The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	微細光学構造による固体発光素子の高効率光波制御に関する研究
Author(s)	山江, 和幸
Citation	大阪大学, 2019, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/72397
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

博士学位論文

微細光学構造による固体発光素子の
高効率光波制御に関する研究

山江　和幸

2019年 1月

大阪大学大学院工学研究科

目次

第 1 章　緒論 1
1.1 研究の背景及び目的 1
1.2 本研究論文の構成 6

第 2 章　固体発光素子の発光原理と光波制御に関する従来手法 8
2.1 緒言 8
2.2 固体発光素子の分類と効率決定要因 8
2.3 固体発光素子の発光原理と内部量子効率の決定要因 12
2.3.1 LED の発光原理と内部量子効率の決定要因 12
2.3.2 OLED の発光原理と内部量子効率の決定要因 15
2.4 固体発光素子の光取り出し効率向上に関する従来手法 19
2.4.1 光源配光制御の従来手法 20
2.4.2 反射層における光反射制御の従来手法 23
2.4.3 屈折率界面における光透過制御の従来手法 29
2.5 結言 34

第 3 章　反射光学構造による固体発光素子の光取り出し効率向上 35
3.1 緒言 35
3.2 反射率と光取り出し効率の相関関係 35
3.3 高反射光学構造(TI-ODR)の設計指針 40
3.3.1 角度積分反射率 40
3.3.2 全反射を利用した全方向反射鏡 40
3.3.3 誘電体層と金属層を利用した全方向反射鏡 44
3.4 固体発光素子デバイスへの展開 46
3.4.1 光学解析による TI-ODR 導入効果検証 46
3.4.2 TI-ODR 導入効果の実証（青色 LED デバイス） 51
3.5 結言 54

第 4 章　光源近傍構造による固体発光素子の光取り出し効率向上..... 56
4.1 緒言 56
4.2 光源位置と表面プラズモンに配慮した配光パターンの設計 57
4.3 配光パターンの測定手法 63
4.4 OLED 素子の配光パターン制御 67
4.4.1 単色 OLED の配光パターン制御 67
4.4.2 マルチフォトン構造を有する白色 OLED の配光パターン制御 70
4.5 結言 78

第 5 章　微細光学構造による固体発光素子の光取り出し効率向上..... 80
5.1 緒言 80
5.2 高屈折率基板活用の効果 (BLES) 80
5.3 配光パターンと微細光学構造のマッチング 87
5.4 白色 OLED デバイスの高効率化 90
5.5 結言 95

第 6 章　光取り出し効率向上を実現する生産プロセス 96
6.1 緒言 96
6.2 全方向反射鏡(TI-ODR)の生産プロセス 96
6.3 積層構造基板(BLES)の生産プロセス 99
6.4 結言 104

第 7 章　結論 105

謝辞 108
参考文献 110
本論文に関する著者の論文 120

第1章　緒論

1.1 研究の背景及び目的

有史以来、「光」を取り扱う技術の進展は人類の発展に大きな影響を与えてきた。Fig.1-1に示すとおり、光源、特に白色照明光源の主役は大きく変遷してきた。長年にわたり灯りをとるために活用されてきた火は、19世紀後半になって発明された白熱灯や蛍光灯などの安全・安定な照明用光源に置き換えられた。これらの光源は多くの人々の暮らしや仕事を支え、社会の発展に広く貢献してきた。また、屋外や演出用の高輝度照明として、金属原子高圧蒸気中における放電現象を利用した高圧水銀ランプ、高圧ナトリウムランプ、メタルハライドランプなどのいわゆる高輝度放電ランプ(high intensity discharge lamp, HID)も活用されてきた。そして20世紀の終わりに劇的な進化をとげ、固体発光素子または固体光源（solid-state light source, SSL)と呼ばれる新光源が誕生した。固体発光素子は急速に白熱灯や蛍光灯を置き換えつつあり、その用途が拡大し続けている。

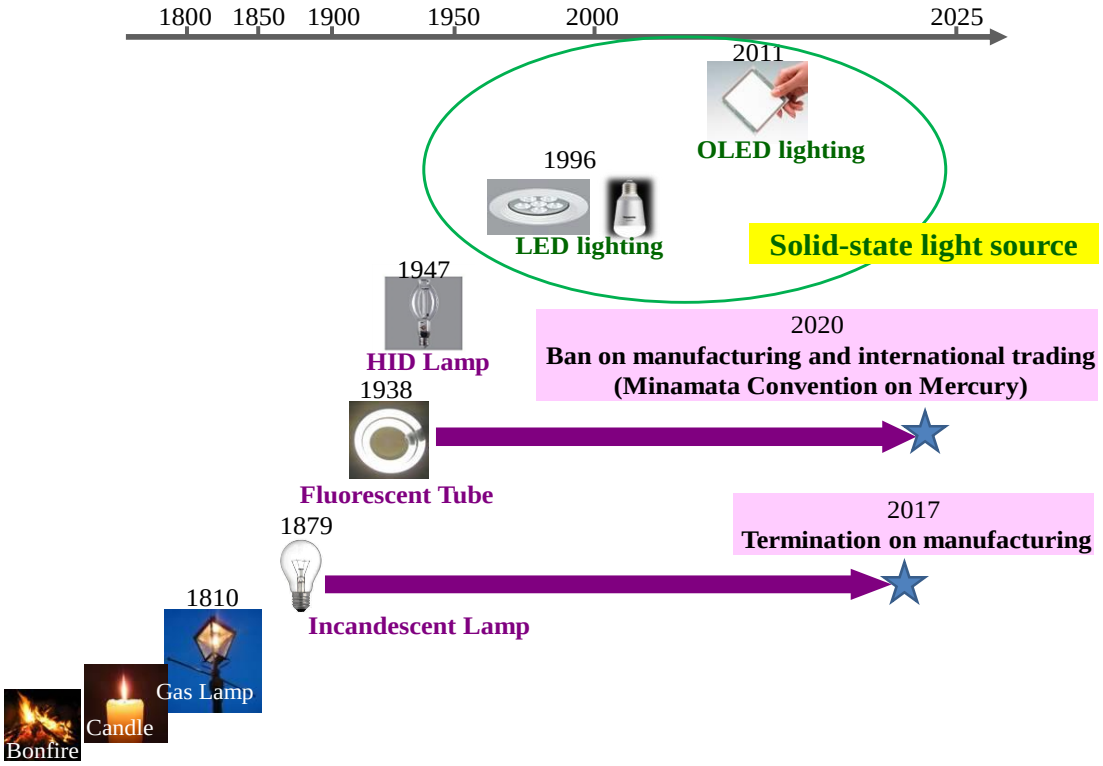


Fig. 1-1 History of the light sources

Fig.1-2に、上述した固体発光素子とその用途の概略を示す。固体発光素子の代表格である発光ダイオード(light emitting diode, LED)は、従来の光源に比べて高効率、長寿命、コンパクト、有害物質(水銀)や有害光線(UV)を含まないなどの優れた特徴を多く有し、照明の分野において、21世紀初頭から10年程度で爆発的に普及した。また、LEDの発光層の一部を改良しレーザー発振させた半導体レーザーダイオード(laser diode, LD)も、現在光ディスクのピックアップや高輝度照明光源(プロジェクタ)として普及が進んでいる。また、自発光ではないが上記高輝度プロジェクタに用いられている蛍光体デバイスも固体発光素子に位置づけられる。さらには、次世代の光源として期待されている有機EL(organic light emitting diode, OLED)も、スマートフォン用やTV用の表示素子として普及が進んでおり、徐々に認知度が高まっている。光源としての効率や寿命は現在のところLEDに及ばないが、面で発光させたりフレキシブル・透明といった機能を持たせやすいという特長を有しており、これまでにない斬新なデザインを実現しやすく、照明分野への応用も期待されている。

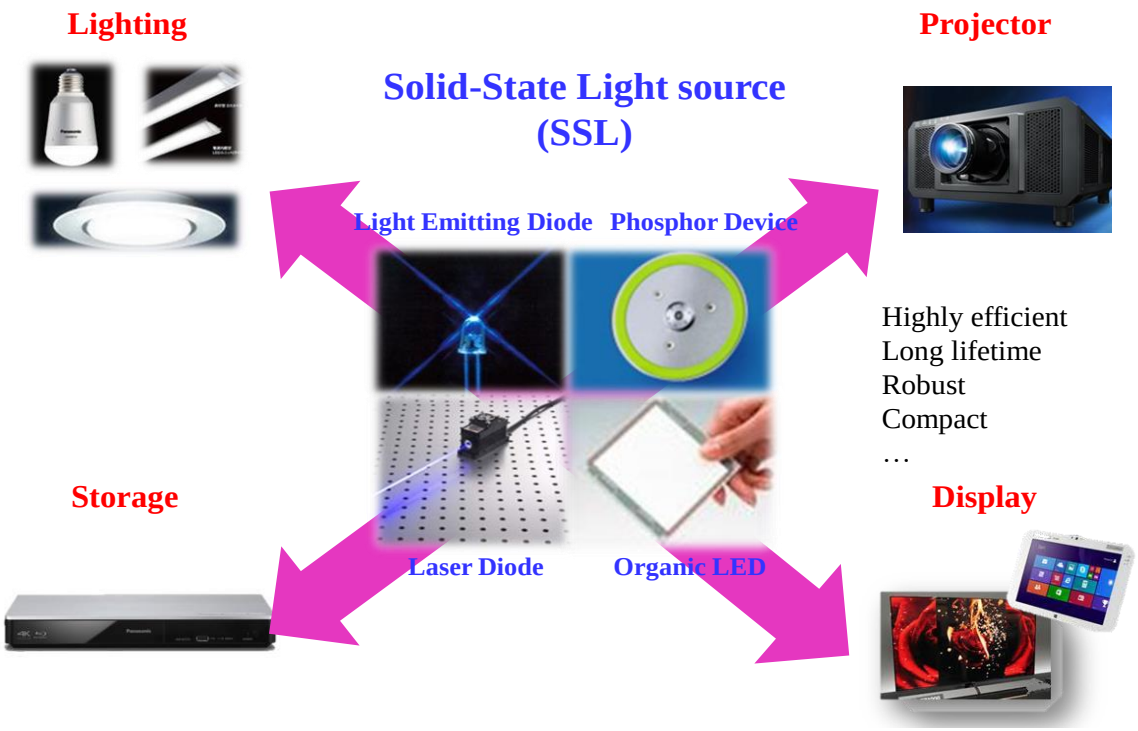


Fig. 1-2　Solid-state light sources and their applications

これら固体発光素子の特に効率面における優位性が、世界的な温室効果ガス抑制の政策とリンクしてパラダイムシフトの大きな要因となった。照明に使用される消費電力量は全消費電力量の約20%を占めており[1)]、固体発光素子への置換えによって大きなCO_2削減効果が期待されるためである。国際エネルギー機関(International Energy Agency, IEA)の2016年度の報告資料[2)]によると、過去10年間、照明の固体発光素子への置換による電力消費量削減効果は年々増加しており、グローバルで145TWh/年程度の削減効果と推計されている。これは、2011年時点の日本で使用されていた照明の全電力消費量(約150TWh/年[3)])に匹敵する。なお、同資料[2)]では、現在使用されている従来光源をすべて固体発光照明に置き換えた場合の電力量削減効果は1,600TWh/年程度としており、これは、2015年のグローバル電力消費量(22,386TWh[4)])の実に約7%にも及ぶ。このような背景からも、特に日本においては、東日本大震災時のエネルギー不足による計画停電等の経験から、より省エネルギーに適した固体発光素子への置換えが国家政策となっており、2014年に閣議決定された「エネルギー基本計画」において、2030年までに在庫も含めた照明光源に占める固体発光素子の割合を100%化する目標が打ち立てられている。一方、従来光源に対するグローバルな規制も追い風となっている。たとえば、白熱電球は2017年までに世界のほとんどの国で新規製造が原則中止となる計画となった[5)]。また、2013年に国際連合の分科会として熊本で開催され、採択・署名された水銀に関する水俣条約(Minamata Convention on Mercury)の締約国数が2017年に日本も含めて50カ国に達したことにより、条約が正式に発効された。これに従い、水銀を含む蛍光灯の製造が2020年以降原則禁止[6,7)]になる。したがって、今後固体発光素子の需要がますます高まり、2020年時点で新規出荷される光源のうち固体発光素子が占める割合が国内で100%、グローバルで見ても67%に達すると予測されている[8)]。

固体発光素子が用途をさらに拡大し、すべての既存光源から置き換わるためには、一段と高い発光効率を低コストで実現することが求められる。効率が高くなれば同じ器具設計(放熱機構設計)で得られる光の量が増えるため、現在HIDランプが主で使われているような高出力領域へシフトすることも可能になり、置換えの加速が可能となる。また、同じ出力で温度設計が緩和できるため、照明器具や装置の小型軽量化をさらに推し進めることも可能である。いずれにせよ、発光効率は光源にとって依然として重要な性能である。固体発光素子の発光効率はいくつかの効率要素に分解することが可能である。そのなかでもっとも効率向上の余地が高いのが光取り出し効率である。固体発光素子は従来光源と違って、気体ではなく固体の媒質から光が放射されるため、光源部の屈折率が高い。Fig1-3(a)に示すように、屈折率が高い光源側の媒質1(屈折率:n_1) から、n_1 よりも屈折率が低い媒質2(屈折率:n_2) へ光が透過する際には、次式(1)で示されるスネルの法則に従って光が屈折(refraction)し、屈折率界

面に対する光の角度が変化する。屈折率界面で入射角より出射角が大きくなり、出射角が式(2)に示す臨界角θ_cを超えると、左辺の$\sin\theta_2$が1を超えて式(1)が成り立たなくなる。このとき、光はFig1-3(b)に示すとおり、屈折率界面に入射した光と同じ角度で媒質1側に光が全反射(total internal reflection, TIR)される。

$$n_1 \sin\theta_1 = n_2 \sin\theta_2 \qquad (1.1)$$

$$\theta_c = \sin^{-1}\left(\frac{n_2}{n_1}\right) \qquad (1.2)$$

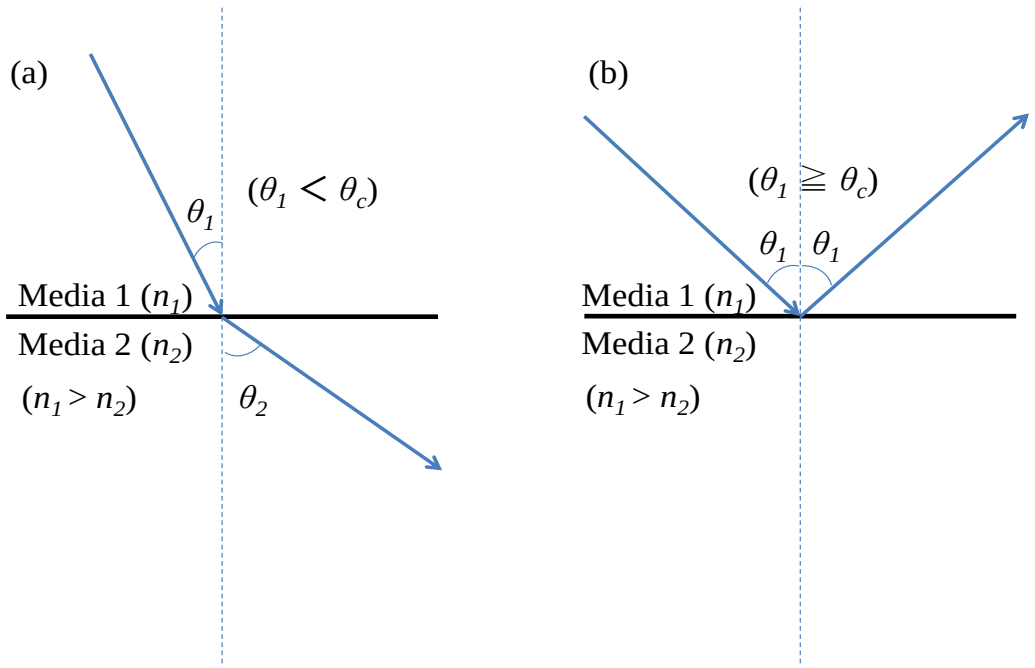


Fig. 1-3 (a) Refraction and (b) total internal reflection at the interface of different refractive indices

この全反射した光は、上記界面及び裏面側が平坦な場合は入射角θ_1で媒質1の内部で反射を繰り返すため、この角度で入射した光は媒質2側に取り出すことができない。ここで、固体発光素子から発する光はあらゆる方向へ等方的に放射する点光源の集合体からの放射と扱えるため、光取り出し効率η_{out}を光源内で発生した光波エネルギーの外部への放出確率と定義すると、裏面側に出射した反射光も取り出せると仮定した場合、

$$\eta_{out} = \frac{2\pi I_0 \int_0^{\theta_c} \sin\theta d\theta}{2\pi I_0 \int_0^{\frac{\pi}{2}} \sin\theta d\theta} = 1 - \cos\theta_c = 1 - \sqrt{1 - \left(\frac{n_2}{n_1}\right)^2} \qquad (1.3)$$

と書くことが出来る。ここで、I_oは正面方向における単位立体各あたりの発光強度である。たとえばこの式(1.3)に、青色LEDの発光層に主に用いられるInGaN(窒化インジウムガリウム)の屈折率n_1=2.4及び有機ELの発光層に用いられる$Ir(ppy)_3$(トリス(2-フェニルピリジン)イリジウム(III))の屈折率n_1=1.8を代入すると、空気中(n_2=1)へ取り出すことが可能な光はそれぞれ、わずかに9.1%、16.8%となる。このように、固体発光素子の屈折率は全般に高く、その結果として光取り出し効率は通常低い値となるため、その向上を目的としてこれまで数多くの研究がなされてきた。本研究では、固体発光素子の発光原理とそれに基づいて過去に研究された光取り出し効率向上手段を鳥瞰した上で、各要素研究を複合した固体発光照明のシステムの全体設計に焦点を当てる。光が発光層内部で発生してから空気中に取り出されるまでのすべての過程における対策を全体的に網羅したうえで、固体発光素子の光取り出し効率を最大限に高める方策を体系的に示す。

本研究の成果により、固体発光素子の光取り出し効率を従来手法より10～30%程度向上することが可能である。既存光源から固体発光素子へ置き換えることで、トータルで少なくとも1.5倍程度の電力効率が改善すると見積もられるので、本研究の寄与分は、先述のIEAのエネルギー消費量削減効果に換算すると、約300TWh/年にも及ぶ。これは日本の全照明の年間電力消費量の約2年分に匹敵する。本研究は光取り出し効率向上に向けた基本指針を示すものであり、今後本研究を元にさらなる改善が図られた場合は、より一層の電力消費量削減効果が期待できる。

1.2 本研究論文の構成

本研究では、固体発光素子の光取り出し効率向上を目的として、高効率に光波を制御する手段を各要素・部位ごとに検討したうえでそれらを最終的に練成し、固体発光素子システム全体の体系的な光波制御手法を明らかにする。本研究の構成をFig.1-4に示す。まず第2章で固体発光素子の効率を特定する要因を示し、その発光原理から、素子内で発した光が光源近傍、反射層、空気との屈折率界面でどのように振る舞うかについて論じる。それらの理論を用いて従来行われてきた研究例を示す。第3章では、特に点光源（例：LED）において光取り出しに極めて影響の大きい反射光学系のあるべき姿について論じる。第4章と第5章では、固体発光素子の中でも光取り出しの制約が多く、第3章で論じた反射光学系だけでは十分に光取り出しができない面光源（例：OLED）を取り上げる。第4章ではまず光源配光単独の制御手法について論じ、第5章では、面光源の屈折率界面で光を高効率で取り出すための光源配光と微細凹凸構造の最適な光波制御手法の組み合わせについて論じる。第6章では、第3～5章で得られた光波制御手法を具体的な製品に適用する場合に必要な生産技術について論じ、産業応用の可能性と残された課題について論じる。最後に、第7章で本研究を総括する。

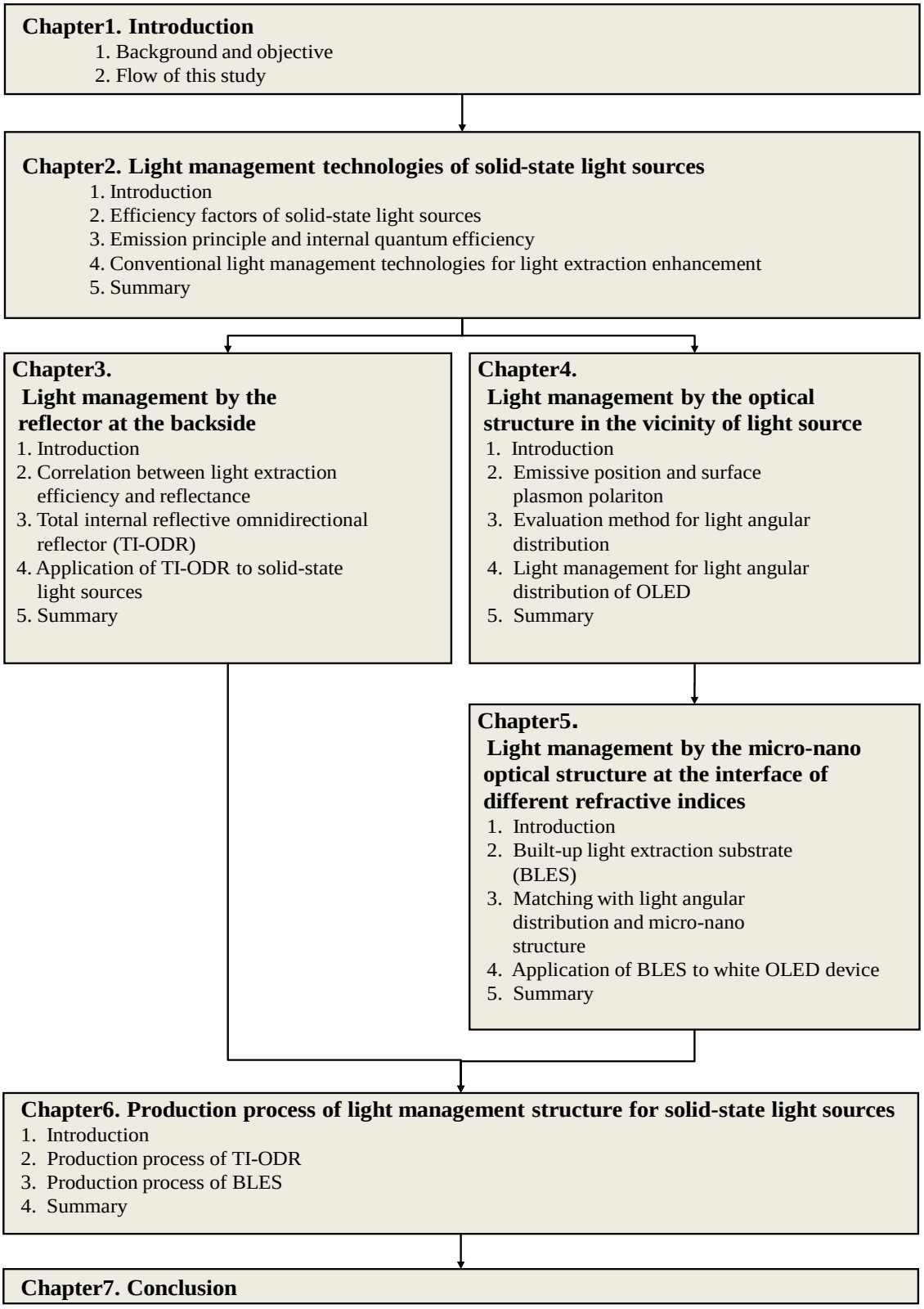


Fig. 1-4　The flow chart of this study

第2章　固体発光素子の発光原理と光波制御に関する従来手法

2.1 緒言

固体発光素子の台頭、特に効率向上による普及拡大が近年の産業界を大きく変革した。本章では、まず固体発光素子の発光原理とその発光効率を決定する要因について示す。それらの要因のうち、特に光取り出し効率については、式(1.3)に表されるとおり、スネルの法則により大きく制限を受けるため向上の余地が大きい。そこで、さらに素子内で発した光が光源、反射層、空気との屈折率界面でどのように振る舞うかについて論じ、それらの理論を用いてこれまでに光取り出し効率を向上してきた研究例を示す。それらの従来研究を踏まえた上で、本研究の立ち位置と方向性を明確にする。

2.2 固体発光素子の分類と効率決定要因

まず、Fig.2-1に示すように固体発光素子を発光機構の違いで分類した。発光はいずれもルミネッセンス(luminescence)とよばれるもので、発光層の電子が基底状態から励起状態に遷移し、励起状態から二つのエネルギー状態の差（バンドギャップ）に相当するエネルギーの光を放出して基底状態に戻る（再結合する）機構で得られる。その遷移を促すものが電界によるものか光によるものかで分類される。電界励起により得られるものをエレクトロルミネッセンス(electro luminescence, EL)と呼び、光励起により得られるものをフォトルミネッセンス(photo luminescence, PL)と呼ぶ。白色OLEDは青、緑、赤すべての光が有機発光層から発したEL光である。ちなみにOLEDの別名である有機ELは、このエレクトロルミネッセンスを有機物で発生させることから、そのように呼称されている。照明や液晶のバックライトで用いられる白色LEDの大部分は、LEDから発した青色のEL光と、この青色EL光の一部を吸収して緑～赤色領域の光を発生させる蛍光体デバイスからのPL光を混ぜ合わせた白色光を用いている。一方、LDは、LEDの発光層に光共振器構造を構成することでレーザー光を生成する素子である。発光密度（輝度）はLEDに比べてはるかに大きくなるが、レーザー光を発振させるために電力をLED以上に多く投入する必要がある。具体的には、発振しきい値以下の電流ではLEDとして振舞うが、それらの光はLD出射端（共振器の窓部）から放出されない構造となっている。したがって、トータルの発光効率（入力した電力エネルギーに対して得られるレーザー光のエネルギーの比率）は原理的にLEDより低くなる。本章では、当研究のテーマである光取り出しに関する理論検証が盛んなLEDとOLEDについて、発光原理と従来研究例を示す。

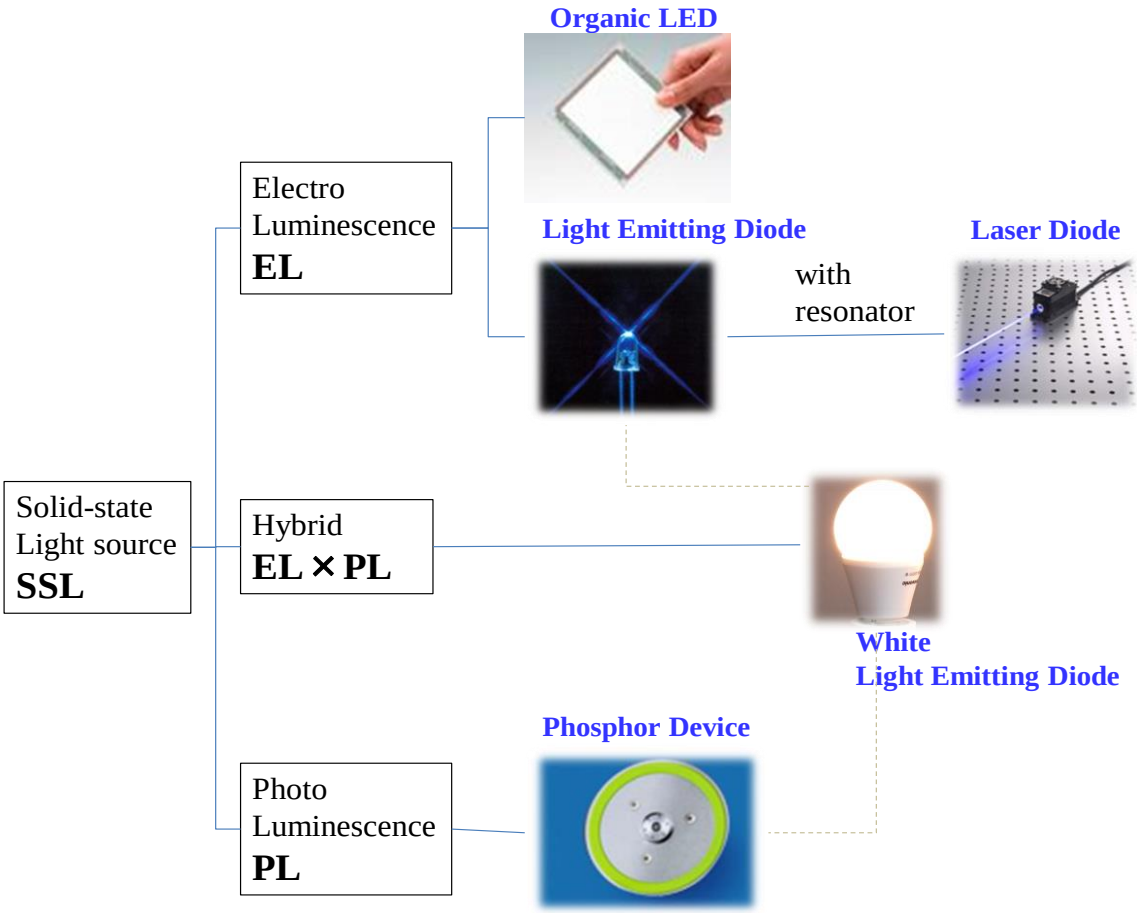


Fig.2-1　Variation of solid-state light sources

LEDやOLEDのように、ELが得られる固体発光素子の効率支配要因[9)10)]の模式図をFig.2-2に示す。一般に、固体発光素子の効率はウォールプラグ効率 η_{wp} (wall-prug efficiency: WPE)および外部量子効率 η_e (external quantum efficiency: EQE)で表現され、入力電流I、電圧Vに対する光出力P_{out}を用いて次式(2.1)および(2.2)で表される。

$$\eta_{wp} = \frac{P_{out}}{IV} = \eta_v \eta_e \qquad (2.1)$$

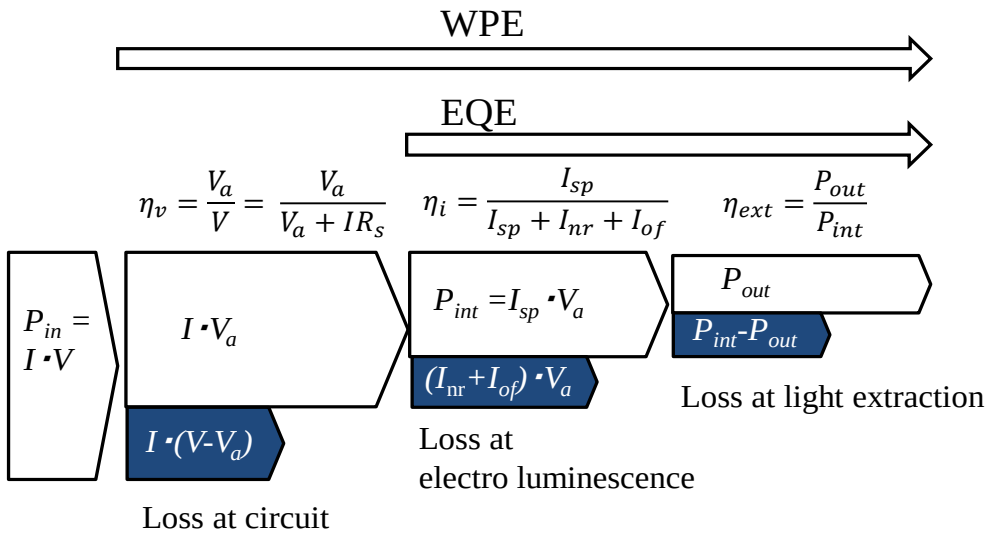
$$\eta_e = \frac{P_{out}}{IV_a} = \eta_i \eta_{ext} \qquad (2.2)$$

ここで、η_vは電圧効率（feeding efficiency: FE)、η_iは内部量子効率（internal quantum efficiency: IQE)、η_{ext}は光取り出し効率（light extraction efficiency: LEE)である。式(2.2)のV_aは固体発光素子の発光に寄与する部分、すなわち活性層(active layer)に印加される電圧[V]であり、活性層のバンドギャップエネルギー[eV]にほぼ一致する。また、η_iとη_vはさらに次式(2.3)(2.4)でそれぞれ与えられる。

$$\eta_v = \frac{V_a}{V} = \frac{V_a}{V_a + IR_s} \qquad (2.3)$$

$$\eta_i = \frac{I_{sp}}{I_{sp} + I_{nr} + I_{of}} \qquad (2.4)$$

上式で、R_sはデバイスに光が注入されるまでの回路抵抗や電極と半導体層の接触抵抗を含む直列抵抗成分の合計値である。また、I_{sp}は自然放出再結合電流、I_{nr}は非発光再結合電流、I_{of}は活性層から漏れ出したオーバーフロー電流である。上記直列抵抗成分は発光素子に関係しない電力回路における損失成分、非発光再結合電流、オーバーフロー電流は発光素子内部における損失成分となる。要するに、外部量子効率η_eはウォールプラグ効率η_{wp}から電力回路における損失成分を除いた効率であり、発光素子性能を評価する上で重要な効率である。2.3節では、外部量子効率を構成する二つのファクターである内部量子効率η_iと光取り出し効率η_{ext}のうち、η_iの決定要因や向上手段について、各発光素子の発光原理を交えながら明示する。一方、本研究で着目するη_{ext}を向上するための従来手法については、2.4節に示す。



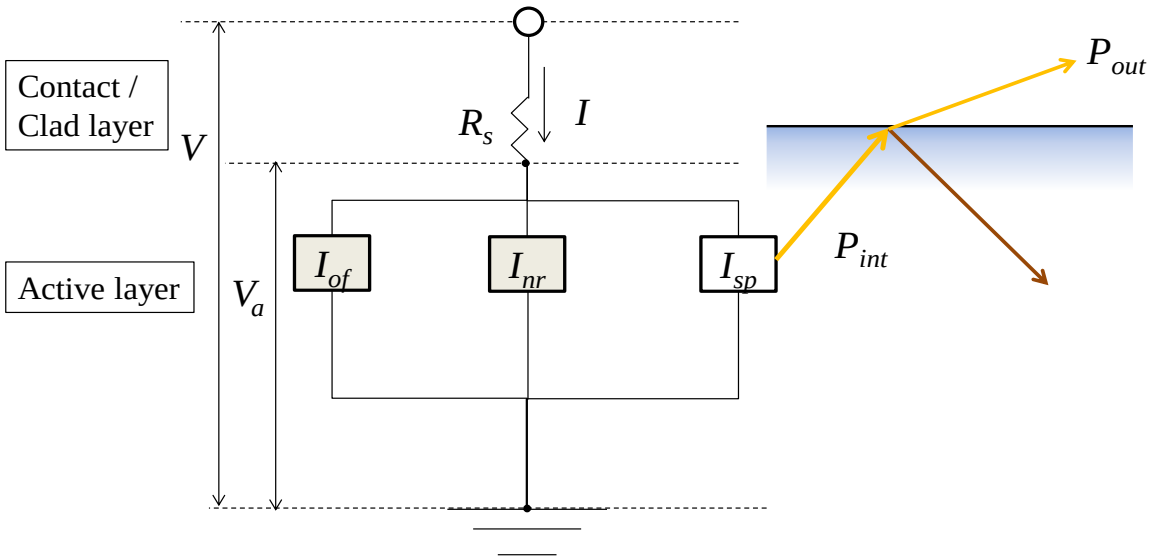


Fig.2-2 Efficiency factor of solid-state light source

2.3 固体発光素子の発光原理と内部量子効率の決定要因

本節では、LEDとOLEDの発光原理や内部量子効率の決定要因について示す。LEDとOLEDでは、後述するように、基底状態や励起状態などさまざまな呼称が異なるが、本質的には同じものであることをあらかじめ言及しておく。

2.3.1 LEDの発光原理と内部量子効率の決定要因

LEDは、電子伝導性のn型半導体とホール伝導性のp型半導体によるp-n接合に順バイアスを印加した際に注入された少数キャリアの再結合によってルミネッセンスを得る構造[11) 12)]である。基本的にはp-n接合であるが、発光層付近には後に述べる再結合発光およびその取り出し効率を向上させる工夫がなされている。p-n接合は2種類の接合、すなわち同種の半導体による接合であるホモ接合と、異種の半導体による接合であるヘテロ構造がある。ヘテロ接合では、p,n領域のエネルギーバンドギャップが異なるため、界面で高いエネルギー障壁が構成される。その結果、電圧がゼロの場合（熱平衡の場合）にキャリアの注入がほとんどおこらない。このヘテロ接合を用いることにより、注入するキャリアを制御することが可能となる。特にLEDでは輝度や効率を向上するためにダブルヘテロ構造が多く用いられてきた。Fig.2-3にセンサー等で広く用いられている赤外LED、n-GaAlAs/GaAs/p-GaAlAsダブルヘテロ構造の概念図、及びFig.2-4にそのエネルギーバンド構造を示す。ダブルヘテロ構造は、Fig.2-3のようにヘテロ接合が2個組み合わされたものである。

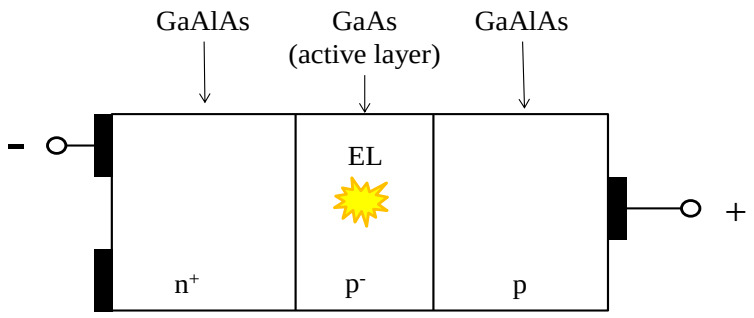


Fig.2-3 Schematic of GaAlAs/GaAs/GaAlAs double-hetero structure

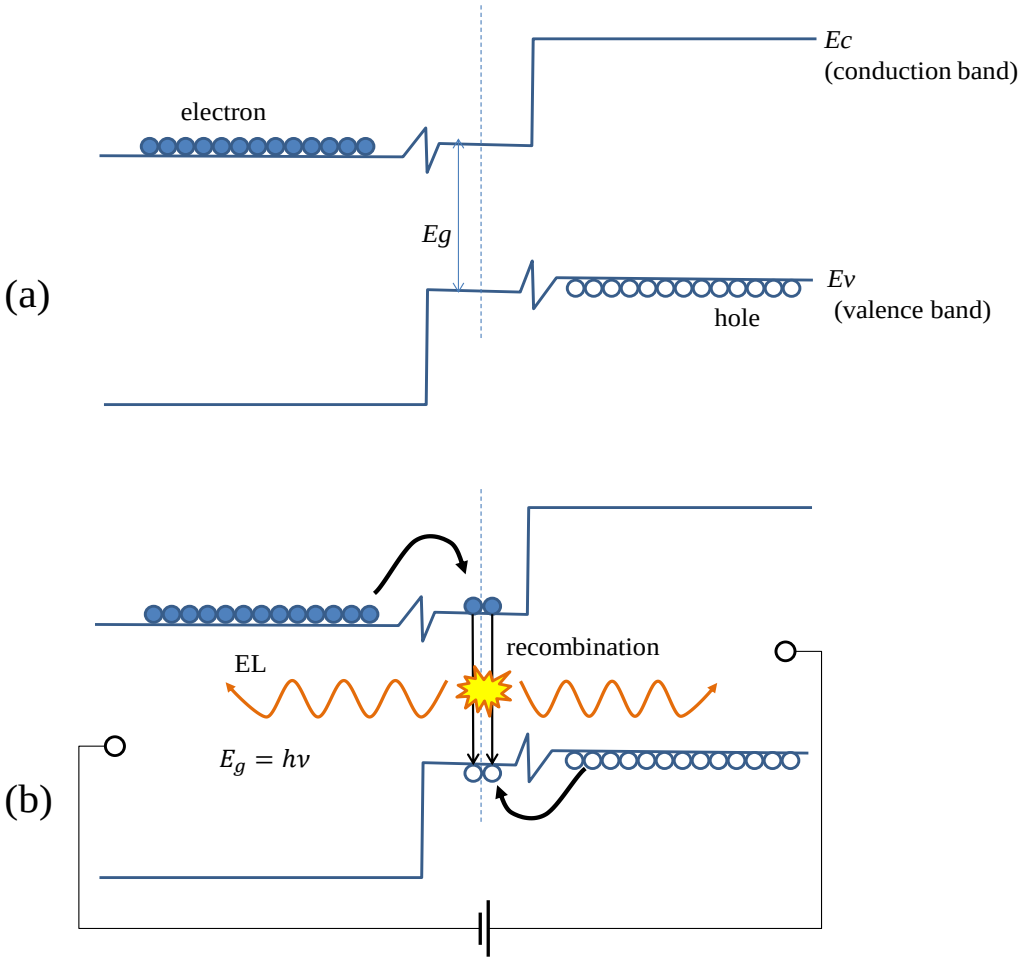


Fig.2-4 Energy level diagram of double-hetero structure

(a)static state　(b)charged state

Fig.2-4(a)は電圧が印加されていない場合である。左側はn-$Ga_{1-x}Al_xAs$であり、そのエネルギーバンドギャップ(E_g)は、混晶比xにもよるが、2eV(電子ボルト)程度である。また、中間はGaAsでありE_gは1.4eV程度である。右側はp-$Ga_{1-x}Al_xAs$であり、E_gは2eV程度である。すなわち中間のGaAsはがE_gが小さいので、エネルギーバンドで見ると井戸のようになっている。したがって、この部分を井戸層(well layer)ともよぶ。また、発光は主としてこのGaAs層で生じるので、活性層(active layer)とも呼ばれている。これに対し、両側の$Ga_{1-x}Al_xAs$層はエネルギーバンドギャップが大きいので、中間の井戸層から見ると障壁になっている。そこで、これらの層は障壁層(barrier layer)とも呼ばれている。Fig.2-4(b)は、ダブルヘテロ構造に外部から電圧(順バイアス電圧)を印加した状態を示す。左側のn-$Ga_{1-x}Al_xAs$から電子が移動して中間の井戸層にたまる。一方、右側のp-$Ga_{1-x}Al_xAs$からは正孔が移動して井戸層にたまる。すなわち、井戸層に電子と正孔がたまることで再結合が起こりやすくなる。結果的には電界励起によって発光再結合を促進し、エレクトロルミネッセンスを効率よく得られる構造となっている。

現在の高効率LEDの発光層に用いられている構造は、このダブルヘテロ構造をベースにさらに効率よく再結合を促進する多重量子井戸(multi quantum well: MQW)構造となっている。基本原理はここまで説明したダブルヘテロ構造と同様であるが、井戸層・障壁層とも数nm程度まで薄くし、数層～数十層繰り返す構造である。菅原ら[13)]は、5 nmの$(Al_{0.2}Ga_{0.8})_{0.5}In_{0.5}P$井戸層と4 nmの$(Al_{0.5}Ga_{0.5})_{0.5}In_{0.5}P$障壁層を3～40層繰り返したMQW構造を形成することで、ダブルヘテロ構造に比べて井戸層における電子・正孔の閉じ込め効果を高め、効率よく再結合を促進することで活性層におけるキャリア再結合効率を高める。すなわち、式(2.4)に示したI_{nr}やI_{of}を小さくすることが可能になり、内部量子効率η_iが向上する。

