

照明用の高演色有機ELデバイス

High Color-Rendering Organic Electroluminescent Device for Lighting Applications

辻 博也* · 伊藤 宜弘* · 井出 伸弘*
Hiroya Tsuji Norihiro Ito Nobuhiro Ide

照明用有機 EL において、高演色性化に必須である短波長青色発光ユニットを開発し、これと緑赤色燐光発光ユニットとの積層に光学設計性に優れた省積層型マルチユニット構造を採用することによって、平均演色評価数 (Ra) 93, 電力効率 32 lm/W, 輝度半減寿命 3 万時間以上の白色有機 EL デバイスを実現した。

このデバイスは、発光色の変化が小さく、また特性再現性や生産性にも優れていることから、照明用途に適するものである。

A white organic electroluminescent device with a general color rendering index (Ra) of 93, power efficiency of 32 lm/W, and half-luminance lifetime of over 30,000 hours, has been achieved. It is realized by developing a deep blue emission unit which is essential to high color rendering and by optical design of multi-unit structure with a green/red phosphorescent emission unit.

This device is suited for lighting applications because of the small change in the emission color and excellent repeatability in production.

1. ま え が き

有機 EL (Electroluminescence) は、電流を流すことで有機化合物からの発光が得られる固体発光デバイスである。

近年、有機 EL の材料およびデバイスの進化は目覚しく、効率や寿命の点では既存の光源と同等レベルにまで達しつつあり、とくに白色有機 EL は照明用途への適用が期待されている^{1), 2), 3)}。

しかし、有機 EL を照明光源として実用化するためには、効率と寿命をより高いレベルで両立することだけでなく、照明光源として要求される特性、たとえば演色性を向上して対象物の色調を正しく再現できることや、大光束化により対象物を明るく照らせることなどを満たす必要がある。

本稿では、短波長青色発光ユニットと光学設計性に優れた省積層型マルチユニット構造の開発により、平均演色評価数 (Ra) が 90 を超える高演色有機 EL デバイスを実現したので、その内容を報告する。

2. 高演色有機ELデバイス

2.1 発光材料の選定

有機 EL に用いられる発光材料は、発光機構の違いから

蛍光発光材料と燐光発光材料に分けられる。電流により生成される励起子には一重項励起子と三重項励起子が存在し、蛍光発光材料を用いた場合は一重項励起子が、燐光発光材料を用いた場合は三重項励起子が発光に寄与する。原理的に一重項励起子と三重項励起子の生成確率は 1 : 3 であり、高効率有機 EL の実現には燐光発光材料を用いることが有効である。

蛍光発光有機 EL に対する課題とされてきた燐光発光有機 EL の寿命特性に関しても、緑色燐光発光デバイスや赤色燐光発光デバイスにおいては、初期輝度 1000 cd/m² での輝度半減寿命が 20 万時間以上という照明用途にも適用可能なレベルまで到達してきている。

これに対して青色燐光デバイスは蛍光発光デバイスよりも高効率化が期待できるものの、寿命特性については初期輝度 500 cd/m² での輝度半減寿命は約 1 万時間程度に留まっており、まだ大きな課題が残る。

筆者らは、高効率で長寿命な緑色燐光発光材料と赤色燐光発光材料および長寿命な青色蛍光発光材料の組合せが、照明用途に要求される効率と寿命特性を達成するうえで最適であると考え、演色性に優れた白色有機 EL デバイスの開発を行う。

* 先行技術開発研究所 Advanced Technologies Development Laboratory

2.1.1 設計

有機ELの高演色性化には、可視光の全波長領域を適切にカバーする白色発光スペクトルを実現する必要があるため、各発光材料からの発光スペクトルのピーク波長や半値幅を考慮したデバイス開発を行わなければならない。

そこで、光学シミュレーションを用い、高演色性を達成するために必要な青色蛍光発光材料のピーク波長を求める。

赤色スペクトルとして、ピーク波長 605 nm の燐光発光材料 $\text{Pq}_2\text{Ir}(\text{acac})$ の発光スペクトルを、緑色スペクトルとしてピーク波長 514 nm の燐光発光材料 $\text{Ir}(\text{ppy})_3$ の発光スペクトルを用いて計算を行う。青色スペクトルとして、蛍光発光材料である TBP の発光スペクトルのピーク波長を 445 nm から 470 nm までシフトさせて計算を行うことにより、青色発光材料のピーク波長を求める。

