

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 13 日現在

機関番号：33302

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25410252

研究課題名(和文) 表面プラズモン損失の低減による高効率有機ELの開発とフレキシブル照明への応用

研究課題名(英文) Highly efficiency Organic Light Emitting Devices by the suppressed Surface Plasmon Loss and its application for Flexible Light Sources

研究代表者

三上 明義 (Mikami, Akiyoshi)

金沢工業大学・工学部・教授

研究者番号：70319036

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,700,000円

研究成果の概要(和文)：外部量子効率50%を超える白色有機EL素子の開発を目的とし、光学損失の約半分を占める表面プラズモン損失の低減と光取り出し効率の改善を目指した。このため独自のマルチスケール解析により有機薄膜内の光伝播と金属電極での表面プラズモン効果をシームレスに繋ぐ光学ツールを開発すると共に、同手法をマルチカソード構造有機EL素子に適用し、更に光学異方性を制御した基板との組み合わせにより、外部量子効率を標準構造と比べて2～3倍に改善できることを示した。これらの結果は、発光効率の向上に向けた光学設計技術の重要性と可能性を示唆するものであり、有機EL照明の実現に向けた幾つかの設計指針を示すことができた。

研究成果の概要(英文)：The objective of this research activity is the reduction of a surface plasmon loss and the improvement of optical extraction efficiency which occupy approximately a half of optical losses in the organic light emitting devices. For this reason, I developed the optical method which connects seamlessly the surface plasmon resonance in the metal electrode with the optical propagation in an organic thin film by employing original multi-scale analysis. Moreover, the refractive index controlled substrate was used in the organic EL device together with the multi-cathode structure. Research results showed that external quantum efficiency was improvable two or three times compared with conventional EL structure. These results suggest the importance and possibility of optical design technique towards an improvement in luminous efficiency. It will be possible of the white organic EL device exceeding 50% of external quantum efficiency.

研究分野：電子工学

キーワード：有機EL 照明装置 電機・電子材料 シュミレーション工学

1. 研究開始当初の背景

有機EL素子は広視野角、高速応答、鮮やかな自発光表示などを特徴とし、大画面高画質薄型テレビ、フレキシブル・ディスプレイ、次世代固体照明の実現に向けた開発が進められている。特に有機EL照明の分野では、環境低負荷型材料(水銀不使用)であること、蛍光灯や発光ダイオードと比べて演色性に優れること、面光源であることなどから、環境や人に優しい高効率照明の重要技術に位置付けられており、既に欧州、米国および国内では有機EL照明開発が国家プロジェクトとして推進されている。しかし、それらの技術目標値は現行の蛍光灯や発光ダイオードを超えるものではない。有機EL照明の実現には更なる高輝度・高効率化および高信頼化が不可欠であり、その重要な技術課題として、外部量子効率を律速している“光取り出し効率”におけるブレイクスルー技術が必要と考えられている。

申請者は有機EL技術の研究を進める中で、有機層内部の損失光を効果的に外部に取り出す新しい素子構造として“高屈折率基板と多孔質光散乱層を組み合わせた光取り出し構造(特許登録第5090227号)”を提案し、同方式を改良した緑色発光の燐光有機ELにおいて、最大発光効率210 lm/W、外部量子効率56.9%を実現した(SID学会2008)。同成果は緑色発光では世界最高値であり、白色有機ELに展開した場合でも、実現可能な従来報告値(~80 lm/W)を改善できる可能性がある。しかし、主照明(蛍光灯)に必要な100 lm/W以上の実現には、金属電極で消失する表面プラズモン損失の低減が大きな課題となっており、そのための光学解析ツールの開発と実際的な対応技術の開発が必要な段階にある。

最近、申請者は半透過性陰極/光学補償層/高反射金属の積層構成によるマルチカソード構造を提案し、金属電極両界面で生じる2種類の表面プラズモン共鳴の相互作用を光学補償層により制御することで、表面プラズモン損失を10%以下(従来比1/5)に低減できることを理論的に示した(SID学会2012)。しかし、その実現にはナノからマイクロサイズの光学現象を同時に扱える解析法である“マルチスケール手法”を薄膜光学の分野に導入し、キャビティ効果およびプラズモニック効果などの光学現象を高精度に解析する必要がある。また、表面プラズモン損失(非伝搬光)の回避により生じた新たな薄膜導波光(伝搬光)を外部に取り出す必要があり、この方法としてプラスチック基板の光学異方性の制御が有効であることを予想した。本研究は光波長サイズの薄膜層と金属電極から構成される有機EL特有の光学的効果を定量化でき、発光効率を飛躍的に改善する新たな基本技術になり得るものであり、その応用としてフレキシブル有機EL照明は最も適すると考えられる。

