

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2004-131464
(P2004-131464A)

(43) 公開日 平成16年4月30日(2004.4.30)

(51) Int. Cl. ⁷	F I	テーマコード (参考)
C07F 15/00	C07F 15/00 E	3K007
C07D 213/06	C07D 213/06	4C055
C07D 213/79	C07D 213/79	4C065
C07D 471/04	C07D 471/04 105E	4H050
C09K 11/06	C07D 471/04 112Z	

審査請求 未請求 請求項の数 9 O L (全 75 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2003-61247 (P2003-61247)	(71) 出願人 000005968 三菱化学株式会社 東京都港区芝五丁目3番8号
(22) 出願日 平成15年3月7日(2003.3.7)	(74) 代理人 100103997 弁理士 長谷川 暁司
(31) 優先権主張番号 特願2002-236542 (P2002-236542)	(72) 発明者 矢部 昌義 神奈川県横浜市青葉区鴨志田町1000番 地 三菱化学 株式会社内
(32) 優先日 平成14年8月14日(2002.8.14)	(72) 発明者 秋山 誠治 神奈川県横浜市青葉区鴨志田町1000番 地 三菱化学 株式会社内
(33) 優先権主張国 日本国(JP)	

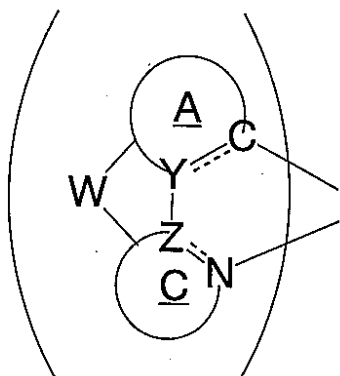
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機金属錯体、発光色素、有機電界発光素子材料、および有機電界発光素子

(57) 【要約】

【課題】色純度の向上、発光の高効率化、化合物自体の耐久性の向上を同時に実現しうる、有機電界発光素子に有効な新規有機金属錯体を提供する。

【解決手段】下記一般式(I)で表される有機金属錯体、およびこれを用いた有機電界発光素子。



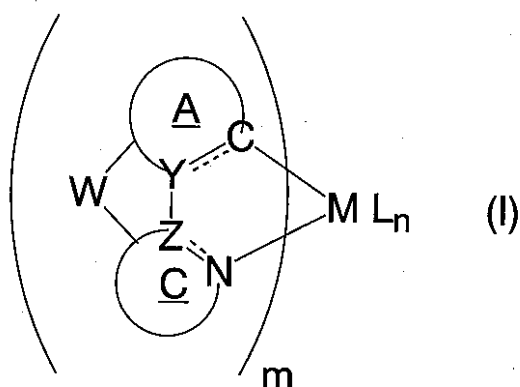
(式中、mは配位子の数を表し、1、2または3である。Lは任意の2座配位子を表し、

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

下記一般式 (I) で表わされる有機金属錯体。

【化 1】



10

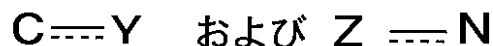
(式中、 m は配位子の数を表し、1、2または3である。Lは任意の2座配位子を表し、その数を表す n は、0、1または2である。但し、 $m + n = (\text{Mの価数})$ である。MはIr、Pt、AuまたはPdを表す。YおよびZは、各々独立に炭素原子または窒素原子を示す。

20

Wは-CO-部分構造を含む連結基を表し、該部分構造は一方または両方でN原子と直接単結合している。環Aは置換基を有していてもよい員数5または6の芳香族環を示し、環Cは置換基を有していてもよい員数5~8の複素環を示す。

なお、上記式中の

【化 2】



は、各々独立に単結合または二重結合を表す。))

30

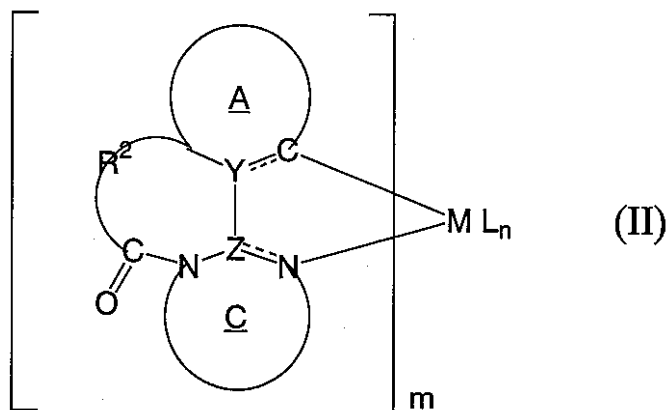
【請求項 2】

前記一般式 (I) で表わされる有機金属錯体において、Wが-CONR-基(但し、Rは水素原子または任意の置換基を表す)である、請求項1記載の有機金属錯体。

【請求項 3】

下記一般式 (II) で表わされる、請求項1記載の有機金属錯体。

【化 3】



40

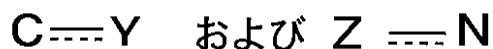
(式中、 m 、 n 、L、M、Y、Z、環Aおよび環Cは、いずれも前記一般式 (I) におけ

50

ると同義である。R² は直接結合であるか、または - (C H)_a - (但し、a は 1 ~ 3 の整数であり、水素原子は任意の基で置換されていてもよい) を表す。

なお、上記式中の

【化 4】



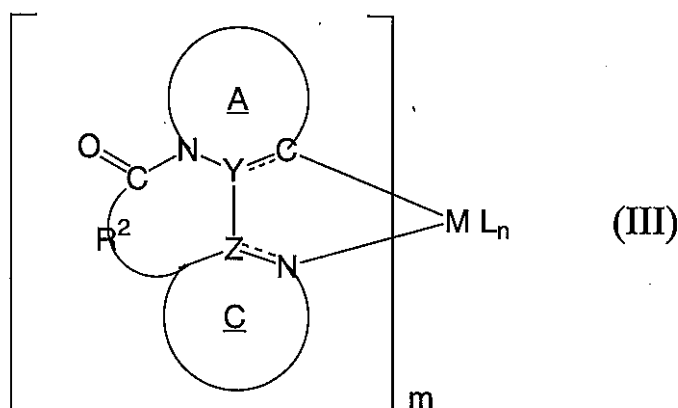
は、各々独立に単結合または二重結合を表す。)

【請求項 4】

10

下記一般式 (III) で表わされる、請求項 1 記載の有機金属錯体。

【化 5】



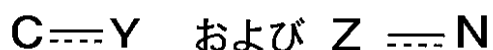
20

(式中、m、n、L、M、Y、Z、環 A、環 C および R² は、いずれも前記一般式 (I I) におけると同義である。)

なお、上記式中の

【化 6】

30



は、各々独立に単結合または二重結合を表す。)

【請求項 5】

請求項 1 ないし 4 のいずれか一項に記載の有機金属錯体からなる、発光色素。

【請求項 6】

請求項 1 ないし 4 のいずれか一項に記載の有機金属錯体からなる、有機電界発光素子材料。

40

【請求項 7】

基板上に、陽極、陰極、およびこれら両極間に設けられた有機発光層を有し、該有機発光層が、請求項 1 ないし 4 のいずれか一項に記載の有機金属錯体を含有することを特徴とする、有機電界発光素子。

【請求項 8】

該有機発光層が、電子輸送材料および / または正孔輸送材料をホスト材料とし、該ホスト材料に対して、請求項 1 ないし 4 のいずれか一項に記載の有機金属錯体がドープされてなる、請求項 7 記載の有機電界発光素子。

【請求項 9】

前記有機発光層と陰極の間に正孔阻止層を有する、請求項 7 または 8 に記載の有機電界発

50

光素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は新規な燐光色素として有用な有機金属錯体に関するものであり、詳しくは、薄膜型有機ELデバイスや近赤外発光材料に用いられる有機電界発光素子に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

これまで、有機電界発光素子には蛍光性色素が数多く用いられてきたが、フラットパネル・ディスプレイ等の表示、蛍光灯や標識灯等の光源、さらには近赤外発光材料として応用するためには、素子の発光効率をさらに改善する必要があり、新たな発光材料の開発が求められている。

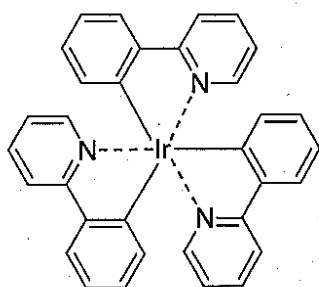
【0003】

近年、素子の発光効率をあげる試みの一つとして、三重項励起状態からの発光すなわち燐光を利用した燐光色素の利用が注目を集めている。燐光を用いた場合には従来の1重項励起状態からの発光(蛍光)に比べて、約3倍の取り出し効率が可能となり、高効率化が期待されるからである。

実際、下記の構造で表される有機イリジウム錯体(4)を4,4'-ジ(N-カルバゾリル)ピフェニル(CBP)にドーブさせることにより、発光波長510nmの緑色発光を示し、その外部量子効率は13%と従来の1重項発光素子の量子効率限界値(5%)を大きく上回ることが報告されている(非特許文献1)。

【0004】

【化7】



(4)

【0005】

さらに上記化合物に種々の置換基を導入してなる化合物(5)を使用することにより、錯体間の燐光の自己消光を制御したり(非特許文献2)、発光波長のチューニングが可能であることも報告されている。(非特許文献3および4参照)

【0006】

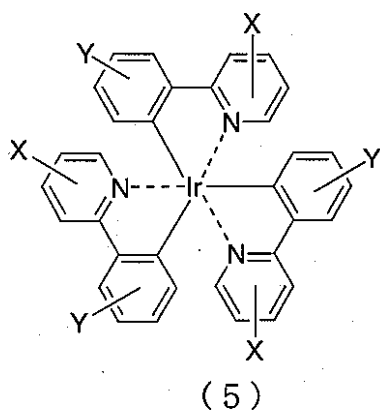
【化8】

10

20

30

40



10

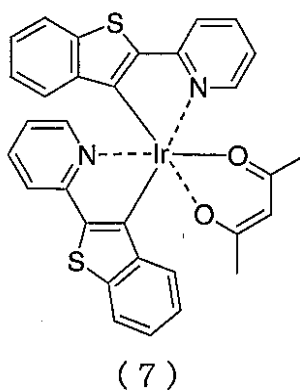
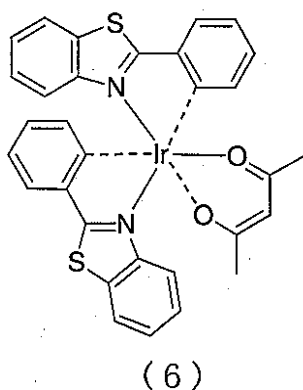
【0007】

また最近、Thompsonらは2核錯体を経由したイリジウム錯体の簡便な合成法により、種々の有機イリジウム錯体を開発し、青色から赤色までの有機電界発光素子を達成している。たとえば、下記に示す化合物(6)、(7)を用いた場合には、緑色よりも長波長に発光を有し、かつ従来の一重項発光素子に比べて高効率の電界発光素子になることが明らかにされている(非特許文献5および6、並びに特許文献1参照)。

【0008】

【化9】

20



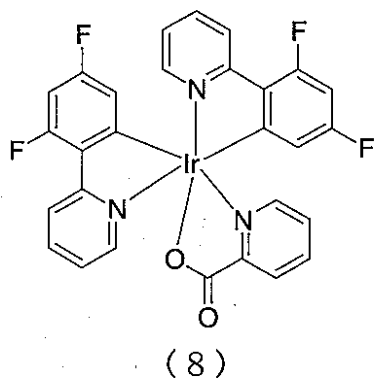
30

さらに、化合物8を用いることにより、青色発光も可能になることが明らかにされている(非特許文献7参照)。

【0009】

【化10】

40



【0010】

しかしながら、有機EL素子などの各種電子材料への適用には、さらなる耐久性の向上、

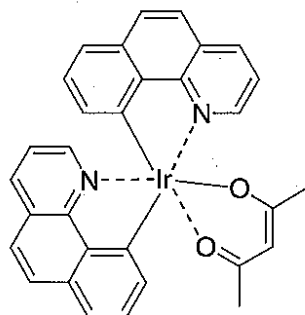
50

発光効率の向上、あるいは色純度の向上が不可欠であると考えられる。

フェニル基とピリジル基を縮環させた構造の2座配位子を有する有機イリジウム錯体としては、下記化合物(9)がThompsonらによりすでに報告されている(特許文献1)。

【0011】

【化11】



(9)

10

【0012】

しかし、ここで用いられているベンゾ[h]キノリン配位子は、前述した化合物(4)、(5)、(8)等の配位子に用いられているフェニルピリジン骨格に比べて、剛性には優れるものの、僅かながら発光が長波長化する結果となって色純度が低下している上、色純度調節の自由度低下や、溶解性の低下など、多くの改善すべき点を残している。

20

【0013】

また、徒に共鳴構造をのばすことなく配位子自体の剛性を向上させて耐久性を向上させるため、配位子をメチレン鎖などで固定化した錯体についても提案されている(特許文献2および3、並びに非特許文献8参照)。

しかしながら、これらによって耐久性は向上するものの、発光効率や色純度の点で、必ずしも満足するものが得られないことが本発明者らの検討によって明らかとなった。

【0014】

また特許文献3には、電子吸引基であるカルボニル基を配位子中の固定鎖に導入した例示化合物が開示されている。しかし本発明者らの検討により、単にカルボニル基を置換基として導入した配位子や、エステル型カルボニル基を導入した配位子は、例えば塩化イリジウム等と錯体を形成する際に、カルボニル基が悪影響するため、目的とする錯体を得ることが困難であることが明らかとなっている。更に、カルボニル基を有する有機化合物は励起三重項状態になりやすいことが知られているが、一方でホール(正孔)に対する安定性が低いため、電子とホールが再結合して発光する形式の有機電界発光素子用の色素としては、耐久性の点で問題を有する。

30

【0015】

【特許文献1】国際公開第01/41512号パンフレット

【特許文献2】特開2001-181617号公報

【特許文献3】特開2003-7469号公報

【非特許文献1】Appl. Phys. Lett., 75巻、4項、1999年

【非特許文献2】Adv. Mater., 2001, 13, 1245

【非特許文献3】Chem. Commun., 2001, 1494

【非特許文献4】Appl. Phys. Lett., 2001, 79, 449

【非特許文献5】Inorg. Chem., 2001, 40, 1074

【非特許文献6】J. Am. Chem. Soc., 2001, 123, 43

04.

【非特許文献7】Appl. Phys. Lett., 2001, 79, 208

2

40

50

【非特許文献8】 *Helvetica Chimica Acta*, 1988, 71, 130

【0016】

【発明が解決しようとする課題】

そこで本発明者は上記実状に鑑み、鋭意検討した結果、M-C結合（中心金属と配位子における炭素原子との結合）を成す環Aと、M-N結合（中心金属と配位子における窒素原子との結合）を成す環Cを、ある特定の基を用いて連結することにより、上記課題を解決できることを見だし、本発明を完成するに至った。

即ち、本発明の趣旨は、カルボニル基とN原子を直接結合させた部分構造をもつ固定鎖を有する配位子を用いた有機金属錯体に存する。

10

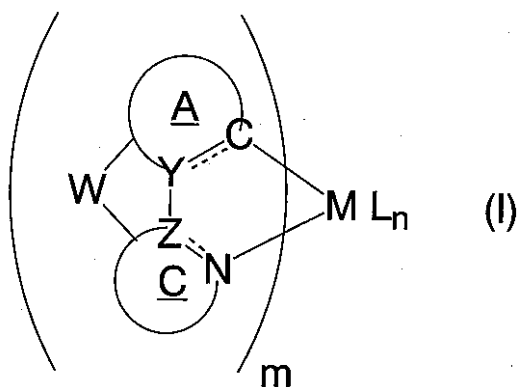
【0017】

【課題を解決するための手段】

即ち本発明は、下記一般式（I）で表わされる有機金属錯体に存する。

【0018】

【化12】



20

（式中、mは配位子の数を表し、1、2または3である。Lは任意の2座配位子を表し、その数を表すnは、0、1または2である。但し、 $m + n = (\text{Mの価数})$ である。MはIr、Pt、AuまたはPdを表す。YおよびZは、各々独立に炭素原子または窒素原子を示す。

30

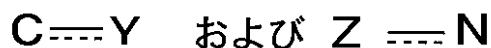
Wは-CO-部分構造を含む連結基を表し、該部分構造は一方または両方でN原子と直接単結合している。環Aは置換基を有していてもよい員数5または6の芳香族環を示し、環Cは置換基を有していてもよい員数5～8の複素環を示す。

【0019】

なお、上記式中の

【0020】

【化13】



40

は、各々独立に単結合または二重結合を表す。）

また、本発明の有機電界発光素子は、基板上に、陽極、陰極、およびこれら両極間に設けられた有機発光層を有し、該有機発光層が、前記一般式（I）で表される有機金属錯体を含有することを特徴とする。

なお本発明において、「芳香族環（基）」とは芳香族炭化水素環（基）および芳香族複素環（基）を意味し、「複素環」とは芳香族および非芳香族の複素環を表す。また「（ヘテロ）アリール基」等の表記は、アリール基およびヘテロアリール基を表す。

【0021】

50

【発明の実施の形態】

以下、本発明を詳細に説明する。

まず本発明における有機金属錯体について説明する。

本発明に係る有機金属錯体は前記一般式(I)で示される構造を有するものである。詳しくは、芳香族環からなる環Aと複素環からなる環Cを、一方または両方の結合手が窒素原子に結合した-CO-からなる部分構造を含む、特定の連結基により連結してなる配位子を有する点が特徴である。

【0022】

環Aは、員数5または6の、芳香族性を有する基であり、Mと結合した炭素原子を有していれば特に制限なく、任意の環を適用可能である。好ましい例としては、ベンゼン環、フラン環、チオフェン環、セレノフェン環、ピロール環、イミダゾール環、ピラゾール環、イソキサゾール環、イソチアゾール環、チアゾール環、ピリジン環などが挙げられ、さらに錯体の安定性と、錯体合成の容易性の観点から、中でも、ベンゼン環、ピロール環、フラン環、チオフェン環、イミダゾール環がより好ましく、ベンゼン環またはピロール環が最も好ましい。

10

【0023】

環Cは、員数5~8の含窒素複素環であり、中でも好ましくは5~6員環である。該環は、芳香族複素環であっても非芳香族複素環であっても、該窒素原子の非共有電子対にてMに配位結合していれば特に制限はなく、任意の環を適用可能である。好ましい例としては、ピリジン環、イミダゾール環、イソキサゾール環、オキサゾール環、イソチアゾール環、チアゾール環、ピラゾール環、トリアゾール環、テトラゾール環、ピリダジン環、トリアジン環、ピリミジン環、ピラジン環、およびこれらの水添化環等が挙げられる。

20

【0024】

錯体合成の容易性の観点からは、環Cは非共役性非共有電子対を有する窒素原子を1つだけ環員として含む環(中でも、ピリジン環、イミダゾール環)がより好ましく、特にピリジン環が好ましい。また、錯体の安定性の観点からは、環Cは芳香族環であることが好ましく、電界発光を短波長化し、青色発光等を得る観点からは、環Cは非芳香族環であることが好ましい。

【0025】

前記一般式(I)において、YおよびZは各々独立に、炭素原子または窒素原子を表す。前記一般式(I)において、環Aと環Cとを接合するべき-W-とは、少なくとも-CO-部分構造を含み、該部分構造は一方または両方でN原子と直接単結合している連結基を表す。これを満たす限りにおいて、任意の連結基を適用可能である。

30

【0026】

連結基Wとして、-CO-を含む基を有することにより、該化合物を後述するように有機電界発光素子の発光層に使用した場合、素子駆動時の電圧上昇に伴う輝度の低下が抑制され、安定な発光を長時間示す素子が得られるため好ましい。また、カルボニル基を有する有機化合物は励起三重項状態になりやすく、その結果、発光効率の向上が可能となるが、ホール(正孔)に対する安定性が低いため、電子とホールが再結合して発光する形式の有機電界発光素子用の色素として使用した場合、耐久性の点で問題を生じる。しかし、カルボニル基の一方または両方で窒素原子と直接単結合させることによって初めて、ホール(正孔)に対する不安定性を解消でき、且つ、金属塩素化物から錯体を合成する際の収率向上にも寄与するのである。

40

【0027】

本発明に記載のWにおいて、-CO-部分構造と結合する窒素原子は、連結基Wの途中にあるものでも良いし、後述するように、環Aおよび/または環C上の原子であり、環Aおよび/または環CのWへの連結部分であってもよい。

窒素原子が連結基Wの途中にある場合の例としては、-CONR-部分構造(但し、Rは水素原子または任意の置換基を表す)を含むものが挙げられ、具体的には、例えば-CO-NR-W¹-や-W¹-CONR-(但し、W¹は直接単結合または-(CH)_a-(a

50

は1または2であり、水素原子は任意の基で置換されていてもよい)である)で表されるものが挙げられる。中でも、より好ましくは -CONR- (即ちW¹が直接単結合の場合)である。

【0028】

環Aおよび環Cに対する連結基Wの結合の向きは、Wが -CONR- 基である場合を例に説明すると、環A - CO - NR - 環Cであっても、環A - NR - CO - 環Cであってもよい。

なお、環Aと環Cに、直接的に電子吸引性基であるカルボニル基と電子供与性基であるアミノ基が別々に結合していると、いわゆる電子のプッシュ・プル効果に伴う発光波長の劇的な変化が現れ、これまで困難とされてきた純青色発光や近赤外光を発する燐光材料を得ることも可能となるという付帯効果があり、且つ、カルボニル基とアミノ基が直接結合したアミド型であることによって、カルボニル基が極めて安定化されるため好ましい。

10

【0029】

通常、発光波長を短波長化する目的においては、環A - CO - NR - 環Bであるのが特に好ましい場合が多く、発光波長を長波長化する目的においては、環A - NR - CO - 環Bであるのが特に好ましい場合が多い。

Rは水素原子または任意の置換基であるが、該置換基としては、例えば、ハロゲン原子(たとえばフッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子)、置換基を有してもよいアルキル基(好ましくは炭素数1から8の直鎖または分岐のアルキル基であり、たとえばメチル、エチル、n-プロピル、2-プロピル、n-ブチル、イソブチル、tert-ブチル基などが挙げられる。)、置換基を有してもよいアルケニル基(たとえば、炭素数1から8のアルケニル基であり、たとえばビニル、アリル、1-ブテニル基などが挙げられる。)、置換基を有してもよいアルキニル基(たとえば、炭素数1から8のアルキニル基であり、たとえばエチニル、プロパルギル基などが挙げられる。)、置換基を有してもよいアラルキル基(たとえば、炭素数1から8のアルキニル基であり、たとえばベンジル基などが挙げられる。)、置換基を有してもよいアミノ基

20

[好ましくは、置換基に炭素数1から8のアルキル基を1つ以上有するもの(たとえばメチルアミノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、ジベンジルアミノ基などが挙げられる。)、

置換基を有してもよいアリールアミノ基(たとえばフェニルアミノ、ジフェニルアミノ、ジトリルアミノ基などが挙げられる。)、

30

置換基を有してもよいヘテロアリールアミノ基(たとえばピリジルアミノ、チエニルアミノ、ジチエニルアミノ基などが含まれる。)、

置換基を有してもよいアシルアミノ基(たとえばアセチルアミノ、ベンゾイルアミノ基などが含まれる。)]、

置換基を有していてもよいアルコキシ基

[(好ましくは置換基を有してもよい炭素数1~8のアルコキシ基であり、たとえばメトキシ、エトキシ、ブトキシ基などが含まれる)、

置換基を有してもよいアリールオキシ基(好ましくは芳香族炭化水素基や複素環基を有するものであり、たとえばフェニルオキシ、1-ナフチルオキシ、2-ナフチルオキシ、ピリジルオキシ、チエニルオキシ基などが含まれる。)]、置換基を有していてもよいアシル基(好ましくは、置換基を有してもよい炭素数1~8のアシル基であり、たとえばホルミル、アセチル、ベンゾイル基などが含まれる)、

40

置換基を有してもよいアルコキシカルボニル基(好ましくは置換基を有してもよい炭素数2~13のアルコキシカルボニル基であり、たとえばメトキシカルボニル、エトキシカルボニル基などが含まれる)、

置換基を有していてもよいアリールオキシカルボニル基(好ましくは置換基を有してもよい炭素数2~13のアリールオキシカルボニル基であり、たとえばアセトキシ基などが含まれる)、カルボキシル基、シアノ基、水酸基、メルカプト基、置換基を有していてもよいアルキルチオ基(好ましくは炭素数1~8までのアルキルチオ基であり、たとえば、メ

50

チルチオ基、エチルチオ基などが含まれる。) 、置換基を有していてもよいアリールチオ基(好ましくは炭素数1~8までのアリールチオ基であり、たとえば、フェニルチオ基、1-ナフチルチオ基などが含まれる。) 、置換基を有していてもよいスルホニル基(たとえばメシル基、トシル基などが含まれる) 、置換基を有していてもよいシリル基(たとえばトリメチルシリル基、トリフェニルシリル基などが含まれる) 、置換基を有していてもよいポリル基(たとえばジメチルポリル基などが含まれる) 、置換基を有していてもよいホスフィノ基(たとえばジフェニルホスフィノ基などが含まれる) 、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基または芳香族複素環基(好ましくは、5または6員環の、単環または2縮合環である、芳香族炭化水素環または芳香族複素環であり、例えばフェニル基、ナフチル基、チエニル基、フリル基、ピリジル基などが含まれる)などが挙げられる。

10

【0030】

上記の各置換基が有する置換基、としては、ハロゲン原子、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アラルキル基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、カルボキシル基、シアノ基、水酸基、メルカプト基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、シリル基、ポリル基、ホスフィノ基、芳香族炭化水素基、および芳香族複素環基等が挙げられる。

【0031】

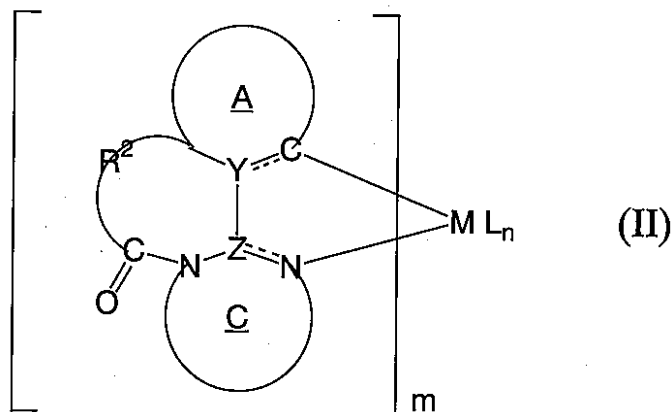
中でも、徒に分子量を増大させて錯体の昇華性を損なうことがなく、かつ耐久性にも優れたものとして、メチル基、エチル基などの飽和アルキル基や、フェニル基などの芳香環基がより好ましく、錯体形成収率向上の観点からは2,6-ジメチルフェニル基、メシチル基が特に好ましい。

20

ところで本発明記載のWにおいて、連結基Wにおける-CO-部分構造が結合する窒素原子は、環Aおよび/または環C上の原子であっても、前述したと同様に種々の効果を発揮する。-CO-が結合する窒素原子が環C上の原子である場合の例として、例えば下記一般式(II)で表される化合物が挙げられる。

【0032】

【化14】



30

(式中、m、n、L、M、Y、Z、環Aおよび環Cは、いずれも前記一般式(I)におけると同義である。R²は直接結合であるか、または-(CH)_a-(但し、aは1~3の整数であり、水素原子は任意の基で置換されていてもよい)を表す。

なお、上記式中の

【0033】

【化15】

40

C≡Y および Z ≡ N

は、各々独立に単結合または二重結合を表す。)

上記一般式 (I I) における環 C は、イミダゾール環などの芳香族性 5 員環であるとき、極めて優れた耐久性を与えるため、特に好ましい。

ここで、 R^2 は直接結合であるか、または $-(CH)_a-$ (a は 1 ~ 3 の整数であり、水素原子は任意の基で置換されていてもよい) であるのが好ましく、直接結合であるか、または $-(CH)_a-$ (a は 1 または 2 であり、水素原子は任意の基で置換されていてもよい) であるのがより好ましく、直接結合であるのが最も好ましい。

