

平成 22 年 6 月 3 日現在

研究種目：基盤研究（C）  
 研究期間：2007～2009  
 課題番号：19550182  
 研究課題名（和文）横結合型色変換方式を用いた照明用高効率白色有機EL素子とその光学理論の研究  
 研究課題名（英文）OPTICAL ANALYSIS OF HIGH EFFICIENCY WHITE LIGHT EMITTING ORGANIC DEVICES WITH SIDE-COUPLING COLOR CONVERSION METHOD  
 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

研究成果の概要（和文）：青色系有機EL素子と赤色系色変換材料を組合せ、薄膜内を伝搬する導波モード光を効率良く外部に取り出す”横結合型色変換方式”に基づく白色有機ELの高性能化を進めると共に、同素子内部の光伝搬現象、光学モード分布を定量化するための独自の光学解析ソフトウェアを開発した。同素子の構造設計を光学解析に基づいて最適化した結果、発光効率 39-lm/W、外部量子効率 19%、色度座標(0.29, 0.41)の白色発光が得られた。

研究成果の概要（英文）：We have newly developed white-light-emitting organic devices by employing side-coupling color conversion method, in which the lateral emission originating from the emitting layer is propagated to adjacent color conversion layers. In addition, optical analysis of the device performance was done by using original software on the basis of Fresnel's theory in order to clarify optical mode distribution in the device. The white light emitting device showed power efficiency of 39-lm/W and external quantum efficiency of 19% with color coordinates (0.29, 0.41).

交付決定額

(金額単位：円)

|      | 直接経費      | 間接経費    | 合計        |
|------|-----------|---------|-----------|
| 19年度 | 1,100,000 | 330,000 | 1,430,000 |
| 20年度 | 700,000   | 210,000 | 910,000   |
| 21年度 | 500,000   | 150,000 | 650,000   |
| 年度   |           |         |           |
| 総計   | 2,300,000 | 690,000 | 2,990,000 |

研究分野：

科研費の分科・細目：有機EL素子

キーワード：有機EL、照明装置、電気・電子材料、シミュレーション工学

## 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、車載、携帯端末機などで実用化されている。また、有機材料の特徴を生かし、フレキシブルな構造体への

形成、簡便な湿式法による低コストプロセス、分子設計に基づく高効率発光が期待でき、ディスプレイに限らず、電子ペーパー、照明光源への応用が可能である。そして、技術的観点から、それらの実現には更なる高効率化お

よび高信頼性が不可欠である。有機EL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いる。

有機ELの発光効率は、“薄膜二層構造”の発明(1987年)および“燐光材料”の発見(1999年)により、この20年間に約2~3桁増大し、白色有機ELの発光効率は開発レベルで最大50 lm/W（外部量子効率換算20~30%）、その内部量子効率は100%に近い。しかし、有機EL照明の観点からは、更なる高輝度・高効率化および高信頼化が必要であり、外部量子効率を律速している“光取り出し効率”の改善が重要課題のひとつである。

著者は薄膜内部の横伝播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“横結合型色変換方式（特許出願済）”を提案し、発光効率は最大で約1.8倍まで改善できることを示した。同方式は励起・発光エネルギーのストークスシフトを利用して、青色発光を白色発光に変換することが容易である。最近、著者は同方式をマイクロキャビティ構造と組み合わせる改良型の横結合方式を考案し、これにより発光効率は約2.2倍まで改善されることを確認した。更に“高屈折率プラスチック基板”により基板損失を低減した場合、発光効率は最終的に約2.5倍まで改善され、最大で120 lm/Wに近い白色発光が得られることを光学計算の結果として予想した。以上のように、横結合型色変換方式を基本原理とするこれらの光学制御技術は、波長オーダーの薄膜から構成される有機ELの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、白色有機EL照明への応用に適するものと考えられる。

