

動画伝送のための全有機光デバイス

大 森 裕

All Organic Photonic Devices for Optical Transmission of Moving Picture Signal

Yutaka OHMORI

Organic light-emitting diodes (OLEDs) and organic photodetectors (OPDs) have been investigated for transmitting moving picture signals. Organic photo devices are fabricated on polymeric substrates, i.e., polymeric waveguide substrates, to form flexible optical integrated devices. Optical signals of moving picture have been created by applying pulsed voltage directly to the OLEDs. Optical signal of 80 MHz has been received by OPDs. Optical integrated devices utilizing polymeric waveguide as substrate have been demonstrated.

Key words: Organic light-emitting diodes, organic photodetectors, polymeric optical fibers, optical integrated devices

導電性の有機材料が数多く開発され、液晶や有機 EL (electroluminescence) によるディスプレイなど、電子・光デバイスへ応用されている。有機 EL は発光材料を選択することにより容易に発光波長は可視域をすべてカバーすることができ、フルカラーディスプレイに応用されている。また、有機光デバイスの高速応答性と成膜プロセスが低温であることの特徴を生かして、有機発光素子、有機受光素子とポリマー導波路を集積化した光集積デバイス¹⁾を形成し、光インターコネクションへの応用が可能となる。

光ファイバーを用いて光信号により伝送を行う光インターコネクションは化合物半導体を用いた光素子により実現されているが、有機材料を用いることにより作製プロセスが容易になり、軽量でどのような形状にも形成が可能となる利点を有する。有機 EL により光信号を発生し、画像信号などの伝送を行う提案は Ohmori *et al.*¹⁾ によりなされている。

本研究で対象とする光インターコネクションは、オフィスや家庭、モバイル機器などの比較的短距離を光信号で結ぶことを想定し、1つの素子で数 100 MHz の光信号の送受信を行うことができる有機デバイスを考える。有機デバ

イスの作製に関しては真空プロセスと溶液プロセスの両方による素子作製が可能であり、後者は印刷プロセスにより多くの素子を一度に作製することが可能である。本稿では、現状では素子特性が勝るドライプロセスにより作製した素子について述べることにする。有機発光素子を電気-光変換素子とし、有機受光素子を光-電気変換素子として動画信号が伝送可能な光集積デバイスへの応用について述べる。

1. 有機受発光素子

有機受発光素子の作製は真空プロセスと溶液プロセスのどちらを用いても可能であるが、本稿では、印刷技術に適用が可能であり、ポリマー導波路を基板として用いて全有機光デバイスと応用が可能な、溶液プロセスによる素子作製とその特性についての作製例を紹介する。

1.1 有機発光素子

有機発光素子に用いられる発光材料、キャリア輸送材料は、大きく分けると低分子系の材料と高分子系に分類される。低分子系の材料は主として有機分子線蒸着法 (OMBD: organic molecular beam deposition) あるいは

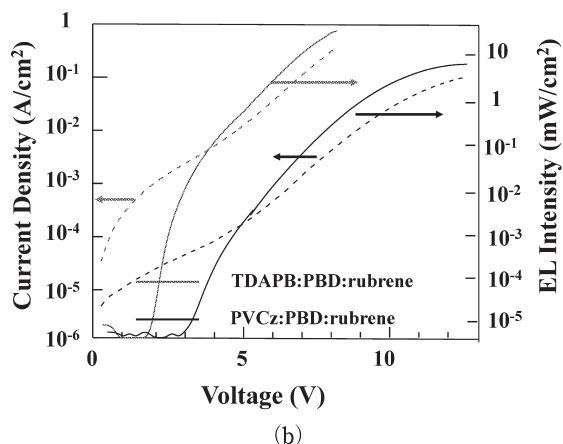
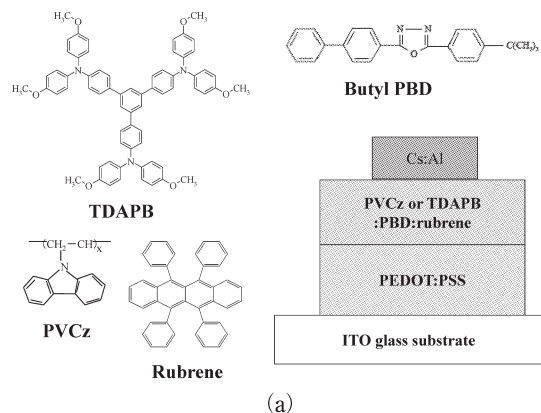