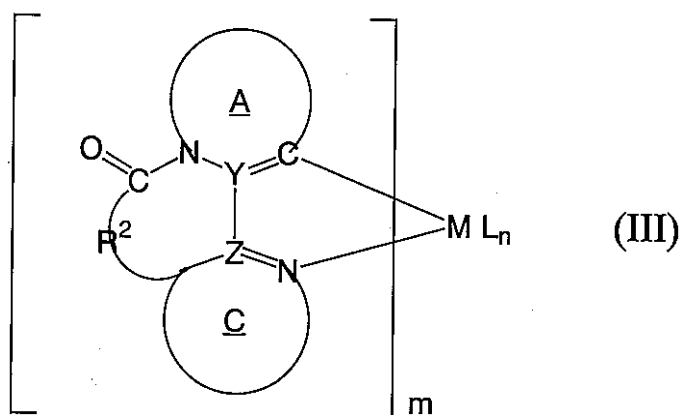
10

【 0 0 3 4 】

a が 5 以上の整数であると、 R^2 の振動・収縮自由度が大きくなり、励起三重項状態からの熱失活割合を増大させ、発光効率低下を招くため、好ましくない。生成した錯体の安定性の観点からは、 R^2 は直接結合であるのが最も好ましい。また本発明記載の W において、連結基 W における $-CO-$ 部分構造は、環 A 上の窒素原子と結合していても良く、このような化合物例としては、例えば下記一般式 (I I I) で表される化合物が挙げられる。

【 0 0 3 5 】

【 化 1 6 】



20

30

(式中、 m 、 n 、 L 、 M 、 Y 、 Z 、環 A、環 C および R^2 は、いずれも前記一般式 (I I) におけると同義である。

なお、上記式中の

【 0 0 3 6 】

【 化 1 7 】

C≡Y および Z ≡ N

は、各々独立に単結合または二重結合を表す。)

上記一般式 (I I I) における環 A は、ピロール環などの芳香族性 5 員環であるとき、極めて優れた耐久性を与えるため、特に好ましい。また上記一般式 (I I I) における環 C は、前述した各種環構造の中でも、特にピリジン環である場合が好ましい。

【 0 0 3 7 】

前記一般式 (I) ~ (I I I) における環 A、環 C、並びに連結基 W における W^1 および R^2 は、いずれも任意の置換基を有していても良く、また該置換基同士が結合して環を形成していても良い。

本発明の有機金属錯体の耐久性、発光量子収率、色純度の観点から、環 A ~ C として特に

50

好ましくは、メチル基またはメトキシ基で置換されているか、隣り合う置換基同士が結合して環を形成しているか、これら両方を満たすか、あるいは無置換の化合物である。

【0038】

環Aおよび環Cが有する置換基同士、連結基WにおけるR、並びに連結基WにおけるW¹およびR²が有する置換基から選ばれた2以上が結合して形成する環としては、例えば員数5または6の芳香族環の単環または2縮合環が挙げられ、好ましくはベンゼン環などの芳香族単環である。

また、上述の置換基同士が結合して形成する環は、環Aにつき、或いは環Cにつき、複数個縮合していてもよい。

【0039】

なお、環A、環C、これらに縮合してなる環、および連結基Wを含む環は、錯体の溶解性を低下させないため、および色純度を低下させないためには、全体で5縮合環以下であることが好ましい。

環Aと、環Aが有する置換基同士が結合してなる環により形成される部位としては、ナフタレン環、アントラセン環、フェナントレン環、インドール環、カルバゾール環、ベンゾチオフェン環、ベンゾフラン環、ピロロイミダゾール環、ピロロピラゾール環、ピロロピロール環、チエノピロール環、チエノチオフェン環、フロピロール環、フロフラン環、チエノフラン環、ベンゾイソキサゾール環、ベンゾイソチアゾール環、ベンゾイミダゾール環、キノリン環、イソキノリン環などがより好ましく例示され、錯体の安定性、錯体合成の容易性、発光波長特性の観点から、ナフタレン環、インドール環、カルバゾール環、ベンゾチオフェン環、ベンゾフラン環が特に好ましい。

【0040】

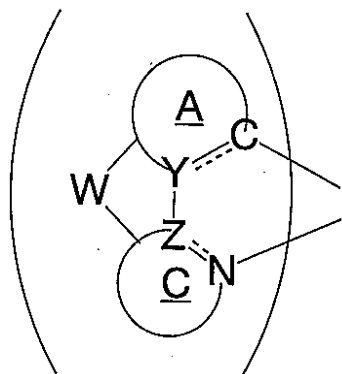
また環Cと、環Cが有する置換基同士が結合してなる環により形成される部位としては、インドール環、ピロロイミダゾール環、ピロロピラゾール環、ピロロピロール環、チエノピロール環、イミダゾピラゾール環、ベンゾイソキサゾール環、ベンゾイソチアゾール環、キノリン環、イソキノリン環、シノリン環、キノキサリン環、ベンゾイミダゾール環、ペリミジン環、キナゾリン環、キナゾリノン環などがより好ましく例示され、錯体の安定性、錯体合成の容易性、発光波長特性の観点から、キノリン環、イソキノリン環、インドール環、ベンゾイミダゾール環、ペリミジン環が特に好ましい。

環A、環C、および連結基Wが有する置換基から選ばれた、2以上が結合してなる環は、任意の基で置換されていてもよく、該置換基としては、例えば環Aおよび環Cが有する基として前述した基が挙げられる。

一般式(I)で表される化合物における、配位子

【0041】

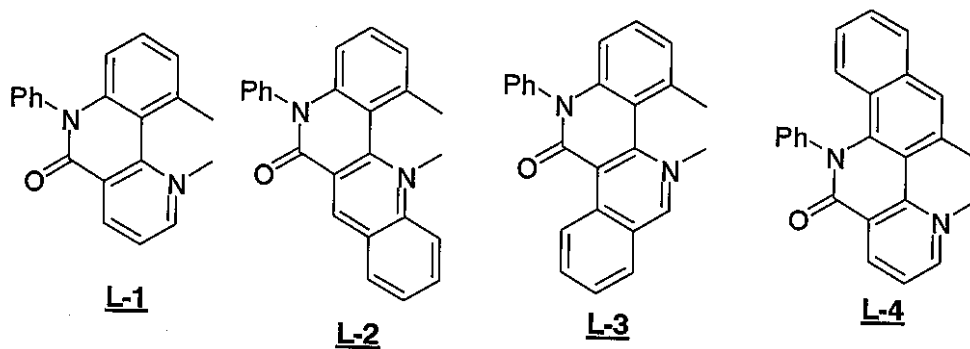
【化18】



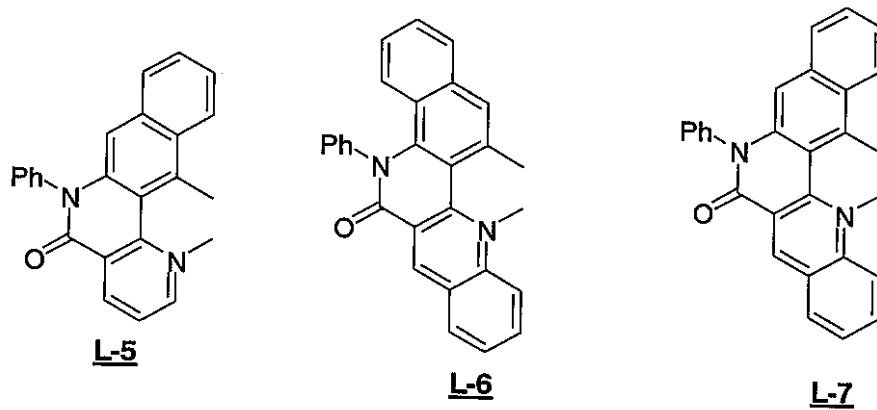
の好ましい例を以下に記すが、本発明はこれらに何ら限定されるものではない。

【0042】

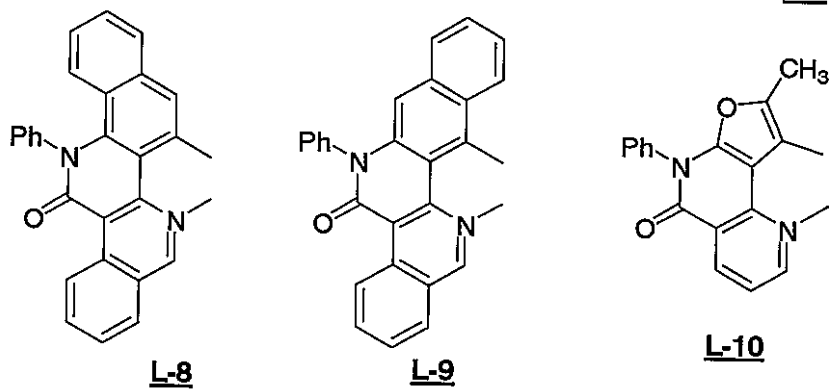
【化19】



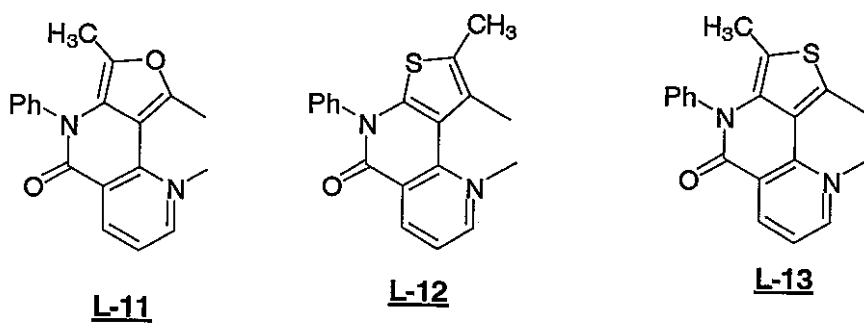
10



20



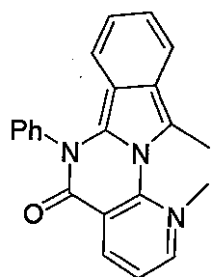
30



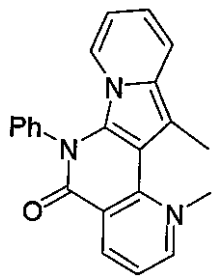
40

【 0 0 4 3 】

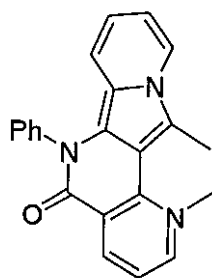
【 化 2 0 】



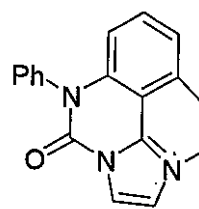
L-14



L-15

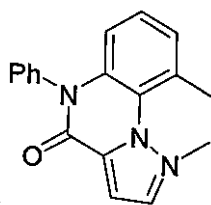


L-16

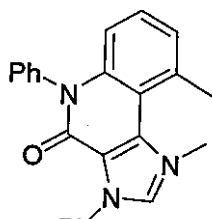


L-17

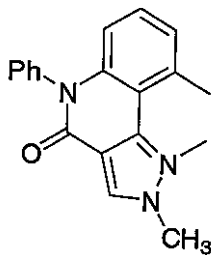
10



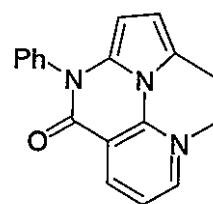
L-18



L-19

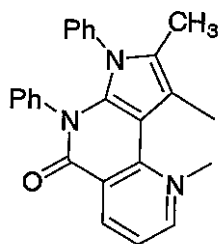


L-20

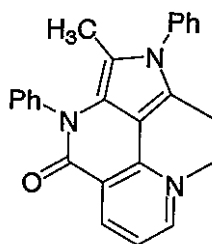


L-21

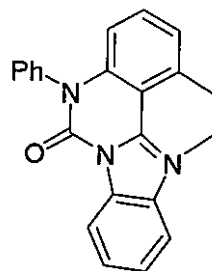
20



L-22

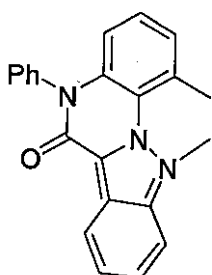


L-23

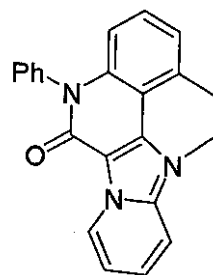


L-24

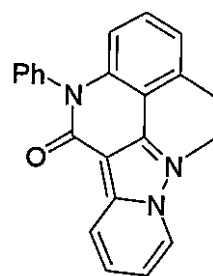
30



L-25



L-26

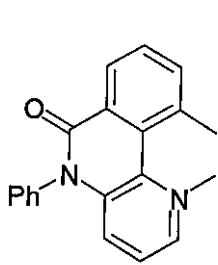


L-27

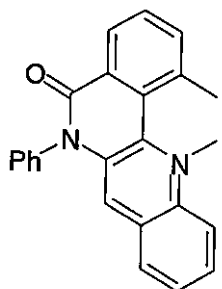
40

【 0 0 4 4 】

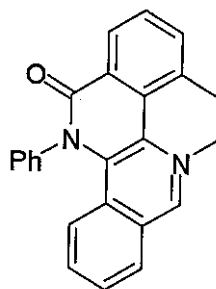
【 化 2 1 】



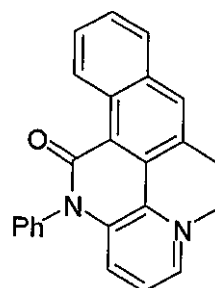
L-28



L-29

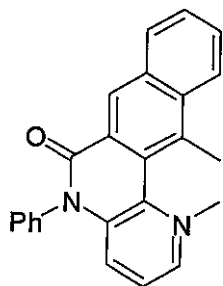


L-30

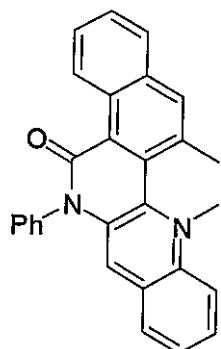


L-31

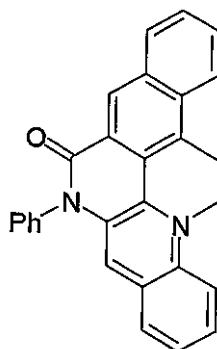
10



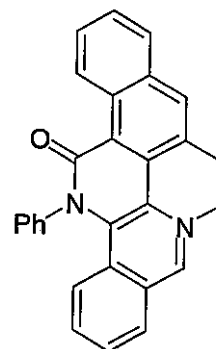
L-32



L-33

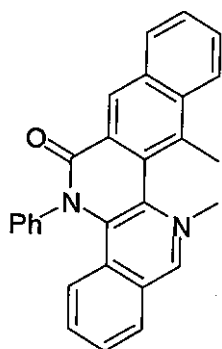


L-34

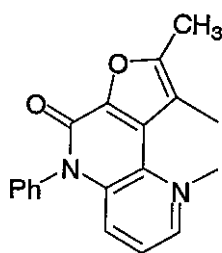


L-35

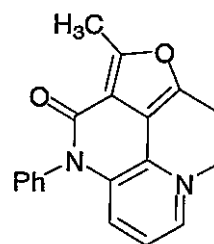
20



L-36

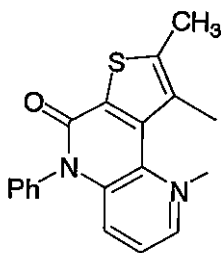


L-37

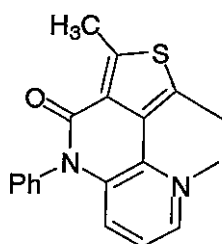


L-38

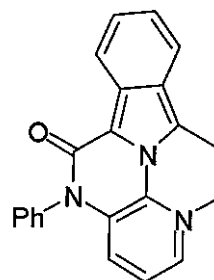
30



L-39



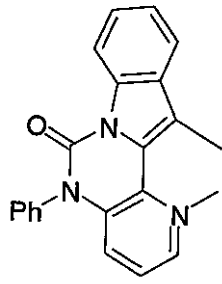
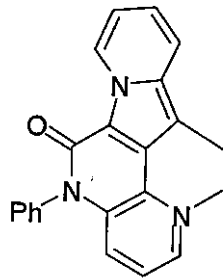
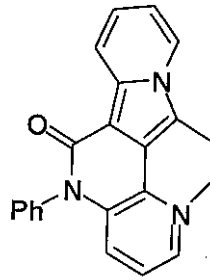
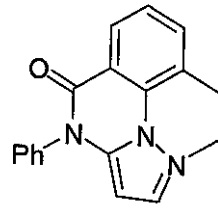
L-40



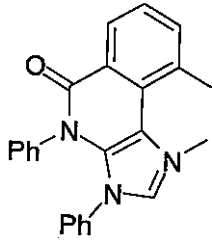
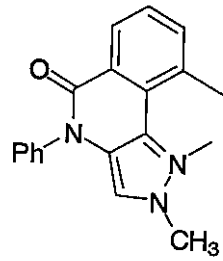
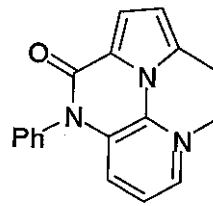
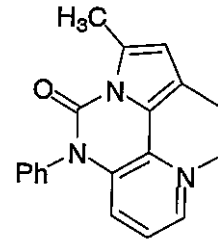
L-41

40

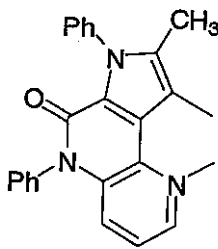
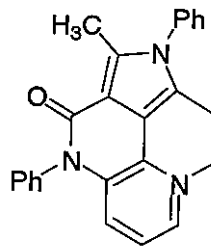
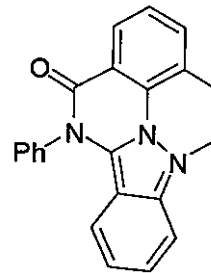
【 0 0 4 5 】
【 化 2 2 】

**L-42****L-43****L-44****L-45**

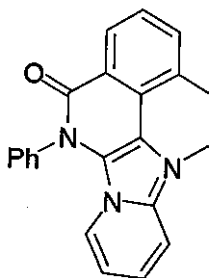
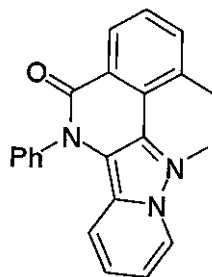
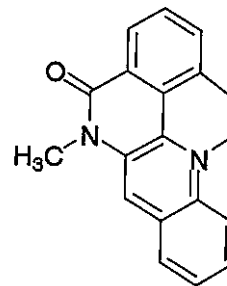
10

**L-46****L-47****L-48****L-49**

20

**L-50****L-51****L-52**

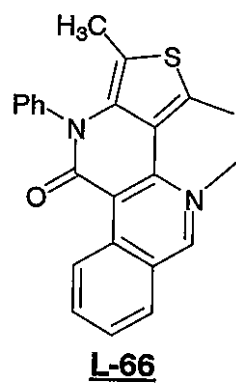
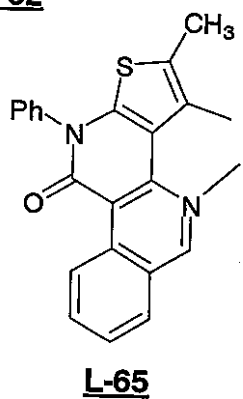
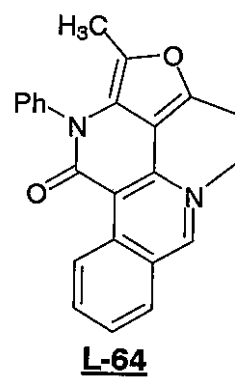
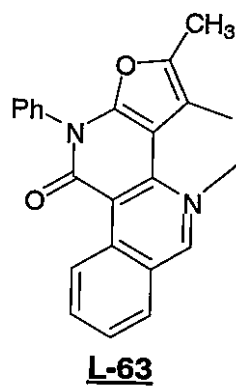
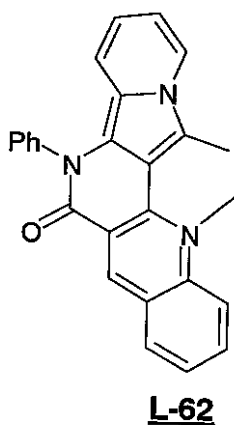
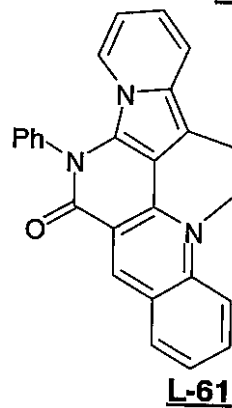
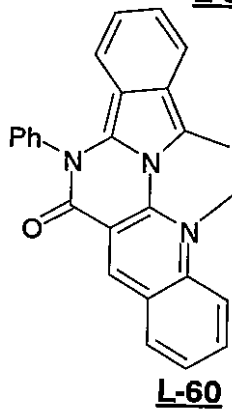
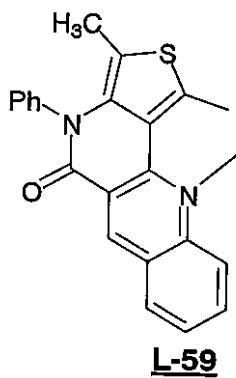
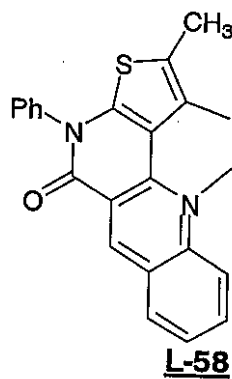
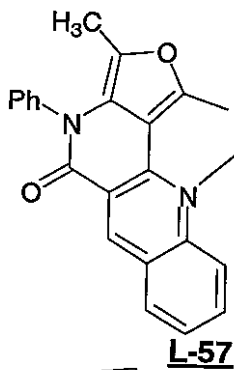
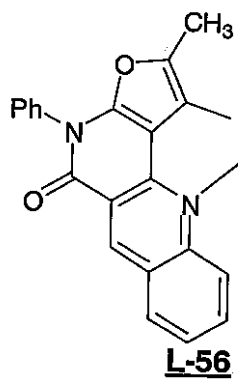
30

**L-53****L-54****L-55**

40

【 0 0 4 6 】

【 化 2 3 】



10

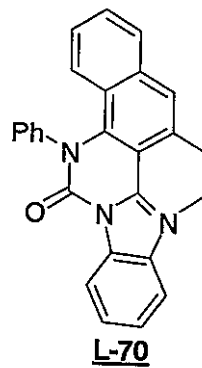
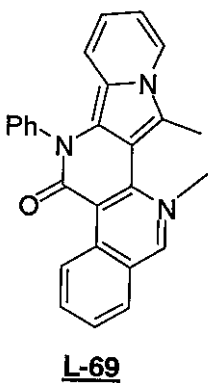
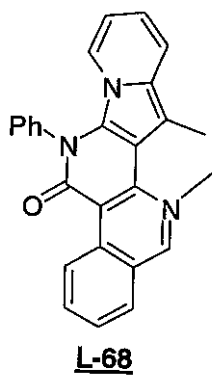
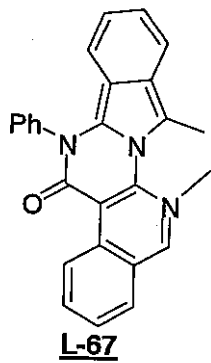
20

30

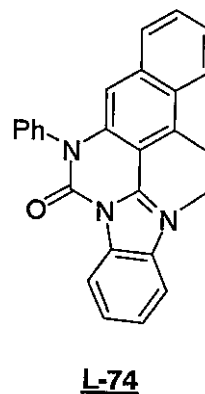
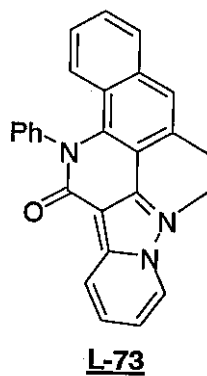
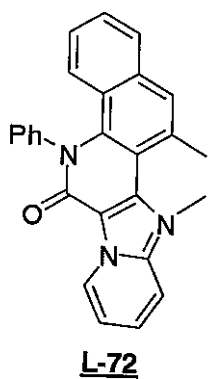
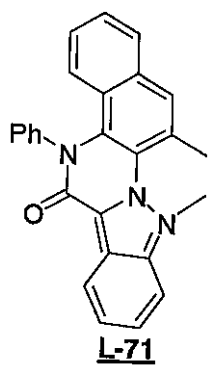
40

【 0 0 4 7 】

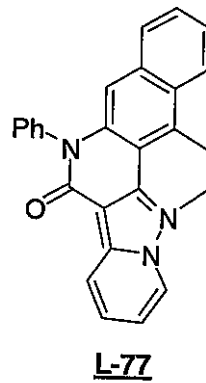
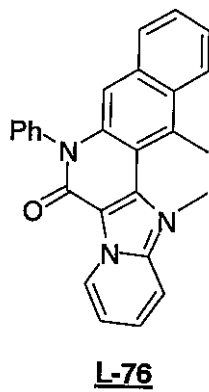
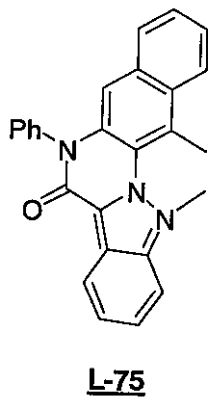
【 化 2 4 】



10



20

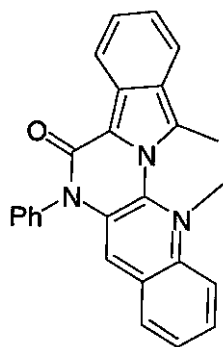


30

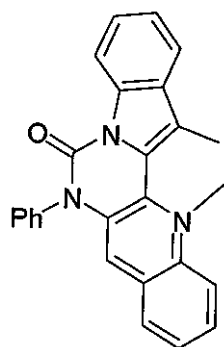
40

【 0 0 4 8 】

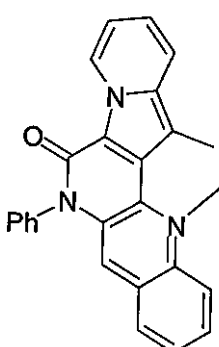
【 化 2 5 】



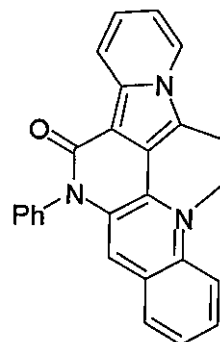
L-78



L-79

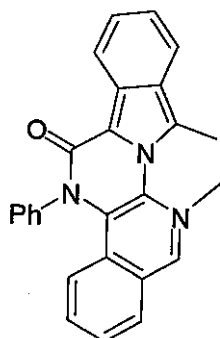


L-80

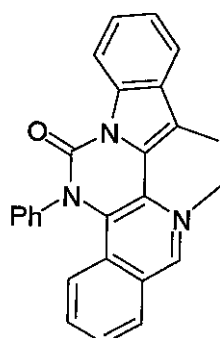


L-81

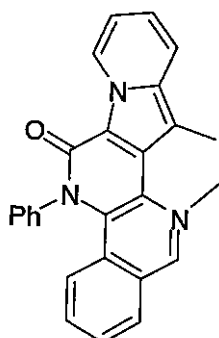
10



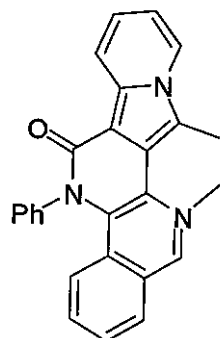
L-82



L-83

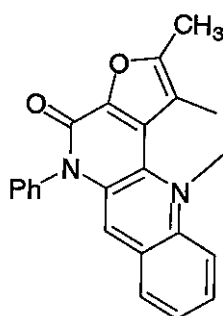


L-84

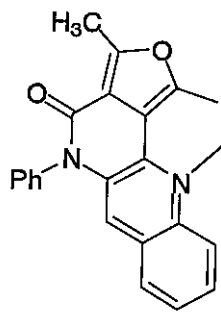


L-85

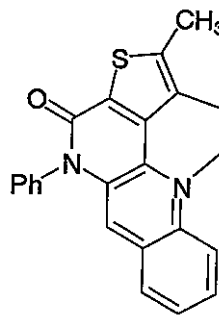
20



L-86



L-87



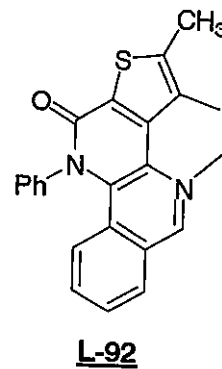
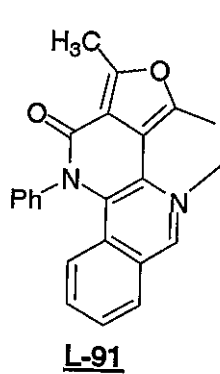
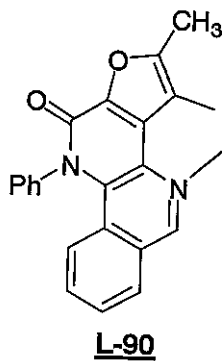
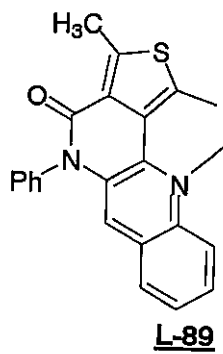
L-88

