00g (分子量 144.18、34.7mmol) 及 1,4-二碘丁烷 5.05g (分子量 309.92、16.3mmol) 中加入四氫呋喃 100ml, 室溫下進行 8 小時攪拌。過濾所生成的白色固體 (化合物 a), 濾液在經 8 小時攪拌 (此操作重複 2 次)。得到總計 5.50g 的化合物 a (產率 56%)。

(2) 配位子前驅物 (化合物 c) 之合成

[化45]

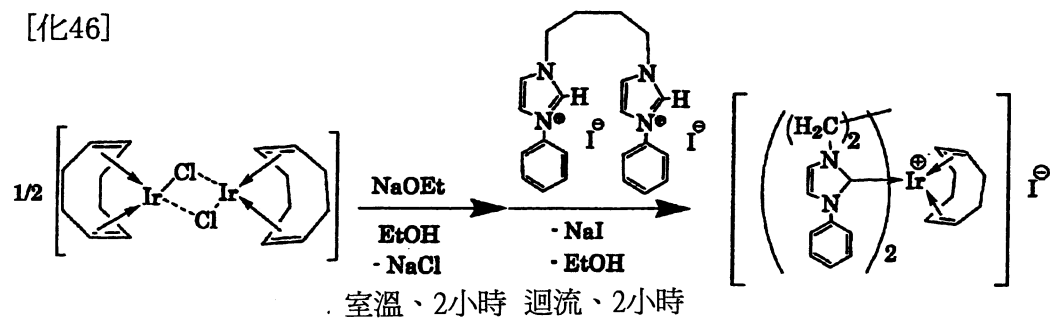


反應於氮氣環境下進行。

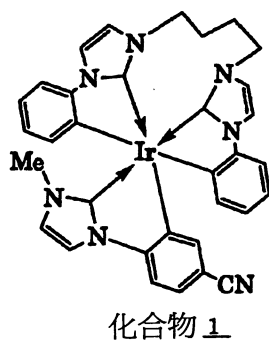
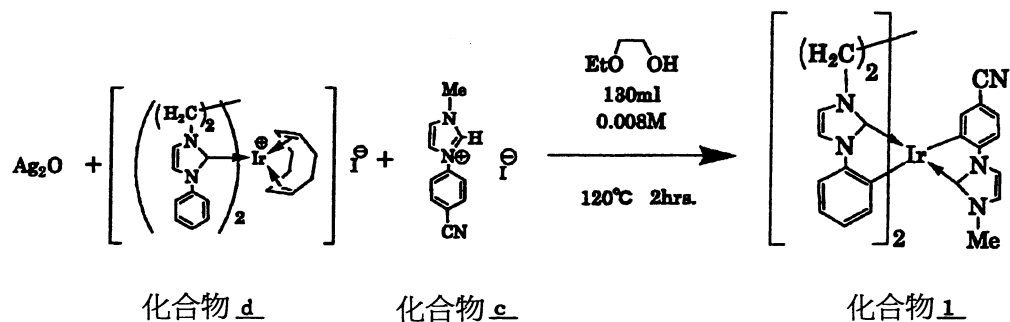
以咪唑 1.35g (分子量 68.08、19.8mmol)、碘化銅 0.343g (分子量 190.45、18.0mmol)、碳酸銫 11.7g (分子量 325.80、36mmol)、4-碘苯甲腈 4.12g (分子量 229.02、18mmol)、1,10-菲繞啉 0.648g (分子量 180.21、3.6mmol)、及溶劑 DMF (二甲基甲醯胺) 36ml 的順序放入，並進行 8 小時迴流。反應終了後，將此恢復至室溫，加入乙酸乙酯 100ml 並過濾固體成分。減壓下，將濾液由溶劑餾去，將殘留成分由矽膠管柱層析法 (展開溶劑：乙酸乙酯) 進行純化，得到 1.38g 之目的化合物 b (Rf 值：約 0.2，分子量 169.18、8.16mmol，產率 45%)。

於化合物 b 0.56g (分子量 169.18、3.31mmol) 中作為溶劑加入脫水 THF (四氫呋喃) 33ml、繼續加入甲基碘 4.7g (分子量 141.94、33.1mmol)，於室溫進行 24 小時反應。液體成分以過濾除去，再將固體成分以 THF 洗淨，減壓下進行乾燥，得到 0.96g 之目的化合物 c (薄黃色固體、分子量 311.12、3.09mmol，產率 93%)。

(3) 化合物 1 之合成



化合物 d



反應於氮氣環境下進行。

加入〔(COD)IrCl〕₂ (COD: 1,5-環辛二烯) 0.561g (分子量 671.70、0.835mmol)、乙氧化鈉 0.569g (分子量 68.05、8.36mmol)、及溶劑乙醇 50ml, 室溫下進行 2 小時攪拌, 繼續於迴流下進行 2 小時反應。自反應液過濾除去液體成分, 真空下使其乾燥, 得到 0.39g 的目的化合物 d (褐色固體、分子量 769.74、0.50mmol, 產率 30%)。

加入氧化銀 (I) 1.94g (分子量 231.74、8.40mmol

)、化合物 d 0.808g (分子量 769.74、1.05mmol)、化合物 c 0.327g (分子量 311.12、1.05mmol)、及作為溶劑之 2-乙氧基乙醇 130ml，迴流下進行 2 小時反應。反應後，減壓餾去溶劑成分，將殘留成分藉由矽膠管柱層析法 (展開溶劑：二氯甲烷) 進行純化，得到 0.080g 之目的化合物 1 (mer.體：化合物 1-A、fac.體：化合物 1-B、Rf 值：mer.體約 0.25、fac.體約 0.20，mer./ fac. 1/1、分子量 714.84、1.12mmol，產率 11%)。

對於所得之化合物 1-A，進行 FD-MS 之測定結果，其最大波峰值與在 715 之計算值一致 (計算值 M^+ (分子離子波峰) = 715)。又，室溫下的發光光譜測定之結果，極大發光波峰波長 (λ_{max}) 為 461nm。又，該化合物之量子產率為 0.16，其顯示較高量子產率。由得到較高量子產率得知，可推知將該化合物作為發光材料使用之有機 EL 元件的發光壽命較長。

