

## 有機EL素子内での端面方向への光伝搬

増田勇輔, 實藤智宏, 中谷旬紀, 岡田和之

### Light Propagation toward the End in Organic Electroluminescent Device

Yuusuke MASUDA, Tomohiro MITOH, Mitsunori NAKATANI, Kazuyuki OKADA

#### Abstract

The emission spectra from the end of organic light-emitting device (OLED) with red(NileRed), green(Coumarin6) or blue(BBOT) emissive material were experimentally observed. The emission intensity from the end of OLED was relatively weaker than that to the normal direction of the device plane. The reduction of the spectral intensity in the wavelength region of 400-500nm was more remarkable than that in 500-700nm region. This phenomenon was observed obviously in the OLED with the blue emissive material. The absorption in the ITO electrode film was proved to influence on this phenomenon. Most of the lights emitting from the end of the OLED are supposed to propagate while reflecting between the MgAg electrode and the glass-air interface.

Key words : EL device, EL spectrum, Display, Organic thin film

#### 1. はじめに

有機EL素子は、有機薄膜を2枚の電極で挟んだ平面状の3層構造をしている。ディスプレイをはじめとする有機EL素子の応用では、平面構造に対して垂直方向に放射される光の特性が重要となる。これまで、この垂直放射光の強度、効率などを中心とした研究・開発が進められてきた。<sup>1, 2)</sup>

有機膜内での発光は等方的であるため、垂直放射光だけでなく、素子端面から有機膜面に対して平行な方向への光放射も起こる。この端面放射光と垂直放射光では、有機層内の発光点から素子外に出るまでの光の進む経路が異なるため、異なった光学特性を持つ可能性

がある。有機膜が約  $0.1\mu\text{m}$  と薄いので、垂直放射光は発光点での光学特性を保ったまま素子の外に放射される。これに対し、端面放射光は素子中を数mm伝搬して外部に放出されることになる。したがって、素子との相互作用長が長くなり、光学特性に違いが現れると予想される。

昨年の論文において、赤色発光素子では観測されなかった垂直放射光と端面放射光のスペクトルの相違が緑色発光素子で観測されたと報告を行った。<sup>3)</sup> 本論文では、青色発光素子のスペクトル計測を行い、赤色、緑色発光素子の特性と比較することによりEL素子内での端面方向への光伝搬について検討を加えた。

## 2. 有機 EL 素子の作製手順

ホール移動剤(PVK)、電子移動剤(Bu-PBD)、発光剤をジクロロエタンに溶解した。この溶液をスピンコート法により帯状 ITO 電極の付いたガラス基盤上に塗布し、有機薄膜を形成した。さらに、真空蒸着法を用いて Mg-Ag を陰電極として ITO 電極に直交するように帯状に形成し、単層型の有機 EL 素子を作製した。端面放射光を直接測定するために、有機 EL 素子を ITO 電極に沿って切断した。

発光波長を変えるため、発光剤として NileRed (赤色発光)、Coumarin6 (緑色発光)、BBOT(青色発光)を使用した。ITO 電極(陽極)幅を 6mm、Mg-Ag 電極(陰極)幅を 6 mm とした。したがって、発光領域サイズは 6mm×6mm の正方形である。

## 3. 放射スペクトルの測定方法

発光スペクトルの計測にはファイバマルチチャンネルフォトメータ(分光計器㈱、K-1013)を使用した。測定点からフォトメータへの導光には、光ファイバを用いた。ファイバのコア径は 0.4 mm、ファイバと素子との距離は 10 mm である。

