

照明用高効率白色OLEDデバイスの開発

Development of Highly Efficient OLEDs for Lighting Applications

古川 慶一*
Keiichi FURUKAWA

小野 雄史*
Takeshi ONO

加藤 一樹*
Kazuki KATO

岩崎 利彦*
Toshihiko IWASAKI

要旨

近年、省エネルギー、CO₂削減が全世界的に急がれる中、エネルギー消費は、生活の利便性・快適性を追求するライフスタイルの変化、世帯数の増加等の社会構造変化の影響を受け、増加の一途をたどっている¹⁾。中でも照明機器によるエネルギー消費は、オフィスで21%¹⁾、家庭で16%²⁾を占めており、人の使用する電力のおおよそ20%を照明で消費していることになる。従って省エネルギーの推進が喫緊の課題である中、高効率照明を実現することによって環境負荷低減へ貢献することは、非常に大きな意味を持つ。

有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、OLEDと略記する）は、本格的な普及段階にあるLEDと共に白熱電球や蛍光灯を代替する次世代照明用の固体光源として注目されている。OLEDは、高い発光効率・低電圧駆動・面光源という本質的な特徴を活かして、エネルギー利用効率が高い照明装置の実現が可能である上に、蛍光灯と異なり廃棄時に有害となる水銀を含まないことから、環境にも優しい照明装置として期待されている。さらに、有機材料という薄型化・軽量化・フレキシブル化に適した素材を使用することから、照明器具設計の自由度が増し、多様なデザインの照明装置の開発が可能となるといった魅力も秘めている。

2011年には各社からOLED照明用パネル販売が相次いで開始された。しかしながら、現在量産初期段階にあるOLED照明は、ニッチなアプリケーション市場の形成に留まっており、性能・コスト面で根本的な課題を残している点とエンドユーザーへの商品価値の訴求が十分に具体化しきれない点で、照明市場全般への浸透が遅れている。

OLED照明を本格的に普及させるために、コニカミノルタでは上記課題を克服すべく開発を進めている。コニカミノルタの強みである材料技術や光学技術を駆使し、新規の青色りん光発光材料や独自の内部光取出し構造を開発した。これらの技術を組み合わせることで、白色発光パネルにおいて103lm/Wという高効率なOLED照明パネルの開発に成功した。

Abstract

Today, energy conservation is a serious worldwide issue. In Japan, energy consumption has been increasing along with an ever more convenient human lifestyle¹⁾. Energy consumption of lighting fixtures accounts for about 20% of total power consumption in Japan: about 21% in offices¹⁾ and about 16% in the home²⁾. Replacing conventional, inefficient lighting with advanced, highly efficient lighting is of great value to energy conservation.

Together with LED lighting, already familiar on the global market as a replacement for incandescent and fluorescent lighting, OLED (organic light emitting diode) lighting is recognized as next-generation lighting technology. OLEDs offer highly optically efficient lighting and such essential features as efficient, low operation voltage and a surface light source. And they also differ from fluorescent lighting in that OLED lighting contains no harmful mercury. In addition, the organic substances used in OLED lighting allow extremely thin, lightweight, and flexible lighting fixtures to be designed, opening wide the possibilities of lighting applications.

Many OLED lighting products have been launched on the market by various manufacturers since 2011. To date, however, OLED lighting has remained in the early stages of mass production and has created only niche application markets. The full-fledged emergence of an OLED lighting market has been delayed because of many issues concerning performance, cost, and presentation to the public.

To popularize OLED lighting, Konica Minolta has been working to cope with the above issues. Our highly efficient technologies for OLED lighting, including new blue phosphorescent emissive materials and our unique internal extraction structure (IES), grew from our state-of-the-art organic materials technology and optical design technology, technologies that have been nurtured over decades of experience with photosensitive materials, lenses, and film manufacturing. By integrating these technologies, we achieved the extremely high efficacy of 103 lm/W in an OLED lighting panel.

