

有機ELフィルムディスプレイの開発

Development of a Film-type Organic Electroluminescent (OEL) Display

杉本 晃, 吉田 綾子, 宮寺 敏之

Akira Sugimoto, Ayako Yoshida, Toshiyuki Miyadera

要旨 有機ELフィルムディスプレイは、非常に薄くて軽く、そしてフレキシビリティをもったディスプレイデバイスである。われわれは有機ELフィルムディスプレイを開発するにあたって、その要素技術の検討を行なった。

まず、樹脂基板上の防湿バリア膜として窒化酸化シリコン(SiON)膜の検討を行った。窒素と酸素の比を最適化したSiON膜を用いることで、有機ELにとって十分な光学特性と防湿性をもつ膜を得ることができた。次に、防湿バリア膜に存在する欠陥の低減を試みた。樹脂基板の平滑化を行なうことで防湿膜のピンホールを減らし、環境試験後の発光特性を改善することができた。

そして、これらの技術を集約して3インチモノカラー有機ELフィルムディスプレイの試作を行った。

Summary Film-type organic Electroluminescent (OEL) displays have a lot of attractive features. We developed the technologies that were needed in fabricating film-type OEL displays.

First, we evaluated the SiON as a moisture barrier film. By optimizing the ratio of O and N in the SiON film, we could obtain the barrier films that have high optical transparency and moisture impermeability. Next, we reduced the defects in the barrier films. By smoothing the polymer surface, we could reduce the pinhole defects in the barrier film and improve the environmental stability of the film-type OEL.

And we fabricate a trial production of 3-inch dot matrix OEL display using these technologies.

キーワード： 有機EL, 平面ディスプレイ, 有機フィルムディスプレイ

1. まえがき

近年、平面ディスプレイの成長は目覚ましいものがある。携帯機器などに使用される小型のものから、パソコン用ディスプレイ、40インチ以上の壁掛けテレビまでもが市場に導入され、大きな成長を遂げている。その中で特に小型のものに注目すれば、その多くが液晶ディスプレイであることに

気がつく。液晶ディスプレイはSTNやTFT方式など機器に応じた方式を適用することで、携帯電話やパソコン用ディスプレイなどに採用されて大きな地位を築いている。そこに割って入ろうとしているのが有機ELディスプレイである。有機ELは自発光であるため視認性が良く、液晶ディスプレイで用いられるようなバックライトが必要ない。

また応答速度も速いので動画表示を必要とする機器に非常に適している^{(1),(2)}。現在のところ日本ではカーステレオ向けに市場導入されており,またアメリカにおいては,マルチカラーディスプレイを搭載した携帯電話が市場導入され,その表示品位の高さが実証されている。近年はアクティブ素子を用いた有機ELパネルも相次いで発表されており,開発競争に拍車がかかっている。

現在の有機ELディスプレイはガラス基板上に形成されているが,この基板をガラスから樹脂に変えることで,さらに有機ELの応用範囲を広げることが出来る^{(3),(4)}。図1に現在のガラス基板を用いた有機EL素子と樹脂基板を用いた有機EL素子の構造を比較したものを示す。この図からも分かるように,樹脂基板を用いることによって,素子をより薄く,軽くすることができる。樹脂であるがゆえの柔軟性を生かして,これまでの枠にとられない様々な形状のディスプレイを実現することができ,曲面表示やフレキシブルなディスプレイが可能になる。

有機EL用の樹脂基板に求められる要件としては以下のことが挙げられる。

- (1)光学特性(高透明性)
- (2)耐環境性(耐熱性,耐溶剤性)

(3)ガスバリア性(酸素バリア,水蒸気バリア)

(4)表面平滑性

現在のところ,これらのすべての要件を満たす樹脂は存在しない。今後も樹脂単体でこれらを満たすものは難しいと考えられる。そのため樹脂基板に,これらの機能を持たせるための膜を成膜することが必要と考えられる。市場にはすでに液晶ディスプレイ向けに樹脂基板が開発されており,これらの樹脂基板においても,やはりガスバリア層などが成膜されている。液晶用の樹脂基板は有機ELにとって光学的には十分な性能を有している。しかし,有機EL素子は非常に薄膜でしかも酸素や水分に対して非常に敏感であるため,ガスバリア性や表面平滑性に関してはさらに高い水準が要求されると考えられる。