図1 溶液プロセスで作製した有機発光素子。(a) 素子構造と分子構造, (b) 発光特性。

真空蒸着法などの真空プロセスにより素子形成されるが、高分子系の場合はスピコート法などの溶液プロセスが可能のため、印刷技術で素子作製が可能となる。前者の成膜方法では積層構造の素子が作製しやすく、純度の高い成膜プロセスを使える利点をもつが、後者の場合も溶媒を工夫することにより積層構造素子を形成することができ、印刷技術による大面積化ができる利点がある。

高効率の発光材料として、米国プリンストン大学と南カリフォルニア大学のグループにより開発された fac tris (2-phenylpyridine) iridium (Ir(ppy)₃)²⁾ は従来の有機 EL に用いられていた 1 重項からの蛍光ではなく 3 重項からの燐光を用いるものであり、1 重項状態の占有確率が 1/4 であるのに対し、3 重項状態は 3/4 であるために、発光効率は格段に向上する。従来の燐光は応答速度が遅く用途も限られるが、Ir(ppy)₃ はマイクロ秒程度の応答速度をもち、ディスプレイへの用途には十分に適用可能である。燐光を利用する EL 素子としては内部量子効率に換算すると 100% に近い発光が得られているとする報告がある³⁾。光インターコネクションへ適用する有機発光素子は、速い応

答速度が要求されるために、一重項からの蛍光を用いる必要がある。

次に溶液プロセスにより作製した有機 EL について述べる。ポリマー基板上に印刷プロセスにより有機 EL が作製できるなら、容易に任意の位置に多数の素子作製が可能となる。そこで、スピコート法により作製した素子の一例を示す⁴⁾。

図 1 (a) に溶液プロセスにより作製した素子構造と用いた材料の分子構造を示す。ITO 透明電極基板上に正孔輸送層として水溶性の poly (ethylene dioxythiophene) : poly (styrene sulfonic acid) (PEDOT : PSS) (膜厚 35 nm) をスピコート法により成膜し、大気中で加熱処理した後に発光層を積層する。発光層 (膜厚 65 nm) は、溶液プロセスにより成膜可能な導電性高分子である poly (N-vinylcarbazole) (PVCz) とスターバスト系低分子材料である methoxy-substituted 1,3,5-tris [4-(diphenylamino) phenyl]-benzene (TDAPB) の 2 つのホスト材料を用いて、その発光特性を比較した。それらのホスト材料は正孔輸送能をもつために、電子輸送性材料として 2-(4-biphenyl)-5-(4-tert-butylphenyl)-1,3,4-oxadiazole (Butyl PBD) を加える。また、発光材料としては 5,6,11,12-tetraphenylnaphthalene (rubrene) を添加した。ここで、PBD のドーピング濃度はホスト材料に対して 72 wt% として、電子と正孔のキャリアバランスがとれる濃度とした。それらの有機薄膜層をスピコート法により形成した後に、陰極として Cs と Al 電極を真空蒸着法により成膜した。

図 1 (b) にホスト材料として 2 つの異なるホスト材料、PVCz と TDAPB を用いた有機 EL の電流密度—印加電圧—発光輝度特性を示す。発光色素ルブレンのドーピング濃度は、ホスト材料に対して 1.65 wt% であり、TDAPB をホストとする素子からは 2 V 付近から発光が観測され、7 V で約 10 mW/cm² の発光強度が得られる。ホストに TDAPB を用いた素子では PVCz を用いた素子に比べて、発光開始電圧が低下し、低電圧で高輝度が得られ、TDAPB は PVCz に比べて正孔輸送能が優れることに起因するものと考えられる。同じ発光材料であるルブレンを用いて真空プロセスで作製した有機 EL からは 100 MHz の光信号が直接変調により得られることが、Ohmori *et al.*¹⁾ により報告されている。

