

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2018年4月5日(05.04.2018)

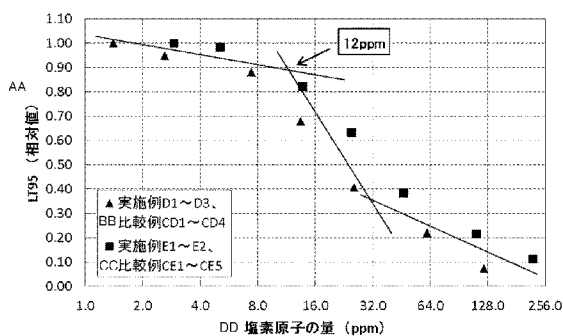
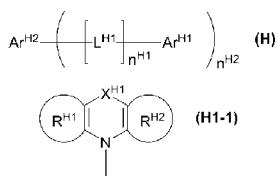


(10) 国際公開番号
WO 2018/061421 A1

- (51) 国際特許分類:
C09K 11/06 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2017/026225
- (22) 国際出願日: 2017年7月20日(20.07.2017)
- (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 2016-189282 2016年9月28日(28.09.2016) JP
- (71) 出願人: 住友化学株式会社
(SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED) [JP/JP]; 〒1048260 東京都中央区新川二丁目27番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 榊原 顕 (SAKAKIBARA, Ken); 〒3003294 茨城県つくば市北原6番住友化学株式会社内 Ibaraki (JP). 林直樹(HAYASHI, Naoki); 〒3003294 茨城県つくば市北原6番住友化学株式会社内 Ibaraki (JP). 早坂裕之(HAYASAKA, Hiroyuki); 〒5548558 大阪府大阪市此花区春日出中三丁目1番98号住友化学株式会社内 Osaka (JP). サブキナスバイダス(SAVUKYNAS, Vaidas); 〒5548558 大阪府大阪市此花区春日出中三丁目1番98号住友化学株式会社内 Osaka (JP).
- (74) 代理人: 中山 亨, 外(NAKAYAMA, Tohru et al.); 〒5418550 大阪府大阪市中央区北浜四丁目5番33号住友化学株式会社内 Osaka (JP).

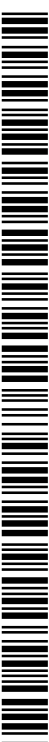
(54) Title: COMPOSITION AND LIGHT-EMITTING ELEMENT

(54) 発明の名称: 組成物及び発光素子



AA LT95 (relative value)
 BB Examples D1-D3, comparative examples CD1-CD4
 CC Examples E1-E2, comparative examples CE1-CE5
 DD Amount of chlorine atoms (ppm)

(57) Abstract: Provided is a composition useful for manufacturing a light-emitting element in which initial degradation is sufficiently suppressed. The composition in which a metal complex and a compound represented by formula (H) are blended, wherein the amount of chlorine atoms included in the composition as an impurity is 12 mass ppm or less with respect to the total amount of solid content included in the composition. Formula (H) (in the formula, $n^{\text{H}1}$ represents integers of 0-5 and $n^{\text{H}2}$ represents integers of 1-10. $\text{Ar}^{\text{H}1}$ represents a group represented by



WO 2018/061421 A1

- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類 :

- 一 国際調査報告 (条約第21条(3))

formula (H1-1). L^{H1} represents an alkylene group, an arylene group, and the like. Ar^{H2} represents an aromatic hydrocarbon group or an aromatic heterocyclic group.) Formula (H1-1) (in the formula, ring R^{H1} and ring R^{H2} represent an aromatic hydrocarbon ring or an aromatic heterocycle. However, at least one of the ring R^{H1} and ring R^{H2} is a condensed aromatic hydrocarbon ring or a condensed aromatic heterocycle. X^{H1} represents a single bond, an oxygen atom, a sulfur atom, or the like.)

(57) 要約: 初期劣化が十分に抑制された発光素子の製造に有用な組成物を提供する。金属錯体と式(H)で表される化合物とが配合された組成物であって、前記組成物中に不純物として含まれる塩素原子の量が、前記組成物中に含まれる固形分全量に対して、12質量ppm以下である、組成物。式(H) [式中、 n^{H1} は0~5の整数を表し、 n^{H2} は1~10の整数を表す。A r^{H1} は式(H1-1)で表される基を表す。 L^{H1} はアルキレン基、アリーレン基等を表す。A r^{H2} は芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を表す。] 式(H1-1) [式中、環 R^{H1} 及び環 R^{H2} は芳香族炭化水素環又は芳香族複素環を表す。但し、環 R^{H1} 及び環 R^{H2} のうちの少なくとも一つは縮環の芳香族炭化水素環又は縮環の芳香族複素環である。 X^{H1} は単結合、酸素原子、硫黄原子等を表す。]

明 細 書

発明の名称：組成物及び発光素子

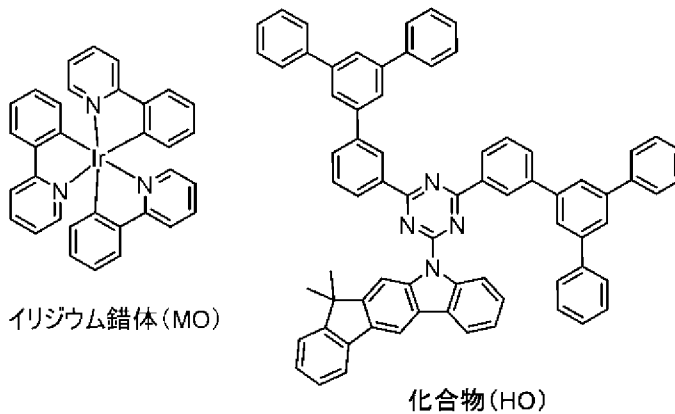
技術分野

[0001] 本発明は、組成物及び発光素子に関する。

背景技術

[0002] 有機エレクトロルミネッセンス素子等の発光素子は、ディスプレイ及び照明の用途に好適に使用することが可能であり、研究開発が盛んに行われている。発光素子は、発光層等の有機層を有する。発光層の材料としては、例えば、下記式で表されるイリジウム錯体（MO）と、下記式で表される化合物（HO）とを含有する組成物が知られている（特許文献1）。

[0003] [化1]



先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特表2013-504884号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] しかしながら、上述の組成物を含有する発光層を有する発光素子は、初期劣化（即ち、焼き付きと呼ばれる発光初期における輝度低下）の抑制が必ずしも十分ではなかった。

そこで、本発明は、初期劣化が十分に抑制された発光素子の製造に有用な

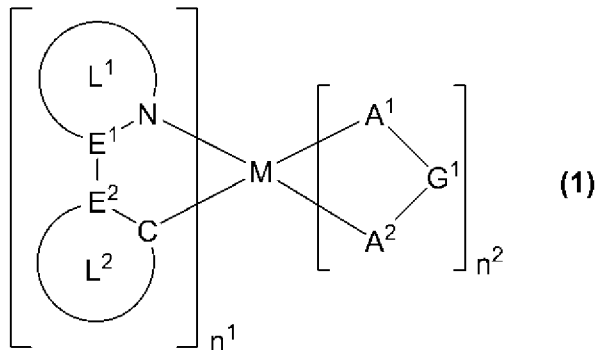
組成物を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0006] 本発明は、以下の [1] ~ [8] を提供する。

[0007] [1] 式 (1) で表される金属錯体と式 (H) で表される化合物とが配合された組成物であって、前記組成物中に不純物として含まれる塩素原子の量が、前記組成物中に含まれる固形分全量に対して、12質量ppm以下である、組成物。

[化2]



[式中、

Mは、ルテニウム原子、ロジウム原子、パラジウム原子、イリジウム原子又は白金原子を表す。

n^1 は1以上の整数を表し、 n^2 は0以上の整数を表し、 $n^1 + n^2$ は2又は3である。Mがルテニウム原子、ロジウム原子又はイリジウム原子の場合、 $n^1 + n^2$ は3であり、Mがパラジウム原子又は白金原子の場合、 $n^1 + n^2$ は2である。

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

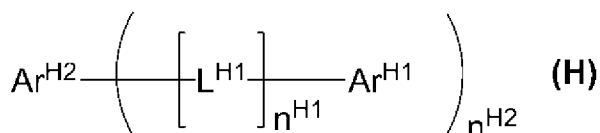
環 L^1 は、芳香族複素環を表し、この環は置換基を有していてもよい。該置換基が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよく、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。環 L^1 が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。

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

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

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

[化3]



[式中、

n^{H1} は、0以上5以下の整数を表す。 n^{H1} が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。

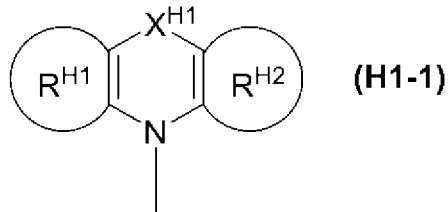
n^{H2} は、1以上10以下の整数を表す。

Ar^{H1} は、式(H1-1)で表される基を表す。 Ar^{H1} が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。

L^{H1} は、アルキレン基、シクロアルキレン基、アリーレン基、2価の複素環基、 $-NR^{H1'}$ で表される基、酸素原子又は硫黄原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。 $R^{H1'}$ は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。 L^{H1} が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。

A r^{H2} は、芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。]

[化4]



[式中、

環 R^{H1} 及び環 R^{H2} は、それぞれ独立に、単環若しくは縮環の芳香族炭化水素環又は単環若しくは縮環の芳香族複素環を表し、これらの環は置換基を有していてもよい。該置換基が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよく、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。

但し、環 R^{H1} 及び環 R^{H2} のうちの少なくとも一つは、縮環の芳香族炭化水素環又は縮環の芳香族複素環であり、これらの環は置換基を有していてもよい。該置換基が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよく、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。

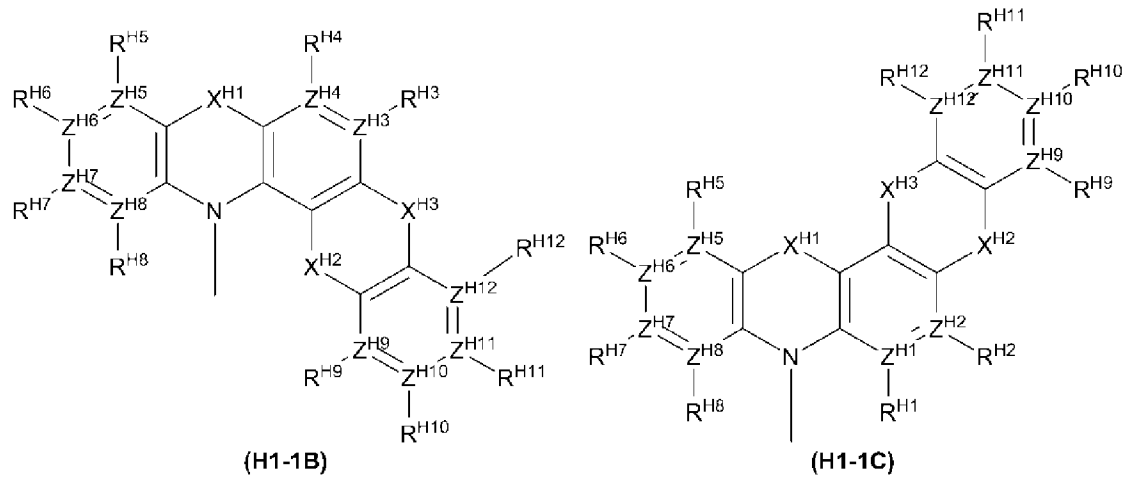
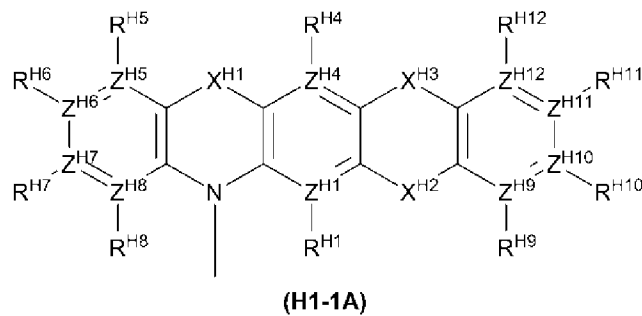
X^{H1} は、単結合、酸素原子、硫黄原子、 $-N(R^{XH1})-$ で表される基、又は、 $-C(R^{XH1'})_2-$ で表される基を表す。 R^{XH1} 及び $R^{XH1'}$ は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はフッ素原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。複数存在する $R^{XH1'}$ は、同一でも異なってもよく、互いに結合して、それぞれが結合する炭素原子と共に環を形成していてもよい。

R^{XH1} と環 R^{H1} が有していてもよい置換基、 R^{XH1} と環 R^{H2} が有していてもよい置換基、 $R^{XH1'}$ と環 R^{H1} が有していてもよい置換基、及び、 $R^{XH1'}$ と環 R^{H2} が有していてもよい置換基は、それぞれ結合して、それぞれが結合する原子と共に環を形成していてもよい。]

[2] 前記組成物中に含まれる前記式 (H) で表される化合物の純度 (当該純度は、液体クロマトグラフィーの面積百分率値から算出される純度である) が 99.0% 以上である、[1] に記載の組成物。

[3] 前記式 (H1-1) で表される基が、式 (H1-1A)、式 (H1-1B) 又は式 (H1-1C) で表される基である、[1] 又は [2] に記載の組成物。

[化5]



[式中、

X^{H1}は、前記と同じ意味を表す。

X^{H2}及びX^{H3}は、それぞれ独立に、単結合、酸素原子、硫黄原子、-N(R^{XH2})-で表される基、又は、-C(R^{XH2'})₂-で表される基を表す。R^{XH2}及びR^{XH2'}は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はフッ素原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。複数存在するR^{XH2'}は、同一でも異なってもよく、互いに結合し

て、それぞれが結合する炭素原子と共に環を形成していてもよい。

Z^{H1} 、 Z^{H2} 、 Z^{H3} 、 Z^{H4} 、 Z^{H5} 、 Z^{H6} 、 Z^{H7} 、 Z^{H8} 、 Z^{H9} 、 Z^{H10} 、 Z^{H11} 及び Z^{H12} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。

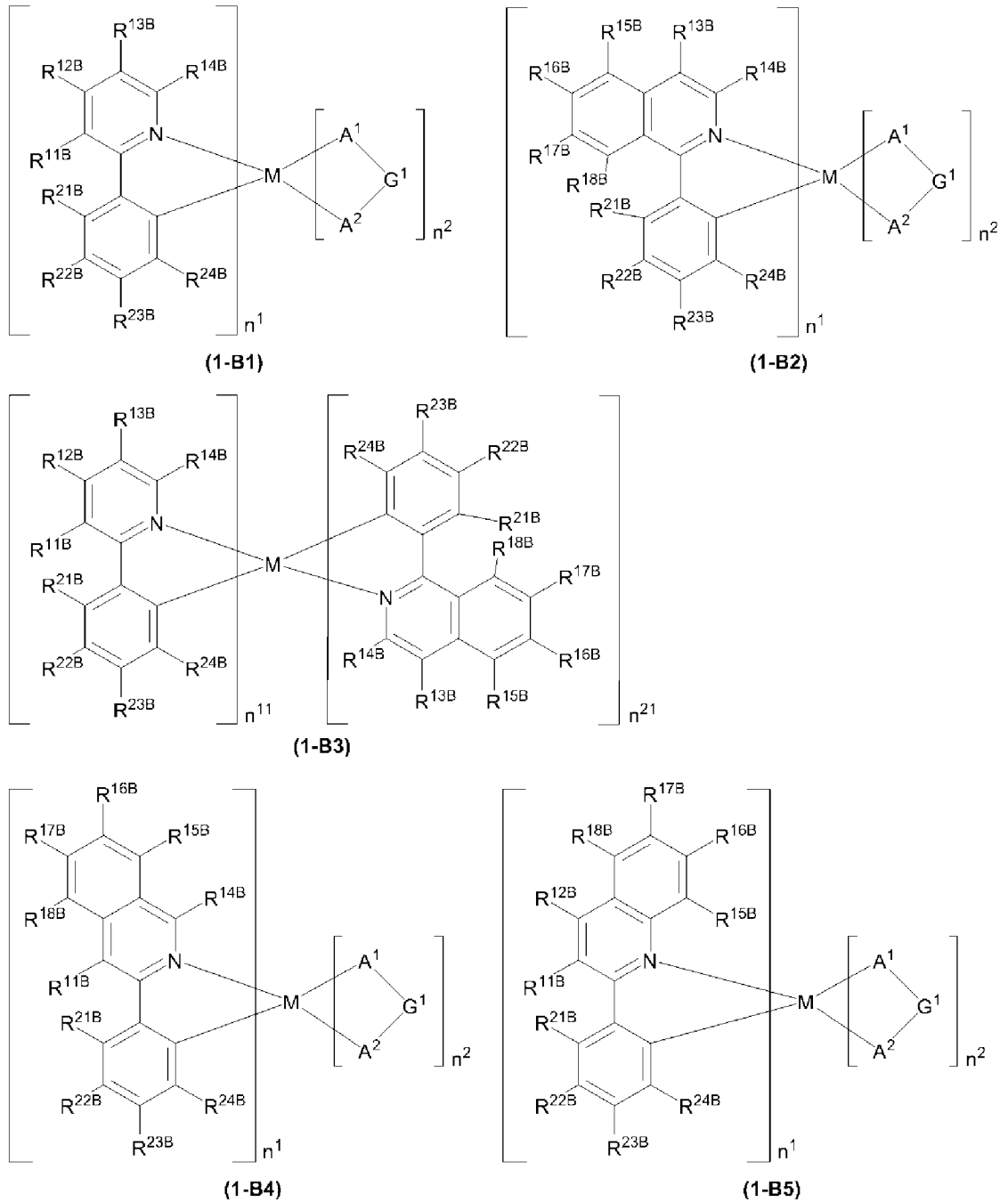
R^{H1} 、 R^{H2} 、 R^{H3} 、 R^{H4} 、 R^{H5} 、 R^{H6} 、 R^{H7} 、 R^{H8} 、 R^{H9} 、 R^{H10} 、 R^{H11} 及び R^{H12} は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリーロキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はフッ素原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。

Z^{H1} が窒素原子の場合、 R^{H1} は存在しない。 Z^{H2} が窒素原子の場合、 R^{H2} は存在しない。 Z^{H3} が窒素原子の場合、 R^{H3} は存在しない。 Z^{H4} が窒素原子の場合、 R^{H4} は存在しない。 Z^{H5} が窒素原子の場合、 R^{H5} は存在しない。 Z^{H6} が窒素原子の場合、 R^{H6} は存在しない。 Z^{H7} が窒素原子の場合、 R^{H7} は存在しない。 Z^{H8} が窒素原子の場合、 R^{H8} は存在しない。 Z^{H9} が窒素原子の場合、 R^{H9} は存在しない。 Z^{H10} が窒素原子の場合、 R^{H10} は存在しない。 Z^{H11} が窒素原子の場合、 R^{H11} は存在しない。 Z^{H12} が窒素原子の場合、 R^{H12} は存在しない。

R^{H1} と R^{H2} 、 R^{H3} と R^{H4} 、 R^{H5} と R^{H6} 、 R^{H6} と R^{H7} 、 R^{H7} と R^{H8} 、 R^{H9} と R^{H10} 、 R^{H10} と R^{H11} 、及び、 R^{H11} と R^{H12} は、それぞれ結合して、それぞれが結合する炭素原子とともに環を形成していてもよい。]

[4] 前記式(1)で表される金属錯体が、式(1-B1)、式(1-B2)、式(1-B3)、式(1-B4)又は式(1-B5)で表される金属錯体である、[1]～[3]のいずれかに記載の組成物。

[化6]



[式中、

M、 n^1 、 n^2 、 $A^1-G^1-A^2$ は、前記と同じ意味を表す。

R^{11B} 、 R^{12B} 、 R^{13B} 、 R^{14B} 、 R^{21B} 、 R^{22B} 、 R^{23B} 及び R^{24B} は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はフッ素原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。 R^{11B} 、 R^{12B} 、 R

R^{13B} 、 R^{14B} 、 R^{21B} 、 R^{22B} 、 R^{23B} 及び R^{24B} が複数存在する場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。 R^{11B} と R^{12B} 、 R^{12B} と R^{13B} 、 R^{13B} と R^{14B} 、 R^{11B} と R^{21B} 、 R^{21B} と R^{22B} 、 R^{22B} と R^{23B} 、及び、 R^{23B} と R^{24B} は、それぞれ結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。

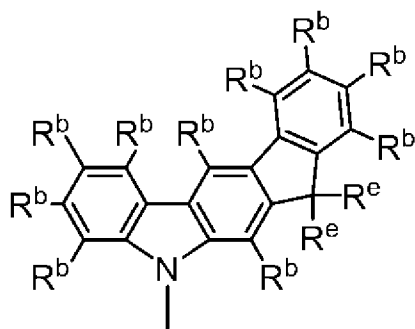
n^{11} 及び n^{12} は、それぞれ独立に、1以上の整数を表し、 $n^{11} + n^{12}$ は2又は3である。 M がルテニウム原子、ロジウム原子又はイリジウム原子の場合、 $n^{11} + n^{12}$ は3であり、 M がパラジウム原子又は白金原子の場合、 $n^{11} + n^{12}$ は2である。

R^{15B} 、 R^{16B} 、 R^{17B} 及び R^{18B} は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリーロキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はフッ素原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。 R^{15B} 、 R^{16B} 、 R^{17B} 及び R^{18B} が複数存在する場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。 R^{13B} と R^{15B} 、 R^{15B} と R^{16B} 、 R^{16B} と R^{17B} 、 R^{17B} と R^{18B} 、及び、 R^{18B} と R^{21B} は、それぞれ結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。]

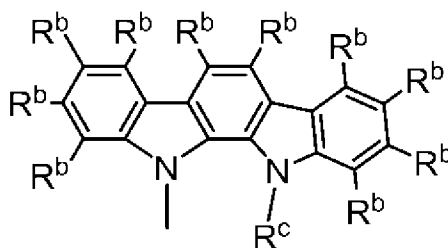
[5] 前記式(1)で表される金属錯体が、前記式(1-B1)、前記式(1-B2)、前記式(1-B3)又は前記式(1-B5)で表される金属錯体である、[4]に記載の組成物。

[6] 前記式(H1-1)で表される基が、式(ArH1-1)又は式(ArH1-10)で表される基である、[1]～[5]のいずれかに記載の組成物。

[化7]



(ArH1-1)



(ArH1-10)

[式中、R^b、R^c及びR^eは、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリーロキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はフッ素原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。複数存在するR^b及びR^eは、各々、同一でも異なってもよく、互いに結合して、それぞれが結合する炭素原子と共に環を形成していてもよい。]

[7] 正孔輸送材料、正孔注入材料、電子輸送材料、電子注入材料、発光材料、酸化防止剤及び溶媒からなる群より選ばれる少なくとも1種の材料を更に含有する[1]～[6]のいずれかに記載の組成物。

[8] [1]～[7]のいずれかに記載の組成物を含む発光素子。

発明の効果

[0008] 本発明の組成物は、初期劣化が十分に抑制された発光素子の製造に有用である。また、本発明の発光素子は、初期劣化が十分に抑制された発光素子である。

図面の簡単な説明

[0009] [図1]実施例D1～D3、E1～E2及び比較例CD1～CD4、CE1～CE5におけるLT95と不純物としての塩素原子の量との関係を表すグラフである。

発明を実施するための形態

[0010] 以下、本発明の好適な実施形態について詳細に説明する。

[0011] <共通する用語>

本明細書で共通して用いられる用語は、特記しない限り、以下の意味である。

[0012] Meはメチル基、Etはエチル基、Buはブチル基、i-Prはイソプロピル基、t-Buはtert-ブチル基を表す。

[0013] 水素原子は、重水素原子であっても、軽水素原子であってもよい。

[0014] 金属錯体を表す式中、中心金属との結合を表す実線は、共有結合又は配位結合を意味する。

[0015] 「高分子化合物」とは、分子量分布を有し、ポリスチレン換算の数平均分子量が $1 \times 10^3 \sim 1 \times 10^8$ である重合体を意味する。

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

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

[0016] 「低分子化合物」とは、分子量分布を有さず、分子量が 1×10^4 以下の化合物を意味する。

[0017] 「構成単位」とは、高分子化合物中に1個以上存在する単位を意味する。

[0018] 「アルキル基」は、直鎖及び分岐のいずれでもよい。直鎖のアルキル基の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常1~50であり、好ましくは3~30であり、より好ましくは4~20である。分岐のアルキル基の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常3~50であり、好ましくは3~30であり、より好ましくは4~20である。

アルキル基は、置換基を有していてもよく、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、2-ブチル基、イソブチル基、tert-ブチル基、ペンチル基、イソアミル基、2-エチルブチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、2-エチルヘキシル基、3-プロピルヘプチル基、デシル基、3,7-ジメチルオクチル基、2-エチルオクチル基、2-ヘキシルデシル基、ドデシル基、及び、これらの基における水素原子が、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリアル基、フッ素原子等で置換された基が挙げられ、例えば、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、パーフルオロブチル基、パーフルオロヘキシル基、パーフルオロオクチル基、3-フェニルプロピル基、3-(4-メチル

フェニル) プロピル基、3-(3,5-ジヘキシルフェニル) プロピル基、6-エチルオキシヘキシル基が挙げられる。

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

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

[0019] 「アリール基」は、芳香族炭化水素から環を構成する炭素原子に直接結合する水素原子1個を除いた残りの原子団を意味する。アリール基の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常6~60であり、好ましくは6~20であり、より好ましくは6~10である。

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

[0020] 「アルコキシ基」は、直鎖及び分岐のいずれでもよい。直鎖のアルコキシ基の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常1~40であり、好ましくは4~10である。分岐のアルコキシ基の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常3~40であり、好ましくは4~10である。

アルコキシ基は、置換基を有していてもよく、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、イソプロピルオキシ基、ブチルオキシ基、イソブチルオキシ基、tert-ブチルオキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ヘプチルオキシ基、オクチルオキシ基、2-エチルヘキシルオキ

シ基、ノニルオキシ基、デシルオキシ基、3,7-ジメチルオクチルオキシ基、ラウリルオキシ基、及び、これらの基における水素原子が、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリアル基、フッ素原子等で置換された基が挙げられる。

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

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

[0021] 「アリアルオキシ基」の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常6~60であり、好ましくは6~48である。

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

[0022] 「p価の複素環基」(pは、1以上の整数を表す。)とは、複素環式化合物から、環を構成する炭素原子又はヘテロ原子に直接結合している水素原子のうちp個の水素原子を除いた残りの原子団を意味する。p価の複素環基の中でも、芳香族複素環式化合物から、環を構成する炭素原子又はヘテロ原子に直接結合している水素原子のうちp個の水素原子を除いた残りの原子団である「p価の芳香族複素環基」が好ましい。

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

[0023] 1価の複素環基の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常2～60であり、好ましくは4～20である。

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

[0024] 「ハロゲン原子」とは、フッ素原子、塩素原子、臭素原子又はヨウ素原子を示す。

[0025] 「アミノ基」は、置換基を有していてもよく、置換アミノ基が好ましい。アミノ基が有する置換基としては、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基が好ましい。

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

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

[0026] 「アルケニル基」は、直鎖及び分岐のいずれでもよい。直鎖のアルケニル基の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常2～30であり、好ましくは3～20である。分岐のアルケニル基の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常3～30であり、好ましくは4～20である。

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

アルケニル基及びシクロアルケニル基は、置換基を有していてもよく、例えば、ビニル基、1-プロペニル基、2-プロペニル基、2-ブテニル基、3-ブテニル基、3-ペンテニル基、4-ペンテニル基、1-ヘキセニル基

、5-ヘキセニル基、7-オクテニル基、及び、これらの基が置換基を有する基が挙げられる。

[0027] 「アルキニル基」は、直鎖及び分岐のいずれでもよい。アルキニル基の炭素原子数は、置換基の炭素原子を含めないで、通常2~20であり、好ましくは3~20である。分岐のアルキニル基の炭素原子数は、置換基の炭素原子を含めないで、通常4~30であり、好ましくは4~20である。

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

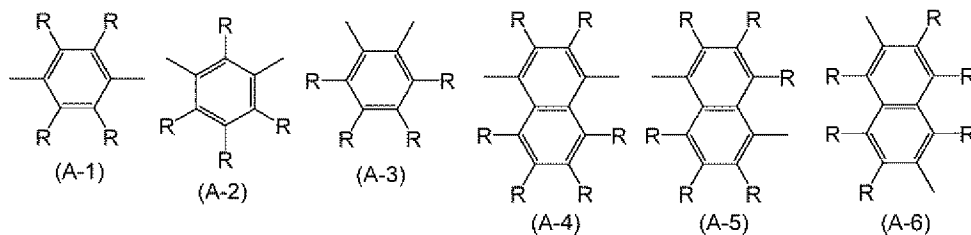
アルキニル基及びシクロアルキニル基は、置換基を有していてもよく、例えば、エチニル基、1-プロピニル基、2-プロピニル基、2-ブチニル基、3-ブチニル基、3-ペンチニル基、4-ペンチニル基、1-ヘキシニル基、5-ヘキシニル基、及び、これらの基が置換基を有する基が挙げられる。

[0028] 「アリーレン基」は、芳香族炭化水素から環を構成する炭素原子に直接結合する水素原子2個を除いた残りの原子団を意味する。アリーレン基の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常6~60であり、好ましくは6~30であり、より好ましくは6~18である。

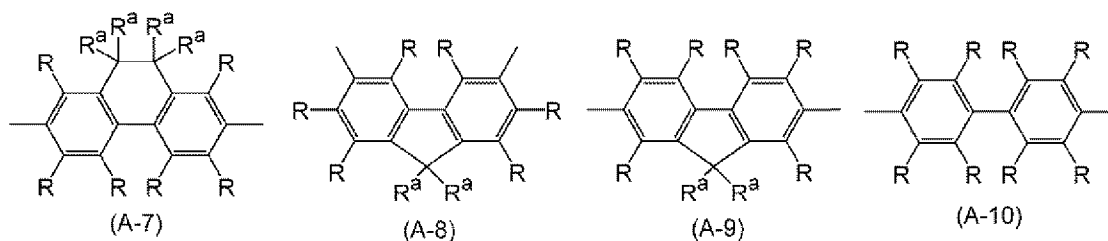
アリーレン基は、置換基を有していてもよく、例えば、フェニレン基、ナフタレンジイル基、アントラセンジイル基、フェナントレンジイル基、ジヒドロフェナントレンジイル基、ナфтаセンジイル基、フルオレンジイル基、ピレンジイル基、ペリレンジイル基、クリセンジイル基、及び、これらの基が置換基を有する基が挙げられ、好ましくは、式(A-1)~式(A-20)で表される基である。アリーレン基は、これらの基が複数結合した基を含む。

[0029]

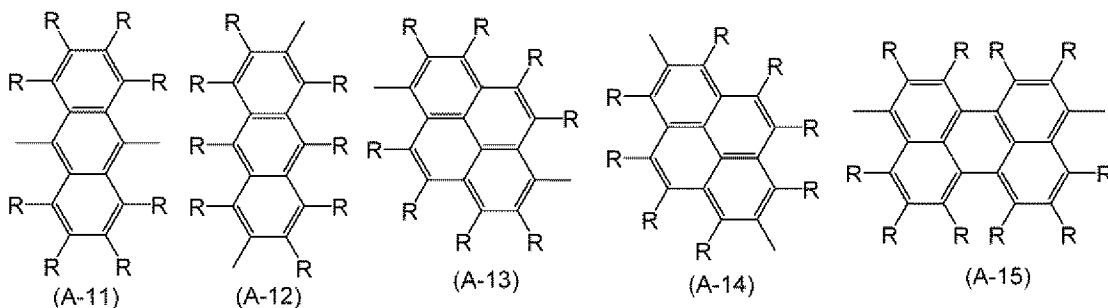
[化8]



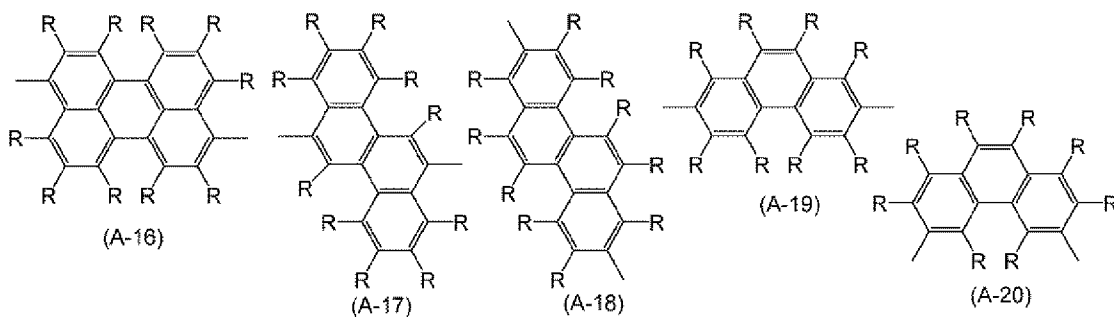
[0030] [化9]



[0031] [化10]



[0032] [化11]



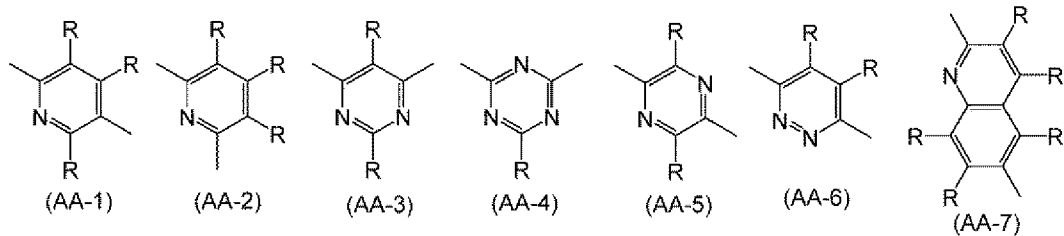
[式中、R及びR^aは、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1個の複素環基を表す。複数存在するR及びR^aは、各々、同一でも異なってもよく、R^a同士は互いに結合して、それぞれが結合する原子と共に環を形成していてもよい。]

[0033] 2個の複素環基の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常

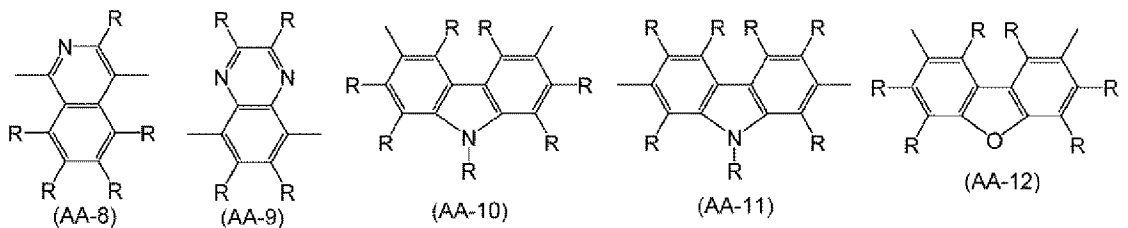
2～60であり、好ましくは、3～20であり、より好ましくは、4～15である。

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

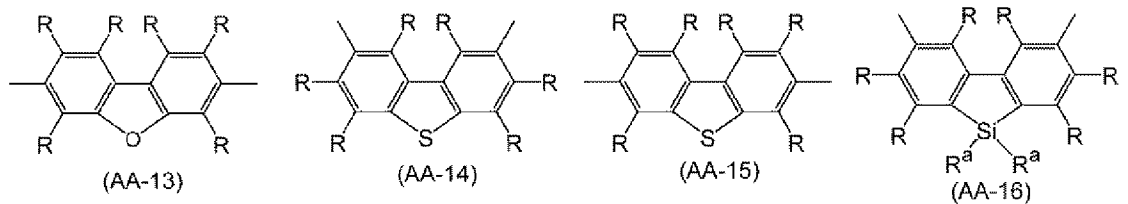
[0034] [化12]



