

超低屈折率有機正孔輸送層による有機 EL 光取り出し効率の向上

High outcoupling OLEDs with super-low-index organic hole transport layers

山形大院有機材料システム¹, 旭硝子(株)², 明治大理工³, 山形大有機エレクトロニクス研究センター⁴

○佐々木 樹¹, 鈴木 泰隆¹, 阿部 岳文², 鶴岡 薫², 桑名 保宏², 野口 裕³, 横山 大輔^{1,4}

Dep. Org. Mater. Sci., Yamagata Univ.¹, Asahi Glass Co., Ltd.², Meiji Univ.³, ROEL, Yamagata Univ.⁴

○Tatsuki Sasaki¹, Yasutaka Suzuki¹, Takefumi Abe², Kaori Tsuruoka², Yasuhiro Kuwana²,

Yutaka Noguchi³, Daisuke Yokoyama^{1,4} E-mail: d_yokoyama@yz.yamagata-u.ac.jp

【序】リン光材料および遅延蛍光材料の開発により有機 EL デバイスの内部量子効率にはほぼ 100%に達しており、現在では外部量子効率 (EQE) をさらに向上させるための原資は光取り出し効率の改善のみという状況に至っている。その改善策として、微小な光学構造を付与するなど様々な手法が過去に提案されているが、近年我々はプロセスコストを増大させない手法として、発光分子の配向制御[1]、複屈折率制御[2]等、デバイス内部の有機半導体薄膜自身の特性を利用する方策を提案してきた。さらに、従来容易でないと考えられてきた広範囲の屈折率制御に取り組み[3,4]、有機 EL デバイスの光学設計自由度の拡張と、それによる大幅な光取り出し効率の向上を目指してきた。有機半導体薄膜の低屈折率化により光取り出し効率が向上するという事実は古くから知られており[5]、近年でもその点に着目した研究が行われているが[6]、比較的屈折率が低い既存の有機 EL 材料を選択するという手段に限られており、積極的に広範囲の屈折率制御が行われた例は過去に見られない。その一方で、これまでに我々はフッ素系樹脂を有機半導体材料と混合することで導電性を損なうことなく正孔輸送層を大幅に低屈折率化できる手法を見出し、光取り出し効率向上への利用を進めてきたが[7-9]、膜の表面平滑性の悪化やフッ素系樹脂材料の分解等の問題を有していた。今回、新たなフッ素系樹脂の混合により、導電性を維持し、かつ高い表面平滑性を有する超低屈折率正孔輸送層を開発した。その層をリン光有機 EL デバイスに適用することで、約 2 割の効率向上を実証したので報告する。

【実験】正孔輸送材料 α -NPD に対し、各種体積比で perfluoro butenyl vinyl ether 重合体 (PBVE: $M_w = 15,000$ 、屈折率 1.34 @600 nm) を共蒸着により混合して膜厚 100 nm の膜を成膜し、その屈折率および J - V 特性等を評価・比較した。また、標準的材料からなるリン光デバイスとして、デバイス A: ITO/MoO₃ (5 nm)/ α -NPD (45 nm)/8 wt%-Ir(ppy)₃(acac):CBP (15 nm)/TPBi (65 nm)/LiF (1 nm)/Al、およびその層構成の一部を PBVE 混合層で置き換えたデバイス B: ITO/MoO₃ (5 nm)/55 vol%-PBVE: α -NPD (60 nm)/ α -NPD (10 nm)/8 wt%-Ir(ppy)₃(acac):CBP (15 nm)/TPBi (60 nm)/LiF (1 nm)/Al を作製して (各デバイスの電荷輸送層の膜厚は光学理論計算によりそれぞれ最適化)、 J - V 特性、EQE、発光角度分布等を評価・比較した。

【結果・考察】Fig. 1 に、正孔オンリーデバイス ITO/MoO₃(5 nm)/x vol%-PBVE: α -NPD (100 nm)/MoO₃ (10 nm)/Al の J - V 特性を示す。絶縁体である PBVE を 55 vol%混合しても導電性が損なわれず、膜の屈折率を 1.54 にまで大幅に低減できることが示された。PBVE の強い電子保持特性 (エレクトレット特性) により混合層内の正孔輸送が促進され、絶縁体混合による導電性低下を十分に補っているものと考えられる。Fig. 2 にリン光デバイスの EQE 実測値 (完全拡散面を仮定) を、Fig. 3 に発光角度分布の実測値・計算値を示す。発光角度分布により補正したデバイス A および B の EQE 最大値として、それぞれ 21.5%および 25.9%が得られた。一方、光学理論計算 (setfos 4.4 使用) により算出したデバイス A および B の光取り出し効率はそれぞれ 27.8%および 33.3%であり、これに発光層の PL 量子収率 83.6% (実測値) を加味すると、上記 EQE 実測値がほぼ再現される。本結果により、PBVE 混合による効果的な低屈折率化と光取り出し効率の向上が示された。

【参考文献】[1] D. Yokoyama, *J. Mater. Chem.* **21**, 19187 (2011). [2] M. K. Callens *et al.*, *Opt. Express* **23**, 21128 (2015). [3] D. Yokoyama *et al.*, *Adv. Mater.* **24**, 6368 (2012). [4] 横山, 応用物理 **83**, 279 (2014 年 4 月号). [5] J.-S. Kim, *et al.*, *J. Appl. Phys.* **88**, 1073 (2000). [6] H. Shin *et al.*, *Adv. Mater.* **28**, 4920 (2016). [7] 鈴木他, 有機 EL 討論会第 20 回例会 S6-2. [8] 鈴木他, 2015 年秋季応用物理学会 14p-2A-7. [9] D. Yokoyama *et al.*, *IMID2015*, 49-1.

【謝辞】本研究の一部は、科研費若手研究(A)25708038、挑戦的萌芽研究 15K13768 の助成を受けて行われた。

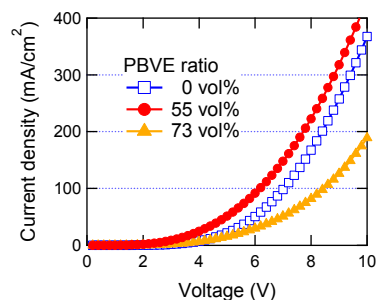


Fig. 1. J - V characteristics of the mixed films of α -NPD and PBVE.

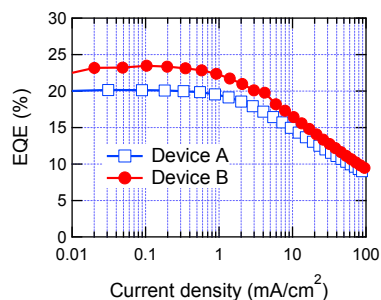


Fig. 2. EQEs of the phosphorescent OLEDs with and without PBVE.

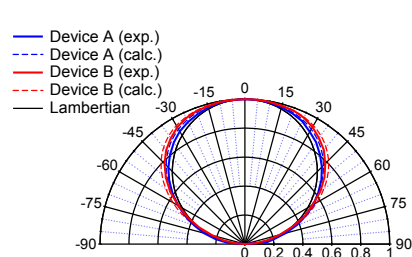


Fig. 3. Angular distributions of the emissions from the OLEDs.