

氏 名	いし はら くに あき 石 原 邦 亮
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)
学位記番号	工 博 第 2928 号
学位授与の日付	平 成 20 年 3 月 24 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 1 項 該 当
研究科・専攻	工 学 研 究 科 電 子 工 学 専 攻
学位論文題目	フ ォ ト ニ ッ ク 結 晶 有 機 EL 素 子 に 関 す る 研 究

論文調査委員 (主査) 教授 野田 進 教授 藤田 静雄 教授 木本 恒暢

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、2次元フォトニック結晶の導入による有機EL素子の高効率・高機能化を目的とし、有機EL素子についての光学特性解析手法の開発とそれに基づくフォトニック結晶の設計、フォトニック結晶を導入した有機EL素子の作製手法開発、光学特性の測定とその解析といった一連の研究成果についてまとめたものであり、全7章から構成される。

第1章は序論である。研究を構成する要素技術である有機EL素子、フォトニック結晶、ナノインプリントリソグラフィについて、それぞれの特徴および研究動向、フォトニック結晶有機EL素子の実現により期待される効果について述べ、本論文の位置づけ、目的を明示している。

第2章では、有機EL素子とフォトニック結晶の基礎的な事由について説明している。有機EL素子では、透明陽極・有機層・金属陰極からなる発光領域に導波モードが生起すること、フォトニック結晶を用いれば、導波モードを取り出し可能であることを述べている。さらに、本研究で特に重要となる概念としてフォトニック結晶による回折と有機EL素子の構成材料による光吸収が競合した結果として、導波モードが取り出し可能となる割合が決まる点を指摘している。

第3章では、有機EL素子の発光領域にフォトニック結晶を導入するに当たり、適切なフォトニック結晶構造を与えるための光学特性解析を行っている。フォトニック結晶構造を導入する前の平板構造有機EL素子を対象とし、屈折率を複素領域に拡張して材料分散・吸収を考慮した転送行列法を用いて発光領域に閉じ込められる光(導波モード)の挙動を解析している。その結果、導波モードは3種類存在すること、その最低次(TM0)モードは金属界面に生じる表面プラズマモードであり総発光量の40%近くが結合すること、導波モードは 10^4cm^{-1} 前後の吸収を受けることが明らかにされている。これらの定量的な知見を基に、金属陰極への光取り出し構造導入によりTM0モードを取り出すこと、素子の構成材料が有する光吸収性を排除することを光取り出し量を向上するために重要な点として指摘している。最後に、導波モードの分散関係を元に、作製すべきフォトニック結晶の周期として300nmを導いている。

第4章では、フォトニック結晶有機EL素子の作製手法として、熱ナノインプリント法を検討している。中でも、低融点光学ガラス基板へフォトニック結晶を直接形成することで、リソグラフィとドライエッチングからなるこれまでのフォトニック結晶形成手法の大幅な簡略化を図っている。手法の実現のため、まず高温環境下のガラスを粘性流体と見なしたモデルを基にパターン深さと温度・圧力・時間といったパラメータの関係を導き出している。次に、インプリント工程の詳細を検討し、高温・高圧プロセスである熱ナノインプリントにおいて、モールド表面の離型処理が非常に重要である点を明らかにしている。これらの検討の結果、温度360℃、インプリント圧力2.2MPa、時間25分の条件の下、周期300nm、深さ40nmの正方格子フォトニック結晶パターンの形成に成功している。

引き続き、ガラスパターン上に有機EL素子の構成材料を順次成膜し、発光領域全体が一つのフォトニック結晶として動作するフォトニック結晶有機EL素子を作製し、室温環境・直流電流条件下での動作実証に成功している。その光学特性からは、フォトニック結晶による導波モードの取り出しに対応した3本のスペクトルピークが観察されている。また、正孔注

入材料として光吸収性の高いCuPcと光吸収のないm-MTDATAをそれぞれ用いた素子を作製し、両素子の比較検討から、第3章で提案した導波吸収の低減に伴う光取り出し量の向上の実験実証にも成功している。これらの工夫により、スペクトルの最大ピーク強度で2.3倍、輝度で1.5倍の向上が得られている。