LEDに使われる材料は、すべて化合物半導体である。化合物半導体にはⅢ－Ⅴ族のGaAs、GaP、GaN、およびⅡ－Ⅵ族のZnS、ZnSe、ZnCdSe、Ⅳ族のSiCなど多くの種類があるが、LEDで現在実用化されているのはⅢ－Ⅴ族である。発光する光の色は結晶の種類と組成、およびLEDの構造で決定され、エネルギーバンドギャップE_g(eV)が発光波長に相当する。LEDの発光波長(λ)[μm]は、エネルギーと光の波長の関係式から、E_gを用いて、次式(2.1)のとおり導かれる。ここで、hはプランク定数(6.63×10^{-34} m^2・kg/s)、νは光の振動数[Hz]、cは光速(3.00×10^8m/s)、Eは電子エネルギー[J=kg・m^2/s^2]、eは電気素量(1.60×10^{-19} J/eV)である。

$$E = h\nu$$
$$eE_g = \frac{hc}{\lambda}$$
$$\lambda = \frac{hc}{eE_g} = \frac{1.24}{E_g} \ [\mu m] \qquad (2.5)$$

Table 2-1に、活性層に使用される代表的な化合物半導体の材料と発光色の一覧を示す。この中でも、赤崎勇氏、天野浩氏、中村修二氏の2014年度ノーベル物理学賞受賞の対象となったInGaN系青色～紫外発光ダイオードの近年の効率向上が目覚しく、赤・緑に加えて青色領域のLEDがそろったことで光の三原色をすべてLEDで補えるようになったことが照明・ディスプレイのパラダイムシフトの直接的要因となった。

Table 2-1 Compound semiconductors for LED device

Material	Typical color and wavelength
GaAs	Infrared (890)
GaP	Yellow-Green (565), Red (700)
GaAsP	Yellow (583), Orange (610), Red(630)
GaAlAs	Red (655)
AlInGaP	Orange (590), Red (635)
InGaN	Ultraviolet (365), Violet (405), Blue (465), Blue-Green (500), Green (520)

2.3.2 OLEDの発光原理と内部量子効率の決定要因

本節ではOLEDの発光原理[14) 15)]について説明する(基本的にはLEDと同じエレクトロルミネッセンスによる発光のため、重複する部分は記述を省略する)。一般的な有機材料、例えばプラスチックは電気を流さない材料である。OLEDに使われる材料はこれらと異なり、ベンゼン環から構成される芳香族化合物(Fig.2-5)から構成されている。芳香族化合物には、π電子と呼ばれる比較的自由に動き回れる電子が炭素-炭素二重結合上にあり、このπ電子が有機物の間を一電子の酸化還元反応を伴いホッピングすることにより電気が流れる。これらの材料を薄膜で複数層形成し、電極で挟んで外部から電場を印加すると陽極から正孔が正孔輸送層(hole trasportation layer: HTL)へ注入され、陰極から電子が電子輸送層(electron transportation layer: ETL)へ注入される。注入されたキャリア(電子と正孔)が発光層(emissive layer: EML)で再結合し、ルミネッセンスを得るのが通常のOLED素子の発光原理である。

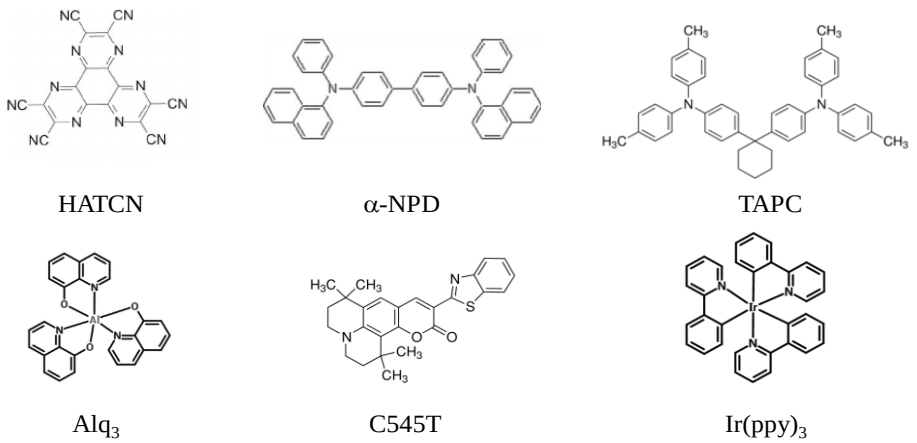


Fig.2-5 Example of materials for OLED device

具体的なOLED構造における電荷注入～発光再結合過程をFig.2-6に示す。C.W.Tangらによって提案された世界初の実用的なOLED構造[16]をベースに構成した2層OLED構造である。正孔輸送層(α-NPD)は-2.6eVに最低空軌道(Lowest Unoccupied Molecular Orbital: LUMO)、-5.5eVに最高占有軌道(Highest Occupied Molecular Orbital :HOMO)を有し、電子輸送層(Alq_3)は-3.3eVのLUMOと-6.0eVのHOMOを有する。これらの値は分子軌道エネルギーで決定され、LUMOとHOMOエネルギーの差がLEDでいうところのバンドギャップに相当し、LUMO、HOMOがそれぞれ無機半導体の伝導帯及び価電子帯と類似性を有する。但し厳密には定義が異なるので、以後も分けて表現する。α-NPDのHOMOに陽極のITO(Indium Tin Oxide)から正孔が注入され、Alq_3のLUMOに陰極のMgAgから電子が注入される。電極と注入層の仕事関数の差が小さい方が障壁が小さく注入がスムーズなため、間にバッファ層を入れるなど、さまざまな工夫が通常なされる。注入されたキャリアは有機層内を移動するが、OLED材料はキャリア移動度が10^{-3}～10^{-6}cm/(V・s)程度であり、分子間でのπ–π相互作用は強固でなく、無機半導体のような明確なバンドギャップを形成していない。そのため、キャリアは分子間をホッピングしながら移動すると考えられている。この機構は空間電荷制限電流(Shape Charge Limited Current: SCLC)でモデリング[17]され、電流密度J [A/cm^2]、キャリア移動度μ [cm/(V・s)]、膜厚L [m]、電圧V [V]と誘電率ε [F/m]の関係式として次式(2.6)で表せる。

$$J = \frac{9}{8}\frac{\varepsilon\mu V^2}{L^3} \qquad (2.6)$$

(2.6)式に膜厚を100nm、有機薄膜の移動度10^{-3}cm/(V・s)、十分にOLED素子から発光が観察される電圧10Vを代入すると、有機薄膜中を流れる電流密度はおよそ30A/cm^{2}に達し、移動度の小さな有機薄膜でも膜厚を十分に薄くすれば大電流を流せることが分かる。但し膜厚が薄いことはOLEDの素子設計を困難にしているため、高効率化の阻害要因ともなっている。

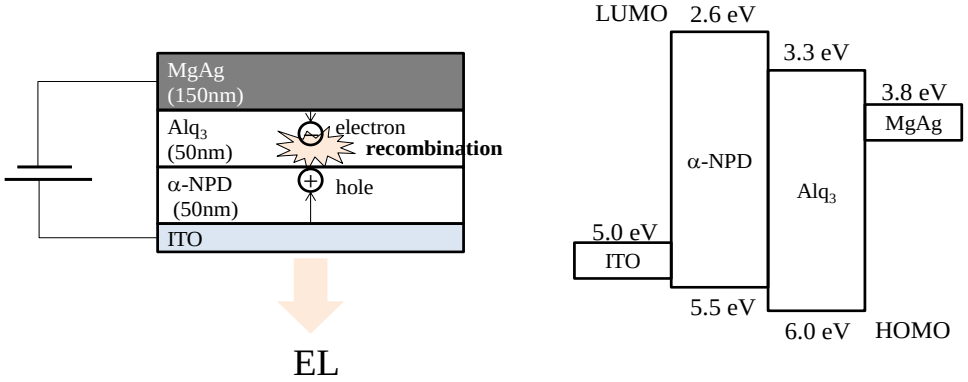


Fig.2-6 Schematic and energy level diagram of standard OLED device

次に、OLEDのキャリア再結合と輻射失活過程について説明する(Fig.2-7)。発光中心上で正孔と電子は、クーロン力によって再結合し、励起子(exiciton)を形成する。その際、スピン多重度の違いにより発光性の一重項励起子と非発光性の三重項励起子が1:3の割合に分配されることが知られている[18)]。一重項励起子は蛍光(fluorescence)として発光する。一方、電気的に励起された励起子のうち、75%生成される三重項励起子からのリン光(phosphorescence)は禁制であり、非輻射失活により発光として取り出せず、熱になってしまう。ただし、Fig.2-5に示した$Ir(ppy)_3$のようなIr錯体を発光層にドープしたOLED素子(リン光発光デバイス)では、一重項から三重項への項間交差(intersystem crossing :ISC)が室温でも十分効率よく起こることが知られており、生成した励起子を100%発光に利用することが可能である[18)19)]。このリン光発光デバイスの開発がOLEDが広く普及するに到る大きなブレークスルーとなった。さらに近年では、Irのような貴金属を含むリン光発光材料を使わずに100%の発光が可能な熱活性化遅延蛍光発光（thermally activated delayed fluorescence :TADF）を示す4CzIPNなどの材料が報告[20)]されている。一般的なOLED材料では、励起三重項エネルギーは一重項エネルギーよりも0.5～1.0eV低いが、分子設計を工夫することで三重項と一重項エネルギーの差を0.083eVまで縮め、三重項励起子エネルギーを熱エネルギーにより一重項励起子へ転換し、蛍光として発光させることですべての励起子を利用する仕組みである。OLEDの内部量子効率も式(2.4)で記述することが可能であるが、ここまで述べたエネルギー緩和や再結合過程の効率の積で書き直し、次式(2.7)のとおりに記述すると効率決定要因がより理解しやすい。

$$\eta_i = \gamma \times \eta_r \times \ (\eta_f + \eta_p) \qquad (2.7)$$

ここでγはキャリアの注入バランス効率(電子または正孔のオーバーフローがない状態が100%)、η_rは励起子生成効率、η_f及びη_pはそれぞれ蛍光およびリン光の量子効率である。

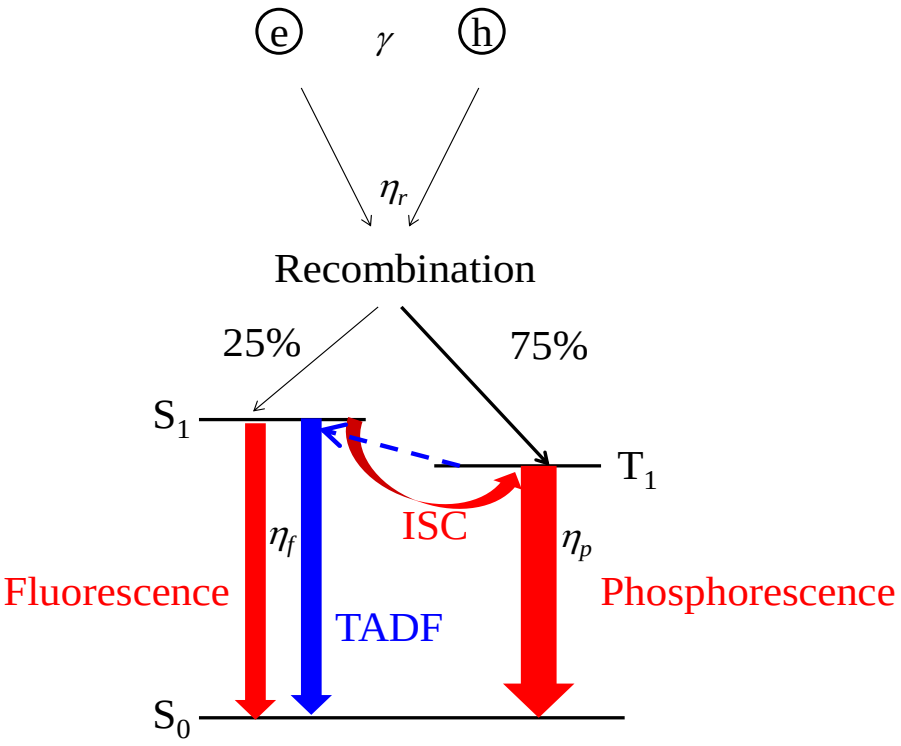


Fig.2-7 Recombination and emission model of OLED through the singlet and triplet energy level

2.4 固体発光素子の光取り出し効率向上に関する従来手法

LED、OLEDいずれの場合も、注入されたキャリアから変換された光を外へ取り出す必要があるが、その効率はスネルの法則によって大きく制限される。LEDは屈折率が高く、式(1.3)から得られる光取り出し効率は10%前後と非常に低くなる。一方OLEDの屈折率はLEDよりも低く、20%弱と高いが、均一に発光する面光源及び薄さが基本的な価値として認められていることから、後述する光取り出し効率向上の手段系が限られており、点光源のLEDよりも光取り出しの難易度が高い。また、薄膜により内部で発生する干渉効果など、光の振る舞いを複雑にする光学系が内蔵されている。ただ、学術的に見れば、OLEDは固体発光素子の光取り出し過程を研究するのに非常に優れた題材とも言える。

本節では、LEDとOLEDの光取り出し効率を向上させるためにこれまでに検討されてきた手法を示す。Fig.2-8のように、光が外に取り出されるまでには、光源から発し、光源近傍でなんらかの影響を受けた後に空気界面へ到達する。その一部は直接取り出されるが、全反射した成分は必ず光源側へ反射されて戻ってくる。したがって、光源から光取り出し面と反対側に出てきた光とあわせて、裏面側でいかに反射させて光取り出し面に戻すかも重要である。要は、光取り出し効率向上手段は屈折率界面の透過率向上と裏面反射率向上の二つに大別される。以上を踏まえ、固体発光素子の光取り出し構造を、光源近傍、裏面側反射層、屈折率界面の3つに分けて研究する。このうち、発光層の構造に直接影響する光源近傍の光学構造制御については、これまで述べてきた内部量子効率決定要因への影響が大きいため、それも踏まえたうえで、従来研究例を示す。

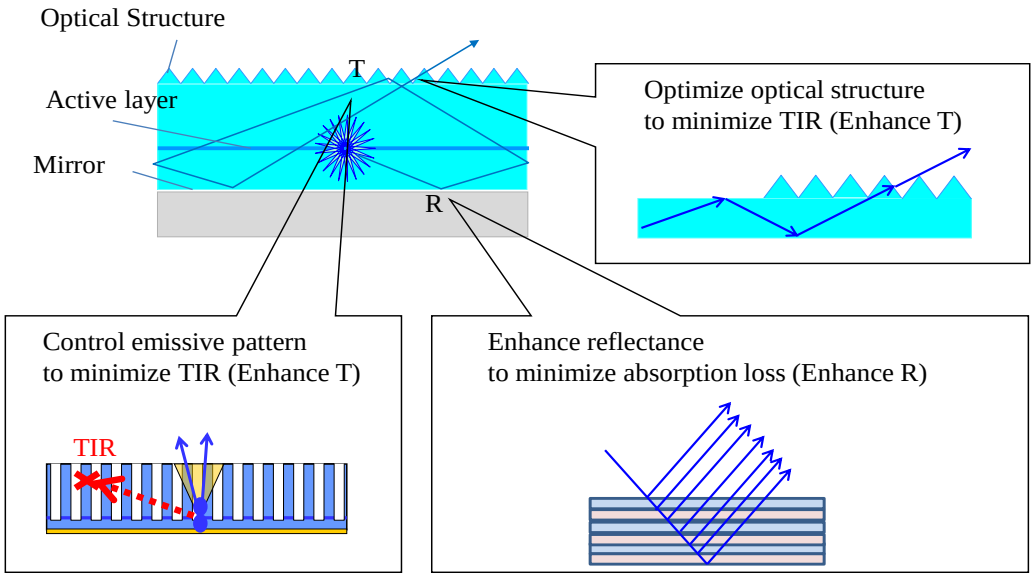
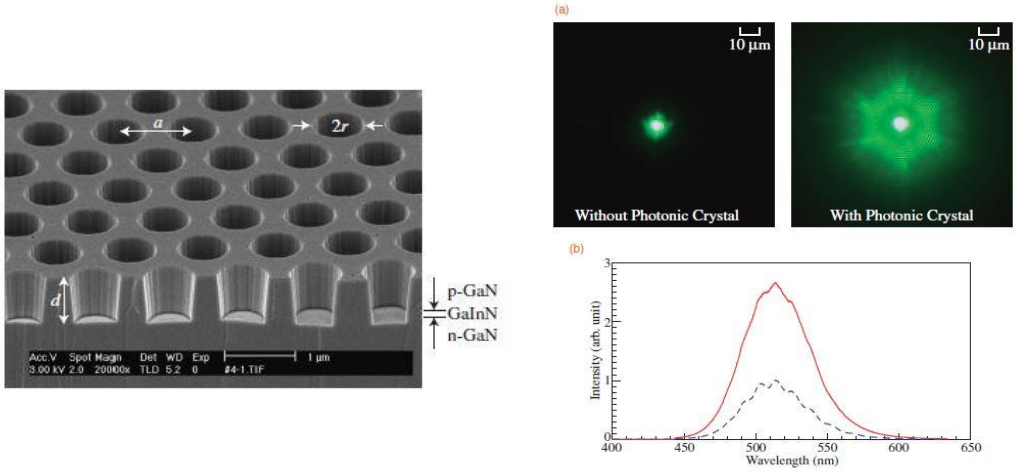


Fig.2-8 Principal approaches to enhance light extraction efficiency

2.4.1 光源配光制御の従来手法

固体発光素子の発光層は屈折率の高い媒質で構成されているため、空気との界面で全反射が起こり、光取り出し効率が結果的に低くなる。このモデルは、発光層から発した光があらゆる方向に等法的に発し、出射角θに対して$\sin\theta$の関係で光束が与えられる場合を想定している。LED、OLED、および先述の蛍光体デバイス等では発光層の構造上、ランダムに光が発するため、特にこのモデルが一般的にあてはまる（LDは共振器による発振で出射方向が制御されるため、あてはまらない）。そこで光取り出し効率を高めるため、光源からの出射配光分布を制御して光取り出し効率を高める手段がこれまでの研究で検討されている。

この観点でもっとも多く研究されているのは、フォトニック結晶である。フォトニック結晶とは、簡単に言うと屈折率（誘電率）が周期的に変化するナノ構造体である。なお特にナノとしたのは、一般に可視光域の波長帯に対してフォトニック結晶と表現することが多いためであり、当然対象の波長が変われば構造体の大きさも変化する。フォトニック結晶の内部では、半導体結晶中の電子の物質波の振る舞いと同じように、光（電磁波）にも伝播が許される波長帯域（パスバンド）および禁制帯域（バンドギャップ）が形成される。フォトニック結晶はナノ構造内部の光の回折・散乱・干渉を利用するため、可視光域で用いる構造の周期は波長程度（数百nm）の極めて微細な周期構造となる。この構造を薄膜の多層膜で1次元周期で実現したものが分布型ブラッグ反射(distributed Bragg reflector: DBR)構造であり、特定の波長のみの透過・反射を各層の膜厚で制御することができるため、きわめて性能の高い反射鏡が構成可能である(DBRについては、次節で詳しく原理を示す)。フォトニック結晶が近年大きく注目されている理由は、最近の微細加工技術の進展で、上記の1次元構造だけでなく、2次元・3次元フォトニック結晶が実際に作製できるようになり[21)22)]、理論で発現が予測されていたさまざまな光学現象が観察されるようになったためである。たとえば京都大学の研究グループは、極微小領域への光の閉じ込め[23)24)]や大面積でのコヒーレントレーザー[25)26)]を実現した。LEDの光取り出し効率向上への応用としては、発光層近傍にフォトニック結晶を形成し、光の出射方向を制御して出射角が臨界角よりも大きい成分（空気との界面で全反射する成分）を抑制し、光の取り出し効率を高める試みがなされている。例えば、InGaN緑色LED素子の発光層を貫通する空孔層を周期的に形成して2次元のフォトニック結晶構造を導入し、この構造の効果でPL強度が約3倍になったという報告[27)]がなされている(Fig.2-9)。このとき、観測したPLの再結合寿命がほとんど変化しておらず、再結合効率すなわち内部量子効率は再結合寿命に反比例することから、本構造が内部量子効率に影響がないことを示している。すなわち、フォトニック結晶構造の導入で発光パターンが制御され、光取り出し効率を高めたことを示唆している。他にもフォトニック結晶を発光層近傍に形成して光取り出し効率を高めた例が多く報告されている[28)-32)]。



(a) Green InGaN LED employing 2-D photonic crystal structure (a=1,000 nm, r=400 nm, d=750 nm)

(b) About 3 times of PL intensity was observed with photonic crystal structure

Fig.2-9 Study for the introduction of photonic crystal structure to LED[27)]

OLEDにおいては発光層自身がLEDほど堅牢でないためこのような光源近傍の微細加工に際しては慎重さが求められる。それゆえ、電子輸送層（陰極）側と正孔輸送層（陽極）側の接触による電気的ショートなどの懸念から、発光層を直接加工してフォトニック結晶を形成している例は見られない。OLEDを形成するための基板または基板に形成された透明電極上に、ナノインプリントやフォトリソグラフィを用いてフォトニック結晶構造をパターニングし、その上を追随させるようにOLEDの薄膜を形成して光取り出し効率を向上する例は報告されている[33)-35)]。なお、OLEDの光源近傍は、LEDよりもさまざまな光学現象に対応した設計が必要である。詳細の説明は第4章に譲るが、LEDよりも発光点と裏面反射層（基板から光を取り出すボトムエミッション型のOLEDでは陰極）の間隔が小さく、通常は波長サイズ以下（数十nm程度)であるため、直接出射光と裏面反射層からの反射光の光学干渉を考慮して光源近傍の光学設計を行う必要がある。発光層と裏面反射層との距離が変化すると、光学干渉により光が強められる方向が変化し、出射配光パターンや光取り出し効率に大きな影響を与える。

一方、OLEDならではの手段を用いて光源配光を制御する手段が提案されている。たとえば発光層の材料にTCTA: B3PYMAPM：$Ir(ppy)_2(acac)$のような水平方向に配向した材料構造を用いた場合、式(1.3)で得られる理論光取り出し効率を大きく上回る効率（約30%）が得られることが知られている[36)]。式(1.3)は、あくまで光があらゆる方向へ等方的に放射する点光源の集合体と仮定した場合の理論限界であり、分子配向性の強い材料から光が発した場合は特定方

向に強く振動するため、等方的放射という前提が崩れるためである。双極子方向が基板面に対して水平および垂直の場合の光取り出し効率は次式で示される。

$$E_{\parallel} = \int_0^{2\pi}\int_0^{\theta_c}\left(T_p(\theta)\sin^2\varphi\cos^2\theta + T_s(\theta)\cos^2\varphi\right)\sin\theta\, d\theta d\varphi \qquad (2.8)$$

$$E_{\perp} = \int_0^{2\pi}\int_0^{\theta_c} T_p(\theta)\sin^3\theta\, d\theta d\varphi \qquad (2.9)$$

ここで、$T_s(\theta)$,$T_p(\theta)$ はS偏光、P偏光の界面透過率、φ,θ はFig.2-10に示す方位角(aziumuth)および界面への入射角(angle of incident: AOI)、θ_c は屈折率界面で全反射する臨界角である。Table 2-2に、式(2.8)(2.9)を用いて求められる水平及び垂直配向、およびランダム配向(水平・垂直が50%ずつ)の各条件における光取り出し効率を示した(OLEDで主に用いられる材料の屈折率n=1.6～1.8を想定)。水平配向成分が多くなると全反射が発生しない角度で入射する光の成分が相対的に増加し、高い光取り出し効率を示すことが明らかである。この効果に着目し、近年では分子配向を水平にして光取り出し効率を高める取り組みが理論及び実験的に盛んに行われ[37)-43)]、Ir(MDQ)$_2$(acac)、Ir(ppy)$_2$(tmd)などの水平配向性を示す新規材料の導入が提案されている。

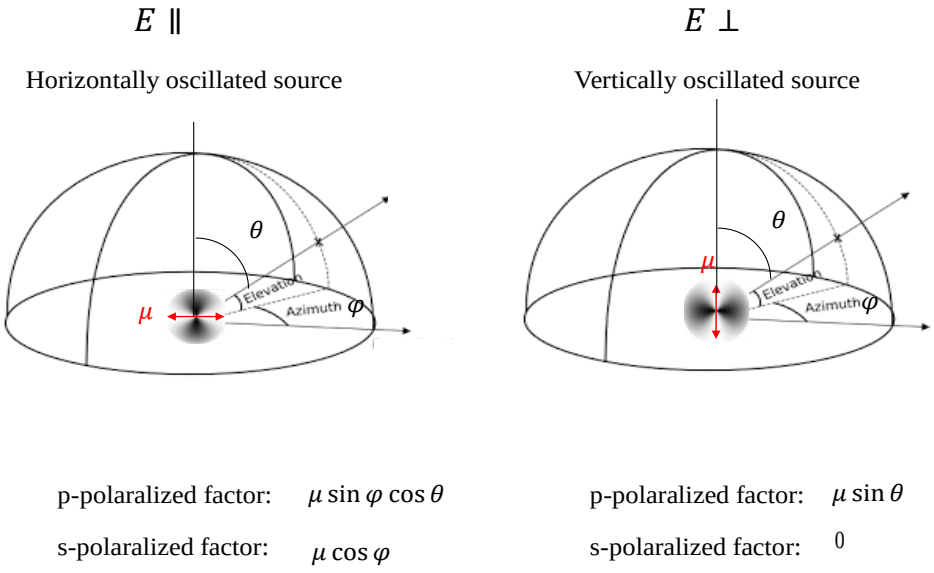


Fig.2-10 Polaraized angular factors of horizontally and vertically oscillated source

Table 2-2 Light extraction efficiency for horizontally and vertically oscillated source

Refractive index	Random orientation	Vertically orientation	Horizontally orientation
1.6	28.6 %	5.0 %	52.2 %
1.7	24.5 %	3.7 %	45.4 %
1.8	21.3 %	2.8 %	39.8 %

2.4.2 反射層における光反射制御の従来手法

固体発光素子の光源からは、フォトニック結晶などの特別な構造を使用しない限りは前方・後方に光が放射する。後方に放射した光を可能なかぎり効率的に活用するためには、前方側へ戻す反射層における光の反射率を高める必要がある。特に固体発光素子では何度も内部で反射しながら光を取り出す構造を用いるケースが多いため、反射率が光取り出し効率に与える影響は重大[44]である（第3章においても詳細を示す）。一般的に、反射率を高める構造としては、金属あるいは誘電体薄膜が使われる。これらの構造による増反射効果の基本原理となる薄膜光学理論を以下に示す[45]。

屈折率の異なる界面の光の振る舞い（透過／反射）は、マクスウェル方程式から導かれるフレネル係数と位相項の計算により記述が可能である。まず、Fig.1-3で示した屈折率の異なる界面において、入射する光の透過率・反射率を計算する。光は振動方向によってS偏光とP偏光に分離され、それぞれで反射率・透過率が異なる。S偏光とP偏光の振幅反射率をそれぞれr_s、r_p、振幅透過率をそれぞれt_s、t_pと置いた場合、マクスウェル方程式から次式 (2.10)～(2.13)が導かれる。これらの値(r_s、r_p、t_s、t_p)を総称してフレネル係数と呼ぶ。

$$r_p = \frac{n_1 \cos\theta_2 - n_2 \cos\theta_1}{n_1 \cos\theta_2 + n_2 \cos\theta_1} \tag{2.10}$$

$$r_s = \frac{n_2 \cos\theta_2 - n_1 \cos\theta_1}{n_2 \cos\theta_2 + n_1 \cos\theta_1} \tag{2.11}$$

$$t_p = \frac{2n_2 \cos\theta_2}{n_1 \cos\theta_2 + n_2 \cos\theta_1} \tag{2.12}$$

$$t_s = \frac{2n_2 \cos\theta_2}{n_2 \cos\theta_2 + n_1 \cos\theta_1} \tag{2.13}$$

なお、光のエネルギーは電場の振幅の2乗に比例するため、最も重要なエネルギー反射率R、透過率Tはこれらの値を2乗して求められる。特に垂直入射(バルク)の場合の透過率・反射率は、これらに$\theta_1 = \theta_2 = 0$を代入して、

$$R = |r_s|^2 = |r_p|^2 = \left(\frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2}\right)^2 \tag{2.14}$$

$$T = 1 - R = \frac{4n_1 n_2}{(n_1 + n_2)^2} \tag{2.15}$$

と求められる。たとえば空気($n_1 = 1$)とガラス($n_2 = 1.5$)の界面においては、R=4%, T=96%と簡易的に求まる。

次に、薄膜へ光が入射する場合(Fig.2-11)を検討する。この場合、第1の界面で透過・反射する光と第2の界面で透過・反射する光が、波長サイズの距離であるために互いに干渉し、光の強めあい・弱めあいが発生する。これはすなわち、第1面における直接反射成分と表面を通過し第2面で反射した成分の位相差を考慮に入れることと等価である。したがって、反射成分Eは、フレネル係数を用いて、界面の透過反射の際に発生する位相シフトΔ ($e^{i\Delta}$を乗じる)も考慮し、第x領域から第y領域への透過・反射界面フレネル係数をt_{xy},r_{xy}と置くと、次式(2.16)のように記述することが可能である。

$$\begin{aligned} E &= E_1 + E_2 + E_3 + E_4 + \cdots \\ &= E_0\big(r_{12} + t_{12}r_{23}t_{21}e^{i\Delta} + t_{12}{r_{23}}^2 r_{21}t_{21}e^{i2\Delta} + t_{12}{r_{23}}^3{r_{21}}^2 t_{21}e^{i3\Delta} \\ &\qquad + \cdots\big) \\ &= E_0\left(r_{12} + t_{12}r_{23}t_{21}e^{i\Delta}\frac{1}{1 - r_{23}r_{21}e^{i\Delta}}\right) \end{aligned} \tag{2.16}$$

但し、 位相差 $\Delta = \frac{4\pi n_2 d\cos\theta_2}{\lambda}$ (d:薄膜の物理的膜厚、λ:光の波長)である。

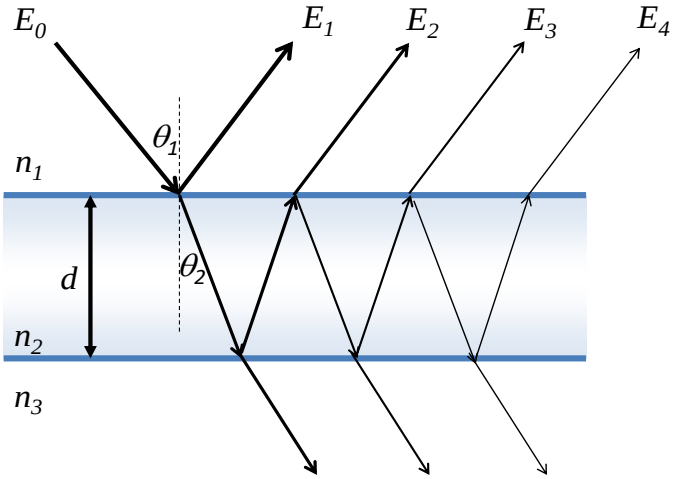


Fig.2-11 Optical path at the interference between the thin layers with different refractive indices

次に、この理論に基づいて得られる光学薄膜を用いた高反射率構造について説明する。大きくは、金属に誘電体膜を形成する方式と誘電体のみの多層膜を形成する方式に分けられる。前者は広い帯域（波長・角度）で比較的高い反射率を維持することが可能であるが、金属に吸収があるため、原理的には100％にすることは困難である。一方、誘電体のみで構成する多層膜方式は、ある特定の波長・角度においては反射率を100%にすることも可能であるが、その有効帯域は狭い。本論文で取り扱う固体発光素子の内部における反射構造においては広い波長・角度帯域の光の反射を取り扱うため、前者が用いられることが多い。金属は吸収があるため、消衰係数kを含めた複素屈折率$N=n-ik$を用いて計算する必要があり、金属への垂直入射時の反射率は、入射側の媒質の屈折率をN_0とすると、次式(2.17)であらわされる。

$$R = \frac{(N_0 - n)^2 + k^2}{(N_0 + n)^2 + k^2} \qquad (2.17)$$

反射率を増加させるためには、その上に誘電体膜を成膜する。この場合、誘電体膜は保護膜にもなる。ここでは垂直入射時を考え、金属膜上に屈折率n_1,n_2で、それぞれの厚さd_1,d_2が波長を各膜の屈折率で割った値の1/4、すなわち位相差$\Delta=\pi$となるように設定すると、式(2.17)を3層の場合に拡張して展開・整理することで、次式(2.18)を得る。

$$R = \frac{\left[1 - \left(\frac{n_1}{n_2}\right)^2 \cdot n\right]^2 + \left(\frac{n_1}{n_2}\right)^4 \cdot k^2}{\left[1 + \left(\frac{n_1}{n_2}\right)^2 \cdot n\right]^2 + \left(\frac{n_1}{n_2}\right)^4 \cdot k^2} \qquad (2.18)$$

この式から、もし $n_1 > n_2$ ならば、屈折率の低い誘電体膜と屈折率の高い誘電体膜を交互に成膜することによって金属膜の反射率を高めることが期待できる。たとえば、λ=546nmのとき、Alの屈折率は$n-ik$=0.82−i5.99なので、反射率は91.6%である。Al膜の上に厚さ$\lambda/4n_2$のMgF_2 (n_2 = 1.38)と厚さ$\lambda/4n_1$ (n_1 = 2.20)のCeO_2膜をそれぞれ成膜すると、その反射率は96.5%まで上昇する。さらに同様の膜を成膜すると、反射率は98.6%まで上昇する。ただしこの反射率は中心波長λ=546nm付近における反射率で、中心波長から遠ざかると逆に低下することに注意が必要である。角度についても同様に、垂直入射からずれて入射角度が大きくなると、反射率が低下する。なお、狙いの中心波長λに対してλ /4を各々の屈折率で序した低屈折率と高屈折率の膜の繰り返し構造により反射率を高める構造体が先述のDBRである。

以下に、固体発光素子の光取り出し効率向上のために金属膜、誘電体膜、あるいはDBRの組み合わせを用いた従来応用例を挙げる。LED素子については古くからDBRの導入が検討されており、加藤らはGaAs/GaAlAsダブルヘテロ構造を有するLEDに、発光層と同じGaAs/GaAlAsを25ペア繰り返して形成し、後方へ出る光の反射率向上により4倍程度の光出力を得ている[46](概略図をFig.2−12に示す)。DBRは層数が多く、成膜に非常に時間がかかる上、角度依存性を考慮していないために特定の波長成分・角度成分以外の光の反射率が低く、Fig.2−12の構造の場合は基板側に透過して損失する光が多く発生する。

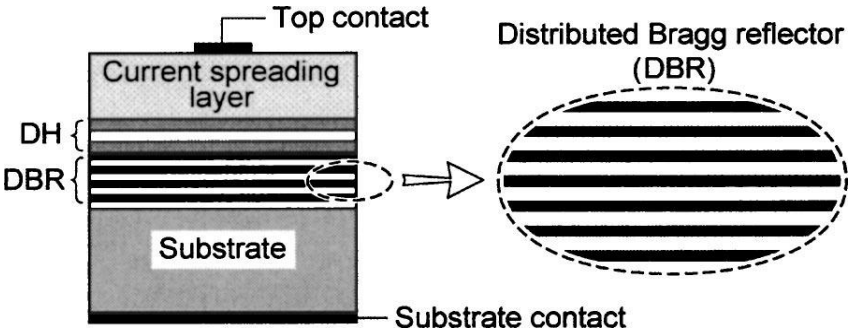


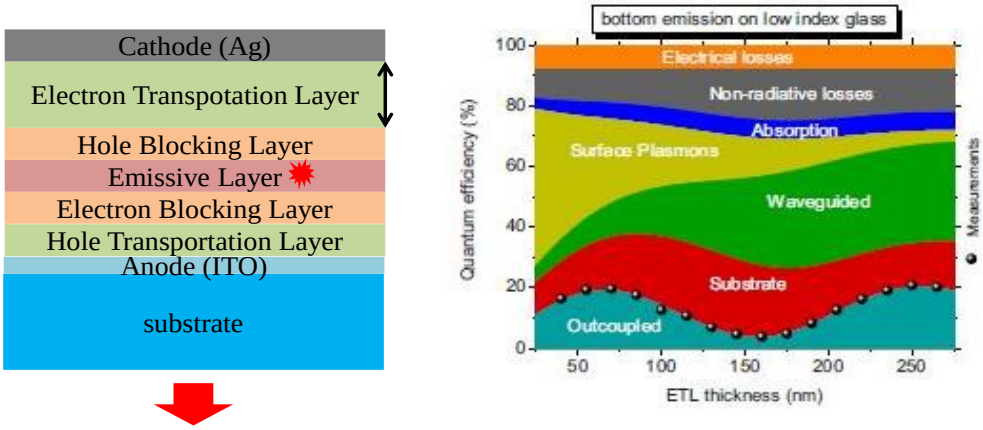
Fig.2−12 LED with DBR located between the substrate and the lower cladding layer[46]

これに対し、すべての角度方向に対する反射率を向上する構造を特に全方向反射鏡(omnidirectional reflector : ODR)と呼んでおり、LED素子の光取り出し効率向上に利用されている。例えば、Gessmannらは、固体発光素子の屈折率が高いことを利用し、金属と固体発光素子の間に低屈折率の$\lambda/4$層(SiO_2など)を導入することで式(2.23)で示した反射率向上効果が得られ、全方向に対してバランスよく高い光取り出し効率が得られることを示している[47)]。また、Kimらは、さらに低屈折率のMgF_2を採用し、Agよりも反射率の低いAlとの組み合わせでも高い反射率が得られることを示している。この構造であれば層数も少なく、DBRほどではないが高い反射率も同時に期待できる[48)]。この構造で低屈折率層についてはさまざまな工夫がなされている。反射膜は電極も兼ねる場合が多いため、特に導電性とのバランスを考えて、ODRの増反射を担う薄膜層に透明導電酸化物のRuO_2[49)]やITO[50,51)]、あるいは、TiW[52)]などを採用した構造も提案されている。もっとも屈折率の低い空気(air-gap)を利用したODR[53)]も一部提案されている。

一方、OLEDに対してDBRやODRを採用した例はほとんど見られない。ボトムエミッション型・トップエミッション型いずれの場合でも反射層を兼ねる電極と発光層の間の材料の導電特性が極めて重要な役割を有し、材料的な制約が強いためである。LEDの場合には点光源のため、絶縁物や半導体をメッシュ状に形成し、電流の拡散を利用して導電性を維持することが可能であったが、OLEDでは面発光を実現するために全面でのコンタクトが必要で、導電性の低い材料を用いることができない。有機層(電荷輸送層)の屈折率を下げて反射率向上などの効果を狙った研究[54,55)]もなされているが、材料開発には時間がかかる見込みである。

また、特にOLED素子の裏面反射層に金属を用いる場合、すなわち、誘電体(有機層)と金属の界面に光が伝播した場合には、表面プラズモンポラリトン(surface plasmon polariton :SPP)による相互作用が生じることが広く知られている[56)]。これは有機層と金属の界面で発生する電子のプラズマ振動に光のエネルギーがトラップされる現象で、OLED素子では非常に大きなエネルギーの損失となるため、注意が必要である。さらには、OLED素子を光出射方向に見ると共振器構造となっているため、共振効果が高まると発光寿命(再結合効率と反比例)が変化する現象、いわゆるPurcell効果[57)]も無視できない。さまざまな研究機関で上記光学現象をモデリングし、光学解析を駆使して体系的に分析されている[58)-60)]。このうち、OLEDの発光点と裏面陰極の距離を制御した際の光取り出し効率および損失について示した結果の一例をFig.2-13に示す。発光層と陰極の距離が小さいときはSPPによる損失が大きいことが明らかである。距離を離すことで相互作用が弱まり、SPP自体は減少するが、この成分は比較的出射角度の大きい成分であるため、基板と有機層の界面で全反射し、有機層内

部を導波する成分(Waveguided mode)に変換される(有機層の屈折率が基板より一般的に高いため発生)。このように大きなロスとなっているSPPモードを抑制するために、例えば、ナノサイズレベルの周期構造を有機層と金属の界面に構成することでSPPを抑制する手段[61)62)]や、極薄膜(10nm)以下の金属層と反射用の金属層を分離した二重反射構造をとることで、発光点と金属層の実効的な距離を離す手法[63)64)]などが提案されている。



(a) Schematic of bottom emission OLED

(b) Simulation and experiment result of OLED (a) in various ETL layers ;measurement result is EQE

Fig.2-13 Quantification of energy loss in OLED device[58)]

2.4.3 屈折率界面における光透過制御の従来手法

Fig.2-14に、固体発光素子の光源から発した光の振る舞いの模式図を示す。光源から発した光は、最終的に発光素子と空気の界面を通過して外に取り出される。したがって、全反射の影響を最小化し、界面を効率よく透過させることが肝要である。全反射は界面に当る光の入射角度が臨界角より大きくなるときに発生する。仮に裏面反射層側が鏡面とすると、全反射された光が裏面で反射した後に戻ってきたときも同じ角度となり、再び全反射する。このように全反射を繰り返す光を一般的に導波モードと呼び、光ファイバーではこの現象が積極的に使われている。一方、界面になんらかの角度変化を与える構造、具体的には平面以外の構造を設けると、仮に一回目の入射で光が取り出せなくても、反射の法則から角度が変化するため、二回目以降に光の角度が変化して界面を透過する可能性が高まる。この節で述べる屈折率界面における光制御とは、如何に界面への入射角度を効率よく変換し、界面を光が透過する可能性を高めるかという議論に他ならない。

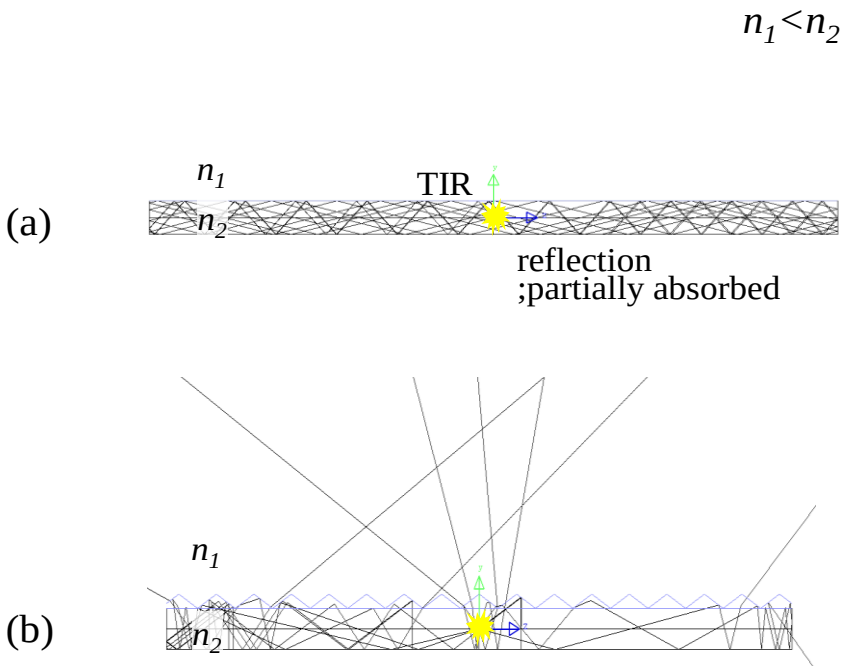


Fig.2-14 Light propagation path with (a) plain interface and (b) microstructure

界面に設ける平面以外の構造、すなわち凹凸構造の平均ピッチPは、発光層で発光する光の波長が300～800nmの範囲内にある場合、媒質内の波長をλ_m（真空中の波長を媒質の屈折率で除した値）とすれば、Pをλ_mの1/4～1000倍の範囲で適宜設定することが望ましい。周期Pを例えば10λ_m～1000λ_mの範囲で設定した場合には、幾何光学的な効果、つまり、入射角が全反射角未満となる表面の広面積化により、光取り出し効率が向上する。また、周期Pを例えばλ_m～10λ_mの範囲で設定した場合には、波動光学的な効果、すなわち光の波としての性質に起因する回折の効果で全反射角以上の光を取り出す作用により、光の取り出し効率が向上する。また、周期Pをλ_m／4～λ_mの範囲で設定した場合には、凹凸構造部付近の有効屈折率が発光素子の表面からの距離が大きくなるにつれて徐々に低下することとなり、発光素子と空気の中間の屈折率を有する薄膜層を介在させた場合と同等となり、フレネル反射を低減させることが可能となる。要するに、周期Pをλ_m／4～1000λ_mの範囲で設定すれば、反射（全反射あるいはフレネル反射）を抑制することができ、光取り出し効率が向上する。ただし、幾何光学的な効果による光取り出し効率の向上を図る際の周期Pの上限としては、おおよそ1000λ_m程度まで効果が見られることが認められているが、厳密な境界値は定かになっていない。また、幾何光学的効果と波動光学的効果のどちらかの作用が支配的になるPの境界も厳密には明確になっていない。なお、凹凸構造は、必ずしも2次元周期構造などの周期構造を有している必要はなく、凹凸のサイズがランダムな凹凸構造や周期性のない凹凸構造でも光取り出し効率の向上を図れる。なお、異なるサイズの凹凸構造が混在する場合（例えば、周期P =λ_mの凹凸構造とP >5λ_mの凹凸構造とが混在する場合）には、その中で最も凹凸構造部における占有率の大きい凹凸構造の光取り出し効果が支配的になる。