30

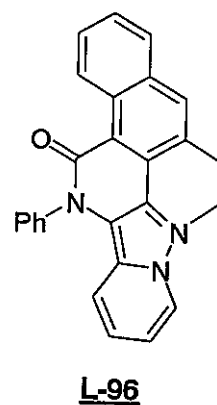
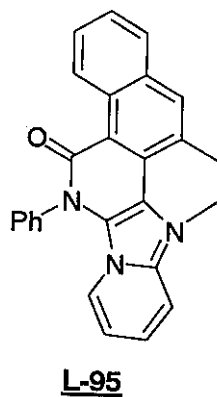
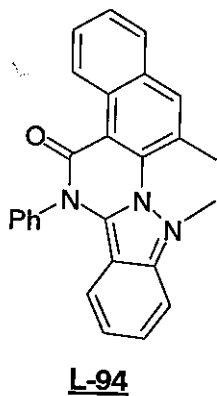
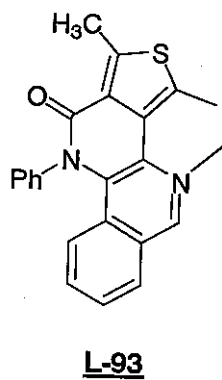
【 0 0 4 9 】

【 化 2 6 】

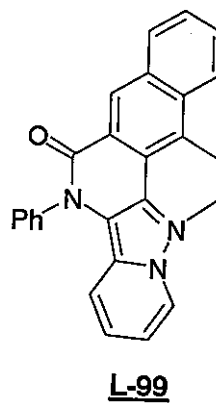
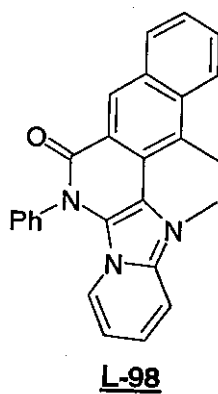
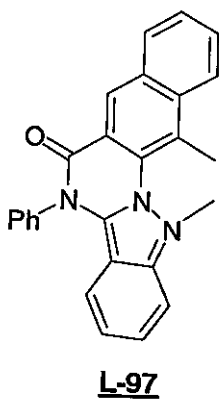
40



10



20

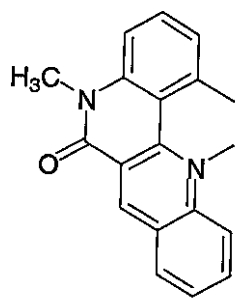


30

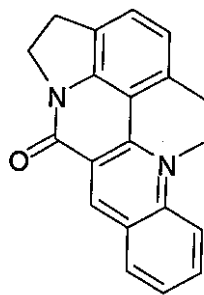
40

【 0 0 5 0 】

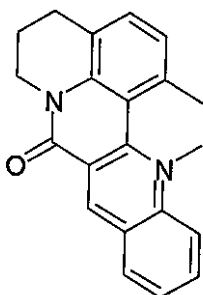
【 化 2 7 】



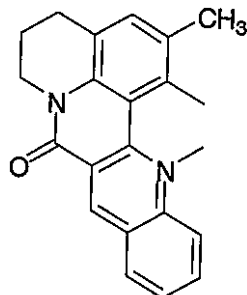
L-100



L-101

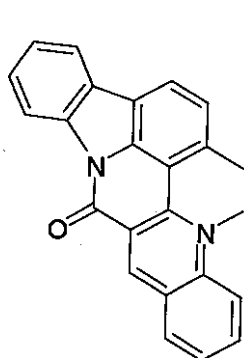


L-102

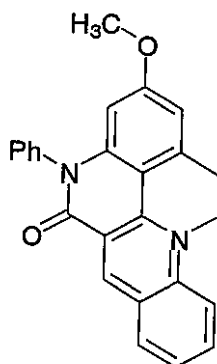


L-103

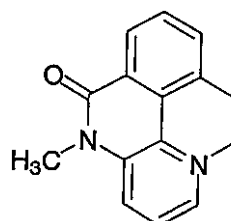
10



L-104

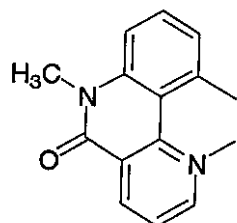


L-105

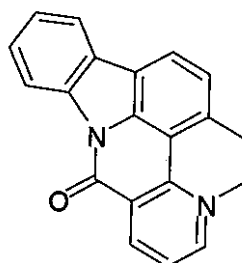


L-106

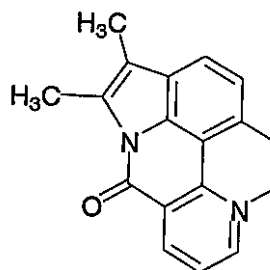
20



L-107



L-108



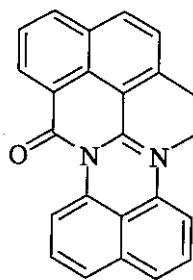
L-109

30

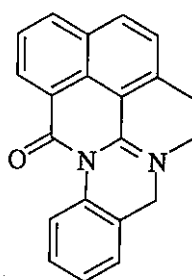
【 0 0 5 1 】

【 化 2 8 】

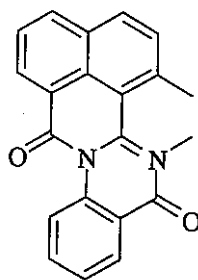
40



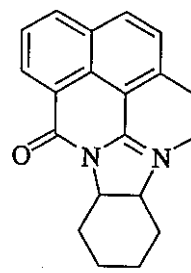
L-110



L-111

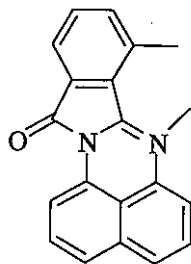


L-112

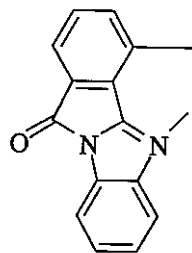


L-113

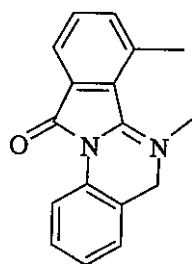
10



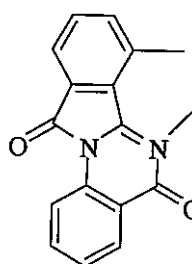
L-114



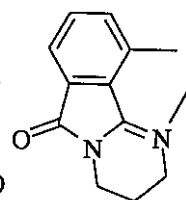
L-115



L-116

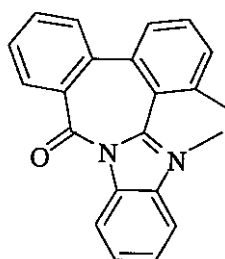


L-117

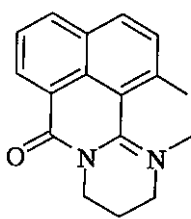


L-118

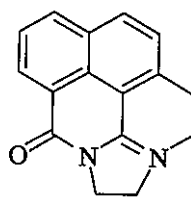
20



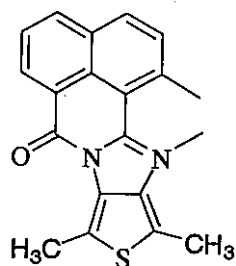
L-119



L-120

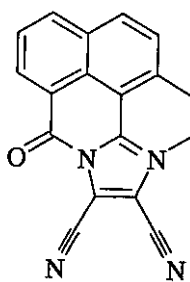


L-121

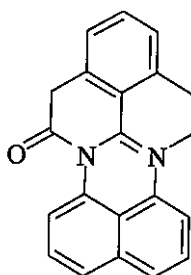


L-122

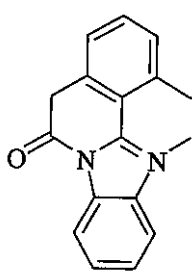
30



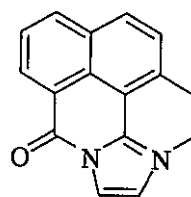
L-123



L-124



L-125

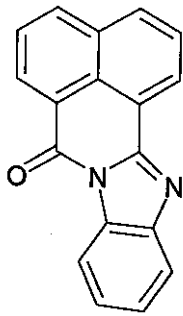
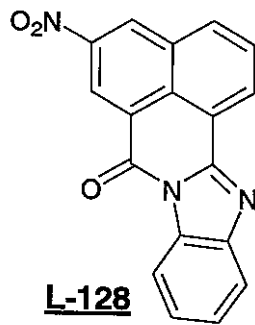
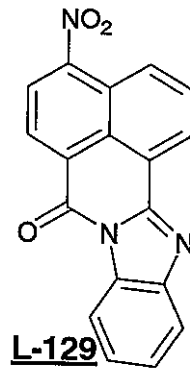
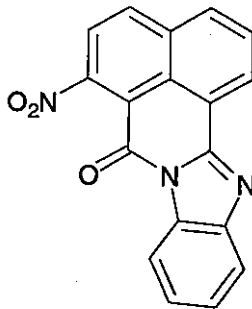
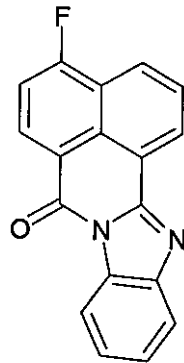
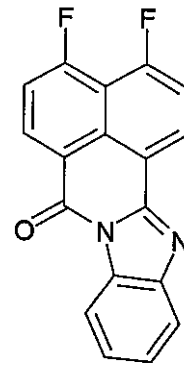
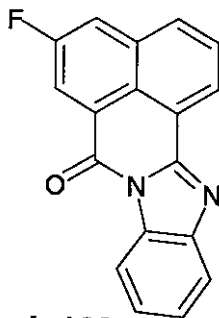
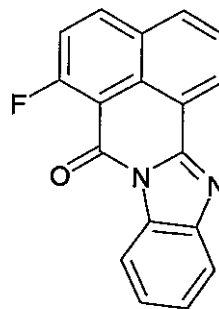
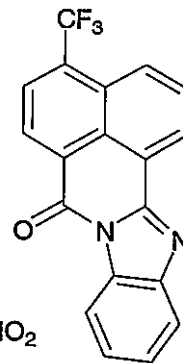
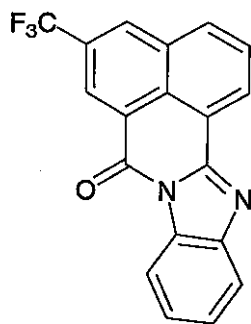
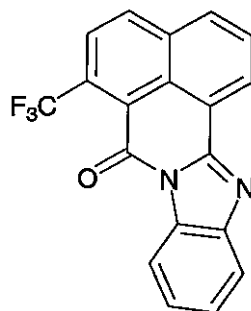
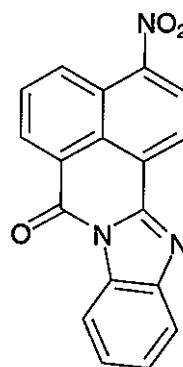


L-126

40

【 0 0 5 2 】

【 化 2 9 】

**L-127****L-128****L-129****L-130****L-131****L-132****L-133****L-134****L-135****L-136****L-137****L-138**

10

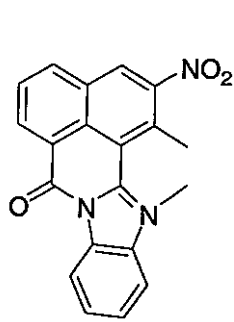
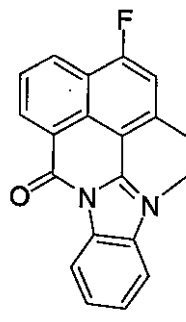
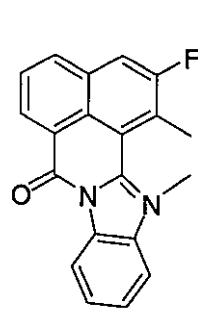
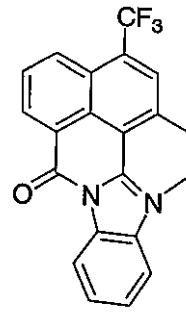
20

30

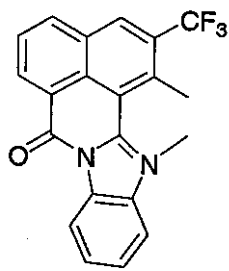
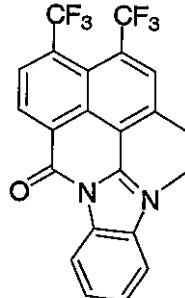
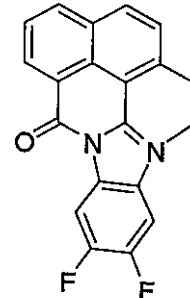
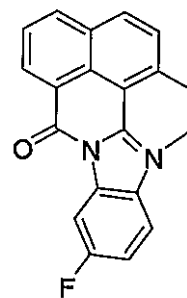
40

【 0 0 5 3 】

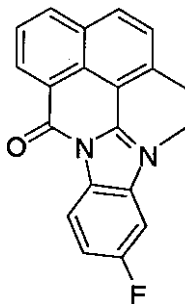
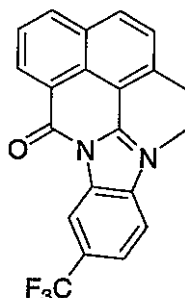
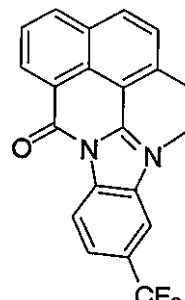
【 化 3 0 】

**L-139****L-140****L-141****L-142**

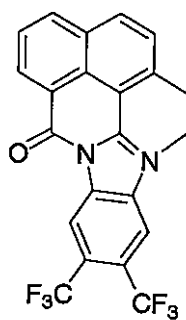
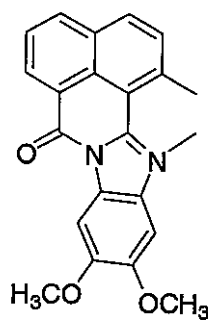
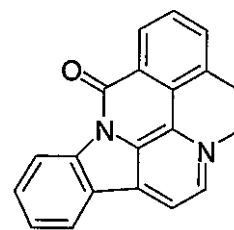
10

**L-143****L-144****L-145****L-146**

20

**L-147****L-148****L-149**

30

**L-150****L-151****L-152**

40

【 0 0 5 4 】

なお、上記した配位子の具体例中、Phはフェニル基を表す。また、上記具体例では記載を殆んど省略したが、前記一般式(I)における環Aおよび環Cに相当する部分、環Aまたは環Cに縮合する環部分、並びに連結基Wに相当する部分は、前述したように、いずれも任意の置換基を有していても良い。

前記一般式(I)において、中心金属MはIr、Pt、AuまたはPdを表すが、発光効率の観点から好ましくはIrまたはPtであり、中でもIrが特に好ましい。

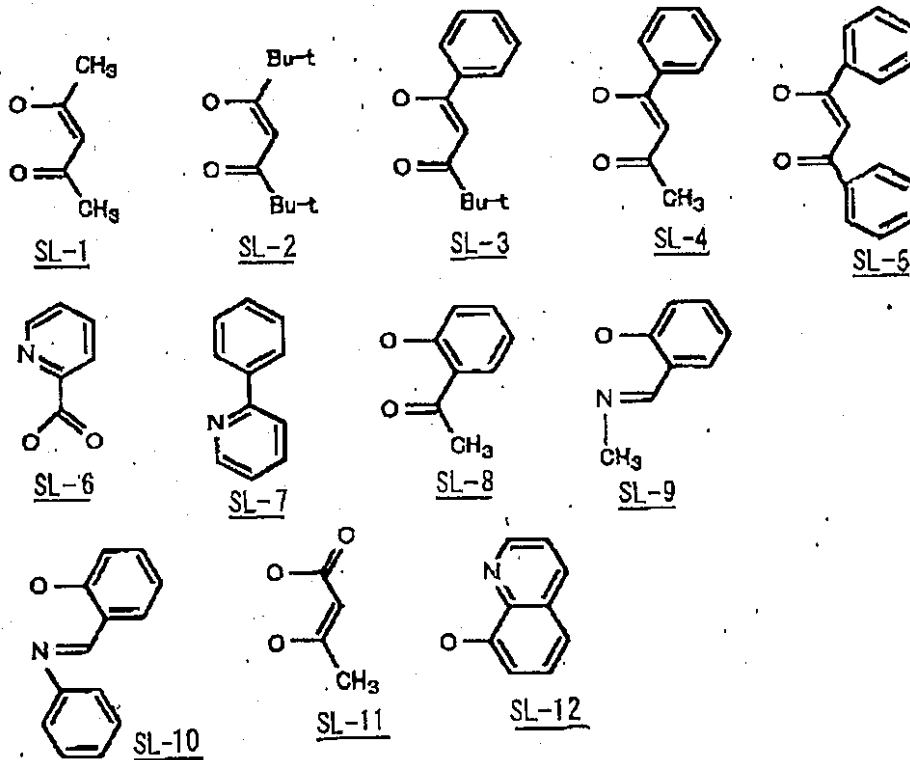
50

【0055】

前記一般式(I)において、任意の2座配位子であるLに特に制限はなく、本発明化合物の性能を損なわない限り、任意の2座配位子を用いることができる。Lとしては、OO配位またはON配位するものが挙げられ、具体的には例えば下記の配位子が挙げられる。

【0056】

【化31】



10

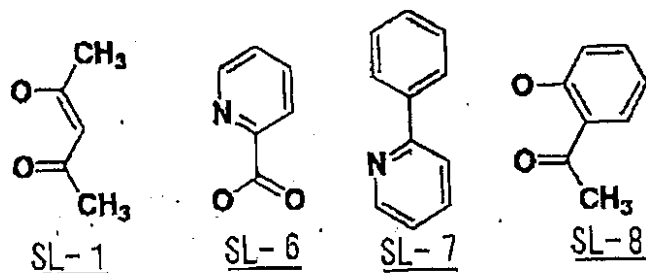
20

【0057】

中でも、化合物の耐久性と色純度を損なわないものとして、より好ましくは下記配位子である。 30

【0058】

【化32】

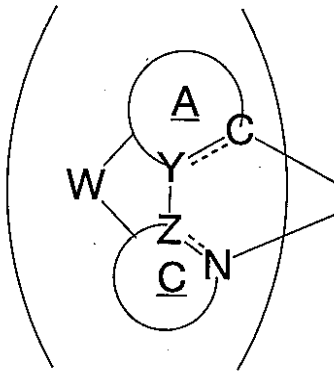


40

前記一般式(I)において、
mは下記配位子

【0059】

【化33】



10

【0060】

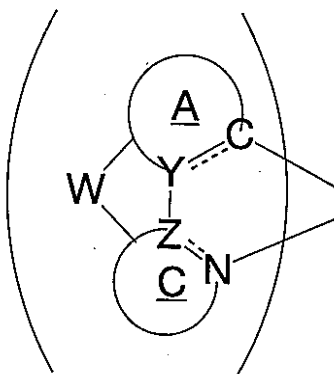
の数を表し、1、2または3である。また、 n は任意の2座配位子Lの数を表し、 $n = 0 \sim 2$ である。但し、 $m + n = (Mの価数)$ である。有機金属錯体の色純度発光効率および耐久性の高さの点から、好ましくは n が0または1であり、更に好ましくは $n = 0$ である。

なお、 $n = 0$ または1の場合、即ち前記一般式(I)で表される1化合物中に、複数の下記配位子

20

【0061】

【化34】



30

【0062】

を含む場合、該配位子は同一であっても異なってもよい。また、 $n = 2$ の場合、1分子中に含まれる2つの配位子Lは同一であっても異なってもよい。合成が容易であるという点では、1分子中に含まれる複数の前記配位子、或いは複数の配位子Lは、各々、同一である場合が好ましく、また異なる複数の機能を併せ持つ化合物を設計できるという点、あるいは色目の微調整がしやすい点では、異なる配位子を有する場合が好ましい。

40

【0063】

前記一般式(I)で表される化合物の分子量は、通常2000以下程度、好ましくは1500以下程度、更に好ましくは1200程度である。また分子量の下限は、通常300程度、好ましくは400程度、更に好ましくは500程度である。分子量が大きすぎると昇華性が低下し、例えば蒸着による薄膜形成が困難になり、後述するように有機電界発光素子を構成する層に使用する場合に問題となる虞がある。一方、分子量が小さすぎると、例えば昇華温度が低くなりすぎるため、やはり蒸着による薄膜形成が困難になる虞がある。

【0064】

以下に、本発明の有機金属錯体(前記一般式(I)で表される化合物)の具体例を挙げる

50

が、本発明はこれらに何ら限定されるものではない。

なお、以下の構造では記載を（殆ど）省略したが、これらの化合物はいずれも、さらに置換基を有して良いことは前述したとおりである。

【 0 0 6 5 】

【表 1】

Entry	M	L	SL	m	n	Entry	M	L	SL	m	n
1	Ir	L-1	-	3	0	31	Au	L-1	SL-11	2	1
2	Ir	L-1	SL-1	2	1	32	Au	L-1	SL-12	2	1
3	Ir	L-1	SL-4	2	1	33	Pd	L-1	-	2	0
4	Ir	L-1	SL-5	2	1	34	Pd	L-1	SL-1	1	1
5	Ir	L-1	SL-6	2	1	35	Pd	L-1	SL-4	1	1
6	Ir	L-1	SL-7	2	1	36	Pd	L-1	SL-5	1	1
7	Ir	L-1	SL-7	1	2	37	Pd	L-1	SL-6	1	1
8	Ir	L-1	SL-8	2	1	38	Pd	L-1	SL-7	1	1
9	Ir	L-1	SL-10	2	1	39	Pd	L-1	SL-8	1	1
10	Ir	L-1	SL-11	2	1	40	Pd	L-1	SL-10	1	1
11	Ir	L-1	SL-12	2	1	41	Pd	L-1	SL-11	1	1
12	Pt	L-1	-	2	0	42	Pd	L-1	SL-12	1	1
13	Pt	L-1	SL-1	1	1	43	Ir	L-2	SL-1	2	1
14	Pt	L-1	SL-4	1	1	44	Ir	L-2	SL-4	2	1
15	Pt	L-1	SL-5	1	1	45	Ir	L-2	SL-5	2	1
16	Pt	L-1	SL-6	1	1	46	Ir	L-2	SL-6	2	1
17	Pt	L-1	SL-7	1	1	47	Ir	L-2	SL-7	2	1
18	Pt	L-1	SL-8	1	1	48	Ir	L-2	SL-7	1	2
19	Pt	L-1	SL-10	1	1	49	Ir	L-2	SL-8	2	1
20	Pt	L-1	SL-11	1	1	50	Ir	L-2	SL-10	2	1
21	Pt	L-1	SL-12	1	1	51	Ir	L-2	SL-11	2	1
22	Au	L-1	-	3	0	52	Ir	L-2	SL-12	2	1
23	Au	L-1	SL-1	2	1	53	Pt	L-2	-	2	0
24	Au	L-1	SL-4	2	1	54	Pt	L-2	SL-1	1	1
25	Au	L-1	SL-5	2	1	55	Pt	L-2	SL-4	1	1
26	Au	L-1	SL-6	2	1	56	Pt	L-2	SL-5	1	1
27	Au	L-1	SL-7	2	1	57	Pt	L-2	SL-6	1	1
28	Au	L-1	SL-7	1	2	58	Pt	L-2	SL-7	1	1
29	Au	L-1	SL-8	2	1	59	Pt	L-2	SL-8	1	1
30	Au	L-1	SL-10	2	1	60	Pt	L-2	SL-10	1	1

10

20

30

40

50

【 0 0 6 6 】

【 表 2 】

Entry	M	L	SL	m	n	Entry	M	L	SL	m	n
61	Pt	L-2	SL-11	1	1	91	Ir	L-3	SL-10	2	1
62	Pt	L-2	SL-12	1	1	92	Ir	L-3	SL-11	2	1
63	Au	L-2	SL-1	2	1	93	Ir	L-3	SL-12	2	1
64	Au	L-2	SL-4	2	1	94	Pt	L-3	-	2	0
65	Au	L-2	SL-5	2	1	95	Pt	L-3	SL-1	1	1
66	Au	L-2	SL-6	2	1	96	Pt	L-3	SL-4	1	1
67	Au	L-2	SL-7	2	1	97	Pt	L-3	SL-5	1	1
68	Au	L-2	SL-7	1	2	98	Pt	L-3	SL-6	1	1
69	Au	L-2	SL-8	2	1	99	Pt	L-3	SL-7	1	1
70	Au	L-2	SL-10	2	1	100	Pt	L-3	SL-8	1	1
71	Au	L-2	SL-11	2	1	101	Pt	L-3	SL-10	1	1
72	Au	L-2	SL-12	2	1	102	Pt	L-3	SL-11	1	1
73	Pd	L-2	-	2	0	103	Pt	L-3	SL-12	1	1
74	Pd	L-2	SL-1	1	1	104	Au	L-3	-	3	0
75	Pd	L-2	SL-4	1	1	105	Au	L-3	SL-1	2	1
76	Pd	L-2	SL-5	1	1	106	Au	L-3	SL-4	2	1
77	Pd	L-2	SL-6	1	1	107	Au	L-3	SL-5	2	1
78	Pd	L-2	SL-7	1	1	108	Au	L-3	SL-6	2	1
79	Pd	L-2	SL-8	1	1	109	Au	L-3	SL-7	2	1
80	Pd	L-2	SL-10	1	1	110	Au	L-3	SL-7	1	2
81	Pd	L-2	SL-11	1	1	111	Au	L-3	SL-8	2	1
82	Pd	L-2	SL-12	1	1	112	Au	L-3	SL-10	2	1
83	Ir	L-3	-	3	0	113	Au	L-3	SL-11	2	1
84	Ir	L-3	SL-1	2	1	114	Au	L-3	SL-12	2	1
85	Ir	L-3	SL-4	2	1	115	Pd	L-3	-	2	0
86	Ir	L-3	SL-5	2	1	116	Pd	L-3	SL-1	1	1
87	Ir	L-3	SL-6	2	1	117	Pd	L-3	SL-4	1	1
88	Ir	L-3	SL-7	2	1	118	Pd	L-3	SL-5	1	1
89	Ir	L-3	SL-7	1	2	119	Pd	L-3	SL-6	1	1
90	Ir	L-3	SL-8	2	1	120	Pd	L-3	SL-7	1	1

