

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 20 日現在

機関番号：33302

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010～2012

課題番号：22550168

研究課題名（和文）マルチスケール光学解析を用いた高効率白色有機 EL 素子の実践的研究

研究課題名（英文）PRACTICAL STUDY ON HIGH EFFICIENCY WHITE LIGHT EMITTING ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICES BASED ON A MULTI-SCALE OPTICAL ANALYSIS

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）：青色系発光層と赤色系発光層を組合せた白色発光有機 EL 素子を作製し、光学設計に基づく素子構造の最適化により発光効率の改善を検討した。このため、波動光学、電磁光学、近接場光学を統合化したマルチスケール光学解析手法を開発し、表面プラズモン損失の低減および薄膜導波光の外部放射光への転換方法を開発した結果、電力効率 195 lm/W、外部量子効率 47%、光取り出し効率に換算して約 50%以上の高効率有機 EL 素子が得られた。

研究成果の概要（英文）：The white light-emitting organic EL device which combined the blue and red emission layers was produced, and optimization of the device structure by optical design considered the improvement of luminous efficiency. For this reason, the multi-scale optical analysis technique which integrated wave optics, an electromagnetic theory of light, and near-field optics was developed, and conversion to reduction of a surface plasmon loss and the external emission mode of thin film waveguide mode was considered. As a result, we can obtained 195 lm/W in power efficiency, 47% in external quantum efficiency, and light extraction efficiency not less than 50% of efficient organic EL device.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
22 年度	1,300,000	390,000	1,690,000
23 年度	800,000	240,000	1,040,000
24 年度	500,000	150,000	650,000
年度			
総計	2,600,000	780,000	3,380,000

研究分野：化学

科研費の分科・細目：材料化学、機能材料・デバイス

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、鮮やかな色彩表示を特徴とし、大画面薄型テレビ、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、経産省が設定した 21 項目のクールアース・エネルギー革新技術に位置付けられている。既に日本、欧州、米国では有機 EL 照明の開発が国家プロジェクトとして推進されているが、現状での基本性能は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望まれ

ており、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過程における大幅な効率改善が不可欠である。研究代表者は有機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（特許願 2008-81569）”を提案し、同方式を適用した緑色燐光有機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(応用物理学会 H21.3.28, 文献 1,4,5)。同成果は緑色発光では世界最高値であり、白色発光に換算した場合、実現可能な従来報告値(～70 lm/W)を改善できる可能性がある。しかし、三波長形白色発光は発光特性の波長依存性が顕著なことから、素子構造の光学的な最適設計が新たな課題となっている。研究代表者は高屈折率基板に光散乱層やマイクロレンズなどの光取り出し層を形成すると共に、膜厚方向に弱いキャビティ効果を付加することで、三波長形白色発光の光学設計の自由度が増し、発光効率が約 2.3 倍に改善でき、100 lm/W を超える電力効率が得られることを、波動光学計算に基づいて予測した。しかし、その実現にはナノサイズからマクロサイズの光学現象を同時に扱える光学計算技法、即ち、“マルチスケール解析法”を薄膜発光素子の分野に導入し、屈折率制御、表面周期構造およびキャビティ効果などの光学現象を高い精度で解析する必要がある。本研究課題は光の波長以下の薄膜層と数 μm 以上の周辺厚膜層から構成される有機EL素子特有の光学現象を定量的に解析することを可能とし、その結果として発光効率を大幅に改善できる基本技術の確立を目指すものであり、開発の対象を有機EL照明に絞った実践的な研究開発への要求に応えるものである。

2. 研究の目的

本研究ではまず、研究代表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、光線光学、電磁光学および近接場光学理論を含め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(輝度、発光効率、発光スペクトル)および光学特性(光取り出し効率、光学モード)を高い精度で計算できる発光薄膜の光学計算アルゴリズムを開発する。同時に、同手法を青色発光層と赤橙発光層を積層した白色発光有機EL素子の光学設計に適用し、燐光材料で予測される発光効率(電力効率 > 50 lm/W、光取り出し効率 > 30%)の実証を第一目標とした。次いで、高屈折率層、新規な電極構造、マイクロキャビティ効果を導入した有機EL