ピーク波長 455 nm の青色スペクトルを用いたときの光学シミュレーション結果を図 1 に示す。燐光発光材料を用いた赤色発光材料と緑色発光材料からの外部量子効率の合計を 20 %、蛍光発光材料を用いた青色発光材料からの外部量子効率を 5 % とし、得られた白色スペクトルの Ra を求める。

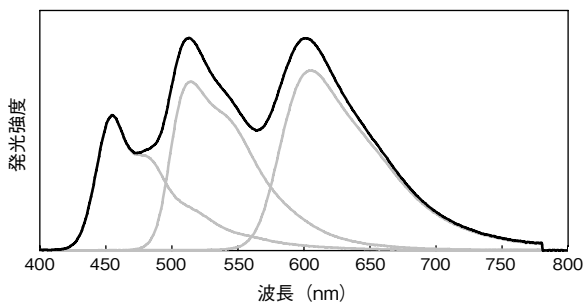


図1 ピーク波長455 nmの青色スペクトルを用いたときのシミュレーション結果

図 2 に、青色蛍光発光スペクトルのピーク波長と、Ra の関係を示す。演色性は赤や緑の発光スペクトルにも依存するものの、高演色性を達成するためには、青色蛍光発光材料の短波長化がとくに有効であることがわかる。

青色蛍光発光スペクトルのピーク波長が 455 nm のとき Ra は 92 となり、455 nm 以下の短波長青色蛍光発光材料と赤色燐光発光材料と緑色燐光発光材料を組み合わせることで、Ra が 90 を超える高演色性化が可能である。

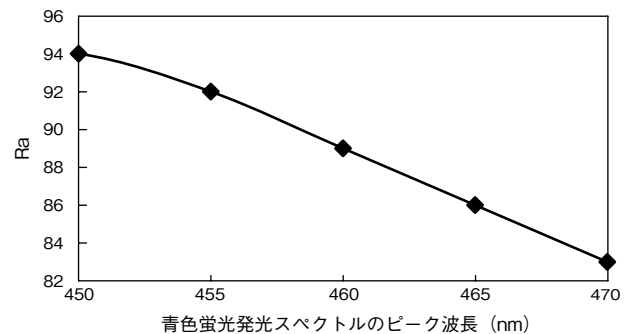


図2 青色蛍光発光スペクトルのピーク波長と Ra の関係

2.1.2 青色蛍光発光有機EL

一般的に、青色発光ピーク波長の短波長化と寿命特性はトレードオフの関係にあり、シミュレーションから明らかにしたピーク波長 455 nm 以下の短波長青色蛍光発光材料を用いた照明用高演色有機ELデバイスの実現には、短波長発光と長寿命を両立する青色発光材料の開発が課題である。

そこで筆者らは、出光興産株式会社との共同開発で、①蛍光量子収率の高い分子骨格の導入、②ホスト材料の蛍光スペクトルに対してドーパントの吸収スペクトルが十分に重なる分子骨格の導入、③共役長を制限し、かつストークスシフトを小さくするための励起状態の分子変形が小さく剛直な分子骨格の導入などの材料設計技術により、高発光効率と短波長発光を両立する青色蛍光発光材料を開発した。

さらに、高移動度かつ高耐熱性の電子輸送材料の導入と短波長発光を実現するための光学設計などのデバイス設計技術とを組み合わせることによって、外部量子効率 5 % を超え、 1000 cd/m^2 の白色発光時に必要な電流密度での輝度半減寿命が 3 万時間以上となる、高効率化と長寿命化を両立する 455 nm 以下のピーク波長を有する短波長の青色蛍光発光有機ELデバイスを実現した。

2.2 高演色を実現するデバイス構造

白色発光を得るためのデバイス構造として、幾つかの方法が提案されている。大きくは以下の三つに分類され、図 3 にその構造を示す。

- (1) 単層型
複数の発光材料を含有する発光層を用いる方法。
- (2) 積層型
異なる色の発光層を複数積層する方法。
- (3) 色変換型
発光色の一部を蛍光体により色変換する方法。

単層型はデバイス構造がシンプルであるが、白色発光を得るためには複数の発光材料の混合量を厳密に制御する必要があり、再現性に課題がある。また、色変換型はLEDにおいて白色発光を得るためもっとも一般的に用いられる

