

# 透明有機エレクトロルミネセンス素子

内 田 孝 幸

## Transparent Organic Light Emitting Devices

Takayuki UCHIDA

Transparent organic light emitting devices (TOLEDs), which had transparent top and bottom electrodes were fabricated. Overview of development of TOLED is presented. The key technologies of fabrication of TOLED are both sputtering process of low damage and electrodes with high electron injection efficiency from TCO of cathode sides. Flexible transparent organic devices (FTOLEDs) with both mechanical flexibility and transparency to visible light are also introduced.

**Key words:** transparent organic light emitting device, low work function, top emission, dual emission

### 1. 透明有機エレクトロルミネセンス (EL) 素子

有機エレクトロルミネセンス (EL) 素子は薄膜、超軽量、自発光、視野角依存性がない、光応答が速いといった点が注目され、次世代の画像表示素子として期待されている。有機 EL においてコダックの Tang らがブレイクスルーを起こしたのは、素子作製の点からみれば、a) 有機膜でピンホールのない 100 nm 程度の薄膜を作製できたこと、b) 電子注入性の高い活性な金属を安定化させて用いることができたことによる<sup>1)</sup>。この結果を進展させ、有機 EL 素子の上部、下部の両電極を透明にした場合、通常用いられる有機薄膜は可視領域にほとんど吸収がないので透明な素子が得られる。すなわち、非発光時にガラスと同様に透明になる特徴をもつ素子 (TOLED: transparent organic light emitting device) が作製できる<sup>2)</sup>。OLED を有機 EL とよぶのと同様、TOLED の日本語訳は透明有機 EL 素子とよぶのが一般的である。

透明有機 EL 素子は正しくは、「非発光時に透明な特徴をもつ有機 EL 素子」というよび名が適切である。この素子は、上部、下部ともに透明な電極を用いた素子であるため、シースルー有機 EL や両面発光 (デュアルエミッション) 素子とよぶ場合もある。しかし、透明有機 EL 素子の最初の報告<sup>2)</sup>の直訳として「透明有機 EL 素子」が一般的と思われる (表 1)<sup>2-13)</sup>。

この透明有機 EL 素子の技術は、いままで基板側 (ボトム側) にのみ用いていた透明導電膜を、素子の反対側 (トップ側) に設ける技術であるため、トップエミッション素子の基盤技術でもある。アクティブマトリックス型表示素子の場合、各画素の下の一部に画素を駆動する薄膜トランジスター (TFT) が配置されるため、これが開口率 (光を取り出す面積の割合) を減じる要因であった。トップエミッション型の素子では、この問題を回避できるため、高輝度、高効率化の技術のひとつとして注目を集めている。

酸化物透明導電膜 (TCO: transparent conducting oxide) は通常スパッター法を用いて作製するのが一般的であり、この高エネルギープロセスを用いて、耐熱性の低い下層の有機層にいかにもダメージなく素子を作り込むかという相反する要求を満たすことによって、はじめて透明有機 EL 素子が実現される。すなわち、この素子の上部電極に TCO を設ける技術こそが、透明有機 EL 素子のキーテクノロジーのひとつである。一方、有機 EL 素子は電流注入型の素子であるため、陽極からはホールが、陰極からは電子が注入され、発光層での再結合によって発光する素子である。このため、電極からのキャリア注入が素子特性を決定する重要な要因である。この観点から、陽極には仕事関数の高い電極、陰極には仕事関数の低い電極を用いる。しかし、透明有機 EL 素子やトップエミッション素子

表1 透明有機 EL 素子および透明ユニット積層素子の研究の歴史。

年	機関	内容	文献
1996	プリンストン大	Mg:Ag 金属薄膜をバッファ層に用いた透明有機 EL 素子	2)
1998	山形大, アイメス	アルカリ金属ドーブ層	3)
	プリンストン大	CuPc をバッファ層に用いた透明有機 EL 素子	4)
1999	プリンストン大	積層型カラー表示素子, 積層型有機 EL 素子	5)
2000	アイメス	陰極バッファ層, アルカリ金属ドーブ層	6)
2001	信州大, ミマキ	Ni(acac) <sub>2</sub> をバッファ層に用いた透明有機 EL 素子	7)
	SONY	トップエミッション有機 EL 素子	8)
2003	山形大, アイメス	マルチフォトンエミッション(MPE)素子	9, 10)
2004	Kodak	タンデム型 (2, 3 ユニット) 高効率有機 EL 素子	11)
	Canon	トップエミッション有機 EL 素子	12)
	SONY	トップエミッション有機 EL 素子市場投入	13)

