



(19) Bundesrepublik Deutschland
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) DE 11 2006 003 303 T5 2008.10.23

(12)

Veröffentlichung

der internationalen Anmeldung mit der
(87) Veröffentlichungs-Nr.: **WO 2007/065363**
in deutscher Übersetzung (Art. III § 8 Abs. 2 IntPatÜG)
(21) Deutsches Aktenzeichen: **11 2006 003 303.4**
(86) PCT-Aktenzeichen: **PCT/CN2006/003320**
(86) PCT-Anmeldetag: **07.12.2006**
(87) PCT-Veröffentlichungstag: **14.06.2007**
(43) Veröffentlichungstag der PCT Anmeldung
in deutscher Übersetzung: **23.10.2008**

(51) Int Cl.⁸: **H01L 51/00 (2006.01)**
H01L 29/786 (2006.01)
C09K 11/06 (2006.01)

(30) Unionspriorität:
60/742,893 07.12.2005 US

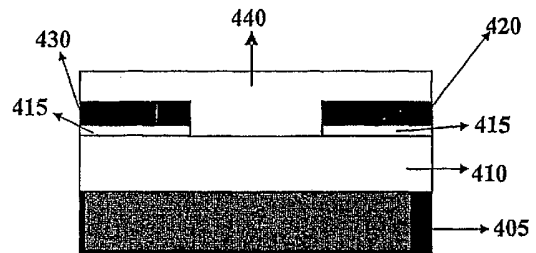
(74) Vertreter:
**Patentanwälte Ruff, Wilhelm, Beier, Dauster &
Partner, 70174 Stuttgart**

(71) Anmelder:
The University of Hong Kong, Hong Kong, HK

(72) Erfinder:
Che, Chiming, Hong Kong, CN

(54) Bezeichnung: **Organischer Feldeffekttransistor und Herstellungsverfahren hierfür**

(57) Hauptanspruch: Organischer Feldeffekttransistor mit einer Gateelektrode, einer Metalloxidschicht, einer Haftschiicht, einer Drainelektrode, einer Sourceelektrode und einer aktiven Schicht, die wenigstens ein Quinacridon-Derivat beinhaltet.



Beschreibung

[0001] Die Erfindung bezieht sich auf einen organischen Feldeffekttransistor in Form eines organischen Dünnschichttransistors (OTFT), der wenigstens ein Quinacridon-Derivat als ein Ladung transportierendes Material enthält. Offenbarte Quinacridon-Derivate zeigen in OTFTs Löcher transportierende Eigenschaften. Die Erfindung bezieht sich außerdem auf OTFTs auf Quinacridon-Derivatbasis für elektronische Anwendungen einschließlich Flachbildschirmanzeigen, photovoltaischen Bauelementen und Sensoren.

[0002] Vorliegend wird auf verschiedene Veröffentlichungen Bezug genommen. Vollständige Zitatangaben für diese Veröffentlichungen finden sich unten. Die Offenbarungen dieser Veröffentlichungen werden hiermit in vollem Umfang hierin durch Verweis aufgenommen. Die vorliegende Anmeldung beansprucht die Priorität der US-Provisionalanmeldung 60/742,893, deren gesamter Inhalt hierin durch Verweis aufgenommen wird.

[0003] Organische Dünnschichttransistoren (OTFTs) wurden als Alternativen zu herkömmlichen Dünnschichttransistoren (TFTs) auf Siliciumbasis wegen ihrer geringen Herstellungskosten, ihrer hohen Kompatibilität mit Glas- und Kunststoffsubstraten, ihrer großflächigen Bauelementbedeckung und ihrem einfachen Herstellungsprozess verwendet (siehe Hornwitz, Adv. Mater., 10: 365 (1998)). OTFTs können als flexible Anzeigen (siehe Sheraw et al., Appl. Phys. Lett., 80: 1088 (2002)), Sensoren (siehe Bartic et al., Appl. Phys. Lett., 82: 475 (2003)) und Speicherbauelemente (siehe Chabinyk et al. Chem. Mater., 16: 4509 (2004)) benutzt werden. Bislang wurden nur wenige stabile, kostengünstige organische Halbleiter als nützlich für OTFT-Anwendungen gefunden.

[0004] Es wurden jedoch beträchtliche Fortschritte bezüglich OTFTs gemacht, speziell hinsichtlich der Entwicklung von π -konjugierten organischen Halbleitern (siehe Inoue et al., J. Appl. Phys., 95: 5795 (2004), Sheraw et al., Adv. Mater., 25: 2009 (2003) und Yan et al., Adv. Mater., 17: 1191 (2005)). Organische π -konjugierte Materialien mit starren kondensierten Ringstrukturen sind dort von Interesse, wo starke π - π -Wechselwirkungen zwischen den benachbarten Molekülen erzielt werden können.

[0005] Es wurden Untersuchungen in Verbindung mit Pentacen vom p-Typ und seinen Derivaten als organische Halbleiter für OTFTs durchgeführt (siehe die Patentschriften US 6.284.562, US 6.734.038 B2 und US 6.869.821 B2 sowie Meng et al., J. Am. Chem. Soc., 127: 2406 (2005) und Anthony et al., J. Am. Chem. Soc., 127: 4986 (2005)). Dennoch ist diese Materialklasse aufgrund ihrer geringen Löslichkeit in üblichen organischen Lösungsmitteln schwierig strukturell zu modifizieren.

[0006] Oligothiophene (siehe Katz et al., Chem. Mater., 7: 2235 (1995)) und Thiophen-Derivate (siehe Yang et al., Adv. Funct. Mater., 15: 671 (2005) und Garnier et al., J. Am. Chem. Soc., 115: 8716 (1993)) sind eine weitere Klasse von organischen Halbleitern vom p-Typ. Es wurde gezeigt, dass die Bauelementleistungsfähigkeit durch Anbringen langer Alkylketten an die Thiophen-Ringe steigt (siehe Katz et al., Chem. Mater., 10: 633 (1998)). OTFTs vom p-Typ auf Arylacetylen-Basis wurden ebenfalls dargestellt (siehe Che et al., Adv. Mater., 17: 1258 (2005)). Durch Einbau von Donator-/Azeptor-Gruppen für Elektronen in π -konjugierte Arylacetylen-Oligomere wurden eine Ladungsträgermobilität von $0,3 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ und eine verlängerte Bauelementstabilität erzielt.

[0007] Andere kondensierte aromatische Verbindungen vom p-Typ wurden ebenfalls für OTFTs verwendet, wie Dibenzothienobisbenzodithiophen ($\mu = 0,2 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$; $I_{\text{on/off}} = \sim 10^6$) (siehe Siringhaus et al., J. Mater. Chem., 9: 2095 (1999)), Bisdithienothiophen ($\mu = 0,05 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$; $I_{\text{on/off}} = 10^8$) (siehe Holmes et al., J. Am. Chem. Soc., 120: 2206 (1998)), Dihydrodiazapentacen ($\mu = 0,06 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$; $I_{\text{on/off}} = 5 \times 10^3$) (siehe Nuckolls et al., J. Am. Chem. Soc., 125: 10284 (2003)) und Diphenylbenzodichalcogenophene ($\mu = 0,17 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$; $I_{\text{on/off}} = 10^5$) (siehe Takimiya et al., J. Am. Chem. Soc., 126: 5084 (2004)).

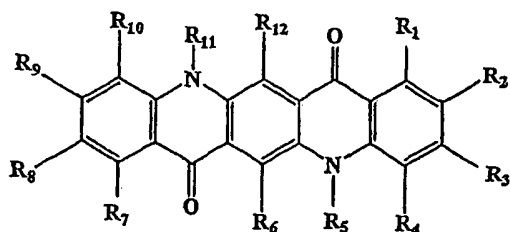
[0008] Die Eigenschaften von Quinacridon und seinen Derivaten hinsichtlich Lumineszenz, Lichtsensitivität und Struktur sind eingehend untersucht worden (siehe Wightman et al., J. Am. Chem. Soc., 122: 4972 (2000), Wang et al., J. Phys. Chem. B, 109: 8008 (2005), Shi et al., Appl. Phys. Lett., 70: 1665 (1997) und Hiramoto et al., Jpn. J. Appl. Phys., 35: L349 (1996)). Diese Verbindungen sind in Atmosphärenumgebung stabil und werden vielfach als lichtemittierende und photoleitende Materialien benutzt.

[0009] Die Erfindung ermöglicht die Bereitstellung organischer Dünnschichttransistoren (OTFTs) mit einer oder mehreren aktiven Schichten, die wenigstens ein Quinacridon-Derivat als Ladungstransportmaterial verwenden. Das aktive ladungstransportierende Material kann Transportladungen unter einer angelegten Vorspannung leiten. Die Transistoren zeigen eine Feldeffektbeweglichkeit, die mit derjenigen anderer organischer Dünnschichttransistoren vergleichbar ist. Die Erfindung stellt OTFTs auf Quinacridon-Derivatbasis zur Verwen-

dung in Flachbildschirmanzeigen, photovoltaischen Bauelementen und Sensoren zur Verfügung.

[0010] Die Erfindung ermöglicht außerdem die Bereitstellung von OTFTs, die eine aktive Schicht mit wenigstens einem Quinacridon-Derivat als einem aktiven ladungstransportierenden Material benutzen. Vorzugsweise können die Transistoren als OTFT vom p-Typ betrieben werden.

