

有機 EL 光取り出し効率向上のための有機膜光学特性の設計指針

Design guidelines of optical properties of organic films for high-outcoupling OLEDs

山形大院有機材料システム¹, 山形大有機エレクトロニクス研究センター²

○鹿内 浩紀¹, 横山 大輔^{1,2}

Dep. Org. Mater. Sci., Yamagata Univ.,¹ ROEL, Yamagata Univ.²

○Koki Shikanai¹, Daisuke Yokoyama^{1,2} E-mail: d_yokoyama@yz.yamagata-u.ac.jp

【序】有機 EL の外部量子効率(η_{ext})は通常のボトムエミッション型で 30%程度という低い値に留まっており、このうち内部量子効率(η_{int})はほぼ 100%に達しているため、さらなる外部量子効率(EQE)向上のためには光取り出し効率(OCE)の改善が必須となる。その手法として、近年では有機膜の屈折率制御[1,2]や複屈折制御[3]の検討が行われている。特に我々は、フッ素樹脂の混合による低屈折率化を利用し、材料選択による低屈折率化($n=1.65$)[4]よりも広い範囲の能動的屈折率制御($n=1.54$)を実現し、さらに OCE および EQE の大幅な向上も実証している[5]。内部有機膜自身の屈折率・複屈折の制御は、付帯構造を追加することなく OCE を向上でき、また、内部の光学現象に関する理解向上と新たな技術創出につながることも期待される。しかしその一方で、各層の光学特性を変化させたときにどれだけ効果的に OCE を向上できるかについて十分な比較はなされておらず、また、その際の OCE 向上の起源や解釈付けは未だ不明瞭なままである。そこで本研究では、高効率化のために求められる有機膜の光学特性の制御指針を示した上で、さらに、その制御により効率が大きく向上する理由について直感的な解釈付けを行うことを目指して各種光学計算を行った。電磁光学に基づいた計算によって各有機層の光学定数およびその異方性の変化に対する OCE の変化率を算出することで、効果的かつ現実的に OCE を向上させる有機膜光学特性の設計指針を提案し、さらに、反射・吸収・干渉といった基本的な光現象に基づく波動光学によってその起源を説明することを試みた。

【計算】電磁光学に基づく計算は、ソフトウェア setfos 4.6 を用いて行った。波長 500 nm の光に対する OCE の屈折率 $n_{\text{iso}} \equiv [(2n_o^2 + n_e^2)/3]^{1/2}$ (等方的な場合は n と略記)および異方性 $\Delta n \equiv n_o - n_e$ に対する依存性を調べた。屈折率依存性については、Glass/ITO(75 nm, $n=1.9$)/HTL/EML(20 nm)/ETL/Al の構造において各有機層の n を 1.8 ± 0.3 で変化させ HTL および ETL の膜厚最適化を行うことで OCE の変化率 (n の $+0.1$ の変化に対する OCE の変化)を算出した。同様に異方性依存性については、有機膜の n_{iso} を 1.8 に固定した上で、 Δn を 0 ± 0.2 で変化させ HTL および ETL の膜厚最適化を行うことで OCE の変化率 (Δn の $+0.1$ の変化に対する OCE の変化)を算出した。次に、EML($n=1.8$)/ETL($n_{\text{iso}}=1.8 \pm 0.3$, $\Delta n=0 \pm 0.2$)/Al の積層構造に対してフレネルの式から干渉の影響を考慮しない反射率を算出し、得られた計算結果を Glass/ITO(75 nm, $n=1.9$)/HTL($n=1.8$)/EML(20 nm, $n=1.8$)/ETL($n_{\text{iso}}=1.8 \pm 0.3$, $\Delta n=0 \pm 0.2$)/Al での表面プラズモン(SP)損失と比較した。また、Glass/ITO(75 nm, $n=1.9$)/HTL($n=1.5$ or 1.8)/EML(20 nm)/ETL($n=1.5$)/Al の最適構造においてデバイス内部の多重干渉の影響を波動光学に基づき算出し、デバイス外部に取り出される光強度の比を求めた。

【結果・考察】Table 1 に他の有機膜が $n=1.8$ の場合の OCE 変化率(%pt 表記)を示す。屈折率依存性に関しては OCE は輸送層の低屈折率化により向上し、これは過去の報告と一致する。一方で、意外にも EML の低屈折率化の効果は小さく、光学的に均一な固体発光デバイスとは異なる高効率化の起源を有することが明らかとなった。また、異方性も OCE に影響を与えるが、垂直配向性の高い膜の採用が現実的でないことを考慮すると、ETL に水平配向性の材料を使用しつつ、かつ ETL、HTL 両方の低屈折率化を行うことが OCE 向上にとって効果的な光学設計指針であると結論する。Fig. 1 に干渉の影響を考慮しない場合の金属による光吸収率とデバイスにおける SP 損失の比較結果を示す。これらの対応関係から、ETL の Δn 増加に伴う SP 損失の減少について、等方性 EML/異方性 ETL 界面での反射が大きく起因していると解釈付けした。ETL の低屈折率化に伴う SP 損失の減少にも、EML/ETL 界面の反射が寄与しているものと理解できる。また、多重干渉の計算からは、HTL の n が 1.8 から 1.5 になることでデバイス外部に放出する光は 1.7 倍になると算出され、HTL 低屈折率化による OCE 向上に HTL 内における光干渉が寄与していることが明らかとなった。

【参考文献】[1] D. Yokoyama *et al.*, *Adv. Mater.* **24**, 6368 (2012). [2] H. Shin *et al.*, *Adv. Mater.* **28**, 4920 (2016). [3] M. K. Callens *et al.*, *Opt. Express* **23**, 21128 (2015). [4] A. Salehi *et al.*, *Adv. Opt. Mater.* **5**, 1700197 (2017). [5] 佐々木他, 2017 年秋季応用物理学会学術講演会 6p-A203-11.

【謝辞】本研究の一部は AGC リサーチコラボレーション制度による助成の下に行われた。

	HTL	EML	ETL
Random			
Refractive index	- 2.5	+ 0.8	- 2.6
Birefringence	- 0.5	- 0.9	+ 0.8
Horizontal			
Refractive index	- 1.7	- 0.7	- 2.4
Birefringence	- 1.5	- 0.1	+ 1.1

Table 1. Change rate of OCE when $n=1.8$ for the other organic layers.

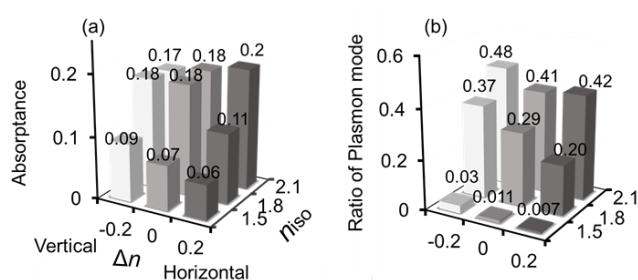


Fig. 1. Comparison between (a) the absorbances by the Al layer without interference and (b) the ratios of plasmon mode.