*アドバンストレイヤーカンパニー OLED事業部 技術開発部

1 はじめに

1987年に積層型構造のOLEDデバイスがTangらによって報告されて以来³⁾、その技術は大きく進歩してきた。現在OLEDは、携帯電話やミュージックプレイヤーのディスプレイなど、すでに一般消費者の生活に広く浸透している。また大画面のテレビ用OLEDディスプレイの量産も目前に迫っている。一方OLEDはそのポテンシャルから省エネルギー光源としても期待されており、近年多くの照明用OLEDの発売が相次いでいる^{4)~6)}。しかしながらそれらは全てイルミネーションや装飾照明などの特殊照明用途向けに留まっており、今後OLEDが照明市場全般に広く普及するためには、基本性能、コスト、生産技術など数多くの課題を克服して行く必要がある。

OLEDが照明用途の光源として実用化されるためには、(1)発光効率、(2)駆動寿命、(3)光束、(4)演色性、などの基本性能の担保が不可欠である。さらに、既存照明と伍していくためには、製品の経済性比較に使われる光束単価(\$/lm)を低減する必要がある。現状では、OLED照明の光束単価は、白熱電球や蛍光灯の数百~数千倍であり、下式に示されるように、単位面積当たりの性能向上と単位面積当たりの製造コスト低減の両面からのアプローチが必要となる。

$$\text{光束単価} \left[\$/lm \right] = \frac{\$/m^2}{lm/m^2}$$

製造コストを下げるための生産技術としての大きな課題は、生産性、良品率、ロバストネス、品質管理などがある。特に品質管理に対して、コニカミノルタは独自に信頼性評価技術を開発してきた⁷⁾⁸⁾。

上記課題とは別に、OLED照明が市民権を得る鍵は、OLEDならではの魅力ある価値を具現化することであると考えられる。OLEDは薄く面発光であること、フレキシブル化が可能であることなどはよく知られている。特に大面積のフレキシブル照明は、他の光源技術では実現し得ない独自のアプリケーションであり、OLED照明のユニークな価値となり得る。

コニカミノルタは2011年10月に世界で初めて発光物質としてりん光発光材料のみを使用し、世界最高レベルの発光効率(発売当時)を実現した「Symfos OLED-010K」を商品化した⁹⁾(Fig. 1)。りん光方式の可能性と将来性を示す象徴的な商品であり未来の平面照明の在り方を予見するものであるが、その実現には青色りん光材料をはじめとするさまざまな技術を改良する必要があり、多岐にわたる新規材料や部材開発による性能向上のための基盤技術開発並びに製品設計、生産技術の革新など様々な障壁を乗り越える必要があった。本稿では最近の効率向上の技術に焦点を当てて、特に青色りん光材料と有機層設計及び、光取出し技術開発について報告する¹⁰⁾。

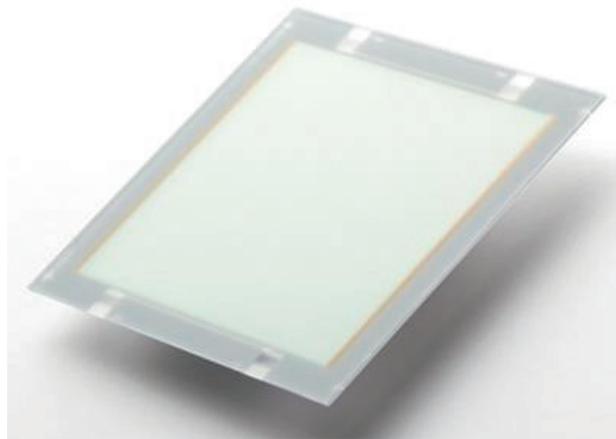


Fig. 1 World's first all-phosphorescent OLED lighting panel "Symfos OLED-010K" (2011)⁹⁾

2 発光材料と層設計

2.1 青色りん光材料

有機材料を電界励起して発光させるには、励起一重項状態からの発光を用いる蛍光方式と、励起三重項状態からの発光を用いるりん光方式の二通りがある。蛍光方式が25%の生成確率である励起一重項状態からの発光であるのに対し、りん光方式では生成確率75%の励起三重項状態からの発光に加え、有機化合物設計等の工夫により禁制遷移である励起一重項から励起三重項への項間交差が加速され、実質的に100%の発光量子収率(蛍光方式の4倍)が得られる^{11)~13)}。従って、高効率OLED照明を実現するにはりん光方式が必須であると言える。

光の三原色のうち、赤色と緑色は既にりん光方式が製品に適用されているが、青色は実用化に至るまでのハードルが高く、発光波長・発光効率および発光寿命の全てを満足する材料は見出されていないのが現状である。特に、青色発光のスペクトル形状の短波長化(高色温度化)と長寿命化の両立は難題である。

さらにOLEDでは、発光効率を向上するため、発光材料自体をホストと呼ばれる発光補助材料に分散して使われるが、高効率な青色りん光発光を得るためには、青色発光材料のみならず、ワイドバンドギャップの青色ホスト材料が極めて重要な要素となる。

