

有機EL表示デバイス

谷口 彬雄*

Organic Light Emitting Diode Flat Panel Displays

Yoshio TANIGUCHI*

*信州大学繊維学部機能高分子学科 (〒386-8567 長野県上田市常田3-15-1)

*Department of Functional Polymer Science, Faculty of Textile Science and Technology, Shinshu University (3-15-1 Tokida, Ueda-shi, Nagano 386-8567)

1. はじめに

構造材料を除き、現行の表示デバイスとしての有機材料は液晶表示デバイスにおいて大きな成功を収めている。その次の表示デバイスとして拡がりつつあるのが、有機発光ダイオード（有機LED；OLED：Organic Light Emitting Diode）である。OLEDは、日本では、有機EL(Electro-Luminescence)素子の名称がしばしば使われている。

本稿では、このOLEDの現状と将来について紹介する。

OLEDは、97年7月に初めて事業化され、車載オーディオの表示デバイスとして、市場に出された。その後、数社が事業化段階に到達している。

周辺のインフラも整いつつある。装置メーカーも生産機の生産を開始しており、材料メーカーも主要な材料の提供を始めている。

現在の大きな状況は、先行メーカーによる市場への提供により、ある程度の市場展望が見えてきたのを背景とし、大手電機メーカーが本格的に参入を始めた時期である。材料的にも良い材料への見直しが進んでおり、製造プロセスにおいても、コストダウンを可能とする検討が行われつつある時期と言える。

2. 発光原理と基本構造

OLEDの基本素子構造を図1に示す。基本概念は、無機半導体のp-n接合と類似な発想に基づき設計されている¹⁾²⁾。カソードから電子が電子注入輸送層（EITL：Electron Injection and Transport Layer）に注入され、輸送される。アノードからはホールがホール注入輸送層（HITL：Hole

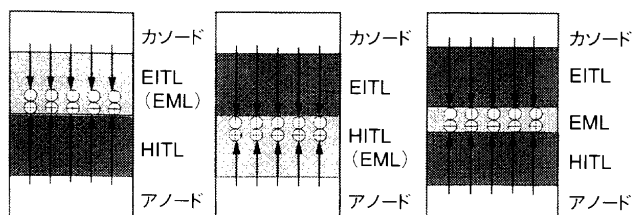


図1. OLEDの基本素子構造

Injection and Transport Layer) に注入され、輸送される。電子とホールが発光層（EML：Emitter Layer）で再結合し、励起分子が形成され、発光する。ここで、発光層は電子注入輸送層（EITL）かホール注入輸送層（HITL）がキャリアの輸送性と強い蛍光性を有する場合、どちらかが兼ねる構造となっている。また、OLED素子の各層は半導体であるため、キャリアの注入、輸送のために膜厚はおおむね100nm程度である。

現在では、素子の高効率化と高耐久性などを考慮して、電極界面にバッファ層を導入するなど、さらに複雑な構造にしている場合もある。また通常、励起子の熱失活を少なくするために、発光層に微量の蛍光性色素をドーピングすることにより発光効率を向上させる構成となっている³⁾。

3. 有機材料の展開

デバイス構造の進展と共に、材料開発が精力的に行われてきている。有機材料開発における基本的な設計指針は次の点などである。

- (1) 100nm以下の膜厚が均一でピンホールのない薄膜として形成できること。
- (2) 接触する界面で電子的、エネルギー的に整合性がとれること。電子、ホールの注入が容易に可能なこと。界面での電荷移動錯体形成しないこと。
- (3) 荷電キャリアおよび励起子を有効に閉じ込めるエネルギー関係を形成できること。

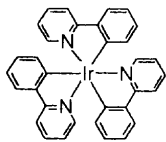
材料は低分子系と高分子系に大別される。低分子系は主に真空蒸着法により作製される。また、高分子系は印刷法、スピンコート法などで作製される。現在生産されているものは主として低分子系の材料であり、真空蒸着で作製されている。