以上の基本的な考え方を踏まえ、これまでに固体発光素子で検討されてきた界面透過率制御の手法に関する従来例を以下に示す。まず照明で一般的に用いられている青色LEDについては、第1章で式(1.3)を用いて説明したとおり、材料のInGaNの屈折率が高いため、理論的には光取り出し効率が僅かに10%弱である。これでは投入したエネルギーのほとんどが内部で熱として失われ、実使用に耐えない。但し、この計算値は取り出し面が完全な平面かつ裏面反射層が完全な鏡面で、光の角度変換作用が発生しないことを前提としている。LEDは点光源であるため、上記ミクロな凹凸構造を用いる前に、まずはマクロな光学構造、例えば封止材と空気の界面が球面状になるように樹脂で封止することで、LEDチップの保護と光取り出し効率向上を同時に達成する手法が提案されている[65)]。この方法は多くのLEDパッケージで採用されている。但し封止材料の屈折率はLEDよりもかなり低く(n=1.5程度)、封止樹脂とLEDの界面では依然として全反射が多く発生するため、さらにLEDと封止樹脂の界面には前述のミクロな凹凸構造が必要とされる。凹凸構造を形成する箇所としてもっともよく用いられて

いるのがLEDと基板の界面である。LEDの基板材料はサファイア(Sapphire、n=1.78)が主流であり、光取り出し効率向上のために凹凸構造を設けたサファイア基板を特にPSS(Patterned SapphireSubstrate)と呼ぶ。このPSSを用いることで、LEDの光取り出し効率は飛躍的に高まった[66)-70)]。特に日亜化学の研究[66)]では、フォトリソグラフィと反応性イオンエッチング(reactive ion etching: RIE)によってサファイア基板に1μm程度(5～10λ_m程度)のパターン加工を行い、その上にGaN系材料の結晶成長を行うことで、LEDの品質を損なうことなく光取り出し効率を向上することに成功している(Fig.2-15)。この他、PSSのパターンをサブミクロンサイズまで小さくして回折効果を発現[67)]したり、透明電極として用いるITOのパターニングと組み合わせ[68)]たりして効率を向上する手段が報告されている。このように光の角度変換作用を促し、全反射低減により光取り出し効率を高める手段として微細凹凸構造が非常に有用である。サファイア基板とLED層の界面以外にもLEDチップの取り出し表面にマイクロレンズアレイ(micro lens array: MLA) [71)-73)]やフレネルレンズアレイ(Fresnel lens array: FLA) [74)]、ナノサイズ微粒子塗布[75)-77)]などにより光取り出し効率を向上する方策が報告されている。また、屈折率を段階的に変化させて反射防止構造を擬似的にLEDと空気(封止樹脂)の界面に形成し、屈折率界面のフレネル反射(式(2.16)に示す通り、屈折率差が大きいと界面における反射が大きくなる)を抑制して透過率を向上する手法[78)-79)]も報告されている。ただ、この方策単独では全反射を抑制できないため、他の方式との組み合わせが肝要である。たとえば、SiO_2のナノ／マイクロ球状ハイブリッド構造をLEDに形成し、フレネル反射抑制(antireflection:AR)と光散乱による角度変換作用の複合効果によって光取り出し効率向上効果を発揮した例[80)]も報告されている。

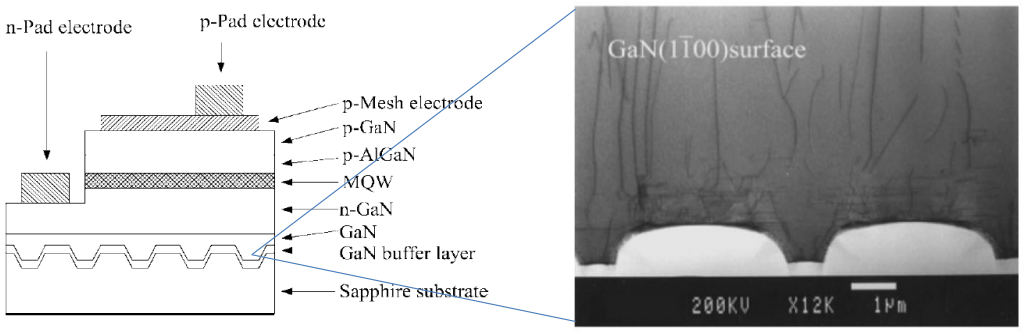


Fig.2-15 Light extraction efficiency enhancement with patterned sapphire substrate[66)]

一方、OLEDでは凹凸を伴う微細光学構造を用いた光取り出し効率向上策の重要性がLEDよりも高い。OLEDは面光源であり、LEDのように発光点全体を球状のレンズで囲うようなマクロな構造を用いると非常に厚く大きくなり、OLEDが本来有する薄型軽量という特徴を失うことになる。そのため、現実的にはマクロな光学構造の適用が困難である。(但し研究ベースで光取り出し効率の限界を調べる手段としては有効であり、非常に小さなピクセルのOLEDに対して適用した研究例[81]はある。) したがって、OLEDの光取り出し効率を向上するための微細凹凸構造に関する研究結果が数多く報告されている。構造の形成箇所は、OLEDを形成する基板と空気の界面にマイクロレンズアレイ(micro lens array: MLA)[82)-97)]やマイクロピラミッドアレイ (micro pyramid array: MPA)[98)-99)]、あるいはランダム[100)]な凹凸構造を設ける手法(外部取り出し構造、external light extraction: ELE)とOLEDの有機薄膜層と基板の界面に回折格子やグリッドなどの凹凸構造[101)-103)]を設ける手法(内部取り出し構造、 internal light extraction: ILE)に大別される。有機薄膜層の屈折率(n≒1.8)は通常用いられるガラス基板(n≒1.5)より大きいため、基板と有機薄膜層の界面でも全反射が発生する。そのため、ELE構造だけでは上記界面を通過し、基板まで到達した光しか取り出せない。したがって、発光層に近く難易度は上がるが、有機層内部に閉じ込められる光までを対象としたILE構造の方が光取り出し効率が高くなる。

以下、ELE、ILE構造の代表的なものをそれぞれFig.2-16及びFig.2-17に示す。Fig2-16は、Princeton大の研究チームが形成した代表的なELE構造[82)]であるOLEDのガラス基板上のMLA構造である。Siモールドを用いた転写プロセス(インプリント)で10μmピッチのMLAをガラス基板に形成している。MLAの構成に用いられた材料はPDMS(poly-dimethyl-siloxane)であり、ガラスとの屈折率がほぼ等しいため、基板と界面の全反射抑制あるいは角度変換作用の効果を発揮し、光取り出し効率がフラット比1.5倍に向上している。一方、Fig2-17は、同じくPrinceton大の研究チームが作成したILE構造[103)]であるグリッド構造である。ガラス基板上に形成した透明電極(ITO)の上にフォトリソグラフィーでSiO_2のグリッド層(幅1μm、ピッチ6μm、厚さ0.1μm)を形成し、その上に有機薄膜層を形成する。ITO(n≒2.0)、有機薄膜層(n≒1.8)、SiO_2(n=1.45)の屈折率差により構成されるナノ凹凸界面構造が光の全反射抑制と角度変換作用を及ぼし、光取り出し効率がフラット比約2.5倍を実験的に確認した(前記のELE構造も併用した複合効果)。また、グリッドの屈折率を下げれば3倍以上に向上することをシミュレーションで示した。

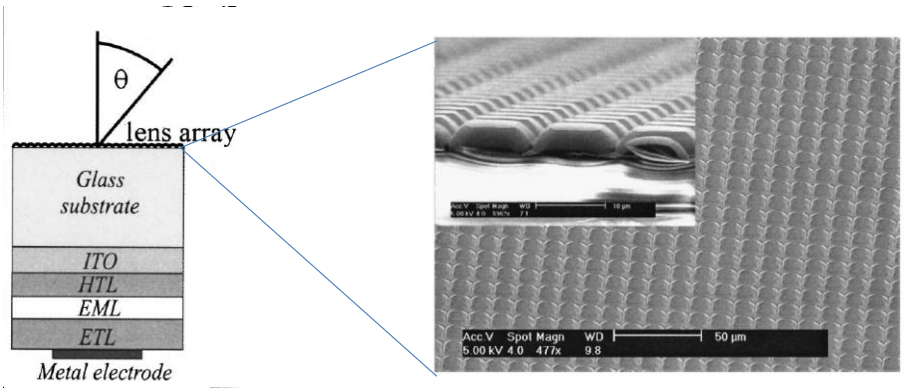


Fig.2-16 Light extraction efficiency enhancement with ELE structure on OLED[82)]

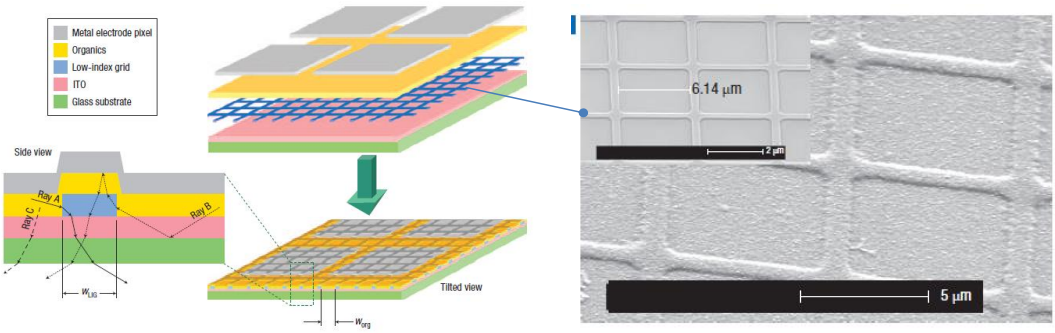


Fig.2-17 Light extraction efficiency enhancement with ILE structure on OLED[103)]

2.5 結言

本章では固体発光素子の効率決定要因を大きく内部量子効率と光取り出し効率に分類した。内部量子効率は数多くの研究の積み重ねで理論限界(100%)に近い値まで向上してきた。一方、光取り出し効率はスネルの法則による制約が厳しく、依然として向上の余地が大きい。そこで、光取り出しの過程を詳細に見た上で有効な方策を論じるため、(1)光源配光、(2)反射層、(3)屈折率界面の光学構造に分類し、光取り出し効率を向上する従来の研究例を示した。(1)についてはフォトニック結晶による光源配光制御や有機材料による配光制御、(2)については薄膜多層膜を用いた高反射率構造、(3)についてはマイクロレンズアレイに代表される界面凹凸構造などの例を挙げてきた。これらは個々には光取り出し効率の改善に有効であるが、(1)(2)(3)の方策をトータルで組み合わせて最適な光取り出し構造を提案している例は見られない。そこで本研究では、第3章～第5章の本論において、個別の向上策に加えて、それらが固体発光素子内部で示す正負の相互作用も含めて体系的に整理し、固体発光素子の光取り出し効率を最大化するためにあるべき光波制御手法を明確にする。具体的には、第3章で、まず反射層の反射率が光取り出し効率を支配する重要な因子であることを明示し、全角度積分反射率の重要性の観点から、従来のDBRやODRよりも広範囲の波長・角度に対応可能で性能が高い構造を提案する。第4章では、本章で示したフォトニック結晶や材料配向とは異なるアプローチにより、特に光取り出しの難易度が高い面光源において、光源配光を制御する手法を論じる。第5章では、本章で示した微細凹凸構造単独のアプローチではなく、第3章・第4章で得られた知見をベースに、屈折率界面で光を有効に取り出すためのあるべき光学構造について論じる。特に、固体発光素子でもっとも難易度の高いデバイスである白色OLEDに対し、照明にも適用可能な色特性も担保しつつ、効率を向上する方策や構造について明示する。

第3章　反射光学構造による固体発光素子の光取り出し効率向上

3.1 緒言

固体発光素子は、光源の屈折率が高く、空気との屈折率界面で必ず全反射する光が存在する。この反射した光を再利用し、再び空気中に光を取り出す確率を上げるためには、反射した光をなんらかの形で再び取り出し面に反射して返す構造が必要である。LEDでもOLEDでも、この役割を担う反射光学構造が取り出し面の反対側に備えられている。本章では、この反射光学構造が光取り出し効率に与える影響の重大性について述べ、さらにそこに達する光の入射角度が重要な因子であることを示す。この入射角度特性を利用して屈折率界面の全反射を応用した超高反射率構造を提案する。

3.2 反射率と光取り出し効率の相関関係

まず、固体発光素子における反射光学構造の影響を定量的に把握するため、モデルを構築してシミュレーションを実施した。Fig.3-1に解析に用いたモデルを示す。

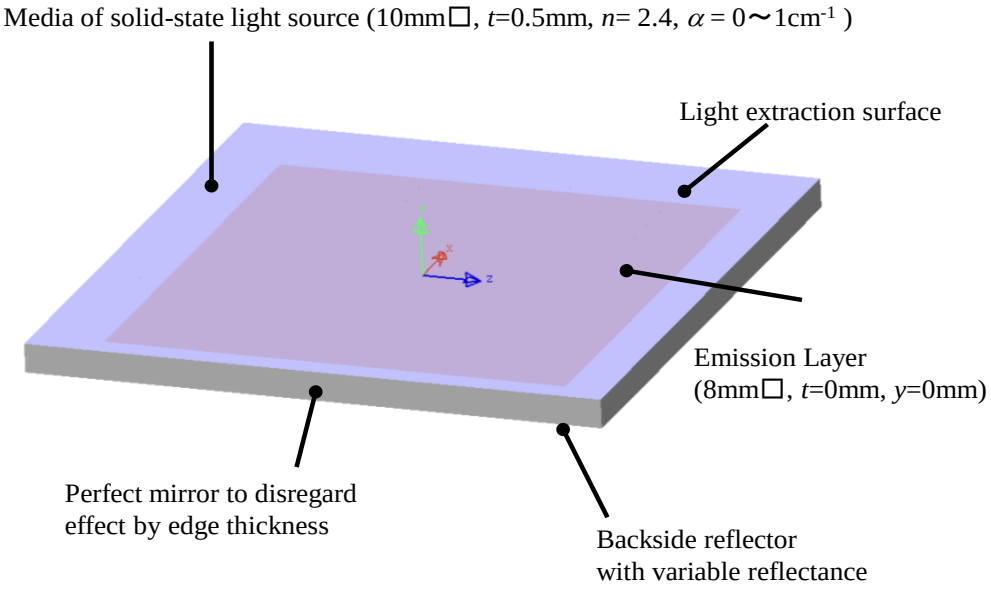
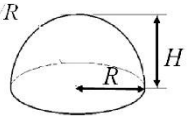
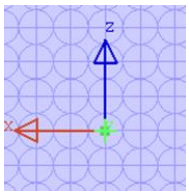
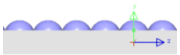
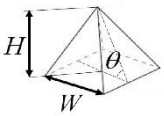
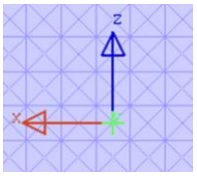
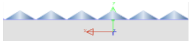
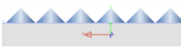
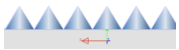
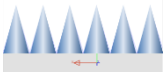
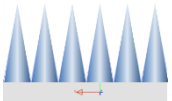


Fig.3-1 Ray-tracing simulation model for calculating the light extraction efficiency dependence on backside mirror reflectance

固体発光素子は光源と裏面反射構造と光を導波する媒質によって構成され、表面は平坦または微細構造を有している。なお、端面厚の影響を無視するため、端面反射率を100%反射とした。微細構造は全反射を抑制するために形成するもので、典型的な構造であるマイクロレンズアレイ(micro lens array：MLA)とマイクロピラミッドアレイ(micro pyramid array：MPA)から選定した(Table 3-1)。MLA構造とMPA構造はピッチサイズ(0.6mm)を固定し、平面方向と高さ方向のアスペクト比で形状パラメータを制御した。MLA,MPAとも各5水準で検討した。

Table 3-1 Simulated micro-structures for the model in Fig. 3-1
(a) micro lens array (MLA) (b) micro pyramid array (MPA)

(a) MLA	MLA-1	MLA-2	MLA-3	MLA-4	MLA-5
Component/ Appearance of Array	Aspect ratio = H/R Radius = R Height = H  				
Schematic					
Aspect Ratio	0.27	0.60	1.00	1.67	2.33
Height	0.08 mm	0.18 mm	0.30 mm	0.50 mm	0.70 mm

(b) MPA	MPA-1	MPA-2	MPA-3	MPA-4	MPA-5
Component/ Appearance of Array	Aspect ratio = H/W $= \frac{1}{2}\tan\theta$ Base angle = θ  				
Schematic					
Aspect Ratio	0.29	0.50	0.87	1.87	2.83
Base Angle	30 deg	45 deg	60 deg	75 deg	80 deg

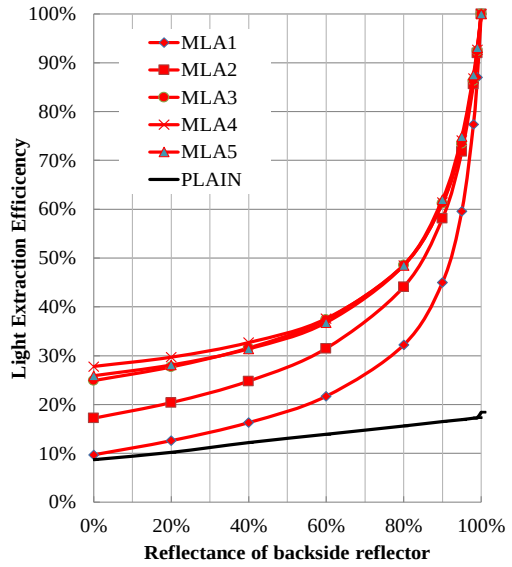
固体発光素子の媒質屈折率は青色LEDを想定してInGaNのn=2.4に設定した。また、式(3.1)のランベールの法則で定義される光の吸収係数αを、0～1cm^{-1}の範囲でパラメータとして設定した。

$$I = I_0 \exp(-\alpha t) \qquad (3.1)$$

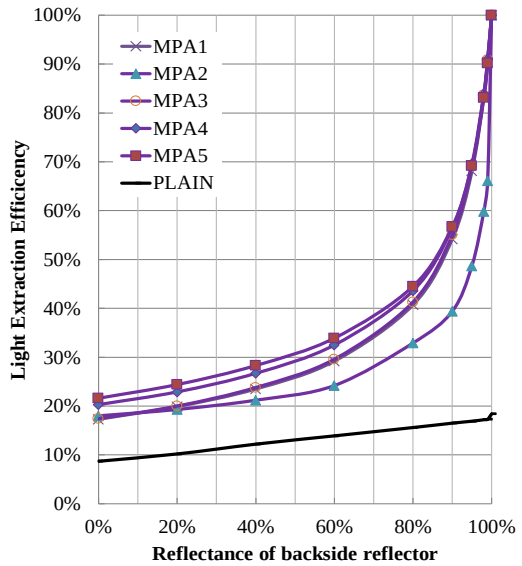
ここでI_0, Iはそれぞれ透過前後の光出力、tは透過した媒質の厚みである。屈折率界面においては式(2.10)～(2.13)に示したフレネル反射は考慮するが、偏光成分はS偏光とP偏光が半分ずつと仮定した。反射光学構造の反射率は0～100%で設定したが、このシミュレーションでは簡単のため角度依存性は一旦無視した。今回用いた微細構造は光の波長より十分に大きいため、光は光線として扱い、光学シミュレーションの手法としてモンテカルロ光線追跡法を採用した。具体的には、Synopsis社の解析ツールLightTools 8.5を用いた。光線本数は100,000本で、光源から一様に放射させた。光取り出し効率は光源から発した光のうち、ファーフィールド（光源から十分遠方に離れた場所という定義。無限遠という仮定で計算される）に設定した受光器に到達した光の割合とした。

Fig.3-2にシミュレーション結果を示す。Fig.3-2(a)は平坦およびMLA構造で反射率を0～100%まで推移したときの光取り出し効率、Fig.3-2(b)は平坦およびMPA構造で反射率を0～100%まで推移したときの光取り出し効率、Fig.3-2(c)はMLA-1構造において、吸収係数αを0～1cm^{-1}まで推移したときの光取り出し効率を示した。なお、Fig.3-2(a)および(b)は、α=0の条件で解析されている。界面が平坦な構造は、反射率が仮に100%になったとしても最大20%弱しか取り出せない（導波モードは最終的に損失と仮定した）。一方、なんらかの表面凹凸構造（角度変換構造）が付与されれば、最終的には外部に光が取り出されるため、光取り出し効率が100%に達する。(a)MLAと(b)MPAのいずれの形状においても、反射率の低い領域では光取り出し効率が低い。特に反射率80%以下の領域では、どの形状を用いても極端に光取り出し効率の高い条件はない。一方、形状による光取り出し効率の差は大きく、たとえば、アスペクト比が最も小さいMLA-1と、アスペクトが比較的大きいMLA-3～5では2倍近い差になっている条件もある。そのMLA-3～5は光取り出し効率が大きいことを示唆している。これは、凹凸構造と空気の界面を形成する境界面の曲率が大きく、屈折が大きい構造になっていることが起因と推察する。界面での角度変換作用が大きく、たとえ初回に界面を透過できなかった場合も、反射層で戻った際の次の機会で界面を透過する成分が増える。全体的には発光素子内部の平均光学経路が短くなる（反射層に当たる回数が小さくなる）ことで、光取り出し効率が向上すると考えられる。反射率が80～95%の領域においては、微細形状による光取り出し効率の差が徐々に縮小し、さらに、95%以上の領域ではほとんど差がない。95%以上では特に反射率上昇に伴う光取り出し効率向上が顕著である。

(a)



(b)



(c)

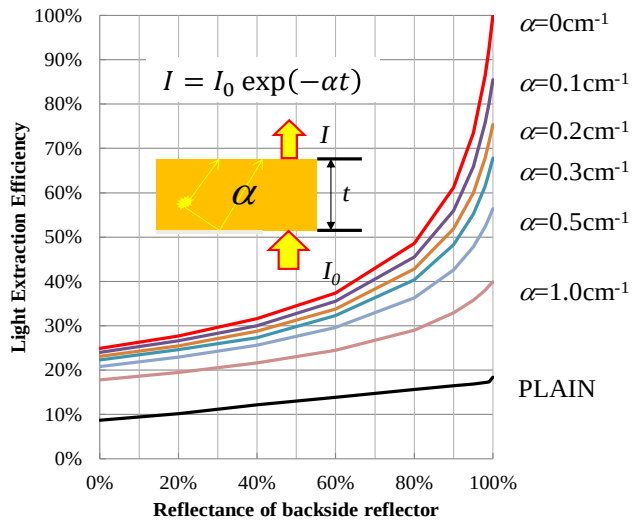


Fig.3-2 Dependence between the light extraction efficiency and reflectance of backside (a)MLA (b)MPA (c)MLA-1 with absorbant media

以上の傾向は、内部の多重反射による光の損失確率が反射率に対して指数関数的に増減することにより説明可能である。言い換えれば、下式(3.2)で説明可能である。

$$P = P_0 R^M \qquad (3.2)$$

ここでP_0は入力、P は出力、Rは反射光学構造の反射率、Mは反射回数である。Rが小さい場合は、Mをいかに少なくするかが重要であり、界面の光学構造の制御によって界面の透過率を向上することが不可欠である。一方、Rが大きくなると、今度はRの数値自体が重要性を帯びてくる。たとえば、平均的な反射回数M=15の場合に、R=100,99,98%の条件において、P/P_0の値は100,86,74%であるのに対し、光取り出し構造を劇的に変化させてM=10としても、P/P_0の値は100,90,82%に改善するに留まる。すなわち、微細構造の形状パラメータを仔細に検討するより、Rの向上に集中した方が光取り出し効率向上への効果が大きい。

一方、(c)媒質が吸収を持つ場合の結果を見ると、反射率の重要性が薄れることを示唆している。吸収係数αが大きくなると、反射層で損失を抑制しても光学経路での損失による影響が重くなっているため、十分な光取り出し効率向上に繋がらない場合がある。本研究で対象とするようなLED,OLED,あるいはその他の蛍光体デバイスに使われる材料は、吸収係数αが低く透明な材料を用いることが基本にあるため、大きな問題とはならない。但し誤差要因になりうることへの配慮や、材料の透明性を重視した設計指針を持つ必要がある。

以上の結果から、反射光学構造の反射率が光取り出し効率に対して極めて重要な特性であることを示した。仮に100%に近い反射率を達成することができれば、素子の表面はなんらかの角度変換が可能な構造であればよく、信頼性、コスト、再現性などを考慮して最適な構造・製法を選定することが可能になり、設計の自由度が大幅に増すという利点がある。

3.3 高反射光学構造(TI-ODR)の設計指針

3.3.1 角度積分反射率

Fig.3-1のシミュレーションモデルでは反射率の角度依存性を無視し、どの方向から光が入っても同じ反射率で光が反射すると仮定した。ただ、現実には入射角および偏光によって反射率が変化する。そこで、本節では光の入射角依存性に着目し、さらに詳細な高反射率構造の設計手法について論じる。

まず、角度積分反射率を下記のとおり定義する。固体発光素子内部の全反射を考慮して光取り出し効率を算出した式(1.3)と同様のアプローチで考えると、一様な点光源からの放射を仮定すれば、その光束は出射角θに対し、$\sin\theta$に比例して大きくなる。すなわち、裏面反射電極に到達する光束は入射角θが大きい成分が相対的に多い。これを加味して、反射率の角度依存性$R(\theta)$を用いて角度積分反射率R_{int}は式(3.3)のように表される。

$$R_{int} = \frac{\int_0^{\pi/2} R(\theta)\sin\theta d\theta}{\int_0^{\pi/2} \sin\theta d\theta} \tag{3.3}$$

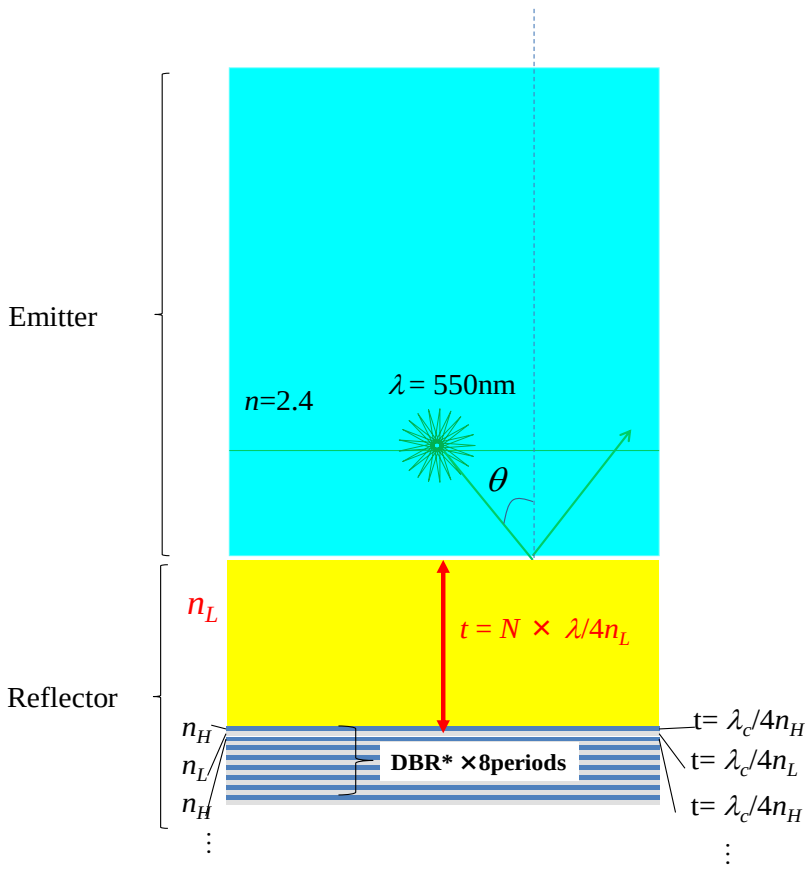
なお、$R(\theta)$はここではs偏光とp偏光の平均値とする。当然第3章で述べたような配光パターンの制御を行えば$\sin\theta$に比例する仮定が崩れるが、発光素子内部の全反射の影響もあり、広角入射する光の成分が多いことを考慮し、固体発光素子の反射構造を評価する目安の値として本指標を活用する。この指標も踏まえて、反射率の高い光学構造を設計する場合、当然広角入射成分に着目すべきということが明らかである。ここでは、固体発光素子の高い屈折率を逆に利用し、全反射を使って広角入射成分に対する反射率を重点的に上げることによって、角度積分反射率R_{int}を向上する可能性を検討する。

3.3.2 全反射を利用した全方向反射鏡

Fig.3-3にシミュレーションに用いた光学系の模式図を示す。解析ツールは、薄膜層およびバルク層（干渉が生じない数十μm以上の厚い構造体）のフレネル係数の計算による透過率・反射率解析に長じたNary SoftwareのThinFilmView 2.2.0を用いた。各層に膜厚(t)、屈折率(n)、消衰係数(k)を設定する。各層の材料のn, kの波長依存性はThinFilmViewに標準搭載されたデータを用いた。反射層の界面媒質に固体発光素子の屈折率(n=2.4)を設定し、入射角に依存した反射率（S偏光とP偏光の平均値）をアウトプットとして得る。光源の波長は、一旦可視光域の中心付値に相当するλ=550nmに設定した。先述のとおり、広角入射成分に対する反射率を向上するため、全反射に着目する。そのためには固体発光素子より屈折率が低く、かつ可能な限り屈折率

差が大きい透明膜を界面に用いるのが望ましい。なぜならば、式(1.2)で示したSnellの法則の全反射臨界角θ_c が可能なかぎり小さくなれば、その角度θ_c以上の反射率がすべて100%になるので、より高い反射率の構造になることが期待される。そこで、実用的かつ屈折率がもっとも低いMgF_2（フッ化マグネシウム、n=1.38）を材料として選定した。MgF_2層の厚さを$\lambda/4n$(=550/(4×1.38)=99.3nm)の整数倍に設定し、その倍数Nをパラメータとした。一方、全反射をしない入射角の浅い成分に対しても光を反射させる必要があるため、そちらについては第2章の式(2.18)に示した、高屈折率と低屈折率の$\lambda/4n$層の繰り返しによる高反射構造(DBR)を採用する。この場合も、高屈折率層と低屈折率層の屈折率差が大きい方が望ましいため、今回はTa_2O_5（五酸化タンタル、n =2.19）を選定した。十分な反射率を確保するためにTa_2O_5/ MgF_2 の$\lambda/4n$層を8ペア、計16層で固定した。

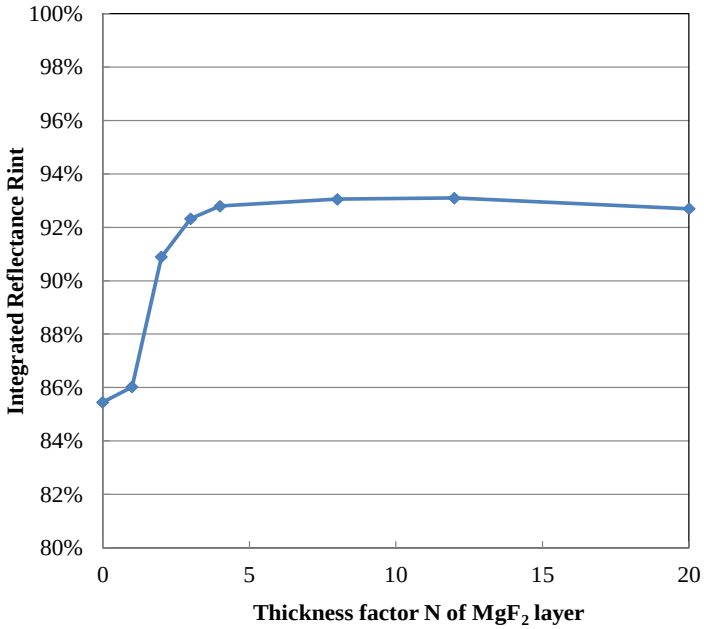
Fig.3-4 に解析結果を示す。まず、(a)角度積分反射率 R_{int} の膜厚($\lambda/4n$ の倍数 N)依存性を見ると、N=0～4 までの範囲で増加するが、N>4 では高止まりする傾向が見られた。そこでもう少し詳しく見るため、角度で分解したグラフを(b)に示す。まず、N=0 では 0～20 度付近と 48 度以上の反射率がほぼ 100%であることが判明した。前者は 16 層の DBR による効果であることが明らかである。一方、後者は、ある角度以上において反射率が 100%に達していることから、全反射であることが推定される。式(1.2)から逆算すると、n_1=2.40、n_2=1.78 のときにθ_c≒48 度と求まる。このn_2は MgF_2と Ta_2O_5の屈折率の平均値であるため、これらの多層膜を一つの層とみなしたときに発生する全反射ということが明らかになった。一方、N=4 では全反射が発生するθ_cが 35 度付近にシフトしたことが明らかである。これは n_2を MgF_2の屈折率としたときの臨界角である。N=1～4 にかけて徐々にこの効果が得られ、N >4 では全反射の効果が完全に得られるようになった。これは、膜が薄いときには近接場における電磁波の伝播効果で低屈折率層の膜から高屈折率層の膜へエバネッセント光が伝播し、広角で入射しても光が次の層へ透過するのに対し、膜が厚いときにはエバネッセント光が減衰して伝播しなくなり、全反射が発生するためである[104]。なお、Fig.3-4 の結果から、N=20 まで反射率はほとんど変化しないことも確認されるので、言い換えれば、反射率の高い構造を得るために全反射の効果を活用するには、光源媒質と可能なかぎり屈折率差が大きく、かつ媒質より屈折率の低い透明層を、おおよそ $t>\lambda/n$ まで低屈折率層の膜厚を設定すればよいということである。本研究において、この全反射を活用して広角入射成分の反射率を向上する設計思想の構造を特に TI-ODR(Total internal reflective omnidirectional reflector)と呼称し、以後 TI-ODR のさらなる性能向上や固体発光素子への応用について論じる。



$n_H = 2.19(Ta_2O_5)$, $n_L = 1.38(MgF_2)$

Fig.3-3 Fresnel matrix simulation model for calculating the angular dependence of reflectance at the backside mirror

(a)



(b)

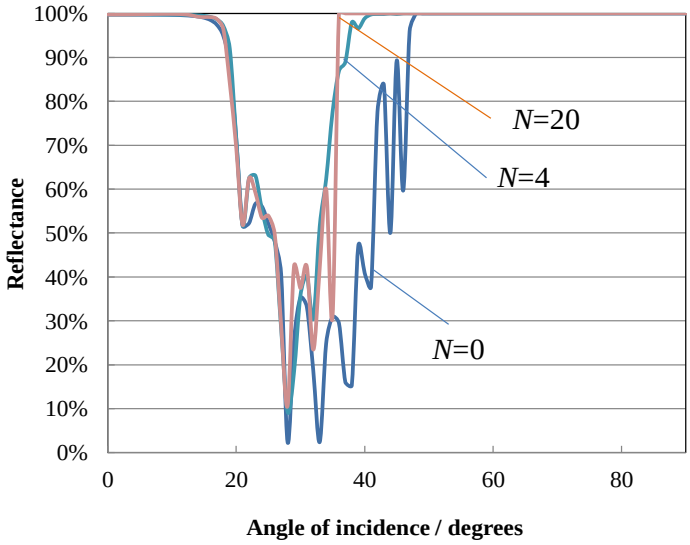


Fig.3-4 Reflectance at the interface between the light source and the reflector for low-index layer thickness

(a) integrated reflectance (b) angle of incident dependence

3.3.3 誘電体層と金属層を利用した全方向反射鏡

Fig.3-5は、Fig.3-3の多層膜構造で反射率のロスが大きかった20～35度付近の反射率を改善するため、さらにAg層(t=200nm, n=0.055, k=3.32)を複合した構造である。このシミュレーションではN=4で固定し、上記構造と、Ag単膜に1層の$\lambda/4n$誘電膜を形成したいわゆる一般的な増反射膜構造（TI-ODRと区別するために、Q-ODRと呼称する）およびAg単膜とを比較した。シミュレーション結果をFig.3-6に示す。

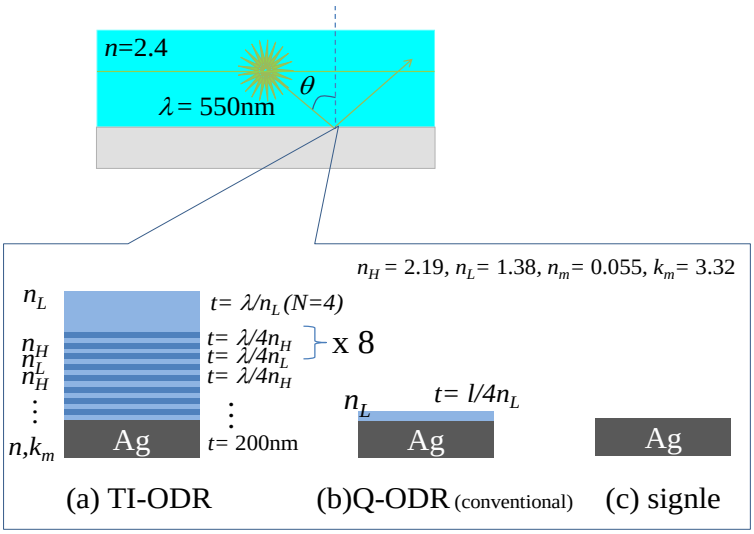


Fig.3-5 Simulated structures to examine enhancement effect of reflectance for TI-ODR with Ag

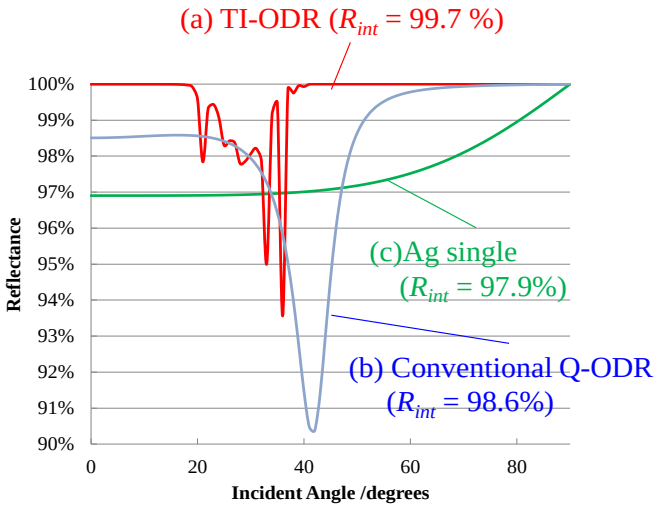


Fig.3-6 Simulation results showing the reflectance between the light source anddesigned (a) TI-ODR , (b) Q-ODR, and (c) Ag single layer

Fig.3-6より、設計したTI-ODRはほぼすべての角度で反射率が高く、R_{int}=99.7%を示した。全方向の光に対してほとんど損失のないレベルである。一方、従来のQ-ODRは40度付近で光学干渉が合っていないことの影響による減衰が見られ、R_{int} =98.6%であった。Fig.3-2に示したとおり、特にこの領域では反射率1%の違いが光取り出し効率を大きく左右するため、可能な限り反射率を高めたTI-ODRは有効である。一方、膜の総数の面で従来のQ-ODRに対して複雑な構造であるため、簡略化の可能性について検討した。Fig.3-7は、8ペア積層していた多層膜のペア数を変化させたときのR_{int}の推移である。この結果から、8ペアから1ペアに多層膜を減らしてもR_{int}がほとんど下がらず、低屈折率厚膜による全反射とAg膜でほぼTI-ODRの反射率を担保されていることが確認され、ペア数は1層が好ましいことが明らかになった。以後、TI-ODRは、N=4の低屈折率厚膜、$\lambda/4n$厚の高屈折率／低屈折率1ペア、金属(本章ではもっとも可視光の反射率が高いAgを採用)を基本構成とする。

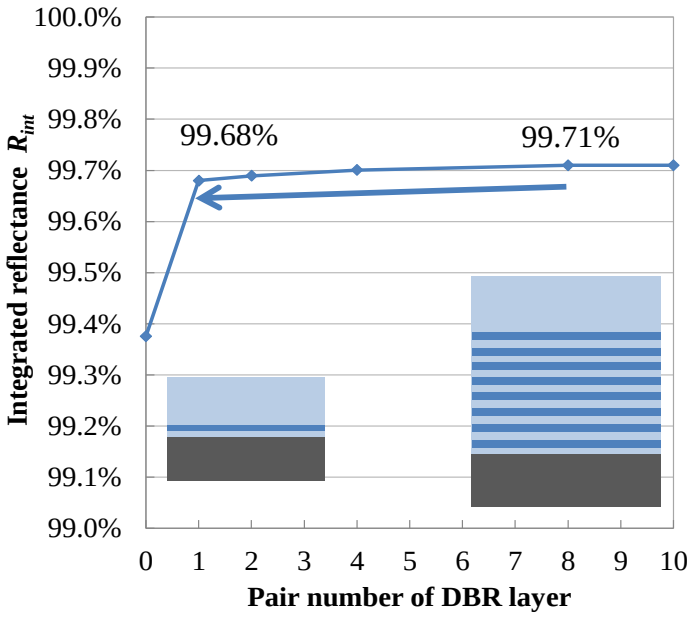


Fig.3-7 Simulated angular integrated reflectance of TI-ODR with various pairs of multiple high-low index dielectric layers