## 2. 研究の目的

本研究ではまず、“横結合型色変換方式”を用いた白色有機EL素子の発光特性を、青色有機EL素子と補色型の色変換材料の組み合わせにより改善するため、光源部分を担う青色系有機EL素子の試作と高効率化を検討する。次いで、フレネル理論と光電磁場理論を組み合わせた新規なアルゴリズムに基づく白色有機EL用の光学解析手法の開発に取り組み、発光特性（輝度、発光効率、発光スペクトル）や光学特性（光取り出し効率、導波モード光）を統一的に解釈する発光薄膜の光学解析手法を開発する。更に、青色系有機ELと赤色系色変換材料を組み合わせた横結合型色変換方式により、光取り出し効率を改善し、高効率な白色有機EL素子を作製することを目的とする。図1に色変換白色パネルの基本構造と構造例を示す。

有機EL素子は次世代の重点分野である有

機エレクトロニクス工学における光半導体として、重要な位置付けにある。しかし、光源を内部に含む多層薄膜構造の光学解析手法はまだ確立されておらず、指向錯誤的なデバイス開発が行われている。有機EL素子が今後、白色化、超多層化へシフトすることを踏まえて、薄膜光学理論を発展させ、導波解析や時間分解差分法を組み入れた新規な光学手法の確立は学術的価値が高い。その意味において、本研究では有機薄膜デバイスの光学理論の研究を重視しており、有機EL照明の高効率化に向けた構造および有機材料の探索・設計に新たな学問的知見を得ることができる。

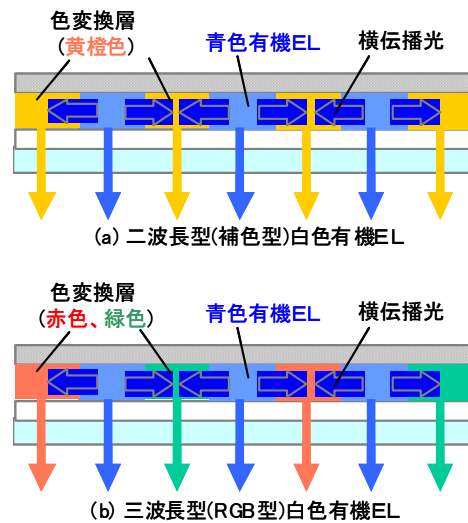


図 1. 横結合型色変換白色ELパネルの基本構造 (a) 二波長型 (b) 三波長型

## 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素子の構造設計に基づき、特に光学的視点から白色有機ELの高効率化を目指すものであり、①基礎検討、②展開研究、③応用研究の順に推進する。

(1) 基礎検討・・・著者が既に開発した高分子/低分子複合構造の技術を発展させ、青色燐光有機ELの高効率化を進めると共に、“横結合型色変換方式”を基本原理とした白色有機EL照明の基礎検討を行う。同時に、著者が開発したフレネル理論に基づく光学解析手法を発展させ、複数の発光源を有する白色有機EL用の解析プログラムを開発する。試作実験と光学計算の双方により、二波長型（補色型）白色ELの基本性能を評価し、高効率化に要する基本技術の検討に主眼を置いた。

(2) 展開研究・・・マイクロキャビティ構造を導入し、発光源の指向性の設計と制御により、白色発光効率の改善を進める。並行し

て、薄膜内部の伝播特性を定量的に解析するための光学解析手法を、時間領域差分法(FDTD)を用いて開発し、有機薄膜および基板内の光電磁場モード、発光エネルギー分布を定量的に解析する手法とその実測方法を確立する。また、基礎検討で開発したフレネル理論と電磁場理論を組み合わせた新規なアルゴリズムを白色EL用に適用する。これにより、有機EL照明の周辺構成要素、即ち、基板材料、封止層、防湿膜、シール層などを含めた光学設計を進め、高屈折率基板と組み合わせ、更なる高効率化を進め、外部量子効率および電力効率を高めた二波長型白色有機EL素子の構造開発を目指す。

