

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5564164号
(P5564164)

(45) 発行日 平成26年7月30日 (2014. 7. 30)

(24) 登録日 平成26年6月20日 (2014. 6. 20)

(51) Int. Cl.

F I

C09K 11/06 (2006.01)
C07F 15/00 (2006.01)
H01L 51/50 (2006.01)

C09K 11/06 660
C09K 11/06 690
C07F 15/00 E
H05B 33/14 B
H05B 33/22 B

請求項の数 6 (全 52 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2007-555686 (P2007-555686)
(86) (22) 出願日 平成18年2月9日 (2006. 2. 9)
(65) 公表番号 特表2008-530332 (P2008-530332A)
(43) 公表日 平成20年8月7日 (2008. 8. 7)
(86) 国際出願番号 PCT/GB2006/000441
(87) 国際公開番号 W02006/087521
(87) 国際公開日 平成18年8月24日 (2006. 8. 24)
審査請求日 平成21年2月6日 (2009. 2. 6)
審判番号 不服2013-7525 (P2013-7525/J1)
審判請求日 平成25年4月24日 (2013. 4. 24)
(31) 優先権主張番号 0503393.1
(32) 優先日 平成17年2月18日 (2005. 2. 18)
(33) 優先権主張国 英国 (GB)

(73) 特許権者 591032596
メルク パテント ゲゼルシャフト ミット
ベシュレンクテル ハフツング
Merck Patent Gesell
schaft mit beschrae
nkter Haftung
ドイツ連邦共和国 デー-64293 ダ
ルムシュタット フランクフルター シュ
トラーセ 250
Frankfurter Str. 25
0, D-64293 Darmstadt
, Federal Republic o
f Germany
(74) 代理人 100074099
弁理士 大菅 義之

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 エレクトロルミネセンス物質およびデバイス

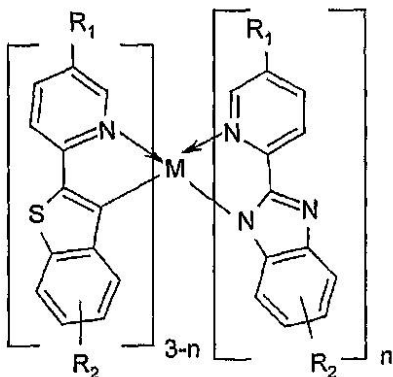
(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

リチウムキノラートと、

以下に示す構造のエレクトロルミネセンス有機金属錯体

【化 1】



ここで、Mはイリジウムであり、

nは1もしくは2であり、

R₁およびR₂は、同じ基であっても異なる基であってもよく、水素、脂肪族基、ヒド

ロカルビル基、単環もしくは多環の複素環基、フルオロカルビル基、ハロゲン、ならびに、チオフェニル基から選択される、

を含むことを特徴とする、エレクトロルミネセンス組成物。

【請求項 2】

前記エレクトロルミネセンス有機金属錯体のHOMO-LUMOギャップが、前記金属キノラートのHOMO-LUMOギャップの範囲内であることを特徴とする、請求項 1 に記載のエレクトロルミネセンス組成物。

【請求項 3】

前記金属キノラートは、n-ブチルリチウムと8-ヒドロキシキノリンのアセトニトリル溶媒中での反応で生成されたりチウムキノラートであることを特徴とする、請求項 1 または 2 に記載のエレクトロルミネセンス組成物。

10

【請求項 4】

(i) 第 1 電極、

(ii) 請求項 1 ~ 3 のいずれかに記載のエレクトロルミネセンス組成物の層、および、

(iii) 第 2 電極

を含むことを特徴とする、エレクトロルミネセンスデバイス。

【請求項 5】

(a) 前記第 1 電極と前記エレクトロルミネセンス組成物の層の間に、-NBP、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、ポリチオフェン、およびポリシランから選択されたポリマーの膜、または、ポリ芳香族アミンを含む正孔輸送物質の層があり、

20

(b) 前記第 2 電極と前記エレクトロルミネセンス組成物の層の間に、アルミニウムキノラート、ジルコニウムキノラート、リチウムキノラート、 $M_x(DBM)_n$ の構造の物質、または、シアノアントラセンを含む電子輸送物質の層があり、

ここでMxは金属で、DBMはジベンゾイルメタンであり、nはMxの価数である、

ことを特徴とする請求項 4 に記載のエレクトロルミネセンスデバイス。

【請求項 6】

前記第 1 電極は透明電気伝導ガラス電極であり、

前記第 2 電極が、アルミニウム、バリウム、希土類金属、遷移金属、カルシウム、リチウム、マグネシウム、および、それらの合金、ならびに銀/マグネシウム合金、から選択されるか、

30

前記第 2 電極が金属フッ化物の層をその表面に有する金属で、前記金属フッ化物がフッ化リチウム、もしくは希土類のフッ化物から選択されたもの

であることを特徴とする請求項 4 または 5 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】

【技術分野】

【0001】

本発明は、エレクトロルミネセンス物質(electroluminescent material)と、エレクトロルミネセンスデバイスに関する。

【背景技術】

40

【0002】

電流を通したときに発光する物質は、よく知られており、ディスプレイ用途に広く用いられている。無機半導体系(inorganic semiconductor systems)に基づいたデバイスが広く用いられている。しかしながら、これらはエネルギー消費が高いこと、生産コストが高いこと、量子効率が低いこと、および、フラットパネルディスプレイを生産することができないこと、という欠点を持っている。有機ポリマーは、エレクトロルミネセンスデバイスに用いるのに有用であるとして提案されているが、純色を得ることができず、生産コストが高い上に効率が比較的低い。提案されている他のエレクトロルミネセンス化合物には、アルミニウムキノラート(aluminium quinolate)があるが、色の範囲を得るために使用するにはドーパント(dopant)が必要である上、比較的効率が低い。

50

【 0 0 0 3 】

特許出願「W098/58037」には、改善された特質を有し、より優れた実験結果を与えるエレクトロルミネセンスデバイスに使用することが可能な、一連の遷移金属錯体およびランタニド錯体が記載されている。特許出願「PCT/GB98/01773」、「PCT/GB99/03619」、「PCT/GB99/04030」、「PCT/GB99/04024」、「PCT/GB99/04028」および「PCT/GB00/00268」には、希土類キレートを用いたエレクトロルミネセンス錯体、構造、およびデバイスが記載されている。「US Patent 5128587」には、仕事関数が高い透明電極と仕事関数が低い第二電極との間に挟まれたランタニド系列の希土類元素の有機金属錯体、エレクトロルミネセンス層と透明高仕事関数電極 (transparent high work function electrode) との間に入れられた正孔伝導層 (hole conducting layer)、およびエレクトロルミネセンス層と低仕事関数電子注入アノード (electron injecting low work function anode) との間に入れられた電子伝導層 (electron conducting layer) とから成る、エレクトロルミネセンスデバイスが開示されている。正孔伝導層と電子伝導層はデバイスの仕事と効率を向上させるために必要である。正孔輸送層 (hole transporting layer) は、正孔を輸送して電子を遮断する役割を果たす。その結果、電子が正孔と再結合 (recombining) しないで電極中に移動するのを防ぐ。このキャリアーの再結合は主に発光層 (emitter layer) で起こる。

10

【 0 0 0 4 】

エレクトロルミネセンス有機金属錯体の性能を向上させるために、エレクトロルミネセンス有機金属錯体をホスト物質 (host material) と混合することが可能である。そこで、我々は金属キノラートをホスト物質として用いて改良したエレクトロルミネセンス物質を考案した。

20

【 0 0 0 5 】

本発明によれば、置換もしくは非置換の金属キノラート、ならびに、エレクトロルミネセンス有機金属錯体混合物で構成される、改良したエレクトロルミネセンス構成物 (electroluminescent composition) が提供される。

【 0 0 0 6 】

本発明は、(i) 第一電極、(ii) 置換もしくは非置換の金属キノラートとエレクトロルミネセンス有機金属錯体との混合物を含むエレクトロルミネセンス構成物の層、および、(iii) 第二電極を含むエレクトロルミネセンスデバイスも提供する

30

【 0 0 0 7 】

金属キノラートを形成する金属は、ナトリウム、カリウム、ルビジウム、セシウム (caesium)、ベリリウム、マグネシウム、カルシウム、ストロンチウム、バリウム、銅(I)、銅(II)、銀、金、亜鉛、カドミウム、ホウ素、アルミニウム、ガリウム、インジウム、ゲルマニウム、スズ(II)、スズ(IV)、アンチモン(III)、アンチモン(IV)、鉛(II)、鉛(IV)、および、異なる価数を有する遷移金属の第1族、第2族、第3族の金属、(例えば、マンガン、鉄、ルテニウム、オスミウム、コバルト、ニッケル、パラジウム(II)、パラジウム(IV)、白金(II)、白金(IV)、カドミウム、クロム、チタン、バナジウム、ジルコニウム、タンタル、ニオブモリブデン (niobium molybdenum)、ロジウム、イリジウム、チタン、ニオブ、スカンジウム、イットリウム) から選択することができ、好ましい金属は、リチウム、アルミニウム、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り、リチウムキノラートがもっとも好ましい金属である。

40

【 0 0 0 8 】

何種類かの金属キノラートはエレクトロルミネセンス物質であり、特にリチウムキノラートは既知のエレクトロルミネセンス物質である。また、WO 00/32717は、n-ブチルリチウムと8-ヒドロキシキノリンのアセトニトリル溶媒中での反応で生成されたリチウムキノラート (青色領域のスペクトルの光を発する) を開示している。

【 0 0 0 9 】

提供されるエレクトロルミネセンス有機金属錯体の発光バンドギャップは金属キノラートホスト物質の励起一重項の発光バンドギャップよりも大きい。また、エレクトロルミネ

50

センス有機金属錯体の発光バンドギャップが、金属キノレートホスト物質の励起一重項の範囲内であると、金属キノレートはエレクトロルミネセンス有機金属錯体混合物とリチウムキノレートの混合物の発光の色に寄与しない。

【 0 0 1 0 】

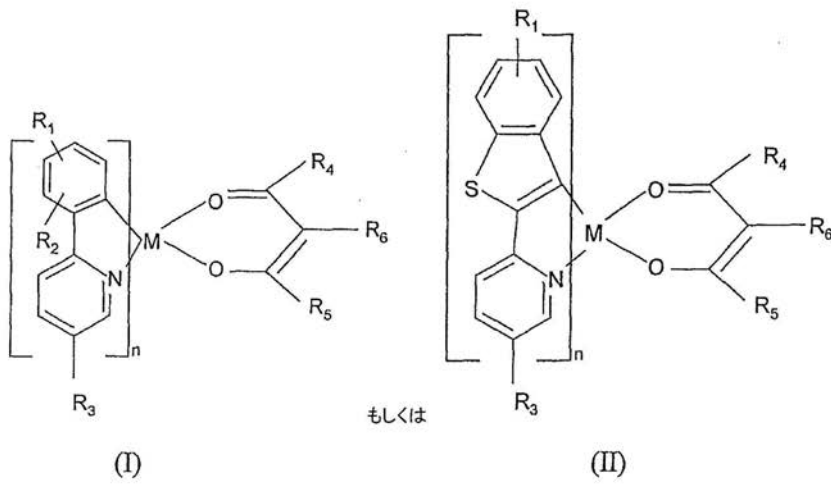
好ましくは、有機金属錯体のHOMO-LUMOギャップは、金属キノレートのHOMO-LUMOギャップの範囲内にある。

【 0 0 1 1 】

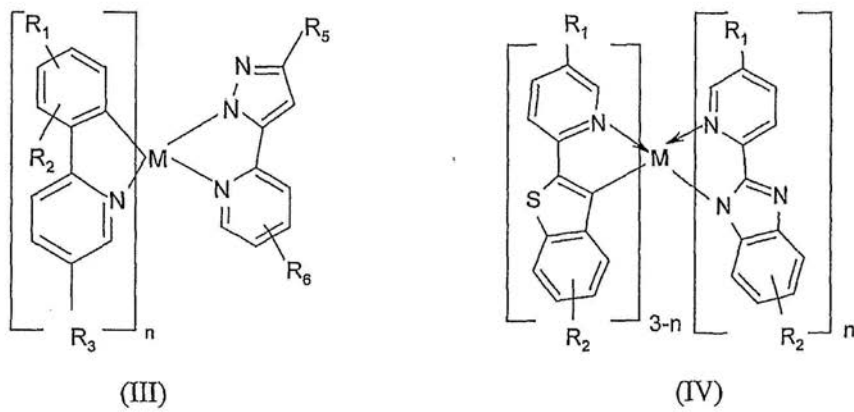
好ましい有機金属錯体の一例としては、ルテニウム錯体、ロジウム錯体、パラジウム錯体、オスmium錯体、イリジウム錯体、もしくは、白金イリジウム錯体 (platinum iridium complexes) があり、特にイリジウム錯体が好ましい。

【 0 0 1 2 】

【化7】

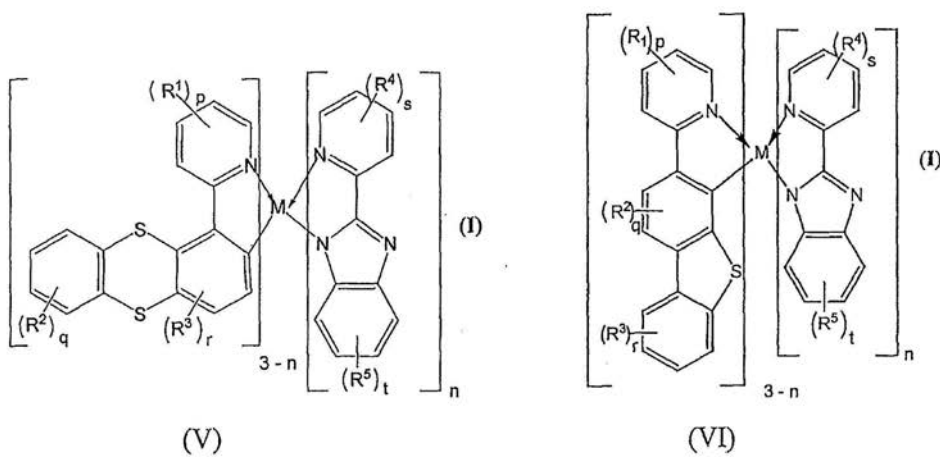


10



20

30



40

【0013】

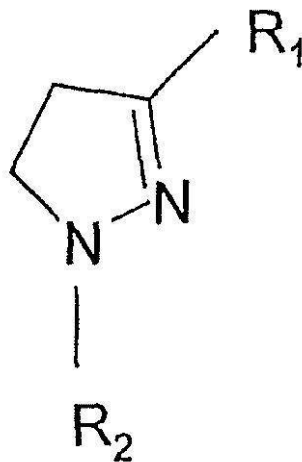
ここで、Mはルテニウム、ロジウム、パラジウム、オスミウム、イリジウム、もしくは、白金であり、nは1もしくは2であり、R¹~R⁵は、同じ基であっても異なる基であってもよく、置換および非置換のヒドロカルビル基、置換および非置換の単環もしくは多環の複素環基、置換および非置換のヒドロカルビルオキシ (hydrocarbyloxy) 基またはカルボキシ

50

基、フルオロカルビル (fluorocarbyl) 基、ハロゲン、ニトリル、ニトロ基、アミノ基、アルキルアミノ基、ジアルキルアミノ基、アリールアミノ基、ジアリールアミノ基、N-アルキルアミド基、N-アリールアミド基、スルホニル基、ならびに、チオフェニル基から選択され、 R^2 および R^3 は、さらにアルキルシリル基またはアリールシリル基である可能性があり、 p 、 s および t は独立に、0、1、2もしくは3であり、 p 、 s および t のいずれかが2もしくは3であるという条件の下で、それらのうちの1つだけが飽和ヒドロカルビル基、もしくは、ハロゲン以外であってもよく、 q および r は独立して0、1、もしくは2で、 q もしくは r が2であるという条件の下で、それらの1つだけが飽和ヒドロカルビル基、もしくは、ハロゲン以外であってもよく、またここで、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 および R_6 は、同じ基であっても異なる基であってもよく、水素、ならびに、置換および非置換の脂肪族基、置換および非置換の芳香族、複素環および多環の環状構造を有する基のような置換および非置換のヒドロカルビル基、トリフルオリルメチル基 (trifluoryl methyl groups) のようなフルオロカーボン基、フッ素のようなハロゲン、もしくは、チオフェニル基から選択され、また、 R_1 、 R_2 および R_3 は、置換または非置換の縮合した芳香族、複素環および多環の環状構造を形成してもよく、モノマー (例えば、スチレン) と共重合をすることができ、さらに、ここで R_4 および R_5 は、同じ基であっても異なる基であってもよく、水素、ならびに、置換および非置換の脂肪族基、置換および非置換の芳香族、複素環および多環の環状構造を有する基のような置換および非置換のヒドロカルビル基、トリフルオリルメチル基のようなフルオロカーボン基、フッ素のようなハロゲン、もしくは、チオフェニル基、から選択されてもよく、また、 R_1 、 R_2 および R_3 は、置換または非置換の縮合した芳香族、複素環および多環の環状構造を形成してもよく、モノマーと共重合をすることもでき、あるいは、 R_5 および R_6 は以下の基を構成する可能性もある。