10

20

30

40

【 0 0 6 7 】

【 表 3 】

Entry	M	L	SL	m	n	Entry	M	L	SL	m	n
121	Pd	L-3	SL-8	1	1	151	Au	L-4	SL-7	2	1
122	Pd	L-3	SL-10	1	1	152	Au	L-4	SL-7	1	2
123	Pd	L-3	SL-11	1	1	153	Au	L-4	SL-8	2	1
124	Pd	L-3	SL-12	1	1	154	Au	L-4	SL-10	2	1
125	Ir	L-4	-	3	0	155	Au	L-4	SL-11	2	1
126	Ir	L-4	SL-1	2	1	156	Au	L-4	SL-12	2	1
127	Ir	L-4	SL-4	2	1	157	Pd	L-4	-	2	0
128	Ir	L-4	SL-5	2	1	158	Pd	L-4	SL-1	1	1
129	Ir	L-4	SL-6	2	1	159	Pd	L-4	SL-4	1	1
130	Ir	L-4	SL-7	2	1	160	Pd	L-4	SL-5	1	1
131	Ir	L-4	SL-7	1	2	161	Pd	L-4	SL-6	1	1
132	Ir	L-4	SL-8	2	1	162	Pd	L-4	SL-7	1	1
133	Ir	L-4	SL-10	2	1	163	Pd	L-4	SL-8	1	1
134	Ir	L-4	SL-11	2	1	164	Pd	L-4	SL-10	1	1
135	Ir	L-4	SL-12	2	1	165	Pd	L-4	SL-11	1	1
136	Pt	L-4	-	2	0	166	Pd	L-4	SL-12	1	1
137	Pt	L-4	SL-1	1	1	167	Ir	L-5	SL-1	2	1
138	Pt	L-4	SL-4	1	1	168	Ir	L-5	SL-4	2	1
139	Pt	L-4	SL-5	1	1	169	Ir	L-5	SL-5	2	1
140	Pt	L-4	SL-6	1	1	170	Ir	L-5	SL-6	2	1
141	Pt	L-4	SL-7	1	1	171	Ir	L-5	SL-7	2	1
142	Pt	L-4	SL-8	1	1	172	Ir	L-5	SL-7	1	2
143	Pt	L-4	SL-10	1	1	173	Ir	L-5	SL-8	2	1
144	Pt	L-4	SL-11	1	1	174	Ir	L-5	SL-10	2	1
145	Pt	L-4	SL-12	1	1	175	Ir	L-5	SL-11	2	1
146	Au	L-4	-	3	0	176	Ir	L-5	SL-12	2	1
147	Au	L-4	SL-1	2	1	177	Pt	L-5	-	2	0
148	Au	L-4	SL-4	2	1	178	Pt	L-5	SL-1	1	1
149	Au	L-4	SL-5	2	1	179	Pt	L-5	SL-4	1	1
150	Au	L-4	SL-6	2	1	180	Pt	L-5	SL-5	1	1

10

20

30

40

【 0 0 6 8 】

【 表 4 】

Entry	M	L	SL	m	n	Entry	M	L	SL	m	n
181	Pt	L-5	SL-6	1	1	211	Ir	L-6	SL-7	2	1
182	Pt	L-5	SL-7	1	1	212	Ir	L-6	SL-7	1	2
183	Pt	L-5	SL-8	1	1	213	Ir	L-6	SL-8	2	1
184	Pt	L-5	SL-10	1	1	214	Ir	L-6	SL-10	2	1
185	Pt	L-5	SL-11	1	1	215	Ir	L-6	SL-11	2	1
186	Pt	L-5	SL-12	1	1	216	Ir	L-6	SL-12	2	1
187	Au	L-5	SL-1	2	1	217	Pt	L-6	-	2	0
188	Au	L-5	SL-4	2	1	218	Pt	L-6	SL-1	1	1
189	Au	L-5	SL-5	2	1	219	Pt	L-6	SL-4	1	1
190	Au	L-5	SL-6	2	1	220	Pt	L-6	SL-5	1	1
191	Au	L-5	SL-7	2	1	221	Pt	L-6	SL-6	1	1
192	Au	L-5	SL-7	1	2	222	Pt	L-6	SL-7	1	1
193	Au	L-5	SL-8	2	1	223	Pt	L-6	SL-8	1	1
194	Au	L-5	SL-10	2	1	224	Pt	L-6	SL-10	1	1
195	Au	L-5	SL-11	2	1	225	Pt	L-6	SL-11	1	1
196	Au	L-5	SL-12	2	1	226	Pt	L-6	SL-12	1	1
197	Pd	L-5	-	2	0	227	Au	L-6	SL-1	2	1
198	Pd	L-5	SL-1	1	1	228	Au	L-6	SL-4	2	1
199	Pd	L-5	SL-4	1	1	229	Au	L-6	SL-5	2	1
200	Pd	L-5	SL-5	1	1	230	Au	L-6	SL-6	2	1
201	Pd	L-5	SL-6	1	1	231	Au	L-6	SL-7	2	1
202	Pd	L-5	SL-7	1	1	232	Au	L-6	SL-7	1	2
203	Pd	L-5	SL-8	1	1	233	Au	L-6	SL-8	2	1
204	Pd	L-5	SL-10	1	1	234	Au	L-6	SL-10	2	1
205	Pd	L-5	SL-11	1	1	235	Au	L-6	SL-11	2	1
206	Pd	L-5	SL-12	1	1	236	Au	L-6	SL-12	2	1
207	Ir	L-6	SL-1	2	1	237	Pd	L-6	-	2	0
208	Ir	L-6	SL-4	2	1	238	Pd	L-6	SL-1	1	1
209	Ir	L-6	SL-5	2	1	239	Pd	L-6	SL-4	1	1
210	Ir	L-6	SL-6	2	1	240	Pd	L-6	SL-5	1	1

10

20

30

40

【 0 0 6 9 】

【 表 5 】

Entry	M	L	SL	m	n	Entry	M	L	SL	m	n
241	Pd	L-6	SL-6	1	1	271	Au	L-10	SL-5	2	1
242	Pd	L-6	SL-7	1	1	272	Au	L-10	SL-6	2	1
243	Pd	L-6	SL-8	1	1	273	Au	L-10	SL-7	2	1
244	Pd	L-6	SL-10	1	1	274	Au	L-10	SL-7	1	2
245	Pd	L-6	SL-11	1	1	275	Au	L-10	SL-8	2	1
246	Pd	L-6	SL-12	1	1	276	Au	L-10	SL-10	2	1
247	Ir	L-10	-	3	0	277	Au	L-10	SL-11	2	1
248	Ir	L-10	SL-1	2	1	278	Au	L-10	SL-12	2	1
249	Ir	L-10	SL-4	2	1	279	Pd	L-10	-	2	0
250	Ir	L-10	SL-5	2	1	280	Pd	L-10	SL-1	1	1
251	Ir	L-10	SL-6	2	1	281	Pd	L-10	SL-4	1	1
252	Ir	L-10	SL-7	2	1	282	Pd	L-10	SL-5	1	1
253	Ir	L-10	SL-7	1	2	283	Pd	L-10	SL-6	1	1
254	Ir	L-10	SL-8	2	1	284	Pd	L-10	SL-7	1	1
255	Ir	L-10	SL-10	2	1	285	Pd	L-10	SL-8	1	1
256	Ir	L-10	SL-11	2	1	286	Pd	L-10	SL-10	1	1
257	Ir	L-10	SL-12	2	1	287	Pd	L-10	SL-11	1	1
258	Pt	L-10	-	2	0	288	Pd	L-10	SL-12	1	1
259	Pt	L-10	SL-1	1	1	289	Ir	L-11	-	3	0
260	Pt	L-10	SL-4	1	1	290	Ir	L-11	SL-1	2	1
261	Pt	L-10	SL-5	1	1	291	Ir	L-11	SL-4	2	1
262	Pt	L-10	SL-6	1	1	292	Ir	L-11	SL-5	2	1
263	Pt	L-10	SL-7	1	1	293	Ir	L-11	SL-6	2	1
264	Pt	L-10	SL-8	1	1	294	Ir	L-11	SL-7	2	1
265	Pt	L-10	SL-10	1	1	295	Ir	L-11	SL-7	1	2
266	Pt	L-10	SL-11	1	1	296	Ir	L-11	SL-8	2	1
267	Pt	L-10	SL-12	1	1	297	Ir	L-11	SL-10	2	1
268	Au	L-10	-	3	0	298	Ir	L-11	SL-11	2	1
269	Au	L-10	SL-1	2	1	299	Ir	L-11	SL-12	2	1
270	Au	L-10	SL-4	2	1	300	Pt	L-11	-	2	0

10

20

30

40

【 0 0 7 0 】

【 表 6 】

Entry	M	L	SL	m	n	Entry	M	L	SL	m	n
301	Pt	L-11	SL-1	1	1	331	Ir	L-10	-	3	0
302	Pt	L-11	SL-4	1	1	332	Ir	L-12	SL-1	2	1
303	Pt	L-11	SL-5	1	1	333	Ir	L-12	SL-4	2	1
304	Pt	L-11	SL-6	1	1	334	Ir	L-12	SL-5	2	1
305	Pt	L-11	SL-7	1	1	335	Ir	L-12	SL-6	2	1
306	Pt	L-11	SL-8	1	1	336	Ir	L-12	SL-7	2	1
307	Pt	L-11	SL-10	1	1	337	Ir	L-12	SL-7	1	2
308	Pt	L-11	SL-11	1	1	338	Ir	L-12	SL-8	2	1
309	Pt	L-11	SL-12	1	1	339	Ir	L-12	SL-10	2	1
310	Au	L-11	-	3	0	340	Ir	L-12	SL-11	2	1
311	Au	L-11	SL-1	2	1	341	Ir	L-12	SL-12	2	1
312	Au	L-11	SL-4	2	1	342	Pt	L-12	-	2	0
313	Au	L-11	SL-5	2	1	343	Pt	L-12	SL-1	1	1
314	Au	L-11	SL-6	2	1	344	Pt	L-12	SL-4	1	1
315	Au	L-11	SL-7	2	1	345	Pt	L-12	SL-5	1	1
316	Au	L-11	SL-7	1	2	346	Pt	L-12	SL-6	1	1
317	Au	L-11	SL-8	2	1	347	Pt	L-12	SL-7	1	1
318	Au	L-11	SL-10	2	1	348	Pt	L-12	SL-8	1	1
319	Au	L-11	SL-11	2	1	349	Pt	L-12	SL-10	1	1
320	Au	L-11	SL-12	2	1	350	Pt	L-12	SL-11	1	1
321	Pd	L-11	-	2	0	351	Pt	L-12	SL-12	1	1
322	Pd	L-11	SL-1	1	1	352	Au	L-10	-	3	0
323	Pd	L-11	SL-4	1	1	353	Au	L-12	SL-1	2	1
324	Pd	L-11	SL-5	1	1	354	Au	L-12	SL-4	2	1
325	Pd	L-11	SL-6	1	1	355	Au	L-12	SL-5	2	1
326	Pd	L-11	SL-7	1	1	356	Au	L-12	SL-6	2	1
327	Pd	L-11	SL-8	1	1	357	Au	L-12	SL-7	2	1
328	Pd	L-11	SL-10	1	1	358	Au	L-12	SL-7	1	2
329	Pd	L-11	SL-11	1	1	359	Au	L-12	SL-8	2	1
330	Pd	L-11	SL-12	1	1	360	Au	L-12	SL-10	2	1

10

20

30

40

【 0 0 7 1 】

【 表 7 】

Entry	M	L	SL	m	n	Entry	M	L	SL	m	n
361	Au	L-12	SL-11	2	1	391	Pt	L-13	SL-10	1	1
362	Au	L-12	SL-12	2	1	392	Pt	L-13	SL-11	1	1
363	Pd	L-12	-	2	0	393	Pt	L-13	SL-12	1	1
364	Pd	L-12	SL-1	1	1	394	Au	L-13	-	3	0
365	Pd	L-12	SL-4	1	1	395	Au	L-13	SL-1	2	1
366	Pd	L-12	SL-5	1	1	396	Au	L-13	SL-4	2	1
367	Pd	L-12	SL-6	1	1	397	Au	L-13	SL-5	2	1
368	Pd	L-12	SL-7	1	1	398	Au	L-13	SL-6	2	1
369	Pd	L-12	SL-8	1	1	399	Au	L-13	SL-7	2	1
370	Pd	L-12	SL-10	1	1	400	Au	L-13	SL-7	1	2
371	Pd	L-12	SL-11	1	1	401	Au	L-13	SL-8	2	1
372	Pd	L-12	SL-12	1	1	402	Au	L-13	SL-10	2	1
373	Ir	L-13	-	3	0	403	Au	L-13	SL-11	2	1
374	Ir	L-13	SL-1	2	1	404	Au	L-13	SL-12	2	1
375	Ir	L-13	SL-4	2	1	405	Pd	L-13	-	2	0
376	Ir	L-13	SL-5	2	1	406	Pd	L-13	SL-1	1	1
377	Ir	L-13	SL-6	2	1	407	Pd	L-13	SL-4	1	1
378	Ir	L-13	SL-7	2	1	408	Pd	L-13	SL-5	1	1
379	Ir	L-13	SL-7	1	2	409	Pd	L-13	SL-6	1	1
380	Ir	L-13	SL-8	2	1	410	Pd	L-13	SL-7	1	1
381	Ir	L-13	SL-10	2	1	411	Pd	L-13	SL-8	1	1
382	Ir	L-13	SL-11	2	1	412	Pd	L-13	SL-10	1	1
383	Ir	L-13	SL-12	2	1	413	Pd	L-13	SL-11	1	1
384	Pt	L-13	-	2	0	414	Pd	L-13	SL-12	1	1
385	Pt	L-13	SL-1	1	1	415	Ir	L-17	-	3	0
386	Pt	L-13	SL-4	1	1	416	Ir	L-17	SL-1	2	1
387	Pt	L-13	SL-5	1	1	417	Ir	L-17	SL-4	2	1
388	Pt	L-13	SL-6	1	1	418	Ir	L-17	SL-5	2	1
389	Pt	L-13	SL-7	1	1	419	Ir	L-17	SL-6	2	1
390	Pt	L-13	SL-8	1	1	420	Ir	L-17	SL-7	2	1

10

20

30

40

【 0 0 7 2 】

【 表 8 】

Entry	M	L	SL	m	n	Entry	M	L	SL	m	n
421	Ir	L-17	SL-7	1	2	451	Pd	L-17	SL-6	1	1
422	Ir	L-17	SL-8	2	1	452	Pd	L-17	SL-7	1	1
423	Ir	L-17	SL-10	2	1	453	Pd	L-17	SL-8	1	1
424	Ir	L-17	SL-11	2	1	454	Pd	L-17	SL-10	1	1
425	Ir	L-17	SL-12	2	1	455	Pd	L-17	SL-11	1	1
426	Pt	L-17	-	2	0	456	Pd	L-17	SL-12	1	1
427	Pt	L-17	SL-1	1	1	457	Ir	L-24	-	3	0
428	Pt	L-17	SL-4	1	1	458	Ir	L-24	SL-1	2	1
429	Pt	L-17	SL-5	1	1	459	Ir	L-24	SL-4	2	1
430	Pt	L-17	SL-6	1	1	460	Ir	L-24	SL-5	2	1
431	Pt	L-17	SL-7	1	1	461	Ir	L-24	SL-6	2	1
432	Pt	L-17	SL-8	1	1	462	Ir	L-24	SL-7	2	1
433	Pt	L-17	SL-10	1	1	463	Ir	L-24	SL-7	1	2
434	Pt	L-17	SL-11	1	1	464	Ir	L-24	SL-8	2	1
435	Pt	L-17	SL-12	1	1	465	Ir	L-24	SL-10	2	1
436	Au	L-17	-	3	0	466	Ir	L-24	SL-11	2	1
437	Au	L-17	SL-1	2	1	467	Ir	L-24	SL-12	2	1
438	Au	L-17	SL-4	2	1	468	Pt	L-24	-	2	0
439	Au	L-17	SL-5	2	1	469	Pt	L-24	SL-1	1	1
440	Au	L-17	SL-6	2	1	470	Pt	L-24	SL-4	1	1
441	Au	L-17	SL-7	2	1	471	Pt	L-24	SL-5	1	1
442	Au	L-17	SL-7	1	2	472	Pt	L-24	SL-6	1	1
443	Au	L-17	SL-8	2	1	473	Pt	L-24	SL-7	1	1
444	Au	L-17	SL-10	2	1	474	Pt	L-24	SL-8	1	1
445	Au	L-17	SL-11	2	1	475	Pt	L-24	SL-10	1	1
446	Au	L-17	SL-12	2	1	476	Pt	L-24	SL-11	1	1
447	Pd	L-17	-	2	0	477	Pt	L-24	SL-12	1	1
448	Pd	L-17	SL-1	1	1	478	Au	L-24	-	3	0
449	Pd	L-17	SL-4	1	1	479	Au	L-24	SL-1	2	1
450	Pd	L-17	SL-5	1	1	480	Au	L-24	SL-4	2	1

10

20

30

40

【 0 0 7 3 】

【 表 9 】

Entry	M	L	SL	m	n	Entry	M	L	SL	m	n
481	Au	L-24	SL-5	2	1	511	Pt	L-28	SL-1	1	1
482	Au	L-24	SL-6	2	1	512	Pt	L-28	SL-4	1	1
483	Au	L-24	SL-7	2	1	513	Pt	L-28	SL-5	1	1
484	Au	L-24	SL-7	1	2	514	Pt	L-28	SL-6	1	1
485	Au	L-24	SL-8	2	1	515	Pt	L-28	SL-7	1	1
486	Au	L-24	SL-10	2	1	516	Pt	L-28	SL-8	1	1
487	Au	L-24	SL-11	2	1	517	Pt	L-28	SL-10	1	1
488	Au	L-24	SL-12	2	1	518	Pt	L-28	SL-11	1	1
489	Pd	L-24	-	2	0	519	Pt	L-28	SL-12	1	1
490	Pd	L-24	SL-1	1	1	520	Au	L-28	-	3	0
491	Pd	L-24	SL-4	1	1	521	Au	L-28	SL-1	2	1
492	Pd	L-24	SL-5	1	1	522	Au	L-28	SL-4	2	1
493	Pd	L-24	SL-6	1	1	523	Au	L-28	SL-5	2	1
494	Pd	L-24	SL-7	1	1	524	Au	L-28	SL-6	2	1
495	Pd	L-24	SL-8	1	1	525	Au	L-28	SL-7	2	1
496	Pd	L-24	SL-10	1	1	526	Au	L-28	SL-7	1	2
497	Pd	L-24	SL-11	1	1	527	Au	L-28	SL-8	2	1
498	Pd	L-24	SL-12	1	1	528	Au	L-28	SL-10	2	1
499	Ir	L-28	-	3	0	529	Au	L-28	SL-11	2	1
500	Ir	L-28	SL-1	2	1	530	Au	L-28	SL-12	2	1
501	Ir	L-28	SL-4	2	1	531	Pd	L-28	-	2	0
502	Ir	L-28	SL-5	2	1	532	Pd	L-28	SL-1	1	1
503	Ir	L-28	SL-6	2	1	533	Pd	L-28	SL-4	1	1
504	Ir	L-28	SL-7	2	1	534	Pd	L-28	SL-5	1	1
505	Ir	L-28	SL-7	1	2	535	Pd	L-28	SL-6	1	1
506	Ir	L-28	SL-8	2	1	536	Pd	L-28	SL-7	1	1
507	Ir	L-28	SL-10	2	1	537	Pd	L-28	SL-8	1	1
508	Ir	L-28	SL-11	2	1	538	Pd	L-28	SL-10	1	1
509	Ir	L-28	SL-12	2	1	539	Pd	L-28	SL-11	1	1
510	Pt	L-28	-	2	0	540	Pd	L-28	SL-12	1	1

10

20

30

40

【 0 0 7 4 】

【 表 1 0 】

Entry	M	L	SL	m	n	Entry	M	L	SL	m	n
541	Ir	L-45	-	3	0	571	Au	L-45	SL-11	2	1
542	Ir	L-45	SL-1	2	1	572	Au	L-45	SL-12	2	1
543	Ir	L-45	SL-4	2	1	573	Pd	L-45	-	2	0
544	Ir	L-45	SL-5	2	1	574	Pd	L-45	SL-1	1	1
545	Ir	L-45	SL-6	2	1	575	Pd	L-45	SL-4	1	1
546	Ir	L-45	SL-7	2	1	576	Pd	L-45	SL-5	1	1
547	Ir	L-45	SL-7	1	2	577	Pd	L-45	SL-6	1	1
548	Ir	L-45	SL-8	2	1	578	Pd	L-45	SL-7	1	1
549	Ir	L-45	SL-10	2	1	579	Pd	L-45	SL-8	1	1
550	Ir	L-45	SL-11	2	1	580	Pd	L-45	SL-10	1	1
551	Ir	L-45	SL-12	2	1	581	Pd	L-45	SL-11	1	1
552	Pt	L-45	-	2	0	582	Pd	L-45	SL-12	1	1
553	Pt	L-45	SL-1	1	1	583	Ir	L-49	-	3	0
554	Pt	L-45	SL-4	1	1	584	Ir	L-49	SL-1	2	1
555	Pt	L-45	SL-5	1	1	585	Ir	L-49	SL-4	2	1
556	Pt	L-45	SL-6	1	1	586	Ir	L-49	SL-5	2	1
557	Pt	L-45	SL-7	1	1	587	Ir	L-49	SL-6	2	1
558	Pt	L-45	SL-8	1	1	588	Ir	L-49	SL-7	2	1
559	Pt	L-45	SL-10	1	1	589	Ir	L-49	SL-7	1	2
560	Pt	L-45	SL-11	1	1	590	Ir	L-49	SL-8	2	1
561	Pt	L-45	SL-12	1	1	591	Ir	L-49	SL-10	2	1
562	Au	L-45	-	3	0	592	Ir	L-49	SL-11	2	1
563	Au	L-45	SL-1	2	1	593	Ir	L-49	SL-12	2	1
564	Au	L-45	SL-4	2	1	594	Pt	L-49	-	2	0
565	Au	L-45	SL-5	2	1	595	Pt	L-49	SL-1	1	1
566	Au	L-45	SL-6	2	1	596	Pt	L-49	SL-4	1	1
567	Au	L-45	SL-7	2	1	597	Pt	L-49	SL-5	1	1
568	Au	L-45	SL-7	1	2	598	Pt	L-49	SL-6	1	1
569	Au	L-45	SL-8	2	1	599	Pt	L-49	SL-7	1	1
570	Au	L-45	SL-10	2	1	600	Pt	L-49	SL-8	1	1

10

20

30

40

【 0 0 7 5 】

【 表 1 1 】

Entry	M	L	SL	m	n	Entry	M	L	SL	m	n
601	Pt	L-49	SL-10	1	1	631	Ir	L-52	SL-7	1	2
602	Pt	L-49	SL-11	1	1	632	Ir	L-52	SL-8	2	1
603	Pt	L-49	SL-12	1	1	633	Ir	L-52	SL-10	2	1
604	Au	L-49	-	3	0	634	Ir	L-52	SL-11	2	1
605	Au	L-49	SL-1	2	1	635	Ir	L-52	SL-12	2	1
606	Au	L-49	SL-4	2	1	636	Pt	L-52	-	2	0
607	Au	L-49	SL-5	2	1	637	Pt	L-52	SL-1	1	1
608	Au	L-49	SL-6	2	1	638	Pt	L-52	SL-4	1	1
609	Au	L-49	SL-7	2	1	639	Pt	L-52	SL-5	1	1
610	Au	L-49	SL-7	1	2	640	Pt	L-52	SL-6	1	1
611	Au	L-49	SL-8	2	1	641	Pt	L-52	SL-7	1	1
612	Au	L-49	SL-10	2	1	642	Pt	L-52	SL-8	1	1
613	Au	L-49	SL-11	2	1	643	Pt	L-52	SL-10	1	1
614	Au	L-49	SL-12	2	1	644	Pt	L-52	SL-11	1	1
615	Pd	L-49	-	2	0	645	Pt	L-52	SL-12	1	1
616	Pd	L-49	SL-1	1	1	646	Au	L-52	-	3	0
617	Pd	L-49	SL-4	1	1	647	Au	L-52	SL-1	2	1
618	Pd	L-49	SL-5	1	1	648	Au	L-52	SL-4	2	1
619	Pd	L-49	SL-6	1	1	649	Au	L-52	SL-5	2	1
620	Pd	L-49	SL-7	1	1	650	Au	L-52	SL-6	2	1
621	Pd	L-49	SL-8	1	1	651	Au	L-52	SL-7	2	1
622	Pd	L-49	SL-10	1	1	652	Au	L-52	SL-7	1	2
623	Pd	L-49	SL-11	1	1	653	Au	L-52	SL-8	2	1
624	Pd	L-49	SL-12	1	1	654	Au	L-52	SL-10	2	1
625	Ir	L-52	-	3	0	655	Au	L-52	SL-11	2	1
626	Ir	L-52	SL-1	2	1	656	Au	L-52	SL-12	2	1
627	Ir	L-52	SL-4	2	1	657	Pd	L-52	-	2	0
628	Ir	L-52	SL-5	2	1	658	Pd	L-52	SL-1	1	1
629	Ir	L-52	SL-6	2	1	659	Pd	L-52	SL-4	1	1
630	Ir	L-52	SL-7	2	1	660	Pd	L-52	SL-5	1	1

10

20

30

40

【 0 0 7 6 】

【 表 1 2 】

Entry	M	L	SL	m	n	Entry	M	L	SL	m	n
661	Pd	L-52	SL-6	1	1	691	Au	L-55	SL-7	2	1
662	Pd	L-52	SL-7	1	1	692	Au	L-55	SL-7	1	2
663	Pd	L-52	SL-8	1	1	693	Au	L-55	SL-8	2	1
664	Pd	L-52	SL-10	1	1	694	Au	L-55	SL-10	2	1
665	Pd	L-52	SL-11	1	1	695	Au	L-55	SL-11	2	1
666	Pd	L-52	SL-12	1	1	696	Au	L-55	SL-12	2	1
667	Ir	L-55	SL-1	2	1	697	Pd	L-55	-	2	0
668	Ir	L-55	SL-4	2	1	698	Pd	L-55	SL-1	1	1
669	Ir	L-55	SL-5	2	1	699	Pd	L-55	SL-4	1	1
670	Ir	L-55	SL-6	2	1	700	Pd	L-55	SL-5	1	1
671	Ir	L-55	SL-7	2	1	701	Pd	L-55	SL-6	1	1
672	Ir	L-55	SL-7	1	2	702	Pd	L-55	SL-7	1	1
673	Ir	L-55	SL-8	2	1	703	Pd	L-55	SL-8	1	1
674	Ir	L-55	SL-10	2	1	704	Pd	L-55	SL-10	1	1
675	Ir	L-55	SL-11	2	1	705	Pd	L-55	SL-11	1	1
676	Ir	L-55	SL-12	2	1	706	Pd	L-55	SL-12	1	1
677	Pt	L-55	-	2	0	707	Ir	L-100	SL-1	2	1
678	Pt	L-55	SL-1	1	1	708	Ir	L-100	SL-4	2	1
679	Pt	L-55	SL-4	1	1	709	Ir	L-100	SL-5	2	1
680	Pt	L-55	SL-5	1	1	710	Ir	L-100	SL-6	2	1
681	Pt	L-55	SL-6	1	1	711	Ir	L-100	SL-7	2	1
682	Pt	L-55	SL-7	1	1	712	Ir	L-100	SL-7	1	2
683	Pt	L-55	SL-8	1	1	713	Ir	L-100	SL-8	2	1
684	Pt	L-55	SL-10	1	1	714	Ir	L-100	SL-10	2	1
685	Pt	L-55	SL-11	1	1	715	Ir	L-100	SL-11	2	1
686	Pt	L-55	SL-12	1	1	716	Ir	L-100	SL-12	2	1
687	Au	L-55	SL-1	2	1	717	Pt	L-100	-	2	0
688	Au	L-55	SL-4	2	1	718	Pt	L-100	SL-1	1	1
689	Au	L-55	SL-5	2	1	719	Pt	L-100	SL-4	1	1
690	Au	L-55	SL-6	2	1	720	Pt	L-100	SL-5	1	1

