

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2006-512436
(P2006-512436A)

(43) 公表日 平成18年4月13日(2006.4.13)

| (51) Int. Cl. | F I | テーマコード (参考) |
|-----------------------------|----------------|-------------|
| CO9K 11/06 (2006.01) | CO9K 11/06 660 | 3K007 |
| HO1L 51/50 (2006.01) | CO9K 11/06 610 | 4H049 |
| HO5B 33/26 (2006.01) | CO9K 11/06 620 | |
| HO5B 33/28 (2006.01) | CO9K 11/06 635 | |
| CO7F 7/00 (2006.01) | CO9K 11/06 640 | |

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 70 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2004-563347 (P2004-563347)
 (86) (22) 出願日 平成15年12月19日 (2003.12.19)
 (85) 翻訳文提出日 平成17年8月22日 (2005.8.22)
 (86) 国際出願番号 PCT/GB2003/005573
 (87) 国際公開番号 W02004/058913
 (87) 国際公開日 平成16年7月15日 (2004.7.15)
 (31) 優先権主張番号 0230072.1
 (32) 優先日 平成14年12月24日 (2002.12.24)
 (33) 優先権主張国 英国 (GB)

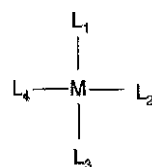
(71) 出願人 501348210
 エラムーティー リミテッド
 イギリス国, エンフィールド EN3 7
 XH, イノーバ パーク, キネティック
 クレセント 8, ワークゾーン ユニット
 2
 (74) 代理人 100074099
 弁理士 大菅 義之
 (72) 発明者 カサーガマナザン, プーパティ
 イギリス国, ミドルセックス HA2 7
 NN, ノース ハロー, ランカスター ロ
 ード 1, ザ リトル ランカスター ハ
 ウス

最終頁に続く

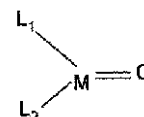
(54) 【発明の名称】 エレクトロルミネッセンス物質および装置

(57) 【要約】

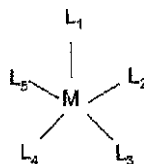
エレクトロルミネッセンス物質は、有機金属錯体であつて、前記金属は、チタン、ジルコニウム、ハフニウム、バナジウム、ニオブ、もしくはタンタルである。



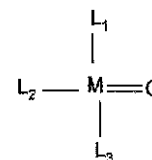
(A)



(B)



(C)



(D)

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

構造式 $M(L)_n$ もしくは $MO(L)_{n-2}$ のエレクトロルミネッセンス化合物であって、式中の M は 3 よりも大きな原子価状態 n の金属、L は有機配位子であり、前記配位子 L は同一もしくは異なるものであることを特徴とする、エレクトロルミネッセンス化合物。

【請求項 2】

構造式が、 $M^{(iv)}(L_1)(L_2)(L_3)(L_4)$ 、 $M^{(iv)}O(L_1)(L_2)$ 、 $M^{(v)}(L_1)(L_2)(L_3)(L_4)(L_5)$ 、 $M^{(v)}O(L_1)(L_2)(L_3)$ である、請求項 1 記載のエレクトロルミネッセンス化合物。

【請求項 3】

前記金属 M が、四価のチタン、ジルコニウムもしくはハフニウム、または、五価のバナジウム、ニオブもしくはタンタルであることを特徴とする、請求項 1 もしくは 2 に記載のエレクトロルミネッセンス化合物。

10

【請求項 4】

図 1 a ~ 1 d の構造式を持つ、請求項 1 記載のエレクトロルミネッセンス化合物。

【請求項 5】

構造式が $M(L_1)(L_2)(L_3)(L_4)$ もしくは $MO(L_1)(L_2)$ であって、式中の基 (L_1) 、 (L_2) 、 (L_3) および (L_4) が、同一もしくは異なるものであり、式中の M が四価のジルコニウム、ハフニウム、もしくはチタンであることを特徴とする、請求項 1 記載のエレクトロルミネッセンス化合物。

【請求項 6】

構造式が $M(L_1)(L_2)(L_3)(L_4)(L_5)$ もしくは $MO(L_1)(L_2)(L_3)$ であって、式中の基 (L_1) 、 (L_2) 、 (L_3) および (L_4) (L_5) が、同一もしくは異なるものであり、式中の M が五価のバナジウム、ニオブ、もしくはタンタルであることを特徴とする、請求項 1 記載のエレクトロルミネッセンス化合物。

20

【請求項 7】

前記配位子 L が、明細書中の配位子 (I) ~ (XVIII) から選択されることを特徴とする、前述の請求項のいずれか一項に記載のエレクトロルミネッセンス化合物。

【請求項 8】

配位子 L が、キノラート類、ポルフォリン類、ピラザロン類、および β -ジケトン類、から選択されることを特徴とする、前述の請求項のいずれか一項に記載のエレクトロルミネッセンス化合物。

30

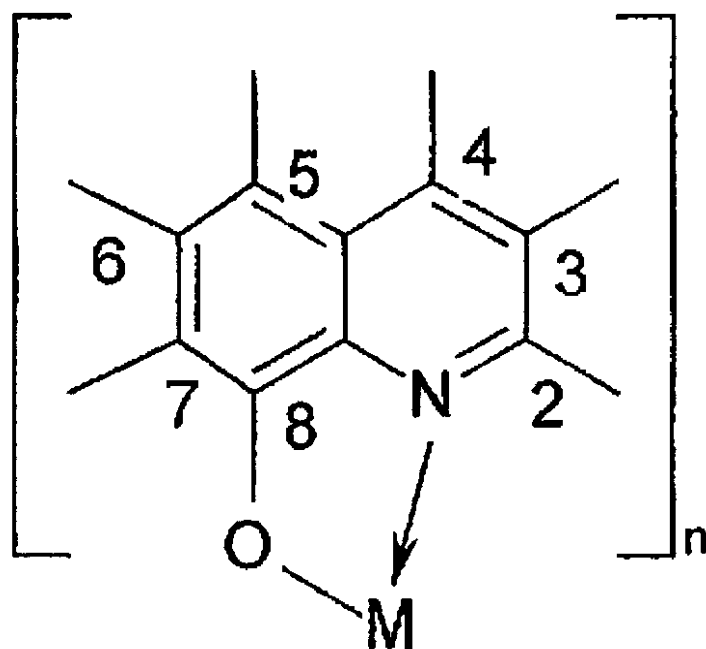
【請求項 9】

配位子 L が、ジベンゾイルメタンであることを特徴とする、前述の請求項のいずれか一項に記載のエレクトロルミネッセンス化合物。

【請求項 10】

下記構造式を有するエレクトロルミネッセンス化合物であって、

【化 1】



10

20

式中のMが、四価のチタン、ジルコニウム、もしくはハフニウム、または、五価のバナジウム、ニオブ、もしくはタンタルから選択され、式中のnが前記Mの原子価状態であり、位置2、3、4、5、6、および7の置換基が、同一もしくは異なっていることを特徴とする、エレクトロルミネッセンス化合物。

【請求項 1 1】

前記置換基が、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリーロキシ基、スルホン酸類、エステル類、カルボン酸類、アミノ基およびアミド基から選択されるか、または、芳香族基、多環基もしくは複素環基であることを特徴とする、請求項 1 1 記載のエレクトロルミネッセンス化合物。

30

【請求項 1 2】

前記錯体が、2-メチル金属キノラートもしくは5-メチル金属キノラートであることを特徴とする、請求項 1 0 記載のエレクトロルミネッセンス化合物。

【請求項 1 3】

請求項 1 ~ 1 2 のいずれか一項に記載のエレクトロルミネッセンス化合物と、蛍光物質を含むドーパントとを含む、エレクトロルミネッセンス組成物。

【請求項 1 4】

前記ドーパントが、ジフェニルアクリジン、クマリン類、ペリレン、キノラート類、ポルフォリン、ポルフィン類、ピラザロン類、およびそれらの誘導体から選択されることを特徴とする、請求項 1 3 記載のエレクトロルミネッセンス組成物。

40

【請求項 1 5】

有機金属錯体のモル数を基準として、10モルパーセントを上限とする蛍光物質が存在する、請求項 1 3 もしくは 1 4 に記載のエレクトロルミネッセンス組成物。

【請求項 1 6】

有機金属錯体のモル数を基準として、1モルパーセントを上限とする蛍光物質が存在する、請求項 1 3 もしくは 1 4 に記載のエレクトロルミネッセンス組成物。

【請求項 1 7】

有機金属錯体のモル数を基準として、 10^{-3} モルパーセントを上限とする蛍光物質が存在する、請求項 1 3 もしくは 1 4 に記載のエレクトロルミネッセンス組成物。

【請求項 1 8】

50

前記ドーパントが、構造式(A)、(B)および(C)の化合物、ならびに図9～13の化合物から選択されることを特徴とする、請求項13～17のいずれか一項に記載のエレクトロルミネッセンス組成物。

【請求項19】

(i) 第一電極、(ii) 請求項1～18のいずれか一項に記載のエレクトロルミネッセンス化合物もしくは組成物、および(iii) 第二電極を含む、エレクトロルミネッセンスデバイス。

【請求項20】

前記第一電極と前記エレクトロルミネッセンス層との間に、正孔伝送物質が存在することを特徴とする、請求項19記載のエレクトロルミネッセンスデバイス。

10

【請求項21】

前記正孔伝送物質が、芳香族アミン錯体であることを特徴とする、請求項20記載のエレクトロルミネッセンスデバイス。

【請求項22】

前記正孔伝送物質が、ポリ芳香族アミン錯体であることを特徴とする、請求項20記載のエレクトロルミネッセンスデバイス。

【請求項23】

前記正孔伝送物質が、ポリ(ビニルカルバゾール)、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン (TPD)、ポリアニリン、置換ポリアニリン類、ポリチオフェン類、置換ポリチオフェン類、ポリシラン類、および置換ポリシラン類から選択されるポリマーのフィルムであることを特徴とする、請求項20記載のエレクトロルミネッセンスデバイス。

20

【請求項24】

前記正孔伝送物質が、明細書中の構造式(XIX)もしくは(XX)の化合物、または図4～8の化合物のフィルムであることを特徴とする、請求項20記載のエレクトロルミネッセンスデバイス。

【請求項25】

前記正孔伝送物質が、アニリンのコポリマー、あるいは、アニリンと、o-アニシジン、m-スルファニル酸、もしくはo-アミノフェノールとのコポリマー、または、o-トルイジンと、o-アミノフェノール、o-エチルアニリン、o-フェニレンジアミン、もしくはアミノアントラセンとのコポリマー、であることを特徴とする、請求項20記載のエレクトロルミネッセンスデバイス。

30

【請求項26】

前記正孔伝送物質が、共役ポリマーであることを特徴とする、請求項20記載のエレクトロルミネッセンスデバイス。

【請求項27】

前記共役ポリマーが、ポリ(p-フェニレンビニレン)-PPV、ならびに、PPV、ポリ(2,5ジアルコキシフェニレンビニレン)、ポリ(2-メトキシ-5-(2-メトキシペンチルオキシ)-1,4-フェニレンビニレン)、ポリ(2-メトキシペンチルオキシ)-1,4-フェニレンビニレン)、ポリ(2-メトキシ-5-(2-ドデシルオキシ)-1,4-フェニレンビニレン)、ならびに、アルコキシ基、ポリフルオレン類、オリゴフルオレン類、ポリフェニレン類およびオリゴフェニレン類、ポリフェニレン類およびオリゴフェニレン類、ポリアントラセン類およびオリゴアントラセン類、ポリチオフェン類およびオリゴチオフェン類に可溶である長鎖アルコキシ基を少なくともひとつ含む、他のポリ(2,5ジアルコキシフェニレンビニレン)類、から選択されることを特徴とする、請求項26記載のエレクトロルミネッセンスデバイス。

40

【請求項28】

前記エレクトロルミネッセンス化合物が、前記正孔伝送物質と混合されていることを特徴とする、請求項20～28のいずれか一項に記載のエレクトロルミネッセンスデバイス。

【請求項29】

50

前記カソードと前記エレクトロルミネセンス化合物層との間に、電子伝送物質が存在することを特徴とする、請求項 19 ~ 28 のいずれか一項に記載のエレクトロルミネセンスデバイス。

【請求項 30】

前記電子伝送物質が、金属キノラートであることを特徴とする、請求項 29 記載のエレクトロルミネセンスデバイス。

【請求項 31】

前記金属キノラートが、アルミニウムキノラート、ジルコニウムキノラート、もしくはリチウムキノラートであることを特徴とする、請求項 30 記載のエレクトロルミネセンスデバイス

10

【請求項 32】

前記電子伝送物質が、構造式 $M_x(DBM)_n$ であって、式中の M_x が金属、DBM がジベンゾイルメタン、 n が M_x の原子価であることを特徴とする、請求項 30 記載のエレクトロルミネセンスデバイス。

【請求項 33】

前記電子伝送物質が、9,10 ジシアノアントラセンのようなシアノアントラセン、ポリスチレンスルホナート、または図2もしくは図3に示した構造式の化合物であることを特徴とする、請求項 29 記載のエレクトロルミネセンスデバイス。

【請求項 34】

前記電子伝送物質が、前記エレクトロルミネセンス化合物と混合されていることを特徴とする、請求項 29 ~ 33 のいずれか一項に記載のエレクトロルミネセンスデバイス

20

【請求項 35】

前記第一電極が、透明導電性ガラス電極であることを特徴とする、請求項 19 ~ 34 のいずれか一項に記載のエレクトロルミネセンスデバイス。

【請求項 36】

前記第二電極が、アルミニウム、カルシウム、リチウム、マグネシウム、ならびに、これらの合金、および銀 / マグネシウム合金、から選択されることを特徴とする、請求項 19 ~ 35 のいずれか一項に記載のエレクトロルミネセンスデバイス。

【発明の詳細な説明】

30

【技術分野】

【0001】

本発明は、エレクトロルミネセンス物質およびエレクトロルミネセンスデバイスに関する。

【背景技術】

【0002】

電流が流れたときに発光する物質は公知であり、ディスプレイに広範囲で応用されている。液晶デバイスおよび、無機半導体システムに基づいたデバイスは、広範囲に用いられているが、これらは高いエネルギー消費、製造時の高コスト、低い量子効率およびフラットパネルディスプレイをつくることができないという見地に鑑みて不利である。

40

【0003】

有機ポリマーはエレクトロルミネセンスデバイスにおいて有用であるとの提案がなされてきたが、純色を得ることができず、製造コストが高く、また、比較的低い効率である。

【0004】

特許出願 W098/58037号は、特性とよりよい結果を保証するエレクトロルミネセンスデバイスにおいて用いることができるランタノイド錯体の範囲を開示している。特許出願 PCT/GB98/01773号、PCT/GB99/03619号、PCT/GB99/04030号、PCT/GB99/04024号、PCT/GB99/04028号、PCT/GB00/00268号 において、希土類元素のキレートを用いたエレクトロルミネセンス錯体、構造およびデバイスが開示されている。

50

【0005】

エレクトロルミネッセンスデバイスに用いるためのエレクトロルミネッセンス物質として提案された別の化合物としては、アルミニウムキノラート (aluminium quinolate) がある。

【0006】

米国特許 3,995,299号 (Partridge) は、シーケンスにおいて、アノード、有機正孔注入・輸送領域、ルミネッセンス領域、電子輸送領域およびカソードを含むエレクトロルミネッセンスデバイスを開示している。前記ルミネッセンス領域は、ペリレンやアクリジンなどのような蛍光色素 (fluorescent dye) をドーブした、ポリビニルカルバゾールのような有機ポリマーとすることができる。

10

【0007】

米国特許 4769292号 (Kodak) は、シーケンスにおいて、アノード、有機正孔注入・輸送領域、ルミネッセンス領域、電子輸送領域およびカソードを含むエレクトロルミネッセンスデバイスを開示している。前記ELデバイスは、前記ルミネッセンス領域が、有機ホスト物質および発光能を有した蛍光物質を含む、厚さ1 μ m以下の薄いフィルムによって形成されていることを特徴とする。前記ルミネッセンス領域は、明細書の例においてアルミニウムキノラートを含み、また、価数が1~3の他の金属のキノラートについても言及されており、請求項に示されている。

【発明の開示】

【0008】

われわれは、原子価が3よりも大きい、例えば原子価が4、5またはそれ以上である金属の有機金属錯体を用いると、パフォーマンスが改善されることを見出した。好ましくは、前記有機金属錯体は、金属キノラートである。

20

【0009】

本発明では、構造式 $M(L)_n$ および $MO(L)_{n-2}$ (式中のMは3よりも大きい原子価を持つ金属、Lは有機配位子であって同一であっても、例えば $M(L_1)(L_2)(L_3)(L_4)\dots$ や $MO(L_1)(L_2)\dots$ のように異なってもよい) であるエレクトロルミネッセンス化合物を提供する。

【0010】

本発明は、連続的に、アノード、ならびに、構造式 $M(L)_n$ および $MO(L)_{n-2}$ (式中のMは3よりも大きい原子価を持つ金属、Lは有機配位子であって同一であっても、例えば $M(L_1)(L_2)(L_3)(L_4)\dots$ や $MO(L_1)(L_2)\dots$ のように異なってもよい) を含むエレクトロルミネッセンス物質層、ならびに、カソードを含む、エレクトロルミネッセンスデバイスも提供する。

30

【0011】

好ましくは、金属Mは、チタン、ジルコニウムもしくはハフニウムのような四価の遷移金属か、または、バナジウム、ニオブもしくはタンタルのような五価の遷移金属である。

好ましくは、前記エレクトロルミネッセンス化合物は、添加共存物質 (ドーパント; dopants) として少量の蛍光物質をドーブし、ドーブ量はドーブされた混合物に対して5~15%であるのが好ましい。

40

【0012】

この参照により本願に含まれる米国特許 4769292号で考察されているように、前記蛍光物質の存在によって、発光波長の露光寛容度 (latitude) を広い範囲から選ぶことができるようになる。

【0013】

前記有機金属錯体と、正孔-電子再結合に反応して発光する能力を有する少量の蛍光物質とを混合することにより、前記ルミネッセンス領域から放射される色相 (the hue light) を修正することができる。理論上、正孔-電子再結合の親和力が完全に同一である、混合に適した有機金属錯体および蛍光物質が発見された場合、それぞれの物質が、前記ルミネッセンス領域に正孔と電子を送りこむことにより発光する。知覚される色相は、双方の

50

発光の視覚的な重ねあわせとなる。

【0014】

前記有機金属錯体および蛍光物質のバランスには、大きな制限が課されているため、前記蛍光物質は、有利な光放射位置を与えるものを選ぶのが好ましい。有利な光放射位置を与える蛍光物質が、少ない比率だけ存在する場合でも、前記蛍光物質に因る新たなピーク発光波長強度の方が優勢となり、典型的な前記有機金属錯体のピーク発光波長強度 (peak intensity wavelength emissions) を、完全に打ち消すことができる。この効果をもたらすに十分な蛍光物質の最低限の比率は、有機金属錯体および蛍光物質の特定の選択によって異ってくるが、いかなる例においても、有機金属錯体のモル数に対して、前記蛍光物質の比率は10モルパーセント以上必要となることはなく、また、蛍光物質が1モルパーセント以上必要となることは稀である。一方、蛍光物質無しで発光能を有する任意の有機金属錯体は、前記蛍光物質の存在量をきわめて少量、有機金属錯体のモル数に対して通常 10^{-3} モルパーセント以下、に制限し、前記有機金属錯体の波長特性における発光を保持することができる。したがって、有利な光放射位置を与えることができる蛍光物質の選択によって、全体的または部分的である放出波長シフトを実現することができる。これによって、有用な用途に適合するように選択され考察された、本発明のELデバイスのスペクトル放射が許容される。

10

【0015】

有利な光放射位置を与える蛍光物質の選択においては、前記有機金属錯体の特性と前記蛍光物質の特性とを関連づけることを含む必要がある。前記有機金属錯体は、有利な光放射分子位置を与える前記蛍光物質によって送りこまれた正孔と電子を集めるものと見做すことができる。有機金属錯体の存在下における、色相放射を修正できる蛍光物質の選択に関連して、前記のふたつの物質の還元電位の比較がまず重要となる。放射光の波長シフトを示す前記蛍光物質は、前記有機金属錯体に較べ、負の還元電位が小さい。電圧として計測される還元電位は、測定技術に応じた文献で広く報告されている。還元電位は、絶対値よりも差分値とするのが望ましいため、許容しうる任意の還元電位測定技術によって、前記蛍光物質および有機金属錯体の双方の還元電位を同様に測定できるのは明らかである。好ましい酸化還元電位測定技術は、R. J. Cox, Photographic Sensitivity, Academic Press, 1973, Chapter 15 に報告されている。

20

【0016】

有機金属錯体の存在下における、色相放射を修正できる蛍光物質の選択に関連する、第二の重要な点は、前記ふたつの物質のバンドギャップ電位の比較である。放射光の波長シフトを示す前記蛍光物質は、前記有機金属錯体に較べ、低いバンドギャップポテンシャルを有する。分子のバンドギャップポテンシャルは、分子の基底状態と第一重項状態を分けるエレクトロンボルト (eV) の差のポテンシャルとして得られる。バンドギャップポテンシャルとその測定技術は、文献に広く報告されている。ここで報告しているバンドギャップポテンシャルは、吸収ピークに深色移動する吸収波長におけるエレクトロンボルト (eV) として計測しており、また、前記吸収ピークの十分の一程度となる。バンドギャップポテンシャルは、絶対値よりも差分値とするのが望ましいため、許容しうる任意のバンドギャップ測定技術によって、前記蛍光物質および有機金属錯体の双方のバンドギャップを同様に測定できるのは明らかである。測定技術の実例は、F. Gutaman and L. E. Lyons, Organic Semiconductors, Wiley, 1967, Chapter 5 に開示されている。

30

40

【0017】

蛍光物質無しで自身が発光能を有する有機金属錯体を選択する際、前記有機金属錯体および蛍光物質のスペクトル結合 (spectral coupling) が起こったときに、前記有機金属錯体単独の放射特性の波長における発光の隠蔽と、前記蛍光物質の特性の波長における放射の増大が観察される。スペクトル結合は、前記有機金属錯体単独の放射特性波長と、前記有機金属錯体が無いときの前記蛍光物質の吸収光波長との間に、重なるところがあるということを意味している。前記蛍光物質の極大吸収 $m \pm 25\text{nm}$ において、最適なスペクトル結合が起こる。実際には、ピーク幅ならびに浅色および深色曲線に依って、好都合なス

50

ペクトル結合は、100nm以上異なるピーク放射および吸収波長において起こる。前記有機金属錯体と蛍光物質との間に最適ではないスペクトル結合が予想される際、前記蛍光物質の浅色同様の深色の置換によって、より効率的な結果が得られる。

【0018】

上述の議論は、正孔と電子の注入に応じて発光することが公知である有機金属錯体を参照して行なわれたものであるが、実際は、上述したさまざまな関係のうちのいずれかまたはその組み合わせによって、前記蛍光物質の発光が優勢となる場合には、前記有機金属錯体自身の発光を完全に止めることができる。発光する役割が前記蛍光物質に移ることにより、有機金属錯体をより広範囲に選択できるようになる、ということを理解することができる。例えば、発光のために選ぶ物質には、前記発光の波長における低い吸収効率が、内部吸収を避けるために必須である。本発明では、正孔および電子の注入を維持することができ、かつ効率的に発光できない、有機金属錯体の使用を認めている。

10

【0019】

有用な蛍光物質は、前記有機金属錯体と混合することができ、かつ、本発明のELデバイスのルミネッセンス領域を形成する、上述した薄さの範囲を満たす薄いフィルムに成形することができるものである。結晶有機金属錯体が、薄いフィルム状に成形することに不向きであっても、前記有機金属錯体中に存在する、制限された量の蛍光物質によって、単独では薄いフィルムに成形できない蛍光物質の使用が許可される。好ましい蛍光物質は、前記有機金属錯体物質と共通の層を成す。蛍光色素は、前記有機金属錯体中に分子レベルで分配されることに適しているものであるため、好ましい種類の蛍光物質から構成される。前記蛍光色素を、前記有機金属錯体中に分散させるための、任意の有用な技術が保証されているが、好ましい蛍光色素は、前記有機金属錯体物質に沿って、真空蒸着することができるものである。上述した、適切な他の基準を想定すると、蛍光レーザー色素 (fluorescent laser dyes) は、本発明の有機ELデバイスにとって、特に有用な蛍光物質であることが認められる。使用できるドーパントは、ジフェニルアクリジン、クマリン類、ペリレンおよびこれらの誘導体を含む。

20

【0020】

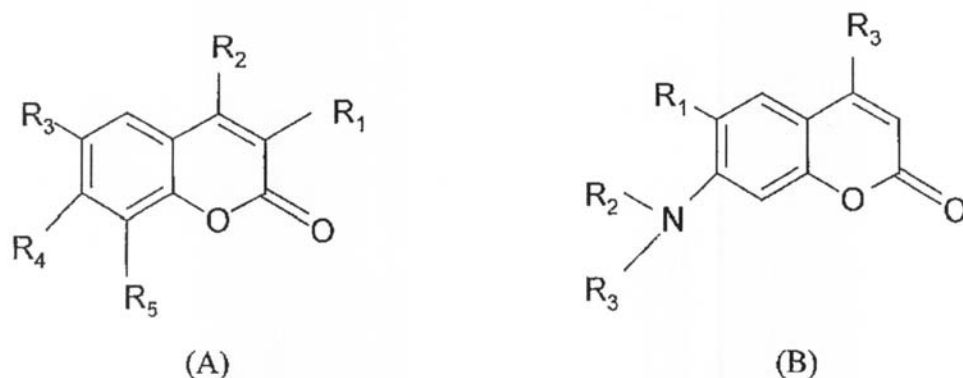
有用な蛍光ドーパントは、米国特許 4769292号に開示されており、この参照により開示に含まれる。

好ましいドーパントは、以下の構造式を持つようなクマリン類であって、

30

【0021】

【化2】



40

式中の R_1 は、水素原子、カルボキシ基、アルカノイル基 (alkanoyl)、アルコキシカルボニル基、シアノ基、アリール基 (aryl)、および複素環芳香族基、から成る群から選ばれ、 R_2 は、水素原子、アルキル基、ハロアルキル基、カルボキシ基、アルカノイル基、およびアルコキシカルボニル基、から成る群から選ばれ、 R_3 は、水素原子およびアルキル基から成る群から選ばれ、 R_4 はアミノ基であり、 R_5 は水素原子であるか、あるいは、 R_1 もしくは R_2 は、ともに縮合炭素環を形成し、および/または、 R^4 および R^6 のうち少なくとも一方と縮合環を閉環する R^4 を形成するアミノ基である。

50

【0022】

前記アルキル基は、それぞれの例において、1~5個の炭素原子から成り、好ましくは1~3個の炭素原子から成る。前記アリール基は、好ましくはフェニル基である。前記縮合炭素環は、好ましくは五員環、六員環もしくは七員環である。前記複素環芳香族基は、炭素原子、および、酸素と硫黄と窒素から成る群から選ばれる一個または二個のヘテロ原子を含む、五員環もしくは六員環の複素環を含む。前記アミノ基は、一級、二級もしくは三級アミノ基である。前記アミノ基の窒素原子が、隣接する置換基とともに縮合環を閉環するとき、前記環は好ましくは五員環もしくは六員環である。例えば、前記窒素原子が、隣接する置換基 (R^3 もしくは R^5) と単環を構成するとき、 R^4 はピラン環形状をとることができ、あるいは、前記窒素原子が隣接する置換基 R_3 および R_5 の双方と複数の環を形成するとき、 R_4 はジュロリジン (julolidine) 環形状 (クマリンの縮合ベンゾ環を含む) をとることができる。