[0011] In einer Ausführungsform der Erfindung wird ein OTFT bereitgestellt, der eine Gateelektrode, eine Haftschrift, eine Drainelektrode, eine Sourceelektrode und eine aktive Schicht umfassen kann, die wenigstens ein Quinacridon-Derivat enthält. In einer bevorzugten Ausführungsform der Erfindung hat das Quinacridon-Derivat folgende Formel I:



(I)

wobei R^1 - R^{12} unabhängig voneinander -H, -OH, -NH₂, -halogen, -SH, -CN, -NO₂, -R¹³, -OR¹⁴, -SR¹⁴, -NHR¹⁴ oder -N(R¹⁴)₂ sind, jedes R¹³ -(C₁-C₃₀)alkyl, -phenyl, -naphthyl oder -thiophen sind, und zwar jeweils unsubstituiert oder mit einem oder mehreren von -C₁-C₁₅)alkyl, -phenyl, -naphthyl oder -thiophen substituiert, und R¹⁴ wie R¹³ oben definiert ist.

[0012] Spezieller zeigen die OTFTs mit Quinacridon-Derivaten gemäß Formel I eine Löchermobilität von mindestens 0,1 cm²V⁻¹s⁻¹ und ein An/Aus-Stromverhältnis von wenigstens 10⁴, wenn Spannung angelegt wird.

[0013] Die OTFTs auf Quinacridon-Derivatbasis gemäß der Erfindung können in der Elektronik einschließlich Flachbildschirmanzeigen, photovoltaischen Bauelementen, Sensoren und dergleichen angewendet werden.

[0014] Weitere Merkmale und Vorteile der Erfindung sind aus der nachfolgenden detaillierten Beschreibung bevorzugter Ausführungsformen in Verbindung mit den beigefügten Zeichnungen ersichtlich, in denen zeigen:

[0015] Fig. 1 eine schematische Schnittansicht eines Feldeffekttransistors mit den Quinacridon-Derivaten gemäß der Erfindung,

[0016] Fig. 2 Strom-Spannungs(I-V)-Kennlinien von OTFT hergestellt mit Q8 (Kanallänge 40 µm, Kanalbreite 3000 µm), speziell Drainstrom (I_{DS}) in Abhängigkeit von der Drainspannung (V_{DS}) als Funktion der Gatespannung (V_G),

[0017] Fig. 3 Strom-Spannungs(I-V)-Kennlinien von OTFT hergestellt mit Q8 (Kanallänge 40 µm, Kanalbreite 3000 µm), speziell eine Transferkurve im gesättigten Bereich bei konstanter Source-Drain-Spannung von -40 V und Quadratwurzel des Absolutwerts des Stroms als Funktion der Gatespannung,

[0018] Fig. 4 ein Rasterelektronenmikroskopbild von Q1 auf Siliciumdioxidoberfläche,

[0019] Fig. 5 ein Rasterelektronenmikroskopbild von Q2 auf Siliciumdioxidoberfläche,

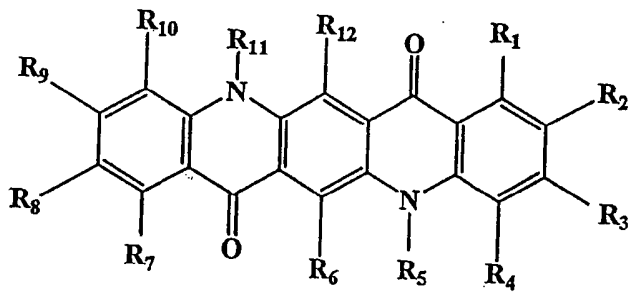
[0020] Fig. 6 ein Rasterelektronenmikroskopbild von Q3 auf Siliciumdioxidoberfläche,

[0021] Fig. 7 ein Rasterelektronenmikroskopbild von Q6 auf Siliciumdioxidoberfläche und

[0022] Fig. 8 ein Rasterelektronenmikroskopbild von Q8 auf Siliciumdioxidoberfläche.

[0023] Die Erfindung ermöglicht die Bereitstellung von OTFTs, die ein Quinacridon-Derivat oder Quinacridon-Derivate als aktives Ladungstransportmaterial enthalten, um den Ladungsfluss in den Transistoren zu un-

terstützen. In einem Ausführungsbeispiel können in einem OTFT Quinacridon-Derivate gemäß der nachstehenden Formel I verwendet werden, die eine Löcherbeweglichkeit von mindestens $0,1 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ und ein An/Aus-Stromverhältnis von mindestens 10^4 liefern können:

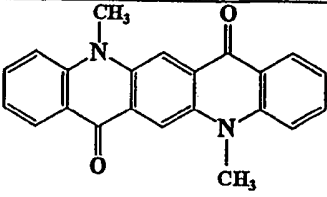
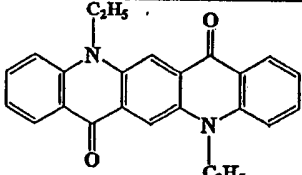
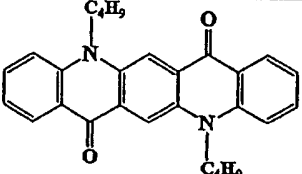
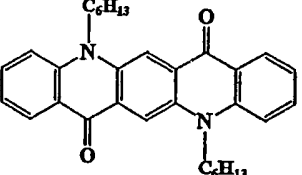
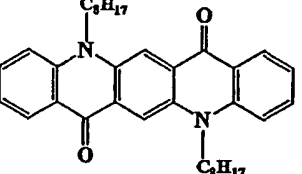
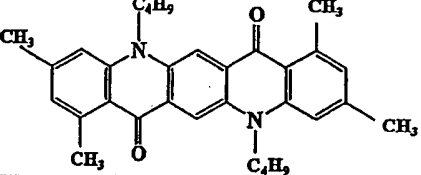
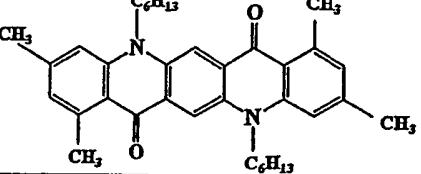
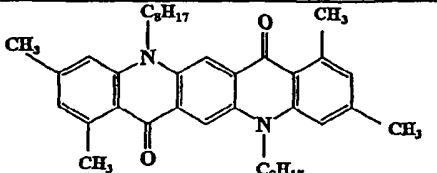


(I)

wobei R^1 - R^{12} unabhängig voneinander -H, -OH, - NH_2 , -halogen, -SH, -CN, - NO_2 , - R^{13} , - OR^{14} , - SR^{14} , - NHR^{14} oder - $\text{N}(\text{R}^{14})_2$ sind, jedes R^{13} -(C_1 - C_{30})alkyl, -phenyl, -naphthyl oder -thiophen ist, und zwar jeweils unsubstituiert oder mit einem oder mehreren von - C_1 - C_{15})alkyl, -phenyl, -naphthyl oder -thiophen substituiert, und R^{14} wie R^{13} oben definiert ist.

[0024] Illustrative Beispiele und exemplarische Verbindungen gemäß Formel 1 sind in der nachstehenden Tabelle 1 gelistet.

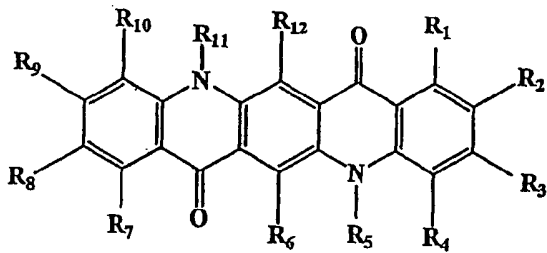
Tabelle 1

Struktur	Verbindung
	Q1
	Q2
	Q3
	Q4
	Q5
	Q6
	Q7
	Q8

[0025] Die Erfindung kann zudem einen OTFT bereitstellen mit einer Gateelektrode, einer Metalloxidschicht, einer Haftschrift, einer Drainelektrode, einer Sourceelektrode und einer aktiven Schicht, die wenigstens ein Quinacridon-Derivat wie oben angegeben enthält. Die Gateelektrode kann aus Silicium, dotiertem Silicium oder Aluminium sein. Die Metalloxidschicht kann Siliciumoxid oder Aluminiumoxid sein. Die Haftschrift kann

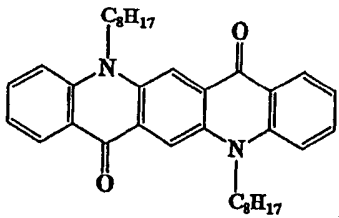
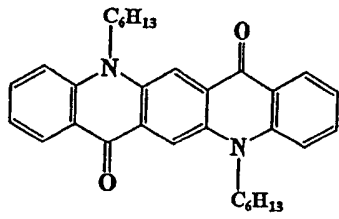
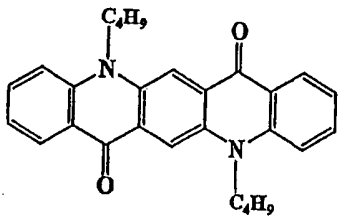
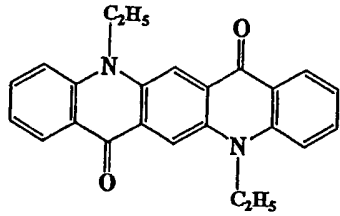
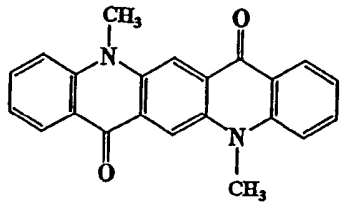
eine Schicht aus Titan oder eine Schicht aus Wolfram oder eine Schicht aus Chrom sein. Die Drainelektrode kann eine Schicht aus Gold oder eine Schicht aus Platin sein. Die Sourceelektrode kann eine Schicht aus Gold oder eine Schicht aus Platin sein.