【0014】

【化8】



【0015】

Mは、ルテニウム、ロジウム、パラジウム、オスミウム、イリジウム、もしくは、白金であり、 $n+2$ はMの価数である。好ましくは、Mはイリジウムである。

【0016】

10

20

30

40

50

その他の好ましい有機金属錯体は、 $M(L)_n$ および $MO(L)_{n-2}$ の構造であって、ここで、Mはn価の金属であり（nは3より大きな数）、Lは有機配位子であり、Lは同じであっても良いし、例えば $M(L_1)(L_2)(L_3)(L_4)\dots$ 、もしくは、 $MO(L_1)(L_2)\dots$ のように、異なるものであっても良い。

【0017】

好ましくは、金属Mが4価のチタン、ジルコニウム、もしくはハフニウム、または、5価のバナジウム、ニオブ、もしくはタンタル等の遷移金属であり、特に金属Mはジルコニウムキノラートである。

【0018】

この参照により本開示に含まれる特許出願「WO 2004/058913」には本発明に用いることができる、ドーパされたジルコニウムキノラート類が開示されている。

10

【0019】

好ましくは、エレクトロルミネセンス化合物に、少量のドーパントとしての蛍光物質がドーパされており、このドーパントの量は好ましくはドーパされた混合物の重さの5%~15%である。

【0020】

この参照により本開示に含まれる「US4769292」で論じているように、蛍光物質が存在すると広い範囲から発光波長を選択することができる。

【0021】

有用な蛍光物質は有機金属錯体と混ぜて、本発明に係るELデバイスのルミネセンス領域（the luminescent zones）を構成する前述の厚みの範囲を満たす薄膜中に配合することができる物質である。結晶有機金属錯体（crystalline organo metallic complexes）が薄膜形成（thin film formation）に有用なものでなくても、有機金属錯体中に制限された量の蛍光物質を存在させて、単独では薄膜形成できない蛍光物質を使用することができる。好ましい蛍光物質は、有機金属錯体と共通相（common phase）を形成する化合物である。色素は有機金属錯体中に分子レベルで分散させやすいので、蛍光色素は好ましい種類の蛍光物質を構成する。有機金属錯体中に蛍光色素を分散させる任意の便利な技術を用いることができるが、好ましい蛍光色素は、その有機金属錯体物質とともに真空蒸着することができるものである。前述の想定したその他の判断基準を満たすならば、蛍光レーザー色素（fluorescent laser dyes）は本発明に係る有機ELデバイスに用いるのに特に有用な

20

30

【0022】

有用な蛍光物質は「US4769292」で開示されている。

【0023】

有機金属錯体は、ドーパントと混合でき、ドーパントと共蒸着（co-deposited）（好ましくは、ドーパントおよび有機金属錯体を溶媒に溶解させて混合溶液をスピンコーティングすることによって）させることができる。

【0024】

本発明のエレクトロルミネセンス物質として用いることができる他のエレクトロルミネセンス化合物は、一般構造式 $(L)_nM$ で表される。ここで、Mは希土類、ランタニドもしくはアクチニドであり、Lは有機錯体、nはMの価数（valence state）である。

40

【0025】

本発明で用いることができる、さらなる有機エレクトロルミネセンス化合物は、以下の構造式のものである。

【0026】

【化9】



10

【0027】

ここで、L とL_pは有機配位子であり、Mは希土類、遷移金属、ランタニドもしくはアクチニドであり、nは金属Mの価数である。配位子L は同じであっても、異なってもよく、同じもしくは異なっている複数の配位子L_pがあってもよい。

【0028】

例えば、(L₁)(L₂)(L₃)(L . . .)M(L_p)は、Mが希土類金属、遷移金属、ランタニドもしくはアクチニドで、(L₁)(L₂)(L₃)(L . . .)が同じもしくは違う有機錯体であって、(L_p)は中性配位子である。その配位子(L₁)(L₂)(L₃)(L . . .)の総電荷は金属Mの価数に等しい。3価のMに対応する3つの基L の場合は、錯体が構造式(L₁)(L₂)(L₃)M(L_p)であり、その異なる基(L₁)(L₂)(L₃)は同じであっても異なってもよい。

20

【0029】

L_pは単座配位子、二座配位子、もしくは、多座配位子であり、1つもしくは複数の配位子L_pがある可能性がある。

【0030】

好ましくは、Mは、不完全な内殻を有する金属イオンであり、好ましいとされる金属は、Sm(III)、Eu(II)、Eu(III)、Tb(III)、Dy(III)、Yb(III)、Lu(III)、Gd(III)、Gd(III)、U(III)、Tm(III)、Ce(III)、Pr(III)、Nd(III)、Pm(III)、Dy(III)、Ho(III)、Er(III)、Yb(III)そして、さらに好ましくは、Eu(III)、Tb(III)、Dy(III)、Gd(III)、Er(III)、Yt(III)から選択される。

30

【0031】

さらに、本発明で用いられる可能性がある有機エレクトロルミネセンス化合物は、一般構造式(L)_nM₁M₂であり、ここでM₁は上述のMと同様であり、M₂は非希土類金属であり、L は上述と同様であり、そしてnはM₁とM₂を組み合わせた価数(combined valence state)である。また、錯体は1つもしくは複数の中性配位子L_pを含むことで、錯体は一般構造式(L)_nM₁M₂(L_p)となる可能性があり、ここでL_pは上述と同様である。金属M₂は、希土類金属、遷移金属、ランタニドもしくはアクチニドではない任意の金属である。用いられる金属の例としては、リチウム、ナトリウム、カリウム、ルビジウム、セシウム、ベリリウム、マグネシウム、カルシウム、ストロンチウム、バリウム、銅(I)、銅(II)、銀、金、亜鉛、カドミウム、ホウ素、アルミニウム、ガリウム、インジウム、ゲルマニウム、スズ(II)、スズ(IV)、アンチモン(III)、アンチモン(IV)、鉛(II)、鉛(IV)、および、異なる価数を有する遷移金属の第1族、第2族、第3族の金属(例えば、マンガン、鉄、ルテニウム、オスミウム、コバルト、ニッケル、パラジウム(II)、パラジウム(IV)、白金(II)、白金(IV)、カドミウム、クロム、チタン、バナジウム、ジルコニウム、タンタル、モリブデン、ロジウム、イリジウム、チタン、ニオブ、スカンジウム、イットリウム)を含む。

40

50

【 0 0 3 2 】

例えば、 $(L_1)(L_2)(L_3)(L \dots)M(Lp)$ は、 M が希土類金属、遷移金属、ランタノイドもしくはアクチノイドで、 $(L_1)(L_2)(L_3)(L \dots)$ と (Lp) が同じもしくは違う有機錯体である。

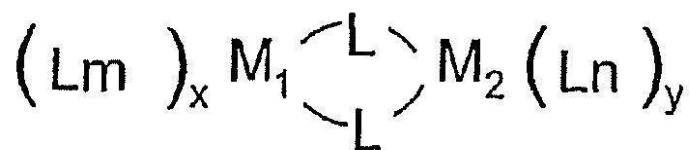
【 0 0 3 3 】

さらに、本発明で用いることができる有機金属錯体は、2核、3核、多核の有機金属錯体である。例えば、 $(Lm)_x M_1 M_2 (Ln)_y$ の構造式の、例えば、以下のものである。

【 0 0 3 4 】

【 化 1 0 】

10



【 0 0 3 5 】

ここで L は、架橋している配位子であり、 M_1 は希土類金属であり、 M_2 は M_1 もしくは非希土類金属であり、 Lm および Ln は上述で定義したような同じもしくは異なる有機配位子 L であり、 x は M_1 の価数であり、そして y は M_2 の価数である。

20

【 0 0 3 6 】

これらの錯体において、金属 - 金属結合があってもよく、もしくは、 M_1 と M_2 との間で1つもしくは複数の架橋する配位子を有してもよく、そして、 Lm と Ln の基が同じであっても、異なってもよい。

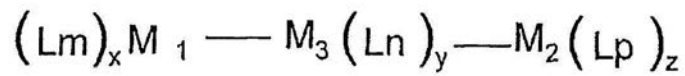
【 0 0 3 7 】

3核とは、金属 - 金属結合によって結合されている3つの希土類金属があることを意味する。すなわち、以下の構造式のものである。

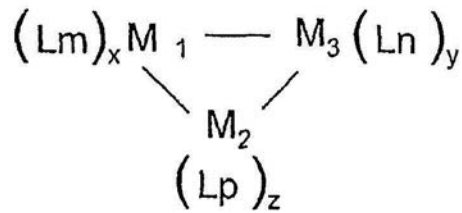
30

【 0 0 3 8 】

【化 1 1】



もしくは



10

20

【0039】

ここで、 M_1 、 M_2 、および M_3 は、同じもしくは異なる希土類金属であり、 Lm 、 Ln および Lp は有機配位子 L であり、 x は M_1 の価数であり、 y は M_2 の価数であり、 z は M_3 の価数である。 Lp は、 Lm および Ln と同じであってもよいし、異なってもよい。

【0040】

希土類金属および非希土類金属は、金属-金属結合によって、および/もしくは、中間で架橋する原子、配位子、もしくは分子基(molecular group)を介することによって、ともに結合することができる。

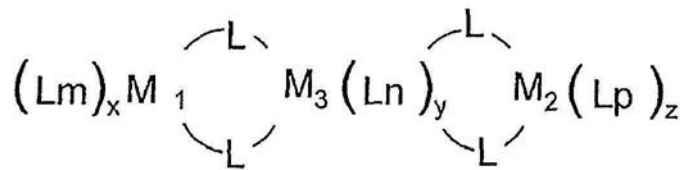
【0041】

例えば、金属は架橋する配位子によって結合されてもよい。例えば、以下のものである

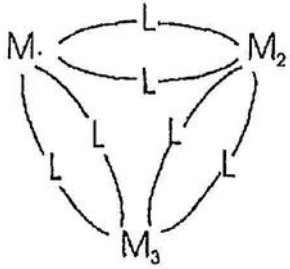
30

【0042】

【化12】



もしくは



10

20

【0043】

ここで、Lは架橋する配位子である。

【0044】

多核とは、金属 - 金属結合によって、および/もしくは、中間で配位子を介することによって、結合された金属が3つ以上あることを意味している。

【0045】

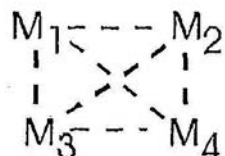
【化13】



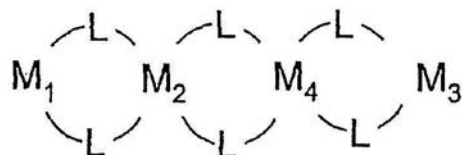
もしくは



または



もしくは



10

20

【0046】

ここで、 M_1 、 M_2 、 M_3 、および M_4 は、希土類金属であり、 L は架橋する配位子である。

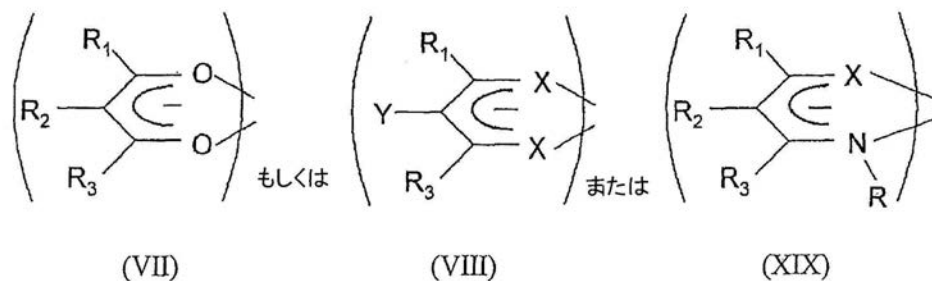
【0047】

好ましくは、 L は以下の構造式のような ジケトンから選択される。

30

【0048】

【化14】



40

【0049】

ここで、 R_1 、 R_2 、ならびに R_3 は、同じであっても異なっても良く、水素、ならびに、置換および非置換の脂肪族基、置換および非置換の芳香族基、複素環および多環の環状構造をした基のような置換および非置換のヒドロカルビル基 (hydrocarbonyl group)、トリ

50

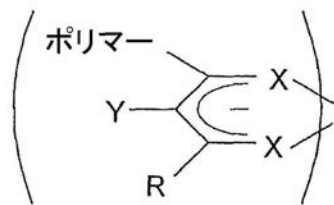
フルオリルメチル基のようなフルオロカーボン、フッ素のようなハロゲン、または、チオフェニル基から選択される。また、 R_1 、 R_2 、ならびに R_3 は、置換および非置換の縮合した芳香族、複素環および多環の環状構造を形成することができ、モノマー（例えばスチレン）と共重合できる。Xは、Se、S、もしくは、Oであり、Yは、水素、置換もしくは非置換の芳香族、複素環および多環などの環状構造をした基などの、置換もしくは非置換のヒドロカルビル基、フッ素、トリフルオリルメチル基のようなフルオロカーボン、フッ素のようなハロゲン、もしくは、チオフェニル基、または、ニトリルである。

【0050】

ジケトンは、ポリマーで置換したジケトンとすることができ、ポリマー、オリゴマー、もしくはデンドリマーで置換されたジケトンの置換基は、直接、ジケトンに結合するか、または、1つもしくは複数の $-CH_2$ 基、すなわち、

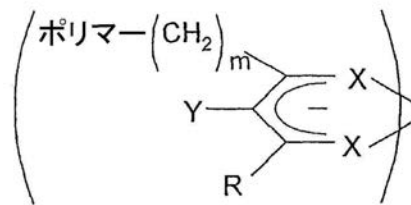
【0051】

【化15】



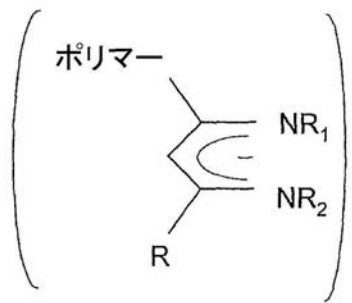
(X)

もしくは



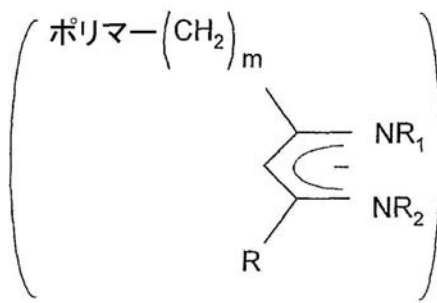
(XI)

または



(XII)

もしくは



(XIII)

【0052】

もしくは、フェニル基を介して、例えば以下の構造のように、結合することができる。

【0053】

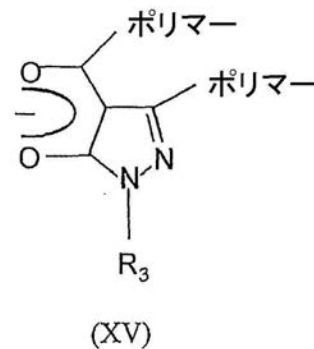
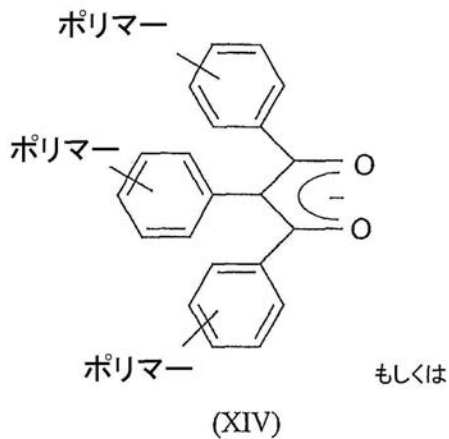
10

20

30

40

【化16】



10

【0054】

ここで、「ポリマー」とは、ポリマー、オリゴマーもしくはデンドリマー（1つもしくは2つの置換されたフェニル基、さらには、(IIIc)で示されるような3つの置換されたフェニル基を有する）とすることができる。さらにここでRは水素、置換および非置換の脂肪族基、置換および非置換の芳香族、複素環および多環の環状構造をした基のような置換および非置換のヒドロカルビル基、トリフルオリルメチル基のようなフルオロカーボン、フッ素のようなハロゲン基、もしくは、チオフェニル基から選択される。

20

【0055】

R₁および/もしくはR₂および/もしくはR₃の例として、脂肪族、芳香族および複素環のアルコキシ基、アリアルコキシ基およびカルボキシ基、置換および置換のフェニル基、フルオロフェニル基、ビフェニル基、フェナントレン (phenanthrene)、アントラセン (anthracene)、ナフチル基、および、フルオレン基、t-ブチル基のようなアルキル基、カルバゾールのような複素環基を含む。

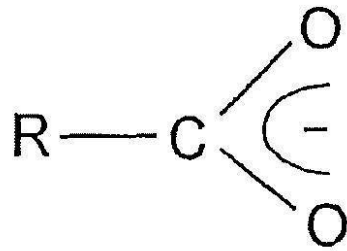
30

【0056】

また、様々なL₁基のいくつかは、カルボキシラート基 (carboxylate groups) のような同じであっても異なっても良い荷電をした基であってもよく、その結果、L₁基は上述で定義されたような基である可能性があり、L₂基、L₃...基は、以下のような荷電された基であってもよい。