特に水蒸気バリア性に関しては,一般的な樹脂ではおよそ $1 \sim 10\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{day}$,ガスバリア膜を付加した液晶用基板でも $0.1 \sim 1\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{day}$ であるが,有機ELのバリア膜としてはこの性能では不十分である。

今回われわれは,現状の樹脂基板の性能を把握し,さらに有機ELに適用可能なバリア膜の開発を行った。そして,そのバリア膜を付加することで水蒸気バリア性を高めた樹脂基板を用いて,有機ELフィルムディスプレイの試作を行った。

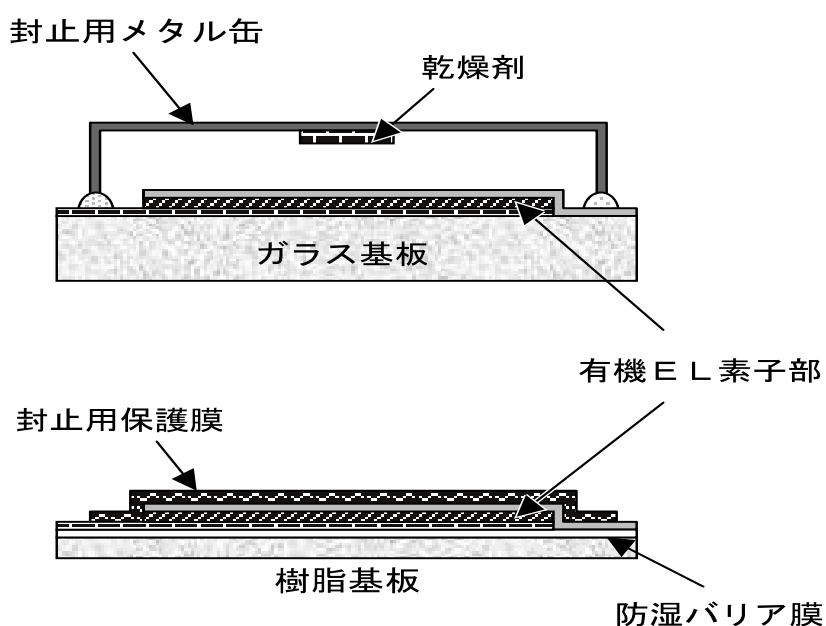


図1 従来のガラス基板を用いた有機EL素子と樹脂基板を用いた有機EL素子の比較

2. 従来の樹脂基板での有機EL素子の作製

まずわれわれは、一般的に入手できる樹脂基板（ポリエチレンテレフタレート：PET，ポリカーボネート：PC）上に有機EL素子を作製した。素子の封止は後述する窒化シリコン膜によって十分に行なわれている。図2に作製した有機EL素子の発光状態を示す。PET基板ではダークスポットと呼ばれる非発光部が多く観察される。PET基板には、通常、易滑剤と呼ばれる粒子が混入されており、これが発光状態に影響を及ぼしていると考えられる。一方、PCを基板として用いた場合には比較的良好な発光状態を示している。しかし、数日後には、基板を通して進入する水分などによって素子が劣化してしまった。

次にわれわれは、樹脂基板上にバリア膜として酸化シリコンの蒸着を行い、その上に有機EL素子を作製した。酸化シリコン膜は、食品包装材や液晶用樹脂基板のバリア膜としてよく用いられているものであり、これによって水分や酸素に対するバリア性が向上しているはずである。しかし図3に示すように、素子の保存性を観察した結果、やはり数日後には素子が劣化してしまった。これは、酸化シリコン膜では有機EL用のバリア膜としては不十分であることを示している。