10

20

30

40

【 0 0 7 7 】

【 表 1 3 】

Entry	M	L	SL	m	n	Entry	M	L	SL	m	n
721	Pt	L-100	SL-6	1	1	751	Ir	L-101	SL-7	2	1
722	Pt	L-100	SL-7	1	1	752	Ir	L-101	SL-7	1	2
723	Pt	L-100	SL-8	1	1	753	Ir	L-101	SL-8	2	1
724	Pt	L-100	SL-10	1	1	754	Ir	L-101	SL-10	2	1
725	Pt	L-100	SL-11	1	1	755	Ir	L-101	SL-11	2	1
726	Pt	L-100	SL-12	1	1	756	Ir	L-101	SL-12	2	1
727	Au	L-100	SL-1	2	1	757	Pt	L-101	-	2	0
728	Au	L-100	SL-4	2	1	758	Pt	L-101	SL-1	1	1
729	Au	L-100	SL-5	2	1	759	Pt	L-101	SL-4	1	1
730	Au	L-100	SL-6	2	1	760	Pt	L-101	SL-5	1	1
731	Au	L-100	SL-7	2	1	761	Pt	L-101	SL-6	1	1
732	Au	L-100	SL-7	1	2	762	Pt	L-101	SL-7	1	1
733	Au	L-100	SL-8	2	1	763	Pt	L-101	SL-8	1	1
734	Au	L-100	SL-10	2	1	764	Pt	L-101	SL-10	1	1
735	Au	L-100	SL-11	2	1	765	Pt	L-101	SL-11	1	1
736	Au	L-100	SL-12	2	1	766	Pt	L-101	SL-12	1	1
737	Pd	L-100	-	2	0	767	Au	L-101	SL-1	2	1
738	Pd	L-100	SL-1	1	1	768	Au	L-101	SL-4	2	1
739	Pd	L-100	SL-4	1	1	769	Au	L-101	SL-5	2	1
740	Pd	L-100	SL-5	1	1	770	Au	L-101	SL-6	2	1
741	Pd	L-100	SL-6	1	1	771	Au	L-101	SL-7	2	1
742	Pd	L-100	SL-7	1	1	772	Au	L-101	SL-7	1	2
743	Pd	L-100	SL-8	1	1	773	Au	L-101	SL-8	2	1
744	Pd	L-100	SL-10	1	1	774	Au	L-101	SL-10	2	1
745	Pd	L-100	SL-11	1	1	775	Au	L-101	SL-11	2	1
746	Pd	L-100	SL-12	1	1	776	Au	L-101	SL-12	2	1
747	Ir	L-101	SL-1	2	1	777	Pd	L-101	-	2	0
748	Ir	L-101	SL-4	2	1	778	Pd	L-101	SL-1	1	1
749	Ir	L-101	SL-5	2	1	779	Pd	L-101	SL-4	1	1
750	Ir	L-101	SL-6	2	1	780	Pd	L-101	SL-5	1	1

10

20

30

40

【 0 0 7 8 】

【 表 1 4 】

Entry	M	L	SL	m	n	Entry	M	L	SL	m	n
781	Pd	L-101	SL-6	1	1	811	Au	L-102	SL-7	2	1
782	Pd	L-101	SL-7	1	1	812	Au	L-102	SL-7	1	2
783	Pd	L-101	SL-8	1	1	813	Au	L-102	SL-8	2	1
784	Pd	L-101	SL-10	1	1	814	Au	L-102	SL-10	2	1
785	Pd	L-101	SL-11	1	1	815	Au	L-102	SL-11	2	1
786	Pd	L-101	SL-12	1	1	816	Au	L-102	SL-12	2	1
787	Ir	L-102	SL-1	2	1	817	Pd	L-102	-	2	0
788	Ir	L-102	SL-4	2	1	818	Pd	L-102	SL-1	1	1
789	Ir	L-102	SL-5	2	1	819	Pd	L-102	SL-4	1	1
790	Ir	L-102	SL-6	2	1	820	Pd	L-102	SL-5	1	1
791	Ir	L-102	SL-7	2	1	821	Pd	L-102	SL-6	1	1
792	Ir	L-102	SL-7	1	2	822	Pd	L-102	SL-7	1	1
793	Ir	L-102	SL-8	2	1	823	Pd	L-102	SL-8	1	1
794	Ir	L-102	SL-10	2	1	824	Pd	L-102	SL-10	1	1
795	Ir	L-102	SL-11	2	1	825	Pd	L-102	SL-11	1	1
796	Ir	L-102	SL-12	2	1	826	Pd	L-102	SL-12	1	1
797	Pt	L-102	-	2	0	827	Ir	L-104	SL-1	2	1
798	Pt	L-102	SL-1	1	1	828	Ir	L-104	SL-4	2	1
799	Pt	L-102	SL-4	1	1	829	Ir	L-104	SL-5	2	1
800	Pt	L-102	SL-5	1	1	830	Ir	L-104	SL-6	2	1
801	Pt	L-102	SL-6	1	1	831	Ir	L-104	SL-7	2	1
802	Pt	L-102	SL-7	1	1	832	Ir	L-104	SL-7	1	2
803	Pt	L-102	SL-8	1	1	833	Ir	L-104	SL-8	2	1
804	Pt	L-102	SL-10	1	1	834	Ir	L-104	SL-10	2	1
805	Pt	L-102	SL-11	1	1	835	Ir	L-104	SL-11	2	1
806	Pt	L-102	SL-12	1	1	836	Ir	L-104	SL-12	2	1
807	Au	L-102	SL-1	2	1	837	Pt	L-104	-	2	0
808	Au	L-102	SL-4	2	1	838	Pt	L-104	SL-1	1	1
809	Au	L-102	SL-5	2	1	839	Pt	L-104	SL-4	1	1
810	Au	L-102	SL-6	2	1	840	Pt	L-104	SL-5	1	1

10

20

30

40

【 0 0 7 9 】

【 表 1 5 】

Entry	M	L	SL	m	n	Entry	M	L	SL	m	n
841	Pt	L-104	SL-6	1	1	871	Ir	L-106	SL-6	2	1
842	Pt	L-104	SL-7	1	1	872	Ir	L-106	SL-7	2	1
843	Pt	L-104	SL-8	1	1	873	Ir	L-106	SL-7	1	2
844	Pt	L-104	SL-10	1	1	874	Ir	L-106	SL-8	2	1
845	Pt	L-104	SL-11	1	1	875	Ir	L-106	SL-10	2	1
846	Pt	L-104	SL-12	1	1	876	Ir	L-106	SL-11	2	1
847	Au	L-104	SL-1	2	1	877	Ir	L-106	SL-12	2	1
848	Au	L-104	SL-4	2	1	878	Pt	L-106	-	2	0
849	Au	L-104	SL-5	2	1	879	Pt	L-106	SL-1	1	1
850	Au	L-104	SL-6	2	1	880	Pt	L-106	SL-4	1	1
851	Au	L-104	SL-7	2	1	881	Pt	L-106	SL-5	1	1
852	Au	L-104	SL-7	1	2	882	Pt	L-106	SL-6	1	1
853	Au	L-104	SL-8	2	1	883	Pt	L-106	SL-7	1	1
854	Au	L-104	SL-10	2	1	884	Pt	L-106	SL-8	1	1
855	Au	L-104	SL-11	2	1	885	Pt	L-106	SL-10	1	1
856	Au	L-104	SL-12	2	1	886	Pt	L-106	SL-11	1	1
857	Pd	L-104	-	2	0	887	Pt	L-106	SL-12	1	1
858	Pd	L-104	SL-1	1	1	888	Au	L-106	-	3	0
859	Pd	L-104	SL-4	1	1	889	Au	L-106	SL-1	2	1
860	Pd	L-104	SL-5	1	1	890	Au	L-106	SL-4	2	1
861	Pd	L-104	SL-6	1	1	891	Au	L-106	SL-5	2	1
862	Pd	L-104	SL-7	1	1	892	Au	L-106	SL-6	2	1
863	Pd	L-104	SL-8	1	1	893	Au	L-106	SL-7	2	1
864	Pd	L-104	SL-10	1	1	894	Au	L-106	SL-7	1	2
865	Pd	L-104	SL-11	1	1	895	Au	L-106	SL-8	2	1
866	Pd	L-104	SL-12	1	1	896	Au	L-106	SL-10	2	1
867	Ir	L-106	-	3	0	897	Au	L-106	SL-11	2	1
868	Ir	L-106	SL-1	2	1	898	Au	L-106	SL-12	2	1
869	Ir	L-106	SL-4	2	1	899	Pd	L-106	-	2	0
870	Ir	L-106	SL-5	2	1	900	Pd	L-106	SL-1	1	1

10

20

30

40

【 0 0 8 0 】

【 表 1 6 】

Entry	M	L	SL	m	n	Entry	M	L	SL	m	n
901	Pd	L-106	SL-4	1	1	931	Au	L-107	SL-1	2	1
902	Pd	L-106	SL-5	1	1	932	Au	L-107	SL-4	2	1
903	Pd	L-106	SL-6	1	1	933	Au	L-107	SL-5	2	1
904	Pd	L-106	SL-7	1	1	934	Au	L-107	SL-6	2	1
905	Pd	L-106	SL-8	1	1	935	Au	L-107	SL-7	2	1
906	Pd	L-106	SL-10	1	1	936	Au	L-107	SL-7	1	2
907	Pd	L-106	SL-11	1	1	937	Au	L-107	SL-8	2	1
908	Pd	L-106	SL-12	1	1	938	Au	L-107	SL-10	2	1
909	Ir	L-107	-	3	0	939	Au	L-107	SL-11	2	1
910	Ir	L-107	SL-1	2	1	940	Au	L-107	SL-12	2	1
911	Ir	L-107	SL-4	2	1	941	Pd	L-107	-	2	0
912	Ir	L-107	SL-5	2	1	942	Pd	L-107	SL-1	1	1
913	Ir	L-107	SL-6	2	1	943	Pd	L-107	SL-4	1	1
914	Ir	L-107	SL-7	2	1	944	Pd	L-107	SL-5	1	1
915	Ir	L-107	SL-7	1	2	945	Pd	L-107	SL-6	1	1
916	Ir	L-107	SL-8	2	1	946	Pd	L-107	SL-7	1	1
917	Ir	L-107	SL-10	2	1	947	Pd	L-107	SL-8	1	1
918	Ir	L-107	SL-11	2	1	948	Pd	L-107	SL-10	1	1
919	Ir	L-107	SL-12	2	1	949	Pd	L-107	SL-11	1	1
920	Pt	L-107	-	2	0	950	Pd	L-107	SL-12	1	1
921	Pt	L-107	SL-1	1	1	951	Ir	L-108	-	3	0
922	Pt	L-107	SL-4	1	1	952	Ir	L-108	SL-1	2	1
923	Pt	L-107	SL-5	1	1	953	Ir	L-108	SL-4	2	1
924	Pt	L-107	SL-6	1	1	954	Ir	L-108	SL-5	2	1
925	Pt	L-107	SL-7	1	1	955	Ir	L-108	SL-6	2	1
926	Pt	L-107	SL-8	1	1	956	Ir	L-108	SL-7	2	1
927	Pt	L-107	SL-10	1	1	957	Ir	L-108	SL-7	1	2
928	Pt	L-107	SL-11	1	1	958	Ir	L-108	SL-8	2	1
929	Pt	L-107	SL-12	1	1	959	Ir	L-108	SL-10	2	1
930	Au	L-107	-	3	0	960	Ir	L-108	SL-11	2	1

10

20

30

40

【 0 0 8 1 】

【 表 1 7 】

Entry	M	L	SL	m	n	Entry	M	L	SL	m	n
961	Ir	L-108	SL-12	2	1	991	Pd	L-108	SL-11	1	1
962	Pt	L-108	-	2	0	992	Pd	L-108	SL-12	1	1
963	Pt	L-108	SL-1	1	1	993	Ir	L-109	-	3	0
964	Pt	L-108	SL-4	1	1	994	Ir	L-109	SL-1	2	1
965	Pt	L-108	SL-5	1	1	995	Ir	L-109	SL-4	2	1
966	Pt	L-108	SL-6	1	1	996	Ir	L-109	SL-5	2	1
967	Pt	L-108	SL-7	1	1	997	Ir	L-109	SL-6	2	1
968	Pt	L-108	SL-8	1	1	998	Ir	L-109	SL-7	2	1
969	Pt	L-108	SL-10	1	1	999	Ir	L-109	SL-7	1	2
970	Pt	L-108	SL-11	1	1	1000	Ir	L-109	SL-8	2	1
971	Pt	L-108	SL-12	1	1	1001	Ir	L-109	SL-10	2	1
972	Au	L-108	-	3	0	1002	Ir	L-109	SL-11	2	1
973	Au	L-108	SL-1	2	1	1003	Ir	L-109	SL-12	2	1
974	Au	L-108	SL-4	2	1	1004	Pt	L-109	-	2	0
975	Au	L-108	SL-5	2	1	1005	Pt	L-109	SL-1	1	1
976	Au	L-108	SL-6	2	1	1006	Pt	L-109	SL-4	1	1
977	Au	L-108	SL-7	2	1	1007	Pt	L-109	SL-5	1	1
978	Au	L-108	SL-7	1	2	1008	Pt	L-109	SL-6	1	1
979	Au	L-108	SL-8	2	1	1009	Pt	L-109	SL-7	1	1
980	Au	L-108	SL-10	2	1	1010	Pt	L-109	SL-8	1	1
981	Au	L-108	SL-11	2	1	1011	Pt	L-109	SL-10	1	1
982	Au	L-108	SL-12	2	1	1012	Pt	L-109	SL-11	1	1
983	Pd	L-108	-	2	0	1013	Pt	L-109	SL-12	1	1
984	Pd	L-108	SL-1	1	1	1014	Au	L-109	-	3	0
985	Pd	L-108	SL-4	1	1	1015	Au	L-109	SL-1	2	1
986	Pd	L-108	SL-5	1	1	1016	Au	L-109	SL-4	2	1
987	Pd	L-108	SL-6	1	1	1017	Au	L-109	SL-5	2	1
988	Pd	L-108	SL-7	1	1	1018	Au	L-109	SL-6	2	1
989	Pd	L-108	SL-8	1	1	1019	Au	L-109	SL-7	2	1
990	Pd	L-108	SL-10	1	1	1020	Au	L-109	SL-7	1	2

10

20

30

40

【 0 0 8 2 】

【 表 1 8 】

Entry	M	L	SL	m	n	Entry	M	L	SL	m	n
1021	Au	L-109	SL-8	2	1	1051	Pt	L-110	SL-7	1	1
1022	Au	L-109	SL-10	2	1	1052	Pt	L-110	SL-8	1	1
1023	Au	L-109	SL-11	2	1	1053	Pt	L-110	SL-10	1	1
1024	Au	L-109	SL-12	2	1	1054	Pt	L-110	SL-11	1	1
1025	Pd	L-109	-	2	0	1055	Pt	L-110	SL-12	1	1
1026	Pd	L-109	SL-1	1	1	1056	Au	L-110	-	3	0
1027	Pd	L-109	SL-4	1	1	1057	Au	L-110	SL-1	2	1
1028	Pd	L-109	SL-5	1	1	1058	Au	L-110	SL-4	2	1
1029	Pd	L-109	SL-6	1	1	1059	Au	L-110	SL-5	2	1
1030	Pd	L-109	SL-7	1	1	1060	Au	L-110	SL-6	2	1
1031	Pd	L-109	SL-8	1	1	1061	Au	L-110	SL-7	2	1
1032	Pd	L-109	SL-10	1	1	1062	Au	L-110	SL-7	1	2
1033	Pd	L-109	SL-11	1	1	1063	Au	L-110	SL-8	2	1
1034	Pd	L-109	SL-12	1	1	1064	Au	L-110	SL-10	2	1
1035	Ir	L-110	-	3	0	1065	Au	L-110	SL-11	2	1
1036	Ir	L-110	SL-1	2	1	1066	Au	L-110	SL-12	2	1
1037	Ir	L-110	SL-4	2	1	1067	Pd	L-110	-	2	0
1038	Ir	L-110	SL-5	2	1	1068	Pd	L-110	SL-1	1	1
1039	Ir	L-110	SL-6	2	1	1069	Pd	L-110	SL-4	1	1
1040	Ir	L-110	SL-7	2	1	1070	Pd	L-110	SL-5	1	1
1041	Ir	L-110	SL-7	1	2	1071	Pd	L-110	SL-6	1	1
1042	Ir	L-110	SL-8	2	1	1072	Pd	L-110	SL-7	1	1
1043	Ir	L-110	SL-10	2	1	1073	Pd	L-110	SL-8	1	1
1044	Ir	L-110	SL-11	2	1	1074	Pd	L-110	SL-10	1	1
1045	Ir	L-110	SL-12	2	1	1075	Pd	L-110	SL-11	1	1
1046	Pt	L-110	-	2	0	1076	Pd	L-110	SL-12	1	1
1047	Pt	L-110	SL-1	1	1	1077	Ir	L-114	-	3	0
1048	Pt	L-110	SL-4	1	1	1078	Ir	L-114	SL-1	2	1
1049	Pt	L-110	SL-5	1	1	1079	Ir	L-114	SL-4	2	1
1050	Pt	L-110	SL-6	1	1	1080	Ir	L-114	SL-5	2	1

10

20

30

40

【 0 0 8 3 】

【 表 1 9 】

Entry	M	L	SL	m	n	Entry	M	L	SL	m	n
1081	Ir	L-114	SL-6	2	1	1111	Pd	L-114	SL-4	1	1
1082	Ir	L-114	SL-7	2	1	1112	Pd	L-114	SL-5	1	1
1083	Ir	L-114	SL-7	1	2	1113	Pd	L-114	SL-6	1	1
1084	Ir	L-114	SL-8	2	1	1114	Pd	L-114	SL-7	1	1
1085	Ir	L-114	SL-10	2	1	1115	Pd	L-114	SL-8	1	1
1086	Ir	L-114	SL-11	2	1	1116	Pd	L-114	SL-10	1	1
1087	Ir	L-114	SL-12	2	1	1117	Pd	L-114	SL-11	1	1
1088	Pt	L-114	-	2	0	1118	Pd	L-114	SL-12	1	1
1089	Pt	L-114	SL-1	1	1	1119	Ir	L-119	-	3	0
1090	Pt	L-114	SL-4	1	1	1120	Ir	L-119	SL-1	2	1
1091	Pt	L-114	SL-5	1	1	1121	Ir	L-119	SL-4	2	1
1092	Pt	L-114	SL-6	1	1	1122	Ir	L-119	SL-5	2	1
1093	Pt	L-114	SL-7	1	1	1123	Ir	L-119	SL-6	2	1
1094	Pt	L-114	SL-8	1	1	1124	Ir	L-119	SL-7	2	1
1095	Pt	L-114	SL-10	1	1	1125	Ir	L-119	SL-7	1	2
1096	Pt	L-114	SL-11	1	1	1126	Ir	L-119	SL-8	2	1
1097	Pt	L-114	SL-12	1	1	1127	Ir	L-119	SL-10	2	1
1098	Au	L-114	-	3	0	1128	Ir	L-119	SL-11	2	1
1099	Au	L-114	SL-1	2	1	1129	Ir	L-119	SL-12	2	1
1100	Au	L-114	SL-4	2	1	1130	Pt	L-119	-	2	0
1101	Au	L-114	SL-5	2	1	1131	Pt	L-119	SL-1	1	1
1102	Au	L-114	SL-6	2	1	1132	Pt	L-119	SL-4	1	1
1103	Au	L-114	SL-7	2	1	1133	Pt	L-119	SL-5	1	1
1104	Au	L-114	SL-7	1	2	1134	Pt	L-119	SL-6	1	1
1105	Au	L-114	SL-8	2	1	1135	Pt	L-119	SL-7	1	1
1106	Au	L-114	SL-10	2	1	1136	Pt	L-119	SL-8	1	1
1107	Au	L-114	SL-11	2	1	1137	Pt	L-119	SL-10	1	1
1108	Au	L-114	SL-12	2	1	1138	Pt	L-119	SL-11	1	1
1109	Pd	L-114	-	2	0	1139	Pt	L-119	SL-12	1	1
1110	Pd	L-114	SL-1	1	1	1140	Au	L-119	-	3	0

10

20

30

40

【 0 0 8 4 】

【 表 2 0 】

Entry	M	L	SL	m	n	Entry	M	L	SL	m	n
1141	Au	L-119	SL-1	2	1	1171	Ir	L-121	SL-12	2	1
1142	Au	L-119	SL-4	2	1	1172	Pt	L-121	-	2	0
1143	Au	L-119	SL-5	2	1	1173	Pt	L-121	SL-1	1	1
1144	Au	L-119	SL-6	2	1	1174	Pt	L-121	SL-4	1	1
1145	Au	L-119	SL-7	2	1	1175	Pt	L-121	SL-5	1	1
1146	Au	L-119	SL-7	1	2	1176	Pt	L-121	SL-6	1	1
1147	Au	L-119	SL-8	2	1	1177	Pt	L-121	SL-7	1	1
1148	Au	L-119	SL-10	2	1	1178	Pt	L-121	SL-8	1	1
1149	Au	L-119	SL-11	2	1	1179	Pt	L-121	SL-10	1	1
1150	Au	L-119	SL-12	2	1	1180	Pt	L-121	SL-11	1	1
1151	Pd	L-119	-	2	0	1181	Pt	L-121	SL-12	1	1
1152	Pd	L-119	SL-1	1	1	1182	Au	L-121	-	3	0
1153	Pd	L-119	SL-4	1	1	1183	Au	L-121	SL-1	2	1
1154	Pd	L-119	SL-5	1	1	1184	Au	L-121	SL-4	2	1
1155	Pd	L-119	SL-6	1	1	1185	Au	L-121	SL-5	2	1
1156	Pd	L-119	SL-7	1	1	1186	Au	L-121	SL-6	2	1
1157	Pd	L-119	SL-8	1	1	1187	Au	L-121	SL-7	2	1
1158	Pd	L-119	SL-10	1	1	1188	Au	L-121	SL-7	1	2
1159	Pd	L-119	SL-11	1	1	1189	Au	L-121	SL-8	2	1
1160	Pd	L-119	SL-12	1	1	1190	Au	L-121	SL-10	2	1
1161	Ir	L-121	-	3	0	1191	Au	L-121	SL-11	2	1
1162	Ir	L-121	SL-1	2	1	1192	Au	L-121	SL-12	2	1
1163	Ir	L-121	SL-4	2	1	1193	Pd	L-121	-	2	0
1164	Ir	L-121	SL-5	2	1	1194	Pd	L-121	SL-1	1	1
1165	Ir	L-121	SL-6	2	1	1195	Pd	L-121	SL-4	1	1
1166	Ir	L-121	SL-7	2	1	1196	Pd	L-121	SL-5	1	1
1167	Ir	L-121	SL-7	1	2	1197	Pd	L-121	SL-6	1	1
1168	Ir	L-121	SL-8	2	1	1198	Pd	L-121	SL-7	1	1
1169	Ir	L-121	SL-10	2	1	1199	Pd	L-121	SL-8	1	1
1170	Ir	L-121	SL-11	2	1	1200	Pd	L-121	SL-10	1	1

10

20

30

40

【 0 0 8 5 】

【 表 2 1 】

Entry	M	L	SL	m	n	Entry	M	L	SL	m	n
1201	Pd	L-121	SL-11	1	1	1231	Au	L-126	SL-8	2	1
1202	Pd	L-121	SL-12	1	1	1232	Au	L-126	SL-10	2	1
1203	Ir	L-126	-	3	0	1233	Au	L-126	SL-11	2	1
1204	Ir	L-126	SL-1	2	1	1234	Au	L-126	SL-12	2	1
1205	Ir	L-126	SL-4	2	1	1235	Pd	L-126	-	2	0
1206	Ir	L-126	SL-5	2	1	1236	Pd	L-126	SL-1	1	1
1207	Ir	L-126	SL-6	2	1	1237	Pd	L-126	SL-4	1	1
1208	Ir	L-126	SL-7	2	1	1238	Pd	L-126	SL-5	1	1
1209	Ir	L-126	SL-7	1	2	1239	Pd	L-126	SL-6	1	1
1210	Ir	L-126	SL-8	2	1	1240	Pd	L-126	SL-7	1	1
1211	Ir	L-126	SL-10	2	1	1241	Pd	L-126	SL-8	1	1
1212	Ir	L-126	SL-11	2	1	1242	Pd	L-126	SL-10	1	1
1213	Ir	L-126	SL-12	2	1	1243	Pd	L-126	SL-11	1	1
1214	Pt	L-126	-	2	0	1244	Pd	L-126	SL-12	1	1
1215	Pt	L-126	SL-1	1	1	1245	Ir	L-127	-	3	0
1216	Pt	L-126	SL-4	1	1	1246	Ir	L-127	SL-1	2	1
1217	Pt	L-126	SL-5	1	1	1247	Ir	L-127	SL-4	2	1
1218	Pt	L-126	SL-6	1	1	1248	Ir	L-127	SL-5	2	1
1219	Pt	L-126	SL-7	1	1	1249	Ir	L-127	SL-6	2	1
1220	Pt	L-126	SL-8	1	1	1250	Ir	L-127	SL-7	2	1
1221	Pt	L-126	SL-10	1	1	1251	Ir	L-127	SL-7	1	2
1222	Pt	L-126	SL-11	1	1	1252	Ir	L-127	SL-8	2	1
1223	Pt	L-126	SL-12	1	1	1253	Ir	L-127	SL-10	2	1
1224	Au	L-126	-	3	0	1254	Ir	L-127	SL-11	2	1
1225	Au	L-126	SL-1	2	1	1255	Ir	L-127	SL-12	2	1
1226	Au	L-126	SL-4	2	1	1256	Pt	L-127	-	2	0
1227	Au	L-126	SL-5	2	1	1257	Pt	L-127	SL-1	1	1
1228	Au	L-126	SL-6	2	1	1258	Pt	L-127	SL-4	1	1
1229	Au	L-126	SL-7	2	1	1259	Pt	L-127	SL-5	1	1
1230	Au	L-126	SL-7	1	2	1260	Pt	L-127	SL-6	1	1

10

20

30

40

【 0 0 8 6 】

【 表 2 2 】

Entry	M	L	SL	m	n	Entry	M	L	SL	m	n
1261	Pt	L-127	SL-7	1	1	1291	Ir	L-140	SL-6	2	1
1262	Pt	L-127	SL-8	1	1	1292	Ir	L-140	SL-7	2	1
1263	Pt	L-127	SL-10	1	1	1293	Ir	L-140	SL-7	1	2
1264	Pt	L-127	SL-11	1	1	1294	Ir	L-140	SL-8	2	1
1265	Pt	L-127	SL-12	1	1	1295	Ir	L-140	SL-10	2	1
1266	Au	L-127	-	3	0	1296	Ir	L-140	SL-11	2	1
1267	Au	L-127	SL-1	2	1	1297	Ir	L-140	SL-12	2	1
1268	Au	L-127	SL-4	2	1	1298	Pt	L-140	-	2	0
1269	Au	L-127	SL-5	2	1	1299	Pt	L-140	SL-1	1	1
1270	Au	L-127	SL-6	2	1	1300	Pt	L-140	SL-4	1	1
1271	Au	L-127	SL-7	2	1	1301	Pt	L-140	SL-5	1	1
1272	Au	L-127	SL-7	1	2	1302	Pt	L-140	SL-6	1	1
1273	Au	L-127	SL-8	2	1	1303	Pt	L-140	SL-7	1	1
1274	Au	L-127	SL-10	2	1	1304	Pt	L-140	SL-8	1	1
1275	Au	L-127	SL-11	2	1	1305	Pt	L-140	SL-10	1	1
1276	Au	L-127	SL-12	2	1	1306	Pt	L-140	SL-11	1	1
1277	Pd	L-127	-	2	0	1307	Pt	L-140	SL-12	1	1
1278	Pd	L-127	SL-1	1	1	1308	Au	L-140	-	3	0
1279	Pd	L-127	SL-4	1	1	1309	Au	L-140	SL-1	2	1
1280	Pd	L-127	SL-5	1	1	1310	Au	L-140	SL-4	2	1
1281	Pd	L-127	SL-6	1	1	1311	Au	L-140	SL-5	2	1
1282	Pd	L-127	SL-7	1	1	1312	Au	L-140	SL-6	2	1
1283	Pd	L-127	SL-8	1	1	1313	Au	L-140	SL-7	2	1
1284	Pd	L-127	SL-10	1	1	1314	Au	L-140	SL-7	1	2
1285	Pd	L-127	SL-11	1	1	1315	Au	L-140	SL-8	2	1
1286	Pd	L-127	SL-12	1	1	1316	Au	L-140	SL-10	2	1
1287	Ir	L-140	-	3	0	1317	Au	L-140	SL-11	2	1
1288	Ir	L-140	SL-1	2	1	1318	Au	L-140	SL-12	2	1
1289	Ir	L-140	SL-4	2	1	1319	Pd	L-140	-	2	0
1290	Ir	L-140	SL-5	2	1	1320	Pd	L-140	SL-1	1	1