【0057】

【化17】



(XVI)

10

【0058】

ここで、Rは上述で定義されたような R_1 であるか、もしくは、 L_1 基、 L_2 基が上述で定義されたような基であり、そして、 $L_3 \dots$ 基などが他の荷電された基である。

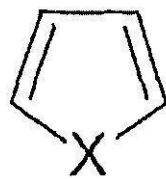
20

【0059】

また、 R_1 、 R_2 、 R_3 は、以下のものである可能性もある。

【0060】

【化18】



(XVII)

30

ここでXは、O、S、SeもしくはNHである。

【0061】

好ましい R_1 部分は、トリフルオロメチル(CF_3)であり、ジケトン等の例としては、ベ

40

50

ンゾイルトリフルオロアセトン(banzoyltrifluoroacetone)、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-naphthoyltrifluoroacetone)、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-フェナトイルトリフルオロアセトン(2-phenathoyltrifluoroacetone)、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-anthroyltrifluoroacetone)、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)がある。

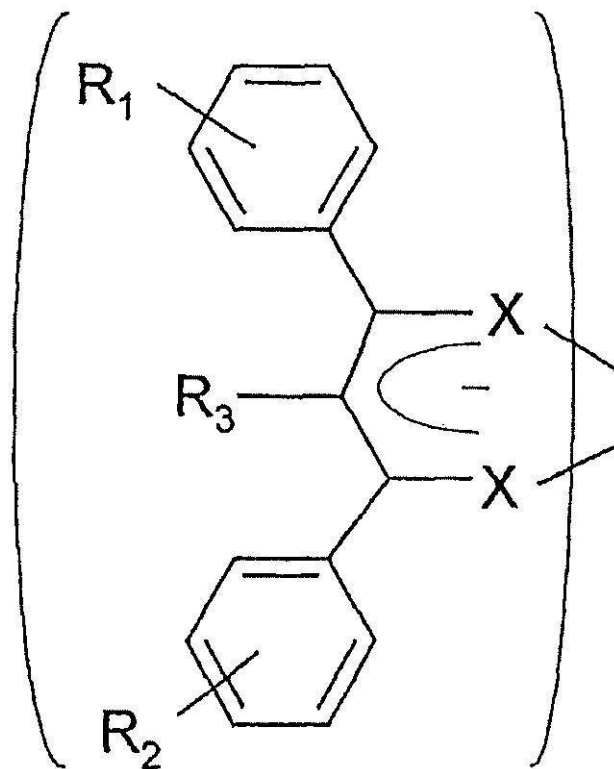
10

【 0 0 6 2 】

様々なL 基は、下記の構造式の同じ配位子であっても異なる配位子であってもよい。

【 0 0 6 3 】

【 化 1 9 】



20

30

40

(XVIII)

【 0 0 6 4 】

ここで、XはO、S、もしくは、Seであり、R₁、R₂、およびR₃は上述と同様である。

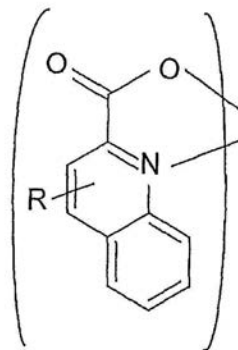
【 0 0 6 5 】

50

様々なL 基は、以下のようなキノラト誘導体 (quinolate derivatives) で、同じであつても異なつていてもよい。

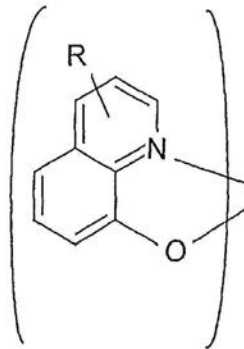
【0066】

【化20】



(XIX)

もしくは



(XX)

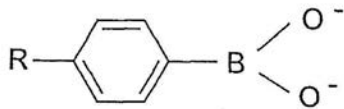
10

【0067】

ここで、Rは脂肪族、芳香族、もしくは、複素環であるヒドロカルビル基、カルボキシ基、アリールオキシ基、ヒドロキシ基、あるいは、アルコキシ基であり、例えば、8-ヒドロキシキノラト誘導体もしくは、以下の構造のものである。

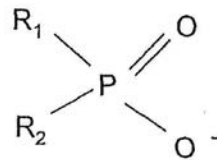
【0068】

【化21】



(XXI)

もしくは



(XXII)

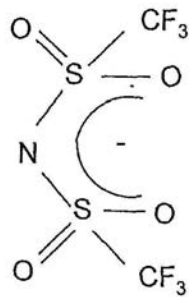
30

【0069】

ここで、R、R₁、およびR₂は上述と同様であるか、もしくは、HまたはFである。例えば、R₁とR₂は、アルキル基もしくはアルコキシ基である。

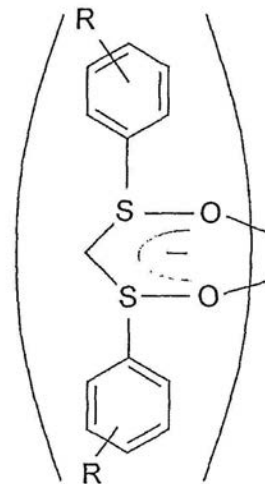
【0070】

【化22】



(XXIII)

もしくは



(XXIV)

10

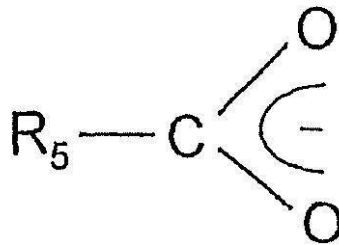
【0071】

上で述べたような様々なL 基は、同じカルボキシレート基であっても、異なるカルボキシレート基であってもよく、例えば、以下の構造のものである。

【0072】

【化23】

20



(XXV)

30

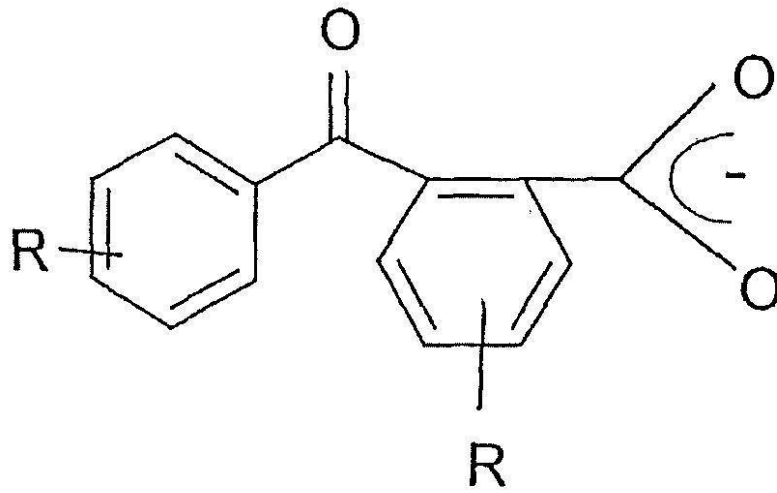
【0073】

ここで、R₅は、置換もしくは非置換の芳香族、多環もしくは複素環、ポリピリジル基であり、また、R₅を2-エチルヘキシル基とすることでL_nは2-エチルヘキサン酸イオン(2-ethyl hexanoate)とすることができ、または、R₅をイス型構造とすることでL_nは2-アセチルシクロヘキサン酸イオン(2-acetyl cyclohexanoate)とすることができ、あるいは、L は、以下の構造とすることができる。

【0074】

40

【化 2 4】



(XXVI)

10

20

【 0 0 7 5 】

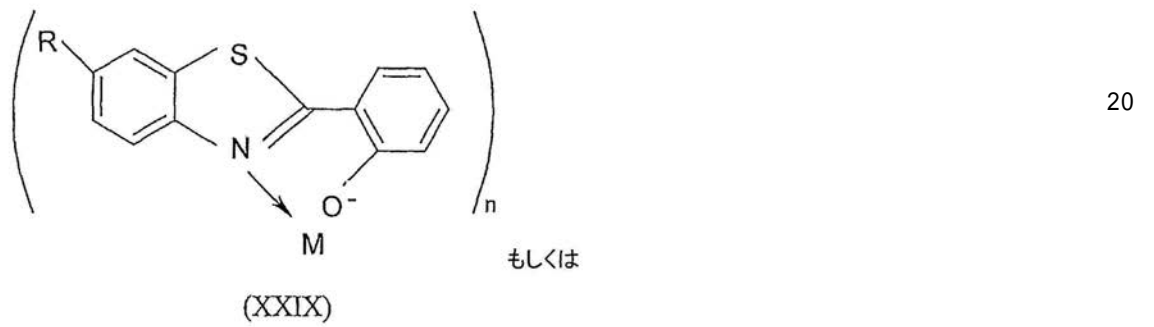
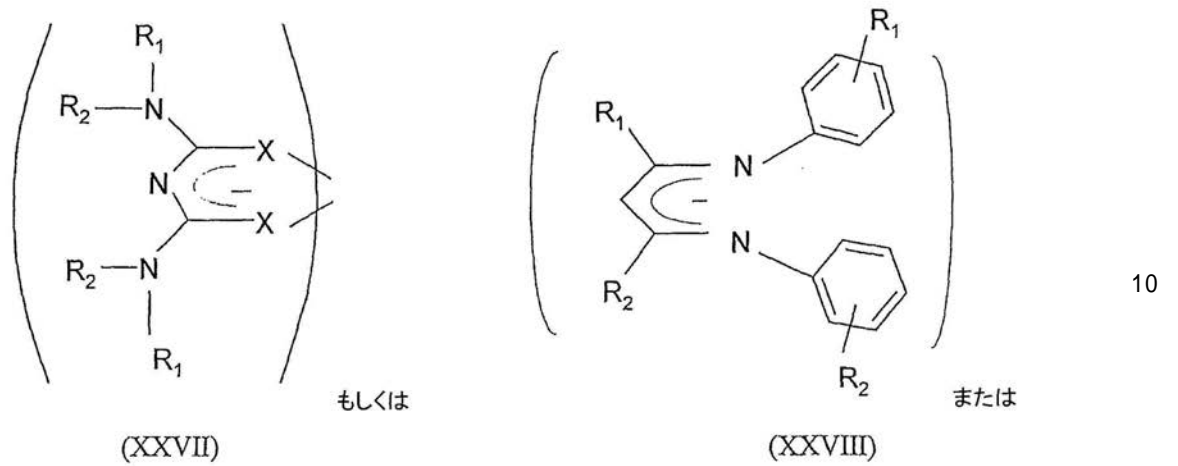
ここで、Rは上述と同様であり、例えば、アルキル基、アレニル基、アミノ基、または、環状もしくは多環のような縮合環である。

【 0 0 7 6 】

また、様々なL 基は、以下のものでもよい。

【 0 0 7 7 】

【化25】



【0078】

ここで、R、R₁、R₂は上述と同様である。

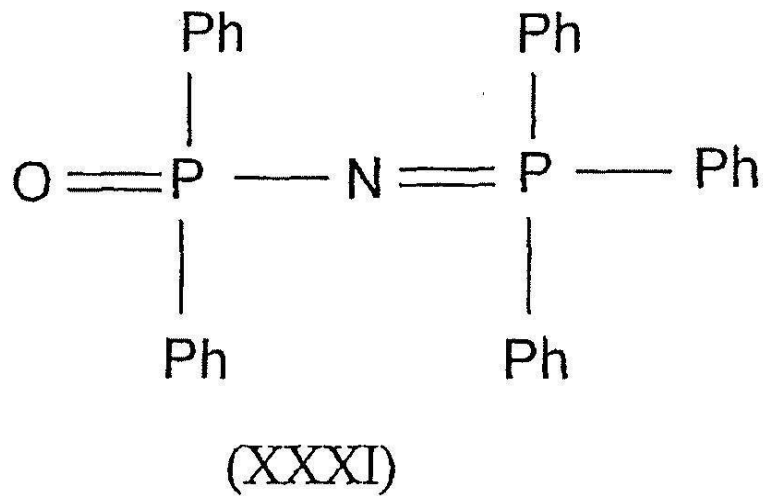
【0079】

L_p基は、以下の構造から選択することができる。

【0080】

40

【化 2 6】



10

20

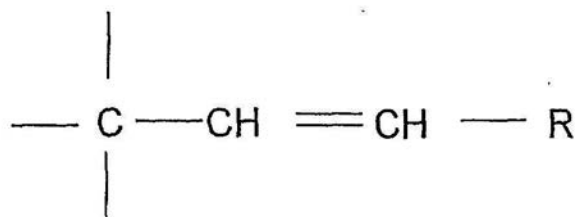
【0081】

ここで、それぞれのPhは同じであっても異なってもよく、フェニル基（OPNP）もしくは置換されたフェニル基、他の置換もしくは非置換の芳香族基、置換もしくは非置換の複素環基または多環基、ナフチル基、アントラセン、フェナントレン、もしくはピレン基のような置換もしくは非置換の縮合した芳香族基であってもよい。その置換基は、例えば、アルキル基、アラルキル基、アルコキシ基、芳香族基、複素環基、多環基、フッ素のようなハロゲン基、シアノ基、アミノ基、置換されたアミノ基などであってもよい。例が、図1と図2の図に与えられており、R、R₁、R₂、R₃、およびR₄は、同じ基であっても異なった基であっても良く、水素、ヒドロカルビル基、置換および非置換の芳香族、複素環および多環の環状構造の基、トリフルオリルメチル基のようなフルオロカーボン基、フッ素のようなハロゲン基、もしくは、チオフェニル基から選択される。また、R、R₁、R₂、R₃、およびR₄は、置換および非置換の縮合芳香族、複素環および多環の環状構造の基を形成でき、モノマー（例えばスチレン）と共重合できる。R、R₁、R₂、R₃、およびR₄は、また、ビニル基や、以下の構造の基のような不飽和のアルキレン基であってもよい。

30

【0082】

【化 2 7】



40

【0083】

50

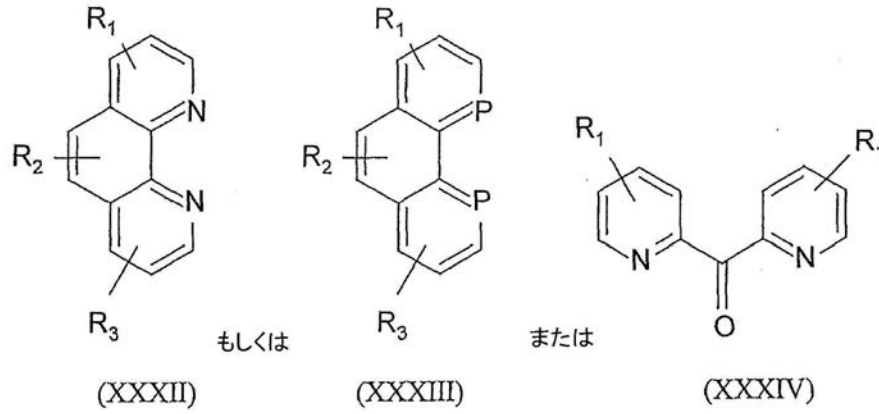
ここでRは上述と同様である。

【0084】

また、L_pは、以下の構造式の化合物である可能性がある。

【0085】

【化28】



10

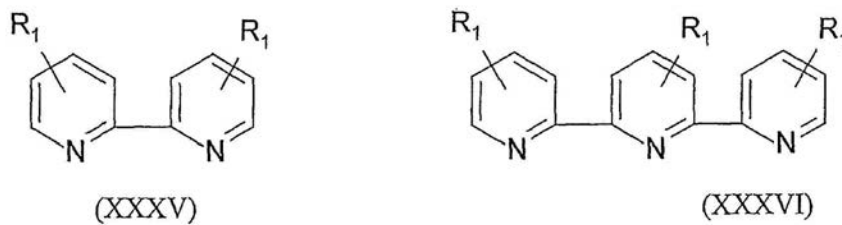
20

【0086】

R₁、R₂、およびR₃は上述で述べたものであり、例えば、図3の図に示したバソフェン(bathophen) (ここでRは上述と同様である) であるか、もしくは、以下の構造である。

【0087】

【化29】



30

【0088】

ここで、R₁、R₂、およびR₃は上述のものである。

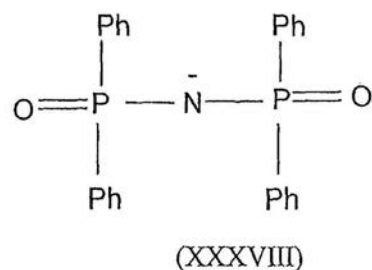
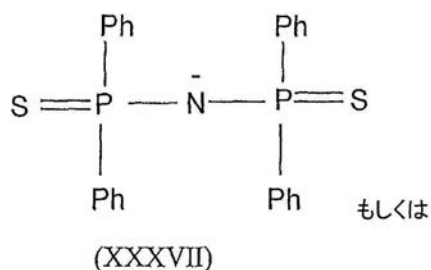
【0089】

また、L_pは、以下の構造としてもよい。

【0090】

40

【化30】



10

【0091】

ここで、Phは上述と同様である。

【0092】

L_p のキレート別の例としては、図4に示したものの、および、例えば図5で示されるフルオレンおよびフルオレン誘導体、ならびに、図6～図8で示されている構造式の化合物である。