3.4 固体発光素子デバイスへの展開

3.4.1 光学解析によるTI-ODR導入効果検証

前節で設計指針を示したTI-ODRを実際の固体発光素子に展開した場合の効果および課題について検証する。まず、シミュレーションにてTI-ODR導入による光取り出し効率向上効果を検証するため、デバイス解析モデルを作製した。まずはじめに、近年普及しつつあるレーザープロジェクターで用いられる蛍光体、LARP(laser activated remote phosphor)デバイス[105]への適用可能性を検討した。このLARPデバイスは光励起方式のため、TI-ODRが電極を兼ねる必要はなく、制約条件が小さいためである。Fig.3-8にシミュレーションで用いた解析モデルを示す。媒質の屈折率はCe:YAG焼結蛍光体を想定してn=1.8に設定した。また、発光は単色光でなく、λ=460nmのレーザー光で励起されたCe:YAG蛍光体のスペクトルを参考にして設定[106]した。反射層は、N=4の厚膜MgF_2と1ペアのTa_2O_5/MgF_2で構成したTI-ODR、比較対象としてQ-ODRおよびAg単膜を設定した。膜厚を設定するための波長は蛍光体スペクトルのピーク値である530nmに設定した。

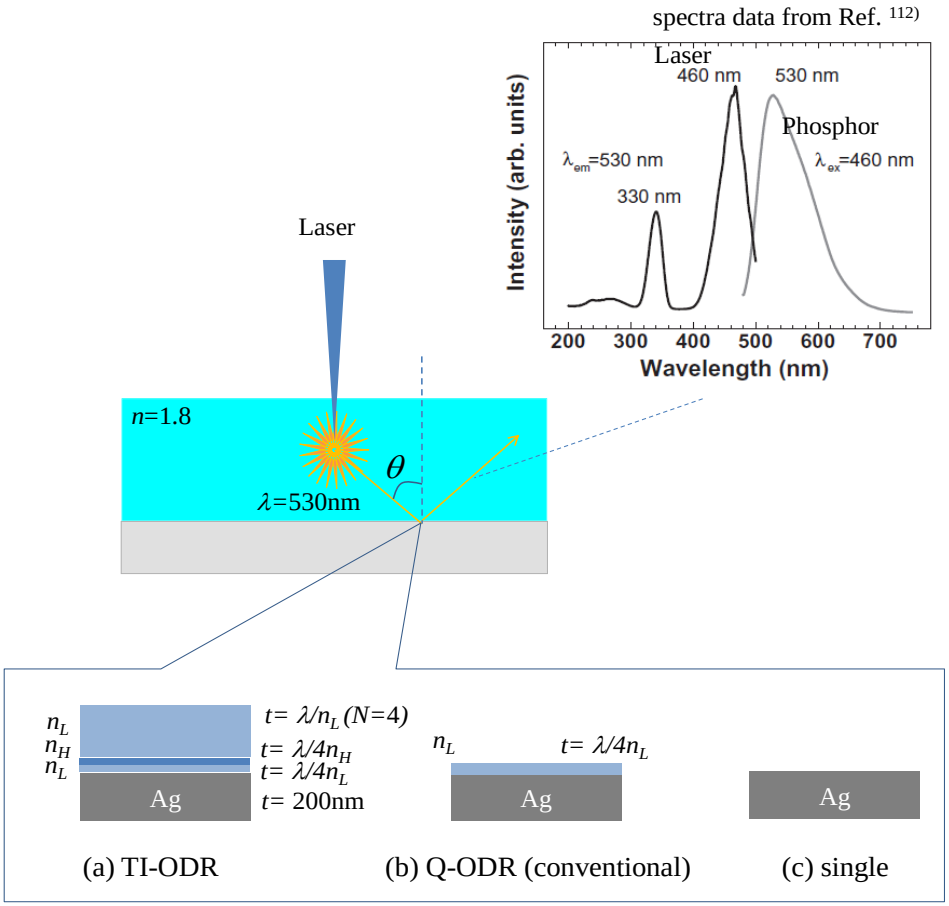


Fig.3-8 Simulation model for the culculation of TI-ODR introduced in LARP device

角度積分反射率の波長依存性をFig.3-9に示す。明らかに、(a)TI-ODRは全波長域において高い反射率を示している。全反射は基本的に波長の影響を受けないため、LARPのように広い波長域の光に対して有効である。一方、多層膜干渉を利用した(b)Q-ODRでは設計波長以外で大きく反射率が落ち込む現象が確認される。また、n=2.4のGaNを対象としたときは(c)Ag膜に対して増反射効果が得られていたが、n=1.8と屈折率が低い媒質に対しては、屈折率差が大きく取れていないため干渉による増反射効果の有効性が薄れている。この反射率差を光取り出し効率の差に換算した結果は、Fig.3-1のシミュレーションモデルで媒質の屈折率と反射率を置き換えることで得られる。代表的な微細構造としてMLA-3を用いて、光源のスペクトルと反射構造の波長依存性を考慮して積分した結果、(a) TI-ODR, (b) Q-ODR, (c) Agについてそれぞれ、95.8%、78.0%、83.9%の光取り出し効率が得られた。したがって、TI-ODRを用いることで従来の反射構造に対して10%以上優位な光学構造が実現可能であることが示唆された。

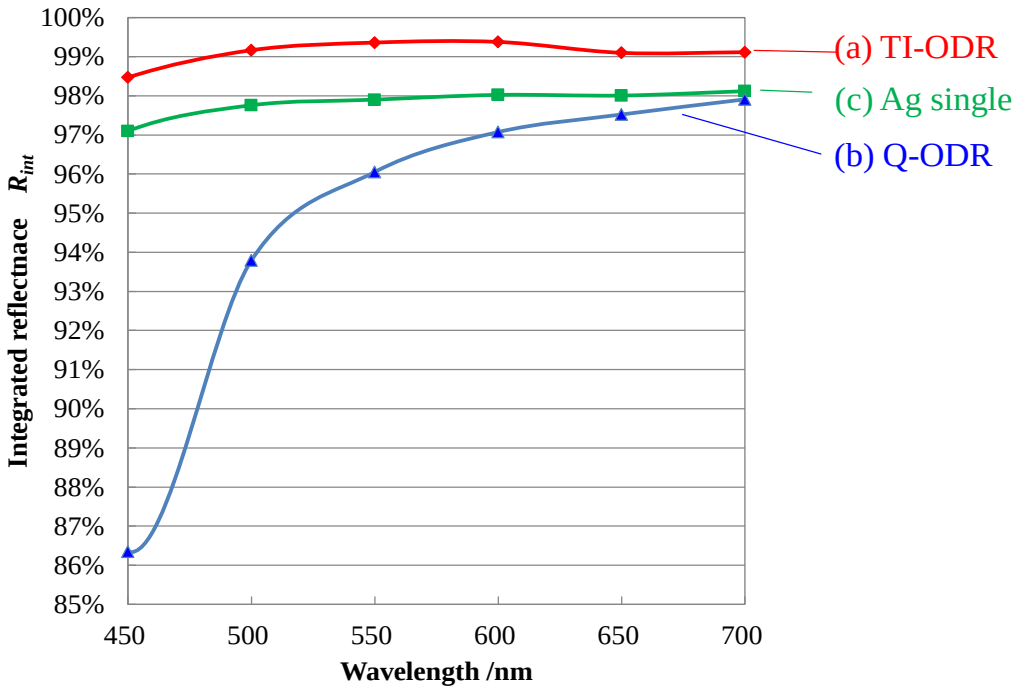
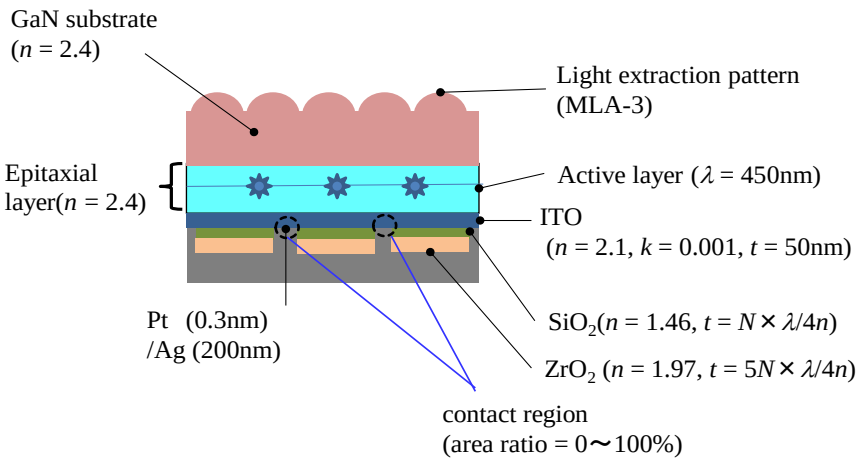


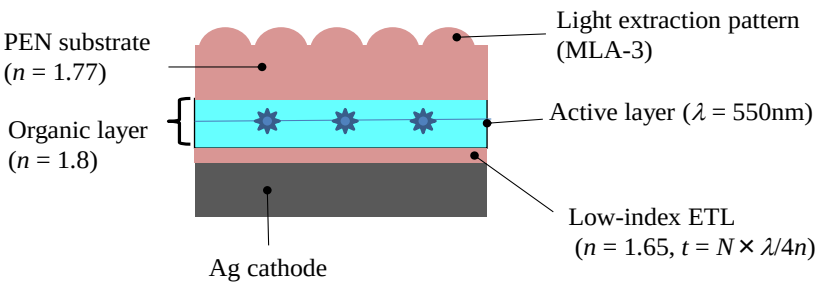
Fig.3-9 Simulation result showing wavelength dependence of angular integrated reflectance

次に、LEDデバイスおよびOLEDデバイスへのTI-ODR適用を検討した。Fig.3-10にシミュレーションに用いたモデルを示す。(a)LEDにおいては、低屈折率層とLEDのp-GaN層の間に透明電極(ITO)を挿入している。低屈折率層は絶縁膜のため電極として利用できないため、部分的に導電させるコンタクト領域を設ける必要があるが、p-GaN層の断面方向への電流拡散度が非常に小さいため、ITOのような電流ドリフト層を間に挿入しないと部分的に電流が集中するおそれがあるためである。ITOは僅かながら光吸収を有するため、薄膜化、品質向上によっていかに透明かつ導電性が高い膜を得るかが重要である。また、低屈折率層と高屈折率層のペアはSiO_2(n=1.46)とZrO_2(n=1.97)を採用した。先述のとおり、低屈折率層の屈折率は低く、屈折率差が大きい方が望ましいが、ITOへの密着性の観点からこの組み合わせが望ましいことを把握している[107)-109)]。さらに、SiO_2とZrO_2の膜厚比をおよそ1:5にすることで、応力が安定化することを基板の反りや密着性評価から確認している。これを無視すると、全反射に必要な厚膜SiO_2の応力が大きいためにITOのパターニングプロセスやボンディングの際に電極の剥離が発生する可能性が高い。さらに、ITOとAgの密着性も向上するため、極薄のPt層を挿入している。一方、(b)OLEDにTI-ODRを導入する場合、陰極と発光層の間に存在する電子輸送層(ETL)が低屈折率厚膜層を兼ねる構造が望ましい。OLEDは特に面光源であるため、絶縁物を挿入する構成は難しいためである。第2章で述べたとおり、低屈折率かつ導電性の高いETL材料の研究は進められている[54,55)]が、現在報告されているもっとも低屈折率な材料はn=1.65程度で、発光層との屈折率差は0.2以下である。今回のシミュレーションモデルではこの材料の屈折率で仮設定した。以上のように、特にTI-ODRが電極を兼ねるデバイスではさまざまな制約事項が発生することを事前に考慮したうえで設計をおこなう必要がある。

Fig.3-11に、以上の制約条件を考慮した上でシミュレーションを行った結果を示す。今回の解析においても低屈折率層を$\lambda/4n$のN倍とし、Nをパラメータとして角度平均反射率の推移を確認した。(a)LEDでは、R_{int}の値がN=0から4にかけて95.0%から98.1%にまで向上し、これまでに得られた全反射効果の傾向と一致する。この結果は、Fig.3-2のグラフから光取り出し効率に換算しておおよそ約1.17倍の効果(MLA-3)になる。実際にはTI-ODRが100%占有することが困難なため、面積占有率によってこの効果が増減する。一方、(b)OLEDにおいては、R_{int}の値がN=0から4にかけて97.9%から98.6%にまで向上し、光取り出し効率の倍率は1.04と求まった。LEDに比べると媒質とTI-ODRの低屈折層の屈折率差が小さく、臨界角が大きくなるため、OLEDではTI-ODR単独で光取り出し効率の優位性を得るのが難しい。また、OLEDではETLの膜厚が第3章で述べた内部の光学干渉やSPP、発光層のキャリアバランスなどに直接影響をするため、より設計の複雑さを増す。



(a) LED



(b) OLED

Fig.3-10 Simulation model for the culculation of TI-ODR introduced in LED and OLED

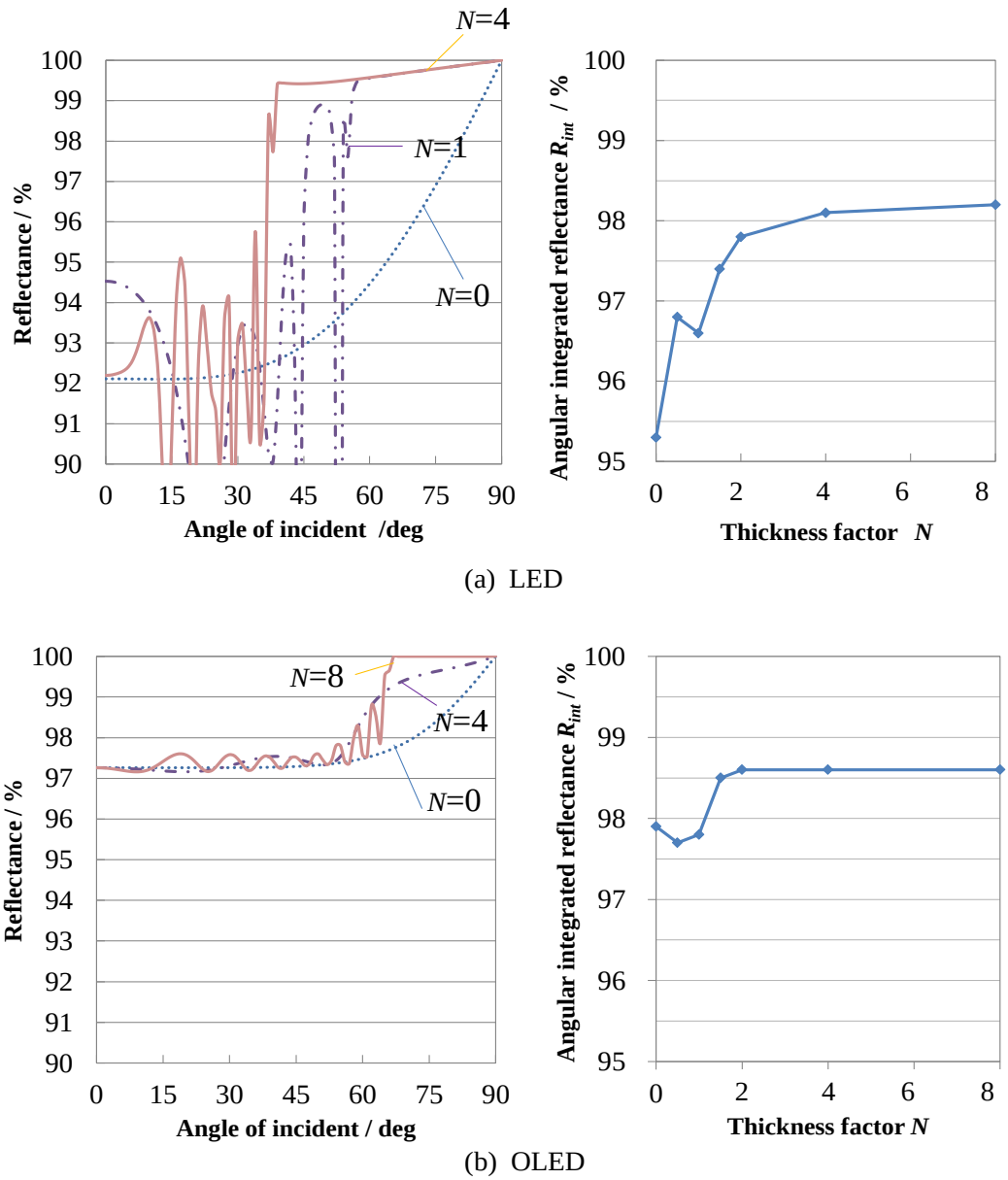


Fig.3-11 Simulation results for the culculation of TI-ODR introduced in LED and OLED

3.4.2 TI-ODR導入効果の実証（青色LEDデバイス）

前節で設計したLEDデバイスを実際に試作し、光取り出し効率向上効果を確認するための実験を行った。青色LEDデバイスは、あらかじめ微細構造をパターニングしたGaN基板に半導体層をMOCVD(metal organic chemical vapor deposition)法で結晶成長させて積層し、その上にITOをスパッタで形成する。この際、半導体層にダメージを与えないようにプラズマの影響を最小化する手法を取り入れた。さらにTI-ODRとなる誘電体をスパッタ、金属層をEB(電子ビーム)蒸着で形成する。最終的には基板にフリップチップ実装をするためにAg層の上にさらにAu層を蒸着する。なお、コンタクト領域とTI-ODR層を分離するため、随所にフォトリソグラフィー法を用いてパターニングを実施する。作製したデバイスの一覧をTable3-2に示す。本実験では、誘電体層の膜厚、占有率、ITOの有無をパラメータとした。次に、作製したデバイスをFig.3-12の積分球測定系を用いて、外部量子効率を計測することにより評価した。この測定系では安定して測定するためにペルチェ素子を用いてLEDチップの温度が一定の条件(ケース温度：Tc=25℃)で光出力を測定し、外部量子効率を求める。電流値は350mAで固定した。光取り出し効率や電極の反射率を直接測定することは困難であるため、光取り出し効率はRef(TI-ODRなし)に対する外部量子効率の比、反射率はシミュレーションから得られる推定値を用いた。また、電流がデバイスにスムーズに流れている状況を確認するため、Fig.3-12の測定系で電流電圧特性をモニターし、必要に応じて発光像を顕微鏡で観察した。以上の測定系で得られた外部量子効率をFig.3-13、電流特性をFig.3-14に示す。

Table 3-2　List of the fabricated LED samples

Sample name	ITO	Dielectric layers		Estimated R_{int}
		Thickness factor N	occupation	
L-1	○	4	60 %	97.8 %
L-2	○	4	40 %	96.8 %
L-3	○	1	60 %	96.8 %
L-4	-	1	60 %	97.1 %
L-5	-	-	-	95.0 %

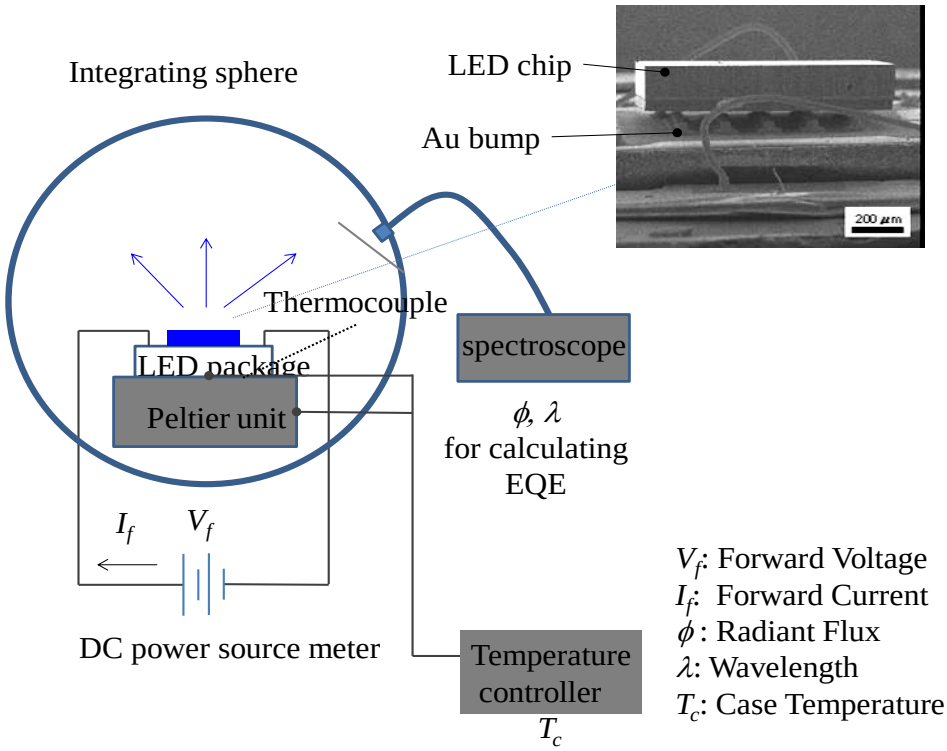


Fig.3-12 Measurement system for efficiency enhancement effect of LED with TI-ODR

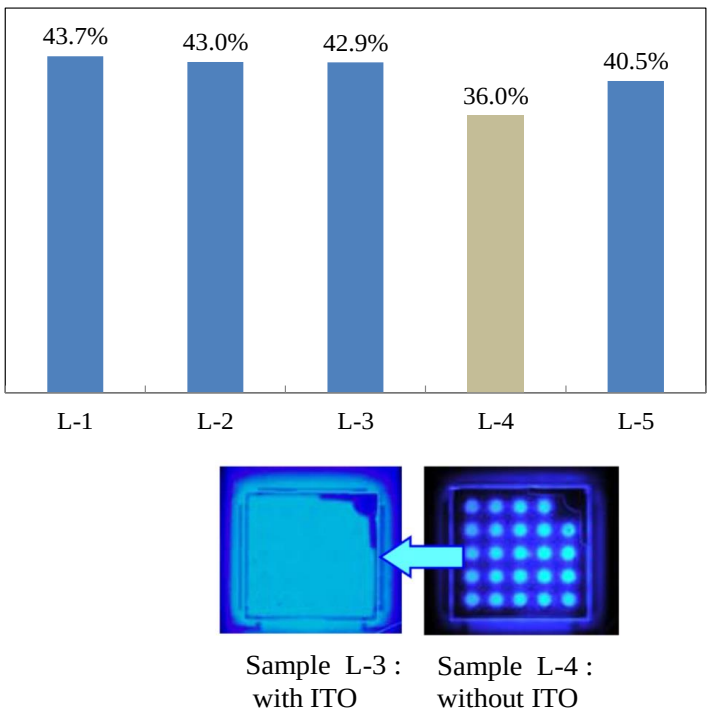
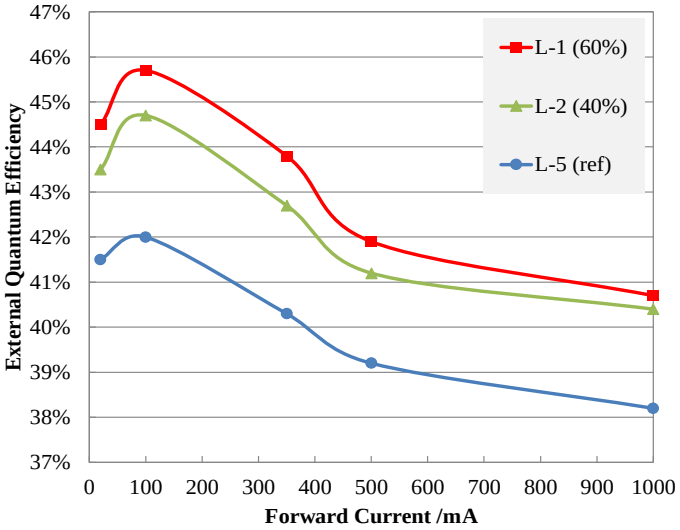


Fig.3-13 Experimental result of the efficiency enhancement factor of each sample

(a)



(b)

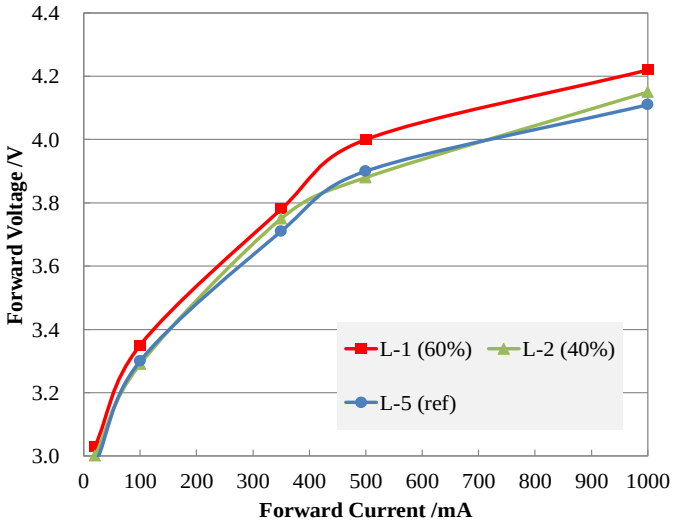


Fig.3-14 Experimental result of forward current dependence of
(a)external quantum efficiency / (b) forward voltage

まず、Fig.3-13を見ると、L-1～L-3については反射率が増加した分、L-5(ref)に比べて外部量子効率が向上している。向上度は約6～8%で、おおよそシミュレーションから得られる反射率の向上度に対して傾向は一致する。一方、L-4は反射率が向上しているにも関わらず、外部量子効率が10%以上低下した。これは、事前の予測どおり、ITO層による電流拡散が不十分なために電流が集中し、発光効率(内部量子効率)が悪化したためと推察される。Fig.3-13に示したとおり、L-4のサンプルでは電極コンタクトを取っている領域に電流(発光領域)が集中していることが明らかである。L-3のようにITO層を用いることで、電流が均一に拡散していることがわかる。一方、

L-1やL-2が十分な電流拡散が得られているかについて考察するため、Fig.3-14の外部量子効率の電流特性と電流電圧特性を見ると、L-2(40%)とL-5(ref)は概ね同等の電流電圧特性を示し、電流値が大きくなるにつれて低下する外部量子効率のカーブもほぼ一致する。一方、ODR占有率を60%に増やしたL-1では350mAにおいて0.1V弱の電圧上昇が確認され、大電流領域で外部量子効率も僅かながら低下しやすい傾向が見られる(1000mAではL-2とほぼ同等になる)。ODRの占有率を高めていくとITOだけでは十分に電流が拡散されず、一部に電流が集中する影響で抵抗値が高くなり、電圧が上昇する。これは効率低下を招く要因となり、さらにODR占有率を増やして光取り出し効率向上を狙うにあたって課題になる。今後、電流拡散層のさらなる改善やコンタクト抵抗の低減などによって、上記課題を克服する必要がある。

3.5　結言

本章では、固体発光素子の光取り出し効率を高める手段として、界面で全反射された戻り光を最大限活用するための高反射率構造に着目し、以下の結論が得られた。

1. 固体発光素子の裏面構造の反射率が光取り出し効率に与える影響が極めて大きいことを光学シミュレーションで示した。具体的には、光吸収のない屈折率n=2.4の媒体(LEDの材料であるGaNを想定)においては反射率80%以下では光取り出し効率が50%にも満たないが、反射率が95%を超えると急激に100%に近づく傾向を確認した。
2. 光学シミュレーションにおいては、光取り出し凹凸形状の構造をパラメータとした。反射率が低い領域では凹凸形状による差が大きいが、反射率の高い領域(95%以上)では凹凸構造による差が縮小する傾向を確認した。
3. 角度積分反射率の考え方を導入し、反射率が95%を超える光学構造を得るためには、固体発光素子の光取り出しにとって阻害要因となる「高屈折率」という性質を逆に利用し、裏面側で全反射を積極的に活用することに着想した。その結果、膜厚λ/n程度の厚膜低屈折率層を導入することが角度積分反射率を飛躍的に高める手段として有効であることを見出した。
4. LEDに対し、膜厚λ/nの低屈折率(MgF_2)厚膜、膜厚$\lambda/4n$の高屈折率(Ta_2O_5)／低屈折率(MgF_2)1ペア、金属(Ag)を組み合わせたTI-ODR構造を導入することで、角度積分反射率99.7%がシミュレーション上で得られた。
5. TI-ODRを実際の青色LEDデバイスの電極に導入することで、導電性の確保や膜応力による電極剥がれなどさまざまな課題に対応する必要があることを明確にした。それらに対してTI-ODRのパターニング、電流拡散層（透明導電膜）の導入、膜応力に対応した膜厚設計の修正等で対応した結果、電流電圧特性や機械特性（膜応力）が改善した。最終的に、TI-ODRを導入した結果として、10%程度の光取り出し効率改善効果が得られた。

6. TI-ODRのパターニングする際、占有率を高めた方が実効的な反射率が高く、結果的に光取り出し効率が向上することが確認された。但し60%まで増やした場合に電圧上昇が確認され、電流を多く流すと外部量子効率が低下しやすくなる傾向が見られた。占有率を高めていくと透明導電膜だけでは十分に電流が拡散されず、一部に電流が集中する影響で抵抗値が高くなり、電圧が上昇するためと推察される。結果的にこれが効率低下を招く要因となり、さらに占有率を増やして光取り出し効率向上を狙うにあたって課題になる。今後、電流拡散層のさらなる改善やコンタクト抵抗の低減によって占有率を高めるための方策を打つ必要がある。

第4章　光源近傍構造による固体発光素子の光取り出し効率向上

4.1 緒言

固体発光素子の発光層は点光源の集合体とみなされ、各点光源から光がランダムかつ等法的に発し、出射角θに対して$\sin\theta$の関係で光束が与えられる場合を想定して構造設計をするのが一般的である。この発光強度の角度分布を簡易的に「配光パターン」と定義する。第2章で配光パターンを制御して光を可能なかぎり全反射以下の入射角に制限することを狙って光取り出し効率を高める従来手法について論じた。これらの方策は発光の指向性が一方向に強くなることや発光色の角度依存性が大きくなる点から、特に照明に応用する場合に特性として好ましくない側面があり、活用が難しい。また、後述の反射層や屈折率界面の微細光学構造の効果の寄与を考えると、必ずしも配光パターンの制御だけで最適解を一意に決定できない。

本章では、光取り出し効率を中心に、デバイスとして必要とされる特性を向上するための配光パターン制御手段を論じる。特に、近年産業応用が進んでいるOLEDを取り上げる。OLEDは面光源であること、および複数波長の光源や干渉構造を内包することからLEDに比べ制約条件が多い一方、光取り出し効率の研究対象として有用な光源である(なお、OLEDはLEDとも原理的には同じ発光機構のため、本章で検証した成果はLEDにも展開可能である)。具体的には、まずOLEDの配光パターンを決定する発光位置と干渉や表面プラズモン(SPP)が与える光学的な影響、およびその測定方法について論じる。配光パターンを整える従来の光学設計では光源から発した光がSPPの影響を強く受け、損失が発生する。SPPの影響は古くから存在が認められていたが、基板と有機層の界面に光取り出し構造(凹凸など)を設けない限りは顕在化せず、また、逆にSPP対策により別の悪影響が及ぶため、これまで優先的に対策されていなかった。本研究ではこのトレードオフを打破するため、マルチフォトン構造を駆使して各発光層から得られる配光パターンを制御し、もっとも複雑な白色OLED照明用デバイスでも望ましい特性（効率や色の角度特性）が得られる可能性を示す。なお、配光パターンが光取り出し効率へ与える具体的な寄与については、微細光学構造との相乗効果を示す必要があるため、第5章で論じる。

4.2 光源位置と表面プラズモンに配慮した配光パターンの設計

本節でOLEDの配光パターンを決定する基本的因子について述べる[110]。OLEDは1層あたりの膜厚が薄いため、LEDよりも発光点と裏面反射層（基板から光を取り出すボトムエミッション型のOLEDでは陰極となる）の間隔が小さく、通常は波長サイズ以下（数十nm程度）であるため、直接出射光と裏面反射層からの反射光の光学干渉を考慮して光源近傍の光学設計を行う必要がある(Fig.4-1)。この場合、裏面が単純な鏡面であれば、電気映像により発光点を鏡映した点と元の発光点との2光波干渉により表される。発光点と裏面反射層の距離をdとすると、Fig.4-1に示すように光路差は$2nd\cos\theta$であるから、その位相差ϕは

$$\phi = r_m \exp(-2\pi i 2nd\cos\theta) \qquad (4.1)$$

で表される。ここにnは媒質の屈折率、r_mは、裏面反射層（金属陰極）による電界の反射係数であり、s偏光、p偏光の場合でそれぞれ

$$r_m{}^p = \frac{n\cos\theta - N_m\cos\theta_m}{n\cos\theta + N_m\cos\theta_m} \qquad (4.2)$$

$$r_m{}^s = \frac{n\cos\theta_m - N_m\cos\theta}{n\cos\theta_m + N_m\cos\theta} \qquad (4.3)$$

で表される。また、N_mは金属の屈折率、θ_mはスネルの法則で決定される金属の屈折角である。

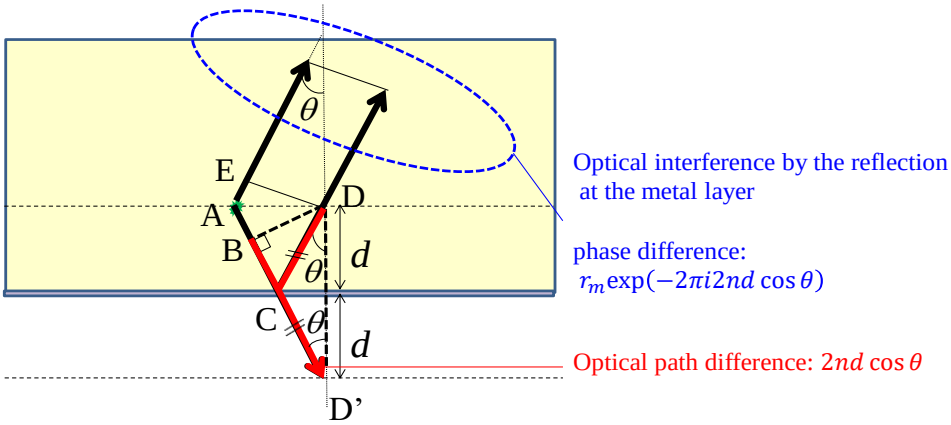


Fig.4-1　Optical interference resonance in metal layer of OLED device

N_mは一般に複素数として扱う必要があり、$N_m = n_m - ik_m$と表し、実数部と虚数部に分けて記述する場合が多い。このとき、虚数部の係数k_mを特に消衰係数(extinction coefficient)とよぶ。また式(4.2)および式(4.3)で臨界角を超えた角度において$\cos\theta_m$が虚数になる点に注意が必要である。すなわち、金属面の反射では常に位相の変移がおこり、干渉パターンが単純な鏡面反射で近似できず、また、このパターンは発光位置(距離d)によって大きく変化する。なお、式(4.1)は、垂直入射の場合の位相変移量ϕ_0は、媒質の消衰係数k(透明な材料ではほぼ0に等しい)として、式(4.4)のように書き直すことが可能である。

$$\phi_0 = \tan^{-1}\left[\frac{2(nk_m - n_m k)}{n^2 - {n_m}^2 + k^2 - {k_m}^2}\right] \quad (4.4)$$

通常、OLEDの発光位置設計は、以上のような金属層における干渉効果と位相シフトを考慮しつつ、正面方向の光束が干渉でもっとも強めあうような発光位置となるように、金属電極と発光層の距離dを決定する。有機層と基板、基板と空気の界面の全反射で内部に戻る光成分の最小化を図るためである。具体的には、まず次式(4.5)を満たす距離dを求める。

$$d = \frac{\lambda}{4n}\left[(2m-1) + \frac{\phi_0}{\pi}\right] \quad (4.5)$$

ここでλは発光点から発した光の波長(通常、ピーク波長を採用)、mは正の整数(m =1,2,・・・)である。上記アプローチの妥当性を示すため、光学シミュレーションをおこなった。Fig.4-2に用いた解析モデル、Fig.4-3にシミュレーション結果を示す。シミュレーションツールは、Setfos3.4(Fluxim社)を用いた。光は金属電極から距離d離れた地点の発光層から前方、後方に一様に放射する仮定で、d=0～300nmの範囲において、空気中に取り出される光の正面輝度(相対値)および光取り出し効率(全方向積分値)を解析した。

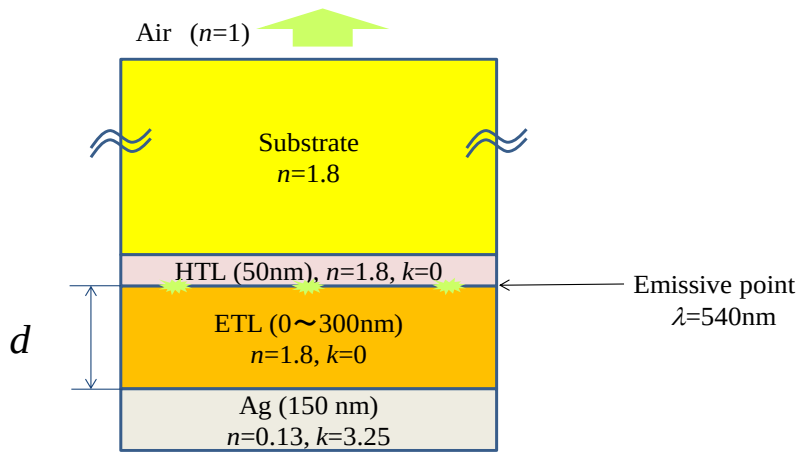


Fig.4-2 Optical simulation model of OLED device

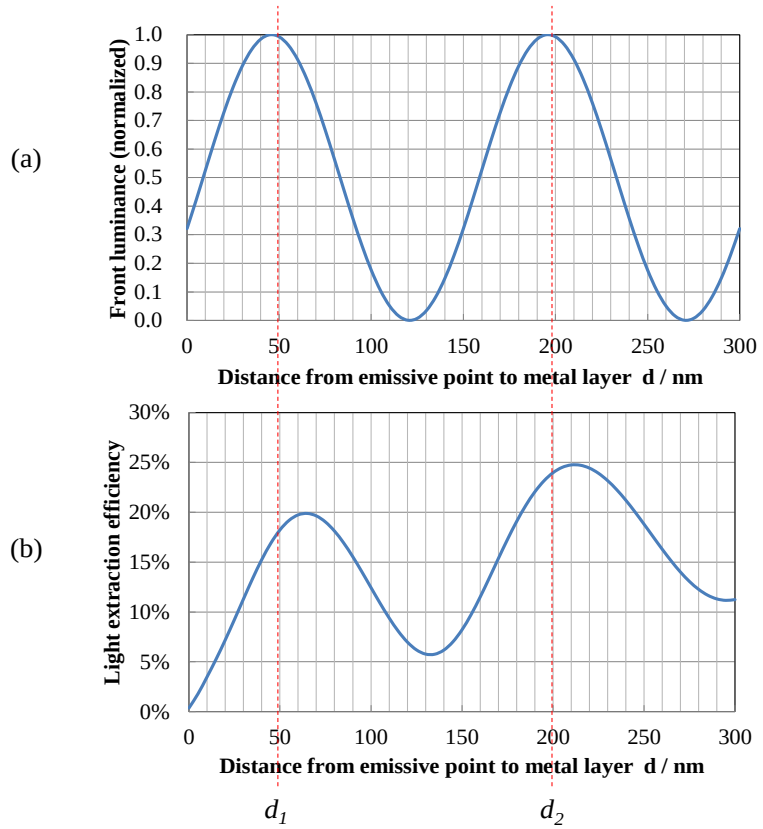


Fig.4-3 Simulation result with the model in Fig.4-2

(a) Relative front luminance (b)light extraction efficiency for d = 0 to 300nm

まず正面輝度については、式(4.5)から得られるd（m=1のとき、d_1=50nm、m=2のときd_2=200nm）とピーク位置、周期についてはほぼ一致する傾向である。一方、全体を積分した効率は最適なdが式(4.5)の数値より大きくなる傾向である。これは、Fig.4-1で示したとおり角度θで電極に入射した成分が垂直に入射する成分よりも多く存在するため、実効的な位相差が変化し、求めるべきdが式(4.6)のように表されるためである。ここに、θ_aは全角度で積分した平均値となり、今回のシミュレーションで考慮した全方向一様配光においては、式(4.7)のように求まる。実際のデバイス設計では、斜方向の光の干渉や、輸送層のキャリア移動度や抵抗値を考慮した最適な設計が必要となる。

$$d = \frac{\lambda}{4n\cos\theta_a}\left[(2m-1) + \frac{\phi(\theta_a)}{\pi}\right] \qquad (4.6)$$

$$\theta_a = \frac{\int_0^{\frac{\pi}{2}} \theta \sin\theta \, d\theta}{\int_0^{\frac{\pi}{2}} \sin\theta \, d\theta} = \frac{[-\theta\cos\theta + \sin\theta]_0^{\frac{\pi}{2}}}{[-\cos\theta]_0^{\frac{\pi}{2}}} = 1 \ \text{rad} \simeq 57.3\,\text{deg} \qquad (4.7)$$

なお、配光パターン設計の際には、干渉の次数mも重要な観点である。後述のマルチフォトン型のように、すべてをm=1の発光位置に設定するのが難しい場合、m=2や3の位置を利用することもある。このときはm=1の場合よりも、配光パターン設計にさらなる配慮が必要である。Fig.4-4が示すとおり、d=200nmの場合は光路差がm=1で強め合う60度付近とm=2で強め合う0度付近の二つの方向にピークを有する形になる。この60度付近のピークは、有機層と基板、あるいは基板と空気の界面で全反射をするため、通常は空気中まで取り出されない。したがって、従来はあまり重視されない。本研究では、第5章で述べる光取り出し技術により60度付近の出射成分も活用するため、この広角成分の取り扱いが非常に重要である。

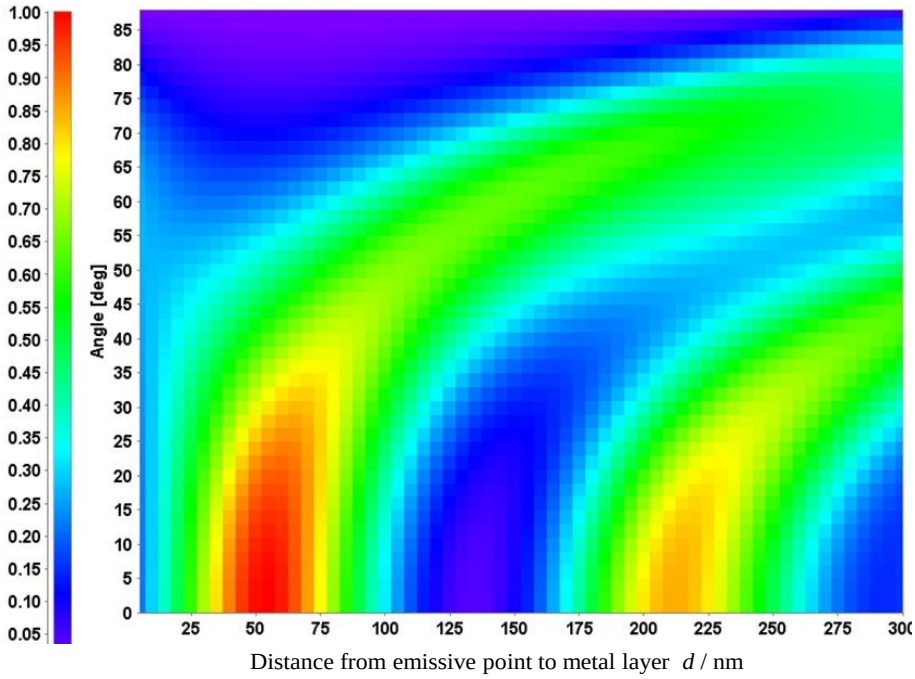


Fig.4-4 Contour map of luminance in the substrate of the model in Fig.4-2

ここで、SPP(Surface Plasmon Polariton)の影響について述べる。今回用いた解析ソフトSetfosでは、配光パターンと同時にSPPの発光への関与を解析することが可能である。そこで、Fig.4-2のモデルでdを変化させたときの各光学モードの変化の推移をFig.4-5に示した。光学モードとは、発光層から得られた光のうちどのくらいの成分が最終的に各レイヤーに到達するかを模式的に示すものであって、今回の場合は、空気中へ到達して取り出される光の効率を外部モード、基板および有機薄膜層で閉じ込められる光のロス成分を基板及び薄膜モード、電極で吸収される成分を吸収モード、SPPによるロス成分をSPPモードと呼称する。dが100nm以下の領域ではSPPによるエネルギーロスが非常に大きい。そのため、m=1のピーク位置においては発光層から発した光の大部分がSPPとして損失となる。ここで、SPPはAg層に広角で入射する成分(θ大)に対して寄与が大きいことがよく知られている[42]ため、空気との界面で全反射せずに空気中へ取り出されるθ小の成分へはほとんど影響しない。したがって、この場合においても効率ロスがほとんど顕在化しない。但し、後述の光取り出し構造を用いることを前提に考えたとき、基板モード・薄膜モードを含めた成分が原資となるため、この領域におけるSPPによるロスを無視できないことは明らかである。そこで、本研究では通常の干渉ピークに合わせた構成とは異なり、SPP影響の抑制とそれによって得られるモード(広角出射成分)の取り出しに着目した光学制御手法を展開する。次節で、光学モードの測定手法やデバイス設計による変化を論じる。