(3)応用研究・・・展開研究における成果を実際の有機EL照明に適用することを主眼とした応用実験を進める。具体的には複数の発光層と色変換層で構成した三波長型白色有機EL照明の試作を行い、二波長型(展開研究)と同等の発光効率を保持したまま、白色照明の演色性を高めた高効率有機EL照明の開発を目標とする。同時に、高輝度化、大面積化、発光色の時間変化などに関する基礎データを大学研究の範囲で収集し、実用化に向けての可能性と指針を得る。

#### 4. 研究成果

本研究ではまず、燐光材料を用いた青色低分子/高分子複合有機ELの高効率化を目指すと共に、“横結合型色変換方式”を用いた白色有機ELの基礎検討として、フレネル理論に基づく光学解析アルゴリズムの作成および複数の発光源を含む白色有機EL光学解析シミュレータの開発を進めた。続いて、は青色燐光材料と色変換材料を組合せた白色有機ELの高効率化を図ると共に、複数の光学理論を統合化した独自の解析手法を提案し、燐光有機ELの更なる高効率化を検討した。更に、有機EL材料と色変換材料を組合せた白色有機ELの高効率化を進めると共に、光学理論を統合化した独自の解析手法を開発した。得られた主な成果は以下のようである。

##### (1) 青緑色燐光有機EL素子の構造設計と高効率化

“横結合型色変換方式”の光源部を構成する青色有機ELの特性改善を図るため、燐光材料(FIrpic)を添加した高分子/低分子複合構造の電気的および光学的な構造設計を実施した。青緑色系有機ELの作製には、発光材料に青色燐光材料 Bis(3,5-Difluoro-2-(2-pyridyl)phenyl)-(2-carboxypyridyl)iridium II [FIrpic]を用い、主に発光層/電子輸送層界面にインターレイヤー層を導入することで、高効率化を検討した。本実験で使用した青緑色系有機EL素子の基本構成、膜厚およびエ

ネルギー準位を図2に示す。素子構造は Glass/ITO(100nm)/PE-DOT:PSS(40nm)/PVK(10nm)/CBP(20nm)/mCP:FIrpic(7wt.%(20nm)/Interlayer(10nm)/Bu-PBD(30nm)/LiF(2nm)/Al(200nm)とした。有機材料、膜厚構成、作製技術などを最適化した結果、発光開始電圧3.5V、発光効率20-lm/W、外部量子効率15%、色度(0.15, 0.37)の青色発光を示し、白色発光用励起光源の要求仕様を満足する基本特性が得られた。代表的な青緑色有機EL素子について、輝度、発光効率の電流密度依存性を図2に示す。また、発光写真を図3中に含めた。

