

【公報種別】特許法第 17 条の 2 の規定による補正の掲載

【部門区分】第 7 部門第 2 区分

【発行日】平成30年6月14日 (2018.6.14)

【公表番号】特表2017-516317(P2017-516317A)

【公表日】平成29年6月15日 (2017.6.15)

【年通号数】公開・登録公報2017-022

【出願番号】特願2017-508760(P2017-508760)

【国際特許分類】

H 0 1 L 51/50 (2006.01)

H 0 5 B 33/28 (2006.01)

H 0 5 B 33/22 (2006.01)

H 0 5 B 33/14 (2006.01)

H 0 5 B 33/10 (2006.01)

H 0 1 L 33/42 (2010.01)

H 0 1 L 33/26 (2010.01)

C 0 9 K 11/06 (2006.01)

【 F I 】

H 0 5 B 33/14 B

H 0 5 B 33/22 B

H 0 5 B 33/22 D

H 0 5 B 33/22 A

H 0 5 B 33/28

H 0 5 B 33/22 Z

H 0 5 B 33/22 C

H 0 5 B 33/14 Z

H 0 5 B 33/10

H 0 1 L 33/42

H 0 1 L 33/26

C 0 9 K 11/06 6 0 2

【手続補正書】

【提出日】平成30年4月26日 (2018.4.26)

【手続補正 1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

第 1 の電荷注入層に連結された第 1 の電極、

第 2 の電荷注入層に連結された第 2 の電極、

第 1 及び第 2 の電荷注入層の間に設けられた、ペロブスカイト材料を含む放出層  
を含み、第 1 及び第 2 の電荷注入層のバンドギャップが、放出ペロブスカイト層のバンド  
ギャップよりも大きく、

前記電荷注入層又は前記放出層の少なくとも 1 つが半導体材料で形成される、  
固相発光デバイス。

【請求項 2】

第 1 の電荷注入層に連結された第 1 の電極、

第 2 の電荷注入層に連結された第 2 の電極、

第 1 及び第 2 の電荷注入層の間に設けられた、ペロブスカイト材料を含む放出層を含み、前記第 1 の電荷注入層が正孔注入高分子電解質であり、前記第 2 の電荷注入層が放出ペロブスカイト層のバンドギャップよりも大きいバンドギャップを有する固相発光デバイス。

【請求項 3】

前記電荷注入層の少なくとも 1 つが、1 . 5 e V から 5 e V の光学バンドギャップを有する、かつ / 又は、

前記放出層が 1 0 0 n m 未満の厚さを有する、かつ / 又は、

前記電荷注入層の少なくとも 1 つが、有機半導体材料で形成される、請求項 1 又は 2 に記載の固相発光デバイス。

【請求項 4】

前記電荷注入層が、正孔注入有機半導体材料であり、PEDOT : PSS、PANI (ポリアニリン)、ポリピロール、任意選択で置換されたドーブ型ポリ (エチレンジオキシチオフェン) (PEDOT) からなる群から選択される、かつ / 又は、

前記電荷注入層が、電子注入有機半導体材料であり、ポリ (フルオレン)、好ましくは F 8、TFB、F 8 BT、又は F 8 - TFB AB コポリマー (9 5 : 5 F 8 : TFB) からなる群から選択される、かつ / 又は、

前記電荷注入層が、電子注入無機半導体材料であり、二酸化チタン (TiO<sub>2</sub>)、酸化亜鉛 (ZnO)、酸化マグネシウム亜鉛 (MgZnO)、及びアルミニウムドーブ型 ZnO (AZO) からなる群から選択される、かつ / 又は、

前記電荷注入層が、正孔注入有機半導体材料であり、ポリフルオレン (好ましくは、F 8、TFB、PFB、又は F 8 - TFB)、又はスピロ - OM e TAD、又はポリカルバゾール [好ましくは、ポリ (9 - ビニルカルバゾール)]、又は 4 , 4 ' - ビス (N - カルバゾリル) - 1 , 1 ' - ビフェニルからなる群から選択される、請求項 1 から 3 のいずれか一項に記載の固相発光デバイス。

【請求項 5】

第 1 及び第 2 の電極の少なくとも 1 つが、透明導電性材料で形成され、任意的に、

前記電極がアノードであり、前記透明導電性材料が、酸化インジウムスズ (ITO)、フッ素ドーブ型酸化スズ (FTO)、酸化インジウム亜鉛、グラフェン、カーボンナノチューブ、及び金属であって 2 0 n m 未満の厚さを持つものから選択される、請求項 1 から 4 のいずれか一項に記載の固相発光デバイス。

【請求項 6】

前記電荷注入層のいずれか又は両方と前記発光層との間に形成された薄い絶縁層があり、任意的に、前記絶縁層が、原子層堆積、ALD によって堆積される、請求項 1 から 5 のいずれか一項に記載の固相発光デバイス。