青色りん光材料の技術進展が遅れている理由は、励起三重項エネルギーが他の発光色よりも高いことによるバンドギャップの広さに起因する分子の脆弱さと、励起子寿命の長さ由来するクエンチャーによる消光がその二大要因であると言える。

コニカミノルタでは、独自の分子設計思想に基づき、最新のスーパーコンピュータを駆使して基底状態と励起状態の電子状態や分子の微細構造をシミュレーションし、さまざまな分子の設計・合成を進めてきた。その結果、独自の青色りん光材料とホストを組合せることにより、青色発光デバイスの発光効率と発光寿命を協奏的に向上させることに成功した。

2.2 白色OLEDの層設計

前記青色りん光材料とホスト材料に加え、新規電子輸送材料の採用と励起子閉じ込め層設計により、白色りん光OLEDの発光寿命も大きく向上させることができた。加速試験から推定した定電流駆動における輝度半減時間は、初期輝度1,000 cd/m²において70,000時間以上を得た (Fig. 2)。これは製品化されたOLED照明「Symfos OLED-010K」¹⁴⁾の実に8倍以上に相当する。

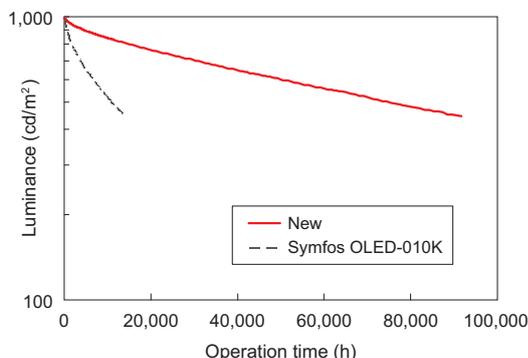


Fig. 2 Improved lifetime performance.

The lifetime decay curves here were estimated from accelerated testing under high-luminance conditions.

3 光取出し技術

3.1 光学設計

消費電力に直結するOLEDデバイスの電力効率は、外部量子効率 (以下, EQEと略記する) に比例する。EQEは内部量子効率 (以下, IQEと略記する) と光取出し効率 (以下, OCEと略記する) を掛け合わせたものである。

$$EQE = IQE \cdot OCE$$

従って、発光効率向上のためには①材料や層構成によるIQEの向上, ②光学設計や光取出し技術によるOCEの向上が必要である。

②のOCEについては、光学的な構造に起因する多くのエネルギーロスが存在しており、改良の余地が最も大きい (Fig. 3)。発光によって生じたエネルギーのうち一部は、発光部近傍にある陰極金属の表面の自由電子と共鳴し、表面プラズモン-ポラリトンとして失われる。これをプラズモンロスモードと呼ぶ (Fig. 3 a.)。発光によって生じたエネルギーのうち、透明電極と基板の界面における全反射の臨界角より浅い成分は、その大きな屈折率差により有機層や透明電極から外に出てくることができない。このエネルギーを導波モードと呼ぶ (Fig. 3 b.)。同様に基板に出てきたエネルギーのうちの一部は基板と空気の大屈折率差により基板から外へ出てくることができない。このエネルギーを基板モードと呼ぶ (Fig. 3 c.)。特に光取出し技術を用いない場合、最終的にデバイスから

外への発光として得られるエネルギー、いわゆる空気モード (Fig. 3 d.) は、デバイス内部で発光によって生じたエネルギーのわずか20%程度と言われている¹⁵⁾。

OCEを向上するためには、(A) プラズモンロスモードを低減して導波モードに分配すること、(B) 導波モードを基板モードや空気モードへ分配すること (内部光取出し)、および (C) 基板モードを空気モードに取出すこと (外部光取出し) の段階的な三つのアプローチが重要となる。

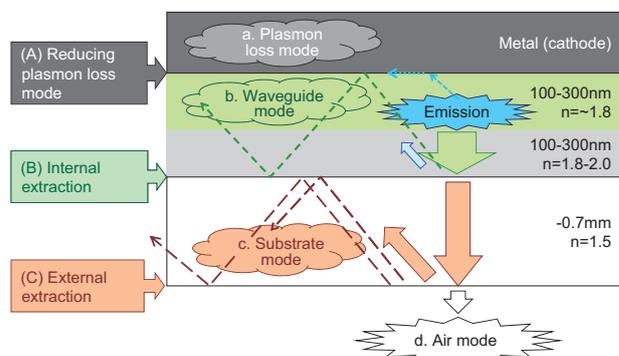


Fig. 3 Emission energy loss in an OLED device and a light extraction approaches: (A) reduction of plasmon loss mode, (B) internal extraction of waveguide mode, and (C) external extraction of substrate mode.

