

紙より薄いフィルム状有機 EL 光源 iOLED<sup>®</sup> の開発

技術解説

呉屋 剛\*

Development of iOLED<sup>®</sup>, a film like OLED thinner than paperKey Words : OLED, iOLED<sup>®</sup>, flexible light source

## 1. はじめに

近年、有機 EL をディスプレイ用光源として搭載したスマートフォンや大型テレビ、デジタルサイネージが広く普及し、「有機 EL」という単語を耳にする機会が増えてきました。「EL」とは、物質に電圧印加した際の電界発光現象（エレクトロルミネッセンス：ElectroLuminescence）のことであり、電気エネルギーの光エネルギーへの変換を意味します。特に、発光材料に有機物を用いた場合の電界発光現象を「有機 EL」といいます。

一方、有機 EL と同様に「OLED」という表記も多く見かけますが、これは「Organic Light Emitting Diode」の頭文字をとった略語で、直訳すると「有機発光ダイオード」となり、電気を流すと有機物が発光する素子そのものを意味します。製品により、「有機 EL」、「OLED」の表記はまちまちでどちらも同じ意味合いで使用されていることが多いですが、学術的には広く「OLED」という単語が用いられています。「有機 EL」は、省エネ、省スペースの観点や、自らが発光する面光源であるといった他の光源にない特徴を有していることから、次世代光源技術として期待されています。

有機 EL 技術の学術的研究の始まりは、1950 年

代後半、電極を取り付けた高純度の有機単結晶に、電圧印加すると電界発光現象が観測されたことに遡ります。有機 EL 技術開発のブレークスルーとなったのは、1987 年当時米国イーストマン・コダック社の研究員であった Tang 博士らの論文でした。Tang 博士らは、図 1 に示すように低分子の有機化合物を用いた積層機能分離型有機 EL 発光素子を開発し、発光の大幅な高効率化に成功したことを報告しています<sup>1)</sup>。ここで報告された最初の有機 EL 素子の特徴は複数挙げられますが、特に発光、正孔輸送という機能を各有機材料に担させたこと、即ち有機 EL 素子構成に必要な要素技術を細分化したことが挙げられます。以後、Tang 博士らの報告を基礎として、有機 EL 素子の要素技術はさらに細分化が進み、世界的に技術・材料の研究開発競争が活発化し、「有機 EL」という一大研究分野が誕生しました。

日本でもこれまで数多くの先駆的技術・材料が生み出され、1997 年に日本企業の Pioneer から世界で初めて車載用有機 EL ディスプレイが販売されました。それから 20 年以上経過した今、冒頭でも述べたように有機 EL を光源として搭載した電子機器



\* Tsuyoshi GOYA

1982年2月生まれ  
京都大学大学院 工学研究科 合成生物化学専攻博士前期課程 (2008年)  
現在、株式会社日本触媒 事業創出本部 研究センター アシスタントシニアリサーチャー 修士  
専門/有機合成化学 有機金属化学  
TEL : 06-6317-2281  
FAX : 06-6317-4293  
E-mail : tsuyoshi\_goya@shokubai.co.jp

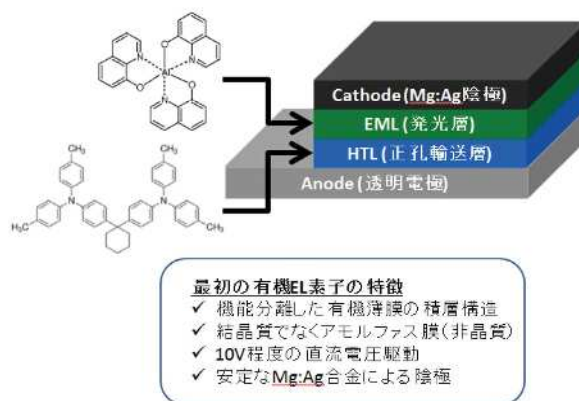


図1 最初の有機 EL の素子構成と特徴

が、数多く販売されています。

一方で、私たちが豆電球やLEDといった光源モジュールを容易に手に入れられる様に、有機EL光源モジュールそのものを容易に手に出来るかといえ、実はそうではありません。そこには、20世紀半ばの発明以降、有機ELが長年抱えている課題があります。