これまでに開発されてきた主な材料は別の文献⁴⁾を参照されたい。ここでは最近の新たな状況を示す。

材料の発光効率を改善するには、発光材料自体の発光効率が高いことが必要である。発光領域で再結合によって励起一重項状態と三重項状態が生成する割合は1：3であ

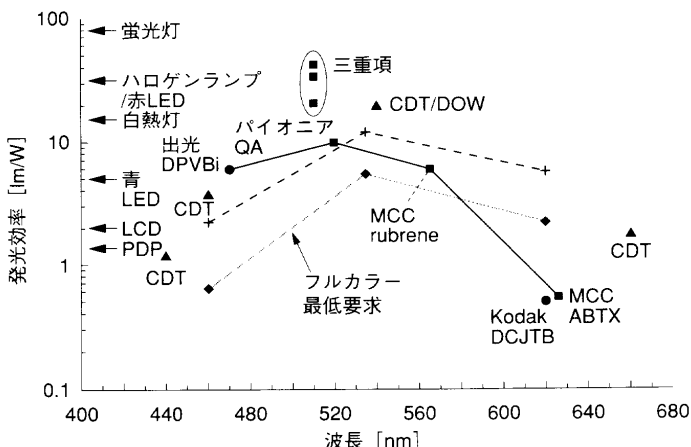
る。発光材料として励起三重項状態から発光する蛍光材料を用いた場合には、発光効率の上限は25%となる。光取り出し効率が20%程度とすると、内部量子効率が仮に100%であっても、外部量子効率は5%程度となる。近年これらの問題を解決し、効率の良い材料が開発されている。三重項状態からのりん光発光を利用する材料である。りん光を利用すると、蛍光を利用する場合には熱に変わっていたエネルギーを発光に利用することが可能となり、大幅な発光効率の改善が期待できる。

材料としては、図2に示すようなIr錯体がプリンストン大学のグループから報告された⁹⁾。これらの材料はホスト材料の中にドーピングして発光層として用いられている。Ir錯体で報告された外部量子効率は最高値15% (40lm/W)と有機EL素子としては非常に高い値である。内部量子効率はなんと約80%にも到達していることになる。Ir錯体では、原理的に発光効率が高い材料系であり期待されている。



Ir(ppy)₃ 緑

図2. りん光発光材料



佐藤氏による (文献7)

図3. 素子発光効率の比較

現在の素子発光効率の比較を図3に示す⁷⁾。図3によるとOLEDは通常の光源の実現可能性をも示している。

4. 現行の真空蒸着による作製

現在、OLED素子は主として真空蒸着法により作製されている。フルカラーにするために3原色独立微細パターンが形成され、パッシブマトリックスにより駆動されている。図4に、真空蒸着法による製造工程のブロックダイヤを示す⁸⁾。これらのプロセスは基本的に完成している。

5. 印刷手法によるOLEDの作製への挑戦

現行の真空蒸着法での生産は、コスト面で高額となることが予想される。初期投資の蒸着装置が1台10億円前後であり、エネルギーコストも印刷法と比べてコスト高となる。そこで、簡便でコスト的にも有利である印刷による素子の作製が検討されている。印刷法としては、インクジェット法、スクリーン印刷法、グラビア印刷法、ロールツーロール印刷法などが検討されており、これらが実現されることにより、OLEDの飛躍的な普及が期待される。

5.1 インクジェット法

インクジェット法はTFT操作回路の上に3原色の有機発光層をインクジェット印刷の手法で直接形成するものである⁹⁾。図5にインクジェット法によるOLED素子の断面図を示す¹⁰⁾。あるメーカーでは、すでに、TFTのアクティブマトリックスを利用したインクジェット法によるOLED素子の試作に成功しており、実用的性能を実現している。

液晶表示素子のカラーフィルタはインクジェット法により作製され始めている。インクジェット法によるOLEDの作製はカラーフィルタを作製することに相当し、作製プロセスから見ると、あたかも液晶表示素子の液晶部分がないことに相当する。そういう意味でもコスト的に有利であると考えられる。

5.2 スクリーン印刷法

スクリーン印刷はいわば以前の「ガリ版印刷」の様な手法であり、きわめて簡便なものである。現在、無機EL素

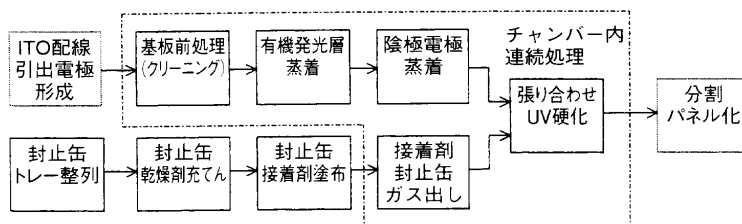
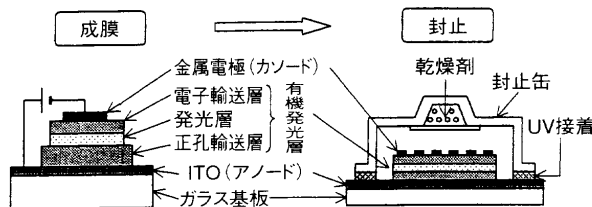