## 4. 実験結果

発光剤に BBOT を使用した青色発光素子の垂直放射光と端面放射光のスペクトルの計測結果を図 1 に、波長 400nm~520nm 域の拡大図を図 2 に示した。端面放射光は垂直面放射光に較べて著しく弱かった。両者のスペクトルを比較しやすくするため、図 1、図 2 においては端面放射光の強度を相対的に大きく示してある。図 2 に示した青色発光 EL 素子の垂直放射光スペクトルでは、波長 420nm、450nm、490nm 付近に発光成分が観測され、波長 490nm 光強度が最も強かった。端面放射光のスペクトルでは 510nm 付近のみに発光ピークが観測された。垂直放射光で観測された波長 490nm を中心とする成分と比べてもピーク波長が 20nm ほど長波長側にシフトしていた。垂直放射光で確認された波長 420nm と 450nm の発光成分は端面放射光では観測されなかった。

緑色ならびに赤色発光素子のスペクトルを図 3 に示した。NileRed を含有した赤色発光素子では端面放射光と垂直放射光のスペクトル形状に相違はほとんどみられなかったが、発光剤に Coumarin6 を用いた緑色発光素子では波長 400nm~520nm 域のスペクトル強度が 520nm~700nm 域のスペクトル強度に比べて相対的に低下していることが観測された。

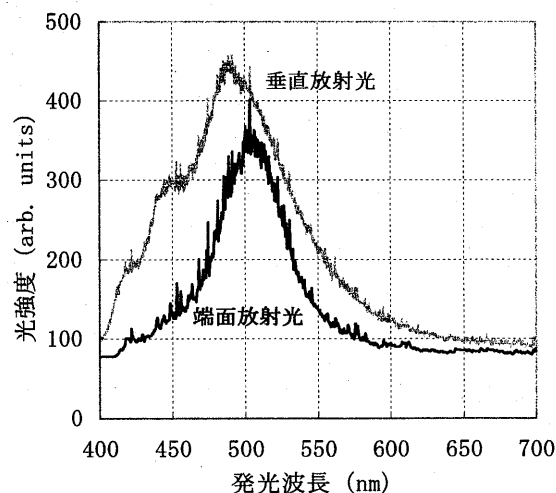


図 1 青色発光素子の放射光スペクトルの比較

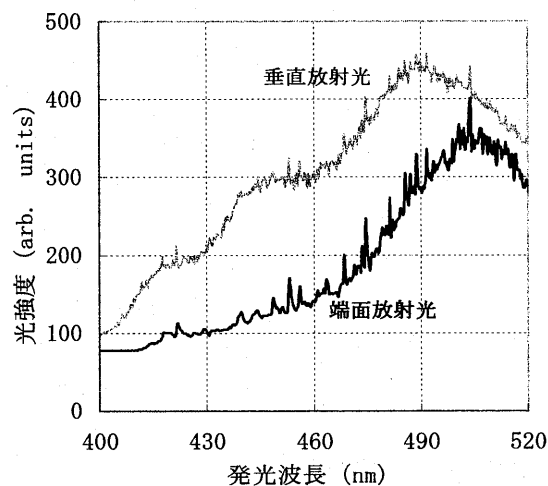


図 2 図 1 のスペクトル拡大図

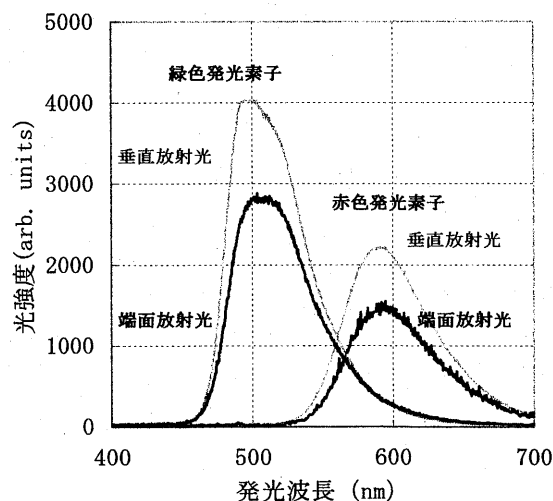


図 3 赤色、緑色発光素子の放射光スペクトルの比較

## 5. 検討および考察

赤色、緑色、青色発光 EL 素子の垂直放射光と端面放射光のスペクトルを比較すると、520nm より短い波長域において垂直放射光より端面放射光の方が相対的に強度が弱い。特に青色発光素子では顕著である（図 2 参照）。いずれの光も有機膜内の発生点から素子外へ放射されるまでに有機膜層、ITO 電極膜層、ガラス基盤層を通過する。このため、それぞれの層の光吸収特性が放射光スペクトルに大きく影響する。そこで、有機膜、ITO 電極膜、ガラス基盤の吸収スペクトルを計った。膜厚はスペクトル計測に用いた素子と同じとした。その結果を図 4 に示す。ガラス基盤の吸光度は 400nm~700nm の波長域においてほぼ一定の値を示した。このため、ガラス基盤は垂直、端面放射光のスペクトルの相違の要因とは考えにくい。ITO 電極膜は 400nm から 500nm の波長域で吸光度が大きくなっている。垂直放射光に対する端面放射光の相対的なスペクトル強度が低下していた波長域ともほぼ一致している。したがって ITO 電極膜が端面放射光スペクトルに影響を与えている可能性が高い。BBOT を含有した有機膜も 450nm から 600nm の波長域に吸収を示すが、ITO 電極膜と比べると吸光度が大きくないため、端面放射光のスペクトルに及ぼす影響はそれほど大きくないと考えられる。

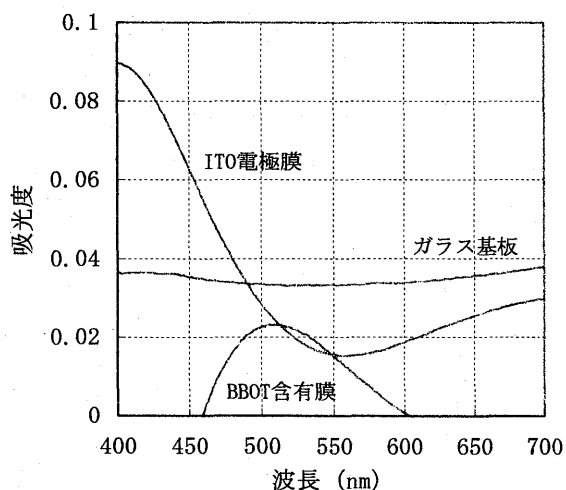


図 4 有機膜・ITO 電極・ガラス基盤の光吸収特性

光吸収は物質の吸収係数と光の経路長により決まる。そこで、端面放射光の EL 素子内の伝搬経路について検討を行った。垂直放射光と端面放射光が有機膜内の発生点から素子外へ放射されるまでの典型的な伝搬経路を図 5~7 に示す。

図 5 は有機膜内で発生した光が ITO 電極膜を斜めに横断し、ガラス基盤を通過して端面から素子外へ放射する場合の図である。図中の①が垂直放射光の ITO 膜内の経路を、②が端面放射光の経路を示している。端面放射光は有機膜と ITO 膜の境界面で屈折し、図 5 の角度  $\theta_1$  で ITO 電極膜内を伝搬する。したがって、②の経路長は①に比べて  $\frac{1}{\cos \theta_1}$  倍に長くなる。しかし、

有機膜と ITO 電極の屈折率<sup>4)</sup>を考慮すると、スネルの法則より  $\theta_1$  は約 53 度まででしかなりえない。この場合①と②で比は最大で 1.7 倍ほどであることが分かった。この経路長の差は少なからず垂直放射光と端面放射光のスペクトルの相違に影響を及ぼしていると思われる。

