

# トップエミッション型 CCM 方式有機 EL

木村 浩 (きむら ひろし)

## 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

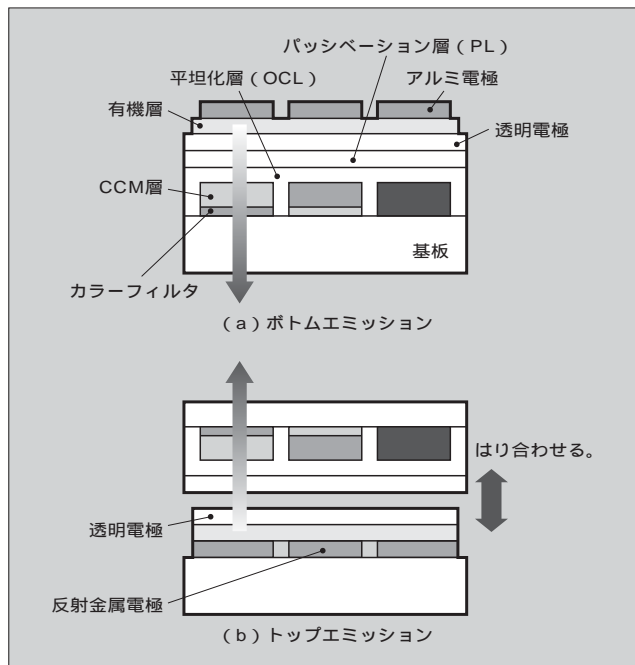
CCM 法は3色塗り分け法、カラーフィルタ法と比較して優れている点が多い。富士電機は CCM 方式有機 EL をさらに優位にするためはり合せトップエミッション型 CCM 方式有機 EL デバイスの開発に着手している。このデバイスは、CCM 方式を用いたアクティブマトリクス駆動（AM 駆動）有機 EL を実現するためのキーテクノロジーである。TFT（Thin Film Transistor）を用いた AM 駆動は、高輝度、低消費電流、大面積化を可能にし、現在、市場投入されているパッシブマトリクス駆動の次にくる有機 EL として期待されているため、各社で開発が盛んに行われている。

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

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、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

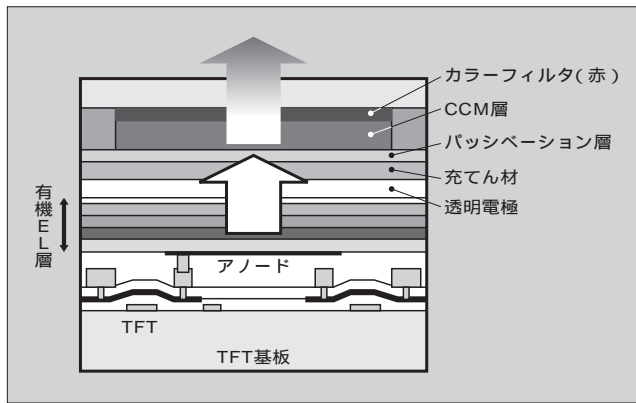
図1 ボトムエミッションとトップエミッションの構造比較



木村 浩

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

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。

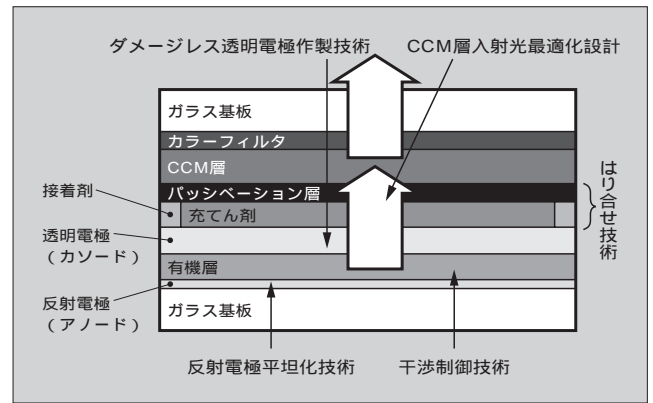
(2) 下部電極の平坦性・光学的反射性の確保

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（Alq<sub>3</sub>）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（±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