[0035] [化13]

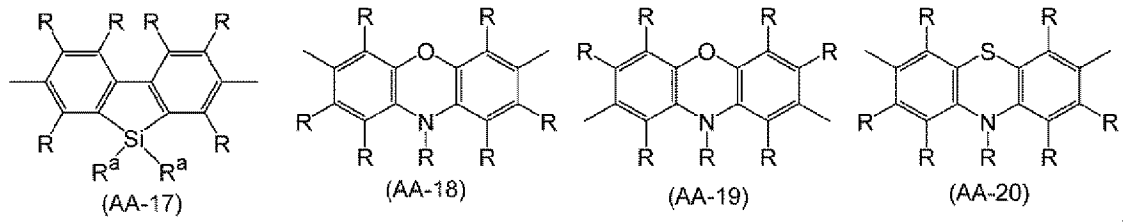


[0036] [化14]

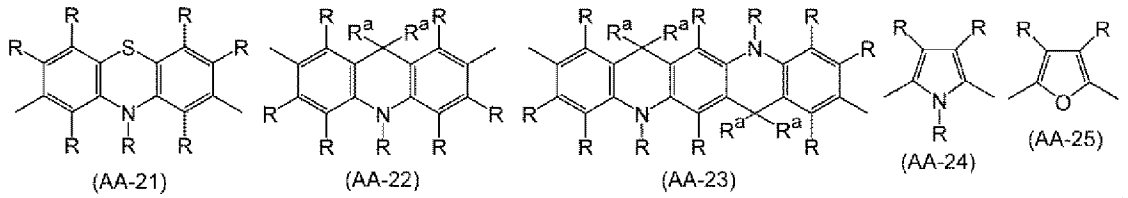


[0037]

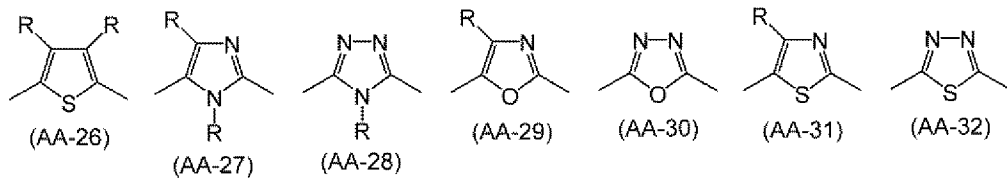
[化15]



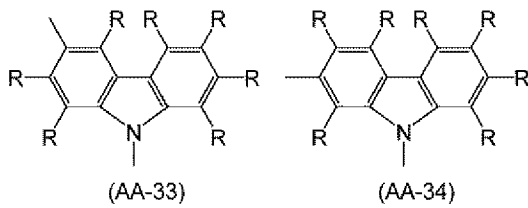
[0038] [化16]



[0039] [化17]



[0040] [化18]



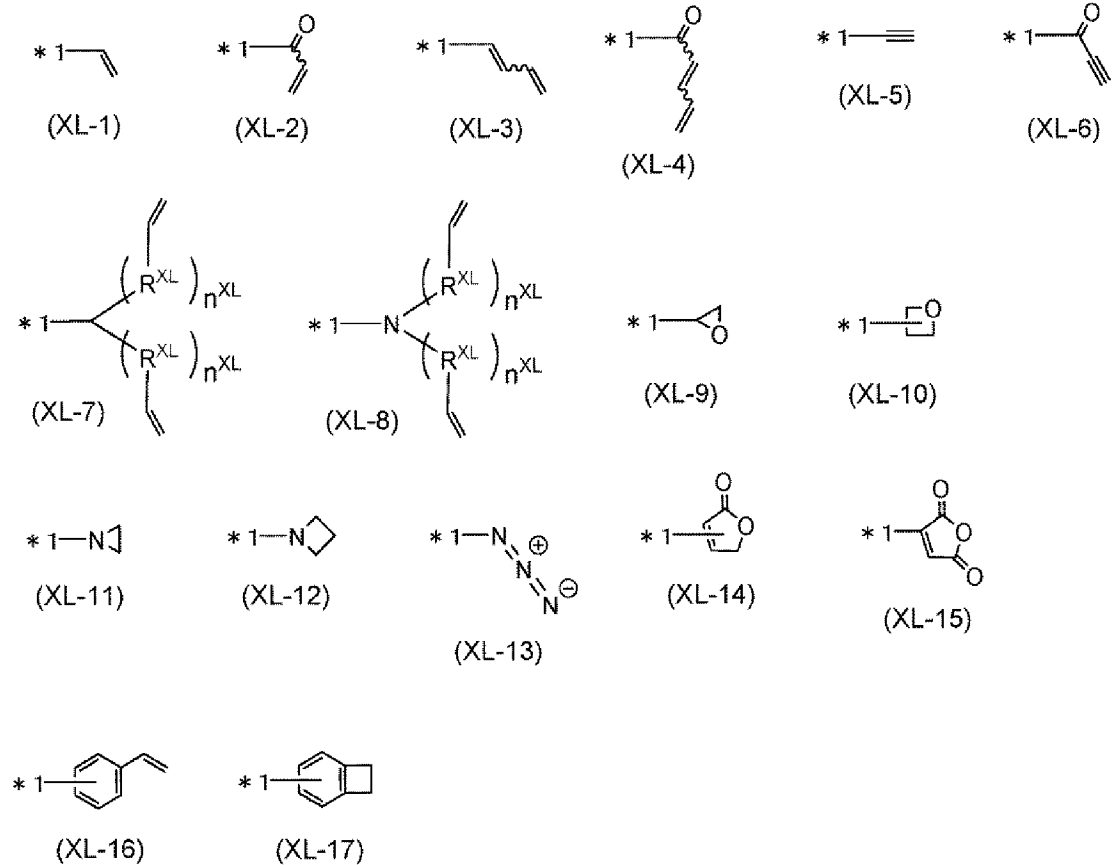
[式中、R及びR^aは、前記と同じ意味を表す。]

[0041] 「架橋基」とは、加熱処理、紫外線照射処理、近紫外線照射処理、可視光照射処理、赤外線照射処理、ラジカル反応等に供することにより、新たな結合を生成することが可能な基であり、好ましくは、架橋基A群の式(XL-1)~式(XL-17)で表される架橋基である。

[0042] (架橋基A群)

[0043]

[化19]



[式中、 R^{XL} は、メチレン基、酸素原子又は硫黄原子を表し、 n^{XL} は、0～5の整数を表す。 R^{XL} が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよく、 n^{XL} が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。 $*1$ は結合位置を表す。これらの架橋性基は置換基を有していてもよい。]

[0044] 「置換基」とは、フッ素原子、シアノ基、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、1価の複素環基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリアルコキシ基、アミノ基、置換アミノ基、アルケニル基、シクロアルケニル基、アルキニル基又はシクロアルキニル基を表す。置換基は架橋基であってもよい。

[0045] 化合物中に含まれる「不純物としての塩素原子の量」は、自動燃焼ーイオンクロマトグラフ法により測定することができる。即ち、化合物中に含まれる「不純物としての塩素原子の量」とは、化合物を自動燃焼ーイオンクロマトグラフ法により測定した際の塩素の質量濃度を意味する。化合物中に含ま

れる塩素の質量濃度が検出限界以下の場合、化合物中に含まれる「不純物としての塩素原子の量」を0.01質量ppm（即ち、検出限界）とする。

[0046] <組成物>

[式(1)で表される金属錯体]

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

[0047] Mは、本実施形態に係る発光素子の初期劣化がより抑制されるので、イリジウム原子又は白金原子であることが好ましく、イリジウム原子であることがより好ましい。

[0048] Mがルテニウム原子、ロジウム原子又はイリジウム原子の場合、 n^1 は2又は3であることが好ましく、3であることがより好ましい。Mがパラジウム原子又は白金原子の場合、 n^1 は2であることが好ましい。

[0049] E^1 及び E^2 は、炭素原子であることが好ましい。

[0050] 環 L^1 は、5員又は6員の芳香族複素環であることが好ましく、2つ以上4つ以下の窒素原子を構成原子として有する5員の芳香族複素環、又は、1つ以上4つ以下の窒素原子を構成原子として有する6員の芳香族複素環であることがより好ましく、2つ若しくは3つの窒素原子を構成原子として有する5員の芳香族複素環、又は、1つ若しくは2つの窒素原子を構成原子として有する6員の芳香族複素環であることが更に好ましく、これらの環は置換基を有していてもよい。但し、環 L^1 が6員の芳香族複素環である場合、 E^1 は炭素原子であることが好ましい。

[0051] 環 L^1 としては、例えば、ジアゾール環、トリアゾール環、ピリジン環、ジアザベンゼン環、トリアジン環、キノリン環及びイソキノリン環が挙げられ、ピリジン環、キノリン環又はイソキノリン環が好ましく、ピリジン環又はイソキノリン環がより好ましく、これらの環は置換基を有していてもよい。

[0052] 環 L^2 は、5員若しくは6員の芳香族炭化水素環、又は、5員若しくは6員の芳香族複素環であることが好ましく、6員の芳香族炭化水素環又は6員の

芳香族複素環であることがより好ましく、6員の芳香族炭化水素環であることが更に好ましく、これらの環は置換基を有していてもよい。環R²が6員の芳香族複素環である場合、E²は炭素原子であることが好ましい。

[0053] 環L²としては、例えば、ベンゼン環、ナフタレン環、フルオレン環、フェナントレン環、インデン環、ピリジン環、ジアザベンゼン環及びトリアジン環が挙げられ、ベンゼン環、ナフタレン環、フルオレン環、ピリジン環又はピリミジン環が好ましく、ベンゼン環、ピリジン環又はピリミジン環がより好ましく、ベンゼン環が更に好ましく、これらの環は置換基を有していてもよい。

[0054] 環L¹及び環L²が有していてもよい置換基としては、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はフッ素原子が好ましく、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基がより好ましく、アリール基又は1価の複素環基が更に好ましく、これらの基は更に置換基を有していてもよい。

[0055] 環L¹及び環L²が有していてもよい置換基におけるアリール基としては、フェニル基、ナフチル基、アントラセニル基、フェントレニル基、ジヒドロフェントレニル基、フルオレニル基又はピレニル基が好ましく、フェニル基、ナフチル基又はフルオレニル基がより好ましく、フェニル基が更に好ましく、これらの基は更に置換基を有していてもよい。

[0056] 環L¹及び環L²が有していてもよい置換基における1価の複素環基としては、ピリジル基、ピリミジニル基、トリアジニル基、キノリニル基、イソキノリニル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチエニル基、カルバゾリル基、アザカルバゾリル基、ジアザカルバゾリル基、フェノキサジニル基又はフェノチアジニル基が好ましく、ピリジル基、ピリミジニル基又はトリアジニル基がより好ましく、トリアジニル基が更に好ましく、これらの基は更に置換基を有していてもよい。

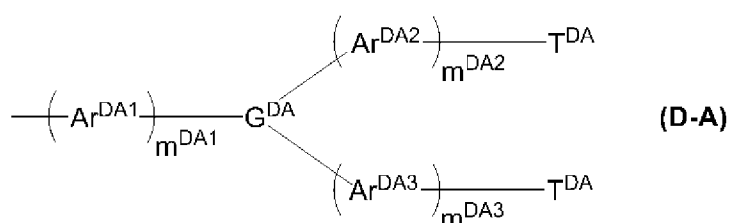
[0057] 環L¹及び環L²が有していてもよい置換基における置換アミノ基において、

アミノ基が有する置換基としては、アリール基又は1価の複素環基が好ましく、アリール基がより好ましく、これらの基は更に置換基を有していてもよい。アミノ基が有する置換基におけるアリール基の例及び好ましい範囲は、環L¹及び環L²が有していてもよい置換基におけるアリール基の例及び好ましい範囲と同じである。アミノ基が有する置換基における1価の複素環基の例及び好ましい範囲は、環L¹及び環L²が有していてもよい置換基における1価の複素環基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0058] 環L¹及び環L²が有していてもよい置換基が更に有していてもよい置換基としては、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はフッ素原子が好ましく、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基がより好ましく、アルキル基、シクロアルキル基又はアリール基が更に好ましく、これらの基は更に置換基を有していてもよい。

[0059] 環L¹及び環L²が有していてもよい置換基におけるアリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基は、本実施形態の発光素子の初期劣化が抑制されるので、好ましくは、式(D-A)、式(D-B)又は式(D-C)で表される基であり、より好ましくは、式(D-A)又は式(D-B)で表される基であり、更に好ましくは、式(D-A)で表される基である。

[0060] [化20]



[式中、

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

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

Ar^{DA1} 、 Ar^{DA2} 及び Ar^{DA3} は、それぞれ独立に、アリーレン基又は2価の複

有していてもよい。A r^{DA1}が複数ある場合、それらは同一でも異なってもよい。

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

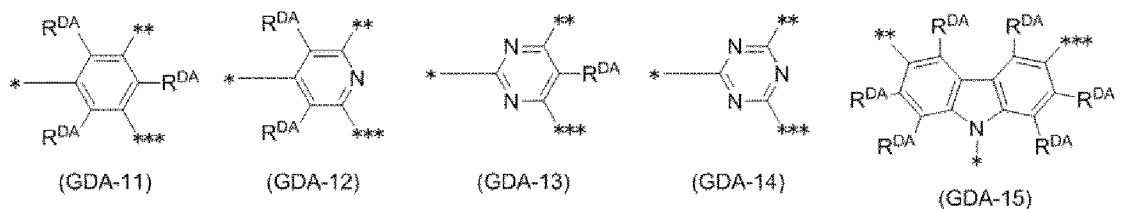
[0063] m^{DA1}、m^{DA2}、m^{DA3}、m^{DA4}、m^{DA5}、m^{DA6}及びm^{DA7}は、通常10以下の整数であり、好ましくは5以下の整数であり、より好ましくは2以下の整数であり、更に好ましくは0又は1である。m^{DA2}、m^{DA3}、m^{DA4}、m^{DA5}、m^{DA6}及びm^{DA7}は、同一の整数であることが好ましい。

[0064] G^{DA}は、好ましくは芳香族炭化水素基又は複素環基であり、より好ましくはベンゼン環、ピリジン環、ピリミジン環、トリアジン環又はカルバゾール環から環を構成する炭素原子又は窒素原子に直接結合する水素原子3個を除いてなる基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0065] G^{DA}が有していてもよい置換基としては、好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリアル基又は1価の複素環基であり、より好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基又はシクロアルコキシ基であり、更に好ましくは、アルキル基又はシクロアルキル基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0066] G^{DA}は、好ましくは式(GDA-11)~式(GDA-15)で表される基であり、より好ましくは式(GDA-11)~式(GDA-14)で表される基であり、更に好ましくは式(GDA-11)又は式(GDA-14)で表される基である。

[0067] [化23]



[式中、

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

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

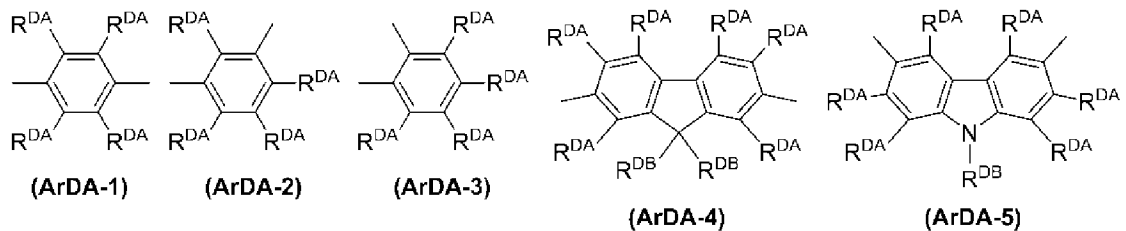
***は、式(D-A)における $A r^{DA3}$ 、式(D-B)における $A r^{DA3}$ 、式(D-B)における $A r^{DA5}$ 、又は、式(D-B)における $A r^{DA7}$ との結合を表す。

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

[0068] R^{DA} は、好ましくは水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基又はシクロアルコキシ基であり、より好ましくは水素原子、アルキル基又はシクロアルキル基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0069] $A r^{DA1}$ 、 $A r^{DA2}$ 、 $A r^{DA3}$ 、 $A r^{DA4}$ 、 $A r^{DA5}$ 、 $A r^{DA6}$ 及び $A r^{DA7}$ は、好ましくは、フェニレン基、フルオレンジル基又はカルバゾールジイル基であり、より好ましくは式(ArDA-1)~(ArDA-5)で表される基であり、更に好ましくは式(ArDA-1)~式(ArDA-3)で表される基であり、特に好ましくは式(ArDA-1)又は式(ArDA-2)で表される基であり、とりわけ好ましくは式(ArDA-2)で表される基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0070] [化24]



[式中、

R^{DA} は、前記と同じ意味を表す。

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

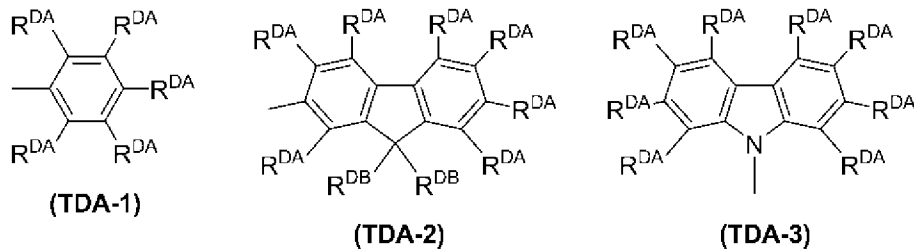
[0071] R^{DB} は、好ましくはアルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の

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

[0072] $A r^{DA1}$ 、 $A r^{DA2}$ 、 $A r^{DA3}$ 、 $A r^{DA4}$ 、 $A r^{DA5}$ 、 $A r^{DA6}$ 及び $A r^{DA7}$ が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲は、 G^{DA} が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0073] T^{DA} は、好ましくは式(TDA-1)～式(TDA-3)で表される基であり、より好ましくは式(TDA-1)で表される基である。

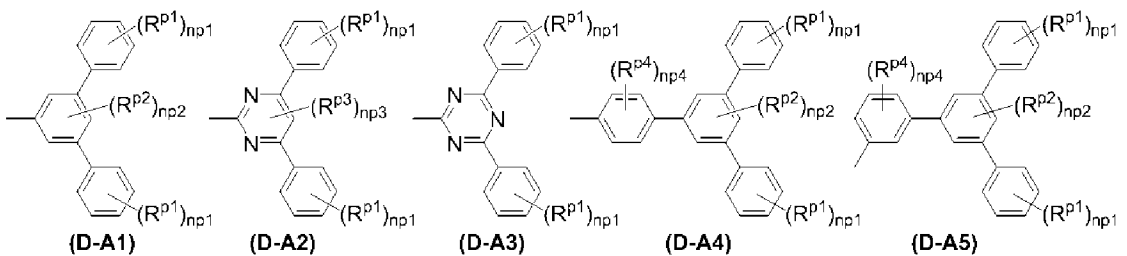
[0074] [化25]



[式中、 R^{DA} 及び R^{DB} は、前記と同じ意味を表す。]

[0075] 式(D-A)で表される基は、好ましくは式(D-A1)～式(D-A5)で表される基であり、より好ましくは式(D-A1)又は式(D-A3)～式(D-A5)で表される基であり、更に好ましくは式(D-A1)、式(D-A3)又は式(D-A5)で表される基である。

[0076] [化26]



[式中、

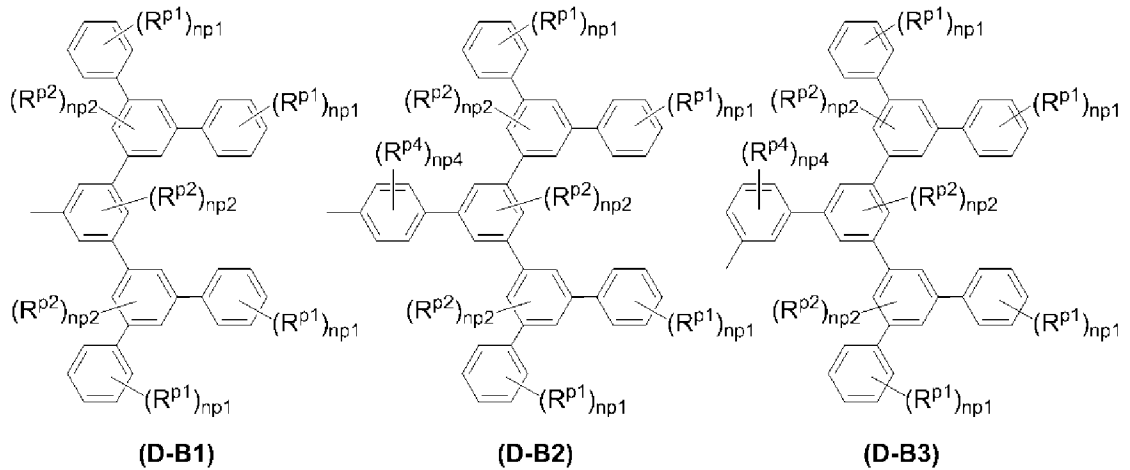
R^{p1} 、 R^{p2} 、 R^{p3} 及び R^{p4} は、それぞれ独立に、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基又はフッ素原子を表す。 R^{p1} 、 R^{p2} 及び R^{p4} が複数ある場合、それらはそれぞれ同一であっても異なってもよい。

n_{p1} は、0～5の整数を表し、 n_{p2} は0～3の整数を表し、 n_{p3} は

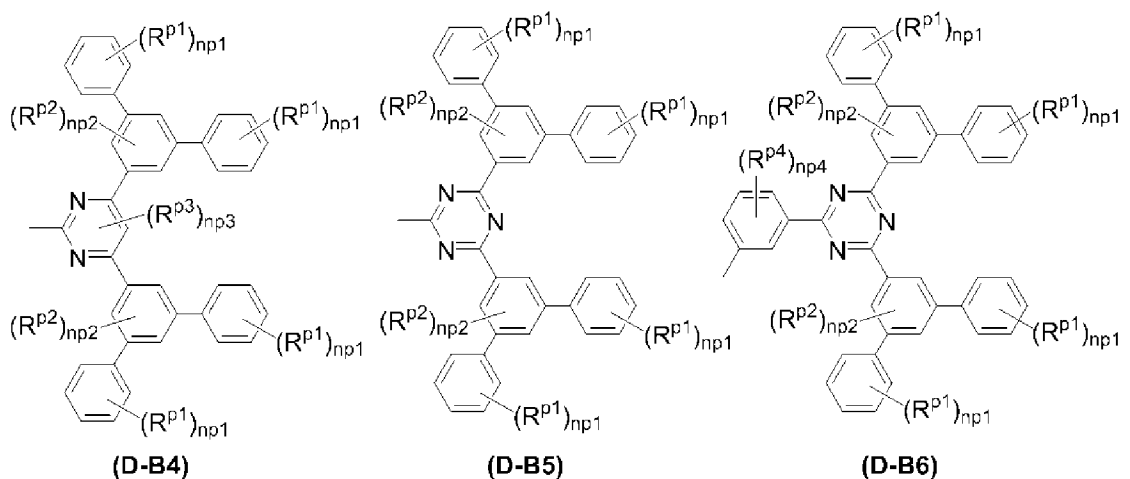
0又は1を表し、 n_{p4} は0～4の整数を表す。複数ある n_{p1} は、同一でも異なってもよい。]

[0077] 式(D-B)で表される基は、好ましくは式(D-B1)～式(D-B6)で表される基であり、より好ましくは式(D-B1)～式(D-B3)、式(D-B5)又は式(D-B6)で表される基であり、更に好ましくは式(D-B1)、式(D-B3)又は式(D-B5)で表される基であり、特に好ましくは式(D-B1)で表される基である。

[0078] [化27]



[0079] [化28]



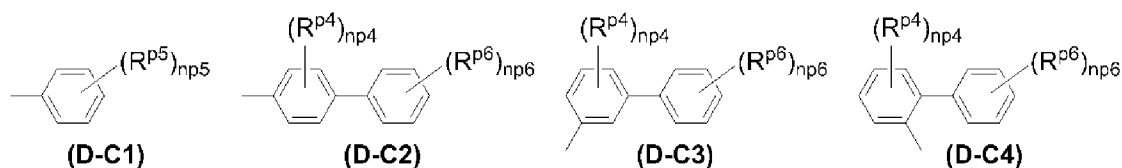
[式中、

R^{p1} 、 R^{p2} 、 R^{p3} 及び R^{p4} は、それぞれ独立に、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基又はフッ素原子を表す。 R^{p1} 、 R^{p2} 及び R^{p4} が複数ある場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。

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

[0080] 式(D-C)で表される基は、好ましくは式(D-C1)～式(D-C4)で表される基であり、より好ましくは式(D-C1)～式(D-C3)で表される基であり、更に好ましくは式(D-C1)又は式(D-C2)で表される基であり、特に好ましくは式(D-C1)で表される基である。

[0081] [化29]



[式中、

R^{p4} 、 R^{p5} 及び R^{p6} は、それぞれ独立に、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基又はフッ素原子を表す。 R^{p4} 、 R^{p5} 及び R^{p6} が複数ある場合、それらはそれぞれ同一であっても異なってもよい。

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

[0082] n_{p1} は、好ましくは0～2の整数であり、より好ましくは0又は1である。 n_{p2} は、好ましくは0又は1であり、より好ましくは0である。 n_{p3} は好ましくは0である。 n_{p4} は、好ましくは0～2の整数であり、より好ましくは0である。 n_{p5} は、好ましくは0～3の整数であり、より好ましくは0又は1である。 n_{p6} は、好ましくは0～2の整数であり、より好ましくは0又は1である。

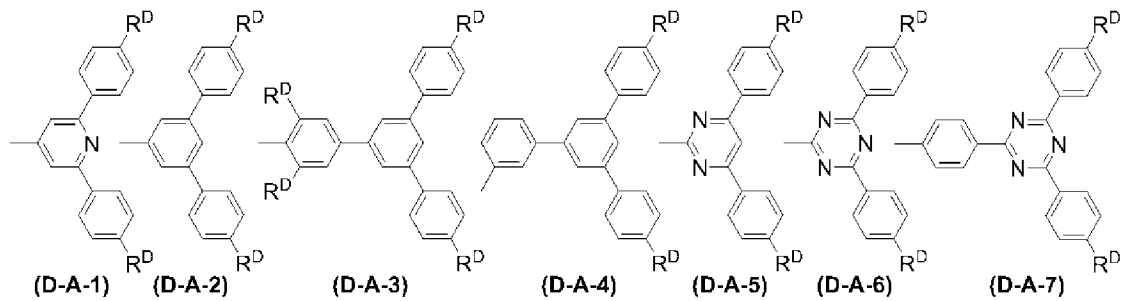
[0083] R^{p1} 、 R^{p2} 、 R^{p3} 、 R^{p4} 、 R^{p5} 及び R^{p6} におけるアルキル基又はシクロアルキル基は、好ましくは、メチル基、エチル基、イソプロピル基、tert-ブチル基、ヘキシル基、2-エチルヘキシル基、シクロヘキシル基又はtert-オクチル基である。

[0084] R^{p1} 、 R^{p2} 、 R^{p3} 、 R^{p4} 、 R^{p5} 及び R^{p6} におけるアルコキシ基又はシクロアルコキシ基は、好ましくは、メトキシ基、2-エチルヘキシルオキシ基又はシクロヘキシルオキシ基である。

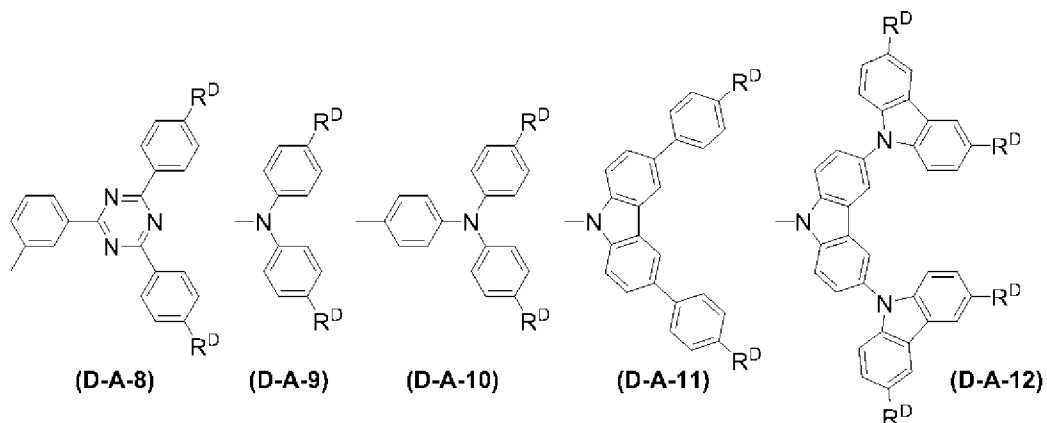
[0085] R^{p1} 、 R^{p2} 、 R^{p3} 、 R^{p4} 、 R^{p5} 及び R^{p6} は、好ましくは、置換基を有していてもよいアルキル基又は置換基を有していてもよいシクロアルキル基であり、より好ましくは、置換基を有していてもよいアルキル基であり、更に好ましくは、メチル基、エチル基、イソプロピル基、tert-ブチル基、ヘキシル基、2-エチルヘキシル基又はtert-オクチル基である。

[0086] 式(D-A)で表される基としては、例えば、式(D-A-1)～式(D-A-12)で表される基が挙げられる。

[0087] [化30]



[0088] [化31]

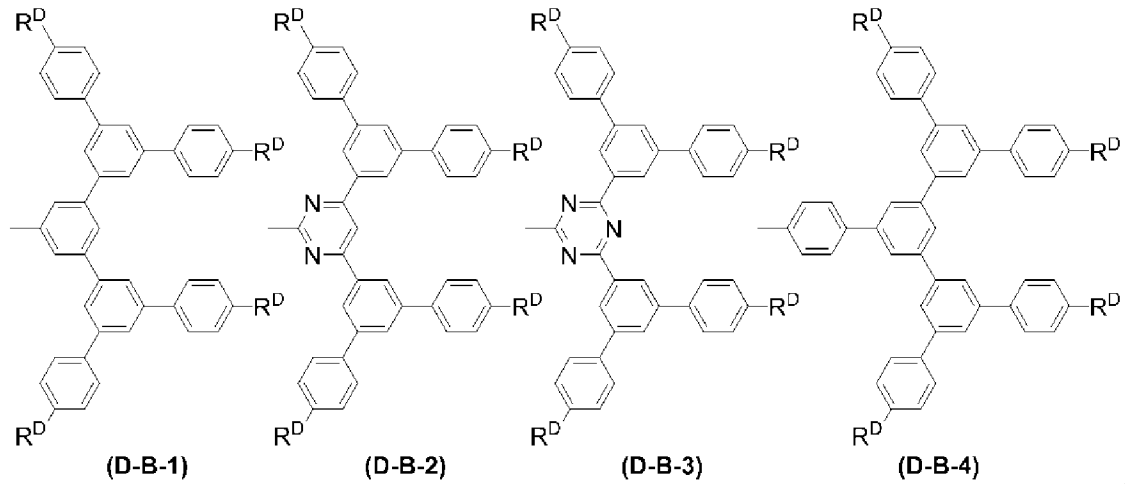


[式中、 R^D は、水素原子、メチル基、エチル基、イソプロピル基、tert-ブチル基、ヘキシル基、2-エチルヘキシル基、tert-オクチル基、シクロヘキシル基、メトキシ基、2-エチルヘキシルオキシ基又はシクロヘキシルオキシ基を表す。 R^D が複数存在する場合、それらは同一でも異なって

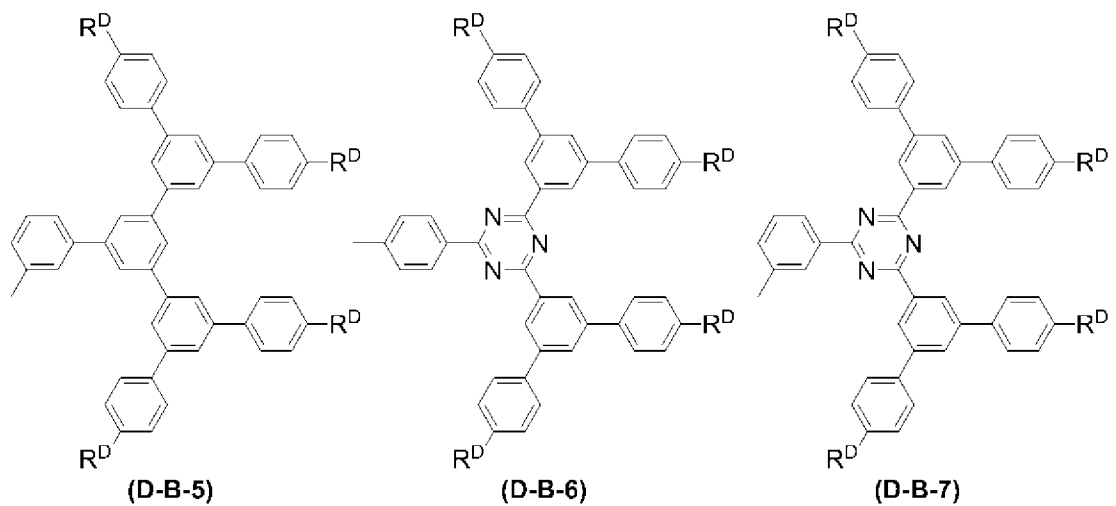
いてもよい。]

[0089] 式(D-B)で表される基としては、例えば、式(D-B-1)～式(D-B-7)で表される基が挙げられる。

[0090] [化32]



[0091] [化33]