素子に同解析手法を適用し、更に高効率(電力効率 > 100 lm/W、光取り出し効率 > 60%)な素子構造の実証を最終目標とした。本研究は、研究代表者が過去に行った「高屈折率層を利用した高効率緑色燐光有機ELの開発」および「フレネル理論に基づく有機ELの光学解析」に関する先駆的研究成果を基礎として、独自に創案した光取り出し構造を組み合わせた高効率有機EL素子を実現するものである。従来の波動光学を用いた計算では、発光効率は約 2.3 倍の改善効果が予想される。この値は光取り出し効率に換算して約 60%に相当し、有機EL照明の実現に必要な発光効率 100 lm/W を超える高効率化が期待できる。また、有機EL素子は発光源を内部に含む多層薄膜構造であり、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進められている。従って、図1に示すような、光線光学、電磁光学・波動光学、近接場光学を統合化したマルチスケール解析手法を開発する学術的価値は高く、有機EL照明の高効率化に向けた素子構造および材料の探索・設計に新たな学問的知見を与える。また、本研究は有機EL素子の発光効率を支配する複数の要因のうち、最も効果が期待される“光取り出し効率の向上化技術”に取り組むものであり、その成果は有機EL照明だけでなく、有機ディスプレイ、有機太陽電池、有機レーザーなどの高性能化および高信頼化にも寄与する。有機ELの内部量子効率は既に 100%に近いことが知られており、光取り出し効率の改善により、100～150lm/Wの高効率発光が実現できれば、既存の蛍光灯や発光ダイオードを凌ぎ、エネルギー変換効率が 100%に近い究極の無損失光源が実現され、その意義は極めて大きい。

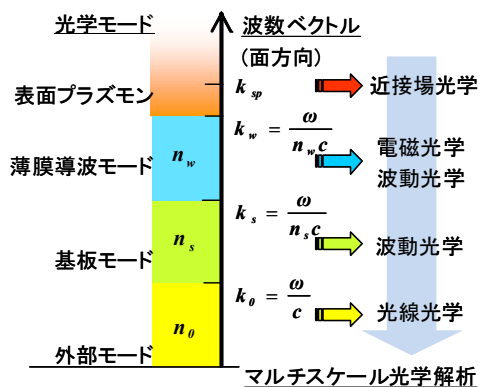


図1 有機ELの光学現象とマルチスケール解析

3. 研究の方法

本研究は有機EL素子の構造設計について、特に光学的視点から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・・・高効率燐光緑色有機ELの

基本技術を青色燐光材料に適用し、高効率化と共に、赤橙色燐光材料と組み合わせた白色有機EL素子の基礎検討を行うと共に、波動光学理論に基づく構造解析を進展させ、光線光学、電磁光学および近接場光学理論を含めたマルチスケール解析手法のアルゴリズムを開発する。試作実験と光学計算の双方から、有機ELの基本性能を評価し、光取り出し効率40%、電力効率100 lm/Wを目指した基本技術の検討に主眼を置く。

(2) 展開研究・・・基礎検討の成果を更に発展させ、高屈折率基板、新規な電極構造、マイクロキャビティ構造などを導入し、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。また、フレネル理論、時間領域差分法、光線追跡法を統合化したマルチスケール光学解析ソフトウェアを開発し、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、電気双極子放射と界面との近接場相互作用を定量的に解析する手法とその実測方法を確立し、高効率有機EL構造の光学設計を進める。

(3) 応用研究・・・展開研究におけるマルチスケール光学解析の成果を用いて、光取り出し効率60%、電力効率100 lm/W以上の有機EL素子の開発を目指す。同時に有機EL照明に適用することを主眼とした実証的な応用実験を進める。具体的には有機EL照明パネルの試作を行い、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。

4. 研究成果

本研究はマルチスケール光学設計法を用いて、有機EL照明に適応した白色有機EL素子の高効率化を目指すものであり、まず、白色化の基盤技術となる青色系有機EL素子の高効率化を進めると共に、これに必要な光学解析アルゴリズムの開発に取り組んだ。続いて、赤橙色有機ELについても同様な光学解析技術を駆使して最適化し、青色系素子と組み合わせた白色発光素子の基本性能を評価した。面に新規な高屈折率バッファ層およびマルチカソード構造の提案とその解析手法に取り組み、表面プラズモン損失の低減および弱いマイクロキャビティ構造と発光の指向性制御による高効率化を進めた。このため、有機薄膜および基板内の光電磁場モード解析、電気双極子放射と界面との近接場相互作用の定量解析とその実証実験を行った。更に、燐光有機EL素子の光学解析手法を用いて、半透過陰極、光学補償層、反射層を組合せた独自のマルチカソード構造の最適設計とその解析に取り組み、表面プラズモン損失の低減のための試作・評価および光電磁場モード解析に基づく素子構造の光学設計および有機EL照明パネ