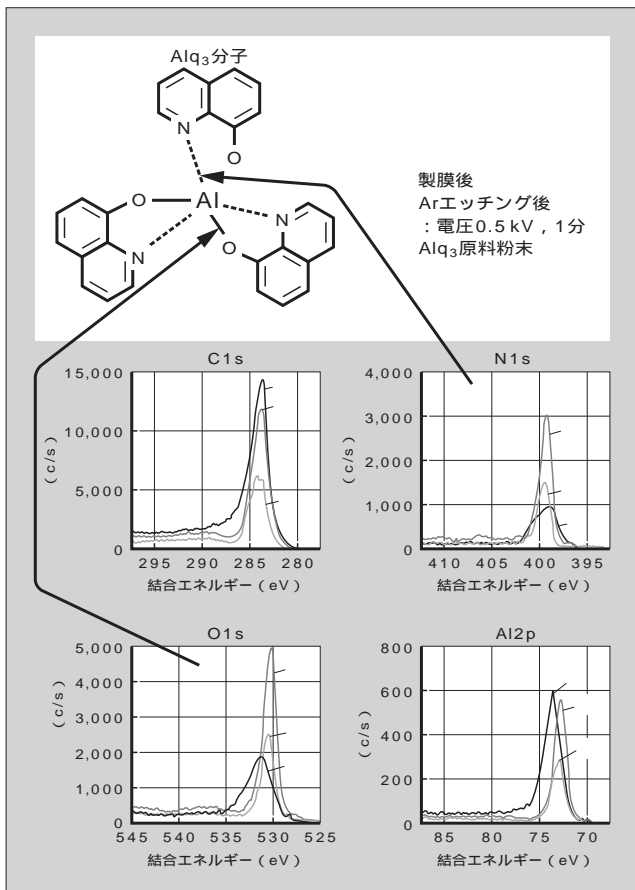
まず通常の DC スパッタ装置で有機層上への透明電極作製を試みたが、有機膜にダメージが入り期待した特性が得られなかった。ダメージ部分の分析を行ったところ、スパッタ中の高エネルギー粒子の衝突、プラズマや紫外線の

特集

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Alq<sub>3</sub>を堆積させて、真空中でArイオンを照射したときのAlq<sub>3</sub>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Alq<sub>3</sub>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、Alq<sub>3</sub>のAl-O結合とAl-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、Alq<sub>3</sub>表面を40WのArとO<sub>2</sub>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。O<sub>2</sub>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、Alq<sub>3</sub>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O<sub>2</sub>プラズマの方がAlq<sub>3</sub>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Alq<sub>3</sub>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 光学干渉制御技術

##### 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<sub>a</sub> = 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 O<sub>2</sub>, Arプラズマ処理後のAlq<sub>3</sub>表面のAC-1測定結果