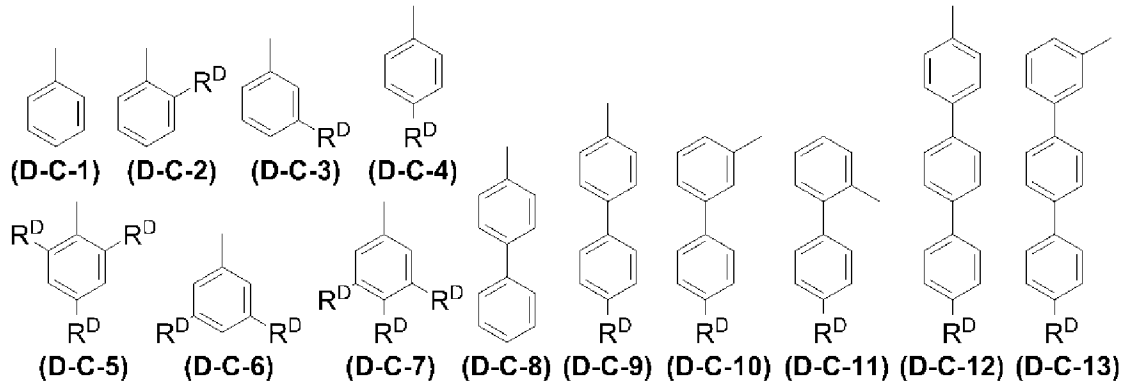


[式中、R^Dは前記と同じ意味を表す。]

[0092] 式(D-C)で表される基としては、例えば、式(D-C-1)～式(D-C-13)で表される基が挙げられる。

[0093]

[化34]



[式中、 R^D は前記と同じ意味を表す。]

[0094] R^D は、水素原子、メチル基、エチル基、イソプロピル基、tert-ブチル基、ヘキシル基、2-エチルヘキシル基又はtert-オクチル基であることが好ましく、水素原子、tert-ブチル基又はtert-オクチル基であることがより好ましい。

[0095] 環 L^1 が有していてもよい置換基が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよく、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。

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

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

[0096] $A^1-G^1-A^2$ で表されるアニオン性の2座配位子としては、例えば、下記式で表される配位子が挙げられる。但し、 $A^1-G^1-A^2$ で表されるアニオン性の2座配位子は、添え字 n^1 でその数を定義されている配位子とは異なる。

[0097]

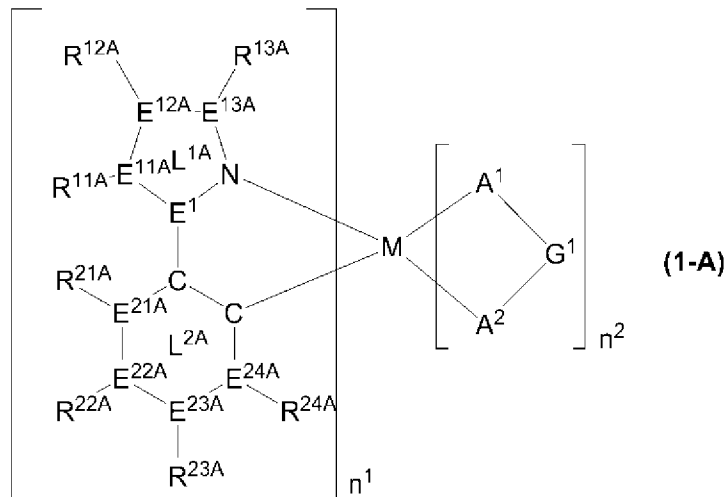
R^{L2}は、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、1価の複素環基又はフッ素原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。]

[0100] R^{L1}は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基又はフッ素原子であることが好ましく、水素原子又はアルキル基であることがより好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0101] R^{L2}は、アルキル基又はアリール基であることが好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0102] 式(1)で表される金属錯体は、本実施形態の発光素子の初期劣化が抑制されるので、式(1-A)又は式(1-B)で表される金属錯体化合物であることが好ましく、式(1-B)で表される金属錯体であることがより好ましい。

[0103] [化38]



[式中、

M、n¹、n²、E¹及びA¹-G¹-A²は、前記と同じ意味を表す。

E^{11A}、E^{12A}、E^{13A}、E^{21A}、E^{22A}、E^{23A}及びE^{24A}は、それぞれ独立に、窒素原子又は炭素原子を表す。E^{11A}、E^{12A}、E^{13A}、E^{21A}、E^{22A}、E^{23A}及びE^{24A}が複数存在する場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。E^{11A}が窒素原子の場合、R^{11A}は存在しても存在しなくてもよい。E^{12A}が窒素原子の場合、R^{12A}は存在しても存在しなくてもよい。E^{13A}が窒素原子の場合、R^{13A}は存在しても存在しなくてもよい。E^{21A}が窒素原子の場合、R^{21A}は存在しない。E^{22A}が窒

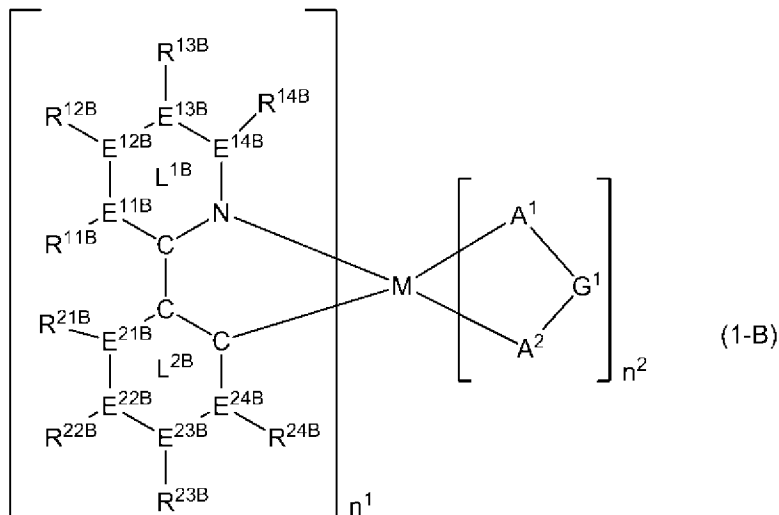
素原子の場合、 R^{22A} は存在しない。 E^{23A} が窒素原子の場合、 R^{23A} は存在しない。
 E^{24A} が窒素原子の場合、 R^{24A} は存在しない。

R^{11A} 、 R^{12A} 、 R^{13A} 、 R^{21A} 、 R^{22A} 、 R^{23A} 及び R^{24A} は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はフッ素原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。 R^{11A} 、 R^{12A} 、 R^{13A} 、 R^{21A} 、 R^{22A} 、 R^{23A} 及び R^{24A} が複数存在する場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。 R^{11A} と R^{12A} 、 R^{12A} と R^{13A} 、 R^{11A} と R^{21A} 、 R^{21A} と R^{22A} 、 R^{22A} と R^{23A} 、及び、 R^{23A} と R^{24A} は、それぞれ結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。

環 L^{1A} は、窒素原子、 E^1 、 E^{11A} 、 E^{12A} 及び E^{13A} とで構成されるトリアゾール環又はジアゾール環を表す。

環 L^{2A} は、2つの炭素原子、 E^{21A} 、 E^{22A} 、 E^{23A} 及び E^{24A} とで構成されるベンゼン環、ピリジン環又はピリミジン環を表す。]

[0104] [化39]



[式中、

M 、 n^1 、 n^2 及び $A^1-G^1-A^2$ は、前記と同じ意味を表す。

E^{11B} 、 E^{12B} 、 E^{13B} 、 E^{14B} 、 E^{21B} 、 E^{22B} 、 E^{23B} 及び E^{24B} は、それぞれ独立に、窒素原子又は炭素原子を表す。 E^{11B} 、 E^{12B} 、 E^{13B} 、 E^{14B} 、 E^{21B} 、 E^{22B} 、 E^{23B} 及

びE^{24B}が複数存在する場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。E^{11B}が窒素原子の場合、R^{11B}は存在しない。E^{12B}が窒素原子の場合、R^{12B}は存在しない。E^{13B}が窒素原子の場合、R^{13B}は存在しない。E^{14B}が窒素原子の場合、R^{14B}は存在しない。E^{21B}が窒素原子の場合、R^{21B}は存在しない。E^{22B}が窒素原子の場合、R^{22B}は存在しない。E^{23B}が窒素原子の場合、R^{23B}は存在しない。E^{24B}が窒素原子の場合、R^{24B}は存在しない。

R^{11B}、R^{12B}、R^{13B}、R^{14B}、R^{21B}、R^{22B}、R^{23B}及びR^{24B}は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はフッ素原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。R^{11B}、R^{12B}、R^{13B}、R^{14B}、R^{21B}、R^{22B}、R^{23B}及びR^{24B}が複数存在する場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。R^{11B}とR^{12B}、R^{12B}とR^{13B}、R^{13B}とR^{14B}、R^{11B}とR^{21B}、R^{21B}とR^{22B}、R^{22B}とR^{23B}、及び、R^{23B}とR^{24B}は、それぞれ結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。

環L^{1B}は、窒素原子、炭素原子、E^{11B}、E^{12B}、E^{13B}及びE^{14B}とで構成されるピリジン環又はピリミジン環を表す。

環L^{2B}は、2つの炭素原子、E^{21B}、E^{22B}、E^{23B}及びE^{24B}とで構成されるベンゼン環、ピリジン環又はピリミジン環を表す。]

[0105] 式(1-A)で表される金属錯体

環L^{1A}がジアゾール環である場合、E^{11A}が窒素原子であるイミダゾール環、又は、E^{12A}が窒素原子であるイミダゾール環が好ましく、E^{11A}が窒素原子であるイミダゾール環がより好ましい。

[0106] 環L^{1A}がトリアゾール環である場合、E^{11A}及びE^{12A}が窒素原子であるトリアゾール環、又は、E^{11A}及びE^{13A}が窒素原子であるトリアゾール環が好ましく、E^{11A}及びE^{12A}が窒素原子であるトリアゾール環がより好ましい。

[0107] R^{11A}、R^{12A}、R^{13A}、R^{21A}、R^{22A}、R^{23A}及びR^{24A}におけるアリール基、1価の複素環基及び置換アミノ基の例及び好ましい範囲は、それぞれ、環L¹及び環L²が有していてもよい置換基におけるアリール基、1価の複素環基及び置換

アミノ基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0108] R^{11A}、R^{12A}、R^{13A}、R^{21A}、R^{22A}、R^{23A}及びR^{24A}が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲は、環L¹及び環L²が有していてもよい置換基が更に有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0109] E^{11A}が窒素原子であり、且つ、R^{11A}が存在する場合、R^{11A}はアルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基であることが好ましく、アリール基であることがより好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0110] E^{11A}が炭素原子である場合、R^{11A}は水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基であることが好ましく、水素原子、アルキル基又はシクロアルキル基であることがより好ましく、水素原子であることが更に好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0111] E^{12A}が窒素原子であり、且つ、R^{12A}が存在する場合、R^{12A}はアルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基であることが好ましく、アリール基であることがより好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0112] E^{12A}が炭素原子である場合、R^{12A}は水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基であることが好ましく、水素原子、アルキル基又はシクロアルキル基であることがより好ましく、水素原子であることが更に好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0113] E^{13A}が窒素原子であり、且つ、R^{13A}が存在する場合、R^{13A}はアルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基であることが好ましく、アリール基であることがより好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0114] E^{13A}が炭素原子である場合、R^{13A}は水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基であることが好ましく、

水素原子、アルキル基又はシクロアルキル基であることがより好ましく、水素原子であることが更に好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0115] 環 L^{2A} がピリジン環である場合、 E^{21A} が窒素原子であるピリジン環、 E^{22A} が窒素原子であるピリジン環、又は、 E^{23A} が窒素原子であるピリジン環が好ましく、 E^{22A} が窒素原子であるピリジン環がより好ましい。

環 L^{2A} がピリミジン環である場合、 E^{22A} 及び E^{24A} が窒素原子であるピリミジン環が好ましい。

環 L^{2A} は、ベンゼン環であることが好ましい。

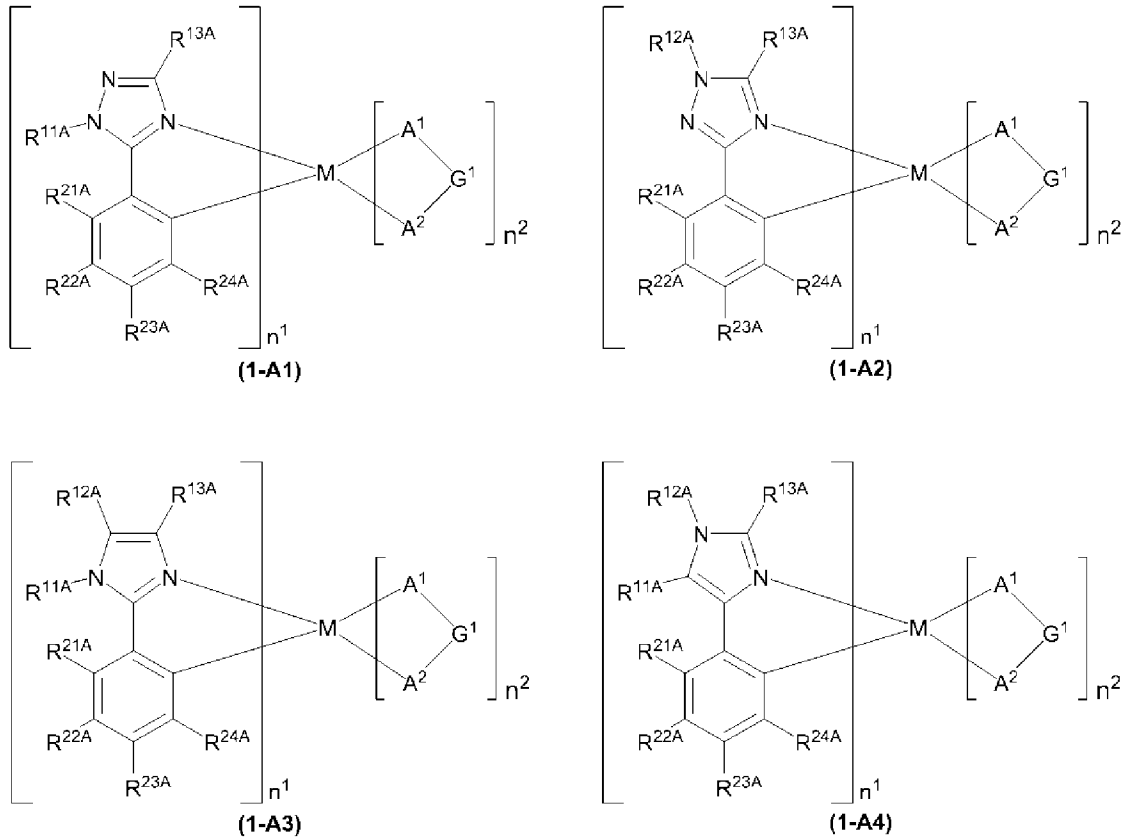
[0116] R^{21A} 、 R^{22A} 、 R^{23A} 及び R^{24A} は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、1価の複素環基、フッ素原子又は置換アミノ基が好ましく、水素原子又は式(D-A)、式(D-B)若しくは式(D-C)で表される基であることがより好ましく、水素原子又は式(D-A)で表される基であることが更に好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0117] 環 L^{2A} がアリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基を有する場合、 R^{22A} 又は R^{23A} がアリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基であることが好ましく、 R^{22A} がアリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基であることがより好ましい。

[0118] 式(1-A)で表される金属錯体は、本実施形態の発光素子の初期劣化が抑制されるので、式(1-A1)で表される金属錯体、式(1-A2)で表される金属錯体、式(1-A3)で表される金属錯体又は式(1-A4)で表される金属錯体であることが好ましく、式(1-A3)で表される金属錯体であることがより好ましい。

[0119]

[化40]



[式中、M、 n^1 、 n^2 、 R^{11A} 、 R^{12A} 、 R^{13A} 、 R^{21A} 、 R^{22A} 、 R^{23A} 、 R^{24A} 及び $A^1-G^1-A^2$ は、前記と同じ意味を表す。]

[0120] 式(1-A1)で表される金属錯体において、 n^1 個存在する配位子としては、例えば、式(LA-1)又は式(LA-2)で表される配位子が挙げられる。

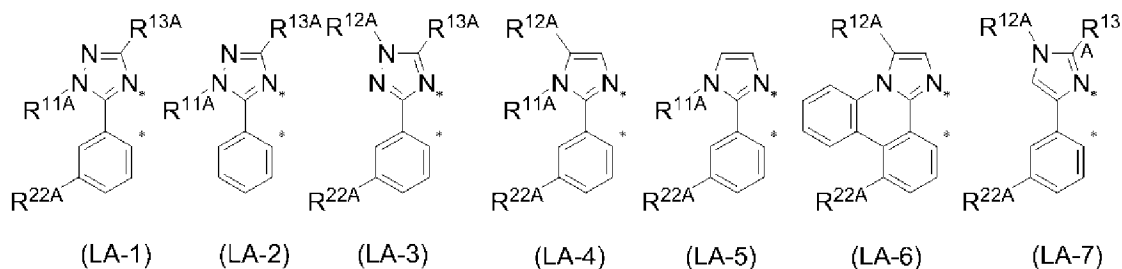
式(1-A2)で表される金属錯体において、 n^1 個存在する配位子としては、例えば、式(LA-3)で表される配位子が挙げられる。

式(1-A3)で表される金属錯体において、 n^1 個存在する配位子としては、例えば、式(LA-4)～式(LA-6)で表される配位子が挙げられ、式(LA-5)又は式(LA-6)で表される配位子が好ましい。

式(1-A4)で表される金属錯体において、 n^1 個存在する配位子としては、例えば、式(LA-7)で表される配位子が挙げられる。

[0121]

[化41]



[式中、*は、Mと結合する部位を表し、R^{11A}、R^{12A}、R^{13A}及びR^{22A}は、前記と同じ意味を表す。]

[0122] 式(1-B)で表される金属錯体

環L^{1B}がピリミジン環である場合、E^{11B}が窒素原子であるピリミジン環が好ましい。

[0123] 環L^{2B}がピリジン環である場合、E^{21B}が窒素原子であるピリジン環、E^{22B}が窒素原子であるピリジン環、又は、E^{23B}が窒素原子であるピリジン環が好ましく、E^{22B}が窒素原子であるピリジン環がより好ましい。

環L^{2B}がピリミジン環である場合、E^{22B}及びE^{24B}が窒素原子であるピリミジン環が好ましい。

環L^{2B}は、ベンゼン環であることが好ましい。

[0124] R^{11B}、R^{12B}、R^{13B}、R^{14B}、R^{21B}、R^{22B}、R^{23B}及びR^{24B}におけるアリール基、1価の複素環基及び置換アミノ基の例及び好ましい範囲は、それぞれ、環L¹及び環L²が有していてもよい置換基におけるアリール基、1価の複素環基及び置換アミノ基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0125] R^{11B}、R^{12B}、R^{13B}、R^{14B}、R^{21B}、R^{22B}、R^{23B}及びR^{24B}が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲は、環L¹及び環L²が有していてもよい置換基が更に有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0126] R^{11B}、R^{12B}、R^{13B}、R^{14B}、R^{21B}、R^{22B}、R^{23B}及びR^{24B}は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、フッ素原子、アリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基であることが好ましく、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、1価の複素環基又は

置換アミノ基であることがより好ましく、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、又は、式 (D-A)、式 (D-B) 若しくは式 (D-C) で表される基であることが更に好ましく、水素原子、アルキル基、又は、式 (D-A)、式 (D-B) 若しくは式 (D-C) で表される基であることが特に好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0127] 環L^{1B}がアリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基を有する場合、R^{11B}、R^{12B}又はR^{13B}がアリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基であることが好ましく、R^{12B}又はR^{13B}がアリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基であることがより好ましく、R^{13B}がアリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基であることが更に好ましい。

[0128] 環L^{2B}がアリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基を有する場合、R^{22B}又はR^{23B}がアリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基であることが好ましく、R^{22B}がアリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基であることがより好ましい。

[0129] 式 (1-B) で表される金属錯体は、本実施形態の発光素子の初期劣化が抑制されるので、前記式 (1-B 1) ~ 前記式 (1-B 5) で表される金属錯体であることが好ましく、前記式 (1-B 1)、前記式 (1-B 2)、前記式 (1-B 3) 又は前記式 (1-B 5) で表される金属錯体であることがより好ましく、前記式 (1-B 1) 又は前記式 (1-B 2) で表される金属錯体であることが更に好ましく、前記式 (1-B 1) で表される金属錯体であることが特に好ましい。

[0130] R^{15B}、R^{16B}、R^{17B}及びR^{18B}におけるアリール基、1価の複素環基及び置換アミノ基の例及び好ましい範囲は、それぞれ、環L¹及び環L²が有していてもよい置換基におけるアリール基、1価の複素環基及び置換アミノ基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0131] R^{15B}、R^{16B}、R^{17B}及びR^{18B}が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲は、環L¹及び環L²が有していてもよい置換基が更に有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0132] R^{15B} 、 R^{16B} 、 R^{17B} 及び R^{18B} は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、フッ素原子、アリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基であることが好ましく、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基であることがより好ましく、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基であることが更に好ましく、水素原子、アルキル基又はシクロアルキル基であることが特に好ましく、水素原子であることがとりわけ好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0133] 式(1-B1)で表される金属錯体において、 n^1 個存在する配位子、及び、式(1-B3)で表される金属錯体において、 n^{11} 個存在する配位子としては、例えば、式(LB-1)～式(LB-6)で表される配位子が挙げられ、本実施形態の発光素子の輝度寿命(初期劣化)が優れるので、式(LB-6)で表される配位子が好ましい。

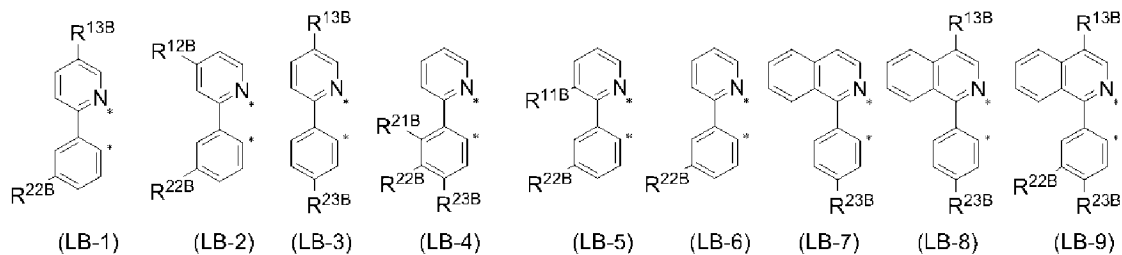
式(1-B1)で表される金属錯体において、 n^1 個存在する配位子、及び、式(1-B3)で表される金属錯体において、 n^{21} 個存在する配位子としては、例えば、式(LB-7)～式(LB-9)で表される配位子が挙げられ、本実施形態の発光素子の輝度寿命(初期劣化)が優れるので、式(LB-7)で表される配位子が好ましい。

式(1-B4)で表される金属錯体において、 n^1 個存在する配位子としては、例えば、式(LB-10)で表される配位子が挙げられる。

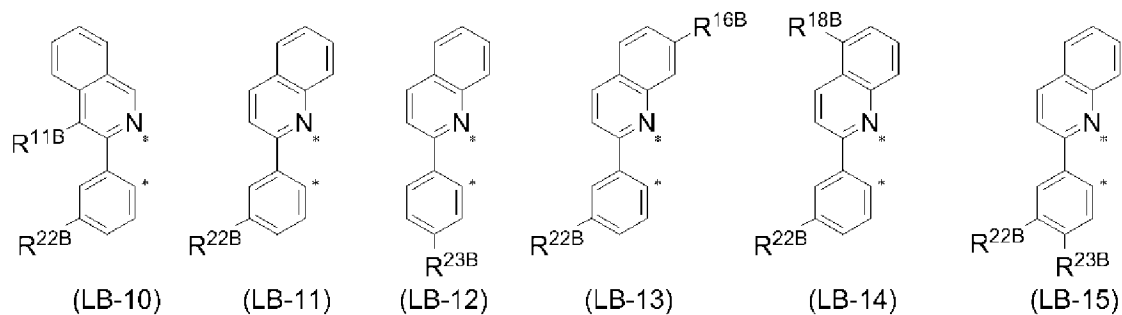
式(1-B5)で表される金属錯体において、 n^1 個存在する配位子としては、例えば、式(LB-11)～式(LB-15)で表される配位子が挙げられる。

[0134]

[化42]



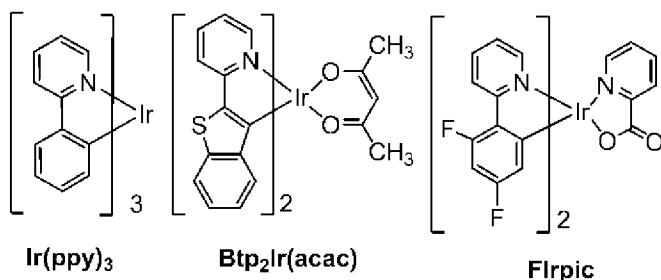
[0135] [化43]



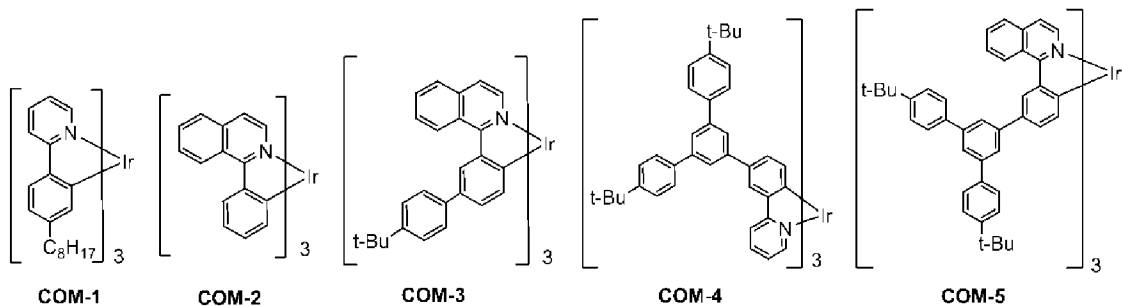
[式中、*は、Mと結合する部位を表し、R^{11B}、R^{12B}、R^{13B}、R^{21B}、R^{22B}及びR^{23B}は、前記と同じ意味を表す。]

[0136] 式(1)で表される金属錯体としては、例えば、下記式で表される金属錯体が挙げられる。

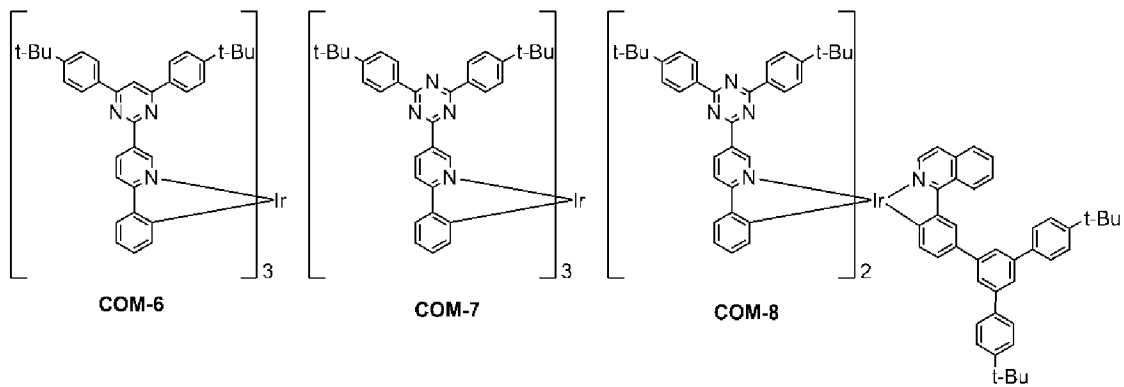
[0137] [化44]



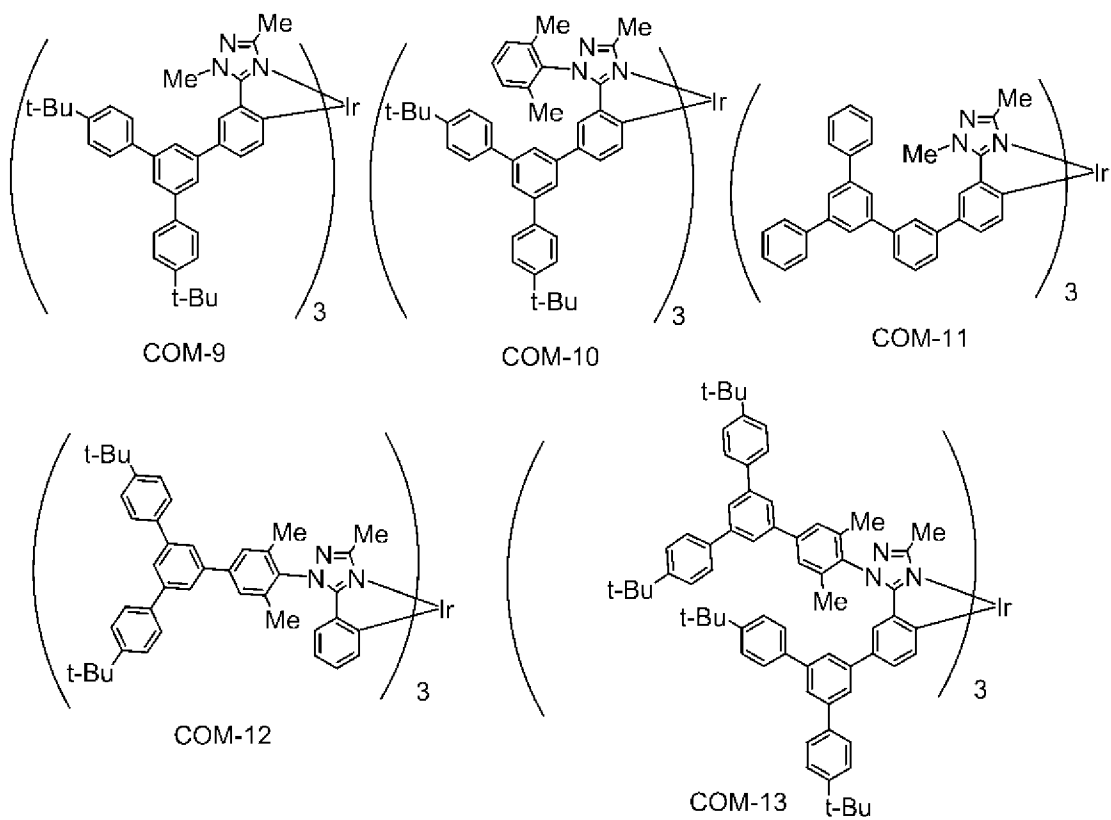
[0138] [化45]



[0139] [化46]

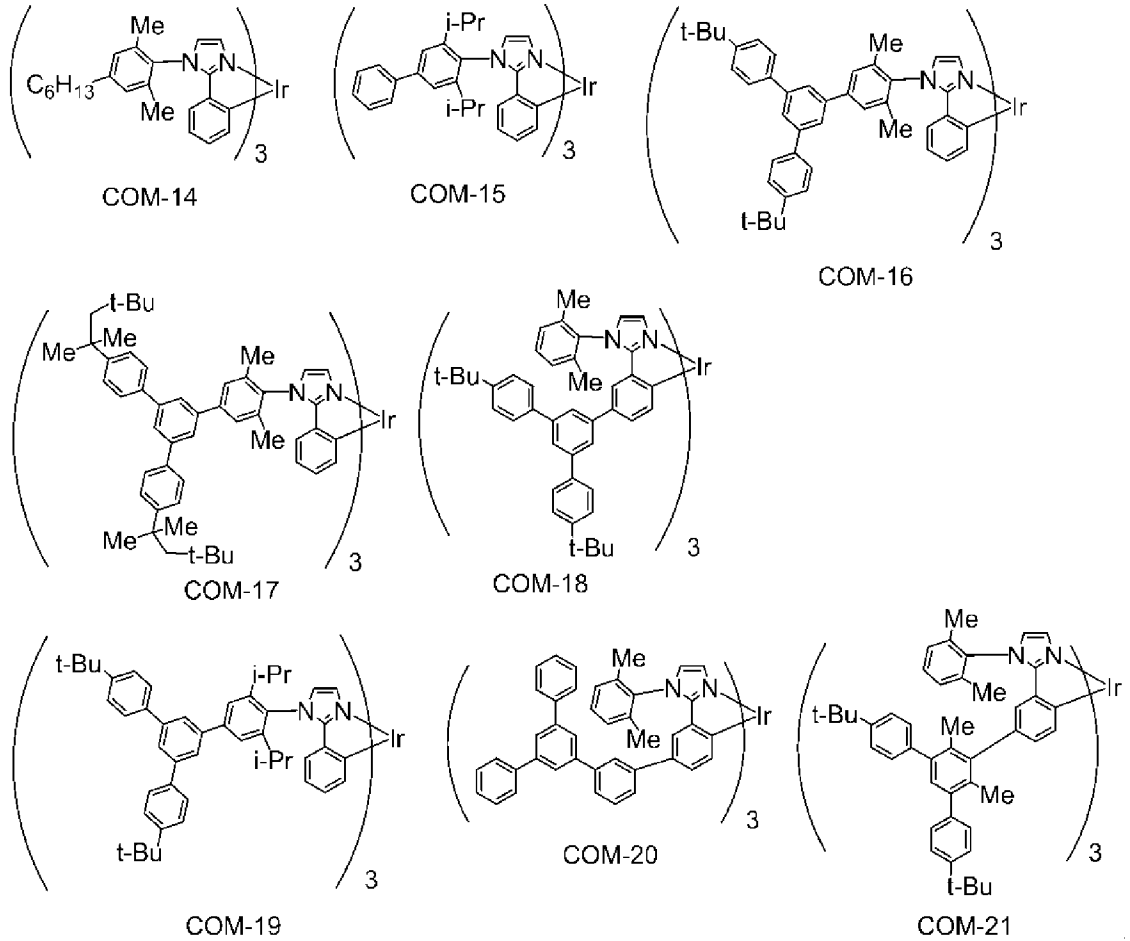


[0140] [化47]



[0141]

[化48]



[0142] 式(1)で表される金属錯体は、Aldrich、Luminescence Technology Corp.、American Dye Source等から入手可能である。また、式(1)で表される金属錯体は、例えば、「Journal of the American Chemical Society, Vol. 107, 1431-1432 (1985)」、「Journal of the American Chemical Society, Vol. 106, 6647-6653 (1984)」、特表2004-530254号公報、特開2008-179617号公報、特開2011-105701号公報、特表2007-504272号公報、国際公開第2006/121811号、特開2013-147450号公報、特開2014-224101号公報に記載の方法に従って合成することができる。こうした合成の過程において、不純物としての塩素原子が最終