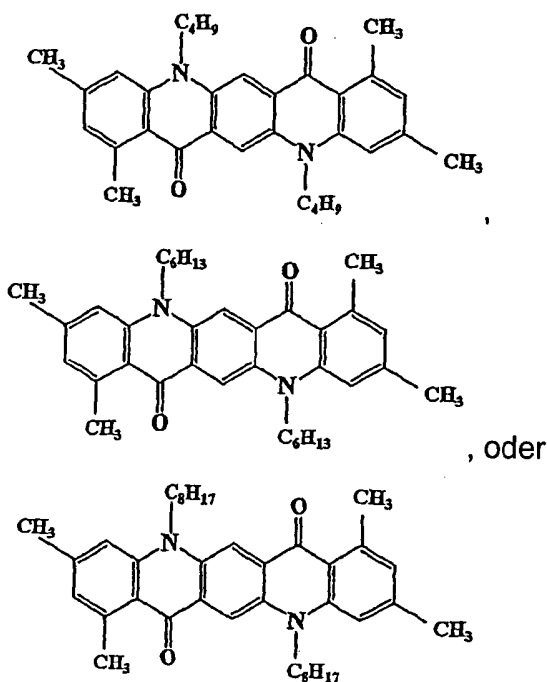
[0026] In einem Ausführungsbeispiel kann das Quinacridon-Derivat von der nachstehenden Formel I sein:



(I)

wobei R^1 - R^{12} unabhängig voneinander $-H$, $-OH$, $-NH_2$, $-halogen$, $-SH$, $-CN$, $-NO_2$, $-R^{13}$, $-OR^{14}$, $-SR^{14}$, $-NHR^{14}$ oder $-N(R^{14})_2$ sind, jedes R^{13} $-(C_1-C_{30})$ alkyl, $-phenyl$, $-naphthyl$ oder $-thiophen$ ist, und zwar jeweils unsubstituiert oder mit einem oder mehreren von $-C_1-C_{15}$)alkyl, $-phenyl$, $-naphthyl$ oder $-thiophen$ substituiert, und R^{14} wie R^{13} oben definiert ist. In einem weiteren Ausführungsbeispiel kann das Quinacridon-Derivat eine Verbindung gemäß folgender Formel sein:





[0027] In einer weiteren Ausführungsform kontaktiert das Quinacridon-Derivat die Drainelektrode oder die Sourceelektrode. In einer weiteren exemplarischen Ausführungsform fungieren die Quinacridon-Derivate als löchertransportierendes Material, um einen Stromfluss unter einer Vorspannung zu leiten. In einer exemplarischen Ausführungsform liegt der Stromfluss wenigstens im μA -Bereich.

[0028] Im organischen Feldeffekttransistor der Erfindung beträgt die Feldeffektbeweglichkeit mindestens $0,1 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ und ein An/Aus-Stromverhältnis wenigstens 10^4 . Der Quinacridon-Derivate enthaltende Transistor kann potentiell in einer Flachbildschirmanzeige, einem photovoltaischen Bauelement, einem Sensor oder dergleichen eingesetzt werden.

[0029] Die nachfolgenden Beispiele dienen dem weiteren Verständnis der Erfindung und sind nicht dahingehend zu verstehen, die Erfindung in irgendeiner Weise zu beschränken.

Beispiel 1

[0030] Die Konfiguration eines Transistors auf Quinacridon-Derivatbasis gemäß der Erfindung ist schematisch in [Fig. 1](#) dargestellt. Der Transistor **400** hat wie gezeigt mehrere Schichten. Ein Gateoxid **410**, das vorzugsweise SiO_2 enthält, ist auf eine Gateelektrode **405**, ein n-leitendes Si-Gate, aufgebracht. Eine dünne, Ti enthaltende Haftschrift **415** befindet sich auf der Gateoxidschicht **410**. Eine Drainelektrode **420** aus Gold und eine Sourceelektrode **430** aus Gold sind mit der Haftschrift **415** in Kontakt. Eine aktive Schicht **440**, die wenigstens ein Quinacridon-Derivat enthält, ist auf die Schichten **410**, **420** und **430** aufgebracht. Das Quinacridon-Derivat in der aktiven Schicht **440** ist mit der Drainelektrode **420** und der Sourceelektrode **430** in Kontakt.

[0031] In einem bevorzugten Ausführungsbeispiel beträgt die Dicke des Gateoxids **410** 100 nm (Permittivität = 3,9) und der Haftschrift **415** 10 nm. Ein aktiver Kanal des Transistors **400** erstreckt sich von 1 μm bis 5 μm und ist durch den Abstand zwischen der Drain- und der Sourceelektrode definiert.

Beispiel 2

[0032] Transistoren auf Quinacridon-Derivatbasis können auf einer Substrat-Gate-Struktur hergestellt werden. Dazu wurde eine Gateoxidschicht aus SiO_2 (100 nm, Permittivität = 3,9) thermisch auf n-leitenden Si-Substraten (der Gateelektrode) aufgewachsen. Bildumkehrphotolithographie wurde zur Erzeugung einer Öffnung in einer Photoresistschicht für Source- und Drain-Strukturen verwendet. Metallische Source- und Drainschichten (leitfähiger Au-Film, 50 nm) wurden durch Vakuumdeposition oben auf die SiO_2 -Schicht auf einem dünnen Ti-Haftfilm (10 nm) aufgebracht.

[0033] Nach Deposition der Source- und Drainelektroden wurden übliche Ablöseprozesse in Acetonlösung benutzt, um die unnötigen Metallfilme auf der Photoresiststruktur zu entfernen. Die metallischen Sour-

ce-/Drain-Strukturen auf dem Gateoxidsubstrat wurden mit Isoprophylalkohol und mit deionisiertem Wasser gereinigt, gefolgt von einem Trocknungsprozess unter einer Stickstoffatmosphäre. Das Profil der Au-Elektroden wurde mittels AFM charakterisiert und zeigte entlang der gesamten Kanalbreite reguläre Strukturen mit sanfter Steigung. Alle Bauelemente hatten eine Kanallänge von 40 μm und eine Kanalbreite von 3000 μm .

Beispiel 3

[0034] In diesem Beispiel wurde der strukturierte Transistor vor der Deposition der aktiven Schicht gereinigt. Die Vorgänge waren wie folgt: Zuerst wurde der Transistor mit Aceton, Toluol, Methanol und 18-M Ω -Wasser in Folge gewaschen. Danach wurde der Transistor unter einer Stickstoffatmosphäre gehalten, bis er getrocknet war, und dann in eine UV-Ozonkammer transferiert. Der Transistor wurde unter einer UV-Ozonbehandlung für 15 min gereinigt und unter einer Stickstoffatmosphäre getrocknet. Es wurden jeweils OTFT-Bauelemente mit untenliegendem Kontakt und mit den Quinacridon-Derivaten als aktive Schichten hergestellt. Alle Transistoren wurden mit Quinacridon-Derivaten (Dicke = 50 nm; Depositionsrate = 2 $\text{\AA}/\text{s}$) auf den strukturierten Substraten unter Hochvakuumbedingungen ($1,0 \times 10^{-6}$ Torr) gefertigt.

Beispiel 4

[0035] Thermische Stabilitäten von Q1 bis Q8 wurden durch thermogravimetrische Analyse (TGA) vor der Vakuumdeposition charakterisiert. Die Zerfallstemperatur (T_d) wurde mit einer Abtastrate von 15°C/min unter einer Stickstoffatmosphäre gemessen, und die Ergebnisse sind in Tabelle 2 gelistet. Alle Quinacridon-Derivate sind für thermische Vakuumdeposition mit T_d bis zu 406°C für Q3 stabil.

Tabelle 2: Thermische Eigenschaften und Feldeffekteigenschaften von Q1 bis Q8.

Verbindung	TGA(°C)	Mobilität ($\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$)	$I_{\text{on}}/I_{\text{off}}$	Schwellwert (V)
Q1	401	1.5×10^{-3}	2×10^2	-18
Q2	375	-	-	-
Q3	406	-	-	-
Q4	393	-	-	-
Q5	373	-	-	-
Q6	375	1.5×10^{-3}	1×10^3	-4
Q7	376	3.1×10^{-3}	1×10^2	-12
Q8	388	1.0×10^{-1}	1×10^4	-17

Beispiel 5

[0036] Die Feldeffektbeweglichkeiten im Sättigungsbereich von mit Q1 bis Q8 gefertigten OTFTs wurden gemessen, und deren Leistungscharakteristika sind in Tabelle 2 gelistet. Q1 bis Q8 haben eine ähnliche chemische Struktur, das Verhalten ihrer Transistoren ist jedoch signifikant unterschiedlich. Nur Q1 und Q6 bis Q8 zeigen Feldeffektbeweglichkeiten in ihren zugehörigen OTFTs. Obwohl Q2 bis Q5 ähnliche chemische Strukturen wie ihre Gegenstücke Q6 bis Q8 haben und sich nur dadurch unterscheiden, dass sie keine mit dem Quinacridon-Kern verbundene Methylgruppen haben, wurde in diesen Transistoren auf Quinacridon-Derivatbasis kein Transistorverhalten beobachtet.