ルへの適用について検討した。得られた主な結果は以下のようである。

(1) 白色発光有機EL素子の作製と評価
赤橙色燐光材料であるIr(piq)₂acacおよび青色燐光材料であるFlrpicを発光中心に使用し、発光層のマルチレイヤー構成による燐光有機EL素子を試作し、白色発光化および高効率化を行った。図2に示すように基板/ITO/PEDOT:PSS/NPB/CBP:Flrpic/UGH3/BCP/LiF/Al構造の低分子系積層構成を採用し、素子の電氣的・光学的設計を実施した。発光スペクトルについて、インターレイヤーとして用いたUGH3ホール・ブロッキング層の膜厚依存性を図3に示す。UGH3膜厚が増大するにつれて、青色発光強度が相対的に増大する傾向を示す。UGH3膜厚が10 nmでは、青色発光が支配的であり、UGH3膜厚がそれ以下になるにつれて赤色成分が強まり、IL膜厚が3 nmにおいて、CIE色度座標(x, y) = (0.35, 0.32)の高色純度白色発光が得られた。外部量子効率21%、電力効率は35 lm/Wである。

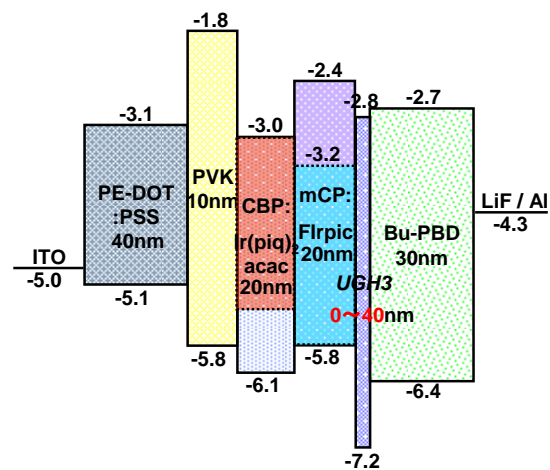


図2. 白色発光有機EL素子の基本構造

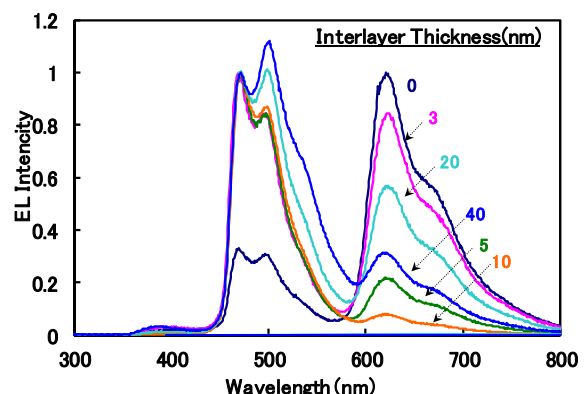


図3. 発光スペクトルのUGH3層依存性

更に基板材料の高屈折率化により、約1.5倍の効率改善が認められ、外部量子効率の最大値

は33%, 電力効率は54 lm/Wを示した。試作した白色素子の発光写真を図4に示す。

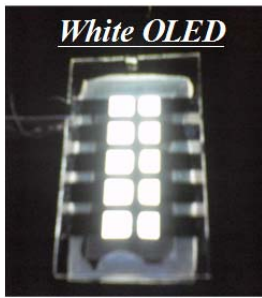


図 4. 白色有機 EL の発光写真
(基板寸法: 30mm×40mm)

(2) マルチスケール解析法を用いた光学解析統合ソフトウェアの開発
サブミクロンサイズの積層薄膜の光学計算に適する波動光学、マイクロサイズに適する光線追跡法、ナノサイズ周期構造に適する電磁光学および波長サイズの大極子放射場解析が可能な近接場光学を統合化したマルチスケール解析手法の開発を検討した。また、フレネル計算、時間分解差分法、厳密結合波解析法などの計算理論を導入することで、有