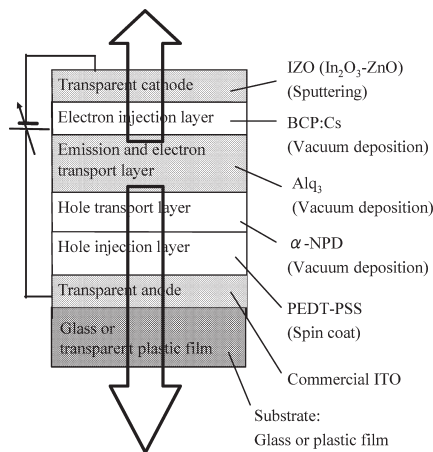


図1 透明有機 EL 素子の層構造。

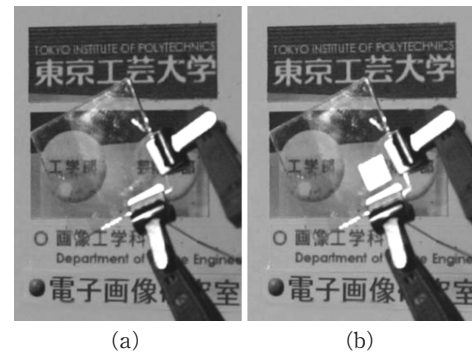


図2 透明有機 EL 素子。(a) 非発光時、(b) 発光時。

を作製する場合、陰極に TCO を用いる必要がある。TCO は酸化物であるため、単体で仕事関数の低いものはない。したがって、有機発光層の LUMO 側に電子を注入する場合、注入障壁が大きくなるため、通常有機 EL 素子に用いる Mg-Ag や Al-Li 金属陰極を用いた素子と比較して、電子注入性がきわめて低下する。それゆえ、何らかの対策を施して、電子注入性を向上させた（仕事関数の低い）TCO を用いる工夫も、透明有機 EL 素子のキーテクノロジーである。

このように、透明有機 EL 素子実現のために TCO に要求される項目には、通常の TCO の評価指標である、1) 透明性、2) 導電性、3) 平坦性といった点に加えて、4) 低ダメージな成膜法、ならびに 5) 陰極側に用いる TCO からの電子注入性の向上（TCO の仕事関数の制御）といった新たな要求が加わる。

筆者らは、上述 4)、5) の検討を中心に、通常の RF マグネトロンスパッター装置を用いて、有機 EL 素子の上部陰極に TCO を設ける検討を行ってきた<sup>14,15)</sup>。透明有機 EL 素子の層構造の一例を図1に示す。アルカリ金属ドーブ層 (BCP:Cs) を陰極バッファ層として設け、有機膜上への

スパッターダメージの軽減と、電子注入性を確保することで、図2のような透明有機 EL 素子を実現できる。この素子の光透過率と輝度-電圧特性を、それぞれ図3と図3の挿入図に示す。なお、この素子の陰極の TCO には、アモルファス透明導電膜である IZO (In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-ZnO) を用いている。

いままでの、透明（ホログラム）スクリーンにプロジェクター等で投影し実現していた透明表示装置とは異なり、この透明有機 EL 素子は奥行をもった電子素子、光学素子を一切付与せず、この板1枚に電流を流すことのみで、透明なガラスから発光を実現できる。

## 2. フレキシブル透明有機 EL 素子

筆者らは、透明有機 EL 素子にさらなる「曲がる」特徴を付与する試みとして、基板材料をガラスからプラスチックフィルムに換え、透明有機 EL 素子の作製の検討を行った。この場合、ガラスと比較し、耐熱性、寸法安定性に劣るプラスチックフィルムに対してプロセスを施すため、透明有機 EL 素子作製時より、さらに低ダメージでのプロセスが要求される。また、フィルム上にある陽極側の TCO も多結晶化されたものが用意できないため、陽極、陰極の TCO ともにアモルファス状態となる。

筆者らは、基板の熱変形を極力避けるために、プラスチック基板に PET よりも耐熱性の高い PEN フィルムを用

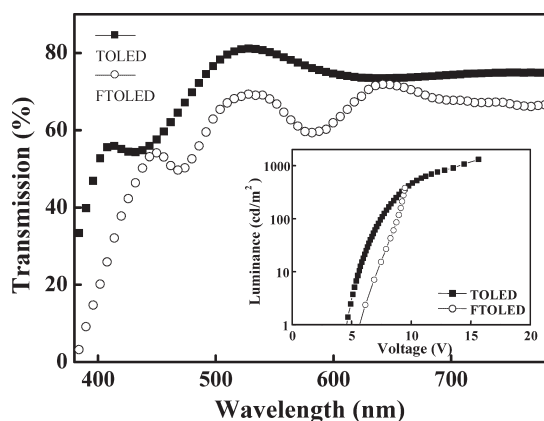


図3 TOLEDとFTOLEDの光透過率。挿入図：TOLEDとFTOLEDの輝度-電圧特性。

いて、フレキシブル透明有機EL素子 (FTOLED: flexible transparent organic light emitting device) を作製した。光透過率と輝度-電圧特性をそれぞれ、図3と図3の挿入図に示す。この素子は、折り曲げ可能であり、図4のように「透ける」、「曲がる」を兼ね備えた、FTOLEDが実現できる<sup>16,17)</sup>。