[0037] In dieser Erfindung wurde gefunden, dass N,N'-Di(n-octyl)-1,3,8,10-tetramethylquinacridon Q8 die beste Feldeffektbeweglichkeit zeigt. Die [Fig. 2](#) und [Fig. 3](#) veranschaulichen Ausgangs- und Transferkennlinien von mit Q8 gefertigten organischen Transistoren. Das Bauelement zeigt typisches FET-Verhalten vom p-Typ sowohl im Sättigungsbereich als auch im linearen Bereich, das mit demjenigen herkömmlicher Transistorausführungen vergleichbar ist. Es wurden eine Feldebeweglichkeit von bis zu $1 \times 10^{-1} \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ und ein An/Aus-Stromverhältnis ($I_{\text{on}}/I_{\text{off}}$) von bis zu ungefähr 10^4 erhalten.

[0038] Mit N,N'-Di(n-butyl)- oder N,N'-Di(n-hexyl)-1,3,8,10-tetramethylquinacridon Q6, Q7 gefertigte Bauelemente zeigten zudem Feldeffektbeweglichkeiten von $1,5 \times 10^{-3} \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ bzw. $3,1 \times 10^{-3} \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$. Zum Vergleich zeigte ein Bauelement, das mit Q1 gefertigt wurde, welches N,N'-Dimethyl-Substituenten am Quinacridon-Kern aufweist, eine Mobilität von $1,5 \times 10^{-3} \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$. Die Feldeffektbeweglichkeit von OTFTs auf Quinacri-

don-Basis steigt mit zunehmender Alkylseitenkettenlänge des Quinacridon-Bestandteils.

Beispiel 6

[0039] Die Schichtmorphologien von Q1 bis Q3, Q6 und Q8 auf einer Siliciumdioxidoberfläche wurden jeweils unter gleichen Bedingungen mittels SEM charakterisiert. Alle Schichten wurden mit einer Depositionsrate von 2 \AA s^{-1} abgeschieden. Wie in **Fig. 4** ersichtlich, ergibt Q1 einen homogenen Packungsfilm mit kleinen Kristallkörnern, und die Feldeffektbeweglichkeit von OTFTs auf Q1-Basis betrug $1,5 \times 10^{-3} \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$. Q1 und Q2, die N,N'-Diethyl- und N,N'-Di(n-butyl)-Seitenketten enthalten, ergeben diskontinuierliche flache Kristalle mit großen Lücken und großen Abständen voneinander, siehe die **Fig. 5** und **Fig. 6**. Die kaum gebundenen flachen Kristalle von Q2 und Q3 resultieren in geringerer π - π -Wechselwirkung zwischen ihren benachbarten Molekülen.

[0040] Verglichen mit Q3 zeigte Q6, das N,N'-Di(n-butyl)-Gruppen und vier Methyl-Substituenten am Quinacridon-Kern enthält, eine Feldeffektbeweglichkeit von $1,5 \times 10^{-3} \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$. Dieses Resultat wird durch die SEM-Aufnahme des Q6-Films gestützt, siehe **Fig. 7**, bei der eine polykristalline Kornstruktur beobachtet wurde. Durch Erhöhen der Kettenlängen von $-\text{C}_4\text{H}_9$ (Q6) bis $-\text{C}_8\text{H}_{17}$ (Q8) geht die Kristallpackungsstruktur von lockeren (Q6, **Fig. 7**) zu kompakten Kornstrukturen (Q8, **Fig. 8**) über. Es ist klar, dass eine kondensierte Kristallstruktur für Ladungsträgerfluss viel günstiger ist. Dementsprechend betrug die Feldeffektbeweglichkeit von OTFTs auf Q6-Basis $1,5 \times 10^{-3} \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$, was zwei Größenordnungen niedriger ist als die für Q8 berichtete Feldeffektbeweglichkeit (Tabelle 2).

[0041] Diese Resultate ergeben, dass die Ladungsträgerbeweglichkeit von Quinacridon-Molekülen stark von der Filmmorphologie abhängt, die ihrerseits von der chemischen Struktur der Moleküle abhängt. Die Anwesenheit von vier Methyl-Substituenten und langen N,N'-Di(n-octyl)Seitenketten in Q8 induziert die Bildung einer dichten und gepressten Kristallpackungsstruktur mit polykristallinen Körnern. Die Mobilität von OTFTs auf Q8-Basis ($10^{-1} \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$) war etwa um den Faktor 100 besser als diejenige der anderen entsprechenden Quinacridon-Derivate ($\sim 10^{-3} \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$).

[0042] Die obigen Erläuterungen und Beispiele sind lediglich illustrativ für bevorzugte Ausführungsformen, mit denen die Ziele, Merkmale und Vorteile der Erfindung erzielt werden, und sind nicht zur Beschränkung der Erfindung hierauf gedacht. Jegliche Modifikationen der Erfindung innerhalb des Umfangs der zugehörigen Ansprüche sind Teil der Erfindung.

Literaturliste

[0043] Die nachfolgenden Referenzen einschließlich Patenten, Patentanmeldungen und den anderen Veröffentlichungen, auf die in dieser Anmeldung Bezug genommen wird, werden durch Verweis hierin aufgenommen:

1. G. Horowitz, Organic field-effect transistors, *Adv. Mater.* 1998, 10, 365–377.
2. C. D. Sheraw, L. Zhou, J. R. Huang, D. J. Gundlach, T. N. Jackson, M. G. Kane, I. G. Hill, M. S. Hammond, J. Campi, B. K. Greening, J. Francl, J. West, Organic thin-film transistor-driven polymer-dispersed liquid crystal displays on flexible polymeric substrates, *Appl. Phys. Lett.* 2002, 80, 1088–1090.
3. C. Bartic, A. Campitelli, S. Borghs, Field-effect detection of chemical species with hybrid organic/inorganic transistors, *Appl. Phys. Lett.* 2003, 82, 475–477.
4. M. L. Chabinyo, A. Salleo, Materials requirements and fabrication of active matrix arrays of organic thin-film transistors for displays, *Chem. Mater.*, 2004, 16, 4509–4521.
5. Y. Inoue, S. Tokito, Organic thin-film transistors based on anthracene oligomers, *J. Appl. Phys.* 2004, 95, 5795–5799.
6. C. D. Sheraw, T. N. Jackson, D. L. Eaton, J. E. Anthony, Functionalized pentacene active layer organic thin-film transistors, *Adv. Mater.* 2003, 15, 2009–2011.
7. J. Zhang, H. Wang, X. Van, J. Wang, J. Shi, D. Van, Phthalocyanine Composites as high-mobility semiconductors for organic thin-film transistors, *Adv. Mater.* 2005, 17, 1191–1193.
8. B. J. Batlogg, C. Kloc, J. H. Schön, Thin film transistors, U.S. Patent No. 6,284,562.
9. M. Shtein, S. R. Forrest, Method of manufacturing high-mobility organic thin films using organic vapor phase deposition, U.S. Patent No. 6,734,038 B2
10. D. P. Knipp, J. E. Northrup, R. A. Street, Method for producing organic electronic devices on deposited dielectric materials, U.S. Patent No. 6,869,821 B2.
11. H. Meng, F. Sun, M. B. Goldfinger, G. D. Jaycox, Z. Li, W. J. Marshall, G. S. Blackman, High-performance,

stable organic thin-film field-effect transistors based on bis-5'-alkylthiophen-2'-yl-2,6-anthracene semiconductors, *J. Am. Chem. Soc.* 2005, 127, 2406–2407.

12. M. M. Payne, S. R. Parkin, J. E. Anthony, C. C. Kuo, T. N. Jackson, Organic field-effect transistors from solution-deposited functionalized acenes with mobilities as high as $1 \text{ cm}^2/\text{Vs}$, *J. Am. Chem. Soc.* 2005, 127, 4986–4987.

13. H. E. Katz, L. Torsi, A. Dodabalapur, Synthesis, material properties, and transistor performance of highly pure thiophene oligomers, *Chem. Mater.* 1995, 7, 2235–2237.

14. H. Yang, T. J. Shin, L. Yang, K. Cho, C. Y. Ryu, Z. Bao, Effect of mesoscale crystalline structure on the field-effect mobility of regioregular poly(3-hexyl thiophene) in thin-film transistors, *Adv. Funct. Mater.* 2005, 15, 671–676.

15. F. Gamier, A. Yassar, R. Hajlaoui, G. Horowitz, F. Deloffre, B. Servet, S. Ries, P. Alnot, Molecular engineering of organic semiconductors: design of self-assembly properties in conjugated thiophene oligomers, *J. Am. Chem. Soc.* 1993, 115, 8716–8721.

16. H. E. Katz, J. G. Laquindanum, A. J. Lovinger, Synthesis, solubility, and field-effect mobility of elongated and oxa-substituted $[\alpha]$, $[\omega]$ -Dialkyl thiophene oligomers, extension of "polar intermediate" synthetic strategy and solution deposition on transistor substrates, *Chem. Mater.* 1998, 10, 633–638.

17. V. A. L. Roy, Y. G. Zhi, Z. X. Xu, S. C. Yu, P. W. H. Chan, C. M. Che, Functionalized arylacetylene oligomers for organic thin-film transistors (OTFTs). *Adv. Mater.* 2005, 17, 1258–1261.