又，對於所得之化合物 1-B，進行 FD-MS 之測定結果，其最大波峰值與在 715 之計算值一致 (計算值 M^+ (分子離子波峰) = 715)。又，室溫下之發光光譜測定的結果，觀測到來自螢光發光的波峰 (331nm 極大發光波峰 (極大發光波峰)) 與來自磷光發光之波峰 (極大發光波峰：450nm 附近)。又，該化合物之量子產率為 0.27，其顯示較高量子產率。由得到較高量子產率得知，可推測將該化合物作為發光材料使用的有機 EL 元件之發光壽命較長。

(1) FD-MS 測定 (電界脫離離子化質量分析法)

裝置 : HX110 (日本電子公司製)

條件 : 加速電壓 8kV

掃描範圍 $m/z = 50 \sim 1500$

發射種類 碳

發射電流 $0\text{mA} \rightarrow 2\text{mA}/\text{分鐘} \rightarrow 40\text{mA}$ (10 分鐘保持

)

(2) 發光光譜測定 :

裝置 : F-4500 形分光螢光光度計

測定溶劑 : 二氯甲烷

(3) 量子產率測定

裝置 : Hamamatsu Photonics (股) 製量子產率測定

裝置 C9920-01

方法 : 藉由使用積分球之絕對法 , 算出藉由發光所釋放之光的光子數對於材料所吸收之光子數的比率。使用石英製皿 , 將試料 (粉末) 放置於積分球內進行測定。

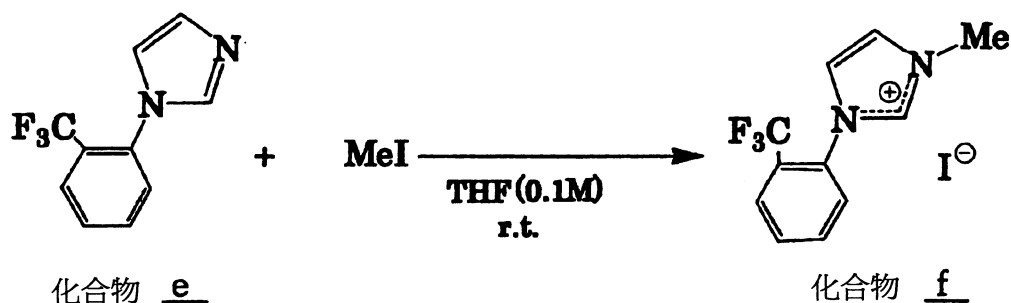
實施例 2 (過渡金屬錯合物 2 之合成)

經由以下的流程 , 合成化合物 2 (mer.體、fac.體之混合) 。

(1) 交聯配位子前驅物 (化合物 d) 之合成 : 與實施例 1 相同

(2) 配位子前驅物 (化合物 f) : 化合物 e 使用販賣品

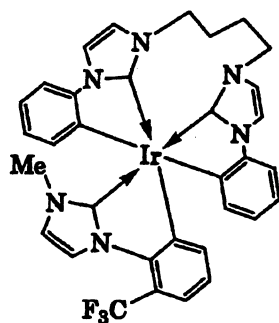
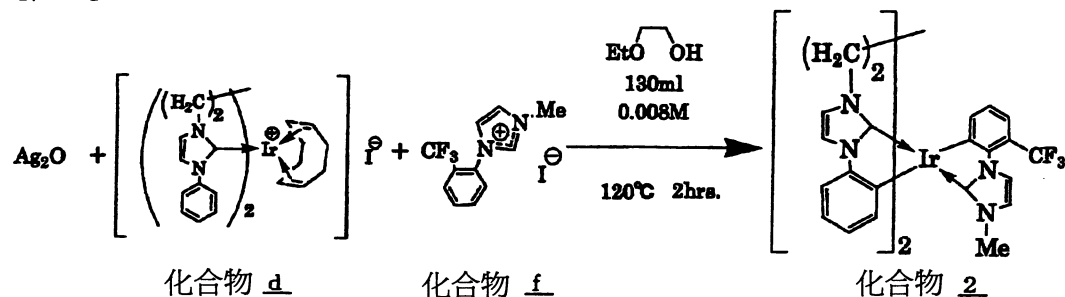
[化47]



於化合物 e 1.00g (分子量 212.17、4.71mmol) 中加入作為溶劑之脫水 THF (四氫呋喃) 47.1ml, 再加入甲基碘 3.35g (分子量 141.94、23.6mmol), 室溫下進行 24 小時反應。液體成分經過濾除去, 將固體成分以 THF 洗淨, 並於減壓下進行乾燥, 得到 1.50g 之目的化合物 f (白色固體, 分子量 354.11、4.24mmol, 產率 90%)。

(3) 化合物 2 的合成

[化48]

化合物 2

加入氧化銀 (I) 7.74 g (分子量 231.74 、 66.8mmol) 、 化合物 d 3.22 g (分子量 769.74 、 4.18mmol) 、 化合物 f 1.48 g (分子量 354.11 、 4.18mmol) 、 及作為溶劑之 2-乙氧基乙醇 105ml ， 迴流下進行 2 小時反應。反應後，減壓餾去溶劑成分，將殘留成分藉由矽膠管柱層析法 (展開溶劑：二氯甲烷) 進行純化，得到 0.50 g 之目的化合物 2 (Rf 值：約 0.8 ， 分子量 757.83 、 0.66mmol ， 產率 16%) 。

對於所得之化合物 2 ， 進行 FD-MS 之測定結果，最大波峰值與在 758 之計算值一致 (計算值 M^+ (分子離子波峰) = 758) 。 又，室溫中的發光光譜測定結果，極大發光波峰波長 (λ_{max}) 為 439nm 。 又，該化合物之量子產率為 0.20 ， 顯示較高量子產率。由得到較高量子產率得知，