【0023】

以下は、レーザー色素として有用であることが公知な蛍光クマリン類色素の例である。

FD-1 7-ジエチルアミノ-4-メチルクマリン、FD-2 4,6-ジメチル-7-エチルアミノクマリン、FD-3 4-メチルウンベリフェロン (4-Methylumbelliferone)、FD-4 3-(2'-ベンゾチアゾリル)-7-ジエチルアミノクマリン、FD-5 3-(2'-ベンズイミダゾリル)-7-N,N-ジエチルアミノクマリン、FD-6 7-アミノ-3-フェニルクマリン、FD-7 3-(2'-N-メチルベズイミダゾリル)-7-N,N-ジエチルアミノクマリン、FD-8 7-ジエチルアミノ-4-トリフルオロメチルクマリン、FD-9 2,3,5,6-1H,4H-テトラヒドロ-8-メチルキノラジノ[9,9a,1-g]クマリン (2,3,5,6-1H,4H-Tetrahydro-8-methylquinolazino[9,9a,1-gh]coumarin)、FD-10 シクロペンタ[c]ジュロリジノ[9,10-3]-11H-ピラン-11-オン (Cyclopenta[c]julolidino[9,10-3]-11H-pyran-11-one)、FD-11 7-アミノ-4-メチルクマリン、FD-12 7-ジメチルアミノシクロペンタ[c]クマリン、FD-13 7-アミノ-4-トリフルオロメチルクマリン、FD-14 7-ジメチルアミノ-4-トリフルオロメチルクマリン、FD-15 1,2,4,5,3H,6H,10H-テトラヒドロ-8-トリフルオロメチル[1]ベンゾピラノ[9,9a,1-gh]キノリジン-10-オン (1,2,4,5,3H,6H,10H-Tetrahydro-8-trifluoromethyl[1]benzopyrano[9,9a,1-gh]quinolizino-10-one)、FD-16 4-メチル-7-(スルホメチルアミノ)クマリンナトリウム塩 (4-Methyl-7-(sulfomethylamino)coumarin sodium salt)、FD-17 7-エチルアミノ-6-メチル-4-トリフルオロメチルクマリン、FD-18 7-ジメチルアミノ-4-メチルクマリン、FD-19 1,2,4,5,3H,6H,10H-テトラヒドロ-カルボエトキシ[1]ベンゾピラノ[9,9a,1-gh]キノリジノ-10-オン (1,2,4,5,3H,6H,10H-Tetrahydro-carbethoxy[1]benzopyrano[9,9a,1-gh]quinolizino-10-one)、FD-20 9-アセチル-1,2,4,5,3H,6H,10H-テトラヒドロ[1]ベンゾピラノ[9,9a,1-gh]キノリジノ-10-オン (9-Acetyl-1,2,4,5,3H,6H,10H-tetrahydro[1]benzopyrano[9,9a,1-gh]quinolizino-10-one)、FD-21 9-シアノ-1,2,4,5,3H,6H,10H-テトラヒドロ[1]ベンゾピラノ[9,9a,1-gh]キノリジノ-10-オン (9-Cyano-1,2,4,5,3H,6H,10H-tetrahydro[1]benzopyrano[9,9a,1-gh]quinolizino-10-one)、FD22 9-(t-ブトキシカルボニル)-1,2,4,5,3H,6H,10H-テトラヒドロ[1]ベンゾピラノ[9,9a,1-gh]キノリジノ-10-オン (9-(t-Butoxycarbonyl)-1,2,4,5,3H,6H,10H-tetrahydro[1]benzopyrano[9,9a,1-gh]quinolizino-10-one)、FD-23 4-メチルピペリジノ[3,2-g]クマリン、FD-24 4-トリフルオロメチルピペリジノ[3,2-g]クマリン (Trifluoromethylpiperidino[3,2-g]coumarin)、FD-25 9-カルボキシ-1,2,4,5,3H,6H,10H-テトラヒドロ[1]ベンゾピラノ[9,9a,1-gh]キノリジノ-10-オン (9-Carboxy-1,2,4,5,3H,6H,10H-tetrahydro[1]benzopyrano[9,9a,1gh]quinolizino-10-one)、FD-26 N-エチル-4-トリフルオロメチルピペリジノ[3,2-g] (N-Ethyl-4-trifluoromethylpiperidino[3,2-g])。

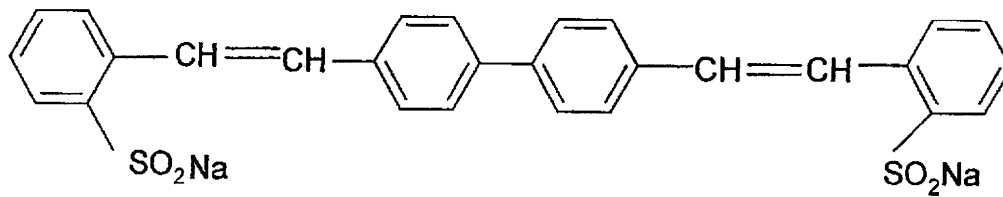
【0024】

他のクマリン類の例は、図9に示した。

他のドーパントは、以下の構造式のようなビスベンゼンスルホン酸塩と、

【0025】

【化3】

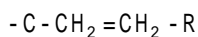


10

ペリレン、ペリレン誘導体、ならびに、図11~13に示した、 R_1 、 R_2 、 R_3 および R_4 が、水素原子、ヒドロカルビル基、置換もしくは非置換芳香族基、複素環構造基および多環構造基、トリフルオリルメチル基 (trifluoromethyl groups) のようなフルオロカーボン基、フッ素原子のようなハロゲン基、チオフェニル基から選択することを特徴とする同一であるかまたは異なる基である構造式のドーパント、ならびに、図11~13に示した、 R 、 R_1 、 R_2 、 R_3 および R_4 が、置換または非置換縮合環芳香族基、複素環構造基および多環構造基を形成し、かつスチレンのようなモノマーと共重合できることを特徴とする構造式のドーパント、を含む。 R 、 R_1 、 R_2 、 R_3 および R_4 は、ビニル基や以下の構造式のような非飽和アルキレン基であることもできる。

20

【0026】



(式中のRは上述したものである)

他のドーパントは、例えば、蛍光ジシアノメチレンピランやチオピラン類色素である、蛍光4-ジシアノメチレン-4H-ピラン類、および4-ジシアノメチレン-4H-チオピラン類のような色素である。

【0027】

有用な蛍光色素は、シアニン類、メロシアニン類、複雑なシアニン類およびメロシアニン類 (すなわち、三核、四核、多核のシアニン類およびメロシアニン類)、オキソノール類 (oxonols)、ヘミオキソノール類、スチリル類、メロスチリル類、ストレプトシアニン類 (streptocyanines)、を含む、公知のポリメチン色素 (polymethine dyes) から選択することもできる。

30

【0028】

前記シアニン類色素は、メチン結合 (methine linkage)、ならびに、例えば、ピリジニウム (pyridinium)、キノリニウム (quinolinium)、イソキノリニウム、オキサゾリウム (oxazolium)、チアゾリウム (thiazolium)、セレナゾリウム (selenazolium)、インダゾリウム (indazolium)、ピラゾリウム (pyrazolium)、ピロリウム (pyrrolium)、インドリウム (indolium)、3H-インドリウム (3H-indolium)、イミダゾリウム (imidazolium)、オキサジアゾリウム (oxadiazolium)、チアジオキサゾリウム (thiadiazolium)、ベンゾオキサゾリウム (benzoxazolium)、ベンゾチアゾリウム (benzothiazolium)、ベンゾセレナゾリウム (benzoselenazolium)、ベンゾテルラゾリウム (benzotellurazolium)、ベンズイミダゾリウム (benzimidazolium)、3H- もしくは 1H-ベンゾインドリウム (3H-or 1H-benzoindolium)、ナフトオキサゾリウム (naphthoxazolium)、ナフトチオアゾリウム (naphthothiazolium)、ナフトセレナゾリウム (naphthoselenazolium)、ナフトテルラゾリウム (naphthotellurazolium)、カルバゾリウム (carbazolium)、ピロロピリジニウム (pyrrolopyridinium)、フェナントロチアゾリウム (phenanthrothiazolium)、及びアセナフトチアゾリウム (acenaphthothiazolium) の四級塩からの誘導体であるような、アゾリウム (azolium) もしくはアジニウム (azinium) 核のような塩基性複素環二核 (

40

50

two basic heterocyclic nuclei)、によって結合されたものを含む。

【0029】

他の有用な蛍光色素の区分としては、4-オキソ-4H-ベンズ-[d,e]アントラセン、および、ピリリウム (pyrylium)、チアピリリウム (thiapyrylium)、セレナピリリウム (selenapyrylium)、テルロピリリウム (telluropyrylium) 色素、がある。

【0030】

前記の有機金属錯体の例の構造式は、添付の図1aおよび図1bに示しており、ここでMは、四価のチタン、ジルコニウムもしくはハフニウムであり、また、L₁、L₂、L₃ および L₄ は、縮合環基、非置換もしくは置換芳香族環基を形成する、同一もしくは異なる基である。また、前記の有機金属錯体の例の構造式は、添付の図1cおよび図1dにも示しており、ここで、Mは五価のパナジウム、ニオブ、タンタルであり、また、L₁、L₂、L₃、L₄ および L₅ は、縮合環基、非置換もしくは置換芳香族環基を形成する、同一もしくは異なる基である。

10

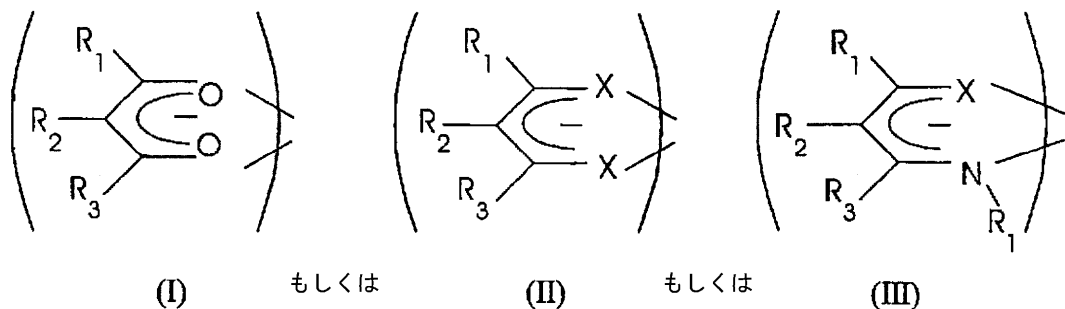
20

【0031】

他の好ましい配位子Lは、5,10,15,20-テトラ(4-ピリジル)21H,23H-ポルフィン (5,10,15,20-tetra(4-pyridyl)21H,23H-porphine)、5,10,15,20-テトラ(p-トリル)21H,23H-ポルフィン (5,10,15,20-tetra(p-tolyl)21H,23H-porphine)、メソ-テトラフェニルポルフィンのような、キノラート (quinolate)、ポルフォリン (porphoryin)、ポルフィン類 (porphines)、ピラザロン類 (pyrazalones)、ならびに、ジベンゾイルメタンのようなジケトン、ならびに、以下の構造式を持つ配位子、である。

【0032】

【化4】



(I)

もしくは

(II)

もしくは

(III)

30

ここで上式中の R₁、R₂、及び R₃ は、水素原子、ならびに、置換もしくは非置換脂肪族基または置換もしくは非置換芳香族基のような置換もしくは非置換ヒドロカルビル基、複素環構造基および多環構造基、トリフルオリルメチル基 (trifluoromethyl groups) のようなフルオロカーボン基、フッ素原子のようなハロゲン基、チオフェニル基から選択する、同一であるかまたは異なる基であるか、または、R₁、R₂、および R₃ は、置換もしくは非置換縮合環芳香族基、複素環構造基および多環構造基を形成し、かつスチレンのようなモノマーと共重合できる。また、Xは、Se、S、またはOであり、Yは、水素原子、置換もしくは非置換芳香族基のような置換もしくは非置換ヒドロカルビル基、複素環構造基および多環構造基、フッ素原子、トリフルオリルメチル基 (trifluoromethyl groups) のようなフルオロカーボン基、フッ素原子のようなハロゲン基、チオフェニル基、ニトリル基、とすることができる。

40

【0033】

R₁ および / もしくは R₂ および / もしくは R₃ の例は、脂肪族基、芳香族基、ならびに、複素環のアルコキシ基、アリーロキシ基およびカルボキシ基、ならびに、置換もしくは非置換フェニル基、フルオロフェニル基、ピフェニル基、フェナントレン基 (phenanthrene)、アントラセン基 (anthracene)、ナフチル基およびフルオレン基 (fluorene)、ならびに、t-ブチル基のようなアルキル基、ならびに、カルバゾールのような複素環基、を含む。

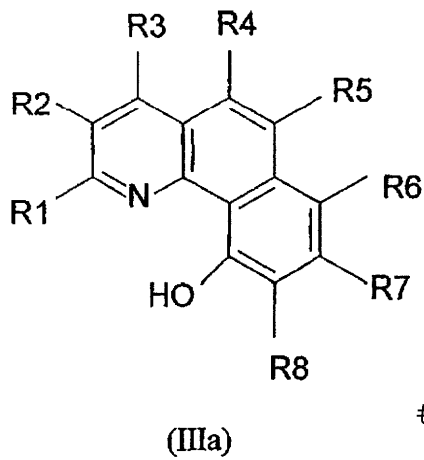
50

【 0 0 3 4 】

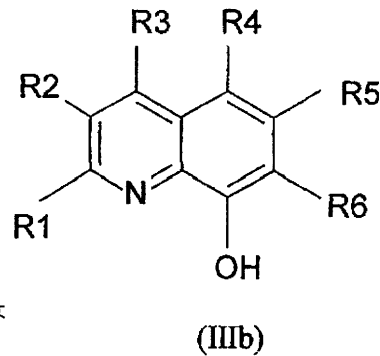
構造式(1)のジベンゾイルメタンにおいて、 R_1 、 R_3 はフェニル基、 R_2 は水素原子である。他の配位子Lは、以下の構造式であって、

【 0 0 3 5 】

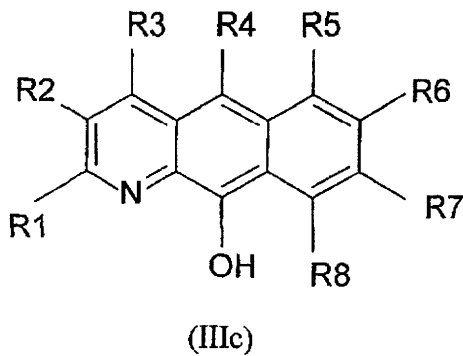
【化5】



もしくは



もしくは



ここで、上式中の基群Rは、水素原子、ならびに、置換もしくは非置換脂肪族基または置換もしくは非置換芳香族基のような置換もしくは非置換ヒドロカルビル基、複素環構造基および多環構造基、トリフルオリルメチル基 (trifluoromethyl groups) のようなフルオロカーボン基、フッ素原子のようなハロゲン基、チオフェニル基から選択する、同一であるかまたは異なる基であるか、または、 R_1 、 R_2 および R_3 は、置換もしくは非置換縮合環芳香族基、複素環構造基および多環構造基を形成し、かつスチレンのようなモノマーと共重合できる。

種々の基群Lは、カルボキシラート基のような、同一または異なる荷電基群とすることができ、 L_1 基は上述で定められたものであって、また、基群 L_2 、 L_3 、... は、以下の構造式を有する荷電基とすることができる。

【 0 0 3 6 】

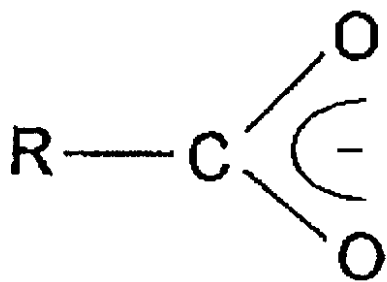
10

20

30

40

【化6】



(IV)

10

ここで、式中のRは、上述で定められた R_1 である。あるいは、基群 L_1 、 L_2 は上述で定められたものであって、基群 L_3 、..... は他の荷電基である。

【0037】

R_1 、 R_2 、および R_3 は、XをO、S、SeもしくはNHとする以下の構造式の基とすることもできる。

【0038】

20

【化7】



(V)

30

好ましい基 R_1 は、トリフルオロメチル基 CF_3 であり、また、前記のジケトンの例は、ベンゾイルトリフルオロアセトン (benzoyltrifluoroacetone)、p-クロロベンゾイルトリフルオロアセトン (p-chlorobenzoyltrifluoroacetone)、p-ブロモトリフルオロアセトン (p-bromotrifluoroacetone)、p-フェニルトリフルオロアセトン (p-phenyltrifluoroacetone)、1-ナフトイルトリフルオロアセトン (1-naphthoyltrifluoroacetone)、2-ナフトイルトリフルオロアセトン (2-naphthoyltrifluoroacetone)、2-フェナントイルトリフルオロアセトン (2-phenanthoyltrifluoroacetone)、3-フェナントイルトリフルオロアセトン (3-phenanthoyltrifluoroacetone)、9-アントロイルトリフルオロアセトントリフルオロアセトン (9-anthiroyltrifluoroacetone)、シンナモイルトリフルオロアセトン (cinnamoyltrifluoroacetone)、および 2-テノイルトリフルオロアセトン (2-thenoyltrifluoroacetone) である。

40

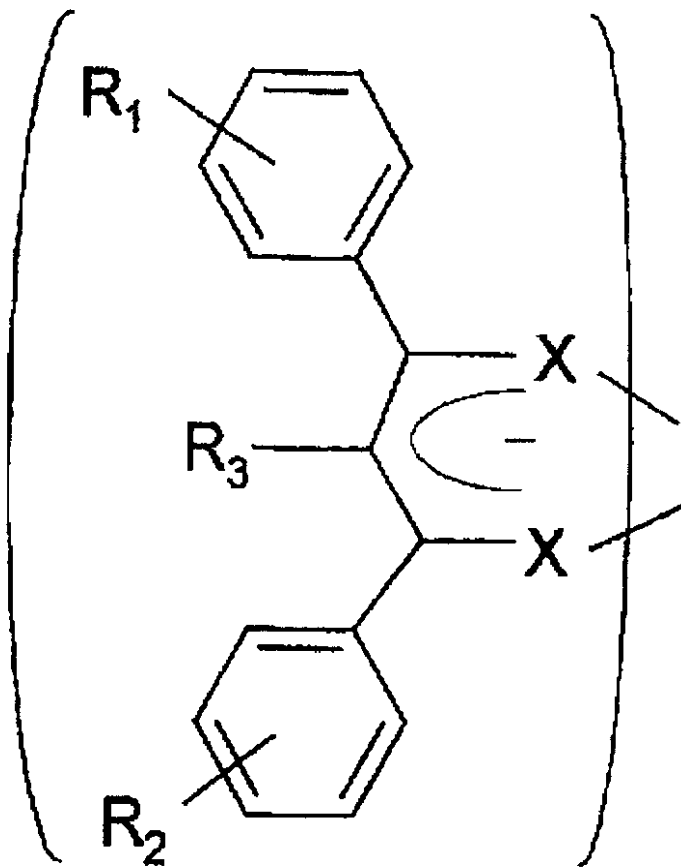
【0039】

種々の基群Lは、以下の構造式で表わされる、式中のXがO、S、またはSeであって、また、 R_1 、 R_2 および R_3 が上述したものであるところの、同一もしくは異なった配位子である。

【0040】

50

【化8】



10

20

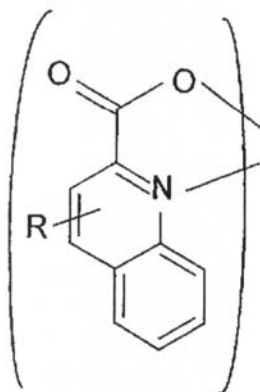
(VI)

種々の基群Lは、以下の構造式で表わされる、同じかまたは異なるキノラート誘導体である。

30

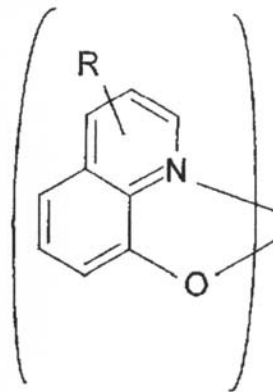
【0041】

【化9】



(VII)

もしくは



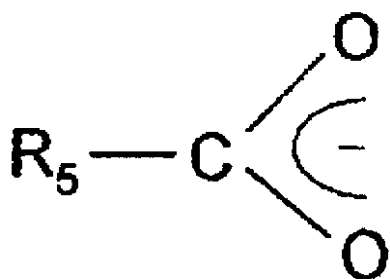
(VIII)

40

ここで、式中のRは、ヒドロカルビル基、脂肪族基、芳香族基、または、例えば 8-ヒドロキシキノラート誘導体のような、複素環のカルボキシ基、アリアルオキシ基、ヒドロキ

50

【化 1 2】



(XIII)

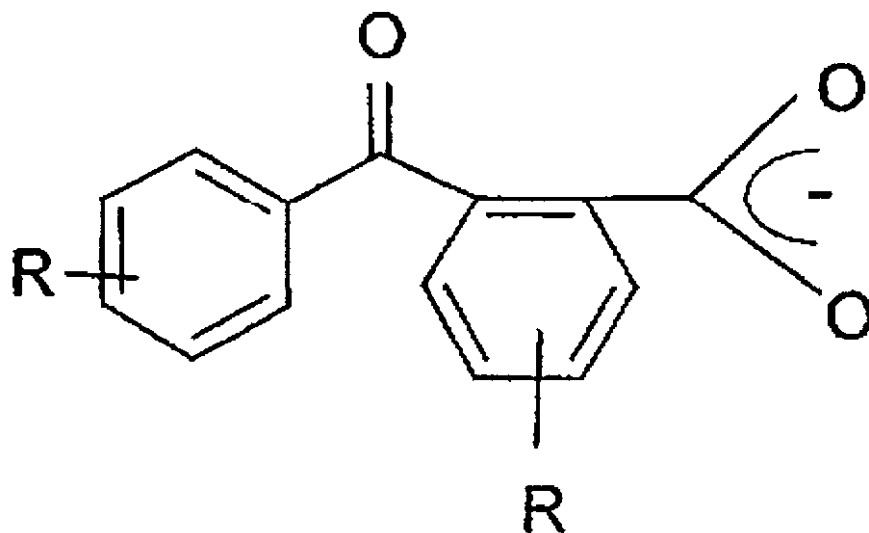
10

ここで、式中の R_5 は、置換もしくは非置換芳香族基、多環もしくは複素環ポリピリジル基であって、また、 R_5 は、2-エチルヘキシル基とすることもでき、このとき L_n は、ヘキサン酸2-エチルとなり、あるいは、 R_5 は、椅子構造とすることもでき、このとき L_n は、シクロヘキサン酸2-アセチル (2-acetyl cyclohexanoate) となり、あるいは、

20

【 0 0 4 5 】

【化 1 3】



30

(XIV)

40

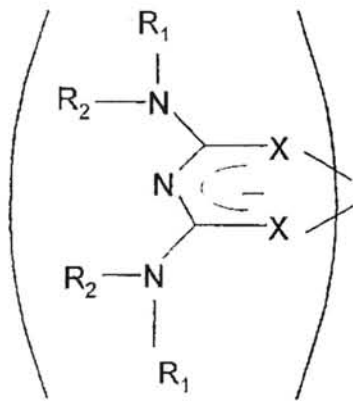
ここで、式中の R は上述したものであり、例えば、アルキル基、アレン基 (allenyl)、アミノ基、または、単環もしくは多環の縮合環である。

【 0 0 4 6 】

種々の基群 L は、さらに、以下の構造式のものとする事ができる。

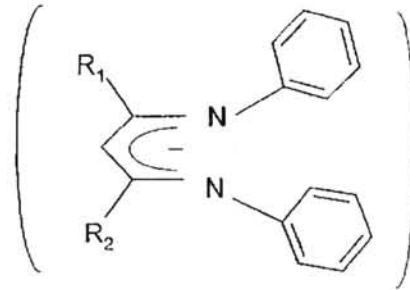
【 0 0 4 7 】

【化 1 4】



(XV)

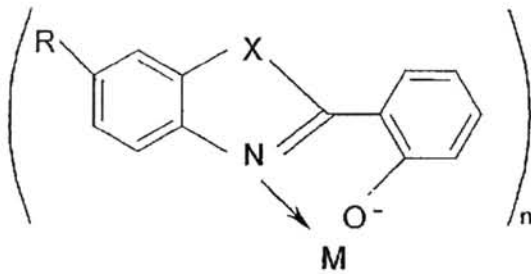
もしくは



(XVI)

もしくは

10

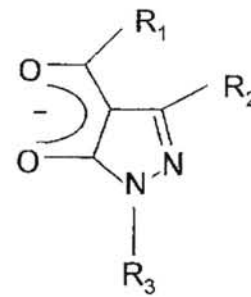


式中の X は、O、S、もしくは Se

(XVII)

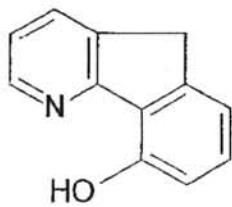
式中の R、R₁ および R₂ は上述したもの

もしくは



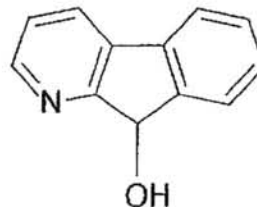
(XVIIa)

20



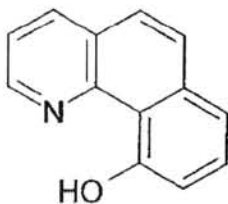
(XVIIb)

もしくは



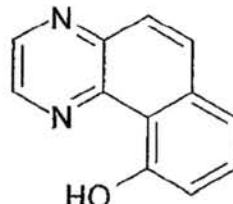
(XVIIc)

30



(XVIIIa)

もしくは



(XVIIIb)

40

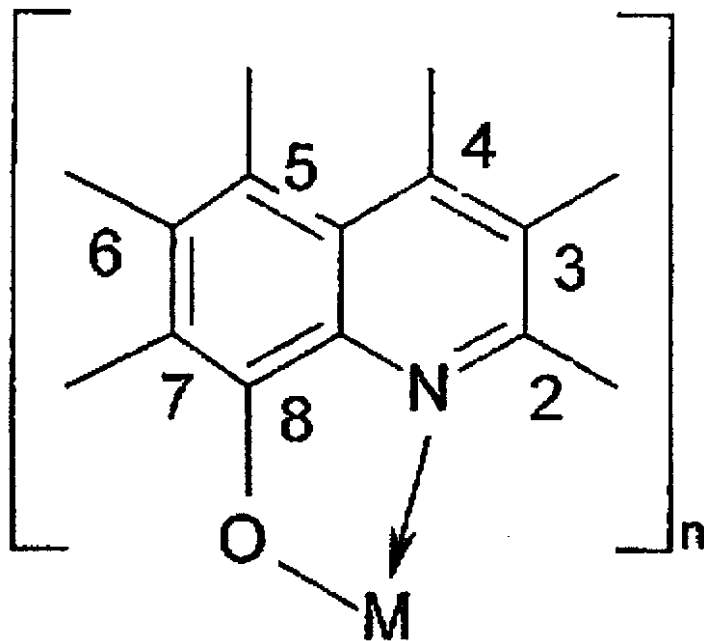
物は、置換もしくは非置換の 8-ヒドロキシキノリンの金属塩であって、ここでは金属キノラート類と呼ぶ。したがって、前記の好ましいエレクトロルミネッセンス化合物は、チタン、ジルコニウム、ハフニウム、バナジウム、ニオブ、およびタンタルのキノラートである。

【0048】

これらは、以下の一般の構造式を持ち、

【0049】

【化15】



ここで、式中の M は金属、n は前記金属の価数であって、また、位置2、3、4、5、6 および7における前記置換基は、同一もしくは異なる基であって、好ましくは、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、スルホン酸類、エステル、カルボン酸、アミノ基、およびアミド基から選択されるか、あるいは、芳香族環、多環もしくは複素環基を構成する。好ましいキノラートは、2-メチルキノラート類および5-メチルキノラート類である。

【0050】

金属キノラートは、公知の方法にしたがって、塩、エトキシドもしくは8-ヒドロキシキノリンアルキル (alkyl 8-hydroxyquinoline) のような金属化合物を反応させることで合成できる。

【0051】

エレクトロルミネッセンス化合物において、前記反応は、好ましくは、アセトニトリル、フェニルニトリル、トリルニトリルなどのようなニトリル溶媒中で行なう。

本発明は、さらに、(i) 第一電極、(ii) 上述したエレクトロルミネッセンス化合物の層、および(iii) 第二電極、を含む、エレクトロルミネッセンスデバイスも提供する。

【0052】

前記第一電極は、アノードとしてはたらき、また、前記第二電極は、カソードとしてはたらき、また、好ましくは、前記アノードとエレクトロルミネッセンス化合物との間に、正孔伝送物質の層が存在する。

【0053】

前記正孔伝送物質は、エレクトロルミネッセンスデバイスで用いられている任意の正孔

10

20

30

40

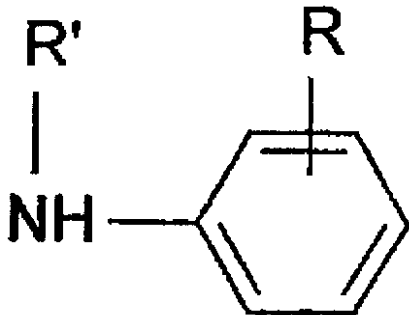
50

伝送物質である。

前記正孔伝送物質は、ポリ(ビニルカルバゾール)、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン(TPD)のようなアミン錯体、アミノ基置換芳香族化合物の非置換もしくは置換のポリマー、ポリアニリン、置換ポリアニリン類、ポリチオフェン類、置換ポリチオフェン類、ポリシラン類(polysilanes)などの、アミン錯体とすることができる。ポリアニリン類の例は、以下の構造式のポリマーであって、

【0054】

【化16】

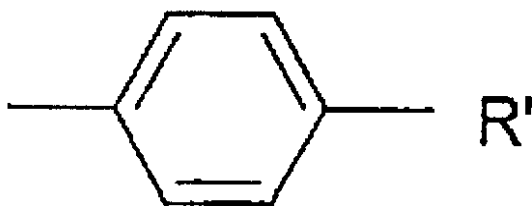


(XIX)

ここで、式中のRは、オルト位もしくはメタ位に在る、水素原子、炭素数1~18のアルキル基、炭素数1~6のアルコキシ基、アミノ基、クロロ基、プロモ基、ヒドロキシ基(hydroxy)、または、以下の構造式の基であって、

【0055】

【化17】



ここで、式中のRは、アルキル基もしくはアリール基であり、また、R' は、水素原子、または、上記の構造式(1)の少なくともひとつの他のモノマーをともなう炭素数1~6のアルキル基もしくはアリール基である。