構造であるが、長波長の光を蛍光体で波長変換することによって得ていることから、そのエネルギー変換効率の点で課題が残る。

現在、主に検討されているのは積層型であり、とくに複数の発光層が光透過性中間層を介して電氣的に直列接続された構造であるマルチユニット構造が注目を集めている⁴⁾。

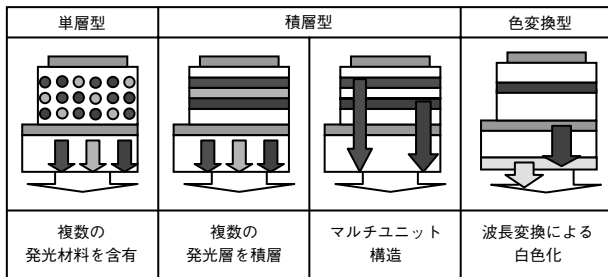


図3 白色有機ELデバイスの構造

発光ユニットがn層のマルチユニットデバイスは、通常の有機ELデバイスに対して以下の特徴を有しており、高輝度化や長寿命化、また発光色の調整が容易であり、照明用途にはとくに有効な構造である。

- (a) より高輝度の発光（おおむねn倍）が同一電流で得られることから、輝度と寿命のトレードオフがほとんどない。
- (b) より少ない電流量（おおむねn分の1）で同一の輝度が得られる。
- (c) 異なる発光ユニットを積層することで混色が可能である。

しかし、発光ユニット数が増加するにつれて発光色の角度依存性が小さい等の高品質な白色発光を得るための光学設計が困難になり、くわえて数nmから数十nmの有機層の積層数が非常に多くなるため、再現性や生産性に問題が残る。

そこで、短波長青色蛍光発光ユニットと緑赤色燐光発光ユニットから成る省積層型2ユニット構造、および光透過性導電性中間層を組み合わせることで、マルチユニット構造の特徴を活かすとともに光学設計性や生産性の問題を最小限に抑えながら、照明用途に適した有機ELデバイスの開発を行う（図4）。

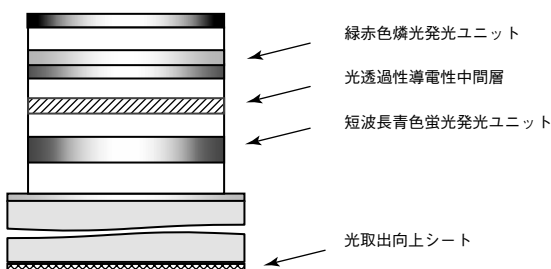


図4 省積層型マルチユニット構造

2.2.2 デバイス設計

有機ELデバイスの高演色性化には、発光スペクトルを考慮した発光材料の選定と併せて、各発光材料からの発光強度比のバランスを調整する必要がある。

筆者らは、開発した青色蛍光発光ユニット、およびこれと組み合わせてスペクトルと強度を適切にコントロールできる緑赤色燐光発光ユニットを開発し、Raが93という高演色有機ELデバイスを実現した（図5）。

緑赤色燐光発光ユニットの開発においては、発光材料のドーピング濃度調整と発光層の膜厚調整により、緑色発光と赤色発光の強度比の調整を図っている。また、高性能発光材料とその材料よりも高い励起三重項エネルギーを有する電子輸送材料を組み合わせることで、高発光効率化を図っている。その結果、燐光発光ユニットの開発目標である外部量子効率20%に迫る高効率化と、1000 cd/m²の白色発光時に必要な電流密度での輝度半減寿命が3万時間以上という長寿命化を実現している。

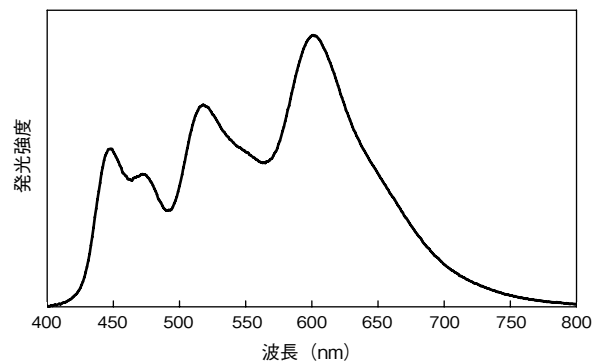


図5 1000 cd/m²発光時のスペクトル

2.2.3 光学設計

マルチユニット構造の有機ELデバイスにおいて、高品質な白色発光を実現するためには、デバイスの光学設計が非常に重要である。とくに、光取出構造を有するマルチユニット構造の有機ELデバイスについては、光学設計が不十分であると、効率の低下や発光色の角度依存性の増大などの問題が生じる。