18. H. Sirringhaus, R. H. Friend, C. Wang, J. Leuninger, K. Mullen, Dibenzothienobisbenzothiophene – a novel fused-ring oligomer with high field-effect mobility, *J. Mater. Chem.* 1999, 9, 2095–2101.

19. X. C. Li, H. Sirringhaus, F. Gamier, A. B. Holmes, S. C. Moratti, N. Feeder, W. Clegg, S. J. Teat, R. H. Friend, A highly $[\pi]$ -stacked organic semiconductor for thin film transistors based on fused thiophenes, *J. Am. Chem. Soc.* 1998, 120, 2206–2207.

20. Q. Miao, T. Q. Nguyen, T. Someya, G. B. Blanchet, and C. Nuckolls, Synthesis, assembly, and thin film transistors of dihydrodiazapentacene: an isostructural motif for pentacene. *J. Am. Chem. Soc.* 2003, 125, 10284–10278.

21. K. Takimiya, Y. Kunugi, Y. Konda, N. Niihara, T. Otsubo, 2,6-Diphenylbenzo[1,2-b:4,5-b']dichalcogenophenes: a new class of high-performance semiconductors for organic field-effect transistors, *J. Am. Chem. Soc.* 2004, 126, 5084–5085.

22. E. M. Gross, J. D. Anderson, A. F. Slaterbeck, S. Thayumanavan, S. Barlow, Y. Zhang, S. R. Marder, H. K. Hall, M. Flore Nabor, J. F. Wang, E. A. Mash, N. R. Armstrong, R. M. Wightman, Electrogenated chemiluminescence from derivatives of aluminum quinolate and quinacridones: cross-reactions with triarylamine lead to singlet emission through triplet-triplet annihilation pathways, *J. Am. Chem. Soc.* 2000, 122, 4972–4979.

23. K. Ye, J. Wang, H. Sun, Y. Liu, Z. Mu, F. Li, S. Jiang, J. Zhang, H. Zhang, Y. Wang, C. M. Che, Supramolecular structures and assembly and luminescent of quinacridone derivatives, *J. Phys. Chem. B* 2005, 109, 8008–8016.

24. J. Shi, C. W. Tang, Doped organic electroluminescent devices with improved stability, *Appl. Phys. Lett.* 1997, 70, 1665–1667.

25. M. Hiramoto, S. Kawase, M. Yokohama, Photoinduced hole injection multiplication in p-type quinacridone pigment films, *Jpn. J. Appl. Phys.* 1996, 35, L349–L351.

Zusammenfassung

1. Organischer Feldeffekttransistor und Herstellungsverfahren hierfür.

2.1. Die Erfindung bezieht sich auf einen organischen Feldeffekttransistor mit einer Gateelektrode, einer Metalloxidschicht, einer Haftschrift, einer Drainelektrode, einer Sourceelektrode und einer aktiven Schicht sowie auf ein zugehöriges Herstellungsverfahren und Verwendungsmöglichkeiten.

2.2. Erfindungsgemäß weist die aktive Schicht wenigstens ein Quinacridon-Derivat auf.

2.3. Verwendung z. B. in Flachbildschirmanzeigen und photovoltaischen Bauelementen.

3. Fig. 1.

ZITATE ENTHALTEN IN DER BESCHREIBUNG

Diese Liste der vom Anmelder aufgeführten Dokumente wurde automatisiert erzeugt und ist ausschließlich zur besseren Information des Lesers aufgenommen. Die Liste ist nicht Bestandteil der deutschen Patent- bzw. Gebrauchsmusteranmeldung. Das DPMA übernimmt keinerlei Haftung für etwaige Fehler oder Auslassungen.

Zitierte Patentliteratur

- US 6284562 [0005, 0043]
- US 6734038 B2 [0005, 0043]
- US 6869821 B2 [0005, 0043]

Zitierte Nicht-Patentliteratur

- Hornwitz, Adv. Mater., 10: 365 (1998) [0003]
- Sheraw et al., Appl. Phys. Lett., 80: 1088 (2002) [0003]
- Bartic et al., Appl. Phys. Lett., 82: 475 (2003) [0003]
- Chabinyk et al. Chem. Mater., 16: 4509 (2004) [0003]
- Inoue et al., J. Appl. Phys., 95: 5795 (2004) [0004]
- Sheraw et al., Adv. Mater., 25: 2009 (2003) [0004]
- Yan et al., Adv. Mater., 17: 1191 (2005) [0004]
- Meng et al., J. Am. Chem. Soc., 127: 2406 (2005) [0005]
- Anthony et al., J. Am. Chem. Soc., 127: 4986 (2005) [0005]
- Katz et al., Chem. Mater., 7: 2235 (1995) [0006]
- Yang et al., Adv. Funct. Mater., 15: 671 (2005) [0006]
- Garnier et al., J. Am. Chem. Soc., 115: 8716 (1993) [0006]
- Katz et al., Chem. Mater., 10: 633 (1998) [0006]
- Che et al., Adv. Mater., 17: 1258 (2005) [0006]
- Sirringhaus et al., J. Mater. Chem., 9: 2095 (1999) [0007]
- Holmes et al., J. Am. Chem. Soc., 120: 2206 (1998) [0007]
- Nuckolls et al., J. Am. Chem. Soc., 125: 10284 (2003) [0007]
- Takimiya et al., J. Am. Chem. Soc., 126: 5084 (2004) [0007]
- Wightman et al., J. Am. Chem. Soc., 122: 4972 (2000) [0008]
- Wang et al., J. Phys. Chem. B, 109: 8008 (2005) [0008]
- Shi et al., Appl. Phys. Lett., 70: 1665 (1997) [0008]
- Hiramoto et al., Jpn. J. Appl. Phys., 35: L349 (1996) [0008]
- G. Horowitz, Organic field-effect transistors, Adv. Mater. 1998, 10, 365–377. [0043]
- C. D. Sheraw, L Zhou, J. R. Huang, D. J. Gundlach, T. N. Jackson, M. G. Kane, I. G. Hill, M. S. Hammond, J. Campi, B. K. Greening J. Francl, J. West, Organic thin-film transistor-driven polymer-dispersed liquid crystal displays on flexible polymeric substrates, Appl. Phys. Lett. 2002, 80, 1088–1090. [0043]
- C. Bartic, A. Campitelli, S. Borghs, Field-effect detection of chemical species with hybrid organic/inorganic transistors, Appl. Phys. Lett. 2003, 82, 475–477. [0043]
- M. L. Chabinyk, A. Salleo, Materials requirements and fabrication of active matrix arrays of organic thin-film transistors for displays, Chem. Mater., 2004, 16, 4509–4521. [0043]
- Y. Inoue, S. Tokito, Organic thin-film transistors based on anthracene oligomers, J. Appl. Phys. 2004, 95, 5795–5799. [0043]
- C. D. Sheraw, T. N. Jackson, D. L. Eaton, J. E. Anthony, Functionalized pentacene active layer organic thin-film transistors, Adv. Mater. 2003, 15, 2009–2011. [0043]
- J. Zhang, H. Wang, X. Van, J. Wang, J. Shi, D. Van, Phthalocyanine Composites as high-mobility semiconductors for organic thin-film transistors, Adv. Mater. 2005, 17, 1191–1193. [0043]
- H. Meng, F. Sun, M. B. Goldfinger, G. D. Jaycox, Z. Li, W. J. Marshall, G. S. Blackman, High-performance, stable organic thin-film field-effect transistors based on bis-5'-alkylthiophen-2'-yl-2,6-anthracene semiconductors, J. Am. Chem. Soc. 2005, 127, 2406–2407. [0043]
- M. M. Payne, S. R. Parkin, J. E. Anthony, C. C. Kuo, T. N. Jackson, Organic field-effect transistors from solution-deposited functionalized acenes with mobilities as high as 1 cm²/[V·s], J. Am. Chem. Soc. 2005, 127, 4986–4987. [0043]
- H. E. Katz, L. Torsi, A. Dodabalapur, Synthesis, material properties, and transistor performance of highly pure thiophene oligomers, Chem. Mater. 1995, 7, 2235–2237. [0043]
- H. Yang, T. J. Shin, L. Yang, K. Cho, C. Y. Ryu, Z. Bao, Effect of mesoscale crystalline structure on the field-effect mobility of regioregular poly(3-hexyl thiophene) in thin-film transistors, Adv. Funct. Mater. 2005,

15, 671–676. [0043]

- F. Gamier, A. Yassar, R. Hajlaoui, G. Horowitz, F. Deloffre, B. Servet, S. Ries, P. Alnot, Molecular engineering of organic semiconductors: design of self-assembly properties in conjugated thiophene oligomers, *J. Am. Chem. Soc.* 1993, 115, 8716–8721. [0043]

- H. E. Katz, J. G. Laquindanum, A. J. Lovinger, Synthesis, solubility, and field-effect mobility of elongated and oxa-substituted [alpha], [omega]-Dialkyl thiophene oligomers, extension of "polar intermediate" synthetic strategy and solution deposition on transistor substrates, *Chem. Mater.* 1998, 10, 633–638. [0043]

- V. A. L. Roy, Y. G. Zhi, Z. X. Xu, S. C. Yu, P. W. H. Chan, C. M. Che, Functionalized arylacetylene oligomers for organic thin-film transistors (OTFTs). *Adv. Mater.* 2005, 17, 1258–1261. [0043]

- H. Sirringhaus, R. H. Friend, C. Wang, J. Leuninger, K. Mullen, Dibenzothienobisbenzothiophene – a novel fused-ring oligomer with high field-effect mobility, *J. Mater. Chem.* 1999, 9, 2095–2101. [0043]