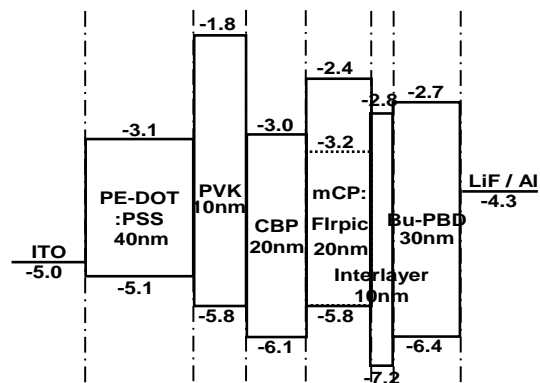


図2. 青緑色有機EL素子のエネルギー準位

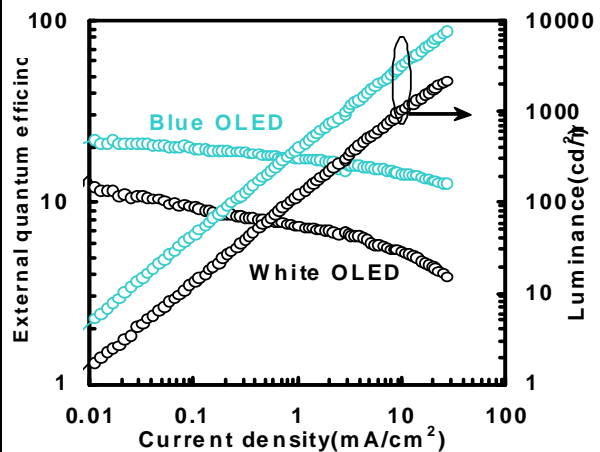


図3. 青緑色有機ELおよび色変換型白色有機発光素子の電流密度-輝度, 外部量子効率特性

##### (2) 白色有機EL素子用光学解析ソフトウェアの開発と光学設計

複数の発光源を含むナノサイズの誘電体多層膜からの発光特性解析を目的とし、有効フレネル係数と特性マトリクス計算を組み合わせた独自の光学計算ソフトウェア(略称:FROLED)を白色EL用に開発した。また、光学解析の高精度化を図るため、電磁光学、

波動光学、光線光学を統合化したマルチスケール光学解析手法の基本アルゴリズムを提案し、薄膜から厚膜領域にわたる光学モード計算を実施した。薄膜面内の平行波数ベクトルと光学理論の関係を図4に示す。

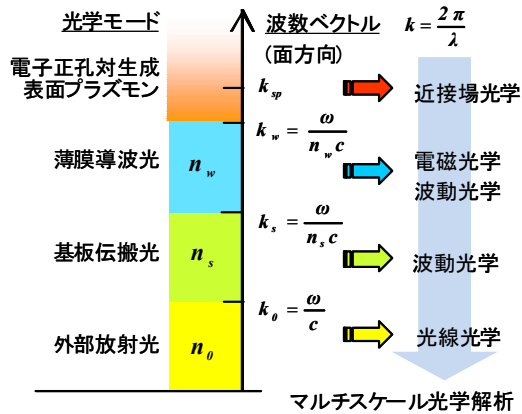


図4. 有機EL素子の光学モードとマルチスケール解析

同手法を用いた光学計算により、積層構造の最適化により、外部量子効率約35%まで向上し、基板や封止層を含めた光学定数の最適化により、従来比2倍以上の高効率化が可能であることを明らかにした。更に、近接場光学を考慮した光学解析手法を開発し、双極子放射場周辺のエバネッセントモードのパワースペクトルを計算した。同ソフトウェアにより金属電極近傍での表面プラズモン損失の影響を定量化することが可能となり、光取り出し効率の計算精度を更に改善できた。前項で述べた青緑色有機EL素子の光学パワースペクトルの平面波数ベクトル依存性を図5に示す。材料および構造の最適設計により、表面プラズモン損失および薄膜導波モードが抑制されており、基板および外部モードの増大により高い光取り出し効率を実現されている。