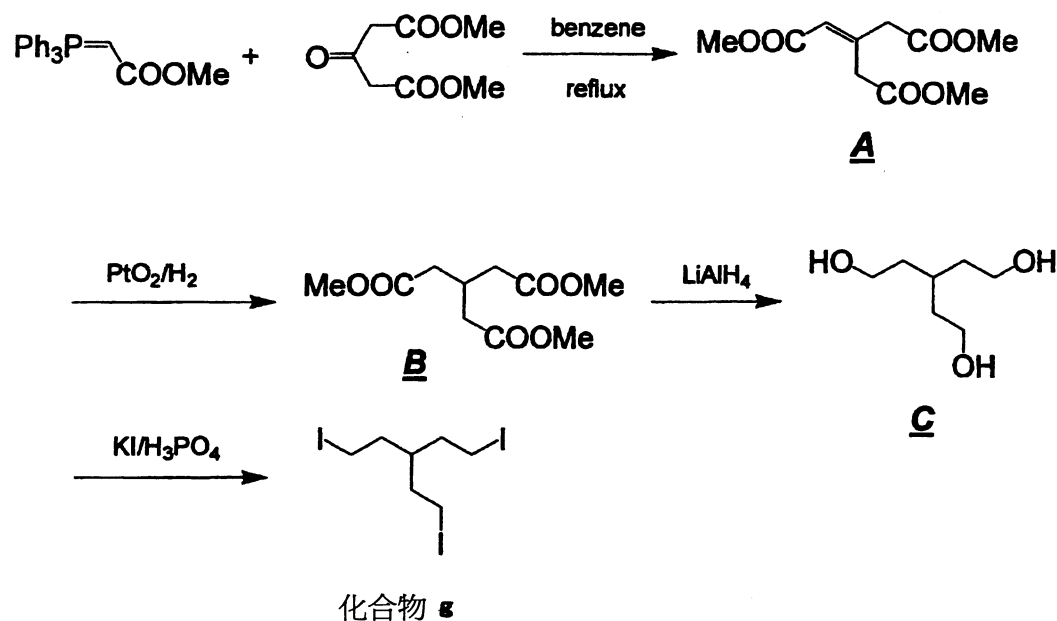
可推測將該化合物作為發光材料使用的有機 EL 元件之發光壽命較長。

實施例 3 (過渡金屬錯合物 3 之合成)

經由以下流程，合成化合物 3。

(1) 交聯配位子前驅物 (化合物 g) 之合成

[化49]



至化合物 C 的合成依據以下文獻合成。

Bull.Chem.Soc.JAPAN 第 69 卷，1996 年， p3317

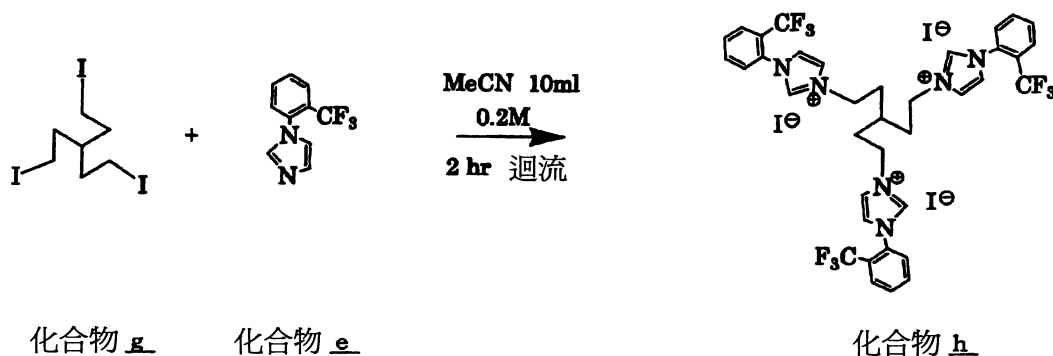
於 500ml 茄形燒杯中放入化合物 C 23.7mmol (3.52g)、碘化鉀 142mmol (23.6g) 及磷酸 (80% 溶液) 80ml，攪拌下於 100℃ 加熱約 8 小時。

於所得之濃褐色溶液中加入水 150ml，再以二氯甲烷

200ml 萃取。將有機層再以硫代硫酸鈉飽和溶液 100ml 洗淨 3 次，再以硫酸鎂乾燥。減壓餾去溶劑後，藉由進行二氧化矽管柱純化（二氯甲烷），得到 4.3g 之化合物 g 為褐色油狀物（產率 38%）。

(2) 配位子前驅物（化合物 h）：化合物 e 使用販賣品

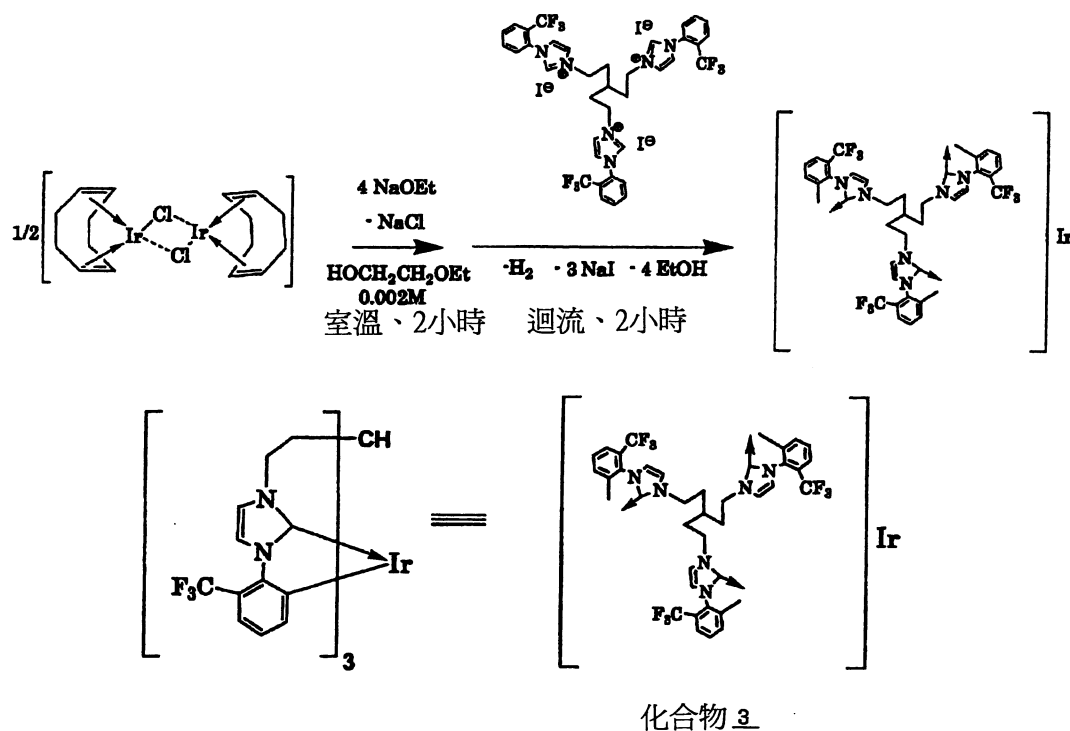
[化50]