機EL薄膜内部の電気双極子放射モードのエネルギー分布を定量化できる双極子放射エネルギー計算用アルゴリズムを開発すると共に、光学計算の高速化・高精度化を図り、有機ELの実践的な光学設計に適用可能な統合化手法を検討した。更に同手法を用いて、有機層と金属電極間で生じる表面プラズモン共鳴における光学損失を定量的に解析した結果、表面プラズモン損失が全光学損失の30%以上を占めることが分かった。即ち、陰極構造の光学的な最適設計により発光効率の大幅な改善が期待できる。この考えに基づき、半透過金属電極の両界面で生じる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により、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すと共に、表面プラズモン損失の低減により生じた薄膜導波光を効果的に外部に取り出すことで、外部量子効率を70%に高められることを理論と実験により示した。図5に、新たに考案したマルチカソード構造の効果を実験と理論により比較した。即ち、標準構造(a)に比べて、マルチカソード構造(b)では垂直双極子に基づく表面プラズモン損失が著しく低下し、代わって

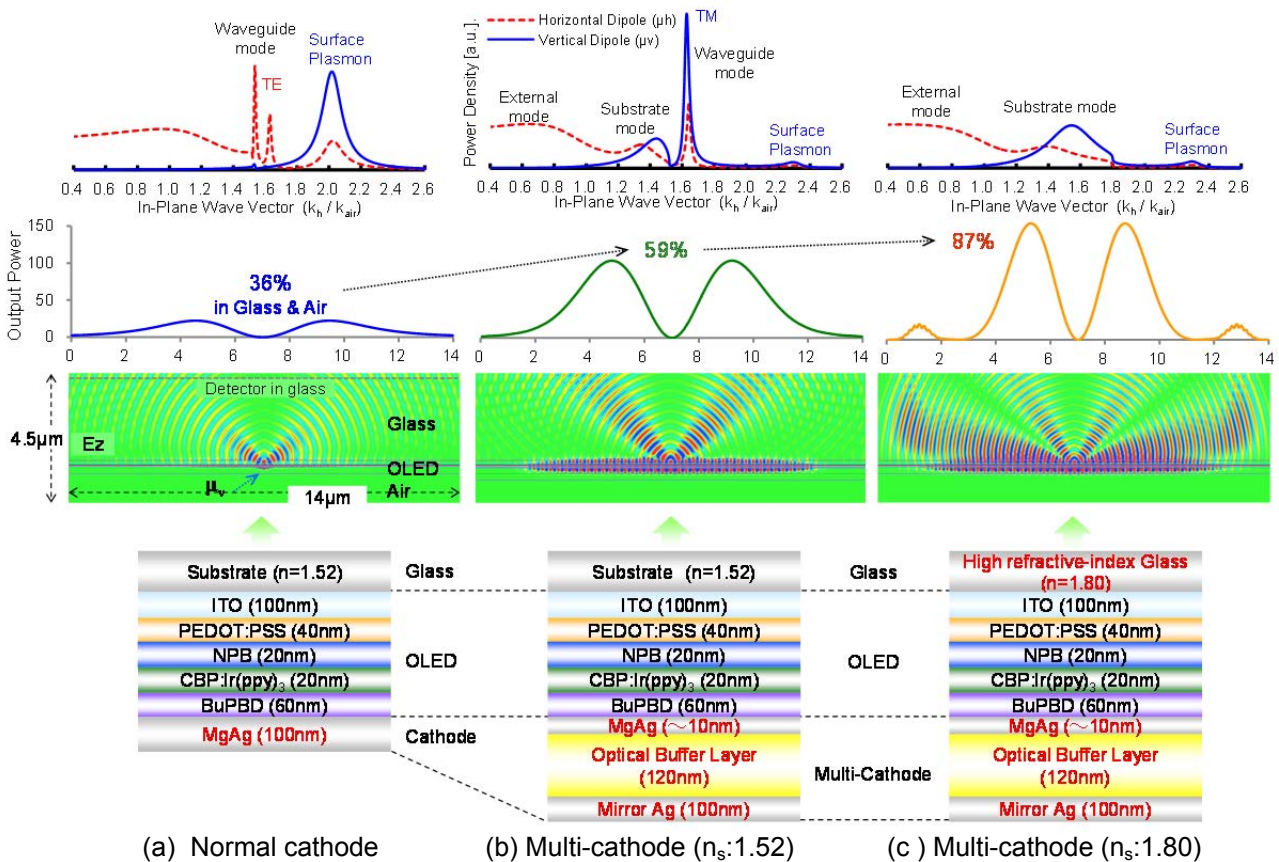


図 5. 光学解析統合ソフトウェアを用いた燐光有機EL素子のマルチスケール光学解析および表面プラズモン損失の低減化に向けた新規な光取り出し構造を導入したマルチカソード構造。