- X. C. Li, H. Sirringhaus, F. Gamier, A. B. Holmes, S. C. Moratti, N. Feeder, W. Clegg, S. J. Teat, R. H. Friend, A highly [pi]-stacked organic semiconductor for thin film transistors based on fused thiophenes, *J. Am. Chem. Soc.* 1998, 120, 2206–2207. [0043]

- Q. Miao, T. Q. Nguyen, T. Someya, G. B. Blanchet, and C. Nuckolls, Synthesis, assembly, and thin film transistors of dihydrodiazapentacene: an isostructural motif for pentacene. *J. Am. Chem. Soc.* 2003, 125, 10284–10278. [0043]

- K. Takimiya, Y. Kunugi, Y. Konda, N. Niihara, T. Otsubo, 2,6-Diphenylbenzo[1,2-b:4,5-b']dichalcogenophenes: a new class of high-performance semiconductors for organic field-effect transistors, *J. Am. Chem. Soc.* 2004, 126, 5084–5085. [0043]

- E. M. Gross, J. D. Anderson, A. F. Slaterbeck, S. Thayumanavan, S. Barlow, Y. Zhang, S. R. Marder, H. K. Hall, M. Flore Nabor, J. F. Wang, E. A. Mash, N. R. Armstrong, R. M. Wightman, Electrogenated chemiluminescence from derivatives of aluminum quinolate and quinacridones: cross-reactions with triaryl amines lead to singlet emission through triplet-triplet annihilation pathways, *J. Am. Chem. Soc.* 2000, 122, 4972–4979. [0043]

- K. Ye, J. Wang, H. Sun, Y. Liu, Z. Mu, F. Li, S. Jiang, J. Zhang, H. Zhang, Y. Wang, C. M. Che, Supramolecular structures and assembly and luminescent of quinacridone derivatives, *J. Phys. Chem. B* 2005, 109, 8008–8016. [0043]

- J. Shi, C. W. Tang, Doped organic electroluminescent devices with improved stability, *Appl. Phys. Lett.* 1997, 70, 1665–1667. [0043]

- M. Hiramoto, S. Kawase, M. Yokohama, Photoinduced hole injection multiplication in p-type quinacridone pigment films, *Jpn. J. Appl. Phys.* 1996, 35, L349–L351. [0043]

Patentansprüche

1. Organischer Feldeffekttransistor mit einer Gateelektrode, einer Metalloxidschicht, einer Haftschicht, einer Drainelektrode, einer Sourcelektrode und einer aktiven Schicht, die wenigstens ein Quinacridon-Derivat beinhaltet.

2. Organischer Feldeffekttransistor nach Anspruch 1, wobei die Gateelektrode aus Silicium, dotiertem Silicium oder Aluminium besteht.

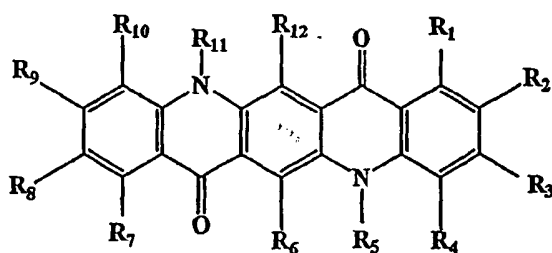
3. Organischer Feldeffekttransistor nach Anspruch 1, wobei die Metalloxidschicht aus Siliciumoxid oder Aluminiumoxid besteht.

4. Organischer Feldeffekttransistor nach Anspruch 1, wobei die Haftschicht eine Titanschicht oder eine Wolframschicht oder eine Chromschicht ist.

5. Organischer Feldeffekttransistor nach Anspruch 1, wobei die Drainelektrode aus einer Goldschicht oder einer Platinschicht besteht.

6. Organischer Feldeffekttransistor nach Anspruch 1, wobei die Sourcelektrode aus einer Goldschicht oder einer Platinschicht besteht.

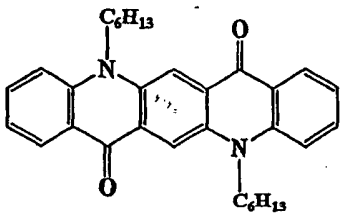
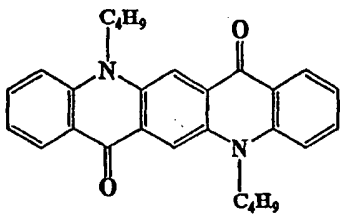
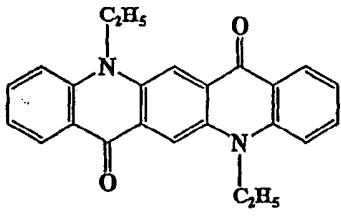
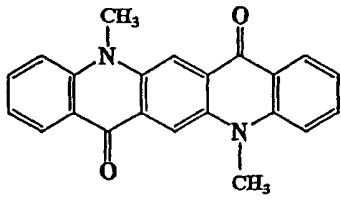
7. Organischer Feldeffekttransistor nach Anspruch 1, wobei das Quinacridon-Derivat folgende chemische Formel I besitzt:

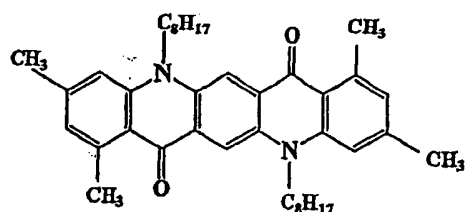
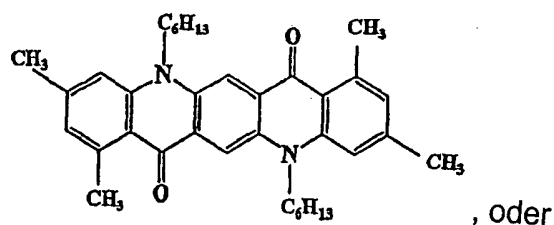
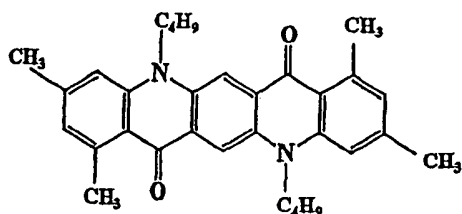
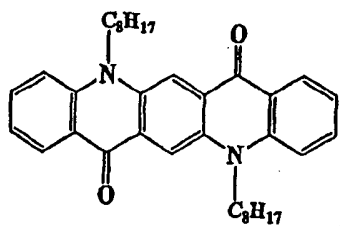


(I)

wobei R^1 - R^{12} unabhängig voneinander -H, -OH, -NH₂, -halogen, -SH, -CN, -NO₂, -R¹³, -OR¹⁴, -SR¹⁴, -NHR¹⁴ oder -N(R¹⁴)₂ sind, jedes R¹³ -(C₁-C₃₀)alkyl, -phenyl, -naphthyl oder -thiophen ist, und zwar jeweils unsubstituiert oder mit einem oder mehreren von -C₁-C₁₅)alkyl, -phenyl, -naphthyl oder -thiophen substituiert, und R¹⁴ wie R¹³ oben definiert ist.

8. Organischer Feldeffekttransistor nach Anspruch 7, wobei das Quinacridon-Derivat eine Verbindung mit der folgenden Struktur ist:





9. Organischer Feldeffekttransistor nach Anspruch 7, wobei das Quinacridon-Derivat die Drainelektrode oder die Sourcelektrode kontaktiert.

10. Organischer Feldeffekttransistor nach Anspruch 7, wobei das Quinacridon-Derivat als löchertransportierendes Material fungiert, um einen Stromfluss unter einer Vorspannung zu leiten.

11. Organischer Feldeffekttransistor nach Anspruch 7, wobei der Stromfluss mindestens im μA -Bereich liegt.

12. Organischer Feldeffekttransistor nach Anspruch 7, wobei die Feldeffektbeweglichkeit mindestens $0,1 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ beträgt und ein An/Aus-Stromverhältnis mindestens 10^4 beträgt.

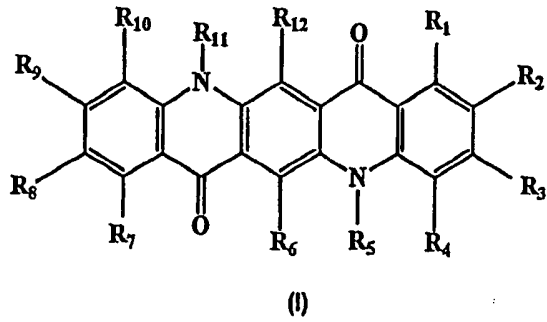
13. Organischer Feldeffekttransistor nach Anspruch 7, wobei er Teil einer Flachbildschirmanzeige, eines photovoltaischen Bauelements oder eines Sensors ist.

14. Verfahren zur Herstellung eines organischen Feldeffekttransistors, mit folgenden Schritten:

- Bereitstellen eines Gateoxids auf einer Gateelektrode,
- Bereitstellen einer dünnen Haftschrift auf der Gateelektrode,
- Bereitstellen einer Drainelektrode und einer Sourcelektrode in Kontakt mit der Haftschrift und
- Bereitstellen einer Schicht mit einem Quinacridon-Derivat in Kontakt mit der Drainelektrode und der Sourcelektrode.