【0093】

L および L_p の具体例としては、トリピリジル (tripiryridyl) およびTMHD、ならびにTMHD錯体、 C_{10} 、 C_{12} 、 C_{18} トリピリジル (C_{10} 、 C_{12} 、 C_{18} tripyridyl)、クラウンエーテル類 (crown ethers)、シクラン類 (cyclans)、クリプタン類 (cryptans)、フタロシアン類 (phthalocyanans)、ポルフォリン (porphoryins)、エチレンジアミンテトラミン (EDTA, ethylene diamine tetramine)、DCTA、DTPA、およびTTHAである。ここでTMHDは、2,2,6,6-テトラメチル-3,5-ヘプタンジオナト (2,2,6,6-tetramethyl-3,5-heptanedionate) であり、OPNPはジフェニルホスホンイミドトリフェニルホスホラン (diphenylphosphonimidetriphenylphosphorane) である。ポリアミンの構造式は、図9で示している。

20

【0094】

用いることができる別の有機エレクトロルミネセンス物質は、リチウムキノラートのような金属キノラート類 (metal quinolates)、および、アルミニウム錯体、マグネシウム錯体、亜鉛錯体、ならびに、スカンジウム錯体のような非希土類金属錯体を含んでいる。ここで錯体は、例えば、トリス-(1,3-ジフェニル-1,3-プロパンジオン) (DBM, Tris-(1,3-diphenyl-1,3-propanedione)) のような β -ジケトンの錯体であり、適した金属錯体は、 $\text{Al}(\text{DBM})_3$ 、 $\text{Zn}(\text{DBM})_2$ および $\text{Mg}(\text{DBM})_2$ 、 $\text{Sc}(\text{DBM})_3$ などである。

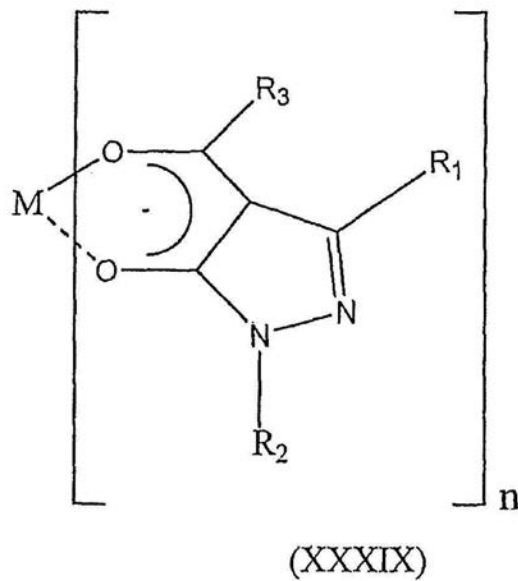
30

【0095】

用いることができる別の有機エレクトロルミネセンス物質は、下記の構造の金属錯体を含む。

【0096】

【化 3 1】



10

20

【 0 0 9 7 】

ここで、Mは希土類金属、遷移金属、ランタニドもしくはアクチニドとは別の金属であり、nはMの価数であり、R₁、R₂およびR₃は、同じ基であっても異なる基であってもよく、水素、ヒドロカルビル基、置換および非置換の脂肪族基、置換および非置換の芳香族、複素環および多環の環状構造を有する基、トリフルオリルメチル基のようなフルオロカーボン、フッ素のようなハロゲン、もしくは、チオフェニル基、またはニトリルから選択され、また、R₁とR₃は環状構造を形成してもよく、R₁、R₂およびR₃は、モノマー（例えば、スチレン）と共重合する可能性がある。好ましくは、Mはアルミニウムであり、R₃はフェニル基もしくは、置換したフェニル基である。

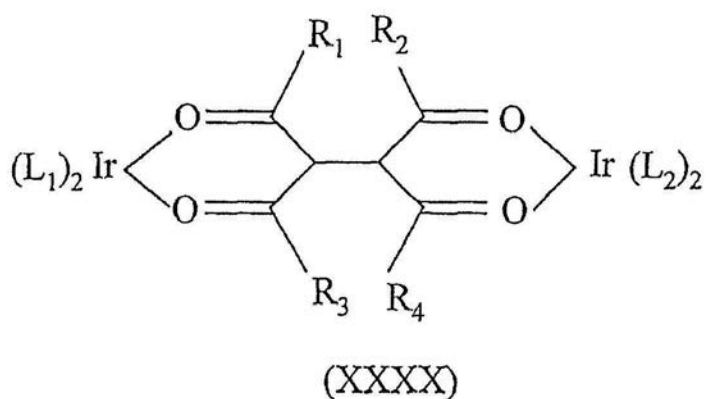
30

【 0 0 9 8 】

用いることができる別の有機エレクトロルミネセンス物質は、下記の構造のエレクトロルミネセンスジイリジウム化合物を含む。

【 0 0 9 9 】

【化 3 2】



10

【0100】

ここで、 R_1 、 R_2 、 R_3 および R_4 は、同じ基であっても異なる基であっても良く、水素、置換および非置換のヒドロカルビル基から選択され、好ましくは R_1 、 R_2 、 R_3 および R_4 は、置換および非置換の脂肪族基、置換および非置換の芳香族、複素環および多環の環状構造を有する基、トリフルオリルメチル基のようなフルオロカーボン、フッ素のようなハロゲン、もしくは、チオフェニル基、から選択され、また R_1 、 R_2 および R_3 は、置換および非置換の縮合した芳香族、複素環および多環の環状構造を形成してもよく、モノマーと共重合することができ、さらに、 L_1 および L_2 は、同じもしくは異なっている有機配位子であり、より好ましくは、 L_1 および L_2 は、フェニルピリジンおよび置換したフェニルピリジン類から選択される。

20

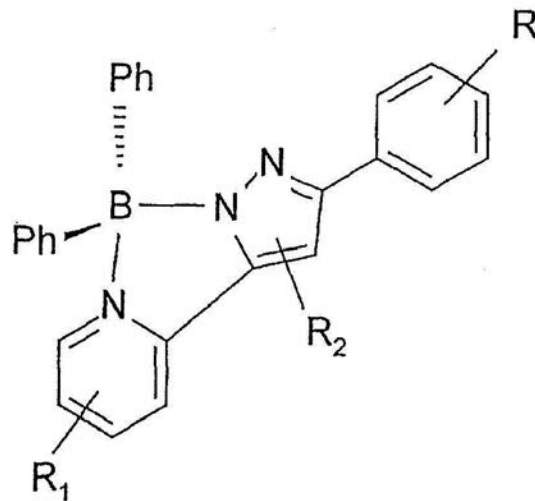
【0101】

用いることができる別のエレクトロルミネセンス化合物は以下の構造である。

【0102】

30

【化 3 3】



(XXXXXI)

【0103】

ここで、Phは非置換もしくは置換のフェニル基であり、その置換基は、同じ基であっても異なる基であってもよく、水素、ならびに、置換および非置換の脂肪族基、置換および非置換の芳香族、複素環および多環の環状構造を有する基のような置換および非置換のヒドロカルビル基、トリフルオリルメチル基のようなフルオロカーボン基、フッ素のようなハロゲン、もしくは、チオフェニル基から選択され、R、 R_1 および R_2 は、水素、または、置換および非置換の芳香族、複素環および多環のような環状構造を有する基などの置換もしくは非置換のヒドロカルビル基、フッ素、トリフルオリルメチル基のようなフルオロカーボン基、フッ素のようなハロゲン基、もしくは、チオフェニル基、あるいは、ニトリルであってもよい。

【0104】

Rおよび/または R_1 および/または R_2 および/または R_3 の例としては、脂肪族、芳香族および複素環のアルコキシ基、アリールオキシ基、およびカルボキシ基、置換および置換のフェニル基、フルオロフェニル基、ビフェニル基、フェナントレン基、アントラセン基、ナフチル基、ならびに、フルオレン基、*t*-ブチルのようなアルキル基、カルバゾールのような複素環基を含む。

【0105】

さらに、用いることができるエレクトロルミネセンス物質は、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など、のような金属キノラート類、および、蛍光物質をドーブした金属キノラート、もしくは、特許文献WO/2004/058913で開示されているような色素(dyes)を含む。

【0106】

金属キノラートホスト物質およびエレクトロルミネセンス物質は異なった物質でなければならない。

【0107】

エレクトロルミネセンス物質の層の厚みは、好ましくは10~250nm、さらに好ましくは20~75nmである。

【0108】

第一電極はアノードとして機能する可能性があり、第二電極はカソードとして機能する可能性があり、好ましくは正孔輸送物質 (hole transporting material) の層が、アノードとエレクトロルミネセンス化合物の層の間に存在する。

【0109】

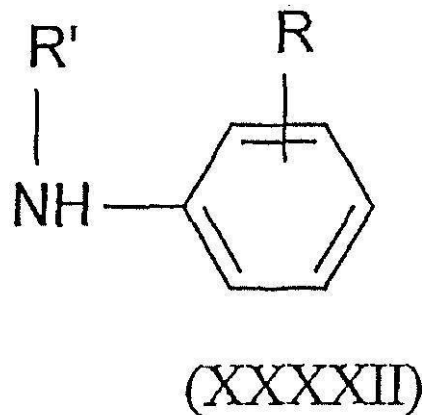
正孔輸送物質は、エレクトロルミネセンスデバイスに用いられる任意の正孔輸送物質とすることができる。

【0110】

正孔輸送物質は、-NBP、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)、非置換もしくは置換のアミノ置換芳香族化合物のポリマー、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、ポリシラン類ならびに置換ポリシラン類などのような、アミン錯体 (amine complex) とすることができる。ポリアニリン類の例としては以下のポリマーがあり、

【0111】

【化34】



【0112】

ここでRはオルト位、もしくはメタ位にあり、水素、C1-18アルキル基、C1-6アルコキシ基、アミノ基、クロロ基、プロモ基、ヒドロキシル基もしくは以下に示す基である。

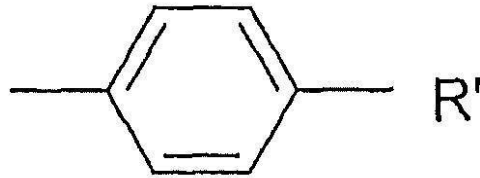
【0113】

10

20

30

【化35】



10

【0114】

ここでRはアルキル基もしくはアリール基で、R'は水素、前述の構造式(II)に示した他のモノマーの少なくとも一つを含むC1-6アルキル基もしくはC1-6アリール基である。

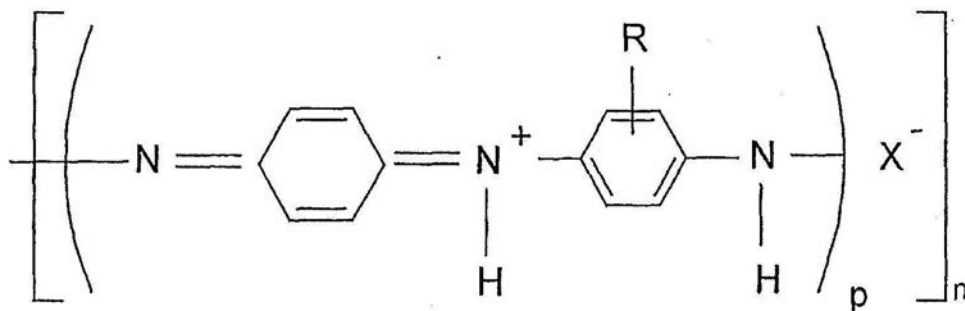
【0115】

またあるいは、正孔輸送物質は、ポリアニリンとすることができる。本発明で用いることができるポリアニリン類は、以下の一般的構造を有している。

20

【0116】

【化36】



(XXXXXIII)

30

【0117】

ここでpは1~10、nは1~20、Rは先に定義したとおりであり、かつXがアニオンであり、好ましくは、Cl、Br、SO₄、BF₄、PF₆、H₂PO₃、H₂PO₄、アリールスルホン酸イオン(arylsulphonate)、アレーンジカルボン酸イオン(arenedicarboxylate)、ポリスチレンスルホン酸イオン(polystyrenesulphonate)、ポリアクリル酸イオン(polyacrylate)、アルキルスルホン酸イオン(alkylsulphonate)、ビニルスルホン酸イオン(vinylsulphonate)、ビニルベンゼンスルホン酸イオン(vinylbenzene sulphonate)、セルローススルホン酸イオン(cellulose sulphonate)、ショウノウスルホン酸イオン(camphor sulphonate)、セルロース硫酸イオン(cellulose sulphate)、もしくは、全フッ素置換ポリア

40

50

ニオン (perfluorinated polyanion) から選択される。

【0118】

アリールスルホン酸類イオンの例としては、p-トルエンスルホン酸イオン (p-toluenesulphonate)、ベンゼンスルホン酸イオン (benzenesulphonate)、9,10-アントラキノンスルホン酸イオン (9,10-anthraquinone-sulphonate) およびアントラセンスルホン酸イオン (anthracenesulphonate) がある。アレージカルボン酸イオンの例としてフタル酸イオン (phthalate) があり、アレールカルボン酸の例として、安息香酸イオン (benzoate) がある。

【0119】

我々は、ポリアニリンなどの、アミノ置換芳香族化合物の非置換もしくは置換ポリマーの、プロトン化されたポリマーは、蒸発 (evaporate) しにくい、または蒸発しないことを発見した。しかしながら、驚くべきことに、アミノ置換芳香族化合物の非置換もしくは置換ポリマーが脱プロトン化されると、簡単に蒸発できるようになること、すなわちポリマーが蒸発可能 (evaporable) であることを、我々は見出した。

10

【0120】

好ましくは、蒸発可能な、アミノ置換芳香族化合物の非置換もしくは置換ポリマーの脱プロトン化されたポリマーが用いられる。そのアミノ置換芳香族化合物の非置換もしくは置換の脱プロトン化されたポリマーは、水酸化アンモニウムのようなアルカリ、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アルカリ金属の水酸化物で、処理して脱プロトン化することにより生成できる。

20

【0121】

プロトン化の程度は、プロトン化したポリアニリンの形成と脱プロトン化で調節することができる。ポリアニリン類の調製方法は、「A. G. MacDiarmid and A. F. Epstein, Faraday Discussions, Chem Soc.88 P319, 1989」の文献に記載されている。

【0122】

ポリアニリンの伝導率はプロトン化の程度に依存し、伝導率が最大となるのは、例えば約50%のように、プロトン化の程度が40%と60%の間であるときである。

【0123】

好ましくは、ポリマーは実質的に完全に脱プロトン化されている。

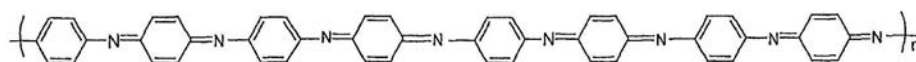
【0124】

ポリアニリンは、例えば以下のようなオクタマー単位 (octamer unit)、すなわちpが4であるようなもの、を形成する可能性がある。

30

【0125】

【化37】



40

【0126】

ポリアニリン類は 1×10^{-1} Siemen cm^{-1} の桁以上の導電率を有する可能性がある。

【0127】

芳香族環は非置換であるか、もしくは例えばエチル基のようなC1から20のアルキル基などで置換されている可能性がある。

【0128】

ポリアニリンはアニリンの共重合体である可能性があり、好ましい共重合体は、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共重合体、またはo-トルイジン (o-toluidine) とo-アミノフェノール、o-エチルアニリン、o-フェニレン

50

ジアミン、もしくはアミノアントラセン類との共重合体である。

【0129】

使用することができるその他のアミノ置換芳香族化合物のポリマーには、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、さらには、任意の他の縮合ポリ芳香族化合物のポリマーが含まれる。ポリアミノアントラセン類、および、それらを作る方法は「US Patent 6153726」に開示されている。芳香族環は非置換であっても良いし、例えば先に定義したR基で置換されているものでも良い。

【0130】

その他の正孔輸送物質は共役高分子 (conjugated polymer) で、用いることができる共役高分子は、「US 5807627」、「W090/13148」、および「W092/03490」に開示もしくは参照されている、任意の共役高分子とすることができる。

10

【0131】

好ましい共役高分子は、ポリ(p-フェニレンビニレン) (PPV) および、PPVを含む共重合体である。その他の好ましい高分子は、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)、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))などのポリ(2,5-ジアルコキシフェニレンビニレン)、ならびに、長鎖可溶性アルコキシ基 (long chain solubilising alkoxy group) であるアルコキシ基、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のうちの少なくとも一つを含む、他のポリ(2,5-ジアルコキシフェニレンビニレン)類 である。

20

【0132】

PPVのフェニレン環は、任意に1箇所以上置換することができ、例えば個々に、アルキル基 (好ましくはメチル基)、またはアルコキシ基 (好ましくはメトキシ基もしくはエトキシ基) から独立に選択することができる。

【0133】

ポリフルオレンでは、フルオレン環を任意に1箇所以上置換することができ、例えば個々に、アルキル基 (好ましくはメチル基)、またはアルコキシ基 (好ましくはメトキシ基もしくはエトキシ基) から独立に選択することができる。

30

【0134】

任意のポリ(アリーレンビニレン) (poly(arylenevinylene)) には、用いることができるその置換誘導体も含まれ、ポリ(p-フェニレンビニレン) のフェニレン環は、アントラセン環もしくはナフタレン環のような縮合環系に置き換えることができ、それぞれのポリ(フェニレンビニレン)部分のビニレン基の数は例えば7つ以上のように増やすこともできる。