2. 研究の目的

本研究では高効率白色有機EL素子の実現を目的として、光学損失の約50%を占める表面プラズモン損失の低減化と光取り出し効率の改善を目指した。このために光線光学、波動光学、電磁光学、近接場光学を統合化した独自のマルチスケール解析手法を更に発展させ、有機薄膜内の光波伝播現象と金属電極界面での表面プラズモン効果の定量解析に適用でき、近接場のマイクロ構造と波動場のマクロ構造の光学現象をシームレスに繋ぐ光学ツールの開発に注力した。更に、同ツールを、申請者が提案したマルチカソード構造有機EL素子に適用すると共に、光学異方性を制御した基板と組み合わせることで、効果的な光取り出しが可能となり、外部量子効率を従来以上に改善できるものと予測し、オール燐光材料を用いた白色有機EL照明の実現に光学理論の観点から寄与できると考えた。そこで本研究では第一に、既に申請者が独自に開発した波動光学に基づく有機EL光学シミュレータ(名称FROLED)を発展させ、電磁光学や近接場光学を結びつけた新規なアルゴリズムに基づくマルチスケール解析法の開発に取り組み、発光特性(発光効率、光学モード分布)に加えて双極子近接場のプラズモニック効果を高精度で計算できる発光薄膜の光学理論を構築する。次に、同手法を独自に開発したマルチカソード構造を用いた高効率有機EL素子の光学設計に適用し、燐光材料で予測される白色発光効率の実証を目指した。更に、光学異方性を最適化したプラスチック基板上に素子を形成し、フレキシブルパネルとしての高効率化についても検討を進める。

3. 研究の方法

本研究は申請者がこれまでに実施した有機EL素子の光学設計・解析に関する成果を基に、高効率化の最大の課題である表面プラズモン損失の低減と光取り出し効率の改善による白色有機ELの高効率化を目指すものである。このため、図1に示すような光線光学から近接場光学に及ぶ広い波数範囲の光学現象を統合化した独自のマルチスケール解析手法を更に発展させ、有機薄膜内の光波伝播現象と金属電極界面での表面プラズモン効果の定量解析が可能な光学ツールを開発する。そして、同手法を申請者が提案したマルチカソード構造を導入した有機EL素子に適用することで、表面プラズモン損失を10%以下に低減すると共に、薄膜導波光に対する光取り出し効果に優れた一軸異方性の基板と組み合わせることにより、垂直双極子振動からの効果的な光取り出しが可能となり、高い外部量子効率を実現できる。本研究は、基礎検討、展開研究、応用研究の順に3段階に分け、以下のように推進した。

第1段階(基礎検討)

これまでに開発を進めてきた光学解析手法を更に発展させ、近接場光学を含めたプラズモニック効果、フォトニック効果の解析に適応可能な光学アルゴリズムを開発し、従来の波動光学と組み合わせ、申請者が考案したマルチカソード構造を導入した有機EL素子における表面プラズモン解析を進める。その結果を緑色燐光有機EL素子に適用し、光学計算の妥当性と新カソード構造による表面プラズモン損失の低減を実証する。これら試作実験と光学計算の双方により、高い光取り出し効率による高効率有機EL素子の光学設計技術の検討に主眼を置く。

第2段階(展開研究)

表面プラズモン損失の低減に伴う薄膜導波モード光の増大を、広角偏光解析技術を用いて検証した後、同モードの外部放射光への転換を目指す。具体的には、基板および有機薄膜の光学異方性が光学モード分布に及ぼす影響を解析および最適化し、マルチスケール解析とマルチカソード構造を利用した緑色燐光有機EL素子に適用する。それらの効果を試作実験により確認し、緑色光発光素子を選択して高効率化を進める。また並行してプラスチック基板の光学異方性評価、白色有機ELの試作準備を進める。

第3段階(応用研究)