1.2 有機受光素子

溶液プロセスで作製した有機受光素子⁵⁾ について述べる。フルオレン系材料であるポリ (9,9-ジオクチルフルオレン) (poly(9,9-dioctylfluorene): F8) あるいはポリ (9,9-ジオクチルフルオレン-バイチオフェン) (poly(9,9-

dioctylfluorene-co-bithiophene): F8T2) とフラーレン誘導体 (phenyl C61-butyric acid methyl ester: PCBM) を 1,2-dichlorobenzene を溶媒に用いてスピコート法にて薄膜の形成を行っている。電極には金 Au 30 nm もしくは銀 Ag 150 nm を真空蒸着法にて成膜する。1,2-dichlorobenzene のほかに toluene, chloroform を溶媒に用いて成膜することができるが、成膜された薄膜の平坦性は 1,2-dichlorobenzene, toluene, chloroform の順に平坦性のよい薄膜が得られる。図 2 (a) にスピコート法により作製した有機受光素子の素子構造と分子図を示す。ホスト材料に用いる F8 と F8T2 では禁止帯幅の違いにより吸収波長

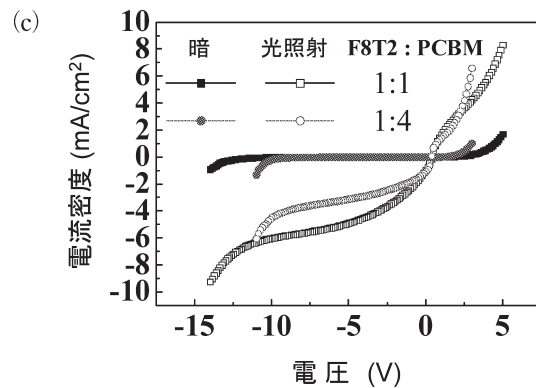
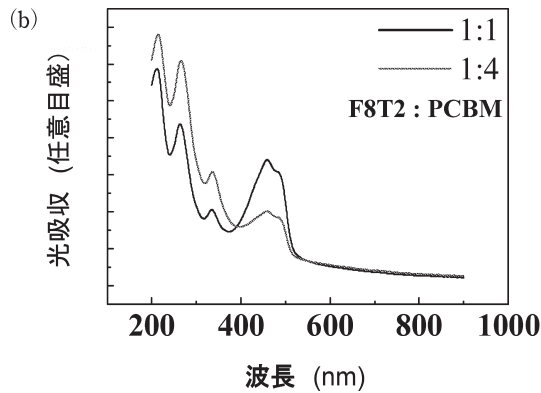
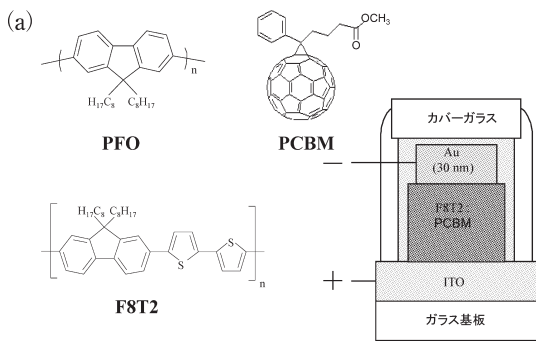


図 2 溶液プロセスで作製した有機受光素子. (a) 素子構造と分子構造, (b) F8T2:PCBM 素子の光吸収特性, (c) F8T2:PCBM 素子の光電変換特性.

の違いがある。F8 に比べて長波長側の 460 nm に吸収のピークをもつ F8T2 を取り上げる。また F8:PCBM 素子に比べて F8T2:PCBM 素子は起電力が大きな素子特性をもつ。図 2 (b) に F8T2:PCBM を重量比で 1:1 (膜厚 115 nm) と 1:4 (膜厚 105 nm) のスピコート法にて成膜したほぼ膜厚の等しい薄膜の光吸収特性を示す。PCBM 濃度が低い F8T2:PCBM=1:1 の薄膜のほうが F8T2 からの 460 nm に現れる吸収が大きく現れている。次に ITO/F8T2:PCBM/Au (30 nm) の素子に波長 460

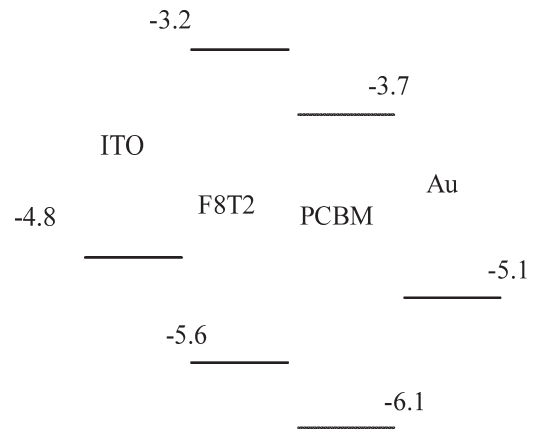


図 3 F8T2:PCBM 素子のエネルギーレベル図.

