

Title	照明およびディスプレイ用途向けの有機発光ダイオードの光取出効率を改善するための戦略
Author(s)	SAVANNA RAE, LLOYD
Citation	
Issue Date	2022-12
Type	Thesis or Dissertation
Text version	ETD
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10119/18191">http://hdl.handle.net/10119/18191</a>
Rights	
Description	Supervisor:村田 英幸, 先端科学技術研究科, 博士

氏名	LLOYD, Savanna Rae		
学位の種類	博士 (マテリアルサイエンス)		
学位記番号	博材第 553 号		
学位授与年月日	令和 4 年 12 月 23 日		
論文題目	Strategies for improving the outcoupling efficiency in organic light emitting diodes for lighting and display applications (照明およびディスプレイ用途向けの有機発光ダイオードの光取出効率を改善するための戦略)		
論文審査委員	主査	村田 英幸	北陸先端科学技術大学院大学 教授
		水谷 五郎	同 教授
		鈴木 寿一	同 教授
		大平 圭介	同 教授
		桶 菫 興 資	同 准教授
		夫 勇 進	理化学研究所 チームリーダー

## 論文の内容の要旨

Organic light emitting diodes have been able to achieve up to 100% in their internal quantum efficiencies. The realization of 100% in their external quantum efficiencies, however, are limited by the low light outcoupling efficiency ( $\eta_{out}$ ) of ~20%. The  $\eta_{out}$  describes the fraction of photons that escape into the forward viewing direction relative to the total amount generated and is heavily influenced by the device structure and materials used. Low  $\eta_{out}$  results from light lost to substrate guided modes (due to light rays being totally internally reflected, TIR, at the air/glass interface) and evanescent modes (due to coupling between the EM radiation and surface plasmons, SPs at the organic/cathode interface). The aim of this research is to enhance  $\eta_{out}$  by targeting these light loss channels via device and materials engineering strategies, respectively.

Hole patterns were first micromachined via a femtosecond laser (IMRA America Inc.) onto the air/glass side of the OLED substrate. Simulated results revealed that the maximum  $\eta_{out}$  maybe realized by using hole patterns with conical shape, 5  $\mu\text{m}$  diameter, 10  $\mu\text{m}$  depth, arranged in a rectangular lattice and separated by 1  $\mu\text{m}$ . Experimental results agreed well with simulation and showed that up to 60%  $\eta_{out}$  enhancement ( $\Delta\eta_{out}$ ) can be achieved in patterned devices. The mechanism of  $\Delta\eta_{out}$  is ascribed to the extraction of substrate guided modes where a smaller contact angle is made between the incident light rays and slanted conical surface, therefore TIR events at the air/glass interface can be avoided. Additionally, strong scattering events at the air/glass interface disarray interference effects that would normally cause viewing angle dependence (VAD) of the emission (EL) spectra. VAD was reduced from 11 nm to 4 nm thanks to the substrate patterning. Past strategies for  $\Delta\eta_{out}$  have unfortunately resulted in the VAD of the EL spectra while textures used to reduce VAD have no effect on  $\eta_{out}$ . Our strategy represents an improvement milestone in this regard for general lighting OLEDs since our air/glass patterns demonstrate simultaneous  $\Delta\eta_{out}$  and reduction of VAD.

A materials engineering approach was used to develop potential strategies that can prevent losses to evanescent modes.  $\pi$ -conjugated polymers used as the emissive layer in OLEDs naturally adopt a horizontal orientation relative to the z-axis and thus emit TE-polarized radiation. Since SPs only couple to TM-polarized

radiation, losses to evanescent modes are reduced and  $\eta_{out}$  is enhanced. For the realization of highly efficient OLED displays, these devices must naturally emit linearly polarized luminescence (LPL). This will be achieved by the uniaxial orientation of the polymer's molecular chain and transition dipole moment (TDM) in the x-y plane. For this purpose, we have devised a novel strategy, "solution withdrawal coating (SWC)" for the simultaneous deposition of the polymer film and control over uniaxial orientation. P3HT was used as the proof-of-concept material and demonstrated that up to 0.43 in optical anisotropy is possible. P3HT readily forms solution-state aggregates (nanofibrils) after UV-irradiation and fibrils readily align parallel to the direction of the moving solution during SWC. Although UV-irradiation does not induce molecular aggregation in solution for all OLED polymers (ex. F8BT), other strategies maybe explored, ex. electric field induced alignment. Once solution-state alignment is achieved, uniaxial orientation of polymer chains is expected, and LPL can be realized.