図4. 製造工程のブロックダイヤ

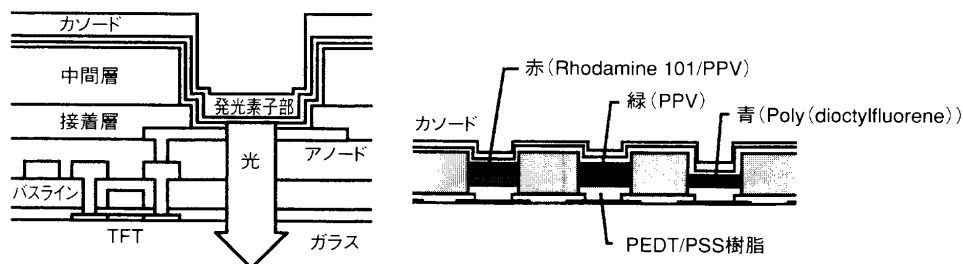


図5. インクジェット法によるOLED素子の断面図

子はスクリーン印刷で作製されており、そのコストもかなり安いものである。電極部分までスクリーン印刷で作製するのは現時点では困難であるが、OLED層の印刷化はすでに実現されている¹¹⁾。作製時に素子の劣化の原因となる水を除去する技術などの問題が解決されると、素子の広い普及にとって大きなブレークスルーになると思われる。

6. フレキシブル表示素子への挑戦

OLED素子の本体は $1\mu\text{m}$ 以下ときわめて薄いものである。現在ではガラス基板上に作製されているが、プラスチック基板上に実現できれば、フレキシブルな表示素子が実現される。紙のように折り曲げるまでには、技術課題が多く残されており、現時点では大きくは湾曲できない。しかし、このメリットは大きい。表示素子が、きわめて薄く、軽量で、割れにくく作製できることとなり、実装方法の制限がほとんどなくなり、インパクトが大きいものと考えられる。

プラスチック基板化の主な技術課題は、素子の劣化の原因となる水の透過性を抑えることである。

防湿フィルムの開発は窒化シリコン系膜により、解決されつつある¹²⁾。RFスパッタ法を用い作製された窒化シリコン系膜により、OLED素子が作製されており、ガスバリア性が大きく改善されつつある。これが、実現されることにより、素子の広い普及にとって大きなブレークスルーになると思われる。

7. 新たな素子への挑戦

OLED素子の新たな素子として、プロジェクタ用の光源として利用する提案がなされている¹³⁾。この素子では、光量を十分利用するために発光面に誘電体ミラーが設置され、発光の指向性を増す構造の工夫がなされている。

また、陰電極材料を透明化することによる、透明な表示素子の提案もなされている¹⁴⁾¹⁵⁾。これにより、窓ガラスなど透明なガラス基板の透過性を損なうことのない表示素子の実現も夢ではなくなっている。また、不透明なシリコン素子上へのOLED素子の作製も可能となり、操作回路として、現行のシリコン素子の利用も現実のものとなる。

OLED素子の次世代のデバイスとして、有機半導体レーザがある。昨年、米国のルーセントテクノロジー社のベル研究所がプラスチックレーザを開発したと発表した¹⁶⁾。ベ

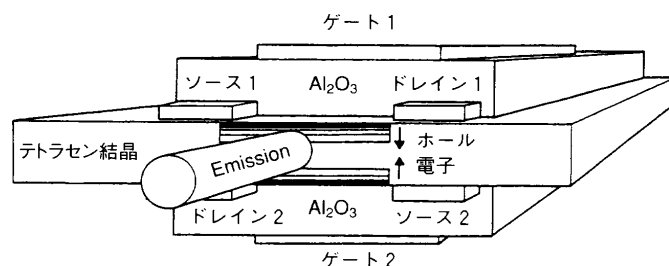


図6. プラスチックレーザの概念図

ル研究所の発表したプラスチックレーザの概念図を図6に示す。高純度のテトラセン結晶にTFT構造の電極を形成し、Fabry-Perot構造による発振を実現したものである。

筆者らも独自に有機半導体レーザの実現を目指して研究を進めている¹⁷⁾¹⁸⁾。この後、この分野の重要性が見逃せないと思われる。

8. おわりに

有機分子の中での電子を制御するデバイスで最初に成功を取めたのは、現在コピー機に使われているOPC(Organic Photo-conductor)である。当初の「有機物では光に弱いのではないか」「有機物で紙に接触させるのは弱いのではないか」などの予想に反して、コピー機の97%以上に使われている。また、「OLED素子は耐久性がないのではないか」との当初の予測に反して、実用的に問題ないレベルにまで到達している。OLED素子は携帯電話の表示、車載のディスプレイなどを突破口としてますます広がりを見せられている。