【0056】

また、前記正孔伝送物質は、ポリアニリンとすることができ、本発明で用いられるポリアニリン類は、以下の一般の構造式を有し、

【0057】

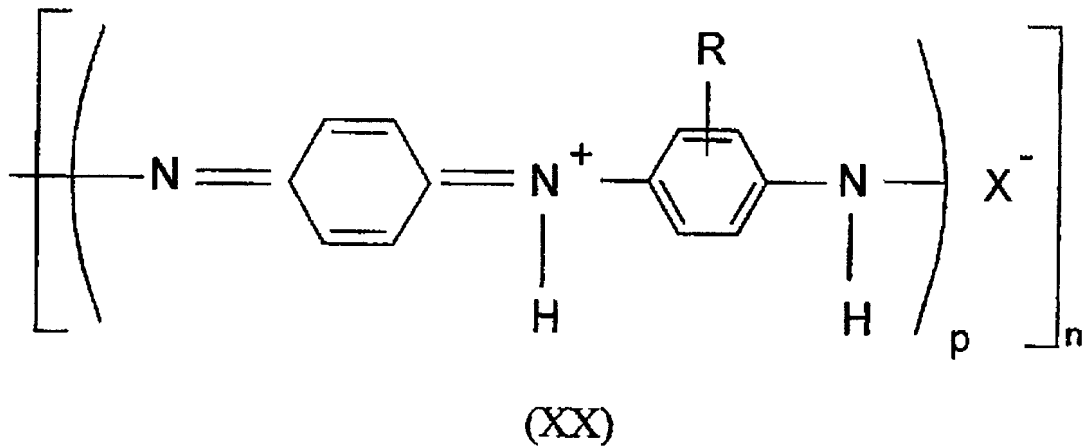
10

20

30

40

【化18】



10

ここで、式中のpは、1から10までの値であり、nは、1から20までの値であり、Rは上述したものであって、また、Xは、好ましくは、Cl、Br、SO₄、BF₄、PF₆、H₂PO₃、H₂PO₄、スルホン酸アリール (arylsulphonate)、アレージカルボキシレート (arene dicarboxylate)、ポリスチレンスルホナート、ポリアクリレートアルキルスルホナート (polyacrylate alkylsulphonate)、スルホン酸ビニル、ビニルベンゼンスルホナート (vinylbenzene sulphonate)、スルホン酸セルロース (cellulose sulphonate)、スルホン酸ショウノウ (camphor sulphonates)、硫酸セルロース (cellulose sulphate)、または、過フッ化ポリアニオン (a perfluorinated polyanion) から選ばれる、アニオンである。

20

【0058】

スルホン酸アリールの例としては、p-トルエンスルホナート (p-toluenesulphonate)、スルホン酸ベンゼン (benzenesulphonate)、9,10-アントラキノン-スルホナート (9,10-anthraquinone-sulphonate)、およびスルホン酸アントラセン (anthracenesulphonate) があり、また、アレージカルボキシレートの例は、フタレート (phthalate) であり、また、アレニカルボキシレートの例は、ベンゾアート (benzoate) である。

30

【0059】

われわれは、ポリアニリンのような、アミノ基置換された芳香族化合物の、非置換もしくは置換ポリマーの、プロトン化したポリマーが、蒸着困難もしくは蒸着不可能であることを見出したが、アミノ基置換された芳香族化合物の、非置換もしくは置換ポリマーを脱プロトン化すると、容易に蒸着でき、すなわちその(ポリマーの)ポリマーも蒸着可能であるということを見出した。

【0060】

アミノ基置換された芳香族化合物の、非置換もしくは置換ポリマーの、蒸着可能な脱プロトン化ポリマーを用いるのが好ましい。前記のアミノ基置換された芳香族化合物の、脱プロトン化された非置換もしくは置換ポリマーは、水酸化アンモニウム、または、水酸化ナトリウムもしくは水酸化カリウムのような水酸化アルカリ金属といったアルカリで処理することによって前記ポリマーを脱プロトン化して合成する。

40

【0061】

プロトン化の程度は、プロトン化ポリアニリンの形成と脱プロトン化によって制御できる。ポリアニリンの処理方法は、文献 A. G. MacDiarmid and A. F. Epstein, Faraday Discussions, Chem Soc. 88 P319 1989 に開示されている。

【0062】

前記ポリアニリンの電気伝導度は、プロトン化の程度に依存し、電気伝導度が最大となるのは、プロトン化の程度が40%から60%の間であるときであり、例えば、約50%のときである。

50

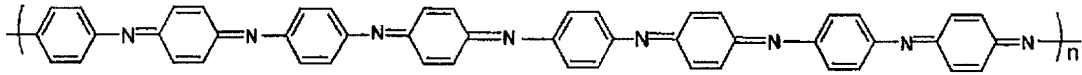
【0063】

前記ポリマーは、実質的にすべて脱プロトン化するのが好ましい。

ポリアニリンはオクタマー単位 ($p=4$) をとることができ、例えば、以下の構造式となる。

【0064】

【化19】



前記ポリアニリンは、 1×10^{-1} Siemen cm^{-1} のオーダーか、さらにそれ以上の伝導度を持つことができる。

【0065】

前記芳香環は、非置換であるか、または、例えばエチル基のような炭素数が1~20のアルキル基による置換をすることができる。

前記ポリアニリンは、アニリンのコポリマーとすることができ、また、好ましいコポリマーは、*o*-アニシジン (*o*-anisidine)、*m*-スルファニル酸 (*m*-sulphanilic acid)、もしくは *o*-アミノフェノールとアニリンとのコポリマー、または、*o*-アミノフェノール、*o*-エチルアニリン、*o*-フェニレンジアミン、もしくは、アミノアントラセン類と *o*-トルイジン (*o*-toluidine) とのコポリマーである。

【0066】

使用できるアミノ基置換芳香族化合物の他のポリマーは、置換もしくは非置換のポリアミノナフタレン類、ポリアミノアントラセン類、ポリアミノフェナントレン類など、および、他の任意の縮合ポリ芳香族化合物のポリマー、を含む。ポリアミノアントラセン類およびその合成方法は、米国特許 6,153,726号に開示されている。前記の芳香環は、非置換であるか、もしくは例えば上述で定義した基 R によって置換することができる。

【0067】

他の正孔伝送物質としては、共役ポリマー、及び、米国特許5807627号、PCT/W090/13148、PCT/W092/03490 に開示もしくは参照されている任意の共役ポリマーを用いた共役ポリマー、がある。

【0068】

好ましい共役ポリマーとしては、ポリ(*p*-フェニレンビニレン)-PPV (poly(*p*-phenylenevinylene)-PPV) および、PPVを含むコポリマーである。他の好ましいポリマーは、ポリ(2-メトキシ-5-(2-メトキシペンチルオキシ)-1,4-フェニレンビニレン)、ポリ(2-メトキシペンチルオキシ)-1,4-フェニレンビニレン (poly(2-methoxy-5-(2-methoxypentyloxy)-1,4-phenylene vinylene, poly(2-methoxypentyloxy)-1,4-phenylenevinylene)、ポリ(2-メトキシ-5-(2-ドデシルオキシ)-1,4-フェニレンビニレン) (poly(2-methoxy-5-(2-dodecyloxy)-1,4-phenylenevinylene)) といったポリ(2,5ジアルコキシフェニレンビニレン) (poly(2,5dialkoxyphenylene vinylene))、ならびに、アルコキシ基、ポリフルオレン類およびオリゴフルオレン類、ポリフェニレン類およびオリゴフェニレン類、ポリアントラセン類およびオリゴアントラセン類、ポリチオフェン類およびオリゴチオフェン類、に可溶である少なくともひとつの長鎖アルコキシ基を持つ、他のポリ(2,5ジアルコキシフェニレンビニレン)、である。

【0069】

PPVにおいては、フェニレン環は、ひとつまたは複数の置換基、例えば、好ましくはメチル基であるアルキル基、好ましくはメトキシ基もしくはエトキシ基であるアルコキシ基から、それぞれ独立に選択される基、を任意に持つことができる。

【0070】

置換された誘導体を含む、任意のポリ(アリーレンビニレン) (poly(arylenevinylene)) を使用することができ、また、ポリ(*p*-フェニレンビニレン)内のフェニレン環は、ア

10

20

30

40

50

ントラセン環またはナフチレン環のような縮合環系に置き換えることができ、また、それぞれのポリフェニレンビニレン基中のビニレン基の数は、7またはそれ以上に増やすことができる。

【0071】

前記の共役ポリマーは、米国特許 5807627号、PCT/W090/13148、PCT/W092/03490に開示されている方法で作ることができる。

前記正孔伝送層の厚さは、好ましくは、20nm~200nmである。

【0072】

上記で言及したポリアニリンのようなアミノ基置換芳香族化合物のポリマーは、他の正孔伝送物質との共役にとまなうもしくはその中における、バッファ層 (buffer layer) として用いることができる。 10

【0073】

他の正孔伝送物質層の構造式は、図4、5、6、7、および8に示しており、ここで、式中の R_1 、 R_2 、および R_3 は、水素原子、ならびに、置換および非置換脂肪族基のような置換および非置換ヒドロカルビル基、置換および非置換芳香族基、複素環構造および多環構造、トリフルオリルメチル基 (trifluoromethyl groups) のようなフルオロカーボン基、フッ素原子のようなハロゲン基、もしくはチオフェニル基から選択する、同一であるかまたは異なる基であるか、あるいは、 R_1 、 R_2 および R_3 は、置換および非置換縮合環芳香族基、複素環構造基および多環構造基を形成し、かつスチレンのようなモノマーと共重合できる。Xは、Se、SもしくはOであり、Yは、水素原子、置換もしくは非置換芳香族基のような置換もしくは非置換ヒドロカルビル基、複素環構造基および多環構造基、フッ素原子、トリフルオリルメチル基 (trifluoromethyl groups) のようなフルオロカーボン基、フッ素原子のようなハロゲン基もしくはチオフェニル基もしくはニトリル基、とすることができる。 20

【0074】

R_1 および / または R_2 および / または R_3 の例は、脂肪族基、芳香族基、ならびに、複素環のアルコキシ基、アリーロキシ基およびカルボキシ基、ならびに、置換もしくは非置換フェニル基、フルオロフェニル基、ピフェニル基、フェナントレン基 (phenanthrene)、アントラセン基 (anthracene)、ナフチル基およびフルオレン基 (fluorene)、ならびに、t-ブチル基のようなアルキル基、ならびに、カルバゾールのような複素環基、を含む。 30

【0075】

前記アノードと前記エレクトロルミネッセンス化合物との間に、電子注入物質の層を任意に加えることができる。前記電子注入物質は、例えばアルミニウムキノラート、リチウムキノラート、ジルコニウムキノラートのような金属キノラート、例えば9,10-ジシアノアントラセンのようなシアノアントラセン、シアノ基置換芳香族化合物、テトラシアノキノジメタン (tetracyanoquinodimethane)、ポリスチレンスルホナート (a polystyrene sulphonate)、または、図2もしくは3に示した構造式においてフェニル環を上述で定めた置換基 R によって置換したもの、といった金属錯体を含み、電子注入物質中を電流が通過するときに電子を伝送する物質である。 40

【0076】

エレクトロルミネッセンスデバイス中のエレクトロルミネッセンス層は、ドーブされたジルコニウムキノラートを含み、したがって好ましい電子注入物質はジルコニウムキノラートである。

【0077】

好ましくは、前記第一電極は、アノードとしてはたらく導電性ガラスもしくはプラスチック物質のような透明な基層である。好ましい基層は、錫ドーブ酸化インジウム (indium tin oxide) 被覆ガラスのような導電性ガラスであるが、導電性があるか、または金属もしくは導電性ポリマーのような導電性層を持つ任意のガラスを用いることができる。導電性ポリマーおよび、導電性ポリマー被覆ガラスもしくはプラスチック物質は、前記の基層 50

にも用いることができる。

【0078】

カソードは、好ましくは、例えばアルミニウム、カルシウム、リチウム、銀/マグネシウム合金、希土類金属合金などである低い仕事関数の金属であり、好ましい金属は、アルミニウムである。アルカリ金属、希土類金属、もしくはその合金のようなフッ化金属を前記の第二電極とすることができ、例えば、金属上にフッ化金属層をつくるように用いることができる。

【0079】

金属の価数が3よりも大きい前記の有機金属キノラートの改良された性能を、従来技術と比較すると、特にアルミニウムキノラートが、例えば寿命、安定性などといった特性の範囲の改良において、エレクトロルミネセンス化合物として有用である。 10

【発明を実施するための最良の態様】

【0080】

本発明を実施例を参照してさらに詳述する。

【実施例1】

【0081】

ブレイチングITO被覆ガラス(a pre-etched ITO coated glass)片(10 x 10cm²)を用いた。前記デバイスは、前記ITO上で、ULVAC社(茅ヶ崎、日本)製のSolcietを使用した真空蒸着によって連続的に組み上げられ、各ピクセルの活性領域は3mm x 3mmとなり、前記層は、 20

ITO(100 / sq.m) / CuPc(15nm) / -NPB(75nm) / Zr_{q4} : DPQA(75:0.75nm) / LiF(0.4nm) / Alを含み、ここで、ITOは錫ドープ酸化インジウム被覆ガラス、CuPcはフタロシアニン銅、-NPBは明細書中で定めたもの、Zr_{q4}はジルコニウムキノラート、DPQAはジフェニルキノクリジン(diphenylquinacridine)である。

【0082】

前記のZr_{q4}は、ジルコニウムキノラートであって、前記のZr_{q4} : DPQA層は、DPQAをドープしたジルコニウムキノラート層を形成するために、同時に真空蒸着してつくられている。前記のZr_{q4}とDPQAとの重量比は、厚さの相対比によって簡単に知ることができる。

【0083】

前記の被覆電極は、真空塗装機(Edwards, 10⁻⁶ torr)に入れてアルミニウムトップ接触(aluminium top contacts)が形成されるまでの間、モレキュラシーブおよび五酸化リンとともに真空デシケータに格納した。エレクトロルミネセンス研究が完了するまでの間、前記デバイスは真空デシケータ内に保存した。 30

【0084】

前記のITO電極は、つねに前記陽極と接触している。電流と電圧の相関の研究は、コンピュータ制御されたKeithly 2400 source meter 上で行なわれた。

電流は、前記デバイスを横切って加えられ、図14に示すパフォーマンスであった。エレクトロルミネセンススペクトルを図15に示した。

【0085】

前記デバイスは、図16の構造を有し、また、色はCIEカラーチャートとして図17に示した。 40

【実施例2】

【0086】

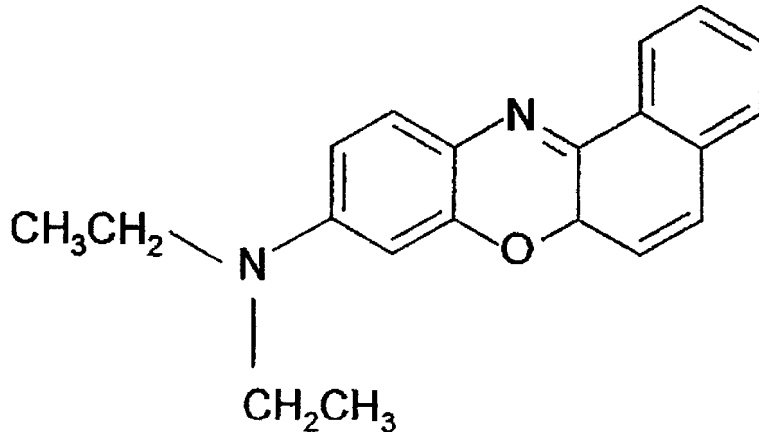
デバイスは、実施例1の方法によって、

ITO/CuPc(25nm) / -NPB(75nm) / Zr_{q4} : ナイルレッド(Nilered) (75:0.75nm) / LiF(0.4nm) / Al

という構造で組み上げられ、ここで、ナイルレッドは以下の構造式を持つ化合物である。

【0087】

【化 2 0】



10

【0088】

電流は前記デバイスを横切って加えられ、図18に示すパフォーマンスであった。エレクトロルミネッセンススペクトルを図19に示した。

【実施例3】

【0089】

デバイスは、実施例1の方法によって、

ITO(100 / sq.m) / CuPc(25nm) / -NPB(75nm) / Zrq₄ : DPQA (60:0.4nm) / Zrq₄ (10nm) / LiF(0.4nm) / Al

という構造で組み上げられた。

20

【0090】

電流は、前記デバイスを横切って加えられ、図20に示すパフォーマンスであった。エレクトロルミネッセンススペクトルを図21に示した。

【実施例4】

【0091】

デバイスは、実施例1の方法によって、

ITO(100 / sq.m) / CuPc:TPTP(15:15nm) / -NPB(75nm) / Zrq₄ : DPQA (60:0.5nm) / LiF(0.2nm) / Al

という構造で組み上げられた。

30

【0092】

電流は、前記デバイスを横切って加えられ、図22に示すパフォーマンスであった。エレクトロルミネッセンススペクトルを図23に示した。

【実施例5】

【0093】

デバイスは、実施例1の方法によって、

ITO(100 / sq.m) / CuPc(25nm) / -NPB(75nm) / Zrq₄ : DPQA (60:0.4nm) / Zrq₄ / LiF(0.4nm) / Al

という構造で組み上げられた。

40

【0094】

電流は、前記デバイスを横切って加えられ、図24に示すパフォーマンスであった。エレクトロルミネッセンススペクトルを図25に示した。

【実施例6】

【0095】

デバイスは、実施例1の方法によって、

ITO (100 / sq. m) / CuPc (25nm) / -NPB (60nm) / Zrq₄ : DCJT(35:0.5nm) / Zrq₄ (35nm) / LiF(0.5nm) / Al

という構造で組み上げられた。

50

【 0 0 9 6 】

ここで、DCJTは、4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-(ジュロリジン-4-イル-ビニル)-4H-ピラン (4-(Dicyanomethylene)-2-methyl-6-(julolidin-4-yl-vinyl)-4H-pyran) である。

【 0 0 9 7 】

電流は、前記デバイスを横切って加えられ、図 2 6 ~ 2 8 に示すパフォーマンスであった。

【 実施例 7 】

【 0 0 9 8 】

デバイスは、実施例 1 の方法によって、

ITO(100 / $\sqrt{\text{m}}$) / CuPc(50nm) / -NPB(75nm) / Zrq₄ : DCM(60:0.5nm) / Zrq₄ (10nm / KF(0.4nm) / Al

という構造で組み上げられた。

ここで、KFはフッ化カリウムであり、DCMは4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチリル)-4H-ピラン (4-(Dicyanomethylene)-2-methyl-6-(p-dimethylaminostyryl)-4H-pyran) である。

【 0 0 9 9 】

電流は、前記デバイスを横切って加えられ、図 2 9 ~ 3 1 に示すパフォーマンスであった。

【 実施例 8 】

【 0 1 0 0 】

デバイスは、実施例 1 の方法によって、

ITO(100 / $\sqrt{\text{m}}$) / CuPc(50nm) / -NPB(75nm) / Zrq₄ : DPQA (60:0.5nm) / Zrq₄ (35nm / LiF(0.5nm) / Al

という構造で組み上げられた。

【 0 1 0 1 】

電流は、前記デバイスを横切って加えられ、図 3 2 ~ 3 4 に示すパフォーマンスであった。

【 実施例 9 】

【 0 1 0 2 】

デバイスは、実施例 1 の方法によって、

ITO(100 / $\sqrt{\text{m}}$) / CuPc(25nm) / -NPB(40nm) / Zrq₄ : DPQA (30:0.2nm) / Zrq₄ (10nm / LiF(0.5nm) / Al

という構造で組み上げられた。

【 0 1 0 3 】

電流は、前記デバイスを横切って加えられ、図 3 5 ~ 3 6 に示すパフォーマンスであった。

図 4 8 にて、CIEチャートによる実施例のいくつかの色を示した。

【 実施例 1 0 】

【 0 1 0 4 】

ジルコニウムキノラート (Zrq₄) とアルミニウムキノラート (Alq₃) の比較。

エレクトロルミネッセンス物質としてのジルコニウムキノラートとアルミニウムキノラートの比較を、理想環境下で行った。

【 0 1 0 5 】

前記デバイスは、実施例 1 と同一の方法で組み上げられた。

結果は、エレクトロルミネッセンスデバイスとともに図 37 ~ 47 に図示した。

比較は表 1 に示した。

【 0 1 0 6 】

10

20

30

40

【表 1】

| パフォーマンス | Alq ₃ | Zrq ₄ |
|--|-----------------------|-----------------------|
| 300cdm ⁻² における効率 / cd A ⁻¹ | 5 | 7 |
| 20mAcm ⁻² における明度 / cd m ⁻² | 1100 | 1500 |
| ピーク明度 / cd m ⁻² | 2.5 x 10 ⁴ | 2.8 x 10 ⁴ |
| ターンオン電圧 / V | 7 | 6 |

10

このように、Zrq₄ は、Alq₃ と比べ、300cd m⁻² における効率が40%大きく、20mA cm⁻² における輝度が36%大きい。

【0107】

図37~47から、効率の際立った増加および改善された輝度および他の特性を損なわないもしくは改良する低い電流密度が認められる。アルミニウムキノラートと比較して改良された放射される色は、色座標によって、デバイスAおよびBの放射する色のCIEカラーチャートを示す図49に示した。ここで、デバイスAおよびBは、図37~42の構造を有する。

【図面の簡単な説明】

【0108】

本文中に図面の簡単な説明の記載無し。

20

【図 1】

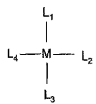


Fig. 1a



Fig. 1b

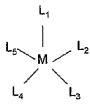


Fig. 1c

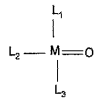
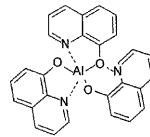
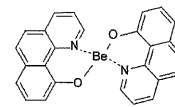


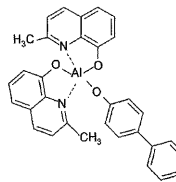
Fig. 1d

Fig. 1

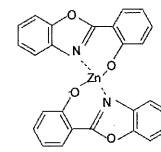
【図 2】

Alq₃

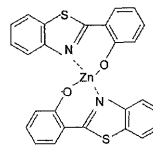
Bebq



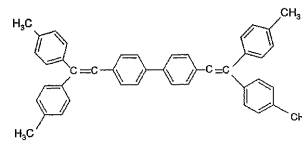
BAq1



ZnPBO



ZnPBT



DTVb1

Fig. 2

【 図 3 】

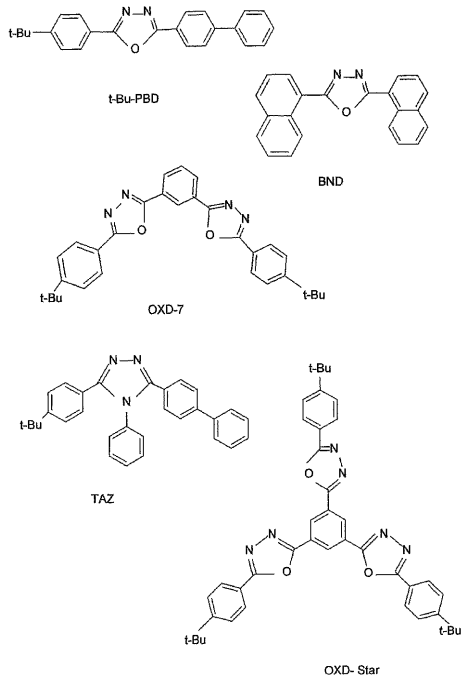


Fig. 3

【 図 4 】

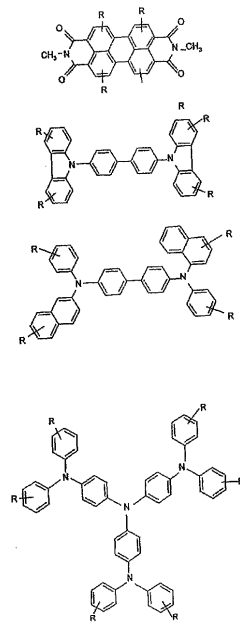


Fig. 4

【 図 5 】

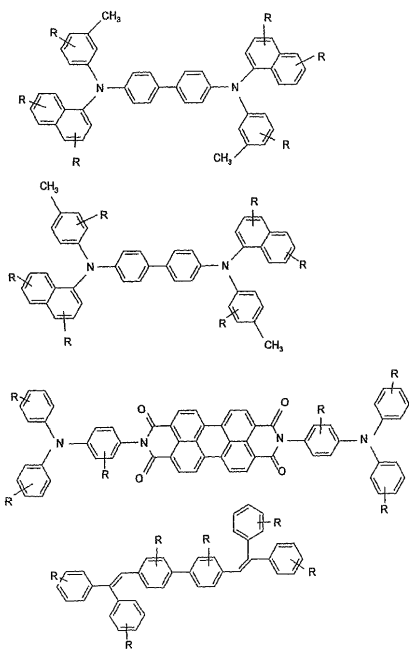


Fig. 5

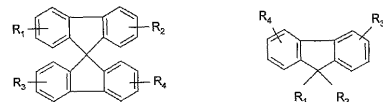
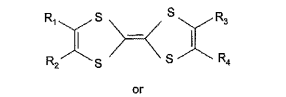


Fig. 14a

Fig. 14b



or

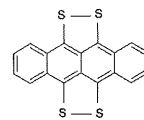
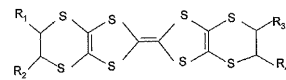


Fig. 6

【 図 7 】

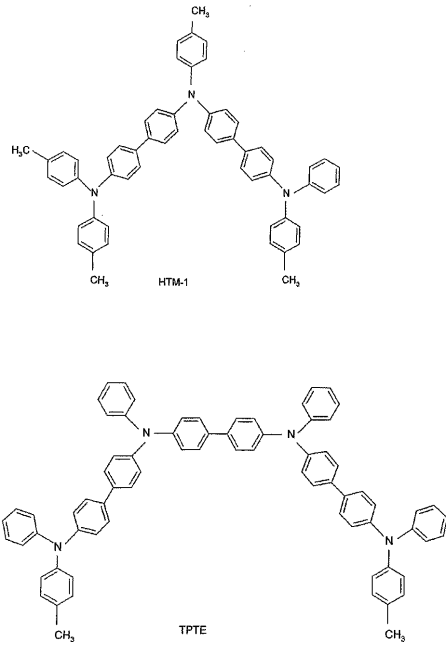


Fig. 7

【 図 8 】

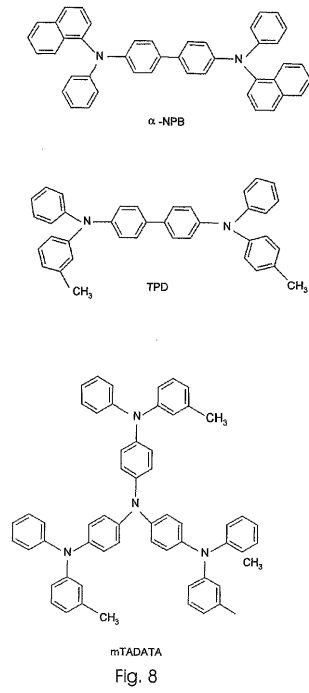


Fig. 8

【 図 9 】

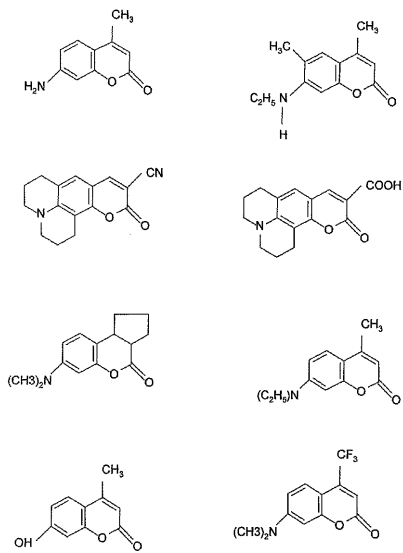


Fig. 9

【 図 10 】

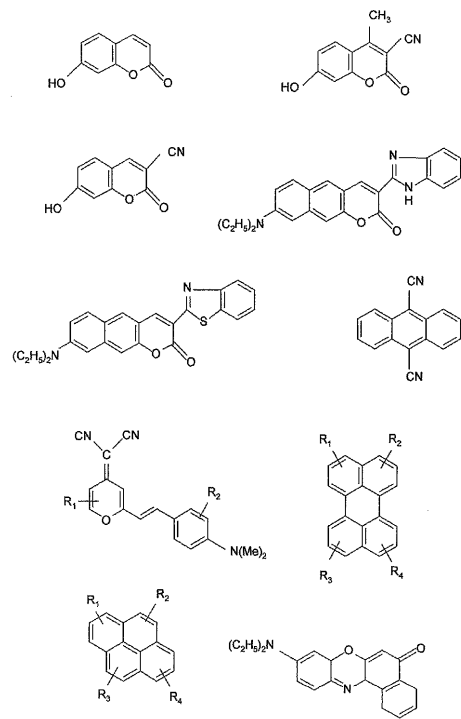


Fig. 10

【 図 1 1 】

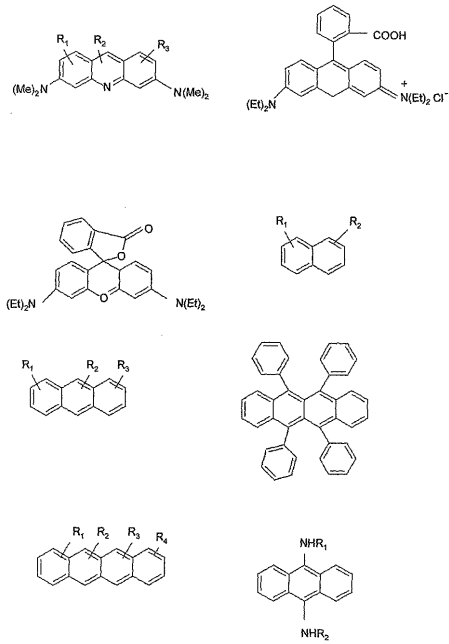


Fig. 11

【 図 1 2 】

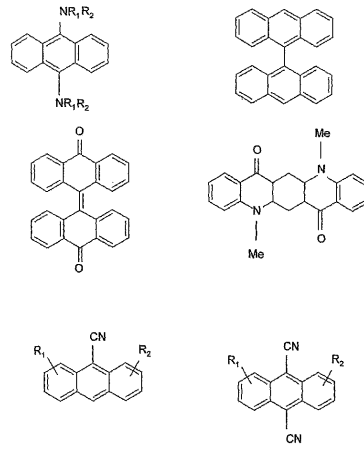


Fig. 12

【 図 1 3 】

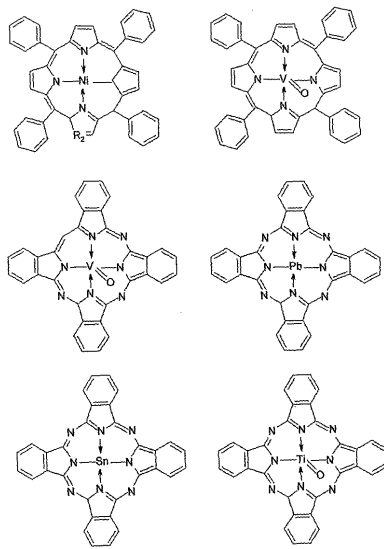
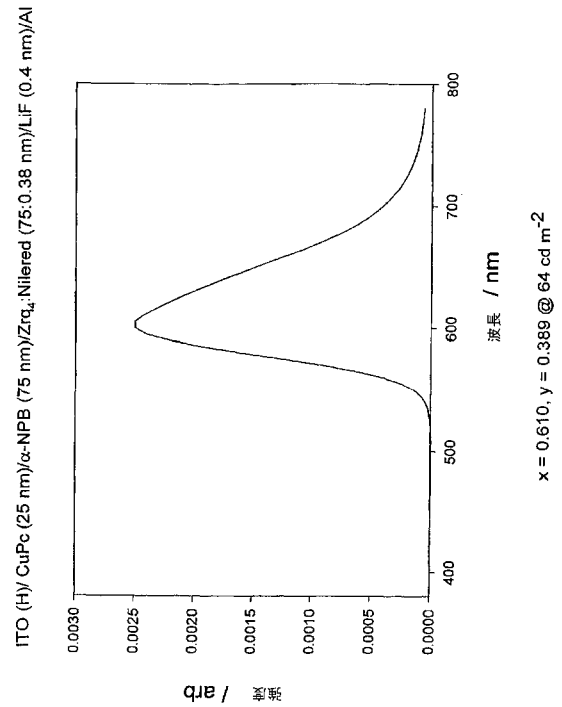
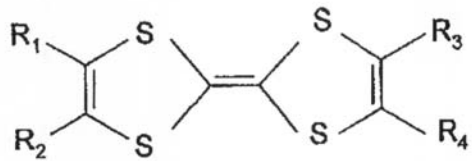