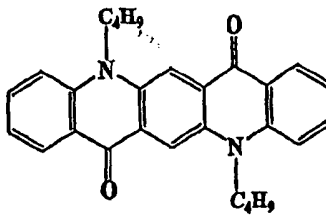
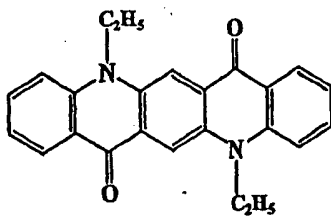
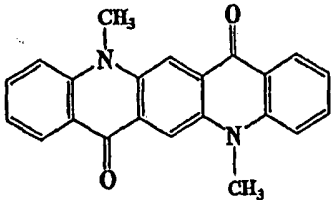
15. Verfahren nach Anspruch 14, wobei die Drain- und die Sourcelektrode aus Gold oder Platin gefertigt werden.

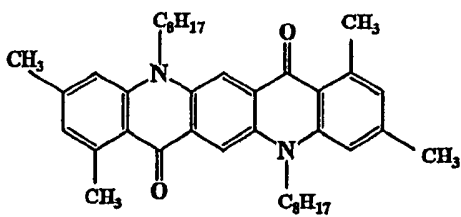
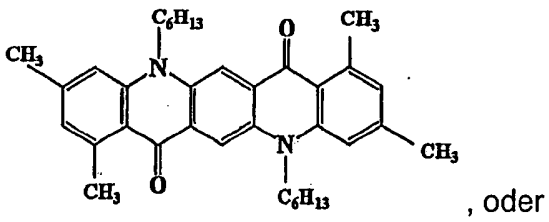
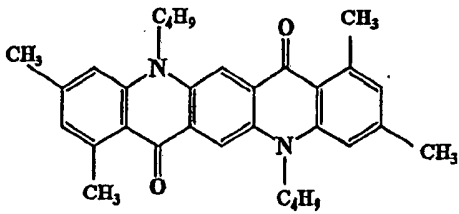
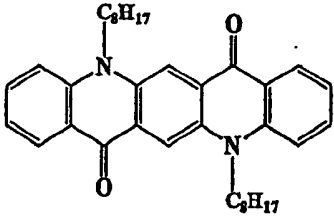
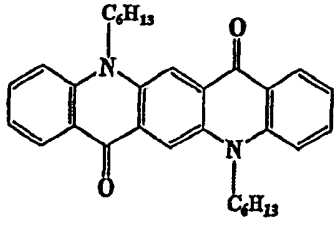
16. Verfahren nach Anspruch 14, wobei das Quinacridon-Derivat folgende chemische Formel I besitzt:



wobei R^1 - R^{12} unabhängig voneinander -H, -OH, -NH₂, -halogen, -SH, -CN, -NO₂, -R¹³, -OR¹⁴, -SR¹⁴, -NHR¹⁴ oder -N(R¹⁴)₂ sind, jedes R¹³ -(C₁-C₃₀)alkyl, -phenyl, -naphthyl oder -thiophen ist, und zwar jeweils unsubstituiert oder mit einem oder mehreren von -C₁-C₁₅)alkyl, -phenyl, -naphthyl oder -thiophen substituiert, und R¹⁴ wie R¹³ oben definiert ist.

17. Verfahren nach Anspruch 16, wobei das Quinacridon-Derivat folgende Struktur aufweist:



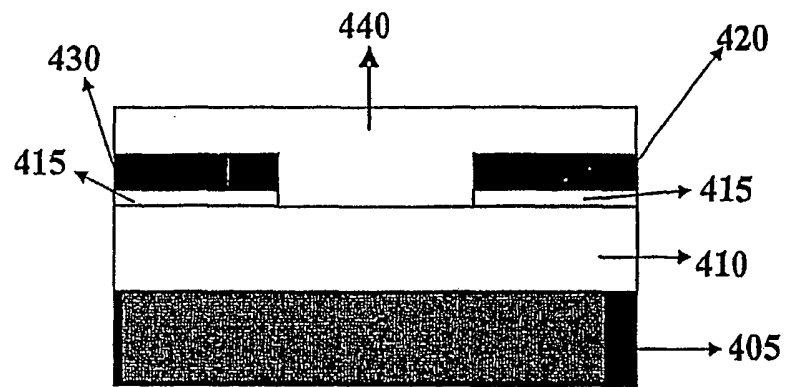


18. Flachbildschirmanzeige mit wenigstens einem organischen Feldeffekttransistor nach Anspruch 7.

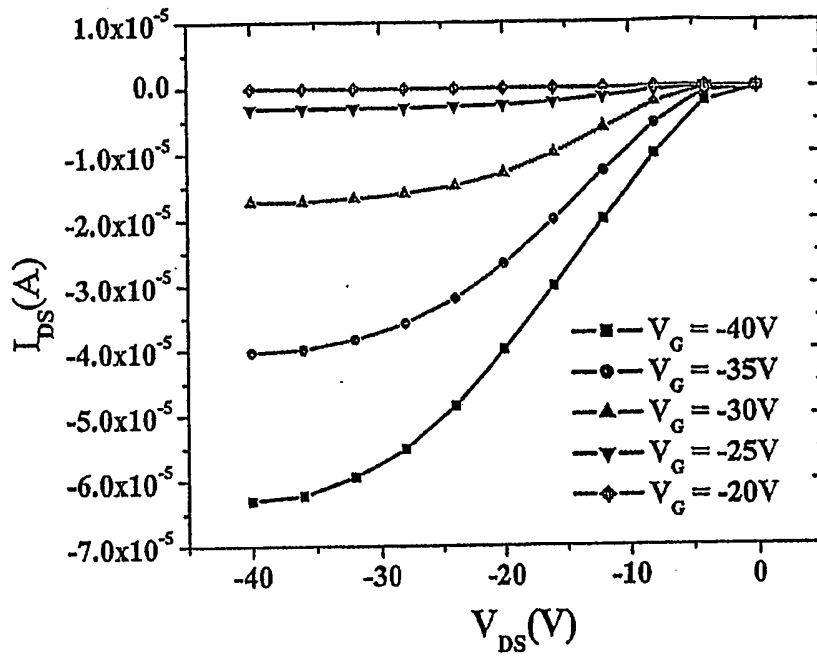
19. Photovoltaisches Bauelement mit wenigstens einem organischen Feldeffekttransistor nach Anspruch 7.