10

20

30

40

【 0 0 8 7 】

【 表 2 3 】

Entry	M	L	SL	m	n	Entry	M	L	SL	m	n
1321	Pd	L-140	SL-4	1	1	1351	Au	L-142	SL-1	2	1
1322	Pd	L-140	SL-5	1	1	1352	Au	L-142	SL-4	2	1
1323	Pd	L-140	SL-6	1	1	1353	Au	L-142	SL-5	2	1
1324	Pd	L-140	SL-7	1	1	1354	Au	L-142	SL-6	2	1
1325	Pd	L-140	SL-8	1	1	1355	Au	L-142	SL-7	2	1
1326	Pd	L-140	SL-10	1	1	1356	Au	L-142	SL-7	1	2
1327	Pd	L-140	SL-11	1	1	1357	Au	L-142	SL-8	2	1
1328	Pd	L-140	SL-12	1	1	1358	Au	L-142	SL-10	2	1
1329	Ir	L-142	-	3	0	1359	Au	L-142	SL-11	2	1
1330	Ir	L-142	SL-1	2	1	1360	Au	L-142	SL-12	2	1
1331	Ir	L-142	SL-4	2	1	1361	Pd	L-142	-	2	0
1332	Ir	L-142	SL-5	2	1	1362	Pd	L-142	SL-1	1	1
1333	Ir	L-142	SL-6	2	1	1363	Pd	L-142	SL-4	1	1
1334	Ir	L-142	SL-7	2	1	1364	Pd	L-142	SL-5	1	1
1335	Ir	L-142	SL-7	1	2	1365	Pd	L-142	SL-6	1	1
1336	Ir	L-142	SL-8	2	1	1366	Pd	L-142	SL-7	1	1
1337	Ir	L-142	SL-10	2	1	1367	Pd	L-142	SL-8	1	1
1338	Ir	L-142	SL-11	2	1	1368	Pd	L-142	SL-10	1	1
1339	Ir	L-142	SL-12	2	1	1369	Pd	L-142	SL-11	1	1
1340	Pt	L-142	-	2	0	1370	Pd	L-142	SL-12	1	1
1341	Pt	L-142	SL-1	1	1	1371	Ir	L-145	-	3	0
1342	Pt	L-142	SL-4	1	1	1372	Ir	L-145	SL-1	2	1
1343	Pt	L-142	SL-5	1	1	1373	Ir	L-145	SL-4	2	1
1344	Pt	L-142	SL-6	1	1	1374	Ir	L-145	SL-5	2	1
1345	Pt	L-142	SL-7	1	1	1375	Ir	L-145	SL-6	2	1
1346	Pt	L-142	SL-8	1	1	1376	Ir	L-145	SL-7	2	1
1347	Pt	L-142	SL-10	1	1	1377	Ir	L-145	SL-7	1	2
1348	Pt	L-142	SL-11	1	1	1378	Ir	L-145	SL-8	2	1
1349	Pt	L-142	SL-12	1	1	1379	Ir	L-145	SL-10	2	1
1350	Au	L-142	-	3	0	1380	Ir	L-145	SL-11	2	1

10

20

30

40

【 0 0 8 8 】

【 表 2 4 】

Entry	M	L	SL	m	n	Entry	M	L	SL	m	n
1381	Ir	L-145	SL-12	2	1	1411	Pd	L-145	SL-11	1	1
1382	Pt	L-145	-	2	0	1412	Pd	L-145	SL-12	1	1
1383	Pt	L-145	SL-1	1	1	1413	Ir	L-150	-	3	0
1384	Pt	L-145	SL-4	1	1	1414	Ir	L-150	SL-1	2	1
1385	Pt	L-145	SL-5	1	1	1415	Ir	L-150	SL-4	2	1
1386	Pt	L-145	SL-6	1	1	1416	Ir	L-150	SL-5	2	1
1387	Pt	L-145	SL-7	1	1	1417	Ir	L-150	SL-6	2	1
1388	Pt	L-145	SL-8	1	1	1418	Ir	L-150	SL-7	2	1
1389	Pt	L-145	SL-10	1	1	1419	Ir	L-150	SL-7	1	2
1390	Pt	L-145	SL-11	1	1	1420	Ir	L-150	SL-8	2	1
1391	Pt	L-145	SL-12	1	1	1421	Ir	L-150	SL-10	2	1
1392	Au	L-145	-	3	0	1422	Ir	L-150	SL-11	2	1
1393	Au	L-145	SL-1	2	1	1423	Ir	L-150	SL-12	2	1
1394	Au	L-145	SL-4	2	1	1424	Pt	L-150	-	2	0
1395	Au	L-145	SL-5	2	1	1425	Pt	L-150	SL-1	1	1
1396	Au	L-145	SL-6	2	1	1426	Pt	L-150	SL-4	1	1
1397	Au	L-145	SL-7	2	1	1427	Pt	L-150	SL-5	1	1
1398	Au	L-145	SL-7	1	2	1428	Pt	L-150	SL-6	1	1
1399	Au	L-145	SL-8	2	1	1429	Pt	L-150	SL-7	1	1
1400	Au	L-145	SL-10	2	1	1430	Pt	L-150	SL-8	1	1
1401	Au	L-145	SL-11	2	1	1431	Pt	L-150	SL-10	1	1
1402	Au	L-145	SL-12	2	1	1432	Pt	L-150	SL-11	1	1
1403	Pd	L-145	-	2	0	1433	Pt	L-150	SL-12	1	1
1404	Pd	L-145	SL-1	1	1	1434	Au	L-150	-	3	0
1405	Pd	L-145	SL-4	1	1	1435	Au	L-150	SL-1	2	1
1406	Pd	L-145	SL-5	1	1	1436	Au	L-150	SL-4	2	1
1407	Pd	L-145	SL-6	1	1	1437	Au	L-150	SL-5	2	1
1408	Pd	L-145	SL-7	1	1	1438	Au	L-150	SL-6	2	1
1409	Pd	L-145	SL-8	1	1	1439	Au	L-150	SL-7	2	1
1410	Pd	L-145	SL-10	1	1	1440	Au	L-150	SL-7	1	2

10

20

30

40

【 0 0 8 9 】

【 表 2 5 】

Entry	M	L	SL	m	n	Entry	M	L	SL	m	n
1441	Au	L-150	SL-8	2	1	1471	Pt	L-152	SL-7	1	1
1442	Au	L-150	SL-10	2	1	1472	Pt	L-152	SL-8	1	1
1443	Au	L-150	SL-11	2	1	1473	Pt	L-152	SL-10	1	1
1444	Au	L-150	SL-12	2	1	1474	Pt	L-152	SL-11	1	1
1445	Pd	L-150	-	2	0	1475	Pt	L-152	SL-12	1	1
1446	Pd	L-150	SL-1	1	1	1476	Au	L-152	-	3	0
1447	Pd	L-150	SL-4	1	1	1477	Au	L-152	SL-1	2	1
1448	Pd	L-150	SL-5	1	1	1478	Au	L-152	SL-4	2	1
1449	Pd	L-150	SL-6	1	1	1479	Au	L-152	SL-5	2	1
1450	Pd	L-150	SL-7	1	1	1480	Au	L-152	SL-6	2	1
1451	Pd	L-150	SL-8	1	1	1481	Au	L-152	SL-7	2	1
1452	Pd	L-150	SL-10	1	1	1482	Au	L-152	SL-7	1	2
1453	Pd	L-150	SL-11	1	1	1483	Au	L-152	SL-8	2	1
1454	Pd	L-150	SL-12	1	1	1484	Au	L-152	SL-10	2	1
1455	Ir	L-152	-	3	0	1485	Au	L-152	SL-11	2	1
1456	Ir	L-152	SL-1	2	1	1486	Au	L-152	SL-12	2	1
1457	Ir	L-152	SL-4	2	1	1487	Pd	L-152	-	2	0
1458	Ir	L-152	SL-5	2	1	1488	Pd	L-152	SL-1	1	1
1459	Ir	L-152	SL-6	2	1	1489	Pd	L-152	SL-4	1	1
1460	Ir	L-152	SL-7	2	1	1490	Pd	L-152	SL-5	1	1
1461	Ir	L-152	SL-7	1	2	1491	Pd	L-152	SL-6	1	1
1462	Ir	L-152	SL-8	2	1	1492	Pd	L-152	SL-7	1	1
1463	Ir	L-152	SL-10	2	1	1493	Pd	L-152	SL-8	1	1
1464	Ir	L-152	SL-11	2	1	1494	Pd	L-152	SL-10	1	1
1465	Ir	L-152	SL-12	2	1	1495	Pd	L-152	SL-11	1	1
1466	Pt	L-152	-	2	0	1496	Pd	L-152	SL-12	1	1
1467	Pt	L-152	SL-1	1	1						
1468	Pt	L-152	SL-4	1	1						
1469	Pt	L-152	SL-5	1	1						
1470	Pt	L-152	SL-6	1	1						

10

20

30

40

50

【0090】

このような、本発明の有機金属錯体は、公知の方法で製造することができる。一例を挙げると、前記一般式(III)で表される有機金属錯体の場合、例えば合成例1として後述するように、まず、環AおよびWを含む環構造部分を含むジカルボン酸無水物と、ジアミンとを、適当な酸触媒または塩基性触媒を用いて脱水縮合させることにより、環Cを形成して配位子を形成する。これを、所望の金属塩と、溶剤中で反応させることにより、錯体

化させればよい。

【0091】

このような本発明の有機金属錯体は、色純度が高く、発光効率および耐久性など様々な点において優れており、発光色素として樹脂、染料、インクなどの種々の材料の着色や、およびレーザー用色素、有機電界発光素子用色素、近赤外発光有機金属錯体などとして各種光学部材に有用である。

また本発明の有機金属錯体を用いることにより、後述するように、高発光効率で高堅牢性を有し、色純度に優れた有機電界発光素子が得られるため、有機電界発光素子材料として好適である。

【0092】

次に、一般式(Ⅰ)で示される本発明の有機金属錯体を用いた、本発明の有機電界発光素子について説明する。

本発明の有機電界発光素子は、基板上に、陽極および陰極と、これらの間に設けられた有機発光層を有し、該有機発光層が一般式(Ⅰ)の有機金属錯体を含有することを特徴とする。

【0093】

一般式(Ⅰ)で表される有機金属錯体は、電子輸送材料および/または正孔輸送材料をホスト材料とし、該ホスト材料に対してドーピングされて、有機発光層(以下、単に「発光層」と称する)中に含有されることが好ましい。

次に、本発明の有機電界発光素子の構造について、図面を参照しながら説明するが、本発明の有機電界発光素子の構造は何ら図示のものに限定されるものではない。

【0094】

図1~3は本発明の有機電界発光素子の実施の形態を模式的に示す断面図であり、1は基板、2は陽極、3は陽極バッファ層、4は正孔輸送層、5は発光層、6は正孔阻止層、7は電子輸送層、8は陰極を各々表わす。以下、図1に示す素子を中心に説明する。

基板1は有機電界発光素子の支持体となるものであり、石英やガラスの板、金属板や金属箔、プラスチックフィルムやシートなどが用いられる。特にガラス板や、ポリエステル、ポリメタクリレート、ポリカーボネート、ポリスルホンなどの透明な合成樹脂の板が好ましい。合成樹脂基板を使用する場合にはガスバリア性に留意する必要がある。基板のガスバリア性が小さすぎると、基板を通過した外気により有機電界発光素子が劣化する虞がある。このため、合成樹脂基板の少なくとも片面に緻密なシリコン酸化膜等を設けてガスバリア性を確保してもよい。

【0095】

基板1上には陽極2が設けられるが、陽極2は正孔輸送層4への正孔注入の役割を果たすものである。この陽極は、通常、アルミニウム、金、銀、ニッケル、パラジウム、白金等の金属、インジウムおよび/またはスズの酸化物などの金属酸化物、ヨウ化銅などのハロゲン化金属、カーボンブラック、あるいは、ポリ(3-メチルチオフェン)、ポリピロール、ポリアニン等の導電性高分子などにより構成される。陽極2の形成は通常、スパッタリング法、真空蒸着法などにより行われることが多い。また、銀などの金属微粒子、ヨウ化銅などの微粒子、カーボンブラック、導電性の金属酸化物微粒子、導電性高分子微粉末などの場合には、適当なバインダー樹脂溶液に分散し、基板1上に塗布することにより陽極2を形成することもできる。さらに、導電性高分子の場合は電解重合により直接基板1上に薄膜を形成したり、基板1上に導電性高分子を塗布して陽極2を形成することもできる(Appl. Phys. Lett., 60巻, 2711頁, 1992年)。

【0096】

陽極2は異なる2種類以上の物質からなる層を積層して、形成することも可能である。陽極2の厚みは、必要とする透明性により異なる。透明性が必要とされる場合は、可視光の透過率を、通常60%以上、好ましくは80%以上とすることが望ましく、この場合、厚みの下限は通常5nm、好ましくは10nm程度であり、上限は通常1000nm、好ましくは500nm程度である。不透明でよい場合は陽極2の厚みは基板1と同程度でも

10

20

30

40

50

よい。また、さらには上記の陽極 2 の上に異なる導電材料を積層することも可能である。

【0097】

図 1 に示す素子において、陽極 2 の上には正孔輸送層 4 が設けられる。

正孔輸送層 4 に用いられる正孔輸送材料に要求される条件としては、陽極からの正孔注入効率が高く、かつ、注入された正孔を効率よく輸送することができる材料であることが必要である。そのためには、イオン化ポテンシャルが小さく、可視光の光に対して透明性が高く、しかも正孔移動度が大きく、さらに安定性に優れ、トラップとなる不純物が製造時や使用時に発生しにくいことが要求される。また、発光層の発光を消光するような物質を含まないことが必要とされる。上記の一般的要求以外に、車載表示用の応用を考えた場合、素子にはさらに耐熱性が要求される。従って、 T_g として 70 以上の値を有する材料が望ましい。

10

【0098】

このような正孔輸送材料としては、例えば、例えば、4, 4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ピフェニルで代表される 2 個以上の 3 級アミンを含み 2 個以上の縮合芳香族環が窒素原子に置換した芳香族ジアミン(特開平 5-234681 号公報)、4, 4', 4''-トリス(1-ナフチルフェニルアミノ)トリフェニルアミン等のスターバースト構造を有する芳香族アミン化合物(J. Lumin., 72-74 巻、985 頁、1997 年)、トリフェニルアミンの四量体から成る芳香族アミン化合物(Chem. Commun., 2175 頁、1996 年)、2, 2', 7, 7'-テトラキス-(ジフェニルアミノ)-9, 9'-スピロピフルオレン等のスピロ化合物(Synth. Metals, 91 巻、209 頁、1997 年)等が挙げられる。これらの化合物は、単独で用いても良いし、必要に応じて、各々、混合して用いても良い。

20

【0099】

また上記の化合物以外にも、ポリビニルカルバゾールやポリシラン(Appl. Phys. Lett., 59 巻、2760 頁、1991 年)、ポリフォスファゼン(特開平 5-310949 号公報)、ポリアミド(特開平 5-310949 号公報)、ポリビニルトリフェニルアミン(特開平 7-53953 号公報)、トリフェニルアミン骨格を有する高分子(特開平 4-133065 号公報)、トリフェニルアミン単位をメチレン基等で連結した高分子(Synthetic Metals, 55-57 巻、4163 頁、1993 年)、芳香族アミンを含有するポリメタクリレート(J. Polym. Sci., Polym. Chem. Ed., 21 巻、969 頁、1983 年)等の高分子材料が挙げられる。

30

【0100】

上記の正孔輸送材料を、塗布法あるいは真空蒸着法により前記陽極 2 上に積層することにより正孔輸送層 4 を形成する。

塗布法で形成する場合は、例えば正孔輸送材料を 1 種または 2 種以上と、必要により正孔のトラップにならないバインダー樹脂や塗布性改良剤などの添加剤とを添加し、溶解して塗布溶液を調製し、スプレー法、印刷法、スピンコート法、ディップコート法、ダイコート法などの通常のコーティング法や、インクジェット法等により陽極 2 上に塗布し、乾燥して正孔輸送層 4 を薄膜形成する。バインダー樹脂としては、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリエステル等が挙げられる。バインダー樹脂は、添加量が多いと正孔移動度を低下させるので少ない方が望ましく、正孔輸送層 4 中の含有量で 50 重量%以下が好ましい。

40

【0101】

また正孔輸送層 4 は、フィルム、基板、ロール等の媒体に、前述の薄膜形成方法によってあらかじめ薄膜を形成しておき、媒体上の薄膜を熱転写または圧力転写することにより薄膜形成することもできる。

正孔輸送層 4 を真空蒸着法にて形成する場合には、正孔輸送材料を真空容器内に設置されたるつぼに入れ、真空容器内を適当な真空ポンプで 10^{-4} Pa 程度にまで排気した後、るつぼを加熱して、正孔輸送材料を蒸発させ、るつぼと向き合って置かれた、陽極 2 が形

50

成された基板 1 上に正孔輸送層 4 を形成させる。

【0102】

正孔輸送層 4 の膜厚の下限は、通常 1 nm、好ましくは 5 nm 程度であり、上限は通常 300 nm、好ましくは 100 nm 程度である。この様に薄い膜を一様に形成するためには、一般に真空蒸着法がよく用いられる。

正孔輸送層 4 の上には、発光層 5 が設けられる。

発光層 5 は、前記一般式 (I) で表される有機金属錯体を含有するが、実質的に該化合物のみからなる層であってもよいし、該化合物をホストとし、これに蛍光色素や燐光色素など各種発光色素をドーブしてなる層であってもよい。また、前述の正孔輸送層 4 または後述の電子輸送層 7 の材料として挙げた各種電荷輸送性材料、或いは公知の電荷輸送性材料から選択した材料をホスト材料とし、このホスト材料に対して、前記一般式 (I) で表される有機金属錯体をドーブすることにより形成された層であってもよい。

10

【0103】

ホスト材料としては、正孔輸送層 4 または電子輸送層 7 の材料と同一の材料を使用しても良く、両層のいずれとも異なる材料を使用しても良い。また、発光層 5 中のホスト材料は 1 種類でもよいが、複数種併用しても良い。さらに、該ホスト材料は、低分子材料・高分子材料のいずれであってもよく、両者を併用してもよい。なお、高分子材料を使用する場合は、例えば正孔輸送層 4 材料の例として挙げたような、正孔輸送性の高分子材料と、発光層には、さらに電子輸送性化合物を含有していても良い。

【0104】

前述した各種公知のホスト材料の中でも、本発明の有機金属錯体と併用されるものとして、より好ましくは 4,4'-N,N'-ジカルバゾールピフェニルなどのカルバゾール誘導体 (WO 00/70655 号公報)、トリス(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム (USP 6,303,238 号公報)、2,2',2''-(1,3,5-ベンゼントリル)トリス[1-フェニル-1H-ベンズイミダゾール] (Appl. Phys. Lett., 78 巻, 1622 頁, 2001)、ポリビニルカルバゾール (特開 2001-257076 号公報) 等が挙げられる。燐光発光を示す素子を得るには、これらが好ましい。

20

【0105】

前記一般式 (I) で表される有機金属錯体は、発光層 5 中に 1 種類のみ含まれていてもよく、複数種含まれていてもよい。また、前記一般式 (I) で表される有機金属錯体は 2 種類以上の複数を併用してもかまわないし、他の発光色素などを併用しても良い。この場合、前記一般式 (I) で表される有機金属錯体をホスト材料として他の発光色素をドーパントとして使用することもできるし、前記一般式 (I) で表される有機金属錯体を、特開 2000-164362 号公報に記載されている様に、他のドーパントの発光を助ける励起エネルギー移動用のドーパントとして用いることもできる。

30

【0106】

併用しても良い他の発光色素としては、例えば、ペリレン系化合物誘導体、ピレン系化合物誘導体、アントラセン系化合物誘導体、クマリン系化合物誘導体、キナクリドン系化合物誘導体、ナフタル酸系化合物誘導体等の蛍光色素や、従来の技術の項に前述した文献等に記載した各種 Ir 錯体をはじめ、公知の燐光色素などが挙げられるが、これらに限定されない。

40

【0107】

前記一般式 (I) で表される有機金属錯体がドーブされる領域は、発光層 5 の、層全体であってもその一部分であってもよく、各層の膜厚方向において均一にドーブされても、膜厚方向において濃度分布があっても構わない。なお、前記一般式 (I) で表される有機金属錯体のドーブされる量は、ホスト材料に対して 10^{-3} 重量% 以上が好ましく、0.1 重量% 以上であればなお好ましい。また、ホスト材料に対して 20 重量% 以下が好ましく、10 重量% 以下であればより好ましい。

【0108】

50

前記一般式(Ⅰ)で表される有機金属錯体の発光層へのドーブは、前述した正孔輸送層4または後述する電子輸送層7の形成方法と同様に、塗布法あるいは真空蒸着法などにて行われる発光層形成時に行われる。

塗布法の場合は、発光層形成用の塗布溶液中に、前記一般式(Ⅰ)で表される有機金属錯体や、必要に応じてこれと併用される他の蛍光色素などを含有させ、前述した正孔輸送層4または後述する電子輸送層7とい同様に形成することができる。

【0109】

また真空蒸着法の場合には、例えば、ホスト材料と前記一般式(Ⅰ)で表される化合物を別のるつぼに入れて、これらを共蒸着させたり、上記の材料を予め所定比で混合し、同一のるつぼを用いて蒸発させてもよい。

10

これらの層形成方法のうち、通常は真空蒸着法が用いられる。

発光層5の膜厚の下限は、通常1nm、好ましくは5nm程度であり、上限は通常300nm、好ましくは100nm程度である。

【0110】

図1に示す構造の有機電界発光素子において、発光層5の上には電子輸送層7が設けられる。

電子輸送層7に用いられる電子輸送材料としては、陰極8からの電子注入効率が高く、かつ、注入された電子を効率よく正孔輸送層4の方向へ輸送することができる必要がある。そのためには、電子親和力が大きく、しかも電子移動度が大きく、さらに安定性に優れトラップとなる不純物が製造時や使用時に発生しにくい化合物であることが要求される。

20

【0111】

このような条件を満たす材料としては、8-ヒドロキシキノリンのアルミニウム錯体などの金属錯体(特開昭59-194393号公報)、10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリンの金属錯体、オキサジアゾール誘導体、ジスチリルピフェニル誘導体、シロール誘導体、3-または5-ヒドロキシフラボン金属錯体、ベンズオキサゾール金属錯体、ベンゾチアゾール金属錯体、トリスベンズイミダゾリルベンゼン(米国特許第5,645,948号)、キノキサリン化合物(特開平6-207169号公報)、フェナントロリン誘導体(特開平5-331459号公報)、2-t-ブチル-9,10-N,N'-ジシアノアントラキノンジイミン、n型水素化非晶質炭化シリコン、n型硫化亜鉛、n型セレン化亜鉛等が挙げられる。

30

【0112】

また、上述のような電子輸送材料に、アルカリ金属をドーブする(特開平10-270171号公報、特願2000-285656号、特願2000-285657号などに記載)ことにより、電子輸送性が向上するため好ましい。

電子輸送層7の膜厚は、通常下限は1nm、好ましくは5nm程度であり、上限は通常300nm、好ましくは100nm程度である。

【0113】

電子輸送層も正孔輸送層と同様の方法で形成することができるが、通常は真空蒸着法が用いられる。

40

陰極8は、電子輸送層7を介して発光層5に電子を注入する役割を果たす。陰極8として用いられる材料は、前記陽極2に使用される材料から選択することが可能であるが、効率よく電子注入を行うには、仕事関数の低い金属が好ましく、スズ、マグネシウム、インジウム、カルシウム、アルミニウム、銀等の適当な金属またはそれらの合金が用いられる。具体例としては、マグネシウム-銀合金、マグネシウム-インジウム合金、アルミニウム-リチウム合金等の低仕事関数合金電極が挙げられる。

【0114】

陰極8の膜厚は通常、陽極2と同様である。低仕事関数金属から成る陰極を保護する目的で、この上にさらに、仕事関数が高く大気に対して安定な金属層を積層することは素子の安定性を増すため、好ましい。この目的のために、アルミニウム、銀、銅、ニッケル、ク

50

ロム、金、白金等の金属が使われる。

素子の発光効率をさらに向上させることを目的として、図2および図3に示す如く、電子輸送層7と発光層5との間に正孔阻止層6を設けても良い。

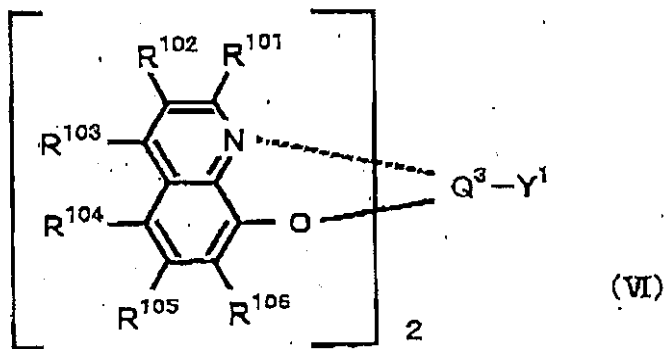
【0115】

正孔阻止層6は発光層5の上に、発光層5の陰極側の界面に接するように積層され、発光層5から移動してくる正孔が陰極8に到達するのを阻止し、陰極8から注入された電子を効率よく発光層5の方向に輸送することができる化合物より形成される。また、発光層5で再結合によって生成するエキシトンを発光層内に閉じこめるために、発光層材料よりは広いバンドギャップを有することが必要である。この場合のバンドギャップは、電気化学的に決定される酸化電位 - 還元電位の差、または、光吸収端から求められる。正孔阻止層は電荷キャリアとエキシトンの両方を発光層内に閉じこめて、発光効率を向上させる機能を有する。

このような条件を満たす正孔阻止材料として、好ましくは、下記一般式(VI)で表わされる混合配位子錯体が挙げられる。

【0116】

【化35】

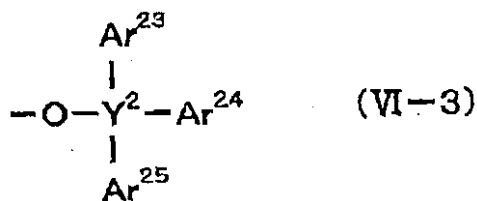
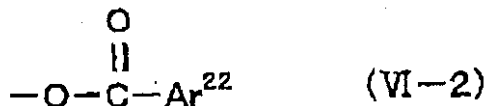


【0117】

(VI)式中、 $R^{101} \sim R^{106}$ は、水素原子または任意の置換基を表わす。 Q^3 はアルミニウム、ガリウム、インジウムから選ばれる金属原子を表わす。 Y^1 は以下に示す一般式(VI-1)、(VI-2)、(VI-3)のいずれかで表わされる。

【0118】

【化36】



【0119】

50

(式中、 $Ar^{21} \sim Ar^{25}$ は、置換基を有していても良い芳香族炭化水素環基または置換基を有していても良い芳香族複素環基を表し、 Y^2 はシリコンまたはゲルマニウムを表わす。)

前記一般式(VI)において、 $R^{101} \sim R^{106}$ は各々独立に水素原子または任意の置換基を表すが、好ましくは水素原子；塩素、臭素等のハロゲン原子；メチル基、エチル基等の炭素数1～6のアルキル基；ベンジル基等のアラルキル基；ビニル基等の炭素数2～6のアルケニル基；シアノ基；アミノ基；アシル基；メトキシ基、エトキシ基等の炭素数1～6のアルコキシ基；メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基等の炭素数2～6のアルコキシカルボニル基；カルボキシル基；フェノキシ基、ベンジルオキシ基などのアリアルオキシ基；ジエチルアミノ基、ジイソプロピルアミノ基等のアルキルアミノ基；ジベンジルアミノ基、ジフェネチルアミノ基などのアラルキルアミノ基；トリフルオロメチル基等のハロアルキル基；水酸基；置換基を有していても良いフェニル基、ナフチル基等の芳香族炭化水素環基；置換基を有していても良いチエニル基、ピリジル基等の芳香族複素環基を表わす。