Fig. 13

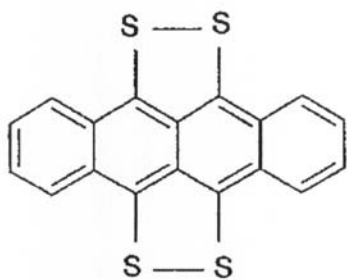
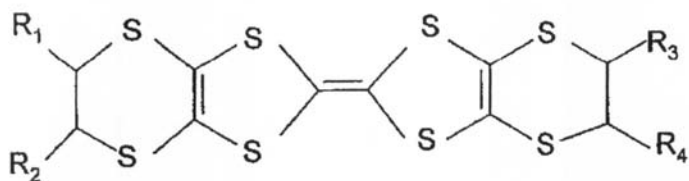
【 図 1 9 】



【 図 6 】

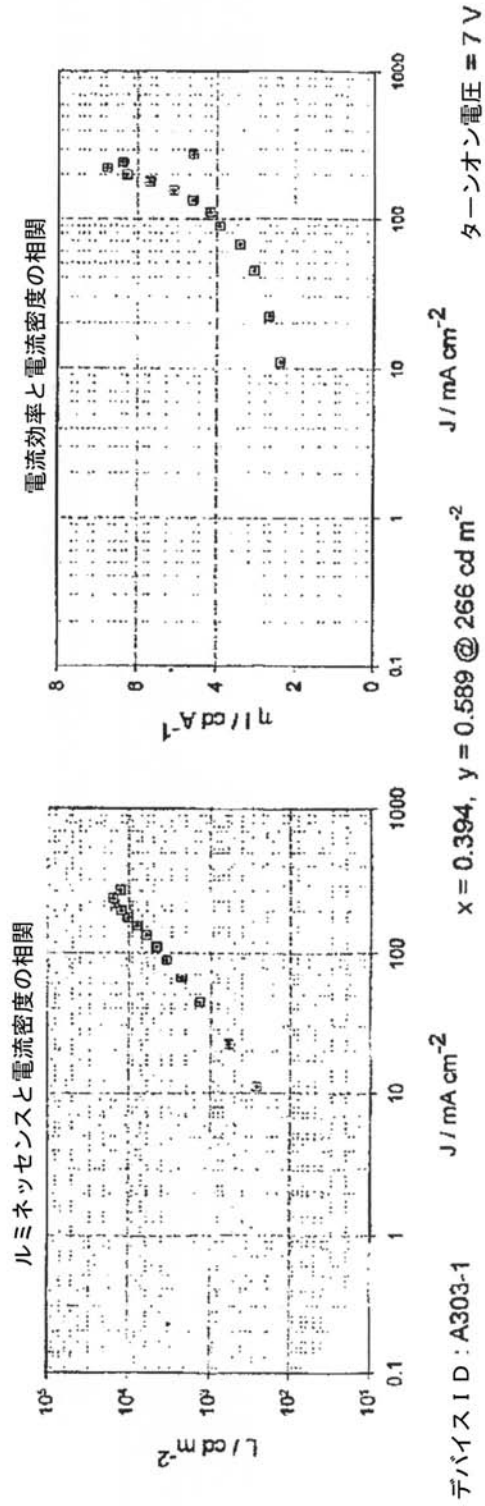
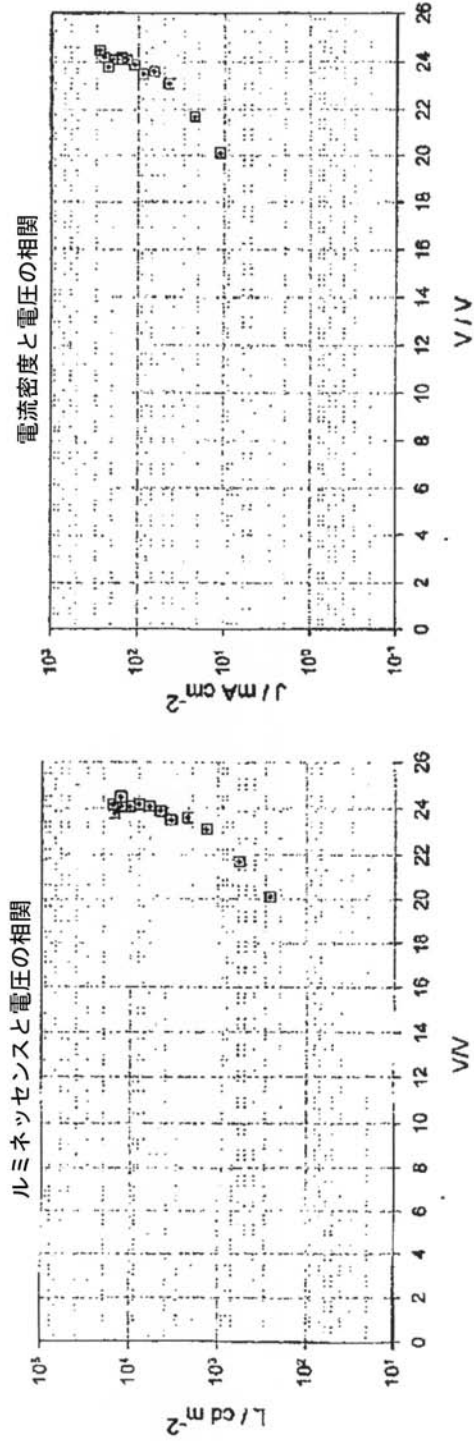


もしくは

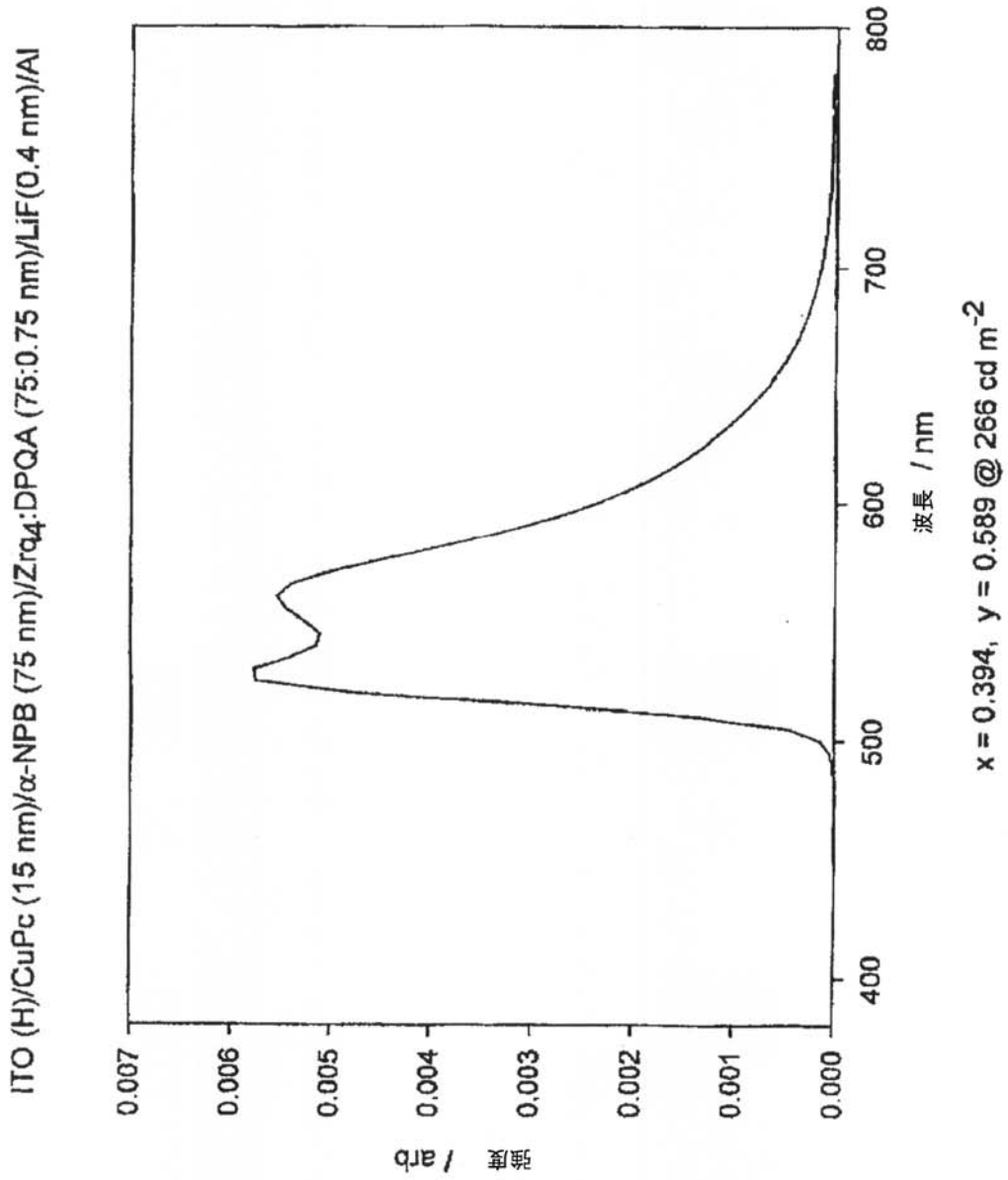


【 図 1 4 】

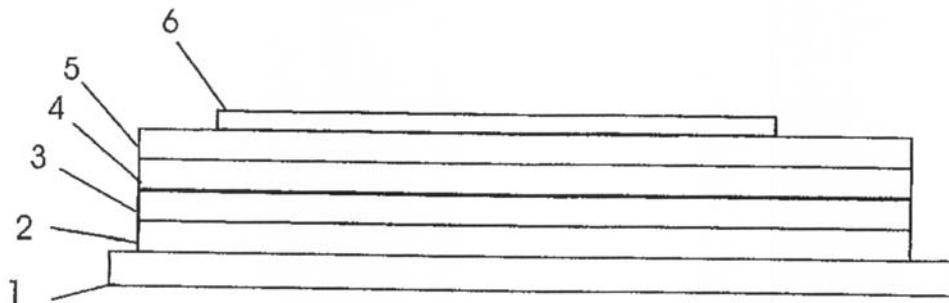
ITO (H)/CuPc (15 nm)/ α -NPB (75 nm)/Zrqa₄DPOA (75:0.75 nm)/LiF(0.4 nm)/Al



【 図 1 5 】

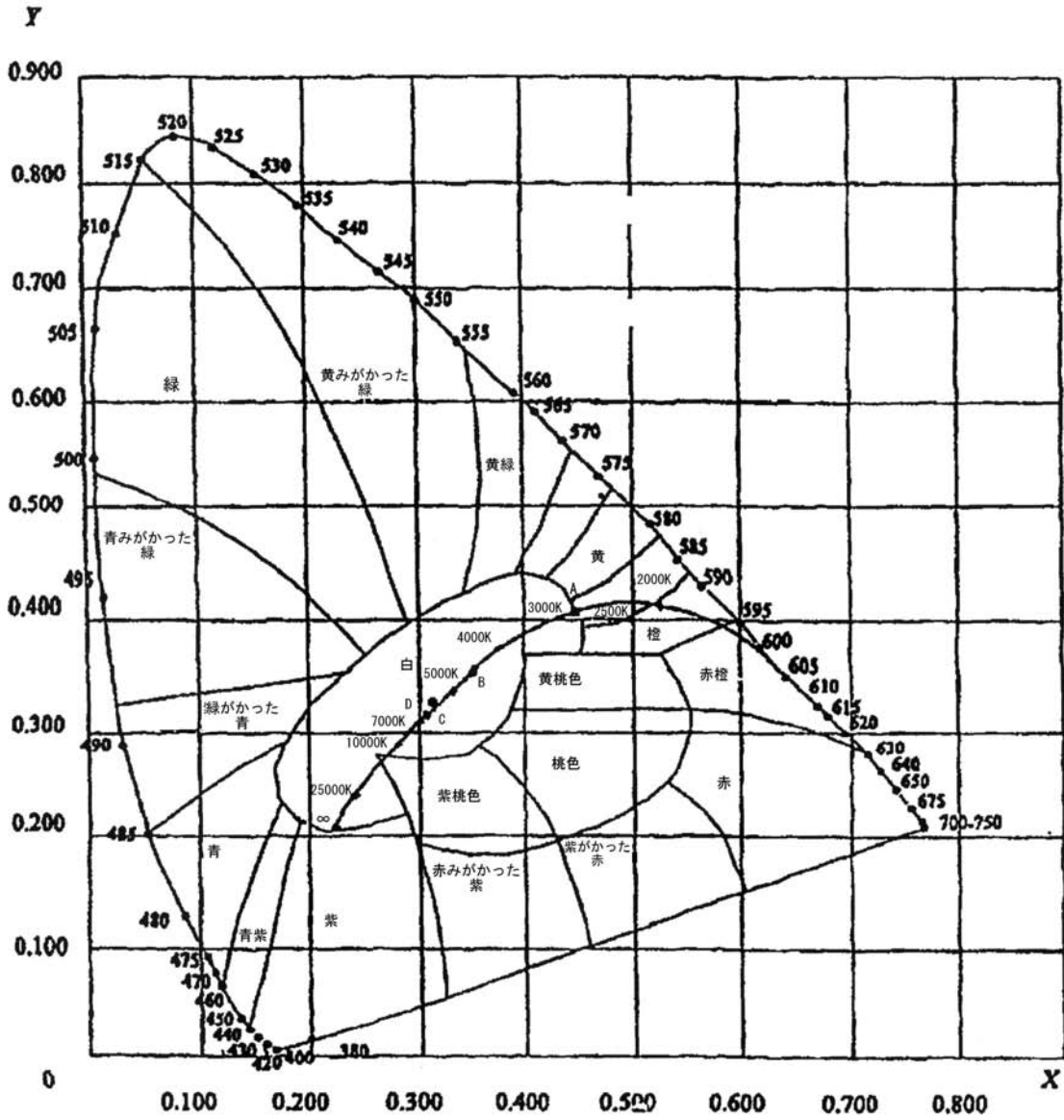


【 図 1 6 】



1はITO; 2はCuPC; 3は α -NPB; 4はZr_q₄:DPQA; 5はLiFおよび6はAl.

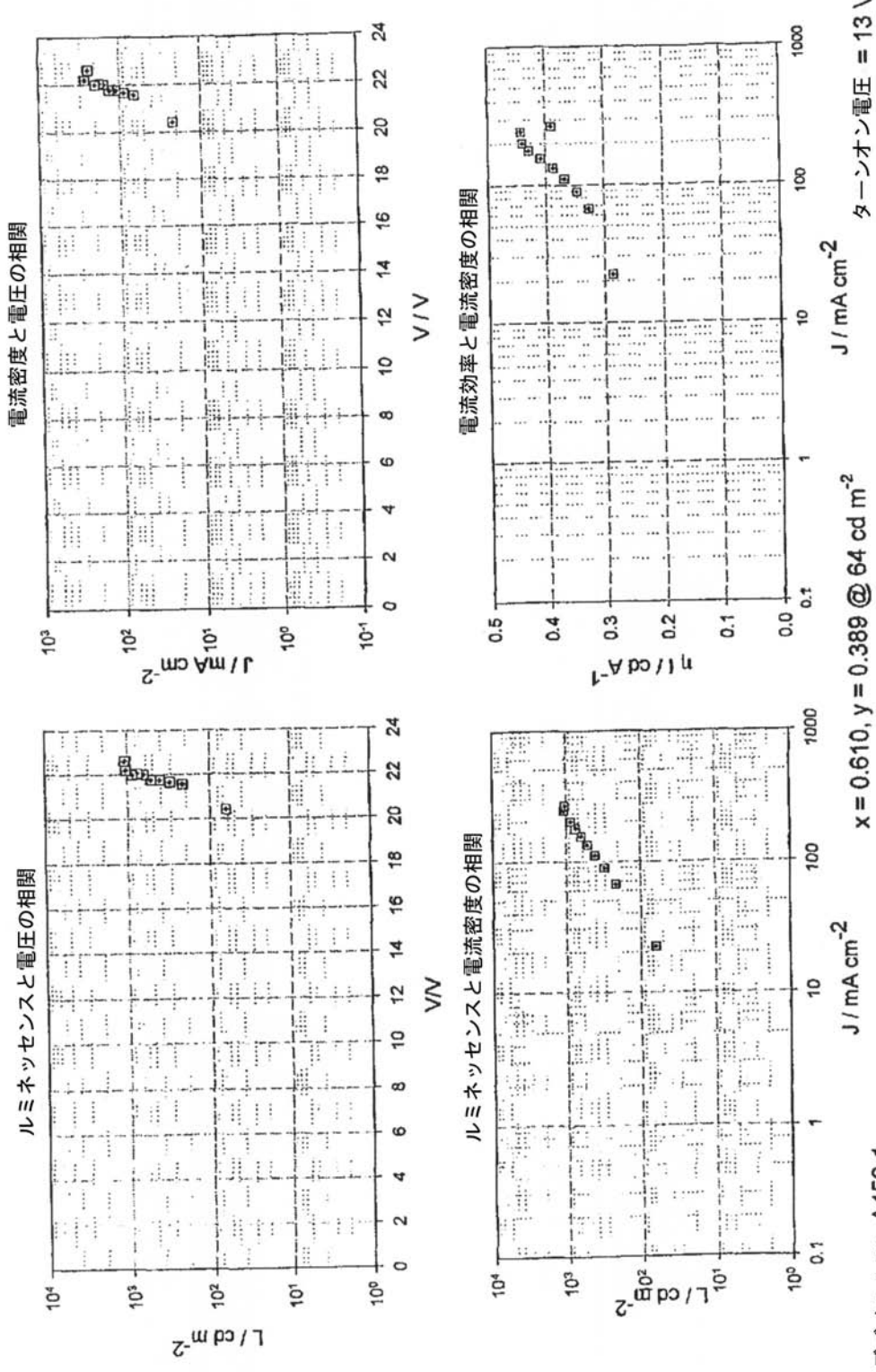
【 図 1 7 】



知覚色の近似位置を示すCIE1931 x, y表色ダイアグラム

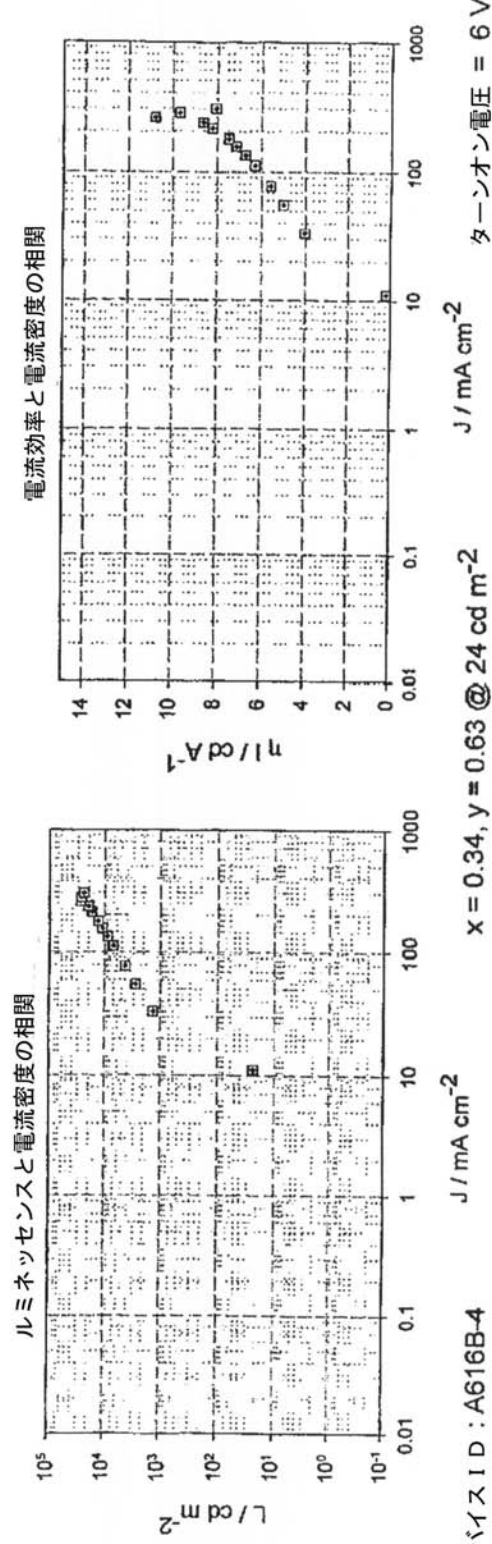
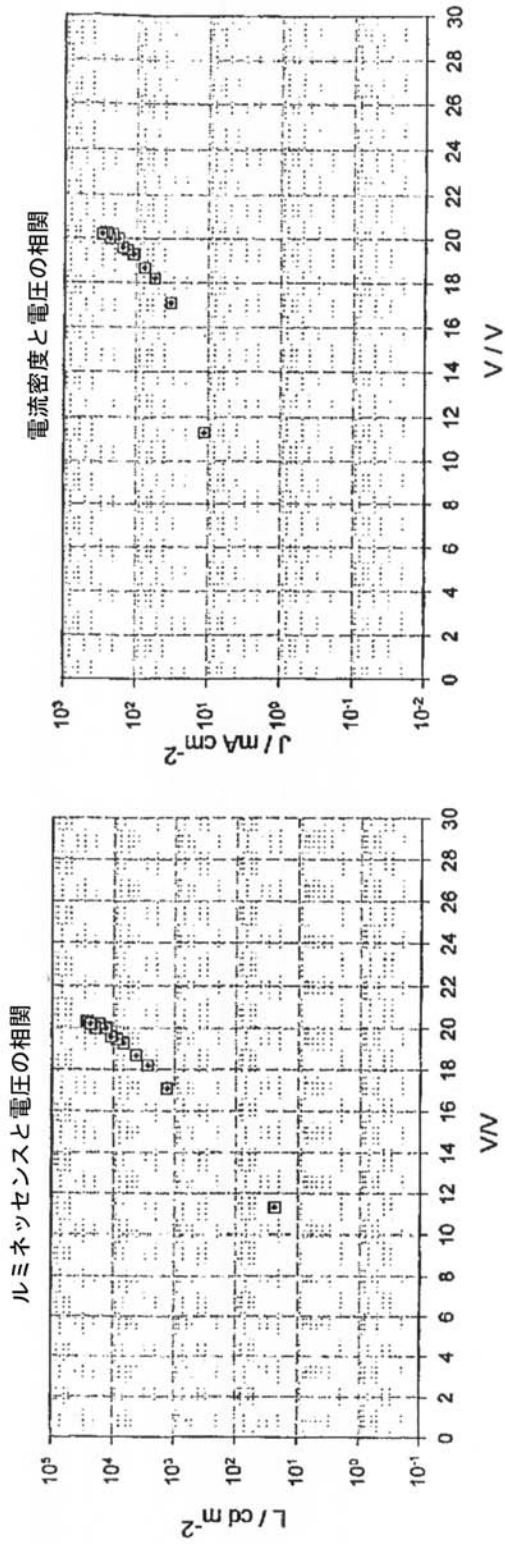
【 図 1 8 】

ITO (H)/CuPc (25 nm)/ α -NPB (75 nm)/ZrF₄:NiIred (75:0.38 nm)/LiF (0.4 nm)/Al



【 図 2 0 】

ITO (H)/CuPc (25 nm)/ α -NPB (75 nm)/Zrqr4:DPQA(60:0.4 nm)/Zrqr4 (10 nm)/LIF (0.4 nm)/Al