3. 有機EL用バリア膜の開発

そこで、われわれは新たに有機EL用のバリア膜の開発を行なった。樹脂基板を用いる場合、図4に

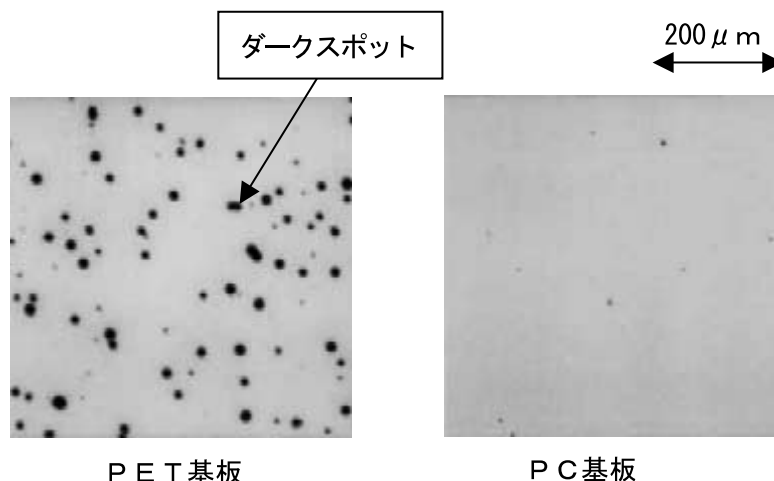


図2 一般的な樹脂基板での有機EL素子の発光の様子

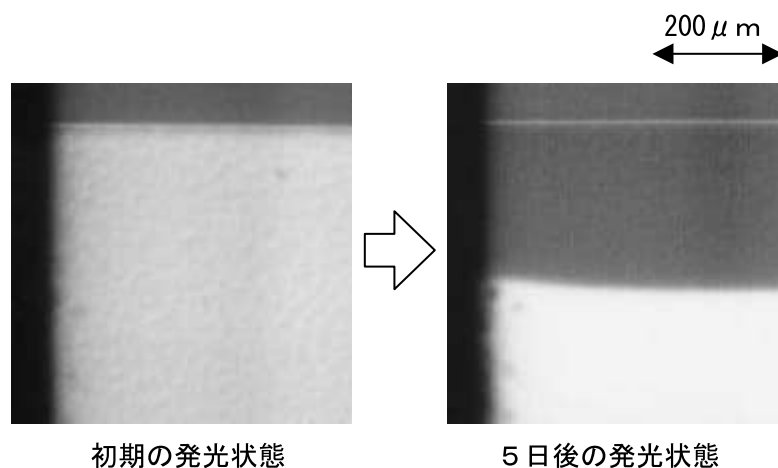


図3 酸化シリコンを蒸着した樹脂基板での有機EL素子の発光の様子

示すように、基板側から進入するものと素子側から進入するものの2つについてそれぞれ検討する必要があります。

3.1 素子の外側の保護膜

素子側を保護する膜について、以前、われわれはプラズマCVD法による窒化シリコン膜を検討した⁽⁵⁾。プラズマCVD法を用いる利点は、応力制御が容易であること、素子のカバレッジが良いことなどがあげられる。半導体では窒化シリコンを保

護膜として使用することがすでに知られているが、有機ELに適用するためには、有機ELにダメージを与えない低温で成膜する必要がある。

表1にガラス基板において検討した窒化シリコン膜の成膜条件を示す。また図5に、この膜によって封止された素子の発光状態を示す。このように、プラズマCVD膜による窒化シリコン膜は有機ELの封止用保護膜として、非常によいバリア性を示していることがわかる。