さらに、筆者らは最近、透明有機EL素子を電子注入性バッファ層で実現する手法のみならず、陰極のTCO電極自体の低仕事関数化の検討を行っている。この新規な低仕事関数TCOは、透明有機EL素子のみならず、透明電子デバイス用の新規な電極として期待できる<sup>18)</sup>。

### 3. まとめ

透明有機EL素子は、外周に枠も何もない、一見するとただのガラスの板に、画像を表示できるミステリアスな表示素子で、「ディスプレイ自体が透明」で「両面が発光する」という特徴があり、ヘッドアップディスプレイ、ヘルメットシールドやめがね、ゴーグルへの情報表示装置(スカウター)などへの応用が期待できる。逆に、この点だけに注目が集まり、表面的には単なる際物(きわもの)として認知されることがある。しかし、これらを実現する技術は、電子・ホール注入バッファ層、CGL(電荷発生層)、CT錯体(電荷移動錯体)といった有機電子デバイスの根幹にかかわる概念を導入する領域に至っている。さらに、この素子を支える作製技術は、近年、特に注目されている低ダメージな成膜法と密接にかかわっている。したがって、透明有機EL素子自体は、これらの技術を生かしたほんの一例であり、今後、透明有機EL素子作製技術を応用して多方面で発展が期待される(透明)有機電子デバイスのポテンシャルを秘めている。これらの点で、透明有機EL素子は透明にもかかわらず存在感がある、ミステリアスな素子のように思える。



図4 フレキシブル透明有機EL素子。

### 文 献

- 1) C. W. Tang and S. A. VanSlyke: Appl. Phys. Lett., **51** (1987) 913-915.
- 2) G. Gu, V. Bulovic, P. E. Burrows, S. R. Forrest and M. E. Thompson: Appl. Phys. Lett., **68** (1996) 2606-2608.
- 3) J. Kido and T. Matsumoto: Appl. Phys. Lett., **73** (1998) 2866-2868.
- 4) G. Parthasarathy, P. E. Burrows, V. Khalfin, V. G. Kozlov and S. R. Forrest: Appl. Phys. Lett., **72** (1998) 2138-2140.
- 5) G. Gu, G. Parthasarathy and S. R. Forrest: Appl. Phys. Lett., **74** (1999) 305-307.
- 6) 松本敏男: O plus E, **22** (2000) 1416-1421.
- 7) A. Yamamori, S. Hayashi, T. Koyama and Y. Taniguchi: Appl. Phys. Lett., **78** (2001) 3343-3345.
- 8) T. Sasaoka, M. Sekiya, A. Yumoto, J. Yamada, T. Hirano, Y. Iwase, T. Yamada, T. Ishibashi, T. Mori, M. Asano, S. Tamura and T. Urabe: Society for Information Display (SID) '01, Dig. (2001) pp. 384-387.
- 9) 城戸淳二, 遠藤 潤, 仲田壮志, 森 浩一, 横井 啓, 松本敏男: 第49回春季応用物理学術講演会予稿集, 27p-YL-3 (2003) p. 1308.
- 10) 仲田壮志, 遠藤 潤, 川村憲史, 森 浩一, 横井 啓, 松本敏男, 城戸淳二: 第49回春季応用物理学術講演会予稿集, 27a-ZL-12 (2003) p. 1165.
- 11) L. S. Liao, K. P. Klubek and C. W. Tang: Appl. Phys. Lett., **84** (2004) 167-169.
- 12) T. Hasegawa, S. Miura, T. Moriyama, T. Kimura, I. Takaya, Y. Osato and T. Urabe: Society for Information Display (SID) '04, Dig. (2004) pp. 154-157.
- 13) Flat Panel Display 2005戦略編 (2004) pp. 192-197.
- 14) 内田孝幸: 透明導電膜の新展開II 応用編第17章, 澤田豊監修(シーエムシー出版, 2002) pp. 199-208.
- 15) 内田孝幸, 三村寿文, 金田真吾, 星作太郎, 佐俣博章, 永田勇二郎, 大塚正男: 電気学会論文誌(C), **124** (2004) 1244-1250.
- 16) T. Uchida, S. Kaneta, M. Ichihara, M. Ohtsuka, S. Hoshi, S. Webster, R. Czerw and D. L. Carroll: Proceedings of The 11th International Display Workshops (IDW'04) (2004) pp. 1379-1382.
- 17) T. Uchida, S. Kaneta, M. Ichihara, M. Ohtsuka, T. Otomo and D. R. Marx: Jpn. J. Appl. Phys. Lett., **44**, No. 9 (2005) L282-L284.
- 18) 三村寿文, 内田孝幸, 大友俊夫, 大塚正男: 第52回春季応用物理学術講演会予稿集, 30p-YL-15 (2005) p. 1479.

(2005年2月10日受理)