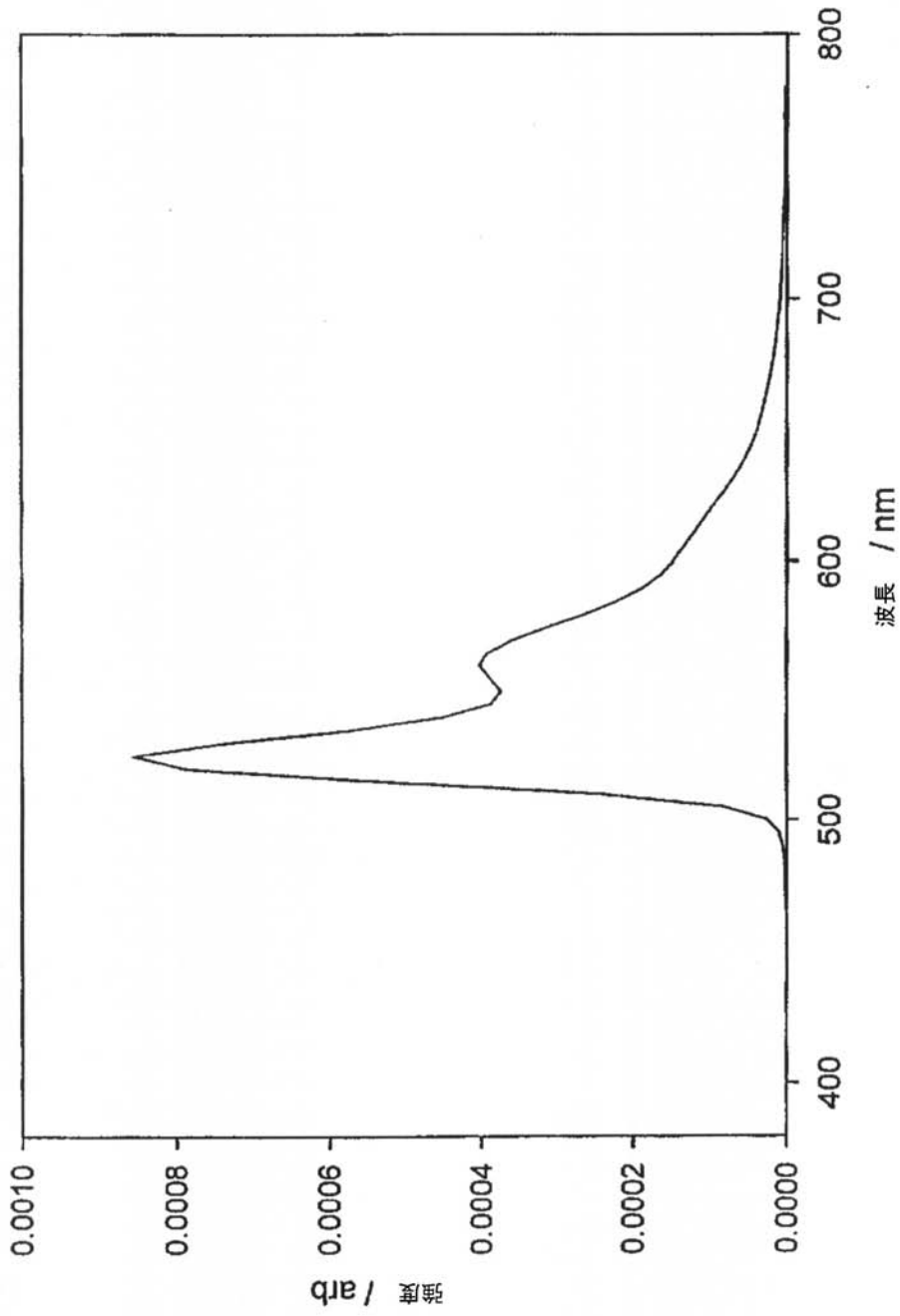
デバイスID : A616B-4

$x = 0.34, y = 0.63 @ 24 \text{ cd m}^{-2}$

$J / \text{ma cm}^{-2}$

【 図 2 1 】

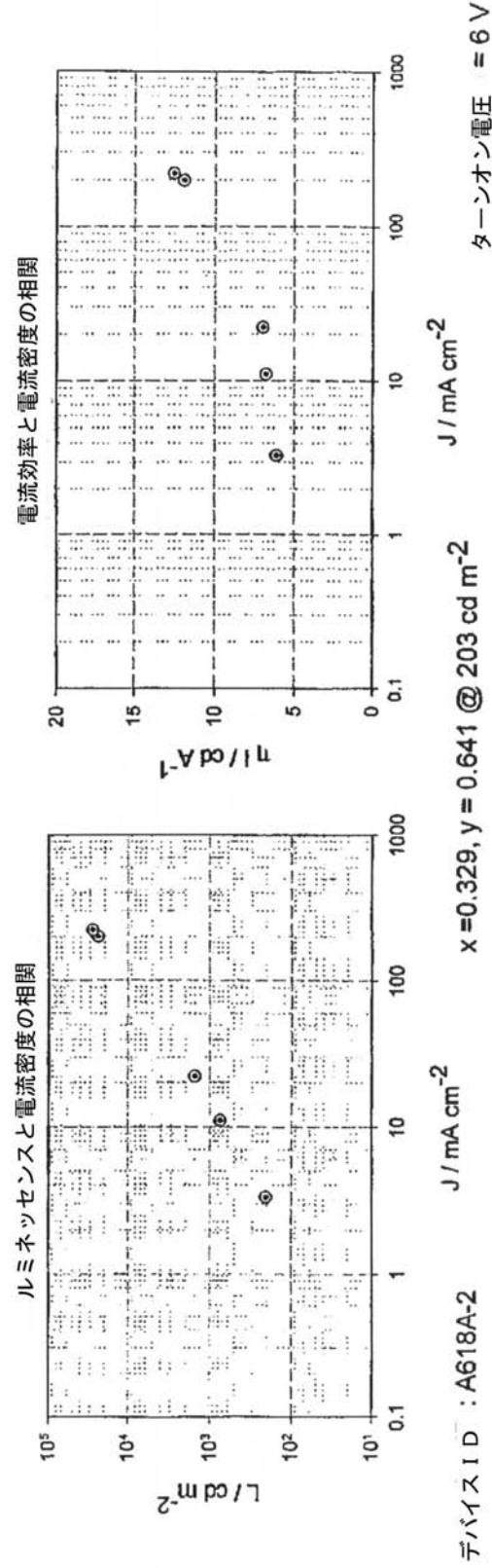
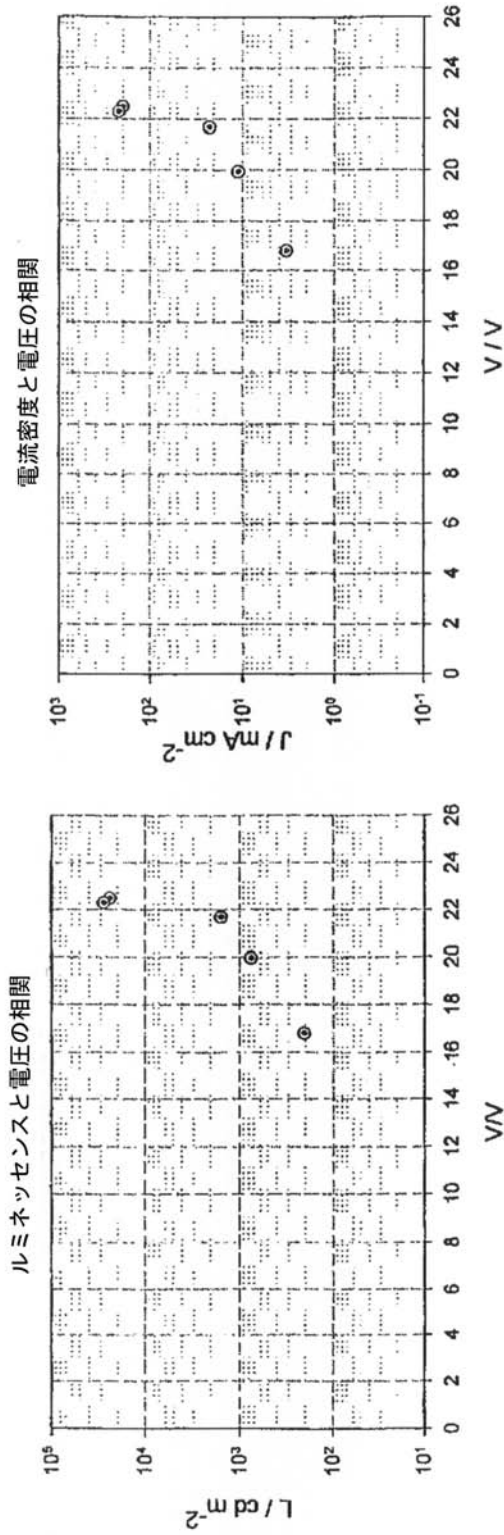
ITO (H)/CuPc (25 nm)/ α -NPB (75 nm)/Zr₄:DPQA(60:0.4 nm)/Zr₄ (10 nm)/LiF (0.4 nm)/Al



x = 0.34, y = 0.63 @ 24 cd m⁻²

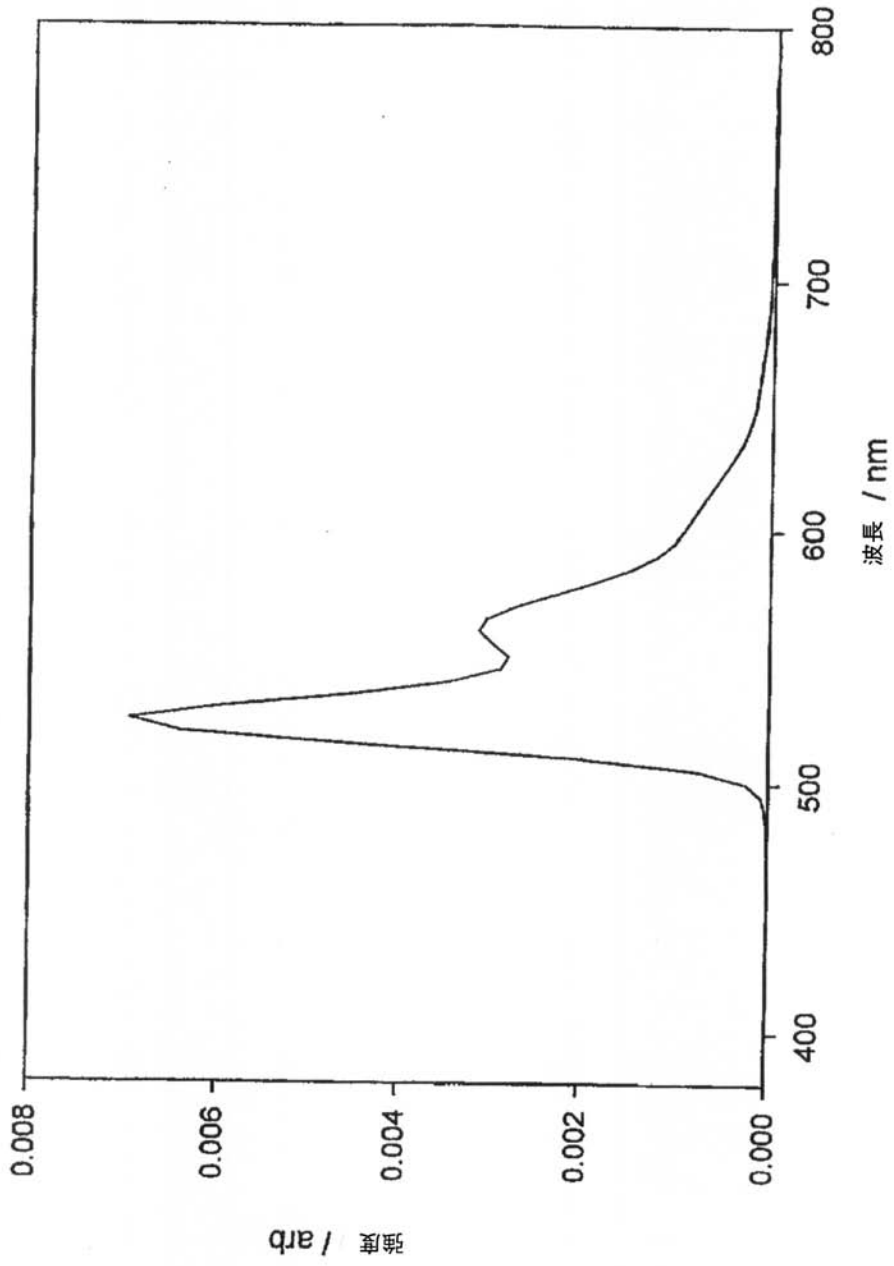
【図 2 2】

ITO (H)/CuPc:TPTP (15:15 nm)/ α -NPB (75 nm)/Zr_q:DPOA (60:0.5 nm)/LiF (0.2 nm)/Al



【 図 2 3 】

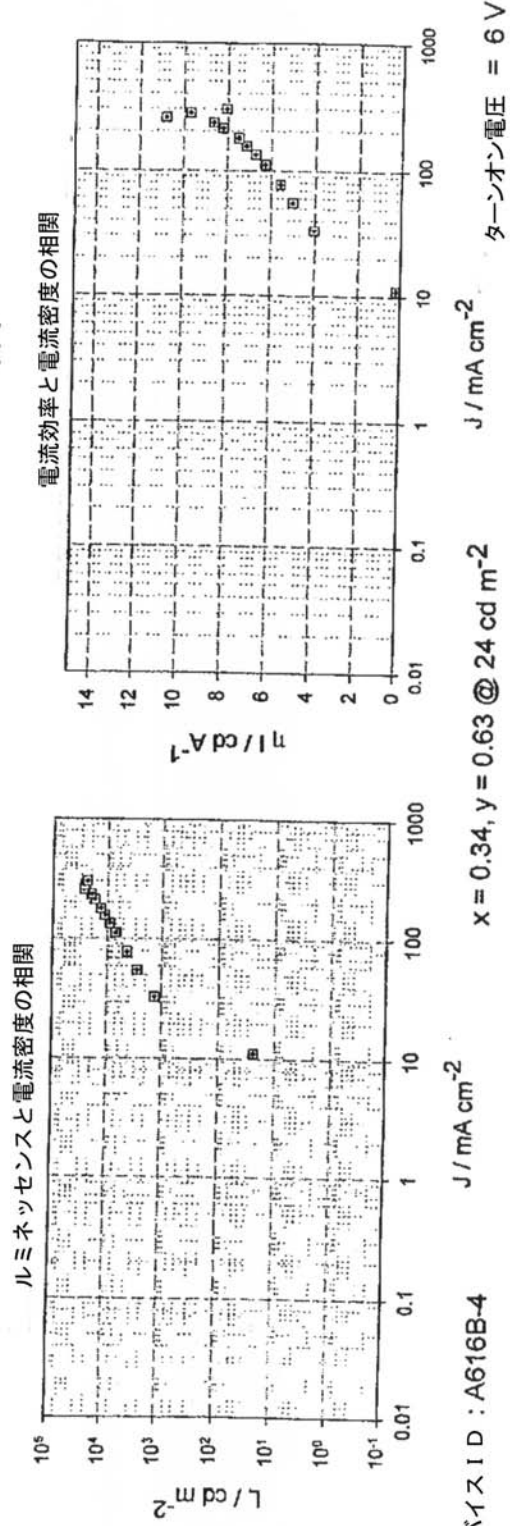
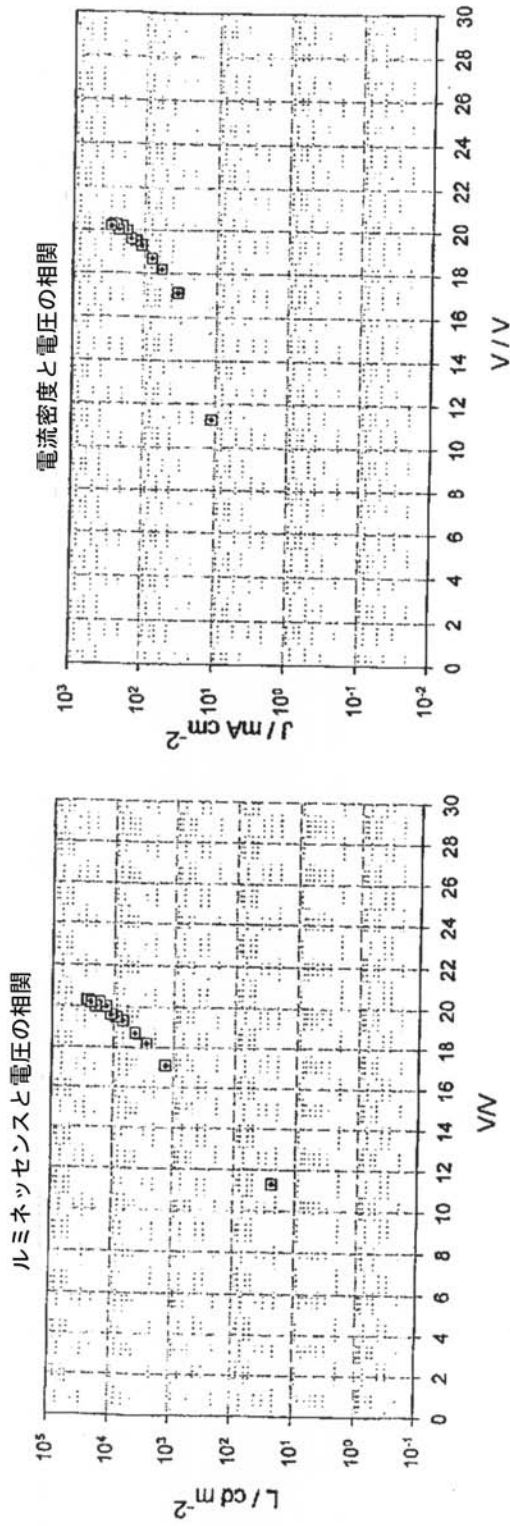
ITO (H)/CuPc:TPTP (15:15 nm)/ α -NPB (75 nm)/Zr_q:DPQA (60:0.5 nm)/LiF (0.2 nm)/Al



x = 0.329, y = 0.641 @ 203 cd m⁻²

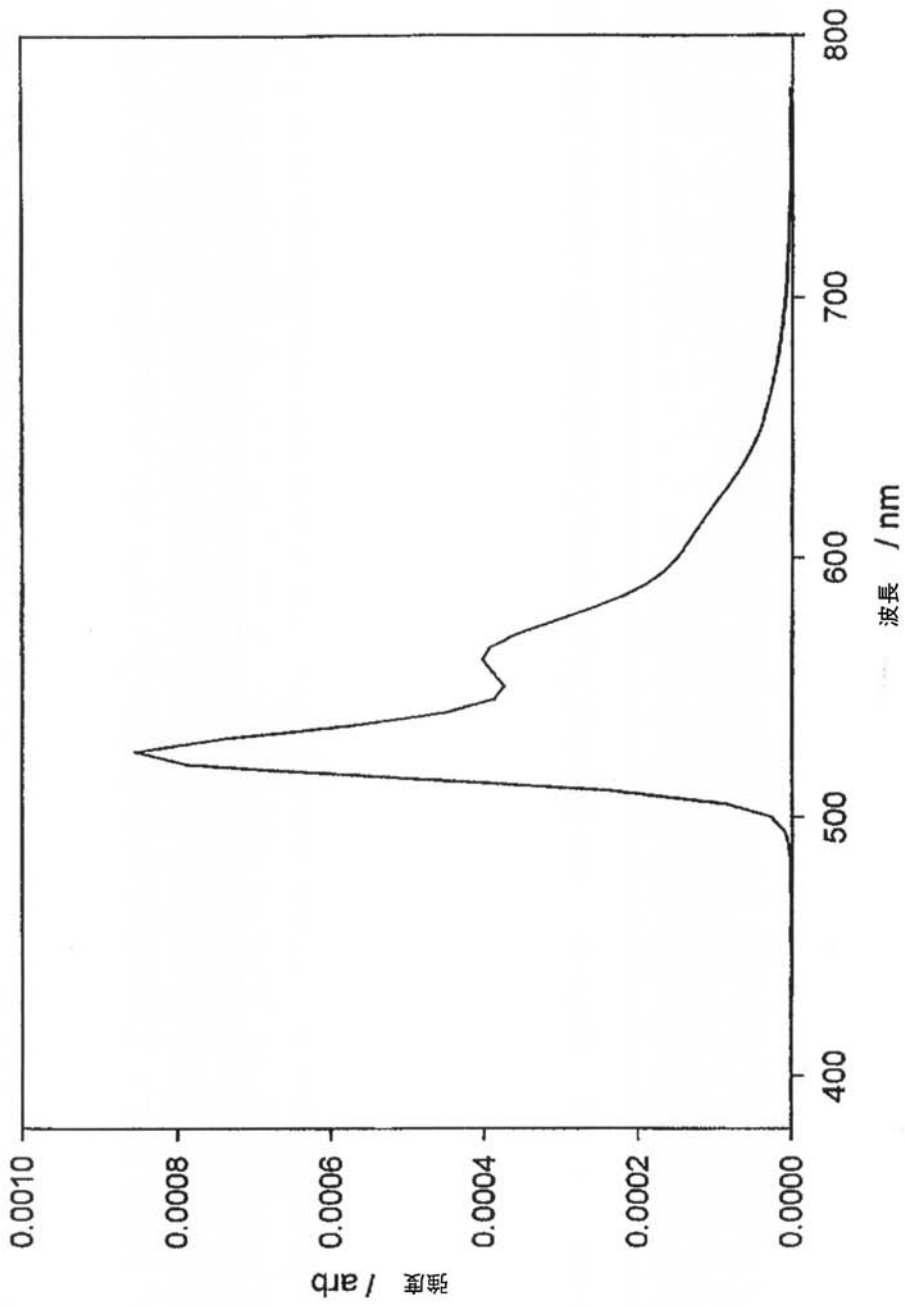
【 図 2 4 】

ITO (H)/CuPc (25 nm)/ α -NPB (75 nm)/Zrq4:DPQA(60:0.4 nm)/Zrq4 (10 nm)/LiF (0.4 nm)/Al



【 図 2 5 】

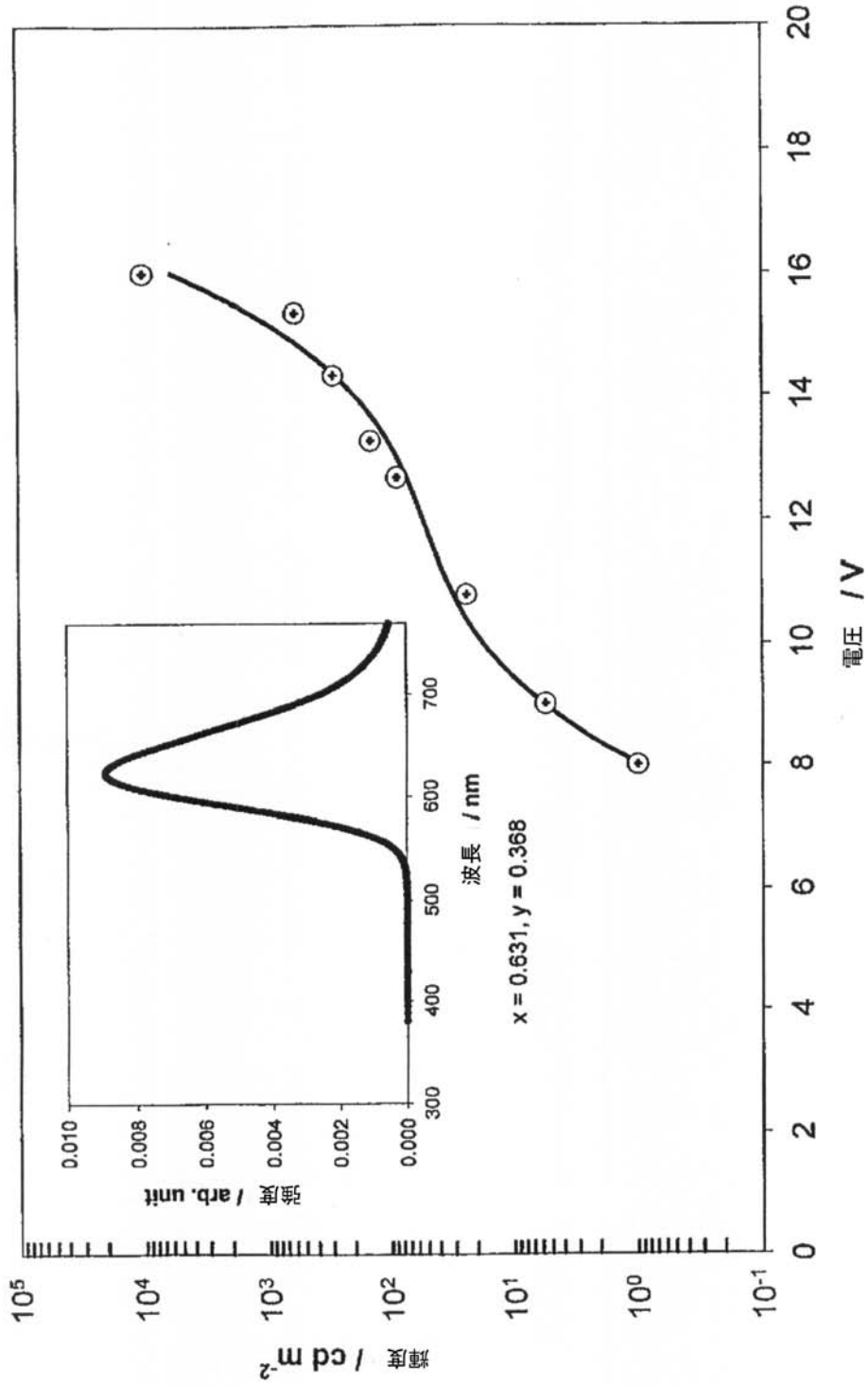
ITO (H)/CuPc (25 nm)/ α -NPB (75 nm)/Zr_q4:DPQA(60:0.4 nm)/Zr_q4 (10 nm)/LiF (0.4 nm)/Al



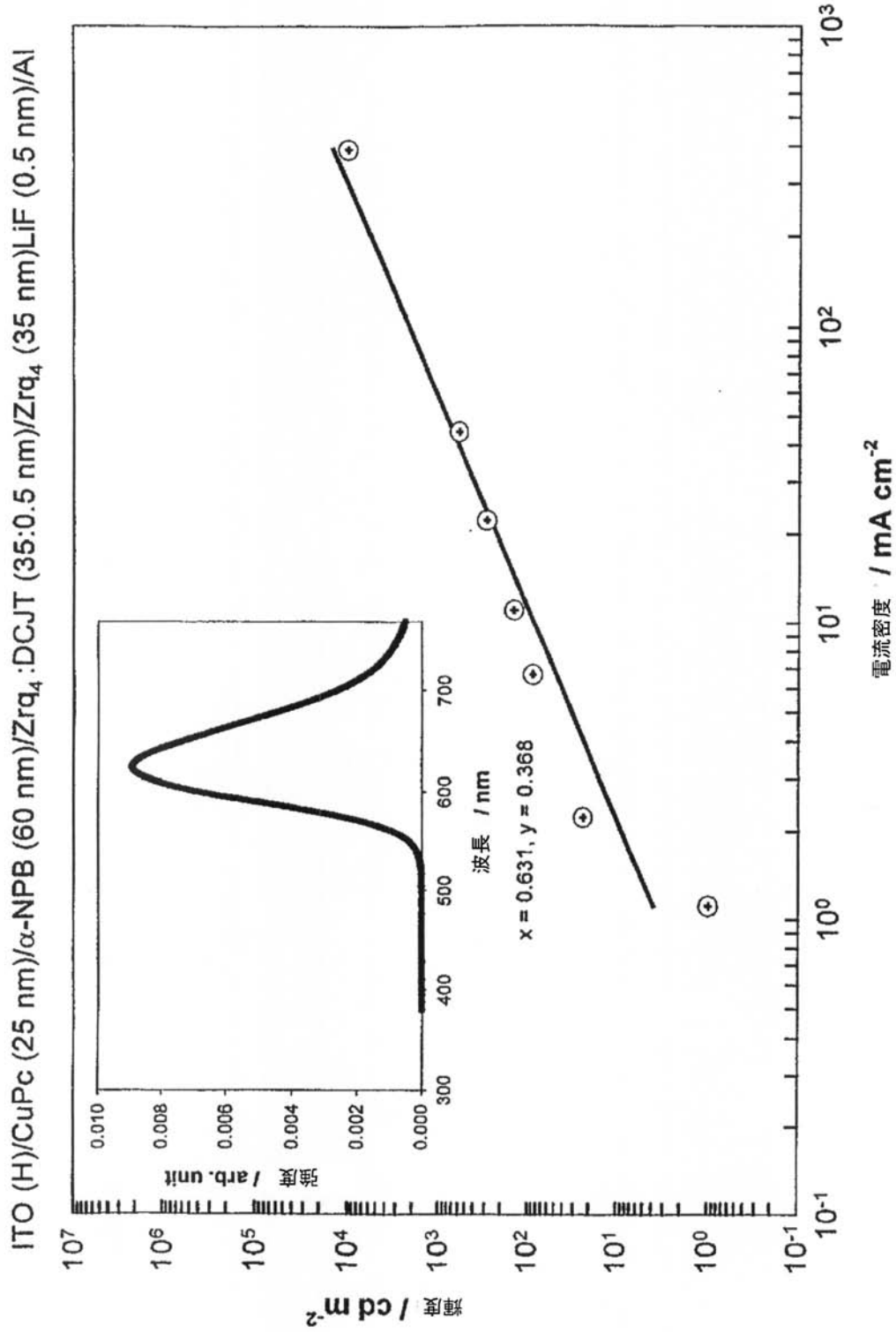
x = 0.34, y = 0.63 @ 24 cd m⁻²

【 図 2 6 】

ITO (H)/CuPc (25 nm)/ α -NPB (60 nm)/Zr_q₄:DCJT (35:0.5 nm)/Zr_q₄ (35 nm)/LiF (0.5 nm)/Al