Es folgen 8 Blatt Zeichnungen

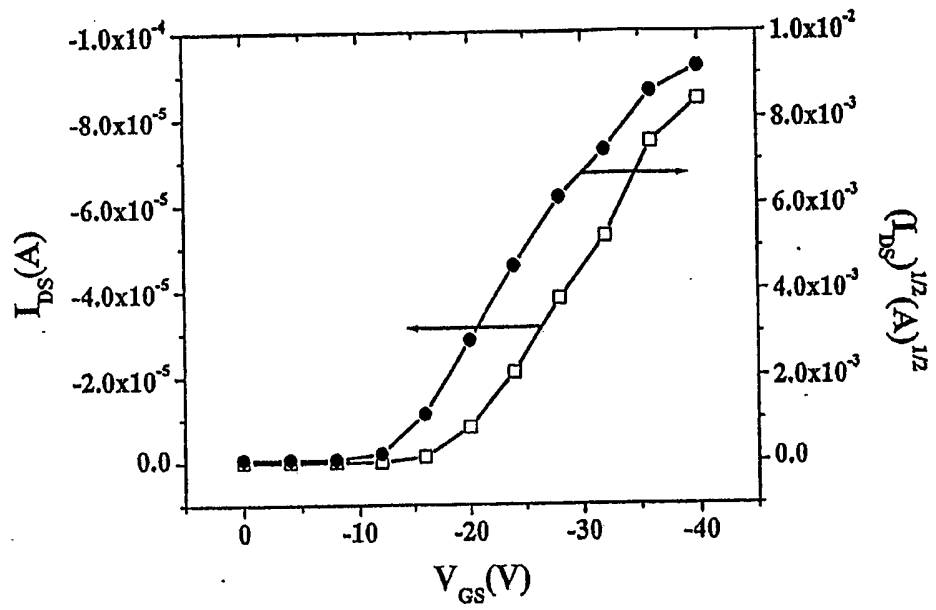
Anhängende Zeichnungen



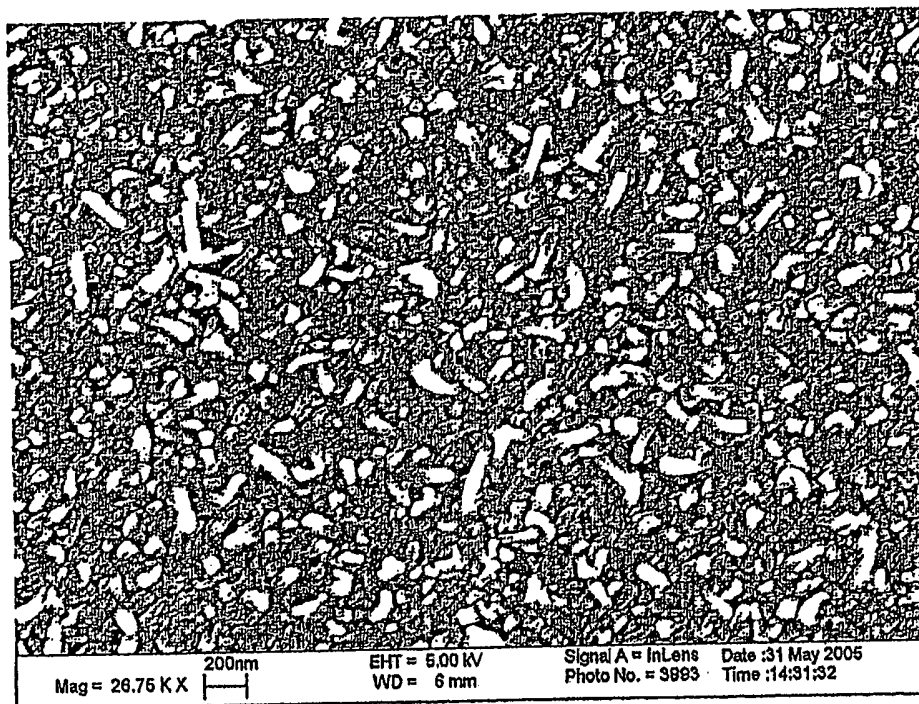
Figur 1



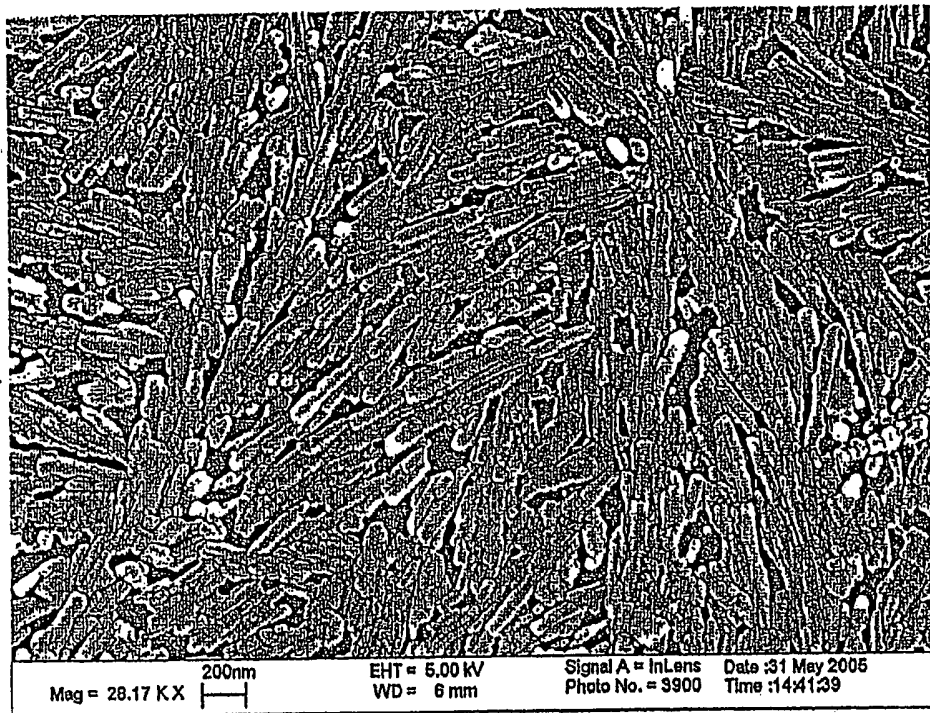
Figur 2



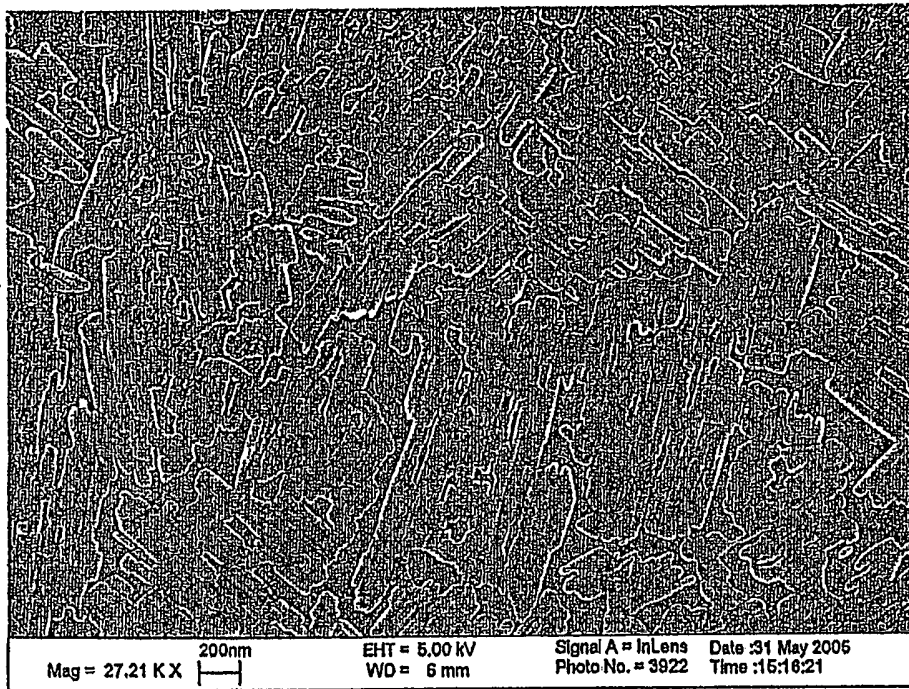
Figur 3



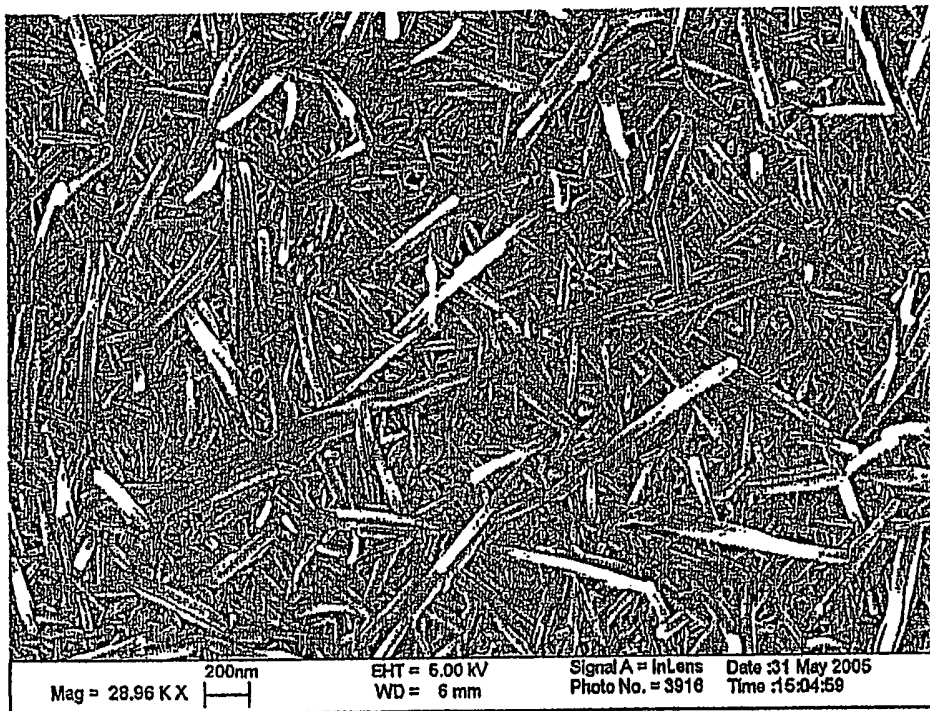
Figur 4



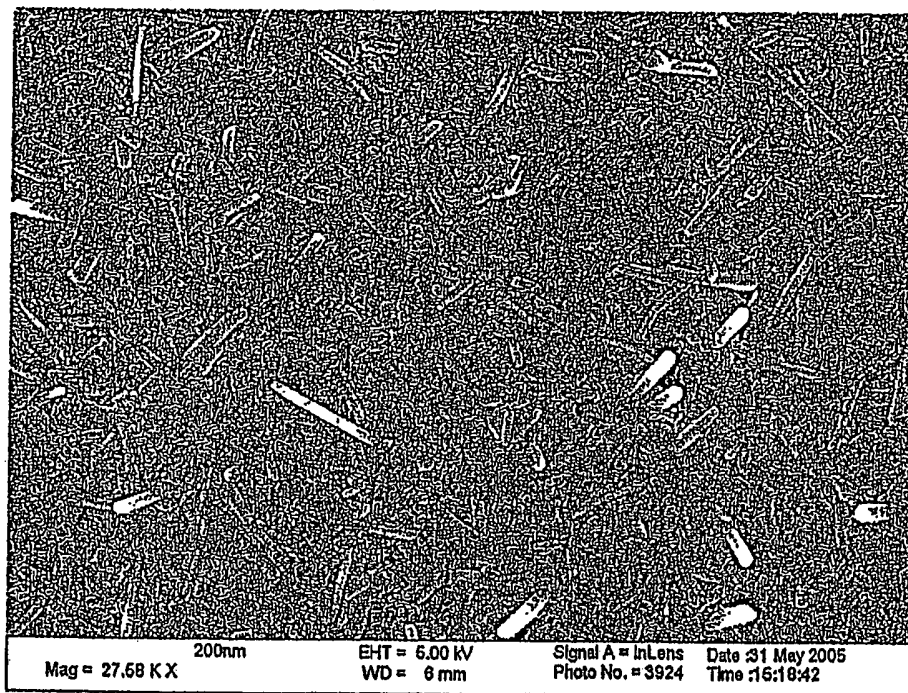
Figur 5



Figur 6



Figur 7



Figur 8