薄膜導波光である TM モードの放射強度が増大する。更に高屈折率層を導入した場合 (c) は薄膜導波光から基板へのモード転換が生じ、その光取り出し効果が高くなっていることが分かる。

(3) 新規な光取り出し構造を用いた高効率燐光有機 EL 素子の開発

新規な光取り出し構造を導入した有機EL素子における光学エネルギー配分の双極子-電極間距離依存性を図6に示す。半透明金属電極と光学補償層を組み合わせた新規なマルチカソード構造を提案し、光学損失の約40%を占めていた表面プラズモン効果を10%以下に低減できることが分かった。また、試作した有機EL素子における電力効率-輝度特性を標準構造と比較して図7に示す。高屈折率層および μ レンズアレイとの組み合わせにより、薄膜導波光の外部放射への転換を高めることで、最大電力効率195 lm/W、外部量子効率に換算して47%が得られた。この値は、光取り出し効率に換算して50~60%に相当する。これらの結果は、半透過金属電極の両界面で生じる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大幅に低減したことに起因しており、光学解析手法としてナノからマクロサイズの光学現象を同時に扱える”マルチスケール手法”を導入した結果である。

また、本研究の進展に伴い、同手法がプラスチック基板の特徴である光学異方性に適用した場合に、更に効果的であることを見出し、フレキシブル有機ELへの応用として新規な研究テーマ(科研費)として採択されている。以上、計画当初に設定した光取り出し効率の向上化を実践的な方法により実現した。本研究成果の一部は既に企業との連携を通して白色パネルに適応中であり、その結果については今後、開示する予定である。

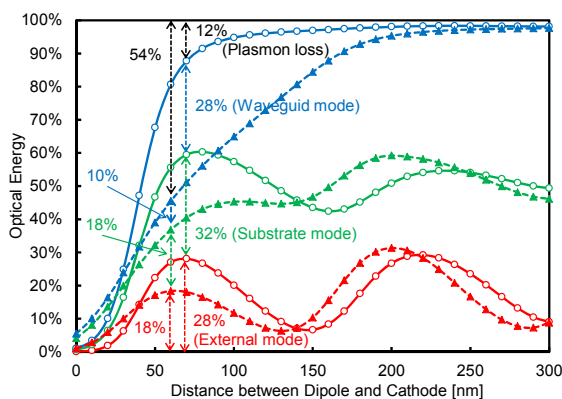


図 6. 新規な光取り出し構造を用いた燐光有機 EL 素子の光学エネルギー分布の双極子-陰極間距離依存性

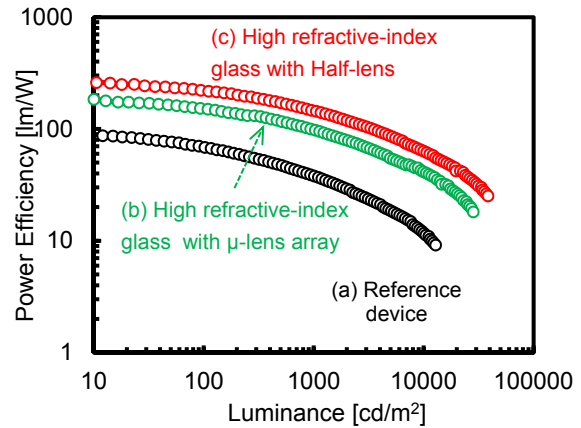


図 7. 新規な光取り出し構造を用いた燐光有機 EL 素子におけるパワー発光効率 vs.輝度特性 (a)標準構造、(b)マルチカソード構造 (c)高屈折率基板上に形成したマルチカソード構造

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 4 件)