展開研究の成果を三波長型白色有機ELに適用し、マルチカソード構造、光学異方性基板を組合せにより、発光特性の更なる改善を進め、白色発光を用いて本研究成果を実証する。更にこの結果をプラスチック基板に適用し、白色有機EL照明パネルを試作して、高輝度化、演色性、発光色の経時変化などの基礎データを大学研究の範囲で収集し、実用化に向けた可能性と指針を得る。

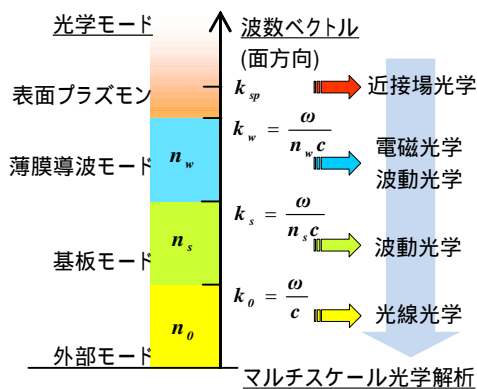


図1 有機ELの光学現象とマルチスケール解析

4. 研究成果

本研究は高効率白色有機EL素子の実現を目的として、光学損失の約50%を占める表面プラズモン損失の低減化と光取り出し効率の改善を薦めることで、照明技術として期待されている白色有機ELパネルの高効率化を目指すものである。このため、波動光学と

近接場光学を組み合わせた独自の光学解析アルゴリズムを開発し、図2に示したマルチカソード構造を導入した燐光有機EL素子における表面プラズモン効果を解析すると共に、表面プラズモン損失の低減に伴う薄膜導波モード光の変化を、偏光特性解析技術を用いて検証し、同モードの外部放射光への転換を目指した。また、マルチスケール解析とマルチカソード構造を利用した燐光有機EL素子の設計および作製を行うと共に、光学異方性基板フィルム基板を白色有機ELに適用して発光効率、輝度の配向特性、発光色度などの基本性能を評価することで、高輝度・高演色性、資格特性に優れた発光特性を実現するための可能性と指針を得ることに努めた。主な結果は以下のようである。

光学異方性基板
ITO (100nm)
PEDOT:PSS (40nm)
NPB (20nm)
CBP:Ir(ppy) ₃ (20nm)
BuPBD (60nm)
MgAg (~10nm)
Optical Buffer Layer
Mirror Ag (100nm)

図2 マルチカソード構造と光学異方性基板を組合せた高効率有機EL素子

波動光学に基づく光学計算ソフトウェアFROLEDを基本として、近接場光学を含めたプラズモン効果の解析を可能とするマルチスケール学解析のアルゴリズムを構築した。近接場を含む放射場の計算には双極子振動と電荷を波数の関数としてフーリエ分解し、多重干渉効果を考慮した波動光学と組み合わせた。また、有機EL素子内部の伝搬解析には有効フレネル係数と特性マトリクス計算を用い、微細領域の解析にはマクスウェル方程式を手指揮下した光学位相条件を用いた。これにより有機EL素子の光学現象を精度良く解析することができた。また、ナノ領域での表面プラズモン共鳴と数百μmサイズの異方性プラスチック基板の光学特性を同時に計算できる解析アルゴリズムを考案し、自己最適化された多機能計算を付加した光学計算ソフトウェアを用いることで、計算速度を約1.5倍に高めた。

陰極で生じる表面プラズモン損失の低減のため、半透過金属薄膜の両界面における反射係数とカソード構造の関係を詳細に解析したところ、プラズモン共鳴の抑制には陰極界面における反射係数の制御が有効であることを見出した。図3に示すように、MgAg膜厚と光学補償層の屈折率の最適化により、表面プラズモン損失は長距離(LRSP)および短距離(SRSP)プラズモンに分離し、薄膜導波モードに転換される。この結果、光学損失は現状の約1/3に低減することを光学計算により明

らかにした。また、基板および有機薄膜の光学異方性を考慮した光学設計・解析を行うため、プラスチック基板(PEN)を用いて、光学モード分布、配向特性、発光波長依存性に及ぼす影響を体系的に調べると共に、それらの結果を、同基板を用いたマルチカソード構造の有機EL素子に適用し、光取り出し効率の改善を確認すると共に、ガラス基板との差異に関する有効な知見が得られた。