【0135】

共役高分子は「US 5807627」、「W090/13148」、および「W092/03490」に開示された方法で作ることができる。

【0136】

正孔輸送層 (hole transporting layer) の厚さは20nm ~ 200nmが好ましい。

40

【0137】

前述のポリアニン類などのアミノ置換芳香族化合物のポリマーは、他の正孔輸送物質とともに、もしくは組み合わせて、例えばアノードと正孔輸送層の間などの、緩衝層としても用いることができる。他の緩衝層は、フタロシアニン銅のようなフタロシアニン類から形成することができる。

【0138】

その他のいくつかの正孔輸送物質の構造式を図12、13、14、15および16の図に示した。ここで、R、R¹、R²、R³およびR⁴は同じであっても異なっても良く、水素、置換および非置換の脂肪族基、置換および非置換の芳香族基、複素環基ならびに多環の

50

環状構造のような置換および非置換のヒドロカルビル基 (hydrocarbyl)、トリフルオロメチル基のようなフルオロカーボン基 (fluorocarbon group)、フッ素原子などのハロゲン類あるいはチオフェニル基から選択されるものであり、R、R¹、R²、R³およびR⁴は置換および非置換の縮合芳香族環、複素環、および多環の環構造を形成する可能性もあり、スチレンなどのモノマーと共重合体を作る可能性がある。XはSe、SもしくはOであり、Yは水素、置換および非置換の芳香族基、複素環基、ならびに多環の環状構造のような、置換もしくは非置換のヒドロカルボキシル基 (hydrocarboxyl group)、トリフルオロメチル基のようなフルオロカーボン基、フッ素のようなハロゲン類、チオフェニル基もしくはニトリル基である可能性がある。

【0139】

Rおよび/もしくはR¹および/もしくはR²および/もしくはR³および/もしくはR⁴の例には、脂肪族基、芳香族基および複素環基、アルコキシ基、アリアルオキシ基およびカルボキシ基、置換ならびに非置換のフェニル基、フルオロフェニル基、ピフェニル基、ナフチル基、フルオレニル基、アントラセニル基 (anthracenyl) およびフェナントレニル基 (phenanthrenyl)、t-ブチル基のようなアルキル基、ならびにカルバゾール基のような複素環基が含まれる。

【0140】

オプションとして、電子注入物質 (electron injecting material) の層が、アノードとエレクトロルミネセンス物質の層との間に存在する。電子注入物質は電流が通ったときに電子を輸送する物質である。電子注入物質には、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 (ZrQ₄) などの金属キノラート (metal quinolate) のような金属錯体、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ン酸 (polystyrene sulphonate)、または、図10もしくは図11に示した構造式の化合物、あるいはM_x(DBM)_nが含まれる。ここでM_xは金属であり、DBMはジベンゾイルメタンで、nはM_xの価数である。例えばM_xはアルミニウムもしくはクロムである。シッフ塩基をDBM部分の代わりに用いることもできる。

【0141】

別々の層とする代わりに、電子注入物質をエレクトロルミネセンス物質と混合して共蒸着 (co-deposited) させることもできる。

【0142】

オプションとして、正孔輸送物質をエレクトロルミネセンス物質と混合して共蒸着させ、かつ、電子注入物質とエレクトロルミネセンス物質を混合することもできる。正孔輸送物質、エレクトロルミネセンス物質、および電子注入物質を一緒に混ぜて一つの層を形成することもでき、これによって構成を単純化することができる。

【0143】

第一電極は、好ましくはアノードとして作用する導電ガラス (conductive glass) もしくは導電性のプラスチック物質などの透明基板 (transparent substrate) である。好ましい基板は、インジウム-スズ酸化物被覆ガラス (indium tin oxide coated glass) などの導電ガラスであるが、任意の導電性を有するガラス、または、金属もしくは導電性ポリマーなどの導電層を有するガラスを用いることができる。導電性ポリマー類、ならびに、導電性ポリマーで被覆されたガラスもしくはプラスチック物質も、基板として用いることができる。

【0144】

カソードは好ましくは、例えばアルミニウム、バリウム、カルシウム、リチウム、希土類金属、遷移金属、マグネシウム、および、銀/マグネシウム合金、希土類金属合金などのような、それらの合金などの仕事関数の低い金属で、アルミニウムが好ましい金属である。フッ化リチウムなどのアルカリ金属のフッ化物、または希土類金属のフッ化物、もしくはそれらの合金などの、金属フッ化物 (metal fluoride) を第二電極として用いることができ、例えば金属フッ化物の層をその表面に有する金属を用いることができる。

10

20

30

40

50

【 0 1 4 5 】

イリジウムもしくは他の金属錯体は、ホスト物質 (host material) と混合することができる。

【 0 1 4 6 】

本発明に係るデバイスはビデオディスプレイ、携帯電話、ポータブル・コンピュータ、および、電氣的に制御されている視覚的イメージ (visual image) が用いられる任意の他の用途に用いられるディスプレイに用いることができる。本発明に係るデバイスは、このようなディスプレイのアクティブ用途 (active applications) とパッシブ用途 (passive applications) の両方に用いることができる。

【 0 1 4 7 】

既知のエレクトロルミネセンスデバイスでは、一方もしくは両方の電極をシリコン、および、エレクトロルミネセンス物質で形成することができ、正孔輸送物質および電子輸送物質 (electron transporting material) の中間層 (intervening layers) をピクセル (pixel) としてシリコン基板上に形成することができる。好ましくは、各ピクセルには、基板から離れたほうの端で有機層に接触している、少なくとも一つのエレクトロルミネセンス物質の層、および、透明電極 (少なくとも半透明) が含まれる。

【 0 1 4 8 】

好ましくは、基板がシリコン結晶 (crystalline silicon) でできていて、電極もしくはエレクトロルミネセンス化合物を蒸着する (deposition) 前に平らな表面を作るために、基板の表面は磨かれもしくは平らにされることがある。また、あるいは、平滑化していない (non-planarised) シリコン基板に、さらに物質を蒸着する前に、平滑な面を作るために、導電性ポリマーの層で被覆して平らな面を作ることができる。

【 0 1 4 9 】

ある実施例では、各ピクセルは基板に接触している金属電極を含んでいる。金属電極と透明電極の相対的な仕事関数によって、一方がアノードとして機能し、他方がカソードとして機能することがある。

【 0 1 5 0 】

シリコン基板がカソードの場合、インジウム-スズ酸化物被覆ガラスをアノードとして作用させることができ、光はアノードを通して発光する。シリコン基板がアノードとして作用するとき、カソードは、適切な仕事関数を有する透明電極で構成される可能性がある。例えばインジウム-亜鉛酸化物被覆ガラス (indium zinc oxide coated glass) は、インジウム-亜鉛酸化物が低い仕事関数を有するため、用いることができる。このアノードの上に金属の透明被覆 (transparent coating of a metal) をして適切な仕事関数を与えるようにすることが可能である。これらのデバイスは、トップエミッティングデバイス (top emitting devices) もしくはバックエミッティングデバイス (back emitting devices) と呼ばれることがある。

【 0 1 5 1 】

金属電極は多数の金属層から構成されることがある。例えば、アルミニウムのように高い仕事関数を有する金属を基板の上に蒸着して、カルシウムのように低い仕事関数を有する金属を、より高い仕事関数を有する金属の上に蒸着することがある。他の例としては、さらに導電性のポリマーの層が、アルミニウムなどの安定な金属の上に位置する。

【 0 1 5 2 】

好ましくは、電極は各ピクセルの裏側が鏡としても機能し、電極が表面を平坦化された基板の上に蒸着され、もしくは表面を平坦化された基板中に沈められる。しかしながら、もう一つの方法として、吸光黒色層 (light absorbing black layer) を基板に隣接させることができる。

【 0 1 5 3 】

さらに他の実施例では、選択された範囲の下端の導電性ポリマー層を、適切な水溶液にさらして導電性をなくすことによって、ピクセル電極の下端接触部 (the bottom contacts) として機能するピクセルパッド (pixel pads) の配列 (arrays) を構成することが可

10

20

30

40

50

能になる。

【0154】

〔デバイス構成〕

エレクトロルミネセンスデバイスは、ITO被覆ガラス基板に逐次的に構成要素の層を蒸着することにより調製した。

【0155】

デバイスを構成するために、あらかじめエッチングしたITO被覆ガラス片 (pre-etched ITO coated glass piece) (10 x 10cm²) を用いた。デバイスはSolciet Machine (株式会社アルバック、茅ヶ崎、日本) を用いた真空蒸着により、逐次的に層をITO上に構成して作成した。個々のピクセルの活性領域 (active area) は3mm x 3mmであった。

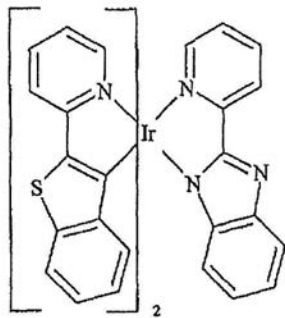
10

【0156】

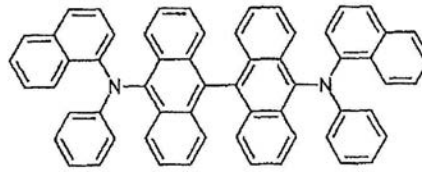
混合物の層 (the mixed layers) は、二種類の物質を基板の上に同時に蒸着することによって構成した。実施例において、化合物X、YおよびZは以下のものである。

【0157】

【化38】

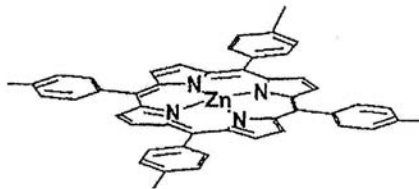


化合物 X



化合物 Y

20



Zn TpTP

30

【発明を実施するための最良の形態】

【0158】

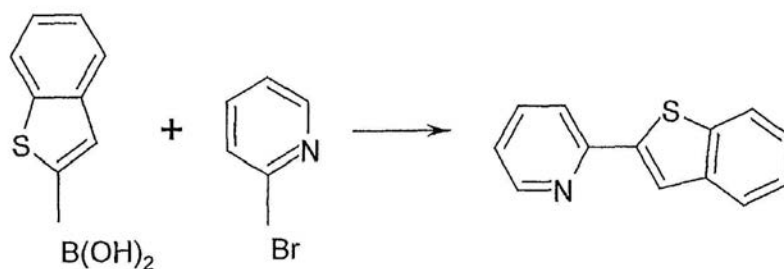
〔実施例1〕

2-ベンゾ[b]チオフェン-2-イル-ピリジン

【0159】

40

【化39】



10

【0160】

250mlの二頸丸底フラスコに還流冷却器（ガス流入口つき）およびゴム製のセプタム（rubber septum）をセットし、アルゴン置換してから、2-ブロモピリジン（2.57ml、27mmol）およびエチレングリコールジメチルエーテル（80mL、脱水し脱気したもの）を加えた。テトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム（1.0g、0.87mmol）をその溶液に加え、室温で10分間攪拌した。ベンゾチオフェン-2-ボロン酸（5.0g、28.1mmol）を加えて、無水炭酸水素ナトリウム（8.4g、100mmol）および水（50mL、脱気したもの）を加えた。セプタムをガラス栓と取り替え、反応混合物を16時間、80 に加熱した。室温まで冷やして、揮発性の成分（volatiles）を減圧下で除去した。有機層を酢酸エチルで抽出し（3×100ml）、食塩水で洗浄し、硫酸マグネシウムで脱水した。有機溶媒を除去して淡黄色の固体が得られた。エタノール中で再結晶し、無色の固体が得られた（3.9g、68%、two crops）、m.p. 124~6。

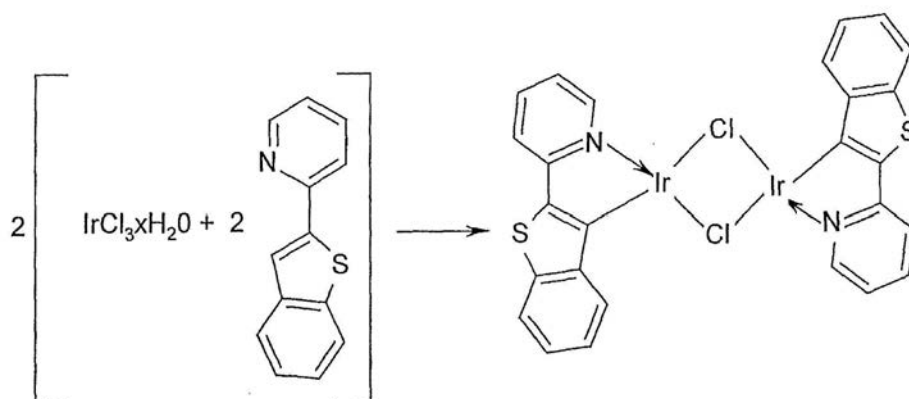
20

【0161】

テトラキス[2-ベンゾ][b]チオフェン-2-イル-ピリジン-C²,N¹](μ-クロロ)ジイリジウム

【0162】

【化40】



30

40

【0163】

三塩化イリジウム水和物（0.97g、3.24mmol）を2-ベンゾ[b]チオフェン-2-イル-ピリジン（2.05g、9.7mmol）と混合し、2-エトキシエタノール（70mL、MgSO₄存在下で脱水・蒸留し、脱気したもの）と水（20mL、脱気したもの）との混合物中に溶かして24時間還流させた。溶液を室温まで冷却して、オレンジ色の沈殿を焼結ガラス（glass sinter）上で集めた。沈殿をエタノール（60mL、95%）、アセトン（60mL）、およびヘキサンで洗浄した。得られたものを乾燥させ、それ以上の精製は行わなかった。収率（1.5g、71%）。

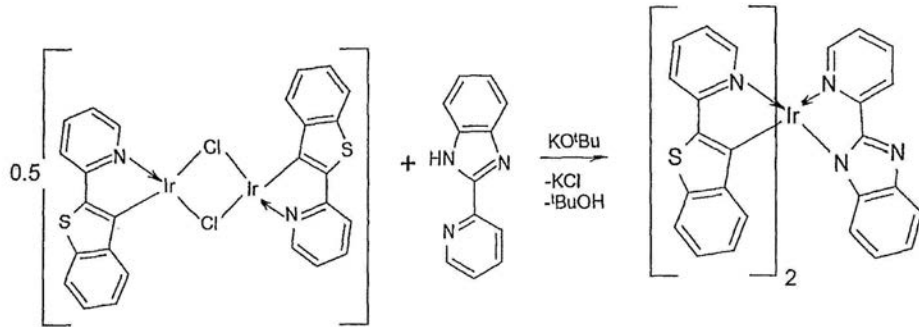
50

【 0 1 6 4 】

ビス チオフェン-2-イル-ピリジン-C²,N']-2-(2-ピリジル)ベンズイミダゾールイリジウム

【 0 1 6 5 】

【 化 4 1 】



10

【 0 1 6 6 】

カリウム tert-ブトキシド (1.12g、10 mmol) および2-(2-ピリジル)ベンズイミダゾール (1.95 g、10mmol) を200mLシュレンク管に、不活性雰囲気下で入れた。2-エトキシエタノール (MgSO₄存在下で脱水・蒸留したもの、100mL) を得られた溶液に加え、室温で10分間攪拌した。テトラキス[2-ベンゾ][b]チオフェン-2-イル-ピリジン-C²,N'](μ-クロロ)ジイリジウム (6.0g、4.62mmol) を加え、その混合物を不活性雰囲気下で16時間還流した。室温まで冷却し、オレンジ/赤色固体を分離した。固体を濾過して集め、エタノールで3回 (3×100mL) 洗浄し、ジエチルエーテル (100mL) で洗浄した。減圧乾燥した後、その物質を酢酸エチルで24時間、ソックスレー抽出することによって精製した。さらに真空昇華 (high-vacuum sublimation) (3×10⁻⁷ Torr、400) によって精製した。収率 (6.6g、89%、昇華前)。

20

30

【 0 1 6 7 】

元素分析結果：

計算値：C, 56.56; H, 3.00, N, 8.68

実測値：C, 56.41; H, 2.91; N, 8.64。

【 0 1 6 8 】

〔実施例 2〕

デバイスは以下の構成で作られた。

ITO(110nm)/CuPc(10nm)/ -NPB(60nm)/Liq:化合物 X (30:2) 32nm /BCP(6nm) / Zrq₄ (30 nm)/LiF (0.5nm)/Al

ここで、化合物Xは、前述のとおり合成したチオフェン-2-イル-ピリジン-C²,N']-2-(2-ピリジル)ベンズイミダゾールイリジウム、CuPcは銅フタロシアニン緩衝層、 -NPBは図 1 6 a に示したものであり、Liqはリチウムキノラートで、BCPはバソキュプロン (bathocupron)、Zrq₄はジルコニウムキノラート、そしてLiFはフッ化リチウムである。