ここでは、有機ELが長年抱える課題に対する1つのアプローチとして日本触媒が開発を進めているiOLED<sup>®</sup>技術について、一般的な有機EL技術との比較を交えながら、最近の開発事例についても紹介します。

## 2. 有機EL素子が光る仕組みと課題

現在の一般的な有機ELは、図2のように、電気を光へと変換する発光層を中心として、正孔(+)の電荷)輸送層、電子(-の電荷)注入層、輸送層を、2つの電極(陽極: Anodeと陰極: cathode)でサンドイッチ状に挟み込んだ薄膜積層構造となっています。各有機層の厚さは数十nmであり、総膜厚でも数百nm程度ですので、厚みは基材に依存することとなります。電極に電圧印加することで、各電極から注入された正孔と電子が発光層で再結合し、その再結合エネルギーが発光層で光エネルギーへと変換されます。片側の電極には光を透過できる透明電極(図中ではITO: Indium Tin Oxide)が用いられているため、発光層で産み出された光は、透明電極側から外部へ取り出されます。

図2のように、一般的な有機ELの陰極付近の部材には、水・空気(酸素)に不安定なアルカリ金属

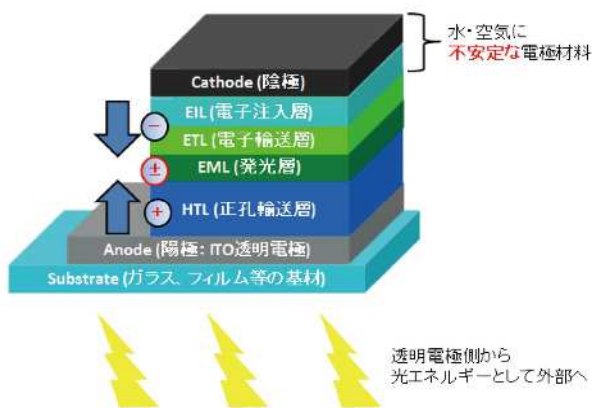


図2 一般的な有機EL素子の素子構成と光る仕組み

などの材料が用いられています。水・酸素は私たちの生活環境に当たり前のよう存在しています。つまり、有機ELを生活環境で使用するためには、外部環境から完全に遮断する「封止」を施し、水・酸素による劣化を抑制しないとけません。一般的に、有機EL素子の基材や封止には、水・酸素を透過しないガラスが用いられていますが、厚みを抑え、フレキシブル性を担保させる場合には、薄くてフレキシブル性のあるプラスチックフィルムを用いる必要があります。

しかしながら、通常のプラスチックフィルムは水・酸素を容易に透過させてしまうため、そのままでは有機ELの基材や封止に用いることは出来ません。水・酸素の侵入を防ぐためには、プラスチックフィルムに有機・無機膜を多数積層した多層構造のバリア膜を形成する必要があります。

一般的に、有機ELの基材や封止には、水蒸気透過度 $10^{-6} \text{g/m}^2/\text{day}$ 程度のハイバリア性が求められると言われていています。これはわかりやすく言うと、サッカーグラウンドの面積サイズのフィルム全面で、1日あたり1滴の水しか透過することを許されない、ということの意味します。このハイバリア性を実現することが如何に困難かということは、想像するに容易いと思います。実際、有機ELに適用可能なハイバリアプラスチックフィルムの製造における技術的課題は多く、生産性が極めて低いため、非常に高価です。このことがまさに冒頭で述べた、有機EL、特にフレキシブル有機ELが長年抱える課題なのです。