化合物 g 0.956g（分子量 477.89、2.00mmol）中加入作為溶劑之脫水乙腈 10ml，繼續再加入化合物 e 1.91g（分子量 212.17、9.00mmol），進行 2 小時迴流。液體成分經過濾除去，將固體成分以 THF 洗淨，減壓下經乾燥後得到 1.03g 的目的化合物 h（白色固體、分子量 1114.41、0.92mmol，產率 46%）。

(3) 化合物 3 的合成

[化51]



反應皆於氬氣流下進行。於 $[(\text{COD})\text{IrCl}]_2$ 0.671g (分子量 671.70、0.01mmol) 中加入溶劑 100ml 的 2-乙氧基乙醇，其次加入乙氧化鈉 54.4mg (分子量 68.05、0.80mmol)，室溫下進行 2 小時攪拌。於此加入 0.223g 的化合物 h (分子量 1114.41、0.20mmol)，迴流下反應 2 小時。由所得之反應液中減壓下加熱餾去溶劑 2-乙氧基乙醇。將該殘渣以矽膠管柱層析法 (展開溶劑：二氯甲烷、 R_f 值約 0.8) 進行純化。其結果得到 7mg 的化合物 3 (分子量 919.86、0.0076mmol、產率 4%)。

對於所得之化合物 3，進行 FD-MS 的測定結果，最大波峰值與在 920 之計算值一致 (計算值 M^+ (分子離子波峰) = 920)。又，77K 中的發光光譜測定之結果，極大發光波峰波長 (λ_{max}) 為 406nm。又，該化合物之量子產

下加熱餾去，冷卻後於此加入二氯甲烷 200ml，並過濾固體成分。其次，將濾液進行減壓下餾去，將該殘渣成分以矽膠管柱層析法（展開溶劑：二氯甲烷、Rf 值約 0.8）進行純化。其結果得到 0.847g 之化合物 5（分子量 867.79、0.98mmol、產率 24%）。

對於所得之化合物 5，進行 FD-MS 之測定結果，其最大波峰值與在 868 之計算值一致（計算值 M^+ （分子離子波峰）= 868）。又，室溫中之發光光譜測定結果，極大發光波峰波長（ λ_{max} ）為 424nm。又，該化合物之量子產率為 0.02。

實施例 6（使用化合物 5 的有機 EL 元件之製作）

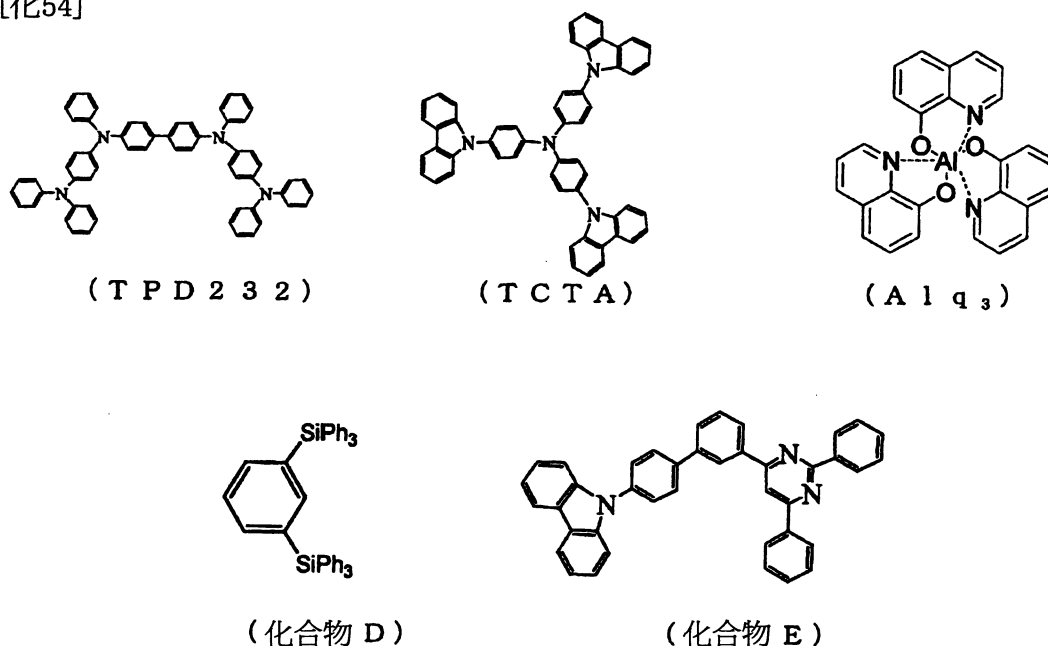
使用化合物 5，製作玻璃基板/陽極/電洞注入層/電洞輸送層/發光層/電洞阻止層/電子輸送層/電子注入層/陰極所成之有機電致發光元件。