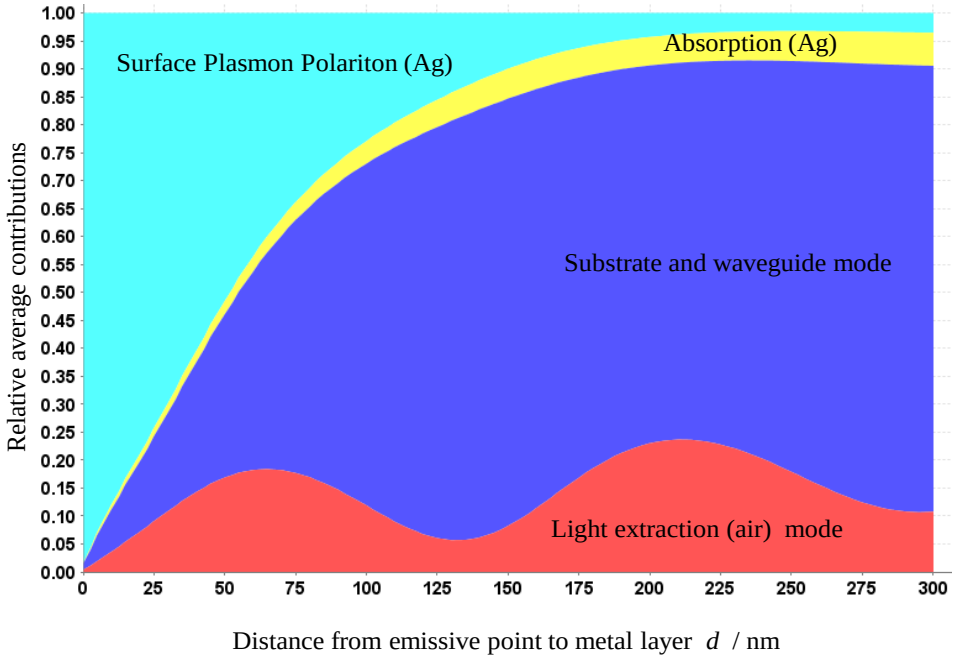


Fig.4-5 Simulated relative contribution of optical modes for the model in Fig.4-2

4.3 配光パターンの測定手法

シミュレーションで得られた配光パターンや光学モードを実測するための手法について以下に述べる。まず試作評価に用いるOLED素子の外観と断面構造を、Fig.4-6に示す。この素子はTEG(Test Element Group)とよばれるもので、素子効率や電流電圧特性など基本的な評価をおこなうために作製したテストパターンである。発光パターンは10mm角と2mm角を準備し、前者は主に性能評価、後者は主に配光パターンや後述の半球レンズを用いた光学モード測定に用いる。以下、TEGの構造について説明する。まず、平板状のガラス基板の上に透明電極(ITO)のパターンを形成する。その基板を有機溶媒等で洗浄したのち、真空蒸着装置に投入して有機層と金属電極を蒸着してOLEDデバイスを形成する。OLEDは空気中の水分にさらされると急激に劣化するため、そのまま空気中には出さずに乾燥窒素などで置換されたグローブボックスの中で封止する。具体的には、掘り込み部を形成した封止ガラスを用いて、UV樹脂などでガラス基板と接合する。さらに乾燥剤を封止ガラスの内部側に設置することでOLEDへの水分の浸入を阻止する。OLEDデバイスへの電力供給はガラス基板上に形成したITO層が担う。陽極側はITO層、陰極側はITO層と接続された金属層を通じて、OLEDに電力を供給する。

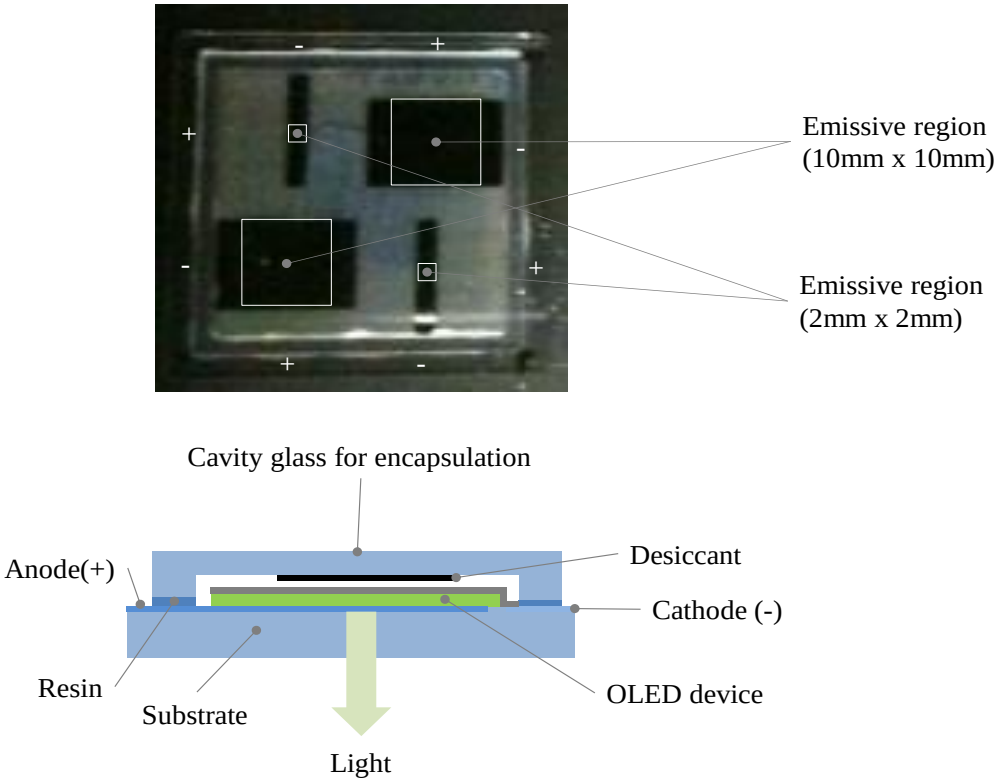


Fig.4-6 Appearance and cross section of test element pattern (TEG) of OLED device

発光素子の効率を測定するには、Fig.4-7のような積分球を用いた系を利用して投入した電力に対する全光束を計測するのが一般的である。積分球は、内面に硫化バリウムなどの高反射率（ほとんど100%）の拡散材料を塗装した球体で、中心部に配置した発光体から得られた光を積分球の内部で拡散させたうえで受光器に到達させ、完全拡散光源に変換して全放射束(単位：W)や全光束(単位：lm)を測定する装置である。一方、配光パターン（光強度の角度依存性）を計測するにはFig.4-8のような分光放射輝度計を用いる。光源に対して十分に大きな測定スポット（測定距離×取り込み角度）を有する光学系を構築して測定することで、角度を振った際の輝度が正確に測定可能になる。輝度を角度分解して5度もしくは10度刻みで測定することで全光束や全放射束を測定可能なため、配光パターンと同時に外部量子効率の測定も可能となる。

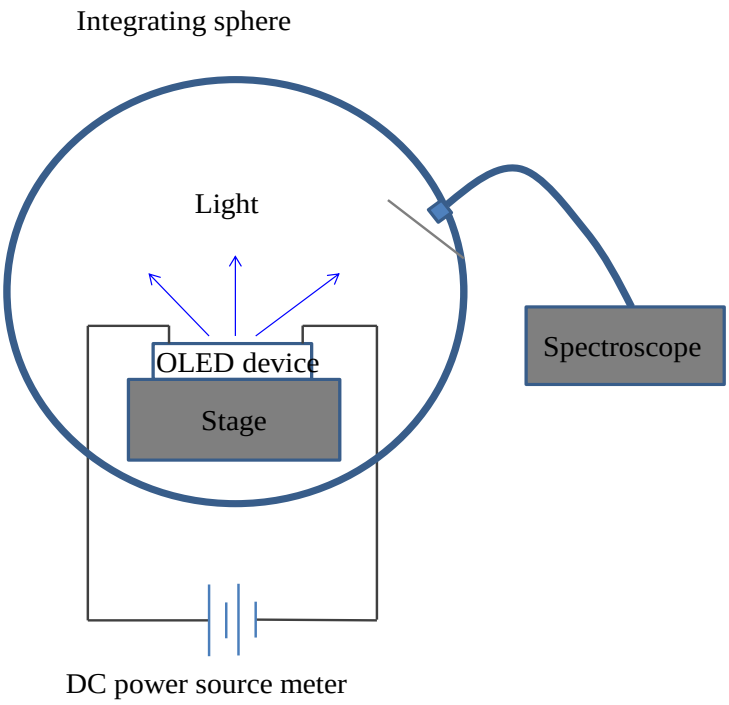


Fig.4-7 Measurement system of OLED TEG device with integrating sphere

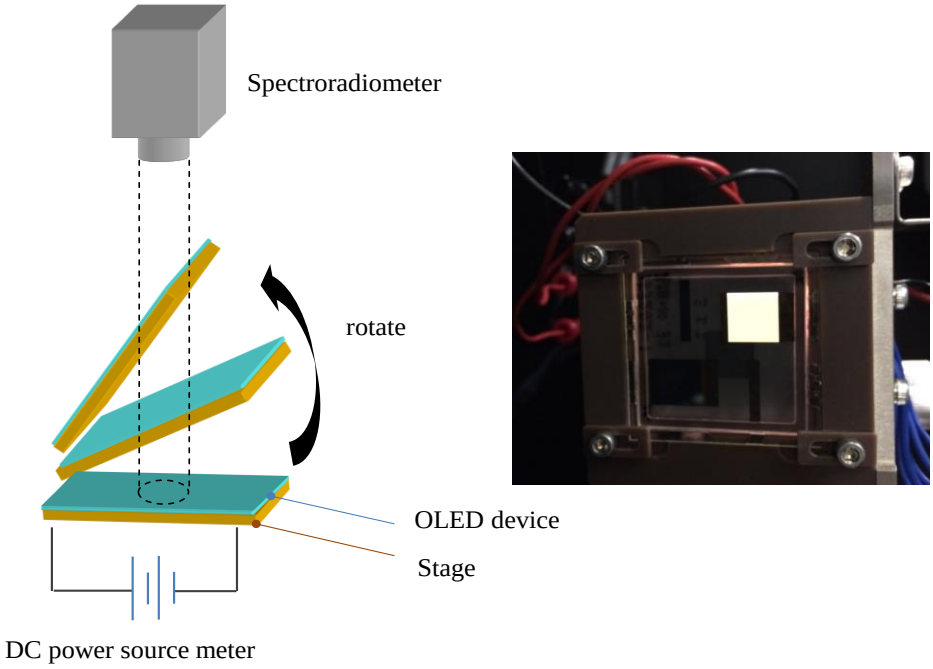


Fig.4-8 Measurement system of angular distribution with luminance meter

また、光学モード、特に基板モードや薄膜モードを直接測定するために半球レンズを用いる方式をFig.4-9に示す。輝度の角度特性はFig.4-8の測定系にて実施する。半球レンズを用いる理由は、光源を点光源とみなしたときに半球レンズを通過した光が屈折率界面に対して垂直となるため、①全反射ロスがない②内部の配光パターンが直接的に見える、という利点を有するためである。但し、この条件を得る前提としてTEGデバイスの基板と半球レンズを同じ屈折率の透明材料で構成し、基板と半球レンズの間に光学界面を形成しない、すなわち空気層がないことが必要である。そこで、基板と半球レンズの界面にはマッチングオイル（屈折液ともよばれる）を用いる。Fig.4-9(a)はOLED用の基板として通常使われるガラス基板(n～1.5)に到達する光出力、すなわち基板モード(substrate mode)のみを測定する手法であり、ガラス基板と屈折率を合わせたマッチングオイルと半球レンズを用いる。Fig.4-9(b)は、OLED層(n～1.8)内部で発生しているすべての光出力、いわゆる薄膜モード(waveguide mode)を測定する手法であり、基板には可能なかぎりOLEDと屈折率が近くなるような特殊な高屈折率ガラス(カメラレンズ用などの市販品で、n=1.6～2.0程度まで、各社ラインナップを揃えている)を用いる。マッチングオイルも、n～1.8の品種を選定する。なお、光学モードとして得られるデータは外部量子効率(EQE)である。Fig.4-9(a)と(b)の測定を同じ蒸着バッチで作成したOLEDに対して行うことにより、基板モードと薄膜モードを分離して実測することが可能である。

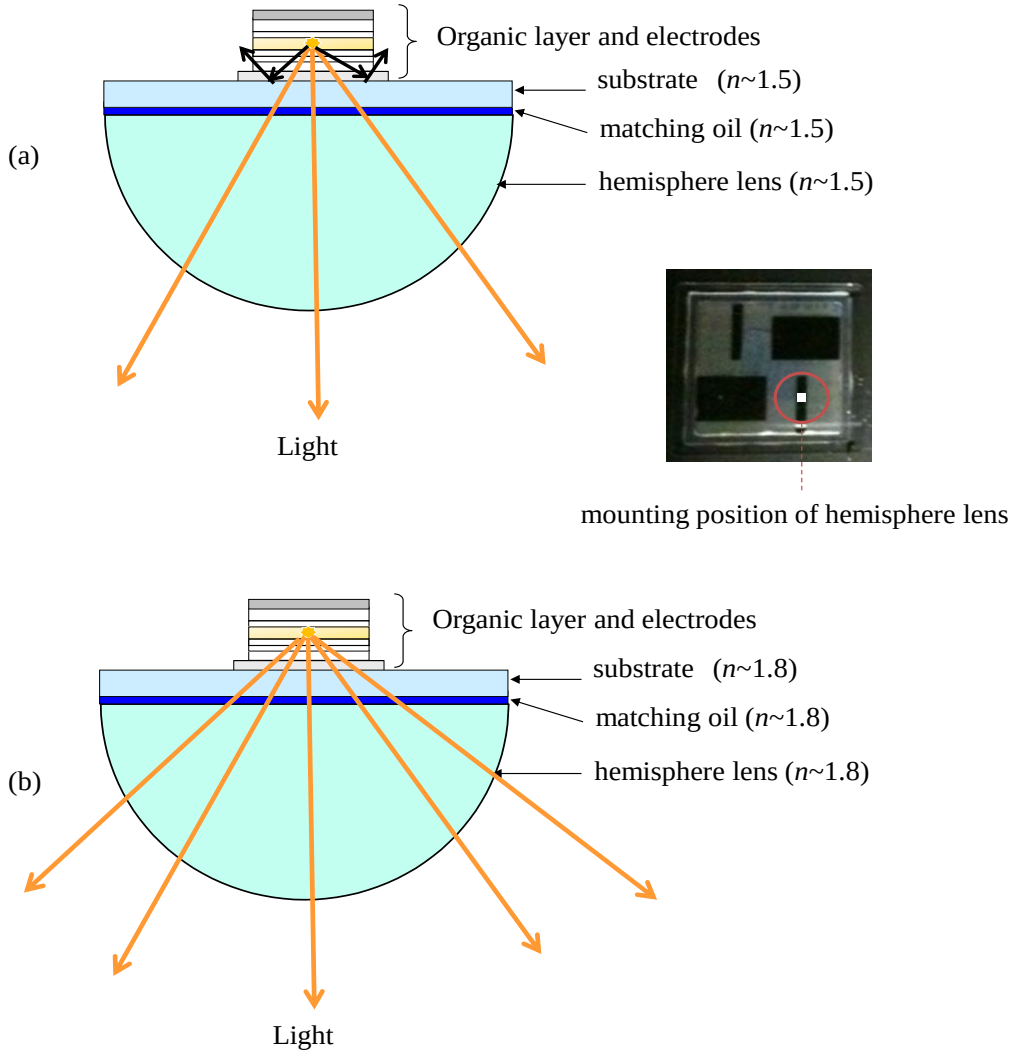


Fig.4-9 Measurement system of optical mode with halfsphere lens

(a) substrate mode (b) waveguide and substrate mode

4.4 OLED素子の配光パターン制御

4.4.1 単色OLEDの配光パターン制御

配光パターンの実際の挙動を確認すべく、Fig.4-2に示したシミュレーションとほぼ同じ光学構造を有する単色OLED構造を試作した(素子構造をFig.4-10に示す)。Fig.4-4において配光が特徴を示しやすい*d*の値を選定した。具体的には、*d*=(a)50nm，(b)100nm，(c)175nm，(d)225nmの4水準を準備した。この構造をTEG基板として形成し、Fig.4-8の測定系で配光パターンと光学モードを測定した。配光パターンは有機発光層内部の配光と、主に有機層／基板および基板／空気の界面で全反射or屈折して得られる外部への取り出し光の配光の2通りのパターンが得られるが、より重要なのは、前者の発光層内部の配光である。この配光さえ押さえておけば、後者の外部への取り出し光の配光パターンは予測可能である。Fig.4-10に、シミュレーションで得た有機層の内部配光パターンとFig.4-9(b)の測定系で得た配光パターンを比較した図を示す。おおよその傾向が一致しており、発光層と金属電極の距離*d*を調整することで配光パターンの制御が可能なことを示唆している。いずれのパターンでも誤差が発生するが、別途計測で求める発光層や基板の屈折率の精度の点や発光位置のずれ（解析では一律同じ*d*としているが、現実には発光層の厚み分の広がりを持っている可能性がある）などが影響していると推察する。次に、光学モード(外部、基板、薄膜モード)の実測-解析比較をFig.4-11に示す。解析結果はFig.4-5のデータである。まず外部モードについては、概ね解析結果と実測結果の傾向が一致している。一方、外部、基板、薄膜全てを合わせた光学モードについては、電極から発光層を離して*d*=50nmから225nmにすることで、狙い通りに大きく値が上昇した(51.5%→74.1%)。但し、*d* ≧100nmの領域で、SPP抑制効果による効率向上の傾向が解析結果よりも実測結果の方が小さいことが確認された。この理由について、主に以下に挙げる二つの理由があると推察した。まず一つ目は、有機膜自身の吸収による影響である。本検討では*d*を調節するために電子輸送層(ETL)の膜厚を調整しているが、この膜自身にわずかでも吸収が存在すると、*d*の増加とともにロスが大きくなる。今回用いたETLは膜単独の計測でほとんど吸収が現れない（消衰係数:*k*≒0）レベルであるため、解析では有機膜自身に吸収がないことを仮定している。二つ目はキャリア注入バランスの悪化である。ETLを厚くすることで電子輸送側からの注入量が変化し、内部量子効率(IQE)が悪化しているケースである。本測定では内部量子効率と光取り出し効率の切り分けが難しく、結果的に解析との誤差要因として生まれている可能性がある。発光層と陰極の距離を大きくすると効率が向上する結果が得られたため、*d*を大きくする方針でOLED構造の設計を進める。その際、電子輸送層の膜厚が厚くなると必然的にデバイス抵抗が高くなるので、可能なかぎり移動度が高く、かつ正孔輸送側からとのキャリアバランスが取れる材料を選定する。同時に当然光学吸収の少ない材料を選定することが肝要である。

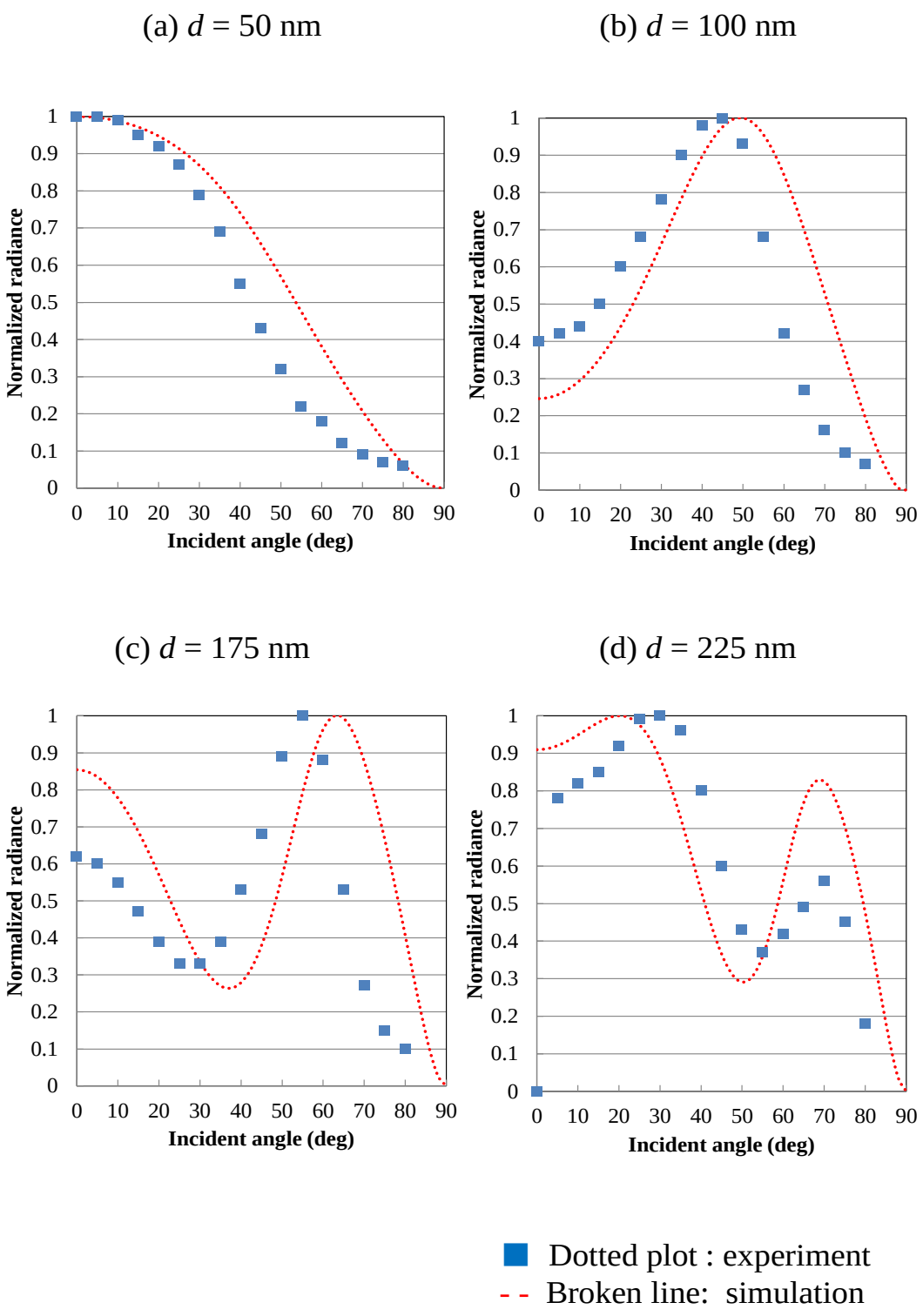
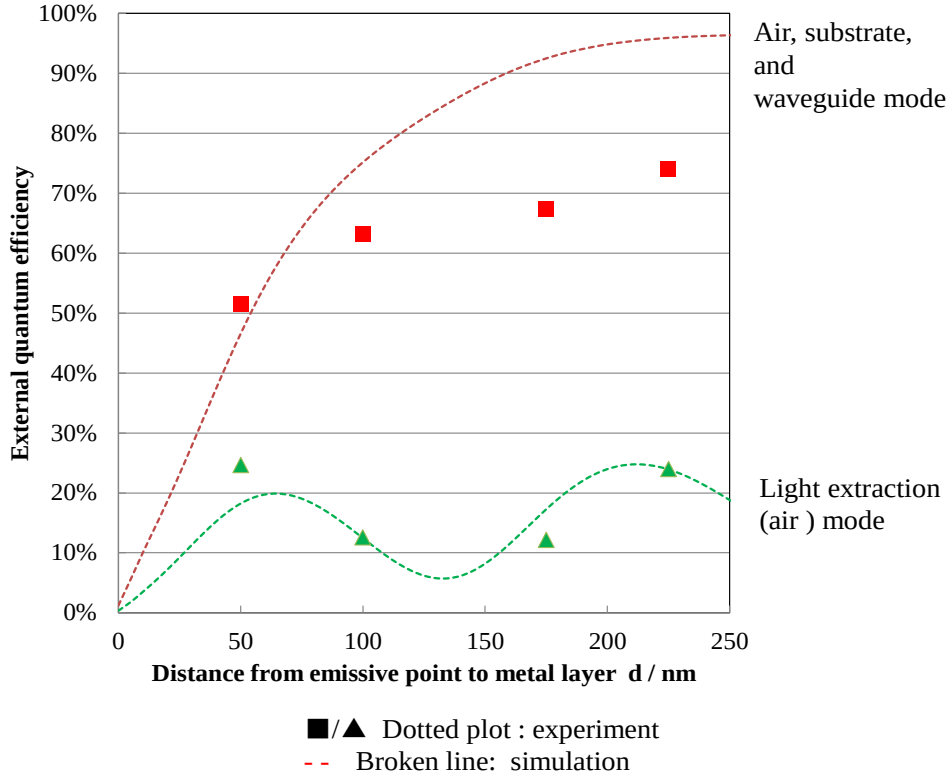


Fig.4-10 Experiment and simulation results of angular distribution with various d



Experiment condition:
Current density : 0.5 mA/cm^2,
Pixel area: 4 mm^2 (substrate and waveguide mode) / 100 mm^2 (air mode)

Fig.4-11 Experiment and simulation results of optical mode with various *d*

4.4.2 マルチフォトン構造を有する白色OLEDの配光パターン制御

本節では、実際に一般照明やディスプレイのバックライト用途で用いられる白色OLEDの配光パターン制御について述べる。デバイス設計を論じる前に、白色光源に求められる特性についての概略を示す。OLEDに限らず、照明などの発光デバイスに求められる性能は大きく、(1)発光効率、(2)色性能（色度、演色性）、(3)寿命が挙げられる。

(1)発光効率

電気エネルギーが光エネルギーに変わって空気中に取り出される外部量子効率がもっとも重要な指標であるが、特に照明デバイスでは、得られた光出力を実際にヒトの目に見える光量に変換したときの効率が重要視される。ここで、比視感度（photopic luminous efficiency function）の導入が必要となる。比視感度とは、ヒトの目が光の各波長ごとの明るさを感じる強さを数値で表したものである。 明るい場所に順応したときに、ヒトの目が最大感度となる波長での感じる強さを1として、他の波長の明るさを感じる度合いをその比となるよう、1以下の数で表したものである。 明るい所では555nm付近の光を最も強く感じ、暗いところでは507nm付近の光を最も強く感じるとされる。国際照明委員会（CIE）と国際度量衡総会では、ヒトの比視感度の平均から世界標準となる「標準比視感度」が規定された。なお、特に断らない場合は、視感度といえば明るい環境でのヒトの目の感じ方である明所比視感度のことを指す。Fig.4-12に、明所視および暗所視における比視感度曲線（それぞれ、$V(\lambda)$ $V'(\lambda)$とおく）を示す[111]。実際に発光素子から得られた光出力を発光スペクトルに分解し、上記の比視感度特性を掛け合わせて得られる数字が光束(lm、ルーメン)という量で算出される。具体的には、光束φ_v [lm]は式(4.8)で算出される。

$$\phi_v = K_m \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} \phi_e(\lambda) V(\lambda) d\lambda \qquad (4.8)$$

K_mは最大視感効果度と呼ばれる値でK_m =683lm/Wで規定された数字である。$\varphi_e(\lambda)$が各波長の出力[W]、$V(\lambda)$が(明所視)標準比視感度で、これらを掛け合わせ、可視光領域にわたって積分することによって光束が得られる。λ_1,λ_2はそれぞれ380nm,780nmであり、可視光端波長と定義されている。照明の発光効率は投入した電力あたりの光束（単位：lm/W）で評価されるのが一般的である。白熱電球が約10 lm/W、蛍光灯が60～100 lm/W程度の効率となっており、固体発光素子には少なくともこれらの値を上回る発光効率が期待される。

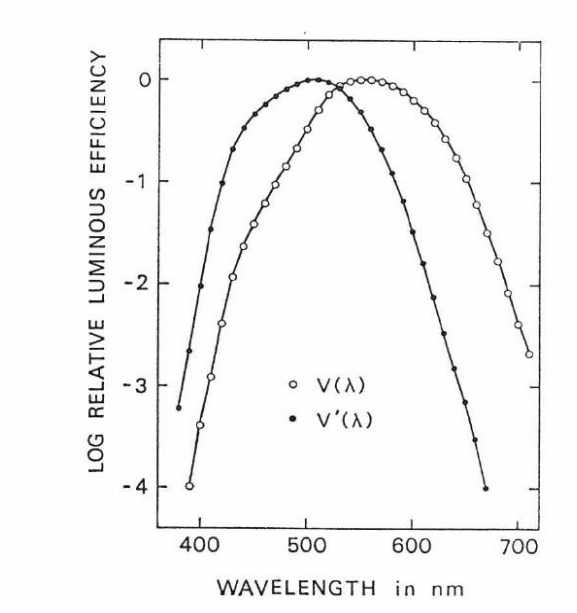
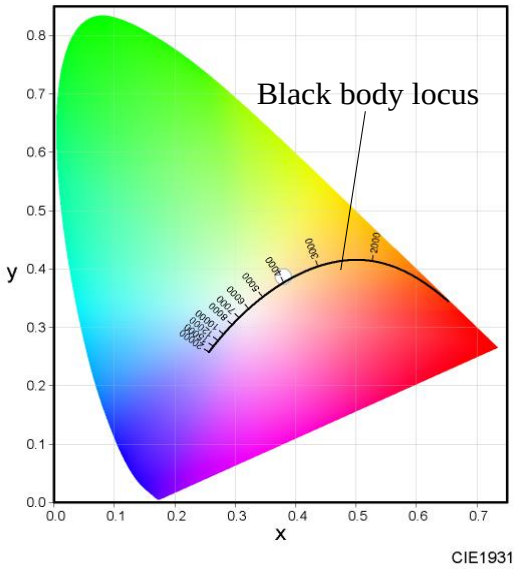


Fig.4-12 Photopic luminous efficiency function curve

(2)色性能

照明の発光色は、現在国際照明委員会(CIE)の規格であるCIE1931のRGBおよびXYZ表色系を元に規定[112)]されている。これらは電磁波の可視光領域における物理的な色と人間の色覚(RGB錐体の分光強度の合成)を組み合わせた実験結果をベースに定量的に空間表示した指標で、Fig.4-13(a)に示すようなxy座標空間で表現される。この色度座標上で白色光として定義されるのは、Fig.4-13(b)に示したENERGY STAR®が規定した領域[113)]となる。なお、Fig.4-13(a)および(b)の中央付近の曲線は黒体軌跡(black body locus)と呼ばれ、さまざまな絶対温度における黒体からの放出光に対して相対分光分布データから色度(x,y)を計算してxy色度図上に示した曲線である。照明の相関色温度(correlated color temperature: CCT)はこの黒体軌跡に基づいて規定され、CCTが低いほど赤みが強く、色温度が高くなるにつれて青白くなる傾向となる。もう一つ、白色光に求められる重要な色指標に演色性が挙げられる。演色性とは、物体の色の見え方に及ぼす光源の性質のことで、照明においては極めて重要な特性である。この演色性を定量化した指標がCIEで定められている[114)]。中でも代表的な指数が平均演色評価指数(average of rendering index: Ra)である。100が最高値でもっとも色再現性が高い値となり、太陽光や熱放射を利用した光源(白熱電球やハロゲンランプなど)のRaは100となる。一般的な照明ではRa>80が求められ、美術館や博物館など、高度な色再現性が問われる用途ではRa>95レベルの照明光源が求められる。

(a)



(b)

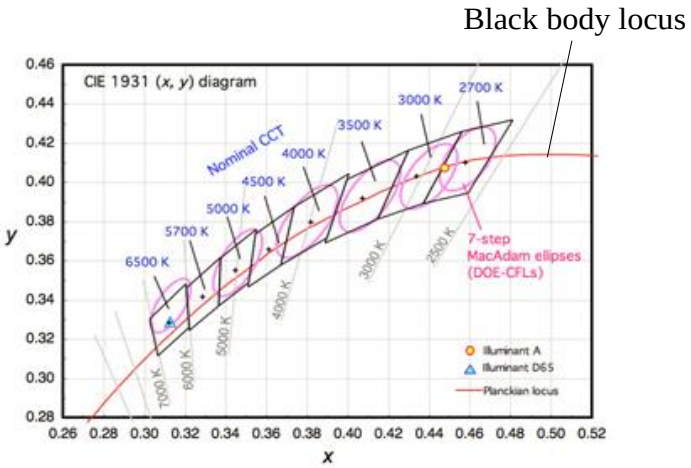


Fig.4-13 Light color region definited by (a)CIE1931[112)]/(b) ENERGY STAR®[113)]

(3)寿命

発光光源は連続使用時間とともに輝度や光束が低下する。材料やデバイス構造によって劣化モードはさまざまであるが、いずれにしても輝度や光束が低下することを前提に、最低限の保証寿命を定める必要がある。一般的には、輝度または、光束が初期の70%、または50%になるまでの時間を寿命と呼ぶことが多い。白熱電球では1,000時間程度、蛍光灯では10,000時間程度である。これに対し、固体発光素子の寿命は40,000時間以上とされており、この点も普及が加速している要因となっている。固体発光素子の場合は、デバイスの面積あたりに投入する電流(電流密度)が大きくなるにつれて熱影響等により寿命が劣化する傾向となる。これを利用してさまざまな電流密度や温度条件で加速劣化試験を行うことにより、デバイスの推定寿命を得ている。定格電流値で評価すると、24時間連続駆動でも5年以上かかる計算となるためである。

以上の要求事項を踏まえたうえで、白色OLEDデバイスの設計指針を示す。白色発光が得られるデバイス構造は(a)単層型、(b)色変換型、(c)積層型の大きく3つの方式に分類される。(a)単層型は1層の発光層の中に複数色の発光材料を含む構成である。シンプルであるが、色度や演色性にまで配慮して最適な白色発光を得るためには複数の材料の混合量を厳密に制御する必要があり、再現性に課題がある。(b)色変換型は短波長(高エネルギー)の光を長波長(低エネルギー)に変換し、それらの色を混ぜて白色を発現する構成であり、LEDで一般的に用いられている方式である。しかし、エネルギー変換することにより生じるロス(ストークスロス)が大きく、特に広い波長範囲帯が求められる高演色性光源では効率面で不利である。そこで本研究では、(c)積層型、すなわち異なる発光色を有する複数の発光層を含む構成を検討した。そのなかでも、特にマルチフォトン構造(タンデム型)に着目した。マルチフォトン構造は山形大学の城戸教授らのグループで実現された構造で、OLEDの高輝度化と長寿命化という、一見両立が困難な性能を同時に改善するために有効な構造である[115)]。この構造は、電気的に直列接続された複数の発光ユニットを並置するのではなく、同一エリアに設けるものであって、発光ユニットを電極としての機能を有する光透過性の中間層(charge generation layer : CGL)を介して積層することで実現される(Fig.4-14 (a))。この構造を用いると、素子の両端の電極に電圧を印加した際、すべての発光層から発生した光が合算され、同一電流でも高輝度が得られることが特徴である。よって、所定の輝度を得るのに必要な電流が少なくなるため(おおむねユニット数に反比例)、輝度寿命が改善されるとともに、発光輝度の均一化、電源負荷の負担などのメリットが得られる。原理上は、ユニット数を好きなだけ増やすことができ、その分、輝度を上昇させることが可能となる。

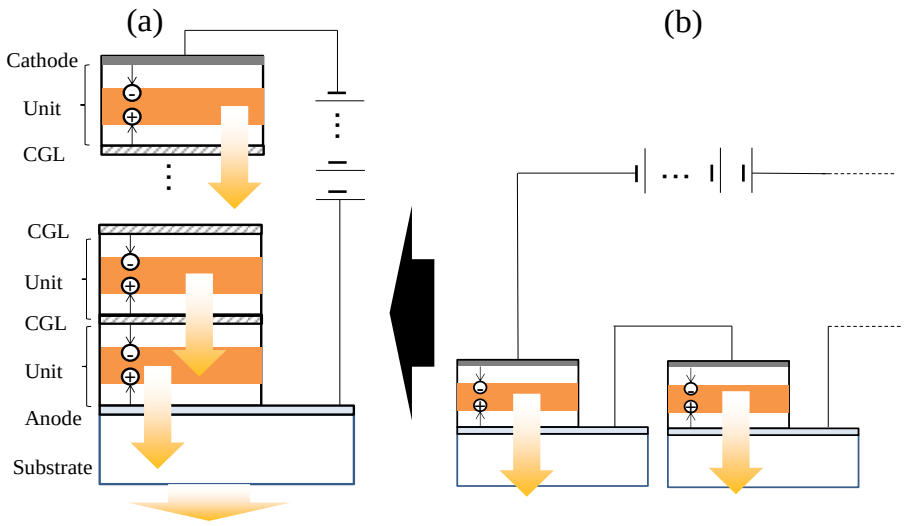


Fig.4-14 Schematic of high luminance OLED structure

(a) Multi-stacked (tandem) (b) Connected multiple

本研究ではこのマルチフォトン型白色OLED構造の発光層に高効率のリン光材料を適用し、オールリン光型白色OLED構造を検討した。リン光青色材料は蛍光材料に比べて寿命に課題があり、現在主流となっていないが、マルチフォトン構造と本研究の光取り出し効率向上により、高輝度を得るために必要な電流を極力抑制し、寿命面のマイナスをカバーして効率を担保する設計思想である。現在実現されているリン光青色材料のピークは470nm付近であり、このスペクトルと赤緑リン光材料を組み合わせて演色性と白色領域の色度を実現可能なのは3,000K以下の低色温度の白色光（いわゆる電球色）である。この白色光における赤：緑：青の発光強度比がおおむね2:1:1となるため、Fig.4-15に示す赤発光材料と青発光材料を混合した発光ユニットと赤発光材料と緑発光材料を混合した発光ユニットを組み合わせたマルチフォトン構造を設計した。特に陰極側に赤＋青ユニットを導入した理由は、波長ピークが異なる影響を最小化する意図である。式(4.5)や式(4.6)が示すとおり、陰極から遠い側のユニットの方が、波長による光路差が大きくなり、最適な*d*値のずれが大きくなるためである。

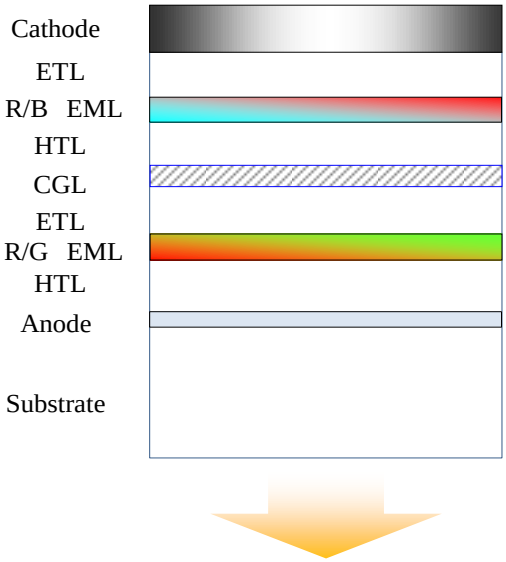


Fig.4-15 Schematic of all phosphorescent RG/RB tandem white OLED structure

まずそれぞれのユニットの望ましい発光位置を検討するため、Fig.4-2に示したシミュレーションモデルでRGB各波長の角度依存性を求め、それらを比較検討した。結果をFig.4-16に示す。また、d=50nm,200nmにおける配光パターンを比較した結果をFig.4-17に示す。

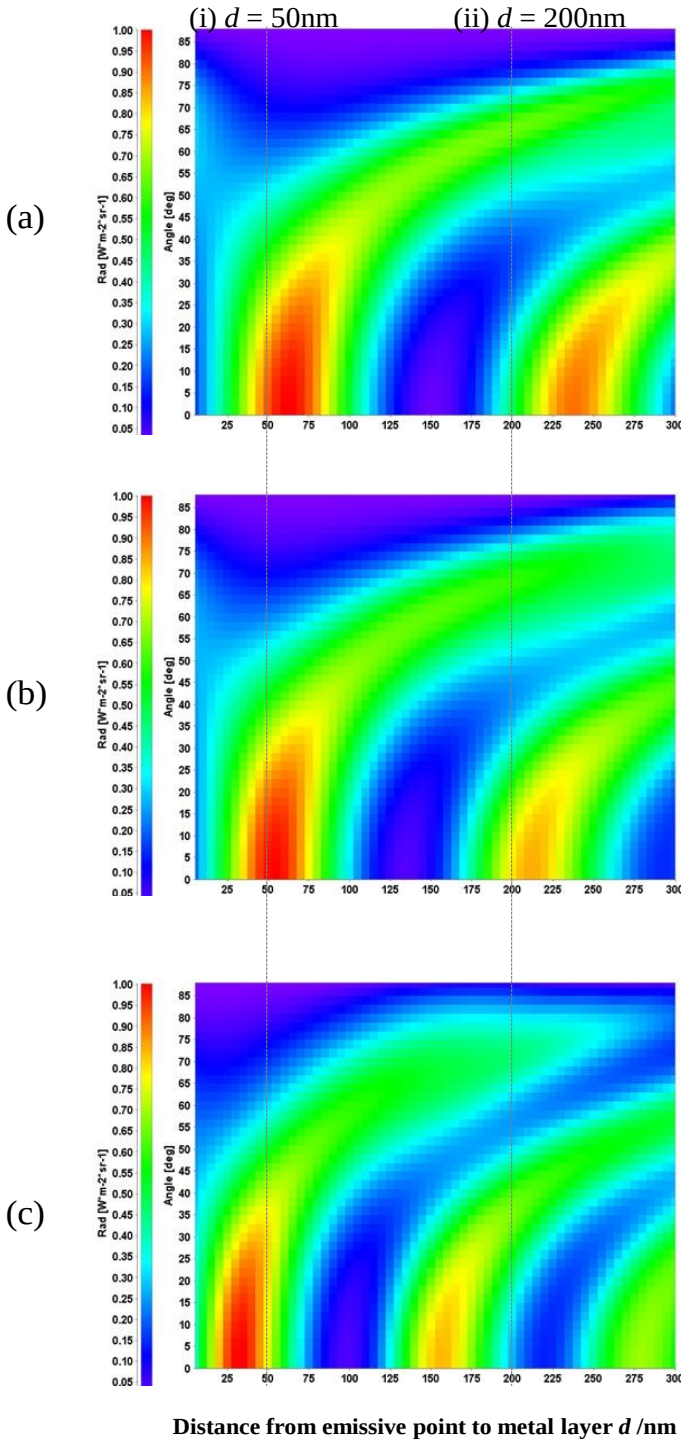


Fig.4-16 Simulation result with the model in Fig.4-2 for R/G/B wavelength

(a) Red (λ=620nm) (b) Green (λ =540nm) (c) Blue (λ =470nm)

