

平成21年6月12日現在

研究種目：基盤研究(C)
 研究期間：平成19年度～平成20年度
 課題番号：19560357
 研究課題名(和文) 透明導電膜を低仕事関数化し電子注入性を向上させた透明有機EL素子の検討
 研究課題名(英文) The study of transparent organic light emitting diode by using transparent conducting film with low work function for enhanced electron injection
 研究代表者
 内田 孝幸 (TAKAYUKI UCHIDA)
 東京工芸大学・工学部・教授
 研究者番号：80203537

研究成果の概要：有機ELに用いる陰極は通常、仕事関数の低い金属が有効とされている。この金属電極を、透明な電極に代えることで下側の基板方向からでなく、上部電極から光を取り出すことが可能になり、基板材料の選択の自由度や光取り出し面積が向上する。そこで、透明導電膜の作製プロセス中にアルカリ金属を加え、仕事関数が低く、かつ大気中で安定かつ電子注入性の高い透明導電膜を提案し、その有効性を示した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
19年度	2,400,000	720,000	3,120,000
20年度	1,100,000	330,000	1,430,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電子デバイス・電子機器

キーワード：透明有機EL、透明陰極、低仕事関数、透明導電膜、アルカリ金属

1. 研究開始当初の背景

有機EL素子に用いる有機層の膜厚は0.2マイクロメートルと極めて薄いため、陽極、陰極を共に透明にすることで、非発光時に透明な素子が作製できる。有機ELに用いる陰極は通常、仕事関数の低い金属(遮光性材料)を用いることが有効とされているが、透明有機EL素子やトップエミッション型有機EL素子では、陰極に透明な電極材料を用いる。しかしながら、現状では、透明でかつ導電のある材料、透明導電膜は仕事関数の高い材料があるだけで、仕事関数が低く、電子注入性が高い透明な陰極材料は、その重要性にも関ら

ず存在しなかった。このため、本研究では、トップエミッション有機EL素子や、透明有機EL素子を構築する上で重要な技術として、透明導電膜で仕事関数の低く、電子注入性の高い、電極材料の作製を検討した。

2. 研究の目的

透明導電膜を低仕事関数化しこれまでにない電子注入性の高い、低い仕事関数とすることによって、主に下記の効果があり、この学術的、技術的知見を確立することを目的とする。

(1) 陽極に向いていた仕事関数の高い透明

導電膜を、仕事関数の低い、(=電子注入性の高い)透明導電膜とする。

- (2) 発光面積率向上による輝度向上や、下部の基板の材料選択の自由度が向上するトップエミッション構造有機 EL 素子の上部電極を構築し、素子の高効率化を図る。

3. 研究の方法

以下の方法で、透明導電膜を低仕事関数化し電子注入性を向上させた透明有機 EL 素子の検討を行った。

- (1) スパッタ成膜中にアルカリ金属であるセシウムを添加した ITO 膜の作製
- (2) セシウム添加 ITO 膜の仕事関数の評価、大気中での安定性、透明性、導電性の評価
- (3) これらの膜を実際の有機 EL 素子の陰極に用いた場合の特性評価
- (4) このプロセスにおける、有機膜へのダメージの評価

これら(1)~(4)によって、有機 EL 素子の上部陰極に用いることが可能な、透明電極を構築する。

4. 研究成果

(1) スパッタ成膜中にアルカリ金属であるセシウムを添加した ITO 膜を作製し、透明導電膜を低仕事関数化した。ITO:Cs 膜ならびに ITO 膜は、体積抵抗率が約 $2 \times 10^{-3} (\Omega \cdot \text{cm})$ を示した。このことから図 1 に示すように、ITO:Cs 膜は、導電性を損なわずに、仕事関数を 4.6eV から 4.2eV に低減することを示した。