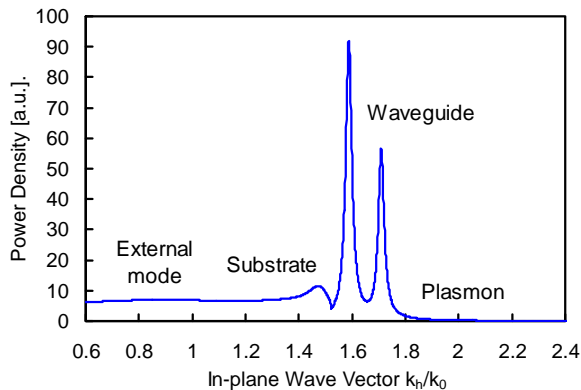


図5. 有機EL素子における光学パワー密度の端数ベクトル依存性

(3) 色変換方式白色有機ELの作製と高効率化設計手法の開発

同青色燐光材料と横結合型色変換方式を組み合わせた白色有機EL素子の作製と高効率化について検討した。光源となる青緑色有機ELには前項(1)で述べた素子構造を用いた。発光層としてmCP:Flrpicを用い、発光層/電子輸送層界面にUGH3インターレイヤー層(IL)を導入した。色変換層には、橙色系有機厚膜および赤色系有機薄膜を用いた。それらのPL発光(実線)および光吸収(破線)スペクトルを図6に示す。色変換層はいずれもローダミン系の色素を主体としており、厚膜色変換層は緑色波長領域、薄膜色変換層は青色波長領域に強い光吸収帯を有し、Flrpicからの発光を効率良く吸収すると共に、青色および緑色強度の調整により白色純度の改善にも寄与している。厚膜および薄膜色変換層の量子収率はそれぞれ約90%および約70%であり、色変換効率は60~70%である。

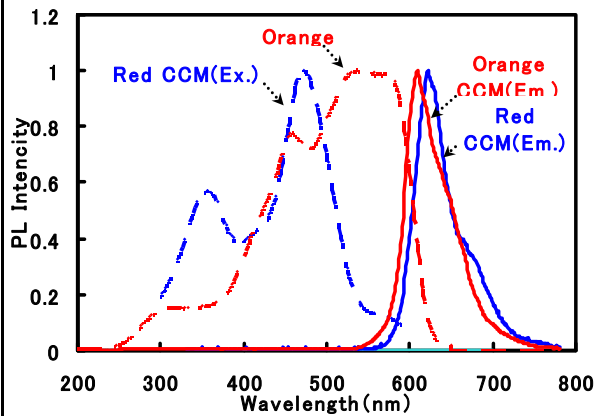


図6. 赤色および橙色系色変換層の励起(破線)・PL発光(実線)特性

素子の構造および薄膜設計を最適化した結果、色度座標  $CIE(x,y)=(0.32,0.36)$ 、外部量子効率  $EQE=12.1\%$ 、パワー効率14%の白色発光が得られた。白色発光の効率、輝度の電流密度依存性は既に示した図3に記載してある。図7は青緑色有機ELおよび白色有機EL素子の発光スペクトルであり、白色については、赤色変換層および赤色と橙色の2種類の色変換層を用いた場合を示した。なお、同素子についての詳細な光学解析によれば、キャビティ効果の導入により青緑色有機ELの光取り出し効率は約34%まで改善でき、色変換層との組合せにより、 $EQE$  約20%の白色発光が得られていることが分かった。この計算結果に基づき、有機材料、膜厚構成、作製技術などを最適化した結果、発光

開始電圧 3.7V、発光効率 39-lm/W、外部量子効率 19%、色度座標(0.29, 0.41)の白色発光が得られた。この値は従来検討されているタンデム構造、マルチレイヤー構造と同程度であり、作製プロセスの簡便さを考慮すると、有機 EL 照明を目指した高効率な白色化方式として期待できる。