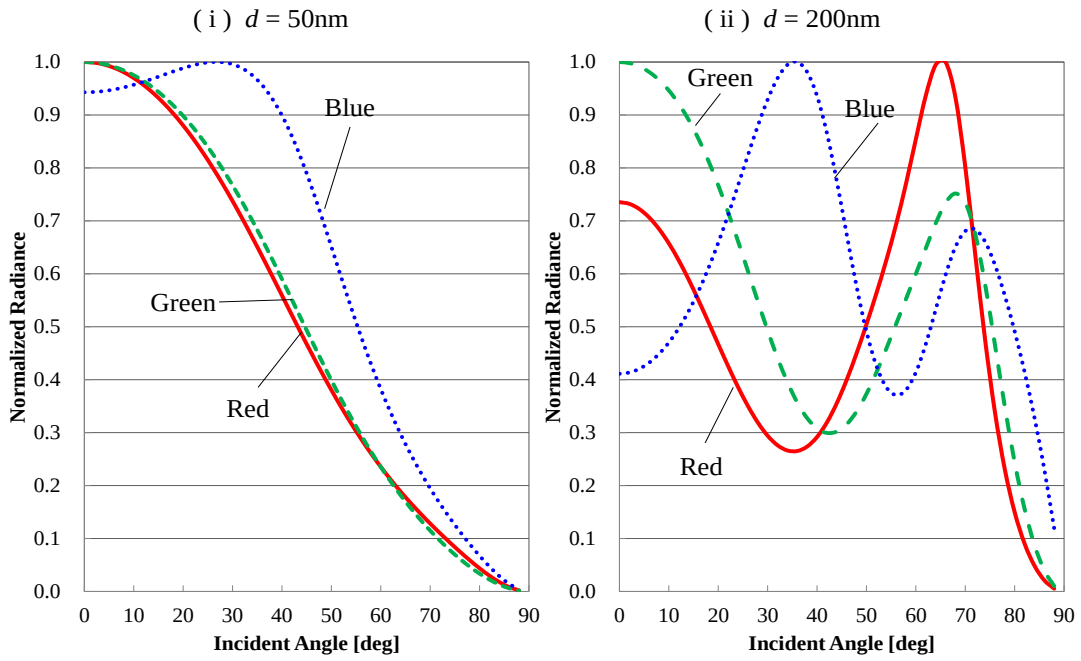


Fig.4-17 Angular distribution at d=50 and 200nm for R/G/B wavelength

Fig.4-16およびFig.4-17の結果から、波長によって干渉条件が大きく変わり、配光パターンの特性が大きく変化することが確認される。この配光パターンの差は、最適配光位置調整の難化や色ばらつき(見る角度の違いによる光色の変化)を強めるおそれがある。但し、比較的赤と緑ではその差異が小さい。これは式(4.1)で表される金属層における位相シフト効果が波長による差異を補償する方向に働き、見かけ上の干渉条件の差が緩和する方向に働いているためと推察する。マルチフォトン構造の場合、中間層やその間の電子輸送層・ホール輸送層で発光層におけるキャリアバランスを調整するために100nm程度の膜厚を要するため、陰極から遠い側のユニットをm=1のピーク位置(d=50nm付近)に配置することが難しく、m=2のピーク位置(d=200nm付近)に設定する必要がある。そこで、Fig.4-15に示したとおり、配光パターンに差が大きいR/Bユニットを陰極に近い側、m=2の位置でも配光パターンの差がある程度小さいR/Gユニットを陰極から離れた側に配置するのがやはりこの場合には適切である。この結果を受けてデバイスを試作し、Fig.4-9(b)の高屈折率ガラスベースの半球レンズを用いた測定系で配光パターンと外部量子効率を測定した。ピーク付近で設計したデバイスAとSPP抑制を意識してdを大きく取ったデバイスBの2水準を作製した。これらのデバイスの発光位置、測定条件、測定結果をTable 4-1に、得られた配光パターンをFig.4-18に示す。

Table 4-1 Sample structures and results

Device	*d* (RB)	*d*(RG)	Voltage	*x*	*y*	EQE	Luminos Efficiency
A	70nm	200nm	5.31 V	0.46	0.46	60.1 %	152.8 lm/W
B	90nm	240nm	5.44 V	0.59	0.39	69.2 %	159.1 lm/W

Current density: 0.6mA/cm^2, Pixel area: 4mm^2 , Color coordinates: measured from front

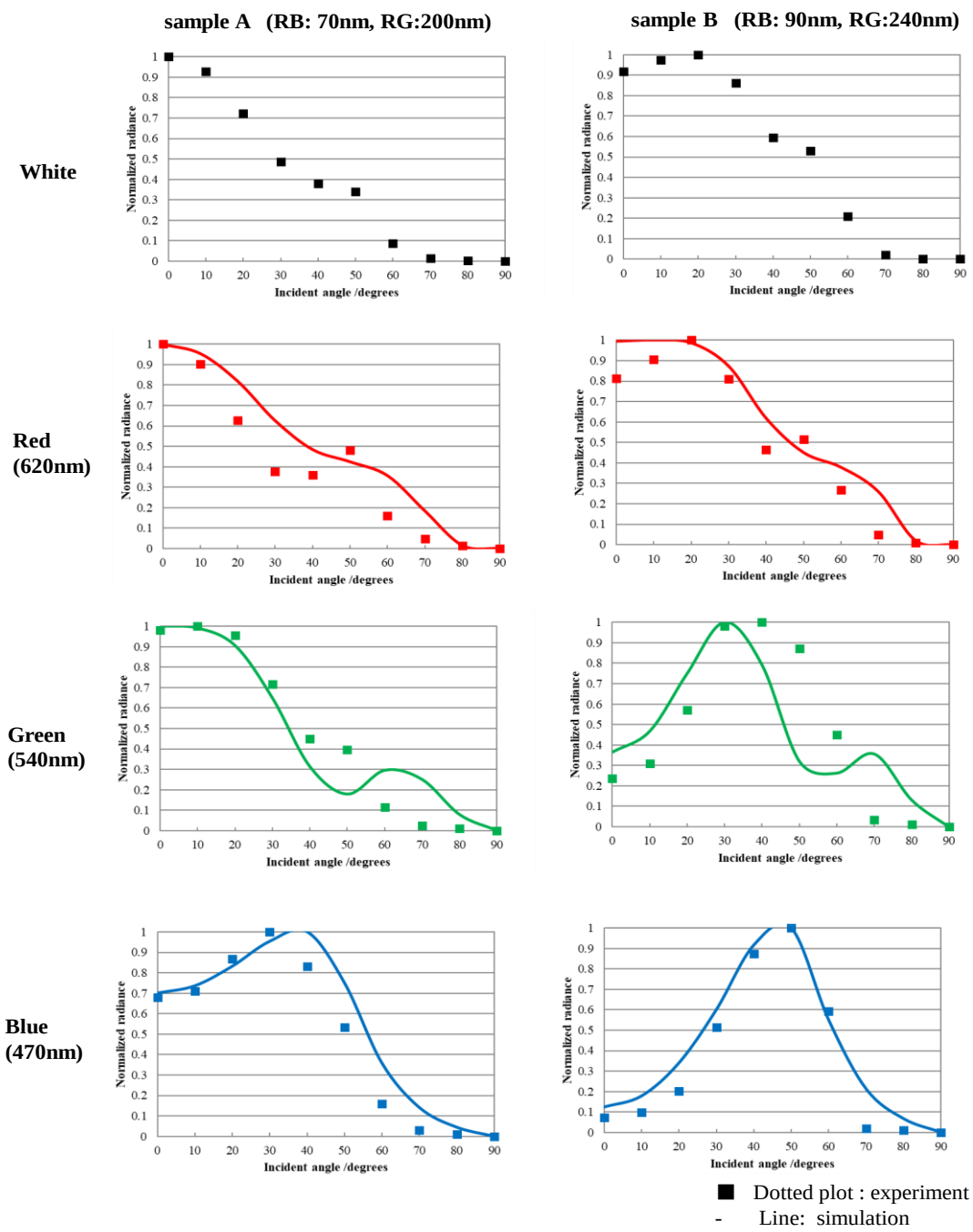


Fig.4-18 Angular distribution of white OLED and R/G/B wavelength

Table 4-1の結果から、狙い通り、d値の増加によりSPPを抑制して効率の向上効果が得られていることを確認した。但し、相反として膜厚が厚くなることによる電圧の上昇と発光パターンの色バランスの崩れによる色度の移動が確認された。特にサンプルBの色度は白色とは言い難いところで、材料濃度の調節による白色座標への再調整が必要となる。一方、Fig.4-18の結果を見れば、発光位置の変化によってトータルの配光パターンが大きく変化していることがわかる。ここでR/G/Bの各ピーク波長に分解した配光パターンを検討する。このうち、Rは両方の光学ユニットに組み込まれているため、仮にRBユニットとRGユニットの発光強度比が1:1と仮定して計算値を得た。GはRGユニット、BはRBユニットのdからのみ計算しているが、OLEDの発光材料のスペクトルはブロードなため、実際にはもう一方側のユニットにもそれらの波長成分が含まれており、誤差が生じる。それでも、おおよそ実験値と解析値の傾向は一致している。したがって、マルチフォトン構造においても、発光パターンの動向をシミュレーションで予測し、制御することが可能なことが示唆された。以上の結果から、これまで本格的に検討されていなかったSPP対策(電子輸送層の厚膜化)が、マルチフォトン構造を用いた配光パターン制御によって白色OLED照明用デバイスでも導入できる可能性を見出した。第5章でさらに光取り出し微細光学構造を適用し、高効率化と色性能を同時に満たす構造を模索する。

4.5 結言

本章では、固体発光素子のなかでも特に制約条件が多く光取り出しのメカニズムが複雑なOLEDデバイスに対し、光源近傍の光学干渉を利用して光源から発する配光パターン（発光の角度強度分布）を制御し、従来研究で取り入れられていない手法を用いて光取り出し効率を向上する可能性を見出した。具体的には、以下の結論が得られた。

1. 外部取り出しモード、基板モード、薄膜モード、SPPモードのすべてを含めた解析が可能な光学シミュレーションモデルを用いて、発光位置と電極の距離が配光パターンと光学モード（効率）の増減に大きな影響を与えることを可視化し、半球レンズを用いた実測結果と概ね傾向が一致することを確認した。
2. 発光位置と電極の距離を大きくすることでSPPモードを抑制し、試作した緑色OLEDデバイスでは効率に寄与する光学モード(SPP以外のモードの和)が増大した。具体的には、発光層と電極の距離dを50nmから200nmに変化させることで、高屈折率ガラス半球レンズを用いたときの外部量子効率(≒上記効率に寄与する光学モードの和)が51.5%から74.1%にまで増加した。差分の22.6%がSPPモードとして損失していた成分である。SPPモードは

広角で金属電極に入射したときに発生するため、通常のOLEDデバイスでは全反射して外に取り出すことが不可能なモードである。すなわち、SPPモードの増減は通常の構造では効率への影響が顕在化しない。しかしながら、本研究では広角で金属電極に入射する成分も含めた光取り出しを検討するため、SPPモードの増減を無視することはできない。

3. 発光位置と電極の距離を大きくすると干渉条件が変化し、より広角成分の干渉が強まる。この成分とSPPモードから変換された薄膜モード成分が、本研究で効率向上を目論むための原資となる。干渉条件で内部の配光パターンも変化するが、その傾向はシミュレーションで予測可能なため、必要に応じて発光位置を微調整することによって制御が可能である。
4. 発光位置調整は白色OLED構造を実現する際に特に重要な考え方である。通常、白色光に含まれる赤、緑、青の光の波長が異なるために干渉条件に変化が生じる。そのため、発光層の位置を一つにまとめた状態では波長ごとに配光パターンが大きく変化し、高品質な白色を得ることが難しい。そこで本研究では、適切な色の組み合わせで発光層を分離し、可能なかぎり配光パターンが色ごとに変化しないようにした。具体的には赤:緑:青=2:1:1の関係に着目し、赤＋緑発光層を金属から遠い側、波長による差が大きい赤＋青発光層を金属に近い側に配したマルチフォトン型白色OLED構造を採用することで、波長による配光パターンの差が発生しにくい構造を実現した。
5. 白色OLED構造においても、金属と発光層の距離がSPPモードを抑制する重要パラメータである。そこで本研究では、距離を通常の設計よりも意図的に大きくした。その結果、半球レンズを用いて計測した外部量子効率は約15%改善(60.1%→69.2%)した。こちらも、実際のデバイス構造では基板内部で全反射する広角入射光を効率よく外部（空気中）に取り出す構造を採用してはじめて効果が発現するため、通常の構造ではこの効果を取り込めない。本研究では、第5章において論じる微細光学構造を用いて、効率改善と白色光の望ましい色特性を同時に達成する解を具現化する。

第5章　微細光学構造による固体発光素子の光取り出し効率向上

5.1 緒言

本章では、固体発光素子の光取り出し効率に大きく寄与する微細光学構造について論じる。第3章で反射率さえ100%にすればどのような微細構造を用いても最終的に光取り出し効率が100%になり、微細光学構造はどのような形状でも可としたが、現実のデバイスでは反射率を100%にするのが困難であることも示した。また、反射層以外に固体発光素子内部の吸収が影響する場合もあり、可能なかぎり固体発光素子内部における光の経路を短くするため、微細光学構造に1回入射するごとの透過率を上げることが非常に重要である。本章では、特にOLEDと微細光学構造の関係を中心に論じる。その理由は、いずれも第2～4章で論じてきた内容に基づくもので、①透明電極や有機半導体層における光の吸収がLEDに比べて多い、②TI-ODRによる反射率向上が材料の制限で困難なため微細光学構造に対する尤度が低い、③マクロな取り出し構造を用いることが困難で微細光学構造の寄与度が大きい、④発光位置調整による配光パターンの制御が比較的容易で検証に適する、の大きく4つある。以上を踏まえ、他の研究報告で論じられることが比較的少ないOLEDの配光パターンと微細構造の関係性に着目し、光取り出し効率を高める手法を検討する。本章で得られた知見は、LEDやLARPなどの他の固体発光素子への展開も十分に可能である。

5.2 高屈折率基板活用の効果（BLES）

第2章でOLEDの光取り出し構造が、OLEDを形成する基板と空気の界面に微細光学構造を設ける外部取り出し構造(external light extraction: ELE)と、OLEDの有機薄膜層と基板の界面に微細光学構造を設ける内部取り出し構造(internal light extraction: ILE)に大別されることを説明した。特にOLEDのポテンシャルを引き出すにはILE構造が必須であるが、凹凸構造に有機薄膜層が追随しなかったり、あるいは凹凸構造を埋めるために形成する平坦層がうまくカバーできずに突起が生じたりするとそこを起点に陰極と陽極の接触がおこり、電流ショートが生じるリスクが高まる。ILE構造でOLEDの信頼性を担保するのは非常に難しい技術とされ、コスト構造にも大きく影響している。そこでILE構造を形成せずに高屈折率のガラス基板を用いて基板側まで全反射なしで透過し、ELEのみで光取り出し効率を向上することも実験的に検討されている[81)]。但し、高屈折率ガラスは本来カメラ用微細光学素子などに用いられる非常に高価な材料で、大面積を要するOLED光源用の基板としては不適である。

そこで本研究ではフィルム材料の活用可能性に注目した。フィルムには高屈折率の材料が存在し、高屈折率ガラスを安価に置き換える可能性がある。また、OLEDはフレキシブルな面光源としての用途も期待されており、フィルム基板への成膜手法も確立されている。一方、OLEDは水

に非常に弱く、通常フィルム基板を用いる場合は基板とOLEDの間に水の浸入を防ぐバリア層（通常は多層膜）を用いるため、光学設計が複雑化する。そこで本研究では、フィルム基板とガラス基板の積層構造基板(built-up light extraction substrate: BLES)を考案し、高効率と長寿命を同時に、かつ安価に実現する可能性のある構造として検討した。Fig.5-1にBLESとそれを用いたOLEDデバイスの概要図を示す。本研究ではフィルム基板へ形成する微細光学構造にMLAを採用し、形成プロセスの一例としてUVインプリント法を用いる。フィルム基板にUV硬化樹脂を塗布し、MLA構造（最終的に必要なパターンの逆パターン）が刻まれたモールド（金属または樹脂製）を精密なプレス装置（インプリント装置）で押し当てた状態でUV照射を行い、樹脂が硬化したのちにモールドを剥離する。モールドにはあらかじめ離型剤が塗布されているため、樹脂から簡単に剥離することができ、モールドの型をフィルム基板に転写することが可能である。次に、透明電極(ITO)をMLA層と反対側の面に成膜する。この際、MLA層を侵さないプロセスを用いる。たとえば、フォトリソグラフィのような薬液によるエッチングを必要としないマスクスパッタを用いることが望ましい。作製したMLA構造と透明電極つきフィルム基板をガラス基板上に実装する必要がある。フィルム単体では水の浸入による影響があるが、ガラス基板およびキャビティガラスで全体を封止することにより水の浸入を抑制可能となるためである。この場合、フィルム基板にはバリア層を必要としない。

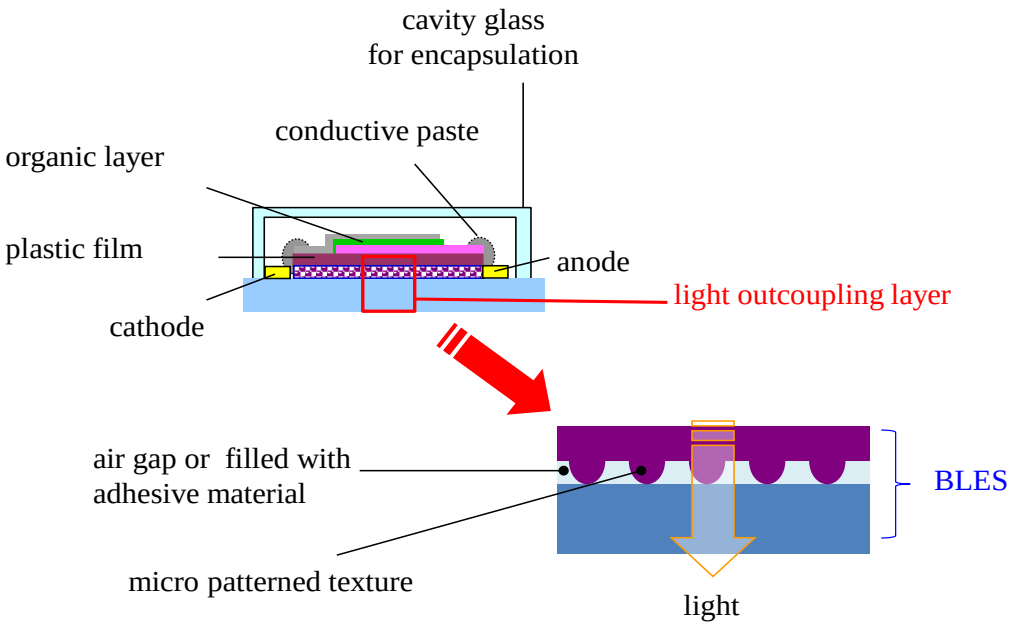


Fig.5-1 Schematic of built-up light extraction substrate (BLES)

ガラス基板への実装時には下記の2点に注意する。一つは、光取り出しのために形成したMLA層の機能を失わせないよう、間に空気層（実際には水を含まない窒素雰囲気の層）、あるいはガラス基板より屈折率が小さい若しくは同等の樹脂材料で埋めて接着する。特に前者は一度MLA構造を通過した光が再びガラス基板層で全反射することがなく、ILE構造と同じ取り出し効果を期待できる。但し、空間を内包するため構造的には不安定となる。後者は逆に安定な構造になるが、ガラス基板と樹脂層の界面における屈折効果が小さく、取り出し効率の面で不利になる。本研究では光取り出し効率の最大化を図るため、まず空気層を設ける構造を優先的に検討した。もう一つは、回路の接続である。蒸着や導電ペーストでフィルム基板とガラス基板の電極を接合する必要がある。BLESの場合は、段差が発生するためペーストの方が親和性が高い。但し、ペーストを用いる場合はアウトガスが極力少ないものを選定する必要がある。アウトガスがOLED層に悪影響を及ぼし、寿命を悪くするためである。本研究では、アウトガスを抑制したAgペーストを用いて接合した。接合後に真空乾燥でフィルムに含まれる水分を十分に除去した後、ふたたび空気中にさらすことなく真空蒸着装置へ移送し、有機薄膜層を成膜する。最後にキャビティガラスで有機層側を封止してデバイスの完成となる。

まず、OLEDデバイスを用いたBLESの効率向上効果の検証を行った。Fig.5-2に、評価に用いたリン光赤緑色OLED構造を示す。微細構造を形成しないサンプルおよび一般的に用いられるELE構造（ガラス基板にMLAフィルムを外貼り）をrefとした。BLESも含めて、Fig.4-6に示したTEGの形態にデバイスを構築した。測定は、Fig.4-7の積分球を用いた系で行い、定格電流密度の2mA/cm^{2}にて評価を行った。

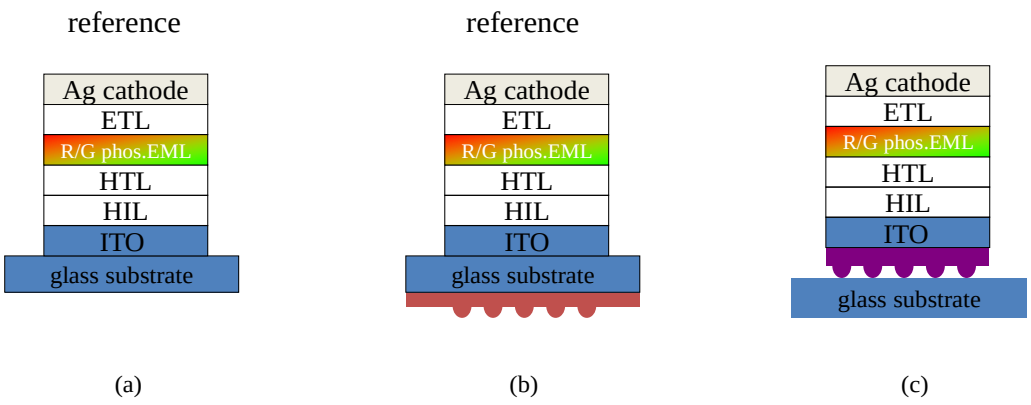


Fig.5-2 Schematic of OLED devices for the evaluation of efficiency enhancement by BLES

(a) blank (without outcoupling structure)　(b) conventional ELE

(c) built-up light extraction substrate (BLES)

まず、フィルム基板に用いる材料の選定を行う。さまざまな屈折率のフィルムをBLES構造に搭載し、その上にOLEDデバイスを成膜して比較評価を実施した。材料の種類としてはPEN(ポリエチレンナフタレート、*n*=1.77)、PET(ポリエチレンテレフタラート、*n*=1.65)、PC(ポリカーボネート、*n*=1.59)の3種類を選択し、refのELE構造と同じTable3-1のアスペクト比1:1のMLA-3に統一して比較した。MLA層の構成材料にはアクリル樹脂(*n* =1.49)を用いた。Fig.5-3に評価結果を示す。ELE構造で得られた外部量子効率を1とした場合に、PEN,PET,PCでそれぞれ1.21, 1.15, 1.10の倍率になっている。高屈折率のフィルムほど光取り出し効率が高くなる傾向が明らかであった。

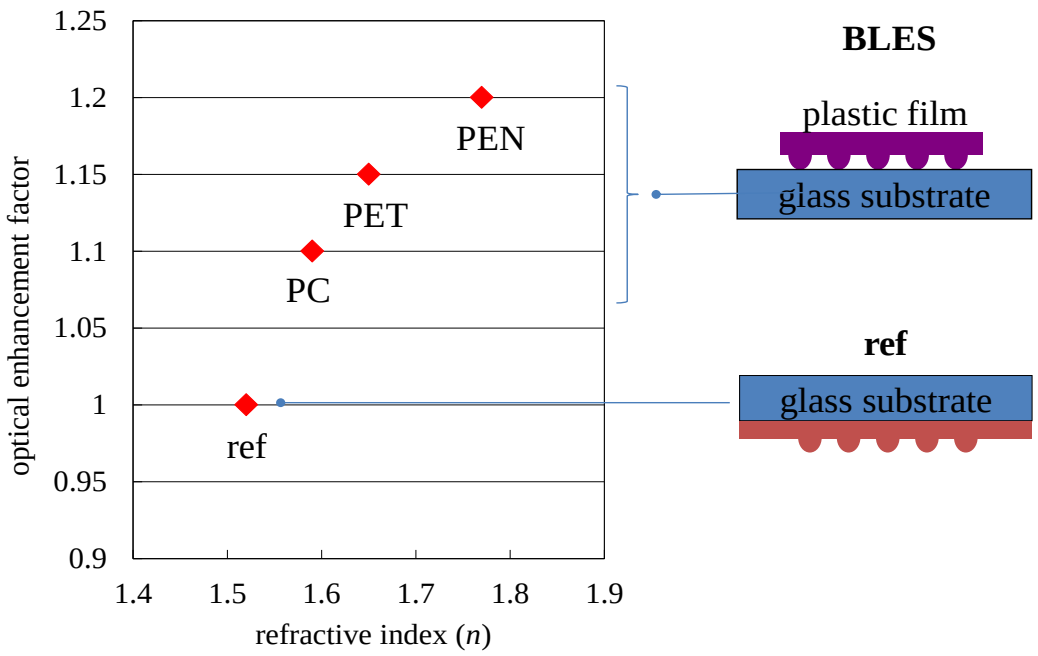


Fig.5-3 Efficiency enhancement of OLED with various refractive index plastic films

次に、選定したPENフィルムに塗布するUV硬化インプリント樹脂の屈折率を、フィラー（高屈折率ナノ粒子）の調合比率により変化させ、n=1.49, 1.65, 1.77に設定した。その結果、Fig.5-4に示すとおり、屈折率の高い基板ほど光取り出し効率が顕著に向上することが明らかになった。いずれの結果も、基板と有機層、および微細光学構造と基板の間の全反射が抑制され、光取り出し効率が改善したと推察する。但し、基板と光取り出し層の間の面が完全に平坦であれば、n=1.49の光取り出し層だけでは基板の屈折率が変化しても光取り出し効率が向上しない。僅かな凹凸の存在によって基板の屈折率のみで光取り出し効率が向上し、さらに微細光学構造の屈折率を上げることで、光取り出し効率が増したと考えられる。今後、特にことわりのないかぎり、BLES基板はPENフィルムと、n=1.77の樹脂を用いた微細光学構造層で構成する。

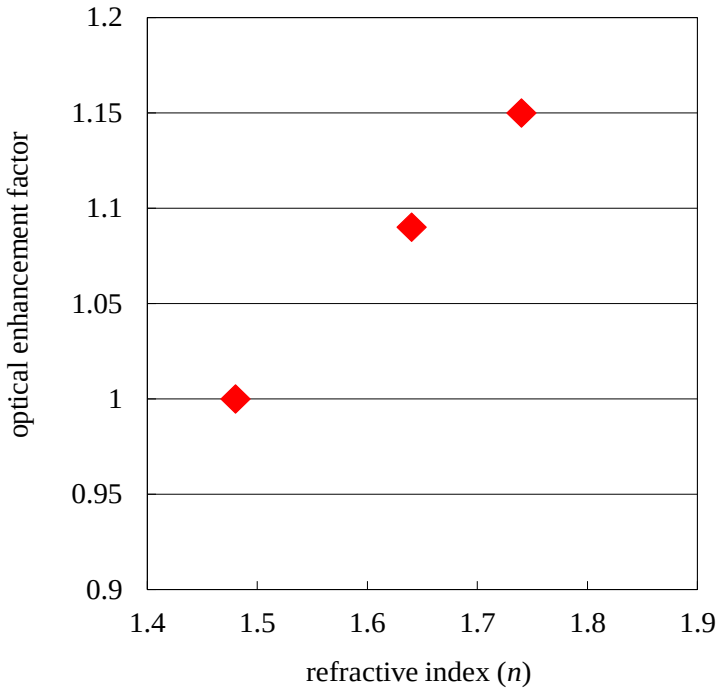


Fig.5-4 Efficiency enhancement of OLED with various refractive index MLA

次に、Fig.5-2の(a),(b),(c)に対して選定した材料を用いたデバイス評価を行った。測定結果をFig.5-5に示す。作製したBLES基板は、ブランクのサンプル(a)に対して約2.1倍、(b)従来のELE構造に対しても約1.3倍の効率を示した。(b)では有機薄膜層とガラス基板層の界面で全反射する光が取り出せないのに対し、BLESは基板の屈折率が高いために薄膜層からの光も取り出すことが可能なため、高い光取り出し効率を示したと推察される。実質的に、BLESはILE構造をELE構造の形態で実現している。

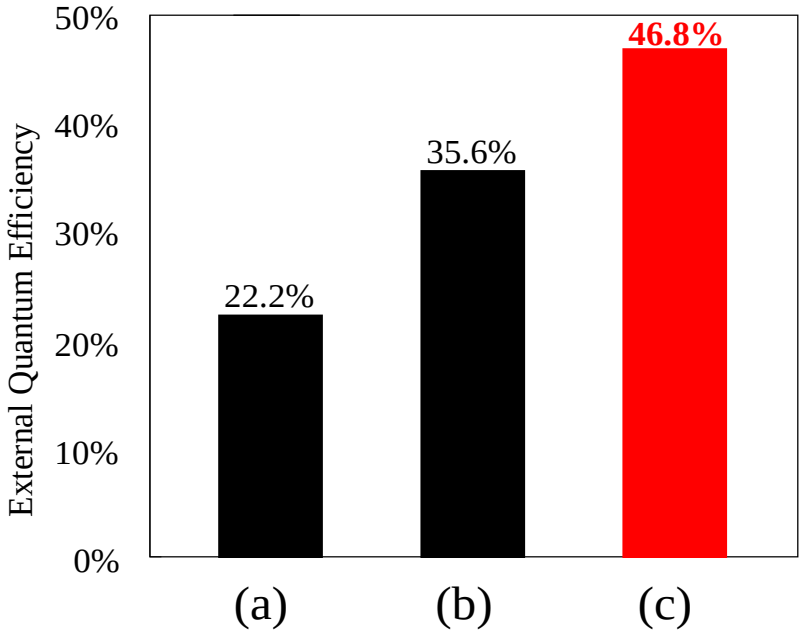


Fig.5-5 External quautum efficiency of fabricated OLED devices

(a) blank (b) conventional ELE (c) BLES

さらに、BLES構造の寿命特性評価を行った。Fig.5-6に、通常のガラス基板とBLES構造の寿命特性を比較したグラフを示す。電流密度を定格の10倍、20mA/cm^{2}にて連続点灯試験を行い、一定間隔で輝度を継続的にモニターした。試験結果より、2,000時間までほとんど輝度劣化の特性が変化していない。定格2mA/cm^{2}における寿命は、電流密度の1.5乗に比例する経験則から見積もられ、輝度70%寿命がRefおよびBLESでそれぞれ5.6万時間、5.4万時間と見積もられた。RefとBLESで、寿命はほぼ同等であることが確認された。これはLEDに匹敵する寿命であり、BLESを用いた高効率OLED素子は照明光源として利用可能である。なお、光取り出し効率を向上すれば必要な輝度を得るための電流密度を低減することが可能なため、実際にはRefよりも寿命が改善したと言える。

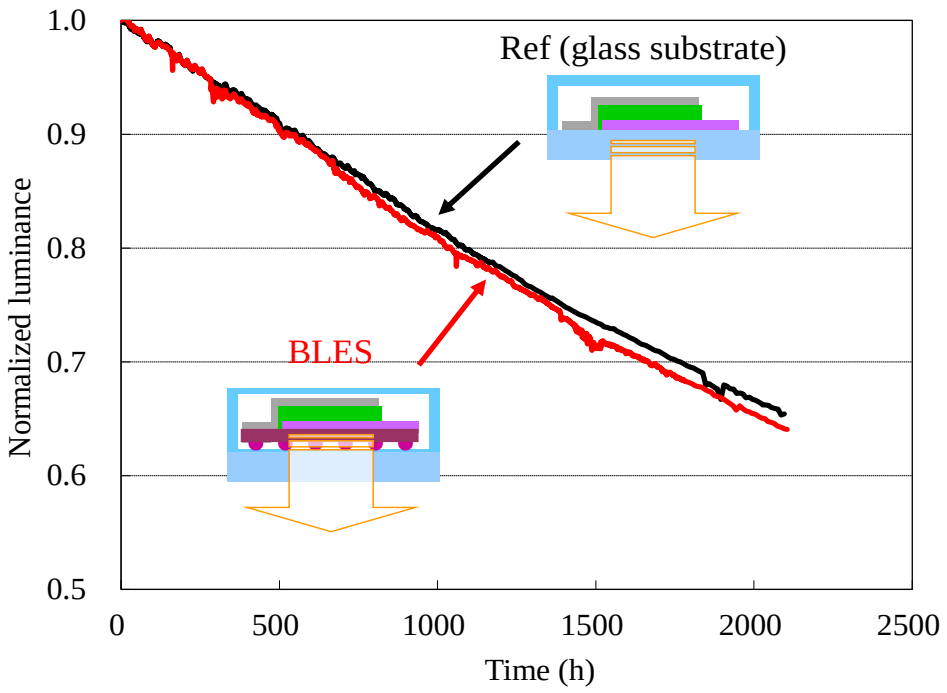


Fig.5-6 Lifetime comparison of OLEDs with and without BLES

5.3 配光パターンと微細光学構造のマッチング

第2章、第4章で示したように、OLEDの内部では発光層を陰極に近づけた際にSPPの影響が避けられない。SPPの影響をダイレクトに抑制するための微細光学構造を陰極と素子の間に導入する手法[61)62)]なども提唱されているが、発光層周辺構造が非常に複雑となり、凹凸に起因する電流リークなど信頼性の特性に悪影響を及ぼす。本研究では、第3章で述べたとおり、マルチフォトン型素子などを用いて電極と発光層を物理的に離すシンプルな手段を選択する。但し弊害として配光パターンが変化し、特に広角側に偏重する。通常、広角側の配光成分は全反射の観点から光取り出し効率が悪くなる。そこで本節では、OLED素子内部の配光特性とBLES構造に形成する微細光学構造パターンの最適なマッチングを図り、光取り出し効率を最大化するための指針を示す。まず光線追跡法による光学シミュレーションで傾向を把握する。解析ツールは、Synopsis社のLightTools8.5を用いた。Fig.5-7に解析系を示す。

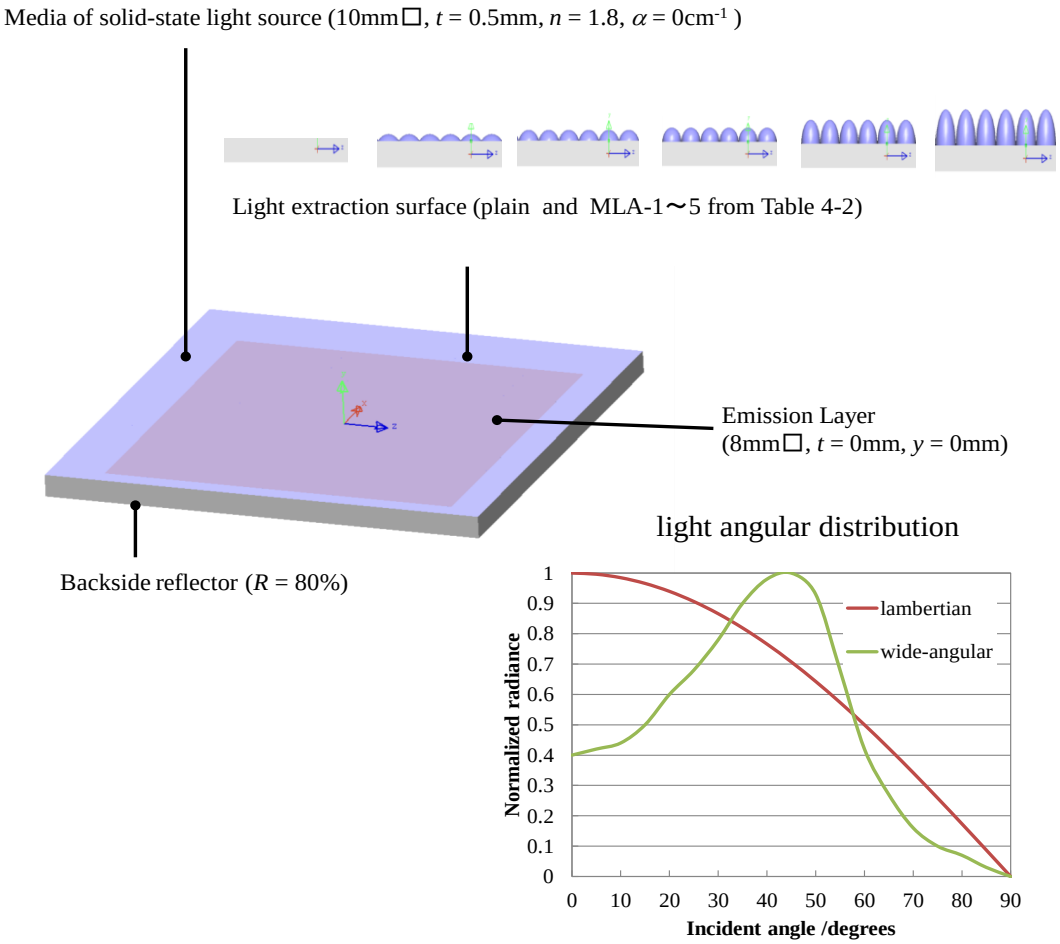


Fig.5-7 Ray-tracing simulation model for calculating the light extraction efficiency dependence between MLA aspect and light angular distribution

光線追跡法を利用する理由は、対象とする微細光学構造が光の波長より十分に大きく、光を光線とみなすことが可能であるためである。回折格子のように微細構造をナノサイズまで小さくする選択肢もあるが、波長依存性が大きいために本研究で対象とする照明用光源としては不適と判断した。解析のパラメータとして、光源の配光および表面微細光学構造を設定した。光源の配光は、一様配光(ランバーシアン)と広角側に偏った配光の2種類を設定した。広角側に偏った配光は、緑色OLEDで実際に測定したFig.4-10のd=100nmのパターンを用いた。微細光学構造は、Table3-2に示したアスペクトの異なるMLA5種類および平坦層を用いた。物理サイズはFig.3-1と同等のモデルを用い、実際のOLEDデバイスに即して屈折率を1.8、ミラーの反射率を80%と置いた(光吸収も含めて考慮)。結果をFig.5-8に示す。屈折率界面が平坦(アスペクト0のとき)は、広角成分(n=1.8とn=1の界面では34度以上)がすべて全反射するため、明らかに広角配光の方が不利であり、光取り出し効率の差が顕著である。ここにMLA構造を導入すると両者の差は小さくなる。広角成分もMLA構造から直接取り出されるか、あるいは、屈折による角度変化によって裏面反射の後で再度界面に到達したときに取り出されるためである。アスペクト比をさらに上げていくと、1を超えるあたりから広角配光の方が光取り出し効率が向上する現象が確認された。これは、アスペクト比の高いMLA構造は曲率が非常に大きくなり、むしろ浅い角度で入射した光が全反射しやすくなるためと推察される。本シミュレーション結果から、SPPを回避するために広角配光成分を発生する場合でも、MLA構造のアスペクト比を変化させることで、同等以上の光取り出し性能を得られることが認められた。

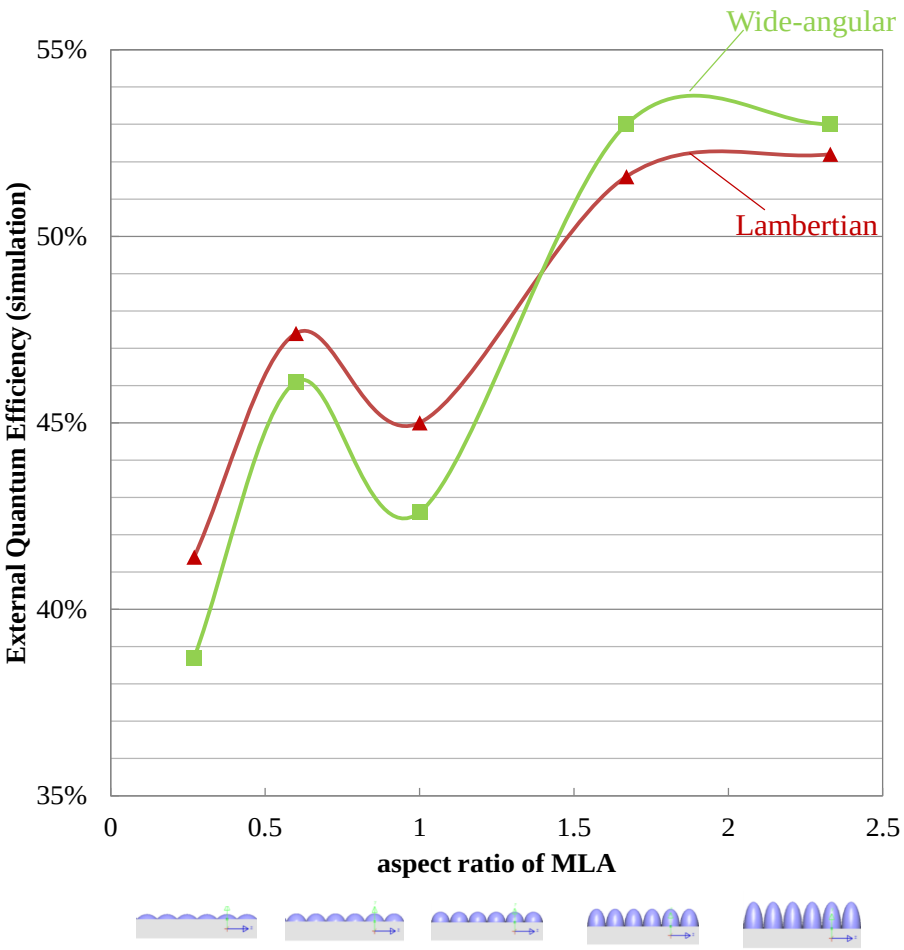


Fig.5-8 Simulation result of dependence between MLA aspect and light angular distribution

5.4 白色OLEDデバイスの高効率化

ここまで得られた知見を生かし、白色OLEDデバイスの高効率化を試みた。まず、TEGデバイスにて効率向上効果を検証する。Fig.5-9に試作したデバイスを示す。発光層は第4章で検討したRBユニットをRGユニットを組み合わせた白色マルチフォトン構造を適用した。発光位置は、Table4-1に示した構造と同様のサンプルを2種類を準備した。基板はBLES構造および高屈折率ガラスを用いて基板に到達する発光のうち、BLESを用いて空気中に取り出せる光の効率を測定した。なお、BLESの表面に形成したMLA構造は、Fig.5-8のシミュレーション結果を元に、アスペクト比の高い構造を選定した。Fig.5-10に形成したMLAをSEM(Scanning electron microscope)で観察した断面を示す。水平方向の直径が約6.5μm、高さが約5μmのため、アスペクト比は約1.6である。