10

【0120】

前記芳香族炭化水素環基および芳香族複素環基が有しうる置換基としては、フッ素原子等のハロゲン原子；メチル基、エチル基等の炭素数1～6のアルキル基；ビニル基等の炭素数2～6のアルケニル基；メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基等の炭素数2～6のアルコキシカルボニル基；メトキシ基、エトキシ基等の炭素数1～6のアルコキシ基；フェノキシ基、ベンジルオキシ基などのアリアルオキシ基；ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基等のアルキルアミノ基；アセチル基等のアシル基；トリフルオロメチル基等のハロアルキル基；シアノ基等が挙げられる。

20

【0121】

$R^{101} \sim R^{106}$ としてより好ましくは水素原子、アルキル基、ハロゲン原子またはシアノ基が挙げられる。また R^{104} としては、シアノ基が特に好ましい。

上記一般式(VI)中、 $Ar^{21} \sim Ar^{25}$ として、具体的には、置換基を有していても良いフェニル基、ピフェニル基、ナフチル基等の芳香族炭化水素環基またはチエニル基、ピリジル基等の芳香族複素環基が挙げられる。中でも5員環、6員環、5員環および/または6員環が2個または3個縮合したもの、あるいはこれらが直接結合で2個または3個結合したものが好ましい。芳香族炭化水素環基と芳香族複素環基では、芳香族炭化水素環基が好ましい。

30

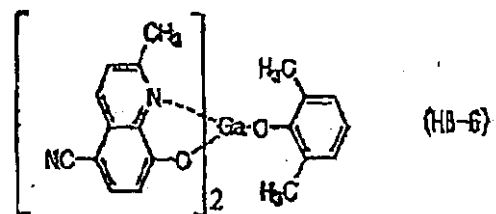
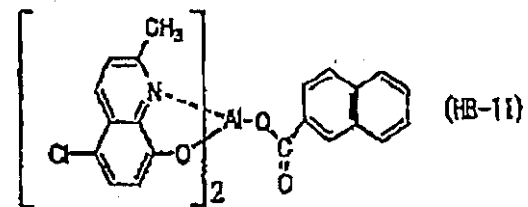
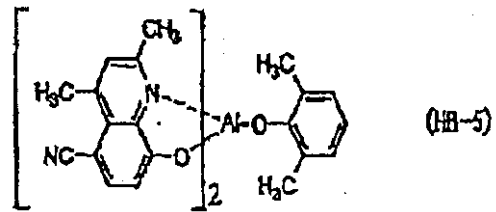
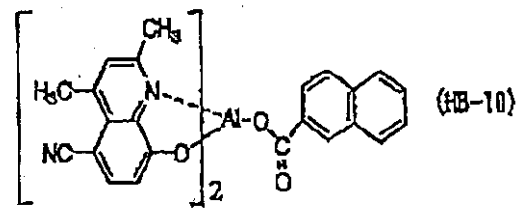
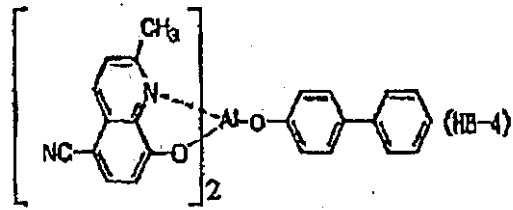
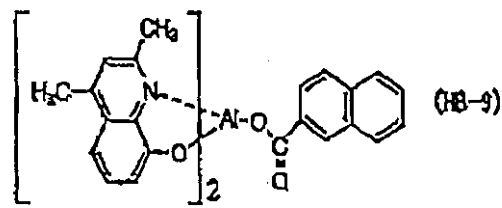
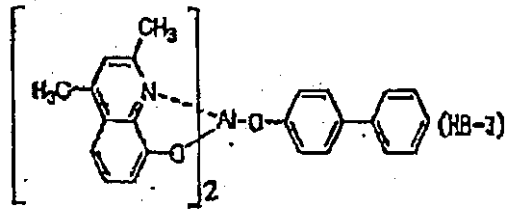
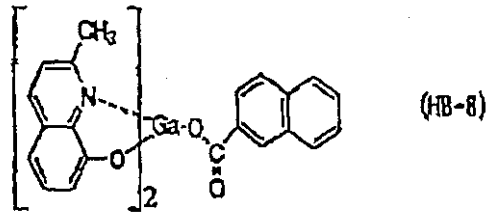
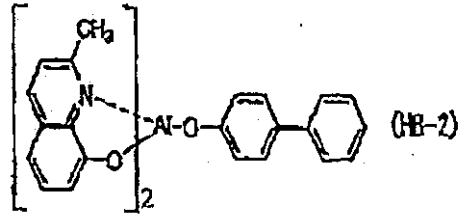
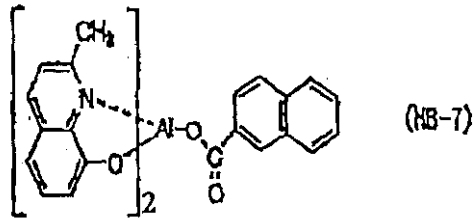
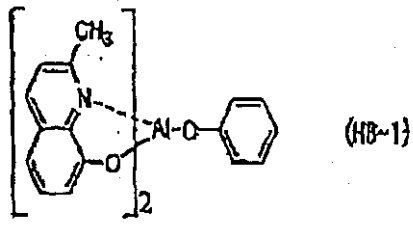
【0122】

なお $Ar^{21} \sim Ar^{25}$ が有しうる置換基としては、例えば $R^{101} \sim R^{106}$ が芳香族炭化水素環基または芳香族複素環基の場合に有しうる置換基として、前述したものと同様の基が挙げられる。

前記一般式(VI)で表わされる化合物の好ましい具体例を以下に示すが、これらに限定するものではない。

【0123】

【化37】



[0 1 2 4]

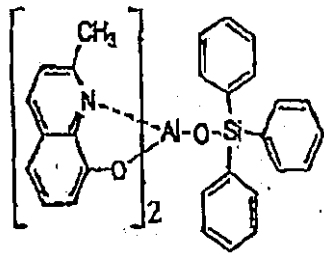
[化 3 8]

10

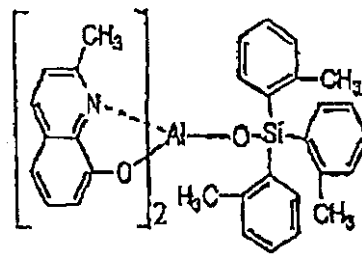
20

30

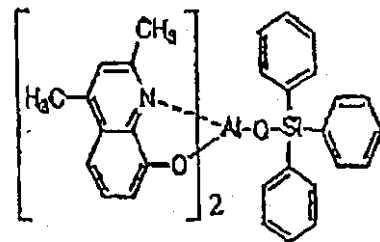
40



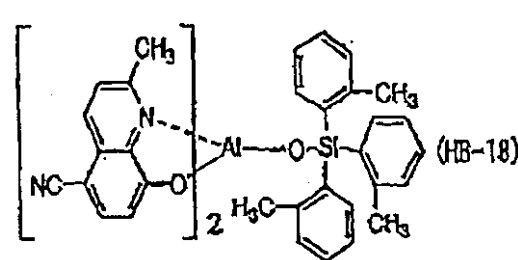
(HB-12)



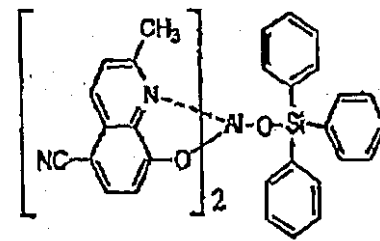
(HB-17)



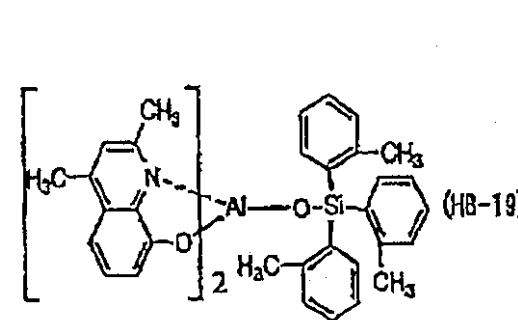
(HB-13)



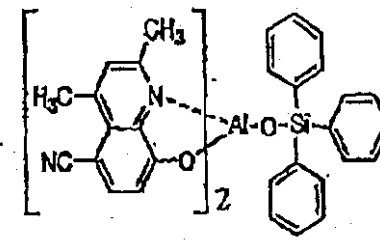
(HB-18)



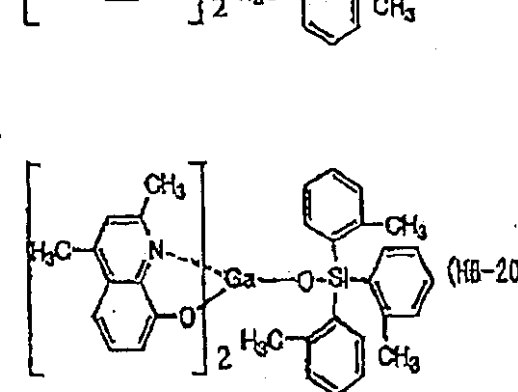
(HB-14)



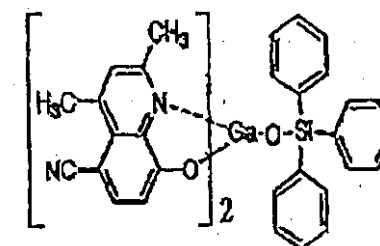
(HB-19)



(HB-15)



(HB-20)



(HB-16)

10

20

30

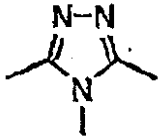
40

【0125】

正孔阻止材料としては、前記一般式(VI)の混合配位子錯体の他に、以下の構造式で示される1, 2, 4-トリアゾール環残基を少なくとも1個有する化合物も用いることができる。

【0126】

【化39】



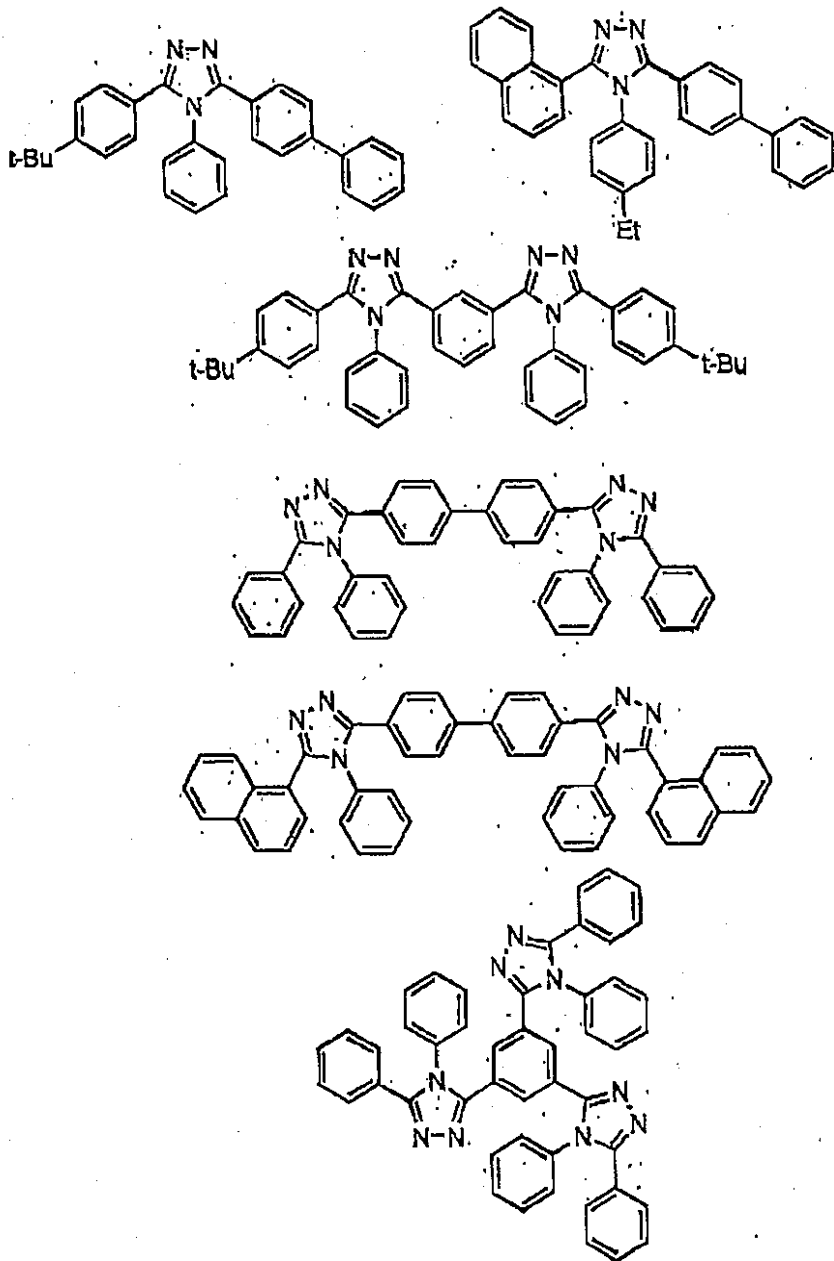
【0127】

上記構造式で表わされる1, 2, 4-トリアゾール環残基を少なくとも1個有する化合物の具体例を以下に示すが、これらに限定されるものではない。

10

【0128】

【化40】



20

30

40

【0129】

なお、上記構造式中には記載していないが、これらの化合物におけるベンゼン環およびナフタレン環は、更に置換基を有していても良い。該置換基としては、例えば $R^{101} \sim R^{106}$ が芳香族炭化水素環基または芳香族複素環基である場合に有する置換基として、

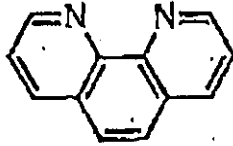
50

前述したものと同様の基が挙げられる。

正孔阻止材料として、さらに、以下の構造式で示されるフェナントロリン環を少なくとも1個有する化合物も用いることができる。

【0130】

【化41】



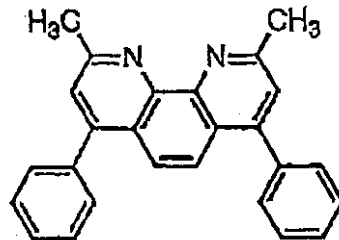
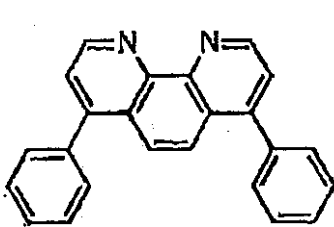
10

【0131】

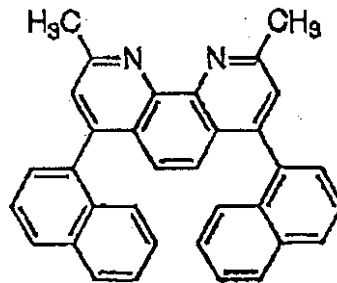
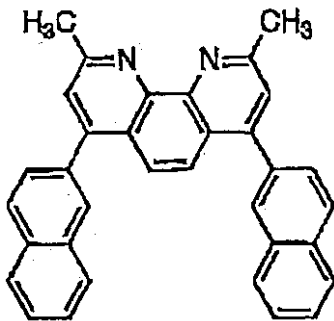
上記構造式で表わされるフェナントロリン環を少なくとも1個有する化合物の具体例を以下に示すが、これらに限定されるものではない。

【0132】

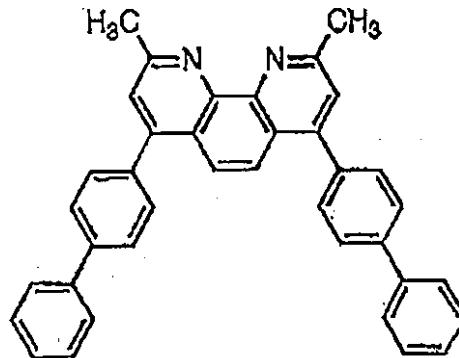
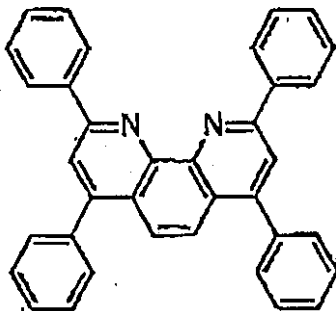
【化42】



20



30



40

【0133】

これらの化合物についても、前記1, 2, 4-トリアゾール環残基を有する化合物の場合と同様、構造式中に明記したもの以外にも置換基を有していても良く、この場合の置換基としては、例えば $R^{101} \sim R^{106}$ が芳香族炭化水素環基または芳香族複素環基である

50

場合に有しうる置換基として、前述したものと同様の基が挙げられる。

【0134】

なお、上述した各々の正孔阻止材料の化合物は正孔阻止層6中に、単独で用いても良いし、必要に応じて、2種以上を混合して用いても良い。

正孔阻止層6の膜厚の上限は通常100nm好ましくは50nmであり、下限は通常、0.3nm好ましくは0.5nmである。正孔阻止層6も正孔輸送層4や電子輸送層7と同様の方法で形成することができるが、通常は真空蒸着法が用いられる。

【0135】

また、正孔注入の効率をさらに向上させ、かつ、有機層全体の陽極2への付着力を改善させる目的で、図3に示す如く、正孔輸送層4と陽極2との間に陽極バッファ層3を挿入することも行われている。陽極バッファ層3を挿入することで、初期の素子の駆動電圧が下げると同時に、素子を定電流で連続駆動した時の電圧上昇も抑制される効果が得られる。

【0136】

陽極バッファ層3に用いられる材料に要求される条件としては、陽極2とのコンタクトがよく均一な薄膜が形成でき、熱的に安定、すなわち、融点及びガラス転移温度T_gが高く、融点としては300以上、ガラス転移温度T_gとしては100以上が要求される。さらに、イオン化ポテンシャルが低く陽極2からの正孔注入が容易なこと、正孔移動度が大きいことが挙げられる。

【0137】

この目的のために、陽極バッファ層3の材料として、これまでにポルフィリン誘導体やフタロシアニン化合物(特開昭63-295695号公報)、ヒドラゾン化合物、アルコキシ置換の芳香族ジアミン誘導体、p-(9-アントリル)-N,N'-ジ-p-トリルアニリン、ポリチエニレンピニレンやポリ-p-フェニレンピニレン、ポリアニリン(Appl. Phys. Lett., 64巻、1245頁、1994年)、ポリチオフェン(Optical Materials, 9巻、125頁、1998年)、スターバスト型芳香族トリアミン(特開平4-308688号公報)等の有機化合物や、スパッタ・カーボン膜(Synth. Met., 91巻、73頁、1997年)や、バナジウム酸化物、ルテニウム酸化物、モリブデン酸化物等の金属酸化物(J. Phys. D, 29巻、2750頁、1996年)が報告されている。

【0138】

また、正孔注入・輸送性の低分子有機化合物と電子受容性化合物を含有する層(特開平11-251067号公報、特開2000-159221号公報等に記載)や、芳香族アミノ基等を含有する非共役系高分子化合物に、必要に応じて電子受容性化合物をドープしてなる層(特開平11-135262号公報、特開平11-283750号公報、特開2000-36390号公報、特開2000-150168号公報、特開平2001-223084号公報、およびWO97/33193号公報など)、またはポリチオフェン等の導電性ポリマーを含む層(特開平10-92584号公報)なども挙げられる。

【0139】

上記陽極バッファ層材料としては、低分子・高分子いずれの化合物を用いることも可能である。

低分子化合物のうち、よく使用されるものとしては、ポルフィン化合物またはフタロシアニン化合物が挙げられる。これらの化合物は中心金属を有していてもよいし、無金属のものでもよい。これらの化合物の好ましい例としては、以下の化合物が挙げられる: ポルフィン5,10,15,20-テトラフェニル-21H,23H-ポルフィン5,10,15,20-テトラフェニル-21H,23H-ポルフィンコバルト(II)5,10,15,20-テトラフェニル-21H,23H-ポルフィン銅(II)5,10,15,20-テトラフェニル-21H,23H-ポルフィン亜鉛(II)5,10,15,20-テトラフェニル-21H,23H-ポルフィンバナジウム(IV)オキシド5,10,15,20-テトラ(4-ピリジル)-21H,23H-ポルフィン29H,31H-フタロシアニン銅(II)フタロシアニン亜鉛(II)フタロシアニンチタンフタロシアニン

10

20

30

40

50

オキシドマグネシウムフタロシアニン鉛フタロシアニン銅 (I I) 4 , 4 ' 4 ' ' , 4 ' ' ' - テトラアザ - 2 9 H , 3 1 H - フタロシアニン

陽極バッファ層の場合も、低分子化合物の場合は、前述の正孔輸送層と同様にして薄膜形成可能であるが、無機物の場合には、さらに、スパッタ法や電子ビーム蒸着法、プラズマ C V D 法が用いられる。

【 0 1 4 0 】

以上のようにして、低分子化合物を用いて形成される陽極バッファ層 3 の膜厚の下限は、通常 3 n m 、好ましくは 1 0 n m 程度であり、上限は通常 1 0 0 n m 、好ましくは 5 0 n m 程度である。

高分子化合物を用いる場合は、例えば、前記高分子化合物や電子受容性化合物、さらに必要により、正孔のトラップとならない、バインダー樹脂やレベリング剤等の塗布性改良剤などの添加剤を添加し溶解した塗布溶液を調整し、スプレー法、印刷法、スピコート法、ディップコート法、ダイコート法などの通常のコーティング法や、インクジェット法等により陽極 2 上に塗布し、乾燥することにより陽極バッファ層 3 を薄膜形成することができる。

【 0 1 4 1 】

バインダー樹脂としては、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリエステル等が挙げられる。バインダー樹脂は該層中の含有量が多いと正孔移動度を低下させる虞があるので、少ない方が望ましく、50重量%以下が好ましい。

また、フィルム、支持基板、ロール等の媒体に、前述の薄膜形成方法によってあらかじめ薄膜を形成しておき、媒体上の薄膜を、陽極 2 上に熱転写または圧力転写することにより、薄膜形成することも出来る。

【 0 1 4 2 】

以上のようにして、高分子化合物を用いて形成される陽極バッファ層 3 の、膜厚の下限は通常 5 n m 、好ましくは 1 0 n m 程度であり、上限は通常 1 0 0 0 n m 、好ましくは 5 0 0 n m 程度である。

以上、図 1 に示す層構成の素子を中心に説明してきたが、本発明の有機電界発光素子における陽極・陰極と発光層との間には、その性能を損なわない限り、上記説明にある層の他にも、任意の層を有していてもよく、また発光層以外の任意の層を省略してもよい。

【 0 1 4 3 】

尚、図 1 とは逆の構造、すなわち、基板 1 上に陰極 8 、電子輸送層 7 、発光層 5 、正孔輸送層 4 、陽極 2 の順に積層することも可能であり、既述したように少なくとも一方が透明性の高い 2 枚の基板の間に本発明の有機電界発光素子を設けることも可能である。同様に、図 2 および図 3 に示した前記各層構成とは逆の構造に積層することも可能である。

【 0 1 4 4 】

本発明は、有機電界発光素子が、単一の素子、アレイ状に配置された構造からなる素子、陽極と陰極が X - Y マトリックス状に配置された構造のいずれにおいても適用することができる。

本発明の有機電界発光素子によれば、有機層に特定の構造を有する有機金属錯体を含むために、色純度が高く、発光効率および安定性に優れた有機電界発光が得られる。

【 0 1 4 5 】

【 実施例 】

次に、本発明を実施例によって更に具体的に説明するが、本発明はその要旨を越えない限り、以下の実施例の記載に限定されるものではない。

合成例 1

【 0 1 4 6 】

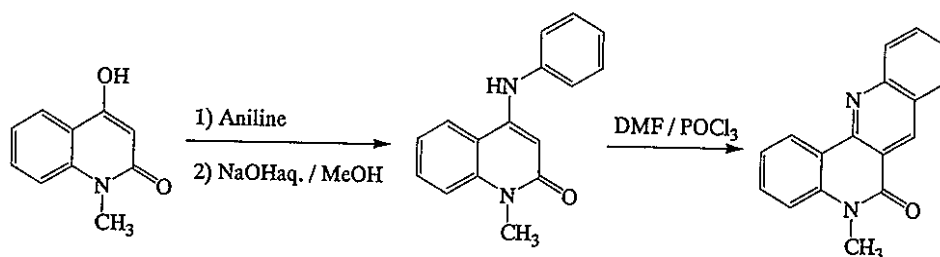
【 化 4 3 】

10

20

30

40



目的物 1

目的物 2

10

【0147】

窒素雰囲気下、4 - ヒドロキシ 1 - メチル - 2 - キノリノン (8 . 7 g)、アニリン (10 ml) を加熱還流下、1 時間攪拌した後、1 N 水酸化ナトリウム水溶液 (65 ml) とメタノール (50 ml) の混合物に注ぎ、加熱還流下、35 分間攪拌した。これに水 (150 ml) を加えて沈殿を析出させ、固体を濾過、水 (3 × 10 ml)、メタノール (10 ml) で洗浄した。得られた固体をエタノール - ヘキサンからの再結晶により精製し、目的物 1 (1 . 7 g) を得た。また、洗浄濾液と再結晶濾液を濃縮後、析出した固体を水で洗浄後、エタノール - ヘキサンからの再結晶により精製し、目的物 1 (0 . 6 g) を得た。

【0148】

窒素雰囲気下、氷冷条件下、攪拌しながら N , N - ジメチルホルムアミド (19 . 7 ml) 中にオキシ塩化リン (2 . 6 ml) を加え、40 分間攪拌した後、目的物 1 (1 . 7 g) を投入し、90 で 2 . 5 時間攪拌した。得られた溶液を氷水 (400 ml) に投入して沈殿を析出させた後、濾過し、水 (3 × 20 ml)、メタノール (2 × 10 ml) で洗浄して精製し、目的物 2 (1 . 6 g) を得た。¹H - NMR (270 MHz , CDCl₃) , 9 . 33 (s , 1 H) , 9 . 10 (dd , 1 H) , 8 . 26 (d , 1 H) , 8 . 05 (d , 1 H) , 7 . 88 (td , 1 H) , 7 . 68 - 7 . 58 (m , 2 H) , 7 . 44 - 7 . 38 (m , 2 H) , 3 . 83 (s , 3 H) 。

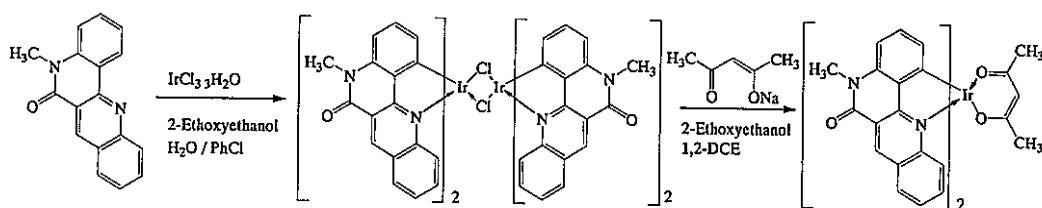
20

実施例 1

【0149】

【化 4 4】

30



目的物 3

目的物 4

40

合成例 1 にて得られた目的物 2 (0 . 82 g)、塩化イリジウム・3 水和物 (0 . 53 g)、2 - エトキシエタノール (11 . 3 ml)、水 (3 . 7 ml)、モノクロロベンゼン (10 ml) を窒素雰囲気下、加熱還流条件で 12 時間攪拌した後、室温まで冷却し、水 (25 ml)、2 - プロパノール (25 ml) を加えて攪拌した後、濾過し、2 - プロパノール (3 × 20 ml)、アセトン (3 × 10 ml)、ヘキサン (2 × 5 ml) で洗浄し、目的物 3 (1 . 02 g) を得た。

