浩(きむら ひろし)

トップエミッション型 CCM 方式有機 EL

特 木村

1 まえがき

最近, 有機エレクトロルミネッセンス(有機 EL)は, 専門誌ばかりでなく一般誌でも記事になり話題となってい る。有機 EL がこのように注目される理由は,液晶にはな い自発光,高速応答など非常に高いポテンシャルを有して おり,次世代フラットパネルディスプレイとして期待され ているからである。

有機 EL は,モノクロパネルやエリアカラーパネルが製 品化されているが,その高いポテンシャルを発揮できるの はフルカラーパネルにおいてである。本稿では富士電機の 有機 EL フルカラーパネルの大画面,高精細化のキーテク ノロジーであるトップエミッション型色変換(CCM: Color Conversion Materials) 方式有機 EL への取組みに ついて紹介する。

2 トップエミッション型 CCM 方式有機 EL の 必要性

CCM 法は3 色塗り分け法,カラーフィルタ法と比較し て優れている点が多い。富士電機は CCM 方式有機 EL を さらに優位にするためはり合せトップエミッション型 CCM 方式有機 EL デバイスの開発に着手している。この デバイスは, CCM 方式を用いたアクティブマトリックス 駆動(AM 駆動)有機 EL を実現するためのキーテクノロ ジーである。TFT (Thin Film Transistor)を用いた AM 駆動は,高輝度,低消費電流,大面積化を可能にし,現在, 市場投入されているパッシブマトリックス駆動の次にくる 有機 EL として期待されているため, 各社で開発が盛んに 行われている。

図1にボトムエミッションとトップエミッションの構造 比較を示す。ボトムエミッションデバイスでは,ガラス基 板上に作製されたカラーフィルタ/CCM 層に平坦(へい たん)化層(OCL)とパッシベーション層(PL)を堆積 (たいせき)させた後, 有機 EL 層を成膜する。OCL は, カラーフィルタと CCM 層の凹凸を平坦にさせる機能を有



木村 無機薄膜・デバイス研究に従事。 現在,富士電機アドバンストテク ノロジー(株)有機 EL 開発部課長。 応用物理学会会員。

浩

し, PL はカラーフィルタや CCM 層に少量含有される水 分が有機 EL デバイスに浸入しないよう保護する働きをす る。

このボトムエミッションデバイスを用いて, AM 駆動パ ネルを作製しようとすると,基板と有機層間に CCM 層な どが存在し直接両方を結線させることができない。そのた め,パッシベーション層にコンタクトホールと呼ばれる穴 を形成しなければならないが,コンタクトホールを作製す ると,パッシベーション層の水分防御機能が低下しデバイ スに致命的なダメージを与えてしまう。そのため, CCM 方式では,いかに AM 駆動を実現するかが重要な課題で あった。富士電機が確立したトップエミッション構造は, TFT 基板上に有機 EL デバイスを形成した後,別に作製 した CCM 基板をはり合わせる方式なので, TFT 電極と 有機 EL 用電極が直接結線できる。そのため, コンタクト ホールを作製する必要がなく, AM 駆動 CCM 方式有機

図1 ボトムエミッションとトップエミッションの構造比較



図 2 AM 駆動 CCM 方式有機 EL パネルの概念



EL パネルの作製を実現できる。図2に TFT 基板を用いたパネルの概念を示す。

③ トップエミッションデバイス作製のための技術 課題

トップエミッションパネルを,トップエミッション発光 部(有機 EL デバイス)と CCM 部分とに分けて,それぞ れの技術課題について述べる(図3)。

3.1 デバイス部分の課題

(1) 上部透明電極作製法の確立

透明電極は, In 酸化物 (ITO, IZO) や ZnO などの無 機透明酸化物が知られている。これら透明酸化物は, 有機 EL で一般に使用される蒸着法では成膜できず, スパッタ 法で作製される。スパッタ法は堆積する粒子の運動エネル ギーが大きく(数十倍~数百倍), プラズマ(酸素やアル ゴン)も発生するため, 有機 EL 層にダメージが入りやす い。ダメージが入った有機 EL デバイスは駆動電圧が増加 し,発光効率の低下,低寿命などさまざまな問題を引き起 こす。そのため, トップエミッションデバイスでは, いか に有機 EL 層にダメージを与えず透明導電膜を作製するか が一つの技術課題となっている。

(2) 下部電極の平坦性・光学的反射性の確保

トップエミッションデバイスは有機成膜前に反射電極 (陽極)を形成しなければならない。そのため反射電極に は反射率が大きいだけではなく,表面平坦性の確保が重要 課題になる。表面平坦性は素子のリーク,ショートに密接 に関係していることが分かっている。

(3) 光学干渉の最適化

富士電機が開発しているトップエミッションデバイスは, 反射金属(陽極),正孔注入層,正孔輸送層,発光層,電 子輸送層,電子注入層,透明陰極の順に積層されている。 この構造は,発光層と反射電極間に正孔注入層と正孔輸送 層があるため,ボトムエミッションと比べて発光層と反射 電極間の距離が大きくなる。(ボトムエミッションでは電 子注入層トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(Alq₃)

がこの間に挟まるが, 膜厚が20~50 nm と比較的小さい)。

図3 トップエミッション素子の技術課題



発光層と反射層との光学距離が発光波長(励起光)460 nm(青緑)の半波長程度になると,光学的な干渉を強く 受けるため,各層の膜厚を最適化しないと発光特性(スペ クトルや効率)を制御できない。したがって,光学設計が 非常に重要になる。さらに CCM 層は,正面光ばかりでな く広い角度から入射した光を取り入れて発光するので,有 機 EL デバイス部で発光した光を効果的に CCM 層に入れ る工夫が必要である。そのために,有機 EL デバイス部か ら出射される光の角度分布(全光量)の設計も必要になる。

3.2 CCM 基板はり合せ法の課題

(1) 内部充てん剤の選定

デバイス部分と CCM 基板部分の間に内部充てん材を注 入する。この充てん材は,有機 EL デバイスに影響を与え ないことが第一だが,デバイス部の発光を CCM 基板に伝 達する大切な役割を持っているため,屈折率の最適化が必 要になる。さらに内部充てん材を空孔なしに充てんさせる 技術も今回開発した。

(2) ギャップ調整技術

ギャップ間の距離は光学的な見地から,隣の画素が光ら ない(クロストーク)間げき(数μm)を保つ必要がある。 (3) 位置精度(アライメント)技術

ギャップ調整が垂直軸を制御するのに対して,水平方向の精度も必要になる。水平方向は,デバイス部分のサブピクセルと色変換のサブピクセルが重なるような精度(<u>+</u>1 µm)が要求される。

はり合せ工程は,有機 EL 層が劣化しない雰囲気中(酸素,水分 <1 ppm)で実施する必要がある。そのため,雰 囲気制御されたグローブボックス中に装置を設置し,はり 合せ・充てん材注入を実施している。

4 トップエミッションデバイスの開発

4.1 上部透明電極作製

まず通常の DC スパッタ装置で有機層上への透明電極作 製を試みたが,有機膜にダメージが入り期待した特性が得 られなかった。ダメージ部分の分析を行ったところ,ス パッタ中の高エネルギー粒子の衝突,プラズマや紫外線の 基板への照射などが原因と判明した。図4にガラス基板上 に Alq3を堆積させて,真空中で Ar イオンを照射したと きの Alq₃ 表面の X 線光電子分光分析 (ESCA: Electron Spectroscopy for Chemical Analysis) データを示す。ま た,比較対照として粉末の ESCA データも示す。Ar イオ ンを Alq₃ 表面に照射すると, C1s 結合エネルギーは変化 しないが, N1s, O1s, Al2pの結合エネルギーが変化した。 したがって, Ar イオン照射は, Alq3の AI-O 結合と AI-N 結合にダメージを与えてしまうことが判明した。これらの 結果は紫外線光電子分光分析 (UPS: Ultraviolet Photoelectron Spectroscopy)を使用した測定でも報告さ れている。図 5 は, Alq₃表面を 40 W の Ar と O₂ プラズ マで 10 秒間さらした後に大気中光電子分光法(AC-1) で表面を測定した結果である。O2 プラズマ照射後の AC-1 信号の傾きは小さくなり, さらに仕事関数の変化が 見られた。これらのことは, Alq3 表面の酸化に起因して いると考えられる。図5からは, Arより O2 プラズマの方 が Alg₃ に対してよりダメージを与えることも分かった。

以上のような分析結果を考慮し,改良を加えた対向ス パッタ装置を用いて透明電極の作製を行った。対向スパッ タのターゲットは向かい合って設置されているため,エネ ルギーの高い粒子は直接基板に到達できない。また,プラ ズマは対向ターゲット間に閉じ込められるため,直接基板 がプラズマにさらされることもない。さらにプラズマ密度 を高める工夫をすることでターゲット組成に近い膜を作製

図4 Ar ビーム照射後の Alq3 表面の ESCA プロファイル



可能にし,有機層にダメージを与える酸素ガス供給を最小 限にすることにした。こうして有機膜上へ透明電極をダ メージなく作製することに成功した。

4.2 光学干涉制御技術

1 反射金属の選定

反射金属は前述のように平坦性の確保が必要になる。一 般に,スパッタや蒸着で金属薄膜を作製すると結晶膜が生 成する。結晶化した膜は粒が多数存在し表面粗さが増大す るので,平坦化するためには結晶粒を微細化するか表面研 磨が必要になる。富士電機は,Cr金属にある種の元素を 添加すると薄膜が非晶質になることを見いだした。非晶質 膜は粒や粒界が存在しないので,表面平坦性が良好である。 図6に開発したCr系材料の原子間力顕微鏡(AFM:Atomic Force Microscopy)像を示す。開発した材料はCr と同様の性質を持ち,かつ表明平坦性は中心線平均粗さ *R*a = 0.26 nm であった。

2 光学距離と正面スペクトルの関係

CCM 方式カラーパネルは,赤,緑には色変換を,青は カラーフィルタを通した透過光を利用してカラー化を実現 している。色再現性のよいカラーパネルを実現するために, 励起光には,CCM 層が吸収しやすい光で,かつ青成分を 多く含むスペクトルが要求される。そのため,発光スペク トル設計が重要になる。さらに CCM への入射光を最大に するため,出射光の角度分布を最適化する必要もある。

以上の理由から出射光の光学シミュレータを独自開発し た。

3 光学設計の実際

正面輝度スペクトルの光学シミュレーションは多層マト リックス法により行った。シミュレーションでは発光層上 下の薄膜の光学干渉を考慮して計算を行った。なお,発光 スペクトルには,光学干渉の影響をできるだけ避けるため に発光層単膜(ドーパントを含む)のフォトルミネッセン スのスペクトルを使用した。シミュレーション方法の概略 を図7に示す。図8はトップエミッションの透明電極膜厚 を変化させたときのスペクトルのシミュレーションと実験



図 5 O₂, Ar プラズマ処理後の Alq₃ 表面の AC-1 測定結果

図 6 Cr 系薄膜表面の AFM 像





図7 光学シミュレーション(マトリックス方式)模式図



値との比較である。シミュレーションと実験値はよい一致 を示した。

角度分布のシミュレーションは4×4マトリックス法を 用いた。図9に測定値とシミュレーション値を示す。この 結果から,ガラスから空気中に出射される励起光の任意波 長の角度分布を計算した。この二つのシミュレーション結 果をもとに,青色発光(カラーフィルタ)に最適な正面ス ペクトルを持ち,かつ緑,赤(CCM)に最適な全光量の 大きな励起光を発光するデバイス層構成を設計した。 図8 発光スペクトルの上部透明電極膜厚依存性のシミュレー ション結果



図 9 発光の角度分布シミュレーションと実測値比較 (470 nm の正面輝度の大きさで規格化)



5 トップエミッションプロトタイプ素子の作製

以上に述べたトップエミッション型 CCM 素子のプロト タイプを作製し動作の検証を行った。図10にプロトタイプ の模式図を示す。2mm角デバイスを50mm角基板に 10×10個配置し,それぞれ個別に点灯させ文字を表すよ うにした。デバイス部分はトップエミッション構造になっ ており,下部電極にはCr系非晶質金属を用いている。透 明電極はIZOを使用し,対向スパッタにより所定膜厚を 堆積させた。有機層は発光色の正面輝度が青緑になり,か つ全出射光量が最大になるようシミュレータにより最適化 した膜厚で構成した。

一方, CCM 部分は, デバイス部分と重なるよう2mm 角のカラーフィルタ/CCM 層を42mm 角基板に作製し, その上から OCL と PL(シリコン酸化物系)を積層させ た。カラーフィルタ/CCM 層(青はカラーフィルタのみ) は赤,緑,青の三原色を100 個ずつ並べたものを用意した。 こうして作製したトップエミッションデバイス部と CCM 基板をグローブボックス中ではり合わせた。ギャップ間に は CCM 層に励起光が伝達されやすいよう屈折率を最適化 した充てん剤を注入した。このようにして作製したプロタ 図 10 トップエミッション CCM 方式プロトタイプデバイス 模式図



図 11 トップエミッション CCM 方式プロトタイプデバイス 写真



イプ素子の写真を図11に示す。作製した素子の CIE 色座 標は,青(0.11,0.19),緑(0.26,0.68),赤(0.66,0.33) であり,印加電圧 8 V の輝度が青 350 cd/m²,緑 800 cd/m², 赤 250 cd/m²であった。

6 あとがき

本稿では、トップエミッション CCM の作製に関してデ バイス部分を中心に紹介した。紹介できなかったはり合せ 法も新たに開発した技術が数多くある。今回は2mm角 10 × 10 個プロトタイプデバイスを作製したが、今後は、 この技術をさらに発展させ TFT 基板上にトップエミッ ションパネルを作製し、A M駆動型 CCM 方式フルカラー 有機 EL パネルの開発をしていくつもりである。

参考文献

- 1 桜井建弥.色変換法によるフルカラー有機 EL の技術開発 状況と展望.月刊ディスプレイ.vol.8, no.10, 2002, p.59-64.
- 2 中島嘉之,山下大輔.大気中光電子分光法を用いた有機 EL材料の仕事関数測定.月間ディスプレイ.vol.8, no.10, 2002, p.82-88.
- [3] Liao, L. S. et al. Ion-beam-induced surface damages on tris- (8-hydroxyquinoline) aluminum. Appl. Phys. Lett. 1999, p.1619.
- [4] Berreman, D. W. Optics in Stratified and Anisotropic Media: 4 × 4 Matrix Formulation. J. Optical Society of America. 1972, p.502.



*本誌に記載されている会社名および製品名は、それぞれの会社が所有する 商標または登録商標である場合があります。