(2001.6.20-受理 2001.7.18-再受理)

文 献

- 1) 有機エレクトロニクス材料研究会編：“有機LED素子の残された重要課題と実用化戦略”，ぶんしん出版，1999
- 2) 城戸淳二，監修：“有機EL材料とディスプレイ”，シーエムシー，2001
- 3) C.W. Tang, et al.：“Electroluminescence of Doped Organic Thin Film”, J. Appl. Phys., Vol.65, p.3610, 1989
- 4) 安達千波矢，谷口彬雄：“有機エレクトロルミネッセンス材料”，高分子，Vol.47, p.457, 1998
- 5) M.A.Baldo, et al.：“Highly Efficient Phosphorescent Emission from Organic Electroluminescent Devices”, Nature, Vol.395, p.151, 1998

- 6) C.Adachi, et al.: "High-Efficiency Organic Electrophosphorescent Devices with Tris (2-phenylpyridine) Iridium Doped into Electron-Transporting Materials". Appl. Phys. Lett., Vol.77, p.904, 2000
- 7) 佐藤佳晴: "プレスジャーナルFPD入門セミナー③有機EL編", p.81, 2000
- 8) 柳 久雄: "有機EL材料とディスプレイ", シーエムシー, p.394, 2001
- 9) T.Shimoda, et al.: "Multicolor Pixel Patterning of Light-Emitting Polymers by Ink-Jet Printing", SID 99 Digest, p.376, 1999
- 10) 宮下 悟, 著, 有機エレクトロニクス材料研究会編: "有機LED素子の残された重要課題と実用化戦略", p.62, ぶんしん出版, 1999
- 11) K.Mori, et al.: "Organic Light-Emitting Devices Patterned by Screen-Printing", Jpn. J. Appl. Phys., Vol.39, L942, 2000
- 12) 応用物理学会M&BE分科会誌, p.81, 2000
- 13) S.Morozumi, et al.: "LCD Full-Color Video Projector", SID'86 Digest, XVII, p.375, 1996
- 14) G.Gu, et al.: "Transparent Organic Light Emitting Devices", Appl. Phys. Lett., Vol.68, p.2606, 1996
- 15) A.Yamamori, et al.: "Transparent Organic Light-Emitting Diodes Using Metal Acetylacetonate Complexes as an Electron Injection", Appl. Phys. Lett., Vol.78, p.3343, 2001
- 16) J.H.Schon, et al.: "An Organic Solid State Injection Laser", Science, Vol.289, p.599, 2001
- 17) 谷口彬雄: "有機半導体レーザの可能性", 光化学, Vol.3, No.2, p.92, 2000
- 18) M.Nagawa, et al.: "Organic Solid-State Distributed

Feedback Dye Laser with a Nanomorphological Modification Grating". Appl. Phys. Lett., Vol.77, p.2641, 2000

用語解説

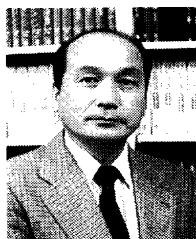
励起状態: 励起状態は、量子力学的な系のうち、基底状態よりエネルギーの高い状態をいう。電子スピンの状態により、励起一重項状態と励起三重項状態がある。励起一重項状態から光を放出して基底状態に戻るとき、その光を蛍光と呼ぶ。三重項状態からのそれはりん光と呼ぶ。

光取り出し効率: 有機EL素子では有機薄膜中から発生する光が膜を通過し、外界、すなわち空気の相に放出される。空気の屈折率は有機膜よりも小さな値であり、有機膜からの放出角度によっては、全反射される。そのため、すべての光が空気相に放出されるわけではない。光取り出し効率とは、外部に取り出せる光の割合のことを示す。

内部量子効率: 加えられるエネルギーのうち、光に変換される効率を内部量子効率という。

外部量子効率: 加えられるエネルギーのうち、光に変換され、外部に取り出される効率を内部量子効率という。

Fabry-Perot: 2枚の平行平面ガラスを互いに平行に置いた共振器のことをいう。光はその間で繰り返し反射するので、レーザ共振器として利用される。



谷口 彬雄 (たにぐち よしお)

昭和47年、大阪大学大学院基礎工学研究科博士課程修了。同年、株式会社日立製作所入社。中央研究所、基礎研究所を経て、平成8年より、信州大学繊維学部教授。工学博士。有機エレクトロニクス材料、機能高分子材料（有機LED、有機半導体レーザ、エネルギー変換材料、有機薄膜材料）の研究に従事。

<http://pec.shinshu-u.ac.jp/tany/>