【0150】

窒素雰囲気下、目的物 3 (1 . 02 g)、アセチルアセトンナトリウム塩・水和物 (0 . 68 g)、2 - エトキシエタノール (20 ml)、1 , 2 - ジクロロエタン (10 ml) を加熱還流下で 6 時間攪拌した後、放冷し、水 (50 ml)、メタノール (100 ml)

50

を加えてから、濾過し、メタノールで洗浄したものをクロロホルム（40 ml）で抽出し、これをシリカゲルカラムクロマトグラフィー及びGPCにて精製し、目的物4（4.2 mg）を得た。FAB-MS測定結果により、目的物4（ m/z 810（ M^+ ））であることを確認した。

【0151】

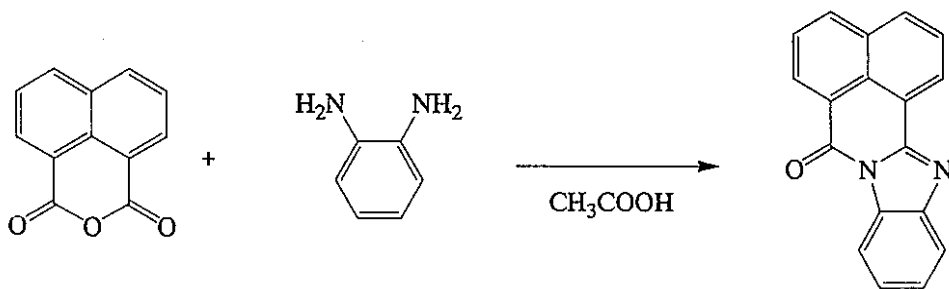
窒素雰囲気下、目的物4（0.2 mg）のクロロホルム（25 ml）溶液中、励起波長（464 nm）での発光スペクトルは、648 nmにピークを示した。

合成例2

【0152】

【化45】

10



20

目的物5

1,8-ナフタレンジカルボン酸無水物（5.95 g）、*o*-フェニレンジアミン（3.24 g）を酢酸（85 ml）中、窒素気流下、加熱還流条件で4時間攪拌した。室温まで冷却し、析出した結晶を濾別し、メタノール懸洗、減圧乾燥により、目的物5の黄色結晶（6.33 g）を得た。¹H-NMR（270 MHz, CDCl₃）, 8.84（dd, 1H）, 8.78（dd, 1H）, 8.58-8.54（m, 1H）, 8.27（dd, 1H）, 8.13（dd, 1H）, 7.91-7.87（m, 1H）, 7.84-7.77（m, 2H）, 7.50-7.47（m, 2H）。

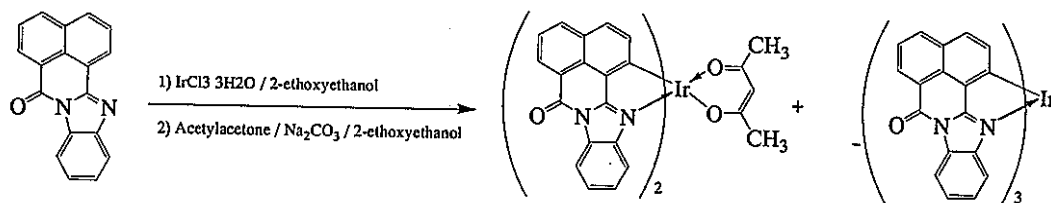
30

【0153】

実施例2

【0154】

【化46】



40

目的物6

目的物7

合成例2にて得られた目的物5（811 mg）と、塩化イリジウム・3水和物（529 mg）とを2-エトキシエタノール（20 ml）中、窒素気流下、加熱還流条件で9.5時間攪拌した後、室温まで冷却し、アセチルアセトン（0.2 ml）、炭酸ナトリウム（795 mg）を加え、同一条件下で更に6.2時間攪拌した。室温まで冷却後、ジクロロメタン（200 ml）にて抽出し、これを塩化ナトリウム水溶液（250 ml）で2回洗浄し、無水硫酸マグネシウムで脱水し、濃縮した後、カラムクロマトグラフィーで精製し、目的物6の暗赤色結晶（78 mg）および目的物7の暗赤色結晶（41 mg）を得た。D

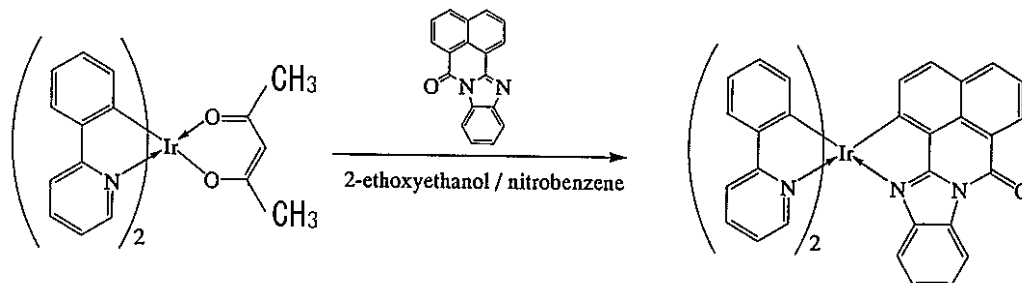
50

EI-MS測定結果により、それぞれ目的物6 (m/z 830 (M^+)), 目的物7 (m/z 1000 (M^+))であることを確認した。

実施例3

【0155】

【化47】



目的物8

10

開始化合物であるビス(2-フェニルピリジナト-N, C^{2'})イリジウム(アセチルアセトナート)は、J. Am. Chem. Soc., 2001, 123, 4305に記載の製法に則り、合成した。開始化合物(600mg)と目的物5(284mg)とを2-エトキシエタノール(10ml)とニトロベンゼン(4ml)の混合溶媒中に分散し、窒素気流中、加熱還流条件で24.5時間攪拌し、得られた混合物をジクロロメタンにて抽出、濃縮後、n-ヘキサンで懸洗後、カラムクロマトグラフィー、及びジクロロメタンとn-ヘキサンからの再結晶にて精製し、目的物8の茶色粉末(11mg)を得た。DEI-MS測定結果により、目的物8 (m/z 770 (M^+))であることを確認した。

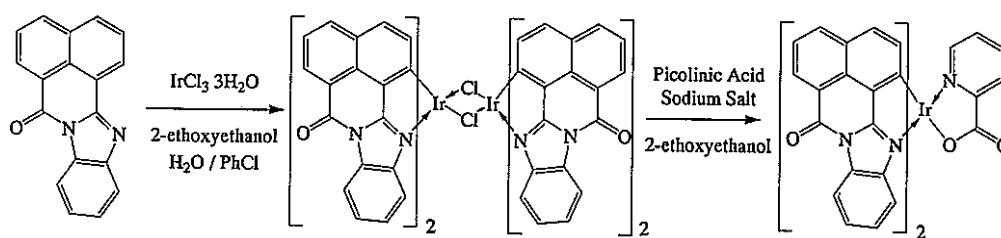
20

【0156】

実施例4

【0157】

【化48】



目的物9

目的物10

30

40

合成例2にて得られた目的物5(0.85g)、塩化イリジウム・3水和物(0.53g)、2-エトキシエタノール(11.3ml)、水(3.8ml)、モノクロロベンゼン(10ml)を窒素雰囲気下、加熱還流条件で10時間攪拌した後、室温まで冷却し、1N塩酸水溶液(15ml)を加えて攪拌した後、濾過し、水(20ml)、メタノール(1×20ml、2×10ml)、ヘキサン(5ml)で洗浄し、目的物9(1.04g)を得た。

【0158】

窒素雰囲気下、目的物9(1.04g)、ピコリン酸ナトリウム(0.39g)、2-エトキシエタノール(20ml)を加熱還流下で7時間攪拌した後、放冷し、メタノール(

50

30 ml)を加えて攪拌した後、濾過し、メタノール(3×20 ml)で洗浄したものを塩化メチレンで抽出し、これをシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、目的物10(31 mg)を得た。また、塩化メチレンで抽出し切れなかった分は、水(300 ml)、塩化メチレン-ヘキサン-エタノール混合溶媒(50 ml)にて加熱懸洗して精製し、目的物10(0.50 g)を得た。FAB-MS測定結果により、目的物10(m/z 853(M⁺))であることを確認した。

窒素雰囲気下、目的物10(0.2 mg)のクロロホルム(25 ml)溶液中、励起波長(480 nm)での蛍光スペクトルの極大発光波長は、659 nmであった。

【0159】

実施例5

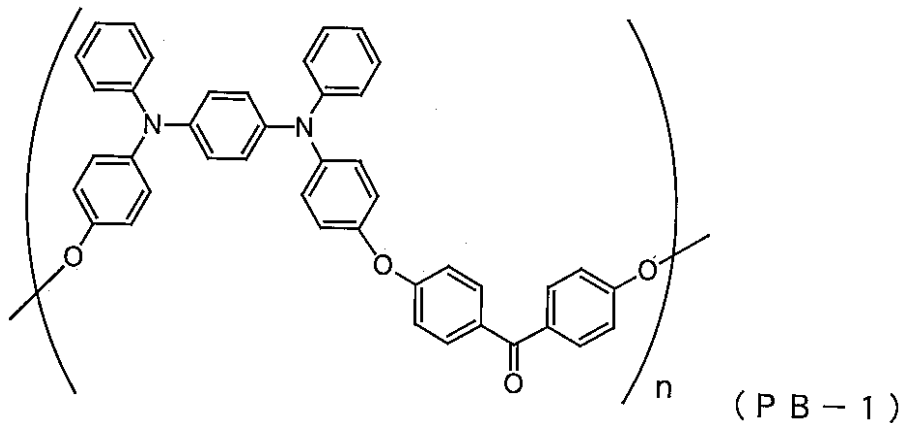
図3に示す構造を有する有機電界発光素子を以下の方法で作製した。

ガラス基板1の上にインジウム・スズ酸化物(ITO)透明導電膜を150 nm堆積したものの(スパッター成膜品;シート抵抗15 Ω)を、通常のリソグラフィ技術と塩酸エッチングを用いて2 mm幅のストライプにパターンニングして、陽極2を形成した。このパターン形成したITO基板を、アセトンによる超音波洗浄、純水による水洗、イソプロピルアルコールによる超音波洗浄の順で洗浄後、窒素ブローで乾燥させ、最後に紫外線オゾン洗浄を行った。

パターン形成したITO基板上に、陽極バッファ層3の材料として、下記繰り返し単位からなる芳香族アミノ基を有する非共役系高分子化合物((PB-1)。重量平均分子量M_w = 25300、数平均分子量M_n = 8800、M_w/M_n = 2.9、T_g = 171 $^{\circ}$ C)

【0160】

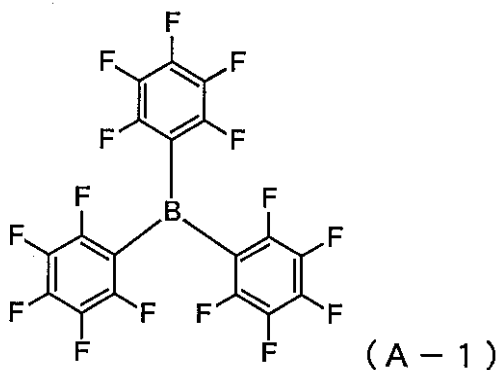
【化49】



を電子受容性化合物(A-1)

【0161】

【化50】



と共に以下の条件でスピコートし、乾燥させて陽極バッファ層3を形成した。

溶媒	シクロヘキサノン
塗布液濃度	13 [mg/ml]
PB-1 : A-1	10 : 1 (重量比)
スピナ回転数	1500 [rpm]
スピナ回転時間	30 [秒]
乾燥条件	100 1時間

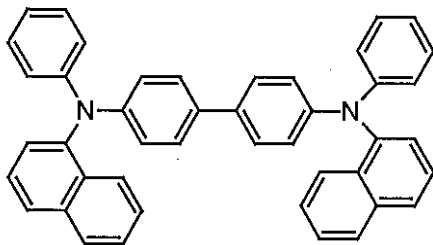
上記工程により膜厚45nmの均一な薄膜(陽極バッファ層3)が形成された。

【0162】

次に、陽極バッファ層3を成膜した基板を真空蒸着装置内に設置した。油回転ポンプにより、上記装置の粗排気を行った後、装置内の真空度が 2×10^{-6} Torr (約 2.7×10^{-4} Pa)以下になるまで、液体窒素トラップを備えた油拡散ポンプを用いて排気した。上記装置内に配置されたセラミックるつぼに、下記に示すアリアルアミン化合物(H-1)

【0163】

【化51】



(H-1)

を入れ、るつぼの周囲のタantal線ヒーターで加熱して蒸着を行った。この時のるつぼの温度は、240~243の範囲で制御した。蒸着時の真空度 1.0×10^{-6} Torr (約 1.3×10^{-4} Pa)、蒸着速度は0.25nm/秒とし、膜厚60nmの正孔輸送層4を得た。引続き、発光層5の主成分(ホスト材料)として下記に示すアルミニウムの8-ヒドロキシキノリン錯体(E-1)を、副成分(ドーパント)として実施例2で合成された目的物7(D-1)を別々のセラミックるつぼに設置し、2元同時蒸着法により成膜を行った。

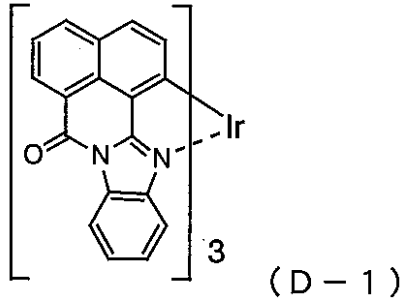
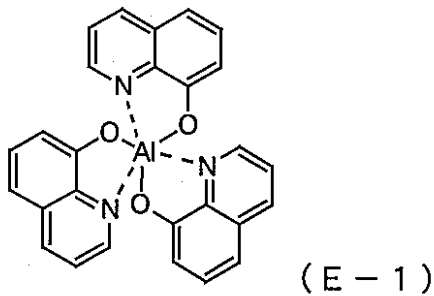
【0164】

【化52】

10

20

30

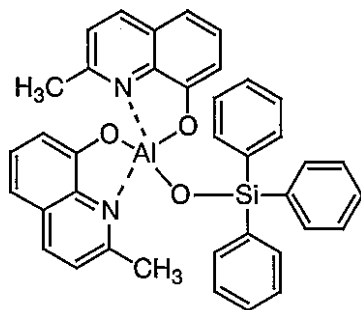


10

化合物 (E-1) のるつぼ温度は 285 ~ 290 、蒸着速度は 0.18 nm / 秒
 に、化合物 (D-1) のるつぼ温度は 421 ~ 425 にそれぞれ制御し、膜厚 30
 nm で化合物 (D-1) が 5 重量% 含有された発光層 5 を正孔輸送層 4 の上に積層した。
 蒸着時の真空度は 1.2×10^{-6} Torr (約 1.6×10^{-4} Pa) であった。
 発光層 5 上に、正孔阻止層 6 として混合配位子錯体 (HB-12)

【0165】

【化53】



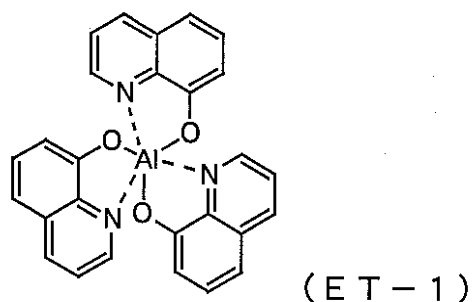
30

を、るつぼ温度 260 、蒸着速度 0.20 nm / 秒で蒸着し、10 nm の膜厚で積層し
 た。蒸着時の真空度は 1.0×10^{-6} Torr (約 1.3×10^{-4} Pa) であった。
 正孔阻止層 6 の上に、電子輸送層 7 として下記に示すアルミニウムの 8 - ヒドロキシキノ
 リン錯体 (ET-1)

40

【0166】

【化54】



10

を同様にして蒸着、積層した。この時の、アルミニウムの8-ヒドロキシキノリン錯体のるつぼ温度は 285 ~ 300 の範囲で制御し、蒸着時の真空度は 1.0×10^{-6} Torr (約 1.3×10^{-4} Pa)、蒸着速度は 0.26 nm/秒で膜厚は 35 nm とした。

上記の正孔輸送層4、発光層5、正孔阻止層6及び電子輸送層7を真空蒸着する時の、基板温度は室温に保持した。

【0167】

ここで、電子輸送層7までの蒸着を行った素子を、一度前記真空蒸着装置内より大気中に取り出して、陰極蒸着用のマスクとして 2 mm幅のストライプ状シャドーマスクを、陽極2のITOストライプとは直交するように素子に密着させて、別の真空蒸着装置内に設置して、有機層蒸着の場合と同様にして装置内の真空度が 4.0×10^{-4} Pa 以下になるまで排気した。

20

【0168】

陰極8として、先ず、フッ化リチウム(LiF)をモリブデンボートを用いて、蒸着速度 0.01 nm/秒、真空度 7.6×10^{-4} Paで、0.5 nmの膜厚で電子輸送層7の上に成膜した。次に、アルミニウムを同様にモリブデンボートにより加熱して、蒸着速度 0.40 nm/秒、真空度 1.0×10^{-3} Paで膜厚 80 nmのアルミニウム層を形成して、陰極8を完成させた。以上の2層型陰極8の、蒸着時の基板温度は室温に保持した。

【0169】

以上の様にして、2 mm x 2 mm のサイズの発光面積部分を有する有機電界発光素子が得られた。この素子の発光特性を表-1に示す。表-1において、最大発光輝度は電流密度 0.25 A/cm^2 での値、発光効率・輝度/電流・電圧は 輝度 100 cd/m^2 での値を各々示す。素子の発光スペクトルの極大波長は 647 nmであり、化合物(D-1)からのものと同定された。色度は $\text{CIE}(x, y) = (0.069, 0.30)$ で、いわゆる純赤の発光が得られた。

30

【0170】

比較例1

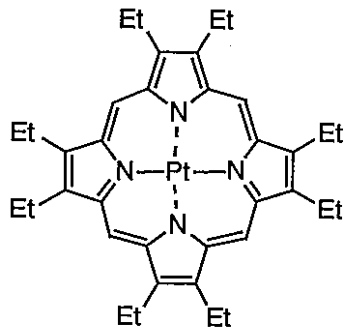
発光層の副成分(ドーパント)である目的物7(D-1)の代わりに、下記に示す白金錯体(D-2)を用いた他は、実施例7と同様にして素子を作製した。この素子の発光特性を表-1に示す。

40

素子の発光スペクトルの極大波長は 651 nmであり、白金錯体(D-2)からのものと同定された。色度は $\text{CIE}(x, y) = (0.71, 0.29)$ と色純度は実施例5と同等であるが、実施例5と比較して発光効率が低い。

【0171】

【化55】



10

【0172】

【表26】

表-1

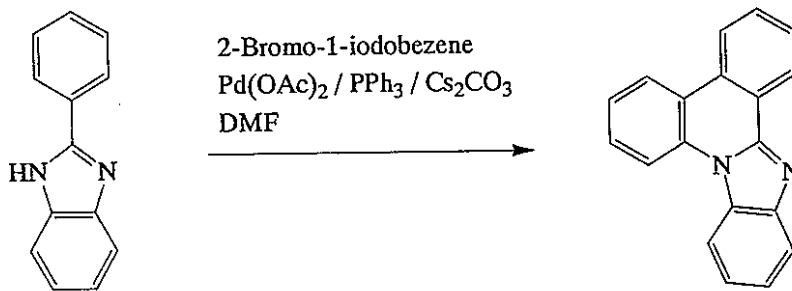
	発光開始 電圧 [V] @1cd/m ²	最大発光輝 度 [cd/m ²] @0.25A/c m ²	発光効率 [lm/W] @100cd/m ²	輝度/電流 [cd/A] @100cd/m ²	電圧 [V] @100cd/m ²
実施例 5	4.1	3600	0.73	2.4	10.2
比較例 1	4.0	270	0.08	0.20	8.1

20

合成例 3

【0173】

【化56】



30

目的物 1 1

40

窒素雰囲気下、2-フェニルベンズイミダゾール(3.9g)、酢酸パラジウム(0.45g)、トリフェニルフォスフィン(1.0g)、炭酸セシウム(28g)、N,N-ジメチルホルムアミド(脱水、200ml)の混合物中に、2-ブロモ-1-ヨードベンゼン(2.7ml)を室温で加え、150℃で3.3時間撹拌した。得られた溶液からDMFを減圧下で留去した後、塩化メチレン(200ml)で抽出、濾過し、濾液を水(150ml)で洗浄、無水硫酸マグネシウムで乾燥後、濾過、濃縮した。これをシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、目的物11(3.6g)を得た。EI-MS測定結果により、目的物11(m/z 268(M⁺))であることを確認した。

比較例 2

50

内壁の反射率・吸収率などの補正を考慮したうえで、外部量子効率を測定する。この方法では、積分球において素子放出光全部を捕捉して、積分することができるという利点がある。この方法については、例えば特許第2823275号公報に示されている。

【0179】

実施例5で作成した2mm×2mmサイズの発光面積を有する素子を積分球内部に設置し、発光させた。測定には、Labsphere社製積分球測定システムSLMS 1011を用いて行った。(測定条件：入力電流 8mA)

得られた測定結果について、以下の式を用いて100cd/m²時の量子効率算出し、これを補正外部量子効率とした。

【0180】

【数1】

$$\text{補正外部量子効率} = \text{補正前外部量子効率} \times [L/J@100\text{cd/m}^2] / [L/J@\text{測定時}]$$

なお、Lは輝度[cd/m²]、Jは電流密度[A/cm²]を表し、L/Jは単位電流当たりの発光効率([cd/A])を表す。下表に得られた結果を示す。

【0181】

【表27】

	入力 電流 測定時	引加 電圧 測定時	L/J 測定時	L/J @100cd/m ²	補正前 外部量子 効率	補正 外部量子 効率
実施例 5	8mA	15V	2.1cd/ A	2.4cd/A	3.3%	3.7%

【0182】

【発明の効果】

以上詳述したように、本発明によれば、特に長波長発光における色純度の向上、発光の高効率化、および素子の長寿命化が可能な新規有機金属錯体と、この有機金属錯体を使用した長寿命で高発光効率の有機電界発光素子が提供される。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の有機電界発光素子の実施の形態の一例を示した模式的断面図である。

【図2】本発明の有機電界発光素子の実施の形態の別の例を示した模式的断面図である。

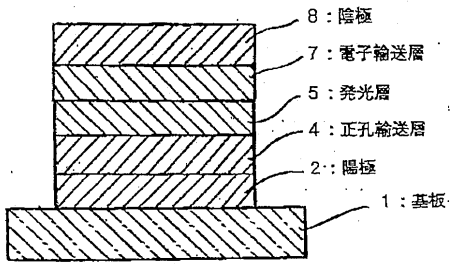
【図3】本発明の有機電界発光素子の実施の形態の別の例を示した模式的断面図である。

【図4】実施例5にて得られた素子の、発光効率の電圧依存性を表すグラフである。

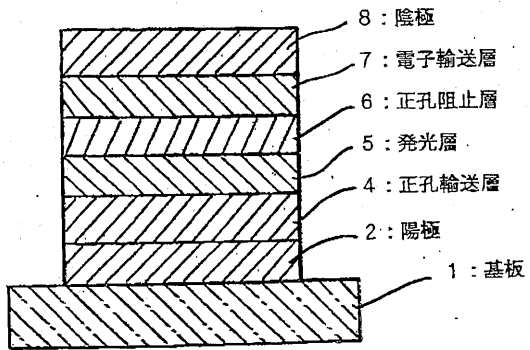
【符号の説明】

- 1 基板
- 2 陽極
- 3 陽極バッファ層
- 4 正孔輸送層
- 5 発光層
- 6 正孔阻止層
- 7 電子輸送層
- 8 陰極

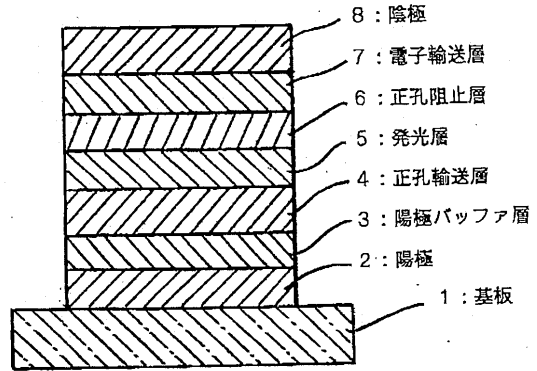
【 図 1 】



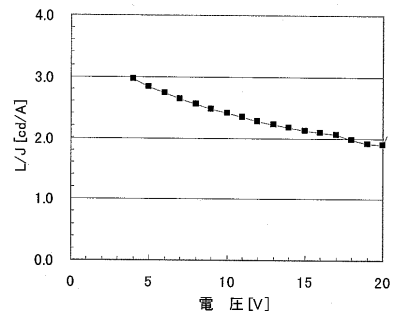
【 図 2 】



【 図 3 】



【 図 4 】



フロントページの続き

(51)Int.Cl. ⁷	F I	テーマコード(参考)
H 0 5 B 33/14	C 0 9 K 11/06 6 6 0	
	H 0 5 B 33/14 B	

(72)発明者 佐藤 秀樹

神奈川県横浜市青葉区鴨志田町1000番地 三菱化学

株式会社内

Fターム(参考) 3K007 AB03 AB04 AB11 DB03

4C055 AA01 BA02 BA08 BA57 CA01 DA01 GA02

4C065 AA03 AA04 AA18 BB06 BB09 CC09 DD02 EE02 HH04 HH09

JJ04 KK01 LL01 PP03

4H050 AB92 WB11 WB21

【要約の続き】

その数を表すnは、0、1または2である。但し、 $m + n = (Mの価数)$ である。Mは中心金属を表し、YおよびZは、各々独立に炭素原子または窒素原子を示す。

Wは - C O - 部分構造を含む連結基を表し、該部分構造は一方または両方でN原子と直接単結合している。環Aは芳香族環を示し、環Cは複素環を示す。)

【選択図】 なし

专利名称(译)	有机金属配合物，发光染料，有机电致发光器件材料和有机电致发光器件		
公开(公告)号	JP2004131464A	公开(公告)日	2004-04-30
申请号	JP2003061247	申请日	2003-03-07
[标]申请(专利权)人(译)	三菱化学株式会社		
申请(专利权)人(译)	三菱化学株式会社		
[标]发明人	矢部昌義 秋山誠治 佐藤秀樹		
发明人	矢部 昌義 秋山 誠治 佐藤 秀樹		
IPC分类号	H01L51/50 C07D213/06 C07D213/79 C07D471/04 C07F15/00 C09K11/06 H05B33/14		
FI分类号	C07F15/00.E C07D213/06 C07D213/79 C07D471/04.105.E C07D471/04.112.Z C09K11/06.660 H05B33/14.B		
F-TERM分类号	3K007/AB03 3K007/AB04 3K007/AB11 3K007/DB03 4C055/AA01 4C055/BA02 4C055/BA08 4C055/BA57 4C055/CA01 4C055/DA01 4C055/GA02 4C065/AA03 4C065/AA04 4C065/AA18 4C065/BB06 4C065/BB09 4C065/CC09 4C065/DD02 4C065/EE02 4C065/HH04 4C065/HH09 4C065/JJ04 4C065/KK01 4C065/LL01 4C065/PP03 4H050/AB92 4H050/WB11 4H050/WB21 3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC04 3K107/CC07 3K107/CC21 3K107/CC45 3K107/DD53 3K107/DD64 3K107/DD69 3K107/DD74		
优先权	2002236542 2002-08-14 JP		
其他公开文献	JP4193523B2		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

要解决的问题：提供一种有效的有机电致发光器件的有机金属配合物，其能够同时实现色纯度的提高，发光的高效率和化合物本身的耐久性的提高。由下列通式(1)表示的有机金属配合物和使用其的有机电致发光器件。(式中，m表示配体数，为1,2或3.L表示任意二齿配体，n表示数为0,1或2，条件是M + n = (M的化合价)，M表示中心金属，Y和Z各自独立地表示碳原子或氮原子。W表示含有-CO-部分结构的连接基团，并且该部分结构直接或通过单键直接键合到N原子上。环A表示芳环，环C表示杂环。)【选择图】无