【請求項 7】

前記絶縁層が、酸化物又は窒化物で形成され、3 0 n m 未満の厚さを有する、或いは、

前記絶縁層が、酸化アルミニウム、二酸化ケイ素、窒化ケイ素、酸化アルミニウムで改質された酸化亜鉛、酸化ニッケル、又は酸化マグネシウムからなる群から選択される、或いは、

前記絶縁層が、絶縁ポリマーで形成され、ポリ (エチレンイミン) (PEI)、エトキシ化ポリエチレンイミン (PEIE)、ポリスチレン (PS)、及びポリ (メチルメタクリレート) (PMMA) からなる群から選択される、請求項 6 に記載の固相発光デバイス

。

【請求項 8】

三酸化モリブデン及び三酸化タングステンから選択される材料の、< 3 0 n m の薄層が、前記透明導電性電極と前記ペロブスカイト層との間、電荷注入層と導電性電極との間、前記透明導電性電極と電荷注入層との間、前記ペロブスカイト層と電荷注入層との間、又は前記ペロブスカイト層と導電性電極との間に堆積される、請求項 1 から 7 のいずれか一項に記載のデバイス。

## 【請求項 9】

前記ペロブスカイトが、有機金属ハロゲン化物ペロブスカイト材料又は金属ハロゲン化物ペロブスカイト材料である、請求項 1 から 8 のいずれか一項に記載の固相発光デバイス。

## 【請求項 10】

前記有機金属ハロゲン化物ペロブスカイト又は金属ハロゲン化物ペロブスカイトが  $AMX_3$  構造を有し、式中、A は 1 価の有機陽イオン又は 1 価の金属陽イオンであり、M は 2 価の陽イオンであり、X はハロゲン化物陰イオンである、

或いは、

有機金属ハロゲン化物ペロブスカイト材料又は金属ハロゲン化物ペロブスカイト材料が、 $A_{1-i}B_iMX_3$  構造を有し、式中、

A 及び B は、それぞれ、1 価の有機陽イオン又は 1 価の金属陽イオンであり、A 及び B は異なっており、

M は 2 価の金属陽イオンであり、

X はハロゲン化物陰イオンであり、

i は 0 から 1 の間である、

或いは、

有機金属ハロゲン化物ペロブスカイト材料又は金属ハロゲン化物ペロブスカイト材料が、 $AMX_{3-k}Y_k$  構造を有し、式中、

A は 1 価の陽イオンであり、

M は 2 価の金属陽イオンであり、

X 及び Y は、それぞれ、ハロゲン化物陰イオンであり、X 及び Y は異なっており、

k は 0 から 3 の間である、

或いは、

有機金属ハロゲン化物ペロブスカイト材料又は金属ハロゲン化物ペロブスカイト材料が、 $AM_{1-j}NX_3$  構造を有し、式中、

A は 1 価の陽イオンであり、

M 及び N は、それぞれ、2 価の金属陽イオンであり、

X はハロゲン化物陰イオンであり、

j は 0 から 1 の間である、

或いは、

有機金属ハロゲン化物ペロブスカイト材料又は金属ハロゲン化物ペロブスカイト材料が、 $A_{1-i}B_iM_{1-j}NX_{3-k}Y_k$  構造を有し、式中、

A 及び B は、それぞれ、1 価の陽イオンであり、A 及び B は異なっており、

M 及び N は、それぞれ、2 価の金属陽イオンであり、

X 及び Y は、それぞれ、ハロゲン化物陰イオンであり、X 及び Y は異なっており、

i は 0 から 1 の間であり、j は 0 から 1 の間であり、k は 0 から 3 の間である、請求項 9 に記載の固相発光デバイス。

## 【請求項 11】

2 価の陽イオン M が、2 価の金属陽イオンであり、

任意的に、2 価の金属陽イオンが、スズ ( $Sn^{2+}$ ) 又は鉛 ( $Pb^{2+}$ ) である、かつ / 又は、X が塩化物、臭化物、ヨウ化物、及びフッ化物から選択されるハロゲン化物陰イオンであり、 $AMX_3$  構造では、各ハロゲン化物が同じでも異なってもよい、請求項 9 又は請求項 10 に記載の固相発光デバイス。

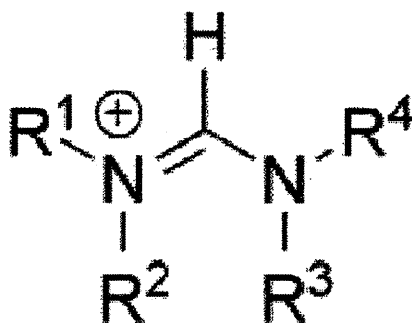
## 【請求項 12】

1 価の有機陽イオンが、第 1 級、第 2 級、又は第 3 級アンモニウム陽イオン  $[HNR^1R^2R^3]^+$  であり、式中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、及び  $R^3$  のそれぞれは、同じでも異なってもよく、水素、非置換又は置換  $C_{1-20}$  アルキル基、及び非置換又は置換  $C_5-18$  アリール基から選択される、