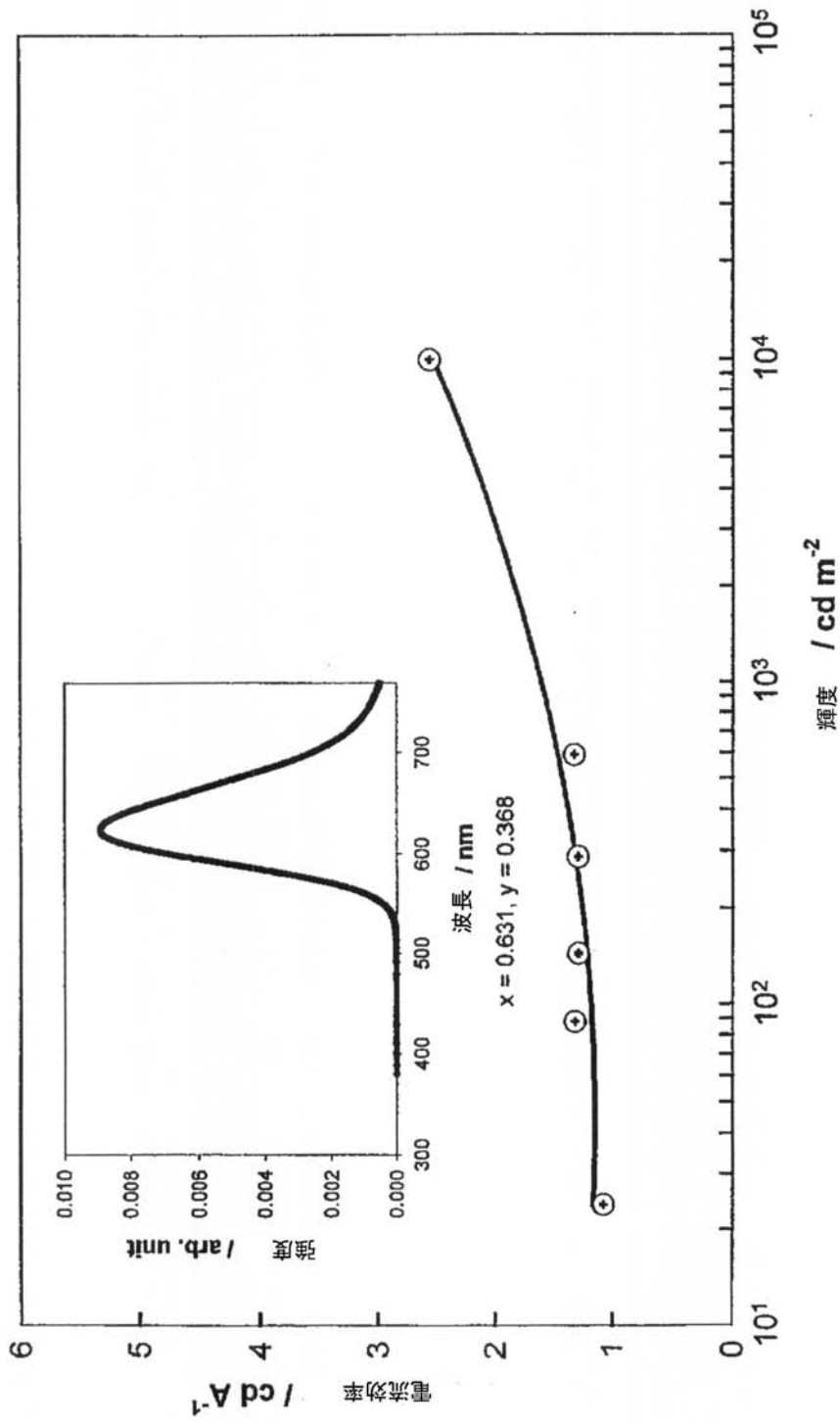


【 図 2 7 】

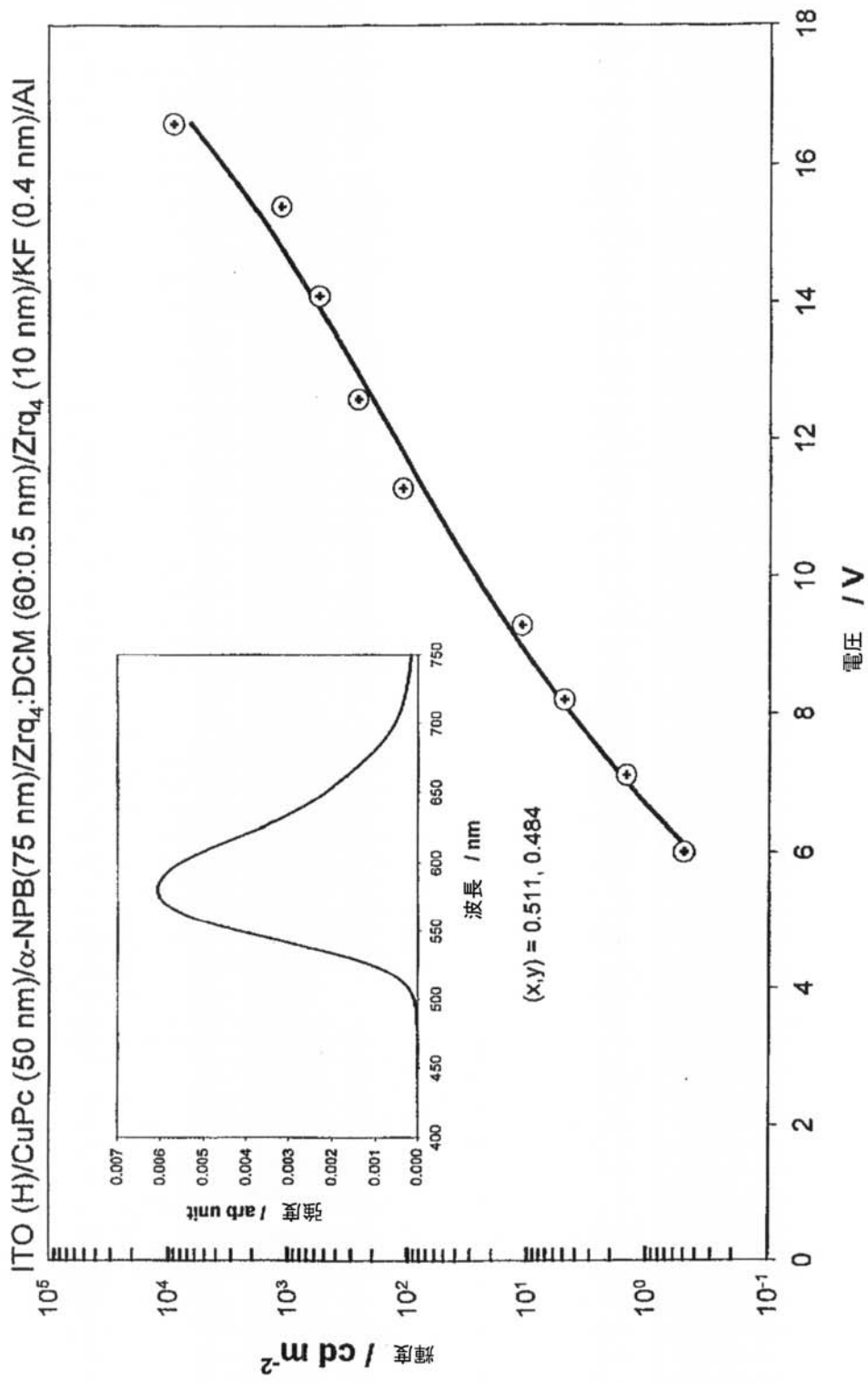


【 図 2 8 】

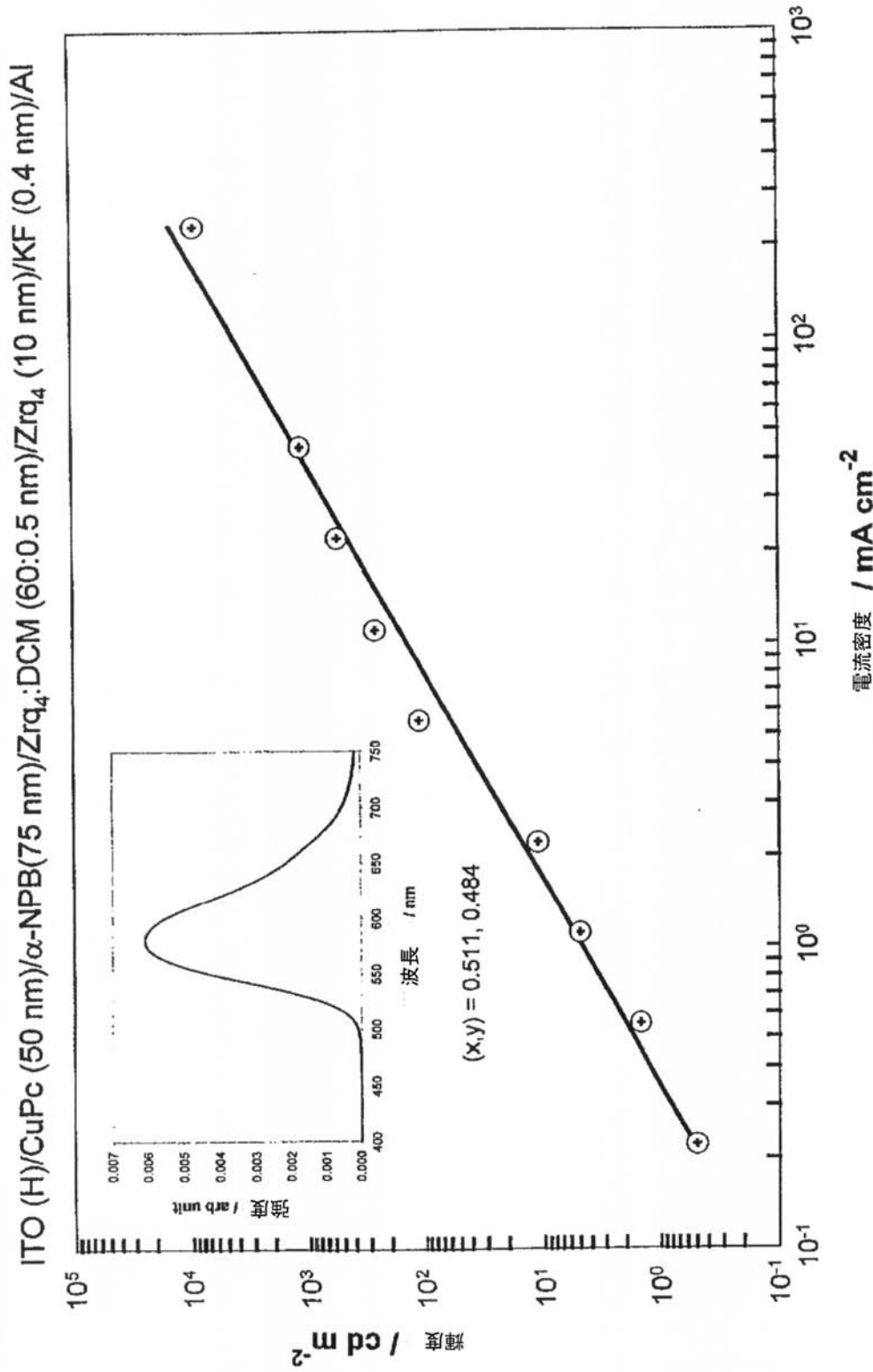
ITO (H)/CuPc (25 nm)/ α -NPB (60 nm)/Zr₄:DCJT (35:0.5 nm)/Zr₄ (35 nm)/LiF (0.5 nm)/Al



【 図 2 9 】

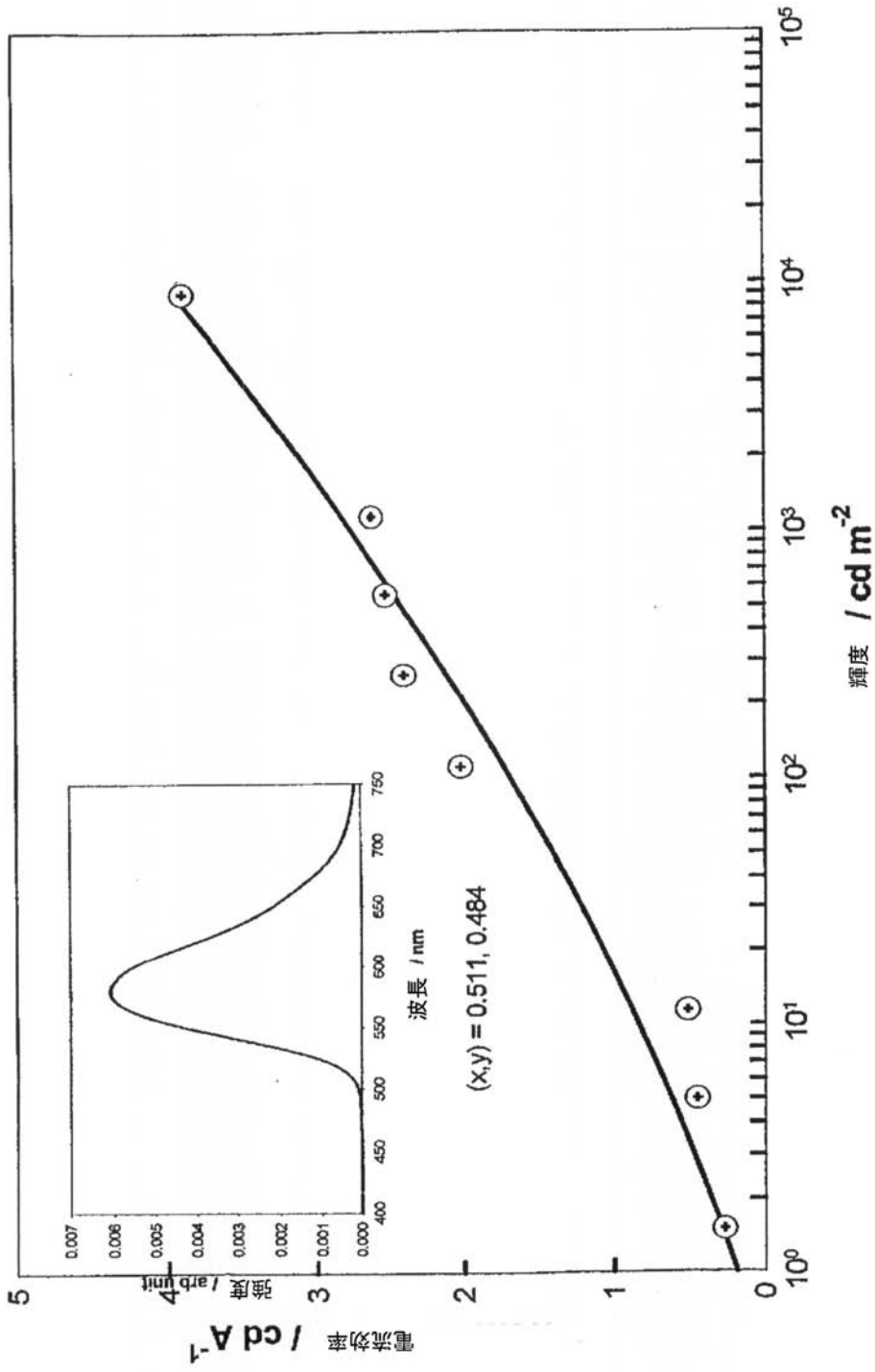


【 図 3 0 】

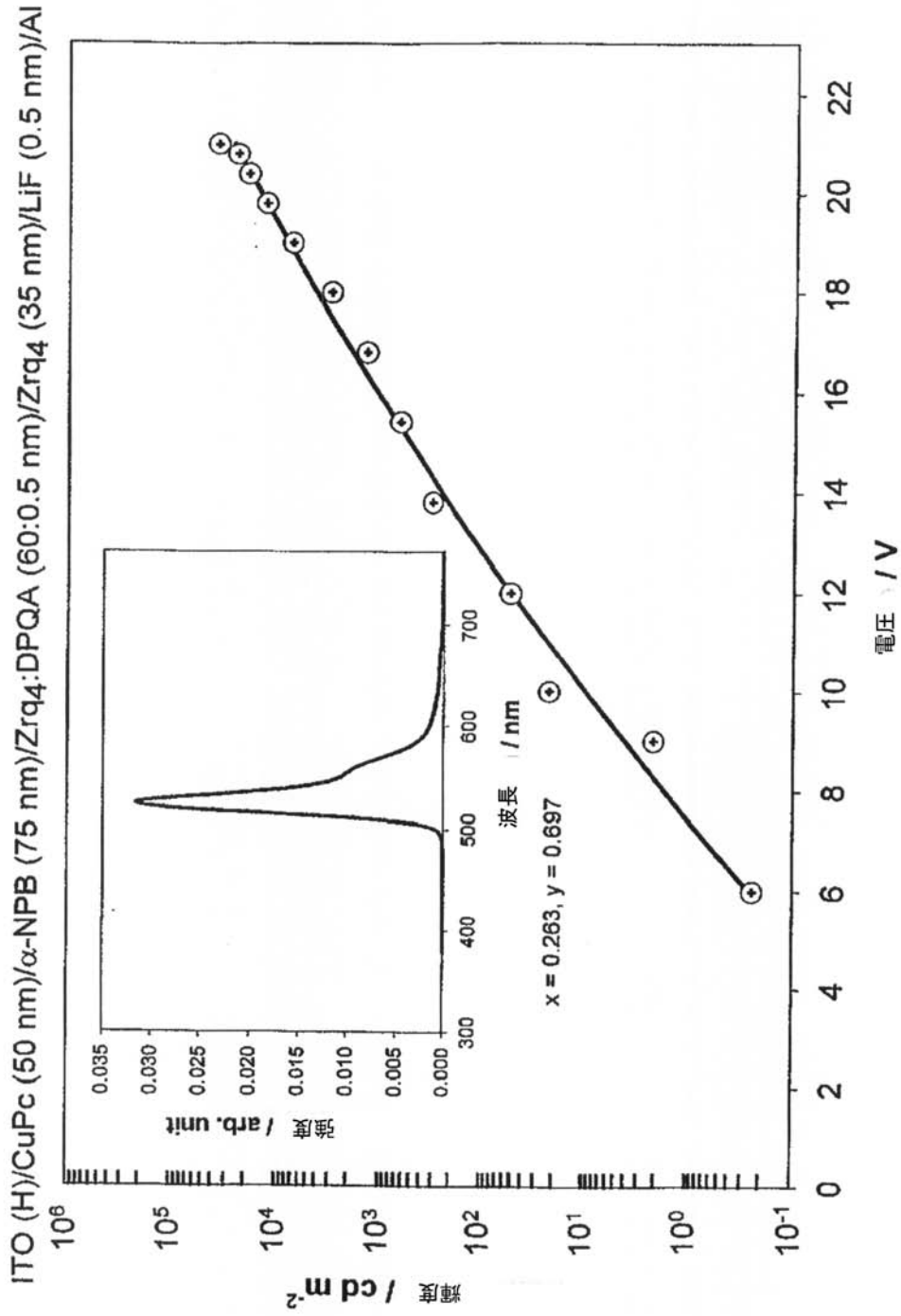


【 図 3 1 】

ITO (H)/CuPc (50 nm)/ α -NPB(75 nm)/Zrqa₄:DCM (60:0.5 nm)/Zrqa₄ (10 nm)/KF (0.4 nm)/Al

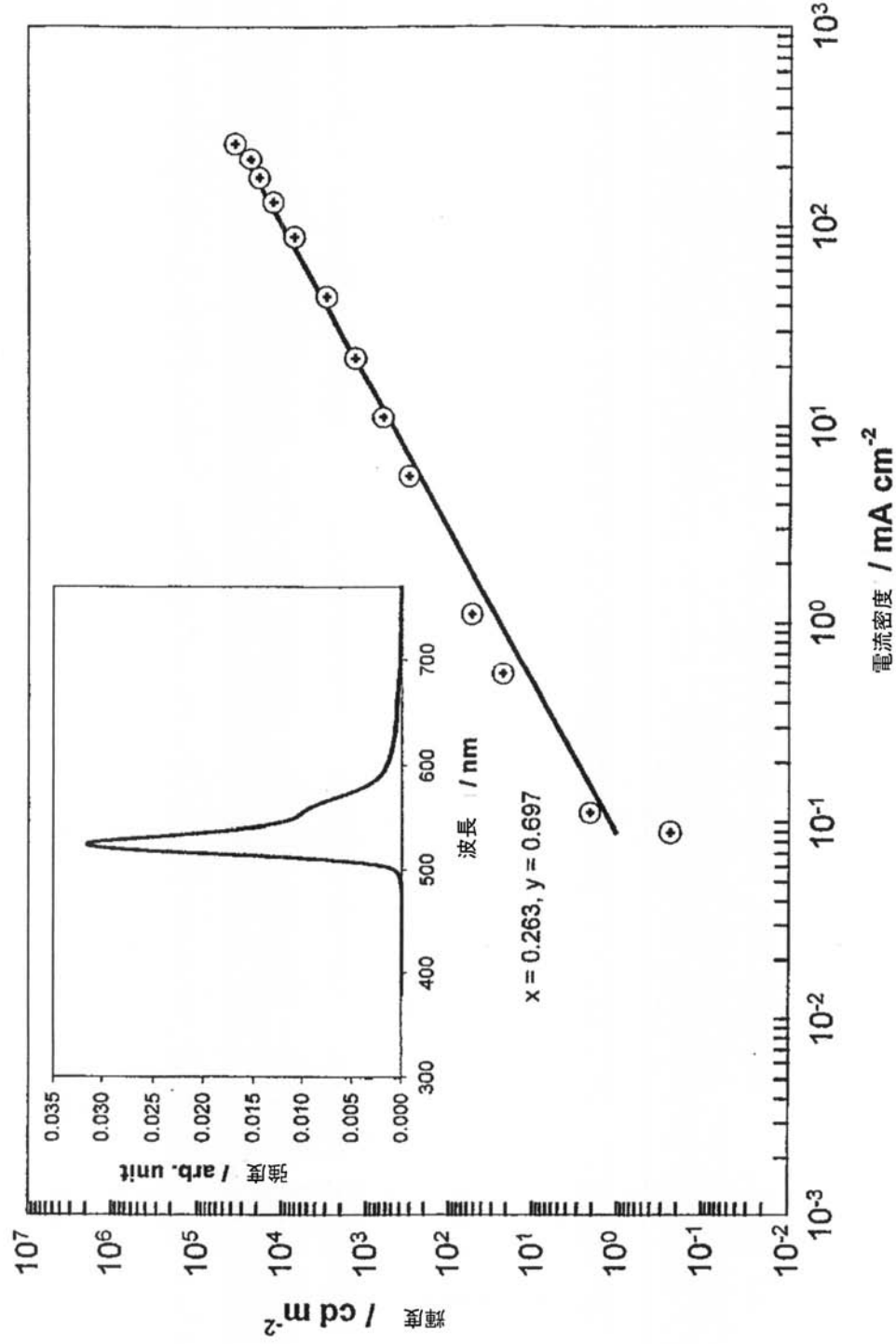


【 図 3 2 】



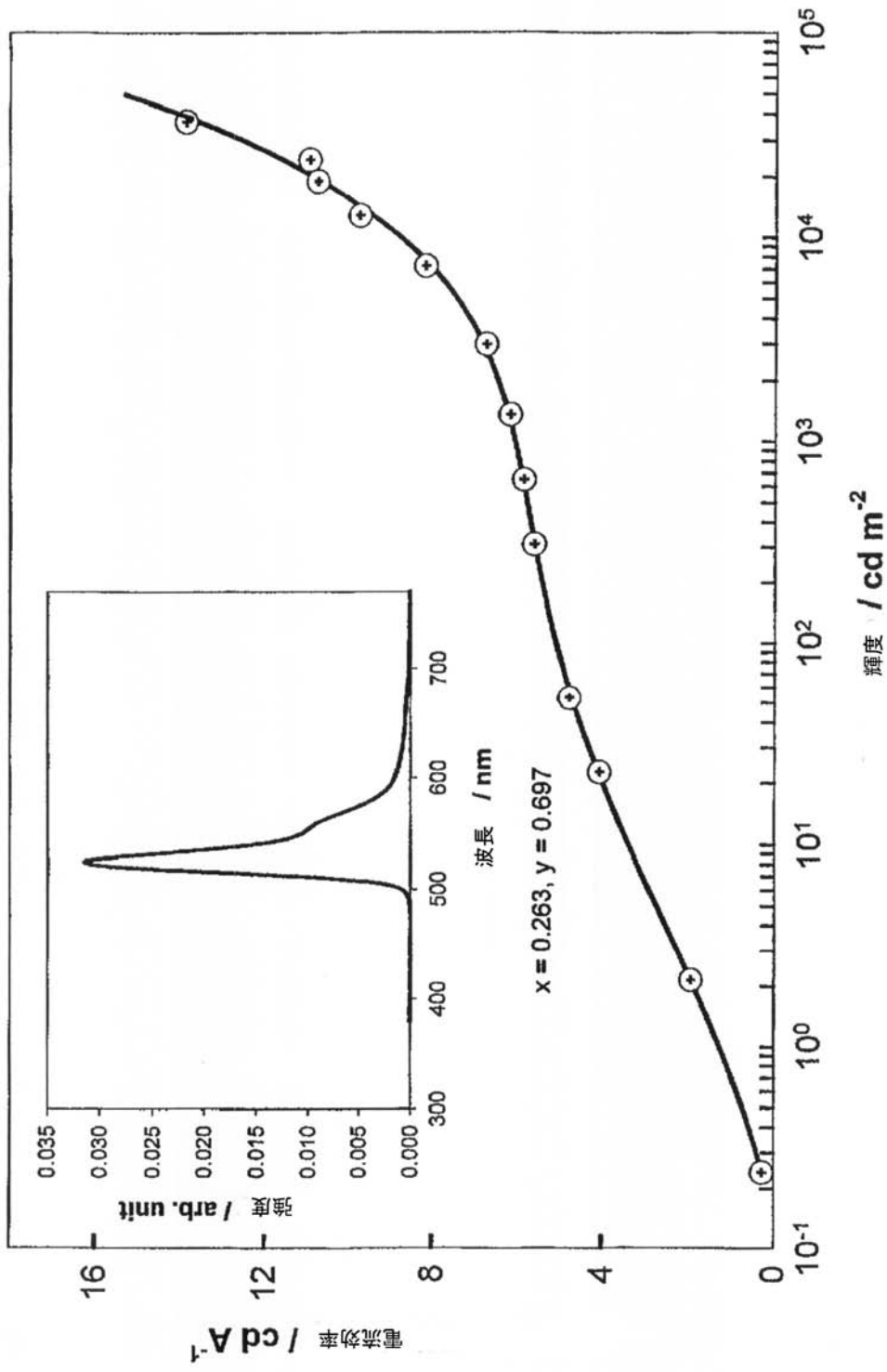
【 図 3 3 】

ITO (H)/CuPc (50 nm)/ α -NPB (75 nm)/Zrqa:DPQA (60:0.5 nm)/Zrqa (35 nm)/LiF (0.5 nm)/Al

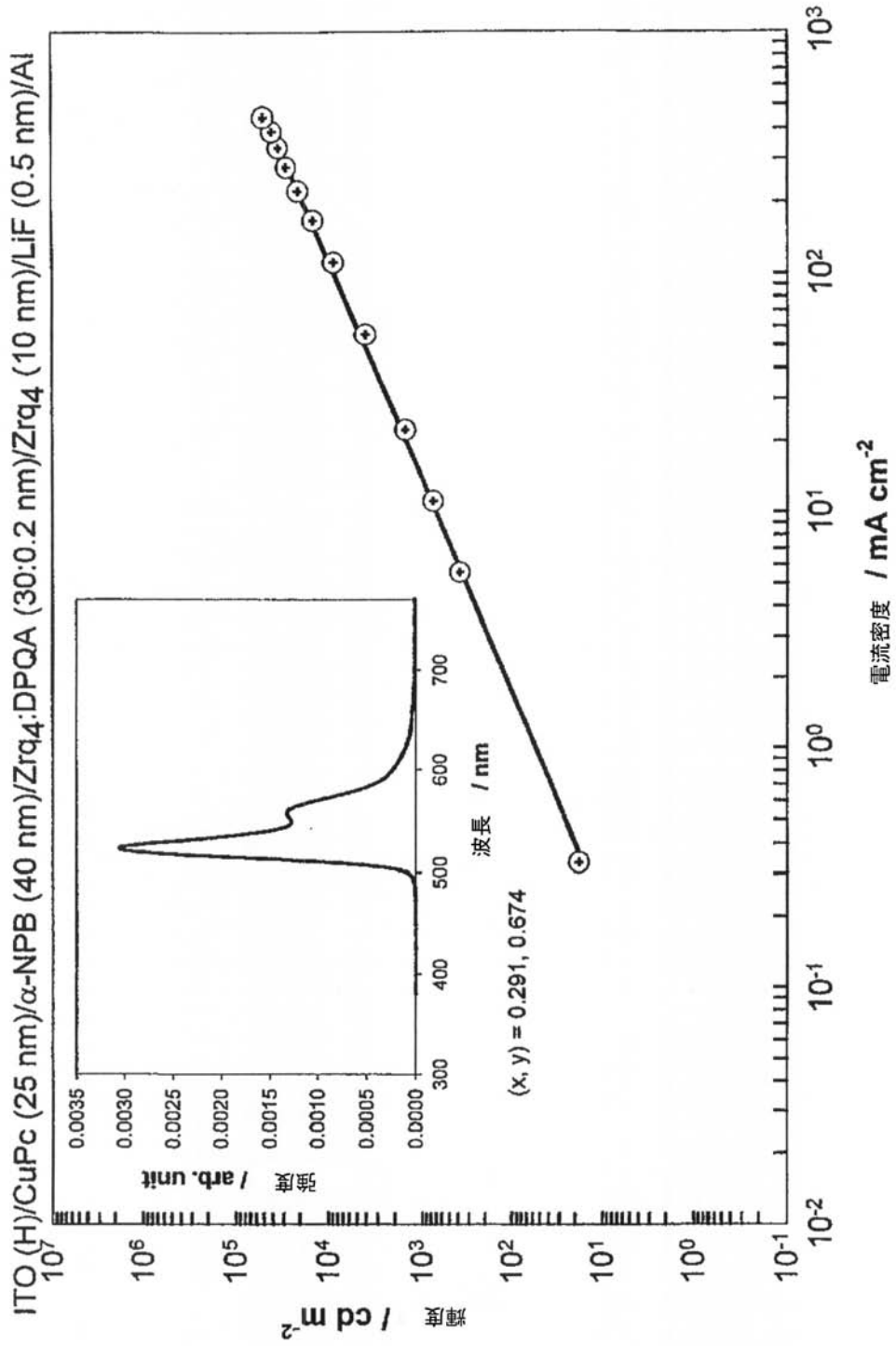


【 図 3 4 】

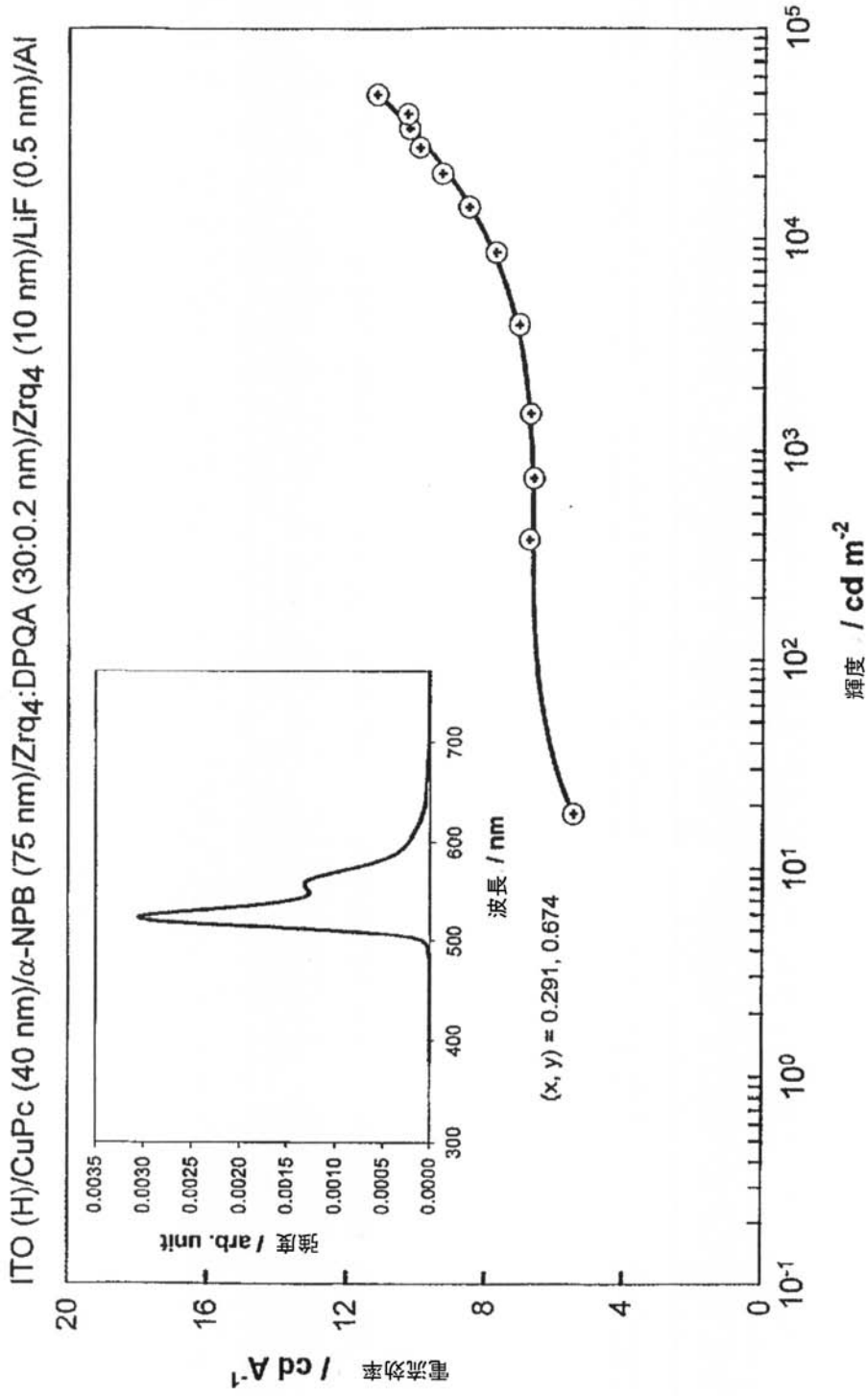
ITO (H)/CuPc (50 nm)/ α -NPB (75 nm)/Zrqn₄:DPQA (60:0.5 nm)/Zrqn₄ (35 nm)/LiF (0.5 nm)/Al