そこで、光取出向上シート貼付け後の発光特性を考慮したデバイス設計を行い、可視光を吸収するpドーピング層やnドーピング層を除去して光透過性を向上させた導電性中間層を用いることにより、32 lm/Wという高効率を達成している。また、発光色の配光特性を考慮した光学設計を行い、角度0~80°の範囲における色度のxとy値の変化がともに0.01以下になるように発光色の角度依存性を抑制している。

その結果、照明用途に適した高品質な有機ELデバイスを実現した（図6）。

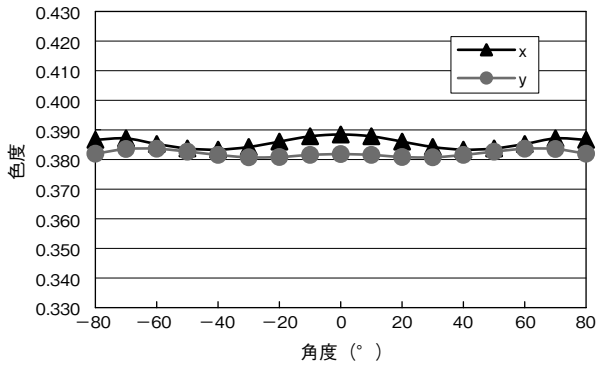


図6 色度の配光特性

1000 cd/m² 発光時のデバイス特性を表1に示す。Ra 93, 電力効率 32 lm/W, 輝度半減寿命 3万時間以上と、演色性, 効率特性, および寿命特性のすべてにおいてバランスの取れた高品質な白色有機ELデバイスとなっている。また, このデバイスは, マルチユニット構造における最少積層数である2ユニット構造で実現できるため, 光学設計が容易で再現性や生産性に優れたものとなっている。

表1 デバイス特性

電力効率	32 lm/W
Ra	93
輝度	1000 cd/m ²
色度 (x, y)	(0.39, 0.38)
色温度	3860 K
輝度半減寿命	3万時間以上

さらに, 開発したデバイス構造をもつ発光面が9 cm角の大面积パネル(図7)を試作し, 本構造が高演色で高品質な照明用途向けとして有効であることを確認している。



図7 高演色有機ELデバイスの開発品

3. あとがき

照明用有機ELにおいて, 高演色性化に必須である短波長青色発光ユニットを開発し, これと緑赤色燐光発光ユ

ニットとの積層に光学設計性に優れた省積層型マルチユニット構造を採用することによって, Ra 93, 電力効率 32 lm/W, 輝度半減寿命 3万時間以上の白色有機ELデバイスを実現した。

このデバイスは, 発光色の変化が小さく, また特性再現性や生産性にも優れていることから, 照明用途に適するものである。

本研究はNEDOの「有機発光機構を用いた高効率照明技術の開発プロジェクト」において, 出光興産株式会社およびタツモ株式会社と共同実施したものであり, 本プロジェクトに対して各種材料を提供いただいた新日鐵化学株式会社, Universal Display Corporation, および日産化学工業株式会社に謝意を表します。

*参考文献

- 1) T. Nakayama, K. Hiyama, K. Furukawa and H. Ohtani : Development of Phosphorescent White OLED with Extremely High Power Efficiency and Long Lifetime, SID2007, 38, p. 1018-1021 (2007)
- 2) B. W. D'Andrade, J. Esler, C. Lin, V. Adamovich, A. Xia, M. S. Weaver, R. Kwong and J. J. Brown : 102 lm/W White Phosphorescent OLED, IDW'08, OLED1-4 L (2008)
- 3) S. Reineke, F. Lindner, G. Schwarts, N. Sidler, K. Walzer, B. Lüssem and K. Leo : White organic light-emitting diodes with fluorescent tube efficiency, Nature 459, p. 234-238 (2009)
- 4) J. Kido, T. Matsumoto, T. Nakada, J. Endo, K. Mori, N. Kawamura, and A. Yokoi : High efficiency organic EL devices having charge generation layers, SID2003, p. 964-965 (2003)

◆執筆者紹介



辻 博也

先行技術開発研究所



伊藤 宜弘

先行技術開発研究所



井出 伸弘

先行技術開発研究所
博士 (工学)