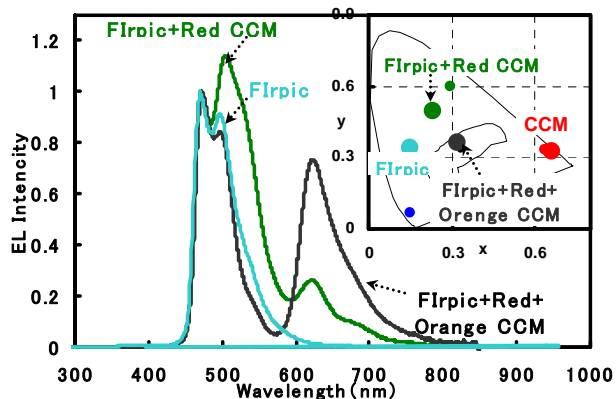


図 7. 青緑色燐光有機 EL、色変換型白色有機 EL 素子の発光スペクトルと CIE 色度座標

## 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 13 件)

- ① Akiyoshi Mikami and Takahiro Koyanagi, High Efficiency 200-lm/W Green light Emitting Organic Devices Prepared on High-Index of Refraction Substrate, Technical Papers of Society for Information Display, 査読有, Vol.40, 2009, 907-910
- ② Akiyoshi Mikami and Takahiro Koyanagi, Enhancement of Light Extraction Efficiency in Green light Emitting Organic Devices Prepared on High-Index of Refraction Substrate, Proceedings of International Display Research Conference, 査読有, Vol.29, 2009, 162-165
- ③ 三上明義、有機 EL の光学的効果を利用した高効率デバイス設計技術、月刊ディスプレイ、15巻、査読無、2009, 22-26
- ④ 三上明義、有機 EL の高性能化を実現するマルチスケール光学設計技術、映像情報メディア学会誌、査読有、39巻、2009, 1364-1365
- ⑤ Akiyoshi Mikami, Light Extraction Techniques in High Efficiency 200-lm/W Organic Light Emitting Devices Coupled with High-Refractive-Index Substrate, Proceedings of International Display Workshop, 査読有, Vol.16, 2009, 447-450

- ⑥ Akiyoshi Mikami, Yuki Mizuno and Shigeyuki Takeda, High Efficiency Ultraviolet Light Emitting Organic Devices and Its Application to White Light Source, Technical Papers of Society for Information Display, 査読有, Vol.39, 2008, 215-218
- ⑦ 三上明義、有機 EL の最新技術動向、KEC 情報協会誌、査読無、No.206, 2008, 25-33
- ⑧ A. Mikami, Yuki Mizuno, S. Takeda, White Emission by Ultraviolet Light Emitting Organic Devices Combined with Color Conversion Layers, Proceedings of 14th International Workshop on Inorganic and Organic Electroluminescence, 査読有, Vol.14, 2008, 57-60
- ⑨ T. Koyanagi and A. Mikami, Enhancement of Out-Coupling Efficiency in Organic Light Emitting Devices Stacked with High Refractive Index of Porous Light Scattering Layers, Proceedings of The 15th International Display Workshop, 査読有, Vol.15, 2008, 1025-1028
- ⑩ M. Yamana, M. Nakamura, N. Ito, Y. Mitsutake, T. Yamaki and A. Mikami, Optical Analysis on the Influence of Anode Structure upon Luminance in Thin Film Stacked Organic Light Emitting Devices, Proceedings of The 15th International Display Workshop, 査読有, Vol.15, 2008, 1033-1036
- ⑪ A. Imamura, S. Takeda and A. Mikami, High Efficiency Red-Light-Emitting Phosphorescent Organic Devices Having a Very Thin Polymer Layer, Proceedings of International Display Workshop, 査読有, Vol.14, 2007, 1061-1064
- ⑫ A. Mikami, T. Koshiyama and T. Saito, High-Efficiency Deep-Blue Organic Light Emitting Devices Having a Very Thin Hole-Transporting Polymer Layer, Asian Symposium Information Display, 査読有, Vol.10, 2007, ISBN:978-981-05-8143-5
- ⑬ A. Mikami and T. Koyanagi, Improvement of Optical Efficiency in White Light Emitting Organic Devices by Lateral Color Conversion, Proceedings of International Display Research Conference, 査読有, Vol.27, 2007, 116-119

[学会発表] (計 23 件)

- ① 三上明義、高効率燐光有機 EL 素子の光学モード解析と構造設計、電気化学会第 77 回大会、2010 年 3 月 31 日、富山大学、富山
- ② 三上明義、マルチスケール光学解析による高効率有機 EL 素子の構造設計、第 57 回応用物理学関係連合講演会、2010 年 3 月 17 日、