【 図 3 5 】

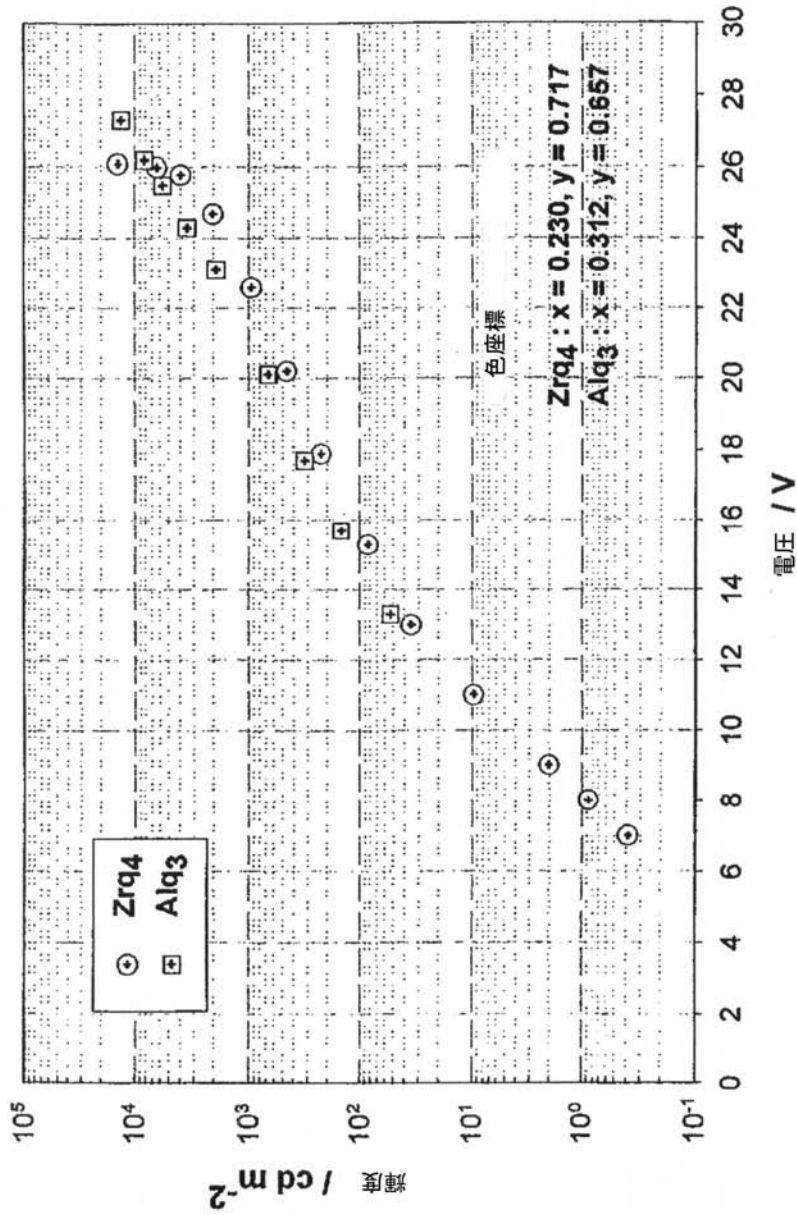


【 図 3 6 】



【図 37】

ドーピングしたZr_{q4} デバイスとドーピングしたAl_{q3} デバイスとの比較

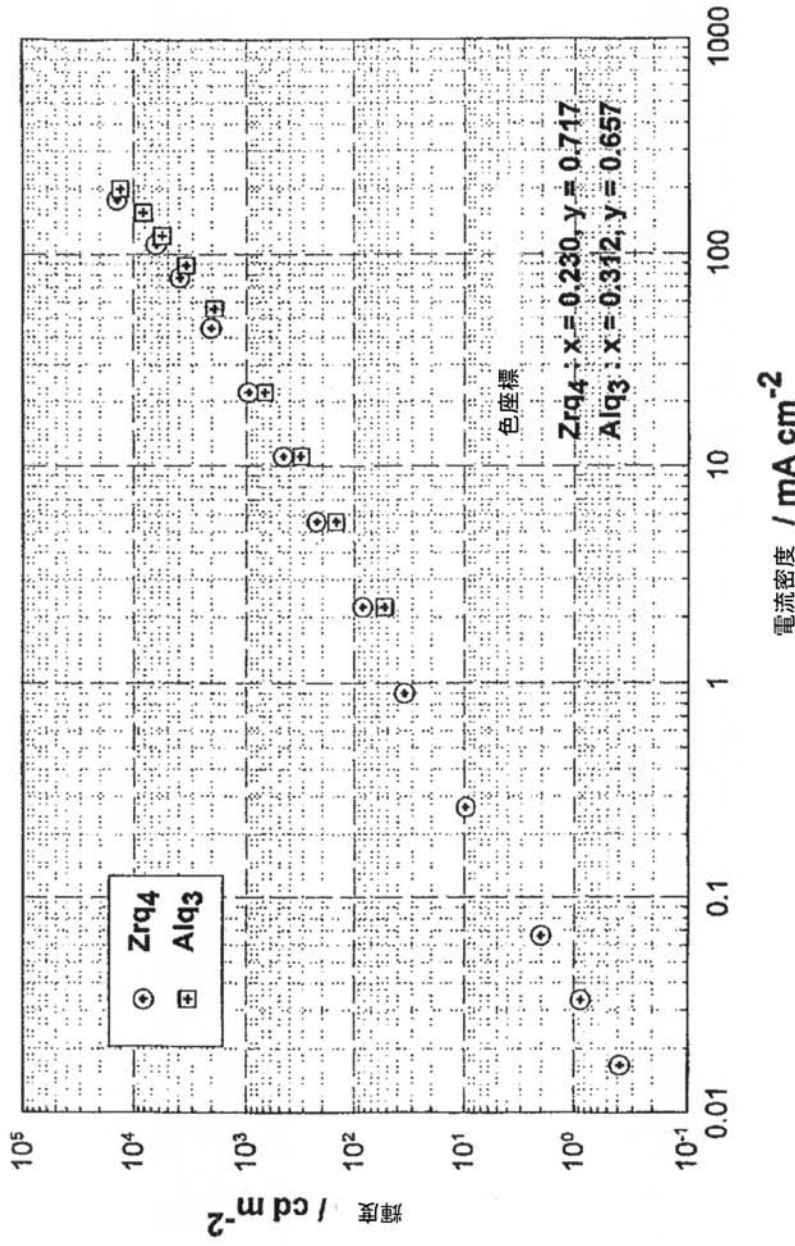


ITO/CuPc (50 nm)/α-NPB (75 nm)/Alq₃ : DPQA (75 : 0.75 nm)/Alq₃ (10 nm)/LIF (0.4 nm)/Al

ITO/CuPc (50 nm)/α-NPB (75 nm)/Zr_{q4} : DPQA (60 : 0.5 nm)/Zr_{q4} (10 nm)/LIF (0.4 nm)/Al

【 図 3 8 】

ドーブしたZr_{q4}デバイスとドーブしたAl_{q3}デバイスとの比較

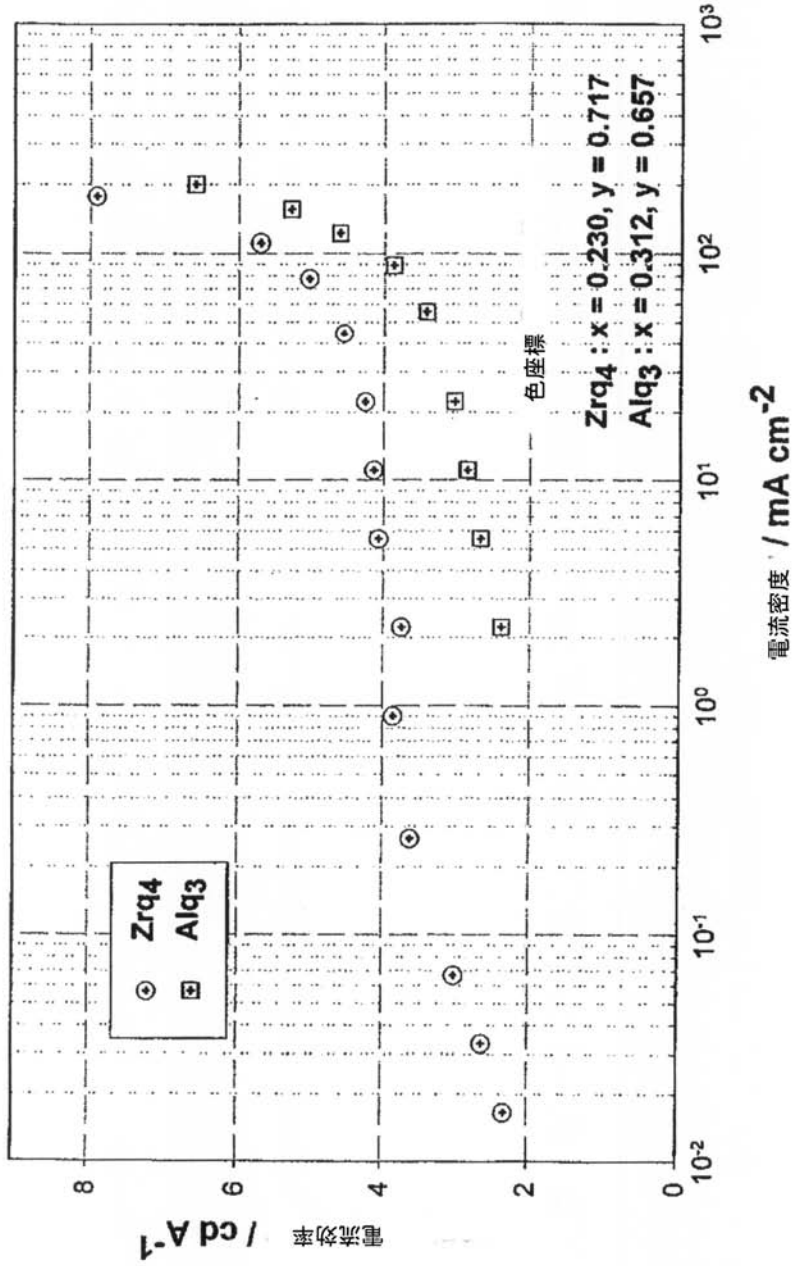


ITO/CuPc (50 nm)/α-NPB (75 nm)/Alq₃ : DPQA (75 : 0.75 nm)/Alq₃ (10 nm)/LiF (0.4 nm)/Al

ITO/CuPc (50 nm)/α-NPB (75 nm)/Zr_{q4} : DPQA (60 : 0.5 nm)/Zr_{q4} (10 nm)/LiF (0.4 nm)/Al

【 図 3 9 】

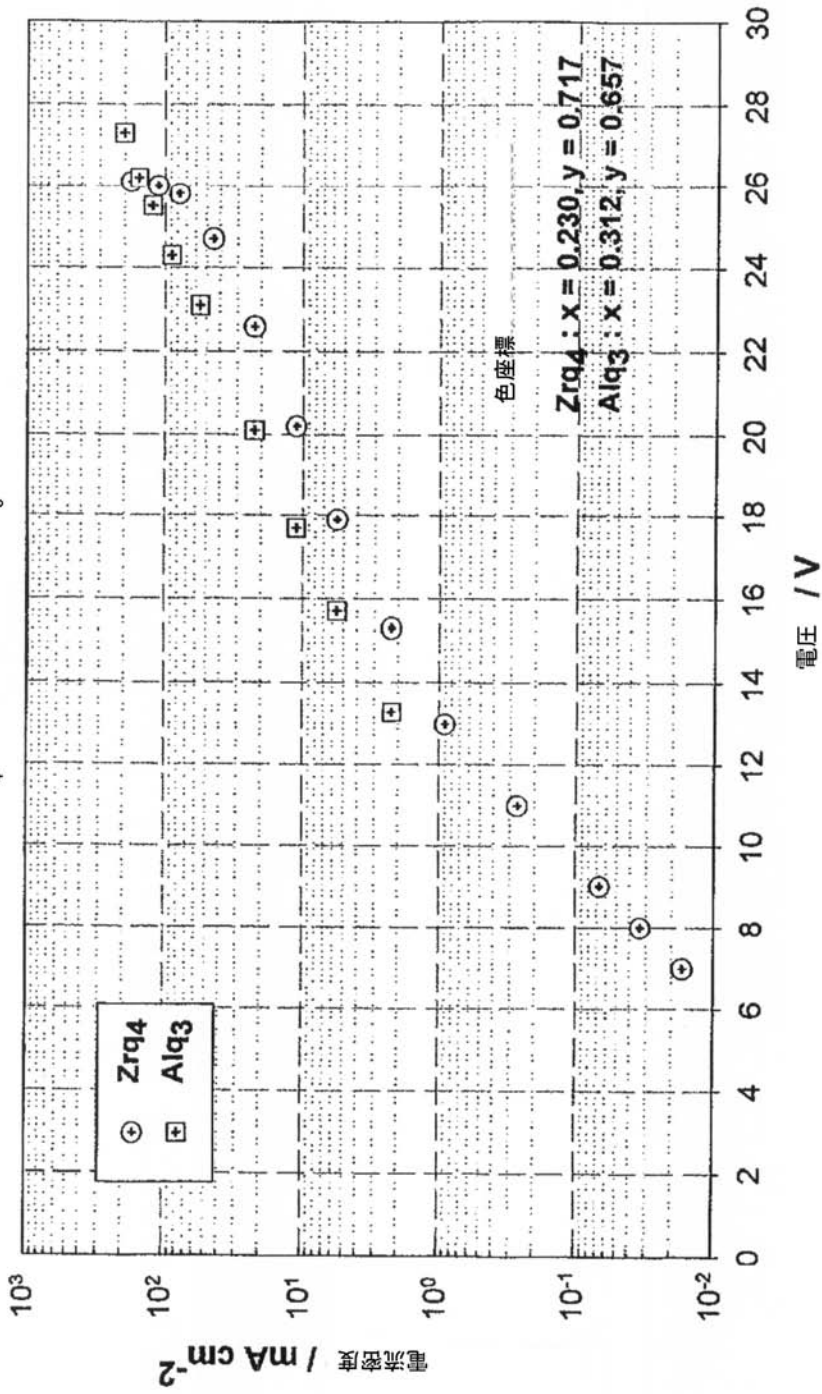
ドーブしたZrq₄デバイスとドーブしたAlq₃デバイスとの比較



ITO/CuPc (50 nm)/α-NPB (75 nm)/Alq₃ : DPQA (75 : 0.75 nm)/Alq₃ (10 nm)/LiF (0.4 nm)/A
 ITO/CuPc (50 nm)/α-NPB (75 nm)/Zrq₄ : DPQA (60 : 0.5 nm)/Zrq₄ (10 nm)/LiF (0.4 nm)/A

【 図 4 0 】

ドーピングしたZr_{q4}デバイスとドーピングしたAlq₃デバイスとの比較

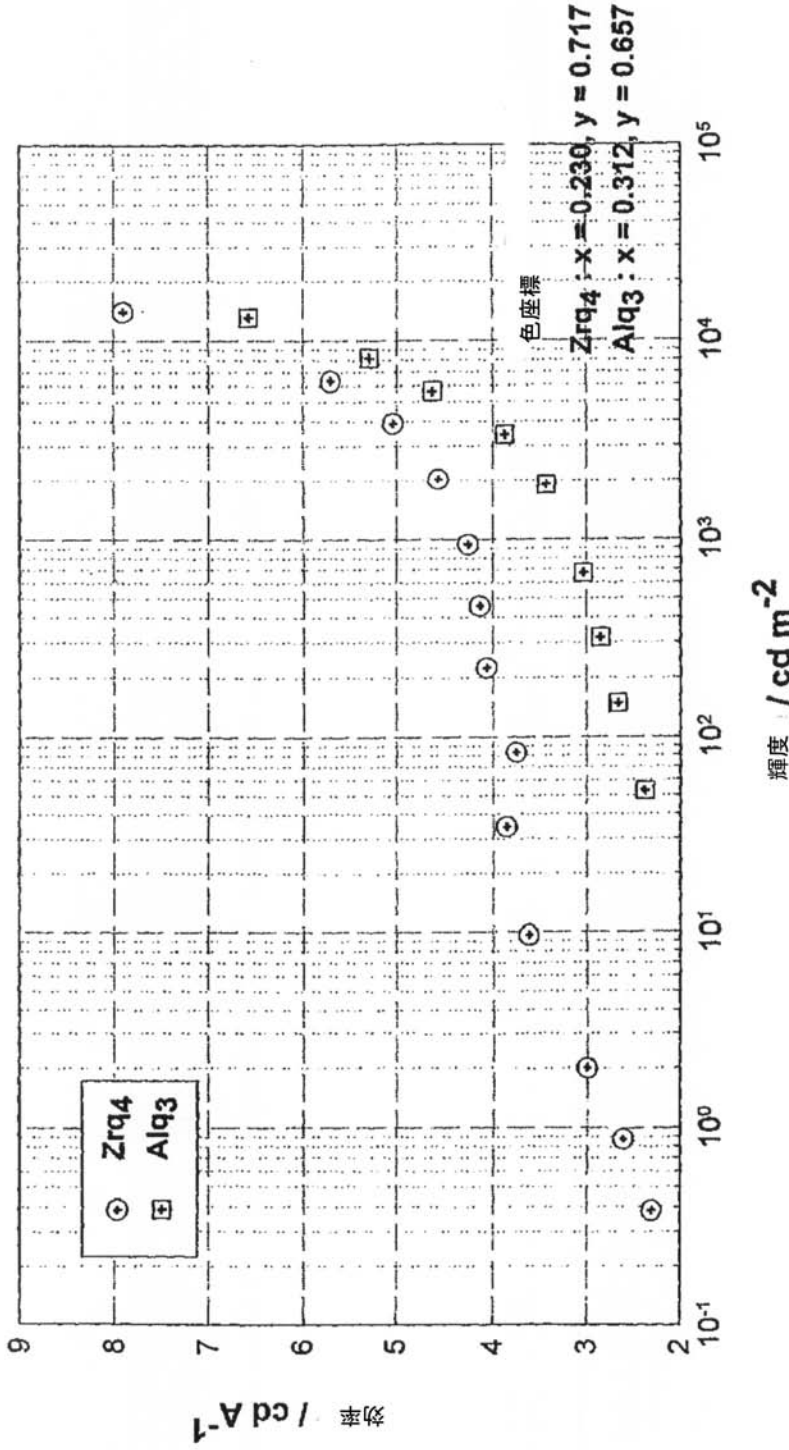


ITO/CuPc (50 nm)/α-NPB (75 nm)/Alq₃ : DPQA (75 : 0.75 nm)/Alq₃ (10 nm)/LiF (0.4 nm)/Al

ITO/CuPc (50 nm)/α-NPB (75 nm)/Zr_{q4} : DPQA (60 : 0.5 nm)/Zr_{q4} (10 nm)/LiF (0.4 nm)/Al

【 図 4 1 】

ドーピングしたZr_{q4} デバイスとドーピングしたAlq₃ デバイスとの比較

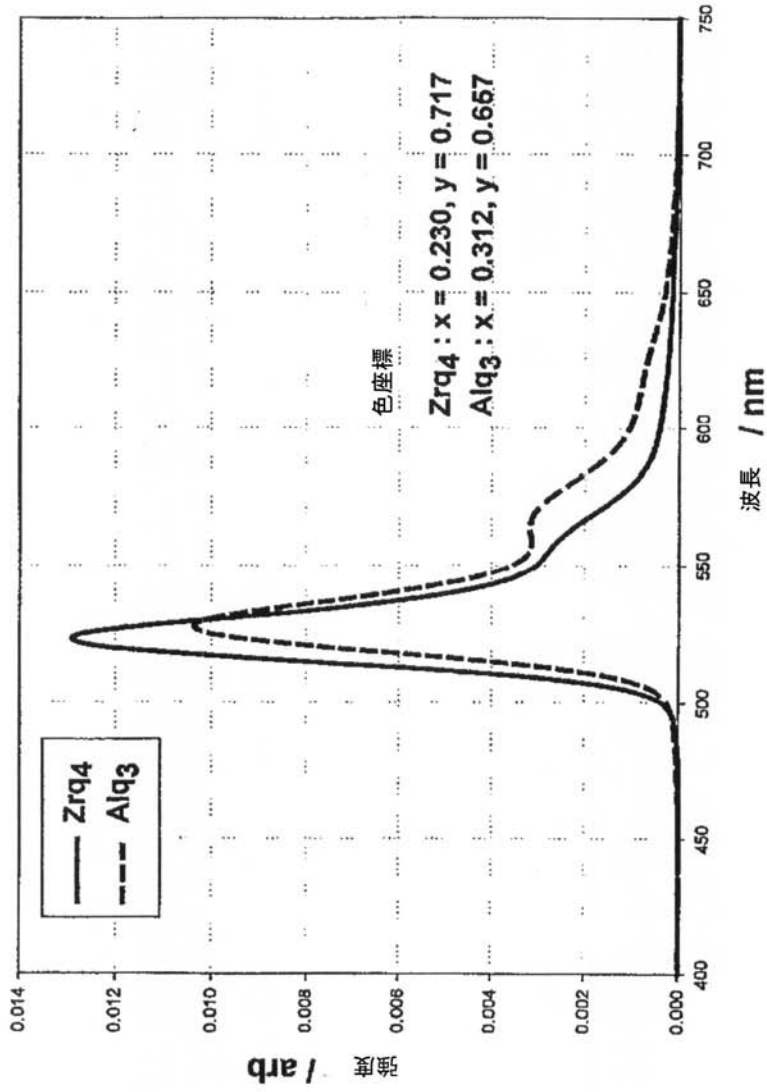


ITO/CuPc (50 nm)/α-NPB (75 nm)/Alq₃ : DPQA (75 : 0.75 nm)/Alq₃ (10 nm)/LiF (0.4 nm)/Al

ITO/CuPc (50 nm)/α-NPB (75 nm)/Zr_{q4} : DPQA (60 : 0.5 nm)/Zr_{q4} (10 nm)/LiF (0.4 nm)/Al

【 図 4 2 】

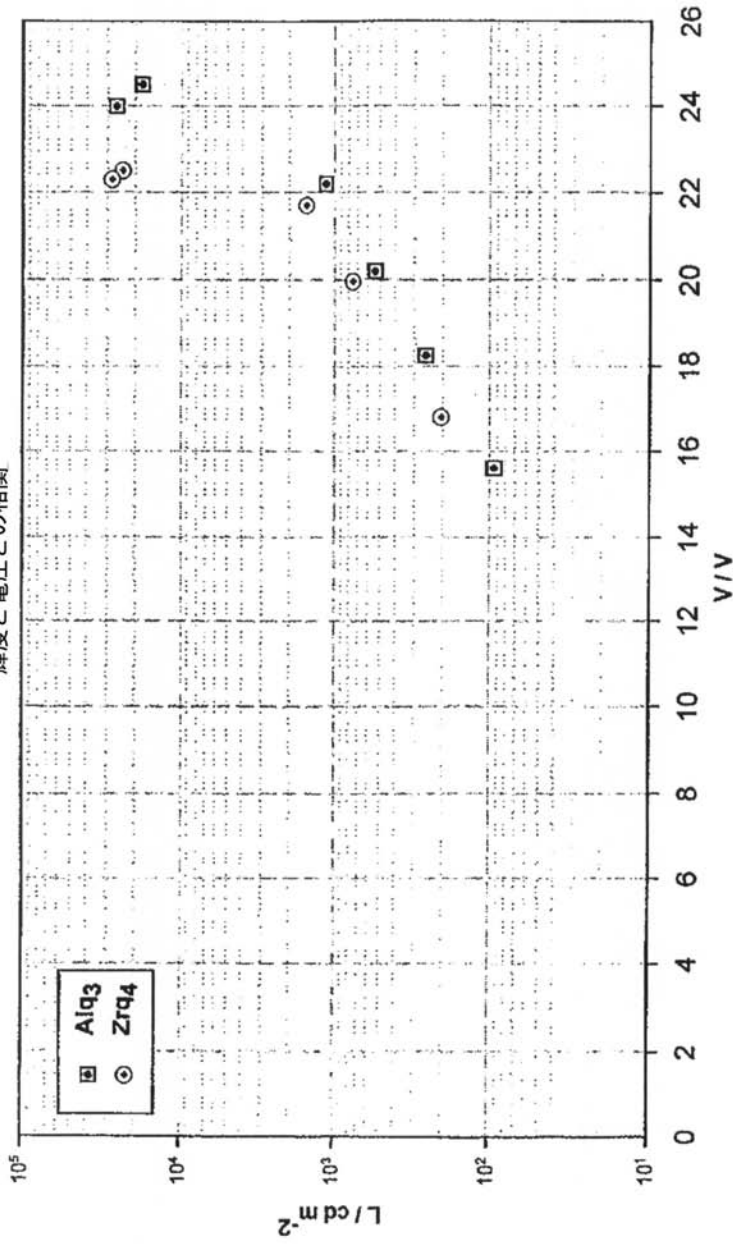
ドーブしたZrq₄ デバイスとドーブしたAlq₃ デバイスとの比較



ITO/CuPc (50 nm)/ α -NPB (75 nm)/Alq₃ : DPQA (75 : 0.75 nm)/Alq₃ (10 nm)/LiF (0.4 nm)/Al
 ITO/CuPc (50 nm)/ α -NPB (75 nm)/Zrq₄ : DPQA (60 : 0.5 nm)/Zrq₄ (10 nm)/LiF (0.4 nm)/Al