3.2 光取出し構造

導波モードを取出す内部光取出し技術として、基板と透明電極の間に散乱構造を導入する方法が提案されている¹⁶⁾。この散乱による内部光取出し技術に着目し、独自の材料技術とプロセス技術を用いた高屈折率散乱層による、導波モードの取出し技術を検討した (Fig. 4)。

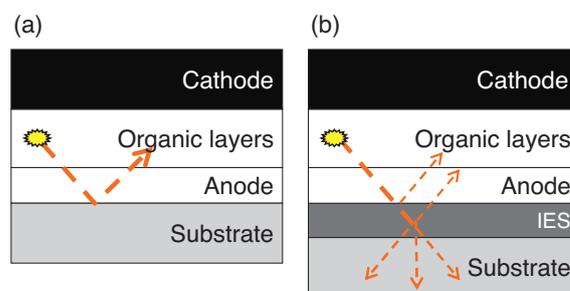


Fig. 4 Internal light extraction by IES. (a) In conventionally structured devices, shallow-angled light does not escape through the substrate because of the great difference in the refractive indices of the substrate and the anode. (b) Scattering in the IES (internal extraction structure) allows even shallow-angled light to be extracted.

この内部光取出し構造 (以下, IESと略記する) は、光散乱層と平坦化層の二層からなる (Fig. 5)。光散乱層として、透明なマトリックス材料に、それと異なる屈折率を持つ散乱粒子を分散した膜を基板上に設けた。さらに光散乱層表面の凹凸によるショート不良を防止するために光散乱層上に平坦化層を設けた。IESの屈折率を取り出す導波モードの有効屈折率よりも高い屈折率に設定し、有機

層／透明電極－IES間の全反射を低減させることによって導波の抑制を試みた。また、IESへ到達した光が基材側へ最大限透過するように光散乱層の光学設計を行った。

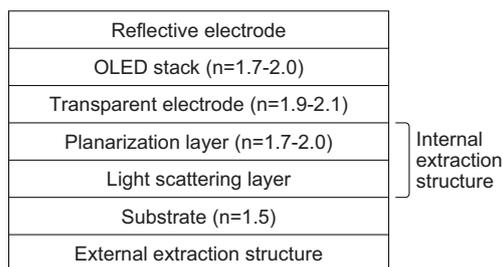


Fig. 5 OLED layer stack and optical refraction indices with light extraction structures. The IES (internal extraction structure) is composed of two layers, a planarization layer and a light scattering layer.

3.3 デバイス性能の最適化

導波モードからの光取出しによってOCEを最大化するためには、IES上に形成されるOLED有機層の光学特性も重要である。光学シミュレーションによる導波モード量の多いOLED有機層構成の最適化、光学物性を重視した材料の選択による透過率・反射率の向上、それらを組合せ電気特性への影響が小さいOLED有機層構成を検討した。

高い屈折率の基板を用いることにより導波モードを基板モードに取出すことが可能であること、さらに基板と同じ屈折率の半球レンズを用い、レンズ径に対して点光源とみなせる十分小さな発光面積のデバイスを用いることによって、実デバイスの基板モード量を見積もれることが報告されている¹⁷⁾。

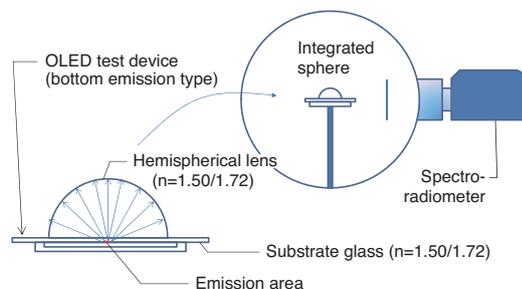


Fig. 6 Luminous flux measurement of an OLED test device with a hemispherical lens. A hemispherical lens with the same refractive index as the substrate is applied to extract substrate mode energy.