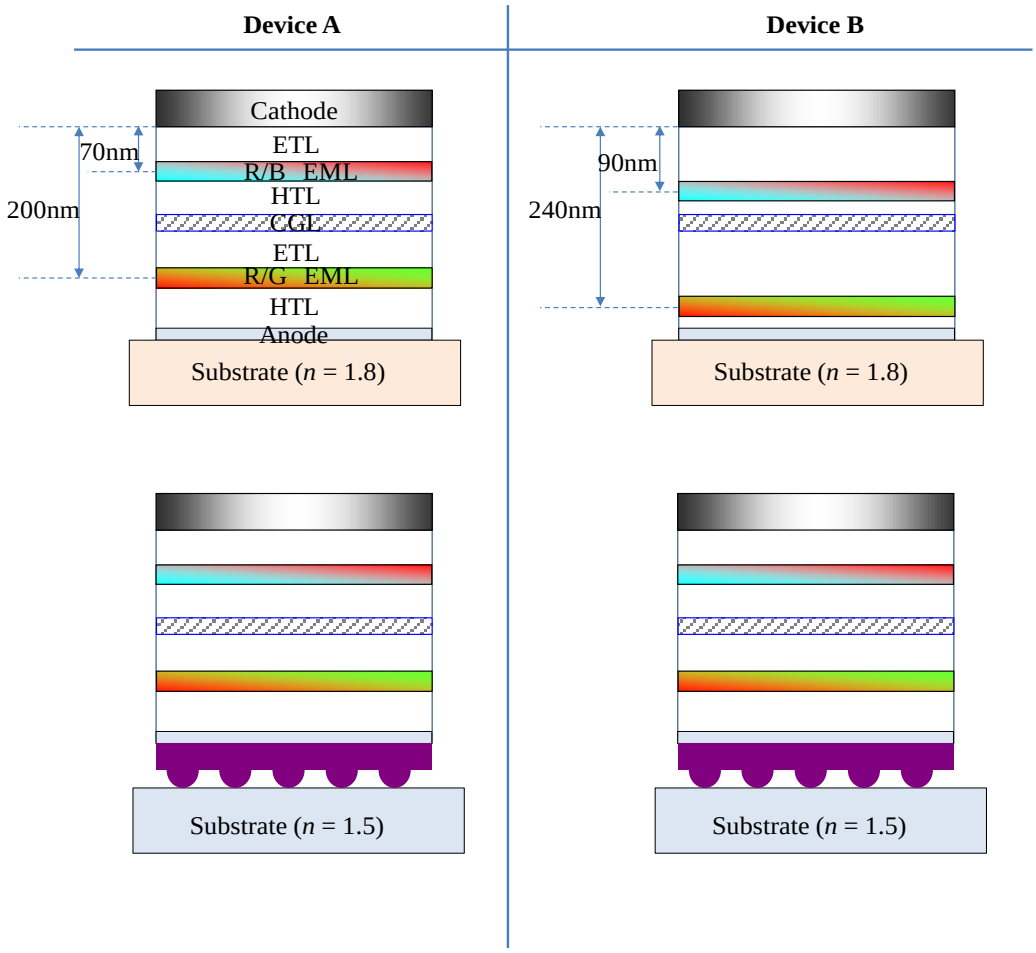


Fig.5-9 RG/RB white OLED devices with BLES and high index glass

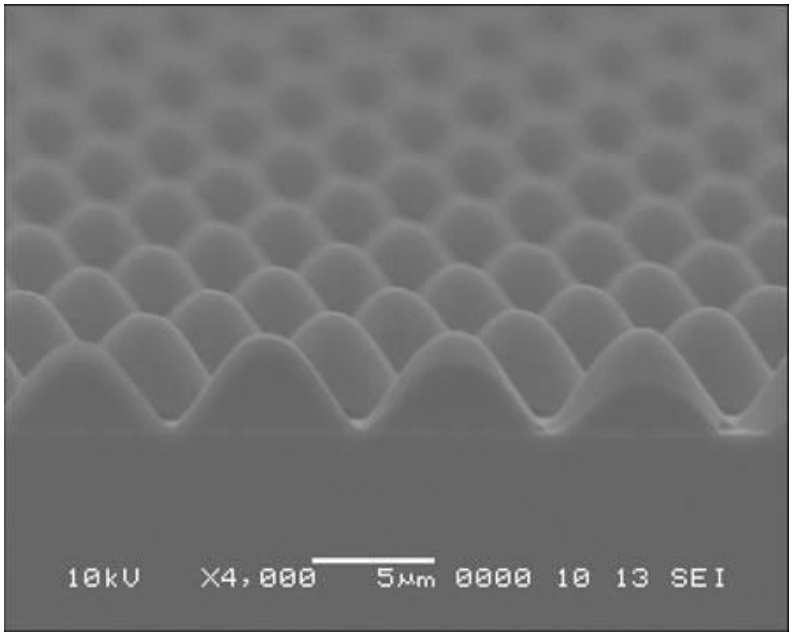


Fig.5-10 Cross sectional SEM image of MLA structure on BLES

Table 5-1に、Fig.5-9に示したデバイスのブランク（高屈折率ガラス）、BLES構造、および高屈折率ガラス＋半球レンズ(Fig.4-9(b))の外部量子効率を測定した結果を示す。デバイスBの方が発光位置を陰極から離したため、広角出射成分が増加していることから、ブランク状態の効率が低い。しかしながら、BLESおよび高屈折率レンズの結果は逆転している。この向上効果はSPPを抑制した効果が主と考えられるが、光取り出し構造がマッチングしていない場合はその分がロスとなってしまう。そこで、BLESで得られた外部量子効率を半球レンズで測定した外部量子効率で割り、基板に到達した光のうちMLAで取り出された割合を把握した。その結果、デバイスAとデバイスBでそれぞれ、81.1%、81.4%でほぼ同等と求まった。したがって、広角出射配光パターンとMLA構造のマッチングによって、SPPを抑制した増分がそのまま外部まで取り出せていることが明らかとなった。

Table 5-1　Experimental results of RG/RB white OLED TEG devices

Substrate	EQE (%)	
	Device A	Device B
n = 1.8 blank	22.2 %	19.2 %
BLES	48.5 %	53.4 %
n = 1.8 with lens	59.8 %	65.6 %

以上で得られた設計をベースに、照明用白色OLEDパネル(発光面積100mm^2)を作製した。第3章で述べた効率以外の照明の主要特性である色度、相関色温度、演色評価係数(Ra)にも配慮し、発光層位置以外に発光層に含まれるR/B及びR/Gのドーパント濃度比の調整を行った。作製したパネルの概観図をFig.5-10、色度座標をFig.5-11、発光スペクトルをFig.5-12、主要特性(輝度1,000cd/m^{2}のとき)をTable 5-2に示す。パネルは面積100cm^{2}の領域で均一に発光していることが確認された。まず効率面では外部量子効率が56%、発光効率は133 lm/Wが得られ、市販されているLED照明(面光源タイプ)と同等以上の性能を示した。色性能は、色度座標が白色光として定義されるENERGY STAR®の規定領域[113)]内にあることが確認された。さらにRaは80を大きく超えており、一般照明として十分に使用可能な光の質と言える。寿命特性については、パネルと同時に作製したTEG基板の連続点灯試験結果から、70%寿命が4万時間以上、50%寿命が15万時間以上あることを確認した。光取り出し効率の向上が投入電流を抑制している相乗効果も大きく寄与している。

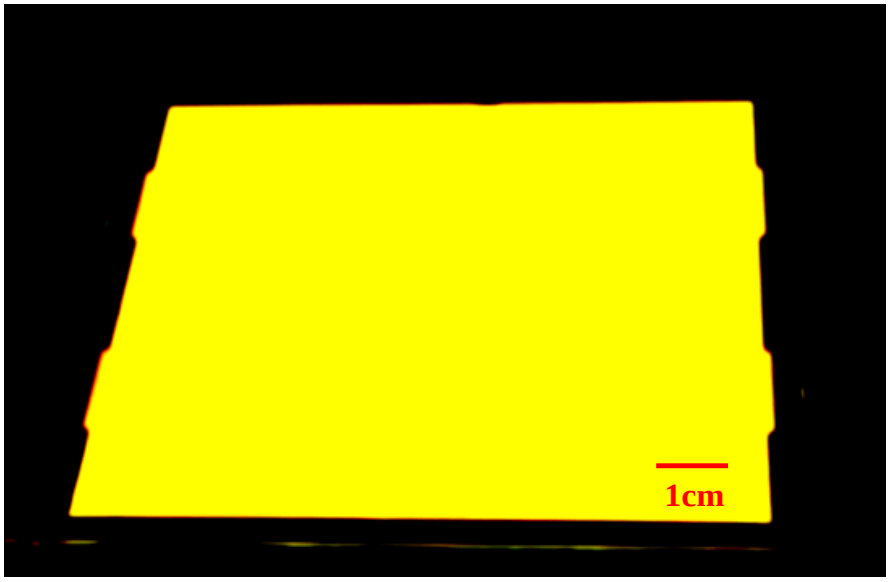


Fig.5-10 Appearance of luminescence of fabricated OLED panel

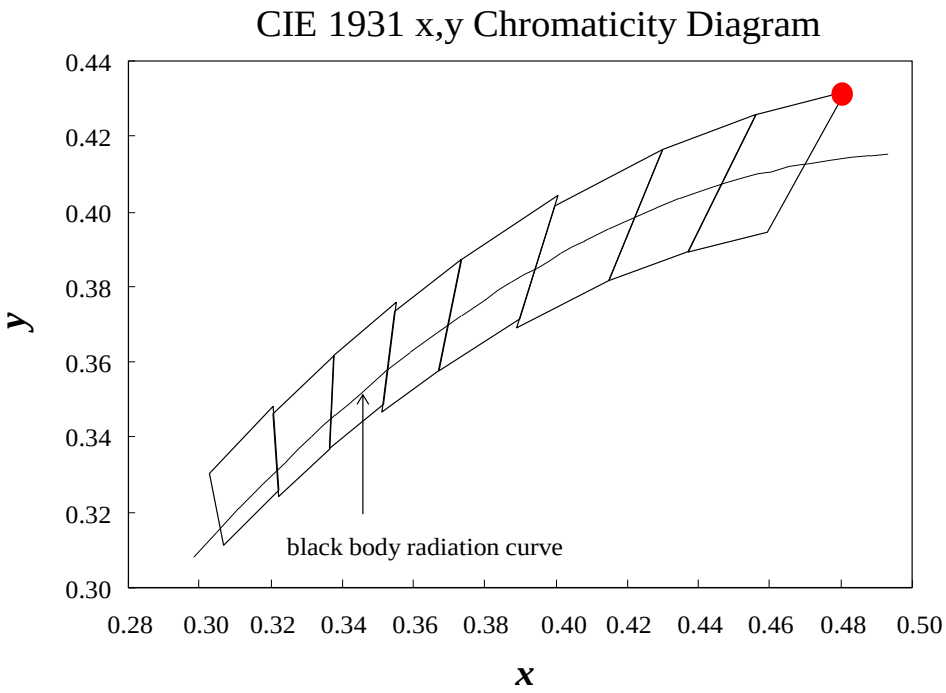


Fig.5-11 Color coordinates of fabricated OLED panel

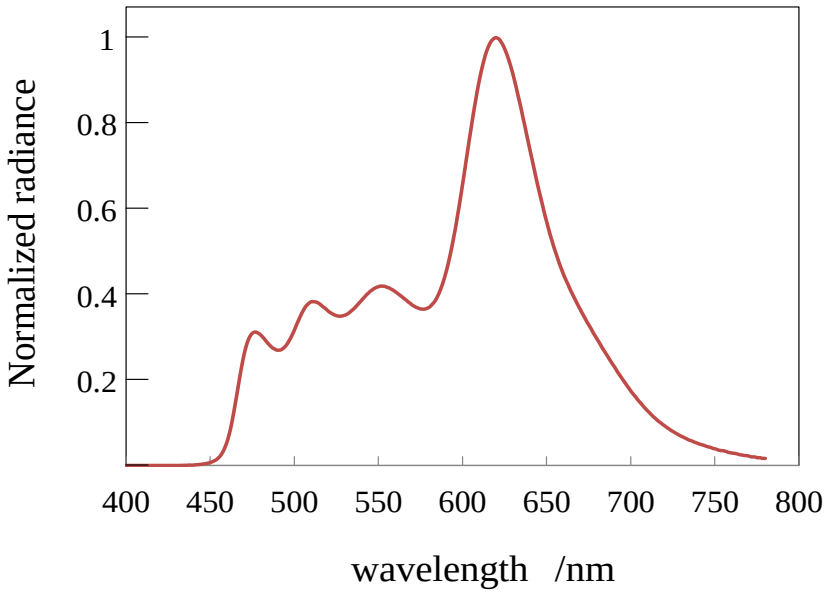


Fig.5-12 Emission spectrum of fabricated OLED panel

Table 5-2 Properties of fabricated OLED panel at 1,000 cd/m^2

Luminous efficiency	133 lm/W
External quantum efficiency	56 %
Voltage	5.4 V
Estimated LT70	> 40,000 h
Estimated LT50	> 150,000 h
CRI (Ra)	84
Color coordinates	0.48, 0.43
Correlated color temperature	2,600 K
Emissive area	100 cm^2

5.5 結言

本章では、OLED素子の解析および実験を通して、微細光学構造の光取り出し効率への寄与を論じ、以下の結論が得られた。

1. 発光素子内部の材料や電極による吸収が比較的大きいOLEDデバイスにおいては、微細光学構造の良否が光取り出し効率に大きく寄与する。従来のように有機層とガラス基板層の界面に凹凸構造を設ける方法は素子特性の悪化を招きやすいため、本研究では高屈折率基板上にOLEDデバイスを直接形成することを試みた。高屈折率基板にPENフィルムを採用し、その上に設ける微細凹凸構造にも高屈折率材料を用いることで有機層内部の閉じ込め光を取り出すことが可能となり、高い効率が期待できることを見出した。
2. OLEDの劣化促進要因となる酸素や水がフィルム基板から浸入するのを防止するため、フィルムとガラスの積層構造からなるBLES構造を提案した。フィルムの微細凹凸構造とガラスの間に空隙ないし低屈折率層を設けることで基板界面の全反射を抑制し、光取り出し性能を本質的に損ねることがないことを明らかにした。
3. SPPを抑制し広角入射成分が増大した配光パターンに適した微細光学構造を模索するため光学シミュレーションを行った結果、アスペクト比が高いMLA構造と組み合わせることで光取り出し効率がより高まることを見出した。
4. BLES基板の微細光学構造にアスペクト1.6のMLA構造を採用し、SPPモード抑制配光パターンを導入した白色OLEDと組み合わせてデバイスを作成した結果、通常の配光パターンで設計したデバイスに対して約10%の効率改善効果が得られた。SPPモードを低減した分を実際の光取り出しに有効活用できることを見出した。
5. 発光面積100cm^{2}の白色OLED照明パネルを製作した結果、発光効率133lm/Wを得た。これは現在使用されているLED照明と同等の効率であり、OLEDのような均一発光をする面光源としては極めて高い性能である。照明に求められる色特性や発光寿命、パネル発光の均一性においても実用的な水準にまで向上することが示された。
6. 本章では、SPPモードを抑制したOLEDのように広角入射成分を多く含む配光パターンに対しては屈折率界面に対する広角入射光の透過率が高い微細凹凸構造、たとえばアスペクト比および曲率が非常に大きいマイクロレンズアレイ構造の親和性が高いことを示した。一方、LEDのように比較的発光層と反射層の距離が大きく干渉を受けない場合、あるいは発光素子内部に散乱構造を有する場合などには逆にアスペクト比を抑えた構造が望ましいことも同時に示唆している。したがって本研究で得られた知見は、すべての固体発光素子に対して光取り出しのために付与する微細光学構造を検討するうえで重要な設計指針の一つとなる。

第6章　光取り出し効率向上を実現する生産プロセス

6.1 緒言

第3章～第5章で固体発光素子の光取り出し効率を向上する具体的な方策について論じてきた。これらの方策を取り入れた固体発光素子を製品へ応用するためには生産プロセスにおける本質的な課題を認識し、実現可能な構造や製法を採用する必要がある。本章では、本研究で示した特徴的な光取り出し構造であるTI-ODR(第3章)とBLES(第5章)の生産プロセスを示し、生産の際に考慮すべき点を中心に議論する。

6.2 全方向反射鏡（TI-ODR）の生産プロセス

全方向反射鏡(TI-ODR)の生産プロセスについて論じる。TI-ODRは、厚膜の低屈折率層と金属層の組み合わせを採用することにより、全角度に対する反射率を向上して光取り出し効率を高めることを主眼に置いた構造である。Fig.6-1にTI-ODRをLEDに導入する際の生産プロセス概略図を示す。設計構造の代表例として、Fig.3-10(a)に示した低屈折率厚膜、高屈折率膜、極薄Pt層、Ag層の積層構造を示した。また、あくまで一例であるが、さらにAg層の上に、Ti(30nm)/Ni(50nm)/Au(1500nm)を蒸着し、Auバンプを形成したパッケージにフリップチップ実装をおこなった。なお、透明誘電体膜はスパッタリング装置、金属膜は電子ビーム(electron beam, EB)蒸着装置で形成した。TI-ODRの構成要素である透明膜は絶縁性であるため、電極としての導通性を確保するためにはパターニングが必要である。これについては、マスク露光でUV樹脂をパターニングし、透明層成膜後に必要部分以外を剥離して除去（現像）する一般的なフォトリソグラフィ法によって微細構造を形成した。また、TI-ODRを検討する際、反射率以外で特に注意が必要なのは膜の密着性であることをすでに述べた。例えば、低屈折率層と高屈折率層を成膜した後に残留応力が強く残ると、成膜後のプロセスで負荷（たとえば温度の急激な変化など）が発生した際に密着力を維持できず、最悪の場合電極がLEDから剥離する。TI-ODRの場合、特に剥離が発生しやすいのは誘電体と金属の界面、もしくは金属と半導体(LED)層の界面である。本稿では、いずれの界面にも極薄(0.3nm程度)のPt層とITO層を加えることで、反射率への悪影響を最小にしつつ大幅に密着力を向上している。PtやITOの代わりにNbをドープしたTiO_2膜、あるいは、Al_2O_3、Y_2O_3、及びZnSのうちのどれか一つを選ぶのも選択肢として有効である[107)]。これらの層の形成は、透明膜の成膜時にLEDのp型GaN層に与えるダメージを抑制することも可能である。Ag層の上に形成されたメタル積層電極は、TiがAgの拡散（エレクトロマイグレーション）を防ぐいわゆるバリアメタル層、Niが密着力保持、最後に基板とのAu-Au接合のために厚膜かつ安定性の高いAuという形で構成されている。Niの代わりにCrを用いる例もあり、材料や膜厚はプロセスにより当然変更されるが、デバイスとしての安全性と品質を確保するために電極の密着

性、導電性、放熱性が重要であることを念頭におき、TI-ODRと親和性の高い構造を導入する必要がある。ここまでのプロセスはLEDチップが多数形成されたウェはレベルで行われるが、最後にチップ間をブレードやレーザーによってスクライブ（傷入れ）し、そこを起点にブレークしてチップに分離する。最後に、分離されたチップをピックアップしてパッケージに実装する。

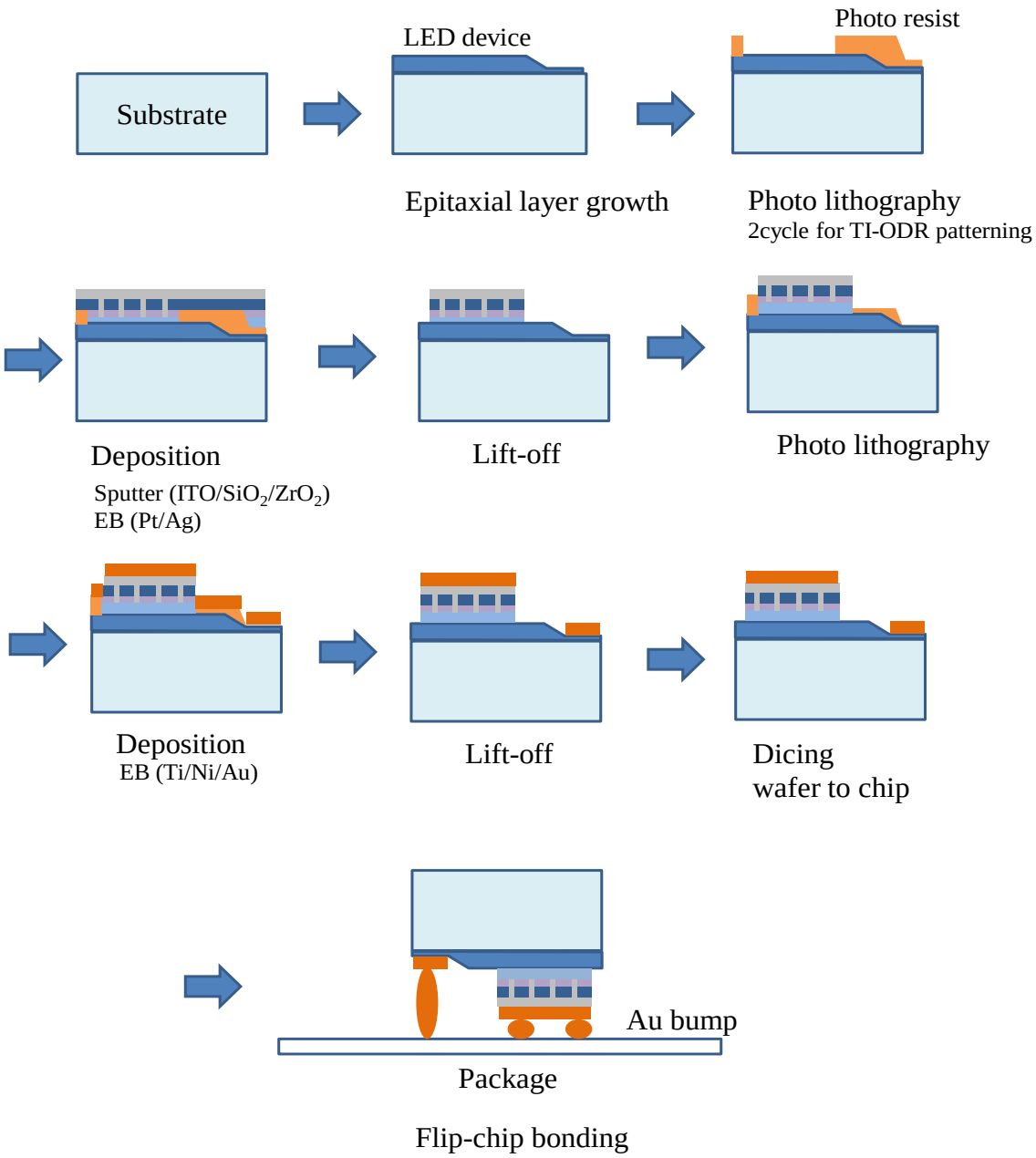


Fig.6-1 Example of production process to introduce TI-ODR for LED

次に、TI-ODRの生産性と品質を安定させるために重要な金属層の材料について着目する。可視光領域でもっとも反射率の高い金属はAgである。TI-ODRにおいてもすべての光が厚膜の低屈折率層で全反射されたり、薄膜干渉効果で反射するわけではない。全反射も薄膜干渉もしない角度で入射した光については金属層で反射する。このときに反射率が高いAgを用いることで全方向反射率の向上を実現している。但し、大部分の光は全反射若しくは薄膜干渉で反射するため、実際にはこの層の影響は大きくない。Agはエレクトロマイグレーションなど反応性に富む材料である。また、腐食性ガスが存在する環境において不具合を起こすことがあるため、実際の固体発光素子を使ったデバイスでは使用シーンが制限されている。また、Agは材料コストが非常に高い(kgあたり数万円)。そこで、Agに対して材料コストが1/100以下(kgあたり数百円)で、かつデバイスに使用したときの安定性に優れるAlの代替可能性について検証した。Fig. 6-2は、同一のTI-ODR構造(Fig.4-5)において金属層のみをAgからAlに変更した場合のシミュレーションモデルである。結果はTable 6-1に示す。AgをAlに変更した場合、反射率が低下するが、TI-ODRでは誘電体層の全反射と組み合わせることで影響が小さくなる。Alを用いても高い反射率を維持することが可能である。

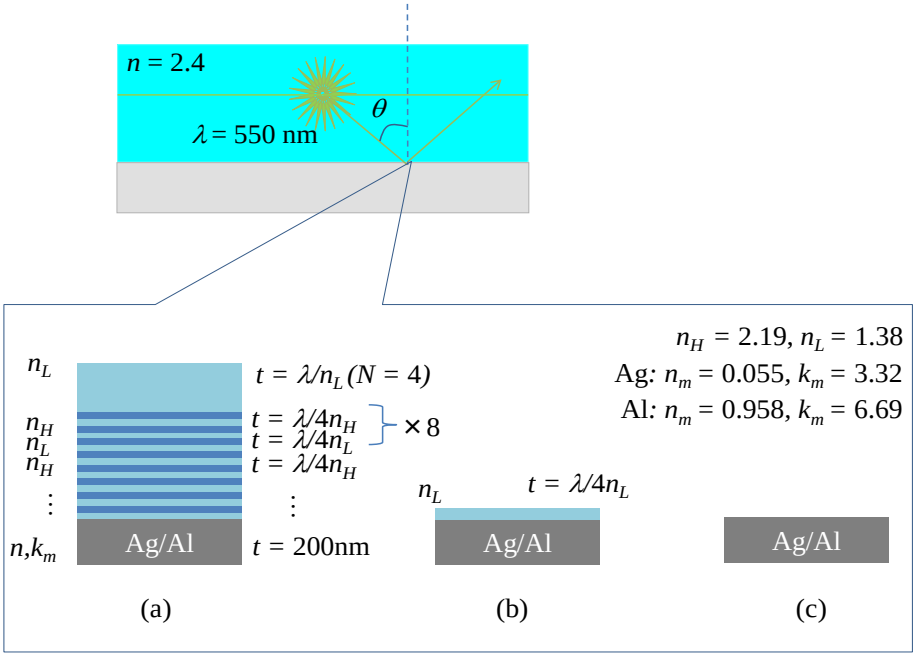


Fig.6-2 Simulation model of reflectance with Al and Ag layer

(a) TI-ODR (b) Q-ODR (conventional) (c) single

Table 6-1　Simulated result of angular integrated reflctance with Al and Ag

Metal	(a) TI-ODR	(b) Q-ODR	(c) single
Al	96.8 %	91.5 %	84.7 %
Ag	99.7 %	98.6 %	97.9 %

TI-ODRを構成する薄膜材料自体は一般的な光学部品で使用されるものであり、また膜厚構成についても、通常のDBRなどに比べて層数が少なく（通常は数十層以上を積層する）トータルの膜厚も小さいので、スパッタリング装置のタクトを短くしてコストを押さえた生産が可能な構造である。さらに、通常の誘電体多層膜による高反射率構造は一層あたりの膜厚が薄く、膜厚がずれた際の光学特性（反射率、透過率、吸収率）が設計値から容易に外れる傾向になるのに対し、TI-ODRでは、低屈折率厚膜層や金属層をある厚さ以上にすれば効果を発揮することが期待できるため、安全係数を十分にかけてロバスト性を担保したうえで中心設計膜厚を設定することが可能である。

6.3 積層構造基板（BLES）の生産プロセス

積層構造基板(BLES)の生産プロセスについて論じる。BLESは光取り出しに有効な高屈折率基板の優位性を生かしつつ、微細光学構造の保護や部材が比較的安価という面でメリットを有する基板構造である。Fig.6-3にBLESをOLEDに導入する際の生産プロセスの概略図を示す[116)]。まず、屈折率が高くBLES用フィルム基板として選択したPENフィルム基板を裏面支持基板に固定する。次に、微細凹凸構造をインプリント法で形成する。インプリント法は、まず、基板の表面に樹脂をスクリーン印刷法で形成し、プリベークを行うことにより転写層を形成する。樹脂の硬化手法は本研究ではUVを用いた。粘度の低い光硬化性樹脂層からなる転写層をモールドにより変形させ、その後紫外線の照射によって光硬化性樹脂を硬化し、モールドを転写層から離型すればよい。インプリント法では、モールド用の金型さえ1度作れば、凹凸構造部51を再現性良く形成することができ、低コスト化を図れる。金型は、形成する構造と同じパターンのマスターモールドを構成し、マスターから反転モールドを得て使用するのが一般的である。紫外線の照射方向は、基板側からが一般的であるが、例えば紫外線を透過しないPEN基板の場合には、紫外線を透過する透明樹脂（例えば、ポリジメチルシロキサンなど）で形成した樹脂製モールドを使用し、モールド側から紫外線を照射するようにすればよい。次に、微細凹凸構造が形成されたPENフィルム基板を、裏面側にITOやOLED層を形成するため反転する。真空装置（スパッタ、蒸着）に投入する前に、フィルムに吸着された水分を十分に除去するため真空乾燥を行う。真空装置で

薄膜層を形成した後、空気に暴露せずに窒素等でパージされ水分が十分に除去された低湿度環境（目安として、露点温度が−60K以下）で実装および封止プロセスが行われる。実装側基板は、外部接続電極（配線電極、バス電極とも呼称する）が一表面側に形成されたガラス基板からなる表面側に、サーコンシートなどの電気絶縁性を有し且つ熱伝導性を有するゲル状の放熱シートからなる放熱部材を対向させて位置合わせを行う。なお、外部接続電極は、例えば、めっき法や、スパッタ法や、印刷法などにより形成すればよい。めっき法により形成する場合、材料としては、例えば、PdNiAuなどを採用すればよい。また、スパッタ法により形成する場合、外部接続電極の材料としては、例えば、MoAl、CrAg、AgPdCu(APC)などを採用すればよい。放熱部材を固定後、導電性ペースト(Agペースト等)を塗布する。その後、OLED素子の薄膜形成面と逆の表面側を吸着コレット等により吸着保持して、OLED素子の上記表面側に対向させて位置合わせを行う。OLEDの製造時に陰極をマスクを利用して蒸着する際に、２つのアライメントマークをOLED基板側に同時に形成する。これにより、OLED素子基板側から撮像するCCDカメラなどの撮像装置と、撮像装置から得た画像を画像処理してアライメントマークを認識する画像処理装置と、画像処理装置の認識結果に基づいて、吸着コレットを先端部に備えたロボットアームを制御するコンピュータなどからなる制御装置とを備えた実装を行う。なお、吸着コレットには、OLEDを吸着するための吸着孔（真空吸引孔）が形成されている。ここで、吸着コレットは、OLEDの基板や凹凸構造部に傷が付くのを抑制するために、樹脂（例えば、全芳香族ポリイミド樹脂、ポリアミド樹脂、イミド樹脂など）により形成する。また、吸着コレットにおける吸着面には、凹凸構造部を収納可能な凹部を設けてあるが、凹凸構造部による凹凸の高低差は小さいので、必ずしも凹部を設ける必要はなく、基板の上記他表面側の全体を吸着するようにしてもよい。その後、OLED素子の陰極と放熱部材とを接触させるとともに、陽極、陰極それぞれを接続させてから導電性ペーストを硬化させる。続いて真空中でのベークを行う。最後に凹ガラスでOLED素子全体を封止することにより、デバイスが完成する。

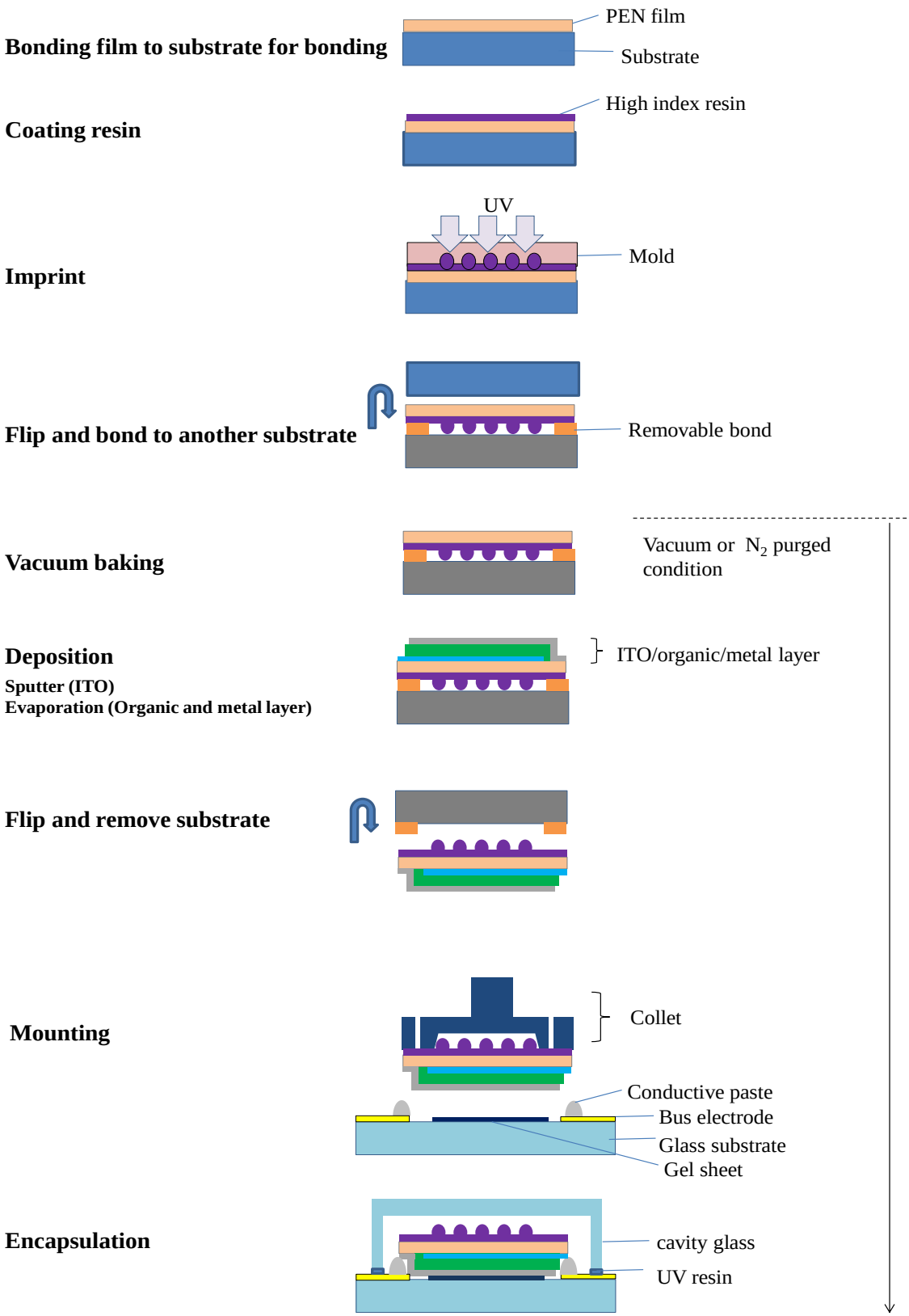


Fig.6-3 Example of production process to introduce BLES for OLED

BLES構造の課題としては、PENフィルムと接合部の線膨張係数差やゲルシートと接触している薄膜層の保護などが挙げられる。そこで同等の光学性能を有する改良構造(ABLES: advanced built-up light extraction substrate)について、以下に論じる。Fig.6-4にABLESをOLEDに導入する際の生産プロセスの一例を示す[117]。基板としてはガラスを準備し、まずはガラス基板と同等もしくは屈折率が低いUV硬化性樹脂を塗布する。Fig.6-3の工程と同じく、UVインプリントで凹凸形状を付与する。次に、OLED層と同等の屈折率を持つ高屈折率樹脂を凹凸形状の上に塗布する。この際、完全に凹凸構造を埋めて平坦な層を得ることが重要である。この構造によって、薄膜モードの取り出しが可能になり、BLESと同等の性能を得ることが可能である。その際、二種類の樹脂の屈折率差が重要なパラメータとなり、凹凸層の屈折率は可能なかぎり低いことが望ましい。次に、形成した樹脂のトリミングを行う。封止した際に樹脂層が残っているとその部分から浸水してOLEDが劣化するためである。フォトリソグラフィを用いる方法もあるが、大規模な設備やプロセスが大幅に増加するなどコスト増加要因が多いため、本研究ではレーザーによる樹脂トリミング工程を選定した。使用するレーザーは、樹脂を加工可能なレーザーであれば種類は問わないが、透明な膜を加工するためにはパルスレーザーで大きなエネルギーを与えるか、樹脂が吸収する波長のレーザーを利用する選択肢がある。前者は熱影響による加工面のダメージを抑制することが可能なため、より優れた選択肢となりうる。本研究では、一例としてYAGレーザーを採用した。樹脂加工を終えた後は真空ベークで樹脂内部の水分を除去し、OLEDを蒸着する。最後に、樹脂層を内包する形で封止をおこなう。ABLES構造は、フィルムを使用しないために複雑な工程が簡略化され、より量産に適した光取り出し基板となっている。一方で、第5章で述べた光取り出し効果についてはBLES構造と同様に得ることが可能である。Table 6-2にBLES構造、ABLES構造、及び従来のELE構造の基板を同じOLED蒸着バッチ(Fig.5-2に示したR/G発光層)で比較した結果を示した。BLES構造、ABLES構造ともに、OLED薄膜層からの光取り出しにより、ELE構造に対し約1.3倍の発光効率が得られている。

Table 6-2 External quautum efficiency of fabricated OLED devices with BLES/ABLES

Structure	(a) BLES	(b) ABLES	(c) ELE
EQE	46.8 %	45.0 %	35.6 %

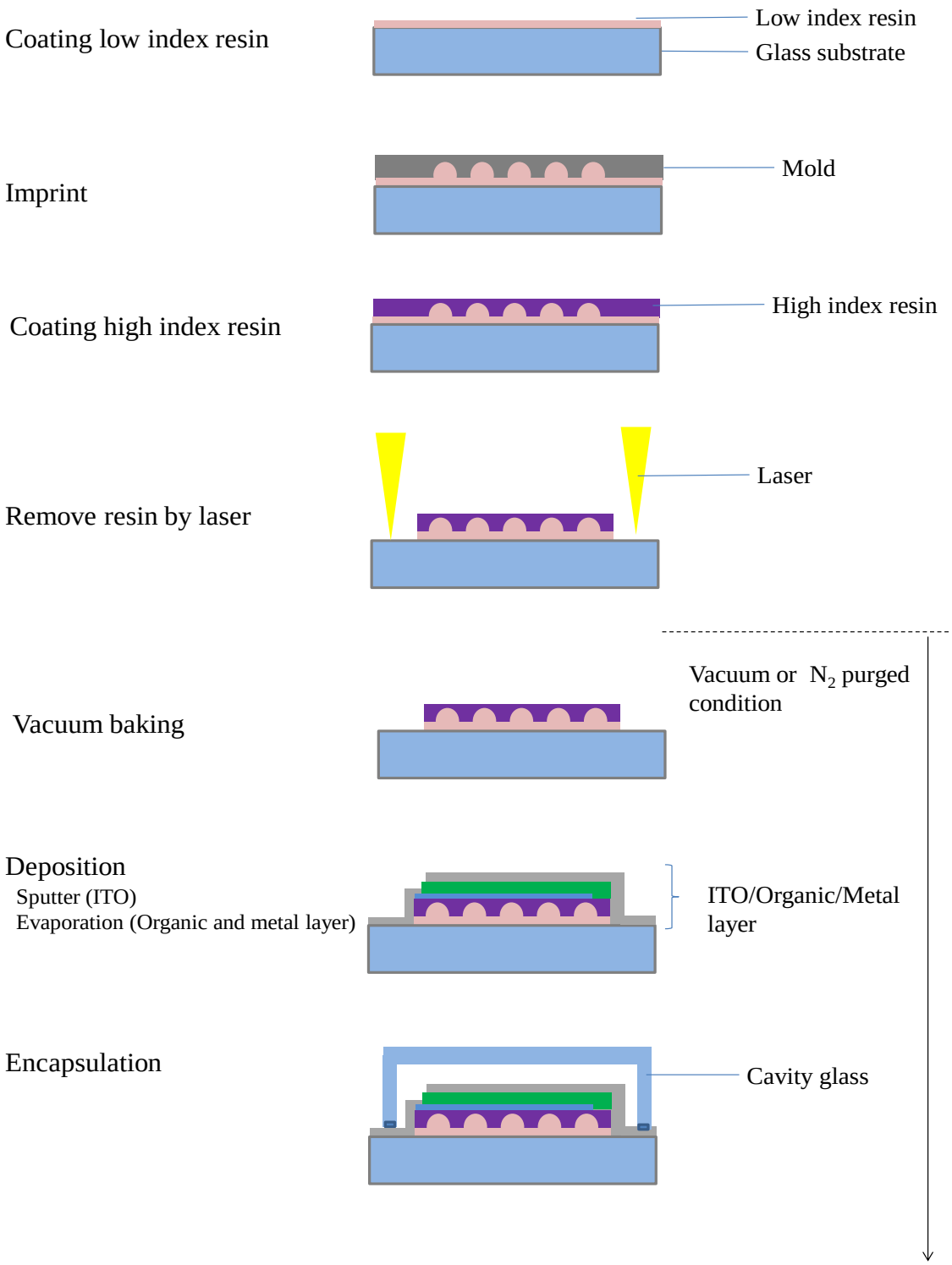


Fig.6-4 Example of production process to introduce ABLES for OLED

6.4 結言

本章では、本研究で示した特徴的な光取り出し構造であるTI-ODR(第3章)とBLES(第5章)の生産プロセスを示して生産の際に考慮すべき点を中心に議論し、以下の結論が得られた。

1. TI-ODR構造は電極の密着性に配慮して構造やプロセスを決定する必要がある。特にフリップチップ実装を行う際にAuバンプを通じて通電、放熱を得る場合には、TI-ODRを構成する電極の上にさらにメタル積層電極を形成する必要がある。Agのエレクトロマイグレーションや密着力を考慮し、本研究ではTI-ODR/Ti/Ni/Au電極を採用することで品質が安定した電極構造を得られた。
2. TI-ODR構造の反射金属層をAgからAlに変更することにより品質の安定性向上とコスト削減を図れる。大部分の光はAgに到達する前に誘電体層で反射されるため、Alに変更することによる反射率低下の影響は通常の反射電極にくらべて小さい。
3. BLES構造の生産を実現するには、フィルムとガラスの接合構造が肝要である。そこで本研究では、微細凹凸構造を形成後に基板を反転してOLED構造を積層し、さらに基板を反転してコレットに吸着させ、ゲルシートとAgペーストを用いて支持基板に接続する生産プロセスを考案した。本プロセスにより取扱いの難しいフィルム基板を自動生産ラインに投入することが可能となった。
4. BLES構造の品質を改良するため、フィルム基板を使用しないABLES構造もあわせて提案した。ABLES構造では高屈折率フィルム基板の代わりに高屈折率樹脂／低屈折率樹脂のペアを用い、界面に凹凸構造を形成する。ABLES構造においても、OLEDの薄膜モードを含めた高い光取り出し効率を得られた。
5. 本研究で得られたTI-ODRやBLESなどの光取出し構造は、上記Al層や高／低屈折率樹脂積層構造の導入により、基本性能の優位性を確保しつつ、生産プロセスへの適合性を高めた。

