

# 論文内容要旨 (和文)

平成13年度入学 大学院博士後期課程

生体センシング機能工学専攻 機能センサー工学講座

学生番号 01522404

氏名 岸上 泰久



(英文の場合は、その和訳を ( ) を付して併記すること。)

論文題目 高効率白色有機EL素子に関する研究

白色有機 EL 素子は、高発光効率、平面発光性、薄型、軽量性、フレキシブル性、水銀レス等、他の発光デバイスにはない、ユニークな特長を数多く有しており、ディスプレイへの応用だけでなく、次世代光源デバイスとしての期待が大きい。従って本研究では、その実用化の可能性を見極めるため、白色発光有機 EL 素子の高効率化及び長寿命化について検討を行った。

以下に本論文の要旨を示す。

第1章では、本研究を行うに背景として、照明用光源市場動向、それに対する次世代光源技術動向、次世代光源としての有機ELの開発動向をレビューし、本研究での目的、及びそれに対するアプローチを明確化した。

第2章では、白色素子を得るためのベースとなる青色発光素子の高効率化の可能性を検討した。従来高効率化が可能との報告がなされてきた、ジスチルアリーレン系青色発光材料を選定し、評価した結果、ホール輸送性には優れるものの、電子輸送性に劣り、電子注入特性の向上が、低電圧化、高効率化のポイントであることが明らかになった。従って、これまで当研究室にて見出された、アルカリ金属ドーブ型電子注入層による、電子注入特性の向上を検討し、Bphen:Cs 金属ドーブ層により低駆動電圧化を可能にした。結果として、輝度 227 cd/m<sup>2</sup>での視感効率が 9 lm/W、外部量子効率が 6.4%、青色色度が CIE (0.16,0.22) の、これまでにない高効率な青色発光素子の開発が可能となり、白色素子のベースとして十分適用可能であると判断できた。

従って、第3章においては、上記青色素子をベースに白色素子設計を検討した。まず白色素子構造として黄色発光材料のルブレンをホール輸送層にドーブした、ホール輸送層/電子輸送層発光型にて検討した。電子輸送層からのキャリアトラップ型発光メカニズムにより、白色発光を得ることができた。さらに電子注入層として、Bphen:Cs 型金属ドーブ層を適用することにより、大幅な、低電圧化、高効率化が可能となった。素子構造を最適化した結果、3 Vで輝度 100 cd/m<sup>2</sup>、視感効率 14.7 lm/W、量子効率 3.8%もの、これまでにない高効率な白色素子の開発に成功した。

続いて第4章では、白色 EL 素子の長寿命化を検討した。まず寿命特性評価のためのインフラを整備した。具体的には EL 素子の封止プロセスを検討、標準化した。次に長寿命化のアプローチとして高耐熱性材料の選定を行い、長寿命材料ベースにて、寿命劣化因子把握を各機能部位ごとに行った。まず再結合領域(発光ドーパント、ドーブ膜厚)が寿命特性に影響を与えることを明らかにし、素子構造の最適設計を行った。さらに、陽極及び陰極からのキャリア注入障壁と寿命特性の関係を解析した。ホール注入プロセスではITO電極のBr<sub>2</sub>ガス処理が、ホール注入障壁を大幅に低減でき、長寿命化及び定電流駆動時の駆動電圧の上昇、発光色の色ズレ低減の効果が大きいことを見出した。電子注入プロセスでは、金属ドーブ型電子注入層とAl陰極の間に、耐熱性を有しかつ、段階的に電子を注入できる、電子注入バッファ層の概念を提案した。具体的には Bphen:Cs/Alq<sub>3</sub>:Cs 型、電子注入バッファ層を用いることにより、長寿命化が可能となった。以上の要素技術の活用により、まず初期特性としては、3Vで90 cd/m<sup>2</sup>、10.0 lm/W、9.5 cd/A、CIE (0.314,0.389)の高効率白色EL素子を得ることができた。さらに寿命特性も、10 mA/cm<sup>2</sup>の定電流駆動時に、初期輝度が940 cd/m<sup>2</sup>で、半減時間