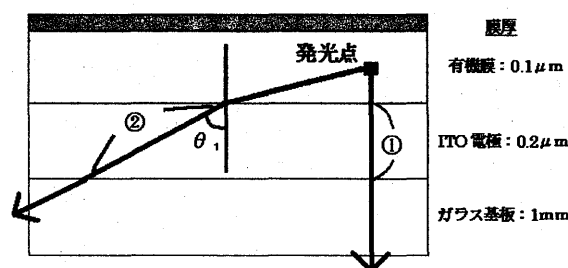


図 5. 垂直・端面放射光の EL 素子内での伝搬経路

次に図 6 に示したような ITO 電極膜内を全反射して伝搬する成分について検討を行った。この経路では先ほどの斜めに横切る場合と比べてより長く ITO 膜内を伝搬するため、ITO 膜の吸収の影響を強く受ける。ITO 膜の屈折率が有機膜とガラス基盤の屈折率に比べると大きいため ITO 膜内での全反射が可能となる。しかし、素子端面から放射するには ITO 膜内を数 mm 伝搬する必要がある。図 4 の吸収特性を考慮すると減衰が大きいと推測される。ITO 膜内を全反射して放射する成分も発光点での放射光の約 3% ほどであるため、端面放射光のスペクトル形状にはほとんど影響しないと思われる。

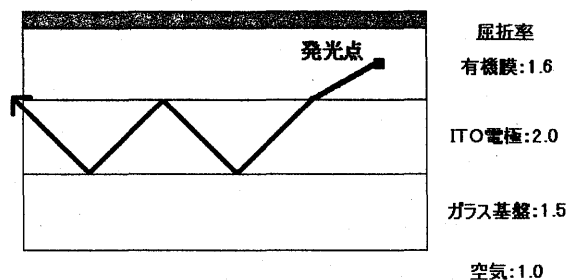


図 6 端面放射光の EL 素子内での伝搬経路(1)

最後に、図7に示したような有機膜、ITO 電極、ガラス基盤を横断し、ガラス基盤・空気の境界面と MgAg 金属電極面との間で全反射を繰り返して端面から放射する光の経路について考察した。この経路の場合、有機膜や ITO 電極膜に比べ 1mm と非常に厚いガラス基盤を横断することになるが、図4の吸収スペクトルを考慮するとスペクトル形状には影響を及ぼさない。しかし、ITO 膜を何度か横切るため、図5で議論した影響がさらに大きく現れると推測する。ITO 膜を横切る回数は発光点と素子端面との距離に依存するが、発光点が素子の端面から最も離れた場合、垂直放射光に比べて端面放射光は ITO 膜の影響を 10 倍ほど強く受けると評価できる。この経路で伝搬する端面放射が図1, 2のスペクトルの相違に大きく影響を及ぼしていると考えられる。

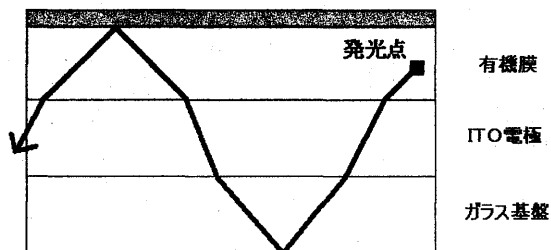


図7 端面放射光の EL 素子内での伝搬経路(2)

## 6. まとめ

赤色、緑色、青色発光の単層型有機 EL 素子の端面放射光のスペクトルを垂直放射光スペクトルと比較し、素子内での端面方向への光伝搬について検討した。

青色発光素子の端面放射光スペクトルにおいて 520nm より短い波長域において垂直放射光スペクトルとの相違が観測された。この相違は緑色発光素子よりも顕著であった。

EL 素子端面から放射する光は、ITO 電極膜の吸収の影響を強く受けている可能性が高い。ガラス基盤・空気境界面と金属陰電極面との間で反射を繰り返しながら素子内を伝搬し、端面から素子外へ放射している成分が多いと考えられる。

## 参考文献

- 1) M. Hamaguchi and K. Yoshino: Appl. Phys. Lett., 69 (1996) 143-145.
- 2) J. K. Sun, H. J. Peng, M. Wong and H. S. Kwok: Appl. Phys. Lett., 87 (2005) 093504.
- 3) 増田勇輔、湯藤真一、岡田和之：近畿大学工学部研究報告、39号 (2005) 137.
- 4) 筒井哲夫：1999年光学会の進展／有機発光デバイス (2000) 225.