40

【 0 1 6 9 】

被覆電極は、真空塗工機 (vacuum coater) Solciet Machine (株式会社アルバック、茅ヶ崎、日本) に入れられるまでの間、減圧デシケーター (vacuum desiccator) 中で、モレキュラーシーブと五酸化二リンの存在下で保管された。個々のピクセルの活性領域 (active area) は3mm x 3mmで、アルミニウムトップコンタクト (aluminium top contacts) を形成した。デバイスはその後、エレクトロルミネセンスの研究に用いられるまでは減圧デシケーターの中に保管した。

50

【 0 1 7 0 】

ITO電極は常に正極 (positive terminal) に接続された。電流と電圧の関係についての研究はコンピュータ制御されたKeithly 2400 source meterで行われた。

【 0 1 7 1 】

エレクトロルミネセンス特性を測定し、結果は図 1 7、1 8 および 1 9 に示すとおりである。

【 0 1 7 2 】

〔 実施例 3 〕

デバイスは実施例 2 と同様に形成され、その構成は以下のとおりである。

ITO(110nm)/化合物Y(10nm)/ -NPB(60nm)/Liq:化合物 X (30:2)32nm / Zrq₄ (30nm)/LiF (0.5nm)/Al 10

電流を、実施例 2 と同様にデバイスに加え、発光特性を測定した。結果は図 2 0 ~ 2 2 に示すとおりである。

【 0 1 7 3 】

〔 実施例 4 〕

デバイスは実施例 2 と同様に形成され、その構成は以下のとおりである。

ITO(110nm)/ZnTpTP(10nm)/ -NPB(60nm)/Liq:化合物 X (30:2)32nm / Zrq₄ (30nm)/LiF (0.5nm)/Al

電流を、実施例 1 と同様にデバイスに加え、発光特性を測定した。結果は図 2 3 ~ 2 5 に示すとおりである。 20

【 0 1 7 4 】

〔 実施例 5 〕

デバイスは実施例 2 と同様に形成され、その構成は以下のとおりである。

ITO(110nm)/化合物Y(10nm)/ -NPB(60nm)/Liq:化合物 X (30:2)32nm / 30nm) /LiF (0.5nm)/Al

電流を、実施例 1 と同様にデバイスに加え、発光特性を測定した。結果は図 2 6 ~ 2 8 に示すとおりである。

【 0 1 7 5 】

〔 実施例 6 〕

デバイスは実施例 2 と同様に形成され、その構成は以下のとおりである。 30

ITO(110nm)/ZnTpTP(10nm)/ -NPB(60nm)/Liq:化合物X (30:2)32nm / Liq (30nm)/LiF (0.5nm)/Al

電流を、実施例2と同様にデバイスに加え、発光特性を測定した。結果は図 2 9 ~ 3 1 に示すとおりである。

【 図面の簡単な説明 】

【 0 1 7 6 】

本文中に図面の簡単な説明に該当する記載なし。

【 図 1 】

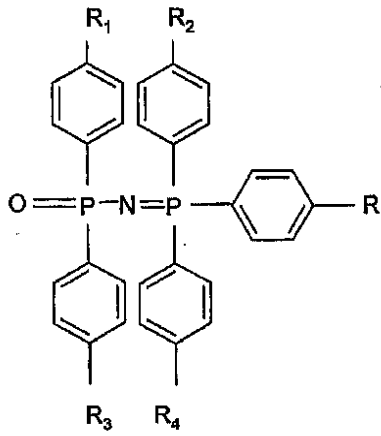


Fig. 1

【 図 2 a 】

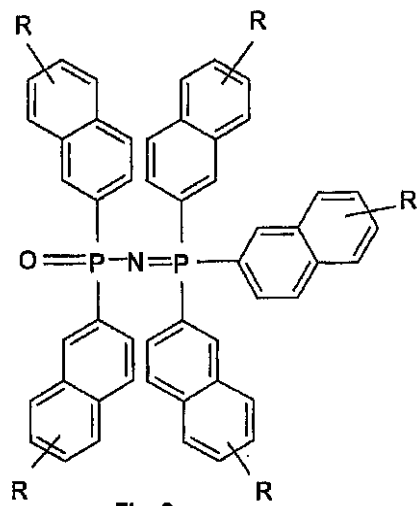


Fig. 2a

【 図 2 b 】

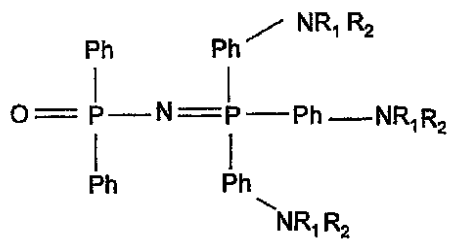


Fig. 2b

【 図 3 】

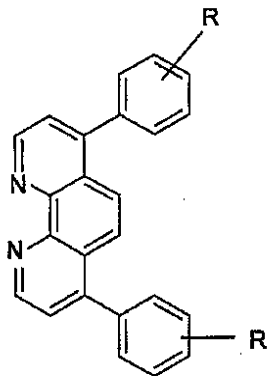


Fig. 3

【 図 4 a 】

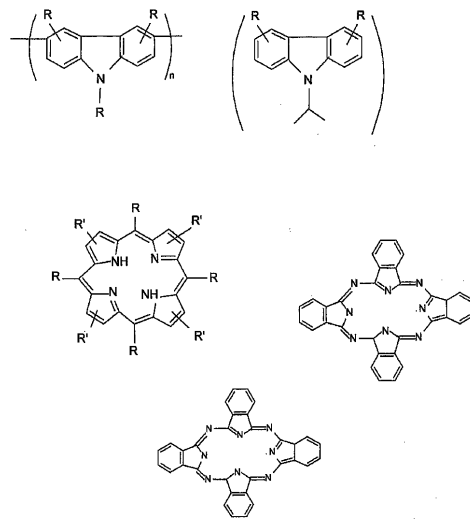


Fig. 4a

【 5 a 】

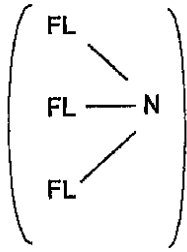


Fig. 5a

【 5 b 】

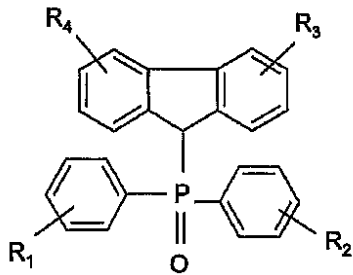


Fig.5b

【 5 f 】

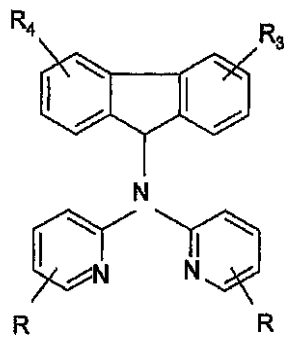


Fig. 5f

【 5 g 】

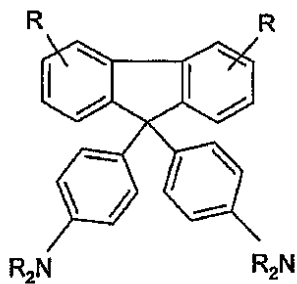


Fig. 5g

【 5 c 】

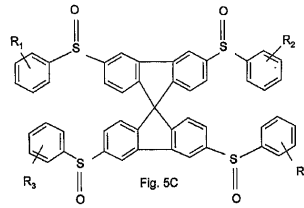


Fig. 5c

【 5 d 】

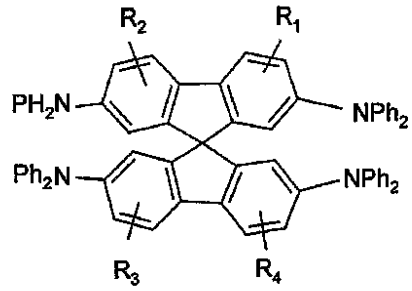


Fig. 5d

【 6 a 】

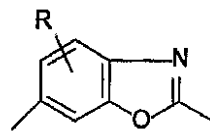


Fig. 6a

【 6 b 】

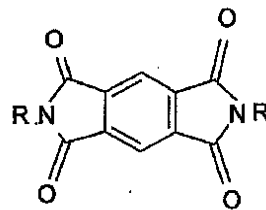


Fig 6b

【 6 c 】

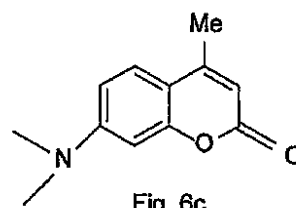


Fig. 6c

【 6 d 】

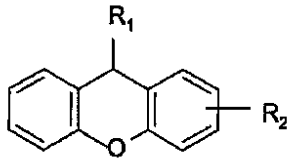


Fig. 6d

【 6 e 】

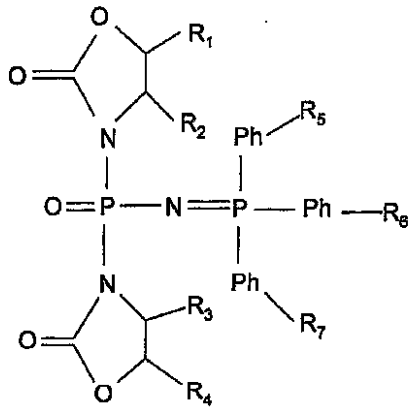


Fig. 6e

【 7 a 】

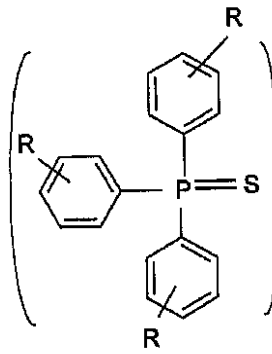


Fig. 7a

【 7 b 】

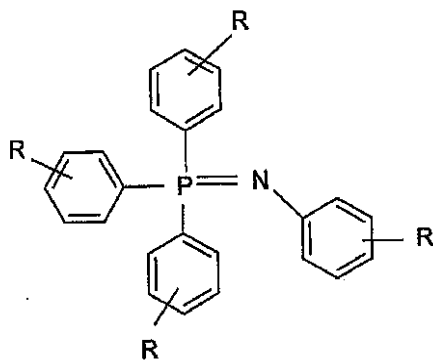
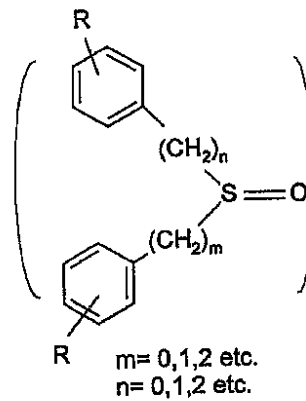


Fig. 7b

【 7 c 】



$m=0,1,2$ etc.
 $n=0,1,2$ etc.

Fig. 7c

【 7 d 】

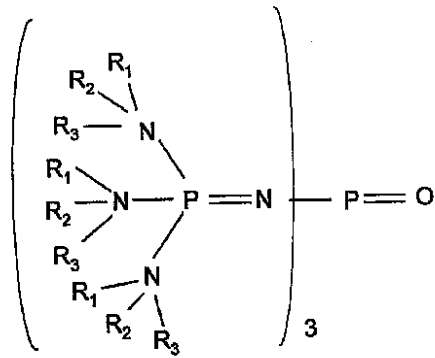
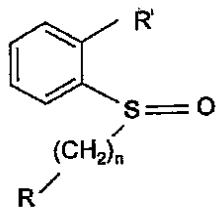


Fig. 7d

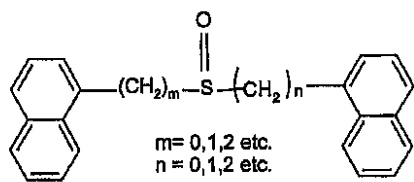
【 7 e 】



n = 0,1,2 etc.

Fig. 7e

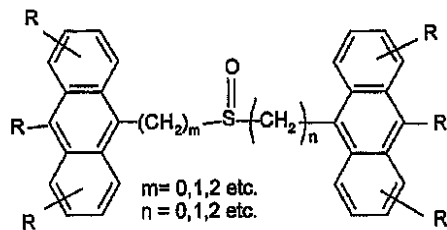
【 8 b 】



m = 0,1,2 etc.
n = 0,1,2 etc.

Fig. 8b

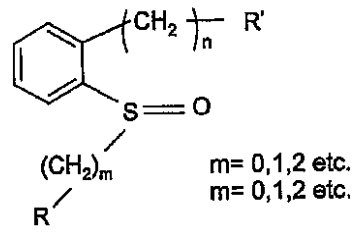
【 8 c 】



m = 0,1,2 etc.
n = 0,1,2 etc.

Fig. 8c

【 7 f 】



m = 0,1,2 etc.
n = 0,1,2 etc.

Fig. 7f

【 8 a 】



Fig. 8a

【 8 d 】

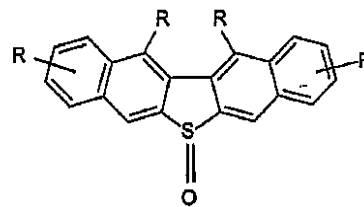
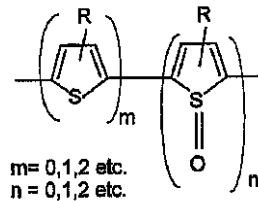


Fig. 8d

【 8 e 】



m = 0,1,2 etc.
n = 0,1,2 etc.