生成物中に残留することがある。

- [0143] 式(1)で表される金属錯体の発光スペクトルの最大ピーク波長は、式(1)で表される金属錯体を、キシレン、トルエン、クロロホルム、テトラヒドロフラン(THF)等の有機溶媒に溶解させ、希薄溶液を調製し(1×10^{-6} ~ 1×10^{-3} 質量%)、該希薄溶液のPLスペクトルを室温で測定することで評価することができる。式(1)で表される金属錯体を溶解させる有機溶媒としては、トルエン又はキシレンが好ましい。
- [0144] 式(1)で表される金属錯体の発光スペクトルの最大ピーク波長は、495nm~750nmであることが好ましく、500nm~680nmであることがより好ましく、500nm~640nmであることが更に好ましく、500nm~550nm又は590nm~640nmであることが特に好ましく、500nm~550nmであることがとりわけ好ましい。
- [0145] 式(1)で表される金属錯体に含まれる不純物としての塩素原子の量
本実施形態に係る組成物において、式(1)で表される金属錯体に含まれる不純物としての塩素原子の量(以下、「C¹」と言う。)は、金属錯体の全量に対して、通常、6質量ppm以下であり、本実施形態に係る発光素子の初期劣化が抑制されるので、好ましくは5質量ppm以下であり、より好ましくは4質量ppm以下であり、更に好ましくは2質量ppm以下であり、特に好ましくは1質量ppm以下である。また、C¹は、金属錯体の全量に対して、通常、測定上の検出限界のために、0.01質量ppm以上である。
- [0146] C¹の具体的な算出方法は、後述のC²の具体的な算出方法と同様である。
- [0147] C¹の低減方法としては、例えば、精製、脱ハロゲン化剤が挙げられる。これらの低減方法は、1種のみ用いても2種以上を併用してもよい。
- [0148] 精製は、例えば、第4版実験化学講座(1993年、丸善)、第5版実験化学講座(2007年、丸善)、新実験化学講座(1975年、丸善)、有機化学実験のてびき(1988年、化学同人)に記載の公知の精製方法により行うことができる。
- [0149] 精製方法としては、例えば、昇華、抽出、再沈殿、再結晶、洗浄、クロマ

トグラフィー、吸着が挙げられる。精製を2回以上行う場合、それらの方法は、同一でも異なってもよい。

[0150] 抽出は、好ましくは、分液、又は、ソックスレー抽出器による固液抽出であり、より好ましくは、分液である。

[0151] 抽出は、通常、有機溶媒中で行う。この有機溶媒としては、例えば、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、シクロペンチルメチルエーテル、ジグライム等のエーテル系溶媒；塩化メチレン、クロロホルム等のハロゲン系溶媒；ヘキサン、デカリン、ヘプタン、オクタン、ペンタン、デカン、ドデカン等の脂肪族炭化水素系溶媒；トルエン、キシレン、メシチレン等の芳香族炭化水素系溶媒；酢酸エチル、酢酸ブチル、酢酸プロピル、カプロン酸エチル、ギ酸エチル、酢酸アミル等のエステル系溶媒；水が挙げられる。抽出に用いる溶媒はこのうち2種以上を併用してもよい。

[0152] 再沈殿は、通常、溶媒中に行い、良溶媒と貧溶媒との混合溶媒中で行う。

良溶媒としては、例えば、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、シクロペンチルメチルエーテル、ジグライム等のエーテル系溶媒；塩化メチレン、クロロホルム等のハロゲン系溶媒；トルエン、キシレン、メシチレン等の芳香族炭化水素系溶媒；酢酸エチル、酢酸ブチル、酢酸プロピル、カプロン酸エチル、ギ酸エチル、酢酸アミル等のエステル系溶媒；アセトンが挙げられる。通常、良溶媒は1種を用いるが、2種以上を併用してもよい。

貧溶媒としては、例えば、メタノール、エタノール、プロパノール、エチレングリコール、グリセリン、2-メトキシエタノール、2-エトキシエタノール等のアルコール系溶媒；アセトニトリル、ベンゾニトリル等のニトリル系溶媒；ヘキサン、デカリン、ヘプタン、オクタン、ペンタン、デカン、ドデカン等の脂肪族炭化水素系溶媒；アセトン、ジメチルスルホキシド、水が挙げられる。通常、貧溶媒は1種を用いるが、2種以上を併用してもよい。

[0153] 再沈殿において、良溶媒又は貧溶媒の使用量は、通常、式(1)で表され

る金属錯体の合計100質量部に対して、10~100000質量部であり、好ましくは70~15000質量部である。

[0154] 再沈殿において、溶媒を用いる際の温度は、通常、-80℃~180℃であり、好ましくは0℃~80℃である。

[0155] 再結晶は、通常、溶媒中で行う。この溶媒としては、例えば、メタノール、エタノール、プロパノール、エチレングリコール、グリセリン、2-メトキシエタノール、2-エトキシエタノール等のアルコール系溶媒；ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、シクロペンチルメチルエーテル、ジグライム等のエーテル系溶媒；塩化メチレン、クロロホルム等のハロゲン系溶媒；アセトニトリル、ベンゾニトリル等のニトリル系溶媒；ヘキサン、デカリン、ヘプタン、オクタン、ペンタン、デカン、ドデカン等の脂肪族炭化水素系溶媒；トルエン、キシレン、メシチレン等の芳香族炭化水素系溶媒；N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド等のアミド系溶媒；酢酸エチル、酢酸ブチル、酢酸プロピル、カプロン酸エチル、ギ酸エチル、酢酸アミル等のエステル系溶媒；アセトン、ジメチルスルホキシド、水が挙げられ、これらは1種のみ用いても2種以上を併用してもよい。2種以上を併用する場合は、良溶媒と貧溶媒を混合して行うことが好ましい。

[0156] 再結晶に用いられる良溶媒としては、例えば、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、シクロペンチルメチルエーテル、ジグライム等のエーテル系溶媒；塩化メチレン、クロロホルム等のハロゲン系溶媒；トルエン、キシレン、メシチレン等の芳香族炭化水素系溶媒；酢酸エチル、酢酸ブチル、酢酸プロピル、カプロン酸エチル、ギ酸エチル、酢酸アミル等のエステル系溶媒；アセトンが挙げられ、好ましくは芳香族炭化水素系溶媒である。これらは1種のみを用いても2種以上を併用してもよい。

[0157] 再結晶に用いられる貧溶媒としては、例えば、メタノール、エタノール、プロパノール、エチレングリコール、グリセリン、2-メトキシエタノール、2-エトキシエタノール等のアルコール系溶媒；アセトニトリル、ベンゾ

ニトリル等のニトリル系溶媒；ヘキサン、デカリン、ヘプタン、オクタン、ペンタン、デカン、ドデカン等の脂肪族炭化水素系溶媒であり、これらは1種のみを用いても2種以上を併用してもよい。

[0158] 再結晶において、良溶媒又は貧溶媒の使用量は、通常、式(1)で表される金属錯体の合計100質量部に対して、10~100000質量部であり、好ましくは70~15000質量部である。

[0159] 再結晶において、溶媒を用いる際の温度は、通常-80℃~180℃であり、好ましくは0℃~80℃である。

[0160] 洗浄は、通常、貧溶媒中で行う。貧溶媒としては、例えば、例えば、メタノール、エタノール、プロパノール、エチレングリコール、グリセリン、2-メトキシエタノール、2-エトキシエタノール等のアルコール系溶媒；アセトニトリル、ベンゾニトリル等のニトリル系溶媒；ヘキサン、デカリン、ヘプタン、オクタン、ペンタン、デカン、ドデカン等の脂肪族炭化水素系溶媒；N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド等のアミド系溶媒；アセトン、ジメチルスルホキシド、水が挙げられる。通常、貧溶媒は1種を用いるが、2種以上を併用してもよい。

[0161] 洗浄において、貧溶媒の使用量は、式(1)で表される金属錯体の合計100質量部に対して、通常、10~100000質量部であり、好ましくは300~10000質量部である。

[0162] 洗浄において、貧溶媒を用いる際の温度は、通常、-80℃~180℃であり、好ましくは0℃~80℃である。

[0163] クロマトグラフィーは、好ましくはカラムクロマトグラフィーである。カラムクロマトグラフィーに用いる充填剤としては、シリカゲル又はアルミナが好ましい。

[0164] カラムクロマトグラフィーは、通常、有機溶媒中で行う。カラムクロマトグラフィーにおける有機溶媒としては、例えば、メタノール、エタノール、プロパノール、エチレングリコール、グリセリン、2-メトキシエタノール、2-エトキシエタノール等のアルコール系溶媒；ジエチルエーテル、テト

ラヒドロフラン、ジオキサン、シクロペンチルメチルエーテル、ジグライム等のエーテル系溶媒；塩化メチレン、クロロホルム等のハロゲン系溶媒；アセトニトリル、ベンゾニトリル等のニトリル系溶媒；ヘキサン、デカリン、ヘプタン、オクタン、ペンタン、デカン、ドデカン等の脂肪族炭化水素系溶媒；トルエン、キシレン、メシチレン等の芳香族炭化水素系溶媒；酢酸エチル、酢酸ブチル、酢酸プロピル、カプロン酸エチル、ギ酸エチル、酢酸アミル等のエステル系溶媒が挙げられ、これらは2種以上を併用してもよい。

[0165] 吸着は、吸着剤による処理が好ましい。吸着剤としては、好ましくは、グラファイトカーボンブラック、モレキュラーシーブ、ゼオライト、活性炭、活性白土、シリカゲル、アルミナ又はセライトである。これらの吸着剤は2種以上を併用してもよく、2種以上を併用する場合は、同時に用いても、分離して用いてもよい。

[0166] 吸着剤による吸着は、通常、溶媒中で行う。吸着における溶媒としては、例えば、メタノール、エタノール、プロパノール、エチレングリコール、グリセリン、2-メトキシエタノール、2-エトキシエタノール等のアルコール系溶媒；ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、シクロペンチルメチルエーテル、ジグライム等のエーテル系溶媒；塩化メチレン、クロロホルム等のハロゲン系溶媒；アセトニトリル、ベンゾニトリル等のニトリル系溶媒；ヘキサン、デカリン、ヘプタン、オクタン、ペンタン、デカン、ドデカン等の脂肪族炭化水素系溶媒；トルエン、キシレン、メシチレン等の芳香族炭化水素系溶媒；N，N-ジメチルホルムアミド、N，N-ジメチルアセトアミド等のアミド系溶媒；酢酸エチル、酢酸ブチル、酢酸プロピル、カプロン酸エチル、ギ酸エチル、酢酸アミル等のエステル系溶媒；アセトン、ジメチルスルホキシド、水が挙げられる。通常、溶媒は1種を用いるが、2種以上を併用してもよい。

[0167] 吸着剤による吸着において、溶媒の使用量は、式(1)で表される金属錯体の合計100質量部に対して、通常、10~100000質量部であり、好ましくは100~50000質量部である。

- [0168] 吸着剤による吸着において、溶媒を用いる際の温度は、通常、 -80°C ～ 180°C であり、好ましくは 0°C ～ 80°C である。
- [0169] 吸着剤による吸着において、吸着剤の使用量は、式(1)で表される金属錯体の合計100質量部に対して、通常、1～1000質量部であり、好ましくは10～2000質量部である。
- [0170] 脱ハロゲン化剤による処理としては、例えば、国際公開第2006/037458号、特開2007-220772号公報、特開2007-077078号公報、国際公開第2005/084083号、特開2012-193351号公報に記載の方法が挙げられる。
- [0171] 脱ハロゲン化剤による処理としては、例えば、ヒドリド還元剤で還元する方法、及び、金属又は有機金属化合物を反応させる方法が挙げられる。
- [0172] ヒドリド還元剤としては、例えば、水素化ナトリウム、水素化リチウム、水素化カルシウム及び水素化マグネシウム等のアルカリ金属水素化物及びアルカリ土類金属水素化物；水素化アルミニウムリチウム、水素化ジイソブチルアルミニウム及び水素化ビス(2-メトキシエトキシ)アルミニウムナトリウム等の水素化アルミニウム化合物；ジボラン、水素化ホウ素ナトリウム及び水素化トリエチルホウ素リチウム等の水素化ホウ素化合物；シラン及びトリエチルシラン等の水素化ケイ素化合物；並びに、スタナン及び水素化トリブチルスズ等の水素化スズ化合物が挙げられる。
- [0173] 金属を反応させる方法において、金属としては、例えば、リチウム、ナトリウム、マグネシウム及び亜鉛等が挙げられる。
- [0174] 有機金属化合物を反応させる方法において、有機金属化合物としては、例えば、ブチルリチウム及びフェニルリチウム等の有機リチウム化合物；グリニャール試薬等の有機マグネシウム化合物；並びに、ジエチル亜鉛等の有機亜鉛化合物が挙げられる。
- [0175] 脱ハロゲン化剤による処理は、 C^1 をより低減することができるので、好ましくは、式： $\text{R}^{\text{Z1}}-\text{Z}^{\text{Z1}}$ で表される化合物を反応させる方法である。ここで、 R^{Z1} は、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基を表

し、これらの基は置換基を有していてもよい。Z²¹は、置換基Z群からなる群から選ばれる基を表す。

[0176] <置換基Z群>

−B (OR⁰²)₂ (式中、R⁰²は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基又はアリール基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。複数存在するR⁰²は同一でも異なってもよく、互いに連結して、それぞれが結合する酸素原子とともに環構造を形成していてもよい。) で表される基；

−BF₃Q' (式中、Q' は、Li、Na、K、Rb又はCsを表す。) で表される基；

−MgY' (式中、Y' は、塩素原子、臭素原子又はヨウ素原子を表す。) で表される基；

−ZnY'' (式中、Y'' は、塩素原子、臭素原子又はヨウ素原子を表す。) で表される基；及び、

−Sn (R⁰³)₃ (式中、R⁰³は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基又はアリール基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。複数存在するR⁰³は同一でも異なってもよく、互いに連結して、それぞれが結合するスズ原子とともに環構造を形成していてもよい。) で表される基。

[0177] 脱ハロゲン化剤による処理は、通常、溶媒中で行う。反応に用いる溶媒としては、例えば、メタノール、エタノール、プロパノール、エチレングリコール、グリセリン、2-メトキシエタノール、2-エトキシエタノール等のアルコール系溶媒；ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、シクロペンチルメチルエーテル、ジグリム等のエーテル系溶媒；塩化メチレン、クロロホルム等のハロゲン系溶媒；アセトニトリル、ベンゾニトリル等のニトリル系溶媒；ヘキサン、デカリン、トルエン、キシレン、メシチレン等の炭化水素系溶媒；N, N-ジメチルホルムアミド、N, N-ジメチルアセトアミド等のアミド系溶媒；アセトン、ジメチルスルホキシド、水が挙げられる。溶媒は、1種単独で用いても2種以上を併用してもよい。

[0178] 溶媒の使用量は、通常、式(1)で表される金属錯体の合計100質量部

に対して、10～100000質量部である。

[0179] 脱ハロゲン化剤による処理において、反応時間は、通常、30分間～180時間である。反応温度は、通常、反応系に存在する溶媒の融点から沸点の間である。

[0180] 脱ハロゲン化剤による処理において、反応を促進するために、パラジウム触媒及びニッケル触媒等の触媒を用いてもよい。パラジウム触媒としては、例えば、酢酸パラジウム、ビス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(II)ジクロリド、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)、[1, 1'-ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン]ジクロロパラジウム(II)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ニパラジウム(0)、ビス(トリ-tert-ブチルホスフィン)パラジウム(0)が挙げられる。ニッケル触媒としては、例えば、テトラキス(トリフェニルホスフィン)ニッケル(0)、[1, 3-ビス(ジフェニルホスフィノ)プロパン]ニッケル(II)ジクロリド、ビス(1, 4-シクロオクタジエン)ニッケル(0)が挙げられる。触媒は、1種単独で用いても2種以上を併用してもよい。

[0181] 触媒の使用量は、式(1)で表される金属錯体のモル数の合計に対する遷移金属の量として、通常、0.00001～3モル当量である。

[0182] パラジウム触媒又はニッケル触媒は、トリフェニルホスフィン、トリ(orthoリル)ホスフィン、トリ(tert-ブチル)ホスフィン、トリシクロヘキシルホスフィン、1, 1'-ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン等のリン化合物と併用してもよい。リン化合物は、1種単独で用いても2種以上を併用してもよい。

[0183] 脱ハロゲン化剤による処理において、反応を促進するために、塩基及び/又は相間移動触媒を用いてもよい。

[0184] 塩基及び相間移動触媒としては、例えば、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸セシウム、フッ化カリウム、フッ化セシウム、リン酸三カリウム等の無機塩基；フッ化テトラブチルアンモニウム、水酸化テトラエチルアンモニウム、水酸化テトラブチルアンモニウム等の有機塩基；塩化テトラブチルア

ンモニウム、臭化テトラブチルアンモニウム等の相間移動触媒が挙げられる。塩基及び相間移動触媒は、それぞれ、1種単独で用いても2種以上を併用してもよい。

[0185] 塩基及び相間移動触媒の使用量は、それぞれ、式(1)で表される金属錯体の合計モル数に対して、通常0.001~100モル当量である。

[0186] 脱ハロゲン化剤による処理において、反応を2回以上行う場合、それらは同一の条件で反応させてもよく、異なる条件で反応させてもよい。

[0187] [式(H)で表される化合物]

式(H)で表される化合物の分子量は、通常、 $1 \times 10^2 \sim 5 \times 10^4$ であり、好ましくは、 $2 \times 10^2 \sim 1 \times 10^4$ であり、より好ましくは、 $3 \times 10^2 \sim 5 \times 10^3$ であり、更に好ましくは、 $4 \times 10^2 \sim 2.5 \times 10^3$ であり、特に好ましくは、 $5 \times 10^2 \sim 1.5 \times 10^3$ である。

[0188] n^{H1} は、合成が容易であるので、好ましくは0以上3以下の整数であり、より好ましくは0以上2以下の整数であり、更に好ましくは0又は1であり、特に好ましくは0である。

[0189] n^{H2} は、本実施形態の発光素子の初期劣化が抑制されるので、好ましくは1以上7以下の整数であり、より好ましくは、好ましくは1以上5以下の整数であり、更に好ましくは1以上3以下の整数であり、特に好ましくは1又は2であり、とりわけ好ましくは1である。

[0190] 式(H1-1)で表される基

環 R^{H1} 及び環 R^{H2} において、単環の芳香族炭化水素環の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、好ましくは6である。

[0191] 環 R^{H1} 及び環 R^{H2} において、単環の芳香族炭化水素環は、好ましくは、置換基を有していてもよいベンゼン環である。

[0192] 環 R^{H1} 及び環 R^{H2} において、縮合環の芳香族炭化水素環の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常7~60であり、好ましくは9~30であり、より好ましくは10~18である。

[0193] 環 R^{H1} 及び環 R^{H2} における縮合環の芳香族炭化水素環としては、例えば、ナ

フタレン環、アントラセン環、フェナントレン環、ジヒドロフェナントレン環、ナフタセン環、フルオレン環、スピロビフルオレン環、インデン環、ピレン環、ペリレン環及びクリセン環が挙げられ、好ましくは、ナフタレン環、アントラセン環、フェナントレン環、ジヒドロフェナントレン環、フルオレン環又はスピロビフルオレン環であり、より好ましくは、ナフタレン環、フルオレン環又はスピロビフルオレン環であり、更に好ましくは、フルオレン環又はスピロビフルオレン環であり、特に好ましくは、フルオレン環であり、これらの環は置換基を有していてもよい。

[0194] 環 R^{H1}及び環 R^{H2}において、単環の芳香族複素環の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、好ましくは2~5であり、より好ましくは3~5である。

[0195] 環 R^{H1}及び環 R^{H2}における単環の芳香族複素環としては、例えば、ピロール環、ジアゾール環、トリアゾール環、ピリジン環、ジアザベンゼン環及びトリアジン環が挙げられ、好ましくは、ピリジン環又はジアザベンゼン環であり、これらの環は置換基を有していてもよい。

[0196] 環 R^{H1}及び環 R^{H2}において、縮合環の芳香族複素環の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めないで、通常2~60であり、好ましくは、4~30であり、より好ましくは、6~20である。

[0197] 環 R^{H1}及び環 R^{H2}における縮合環の芳香族複素環としては、例えば、アザナフタレン環、ジアザナフタレン環、トリアザナフタレン環、インドール環、カルバゾール環、アザカルバゾール環、ジアザカルバゾール環、ジベンゾフラン環、ジベンゾチオフェン環、フェノキサジン環、フェノチアジン環、アクリジン環、9, 10-ジヒドロアクリジン環、アクリドン環、フェナジン環及び5, 10-ジヒドロフェナジン環が挙げられ、好ましくは、アザナフタレン環、ジアザナフタレン環、カルバゾール環、アザカルバゾール環、ジアザカルバゾール環、ジベンゾフラン環、ジベンゾチオフェン環、フェノキサジン環、フェノチアジン環、9, 10-ジヒドロアクリジン環又は5, 10-ジヒドロフェナジン環であり、より好ましくは、カルバゾール環、アザ

カルバゾール環、ジアザカルバゾール環、ジベンゾフラン環、ジベンゾチオフェン環、フェノキサジン環、フェノチアジン環、9, 10-ジヒドロアクリジン環又は5, 10-ジヒドロフェナジン環であり、これらの環は置換基を有していてもよい。

[0198] 環 R^{H1}及び環 R^{H2}が有していてもよい置換基としては、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はフッ素原子が好ましく、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基がより好ましく、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基が更に好ましく、アルキル基、シクロアルキル基、又は、式(D-A)、式(D-B)若しくは式(D-C)で表される基が特に好ましく、アルキル基又はシクロアルキル基がとりわけ好ましく、これらの基は更に置換基を有していてもよい。

[0199] 環 R^{H1}及び環 R^{H2}が有していてもよい置換基が更に有していてもよい置換基としては、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はフッ素原子が好ましく、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基がより好ましく、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基が更に好ましく、アルキル基、シクロアルキル基又はアリール基が特に好ましく、アルキル基又はシクロアルキル基がとりわけ好ましく、これらの基は更に置換基を有していてもよい。

[0200] 環 R^{H1}及び環 R^{H2}が有していてもよい置換基におけるアリール基、1価の複素環基及び置換アミノ基の例及び好ましい範囲は、それぞれ、環 L¹及び環 L²が有していてもよい置換基におけるアリール基、1価の複素環基及び置換アミノ基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0201] 環 R^{H1}及び環 R^{H2}が有していてもよい置換基が更に有していてもよい置換基におけるアリール基、1価の複素環基及び置換アミノ基の例及び好ましい範

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

[0202] 環 R^{H1} 及び環 R^{H2} の組み合わせは、一方が縮合環の芳香族炭化水素環又は縮合環の芳香族複素環であり、他方が単環の芳香族炭化水素環又は単環の芳香族複素環であることが好ましく、一方が縮合環の芳香族炭化水素環又は縮合環の芳香族複素環であり、他方が単環の芳香族炭化水素環であることがより好ましく、一方が縮合環の芳香族炭化水素環であり、他方が単環の芳香族炭化水素環であることが更に好ましい。

[0203] X^{H1} は、好ましくは単結合、酸素原子又は硫黄原子であり、より好ましくは単結合である。

[0204] R^{XH1} は、好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基であり、より好ましくは、アリール基又は1価の複素環基であり、更に好ましくは、アリール基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0205] $R^{XH1'}$ は、好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基であり、より好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基であり、更に好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基又はアリール基であり、特に好ましくは、アルキル基又はシクロアルキル基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0206] R^{XH1} 及び $R^{XH1'}$ が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲は、環 R^{H1} 及び環 R^{H2} が有していてもよい置換基が更に有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0207] 式(H1-1)で表される基は、好ましくは、前記式(H1-1A)、前記式(H1-1B)又は前記式(H1-1C)で表される基であり、より好ましくは、前記式(H1-1A)又は前記式(H1-1B)で表される基であり、更に好ましくは前記式(H1-1A)で表される基である。

[0208] X^{H2} 及び X^{H3} は、好ましくは、単結合、 $-N(R^{XH2})-$ で表される基、又は、

$-C(R^{XH2'})_2-$ で表される基であり、より好ましくは、単結合又は $-C(R^{XH2'})_2-$ で表される基である。

[0209] X^{H2} 及び X^{H3} のうち、少なくとも一方は単結合であることが好ましく、 X^{H3} が単結合であることがより好ましい。

[0210] X^{H2} 及び X^{H3} のうち、少なくとも一方が単結合である場合、もう一方は酸素原子、硫黄原子、 $-N(R^{XH2})-$ で表される基、又は、 $-C(R^{XH2'})_2-$ で表される基であることが好ましく、 $-N(R^{XH2})-$ で表される基、又は、 $-C(R^{XH2'})_2-$ で表される基であることがより好ましく、 $-C(R^{XH2'})_2-$ で表される基であることが更に好ましい。

[0211] R^{XH2} 及び $R^{XH2'}$ の例及び好ましい範囲は、各々、 R^{XH1} 及び $R^{XH1'}$ の例及び好ましい範囲と同じである。

[0212] R^{XH2} 及び $R^{XH2'}$ が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲は、環 R^{H1} 及び環 R^{H2} が有していてもよい置換基が更に有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0213] $Z^{H1} \sim Z^{H12}$ は、炭素原子であることが好ましい。

[0214] $R^{H1} \sim R^{H12}$ は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基であることが好ましく、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基であることがより好ましく、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、又は、式(D-A)、式(D-B)若しくは式(D-C)で表される基が更に好ましく、水素原子、アルキル基又はシクロアルキル基が特に好ましく、水素原子がとりわけ好ましく、これらの基は更に置換基を有していてもよい。

[0215] $R^{H1} \sim R^{H12}$ が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲は、環 R^{H1} 及び環 R^{H2} が有していてもよい置換基が更に有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0216] R^{H1} と R^{H2} 、 R^{H3} と R^{H4} 、 R^{H5} と R^{H6} 、 R^{H6} と R^{H7} 、 R^{H7} と R^{H8} 、 R^{H9} と R^{H10} 、 R^{H10} と R^{H11} 、及び、 R^{H11} と R^{H12} は、それぞれ結合して、それぞれが結合する炭素原

子とともに環を形成していてもよいが、環を形成しないことが好ましい。

[0217] L^{H1} は、アルキレン基、シクロアルキレン基、アリーレン基又は2価の複素環基であることが好ましく、アリーレン基又は2価の複素環基であることがより好ましく、アリーレン基であることが更に好ましく、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0218] L^{H1} で表されるアリーレン基としては、好ましくは、フェニレン基、ナフタレンジイル基、フルオレンジイル基、フェナントレンジイル基又はジヒドロフェナントレンジイル基であり、より好ましくは、式(A-1)~式(A-9)、式(A-19)又は式(A-20)で表される基であり、更に好ましくは、式(A-1)~式(A-3)で表される基であり、特に好ましくは、式(A-1)又は(A-2)で表される基であり、とりわけ好ましくは、式(A-2)で表される基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0219] L^{H1} で表される2価の複素環基としては、好ましくは、式(AA-1)~式(AA-34)で表される基であり、より好ましくは、式(AA-1)~式(AA-6)、式(AA-10)~式(AA-21)又は式(AA-24)~式(AA-34)で表される基であり、更に好ましくは、式(AA-1)~式(AA-4)、式(AA-10)~式(AA-15)又は式(AA-29)~式(AA-34)で表される基であり、特に好ましくは、式(AA-2)、式(AA-4)、式(AA-10)、式(AA-12)又は式(AA-14)で表される基である。

[0220] L^{H1} が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲は、環 R^{H1} 及び環 R^{H2} が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0221] L^{H1} が有していてもよい置換基が更に有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲は、環 R^{H1} 及び環 R^{H2} が有していてもよい置換基が更に有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0222] $R^{H1'}$ は、好ましくは、アリール基又は1価の複素環基であり、より好ましくはアリール基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0223] $R^{H1'}$ が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲は、環 R^{H1} 及び環 R^{H2}

が有していてもよい置換基が更に有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0224] A_{rH2} において、芳香族炭化水素基の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めなくて、通常6~60であり、好ましくは6~30であり、より好ましくは6~18である。

[0225] A_{rH2} において、芳香族炭化水素基としては、ベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン環、フェナントレン環、ジヒドロフェナントレン環、ナフタセン環、フルオレン環、スピロビフルオレン環、インデン環、ピレン環、ペリレン環、クリセン環、又は、これらの環が縮環した環から、環を構成する炭素原子に直接結合する水素原子1個以上を除いてなる基が挙げられ、好ましくは、ベンゼン環、ナフタレン環、フェナントレン環、ジヒドロフェナントレン環、フルオレン環、スピロビフルオレン環、又は、これらの環が縮環した環から、環を構成する炭素原子に直接結合する水素原子1個以上を除いてなる基であり、より好ましくは、ベンゼン環、ナフタレン環、フェナントレン環、ジヒドロフェナントレン環、フルオレン環又はスピロビフルオレン環から、環を構成する炭素原子に直接結合する水素原子1個以上を除いてなる基であり、更に好ましくは、ベンゼン環、フルオレン環又はスピロビフルオレン環から、環を構成する炭素原子に直接結合する水素原子1個以上を除いてなる基であり、特に好ましくは、ベンゼン環から、環を構成する炭素原子に直接結合する水素原子1個以上を除いてなる基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0226] A_{rH2} において、芳香族複素環基の炭素原子数は、置換基の炭素原子数を含めなくて、通常1~60であり、好ましくは2~40であり、より好ましくは3~20であり、更に好ましくは3~10である。

[0227] A_{rH2} において、芳香族複素環基としては、ピロール環、フラン環、チオフェン環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、チアゾール環、オキサゾール環、イソチアゾール環、イソオキサゾール環、ベンゾオキサジアゾール環、ベンゾチアジアゾール環、ベンゾチアゾール環、ベンゾオキサゾール環

、ピリジン環、ジアザベンゼン環、トリアジン環、アザナフタレン環、ジアザナフタレン環、トリアザナフタレン環、テトラアザナフタレン環、アザアントラセン環、ジアザアントラセン環、トリアザアントラセン環、テトラアザアントラセン環、アザフェナントレン環、ジアザフェナントレン環、トリアザフェナントレン環、テトラアザフェナントレン環、ジベンゾフラン環、ジベンゾチオフエン環、ジベンゾシロール環、ジベンゾホスホール環、カルバゾール環、アザカルバゾール環、ジアザカルバゾール環、フェノキサジン環、フェノチアジン環、又は、これらの複素環に芳香環が縮環した環から、環を構成する炭素原子又はヘテロ原子に直接結合する水素原子1個以上を除いてなる基が挙げられ、好ましくは、ピリジン環、ジアザベンゼン環、トリアジン環、アザナフタレン環、ジアザナフタレン環、アザアントラセン環、ジアザアントラセン環、アザフェナントレン環、ジアザフェナントレン環、ジベンゾフラン環、ジベンゾチオフエン環、カルバゾール環、アザカルバゾール環又はジアザカルバゾール環から、環を構成する炭素原子に直接結合する水素原子1個以上を除いてなる基であり、より好ましくは、ピリジン環、ジアザベンゼン環、トリアジン環、キノリン環、イソキノリン環、キナゾリン環、キノキサリン環、アクリジン環、フェナジン環、フェナントロリン環、ジベンゾフラン環、ジベンゾチオフエン環、カルバゾール環、アザカルバゾール環又はジアザカルバゾール環から、環を構成する炭素原子に直接結合する水素原子1個以上を除いてなる基であり、更に好ましくは、ピリジン環、ジアザベンゼン環、トリアジン環、キノリン環、イソキノリン環、キナゾリン環、キノキサリン環、ジベンゾフラン環、ジベンゾチオフエン環又はカルバゾール環から、環を構成する炭素原子に直接結合する水素原子1個以上を除いてなる基であり、特に好ましくは、ピリジン環、ピリミジン環又はトリアジン環から、環を構成する炭素原子に直接結合する水素原子1個以上を除いてなる基であり、とりわけ好ましくは、トリアジン環から、環を構成する炭素原子に直接結合する水素原子1個以上を除いてなる基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0228] $A r^{H2}$ は、本実施形態の発光素子の輝度寿命（初期劣化）が優れるので、好ましくは、ベンゼン環、フルオレン環、スピロビフルオレン環、ピリジン環、ジアザベンゼン環、トリアジン環、キノリン環、イソキノリン環、キナゾリン環、キノキサリン環、ジベンゾフラン環、ジベンゾチオフェン環又はカルバゾール環から、環を構成する炭素原子に直接結合する水素原子1個以上を除いてなる基であり、より好ましくは、ベンゼン環、ピリジン環、ピリミジン環又はトリアジン環から、環を構成する炭素原子に直接結合する水素原子1個以上を除いてなる基であり、更に好ましくは、ベンゼン環又はトリアジン環から、環を構成する炭素原子に直接結合する水素原子1個以上を除いてなる基であり、特に好ましくは、トリアジン環から、環を構成する炭素原子に直接結合する水素原子1個以上を除いてなる基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0229] $A r^{H2}$ が有していてもよい置換基（後述の式（1 H'）で表される基とは異なる。以下、同様である。）としては、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリーロキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はフッ素原子が好ましく、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基がより好ましく、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基が更に好ましく、アルキル基、シクロアルキル基、又は、式（D-A）、式（D-B）若しくは式（D-C）で表される基が特に好ましく、式（D-A）、式（D-B）又は式（D-C）で表される基がとりわけ好ましく、式（D-A）で表される基が殊更に好ましく、これらの基は更に置換基を有していてもよい。

[0230] $A r^{H2}$ が有していてもよい置換基におけるアリール基、1価の複素環基及び置換アミノ基の例及び好ましい範囲は、それぞれ、環 L^1 及び環 L^2 が有していてもよい置換基におけるアリール基、1価の複素環基及び置換アミノ基の例及び好ましい範囲と同じである。

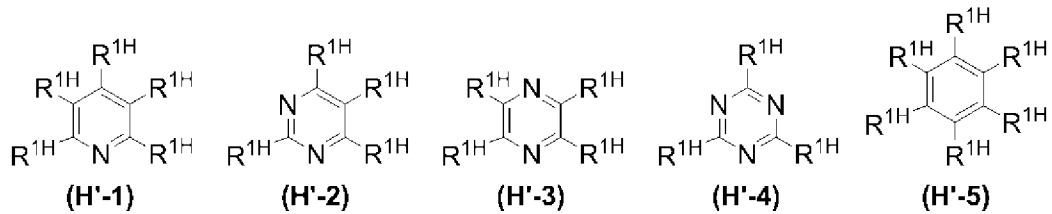
[0231] $A r^{H2}$ が有していてもよい置換基が更に有していてもよい置換基におけるア

リール基、1価の複素環基及び置換アミノ基の例及び好ましい範囲は、それぞれ、環L¹及び環L²が有していてもよい置換基におけるアリール基、1価の複素環基及び置換アミノ基の例及び好ましい範囲と同じである。

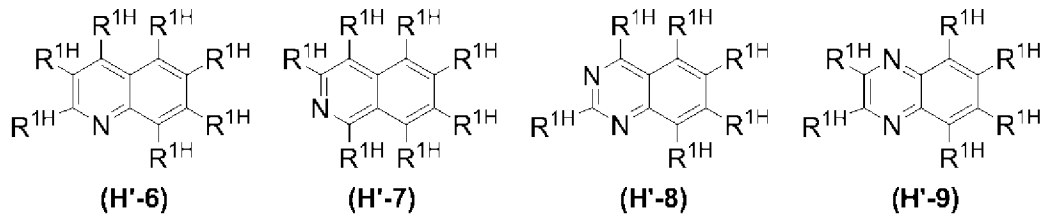
[0232] A r^{H2}が有していてもよい置換基が更に有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲は、環R^{H1}及び環R^{H2}が有していてもよい置換基が更に有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0233] 式(H)で表される化合物は、本実施形態の発光素子の輝度寿命(初期劣化)がより優れるので、好ましくは、式(H'-1)~式(H'-14)で表される化合物であり、より好ましくは、式(H'-1)~式(H'-5)で表される化合物であり、更に好ましくは、式(H'-4)又は式(H'-5)で表される化合物であり、特に好ましくは、式(H'-4)で表される化合物である。