第7章　結論

本研究では、グローバルの電力消費量削減を目的とし、固体発光素子の光取り出し効率向上のための光波制御手法について論じた。光源内部の光学モード制御、反射構造制御、屈折率界面構造制御を個別または練成することが光取り出し効率の向上に有効な手段であることを示した。

第3章では、固体発光素子内部で全反射されて光源側に戻った光を効率よく再利用するために裏面構造の反射率を高めることを試みた。まず固体発光素子の裏面構造の反射率が光取り出し効率に与える影響が極めて大きいことを光学シミュレーションで示した。例えば、光吸収のない屈折率n=2.4の媒体(LEDの材料であるGaNを想定)においては反射率80%以下では光取り出し効率が50%にも満たないが、反射率が95%を超えると急激に100%に近づく傾向を確認した。ここで角度積分反射率の考え方を導入し、反射率が95%を超える光学構造を得るためには、固体発光素子の光取り出しにとって阻害要因となる「高屈折率」という性質を逆に利用し、裏面側で全反射を積極的に活用することに着想した。その結果、膜厚λ/n程度の厚膜低屈折率層を導入することが角度積分反射率を飛躍的に高める手段として有効であることを見出した。そこでLEDに対し、膜厚λ/nの低屈折率(MgF_2)厚膜、膜厚$\lambda/4n$の高屈折率(Ta_2O_5)／低屈折率(MgF_2)1ペア、金属(Ag)を組み合わせたTI-ODR構造を導入することで、角度積分反射率99.7%がシミュレーション上で得られた。さらにTI-ODRを実際の青色LEDデバイスの電極に導入することで、導電性の確保や膜応力による電極剥がれなどさまざまな課題に対応する必要があることを明確にした。それらに対してTI-ODRのパターニング、電流拡散層（透明導電膜）の導入、膜応力に対応した膜厚設計の修正等で対応した結果、電流電圧特性や機械特性（膜応力）が改善した。最終的に、TI-ODRを導入した結果として、10%程度の光取り出し効率改善効果が得られた。

第4章では、OLEDデバイスの光源近傍の干渉やプラズマ振動が導く光学モードの変化に着目し、光源から発する配光パターン（発光の角度強度分布）と金属電極で発生する表面プラズモン(SPP)が光取り出し効率に与える影響を見出した。具体的には、緑色OLEDデバイスと半球レンズを組み合わせた光学系において、発光位置と反射電極の距離を大きくすれば光の損失要因となるSPPモードが抑制され、効率に寄与する光学モード(SPPモード以外)が増大することを確認した。但し配光パターンは広角に偏るため、通常のデバイスでは光学モード向上の恩恵が得られないことも同時に把握した。この効果は、白色OLEDにおいても同様であることを確認した。但し、白色光に含まれる赤、緑、青の波長が異なるために干渉条件の差に起因して波長ごとに配光パターンが大きく変化するため、高品質な白色を得ることが難しい。そこで、赤：緑：青=2:1:1の関係に着目し、赤＋緑発光層を金属から遠い側、波長による差が大きい赤＋

青発光層を金属に近い側に配したマルチフォトン型白色OLED構造を採用することで、波長による配光パターンの差が発生しにくい構造を実現した。

第5章では、微細光学構造による屈折率界面制御による光取り出し効率向上効果を示した。発光素子内部の材料や電極による吸収が比較的大きいOLEDデバイスにおいては、微細光学構造の良否が光取り出し効率に大きく寄与することが示唆された。具体的な形状付与手段としては、従来のように有機層とガラス基板層の界面に凹凸構造を設ける方法が素子特性の悪化を招きやすいため、本研究では高屈折率基板上にOLEDデバイスを直接形成することを試みた。高屈折率基板にPENフィルムを採用し、その上に設ける微細凹凸構造にも高屈折率材料を用いることで有機層内部の閉じ込め光を取り出すことが可能となり、高い効率が示された。さらにOLEDの劣化促進要因となる酸素や水がフィルム基板から浸入するのを防止するため、フィルムとガラスの積層構造からなるBLES構造を提案した。フィルムの微細凹凸構造とガラスの間に空隙ないし低屈折率層を設けることで基板界面の全反射を抑制し、光取り出し性能を本質的に損ねることがないことを明らかにした。また、第4章で検討したSPPを抑制し広角入射成分が増大した配光パターンとのマッチングを図るため光学シミュレーションを行った結果、アスペクト比が高いMLA構造との親和性を見出した。そこでBLES基板の微細光学構造にアスペクト1.6のMLA構造を採用し、SPPモード抑制配光パターンを導入した白色OLEDと組み合わせてデバイスを作成した結果、通常の配光パターンで設計したデバイスに対して約10%の効率改善効果が得られた。SPPモードを低減した分を実際の光取り出しに有効活用できることを見出した。上記デバイス構造で発光面積100cm^{2}の白色OLED照明パネルを製作した結果、発光効率133lm/Wを得た。これは現在使用されているLED照明と同等の効率であり、OLEDのような均一発光をする面光源としては極めて高い性能である。照明に求められる色特性や発光寿命、パネル発光の均一性においても実用的な水準にまで向上することが示された。SPPモードを抑制したOLEDのように広角入射成分を多く含む配光パターンに対しては屈折率界面に対する広角入射光の透過率が高い微細凹凸構造、たとえばアスペクト比および曲率が非常に大きいマイクロレンズアレイ構造の親和性が高いことを示した。一方、LEDのように比較的発光層と反射層の距離が大きく干渉を受けない場合、あるいは発光素子内部に散乱構造を有する場合などには逆にアスペクト比を抑えた構造が望ましいことも同時に示唆している。本研究で得られた知見は、すべての固体発光素子に対して光取り出しのために付与する微細光学構造を検討するうえで重要な設計指針の一つになりうることを示した。

第6章では、本研究で示した特徴的な光取り出し構造であるTI-ODRとBLESの構造上の課題を明らかにし、より生産に適したプロセスについて論じた。TI-ODR構造は電極の密着性に配慮して構造やプロセスを決定する必要がある。特にフリップチップ実装を行う際にAuバンプ

を通じて通電、放熱を得る場合には、TI-ODRを構成する電極の上にさらにメタル積層電極を形成しなければならない。Agのエレクトロマイグレーションや密着力を考慮し、本研究ではTI-ODR/Ti/Ni/Au電極を採用することで品質が安定した電極構造を得られた。また、TI-ODR構造の反射金属層をAgからAlに変更することにより品質の安定性向上とコスト削減を図れるが、TI-ODRでは大部分の光はAgに到達する前に誘電体層で反射されるため、Alに変更することによる反射率低下の影響は通常の反射電極にくらべて小さいことが優位性となることを示した。一方、BLES構造の生産を実現するには、フィルムとガラスの接合構造が肝要である。そこで本研究では、微細凹凸構造を形成後に基板を反転してOLED構造を積層し、さらに基板を反転してコレットに吸着させ、ゲルシートとAgペーストを用いて支持基板に接続する生産プロセスを考案した。本プロセスにより取扱いの難しいフィルム基板を自動生産ラインに投入することが可能となった。さらにBLES構造の品質を改良するため、フィルム基板を使用しないABLES構造も提案した。ABLES構造では高屈折率フィルム基板の代わりに高屈折率樹脂／低屈折率樹脂のペアを用い、界面に凹凸構造を形成する。したがって、ABLES構造においてもOLEDの薄膜モードを含めた高い光取り出し効率が期待できる。

以上のとおり、固体発光素子の光源内部の光学モード制御、反射構造制御、屈折率界面構造制御手法に着目し、それらを個別または練成することが光取り出し効率の向上に有効な手段であることを示した。本研究で提案したTI-ODRやBLESなどの特徴的な制御手法を組み合わせることで固体発光素子の光取り出し効率が向上することを見出し、グローバルの電力消費量削減に大きく寄与するための研究の礎を確立した。

謝辞

本研究の遂行にあたり、終始ご指導、ご助言を賜りました大阪大学大学院工学研究科教授の藤本公三博士に心から御礼申し上げます。また、本研究の審査に携わり研究内容についてご指導、ご助言を頂きました大阪大学大学院工学研究科教授の塚本雅裕博士、大阪大学大学院工学研究科准教授の福本信次博士、佐野智一博士、研究会等を通じてご指導、ご助言を頂きました大阪大学大学院工学研究科特任教授の渥美幸一郎博士、大阪大学大学院工学研究科助教の松嶋道也博士に心から感謝申し上げます。

パナソニック株式会社における研究推進に関してご支援・ご指導を賜りましたパナソニック株式会社監査役室の久保雅男様、パナソニック株式会社ご在籍時に研究推進に関してご支援・ご指導を賜りました元パナソニック出光OLED株式会社社長の鎌田策雄様、株式会社フラスク代表取締役社長の菰田卓哉博士、元パナソニック株式会社エコソリューションズ社ものづくり革新本部主幹の福島博司博士に感謝申し上げます。また、研究推進に関してご支援とご助言を賜りましたパナソニックエコソリューションズ社ES中国イノベーションセンター所長の太田益幸様、パナソニック株式会社ディシジョンサポート室の高野仁路博士、パナソニック株式会社エコソリューションズ社の技術本部R&D企画室主幹の井出伸弘博士、技術本部綜合開発センター課長の田中健一郎博士に心から感謝いたします。また、OLEDの研究推進にともに尽力し、ご協力を戴きましたライティング事業部主幹の辻博也博士、林真太郎博士、ライティング事業部主務の松崎純平様、技術本部主務の鈴鹿裕子博士、元パナソニック株式会社エコソリューションズ社デバイス開発センターのキッティシュチット・ワルット様、LEDの研究推進にともに尽力し、ご協力を戴きましたパナソニック株式会社エコソリューションズ社ものづくり革新本部主務の安田正治様、パナソニックライティングデバイス株式会社課長の岩橋友也様に心から感謝申し上げます。また、会社での主たる業務推進に少なからず影響があったにもかかわらず、理解をもって博士後期課程に送り出していただいたパナソニック株式会社エコソリューションズ社ライティング事業部R&Dセンター所長の大塚倫生様、部長の堀内誠様、課長の中野貴之様、そして私の所属する光制御デバイス開発部樹脂材料プロセス開発課のメンバー一同に心から感謝を申し上げます。

また、本論文のLED研究に関する研究費のご支援をいただいた環境省の「省エネ型白色LED照明器具の普及促進のための低コスト化技術開発」プロジェクトに係る関係者の皆様、OLED研究に関する研究費のご支援をいただいた独立行政法人新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)の「次世代高効率・高品質照明の基盤技術開発」プロジェクトに係る関係者の皆様、並びに研究材料・部材・設備等のご支援を戴いたUniversal Display Corporation (UDC)様、出光興産株式会社ほか多数の企業の皆様に、厚く御礼申し上げます。

さらに、藤本研究室で様々なことでお世話になった2017年度に博士号取得された満倉一行博士、2017年度修士課程修了の遠藤慶様、溝上陽介様、李榮輔様、渡邉佑人様、現在在学中の中島泰様、青木豊広様、櫻井大輔様、上野祐輔様、大田賢吾様、多谷本真聡様、加茂貴裕様、牧本和大様、南尚吾様、森山悠佑様、吉田圭佑様、伊藤直樹様、辻直生様、中村光希様、中村友洋様にも厚く御礼申し上げます。

最後に、会社での仕事に加えて大学博士課程が加わり、論文執筆等で休日も2人の子供の世話や家事を任せきりにしたにも関わらず、文句ひとつ言わずにサポートをしていただいた妻のめぐみ、遊びたい盛りに十分に相手をできず寂しい思いをさせた長女のあかり、次女の優花、そしてわれわれ家族を支援してくださった両親、弟、義父母に対し、心から感謝申し上げます。

参考文献

1) International Energy Agency , “25 Energy Efficiency Policy Recommendations,” (2011)

2) International Energy Agency, “Energy Efficiency Market Report 2016,” (2016).

3) 一般財団法人　日本エネルギー経済研究所、「LED 照明による省電力ポテンシャルと費用対効果の試算」, (2011).
http://eneken.ieej.or.jp/data/3891.pdf

4) International Energy Agency, “Key world energy statistics,” (2017).

5) U. S. Department of Energy, “Solid-State Lighting Research and Development Multi-Year Program Plan 2013”, (2013).

6) United Nations Environment Programme, “Minamata convention on mercury text and annexes,” (2017).
http://www.mercuryconvention.org/Portals/11/documents/Booklets/COP1%20version/Minamata-Convention-booklet-eng-full.pdf

7) 外務省ホームページ：水俣条約 (2017 年 5 月 23 日).
http://www.mofa.go.jp/mofaj/gaiko/kankyo/jyoyaku/suigin.html

8) 一般社団法人　日本照明工業会、「照明成長戦略　2020」、(2013).
http://www.jlma.or.jp/about/vision/pdf/LV2020_webPV2.pdf

9) 波多腰玄一、「高輝度 LED デバイスの設計」、O plus E、**26**,　(2004), pp.263-268.

10) E. Schubert, “Light-emitting diodes 2nd edition,” Cambridge University Press, (2006)

11) 一ノ瀬昇、電子材料、**43**, (2004), pp. 88-93.

12) A.Zukauskas, M.S.Shur and R.Gaska, “Introduction to solid-state lighting,” Wiley-interscience publication, (2002).

13) H. Sugawara, K. Itaya and G. Hatakoshi, “Emission properties of InGaAlP visible light-emitting diodes employing a multiquantum-well active layer,” Jpn. J. Appl. Phys. **33**, (1994), pp. 5784-5787.

14) 城戸淳二、「有機 EL 照明」、日刊工業新聞社、(2015).

15) SIGMA-ALDRICH JAPAN, 「有機 EL 素子の基礎及びその作製技術」、**1**, (2009).
https://www.sigmaaldrich.com/content/dam/sigma-aldrich/docs/SAJ/Brochure/1/saj1146_mmb1-1.pdf

16) C. W. Tang and S. A. Vanslyke, “Organic luminescent diodes,” Appl. Phys. Lett. **51**, (1987), pp. 913-915.

17) P. E. Burrows, Z. Shen, V. Bulovic, D. M. McCarty, S. R. Forrest, J. A. Cronin and

S. R.Forrest, “Relationship between electroluminescence and current transport in organic heterojunction light-emitting devices,” J. Appl. Phys., **79**, (1996). pp. 7991-8006.

18) M. A. Baldo, D. F. O’ Brien, Y. You, A. Shoustikov, A. Aibley, M. E. Thompson and S. R.Forrest, “Highly efficient phosphorescent emission from organic electroluminescent devices,” Nature, **395**, (1998), pp. 151-154.

19) M. A. Baldo, S. Lamansky, P. E. Burrows, M. E. Tompson and S. R. Forrest, “Very high-efficiency green organic light-emitting devices based on electro phosphorescence,” Appl, Phys. Lett., **75**, (1999), pp. 4-6.

20) H. Uoyama, K. Goushi, H. Nomura and C. Adachi, “Highly efficient organic light-emitting diodes from delayed fluorescence,” Nature, **492**, (2012), pp. 234-238.

21) S. Noda, K. Tomoda, N. Yamamoto and A. Chutinan, “Full three-dimentional photonic bandgap crystals at near-infrared wavelengths,” Science, **289**, (2000), pp. 604-606.

22) S. Noda, A. Chutinan and M. Imada, “Trapping and emission of photons by a single defect in a photonic bandgap structure,” Nature, **407**, (2000), pp. 608-610.

23) Y. Akahane, T. Asano, B. Song and S. Noda, “High-Q photonic nanocavity in a two-dimensional photonic crystal,” Nature, **425**, (2003), pp. 944-947.

24) Y. Takahashi, Y. Inui, M. Chihara, T. Asano, R. Terawaki and S. Noda, “A micrometer-scale Raman silicon laser with a microwatt threshold,” Nature, **498**, (2013), pp. 470-474.

25) S. Noda, M. Yokoyama, M. Imada, A. Chutinan and M. Mochizuki, “Polarization mode control of two-dimensional photonic crystal laser by unit cell structure design,” Science, **293**, (2001), pp. 1123-1125.

26) H. Matsubara, S. Yoshimoto, H. Saito, Y. Jianglin, Y. Tanaka and S. Noda, “GaN Photonic-crystal surface-emitting laser at blue-violet wavelengths,” Science, **319**, (2008), pp. 445-447.

27) H. Kitagawa, T. Suto, M. Fujita, Y. Tanaka, T. Asano and S. Noda, “Green photoluminescence from GaInN photonic crystals,” Appl. Phys. Express. **1**, (2008), 032004.

28) J. J. Wierer, M. R. Krames, J. E. Epler, N. F. Gardner, M. G. Craford, J. A. Simmons and M. M. Sigalas, “InGaN/GaN quantum-well heterostructure light-emitting diodes employing photonic crystal structures,” Appl. Phys. Lett. **84**, (2004), pp.3885-3887.

29) A. David, T. Fujii, R. Sharma, K. McGroddy, S. Nakamura, S. P. DenBaars, E. L.

Hu, C. Weisbuch and H. Benisty, "Photonic-crystal GaN light-emitting diodes with tailored guided modes distribution," Appl. Phys. Lett. **88**, (2006), 061124.

30) E. Matioli, E. Rangel. M. Iza, B. Fleury, N. Praff, J. Speck, E. Hu and C. Weisbuch, "High extraction efficiency light-emitting diodes based on embedded air-gap photonic-crystals," Appl. Phys. Lett. **96**, (2010), 031108.

31) J. Jewell, D. Simeonov, S-C Huang, Y-L Hu, S. Nakamura, J. Speck and C. Weisbuch, "Double embedded photonic crystals for extraction of guided light in light-emitting diodes," Appl. Phys. Lett. **100**, (2012), 171105.

32) J-Z Liu, M. D. B. Charlton, C-H Lin, K-Y Lee, C. Krishman and M-C. Wu, "Efficiency improvement of blue LEDs using a GaN buried air void photonic crystal with high air filling fraction," IEEE Journal of Quantum Electronics, **50**, (2014), pp. 314-320

33) Y-J. Lee, S-H. Kim, J. Huh, G-H. Kim, Y-H. Lee, S-H. Cho, Y-C. Kim and Y. Do, "A high-extraction-efficiency nano-patterned organic light-emitting diode," Appl. Phys. Lett. **82**, (2003), pp. 3779-3781.

34) K. Ishihara, M. Fujita, I. Matsubara, T. Asano, S. Noda, H. Ohata, A. Hirasawa, H. Nakada and N. Shimoji, "Organic light-emitting diodes with photonic crystals on glass substrate fabricated by nanoimprint lithography," Appl. Phys. Lett. **90**, (2007), 111114.

35) C. S. Kim, M. Kim, D. C. Larrabee, I. Vurgaftman, J. R. Meyer, S. H. Lee and Z. H. Kaafi, "Enhanced performance of organic light-emitting diodes using two-dimensional zinc sulfide photonic crystals," J. Appl. Phys. **106**, (2009), 113105.

36) S-Y. Kim, W-I. Jeong, C. Mayr, Y-S. Park, K-H. Kim, J-H Lee, C-K. Moon, W. Brutting and J-J. Kim, "Organic light-emitting diodes with 30% external quantum efficiency based on a horizontally oriented emitter," Adv. Funct. Mater. **23**, (2013), pp. 3896-3900.

37) J. Frischeisen, D. Yokoyama, A. Endo, C. Adachi and W. Brutting, "Increased light outcoupling efficiency in dye-doped small molecule organic light-emitting diodes with horizontally oriented emitters," Org. Elect. **12**, (2011), pp. 809-817.

38) D. Yokoyama, K. Nakayama, T. Otani and J. Kido, "Wide-range refractive index control of organic semiconductor films toward advanced optical design of organic optoelectronic devices," Adv. Mater. **24**, (2012), pp. 6368-6373.

39) T. Ogiwara, H. Ito, Y. Mizuki, R. Naraoka, M. Funahashi and H. Kuma, "Efficiency improvement of fluorescent blue device by molecular orientation of blue dopant," SID symposium digest of technical papers. **44**, (2013), pp. 515-518.

40) T. D. Schmidt, B. J. Scholz, C. Mayr and W. Brutting, “Non-isotropic emitter orientation in organic light-emitting diodes,” SID symposium digest of technical papers. **44**, (2013), pp. 604-607.

41) K-H. Kim, S. Lee, C-K. Moon, S-Y. Kim, Y-S. Park, J-H. Lee, J-W. Lee, J. Huh, Y. You and J-J. Kim, “Phosphorescent dye-based supramolecules for high-efficiency organic light-emitting diodes,” Nature Communications. **5**, (2014), 4769.

42) K-H. Kim, C-K. Moon, J-H. Lee, S-Y. Kim and J-J. Kim, “Highly efficient organic light-emitting diodes with phosphorescent emitters having high quantum yield and horizontal orientation of transition dipole moments,” Adv. Mater. **26**, (2014), pp.3844-3847.

43) A. Senes, S. Meskers, H. Greiner, K. Suzuki, H. Kaji, C. Adachi, J. Wilson and R. Janssen, “Increasing the horizontal orientation of transition dipole moments in solution processed small molecular emitters,” J. Mater. Chem. C. **5**, (2017), pp. 6555-6562.

44) H. Kikuta, S. Hino and A. Maruyama, “Estimation method for the light extraction efficiency of light-emitting elements with a rigorous grating diffraction theory,” J. Opt. Soc. Am. A. **23**, (2006), pp. 1207-1213.

45) 李正中、「光学薄膜と成膜技術」、アグネ技術センター、(2002).

46) T. Kato, H. Susawa, M. Hirotani, T. Saka, Y. Ohashi, E. Shinchi and S. Shibata, “GaAs/GaAlAs surface emitting IR LED with Bragg reflector grown by MOCVD,” J. Cryst. Growth, **107**. (1991), pp. 832-835.

47) Th. Gessmann and E. F. Schubert, “High-efficiency AlGaInP light-emitting diodes for solid-state lighting applications,” J. Appl. Phys. **95**, (2004), pp.2203-2216.

48) H. Kim, S-N. Lee, Y. Park, K-K. Kim, J. Kwak and T-Y Seong, “Light extraction enhancement of GaN-based light emitting diodes using MgF_2/Al omnidirectional reflectors,” J. Appl. Phys. **104**, (2008), 053111.

49) J. Kim, Th. Gessmann, H. Luo, and E. F. Schubert, “GaInN light-emitting diodes with RuO_2/ SiO_2/ Ag omni-directional reflector,” Appl. Phys. Lett. **84**, (2004), pp.4508-4510.

50) J. Kim, Th. Gessmann, E. F. Schubert, J-Q. Xi, H. Luo, J. Cho, C. Sone and Y. Park, “GaInN light-emitting diode with conductive omnidirectional reflector having a low-refractive-index indium-tin oxide layer,” Appl. Phys. Lett. **88**, (2006), 013501.

51) S. Zhou, C. Zheng, J. Lv, Y. Gao, R. Wang and S. Liu, “GaN-based flip-chip LEDs with highly reflective ITO/DBR p-type and via hole-based n-type contacts for enhanced current spreading and light extraction,” Optics & Laser Technology, **92**,

(2017), pp. 95-100.

52) S. Zhou, X. Liu, Y. Gao, Y. Liu, M. Liu, Z. Liu, C. Gui and S. Liu, ”Numerical and experimental investigation of GaN-based flip-chip light-emitting diodes with highly reflective Ag/TiW and ITO/DBR Ohminc contacts”, Optics express, **25**, (2017), pp.26615-26627.

53) S. Oh, K. J. Kee, H-J. Lee, S-J. Kim, J. Han, N-W. Kang, J-S. Kwon, H. Kim, K-K. Kim and S-J. Park, “Periodic air-nanoplate-embedded AlGaN/air/Al omnidirectional reflector for high efficiency ultraviolet emitters,” Scripta Materialia. **146**, (2018), pp. 41-45.

54) A. Salehi, S. Ho, Y. Chen, C. Peng, H. Yersin and F. So, “Highly efficient organic light-emitting diode using a low refractive index electron transport layer,” Adv. Opt. Mater. **5**, (2017), 1700197.

55) D. Yokoyama, K. Nakayama, T. Otani and J. Kido, “Wide-range refractive index control of organic semiconductor films toward advanced optical design of organic optoelectronic devices,” Adv. Mater, **24**, (2012), pp.6368-6373.

56) K. Neyts, “Simulation of light emission from thin-film microcavities,” J. Opt. Soc. Am. A, **15**, (1998), pp. 962-971.

57) E. M. Purcell, “Spontaneous emission probabilities at radio frequencies,” Phys. Rev. **69**, (1946), 681.

58) R. Meerheim, M. Furno, S. Hofmann, B. Lussem and K. Leo, “Quantification of energy loss mechanisms in organic light-emitting diodes,” Appl. Phys. Lett. **97**, (2010), 253305.

59) S. Nowy, B. C. Krummacher, J. Frischeisen, N. A. Reinke and W. Brutting, “Light extraction and optical loss mechanism in organic light-emitting diodes: Influence of the emitter quantum efficiency,” J. Appl. Phys. **104**, (2008), 123109.

60) S. Mladenovski, S. Hofmann, S. Reinke, L. Penninck, T. Verschiueren and K. Neyts, “Integrated optical model for organic light-emitting devices,” J. Appl. Phys. **109**, (2011), 083114.

61) P. A. Hobson, S. Wedge, J. A. E. Wasey, I. Sage and W. L. Barnes, “Surface plasmon mediated emission from organic light-emitting diodes,” Adv. Materials. **14**, (2002), pp. 1393-1396.

62) J. Frischeisen, Q. Niu, A. Abedellah, J. B. Kinzel, R.Gehihaar, G. Scarpa, C. Adachi, P. Lugli and W. Brutting, “Light extraction from surface plasmons and waveguide modes in an organic light-emitting layer by nanoimprinted gratings,” Opt. Exp. **19**, (2010), pp. A7-A19.

63) A. Mikami and T. Goto, “Optical design of enhanced light extraction efficiency in multi-stacked OLEDs coupled with high refractive-index medium and back-cavity structure,” SID symposium digest of technical papers, **43**, (2012), pp. 683-686.

64) A. Mikami and H. Inoue, “Optical control of surface plasmon coupling in organic light emitting devices with nanosized multi-cathode structure,” Proc. of 5th international conference on nanotechnology, (2014), 234.

65) 出向井幸弘、田蔦博幸、「LED 照明パッケージの開発とその応用」、豊田合成技報, **55**, (2011), pp.22-29.

66) M. Yamada, T. Mitani, Y. Narukawa, S. Shioji, I. Niki, S. Sonobe, K. Deguchi, M. Sano and T. Mukai, “InGaN-based near ultraviolet and blue light emitting diodes with high external quantum efficiency using a patterned sapphire substrate and a mesh electrode,” Jpn. J. Appl. Phys, **41**, (2002), pp. L1431-1433.

67) J. J. Chen, Y. K. Su, C. L. Lin, S. M. Chen, W. L. Li and C. C. Kao, “Enhanced output power of GaN-based LEDs with nano-patterned sapphire substrates,” IEEE Photonics Let. **20**, (2008), pp. 1193-1195.

68) S. Zhou, B. Cao, S. Liu and H. Ding, “Improved light extraction efficiency of GaN-based LEDs with patterned sapphire substrate and patterned ITO,” Opt. Laser. Technol. 44, (2012), pp.2302-2305.

69) J-K. Liou, C-C. Chen, P-C. Chou, Z-J. Tsai, Y-C. Chang and W-C. Liu, “Implementation of a high performance GaN-based light emitting diode grown on a nanocomb-shaped patterned sapphire substrate,” IEEE Journal of Quantum Elect. **50**, (2014), pp.973-980.

70) H-Y. Wang, Z-T. Lin, J-L. Han, Li-Yi. Zhong and G-Q. Li, “Design of patterned sapphire substrates for GaN-based light-emitting diodes,” Chin. Phys. B. **24**, (2015), 067103.

71) P. Kumar, A. Khanna, S-Y. Son, J. S. Lee and R. K. Singh, “Analysis of light out-coupling from microlens array,” Optics Communications, **284**, (2011), pp. 4279-4282.

72) X-H. Li, R. Song, Y-K. Ee, P. Kumnorkaew, J. F. Gilehrist and N. Tansu, “Light extraction efficiency and radiation patterns of III-nitride light-emitting diodes with colloidal microlens arrays with various aspect ratios,” IEEE Photonics Journal, **3**, (2011), pp. 489-499.

73) Y. Peng, X. Guo, R. Liang, Y. Mou, H. Cheng and S.Liu, “Fabrication of microlens arrays with controlled curvature by micromolding water condensing based porous films for deep ultraviolet LEDs,” ACS Photonics, **4**, (2017), pp. 2479-2485.

74) X. Gu, L. Chen, S. Shen and W. Wan, “Both improvements of the light extraction

efficiency and scattered angle of GaN-LED using sub-micron Fresnel lens array," Proc. of SPIE, **9667**, (2015), 96670C.

75) P. Mao, F. Sun, H. Yao, J. Chen, B. Zhao, B. Xie, M. Han and G. Wang, "Extraction of light trapped due to total internal reflection using porous high refractive index nanoparticle films," Nanoscale, **6**, (2014), pp.8177-8184.

76) P. Mao, A.Mahapatra, J. Chen, M. Chen, G. Wang and M. Han, "Fabrication of polystyrene / ZnO micronano hierarchical structure applied for light extraction of light-emitting devices," Appl. Mater. Interfaces. **7**, (2015), pp. 19179-19188.

77) P. Mao, M. Xu, J. Chen, B. Xie, F. Song, M. Ham and G. Wang, "Dual enhancement of light extraction efficiency of flip-chip light-emitting diode with multiple beveled SiC surface and porous ZnO nanoparticle layer coating," Nanotechnology, **26**, (2015), 185201.

78) G. Halpin, T. Robinson, X. Jin, X-N. Kang and G-Y. Zhang, "Study of GaN LED ITO Nano-grating with standing wave analysis," IEEE Photonics Journal, **6**, 2014, 4500210.

79) M-S. Wang, L. Yang and Z-J. Huang, "Strong enhancement in light output of GaN-based LEDs with graded-refractive-index ITO deposited on textured V-shaped pits," IEEE Electron Device Letters, **35**, (2014), pp. 464-466.

80) C-H. Hsu, Y-C. Chan, W-C. Chen, C-H. Chang, J-K. Kiou, S-Y. Cheng, D-F. Guo and W-C. Liu, "Study of GaN-based LEDs with hybrid SiO_2 microsphere/nanosphere antireflection coating as a passivation layer by a rapid convection deposition," IEEE transactions on electron devices, **64**, (2017), pp. 1134-1139.

81) S. Reineke, F. Linder, G. Schwartz, N. Seidler, K. Walzer, B. Lussem and K. Leo, "White organic light-emitting diodes with fluorescent tube efficiency," Nature, **459**, (2009), pp. 234-238.

82) S. Moller and S. R. Forrest, "Improved light out-coupling in organic light emitting diodes employing ordered microlens arrays," J. Appl. Phys. **91**, (2002), pp.3324-3327.

83) H. J. Peng, Y. L. Ho, C. F. Qiu, M. Wong and H. S. Kwok, "Coupling efficiency enhancement of organic light emitting devices with refractive microlens array on high index glass substrate," SID symposium digest of technical papers. **35**, (2004), pp. 158-161.

84) M-K. Wei, "Method to evaluate the enhancement of luminance efficiency in planer OLED light emitting devices for microlens array," Optics Express, **12**, (2004), pp.5777-5782.

85) H. Peng, Y.-L. Ho, X-J. Yu, M. Wong and H-S. Kwok, "Coupling efficiency enhancement in organic light-emitting devices using microlens array theory and experiment," J. Disp. Tech. **1**, (2005), pp. 278-282.

86) Y. Sun and S. R. Forrest, "Organic light emitting devices with enhanced outcoupling via microlenses fabricated by imprint lithography," J. Appl. Phys. **100**, (2006), 073106.

87) F. Li, X. Li, J. Zhang and B. Yang, "Enhanced light extraction from organic light-emitting devices by using microcontact printed silica colloidal crystals," Org. Elect. **8**, (2007), pp. 635-639.

88) M-K. Wei, J-H. Lee, H-Y. Lin, Y-H. Ho, K-Y. Chen, C-C. Lin, C-F. Wu, H-Y. Lin, J-H Tsai and T-C. Wu, "Efficiency improvement and spectral shift of an organic light-emitting device by attaching a hexagon-based microlens array," J. Opt. A. **10**, (2008), 055302.

89) H-Y. Lin, Y-H. Ho, J-H. Lee, K-Y. Chen, J-H. Fang, S-C. Hsu, M-K. Wei, H-Y. Lin, J-H. Tsui and T-C. Wu, "Patterned microlens array for efficiency improvement of small-pixelated organic light-emitting devices," Optics Expless, **16**, (2008), pp. 11044-11051.

90) M-K. Wei, H-Y. Lin, J-H. Lee, K-Y. Chen, Y-H. Ho, C-C. Lin, C-F. Wu, H-Y. Lin, J-H Tsai and T-C. Wu, "Efficiency improvement and spectral shift of an organic light-emitting device with a square-based microlens array," Opt. Communications. **281**, (2008), pp.5625-5632.

91) J. P. Yang, Q. Y. Bao, Z. Q. Xu, Y. Q. Li, J. X. Tang and S. Shen, "Light out-coupling enhancement of organic light-emitting devices with microlens array," Appl. Phys. Lett. **97**, (2010), 223303.

92) S-H. Eom, E. Wrzesniewski and J. Xue, "Close-packed hemispherical microlens arrays for light extraction enhancement in organic light-emitting deivces," Org. Electron. **12**, (2011), pp. 472-476.

93) E. Wrzesniewski, S-H. Eom, W. Cao, W. T. Hammond, S. Lee, E. P. Douglas and J. Xue, "Enhancing light extraction in top-emitting organic light-emitting devices using molded transparent polymer microlens arrays," Small, 8, (2012), pp. 2647-2651.

94) J. Wang, C. Wang and Y. Jiang, "To enhance light extraction for organic light emitting diodes by body modification of substrate," Inter. J. Photoenergy. **2013**, (2013), 649564.

95) D. H. Hwang, O. T. Kwon, W. J. Lee, J. W. Hong and T. W. Kim, "Outcoupling

efficiency of organic light-emitting diodes depending on the fill factor and size of the microlens array," Phys. Stat. Solidi (a). **211**, (2014), pp.1773-1777.

96) J. Wang, W. Li and C. Wang, "Improving light outcoupling efficiency for OLEDs with microlens array fabricated on transparent substrate," J. Nanomaterials. **2014**, (2014), 287952.

97) H. Bae, J. S. Kim and C. Hong, "Simulation for light extraction efficiency of OLEDs with spheroidal microlenses in hexagonal array," Optics Communications, **415**, (2018), pp. 168-176.

98) L. Sun, W. Zhu, M. Tang, B. Qian, T. Xiao, J. Yu and K. Guo, "Effect of inverted-pyramid shape on light extraction of organic light-emitting diodes," Phys. Stat. Solidi (a). **212**, (2014), pp. 646-650.

99) H. S. Kim, S. II. Moon, D. E. Hwang, K. W. Jeong, C. K. Kim, "Novel fabrication method of microlens arrays with high OLED ougcoupling efficiency," Opt. and laser tech. **77**, (2016), pp. 104-110.

100) K. Lee, J. Lee, E. Kim, J. I. Lee, D. H. Cho, J. T. Lim, C. W. Kim, S. Yoo, B. K. Ju and J. Moon, "Simultaneously enhanced device efficiency, stabilized chromaticity of organic light emitting diodes with lambertian emission characteristic by random convex lenses," Nanotechnology, **27**, (2016), 075202.

101) B. Riedel, J. Hauss, U. Geyer, J. Cuetiein, U. Lemmer and M. Gerken, "Enhancing outcoupling efficiency of indium-tin-oxide-free organic light- emitting diodes via nanostructured high index layers," Appl. Phys. Lett. **96**, (2010), 243302.

102) J-H. Jang, M-C. Oh, T-H. Yoon and J-C. Kim, "Polymer grating imbedded organic light emitting diodes with improved out-coupling efficiency," Appl. Phys. Lett. **97**, (2010), 123302.

103) Y. Sun and R. S. Forrest, "Enhanced light out-coupling of organic light-emitting devices using embedded low-index grids," Nature Photonics. **2**, (2008), pp. 483-487.

104) M. Milosevic, "On the Nature of the Evanescent Wave," Applied Spectroscopy, **67**, (2013), pp. 126-131.

105) A.Lenef, J. Kelso, M. Tchoul, O. Mehi, J. Sorg and Y. Zheng, "Laser-activated remote phosphor conversion with ceramic phosphors," Proc. of the 13th international conference on solid-state lighting and LED-based illumination systems on SPIE, San Diego, **9190**, (2014), 91900C-1.

106) S. Nishiura, S. Tanabe, K. Fujioka and Y. Fujimoto, "Properties of transparent Ce:YAG ceramic phosphors for white LED," Opt. Mat. **33**, (2011), pp.688-691.

107) M. Yasuda, T. Iwahashi, A. Murai, H. Fukshima, K. Yamae, S. F. Chichibu, T. Onuma and K. Hazu, Japan Patent JP2010-272592A (2010).

108)T. Iwahashi, A. Murai, H. Fukshima, M. Yasuda and K. Yamae, Japan Patent JP5091823B (2012).

109)H. Fukshima, K. Yamae, M. Yasuda and T. Iwahashi, Japan Patent JP5186259B (2013).

110)城戸淳二 他、「有機 EL ハンドブック」、リアライズ理工センター、(2004).

111)佐川賢、「比視感度と測光システム」、光学、**13**, (1984), pp.262-269

112)Smith, Thomas, Guild and John, "The C.I.E. colorimetric standards and their use," Transactions of the Optical Society, **33**, (1931), pp. 73-134.

113)ENERGY STAR® Program Requirements for Solid State Lighting Luminaires, Eligibility Criteria – Version 1.1 (2008).

114)CIE, "Method of measuring and specifying colour rendering properties of light sources – 1st edition," (1965).

115)J. Kido, T. Matsumoto, T. Nakada, J. Endo, K. Mori, N. Kawamura and A. Yokoi, "High efficiency organic EL devices having charge generation layers," SID symposium digest of technical papers. **34**, (2003), pp. 964-965.

116)K. Yamae, N. Ide, H. Kimura, H. Tsuji, S. Hayashi, Japan Patent JP5731830B (2015).

117)K. Yamae, S. Okumura, H. Takano, M. Ota, Japan Patent JP WO2014/057647 (2014).

本論文に関する著者の論文

1) 論文

(1) K. Yamae, H. Tsuji, V. Kittichungchit, N. Ide, and T. Komoda, “Highly efficient white organic light-emitting diodes with over 100 lm/W for next generation solid-state lighting”, J. Soc. Inf. Disp., **21** (2013) 529.

(2) K. Yamae, V. Kittichungchit, N. Ide, M. Ota, and T. Komoda, “Realization of high efficacy white organic light emitting diode by controlling internal light absorption and angular distribution”, J. Soc. Inf. Disp., **22** (2014) 499.

(3)K. Yamae, H. Fukshima, and K. Fujimoto, ”Omnidirectional reflector with total internal reflective interface for light extraction enhancement of solid-state light source”, Phys. stat. sol. (a), **215** (2018) 1700775.

(4)K. Yamae, H.Fukshima, T. Iwahashi, M.Yasuda, and K. Fujimoto, “Omnidirectional reflector based on transparent oxide materials for light extraction enhancement of organic and inorganic solid-state light emitting devices”, J. Photopolym. Sci. Technol., **31** (2018) 363.

(5) T. Komoda, K. Yamae, V. Kittichungchit, H. Tsuji, and N. Ide, “High efficacy white OLEDs for lighting”, J. Photopolym. Sci. Technol., **25** (2012) 321.

(6) H. Tsuji, K. Yamae, V. Kittichungchit, N. Ide, and T. Komoda, “High-efficiency Technology of White OLEDs”, J. Photopolym. Sci. Technol., **26** (2013) 415.

(7)N. Ide, K. Yamae, V. Kittichungchit, H. Tsuji, M. Ota, and T. Komoda, “Development of extremely high efficacy white OLED with over 100 lm/W”, J. Photopolym. Sci. Technol., **27** (2014) 357.

(8)J. Matsuzaki and K. Yamae, “Development of highly efficient light extraction technology with nano-structure for OLED devices”,J. Photopolym. Sci. Technol., **28** (2015) 329.

2) 国際会議

(1)K. Yamae, H. Tsuji, V. Kittishungchit, N. Ide, Y. Matsuhisa, S. Hayashi, and T. Komoda, “High-efficiency white OLEDs with Built-up outcoupling substrate”, Socienty for Information Display, 51.4 (2012).

(2) K. Yamae, H. Tsuji, V. Kittishungchit, N. Ide, and T. Komoda, “Highly Efficient White OLEDs with over 100 lm/W for General Lighting”, Society for Information Display, 66.2 (2013).

(3)K. Yamae, V. Kittishungchit, N. Ide, M. Ota, and T. Komoda,”Realization of

Outstandingly High Efficacy White OLED by Controlling Evanescent Mode and Wide Angular Incident Light", Society for Information Display, 47.4 (2014).
; Distinguished Paper Award

(4) K.Yamae, V.Kittishungchit, Y.Matsuhisa, H.Tsuji and T.Komoda, "Development of Extremely High Efficacy White OLED with over 100 lm/W", The 31st International Conference of Photopolymer Science and Technology, B3-16 (2014).

(5) K.Yamae, H.Fukshima, and K.Fujimoto, "Omnidirectional reflector with TIR interface for light extraction enhancement of solid-state light source",The 10th International Symposium on Transparent Oxide and Related Materials for Electronics and Optics, 3pP05 (2017).

(6) K.Yamae, H.Fukshima, T.Iwahashi, M.Yasuda, and K.Fujimoto, "Omnidirectional reflector based on transparent oxide materials for light extraction enhancement of organic and inorganic solid-state light emitting devices", The 35th International Conference of Photopolymer Science and Technology, B3-12 (2018).

3) 国内学術会議

(1) 山江和幸、辻博也、松久裕子、ｷｯﾃｨｼｭﾝﾁｯﾄ=ﾜﾙｯﾄ、林真太郎、井出伸弘、菰田卓哉、「照明用白色有機ELの開発」、照明学会全国大会、2-7 (2011)

(2) 山江和幸、辻博也、ｷｯﾃｨｼｭﾝﾁｯﾄ=ﾜﾙｯﾄ、井出伸弘、菰田卓哉、「照明用高性能白色有機ELの開発」、有機EL討論会第14回例会、S4-1 (2012)

(3) 山江和幸、ｷｯﾃｨｼｭﾝﾁｯﾄ=ﾜﾙｯﾄ、辻博也、井出伸弘、菰田卓哉、「次世代照明向け高性能白色有機EL素子の開発」、有機EL討論会第15回例会、S2-4 特別セッション (2012)

(4) 山江和幸、「次世代照明向け高性能白色有機EL素子の開発」、有機エレクトロニクス研究会第2回異業種交流会 (2013)

(5) 山江和幸、ｷｯﾃｨｼｭﾝﾁｯﾄ=ﾜﾙｯﾄ、辻博也、井出伸弘、菰田卓哉、「100 lm/W超を実現する白色有機EL素子の開発」、有機EL討論会第17回例会、S3-2 (2013)

(6) 山江和幸、有機EL討論会第18回例会、「高性能光取り出し基板とオールリン光材料を用いた高効率有機EL素子の開発」、S4-2 第7回有機EL討論会業績賞受賞記念講演(2014)

(7) 山江和幸、福島博司、藤本公三、「固体発光素子高効率化のための全方向反射鏡」、スマートプロセス学会2017年度秋季総合学術講演会 (2017)