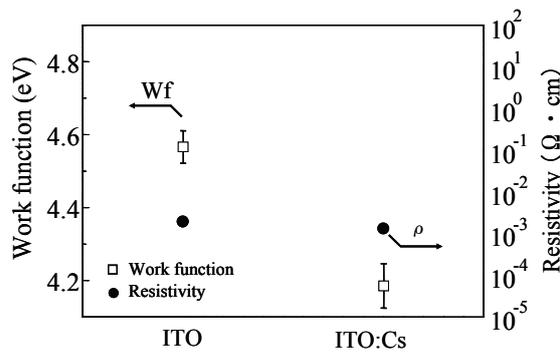


図 1 ITO, ITO:Cs の仕事関数、抵抗率

(2) 一方、アルカリ金属である Cs は、大気中において非常に活性であることが知られている。そこで、大気中にて仕事関数の経時変化特性を調べた。結果を、比較のための市販 ITO 膜を含め図 2 に示す。ITO:Cs 膜は 25 日以上経過しても仕事関数が約 4.2eV を示し、大気中においても安定した膜であることを示した。

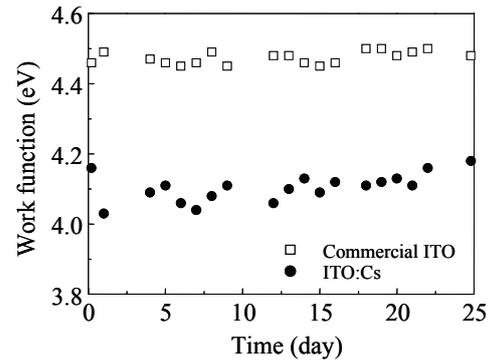


図 2 ITO:Cs 膜の仕事関数の経時変化

(3) この ITO:Cs 膜を有機 EL 素子の上部陰極として設けた、赤色発光透明有機 EL 素子を作製した。図 4 に ITO:Cs 膜を用いた赤色透明有機 EL 素子全体の光透過率を示す。可視光領域において、約 70% の光透過率を示した。図 3 の挿入図に本研究で作製した赤色透明有機 EL 素子の非発光時と発光時の写真を示す。非発光時には背景が透けて見え、発光時には表示部のみ発光する透明有機 EL 素子が構築できた。

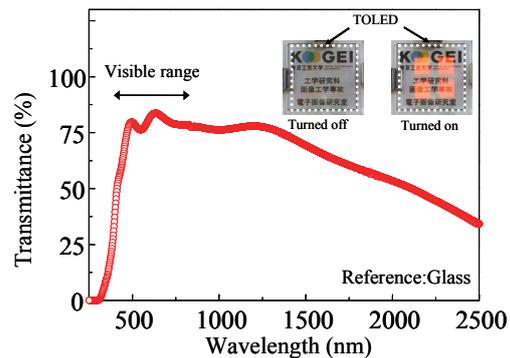


図 3 ITO:Cs 膜を陰極に用いた、赤色透明有機 EL 素子、挿入図：透明有機 EL 素子の非発光時(左)と発光時(右)の写真

(4) ITO のスパッタ成膜中に Cs を導入することで、透明陰極作製プロセスの一つの手法として有効性を示してきた。さらなる検討として、有機膜へのこの成膜プロセスが行われた場合の下地、有機膜上へのダメージについて検討した。有機膜へのダメージの指標として、透明有機 EL 素子のリーク電流の大きさを指標として検討を行った。結果を図 4 に示す。Cs を加えることで、ITO:Cs 膜からのキャリア注入性が向上し、低電圧側から電流注入が起きている。一方、ダメージの指標である、逆バイアス時の電流密度を図 4 の挿入図に示す。リーク電流は 1 桁程度高くなっており、有機膜へのダメージは高くなっていることを示唆した。