或いは、

1 価の有機陽イオンが、式  $[R^1 R^2 N - CH = NR^3 R^4]^+$

【化 1】

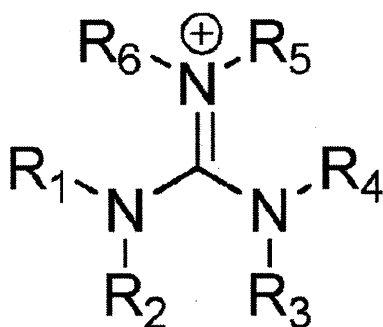


のものであり、式中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ 、及び  $R^4$  のそれぞれは、同じでも異なっているもよく、水素、非置換又は置換  $C_1 \sim C_{20}$  アルキル基、及び非置換又は置換  $C_5 \sim C_{18}$  アリール基から選択される、

或いは、

1 価の有機陽イオンが、式  $(R^1 R^2 N)(R^3 R^4 N)C = N^+ R^5 R^6$

【化 2】



のものであり、式中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ 、及び  $R^6$  のそれぞれは、同じでも異なっているもよく、水素、非置換又は置換  $C_1 \sim C_{20}$  アルキル基、及び非置換又は置換  $C_5 \sim C_{18}$  アリール基から選択される、

或いは、

1 価の金属陽イオンが、アルカリ金属陽イオンである、

或いは、

1 価の金属陽イオンが、セシウム ( $Cs^+$ ) 又はルビジウム ( $Rb^+$ ) である、請求項

9 から 11 のいずれか一項に記載の固相発光デバイス。

## 【請求項 13】

L E Dディスプレイを含む電子デバイスであって、ディスプレイが請求項 1 から 12 のいずれか一項に記載の発光デバイスを含む、電子デバイス。

## 【請求項 14】

第 1 の電極を基板上に設ける工程と、  
第 1 の電荷注入層を前記第 1 の電極上に堆積する工程と、  
放出ペロブスカイト層を前記第 1 の電荷注入層上に堆積する工程と、  
第 2 の電荷注入層を前記放出ペロブスカイト層上に堆積する工程と、  
第 2 の電極を前記第 2 の電荷注入層上に堆積する工程と  
を含み、第 1 及び第 2 の電荷注入層のバンドギャップが、前記放出ペロブスカイト層のバンドギャップよりも大きく、  
前記電荷注入層又は前記放出層の少なくとも 1 つが半導体材料で形成される、  
固相発光デバイスを製造する方法。

## 【請求項 15】

前記第 1 の電極が、アノードであり、透明導電性材料、好ましくは酸化インジウムスズ ( I T O ) 又はフッ素ドープ型酸化スズ ( F T O ) を堆積することによって形成される、  
請求項 14 に記載の固相発光デバイスを製造する方法。

## 【請求項 16】

前記放出ペロブスカイト層が、単一の均質相のペロブスカイト材料から構成される、  
請求項 14 又は請求項 15 に記載の固相発光デバイスを製造する方法。

## 【請求項 17】

放出層が 100 nm 未満の厚さを有する、請求項 14 から 16 のいずれか一項に記載の  
固相発光デバイスを製造する方法。

## 【請求項 18】

薄い絶縁層が、電荷注入層のいずれか又は両方と発光層との間に堆積され、任意的に、  
前記絶縁層が、原子層堆積、A L D によって堆積される、請求項 14 から 17 のいずれか  
一項に記載の固相発光デバイスを製造する方法。

## 【請求項 19】

前記絶縁層が、酸化物又は窒化物で形成され、30 nm 未満の厚さを有する、或いは、  
前記絶縁層が、酸化アルミニウム、二酸化ケイ素、窒化ケイ素、酸化アルミニウムで改質された酸化亜鉛、酸化ニッケル、又は酸化マグネシウムからなる群から選択される、或いは、  
前記絶縁層が、ポリ(エチレンイミン)( P E I )、エトキシ化ポリエチレンイミン( P E I E )、ポリスチレン( P S )、及びポリ(メチルメタクリレート)( P M M A ) からなる群から選択される絶縁ポリマーである、請求項 18 に記載の方法。

## 【請求項 20】

前記第 1 の電荷注入層及び前記第 2 の電荷注入層の少なくとも 1 つが、半導体材料で形成される、  
請求項 14 から 19 のいずれか一項に記載の固相発光デバイスを製造する方法。

## 【請求項 21】

三酸化モリブデン及び三酸化タングステンから選択される材料の、< 30 nm の薄層が、  
透明導電性電極とペロブスカイト層との間、  
電荷注入層と導電性電極との間、  
透明導電性電極と電荷注入層との間、  
ペロブスカイト層と電荷注入層との間、又は  
ペロブスカイト層と導電性電極との間  
に堆積される、請求項 14 から 20 のいずれか一項に記載の固相発光デバイスを製造する方法。

## 【請求項 22】

層の堆積が、下記の堆積技法：真空熱蒸着、スピンコーティング、直接描画印刷、イン

クジェット印刷、リソグラフィーパターンニング、及び溶液堆積の 1 つ又は複数を使用して行われる、請求項 1 4 から 2 1 のいずれか一項に記載の固相発光デバイスを製造する方法。