が 4200 時間の長寿命化が可能となった。これまで長寿命白色素子に関しては、TDK㈱から初期 500 cd/m<sup>2</sup> の時、半減寿命が1万時間以上の報告がなされているが、半減寿命が初期輝度に反比例すると仮定すれば、ほぼ同等の長寿命化が達成できたものと考えられる。TDK㈱の素子が、4 lm/W であったことを考えると、今回得られた素子は、これまでにない高効率性と長寿命を兼ね備えた素子であることが明らかとなった。

第5章では、蛍光発光型白色 EL 素子の更なる高効率化の検討、及び2インチ有機 EL バックライトの試作を行った。

高効率化のアプローチとして、キャリア注入効率及び注入バランスの向上を目指した。まず、電子デバイス、ホールデバイスによる評価を試み、キャリア注入定量評価法を見出した。加えて、電子電流の評価より、Na/Al 型ダブルカソード及び混合型電子注入層の適用により、電子注入特性の向上及びホール注入特性とのバランス化が可能になることを示した。以上の結果、白色素子において、1000 cd/m<sup>2</sup> の、実用的な輝度領域にて、視感効率 16.2 lm/W、量子効率 6.9%の、蛍光発光型素子では、これまでにない高効率な白色発光素子を得ることができた。またその時の白色色度も、CIE (0.30,0.33)と良好な色度を示した。

今回得られた、外部量子効率は蛍光発光型素子の理論限界と考えられている 5%を大きく越えており、励起子生成過程で、3重項-1重項遷移が生じた場合の理論限界 8%に近い値を示している。これは、蛍光発光型有機 EL 素子においても、キャリア注入効率の向上、キャリア注入バランス設計、発光層設計等を最適化することにより、更なる高効率化が可能であることを示すことができた。

第6章では、白色 EL 素子の照明用光源デバイスへの適用可能性の観点から、総合的考察を述べた。

# 論文内容要旨 (英文)

平成13年度入学 大学院博士後期課程

生体センシング機能工学専攻 機能センサー工学講座

学生番号 01522404

氏名 岸上 泰久



論文題目 High efficiency white organic electroluminescent devices

White organic electroluminescent (EL) devices based on small molecules have been expected to serve a new type of light sources for the next generation. The advantages of white EL devices include ultra- thin, low power consumption, flexible, light-weight area lighting sources. In this paper, we improved the efficiency and lifetime of white EL device in order to apply the white EL device to lighting purpose.

In chapter 1, the background and objective of this study were described.

In chapter 2, an efficient blue organic EL devices were developed. To develop an efficient white EL device, an efficient blue emitting material is required. We improved the blue EL device based on distyrylarylene derivatives by reducing electron injection barrier from cathode to electron injection layer. Electron injection was further improved by inserting alkali metal doped electron injection layer.

In chapter 3, to obtain white emission, we took an approach of mixing two complementary colors of blue and yellow. We doped yellow emitting rubrene to hole transporting layer in the blue emitting device to obtain white emission, and as the result, the white EL device having a Cs doped to bathophenanthroline (Bphen) electron injection layer exhibited the high luminous efficiency and external quantum efficiency of 15 lm/W and 3.8% at a luminance of 100 cd/m<sup>2</sup>.

In chapter 4, we developed a white EL device with long lifetime. We could improve device lifetime at continuous constant current driving by reducing hole and electron injection barrier from electrode. A hole injection barrier was reduced by halogen gas surface treatment on an ITO electrode. An electron injection barrier was reduced by inserting electron injection buffer layer. The lifetime of white EL device was improved to be 4200 hrs at a initial luminance of 940 cd/m<sup>2</sup>.

In chapter 5, we studied the J- V characteristics of hole only device and electron only device in order to investigate hole and electron injection from electrode. As the result, we found that electron injection from cathode was improved by using double cathode of Na/ Al and mixing electron transporting layer. The white EL device efficiency was further improved, and showed the luminous efficiency and external quantum efficiency of 16 lm/W and 6.9% at a luminance

of 1000 cd/m<sup>2</sup>. To our knowledge, these are the highest values reported for white organic EL devices.

The conclusions of this study were described in chapter 6.