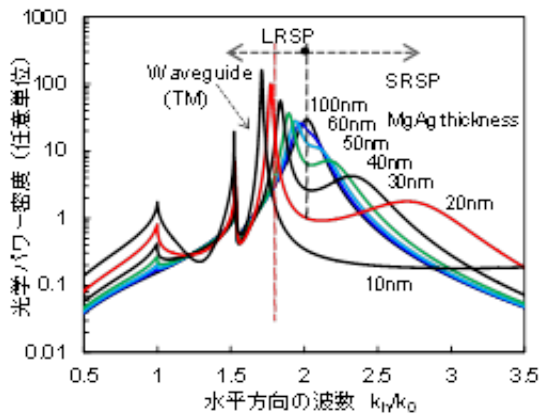


図3 光学パワースペクトルの水平波数依存性(表面プラズモン損失とMgAg膜厚の関係)

マルチカソード構造を用いた緑色燐光有機EL素子を試作し、マルチスケール解析の設計結果を適用することで光学的視点に立った高効率設計を行った結果、表面プラズモン損失の提言および伝搬への転換を検証することができ、光取り出し効率50%以上、電荷力効率200 lm/Wを得るための基本技術を確認した。図4は試作した3種類の有機EL素子の発光効率-電流密度依存性であり、標準構造に比べて、マルチカソード構造および屈折率を制御した基板を用いた素子の発光効率は2~3倍の増大が認められる。これらの結果を踏まえて、三波長型白色有機EL素子への応用を目的とした青色および赤色発光有機EL素子の光学設計を行い、緑色発光素子と同様な改善結果が得られることを光学モード解析の結果から確認できた。更に、多波長型白色有機ELパネルを試作・評価し

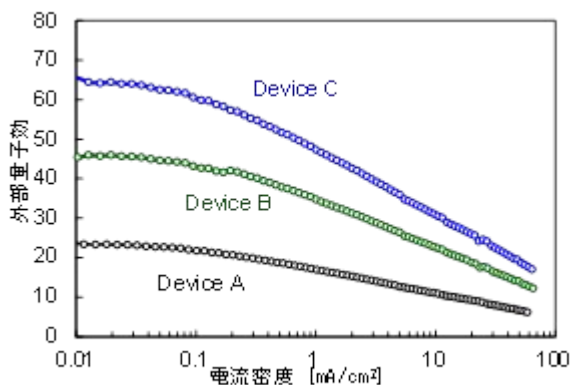


図4 各種の有機EL素子(Device A, B, C)の発光効率と光学パワー密度分布
A: 標準構造、B: マルチカソード構造を導入した有機EL素子
C: マルチカソード構造と屈折率制御基板を用いた有機EL素子

た結果、青色、緑色および赤色発光の色度バランス、配向特性の挙動が光学計算の結果とほぼ合致したことから、計算手法の妥当性が確認できた。

以上の結果は高効率な有機ELパネルの光学設計手法に関する重要な指針を示すものであり、今後の実用化が期待されているフレキシブルな有機EL照明技術への適用が期待できる。しかし、一方では発行の均一性、刑事変化などの課題が残されており、製造方法、プロセス技術面での検討が必要と思われる。

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)

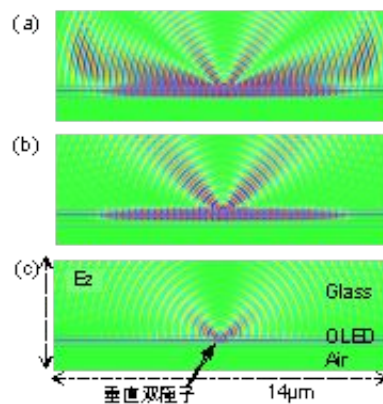
(雑誌論文)(計6件)

Akiyoshi Mikami, Shuhei Doi, The Control of Optical Properties by Back Cavity Effect in OLEDs with Multi-cathode Structure, Technical Paper of Society for Information Display, 2015, 査読有, Vol.34, 2015, pp.1695-1698

三上明義, 有機ELの光学デザイン-マルチカソード構造を利用した光学損失の低減, 機能材料誌 8月号, 査読有, Vol.34, No.8, 2015, pp.3-15

S.Nobuki, H.Wakana, S.Ishihara, A.Mikami, High-Efficiency Green Phosphorescent Organic Light-Emitting Diodes with Double-Emission Layer and Thick N-doped Electron Transport Layer, Thin Solid Film, 査読有, Vol.554, 2014, pp.27-31