將附有 25mm×75mm×1.1mm 厚之 ITO 透明電極的玻璃基板於異丙醇中進行 5 分鐘的超音波洗淨後，再進行 30 分鐘的 UV 臭氧洗淨。於形成洗淨後 ITO 透明電極之面上，以真空蒸鍍法將使用於電洞注入層的 TPD232 成膜為 85nm 膜厚，及將使用於電洞輸送層之 4、4'、4''-參（吡啶-9-基）三苯胺（TCTA）成膜為 10nm 膜厚。接著將使用於發光層之化合物 5 及下述化合物 D 之混合物（化合物 5 與下述化合物 D 之質量比為 1.5：20）以真空蒸鍍法成膜於 TCTA 之電洞輸送層上，得到發光層。該發光層之膜

厚為 30nm。繼續將膜厚 25nm 之下述化合物 E、接著將膜厚 5nm 之參(8-喹啉酚)鋁(Alq_3)以真空蒸鍍法進行成膜。該下述化合物 E 作為電洞阻止層使用， Alq_3 膜作為電子輸送層使用。且，將膜厚 1nm 的氟化鋰藉由真空蒸鍍法進行成膜，作為電子注入層。最後將膜厚 150nm 之鋁(Al)陰極藉由真空蒸鍍法進行成膜，製作出有機 EL 元件。

使用所得之有機 EL 元件，使 Al 電極為負極，ITO 透明電極為正極，外加直流電壓 V 。其結果，於電壓 11.2V，電流密度 $10\text{mA}/\text{cm}^2$ 下得到 $3.1\text{cd}/\text{m}^2$ 之藍紫色發光，發光效率 $0.031\text{cd}/\text{A}$ 。實施例 6 的 EL 光譜如圖 1 所示。

[化54]



實施例 7 (使用化合物 2 的有機 EL 元件之製作)

使用化合物 2，製作出玻璃基板/陽極/電洞注入層/發光層/電洞阻止層/電子輸送層/電子注入層/陰極所成之有機 EL 元件。

將附有 $25\text{mm} \times 75\text{mm} \times 1.1\text{mm}$ 厚度之 ITO 透明電極的玻璃基板於異丙醇中進行 5 分鐘超音波洗淨後，進行 30 分鐘的 UV 臭氧洗淨。於形成洗淨後之 ITO 透明電極的面上，以真空蒸鍍法成膜使用於電洞注入層之 4、4'、4''-參(咪唑-9-基)三苯胺 (TCTA) 之 95nm 膜厚。繼續將使用於發光層之化合物 2 及上述化合物 D 之混合物 (化合物 2 與上述化合物 D 之質量比為 1.5 : 20) 於 TCTA 之電洞注入層上以真空蒸鍍法進行成膜，得到發光層。該發光層之膜厚為 30nm 。繼續將膜厚 25nm 之上述化合物 E，接著將膜厚 5nm 之參(8-喹啉酚)鋁 (Alq_3) 藉由真空蒸鍍法成膜。該上述化合物 E 作為電洞阻止層使用， Alq_3 膜作為電子輸送層使用。且膜厚 1nm 之氟化鋰藉由真空蒸鍍法成膜，作為電子注入層。最後將膜厚 150nm 之鋁 (Al) 陰極藉由真空蒸鍍法成膜，製作出有機 EL 元件。

使用所得之有機 EL 元件，使 Al 電極為負極，使 ITO 透明電極為正極，外加直流電壓 V。其結果，得到電壓 15V ，電流密度 $10\text{mA}/\text{cm}^2$ 下為 $28.2\text{cd}/\text{m}^2$ 的藍色發光，其發光效率為 $0.28\text{cd}/\text{A}$ 。實施例 7 的 EL 光譜如圖 2 所示。

產業上可利用性

如以上詳細說明，使用本發明之過渡金屬錯合物的有機 EL 元件，其作為要求發光效率較高，發光壽命較長，藍色發光之有機 EL 元件用的材料上極有用。又，本發明的過渡金屬錯合物藉由改變過去具有於紫外光區域發光波

長之材料的分子骨架，可得到具有於藍色領域發光之材料的化合物。

【圖式簡單說明】

〔圖 1〕表示實施例 6 中所得之有機 EL 元件的 EL 光譜圖。

〔圖 2〕表示實施例 7 中所得知有機 EL 元件的 EL 光譜圖。

五、中文發明摘要

發明之名稱：過渡金屬錯合物及使用其之有機電致發光元件

本發明係關於提供一種具有碳烯鍵結之特定結構之過渡金屬錯合物、以及一對電極間挾持至少具有發光層之一層或複數層所成的有機薄膜層有機電致發光元件中，其中有機薄膜層的至少 1 層為含有前述過渡金屬錯合物之有機電致發光元件，其為發光效率較高，具有藍色發光之有機電致發光元件，及提供實現此的過渡金屬錯合物。

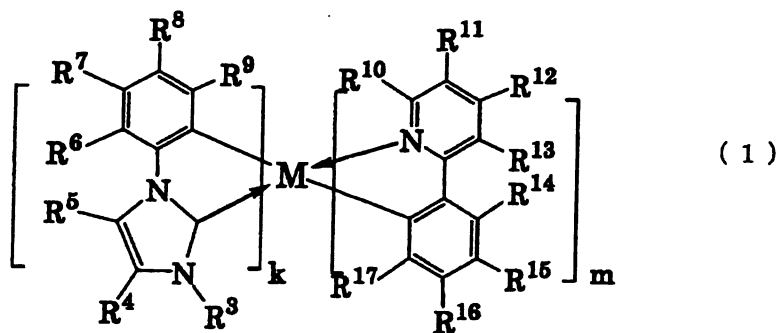
六、英文發明摘要

發明之名稱：

十、申請專利範圍

1. 一種過渡金屬錯合物，其特徵為具有下述一般式（1）所示金屬碳烯鍵結（carbene）；

[化1]



〔一般式（1）中，C（碳原子）→M 表示金屬碳烯鍵結；M 表示 Ir 或 Pt 的金屬原子；k 表示 1~3，m 表示 0~2 的整數，k+m 表示金屬 M 之原子價；