今回、層構成の最適化においては、発光面積4mm²のテストデバイスを用いた。屈折率の異なる二種類のガラス基板を用いてテストデバイスを作製し、同電流条件における光束を積分球によって測定した。また、Fig. 6に示すように、各々の基板と同じ屈折率の半球レンズを介して取出される光束も測定し、IESを用いたデバイスの光学性能の指標とした。

Fig. 7にエネルギーモード配分の一例と、測定により見積もることができるモードの関係を示す。半球レンズを介さずに測定した場合の取出されたエネルギーは空気

モードの量に相当する。また通常の屈折率 (n=1.50) の基板を用いたデバイスから同じ屈折率の半球レンズを介して得られたエネルギーは空気モードと基板モードの和に相当する。屈折率1.72の高屈折率基板を用いたデバイスから同じ高屈折率の半球レンズを介して得られたエネルギーは、通常の屈折率の基板を用いたデバイスにおける空気モード、基板モード、導波モードの和に相当する。こうすることで、プラズモンロスモード以外のモード配分の概算を見積もることができ、光取出し効果の予測や検証が可能となる。

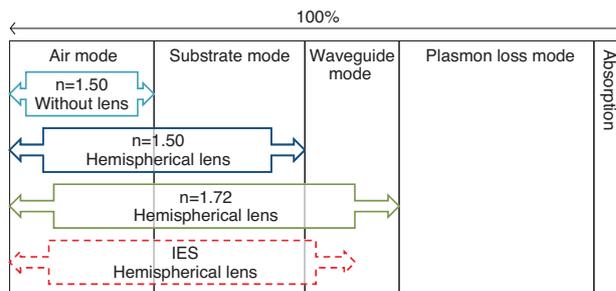


Fig. 7 Energy measurements and corresponding estimated energy modes. As shown in the dashed rectangle, the measured energy of the IES device with a hemispherical lens corresponds to the total of the energies of the air mode, substrate mode, and a portion of the waveguide mode.

同電流密度においてそれぞれ半球レンズを介さないで測定した場合、半球レンズを介して測定した結果をFig. 8に示す。

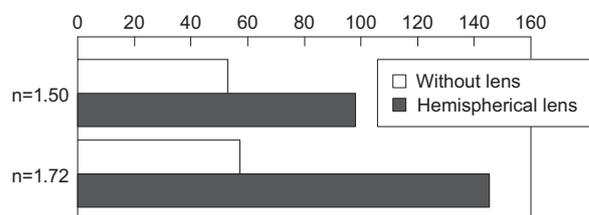


Fig. 8 Optimized performance on test devices for the design of an OLED with IES. Measured is luminous efficacy at 4 A/m² (lm/W). The efficacy of these devices with IES is high for devices with a high refractive index substrate and substantially lower for those devices with a normal refractive index substrate.

高屈折率ガラス基板に高屈折率半球レンズを組み合わせたテストデバイスの電力効率は、新規青色りん光材料とホスト材料を導入し、さらにOLED有機層最適化設計により、145lm/Wに達した。これにより、開発したOLEDデバイスは非常に高い効率ポテンシャルを有することが証明された。高屈折率ガラス基板を用いたデバイスの性能は、通常の屈折率のガラス基板を用いたデバイスの導波モードの大部分を取出していると考えられるが、Fig. 7に示されるように実用化可能なIESの導波モードの取出し効率は減少する。このギャップを極小化するために、IESの屈折率をはじめ、散乱性、低光吸収性などのパラメータを用いて光学設計最適化を行った。

3.4 内部光取出しと外部光取出し

Fig. 5 に示すように、発光を司る物質を全てりん光発光材料で構成した OLED デバイス (発光面積 15 cm²) を今回開発した IES を用いて試作し、効果を検証した。基板モードの光を取出すために、基板表面に外部光取出し構造として一般的な拡散シートを設けた。Fig. 9 に示すように、新規青色発光りん光材料と層構成、光取出し構造を導入した OLED デバイスは、輝度 1,000 cd/m²において 103 lm/W (輝度 3,000 cd/m²で 90 lm/W) という高い電力効率を達成した。

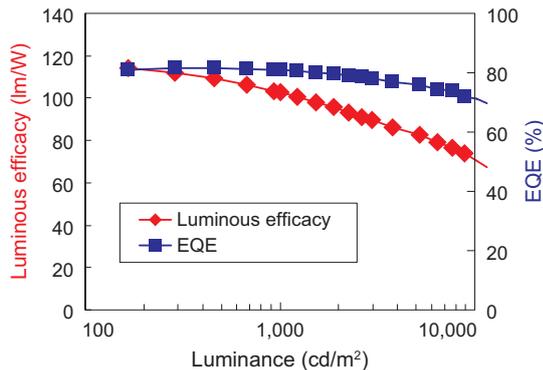


Fig. 9 Efficacy of an OLED lighting panel with a novel blue phosphorescent material and IES.