Akiyoshi Mikami, Optical design of enhanced light extraction efficiency in organic light emitting device with an optically controlled surface plasmon coupling, Journal of Light & Visual Environment, 査読有, Vol.37, No.2&3, 2013, pp.62-65



三上明義, 有機 E L ディスプレイの基礎, 映像情報メディア学会誌, 査読有, Vol.67, No.9, 2013, pp.800-805
A.Mikami, Optical Control of Surface Plasmon Loss in Transparent Organic Light Emitting Devices Coupled with Optical Compensation Layer, Technical Paper of Society for Information Display, 査読有, Vol.33, 2013, pp.1441-1444

〔学会発表〕(計 9 件)

Akiyoshi Mikami, Shuhei Doi, Enhancement of Extraction Efficiency in OLED with Multi-Cathode Structure Prepared on a Plastic Substrate, The 32th International Reserch Conference, 2015 年 9 月 21 日, Gent (Belgium)

土居周平、三上明義, 二種類の光散乱・透過法を用いた有機 E L 光取り出し層の解析, 有機 E L 討論会第 20 回例会、2015 年 6 月 19 日, 千葉大学(千葉)

三上明義, 計算科学を用いた有機 EL 素子の光学デザイン, 有機 E L 討論会第 19 回例会、2014 年 11 月 27 日, 沖縄県市町村自治会館(沖縄)

土居周平、三上明義, L E D 法および P L 法を用いた有機 E L 光取り出しフィルムの評価・解析, 第 75 回応用物理学学会秋季学術講演会, 2014 年 9 月 17 日, 北海道大学(北海道)

三上明義, 高効率有機 EL の実現に向けた光学設計技術, 電子情報通信学会総合大会, 2014 年 3 月 20 日, 新潟大学(新潟)

Akiyoshi Mikami, Inoue Hitoshi, Optical Control of Surface Plasmon Coupling in Organic Light Emitting Devices with Nanosized Multi-cathode Structure, The 5th International Conference on Nanotechnology: Fundamentals and Applications, 2013 年 8 月 11 日, Prague (Czech Republic)

三上明義, 大橋卓巳, 井上史仁, 長距離伝搬型表面プラズモンを利用したマルチカソード構造有機 E L における光学損失の低減, 有機 E L 討論会第 17 回例会、2013 年 11 月 18 日, 新潟コンベンションセンター(新潟)

Akiyoshi Mikami, Enhancement of Light Extraction Efficiency in Organic Light Emitting Devices with Multi-Cathode Structure, The 5th International Workshop on Flexible & Printable Electronics, 2013 年 11 月 21 日, Jeonju Core Riviera Hotel (Korea)

三上明義, マルチカソード構造を用いた有機 E L の光取り出し技術, 高分子学会、有機エレクトロニクス研究会、2013 年 10 月 23 日, パシフィコ横浜(神奈川)

〔図書〕(計 2 件)

三上明義(分担執筆), ㈱技術情報協会出版, ウェットプロセスによる精密薄膜コーティング技術, 2014, pp.439-447

三上明義(分担執筆), ㈱技術情報協会出版, 光を制御する技術とその応用 2014, pp.346-353

〔産業財産権〕

出願状況(計 2 件)

名称: 発光素子

発明者: 黒田 和夫、三上 明義、棚村 満
権利者: 次世代化学材料評価技術研究組合、学校法人金沢工業大学

種類: 特許

番号: 特願 2014-195969

出願年月日: 平成 26 年 9 月 26 日

国内外の別: 国内

名称: 発光素子

発明者: 黒田 和夫、三上 明義、棚村 満
権利者: 次世代化学材料評価技術研究組合、学校法人金沢工業大学

種類: 特許

番号: PTC/JP2015/076627

出願年月日: 2015 年 9 月 18 日

国内外の別: 国外(全 PTC 契約国)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://kitnet10.kanazawa-it.ac.jp/researcherdb/researcher/RJJAAG.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

三上 明義(MIKAMI AKIYOSHI)
金沢工業大学・工学部・教授
研究者番号: 70319036

研究者番号:

(2) 研究分担者

()

研究者番号:

(3) 連携研究者

()

研究者番号: