

LED/OLEDの最新技術成果

井上憲人

今年のコンシューマエレクトロニクスショー(CES 2021)は、COVID-19の影響により、バーチャルで行われた。例年通り、各社がTV、AR/VR、ライド、スマートグラスなどLED関連の開発成果を発表した。ここで製品を紹介することはしないが、それらに搭載されているMiniLED、OLED市場について調査会社のレポートを参照しておこう。

台湾トレンドフォース社(Trend Force)のレポートによると、COVID-19の影響でMiniLED需要が爆発している。その結果、「チップ価格が、5～10%上昇」と分析している。MiniLEDは、TVのバックライトにもスマートグラスにも使用されている。TVに関して、「MiniLEDバックライトは、現在、OLEDディスプレイに対して競争力がある。MiniLEDのほうが15%低価格だからである」と分析している。CES 2021では、韓国LGディスプレイ社(LG Display)が、ベッドと透明OLEDを統合したSmart Bedを紹介した。ボタンを押すと、足元からスクリーンが上昇してくるという前例のないデザインである。LED関連の製品に関しては、他のレポートを見てもらうことにして、ここでは、昨年から今年にかけてOLED開発のニュースを見ておくことにする。

PSIの未来の照明材料

これは、OLEDの発光効率向上、安価な製造を目指した研究。ヨーロッパの巨大施設を使った実験の成果を報告している。

imec、

OLEDディスプレイ製造に
フォトリソグラフィを利用

imecは、OLED製造でフォトリソグ

ラフィを提案。ディスプレイのパターン形成で、「従来法に対して優位性がある」と主張している。

応力緩和基板が

OLEDの2次元伸長に役立つ

KAISTは、フレキシブルな2Dデバイスを実現する方法を研究している。ここでは、「表面起伏アイランド構造の伸縮自在基板システムを設計した」という報告。

ペロブスカイトLEDに一步近づく

ペロブスカイトは、さまざまな領域で利用されているが、リンショーピング大は太陽電池だけでなくLEDで利用する研究を行っている。まだ、実用にはほど遠いとはいえ、「効率17.3%、ほぼ100時間の長い半減期を持つLEDを開発した」と報告している。

PSIの未来の照明材料

スイスの研究機関、ポール・シュラー研究所(Paul Scherrer Institute: PSI)発表のニュースによると、同研究所の研究チームが有機発光ダイオード(OLED)に有望な材料を発見した。その物質は、高い光収量を可能にし、安価な大規模製造ができる。すなわち、大きな部屋の照明用途として実用的である。研究者は、長い間、そのような材料を探していた。新たに生まれた理解では、将来の新しい照明器具の迅速かつコスト効率の優れた開発を容易にする。

研究成果はNature Communicationsに発表された。

その化合物は黄色の固体である。それを液体に溶かす、あるいはその薄い層を電極に乗せ、電流を印加すると、強い緑色に発光する。理由は、供給さ



図1 CuPCPIは、電流を印加すると強い緑色に発光するが、UV光以下でも発光する。(写真提供: 独ブレーメン大、マティアス・フォークト氏)

れるエネルギーをその分子が吸収し、再び光として徐々に放出するからである。これは、エレクトロルミネセンスと言う。発光ダイオード(LED)は、この原理に基づいている。

この緑の発光物質は、OLED製造の有力な候補である。約3年前から、OLEDは例えばスマートフォンディスプレイに見られるようになった。一方、これらの材料によるフレキシブルTVスクリーンも市場に出ている。

加えて、OLEDは、大きな表面積のコスト効率の優れた室内照明にもなる。しかし、まず、このアプリケーションに最適な材料を発見する必要がある。つまり、OLEDに検討されている多くの物質は、イリジウムなどの高価な物質を含んでおり、これが大規模で広い面積に適用する障害になっている。そのような添加物なしでは、その材料は、実際には、供給されたエネルギーのほんの一部しか光として放出できない。残りは、例えば、振動エネルギーとして失われる。

現在の研究の目標は、安価で環境に優しいディスプレイや大面積照明のための効率的な材料を見つけることである。ここで、安価で直ぐにも使える銅のような金属が、進歩を約束する。

CuPCPの精密な検査

研究チームは、銅含有化合物CuPCPのより精密な検査を行った(図1)。各分子の真ん中に4つの銅原子があり、炭素とリン原子で囲まれている。銅は、比較的安価な金属である。化合物そのものは簡単に量産できる。大型表面での利用には理想的な前提条件である。

オペランド分光(operando spectroscopy)研究グループの物理学者、グリゴリー・スモレンチェフ氏(Grigory Smolentsev)は、「その化合物の励起

状態の様子を理解したかった」と話している。つまり、それがエネルギーを吸収すると、その物質がどのように変化するか。例えば、分子の構造は変わるのか。その変化は、励起後に個々の原子にどのように配分されるか。「これにより、発光しそうなまで放出されないエネルギー損失の高さがどの程度であるかが明らかになる。さらに、われわれが、この損失をどの程度小さくできるかが分かる」と同氏は説明している。

PSIの2つの巨大研究施設とフランスのグルノーブルにある欧州シンクロトロン放射光施設を使い、研究チームは、その銅化合物の短命な励起状態を詳しく調べた。

計測によって、その物質が、化学構造的にOLEDにふさわしい候補であることが確認された。その化合物の化学特性により、高い光収量が達成できる。1つの理由は、その分子が比較的硬いことである。その3D構造は、励起されたとき、わずかに変化するだけである。現在、研究チームは、OLEDにこの物質を使うように、さらなる最適化を進めることができるようになった。

未来へ向けたツール

その上、3つの大型施設での計測は、この銅含有化合物の研究にとって重要なだけではなかった。もっと重要なことがあった。この方法で得られた実験データは、分子一般に関する理論計算改善にも役立つ。「将来的に、どの化合物がOLEDにより適しているか、どれが適していないかの予測が一段と改善される。計測データは、分子のどの部分が効率を高める妨げになっているかを化学者が理解する際に役立つ。また、言うまでもなく、光出力を高めるために、その化合物の改善法も理解で

きるようになる」とスモレンチェフ氏は説明している。

imec、 OLEDディスプレイ製造に フォトリソグラフィを利用

国際ディスプレイワークショップ(International Display Workshop)2020において、imecは、有機半導体、OLEDディスプレイスタックのカソードパターン形成のフォトリソグラフィアプリケーションを紹介した。これは、画期的なデバイス信頼性があり、ファインメタルマスク(Fine Metal Masks:FMM)の利用を排除する可能性がある。フォトリソグラフィは、ディスプレイ上に集積されたセンサの高解像度化や、カソードの透明度の向上を可能にするため、デモンストレーションはディスプレイメーカーにとって重要である。imecは、この件に関して産業パートナーとの提携にオープンであり、この成果に関係するデザインオンデマンドサービス提供が可能である、としている。

imecは、ナノエレクトロニクスとデジタル技術の世界をリードする研究とイノベーションのハブである。

モバイルディスプレイの分野では、画面と筐体の比率を上げる必要があるために、メーカーは新しいフォームファクタを実現し、ますます増える機能性(例えば、前面カメラ、指紋センサなど)を、画質を劣化させることなくスクリーン内に埋め込む必要がある。しかし、ハイエンドのモバイル、TV、PC・ラップトップアプリケーションでも、メーカーは、将来の設計では、固有の特性を持つアクティブマトリクスOLED(AMOLED)スクリーンを求めており、鮮明な色やフレキシブルで超薄型のフォーマットなど、独自の特性

を提供して、将来の製品設計の革新的なフォームファクタを実現している。

現在、AMOLEDディスプレイで、緑、青の発光層パターンを形成するには、FMMが広く利用されている。また、インクジェットプリンティング(IJP)といったソリューション印刷プロセス代替法により、多くの企業が150ppi分解能を超えるAMOLEDディスプレイを実現している。しかし、FMMは大型ガラス基板への適用が難しく、IJPは、蒸着OLEDに比べて信頼度が低い。

フォトリソグラフィのプロセスを利用することで、imecは設計自由度をより高くし、信頼性の点でも期待できる結果を示す別の製造ルートを提供する。例えば、1 μ mピッチ(ラインとスペース)で有機半導体上にパターンを形成することができる。これは、12000ppi程度の分解能に匹敵する。また、より高い波長でのOLEDフロントプレーンの透明度は、カソードパターン形成後に20%から70%に増加した。最も重要なことは、信頼性試験の結果が、T95>200時間を示し、リファレンスのパターン化されていないOLEDに比べると、パターン形成されたOLEDでは、1000nitsでOLED寿命に計測可能な違いがない。

imecのセンサ技術R&Dプロジェクトリーダー、タン・ヒューイ・ケ氏(Tung Huei Ke)は、次のように述べている。「OLEDのフォトリソグラフィによるパターン形成は、フォトリソグラフィの化学が、OLED材料の化学と適合性がないために非常に困難だった。また、従来のフォトリソグラフィ環境では、水や酸素に対してOLED材料が敏感であることが大きな難題だった。フルカラーAMOLEDアレイを実現するには、最初のOLEDサブピクセ