- 東海大学、神奈川
- ③ 三上明義、有機EL照明に向けた高効率デバイス設計技術、学振 131&162 合同研究会、2010年3月5日、主婦会館、東京
- ④ 三上明義、有機ELの光学的効果を利用した高効率デバイス設計技術、日本光学会、光設計研究グループ 第41回研究会、2009年4月16日、大阪商工会議所、大阪
- ⑤ 三上明義、有機EL素子の光学シミュレーション解析と光取り出し向上化技術、日本化学会第89春季年会、2009年3月28日、日本大学、東京
- ⑥ 三上明義、有機ELの光学的効果と高効率化技術、学振 125 委員会EL分科会第34回研究会、2008年12月19日、東京キャンパスイノベーションセンター、東京
- ⑦ 今村彰宏、小柳貴裕、徳永淳、鈴木豪、三上明義、青緑色系燐光有機ELを光源とした色変換型白色有機発光の高効率化、有機EL討論会、2008年11月20日、金沢市文化ホール、石川
- ⑧ 小柳貴裕、徳永淳、鈴木豪、今村彰宏、三上明義、フレネル理論の展開による光取り出し効率の限界特性解析、有機EL討論会、2008年11月20日、金沢市文化ホール、石川
- ⑨ 三上明義、有機ELのマルチスケール光学解析と高効率化に向けたデバイス設計、応用物理学会 有機分子・バイオエレクトロニクス分科会、2008年11月11日、東京大学、東京
- ⑩ 三上明義、高効率有機ELの開発動向と光学的効果が及ぼす影響、日本光学会 年次学術講演会、特別シンポジウム、2008年11月4日、つくば国際会議場、茨城
- ⑪ 今村彰宏、鈴木豪、三上明義、二波長型マルチレイヤー構造を用いた燐光白色有機ELの構造設計、第68回応用物理学会学術講演会、2008年9月2日、中部大学、東京
- ⑫ 小柳貴裕、三上明義、高屈折率多孔質散乱層を用いた有機ELの光取り出し効率の改善、有機EL討論会、2008年6月12日、日本未来科学館、東京
- ⑬ 齊藤貴文、竹田茂幸、三上明義、ゲスト・ホスト型発光層を用いた白色有機ELの発光特性、電子情報通信学会 電子ディスプレイ研究会、2008年1月24日、静岡大学、静岡
- ⑭ 竹田茂幸、水野祐希、三上明義、紫外光を利用した色変換方式白色有機ELの発光特性、映像情報メディア学会 冬季大会、2007年12月18日、工学院大学、東京
- ⑮ 小柳貴裕、三上明義、フレネル理論の展開による有機ELの光学シミュレーション解析、有機EL討論会、2007年11月15日、九州大学、福岡
- ⑯ 水野祐希、三上明義、紫外発光有機ELの高効率化と白色光源への応用、電子情報通信学会、有機エレクトロニクス研究会、2007年11月9日、新潟大学、新潟

- ⑰ 小柳貴裕、三上明義、高屈折率基板上に形成した有機ELの光学特性とシミュレーション解析、第67回応用物理学会学術講演会、2007年9月5日、北海道工業大学、北海道
- ⑱ 水野祐希、三上明義、紫外発光有機ELの高効率化と白色化、有機EL討論会、2007年6月8日、日本未来科学館、東京

〔図書〕(計3件)

- ① 三上明義、(株)電子ジャーナル、照明用有機EL最新動向、2009、90
- ② 三上明義(監修)、技術情報協会、有機EL技術開発の最前線、2008、406
- ③ 三上明義、培風館、発光と受光の物理と応用、共著、(監修：小林洋志) 2008、423

〔産業財産権〕

○出願状況(計1件)

名称：有機エレクトロルミネッセント素子、照明装置および表示装置

発明者：三上明義

権利者：金沢工業大学、住友化学株式会社

種類：特許願

番号：2008-81569

出願年月日：H20.3.26

国内外の別：国内

○取得状況(計1件)

名称：無機電界発光素子およびその成膜方法

発明者：三上明義

権利者：三洋電機株式会社

種類：特許

番号：4047095

取得年月日：H19.11.30

国内外の別：国内、外国

〔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

(2) 研究分担者

( )

研究者番号：

(3) 連携研究者

( )

研究者番号：