第5章では、フォトニック結晶構造形成工程のより一層の簡略化、短時間化を目的に、スピンのオン・ガラス（SOG）を用いたフォトニック結晶有機EL素子の作製プロセスを検討している。SOGが室温環境下においてインプリント可能である点を利用し、パターン形成時間が1分間と飛躍的な短時間化を達成している。SOGはパターンニング後に焼成する必要があり、この工程においてインプリントしたパターンが崩れる問題を、酸素プラズマ照射による表面酸化と酸素雰囲気中における焼成により回避できることを示している。さらに、フォトニック結晶を構成する格子点形状が、有機EL素子の陽極・有機層・陰極と続く薄膜形成に大きな影響を与えることを、成膜シミュレーションおよび作製素子断面の静電界解析を元に明らかにしている。検討の末、格子点をなす円孔の側壁に25°以上の傾斜を設ければ、リーク電流のない良好な電気特性と発光特性をもつ素子を安定して作製できることを示している。これら改良された作製手法と、有機層への色素ドーピングによる発光スペクトルの強度向上・狭帯域化を組み合わせ、フォトニック結晶・色素ドープともに導入しない参照素子と比較して4.7倍の発光ピーク強度と2.1倍の輝度、1/4のスペクトル幅を持つ、シングルピークで単色性の良い素子の作製に成功している。

第6章では、フォトニック結晶有機EL素子の角度分解スペクトル測定を通じて、フォトニックバンド構造を観察し、フォトニック結晶が有機EL素子の発光現象に及ぼす影響を検討している。実験結果からは、有機EL素子に内在する3つの導波モードと導入した2次元正方格子フォトニック結晶を反映したバンド構造が得られている。一方で、フォトニック結晶有機EL素子の積層情報と周期性をともに取り込むために、Chandezon法に基づいたバンド計算法を構築し、フォトニックバンド図を求めている。この計算結果は実験結果と良好な整合を示し、消失性干渉や状態密度の増加に伴う発光強度の向上といった、フォトニック結晶ならではの発光状態の変調効果が有機EL素子においても生じている点を明らかにしている。

第7章は結論である。本論文で得られた成果をまとめるとともに、今後の展望について述べている。

論文審査の結果の要旨

本論文は、フォトニック結晶と呼ばれる光ナノ構造体の光制御性を利用して、有機EL素子からの効率的な光取り出し実現を図った研究に関する成果をまとめたものである。本論文では、有機EL素子の光学特性解析手法の開発とその結果に基づくフォトニック結晶の設計、フォトニック結晶を導入した有機EL素子の作製手法開発、光学特性の測定およびその解析まで、一連の研究成果について報告している。本研究で得られた主要な成果は、次のようにまとめられる。

1. 有機EL素子の光学特性解析を行い、フォトニック結晶導入による光取り出し効果を最大にする設計指針を与えている。特に、金属陰極に形成される表面プラズマモードの存在と、陰極への結晶構造導入によりこのモードを取り出す必要性、素子構成材料から光吸収性を排除する重要性を明らかにしている。

2. ナノインプリント法と呼ばれるリソグラフィ技術を利用して、フォトニック結晶を高精度・大面積・短時間に形成する手法の確立を行っている。有機EL素子の基板材料であるガラスに着目し、その熱可塑性を利用した直接インプリント、続いて、スピンのオン・ガラス材料を検討し、より短時間における微細パターンの作製工程を検討している。その結果、300nm周期のフォトニック結晶パターンの作製に成功している。

3. フォトニック結晶有機EL素子の作製・動作実証を果たしている。その際、フォトニック結晶を構成する各格子点の側壁に25°以上の傾斜を設ければ、その上に形成される有機EL素子から良好な発光が得られることを明らかにしている。さらに、光吸収のない有機材料を用いた光取り出し効果の向上、結晶周期を利用した発光ピーク波長制御による彩度改善、色素ドープによる高輝度素子の作製といった成果を上げている。

4. フォトニックバンド構造の評価を行い、光取り出し効果のより詳しい理解を試みている。角度測定から実験的にバンド構造を得る一方、金属を含むフォトニック結晶の解析手法を検討し、光取り出しの様子を説明する初歩となる成果を得ている。

以上の通り、本論文はフォトニック結晶有機EL素子実現のための設計・作製工程に必要な一連の手法確立を網羅的に行

っている。その成果は、学術上・工学上の寄与が少なくない。よって、本論文は、博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。また、平成20年2月1日に、論文内容とそれに関連した事項に関して試問を行った結果、合格と認めた。