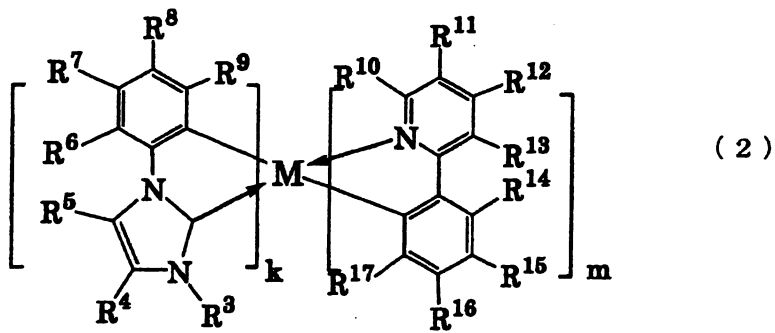
R³ 為可具有取代基之碳數 1~30 的烷基、可具有取代基之碳數 1~30 的鹵化烷基、可具有取代基之核碳數 6~30 的芳香族烴基、可具有取代基之核碳數 3~30 的環烷基、可具有取代基之碳數 7~40 的芳烷基、可具有取代基之碳數 2~30 的烯基、可具有取代基之核原子數 3~30 的雜環基、可具有取代基之核原子數 3~30 的烷基甲矽烷基、可具有取代基之碳數 6~30 的芳基甲矽烷基、碳數 1~30 的含羧基之基；

R⁴~R¹⁷ 各獨立為氫原子、鹵素原子、硫氰基、或氰基、硝基、-S(=O)₂R¹ 基、或 -S(=O)R¹〔R¹ 為氫原子、可具有取代基之碳數 1~30 的烷基、可具有取代基之

碳數 1~30 的鹵化烷基、可具有取代基之核碳數 6~30 的芳香族烴基、可具有取代基之核碳數 3~50 的環烷基、可具有取代基之碳數 7~40 的芳烷基、可具有取代基之碳數 2~30 的烯基、可具有取代基之核原子數 3~30 的雜環基、可具有取代基之碳數 1~30 的烷氧基、可具有取代基之核碳數 6~30 的芳氧基、可具有取代基之碳數 3~30 的烷基胺基、可具有取代基之碳數 6~30 的芳胺基、可具有取代基之碳數 3~30 的烷基甲矽烷基、可具有取代基之碳數 6~30 的芳基甲矽烷基、或可具有取代基之碳數 1~30 的含羧基之基]、可具有取代基之碳數 1~30 的烷基、可具有取代基之碳數 1~30 的鹵化烷基、可具有取代基之核碳數 6~30 的芳香族烴基、可具有取代基之核碳數 3~30 的環烷基、可具有取代基之碳數 7~40 的芳烷基、可具有取代基之碳數 2~30 的烯基、可具有取代基之核原子數 3~30 的雜環基、可具有取代基之碳數 1~30 的烷氧基、可具有取代基之核碳數 6~30 的芳氧基、可具有取代基之核原子數 3~30 的烷基胺基、可具有取代基之核原子數 3~30 的烷基甲矽烷基、可具有取代基之碳數 6~30 的芳基甲矽烷基、碳數 1~30 的含羧基之基， $R^4 \sim R^{17}$ 為鄰接彼此下可交聯者]

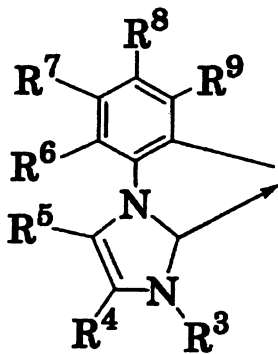
2. 一種過渡金屬錯合物，其特徵為具有下述一般式 (2) 所示金屬碳烯鍵結；

[化2]



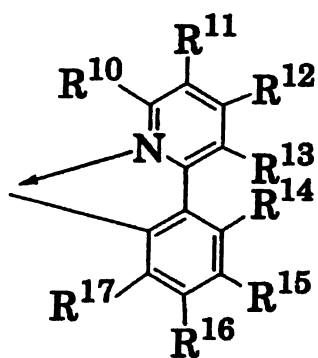
〔一般式(2)中，C(碳原子)→M表示金屬碳烯鍵結；
M表示Ir或Pt的金屬原子；k表示1~3，m表示0~2之
整數，k+m表示金屬M之原子價；k+m個之

[化3]



(取代) N-苯基-N'-R³-咪唑-2-亞基-C², C^{2'}基
及

[化4]



(取代) 2-苯基吡啶-N, C², 基中，

至少 2 個介著交聯基 -Z¹- 進行交聯；Z¹ 為含有取代基之原子數 3~31 的直鏈狀交聯基或分支狀交聯基，構成交聯之原子係由硼、碳、矽、氧、硫、硒、氮、或磷所構成，取代基係由氫、硼、碳、矽、氧、硫、硒、氮、或磷所構成；

R³ 為可具有取代基之碳數 1~30 的烷基、可具有取代基之碳數 1~30 的鹵化烷基、可具有取代基之核碳數 6~30 的芳香族烴基、可具有取代基之核碳數 3~30 的環烷基、可具有取代基之碳數 7~40 的芳烷基、可具有取代基之碳數 2~30 的烯基、可具有取代基之核原子數 3~30 的雜環基、可具有取代基之核原子數 3~30 的烷基甲矽烷基、可具有取代基之碳數 6~30 的芳基甲矽烷基、碳數 1~30 的含羧基之基；

R⁴ ~ R¹⁷ 各獨立為氫原子、鹵素原子、硫氰基、或氰基、硝基、-S(=O)₂R¹ 基、或 -S(=O)R¹ [R¹ 與前述相同]、可具有取代基之碳數 1~30 的烷基、可具有取代

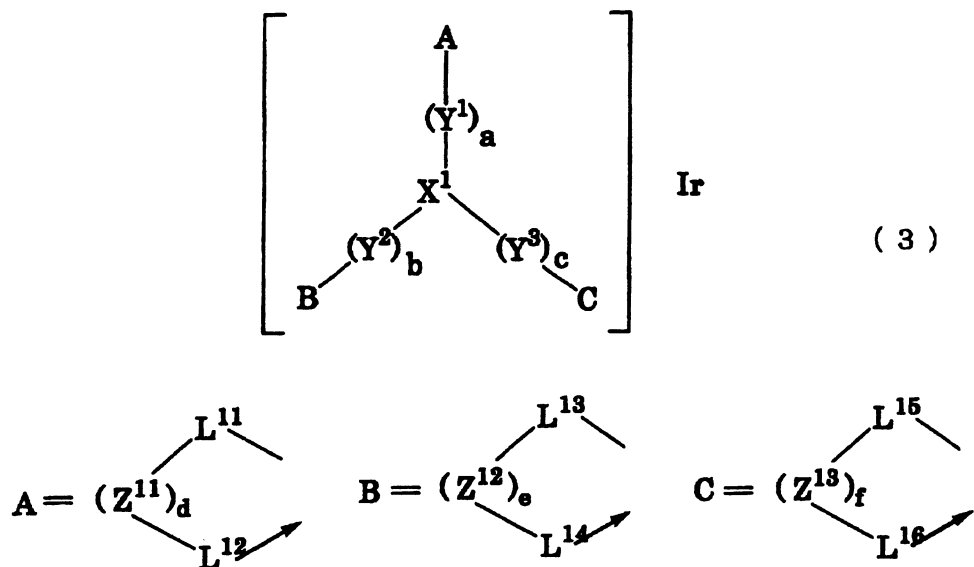
基之碳數 1~30 的鹵化烷基、可具有取代基之核碳數 6~30 的芳香族烴基、可具有取代基之核碳數 3~30 的環烷基、可具有取代基之碳數 7~40 的芳烷基、可具有取代基之碳數 2~30 的烯基、可具有取代基之核原子數 3~30 的雜環基、可具有取代基之碳數 1~30 的烷氧基、可具有取代基之核碳數 6~30 的芳氧基、可具有取代基之核原子數 3~30 的烷胺基、可具有取代基之核原子數 3~30 的烷基甲矽烷基、可具有取代基之碳數 6~30 的芳基甲矽烷基、碳數 1~30 的含羧基之基， $R^4 \sim R^{17}$ 為鄰接彼此下可交聯者]

3. 一種過渡金屬錯合物，其特徵為具有該 M 為 Ir 之如申請專利範圍第 1 項或第 2 項之金屬碳烯鍵結。

4. 一種過渡金屬錯合物，其特徵為具有該 $R^6 \sim R^9$ 的至少 1 個為 -F、-CF₃ 或 -CN 之如申請專利範圍第 1 項或第 2 項之金屬碳烯鍵結。

5. 一種過渡金屬錯合物，其特徵為具有下述一般式 (3) 所示如申請專利範圍第 1 項之金屬碳烯鍵結；

[化5]



〔一般式(3)中，A表示由 $L^{11}-(Z^{11})_d-L^{12}$ 所成之交聯雙牙配位子群，B表示由 $L^{13}-(Z^{12})_e-L^{14}$ 所成之交聯雙牙配位子群，又C表示由 $L^{15}-(Z^{13})_f-L^{16}$ 所成之交聯雙牙配位子群； L^{11} -、 L^{13} -及 L^{15} -各表示對Ir(銱)之共價鍵($L^{11}-\text{Ir}$ 、 $L^{13}-\text{Ir}$ 及 $L^{15}-\text{Ir}$)， $L^{12}\rightarrow$ 、 $L^{14}\rightarrow$ 及 $L^{16}\rightarrow$ 各表示對Ir之配位鍵($L^{12}\rightarrow\text{Ir}$ 、 $L^{14}\rightarrow\text{Ir}$ 及 $L^{16}\rightarrow\text{Ir}$)；

X^1 為可具有取代基之 R^1C (C為碳原子， R^1 與前述相同)、 $R^1\text{Si}$ (Si為矽原子， R^1 與前述相同)、氮、或磷原子；

Y^1 表示結合 X^1 與A之交聯基， Y^2 表示結合 X^1 與B之交聯基， Y^3 表示結合 X^1 與C之交聯基， Y^1 與 L^{11} 、 L^{12} 或 Z^{11} 結合， Y^2 與 L^{13} 、 L^{14} 或 Z^{12} 結合， Y^3 與 L^{15} 、 L^{16} 或 Z^{13} 結合； Y^1 、 Y^2 及 Y^3 各獨立為選自氫原子、碳原子、矽原子、氮原子、硫原子、氧原子、磷原子及硼原子的群之原子所構成之化合物的2價殘基，可具有取代基；a

、 b 及 c 各獨立表示 $0 \sim 10$ 之整數， a 、 b 或 c 為複數時，複數的 Y^1 、 Y^2 或 Y^3 各可相同或相異；

Z^{11} 表示結合 L^{11} 與 L^{12} 之交聯基， Z^{12} 表示結合 L^{13} 與 L^{14} 之交聯基， Z^{13} 表示結合 L^{15} 與 L^{16} 之交聯基， Z^{11} 、 Z^{12} 及 Z^{13} 各獨立為由選自氫原子、碳原子、矽原子、氮原子、硫原子、氧原子、磷原子及硼原子的群之原子所構成的化合物之 2 價殘基，可具有取代基； Z^{11} 與 Y^1 直接結合時、 Z^{12} 與 Y^2 直接結合時、或 Z^{13} 與 Y^3 直接結合時， Z^{11} 、 Z^{12} 及 Z^{13} 各成為對應的 3 價基； d 、 e 及 f 各獨立表示 $0 \sim 10$ 之整數， d 、 e 或 f 為複數時，複數的 Z^{11} 、 Z^{12} 或 Z^{13} 各可相同或相異；

L^{11} 、 L^{13} 及 L^{15} 各獨立為可具有取代基之核碳數 $6 \sim 30$ 的 2 價芳香族烴基、可具有取代基之核原子數 $3 \sim 30$ 的 2 價雜環基、可具有取代基之碳數 $1 \sim 30$ 的 2 價含羧基之基、可具有取代基之 2 價胺基或含羥基之烴基、可具有取代基之核碳數 $3 \sim 50$ 的環伸烷基、可具有取代基之碳數 $1 \sim 30$ 的伸烷基、可具有取代基之碳數 $2 \sim 30$ 的伸烯基、可具有取代基之碳數 $7 \sim 40$ 的伸芳烷基， L^{11} 與 Y^1 直接結合時、 L^{13} 與 Y^2 直接結合時、或 L^{15} 與 Y^3 直接結合時， L^{11} 、 L^{13} 及 L^{15} 各成為對應之 3 價基；

L^{12} 、 L^{14} 及 L^{16} 各獨立為可具有取代基之 1 價二唑或二唑-2-亞基（碳烯錯合物）， L^{12} 與 Y^1 直接結合時、 L^{14} 與 Y^2 直接結合時、或 L^{16} 與 Y^3 直接結合時， L^{12} 、 L^{14} 及 L^{16} 各成為對應的 2 價基〕。

6. 一種過渡金屬錯合物，其特徵為具有該 L^{11} 、 L^{13} 及 L^{15} 的至少 1 個為，於取代基具有 $-F$ 、 $-CF_3$ 或 $-CN$ 的核碳數 6~30 之 2 價或 3 價芳香族烴基、核原子數 3~30 之 2 價雜環基、碳數 1~30 之 2 價含羧基之基、2 價胺基或含烴基之烴基、核碳數 3~50 之環伸烷基、碳數 1~30 之伸烷基、碳數 2~30 之伸烯基、或碳數 7~40 之伸芳烷基的如申請專利範圍第 5 項之金屬碳烯鍵結。

7. 如申請專利範圍第 5 項之過渡金屬錯合物，其中交聯基 X^1 係由下述構造所成者；

[化6]



8. 一種有機電致發光元件，其為陽極與陰極間挾持至少具有發光層的一層或複數層所成的有機薄膜層之有機電致發光元件，其特徵為該有機薄膜層的至少 1 層含有如申請專利範圍第 1 項、第 2 項或第 5 項之過渡金屬錯合物。

9. 如申請專利範圍第 8 項之有機電致發光元件，其中該發光層含有該過渡金屬錯合物作為發光材料。

10. 如申請專利範圍第 8 項之有機電致發光元件，其中該發光層含有該過渡金屬錯合物作為摻合物。

11. 如申請專利範圍第 8 項之有機電致發光元件，其中該發光層與陰極之間具有電子注入層及 / 或電子輸送層，該電子注入層及 / 或電子輸送層含有 π 電子缺乏性含氮

雜環衍生物作為主成分。

12.如申請專利範圍第 8 項之有機電致發光元件，其中陰極與該有機薄膜層之界面區域中添加還原性摻合物。

圖 1

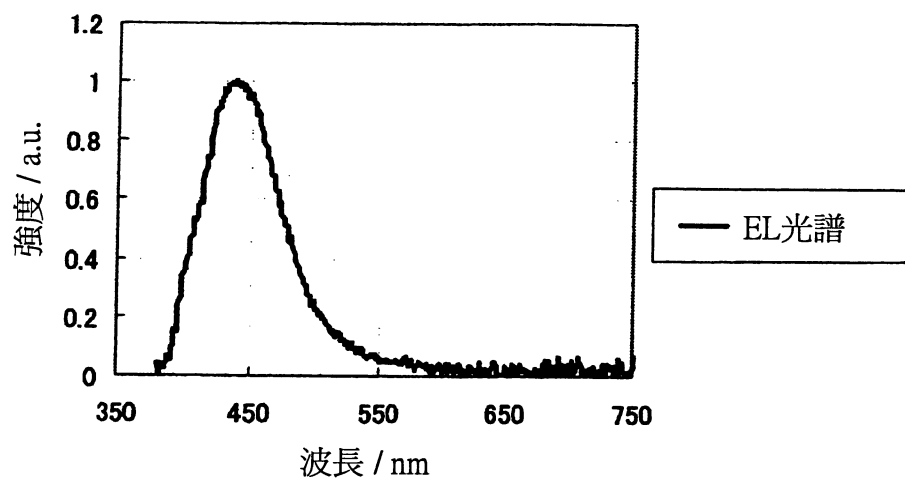
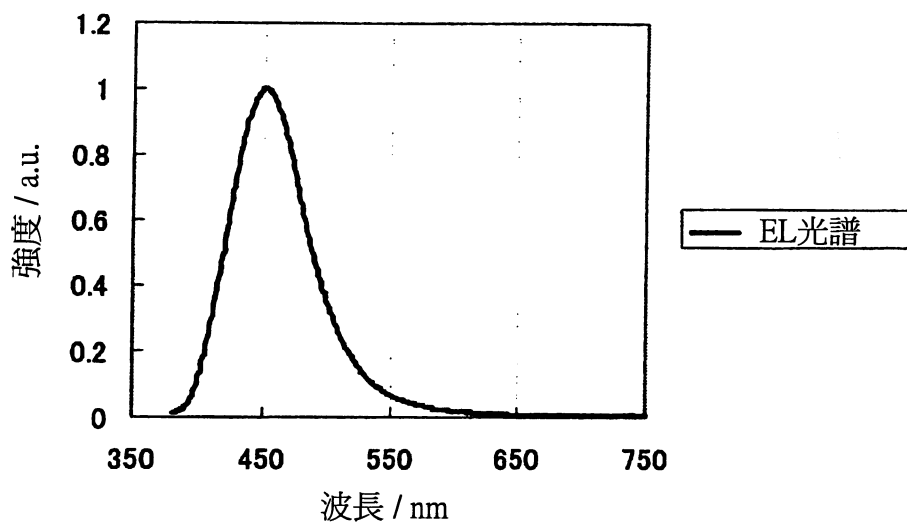


圖 2



七、指定代表圖

(一)、本案指定代表圖為：無

(二)、本代表圖之元件代表符號簡單說明：無

八、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：