(12pt シングルスペース 300 語程度)

学位論文の審査及び最終試験の結果の要旨

平成17年2月18日

理工学研究科長 殿

課程博士論文審査委員会

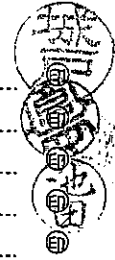
主査 城戸 淳二

副査 倉本 憲幸

副査

副査 他日 進

副査



学位論文の審査及び最終試験の結果を下記のとおり報告します。

記

1. 論文申請者

専攻名 生体センシング機能工学 専攻

氏名 岸上 泰久

2. 論文題目 (外国語の場合は、その和訳を併記すること。)

高効率白色有機EL素子に関する研究

3. 学位論文公聴会

開催日 平成17年2月17日

場所 9号館2階南側 城戸研会議室

4. 審査年月日

論文審査 平成17年1月25日 ~ 平成17年2月18日

最終試験 平成17年2月17日 ~ 平成17年2月18日

5. 学位論文の審査及び最終試験の結果 (「合格」・「不合格」で記入すること。)

(1) 学位論文審査 合格

(2) 最終試験 合格

6. 学位論文の審査結果の要旨 (1,200字程度)

別紙のとおり

7. 最終試験の結果の要旨

別紙のとおり

専攻名	生体センシング機能工学	氏名	岸上 泰久
学位論文の審査結果の要旨			
<p>第1章にて白色有機EL素子は、ディスプレイ用途に加え、照明用光源としての用途展開が提案されている。平面発光、大面積化、フレキシブル化が可能であるという独自性に加え、有機材料を使用することによる、水銀レス化等、環境調和型デバイスとして、蛍光灯、白熱灯に代わる次世代光源としての期待が大きい。本研究では、白色有機EL素子の光源デバイスとしての適用可能性を、高効率化、長寿命化の観点から検討した。</p> <p>まず、第2章にて白色発光素子のベースとなる、青色発光素子の高効率化を検討している。ジスチリルアリーレン誘導体を適用し、アルカリ金属ドーブ電子注入技術を最適化することにより、Bphen:Cs系でのドーブ層により高効率化を実現できた。</p> <p>第3章では上記青色素子をベースに青+黄の補色型の白色発光化を検討した結果、視感効率が15 lm/Wという、これまでにはない高効率な白色発光素子を得ることに成功している。ホール輸送層ドーブ型素子構造においては、ホール輸送層と発光層のIpの差を大きく設計したホールブロック性の大きな素子で高効率化が可能であった。</p> <p>第4章では、白色EL素子の寿命特性を検討している。熱的に安定な青色発光材料をベースに、陽極及び陰極からのキャリア注入特性の検討を行った。その結果、ITO電極の表面処理及び高耐熱電子注入バッファ層技術の有用性を見出し、電極からのキャリア注入過程の制御が、白色素子の長寿命化に有効であることを確認した。また上記知見により、初期1000 cd/m<sup>2</sup>での輝度半減寿命が4200時間の長寿命化素子を実現した。</p> <p>第5章ではさらなる高効率化及び、大面積発光素子の試作を試みている。高効率化に関しては、ホールデバイス及びエレクトロニクスデバイスを用いた、陽極、陰極からのキャリア注入過程の定量的評価法を検討した。その結果、電子/ホール注入バランスを制御することにより、外部量子効率が6.9%のさらなる高効率白色素子の作製に成功した。また、2インチ発光デバイスの試作を試み、実用化のための方向性を提案することができた。</p> <p>第6章では各章の総括的考察を行っている。</p> <p>以上の結果から本論文は今後の有機ELの発展並びに光源用途への応用展開に大いに寄与するものと考え、合格と判定した。</p>			
最終試験の結果の要旨			
<p>有機ELデバイスの照明分野への展開を目的とした白色有機EL研究を実施している。</p> <p>高効率化においては、ベース青色EL素子の金属ドーブ層による低電圧化注入技術、高効率白色素子構造の提案を説明していた。</p> <p>寿命特性においては、電極からのキャリア注入特性と素子寿命との関係を明確化しており、その結果、光源デバイスへの展開の可能性を強く感じさせる白色素子の開発に成功していた。</p> <p>以上の結果より、今後の有機デバイスの発展に寄与できる人材であると期待でき、博士後期課程の学位授与に値すると思われる。</p> <p>よって合格と判定した。</p>			