ルを、少なくとも3回パターン形成する必要があり、多段のフォトリソグラフィパターン形成後の劣化が累積すると考えられていた。この仮定は、初期の実験で確認されており、業界はこのルートを思いとどまった。imecは、フォトリソグラフィによる多段パターン形成後の優れたOLED信頼性を示している。これは、フォトリソグラフィをOLEDパターン形成技術として、次のレベルに進める重要なマイルストーンである。われわれは、引き続き業界のパートナーと協力して、大量生産の技術を成熟させ、関心のあるディスプレイメーカーにこの取組への参加を勧めていく」。

応力緩和基板が OLEDの2次元伸長に役立つ

高機能で自由形状のディスプレイは、ウェアラブルエレクトロニクス、ロボット、ヒューマンマシンインタフェースの技術力を完成するための重要な要素である。

韓国のKAIST(Korea Advanced Institute of Science and Technology)チームは、高ひずみ変形に準拠し性能を維持する伸縮性のあるOLEDを作製した。その応力緩和基板は、独自の構造を持ち、ピラーアレイを使って、応

力が加えられたときにデバイスのアクティブエリアの応力を緩和する。

従来の本質的に伸縮可能なOLEDは、エレクトロニクスの電気伝導性の効率が低いため、商業的に制約がある。加えて、以前の幾何学的に伸縮性のあるOLEDは、薄膜デバイスで弾性基板に積層されているので、バックルの多様なピークサイズによりデバイスのピクセル発光が一定ではない。

これらの問題を解決するために、キュン・チョル・チョア教授(Kyung Chol Choi)をリーダーとする研究チームは、表面起伏アイランド構造の伸縮自在基板システムを設計した。これは、デバイスのブリッジ箇所での応力を緩和する。その伸縮性のあるOLEDデバイスは、接着された弾性ピラーとブリッジで構成される弾性基板構造を持つ。ブリッジでパターン形成された上部構造により硬い基板を伸縮自在にし、一方、ピラーはデバイスの応力を分散させる。

マイクロピラーアレイを使うさまざまなアプリケーションが報告されているが、その基板にかかる応力が、伸縮に際して、弾性ピラーアレイが基板にどのように影響するかの報告はない。同様のレイアウトと従来の自立、フラット基板あるいはアイランド構造の結

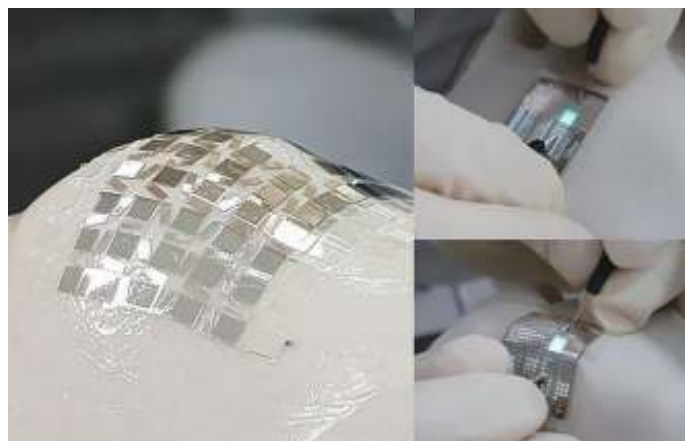


図2 指関節上基板のパターン形成された固定部分。2次元伸張性、指関節上で緑に発光する伸縮可能OLED画像を示している。

果を比較すると、弾性ピラーアレイの結果は、ブリッジとプレートの両方で、デバイスを伸長したときの応力レベルが相対的に低いことを示している。従って、伸縮性のあるRGB OLEDを実現し、応力緩和基板で実用的なプロセスの実施で、材料選択での困難はなかった(図2)。

チームの伸縮性のあるOLEDは、機械的に安定しており、2次元の伸縮性がある。これは、1次元だけの伸縮性エレクトロニクスに対して優位であり、ウェアラブルエレクトロニクスやヘルスマニタリングシステムなどの実用的なアプリケーションに道を開く。

チョア教授は、「われわれの基板設計は、半導体や回路技術を含むエレクトロニクスの技術開発に柔軟性をもたらすことになる。この新しい伸縮性OLEDが、伸縮性ディスプレイ市場への参入障壁を下げると期待している」と話している。