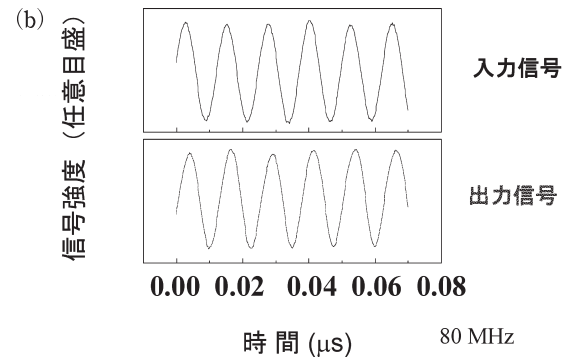
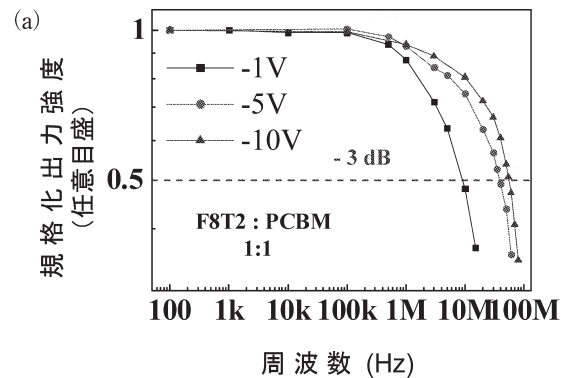


図 4 F8T2:PCBM 素子の周波数応答特性. (a) 光応答特性の印加電圧依存性, (b) 光応答波形.