- ① Akiyoshi Mikami, Optical Design of High Efficiency Organic Light Emitting Devices, Optical, Optics-Photonics Design and Fabrication, 査読有, Vol. 7, 2012, 407-410
- ② 三上明義, 有機EL素子の光学解析技術と高効率化手法, 応用物理学会誌, 査読有, Vol.80, 2011, pp.277-283
- ③ Akiyoshi Mikami, Optical design of 200-lm/Whigh efficiency phosphorescent organic light emitting devices based on the high refractive index substrate, Phys. Status Solidi, 査読有, C8, No.9, 2011, pp.2899-2902
- ④ Akiyoshi Mikami, Enhancement of Light Extraction from Waveguide Mode by High Refractive Index Intermediate Layer in Organic Light Emitting Device with Back-Cavity, Technical Papers of Society for Information Display, 査読有, Vol.30, 2011, pp.13-16

[学会発表] (計 12 件)

- ① Shunichirou Nobuki, Akiyoshi Mikami, High-Efficiency Green Phosphorescent Organic Light-Emitting Diodes with Double-Emission Layer and Thick N-doped Electron Transport Layer, 10th International Conference on Nano-Molecular Electronics, 2012年12月13日, 淡路夢舞台国際会議場、淡路
- ② Akiyoshi Mikami, Enhancement of

- Light Extraction Efficiency in Organic Light Emitting Devices with Multi-Stacked Cathode and High Refractive-Index Anode, stic Electronics Conference (招待講演), 2012年10月09日, Messe Dresden, Dresden, Germany
- ③ Akiyoshi Mikami, Optical Analysis of Surface-Plasmon Coupling in Organic Light Emitting Devices with Multi-Stacked Cathode Structure, 10th International Conference on Optics-Photonics Design & Fabrication, 2012年07月04日, Vissarion Belinsky, St.Petersburg, Russia
- ④ Akiyoshi Mikami, Optical design of enhanced light extraction efficiency in organic light emitting device with an optically controlled surface plasmon coupling, 13th International Symposium on the Science and Technology of Lighting (招待講演), 2012年06月25日, Rensselaer Polytechnic Institute, Toroy, USA
- ⑤ 三上明義, 有機ELの光学過程と高効率化に向けた光学設計、有機EL討論会 第13回例会、2011年11月21日、大阪大学(大阪)
- ⑥ 大橋卓巳, 佐渡裕児, 三上明義, マイクロレンズを用いた有機EL素子の光取り出し効果に及ぼす背面反射率の影響、応用物理学会 北陸信越支部大会、2011年11月18日、金沢歌舞伎座(石川)
- ⑦ 後藤隆男, 三上明義, バックキャビティ構造を用いた有機EL素子の表面プラズモン損失の低減、電子情報通信学会、2011年9月13日、北海道大学(北海道)
- ⑧ 三上明義, 有機EL素子の光学デザイン - 無損失光源へのアプローチ、第72回応用物理学会学術講演会(招待講演)、2011年8月29日、山形大学(山形)
- ⑨ 佐渡裕児, 三上明義, 有機EL素子の光取り出し効率に及ぼす背面反射率の影響、有機EL討論会第12回例会、2011年6月30日、日本科学未来館(東京)
- ⑩ 佐渡裕児, 安川晃司, 三上明義, 有機EL素子における表面プラズモン損失の膜厚依存性、第71回応用物理学会学術講演会、2010年9月15日、長崎大学(長崎)
- ⑪ 三上明義, 安川晃司, 小柳貴裕, 有機ELの偏光特性に及ぼす表面プラズモン損失の影響、有機EL討論会 第10回例会、2010年6月18日、日本未来科学館(東京)
- ⑫ 三上明義, 有機ELの光取り出しの基礎と最近の話題(招待講演)、ニュー・フロンティア材料研究会 第220回講演会、2010年6月11日、大阪府立大学(大阪)

〔図書〕(計3件)

- ① 三上明義(分担執筆)、(株)技術情報協会、これからの畜・省エネルギー材料の開発における機能性付与技術、2012、pp.381-389
- ② 三上明義(監修)、シーエムシー出版、白色有機EL照明技術、2011、244
- ③ 三上明義(分担執筆)、(株)情報機構、プラズモン基礎理解の徹底と応用展開、2011、pp.186-194

〔産業財産権〕

○出願状況(計0件)

○取得状況(計1件)

名称：有機エレクトロルミネッセンス素子、照明装置および表示装置

発明者：三上明義

権利者：住友化学株式会社、三上明義

種類：特許

番号：特許第5090227号

取得年月日：H24.9.21

国内外の別：国内

〔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：