Fig. 8e

【 8 f 】

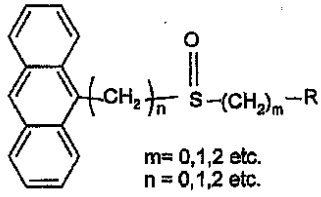


Fig. 8f

【 8 h 】

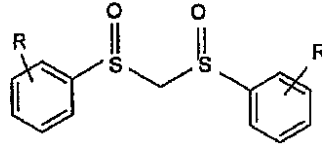


Fig. 8h

【 8 g 】

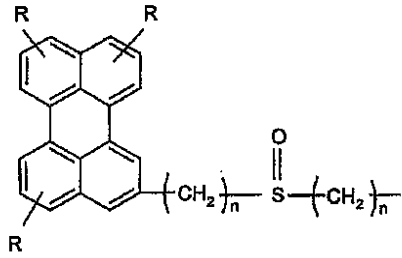


Fig. 8g

【 9 】

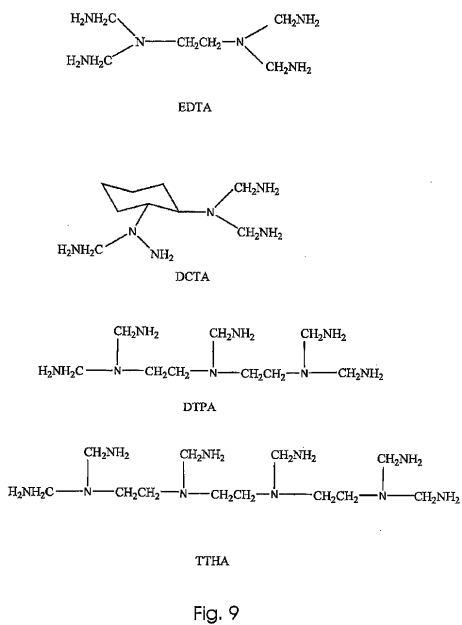


Fig. 9

【 10 】

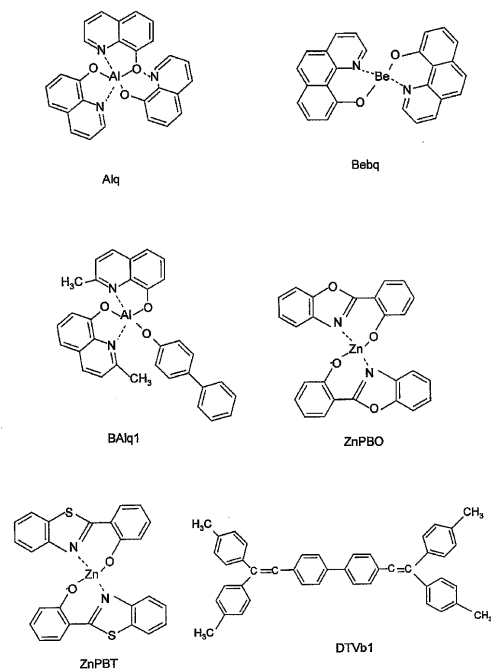


Fig. 10

【 1 1 】

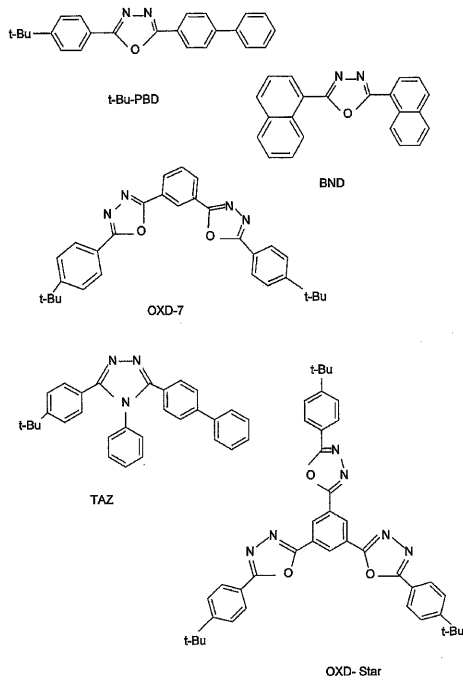


Fig. 11

【 1 2 a 】

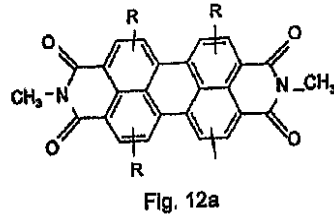


Fig. 12a

【 1 2 b 】

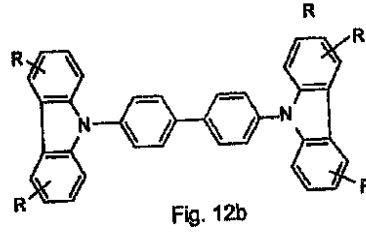


Fig. 12b

【 1 2 c 】

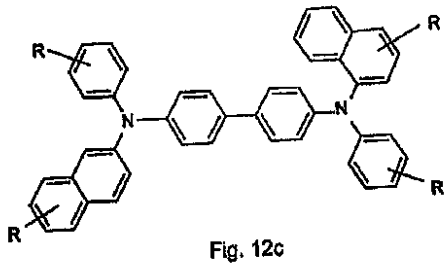


Fig. 12c

【 1 2 d 】

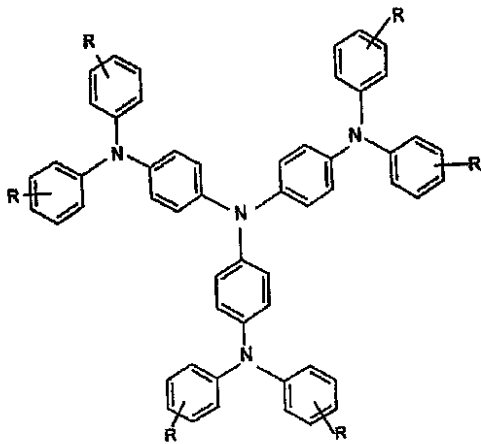


Fig. 12d

【 1 3 a 】

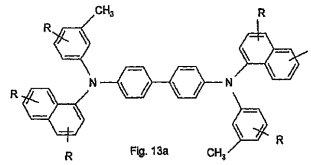


Fig. 13a

【 1 3 b 】

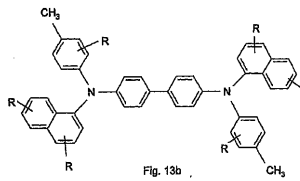


Fig. 13b

【 1 3 c 】

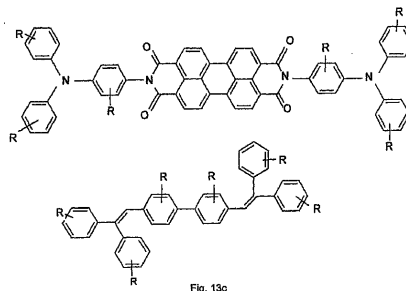


Fig. 13c

【 14 a 】

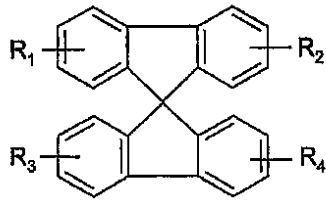


Fig. 14a

【 14 d 】

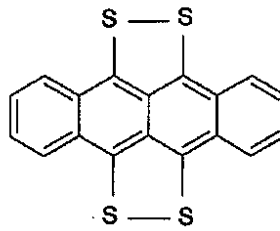


Fig. 14d

【 14 b 】

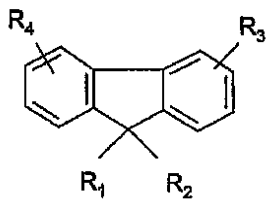


Fig. 14b

【 15 a 】

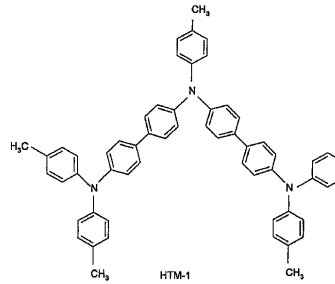


Fig. 15a

【 15 b 】

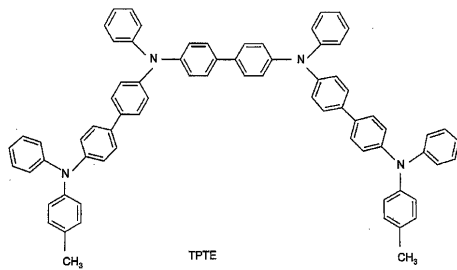
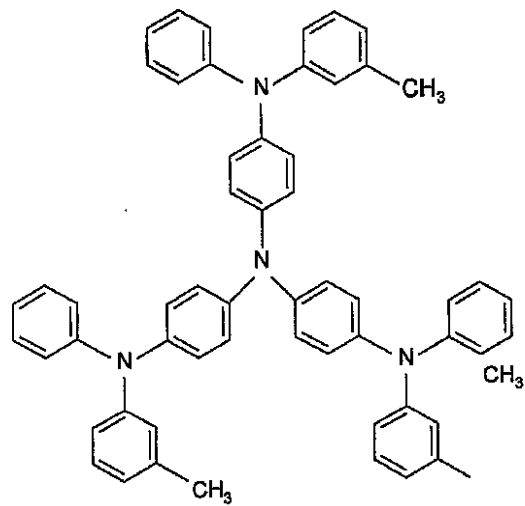


Fig. 15b

【 16 c 】



mTADATA

Fig. 16c

【 16 a 】

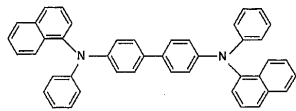


Fig. 16a

【 16 b 】

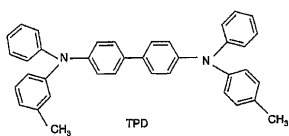
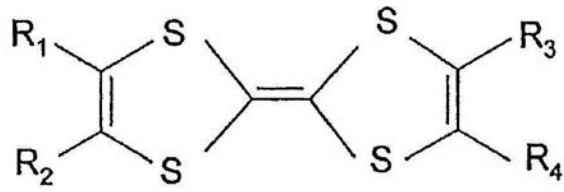
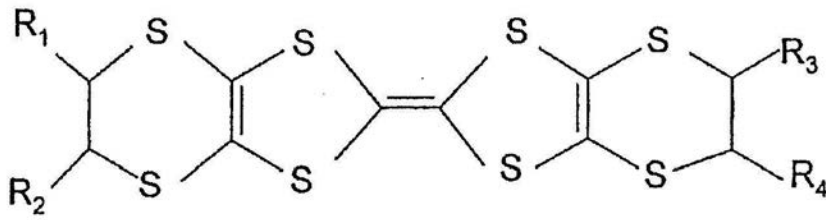


Fig. 16b

【 図 1 4 c 】

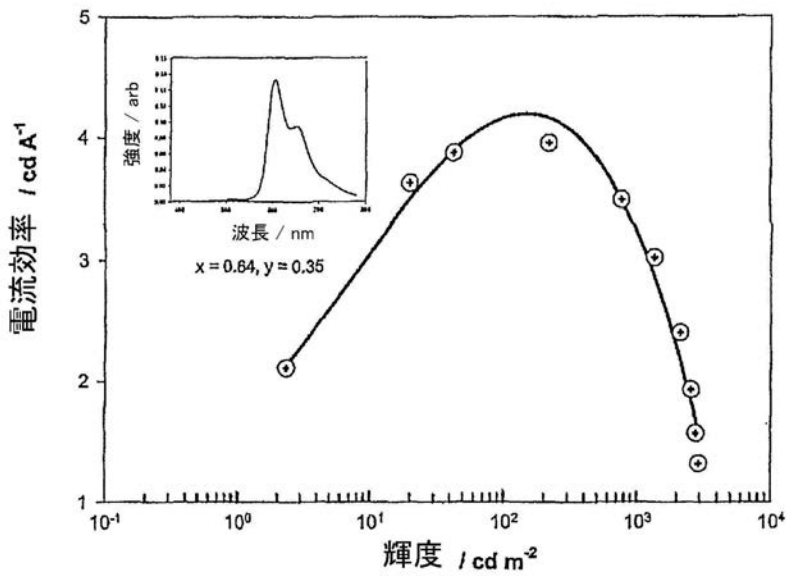


もしくは

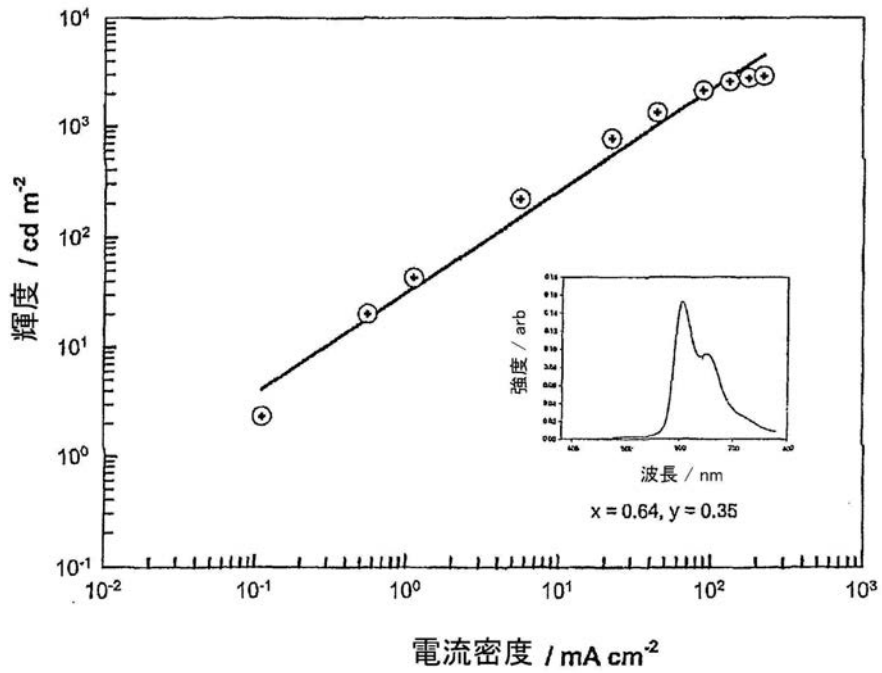


【 図 1 7 】

ITO (110 nm)/CuPc (10 nm)/ α -NPB (60 nm)/Liq : 化合物 X (30 : 2 nm)/BCP (6 nm)/Zr_q4 (30 nm)/LiF (0.5 nm)/Al

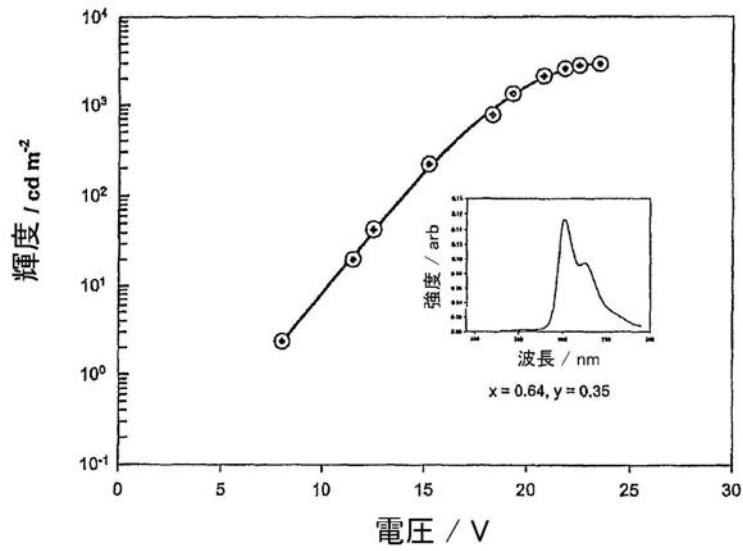


【 図 1 8 】



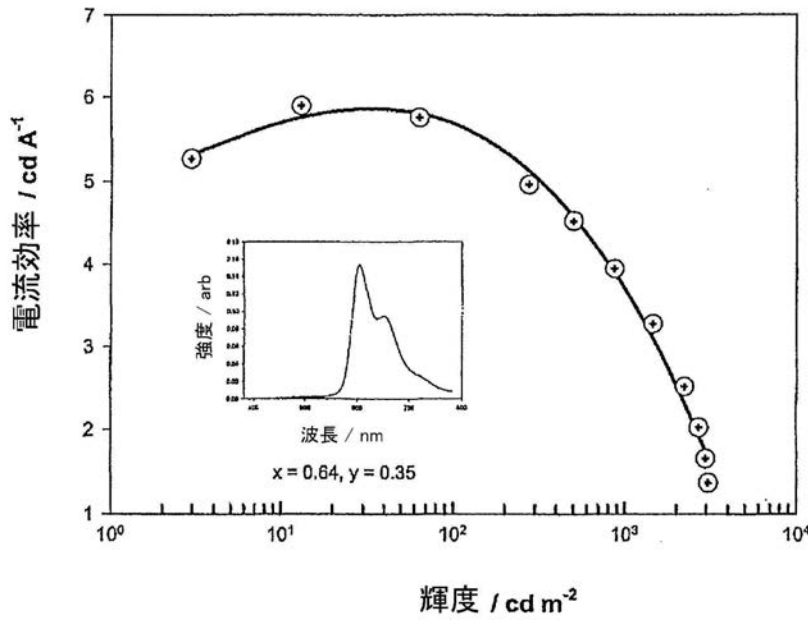
【 図 1 9 】

ITO (110 nm)/CuPc (10 nm)/ α -NPB (60 nm)/Liq : 化合物 X (30 : 2 nm)/BCP (6 nm)/Zr_q₄ (30 nm)/LiF (0.5 nm)/Al

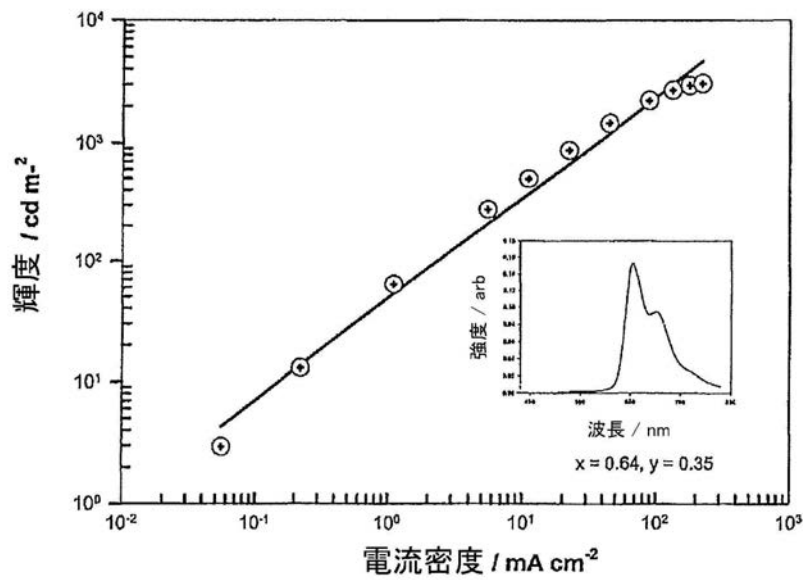


【 図 2 0 】

ITO (110 nm)/ 化合物 Y (10 nm)/ α -NPB (60 nm)/Liq : 化合物 X (30 : 2 nm)/Zr_q4 (30 nm)/LiF (0.5 nm)/Al

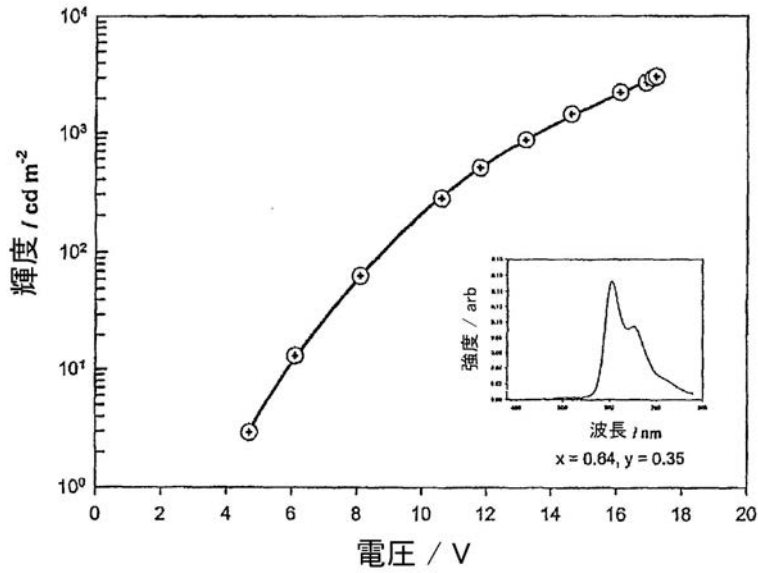


【 図 2 1 】



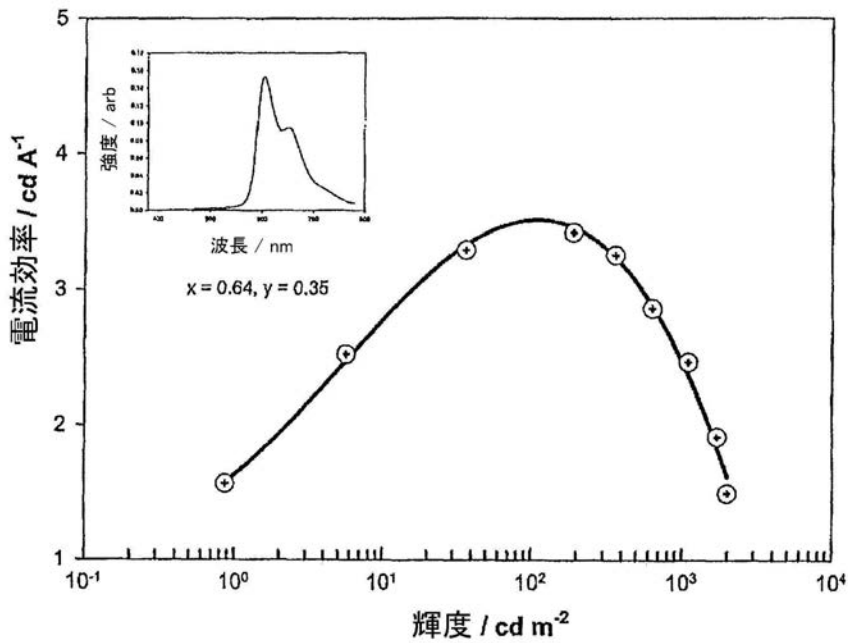
【 図 2 2 】

ITO (110 nm)/ 化合物 Y (10 nm)/ α -NPB (60 nm)/Liq : 化合物 X (30 : 2 nm)/Zr_q (30 nm)/LiF (0.5 nm)/Al