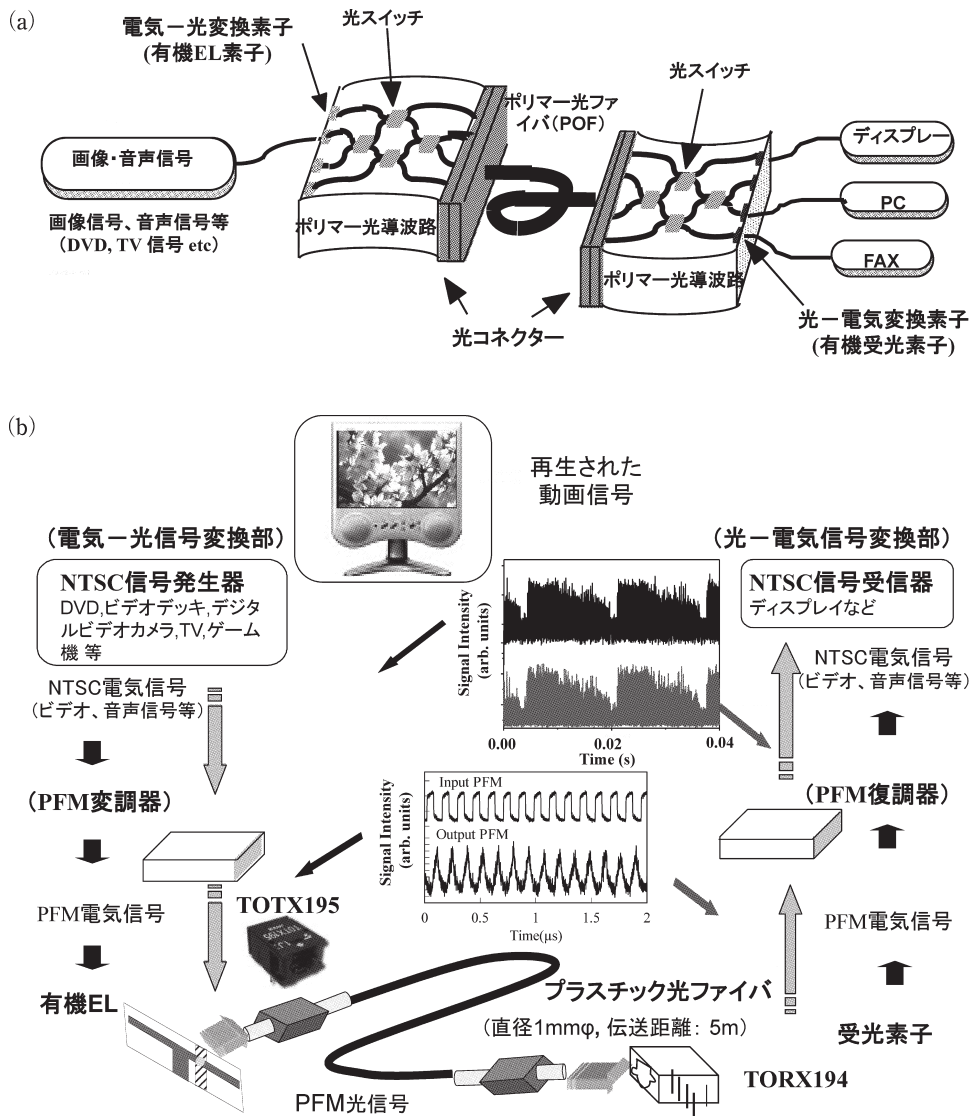


図5 導波路基板上に形成されたポリマー光集積デバイス。(a) ポリマー光集積デバイスの構成図, (b) 有機ELを光源に用いた光伝送系の構成と信号波形。

nm, 強度 9 mW/cm^2 の光を照射したときの光電流特性を図 2 (c) に示す。印加電圧が低い状態で光起電力が生じていることから、太陽電池に近い特性が得られていることがわかる。PCBM 濃度が低い F8T2 : PCBM = 1 : 1 の薄膜のほうが 1 : 4 の薄膜に比べて大きな光起電力が得られている。これは光吸収係数が大きなことに起因するとともに、n 型と p 型の電気伝導を示す材用の比率が近いことにより、電子-正孔のキャリアバランスによるものも寄与しているものと考えられる。印加電圧が低い状態で光起電力が生じている原因のひとつに、図 3 に示すエネルギーバンド図において F8T2 と PCBM の間に HOMO, LUMO 間にエネルギー障壁があることも寄与していると考えられる。

次に、バイアス電圧印加時の周波数応答特性を図 4 (a)

に示す。逆バイアス電圧を増すに従い高速の応答性を示しているが、これは印加電圧により加速された電子-正孔が有機薄膜中で再結合して外部回路に電流として現れるために高速の応答を示すものと考えられる。素子面積 0.03 mm^2 の受光素子に波長 408 nm , 照射光強度 1.2 W/cm^2 の変調されたレーザー光を照射し、出力信号が -3 dB になる周波数は F8T2 : PCBM = 1 : 1 の素子で 56 MHz と求められる。図 4 (b) に示すように入力光波形に対する出力光波形の関係は 80 MHz に変調した光を照射したときにも変調信号が得られているが、出力信号強度は低周波の光信号を照射したと比べて約 $1/3$ に減少している。なお、真空プロセスで作製した有機受光素子を用いて光ファイバーで伝送された画像信号を受光することに成功していることが報告されている⁶⁾。

2. ポリマー光集積デバイス

有機受発光素子の作製は有機分子線蒸着法などの真空プロセスとスピンコート法やインクジェット法などの溶液プロセスの両方式による素子作製が可能であり、印刷技術で作製できる有機デバイスは導波路上の任意の位置に光デバイスが作製できる利点があり、ポリマー導波路やポリマー光ファイバーによる近距離の光インターコネクションの構築を目指すものである。図5 (a) に導波路基板上に形成されたポリマー光集積デバイスの構成図を示す。