**Keywords:** Organic light-emitting diodes, outcoupling efficiency, substrate patterning, substrate guided modes, evanescent modes, molecular orientation.

## 論文審査の結果の要旨

有機発光ダイオード (OLED) は、自発光ディスプレイとフレキシブル照明としての産業応用が進展しており更なる高効率化が求められている。OLED の主要な性能指標である外部量子収率 ( $\eta_{ext}$ ) は、素子内部での電荷再結合によって光子を生成する効率 (内部量子収率  $\eta_{int}$ ) と発生した光を外部に取り出す効率 (光取り出し効率  $\eta_{out}$ ) の積で与えられる。優れた発光材料とデバイス構造の開発により、 $\eta_{int}$ 100%が実現されたのに対し、 $\eta_{out}$  は 20%程度に留まっている。 $\eta_{out}$  が低い主な理由は、素子中で発生した光の約 27%が基板内を伝搬する基板モードとして閉じ込められ、約 40%が、有機層/金属電極界面で表面プラズモンを励起するエバネッセントモードによって失われるためである。本研究では、これら二つの損失モードを低減させることで  $\eta_{out}$  の向上を試みた。

基板モードの低減には、ドームやピラミッド型のナノ構造体を基板表面に形成することが有効であることが知られているが、ナノ構造体の形成には複雑な加工プロセスが必要であるだけでなく、発光色が見る角度によって変化する視野角依存性を伴うといった問題がある。本研究では、基板表面に形成する形状を光学シミュレーションによって詳細に検討し、マイクロメータサイズの円錐状の穴を一定のパターンで配置することで  $\eta_{out}$  が向上することを見出した。実際に、フェムト秒レーザー加工を用いて透明電極付きガラス基板のガラス表面に最適化した円錐穴構造を形成し、この基板を用いた OLED において、 $\eta_{out}$  の向上と視野角依存性の低減を同時に実現した。また、フェムト秒レーザー加工は、大面積を短時間で加工できることから産業応用上も好適と考えられる。

表面プラズモンへの結合を抑制するためには、発光分子の遷移双極子モーメントが基板平面に対して水平配向していることが好ましい。本研究では、基板面内で分子鎖が水平配向する傾向を示す  $\pi$  共役系高分子材料に着目した、また、OLED ディスプレイには、外光の反射によるコントラスト低下を抑制するため偏光板が使用されている。その結果、発光の 50%が偏光板の吸収によって失われる。仮に、水平配向した高分子鎖を面内で一軸配向させることができれば OLED からの発光を効率よく取り出すことが可能となる。本研究では、高分子鎖の一軸配向を実現する製膜方法の開発を試みた結果、「溶液引き抜きコーティング法 (SWC)」を考案した。SWC 法は、試料溶液を満たした容器内に基板を固定し、溶液を一定速度で引き抜くことで基板表面に高分子薄膜を堆積させる成膜方法である。本研究で使用した共役系

高分子のポリ 3-ヘキシルチオフェン (P3HT) は、P3HT 溶液への UV 照射によってナノフィブリル凝集体を形成することが知られている。UV 照射後の P3HT 溶液を用いて SWC 法で作製した P3HT 薄膜の吸収スペクトルは、二色比 2.3 を示し、ナノフィブリルが溶液の移動方向と平行に整列することが分かった。以上より高分子薄膜の形成時に高分子鎖の配向制御が SWC 法によって可能であることを実証した。

以上、本論文は、OLED の光取り出し効率の向上に関するものであり、学術的および社会的に貢献するところが大きい。よって博士 (マテリアルサイエンス) の学位論文として十分価値あるものと認めた。