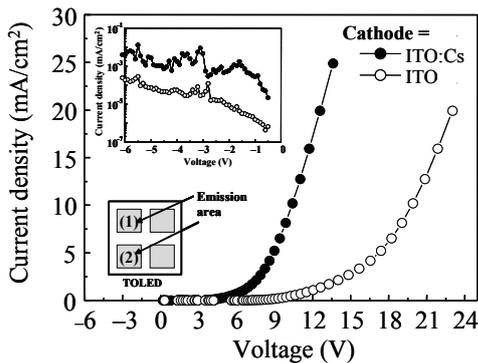


図4 ITOならびにITO:Cs膜を透明陰極とした有機EL素子の電圧-電流特性、挿入図：逆バイアス特性

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 5 件)

- ① Takayuki Uchida, Yoshihiro Kasahara, Toshio Otomo, Shigeyuki Seki, Meihan Wang and Yutaka Sawada, "Transparent conductive electrode deposited by Cs-incorporated RF magnetron sputtering and evaluation of the damage in OLED organic layer", *Thin Solid Films* **516**, pp.5907-5910 (2008), 査読有
- ② Yusuke Onai, Takayuki Uchida, Yoshihiro Kasahara, Keisuke Ichikawa and Yoichi Hoshi, "Transparent conductive film for top-emission organic light-emitting devices by low damage facing target sputtering", *Thin Solid Films* **516**, pp.5911-5915 (2008), 査読有
- ③ S.Dangtip, Y.Hoshi, Y.Kasahara, Y.Onai, T. Osotchan, Y.Sawada and T.Uchida, "Study of Low Power Deposition of ITO for Top Emission OLED with Facing Target and RF sputtering Systems", *Journal of Physics (conference series)* **100**, 042011, pp.1-6 (2008), 査読有
- ④ 笠原嘉浩、内田孝幸、「Cs 添加 ITO 透明陰極を用いた R, G, B 透明有機 EL 素子の検討」, *日本学会誌*, **71** 巻, 1 号, pp.31-34 (2008), 査読有
- ⑤ S.Seki, M.Wakana, Y.Kasahara, Y.Seki, T.Kondo, M.Wang, T.Uchida, K.Haga, Y.Sawada, "Fabrication of Organic Light-Emitting Devices with Indium-Tin-Oxide Anode Prepared by Spray Chemical Vapor Deposition", *Jpn.J.Appl.Phys*, Vol. 46, No. 10A, pp.6837-6841, (2007), 査読有

[学会発表] (計 10 件)

- ① 王美涵、澤田豊、雷浩、星陽一、紺谷貴之、岸証、近藤剛史、関良之、内田孝幸、「アモルファス ITO 薄膜の加熱結晶化機構におよぼすスパッタ成膜時の水蒸気導入効果」応用物理学関係連合講演会講演予稿集、2009.03.30、筑波大学
- ② 雷浩、星陽一、王美涵、澤田豊、内田孝幸、「rf-dc 結合形スパッタビーム堆積法による ITO 電極成膜時に有機 EL 層に与えるダメージの検討」応用物理学関係連合講演会講演予稿集、2009.03.30、筑波大学
- ③ Uchida Takayuki, Yahata Masahiro, Tamura Toru, MasakuraYuko, Satoh Toshifumi, "Evaluation of Area Uniformity for Luminance and Transmittance in Transparent OLEDs", 14th International Workshop on Inorganic and Organic Electroluminescence & 2008 International Conference on the Science and Technology of Emissive Displays and Lighting, 2008.9. Rome, Italy
- ④ 雷浩、市川圭亮、王美涵、星陽一、内田孝幸、澤田豊、「電子衝撃による有機 EL 層へのダメージの検討」、応用物理学関係連合講演会講演予稿集、2008.03.27、船橋日大
- ⑤ 市川圭亮、雷浩、王美涵、内田孝幸、澤田豊、星陽一、「Kr ガスを用いた有機 EL 膜上への ITO 薄膜の低ダメージスパッタ成膜」、応用物理学関係連合講演会講演予稿集、2008.03.27、船橋日大
- ⑥ T.Uchida, M.Wakana, M.Yahata, S.Dangtip, T.Osotchan, T.Satoh, Y.Sawada, "Blue Flexible Transparent Organic Light Emitting Device", International Symposium for Flexible Electronics and Display (ISFED), 2007.12, Hsinchu, Taiwan
- ⑦ 市川圭亮、尾内優介、内田孝幸、星陽一、「低ダメージスパッタ法による有機 EL 膜上への ITO 膜の成膜」、第 68 回応用物理学学会学術講演会講演予稿集、2007.09.04、北海道工業大
- ⑧ 笠原嘉浩、若菜誠、内田孝幸、関成之、王美涵、澤田豊、大友俊夫、「新規な Cs 添加 ITO 透明導電膜の電子注入特性と成膜時における有機膜へのダメージの検討」、日本写真学会年次大会講演要旨、2007.05.24、千葉大
- ⑨ Yoshihiro Kasahara, Takayuki Uchida, Shigeyuki Seki, Toshio Otomo, Meihan Wang and Yutaka Sawada, "Transparent conductive film for top emission organic light emitting devices and evaluation of damage to the organic layer caused by Cs incorporated RF magnetron sputtering", 5th

International Symposium on Transparent Oxide Thin Films for Electronics and Optics , 2007.5, Shonan Village Center, Kanagawa, Japan

- ⑩ Yusuke Onai, Takayuki Uchida, Yoshihiro Kasahara, Keisuke Ichikawa, and Yoichi Hoshi, “Transparent conductive film for top-emission organic light emitting devices by low damage facing target sputtering”, 5th International Symposium on Transparent Oxide Thin Films for Electronics and Optics, 2007.5, Shonan Village Center, Kanagawa, Japan

[図書] (計 5 件)

- ① 内田孝幸 (分担執筆)、「FPD の比較と製造プロセス」、～各種部材への要求特性と性能評価～、情報機構、第 1 節 有機 EL ディスプレイの構造・特徴・駆動方法、第 2 節 素子構造と発光動作、pp.303-pp.313、May、2008.
- ② 内田孝幸 (分担執筆)、「有機 EL 技術開発の最前線」、— 高輝度・高精細・長寿命化・ノウハウ集 —、～材料/信頼性/量産/回路/大型化/フレキシブル化/視覚への影響～、技術情報協会、第 3 章、第 3 節 フレキシブル青色有機 EL 素子のキャリア注入、pp.67-76、第 4 章、第 3 節 有機 EL 透明導電膜の要求特性と作製方法、ボトム/トップエミッション、透明有機 EL に用いる TCOs、pp.126-137. Oct.、2008.
- ③ 内田孝幸 (分担執筆)、「ラボレベル・研究初期で必要となる発光素子、発光デバイス開発のための基礎技術」～・装置・測定、評価法～、第 6 章 有機 EL 開発のための基礎技術・装置・測定、評価法、pp.125-pp.156、シーエムシー出版、Mar. 2008 年
- ④ 内田孝幸 (分担執筆)、「透明導電膜の新展開 III」—ITO とその代替材料開発の現状—、第 12 章「有機 EL 用透明電極」pp.234-pp.246、シーエムシー出版、Mar. 2008 年
- ⑤ 内田孝幸 (分担執筆)、「最先端 照明・光源 技術全集」～材料・部材開発、デバイス設計、製造技術、色・光の測定、信頼性評価など～、第 5 章 有機 EL の照明ディスプレイ応用、第 6 節 有機 EL の効率向上と今後の展望、pp.299-307、技術情報協会、Feb.2008 年

6. 研究組織

(1) 研究代表者

内田 孝幸 (TAKAYUKI UCHIDA)
東京工芸大学・工学部・教授
研究者番号：80203537

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者

関 成之 (SHIGEYUKI SEKI)
仙台電波工業専門学校・助教
研究者番号：50449378