プラスチック光ファイバー (POF) は、オーディオ機器などを結ぶデジタル音声のインターフェースとして最近使用されている。POFのコア材料として使用されるPMMAの低損失窓は、567~650 nm付近に存在し、有機ELを光源として用いるのに都合のよい波長域にある。ここでは、光ファイバー用伝送モジュールであるTOTX195 (東芝) を用い、発光ダイオードを有機ELに置き換え、溶液プロセスで作製したルブレンをTDAPB層のドープした黄色発光有機ELを用いた。発光面積が0.3 mm²の黄色発光有機EL素子を光リンク用光源として用いた光伝送系の構成と信号波形を図5 (b) に示す。ここでは、ビデオ信号出力端からのNTSC (National Television Standards Committee) 規格の画像信号をパルス周波数変調 (PFM: pulse frequency modulation) した電気信号を有機ELに印加することで、有機ELからPFM変調された光信号を得た。その光信号を、長さ5 mのコア径1 mmのPOFを通して受光側に導き、PFM変調された電気信号に再変換後、さらにNTSC電気信号に変換することにより、動画信号の伝送実験を行った。用いた受光器モジュールはTORX194 (東芝) で受光感度は2~40 μ Wである。伝送損失の小さな石英系の光ファイバーを用いて、100 mの距離を有機ELにより光伝送できることが示されている¹⁾。

図5 (b) に示すようにNTSC規格の入力側の画像信号波形はPFM変調され有機ELにより光信号に変換され、光検出器により検出されたPFM光出力信号は、再びNTSC規格の画像信号に復調される。入力側のNTSC信号は波形と出力側のNTSC信号波形、有機ELに加えたPFM変調された画像信号波形と有機ELにより光信号に変換された信号波形が示されている。それらの入力側と出力側の波形はほぼ一致し、有機ELにより画像信号波形が忠実に再現されていることを示す。これらの結果は、印刷プロセスにより作製した有機ELを電気-光変換素子として用いた場合も真空プロセスで作製した素子と同様に、動画伝送が可能であることを示している。

有機受光素子と有機受光素子の高速化の検討を行い、有機発光素子を電気-光変換素子とし、有機受光素子を光-電気変換素子として適用し、有機受発光素子を用いて動画信号を光伝送できることを実証した。溶媒に可溶性材料を選ぶことで印刷技術により有機発光素子や受光素子が作製でき、ドライプロセスと同様に光伝送用の光源や光電変換素子を作製できる。有機発光素子は可視光領域に多種の発光材料があり、光多重用の光源としても適用可能である。有機受光素子を用いて100 MHzの光信号の発生と受光ができることを示し、動画信号の受発光が可能であることを示した。

現在、化合物半導体による光素子を用いて光インターコネクションが実現されているが、ここで示した有機材料による光素子を用いることにより、ポリマー光ファイバーや有機材料による発光素子や受光素子を用いた全ポリマー材料による、環境負荷の少ない光ネットワークが容易に形成できる。

本研究の成果は、印刷技術で作製される有機受発光素子により、光ファイバーも含めたオールプラスチックの光インターコネクションが実現される可能性を示すものである。

文 献

- 1) Y. Ohmori, H. Kajii, M. Kaneko, K. Yoshino, M. Ozaki, A. Fujii, M. Hikita, H. Takenaka: "Realization of polymeric optical integrated devices utilizing organic light emitting diodes and photo detectors fabricated on a polymeric waveguide", *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, **10** (2004) 70-78.
- 2) M. A. Baldo, S. Lamansky, P. E. Burrows, M. E. Thompson and S. R. Forrest: "Very high-efficiency green organic light-emitting devices based on electrophosphorescence", *Appl. Phys. Lett.*, **75** (1999) 4-6.
- 3) C. Adachi, M. A. Baldo, M. E. Thompson and S. R. Forrest: "Nearly 100% internal phosphorescence efficiency in an organic light emitting device", *J. Appl. Phys.*, **90** (2001) 5048-5051.
- 4) H. Kajii, K. Takahashi, Y. Hino, Y. Ohmori: "Organic light emitting diode using starburst molecule doped with rubrene fabricated by wet-processing for application on an electro-optical conversion device", *IEICE Trans. Electron.*, **E87-C** (2004) 2059-2063.
- 5) Y. Ohmori, T. Hamasaki, H. Kajii and T. Morimune: "Organic photo sensors operating at high speed utilizing poly (9,9-dioctylfluorene) derivative and fullerene derivative fabricated by solution process", *Proc. SPIE*, **7356** (2009) 73560W-1-8.
- 6) T. Morimune, H. Kajii and Y. Ohmori: "Frequency response properties of organic photo-detectors as optoelectrical conversion devices", *IEEE J. Display Technol.*, **2** (2006) 170-174.

(2009年6月5日受理)