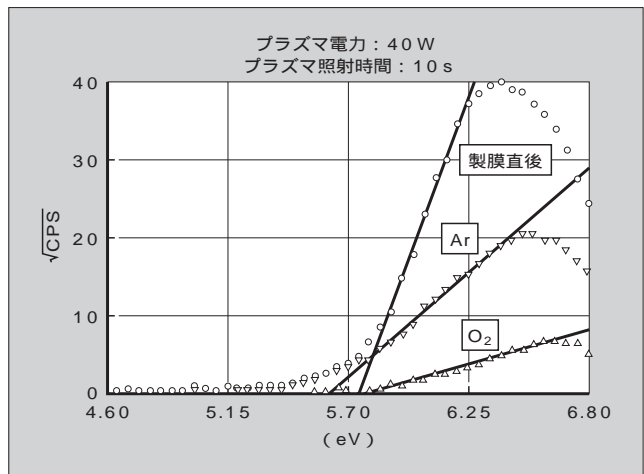


図6 Cr系薄膜表面のAFM像

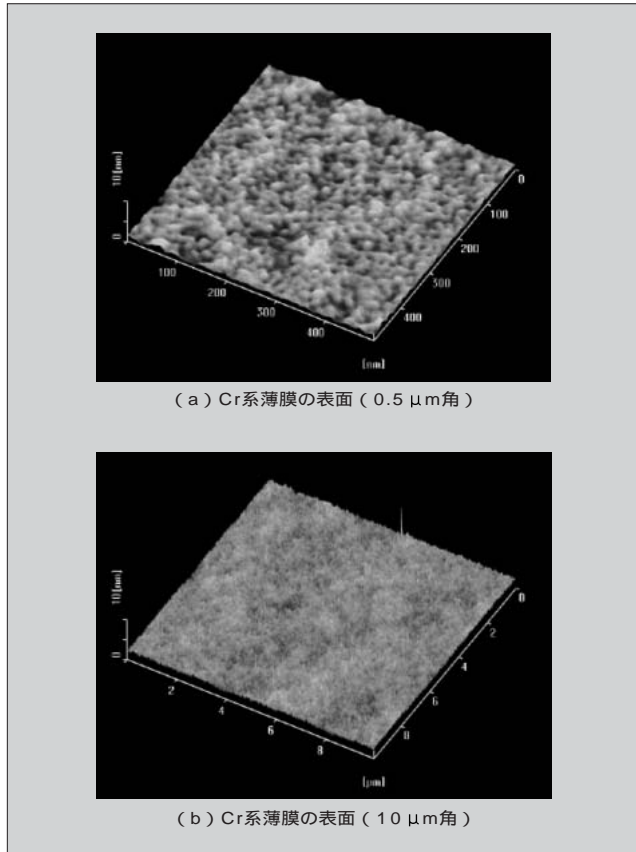
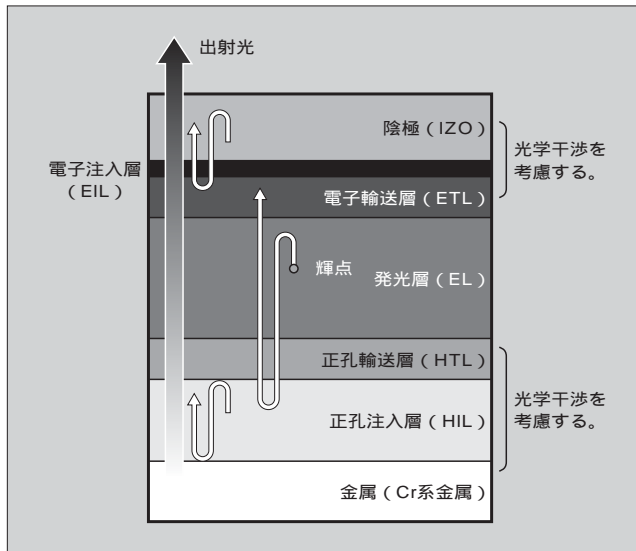


図7 光学シミュレーション(マトリックス方式)模式図



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射出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

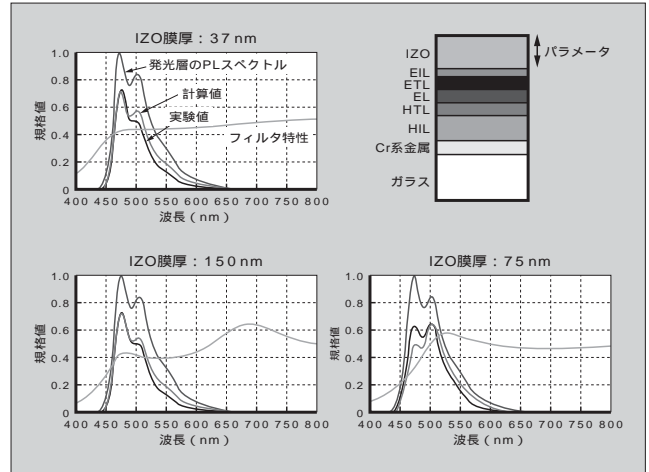
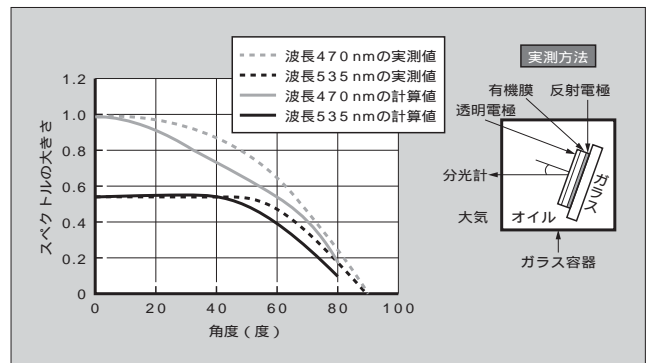


図9 発光の角度分布シミュレーションと実測値比較(470 nmの正面輝度の大きさを規格化)



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。2 mm 角デバイスを 50 mm 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、対向パツ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、かつ全射出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 2 mm 角のカラーフィルタ/CCM 層を 42 mm 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ト



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

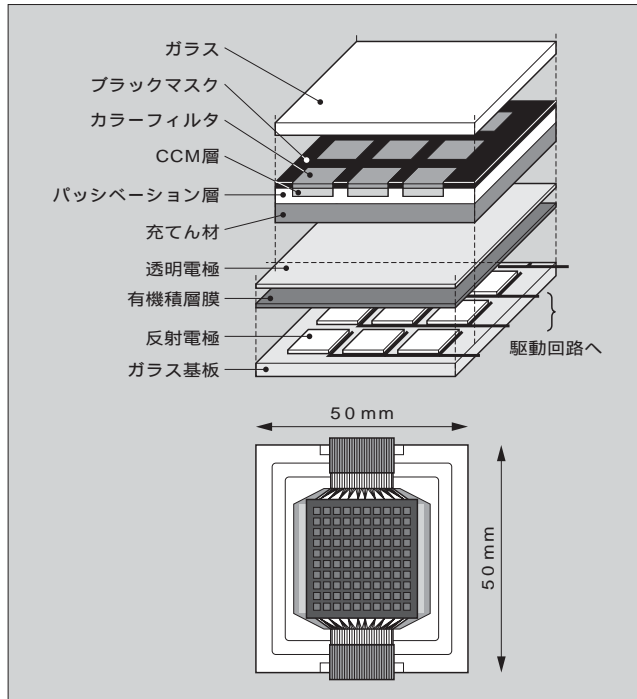
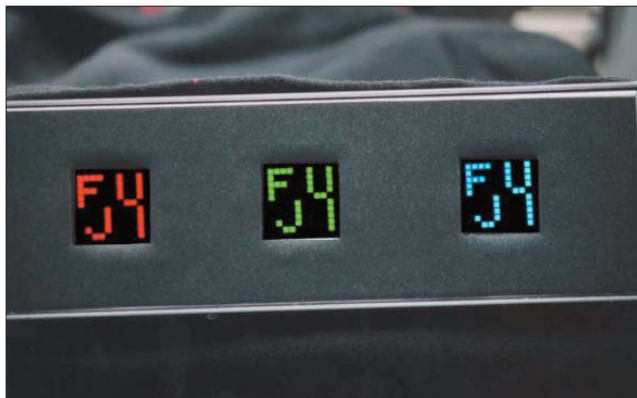


図 11 トップエミッション CCM 方式プロトタイプデバイス  
写真



イブ素子の写真を図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/m<sup>2</sup>, 緑 800 cd/m<sup>2</sup>, 赤 250 cd/m<sup>2</sup> 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 2 mm 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 基板の上にトップエミッションパネルを作製し、AM 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.