4 まとめ

新規青色発光りん光材料と層構成、光取出し構造を導入した OLED 照明デバイスを作製し、103 lm/W という高効率を達成した。この電力効率は、一般的な LED 照明器具に迫る値である。

コニカミノルタは、発光効率や発光寿命といった OLED 基本特性を向上させる基盤技術開発と同時に、フレキシブル化や透明化といった OLED ならではの特徴を発揮し得る新たな応用技術開発にも注力している。その一例として 2013 年 3 月のライティングフェアにおいてフレキシブル OLED 照明のデモンストレーションモデル「はばたき」を発表し、大きな反響を得た (Fig. 10)。フレキシブル OLED 照明の魅力的かつユニークな特徴は、新しい照明の価値に繋がるものと信じている。



Fig. 10 Flexible OLED lighting model, "Habataki" demonstrated at Lighting Fair 2013, Tokyo.

5 謝辞

本成果の一部は、新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) の「次世代高効率・高品質照明の基盤技術開発」プロジェクトの委託を受けて開発したものである。また本成果の一部は、Universal Display Corporation の PHOLED 技術の利用により達成した。ここに謝意を表する。

●参考文献

- 1) <http://www.enecho.meti.go.jp/topics/hakusho/2010energyhtml/2-1-2.html>
- 2) http://www.yonden.co.jp/life/energy_saving/kurashi_energy/page_03.html
- 3) C.W.Tang and S.A.VanSlyke: "Organic electroluminescent Diodes", *Applied Physics Letters*, Vol.51, No.12, pp.913 (1987).
- 4) <http://www.lighting.philips.com/main/led/oled/>
- 5) <http://panasonic.co.jp/es/peiol/>
- 6) <http://www.m-kagaku.co.jp/english/products/business/electron/oled/index.html>
- 7) T.Tsujimura, K.Furukawa, H.Ii, H.Kashiwagi, M.Miyoshi, S.Mano, H.Araki and A.Ezaki: "World's First All Phosphorescence OLED Product for Lighting Application", *IDW 2011 proceeding* pp.455(2011).
- 8) K.Furukawa, T.Tsujimura, S.Mano and A.Ezaki: "Development of world's first all-phosphorescent OLED product for lighting application", *Proceeding of the 13th International Symposium on the Science and Technology of Lighting*, pp.45 (2012).
- 9) <http://www.konicaminolta.com/oled/products/>
- 10) K.Furukawa, K.Kato and T.Iwasaki: "Recent progress of OLED performance for lighting application", *IDW 2013 proceeding to be published*.
- 11) M.A.Baldo, D.F.O'Brien, Y.You, A.Shoustikov, S.Sibley, M.E.Thompson and S.R.Forrest: "Highly efficient phosphorescent emission from organic electroluminescent devices", *Nature*, Vol.395, pp.151 (1998).
- 12) P.Levermore, V.Adamovich, K.Rajan, W.Yeager, C.Lin, S.Xia, G.Kottas, M.Weaver, R.Kwong, R.Ma, M.Hack and J.Brown: "Highly Efficient phosphorescent OLED Lighting Panels for Solid state Lighting", *SID 2011 Proceeding*, pp.786 (2010).
- 13) J.Brown, V.Adamovich, B.Ma, B.D'Andrade, R.Kwong and M.Weaver: "Full-Color Phosphorescent OLEDs: Maximizing Performance Today for Small-Area Portable Products and Tomorrow for TVs", *IMID 07 Proceeding*, pp.427 (2007).
- 14) 古川慶一・柏木寛司・辻村隆俊: 全燐光型 OLED 照明パネルの製品開発, *KONICA MINOLTA Tech. Rep.*, Vol.9, 58-63 (2012)
- 15) 時任静士・安達千波矢・村田英幸 (2004) 『有機 EL ディスプレイ』 オーム社
- 16) Y-S Tyan, Y.Q. Rao, J-S. Wang, R.Kesel, T.R. Cushman and W.J.Begley: "Fluorescent White OLED devices with Improved Light Extraction", *SID 2008 Digest*, pp.933 (2008).
- 17) A. Werner, C. Rothe, U.Denker, D. Pavicic, M. Hofmann, S. Mladenovski and K. Neyts: "The Light Distribution in OLEDs and Ways to Increase the Light Outcoupling Efficiency", *SID 2008 Digest*, pp.522 (2008).