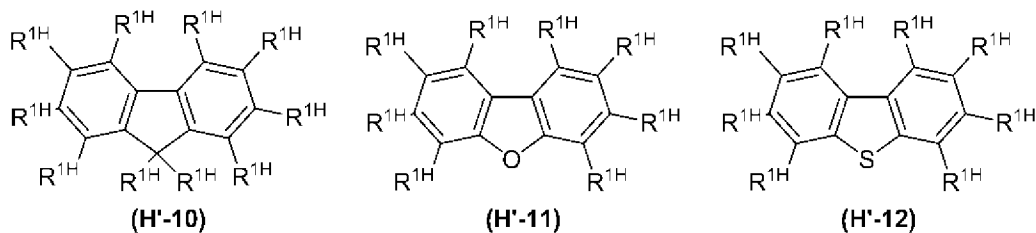
[0234] [化49]



[0235] [化50]

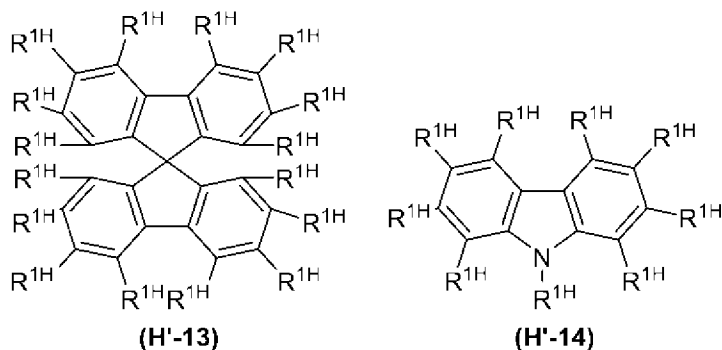


[0236] [化51]



[0237]

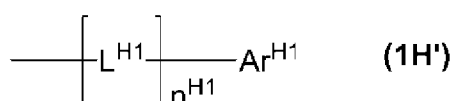
[化52]



[式中、 R^{1H} は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリーロキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基、フッ素原子又は式(1H')で表される基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。複数存在する R^{1H} は、同一でも異なってもよい。但し、複数存在する R^{1H} のうち、少なくとも1個は式(1H')で表される基である。]

[0238] 複数存在する R^{1H} のうち、 n^{H2} 個は式(1H')で表される基であることが好ましい。

[0239] [化53]



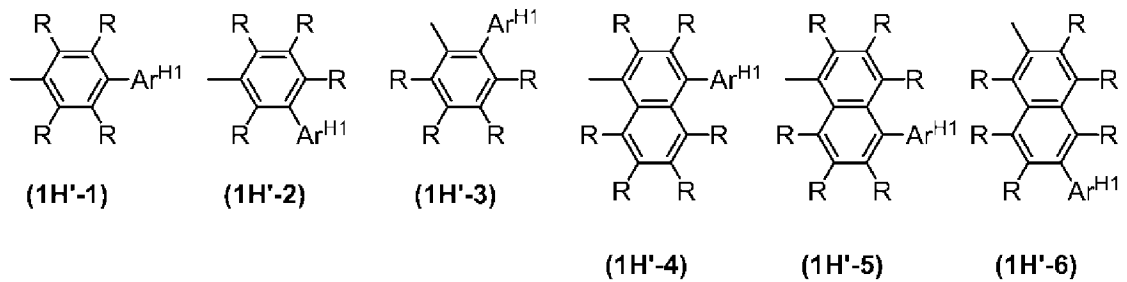
[式中、 L^{H1} 、 n^{H1} 及び Ar^{H1} は、前記と同じ意味を表す。]

[0240] R^{1H} は、好ましくは、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、1価の複素環基、置換アミノ基又は式(1H')で表される基であり、より好ましくは、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、1価の複素環基、置換アミノ基又は式(1H')で表される基であり、更に好ましくは、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、又は、式(D-A)、式(D-B)、式(D-C)若しくは式(1H')で表される基であり、特に好ましくは、水素原子、又は、式(D-A)、式(D-B)、式(D-C)若しくは式(1H')で表される基であり、とりわけ好ましくは、水素原子、又は、式(D-A)若しくは式(1H')

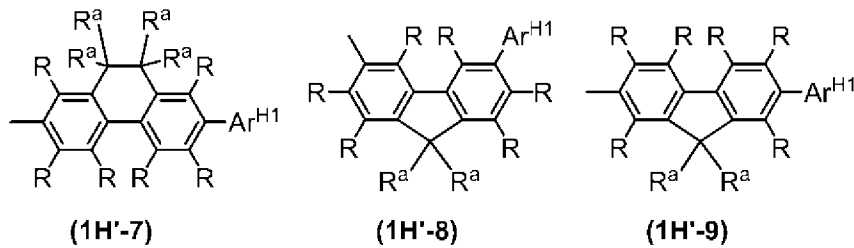
) で表される基であり、これらの基は置換基を有していてもよい。

[0241] 式(1H')で表される基は、本実施形態の発光素子の輝度寿命(初期劣化)がより優れるので、好ましくは、式(1H'-1)~式(1H'-27)で表される基であり、より好ましくは、式(1H'-1)~式(1H'-6)、式(1H'-14)、式(1H'-16)、式(1H'-17)、式(1H'-19)、式(1H'-21)又は式(1H'-27)で表される基であり、更に好ましくは、式(1H'-2)又は式(1H'-27)で表される基であり、特に好ましくは、式(1H'-27)で表される基である。

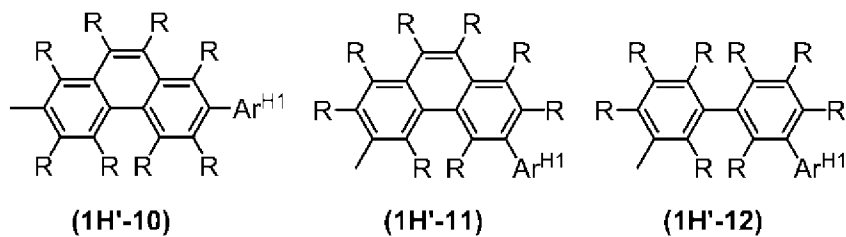
[0242] [化54]



[0243] [化55]

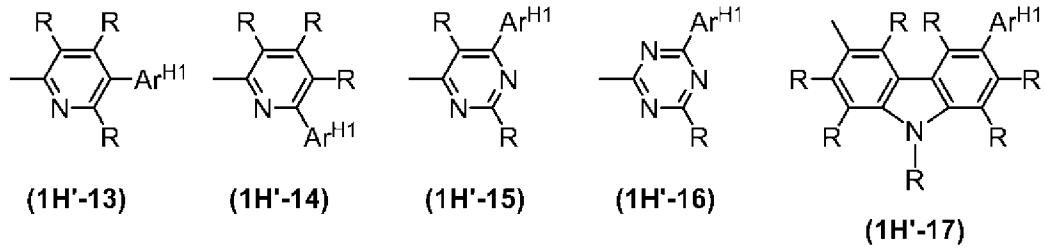


[0244] [化56]

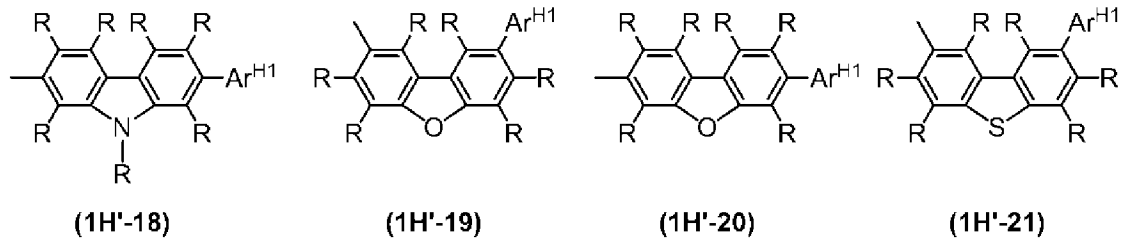


[0245]

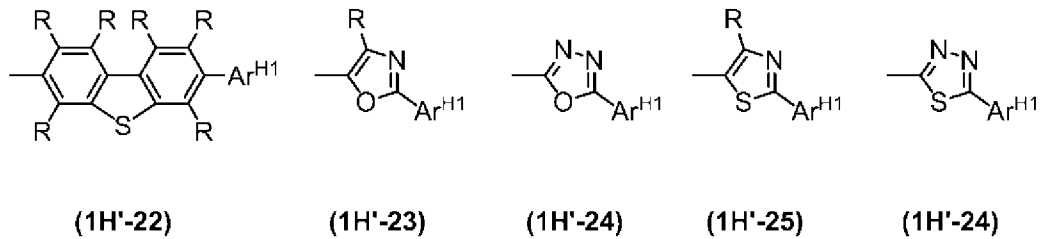
[化57]



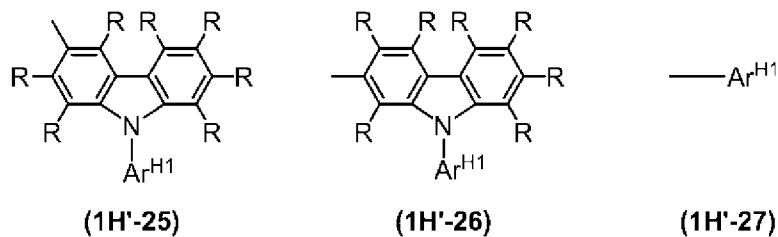
[0246] [化58]



[0247] [化59]



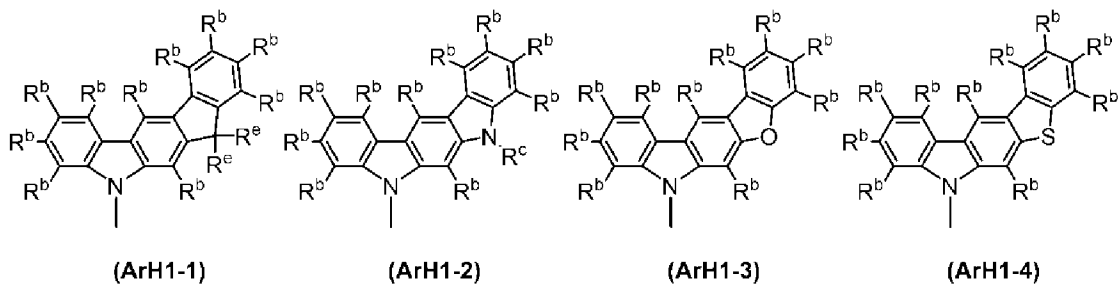
[0248] [化60]

[式中、R、R^a及びAr^{H1}は、前記と同じ意味を表す。]

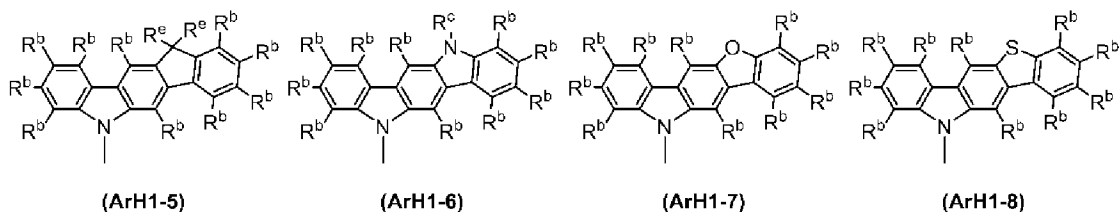
[0249] Ar^{H1}で表される基は、本実施形態の発光素子の輝度寿命（初期劣化）がより優れるので、好ましくは、式（ArH1-1）～式（ArH1-32）で表される基であり、より好ましくは、式（ArH1-1）～式（ArH1-16）で表される基であり、更に好ましくは、式（ArH1-1）～式（ArH1-4）又は式（ArH1-9）～式（ArH1-12）で表される基であり、特に好ましくは、式（ArH1-1）又は式（ArH1-10）で

表される基であり、とりわけ好ましくは、式 (ArH1-1) で表される基である。

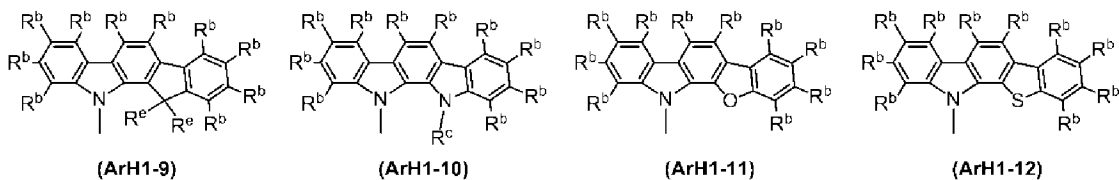
[0250] [化61]



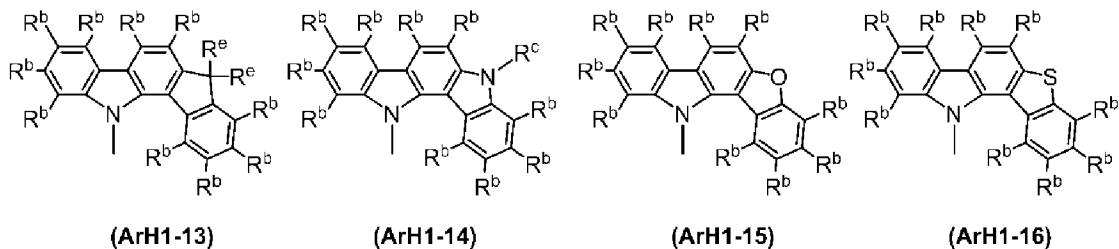
[0251] [化62]



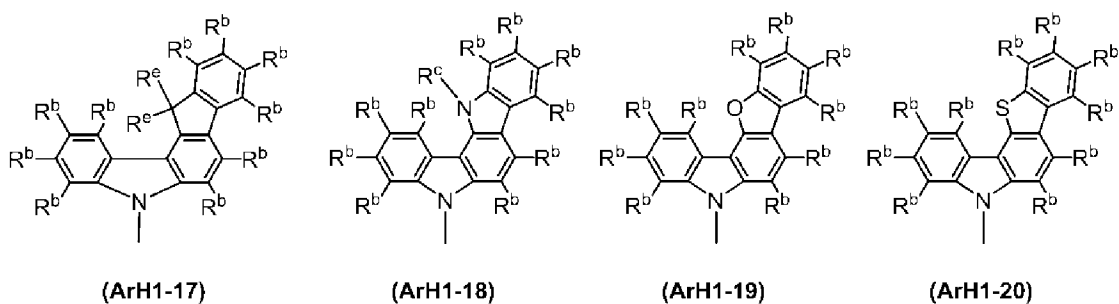
[0252] [化63]



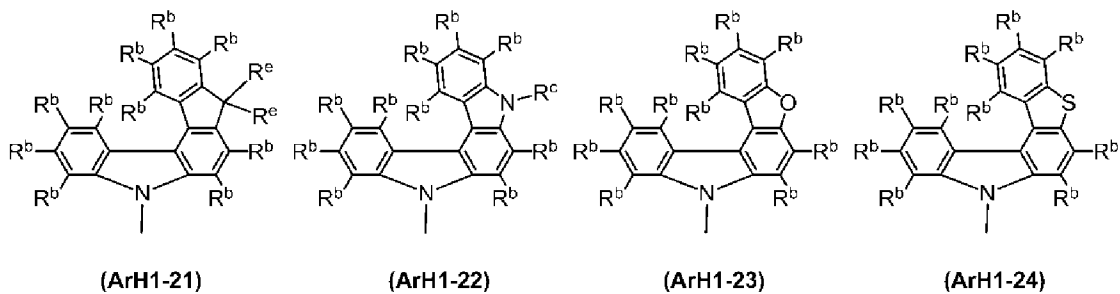
[0253] [化64]



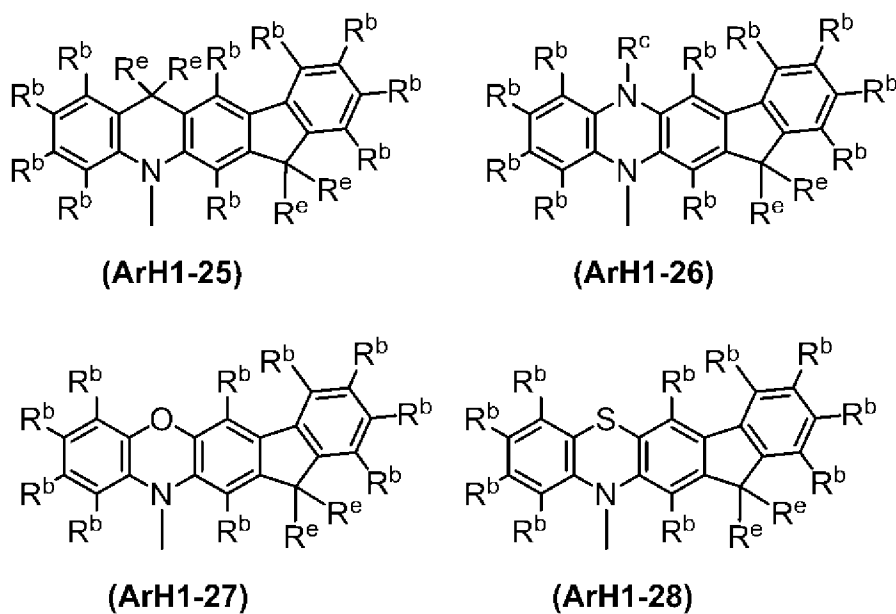
[0254] [化65]



[0255] [化66]

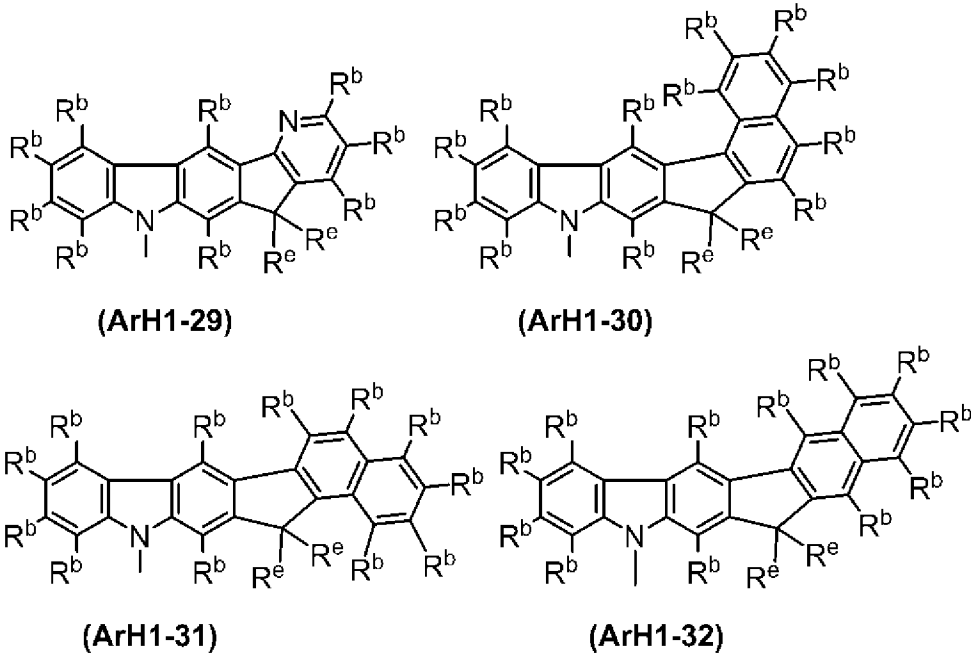


[0256] [化67]



[0257]

[化68]



[式中、

R^b 、 R^c 及び R^e は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はフッ素原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。複数存在する R^b 及び R^e は、同一でも異なってもよく、互いに結合して、それぞれが結合する炭素原子と共に環を形成していてもよい。]

[0258] R^b の例及び好ましい範囲は、 $R^{H1} \sim R^{H12}$ の例及び好ましい範囲と同じである。

。

[0259] R^b が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲は、環 R^{H1} 及び環 R^{H2} が有していてもよい置換基が更に有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0260] R^c 及び R^e の例及び好ましい範囲は、各々、 R^{XH1} 及び $R^{XH1'}$ の例及び好ましい範囲と同じである。

[0261] R^c 及び R^e が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲は、環 R^{H1} 及び環 R^{H2} が有していてもよい置換基が更に有していてもよい置換基の例及び好ま

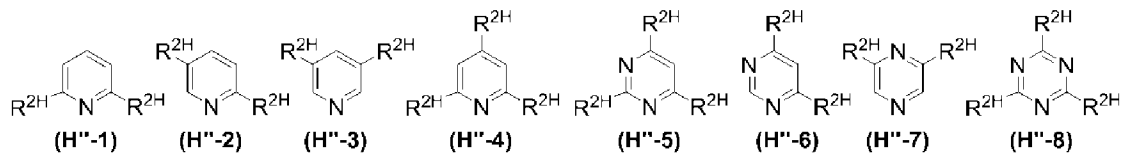
しい範囲と同じである。

[0262] R^{1H}におけるアリール基、1価の複素環基及び置換アミノ基の例及び好ましい範囲は、それぞれ、環L¹及び環L²が有していてもよい置換基におけるアリール基、1価の複素環基及び置換アミノ基の例及び好ましい範囲と同じである。

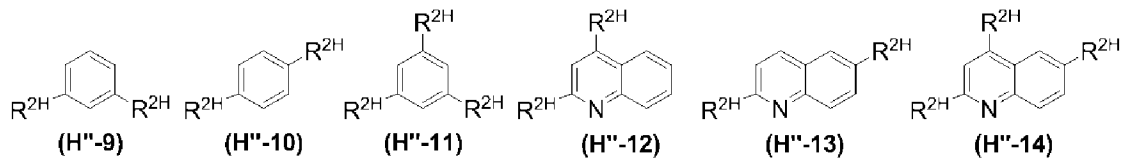
[0263] R^{1H}が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲は、環R^{H1}及び環R^{H2}が有していてもよい置換基が更に有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0264] 式(H'-1)～式(H'-14)で表される化合物としては、例えば、式(H''-1)～式(H''-33)で表される化合物が挙げられ、好ましくは、式(H''-1)～式(H''-21)で表される化合物であり、より好ましくは、式(H''-1)～式(H''-11)で表される化合物であり、更に好ましくは、式(H''-1)～式(H''-8)で表される化合物である。

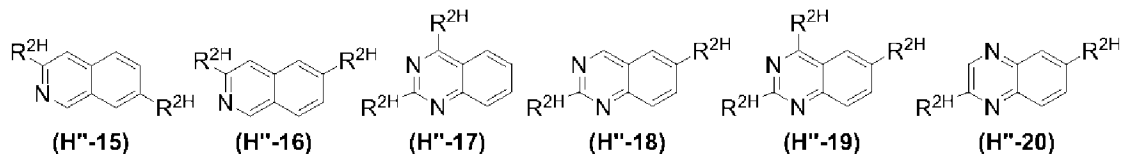
[0265] [化69]



[0266] [化70]

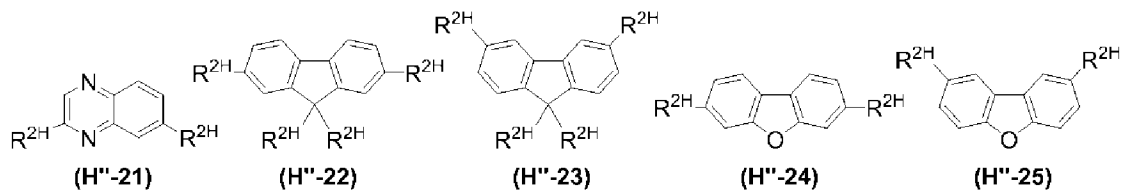


[0267] [化71]

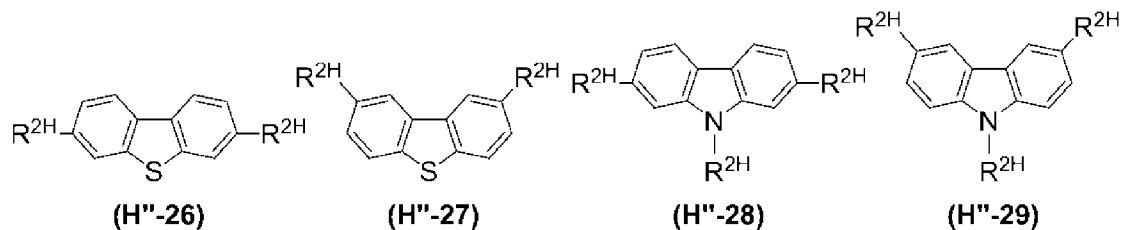


[0268]

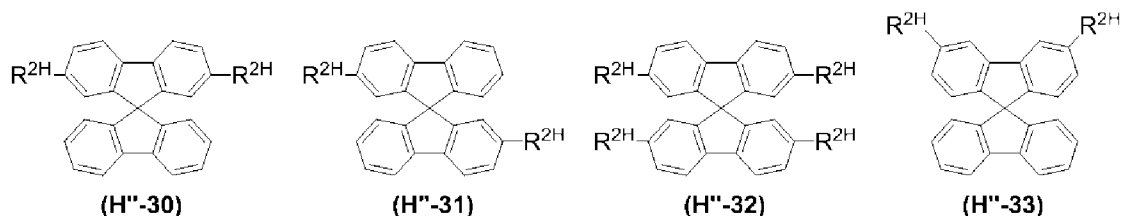
[化72]



[0269] [化73]



[0270] [化74]



[式中、 R^{2H} は、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、1価の複素環基、置換アミノ基又は式(1H')で表される基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。複数存在する R^{2H} は、同一でも異なってもよい。但し、複数存在する R^{2H} のうち、少なくとも1個は式(1H')で表される基である。]

[0271] 複数存在する R^{2H} のうち、 n^{H2} 個は式(1H')で表される基であることが好ましい。

[0272] R^{2H} は、好ましくは、アルキル基、シクロアルキル基、式(D-A)、式(D-B)、式(D-C)若しくは式(1H')で表される基であり、より好ましくは、式(D-A)、式(D-B)、式(D-C)又は式(1H')で表される基であり、更に好ましくは、式(D-A)又は式(1H')で表される基であり、これらの基は更に置換基を有していてもよい。

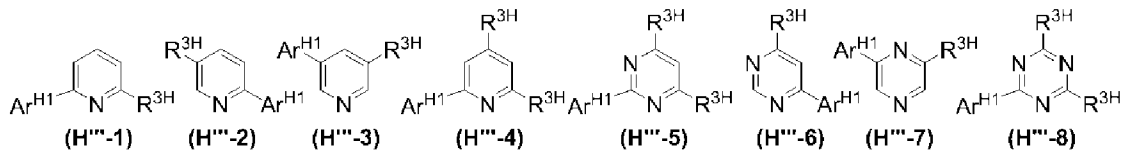
[0273] R^{2H} におけるアリール基、1価の複素環基及び置換アミノ基の例及び好まし

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

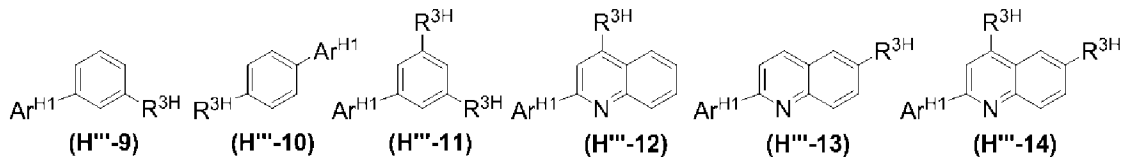
[0274] R^{2H} が有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲は、環 R^{H1} 及び環 R^{H2} が有していてもよい置換基が更に有していてもよい置換基の例及び好ましい範囲と同じである。

[0275] 式(H''-1)～式(H''-33)で表される化合物としては、例えば、式(H'''-1)～式(H'''-33)で表される化合物が挙げられ、好ましくは、式(H'''-1)～式(H'''-21)で表される化合物であり、より好ましくは、式(H'''-1)～式(H'''-11)で表される化合物であり、更に好ましくは、式(H'''-1)～式(H'''-8)で表される化合物である。

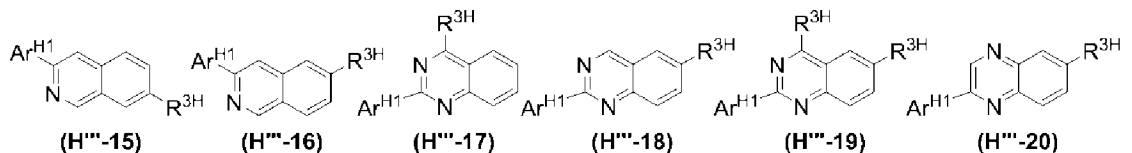
[0276] [化75]



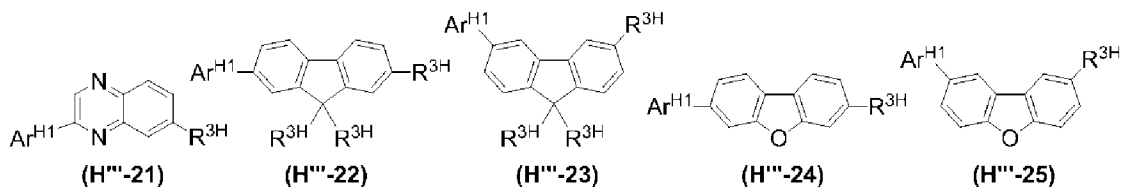
[0277] [化76]



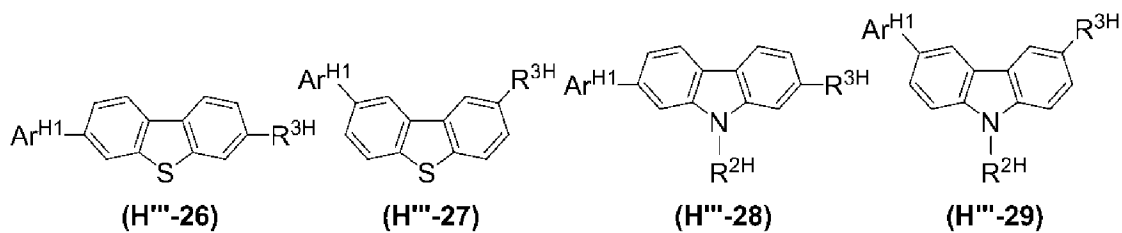
[0278] [化77]



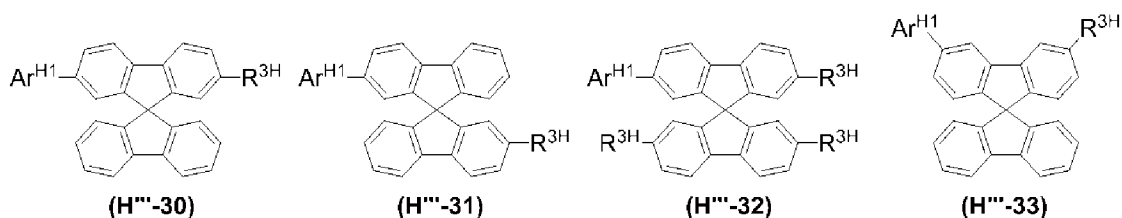
[0279] [化78]



[0280] [化79]



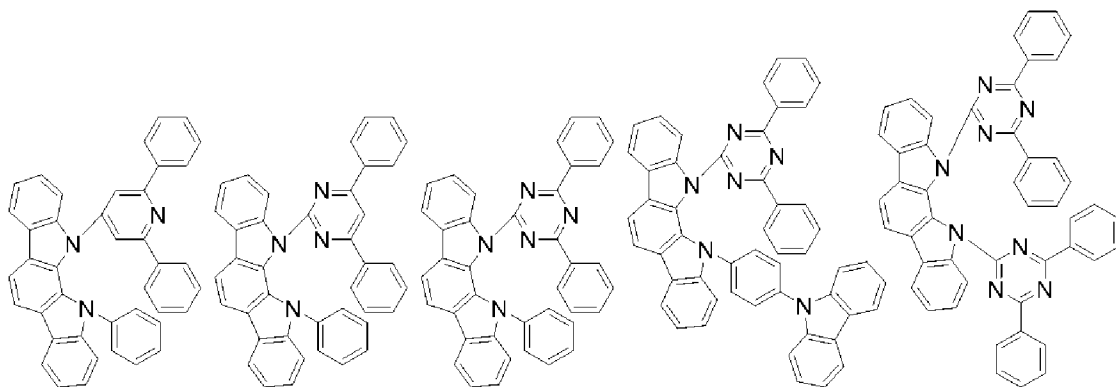
[0281] [化80]



[式中、 R^{3H} は、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、1価の複素環基又は置換アミノ基又で表される基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。複数存在する R^{3H} は、同一でも異なってもよい。 Ar^{H1} は、前記と同じ意味を表す。]

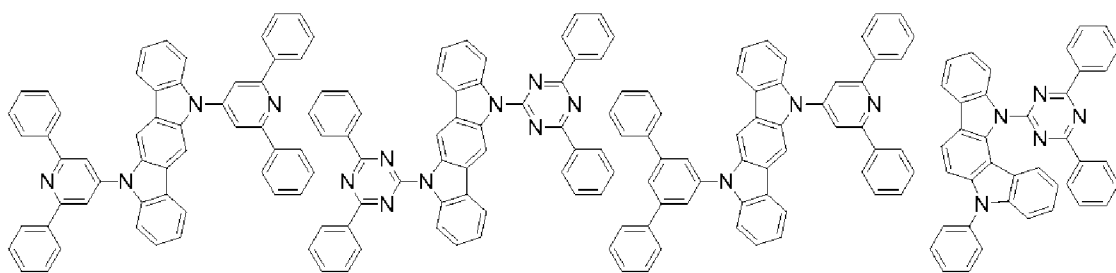
[0282] 式(H)で表される化合物としては、例えば、下記式で表される化合物が挙げられる。

[0283] [化81]

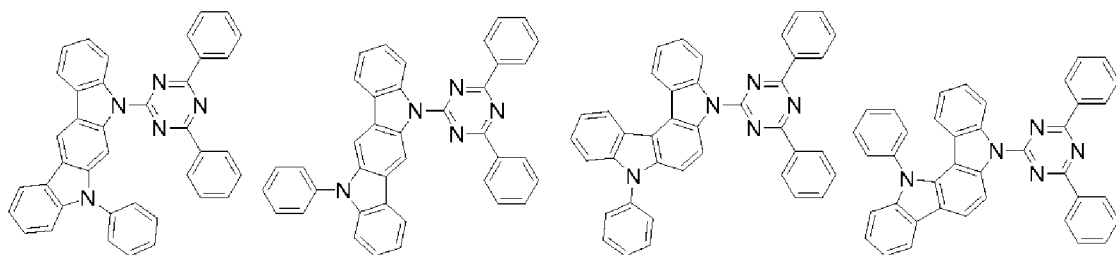


[0284]