【 図 4 3 】

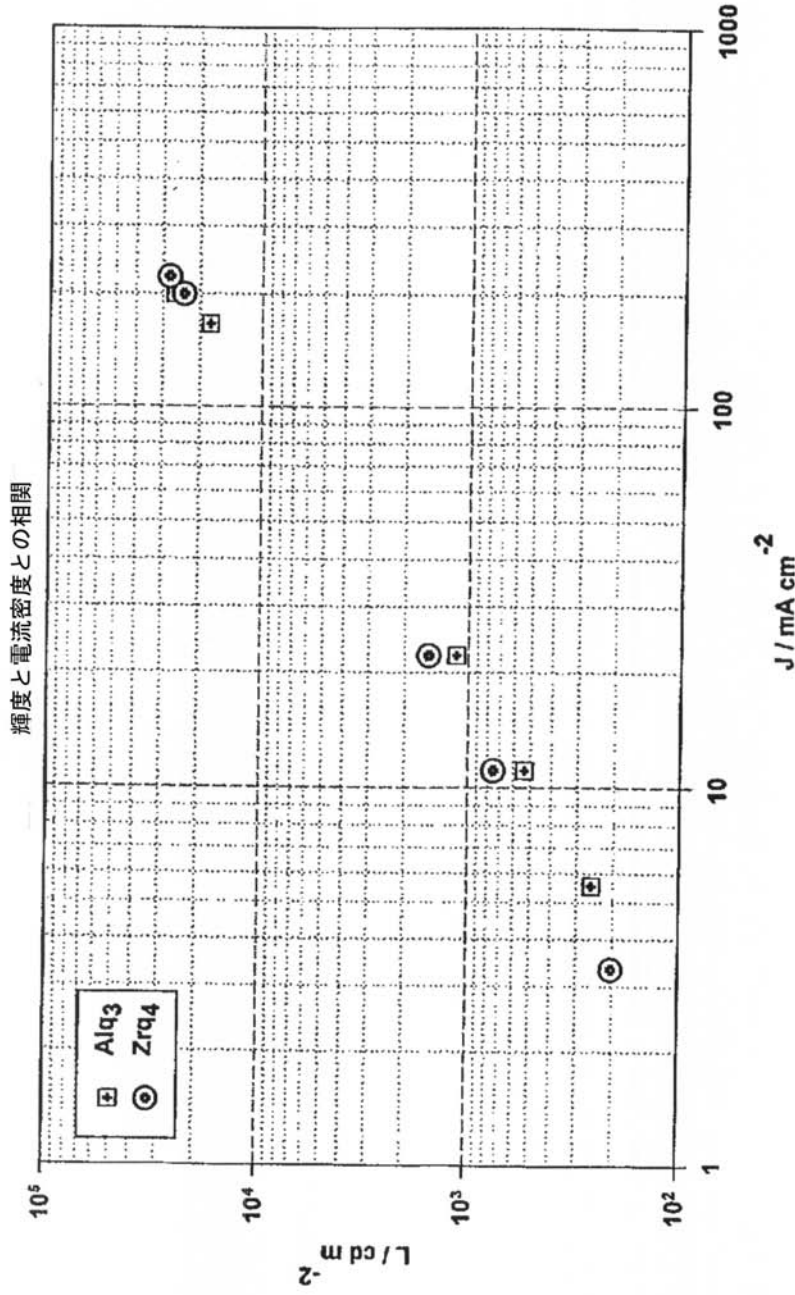
ドーブしたしたAlq₃ デバイスとドーブしたZrq₄ デバイスとの比較
輝度と電圧との相関



ITO/CuPc (50 nm)/α-NPB (75 nm)/Alq₃:DPQA (75:0.75 nm)/Alq₃ (10 nm)/LiF (0.2 nm)/Al
 ITO/CuPc:TPTP (15:15 nm)/α-NPB (75 nm)/Zrq₄:DPQA (60:0.5 nm)/LiF (0.2 nm)/Al

【 図 4 4 】

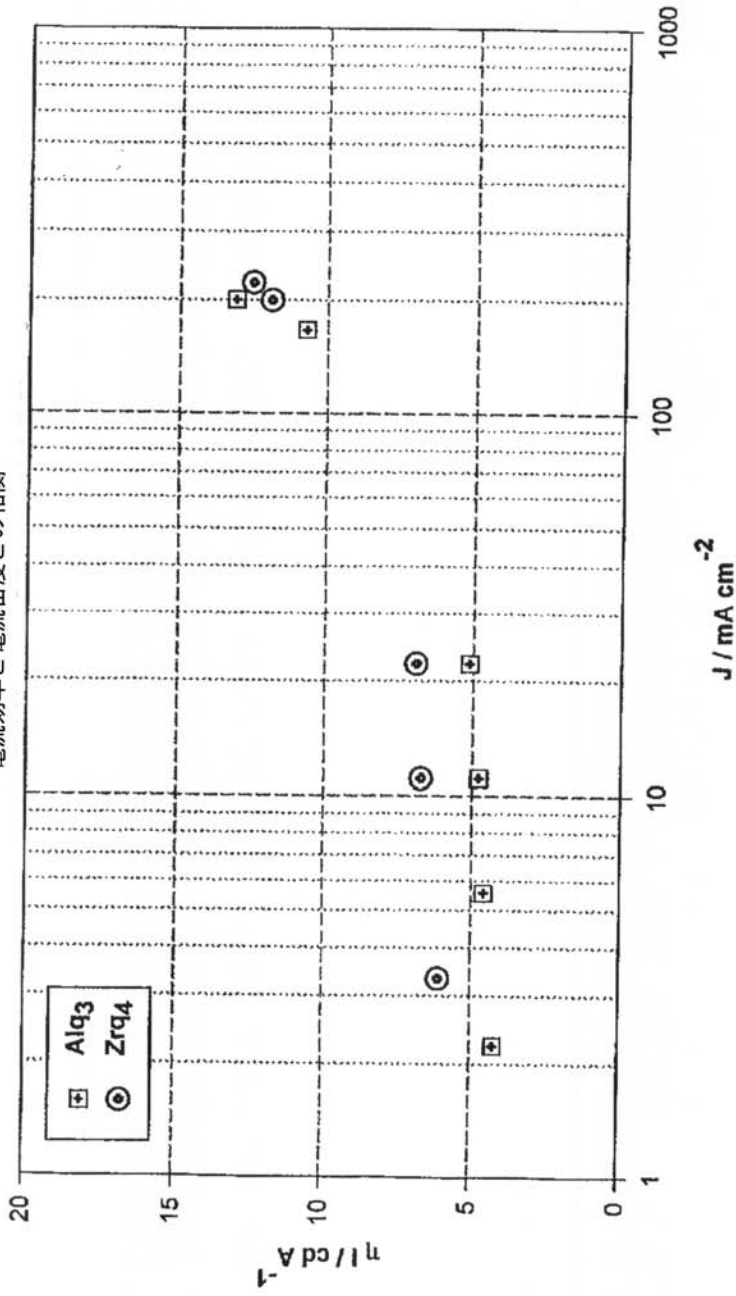
ドーブしたAlq₃デバイスとドーブしたZrq₄デバイスとの比較



ITO/CuPc (50 nm)/α-NPB (75 nm)/Alq₃:DPQA (75:0.75 nm)/Alq₃ (10 nm)/LiF (0.2 nm)/Al
 ITO/CuPc:TPTP (15:1.5 nm)/α-NPB (75 nm)/Zrq₄:DPQA (60:0.5 nm)/LiF (0.2 nm)/Al

【 図 4 5 】

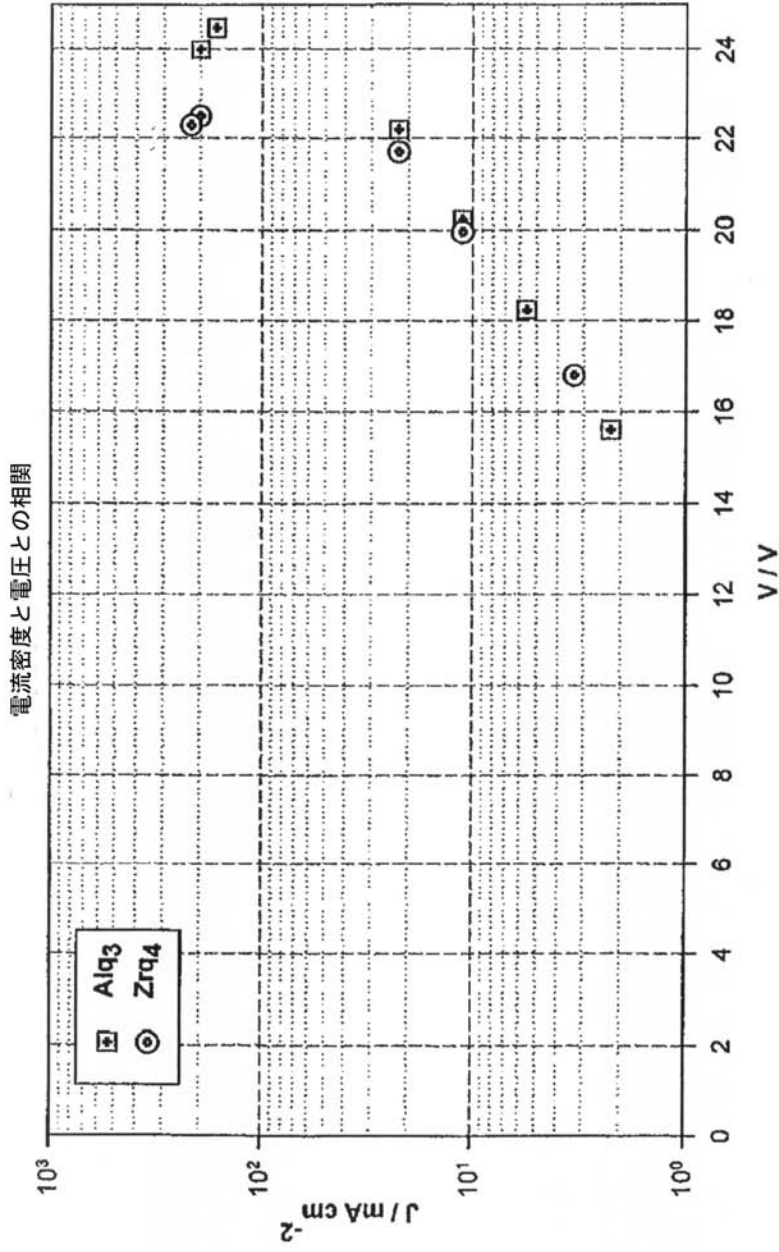
ドーブしたAlq₃ デバイスとドーブしたZrq₄ デバイスとの比較
電流効率と電流密度との相関



ITO/CuPc (50 nm)/α-NPB (75 nm)/Alq₃:DPQA (75:0.75 nm)/Alq₃ (10 nm)/LiF (0.2 nm)/Al
 ITO/CuPc:TPTP (15:15 nm)/α-NPB (75 nm)/Zrq₄:DPQA (60:0.5 nm)/LiF (0.2 nm)/Al

【 図 4 6 】

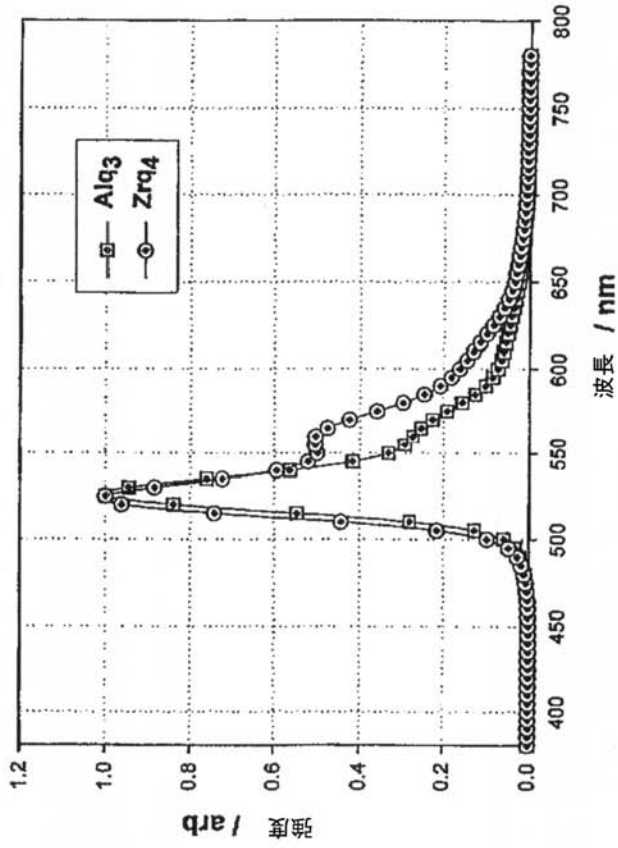
ドーブしたAlq₃ デバイスとドーブしたZrq₄ デバイスとの比較



ITO/CuPc (50 nm)/α-NPB (75 nm)/Alq₃:DPQA (75:0.75 nm)/Alq₃ (10 nm)/LiF (0.2 nm)/Al
 ITO/CuPc:TPTP (15:15 nm)/α-NPB (75 nm)/Zrq₄:DPQA (60:0.5 nm)/LiF (0.2 nm)/Al

【 図 4 7 】

ドーブしたAlq₃ デバイスとドーブしたZrq₄ デバイスとの比較



ITO/CuPc (50 nm)/ α -NPB (75 nm)/Alq₃:DPQA (75:0.75 nm)/Alq₃ (10 nm)/LiF (0.2 nm)/Al
ITO/CuPc:TPTP (15:15 nm)/ α -NPB (75 nm)/Zrq₄:DPQA (60:0.5 nm)/LiF (0.2 nm)/Al

【 図 4 8 】

Y

0.900

0.800

0.700

0.600

0.500

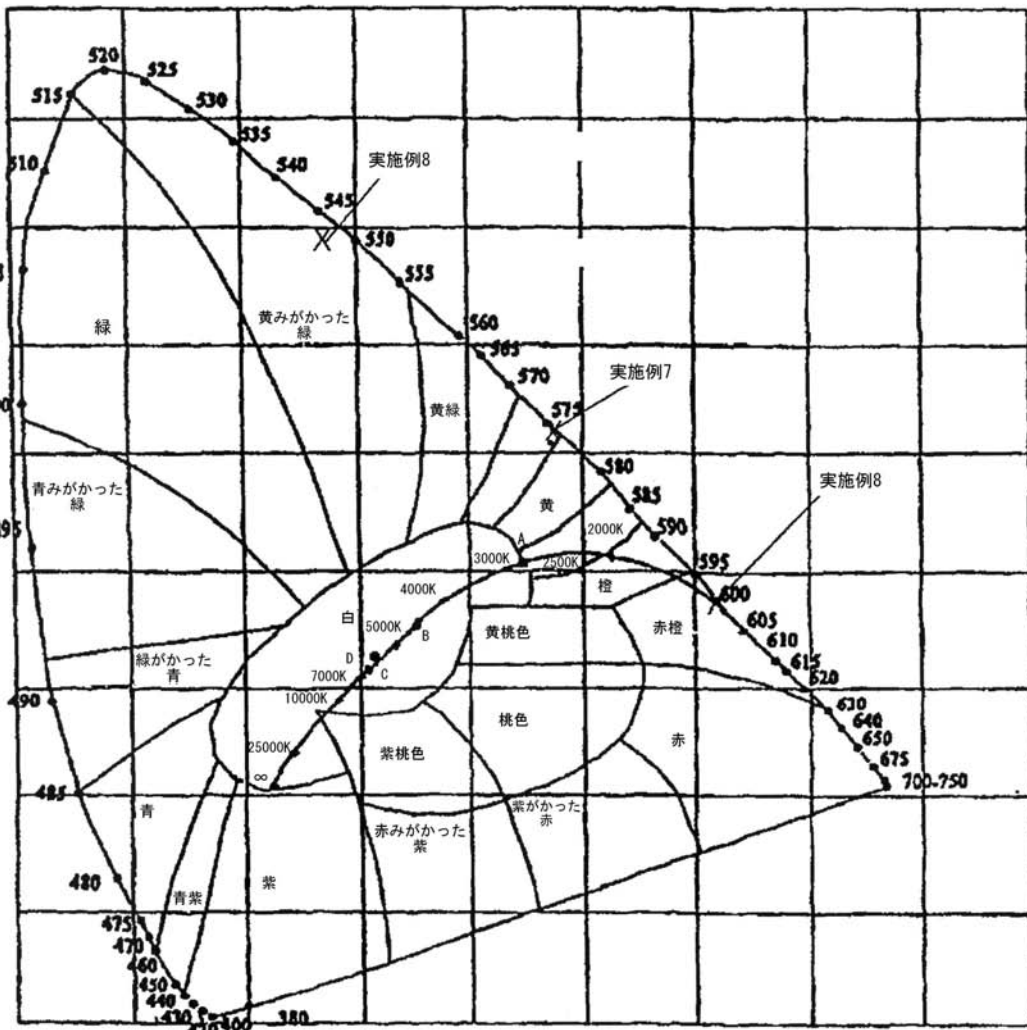
0.400

0.300

0.200

0.100

0



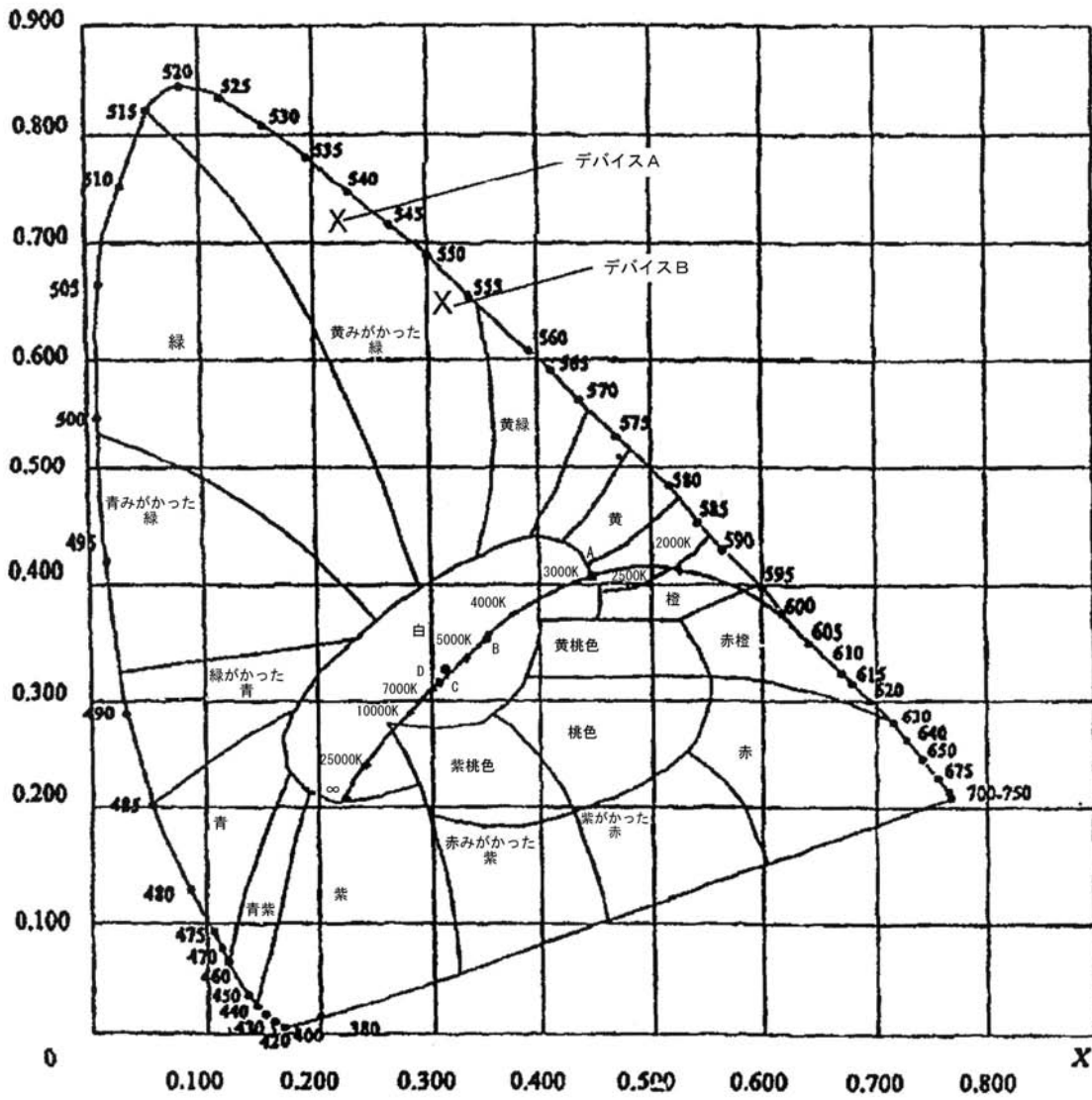
0

0.100 0.200 0.300 0.400 0.500 0.600 0.700 0.800 X

知覚色の近似位置を示すCIE1931x,y表色ダイアグラム

【 図 4 9 】

Y



知覚色の近似位置を示すCIE1931x,y表色ダイヤグラム

【 国際調査報告 】

| INTERNATIONAL SEARCH REPORT | | International Application No. PCT/GB 03/05573 |
|---|--|---|
| A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 C09K11/06 H05B33/14 H01L51/20 H01L51/30 | | |
| According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC | | |
| B. FIELDS SEARCHED | | |
| Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 7 C09K H05B H01L | | |
| Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched | | |
| Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) EPO-Internal, CHEM ABS Data | | |
| C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT | | |
| Category * | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
| X | WO 99/53724 A (THE UNIVERSITY OF SOUTHERN CALIFORNIA, USA;THE TRUSTEES OF PRINCETON U) 21 October 1999 (1999-10-21) * Experiments, page 27 through page 44, claims * | 1-36 |
| X | DATABASE CA *Online! CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO, US; SUZUKI, MUTSUOKO ET AL: "Organic electroluminescent devices" XP002277664 retrieved from STN Database accession no. 134:245058 * abstract, structural formula 16 * -/-- | 1-36 |
| <input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C. <input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex. | | |
| * Special categories of cited documents: | | |
| *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance *E* earlier document but published on or after the international filing date *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed | | *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. *&* document member of the same patent family |
| Date of the actual completion of the international search 23 April 2004 | | Date of mailing of the international search report 12/05/2004 |
| Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.O. 5618 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016 | | Authorized officer Nemes, C |

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (January 2004)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

 International Application No
 PCT/GB 03/05573

| C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT | | |
|--|---|-----------------------|
| Category * | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
| X | -& JP 2001 076879 A (MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD., JAPAN) 23 March 2001 (2001-03-23) * page 3, formula (I), page 4, table, entries 3,4 * ----- DATABASE CA 'Online! CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO, US; KIM, YOUNG KYU ET AL: "Organometallic light-emitting substances, their manufacture, and organic electroluminescent devices using them" XP002277665 retrieved from STN Database accession no. 132:187445 * abstract, structural formulae 14 and 15 * * -& JP 2000 053957 A (ADVANCED TECHNICAL RESEARCH INSTITUTE, S. KOREA) 22 February 2000 (2000-02-22) * page 4, formula 13, page 7, formula (5) * * ----- | 1-36 |
| X | DATABASE CA 'Online! CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO, US; UEDA, HIDEAKI ET AL: "Organic electroluminescent device" XP002277666 retrieved from STN Database accession no. 132:129805 * abstract, structural formulae 17-21 * -& JP 2000 030864 A (MINOLTA CAMERA CO., LTD., JAPAN) 28 January 2000 (2000-01-28) * page 5, compounds 1-9 * ----- | 1-36 |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

| |
|--|
| International application No. PCT/GB 03/05573 |
|--|

Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)

This International Search Report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

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

2. Claims Nos.:
because they relate to parts of the International Application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful International Search can be carried out, specifically:
see FURTHER INFORMATION sheet PCT/ISA/210

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

Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)

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

1. As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this International Search Report covers all searchable claims.

2. As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.

3. As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this International Search Report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

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

Remark on Protest

- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
- No protest accompanied the payment of additional search fees.

International Application No. PCT/ GB 03 /05573

FURTHER INFORMATION CONTINUED FROM PCT/ISA/ 210

Continuation of Box I.2

Claims Nos.: -

The initial phase of the search revealed a very large number of documents relevant to the issue of novelty. So many documents were retrieved that it is impossible to determine which parts of the claims may be said to define subject-matter for which protection might legitimately be sought (Article 6 PCT). For these reasons, a meaningful search over the whole breadth of the claims is impossible. Consequently, the search has been restricted to the compound of claim 10 combined with the use in an electroluminescent device, an electroluminescent composition comprising said compound in a device and an electroluminescent device comprising said compound.

The applicant's attention is drawn to the fact that claims relating to inventions in respect of which no international search report has been established need not be the subject of an international preliminary examination (Rule 66.1(e) PCT). The applicant is advised that the EPO policy when acting as an International Preliminary Examining Authority is normally not to carry out a preliminary examination on matter which has not been searched. This is the case irrespective of whether or not the claims are amended following receipt of the search report or during any Chapter II procedure. If the application proceeds into the regional phase before the EPO, the applicant is reminded that a search may be carried out during examination before the EPO (see EPO Guideline C-VI, 8.5), should the problems which led to the Article 17(2) declaration be overcome.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/GB 03/05573

| Patent document cited in search report | | Publication date | Patent family member(s) | Publication date |
|--|------------|------------------|-------------------------|------------------|
| WO 9953724 | A | 21-10-1999 | US 6287712 B1 | 11-09-2001 |
| | | | US 6210814 B1 | 03-04-2001 |
| | | | US 6312836 B1 | 06-11-2001 |
| | | | AU 3486199 A | 01-11-1999 |
| | | | WO 9953724 A1 | 21-10-1999 |
| JP 2001076879 | A | 23-03-2001 | NONE | |
| JP 2000053957 | A | 22-02-2000 | JP 3302945 B2 | 15-07-2002 |
| | | | JP 2001302646 A | 31-10-2001 |
| | | | JP 2001288463 A | 16-10-2001 |
| | | | JP 2001288464 A | 16-10-2001 |
| | | | KR 2000006345 A | 25-01-2000 |
| | | | US 2002045063 A1 | 18-04-2002 |
| | | | US 2002045064 A1 | 18-04-2002 |
| | | | US 2002045065 A1 | 18-04-2002 |
| US 2003165711 A1 | 04-09-2003 | | | |
| JP 2000030864 | A | 28-01-2000 | NONE | |

フロントページの続き

| (51) Int.Cl. | F I | テーマコード(参考) |
|--------------|---------------|------------|
| | C 0 9 K 11/06 | 6 4 5 |
| | C 0 9 K 11/06 | 6 5 0 |
| | C 0 9 K 11/06 | 6 9 0 |
| | H 0 5 B 33/14 | B |
| | H 0 5 B 33/22 | B |
| | H 0 5 B 33/22 | D |
| | H 0 5 B 33/26 | Z |
| | H 0 5 B 33/28 | |
| | C 0 7 F 7/00 | A |

(81) 指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), EP(AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW

- (72) 発明者 プライス, リチャード
イギリス国, ロンドン N 8 0 J B, ラレイ ロード 5, ガーデン フラット
- (72) 発明者 ガネシャムルガン, サブラマニアム
イギリス国, ロンドン N 1 5 4 B B, アンティル ロード 1 3 5
- (72) 発明者 パラマスワラ, グナナモリー
イギリス国, ロンドン N 2 0 8 E B, トッテリッジ, サウスウェイ 1 9
- (72) 発明者 クマラヴェール, ムットリンガム
イギリス国, ミドルセックス U B 6 7 A H, グリーンフォード, フレイザー ロード 9
- (72) 発明者 パーシーパン, アルムガム
イギリス国, サリー C R 4 1 A G, ミッチャム, エルダーツリー ウェイ 2 6
- (72) 発明者 セルヴァランジャン, セルヴァデュライ
イギリス国, サリー S M 3 8 E T, サットン, マルデン ロード 2 8 5 A
- (72) 発明者 アンティパン - ララ, ジュアン
イギリス国, ロンドン N 1 6 7 S B, ジェナー ロード 2 9
- (72) 発明者 スレンドラクマル, ジヴァグナナスンドラム
イギリス国, ミドルセックス H A 8 6 D L, エッジウェア, ノルトン プレイス 1 6
- F ターム(参考) 3K007 AB03 AB04 AB18 CA01 CB00 CB01 DB03 FA01
4H049 VN06 VP01 VQ20 VQ60 VU24

| | | | |
|----------------|--|---------|------------|
| 专利名称(译) | <无法获取翻译> | | |
| 公开(公告)号 | JP2006512436A5 | 公开(公告)日 | 2007-06-07 |
| 申请号 | JP2004563347 | 申请日 | 2003-12-19 |
| [标]申请(专利权)人(译) | 埃兰茶业有限公司 | | |
| 申请(专利权)人(译) | 埃兰 - 茶业有限公司 | | |
| [标]发明人 | カサーガマナザンプーパティ プライスリチャード ガネシャムルガンサブ라마ニウム パラマスワラグナナモリー クマラヴェールムットリンガム パーシーパンアルムガム セルヴァランジャンセルヴァデュライ アンティパンララジュアン スレンドラクマルジヴァグナナスンドラム | | |
| 发明人 | カサーガマナザン,プーパティ プライス,リチャード ガネシャムルガン,サブ라마ニウム パラマスワラ,グナナモリー クマラヴェール,ムットリンガム パーシーパン,アルムガム セルヴァランジャン,セルヴァデュライ アンティパン-ララ,ジュアン スレンドラクマル,ジヴァグナナスンドラム | | |
| IPC分类号 | C09K11/06 H01L51/50 H05B33/26 H05B33/28 C07F7/00 | | |
| CPC分类号 | H01L51/0077 C09K11/06 C09K2211/183 H01L51/0035 H01L51/005 H01L51/0051 H01L51/0053 H01L51/0059 H01L51/0062 H01L51/007 H01L51/0078 H01L51/0081 H01L51/5012 H05B33/14 | | |
| FI分类号 | C09K11/06.660 C09K11/06.610 C09K11/06.620 C09K11/06.635 C09K11/06.640 C09K11/06.645 C09K11/06.650 C09K11/06.690 H05B33/14.B H05B33/22.B H05B33/22.D H05B33/26.Z H05B33/28 C07F7/00.A | | |
| F-TERM分类号 | 3K007/AB03 3K007/AB04 3K007/AB18 3K007/CA01 3K007/CB00 3K007/CB01 3K007/DB03 3K007 /FA01 4H049/VN06 4H049/VP01 4H049/VQ20 4H049/VQ60 4H049/VU24 | | |
| 优先权 | 2002030072 2002-12-24 GB | | |
| 其他公开文献 | JP4663325B2 JP2006512436A | | |

摘要(译)

电致发光物质是有机金属配合物，金属是钛，锆，钪，钒，铌或钽。