## 3. iOLED<sup>®</sup>技術の特徴

上述した有機ELが長年抱える課題「水・酸素によるデバイスの劣化」を解決する一つ的手段として、有機ELを水・酸素に安定な部材のみで組み上げる方法が挙げられます。例えば日本触媒は、NHKと共同で、図3右の構成に示すように、陽極と陰極を逆転させた逆積層構造の有機ELの開発を進めてきました。ここでは、大気中の水・酸素に弱い従来の電子注入材料は用いずに、電子注入材料として良好に作用する酸化亜鉛などの水・酸素に安定な金属酸化物を用いています。

一般的に、金属酸化物の製膜にはスパッタリング

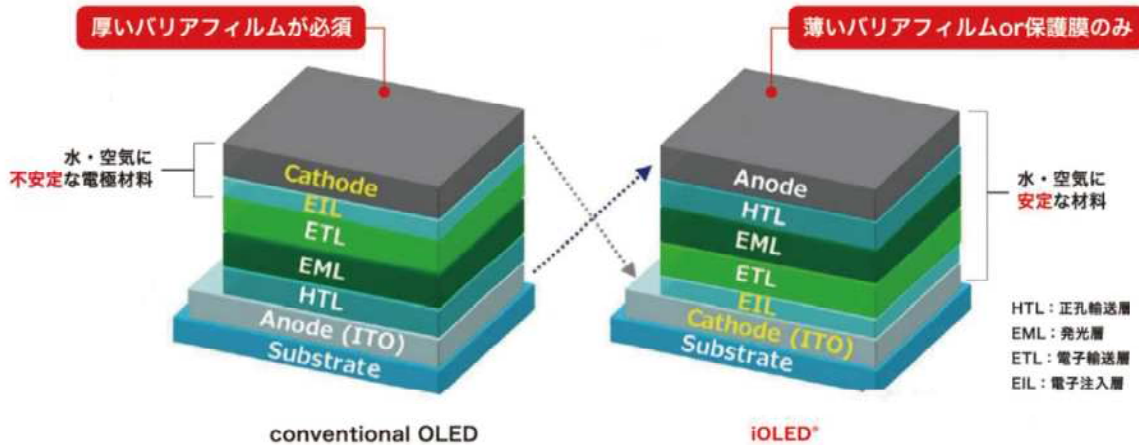


図3 一般的な有機ELの構成(左)とiOLED®(右)の構成との比較

法が用いられるため、通常構造の有機ELにおいて電子注入層(EIL)に金属酸化物を製膜すれば、既にその下層に製膜されている電子輸送層(ETL)や発光層(EML)など他の有機材料に対してプラズマによるダメージを与えてしまいます。

一方、iOLED®の様な逆積層構造であれば、スパッタリング製膜が必要な金属酸化物等の電子注入層を有機材料層よりも先に製膜できるため、有機物層にダメージを与えずに金属酸化物を製膜することができます。水・酸素に安定な金属酸化物等の電子注入材料を用いることができる点は逆積層構造の強みの一つと言えます。

iOLED®の有機ELデバイスとしての高い酸素・水分耐性は、日本触媒とNHKにより実証されてきました。2014年に、通常の有機ELデバイスを簡易な封止を施した状態で100日間保存すると発光面積が約半分になるのに対し、逆積層構造の有機ELデバイスは250日間劣化しないことを実証、報告しました<sup>2)</sup>。また、2016年には、図4に示すよう

に通常構造と逆積層構造の有機ELデバイスの大気中での連続点灯を比較し、逆積層構造有機ELの良好な安定性を示しました<sup>3)</sup>。しかしながら、当時は電子注入性の向上が更なる性能向上のための課題として残されていました。

電子注入性向上の課題に対して、2018年には、フレキシブル有機ELにおいて、図5のように金属酸化物層と電子輸送層の間に含ホウ素低分子有機化合物を始めとする化合物をインターレイヤー層として導入することで、電子注入特性が向上することを示しました<sup>4)</sup>。また同報告において、簡易封止した通常の有機ELをフレキシブルディスプレイに搭載すると、21日後にはほぼディスプレイ映像が見えなくなるのに対し、簡易封止の逆積層構造有機ELを適用したフレキシブルディスプレイは、1年以上経った後も表示画像を確認できることを示しました。

さらに最近2019年には、更なる長寿命化に課題として残されていた、一定の酸素・水存在下での高効率電子注入の長時間維持を達成し、報告しています<sup>5)</sup>。ここでは、通常構造の有機ELで用いられて

	大気中での連続駆動(封止なし)		
	作製直後	12時間後	24時間後
通常の有機EL			
逆構造有機EL			

図4 大気中での連続駆動比較

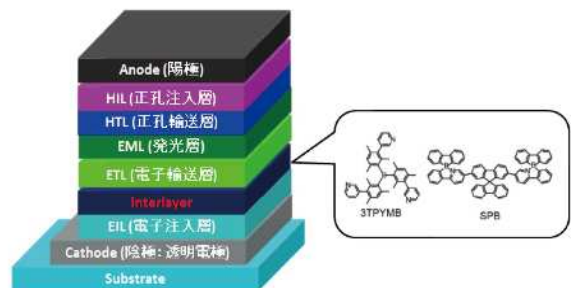


図5 電子注入性向上のための素子構成



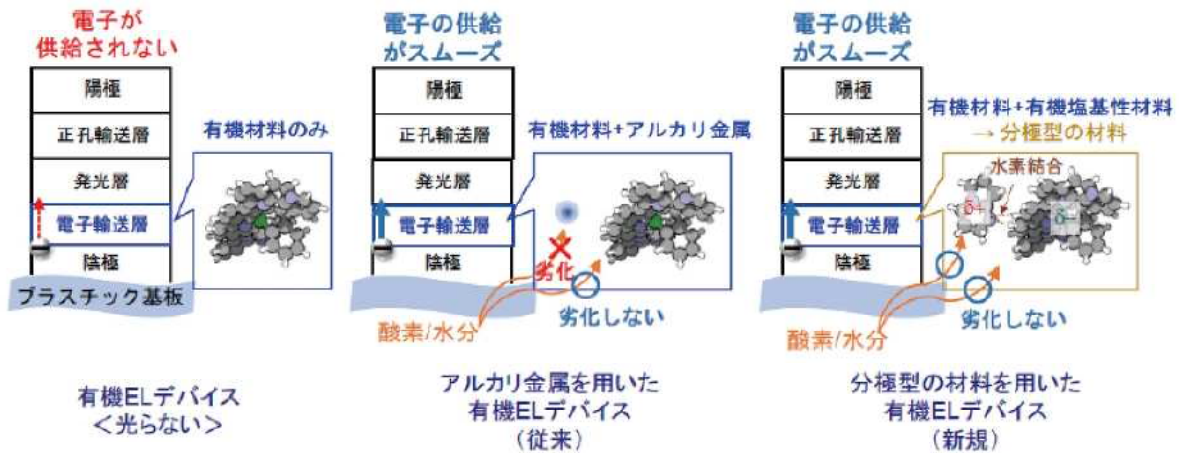


図6 有機ELデバイス構成と新規電子注入技術

いるアルカリ金属の代わりに有機塩基性材料を添加した、分極型の材料を用いています。当材料は、図6に示すように、高い大気安定性と分極による高い電子注入特性を示すため、酸素や水分を透過しやすいプラスチックフィルム上に有機EL素子を作製しても、高い電子注入が長時間維持されます。さらに、有機塩基性材料の添加により水素結合が形成され、これにより生じる分極が、電子注入に重要な役割を果たしていることを世界で初めて確認しています。

#### 4. iOLED® 技術の開発事例

上述した iOLED® 技術をフィルム基板に適用することで、素子の安定化のための厳密な封止や、厚いハイバリアフィルムを用いる必要がないために、図7に示すような極薄膜有機EL素子が実現可能となっています。実際に作製された素子の総膜厚は



図7 iOLED® 技術により作製された有機EL素子

80 μm以下であり紙より薄く、極めて高いフレキシビリティを有しています。また、高コストな厳密封止の必要性がないため、プロセス簡略化による低コ

□電子基板への搭載 □曲面への適用



□文字やロゴの描写



図8 iOLED® 技術を用いたアプリケーション例



図9 総膜厚3 μmの有機EL素子

スト化も期待されています。当該技術を用いて達成されるアプリケーションとしては、図8の様な省スペース化、局面への追従が想定されています。また、東京大学染谷研究室との協業で、図9に示すような総膜厚 $3\mu\text{m}$ の究極の極薄膜有機EL素子の作製にも成功しています。

また、2019年より、日本触媒と輪島キリモトは、アートディレクター四尾龍郎氏とともにiOLED<sup>®</sup>と輪島漆のコラボレーションを開始し、螺鈿が発光するiOLED<sup>®</sup>×輪島漆『余光 (Yo-Kou)』を完成させています(図10)。「余光」は、表面を薄くくり抜いた器に、貝殻薄片とフィルム状有機EL光源を貼り付け一体化したものをはめ込み、その表面に漆を塗り完成させています。漆を薄く何度も塗り重ねていくことで強く美しい塗膜を生み出すことが輪島漆の大きな特徴であり、螺鈿で扱う貝殻薄片も可能な限り薄いことが条件となります。iOLED<sup>®</sup>技術により得られるフィルム状有機EL光源が、厚さ0.07mmと紙より薄く、且つ漆塗膜の湿式条件に耐えうる安定性のために、貝殻薄片との一体化が実現しています。



図10 発光する『余光』の様子

## 5. おわりに

水・酸素に強い逆積層構造有機ELは、保護・バ

リア層を簡略化できるため、有機ELデバイス総膜厚を紙より薄くすることが可能であり、またプロセスの簡略化のため、低コスト化が期待されています。日本触媒では、その薄さ及びそこから生まれるフレキシビリティを大きな強みと捉え、開発品名『iOLED<sup>®</sup> フィルム光源』として上市に向けた取り組みを進めています。

『iOLED<sup>®</sup> フィルム光源』は、0.07mmという業界最高クラスの薄さを実現し、フレキシビリティに優れ、様々な曲面に沿う特徴を有しています。例えば、肌に直接貼る、棒状のものに巻きつける等、これまでの有機ELでは適用の難しかった場所・場面での活用が可能であり、そういったアプリケーションの実現を目指していきたいと考えています。また、近い将来、私たちが豆電球やLEDといった光源モジュールを容易に手に入れられる様に、有機EL光源モジュールそのものも、身近な存在にしていきたいと考えています。

## 参考文献

- 1) C. W. Tang and S. A. VanSlyke : Appl. Phys. Lett., **51**, 913 (1987)
- 2) H. Fukagawa, K. Morii, M. Hasegawa, Y. Arimoto, T. Kamada, T. Shimizu and T. Yamamoto : Appl. Phys. Express, Vol. 7, pp.082104-1-082104-4 (2014)
- 3) H. Fukagawa, et al. : SID Dig., pp.790-793 (2016)
- 4) H. Fukagawa, T. Sasaki, T. Tsuzuki, Y. Nakajima, T. Takei, G. Motomura, M. Hasegawa, K. Morii and T. Shimizu : Adv. Mater, pp.1706768-1-1706768-7 (2018)
- 5) H. Fukagawa, M. Hasegawa, K. Morii, K. Suzuki, T. Sasaki and T. Shimizu : Adv. Mater, pp.1904201-1-1904201-8 (2019)