ペロブスカイトLEDに 一歩近づく

スウェーデンのリンショーピング大(Linköpings Universitet)の研究者は、英国、中国、チェコ共和国の研究者と協力して、高効率、長期動作安定の両方の特徴を備えたペロブスカイト発光ダイオード(LED)を開発した。

研究成果はNature Communicationsに発表された。

「ペロブスカイトベースのLEDは、実用にはまだ十分に安定していないが、われわれは、それを一歩前進させた」と同大生物分子・有機エレクトロニクス学部研究責任者、フェン・ガオ教授(Feng Gao)は話している。

ペロブスカイトは、世界中の研究者の関心をかき立てている半導体材料の大きなファミリーである。その特別な

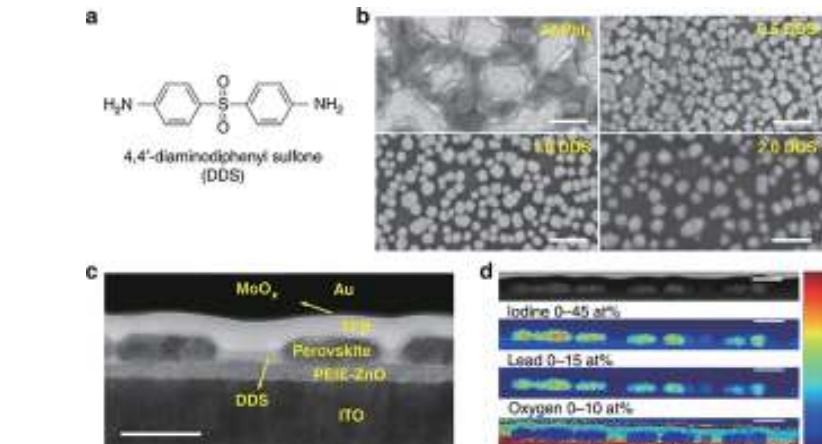


図3 aはDDSの分子構造。bはペロブスカイト膜の上面SEM画像。スケールバーは500nm。cは断面明視野TEM画像、及びdは断面HAADF-STEM画像と1.0DDSフィルムベースLEDの関連EDSマップ。スケールバーは200nm。(出典:Nature Communications)

結晶構造は、それらが優れた光学的、電子的特性を持つことを意味しており、同時に製造が容易であり、安価である。ペロブスカイトの利用に関する研究は、ほとんど太陽電池で進歩しているが、ペロブスカイトはLED製造にも適している。

LEDの効率は、継続的に発光する材料へのわずかな電荷キャリアで計測されるが、近年、著しく向上しており、いずれ競合技術の効率に到達すると見られている。しかし、それらは特に安定的であるとは言えないため、これまでのところ、実用には使えない。

複合薄膜と高安定性

「すべきことは多い。これまで、ペロブスカイトLEDのほとんどは、低効率であるか、デバイスの安定性が悪いかのいずれかであった」と研究フェロー、シャオクー・リユー氏(Xiao-Ke Liu)は言う。同氏とフェン・ガオ教授は、この論文の主筆者である。

多くの研究グループがこのジレンマに取り組んだが、成果は得られなかった。今回、リンショーピング大の研究者は、英国、中国、チェコ共和国の研究者と協力して、前進する方法を見つけ

た。チームは、鉛、ヨウ素及び有機物質、ホルムアミジニウムで構成されるペロブスカイトを使用した。次に、そのペロブスカイトを有機分子マトリクスに埋め込んで複合薄膜を形成した(図3)。

「先端に2つのアミノ基を持つこの分子は、他の物質がペロブスカイトの特徴である高品質の結晶構造を形成する際に役立ち、その結晶を安定させる」と博士課程の学生であるヘヨン・ワン氏(Heyong Wang)は説明している。

その新しい複合薄膜により研究グループは、効率17.3%、ほぼ100時間の長い半減期を持つLEDを開発した。

鉛とハロゲン、この場合はヨウ素を含むペロブスカイトは、最高の発光特性を持つ。「われわれは、鉛を除去したいと思っている。これまでのところ、これをするための良い方法が見つけれないているが、それに懸命に取り組んでいる」。

次のステップは、さまざまなペロブスカイトと有機分子の新たな組合せをテストし、核形成と結晶化過程がどのように起こるかを詳細に理解することである。多様なペロブスカイトは、多様な波長となり、白色LEDを得るという長期目標に不可欠である。