有機アモルファス薄膜の構造制御と有機 EL デバイス特性

Effect of structural control of organic amorphous films on performance of organic light-emitting diodes

九大 OPERA¹, JST ERATO², 九大 WPI-I²CNER³ ^O(D)江崎 有^{1,2}, 田中 正樹¹, 松島 敏則^{1,2,3}, 安達 千波矢^{1,2,3} OPERA, Kyushu Univ.¹, JST ERATO², WPI-I²CNER, Kyushu Univ.³ ^oYu Esaki^{1,2}, Masaki Tanaka¹, Toshinori Matsushima^{1,2,3}, Chihaya Adachi^{1,2,3} E-mail: esaki@opera.kyushu-u.ac.jp, adachi@cstf.kyushu-u.ac.jp

有機 EL デバイスを構成するアモルファス薄膜は、真空蒸着中の基板温度(*T*_{sub})によって、その分子配向と膜密度を制御することが可能である。有機 EL デバイス中のアモルファス構造を制御した例として、これまでに、TADF 発光層の分子配向制御によるキャリアバランス[1]と光取り出し効率[2,3]の向上、 膜密度と熱的安定性に優れたリン光発光層の導入による外部量子効率(EQE)とデバイス寿命の向上[4] が報告されてきた。他方、真空蒸着により作製された多くのアモルファス膜において、分子配向異方 性に由来した自発配向分極(SOP)が発現することが知られている[5]。種々の有機半導体材料における SOP の形成と有機 EL 特性との関係が議論されてきたが、薄膜構造制御を利用した単一材料薄膜の SOP 制御と有機 EL 特性への影響については未だ検討されていない。本研究では、*T*_{sub}によるアモルファス 薄膜の構造制御が SOP 及び有機 EL 特性に与える影響について、総括的な検討を行った。

有機 EL デバイス中の SOP の解析には、ヘテロ界面でキャリアが再結合するシンプルな二層構造が 適している。従って、我々が過去に *T*_{sub} とアモルファス構造の関係を検討した[6,7]ホール輸送材料 α-NPD と蛍光・電子輸送材料 Alq₃からなる有機 EL を作製した[ITO/α-NPD (100 nm)/Alq₃ (80 nm)/LiF (0.8 nm)/Al (100 nm)]。ITO 基板上に、膜密度が最大となる *T*_{sub} = 275 K で α-NPD を真空蒸着した後、240–330 K の範囲の様々な *T*_{sub} を用いて Alq₃を蒸着し、最後に室温で LiF/Al 陰極を蒸着した。

SOP を検討するために、変位電流測定(DCM)により見積もったヘテロ界面の蓄積電荷密度の絶対値 $|\sigma_{int}|$ を Alq3 蒸着中の T_{sub} について Fig. 1 にプロットした。高 T_{sub} 条件において SOP の小さい Alq3 層が 形成されたことで $|\sigma_{int}|$ が減少したと考えられ、 T_{sub} による単一材料薄膜の SOP 制御が可能であること が示された。有機 EL デバイスの駆動電圧 6 V における電流密度 J を比較したところ、高 T_{sub} 条件にお いて J が減少した。Alq3 層の SOP が減少したことで、Alq3/陰極界面に形成されるダイポールの寄与が 減少し、陰極からの電子注入に不利に働いたと考えられる。 $J = 20 \text{ mA/cm}^2$ における EQE を Alq3 蒸着 中の T_{sub} について Fig. 1 にプロットした。EQE の増加率は最大で約 42% (0.65% at 246 K \rightarrow 0.92% at 328 K) であり、著しい T_{sub} 依存性を示した。この増加分のうち、15%は不純物に由来する蛍光量子収率の 変化(5%)及び分子配向に由来する光取り出し効率の変化(10%)によって説明できる。残る 27%の増加分

には、キャリアバランスの変化及びヘテロ界面の蓄積電荷による一重項励起子-電荷消滅(SPA)の寄与が推測される。発表では、デバイス耐久性の*T*_{sub}依存性についても報告する。

[1] T. Komino et al., Chem. Mater. 25, 3038–3047
(2013). [2] T. Komino et al., Chem. Mater. 26, 3665–3671 (2014). [3] T. Komino et al., Appl. Phys. Lett. 108, 241106 (2016). [4] J. R. Ribé et al., Sci. Adv. 4, eaar8332 (2018). [5] Y. Noguchi et al., Jpn. J. Appl. Phys. 58, SF0801 (2019). [6] Y. Esaki et al., J. Phys. Chem. Lett. 8, 5891–5897 (2017). [7] Y. Esaki et al., Org. Electron. 67, 237–241 (2019).



Fig. 1. Dependence of interfacial charge density $|\sigma_{int}|$ and EQE at J = 20 mA/cm² on T_{sub} during vacuum deposition of Alq₃.