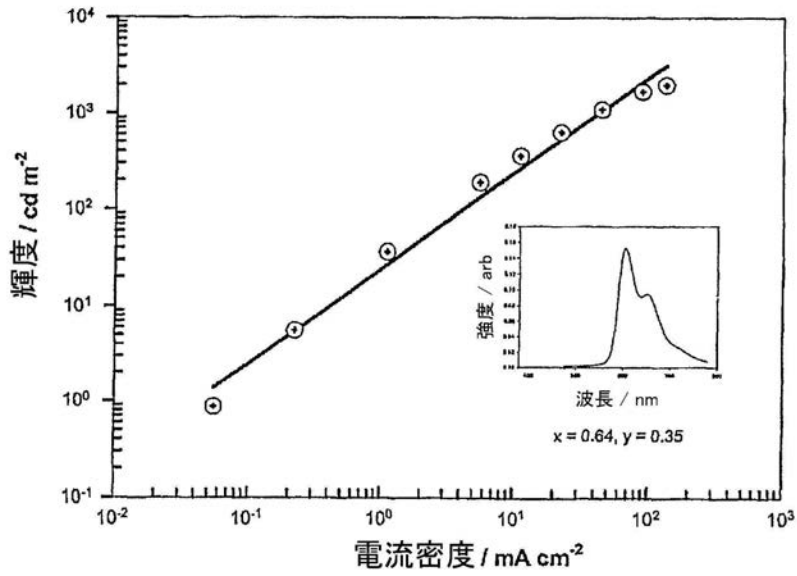


【 図 2 3 】

ITO (110 nm)/ZnTpTP (10 nm)/ α -NPB (60 nm)/Liq : 化合物 X (30 : 2 nm)/Zr_q (30 nm)/LiF (0.5 nm)/Al

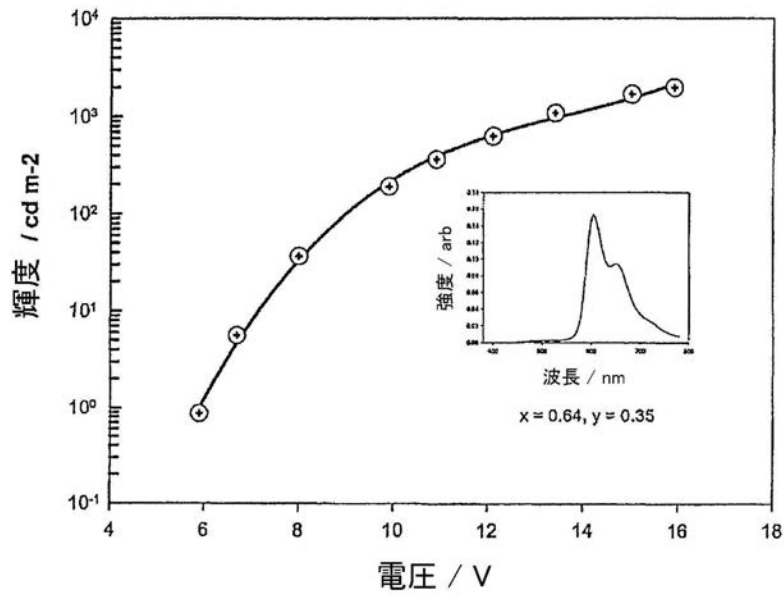


【 図 2 4 】



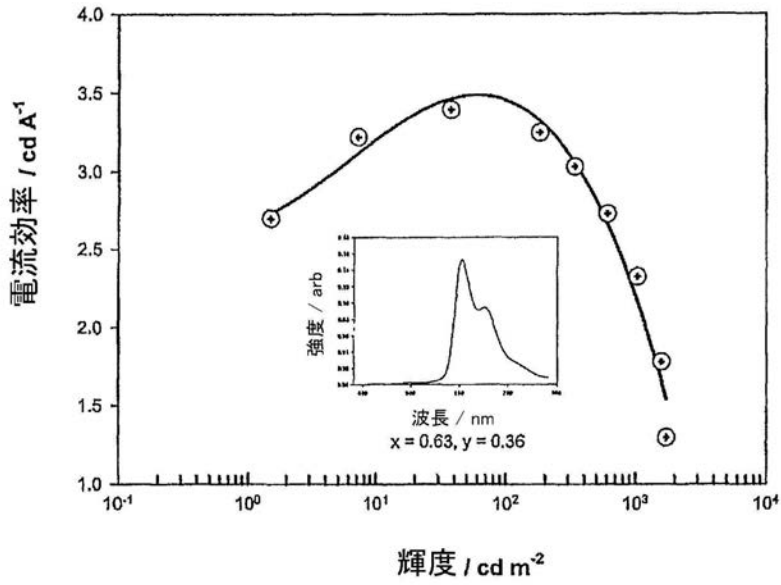
【 図 2 5 】

ITO (110 nm)/ZnTpTP (10 nm)/ α -NPB (60 nm)/Liq : 化合物 X (30 : 2 nm)/Zrqr₄ (30 nm)/LiF (0.5 nm)/Al

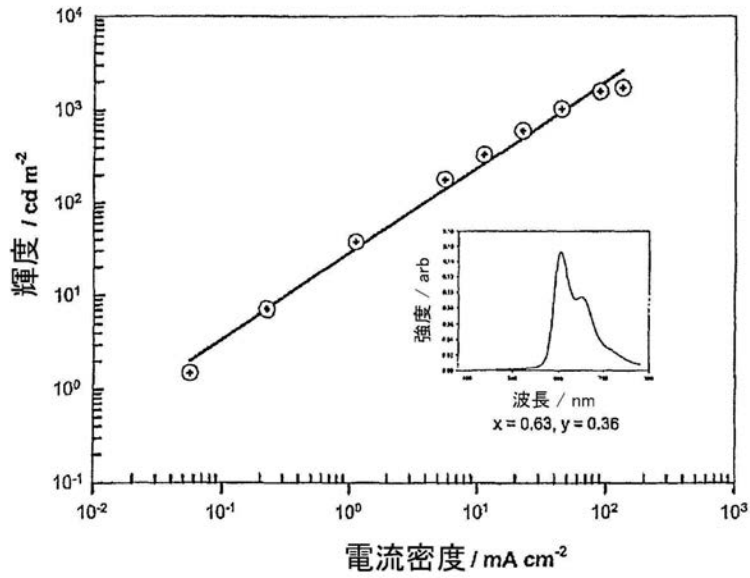


【 図 2 6 】

ITO (110 nm)/ 化合物 Y (10 nm)/ α -NPB (60 nm)/Liq : 化合物 X (30 nm) : 2 nm)/Liq (30 nm)/LiF (0.5 nm)/Al

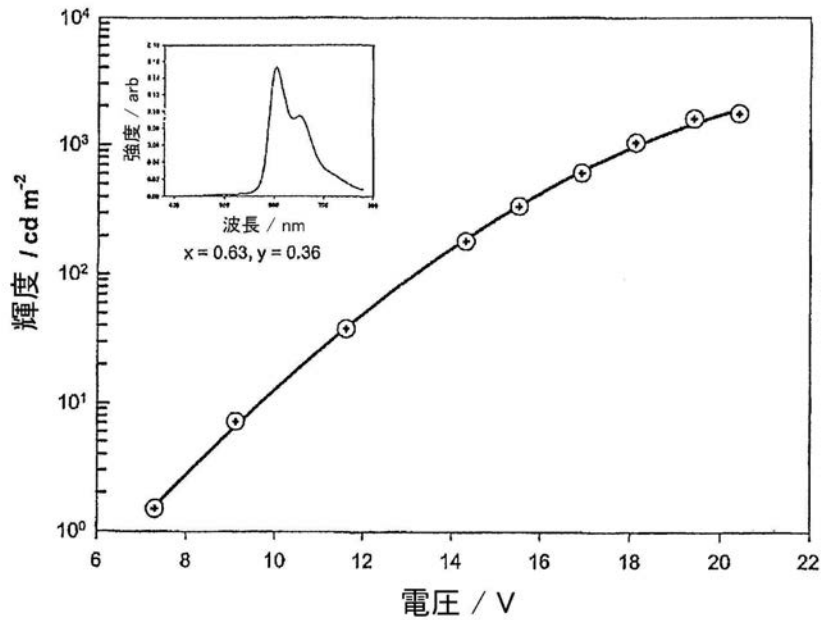


【 図 2 7 】



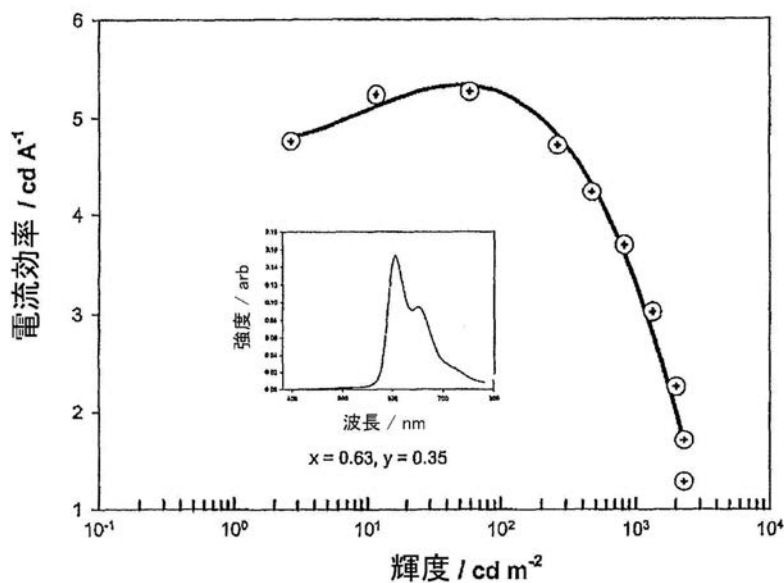
【 図 2 8 】

ITO (110 nm)/ 化合物 Y (10 nm)/ α -NPB (60 nm)/Liq : 化合物 X (30 : 2 nm)/Liq (30 nm)/LiF (0.5 nm)/Al

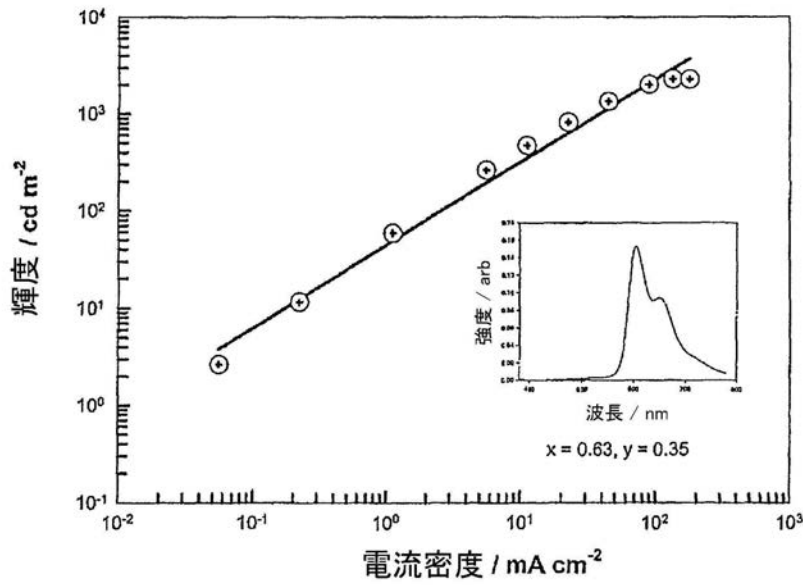


【 図 2 9 】

ITO (110 nm)/ZnTpTp (10 nm)/ α -NPB (60 nm)/Liq : 化合物 X (30 : 2 nm)/Liq (30 nm)/LiF (0.5 nm)/Al

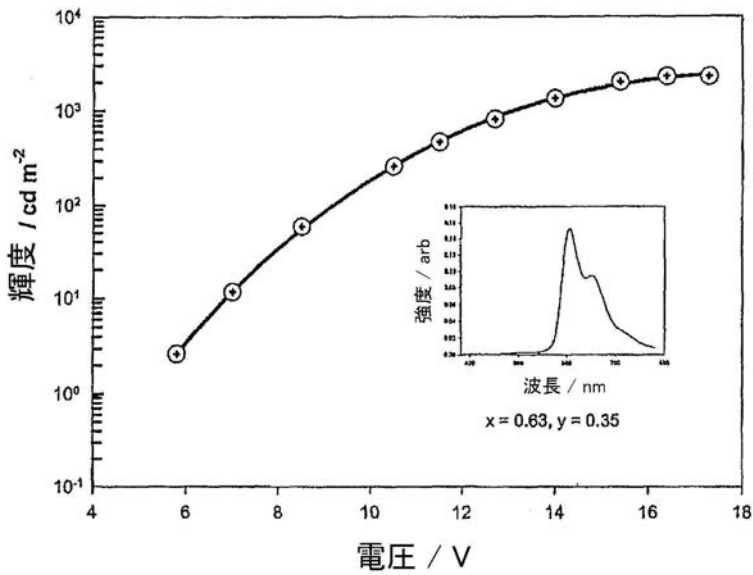


【 図 3 0 】



【 図 3 1 】

ITO (110 nm)/ZnTpTp (10 nm)/ α -NPB (60 nm)/Liq : 化合物 X (30 : 2 nm)/Liq (30 nm)/LiF (0.5 nm)/Al



フロントページの続き

- (51)Int.Cl. F I
H 0 5 B 33/22 D
- (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 HA 2 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
- (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 クマラヴェール, ムットリンガム
イギリス国, ロンドン W 5 1 R Y, イーリング, キャッスルパー ミューズ, カイン コート
2
- (72)発明者 パーシーパン, アルムガム
イギリス国, イルフォード I G 6 1 D A, ホーンズ ロード 2 5 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

合議体

審判長 松浦 新司
審判官 橋本 栄和
審判官 日比野 隆治

- (56)参考文献 特開 2 0 0 1 - 2 4 7 8 5 9 (J P , A)
国際公開第 2 0 0 3 / 0 4 6 1 0 7 (W O , A 1)
国際公開第 2 0 0 4 / 0 5 8 9 1 3 (W O , A 1)
国際公開第 2 0 0 3 / 0 9 3 3 9 4 (W O , A 1)
国際公開第 2 0 0 2 / 1 0 2 9 2 4 (W O , A 1)

(58)調査した分野(Int.Cl., D B名)

C09K11/00-11/07
C07F15/00-15/06
H05B33/14
H01L51/00-51/56

专利名称(译)	电致发光材料和器件		
公开(公告)号	JP5564164B2	公开(公告)日	2014-07-30
申请号	JP2007555686	申请日	2006-02-09
[标]申请(专利权)人(译)	霍威尔E.迪茶业有限公司		
当前申请(专利权)人(译)	默克专利GESELLSCHAFT手套Beshurenkuteru有限公司		
[标]发明人	カサーガマナザン,プーパティ ガネシャムルガン,サブ라마ニウム 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 パラマスワラ,グナナモリー		
发明人	カサーガマナザン,プーパティ ガネシャムルガン,サブ라마ニウム 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 パラマスワラ,グナナモリー		
IPC分类号	C09K11/06 C07F15/00 H01L51/50 H01L51/00 H05B33/14		
CPC分类号	C09K11/06 C09K2211/1033 C09K2211/1037 C09K2211/1051 C09K2211/1059 C09K2211/181 C09K2211/183 C09K2211/185 H01L51/0058 H01L51/006 H01L51/0077 H01L51/0078 H01L51/0085 H01L51/5012 H01L51/5016 H05B33/14		
FI分类号	C09K11/06.660 C09K11/06.690 C07F15/00.E H05B33/14.B H05B33/22.B H05B33/22.D		
优先权	2005003393 2005-02-18 GB		
其他公开文献	JP2008530332A		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

喹啉锂是有机金属电致发光材料的主体材料，以在电致发光器件中形成电致发光层。