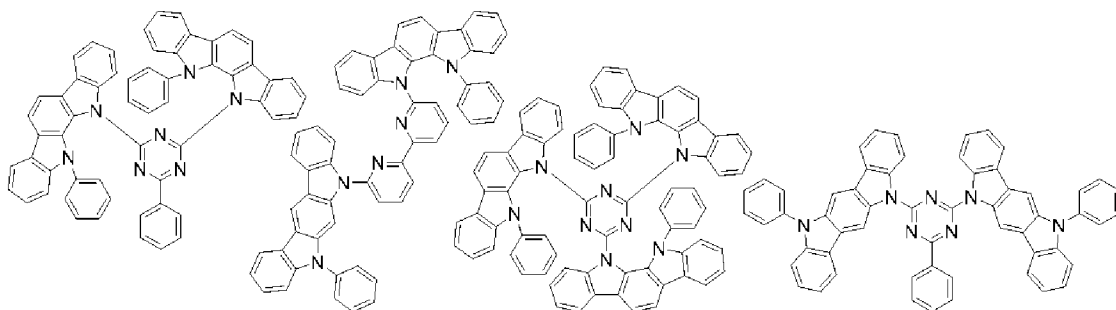
[化82]



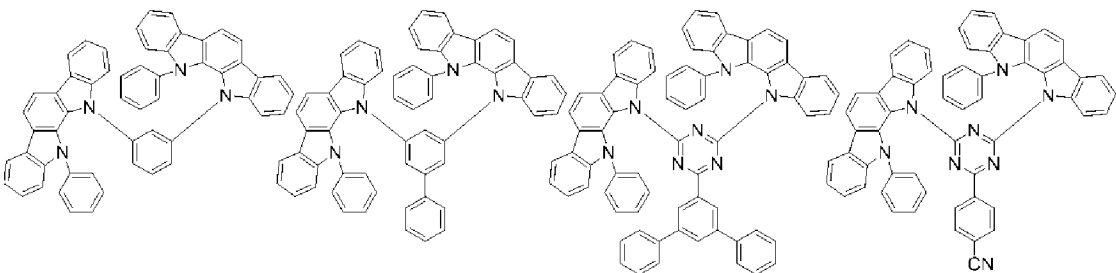
[0285] [化83]



[0286] [化84]

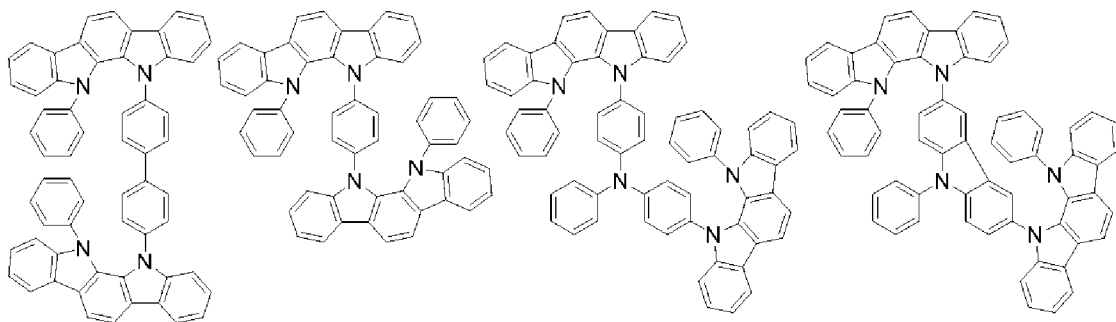


[0287] [化85]

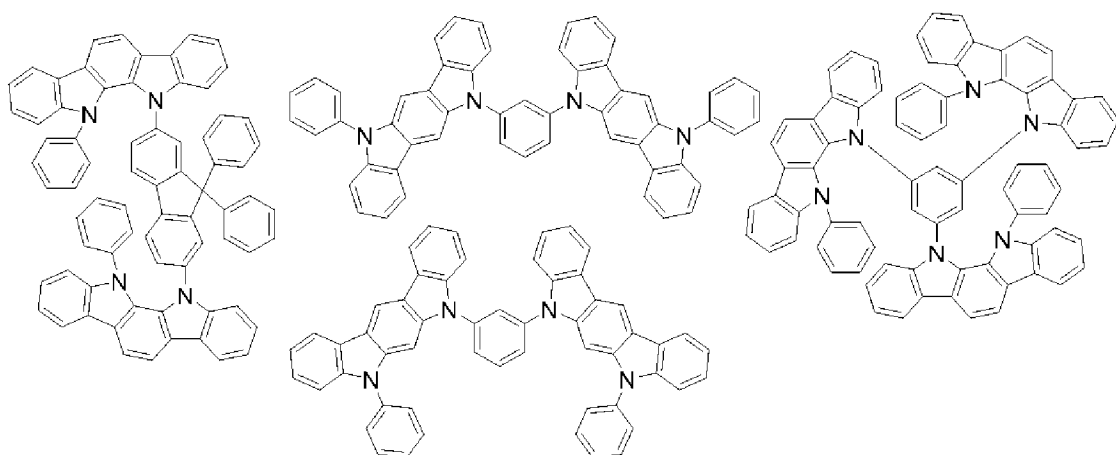


[0288]

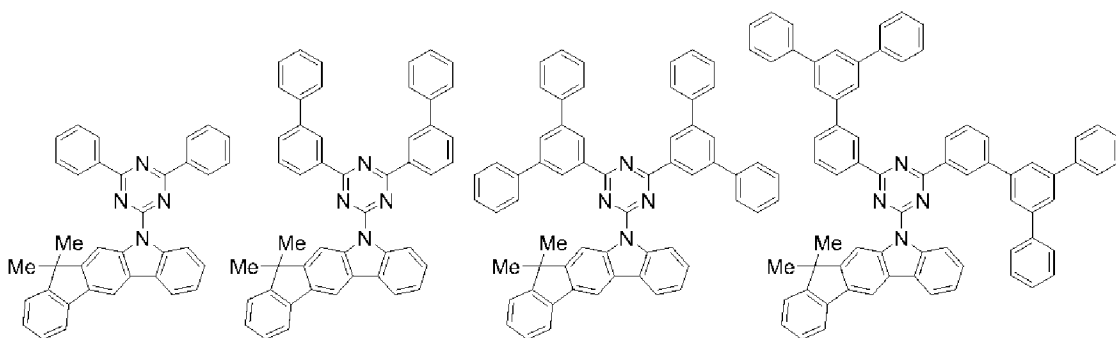
[化86]



[0289] [化87]

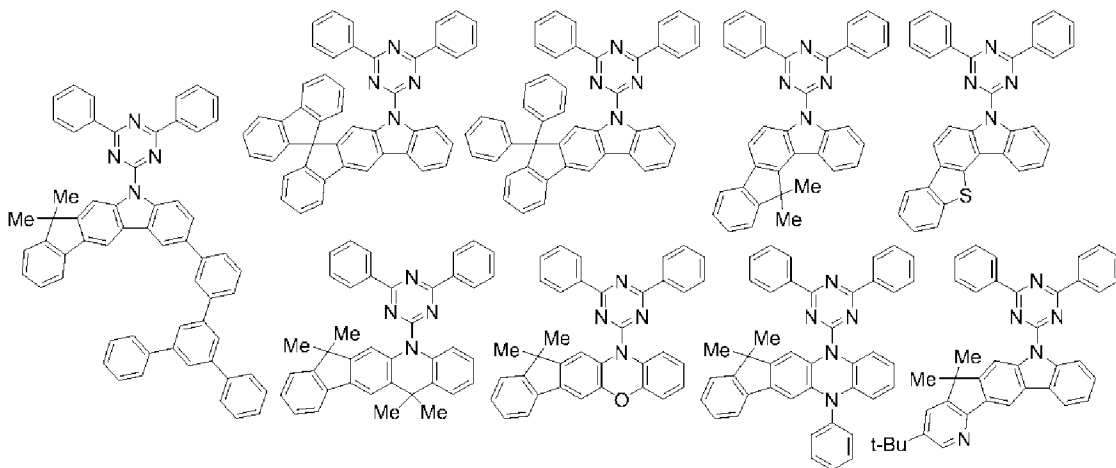


[0290] [化88]

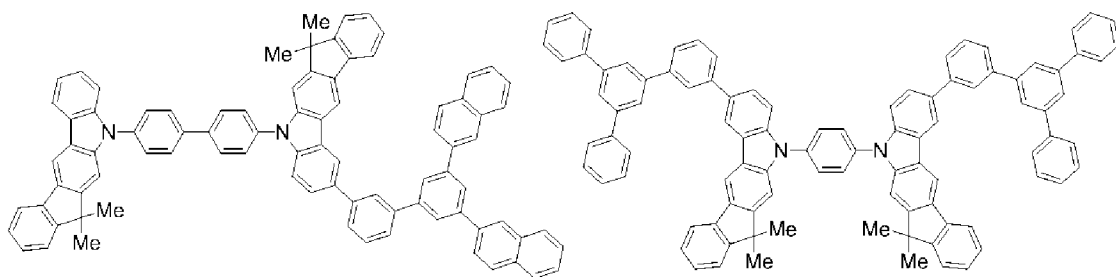


[0291]

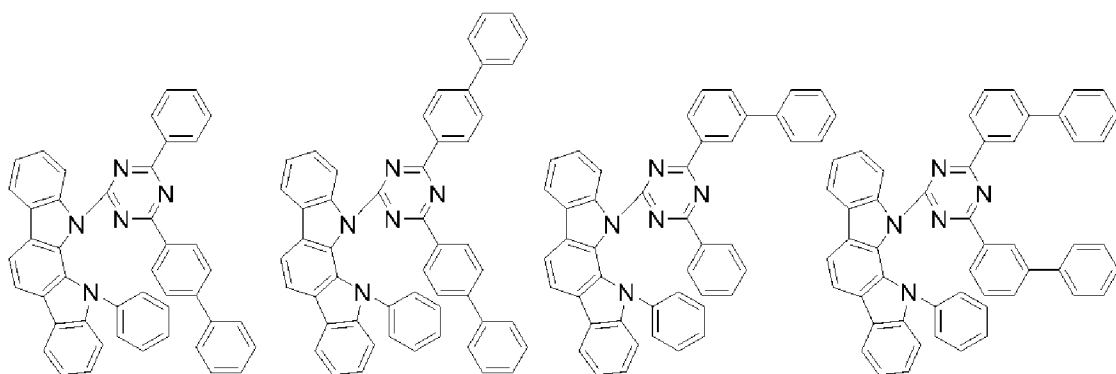
[化89]



[0292] [化90]



[0293] [化91]



[0294] 式 (H) で表される化合物は、Aldrich、Luminescence Technology Corp. 等から入手可能である。その他には、例えば、国際公開第2007/063754号、国際公開第2008/056746号、国際公開第2011/032686号、国際公開第2012/096263号、特開2009-227663号公報、特開2010-275255号公報に記載の方法に従って合成することができる。こうした合成

の過程において、不純物としての塩素原子が最終生成物中に残留することがある。

[0295] 組成物中に含まれる式 (H) で表される化合物の純度 (当該純度は、液体クロマトグラフィーの面積百分率値から算出される純度である) は 99.0% 以上であることが好ましく、99.2% 以上であることがより好ましく、99.5% 以上であることが更に好ましい。

[0296] 式 (H) で表される化合物に含まれる不純物としての塩素原子の量の低減方法は、特記しない限り、前述の C¹ の低減方法と同様である。なお、前述の C¹ の低減方法の項における、各試薬、溶媒の使用量の説明中、「式 (1) で表される金属錯体」と書かれている箇所を、「式 (H) で表される化合物」と読み替える。

[0297] 式 (H) で表される化合物に含まれる不純物としての塩素原子の量 (C^H) は、限定されないが、式 (H) で表される化合物の全量に対して、通常、12 質量 ppm 以下であり、本実施形態に係る発光素子の初期劣化が抑制されるので、好ましくは 5.22 質量 ppm 以下であり、より好ましくは 5 質量 ppm 以下であり、更に好ましくは 4 質量 ppm 以下であり、特に好ましくは 3 質量 ppm 以下であり、殊更に好ましくは 2.8 質量 ppm 以下である。

式 (H) で表される化合物に含まれる不純物としての塩素原子の量 (C^H) は、通常、測定上の検出限界の観点からは、0.01 質量 ppm 以上であることが好ましく、外部量子効率 (以下、「EQE」とも言う。) の観点からは、4.00 質量 ppm 以上であることが好ましく、5.21 質量 ppm 以上であることがより好ましい。

[0298] C^H の具体的な算出方法を実施例 D 1 及び実施例 D 2 を用いて説明する。なお、その他の実施例、比較例等でも、同様に算出することができる。

[0299] 実施例 D 1 では、自動燃焼ーイオンクロマトグラフ法により測定した化合物 HM 1-p の不純物としての塩素原子の量は 2.8 質量 ppm である。

[0300] 実施例 D 2 では、自動燃焼ーイオンクロマトグラフ法により測定した化合

物HM1-pの不純物としての塩素原子の量、及び、化合物HM1-cの不純物としての塩素原子の量は、それぞれ、2.8質量ppm及び244.6質量ppmである。また、化合物HM1-pと化合物HM1-cとの質量比は、化合物HM1-p：化合物HM1-c=49.5：0.5である。

よって、C^Hは、各化合物に含まれる不純物としての塩素原子の量及びその仕込みの量から、以下のとおり求められる。

$$C^H = \{2.8 \times 49.5 / (49.5 + 0.5)\} + \{244.6 \times 0.5 / (49.5 + 0.5)\} = 5.218 \text{ 質量ppm}$$

[0301] <組成物>

本実施形態に係る組成物は、式(1)で表される金属錯体と式(H)で表される化合物とが配合された組成物であって、前記組成物に含まれる不純物としての塩素原子の量が、前記組成物に含まれる固形分全量に対して、12質量ppm以下である。なお、固形分とは、25℃において固体である成分を意味する。

[0302] 本実施形態に係る組成物において、式(1)で表される金属錯体は、1種単独で配合されていても、2種以上配合されていてもよい。また、本実施形態に係る組成物において、式(H)で表される化合物は、1種単独で配合されていても、2種以上配合されていてもよい。

[0303] 本実施形態に係る組成物は、式(1)で表される金属錯体に含まれる不純物としての塩素原子及び式(H)で表される化合物に含まれる不純物としての塩素原子の総量が、組成物に配合される固形分全量に対して、12質量ppm以下であることが好ましい。

[0304] 例えば、本実施形態に係る組成物に含まれる固形分が、式(1)で表される金属錯体及び式(H)で表される化合物のみであるとき、式(1)で表される金属錯体に含まれる不純物としての塩素原子及び式(H)で表される化合物に含まれる不純物としての塩素原子の総量(質量ppm)は、式(1)で表される金属錯体と式(H)で表される化合物との合計質量に対する、式(1)で表される金属錯体の質量の比をW¹、式(1)で表される金属錯体と

式 (H) で表される化合物との合計質量に対する、式 (H) で表される化合物の合計質量の比を W^H としたとき、 $C^I W^I + C^H W^H$ で表される。

[0305] W^I は、通常、0.0001~0.90であり、本実施形態に係る発光素子の初期劣化がより抑制されるので、0.01~0.60であることが好ましく、0.10~0.50であることがより好ましい。

[0306] W^H は、通常、0.0001~0.9999であり、本実施形態に係る発光素子の初期劣化がより抑制されるので、0.40~0.95であることが好ましく、0.50~0.90であることがより好ましい。

[0307] W^H の具体的な算出方法を後述の実施例D1及び実施例D2を用いて説明する。なお、その他の実施例、比較例等でも、同様に算出することができる。

[0308] 実施例D1では、化合物HM1-pと金属錯体MC1との質量比は、化合物HM1-p : 金属錯体MC1 = 50 : 50であるので、 W^H は、仕込みの量から、以下のとおり求められる。

$$W^H = 50 / (50 + 50) = 0.5$$

[0309] 実施例D2では、化合物HM1-pと、化合物HM1-cと金属錯体MC1との質量比は、化合物HM1-p : 化合物HM1-c : 金属錯体MC1 = 49.5 : 0.5 : 50であるので、 W^H は、仕込みの量から、以下のとおり求められる。

$$W^H = (49.5 + 0.5) / (49.5 + 0.5 + 50) = 0.5$$

[0310] W^I の具体的な算出方法は、 W^H の具体的な算出方法と同様である。例えば、前述の実施例D1における W^H の具体的な算出方法と同様にして、実施例D1における W^I は、以下のとおり求められる。

$$W^I = 50 / (50 + 50) = 0.5$$

[0311] 同様にして、実施例D2における W^I は、以下のとおり求められる。

$$W^I = 50 / (49.5 + 0.5 + 50) = 0.5$$

[0312] 上述のとおり、 C^I 、 C^H 、 W^I 及び W^H を算出することにより、 $C^I W^I + C^H W^H$ を算出することができる。

[0313] 例えば、実施例D1における $C^I W^I + C^H W^H$ は、以下のとおり求められる。

$$C^I W^I + C^H W^H = (0.01 \times 0.5) + (2.8 \times 0.5) = 1.405$$

質量 ppm

[0314] 同様に、実施例D2における $C^I W^I + C^H W^H$ は、以下のとおり求められる。

$$C^I W^I + C^H W^H = (0.01 \times 0.5) + (5.218 \times 0.5) = 2.6$$

1.4 質量 ppm

[0315] 本実施形態に係る組成物に含まれる不純物としての塩素原子の量は、本実施形態に係る発光素子の初期劣化が抑制されるので、好ましくは8質量 ppm以下であり、より好ましくは6質量 ppm以下であり、更に好ましくは4質量 ppm以下であり、特に好ましくは3質量 ppm以下であり、とりわけ好ましくは2質量 ppm以下であり、殊更に好ましくは1.41質量 ppm以下である。

[0316] 本実施形態に係る組成物において、組成物に含まれる不純物としての塩素原子の量 ($C^I W^I + C^H W^H$) は、組成物の全量に対して、通常、測定上の検出限界の観点からは、0.01質量 ppm以上であることが好ましい。式(1)で表される金属錯体の発光スペクトルの最大ピーク波長が500nm~550nmである場合、外部量子効率(以下、「EQE」と言う。)の観点からは、2.00質量 ppm以上であることが好ましく、2.61質量 ppm以上であることがより好ましい。

[0317] 本実施形態に係る組成物における式(1)で表される金属錯体の配合量は、組成物に配合される固形分全量基準で、通常、0.01~90質量%であり、好ましくは1~60質量%であり、より好ましくは10~50質量%である。

[0318] 本実施形態に係る組成物における式(H)で表される化合物の配合量は、組成物に配合される固形分全量基準で、通常、0.01~99.99質量%であり、好ましくは40~95質量%であり、より好ましくは50~90質量%である。

[0319] [その他の成分]

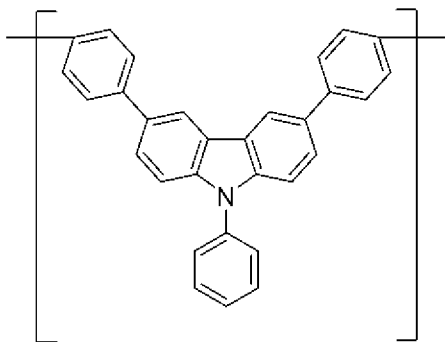
本実施形態に係る組成物は、正孔輸送材料、正孔注入材料、電子輸送材料

、電子注入材料、発光材料、酸化防止剤及び溶媒からなる群から選ばれる少なくとも1種の方法を更に含有していてもよい。但し、正孔輸送材料、正孔注入材料、電子輸送材料、電子注入材料及び発光材料は、式(1)で表される金属錯体及び式(H)で表される化合物とは異なる。これらの材料も、上述した精製及び／又は脱ハロゲン化剤により、塩素原子の含有量を低減しておくことが好ましい。

[0320] 正孔輸送材料は、低分子化合物と高分子化合物とに分類され、好ましくは高分子化合物である。正孔輸送材料は、架橋基を有していてもよい。

[0321] 高分子化合物としては、例えば、ポリビニルカルバゾール及びその誘導体；側鎖又は主鎖に芳香族アミン構造を有するポリアリーレン及びその誘導体が挙げられる。高分子化合物は、電子受容性部位が結合された化合物でもよい。電子受容性部位としては、例えば、フラレン、テトラフルオロテトラシアノキノジメタン、テトラシアノエチレン、トリニトロフルオレノンが挙げられる。なお、前記高分子化合物は、以下の構成単位を有していてもよい。

[0322] [化92]



[0323] 本実施形態に係る組成物において、正孔輸送材料の配合量は、式(1)で表される金属錯体及び式(H)で表される化合物との合計を100質量部とした場合、通常、1~400質量部であり、好ましくは5~150質量部である。

[0324] 正孔輸送材料は、1種単独で用いても2種以上を併用してもよい。

[0325] 電子輸送材料は、低分子化合物と高分子化合物とに分類される。電子輸送

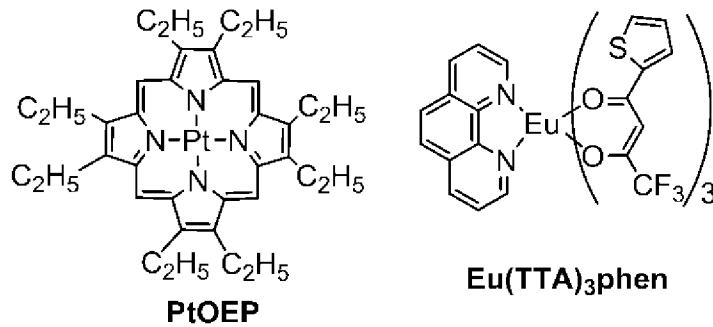
材料は、架橋基を有していてもよい。

- [0326] 低分子化合物としては、例えば、8-ヒドロキシキノリンを配位子とする金属錯体、オキサジアゾール、アントラキノジメタン、ベンゾキノン、ナフトキノン、アントラキノン、テトラシアノアントラキノジメタン、フルオレノン、ジフェニルジシアノエチレン及びジフェノキノン、及び、これらの誘導体が挙げられる。
- [0327] 高分子化合物としては、例えば、ポリフェニレン、ポリフルオレン、及び、これらの誘導体が挙げられる。高分子化合物は、金属でドーピングされていてもよい。
- [0328] 本実施形態に係る組成物において、電子輸送材料の配合量は、式(1)で表される金属錯体及び式(H)で表される化合物との合計を100質量部とした場合、通常、1~400質量部であり、好ましくは5~150質量部である。
- [0329] 電子輸送材料は、1種単独で用いても2種以上を併用してもよい。
- [0330] 正孔注入材料及び電子注入材料は、各々、低分子化合物と高分子化合物とに分類される。正孔注入材料及び電子注入材料は、架橋基を有していてもよい。
- [0331] 低分子化合物としては、例えば、銅フタロシアニン等の金属フタロシアニン；カーボン；モリブデン、タングステン等の金属酸化物；フッ化リチウム、フッ化ナトリウム、フッ化セシウム、フッ化カリウム等の金属フッ化物が挙げられる。
- [0332] 高分子化合物としては、例えば、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロール、ポリフェニレンビニレン、ポリチエニレンビニレン、ポリキノリン及びポリキノキサリン、並びに、これらの誘導体；芳香族アミン構造を主鎖又は側鎖に含む重合体等の導電性高分子が挙げられる。
- [0333] 本実施形態に係る組成物において、正孔注入材料及び電子注入材料の配合量は、各々、式(1)で表される金属錯体及び式(H)で表される化合物との合計を100質量部とした場合、通常、1~400質量部であり、好まし

くは5～150質量部である。

- [0334] 電子注入材料及び正孔注入材料は、各々、1種単独で用いても2種以上を併用してもよい。
- [0335] 正孔注入材料又は電子注入材料が導電性高分子を含む場合、導電性高分子の電気伝導度は、好ましくは、 $1 \times 10^{-5} \text{ S/cm} \sim 1 \times 10^3 \text{ S/cm}$ である。導電性高分子の電気伝導度をかかえる範囲とするために、導電性高分子に適量のイオンをドーピングすることができる。
- [0336] ドーピングするイオンの種類は、正孔注入材料であればアニオン、電子注入材料であればカチオンである。アニオンとしては、例えば、ポリスチレンスルホン酸イオン、アルキルベンゼンスルホン酸イオン、樟脳スルホン酸イオンが挙げられる。カチオンとしては、例えば、リチウムイオン、ナトリウムイオン、カリウムイオン、テトラブチルアンモニウムイオンが挙げられる。
- [0337] ドーピングするイオンは、1種単独で用いても2種以上を併用してもよい。
- [0338] 発光材料（式（1）で表される金属錯体及び式（H）で表される化合物とは異なる。）は、低分子化合物と高分子化合物とに分類される。発光材料は、架橋基を有していてもよい。
- [0339] 低分子化合物としては、例えば、ナフタレン及びその誘導体、アントラセン及びその誘導体、並びに、ペリレン及びその誘導体が挙げられる。
- [0340] 高分子化合物としては、例えば、フェニレン基、ナフタレンジイル基、アントラセレンジイル基、フルオレンジイル基、フェナントレンジイル基、ジヒドロフェナントレンジイル基、式（X）で表される基、カルバゾールジイル基、フェノキサジンジイル基、フェノチアジンジイル基、ピレンジイル基等を含む高分子化合物が挙げられる。
- [0341] 発光材料は、好ましくは、三重項発光錯体及び高分子化合物を含む。
- [0342] 三重項発光錯体としては、例えば、以下に示す金属錯体が挙げられる。
- [0343]

[化93]



[0344] 本実施形態に係る組成物において、発光材料の配合量は、式(1)で表される金属錯体及び式(H)で表される化合物との合計を100質量部とした場合、通常、0.1~400質量部であり、好ましくは1~150質量部である。

[0345] 発光材料は、1種単独で用いても2種以上を併用してもよい。

[0346] 酸化防止剤は、式(1)で表される金属錯体及び式(H)で表される化合物と同じ溶媒に可溶であり、発光及び電荷輸送を阻害しない化合物であればよく、例えば、フェノール系酸化防止剤、リン系酸化防止剤が挙げられる。

[0347] 本実施形態に係る組成物において、酸化防止剤の配合量は、式(1)で表される金属錯体及び式(H)で表される化合物との合計を100質量部とした場合、通常、0.001~10質量部である。

[0348] 酸化防止剤は、1種単独で用いても2種以上を併用してもよい。

[0349] 式(1)で表される金属錯体と、式(H)で表される化合物と、溶媒とを含有する組成物(以下、「インク」ともいう。)は、スピコート法、キャスト法、マイクログラビアコート法、グラビアコート法、バーコート法、ロールコート法、ワイヤーバーコート法、ディップコート法、スプレーコート法、スクリーン印刷法、フレキソ印刷法、オフセット印刷法、インクジェット印刷法、キャピラリーコート法、ノズルコート法等の塗布法に好適に使用することができる。

[0350] インクの粘度は、塗布法の種類によって調整すればよいが、インクジェット印刷法等の溶液が吐出装置を経由する印刷法に適用する場合には、吐出時

の目詰まり及び飛行曲がりが起こりづらいので、好ましくは25℃において1~20 mPa・sである。

[0351] インクに含有される溶媒は、好ましくは、インク中の固形分を溶解又は均一に分散できる溶媒である。溶媒としては、例えば、1, 2-ジクロロエタン、1, 1, 2-トリクロロエタン、クロロベンゼン、*o*-ジクロロベンゼン等の塩素系溶媒；THF、ジオキサン、アニソール、4-メチルアニソール等のエーテル系溶媒；トルエン、キシレン、メシチレン、エチルベンゼン、*n*-ヘキシルベンゼン、シクロヘキシルベンゼン等の芳香族炭化水素系溶媒；シクロヘキサン、メチルシクロヘキサン、*n*-ペンタン、*n*-ヘキサン、*n*-ヘプタン、*n*-オクタン、*n*-ノナン、*n*-デカン、*n*-ドデカン、ビスシクロヘキシル等の脂肪族炭化水素系溶媒；アセトン、メチルエチルケトン、シクロヘキサノン、アセトフェノン等のケトン系溶媒；酢酸エチル、酢酸ブチル、エチルセルソルブアセテート、安息香酸メチル、酢酸フェニル等のエステル系溶媒；エチレングリコール、グリセリン、1, 2-ヘキサングリオール等の多価アルコール系溶媒；イソプロピルアルコール、シクロヘキサノール等のアルコール系溶媒；ジメチルスルホキシド等のスルホキシド系溶媒；*N*-メチル-2-ピロリドン、*N,N*-ジメチルホルムアミド等のアミド系溶媒が挙げられる。溶媒は、1種単独で用いても2種以上を併用してもよい。

[0352] インクにおいて、溶媒の配合量は、式(1)で表される金属錯体及び式(H)で表される化合物との合計を100質量部とした場合、通常、1000~100000質量部であり、好ましくは2000~20000質量部である。

[0353] <発光素子>

本実施形態に係る発光素子は、本実施形態に係る組成物を含む有機層を含む発光素子である。本実施形態に係る発光素子の構成としては、例えば、陽極及び陰極からなる電極と、該電極間に設けられた本実施形態に係る組成物を含む有機層とを有していてもよい。

- [0354] 本実施形態に係る組成物を含む有機層は、通常、発光層、正孔輸送層、正孔注入層、電子輸送層及び電子注入層からなる群から選ばれる1種以上の層であり、発光層であることが好ましい。これらの層は、各々、発光材料、正孔輸送材料、正孔注入材料、電子輸送材料、電子注入材料を含有する。これらの層は、例えば、上述したインクを用いて、形成することができる。
- [0355] 発光素子は、陽極と陰極の間に発光層を有する。本実施形態に係る発光素子は、正孔注入性及び正孔輸送性の観点からは、陽極と発光層との間に、正孔注入層及び正孔輸送層の少なくとも1層を有することが好ましく、電子注入性及び電子輸送性の観点からは、陰極と発光層の間に、電子注入層及び電子輸送層の少なくとも1層を有することが好ましい。
- [0356] 正孔輸送層の材料、電子輸送層の材料及び発光層の材料は、発光素子の作製において、各々、正孔輸送層、電子輸送層及び発光層に隣接する層の形成時に使用される溶媒に溶解する場合、該溶媒に該材料が溶解することを回避するために、該材料が架橋基を有することが好ましい。架橋基を有する材料を用いて各層を形成した後、該架橋基を架橋させることにより、該層を不溶化させることができる。
- [0357] 本実施形態に係る発光素子において、発光層、正孔輸送層、電子輸送層、正孔注入層、電子注入層等の各層の形成方法としては、低分子化合物を用いる場合、例えば、粉末からの真空蒸着法、溶液又は熔融状態からの成膜による方法が挙げられ、高分子化合物を用いる場合、例えば、溶液又は熔融状態からの成膜による方法が挙げられる。
- [0358] 積層する層の順番、数及び厚さは、外部量子効率及び輝度寿命を勘案して調整する。
- [0359] 発光素子における基板は、電極を形成することができ、かつ、有機層を形成する際に化学的に変化しない基板であればよく、例えば、ガラス、プラスチック、シリコン等の材料からなる基板である。不透明な基板の場合には、基板から最も遠くにある電極が透明又は半透明であることが好ましい。
- [0360] 陽極の材料としては、例えば、導電性の金属酸化物、半透明の金属が挙げ

られ、好ましくは、酸化インジウム、酸化亜鉛、酸化スズ；インジウム・スズ・オキサイド（ITO）、インジウム・亜鉛・オキサイド等の導電性化合物；銀とパラジウムと銅との複合体（APC）；NESEA、金、白金、銀、銅である。

[0361] 陰極の材料としては、例えば、リチウム、ナトリウム、カリウム、ルビジウム、セシウム、ベリリウム、マグネシウム、カルシウム、ストロンチウム、バリウム、アルミニウム、亜鉛、インジウム等の金属；それらのうち2種以上の合金；それらのうち1種以上と、銀、銅、マンガン、チタン、コバルト、ニッケル、タングステン、錫のうち1種以上との合金；並びに、グラファイト及びグラファイト層間化合物が挙げられる。合金としては、例えば、マグネシウム－銀合金、マグネシウム－インジウム合金、マグネシウム－アルミニウム合金、インジウム－銀合金、リチウム－アルミニウム合金、リチウム－マグネシウム合金、リチウム－インジウム合金、カルシウム－アルミニウム合金が挙げられる。

陽極及び陰極は、各々、2層以上の積層構造としてもよい。

[0362] 発光素子を用いて面状の発光を得るためには、面状の陽極と陰極が重なり合うように配置すればよい。パターン状の発光を得るためには、面状の発光素子の表面にパターン状の窓を設けたマスクを設置する方法、非発光部にしたい層を極端に厚く形成し実質的に非発光とする方法、陽極若しくは陰極、又は、両方の電極をパターン状に形成する方法がある。これらのいずれかの方法でパターンを形成し、いくつかの電極を独立にON/OFFできるように配置することにより、数字、文字等を表示できるセグメントタイプの表示装置が得られる。ドットマトリックス表示装置とするためには、陽極と陰極を共にストライプ状に形成して直交するように配置すればよい。複数の種類の発光色の異なる高分子化合物を塗り分ける方法、カラーフィルター又は蛍光変換フィルターを用いる方法により、部分カラー表示、マルチカラー表示が可能となる。ドットマトリックス表示装置は、パッシブ駆動も可能であるし、TFT等と組み合わせてアクティブ駆動も可能である。これらの表示装

置は、コンピュータ、テレビ、携帯端末等のディスプレイに用いることができる。面状の発光素子は、液晶表示装置のバックライト用の面状光源、又は、面状の照明用光源として好適に用いることができる。フレキシブルな基板を用いれば、曲面状の光源及び表示装置としても使用できる。

[0363] 以上、本実施形態の好適な一実施形態について説明したが、本実施形態は上記の実施形態に限定されない。

[0364] 例えば、本実施形態の一側面は、式(1)で表される金属錯体と、残留塩素濃度が12質量ppm以下の式(H)で表される化合物と、が配合された組成物に関するものであってよい。なお、式(H)で表される化合物の残留塩素濃度は、式(H)で表される化合物に含まれる不純物としての塩素原子の量(C^H)と同義である。

[0365] 一実施形態において、式(H)で表される化合物の残留塩素濃度をC^H(ppm)、組成物に配合される固形分全量に対する、前記式(H)で表される化合物の配合量の比(質量比)をW^Hとしたとき、組成物は下記式(i)を満たすものであってよい。

$$C^H \times W^H \leq 12 \quad (i)$$

[0366] また、一実施形態において、式(1)で表される金属錯体の残留塩素濃度をC^I(質量ppm)、組成物に配合される固形分全量に対する、式(1)で表される金属錯体の配合量の比(質量比)をW^Iとしたとき、組成物は下記式(ii)を満たすものであってよい。

$$C^I \times W^I + C^H \times W^H \leq 12 \quad (ii)$$

[0367] また、本実施形態の一側面は、残留塩素濃度が12質量ppmを超える式(H)で表される化合物の粗精製物を準備する工程と、粗精製物から、残留塩素濃度が12質量ppm以下の式(H)で表される化合物の精製物を得る工程と、精製物と式(1)で表される金属錯体とを配合した組成物を得る工程と、を備える、組成物の精製方法に関するものであってよい。

実施例

[0368] 以下、実施例によって本実施形態を更に詳細に説明するが、本実施形態は

これらの実施例に限定されるものではない。

[0369] 実施例において、高分子化合物のポリスチレン換算の数平均分子量 (M_n) 及びポリスチレン換算の重量平均分子量 (M_w) は、移動相にテトラヒドロフランを用い、下記のサイズエクスクルージョンクロマトグラフィー (SEC) により求めた。なお、SECの測定条件は、次のとおりである。

[0370] 測定する高分子化合物を約0.05質量%の濃度でテトラヒドロフランに溶解させ、SECに10 μ L注入した。移動相は、2.0 mL/分の流量で流した。カラムとして、PL gel MIXED-B (ポリマーラボラトリーズ製) を用いた。検出器にはUV-VIS検出器 (島津製作所製、商品名: SPD-10Avp) を用いた。

[0371] LC-MSは、下記の方法で測定した。

測定試料を約2 mg/mLの濃度になるようにクロロホルム又はテトラヒドロフランに溶解させ、LC-MS (Agilent製、商品名: 1100 LCMSD) に約1 μ L注入した。LC-MSの移動相には、アセトニトリル及びテトラヒドロフランの比率を変化させながら用い、0.2 mL/分の流量で流した。カラムは、L-column 2 ODS (3 μ m) (化学物質評価研究機構製、内径: 2.1 mm、長さ: 100 mm、粒径3 μ m) を用いた。

[0372] TLC-MSは、下記の方法で測定した。

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

[0373] NMRは、下記の方法で測定した。

5~10 mgの測定試料を約0.5 mLの重クロロホルム ($CDCl_3$)、重テトラヒドロフラン、重ジメチルスルホキシド、重アセトン、重N,N-

ジメチルホルムアミド、重トルエン、重メタノール、重エタノール、重２－プロパノール又は重塩化メチレンに溶解させ、NMR装置（Agilent製、商品名：INOVA300又はMERCURY 400VX）を用いて測定した。

[0374] 化合物の純度の指標として、高速液体クロマトグラフィー（HPLC）面積百分率の値を用いた。この値は、特に記載がない限り、HPLC（島津製作所製、商品名：LC-20A）でのUV=254nmにおける値とする。この際、測定する化合物は、0.01～0.2質量%の濃度になるようにテトラヒドロフラン又はクロロホルムに溶解させ、濃度に応じてHPLCに1～10 μ L注入した。HPLCの移動相には、アセトニトリル／テトラヒドロフランの比率を100/0～0/100（容積比）まで変化させながら用い、1.0mL/分の流量で流した。カラムは、Kaseisorb LC ODS 2000（東京化成工業製）又は同等の性能を有するODSカラムを用いた。検出器には、フォトダイオードアレイ検出器（島津製作所製、商品名：SPD-M20A）を用いた。

[0375] 本実施例において、式（1）で表される金属錯体の発光スペクトルの最大ピーク波長は、分光光度計（日本分光株式会社製、FP-6500）により室温にて測定した。式（1）で表される金属錯体をキシレンに、約0.8 \times 10⁻⁴質量%の濃度で溶解させたキシレン溶液を試料として用いた。励起光としては、波長325nmのUV光を用いた。

[0376] 式（1）で表される金属錯体と、式（H）で表される化合物とに含まれる不純物としての塩素原子の量は、自動燃焼－イオンクロマトグラフ法により測定した。本測定では、燃焼分解を三菱化学アナリティック社製 自動試料燃焼装置 AQF-2100H型を用いて行い、その後のイオンクロマトグラフィーをサーモフィッシャーサイエンティフィック社製 イオンクロマトグラフィーシステム ICS-2100を用いて行った。

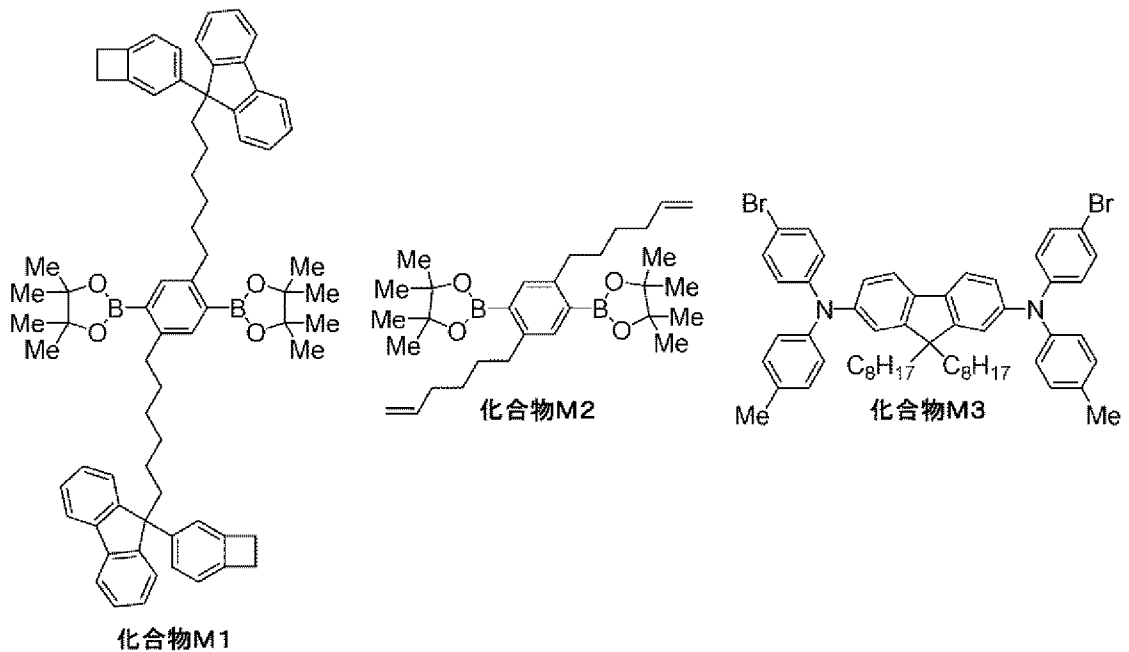
[0377] <合成例1> 化合物M1、化合物M2及び化合物M3の合成
化合物M1は、国際公開第2015/145871号に記載の方法に従っ

て合成した。

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

化合物M3は、国際公開第2005/049546号に記載の方法に従って合成した。

[0378] [化94]



[0379] <合成例2> 高分子化合物HTL-1の合成

(工程1) 反応容器内を不活性ガス雰囲気とした後、化合物M1 (0.923 g)、化合物M2 (0.0496 g)、化合物M3 (0.917 g)、ジクロロビス(トリス-*o*-メトキシフェニルホスフィン)パラジウム (1.76 mg) 及びトルエン (34 mL) を加え、105℃に加熱した。

(工程2) 反応液に、20質量%水酸化テトラエチルアンモニウム水溶液 (6.7 mL) を滴下し、6時間還流させた。

(工程3) 反応後、そこに、フェニルボロン酸 (48.8 mg) 及びジクロロビス(トリス-*o*-メトキシフェニルホスフィン)パラジウム (0.88 mg) を加え、14.5時間還流させた。

(工程4) その後、そこに、ジエチルジチアカルバミン酸ナトリウム水溶液

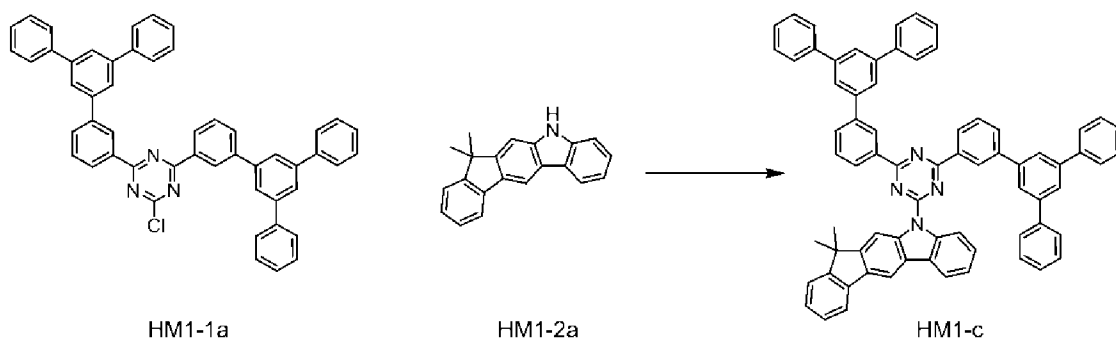
を加え、80℃で2時間攪拌した。冷却後、得られた反応液を、水で2回、3質量%酢酸水溶液で2回、水で2回洗浄し、得られた溶液をメタノールに滴下したところ、沈澱が生じた。得られた沈澱物をトルエンに溶解させ、アルミナカラム、シリカゲルカラムの順番で通すことにより精製した。得られた溶液をメタノールに滴下し、攪拌した後、得られた沈澱物をろ取し、乾燥させることにより、高分子化合物HTL-1を1.23g得た。

[0380] 高分子化合物HTL-1のMnは 2.3×10^4 であり、Mwは 1.2×10^5 であった。

高分子化合物HTL-1は、仕込み原料の量から求めた理論値では、化合物M1から誘導される構成単位と、化合物M2から誘導される構成単位と、化合物M3から誘導される構成単位とが、45:5:50のモル比で構成されてなる共重合体である。

[0381] <合成例3> 化合物HM1-cの合成

[0382] [化95]



[0383] 反応容器内を窒素ガス雰囲気とした後、流動パラフィンに分散させた60質量%水素化ナトリウム(0.10g)、化合物HM1-2a(0.54g)及びN,N-ジメチルホルムアミド(14mL)を加えた。その後、そこへ、化合物HM1-1a(1.5g)及びN,N-ジメチルホルムアミド(17mL)を加え、室温で2時間攪拌した。得られた反応混合物へトルエン(30mL)及び水(2mL)を加えた後、水層を分離し、得られた有機層を水(50mL)で洗浄した。得られた洗浄液へ硫酸マグネシウム(0.050g)及び活性白土(0.50g)を加え、20~25℃で攪拌した後、シリカゲ

ル (1.0 g) 及びセライト (0.1 g) を敷いたろ過器でろ過し、得られたろ液を濃縮することで、粗生成物 (1.88 g) を得た。得られた粗生成物を、アセトニトリル (25 mL) に加え、20~25℃で洗浄した後、乾燥することで、白色固体として化合物HM1-cを1.88 g得た。

[0384] LC-MS (APCI, positive) : [M+H]⁺971

[0385] 化合物HM1-cのHPLC面積百分率値は、99.14%であった。

[0386] 化合物HM1-cに含まれる不純物としての塩素原子の量 (C^h) は、244.6質量ppmであった。

[0387] 化合物HM1-cのHPLC分析は、下記の条件で行った。サンプルは、化合物HM1-cの濃度が0.1質量%~0.2質量%になるようにテトラヒドロフランで希釈し、分析した。

装置 : LC-20A (島津製作所製)

カラム : SUMIPAX ODS Z-CLUE (直径4.6×250mm、3μm、住化分析センター製)

カラム温度 : 40℃

検出器 : フォトダイオードアレイ検出器 (SPD-M20A、島津製作所製)

検出波長 : 254nm

移動相 : A液アセトニトリル、B液THF

移動相条件 : B液0%-60分-B液20%-20分-B液100%

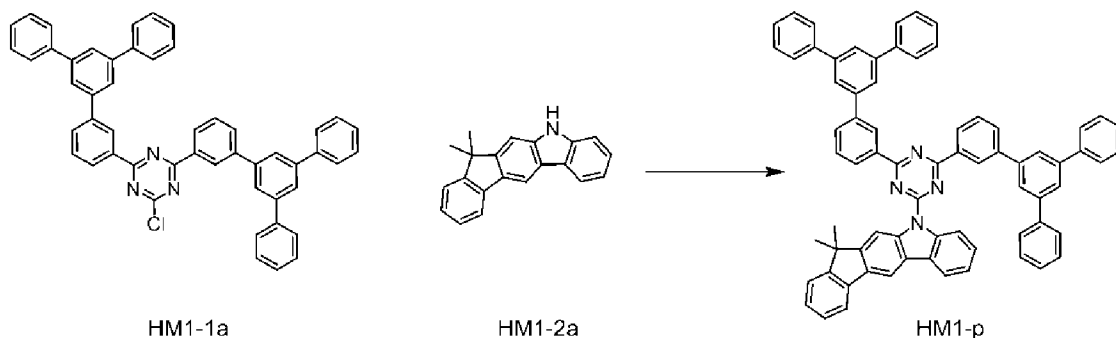
流速 : 1.0ml/分

サンプル注入量 : 8μl

[0388] <合成例4> 化合物HM1-pの合成

[0389]

[化96]



[0390] 反応容器内を窒素ガス雰囲気とした後、流動パラフィンに分散させた60質量%水素化ナトリウム(0.94g)、化合物HM1-2a(5.3g)及びN,N-ジメチルホルムアミド(53mL)を加えた。その後、そこへ、化合物HM1-1a(15g)及びN,N-ジメチルホルムアミド(187mL)を加え、室温で2時間攪拌した。得られた反応混合物へトルエン(107mL)及び水(107mL)を加えた後、水層を分離し、得られた有機層を水(214mL)で洗浄した。得られた洗浄液へ活性白土(11g)を加え、攪拌した後、セライト(1.0g)及びシリカゲル(11g)を敷いたろ過器でろ過し、得られたろ液を濃縮した。得られた残渣(17.2g)をトルエン(100mL)に溶解させた後、活性白土(11g)を加え、20~25℃で攪拌した後、セライト(1.0g)及びシリカゲル(11g)を敷いたろ過器でろ過し、得られたろ液を濃縮することで、粗生成物(16.9g)を得た。得られた粗生成物を、酢酸エチル(47mL)及びヘプタン(20mL)の混合溶媒を用いて、20~25℃で再結晶することで、固体として化合物HM1-bpを15.8g得た。得られた化合物HM1-bpを、ヘプタン(80mL)に加え、20~25℃で洗浄した後、乾燥することで、白色固体として化合物HM1-pを14.8g得た。

[0391] LC-MS (APCI, positive) : [M+H]⁺971

[0392] 化合物HM1-bpのHPLC面積百分率値は99.51%であった。化合物HM1-pのHPLC面積百分率値は99.51%であった。

[0393] 化合物HM1-bpに含まれる不純物としての塩素原子の量(C^H)は4.

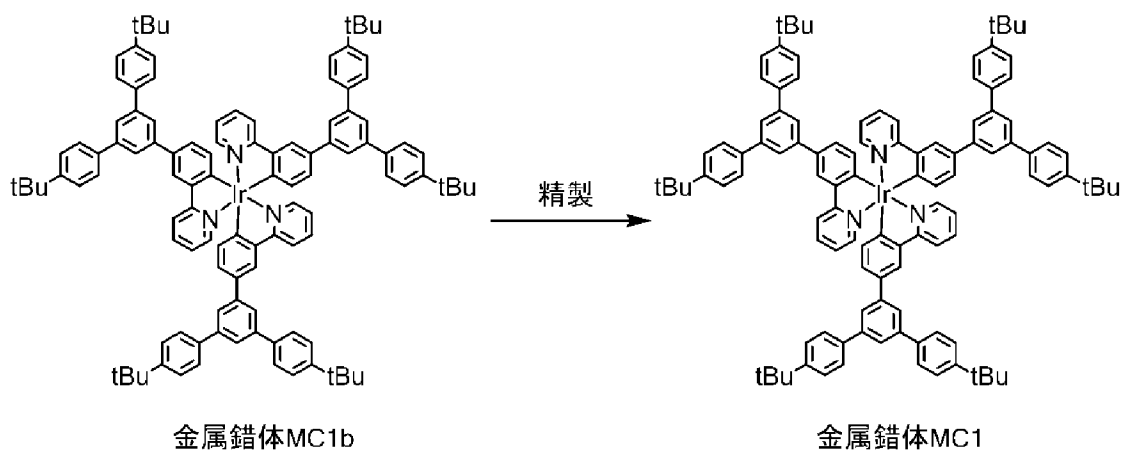
2質量ppmであった。化合物HM1-pに含まれる不純物としての塩素原子の量(C^H)は2.8質量ppmであった。

[0394] 化合物HM1-bp及び化合物HM1-pのHPLC分析は、下記の条件で行った。サンプルは、化合物HM1-bp及び化合物HM1-pの濃度が0.1質量%~0.2質量%になるようにテトラヒドロフランで希釈し、分析した。

装置 : LC-20A (島津製作所製)
 カラム : SUMIPAX ODS Z-CLUE (直径4.6×250mm、3μm、住化分析センター製)
 カラム温度 : 40℃
 検出器 : フォトダイオードアレイ検出器 (SPD-M20A、島津製作所製)
 検出波長 : 254nm
 移動相 : A液アセトニトリル、B液THF
 移動相条件 : B液0%-60分-B液20%-20分-B液100%
 流速 : 1.0ml/分
 サンプル注入量 : 8μl

[0395] <合成例5> 金属錯体MC1の合成

[0396] [化97]



[0397] 国際公開第2009/131255号に記載の方法に従って合成した金属錯体MC1bを、シリカゲルカラムクロマトグラフィー (トルエン及びヘプ

タンの混合溶媒)で精製した後、トルエン及びヘプタンの混合溶媒を用いて繰り返し再結晶することで精製した。得られた固体を60℃で減圧乾燥させることにより、金属錯体MC1を黄色固体として得た。

[0398] 金属錯体MC1に含まれる不純物としての塩素原子の量(C¹)は検出限界以下(0.01質量ppm以下)であった。

[0399] LC-MS (APCI, positive) : [M+H]⁺ 1677

[0400] 金属錯体MC1の発光スペクトルの最大ピーク波長は525nmであった。

[0401] <実施例D1> 発光素子D1の作製及び評価

[発光素子D1の作製]

(陽極及び正孔注入層の形成)

ガラス基板にスパッタ法により45nmの厚みでITO膜を付けることにより陽極を形成した。該陽極上に、正孔注入材料であるND-3202(日産化学工業製)をスピコート法により65nmの厚さで成膜した。大気雰囲気下、ホットプレート上で50℃、3分間加熱し、更に240℃、15分間加熱することにより正孔注入層を形成した。

[0402] (正孔輸送層の形成)

キシレンに高分子化合物HTL-1を0.7質量%の濃度で溶解させた。得られたキシレン溶液を用いて、正孔注入層の上にスピコート法により20nmの厚さで成膜し、窒素ガス雰囲気下、ホットプレート上で180℃、60分間加熱させることにより正孔輸送層を形成した。

[0403] (発光層の形成D1)

キシレンに、化合物HM1-p及び金属錯体MC1(化合物HM1-p/金属錯体MC1=50質量%/50質量%)を3.3質量%の濃度で溶解させた。得られたキシレン溶液を用いて、正孔輸送層の上にスピコート法により85nmの厚さで成膜し、窒素ガス雰囲気下、150℃、10分間加熱させることにより発光層を形成した。

なお、仕込みの量から求めた理論値では、C¹は0.01質量ppmであり

、 C^H は2.8質量ppmであり、 W^I は0.5であり、 W^H は0.5であり、 $C^I W^I + C^H W^H$ は1.405質量ppmである。

[0404] (陰極の形成)

発光層を形成した基板を蒸着機内において、 1.0×10^{-4} Pa以下にまで減圧した後、陰極として、発光層の上にフッ化ナトリウムを約4 nm、次いで、フッ化ナトリウム層の上にアルミニウムを約80 nm蒸着した。蒸着後、ガラス基板を用いて封止することにより、発光素子D1を作製した。

[0405] [評価]

発光素子D1に電圧を印加することによりEL発光が観測された。1000 cd/m²におけるCIE色度座標(x, y)は(0.34, 0.62)であった。1000 cd/m²におけるEQEは、9.20%であった。

初期輝度が1000 cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動させ、輝度が初期輝度の95%となるまでの時間(以下、「LT95」と言う。初期劣化の抑制を評価する指標となる。)を測定したところ、59時間であった。結果を表1に示す。

初期輝度が8000 cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動させ、輝度が初期輝度の80%となるまでの時間(以下、「LT80」と言う。)を測定したところ、8.9時間であった。輝度が初期輝度の50%となるまでの時間(以下、「LT50」と言う。)を測定したところ、85時間であった。結果を表1に示す。

[0406] <実施例D2> 発光素子D2の作製及び評価

[発光素子D2の作製]

実施例D1における(発光層の形成D1)を、下記(発光層の形成D2)に変更した以外は、実施例D1と同様にして、発光素子D2を作製した。

[0407] (発光層の形成D2)

キシレンに、化合物HM1-p、化合物HM1-c及び金属錯体MC1(化合物HM1-p/化合物HM1-c/金属錯体MC1=49.5質量%/0.5質量%/50質量%)を3.3質量%の濃度で溶解させた。得られた

キシレン溶液を用いて、正孔輸送層の上にスピコート法により85 nmの厚さで成膜し、窒素ガス雰囲気下、150℃、10分間加熱させることにより発光層を形成した。

なお、仕込みの量から求めた理論値では、C^Iは0.01質量ppmであり、C^Hは5.218質量ppmであり、W^Iは0.5であり、W^Hは0.5であり、C^IW^I+C^HW^Hは2.614質量ppmである。

[0408] [評価]

発光素子D2に電圧を印加することによりEL発光が観測された。1000 cd/m²におけるCIE色度座標(x, y)は(0.34, 0.62)であった。1000 cd/m²におけるEQEは、9.94%であった。

初期輝度が1000 cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動させ、LT95を測定したところ、56時間であった。結果を表1に示す。

初期輝度が8000 cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動させ、LT80を測定したところ、8.9時間であった。LT50を測定したところ、85時間であった。結果を表1に示す。

[0409] <実施例D3> 発光素子D3の作製及び評価

[発光素子D3の作製]

実施例D1における(発光層の形成D1)を、下記(発光層の形成D3)に変更した以外は、実施例D1と同様にして、発光素子D3を作製した。

[0410] (発光層の形成D3)

キシレンに、化合物HM1-p、化合物HM1-c及び金属錯体MC1(化合物HM1-p/化合物HM1-c/金属錯体MC1=47.5質量%/2.5質量%/50質量%)を3.3質量%の濃度で溶解させた。得られたキシレン溶液を用いて、正孔輸送層の上にスピコート法により85 nmの厚さで成膜し、窒素ガス雰囲気下、150℃、10分間加熱させることにより発光層を形成した。

なお、仕込みの量から求めた理論値では、C^Iは0.01質量ppmであり、C^Hは14.890質量ppmであり、W^Iは0.5であり、W^Hは0.5であ

り、 $C^I W^I + C^H W^H$ は7.450質量ppmである。

[0411] [評価]

発光素子D3に電圧を印加することによりEL発光が観測された。1000cd/m²におけるCIE色度座標(x, y)は(0.34, 0.62)であった。1000cd/m²におけるEQEは、9.86%であった。

初期輝度が1000cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動させ、LT95を測定したところ、52時間であった。結果を表1に示す。

初期輝度が8000cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動させ、LT80を測定したところ、10.4時間であった。LT50を測定したところ、100時間であった。結果を表1に示す。

[0412] <比較例CD1> 発光素子CD1の作製及び評価

[発光素子CD1の作製]

実施例D1における(発光層の形成D1)を、下記(発光層の形成CD1)に変更した以外は、実施例D1と同様にして、発光素子CD1を作製した。

[0413] (発光層の形成CD1)

キシレンに、化合物HM1-p、化合物HM1-c及び金属錯体MC1(化合物HM1-p/化合物HM1-c/金属錯体MC1=45質量%/5.0質量%/50質量%)を3.3質量%の濃度で溶解させた。得られたキシレン溶液を用いて、正孔輸送層の上にスピコート法により85nmの厚さで成膜し、窒素ガス雰囲気下、150℃、10分間加熱させることにより発光層を形成した。

なお、仕込みの量から求めた理論値では、 C^I は0.01質量ppmであり、 C^H は26.980質量ppmであり、 W^I は0.5であり、 W^H は0.5であり、 $C^I W^I + C^H W^H$ は13.495質量ppmである。

[0414] [評価]

発光素子CD1に電圧を印加することによりEL発光が観測された。1000cd/m²におけるCIE色度座標(x, y)は(0.34, 0.62)

であった。1000 cd/m²におけるEQEは、9.95%であった。

初期輝度が1000 cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動させ、LT95を測定したところ、40時間であった。結果を表1に示す。

初期輝度が8000 cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動させ、LT80を測定したところ、9.0時間であった。LT50を測定したところ、88時間であった。結果を表1に示す。

[0415] <比較例CD2> 発光素子CD2の作製及び評価

[発光素子CD2の作製]

実施例D1における（発光層の形成D1）を、下記（発光層の形成CD2）に変更した以外は、実施例D1と同様にして、発光素子CD2を作製した。

[0416] （発光層の形成CD2）

キシレンに、化合物HM1-p、化合物HM1-c及び金属錯体MC1（化合物HM1-p/化合物HM1-c/金属錯体MC1=40質量%/10質量%/50質量%）を3.3質量%の濃度で溶解させた。得られたキシレン溶液を用いて、正孔輸送層の上にスピコート法により85nmの厚さで成膜し、窒素ガス雰囲気下、150℃、10分間加熱させることにより発光層を形成した。

なお、仕込みの量から求めた理論値では、C^Iは0.01質量ppmであり、C^Hは51.160質量ppmであり、W^Iは0.5であり、W^Hは0.5であり、C^IW^I+C^HW^Hは25.585質量ppmである。

[0417] [評価]

発光素子CD2に電圧を印加することによりEL発光が観測された。1000 cd/m²におけるCIE色度座標（x, y）は（0.34, 0.62）であった。1000 cd/m²におけるEQEは、9.95%であった。

初期輝度が1000 cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動させ、LT95を測定したところ、24時間であった。結果を表1に示す。

初期輝度が8000 cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動

させ、LT80を測定したところ、7.6時間であった。LT50を測定したところ、8.4時間であった。結果を表1に示す。

[0418] <比較例CD3> 発光素子CD3の作製及び評価

[発光素子CD3の作製]

実施例D1における（発光層の形成D1）を、下記（発光層の形成CD3）に変更した以外は、実施例D1と同様にして、発光素子CD3を作製した。

[0419] （発光層の形成CD3）

キシレンに、化合物HM1-p、化合物HM1-c及び金属錯体MC1（化合物HM1-p/化合物HM1-c/金属錯体MC1=25質量%/25質量%/50質量%）を3.3質量%の濃度で溶解させた。得られたキシレン溶液を用いて、正孔輸送層の上にスピコート法により85nmの厚さで成膜し、窒素ガス雰囲気下、150℃、10分間加熱させることにより発光層を形成した。

なお、仕込みの量から求めた理論値では、C^Iは0.01質量ppmであり、C^Hは123.700質量ppmであり、W^Iは0.5であり、W^Hは0.5であり、C^IW^I+C^HW^Hは61.855質量ppmである。

[0420] [評価]

発光素子CD3に電圧を印加することによりEL発光が観測された。1000cd/m²におけるCIE色度座標(x, y)は(0.34, 0.62)であった。1000cd/m²におけるEQEは、9.35%であった。

初期輝度が1000cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動させ、LT95を測定したところ、1.3時間であった。結果を表1に示す。

初期輝度が8000cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動させ、LT80を測定したところ、5.4時間であった。LT50を測定したところ7.4時間であった。結果を表1に示す。

[0421] <比較例CD4> 発光素子CD4の作製及び評価

[発光素子CD4の作製]

実施例D1における（発光層の形成D1）を、下記（発光層の形成CD4）に変更した以外は、実施例D1と同様にして、発光素子CD4を作製した。

[0422] （発光層の形成CD4）

キシレンに、化合物HM1-c及び金属錯体MC1（化合物HM1-c／金属錯体MC1=50質量％／50質量％）を3.3質量％の濃度で溶解させた。得られたキシレン溶液を用いて、正孔輸送層の上にスピコート法により85nmの厚さで成膜し、窒素ガス雰囲気下、150℃、10分間加熱させることにより発光層を形成した。

なお、仕込みの量から求めた理論値では、C^Iは0.01質量ppmであり、C^Hは244.6質量ppmであり、W^Iは0.5であり、W^Hは0.5であり、C^IW^I+C^HW^Hは122.305質量ppmである。

[0423] [評価]

発光素子CD4に電圧を印加することによりEL発光が観測された。1000cd/m²におけるCIE色度座標（x，y）は（0.34，0.62）であった。1000cd/m²におけるEQEは、9.17%であった。

初期輝度が1000cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動させ、LT95を測定したところ、4.3時間であった。結果を表1に示す。

初期輝度が8000cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動させ、LT80を測定したところ、3.4時間であった。LT50を測定したところ、56時間であった。結果を表1に示す。

[0424] なお、表1中の相対値は、比較例CD4の値を1.0としたときの各実施例、各比較例の値を示す。

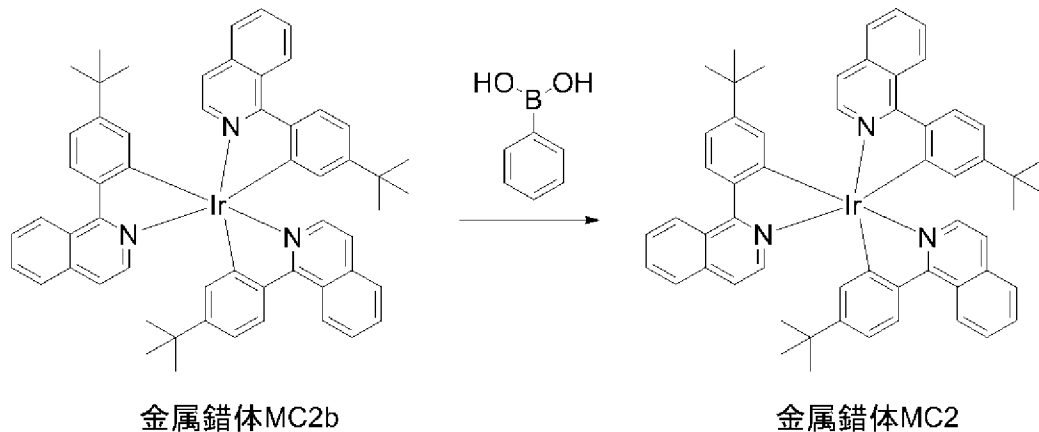
[0425]

[表1]

	発光層のCI値		LT95		LT80		LT50	
	C ^{ir} (ppm)	C ^{ir} W ¹ +C ^{ir} W ² (ppm)	時間	相対値	時間	相対値	時間	相対値
実施例D1	2.8	1.405	59	13.7	8.9	2.6	85	1.5
実施例D2	5.218	2.614	56	13.0	8.9	2.6	85	1.5
実施例D3	14.890	7.450	52	12.1	10.4	3.1	100	1.8
比較例CD1	26.980	13.495	40	9.3	9.0	2.6	88	1.6
比較例CD2	51.160	25.585	24	5.6	7.6	2.2	84	1.5
比較例CD3	123.700	61.855	13	3.0	5.4	1.6	74	1.3
比較例CD4	244.6	122.305	4.3	1.0	3.4	1.0	56	1.0

[0426] <合成例6> 金属錯体MC2の合成

[0427] [化98]



[0428] 遮光した反応容器内をアルゴンガス雰囲気とした後、国際公開第2002/44189号に記載の方法に従って合成した金属錯体MC2b (364 mg)、フェニルボロン酸 (140 mg)、[ジ-tert-ブチル(4-ジメチルアミノフェニル)ホスフィン]ジクロロパラジウム(II) (6.6 mg) 及びトルエン (11 mL) を加え、80℃に加熱した。その後、そこへ、40質量%テトラブチルアンモニウムヒドロキシド水溶液 (3.6 mL) を加えた後、80℃で8時間攪拌した。得られた反応液を室温まで冷却した後、水層を除去し有機層を得た。得られた有機層を、水 (30 mL) で2回洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた後、ろ過した。得られた残渣をトルエン (150 mL) で洗浄した後、得られたろ液を減圧濃縮することにより固体を得た。得られた固体をトルエン (200 mL) に溶解させ、セラ

イト（1.0g）及びシリカゲル（6.0g）を敷いたろ過器でろ過し、得られたろ液を濃縮した。得られた残渣（330mg）をトルエン及びアセトニトリルの混合溶媒を用いて再結晶した。得られた固体を50℃で減圧乾燥させることにより、金属錯体MC2（310mg）を赤色固体として得た。

[0429] LC-MS (APCI, positive) : [M+H]⁺ 974

[0430] 金属錯体MC2に含まれる不純物としての塩素原子の量 (C¹) は4質量ppmであった。

[0431] 金属錯体MC2の発光スペクトルの最大ピーク波長は617nmであった。

[0432] <実施例E1> 発光素子E1の作製及び評価

[発光素子E1の作製]

(陽極及び正孔注入層の形成)

ガラス基板にスパッタ法により45nmの厚みでITO膜を付けることにより陽極を形成した。該陽極上に、正孔注入材料であるND-3202（日産化学工業製）をスピコート法により65nmの厚さで成膜した。大気雰囲気下、ホットプレート上で50℃、3分間加熱し、更に240℃、15分間加熱することにより正孔注入層を形成した。

[0433] (正孔輸送層の形成)

キシレンに高分子化合物HTL-1を0.7質量%の濃度で溶解させた。得られたキシレン溶液を用いて、正孔注入層の上にスピコート法により20nmの厚さで成膜し、窒素ガス雰囲気下、ホットプレート上で180℃、60分間加熱させることにより正孔輸送層を形成した。

[0434] (発光層の形成E1)

キシレンに、化合物HM1-p及び金属錯体MC2（化合物HM1-p／金属錯体MC2 = 90質量%／10質量%）を3.3質量%の濃度で溶解させた。得られたキシレン溶液を用いて、正孔輸送層の上にスピコート法により85nmの厚さで成膜し、窒素ガス雰囲気下、150℃、10分間加熱させることにより発光層を形成した。

なお、仕込みの量から求めた理論値では、 C^I は4質量ppmであり、 C^H は2.8質量ppmであり、 W^I は0.1であり、 W^H は0.9であり、 $C^I W^I + C^H W^H$ は2.92質量ppmである。

[0435] (陰極の形成)

発光層を形成した基板を蒸着機内において、 1.0×10^{-4} Pa以下にまで減圧した後、陰極として、発光層の上にフッ化ナトリウムを約4nm、次いで、フッ化ナトリウム層の上にアルミニウムを約80nm蒸着した。蒸着後、ガラス基板を用いて封止することにより、発光素子E1を作製した。

[0436] [評価]

発光素子E1に電圧を印加することによりEL発光が観測された。1000cd/m²におけるCIE色度座標(x, y)は(0.63, 0.36)であった。

初期輝度が100cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動させ、LT95を測定したところ、24.7時間であった。結果を表2に示す。

初期輝度が1000cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動させ、LT80を測定したところ、6.1時間であった。LT50を測定したところ、45.4時間であった。結果を表2に示す。

[0437] <実施例E2> 発光素子E2の作製及び評価

[発光素子E2の作製]

実施例E1における(発光層の形成E1)を、下記(発光層の形成E2)に変更した以外は、実施例E1と同様にして、発光素子E2を作製した。

[0438] (発光層の形成E2)

キシレンに、化合物HM1-p、化合物HM1-c及び金属錯体MC2(化合物HM1-p/化合物HM1-c/金属錯体MC2=89.1質量%/0.9質量%/10質量%)を3.3質量%の濃度で溶解させた。得られたキシレン溶液を用いて、正孔輸送層の上にスピンコート法により85nmの厚さで成膜し、窒素ガス雰囲気下、150℃、10分間加熱させることによ

り発光層を形成した。

なお、仕込みの量から求めた理論値では、 C^I は4質量ppmであり、 C^H は5.218質量ppmであり、 W^I は0.1であり、 W^H は0.9であり、 $C^I W^I + C^H W^H$ は5.096質量ppmである。

[0439] [評価]

発光素子E2に電圧を印加することによりEL発光が観測された。1000cd/m²におけるCIE色度座標(x, y)は(0.62, 0.37)であった。

初期輝度が1000cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動させ、LT95を測定したところ、24.3時間であった。結果を表2に示す。

初期輝度が10000cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動させ、LT80を測定したところ、5.8時間であった。LT50を測定したところ、47.6時間であった。結果を表2に示す。

[0440] <比較例CE1> 発光素子CE1の作製及び評価

[発光素子CE1の作製]

実施例E1における(発光層の形成E1)を、下記(発光層の形成CE1)に変更した以外は、実施例E1と同様にして、発光素子CE1を作製した。

[0441] (発光層の形成CE1)

キシレンに、化合物HM1-p、化合物HM1-c及び金属錯体MC2(化合物HM1-p/化合物HM1-c/金属錯体MC2=85.5質量%/4.5質量%/10質量%)を3.3質量%の濃度で溶解させた。得られたキシレン溶液を用いて、正孔輸送層の上にスピコート法により85nmの厚さで成膜し、窒素ガス雰囲気下、150℃、10分間加熱させることにより発光層を形成した。

なお、仕込みの量から求めた理論値では、 C^I は4質量ppmであり、 C^H は14.890質量ppmであり、 W^I は0.1であり、 W^H は0.9であり、 C^I

$W^I + C^H W^H$ は13.801質量ppmである。

[0442] [評価]

発光素子CE1に電圧を印加することによりEL発光が観測された。1000cd/m²におけるCIE色度座標(x, y)は(0.63, 0.36)であった。

初期輝度が1000cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動させ、LT95を測定したところ、20.3時間であった。結果を表2に示す。

初期輝度が10000cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動させ、LT80を測定したところ、5.9時間であった。LT50を測定したところ、47.2時間であった。結果を表2に示す。

[0443] <比較例CE2> 発光素子CE2の作製及び評価

[発光素子CE2の作製]

実施例E1における(発光層の形成E1)を、下記(発光層の形成CE2)に変更した以外は、実施例E1と同様にして、発光素子CE2を作製した。

[0444] (発光層の形成CE2)

キシレンに、化合物HM1-p、化合物HM1-c及び金属錯体MC2(化合物HM1-p/化合物HM1-c/金属錯体MC2=81質量%/9.0質量%/10質量%)を3.3質量%の濃度で溶解させた。得られたキシレン溶液を用いて、正孔輸送層の上にスピコート法により85nmの厚さで成膜し、窒素ガス雰囲気下、150℃、10分間加熱させることにより発光層を形成した。

なお、仕込みの量から求めた理論値では、C^Iは4質量ppmであり、C^Hは26.980質量ppmであり、W^Iは0.1であり、W^Hは0.9であり、C^IW^I+C^HW^Hは24.682質量ppmである。

[0445] [評価]

発光素子CE2に電圧を印加することによりEL発光が観測された。10

00 cd/m²におけるCIE色度座標(x, y)は(0.63, 0.36)であった。

初期輝度が100 cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動させ、LT95を測定したところ、15.6時間であった。結果を表2に示す。

初期輝度が1000 cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動させ、LT80を測定したところ、6.1時間であった。LT50を測定したところ、47.7時間であった。結果を表2に示す。

[0446] <比較例CE3> 発光素子CE3の作製及び評価

[発光素子CE3の作製]

実施例E1における(発光層の形成E1)を、下記(発光層の形成CE3)に変更した以外は、実施例E1と同様にして、発光素子CE3を作製した。

[0447] (発光層の形成CE3)

キシレンに、化合物HM1-p、化合物HM1-c及び金属錯体MC2(化合物HM1-p/化合物HM1-c/金属錯体MC2=72質量%/18質量%/10質量%)を3.3質量%の濃度で溶解させた。得られたキシレン溶液を用いて、正孔輸送層の上にスピコート法により85nmの厚さで成膜し、窒素ガス雰囲気下、150℃、10分間加熱させることにより発光層を形成した。

なお、仕込みの量から求めた理論値では、C^Iは4質量ppmであり、C^Hは51.160質量ppmであり、W^Iは0.1であり、W^Hは0.9であり、C^IW^I+C^HW^Hは46.444質量ppmである。

[0448] [評価]

発光素子CE3に電圧を印加することによりEL発光が観測された。1000 cd/m²におけるCIE色度座標(x, y)は(0.63, 0.36)であった。

初期輝度が100 cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動さ

せ、LT95を測定したところ、9.5時間であった。結果を表2に示す。

初期輝度が1000 cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動させ、LT80を測定したところ、5.4時間であった。LT50を測定したところ、44.2時間であった。結果を表2に示す。

[0449] <比較例CE4> 発光素子CE4の作製及び評価

[発光素子CE4の作製]

実施例E1における(発光層の形成E1)を、下記(発光層の形成CE4)に変更した以外は、実施例E1と同様にして、発光素子CE4を作製した。

[0450] (発光層の形成CE4)

キシレンに、化合物HM1-p、化合物HM1-c及び金属錯体MC2(化合物HM1-p/化合物HM1-c/金属錯体MC2=45質量%/45質量%/10質量%)を3.3質量%の濃度で溶解させた。得られたキシレン溶液を用いて、正孔輸送層の上にスピコート法により85nmの厚さで成膜し、窒素ガス雰囲気下、150℃、10分間加熱させることにより発光層を形成した。

なお、仕込みの量から求めた理論値では、C^Iは4質量ppmであり、C^Hは123.700質量ppmであり、W^Iは0.1であり、W^Hは0.9であり、C^IW^I+C^HW^Hは111.730質量ppmである。

[0451] [評価]

発光素子CE4に電圧を印加することによりEL発光が観測された。1000 cd/m²におけるCIE色度座標(x, y)は(0.63, 0.36)であった。

初期輝度が100 cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動させ、LT95を測定したところ、5.3時間であった。結果を表2に示す。

初期輝度が1000 cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動させ、LT80を測定したところ、4.4時間であった。LT50を測定したところ、37.7時間であった。結果を表2に示す。

[0452] <比較例CE5> 発光素子CE5の作製及び評価

[発光素子CE5の作製]

実施例E1における（発光層の形成E1）を、下記（発光層の形成CE5）に変更した以外は、実施例E1と同様にして、発光素子CE5を作製した。

[0453] （発光層の形成CE5）

キシレンに、化合物HM1-c及び金属錯体MC2（化合物HM1-c／金属錯体MC1=90質量％／10質量％）を3.3質量％の濃度で溶解させた。得られたキシレン溶液を用いて、正孔輸送層の上にスピコート法により85nmの厚さで成膜し、窒素ガス雰囲気下、150℃、10分間加熱させることにより発光層を形成した。

なお、仕込みの量から求めた理論値では、C^Iは4質量ppmであり、C^Hは244.6質量ppmであり、W^Iは0.1であり、W^Hは0.9であり、C^IW^I+C^HW^Hは220.540質量ppmである。

[0454] [評価]

発光素子CE5に電圧を印加することによりEL発光が観測された。1000cd/m²におけるCIE色度座標（x，y）は（0.63，0.36）であった。

初期輝度が1000cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動させ、LT95を測定したところ、2.8時間であった。結果を表2に示す。

初期輝度が1000cd/m²となるように電流値を設定後、定電流で駆動させ、LT80を測定したところ、3.8時間であった。LT50を測定したところ、34.4時間であった。結果を表2に示す。

[0455] なお、表2中の相対値は、比較例CE5の値を1.0としたときの各実施例、各比較例の値を示す。また、図1には、実施例D1～D3、E1～E2及び比較例CD1～CD4、CE1～CE5におけるLT95と不純物としての塩素原子の量との関係を表すグラフを示す。図1において、実施例D1のLT95の値を1としたときの実施例D1～D3及び比較例CD1～CD

4の相対値、及び、実施例E1のLT95の値を1としたときの実施例E1～E2及び比較例CE1～CE5の相対値を縦軸に示した。

[0456] [表2]

	発光層のCl値		LT95		LT80		LT50	
	C ^{II} (ppm)	C ^I W ^I C ^{II} W ^{II} (ppm)	時間	相対値	時間	相対値	時間	相対値
実施例E1	2.8	2.920	24.7	8.8	6.1	1.6	45.4	1.3
実施例E2	5.218	5.096	24.3	8.7	5.8	1.5	47.6	1.4
比較例CE1	14.890	13.801	20.3	7.3	5.9	1.6	47.2	1.4
比較例CE2	26.980	24.682	15.6	5.6	6.1	1.6	47.7	1.4
比較例CE3	51.160	46.444	9.5	3.4	5.4	1.4	44.2	1.3
比較例CE4	123.700	111.730	5.3	1.9	4.4	1.2	37.7	1.1
比較例CE5	244.6	220.540	2.8	1.0	3.8	1.0	34.4	1.0

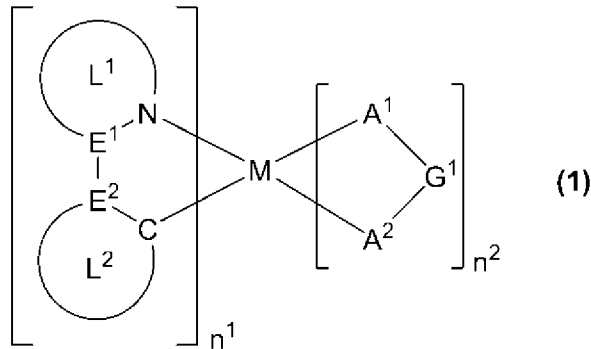
産業上の利用可能性

[0457] 本実施形態の組成物は、初期劣化が十分に抑制された発光素子の製造に有用である。また、本実施形態の発光素子は、初期劣化が十分に抑制された発光素子である。

請求の範囲

[請求項1] 式(1)で表される金属錯体と式(H)で表される化合物とが配合された組成物であって、前記組成物中に不純物として含まれる塩素原子の量が、前記組成物中に含まれる固形分全量に対して、12質量ppm以下である、組成物。

[化1]



[式中、

Mは、ルテニウム原子、ロジウム原子、パラジウム原子、イリジウム原子又は白金原子を表す。

n^1 は1以上の整数を表し、 n^2 は0以上の整数を表し、 $n^1 + n^2$ は2又は3である。Mがルテニウム原子、ロジウム原子又はイリジウム原子の場合、 $n^1 + n^2$ は3であり、Mがパラジウム原子又は白金原子の場合、 $n^1 + n^2$ は2である。

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

環 L^1 は、芳香族複素環を表し、この環は置換基を有していてもよい。該置換基が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよく、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。環 L^1 が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。

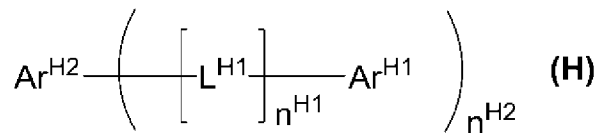
環 L^2 は、芳香族炭化水素環又は芳香族複素環を表し、これらの環

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

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

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

[化2]



[式中、

n^{H1} は、0以上5以下の整数を表す。 n^{H1} が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。

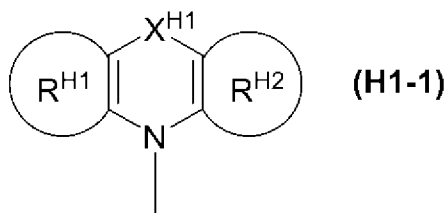
n^{H2} は、1以上10以下の整数を表す。

Ar^{H1} は、式(H1-1)で表される基を表す。 Ar^{H1} が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。

L^{H1} は、アルキレン基、シクロアルキレン基、アリーレン基、2価の複素環基、 $-NR^{H1}-$ で表される基、酸素原子又は硫黄原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。 R^{H1} は、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基又は1価の複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。 L^{H1} が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよい。

A r^{H2}は、芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。]

[化3]



[式中、

環 R^{H1}及び環 R^{H2}は、それぞれ独立に、単環若しくは縮環の芳香族炭化水素環又は単環若しくは縮環の芳香族複素環を表し、これらの環は置換基を有していてもよい。該置換基が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよく、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。

但し、環 R^{H1}及び環 R^{H2}のうちの少なくとも一つは、縮環の芳香族炭化水素環又は縮環の芳香族複素環であり、これらの環は置換基を有していてもよい。該置換基が複数存在する場合、それらは同一でも異なってもよく、互いに結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。

X^{H1}は、単結合、酸素原子、硫黄原子、 $-N(R^{XH1})-$ で表される基、又は、 $-C(R^{XH1'})_2-$ で表される基を表す。R^{XH1}及びR^{XH1'}は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はフッ素原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。複数存在するR^{XH1'}は、同一でも異なってもよく、互いに結合して、それぞれが結合する炭素原子と共に環を形成していてもよい。

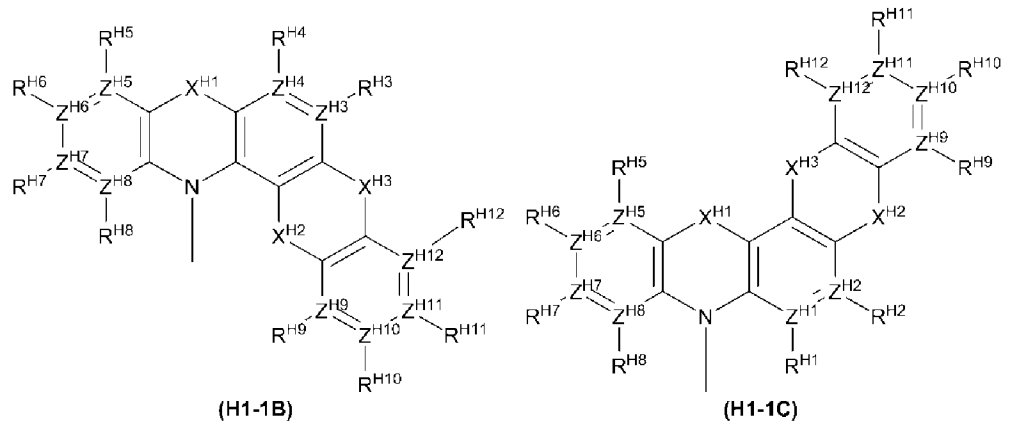
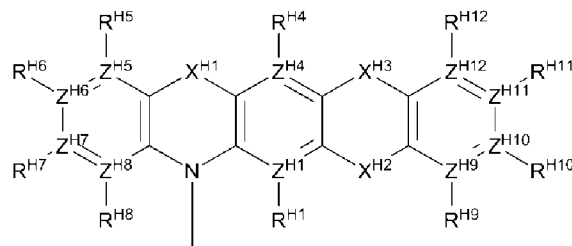
R^{XH1}と環 R^{H1}が有していてもよい置換基、R^{XH1}と環 R^{H2}が有していてもよい置換基、R^{XH1'}と環 R^{H1}が有していてもよい置換基、及び、R^{XH1'}

と環R^{H2}が有していてもよい置換基は、それぞれ結合して、それぞれが結合する原子と共に環を形成していてもよい。]

[請求項2] 前記組成物中に含まれる前記式(H)で表される化合物の純度(当該純度は、液体クロマトグラフィーの面積百分率値から算出される純度である)が99.0%以上である、請求項1に記載の組成物。

[請求項3] 前記式(H1-1)で表される基が、式(H1-1A)、式(H1-1B)又は式(H1-1C)で表される基である、請求項1又は2に記載の組成物。

[化4]



[式中、

X^{H1}は、前記と同じ意味を表す。

X^{H2}及びX^{H3}は、それぞれ独立に、単結合、酸素原子、硫黄原子、
-N(R^{XH2})-で表される基、又は、-C(R^{XH2'})₂-で表される基を表す。
R^{XH2}及びR^{XH2'}は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はフッ素原子を表

し、これらの基は置換基を有していてもよい。複数存在する $R^{XH2'}$ は、同一でも異なってもよく、互いに結合して、それぞれが結合する炭素原子と共に環を形成していてもよい。

Z^{H1} 、 Z^{H2} 、 Z^{H3} 、 Z^{H4} 、 Z^{H5} 、 Z^{H6} 、 Z^{H7} 、 Z^{H8} 、 Z^{H9} 、 Z^{H10} 、 Z^{H11} 及び Z^{H12} は、それぞれ独立に、炭素原子又は窒素原子を表す。

R^{H1} 、 R^{H2} 、 R^{H3} 、 R^{H4} 、 R^{H5} 、 R^{H6} 、 R^{H7} 、 R^{H8} 、 R^{H9} 、 R^{H10} 、 R^{H11} 及び R^{H12} は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はフッ素原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。

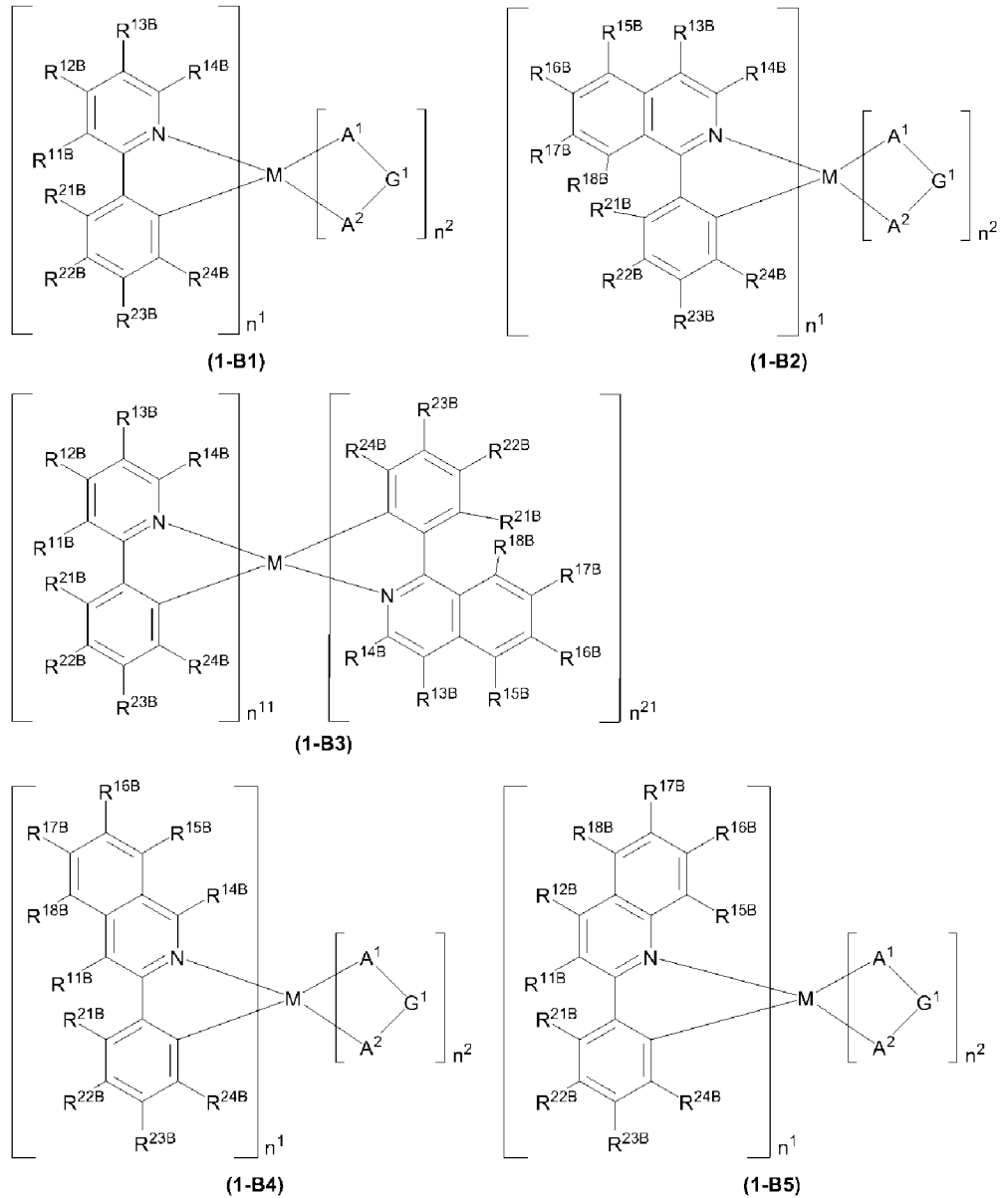
Z^{H1} が窒素原子の場合、 R^{H1} は存在しない。 Z^{H2} が窒素原子の場合、 R^{H2} は存在しない。 Z^{H3} が窒素原子の場合、 R^{H3} は存在しない。 Z^{H4} が窒素原子の場合、 R^{H4} は存在しない。 Z^{H5} が窒素原子の場合、 R^{H5} は存在しない。 Z^{H6} が窒素原子の場合、 R^{H6} は存在しない。 Z^{H7} が窒素原子の場合、 R^{H7} は存在しない。 Z^{H8} が窒素原子の場合、 R^{H8} は存在しない。 Z^{H9} が窒素原子の場合、 R^{H9} は存在しない。 Z^{H10} が窒素原子の場合、 R^{H10} は存在しない。 Z^{H11} が窒素原子の場合、 R^{H11} は存在しない。 Z^{H12} が窒素原子の場合、 R^{H12} は存在しない。

R^{H1} と R^{H2} 、 R^{H3} と R^{H4} 、 R^{H5} と R^{H6} 、 R^{H6} と R^{H7} 、 R^{H7} と R^{H8} 、 R^{H9} と R^{H10} 、 R^{H10} と R^{H11} 、及び、 R^{H11} と R^{H12} は、それぞれ結合して、それぞれが結合する炭素原子とともに環を形成していてもよい。]

[請求項4]

前記式(1)で表される金属錯体が、式(1-B1)、式(1-B2)、式(1-B3)、式(1-B4)又は式(1-B5)で表される金属錯体である、請求項1~3のいずれか一項に記載の組成物。

[化5]



[式中、

M、n¹、n²、A¹-G¹-A²は、前記と同じ意味を表す。

R^{11B}、R^{12B}、R^{13B}、R^{14B}、R^{21B}、R^{22B}、R^{23B}及びR^{24B}は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はフッ素原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。R^{11B}、R^{12B}、R^{13B}、R^{14B}、R^{21B}、R^{22B}、R^{23B}及びR^{24B}が複数存在する場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。R

R^{11B} と R^{12B} 、 R^{12B} と R^{13B} 、 R^{13B} と R^{14B} 、 R^{11B} と R^{21B} 、 R^{21B} と R^{22B} 、 R^{22B} と R^{23B} 、及び、 R^{23B} と R^{24B} は、それぞれ結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。

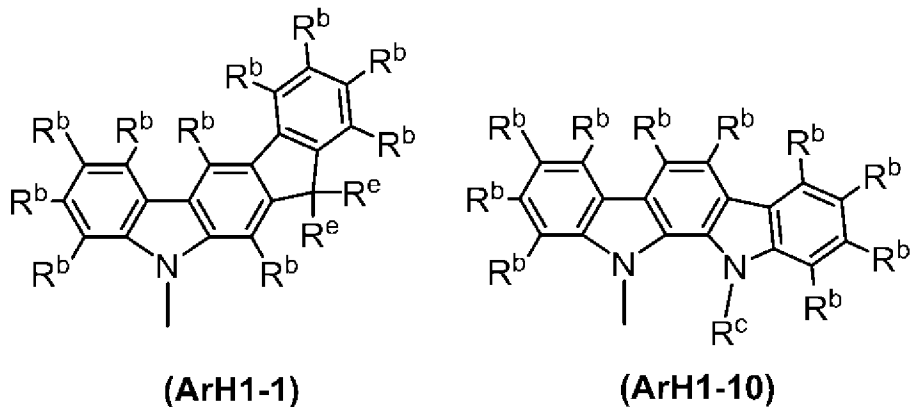
n^{11} 及び n^{12} は、それぞれ独立に、1以上の整数を表し、 $n^{11} + n^{12}$ は2又は3である。Mがルテニウム原子、ロジウム原子又はイリジウム原子の場合、 $n^{11} + n^{12}$ は3であり、Mがパラジウム原子又は白金原子の場合、 $n^{11} + n^{12}$ は2である。

R^{15B} 、 R^{16B} 、 R^{17B} 及び R^{18B} は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリーール基、アリーールオキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はフッ素原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。 R^{15B} 、 R^{16B} 、 R^{17B} 及び R^{18B} が複数存在する場合、それらはそれぞれ同一でも異なってもよい。 R^{13B} と R^{15B} 、 R^{15B} と R^{16B} 、 R^{16B} と R^{17B} 、 R^{17B} と R^{18B} 、及び、 R^{18B} と R^{21B} は、それぞれ結合して、それぞれが結合する原子とともに環を形成していてもよい。]

[請求項5] 前記式(1)で表される金属錯体が、前記式(1-B1)、前記式(1-B2)、前記式(1-B3)又は前記式(1-B5)で表される金属錯体である、請求項4に記載の組成物。

[請求項6] 前記式(H1-1)で表される基が、式(ArH1-1)又は式(ArH1-10)で表される基である、請求項1~5のいずれか一項に記載の組成物。

[化6]

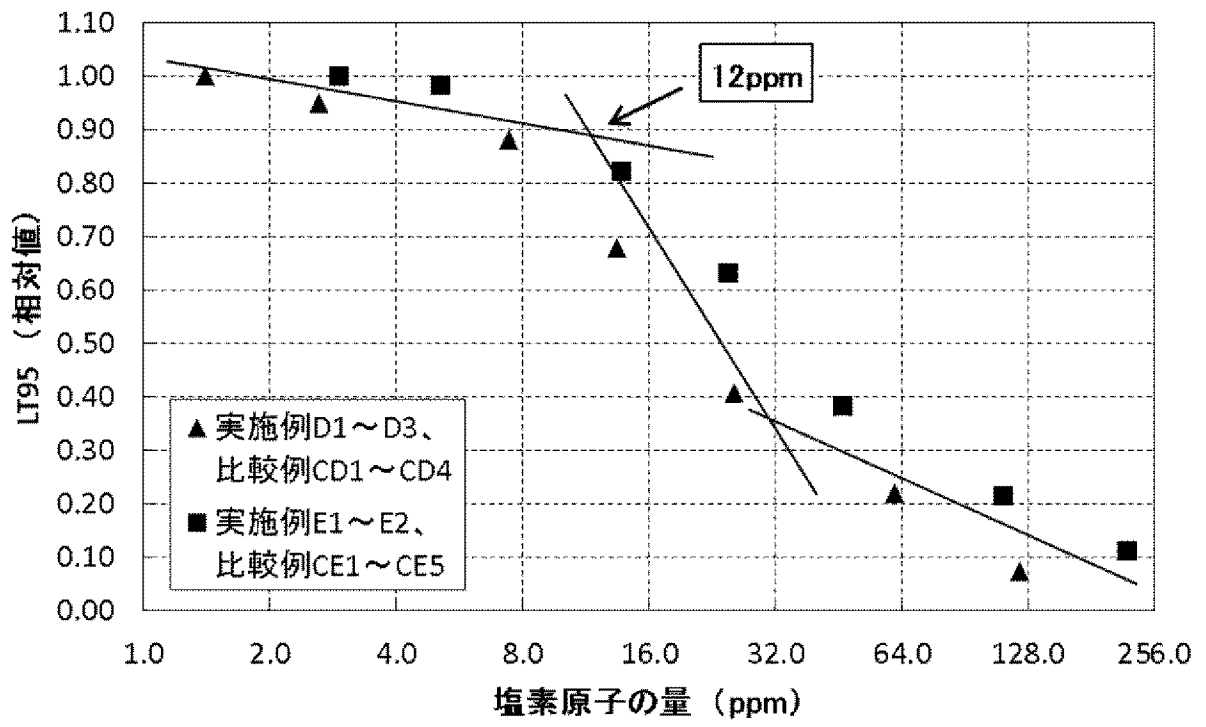


[式中、 R^b 、 R^c 及び R^d は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、1価の複素環基、置換アミノ基又はフッ素原子を表し、これらの基は置換基を有していてもよい。複数存在する R^b 及び R^c は、各々、同一でも異なってもよく、互いに結合して、それぞれが結合する炭素原子と共に環を形成していてもよい。]

[請求項7] 正孔輸送材料、正孔注入材料、電子輸送材料、電子注入材料、発光材料、酸化防止剤及び溶媒からなる群より選ばれる少なくとも1種を更に含有する請求項1～6のいずれか一項に記載の組成物。

[請求項8] 請求項1～7のいずれか一項に記載の組成物を含む発光素子。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2017/026225

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
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)
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	1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2017	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2017

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2015-106661 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 08 June 2015 (08.06.2015), claims 1 to 22; paragraph [0187] (Family: none)	1-8
Y	JP 2016-524333 A (Universal Display Corp.), 12 August 2016 (12.08.2016), claims 1 to 32; paragraph [0099] & WO 2014/204464 A1 claims 1 to 32; table 3 & TW 201500518 A	1-8

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search 08 September 2017 (08.09.17)	Date of mailing of the international search report 19 September 2017 (19.09.17)
---	--

Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Authorized officer Telephone No.
--	---

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/026225

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2015/117718 A1 (Merck Patent GmbH), 13 August 2015 (13.08.2015), claims 1 to 16; table 1 & US 2017/0170413 A1 & EP 3102650 A1 & CN 105980519 A & KR 10-2016-0119155 A & TW 201546080 A & JP 2017-507129 A	1-8
Y	WO 2015/165563 A1 (Merck Patent GmbH), 05 November 2015 (05.11.2015), claims 1 to 16; table 1 & US 2017/0062736 A1 & EP 3137458 A1 & CN 106255687 A & KR 10-2016-0149267 A & TW 201605843 A & JP 2017-518277 A	1-8
Y	WO 2015/192939 A1 (Merck Patent GmbH), 23 December 2015 (23.12.2015), claims 1 to 19: table 1 & EP 3158597 A1 & KR 10-2017-0015518 A & CN 106488917 A & TW 201609703 A & JP 2017-521397 A	1-8
Y	WO 2005/084083 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 09 September 2005 (09.09.2005), claims 1 to 24; examples & US 2007/0172698 A1 claims 1 to 24; examples & EP 1722603 A1 & CN 1926925 A & KR 10-2007-0004678 A & KR 10-1120393 B1 & TW 200534745 A & JP 2011-216903 A	1-8
Y	JP 2012-216783 A (Fujifilm Corp.), 08 November 2012 (08.11.2012), claims 1 to 14; paragraph [0005]; examples & WO 2012/133043 A1 & JP 2016-36055 A	1-8
Y	JP 2008-516421 A (Merck Patent GmbH), 15 May 2008 (15.05.2008), claims 1 to 24; examples & US 2008/0113468 A1 claims 25 to 50; examples & WO 2006/037458 A1 & EP 1794218 A1 & TW 200633280 A & JP 2015-92571 A & JP 2016-192555 A	1-8
Y	JP 2016-121125 A (Semiconductor Energy Laboratory Co., Ltd.), 07 July 2016 (07.07.2016), claims 1 to 9; paragraphs [0040], [0041], [0049]; examples & US 2016/0118606 A1 claims 1 to 14; paragraphs [0054], [0055], [0061]; examples	1-8

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. C09K11/06(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i											
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. C09K11/06, H01L51/50											
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの <table style="width:100%; border-collapse: collapse;"> <tr> <td style="width:30%;">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>1971-2017年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2017年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2017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	1971-2017年	日本国実用新案登録公報	1996-2017年	日本国登録実用新案公報	1994-2017年
日本国実用新案公報	1922-1996年										
日本国公開実用新案公報	1971-2017年										
日本国実用新案登録公報	1996-2017年										
日本国登録実用新案公報	1994-2017年										
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語) CAplus/REGISTRY (STN)											
C. 関連すると認められる文献											
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号									
Y	JP 2015-106661 A (出光興産株式会社) 2015.06.08, 請求項1-22、【0187】 (ファミリーなし)	1-8									
Y	JP 2016-524333 A (ユニバーサル ディスプレイ コーポレイション) 2016.08.12, 請求項1-32、【0099】 & WO 2014/204464 A1 Claims 1-32, Table 3 & TW 201500518 A	1-8									
☑ C欄の続きにも文献が列挙されている。		☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。									
* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願		の日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」同一パテントファミリー文献									
国際調査を完了した日 08.09.2017		国際調査報告の発送日 19.09.2017									
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官 (権限のある職員) 小川 由美	4Z 3444								
		電話番号 03-3581-1101 内線	3480								

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	WO 2015/117718 A1 (MERCK PATENT GMBH) 2015. 08. 13, Claims 1-16, Table 1 & US 2017/0170413 A1 & EP 3102650 A1 & CN 105980519 A & KR 10-2016-0119155 A & TW 201546080 A & JP 2017-507129 A	1-8
Y	WO 2015/165563 A1 (MERCK PATENT GMBH) 2015. 11. 05, Claims 1-16, Table 1 & US 2017/0062736 A1 & EP 3137458 A1 & CN 106255687 A & KR 10-2016-0149267 A & TW 201605843 A & JP 2017-518277 A	1-8
Y	WO 2015/192939 A1 (MERCK PATENT GMBH) 2015. 12. 23, Claims 1-19, Table 1 & EP 3158597 A1 & KR 10-2017-0015518 A & CN 106488917 A & TW 201609703 A & JP 2017-521397 A	1-8
Y	WO 2005/084083 A1 (出光興産株式会社) 2005. 09. 09, 請求項 1 - 24、実施例 & US 2007/0172698 A1 Claims 1-24, Examples & EP 1722603 A1 & CN 1926925 A & KR 10-2007-0004678 A & KR 10-1120393 B1 & TW 200534745 A & JP 2011-216903 A	1-8
Y	JP 2012-216783 A (富士フイルム株式会社) 2012. 11. 08, 請求項 1 - 14、【0005】、実施例 & WO 2012/133043 A1 & JP 2016-36055 A	1-8
Y	JP 2008-516421 A (メルク パテント ゲーエムベーハー) 2008. 05. 15, 請求項 1 - 24、実施例 & US 2008/0113468 A1 Claims 25-50, Examples & WO 2006/037458 A1 & EP 1794218 A1 & TW 200633280 A & JP 2015-92571 A & JP 2016-192555 A	1-8
Y	JP 2016-121125 A (株式会社半導体エネルギー研究所) 2016. 07. 07, 請求項 1 - 9、【0040】【0041】【0049】、実施例 & US 2016/0118606 A1 Claims 1-14, [0054][0055][0061], Examples	1-8