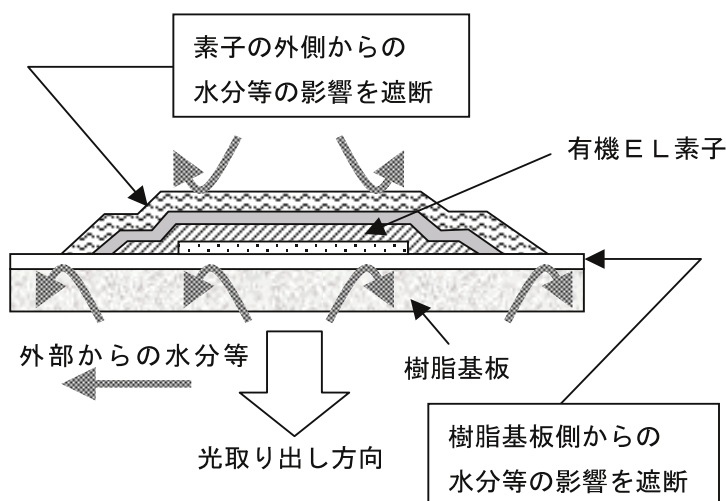


図4 樹脂基板上の有機EL素子に必要なバリア膜

表1 ガラス基板でのプラズマCVD保護膜の成膜条件

SiH ₄ 流量	10 SCCM
N ₂ 流量	200 SCCM
RFパワー密度	0.05 W/CM
RF周波数	13.56 MHz
成膜温度	100 °C
成膜圧力	0.9 Torr
膜厚	3 μm

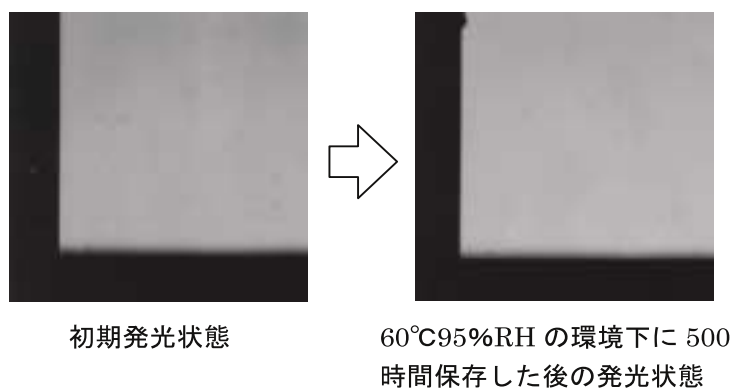


図5 プラズマCVDの窒化シリコン膜によって封止した有機EL素子の保存性

3.2 樹脂基板側のバリア膜

樹脂基板側からの水分などの進入を遮断するバリア膜として、先述した窒化シリコン膜を使用することは好ましくない。なぜなら、この窒化シリコン膜は茶褐色に着色しており、光取り出し側の膜と使用するには効率の面で不十分だからである。そこでわれわれは、窒化酸化シリコンに着目した。この窒化シリコン膜に酸素を導入し、窒化酸化シリコン膜とすることで、有機ELにとって十分なバリア性を維持したまま、膜を透明化することを検討した⁽⁶⁾。

窒化酸化シリコン膜の評価は、膜中の窒素・酸素比と膜の光学透過率・防湿性能の関係を調べることで行なった。バリア膜の防湿性能については、モコン法を始めとするあらゆる透湿度測定方法の測定限界以下であったため、実際に有機EL素子を作製し、その発光状態を観察して判断した。

サンプルの作製は次のような手順で行なった。まず、樹脂基板の上に密着性改善のためのバッファ層を形成したのち、スパッタ法によって窒化酸化シリコン膜を成膜した。スパッタリングターゲット

トとして窒化シリコンを用い、成膜ガスとしてアルゴンと酸素を導入した。この際、導入する酸素の流量を変えることで、異なった組成比の窒化酸化シリコン膜をそれぞれ作製した。膜厚はいずれも200nmとした。その基板の上に有機EL素子を作製し、先述した窒化シリコン膜で封止した。

透明電極(陽極)と金属電極(陰極)はそれぞれがストライプ状で、直交する向きに電極が形成されており、それらが交差するエリアが発光するようになっている。もし、基板側から水分の進入があれば、図6に示すように、それは透明電極端部からの非発光部の成長という形で現れることになる。

われわれは、それぞれの素子を60～95%RHの環境中に保存し、500時間後の非発光部の進行によって、窒化酸化シリコン膜の防湿性を評価した。図7に発光状態のいくつかの例を示す。酸素と窒素の比率の違いで、電極端部からの非発光部進行の度合いが異なることがわかる。

図8に窒化酸化シリコン膜における酸素・窒素比と、光学透過率および保存試験後に透明電極端部より進行した非発光部の関係を示す。この結果より、

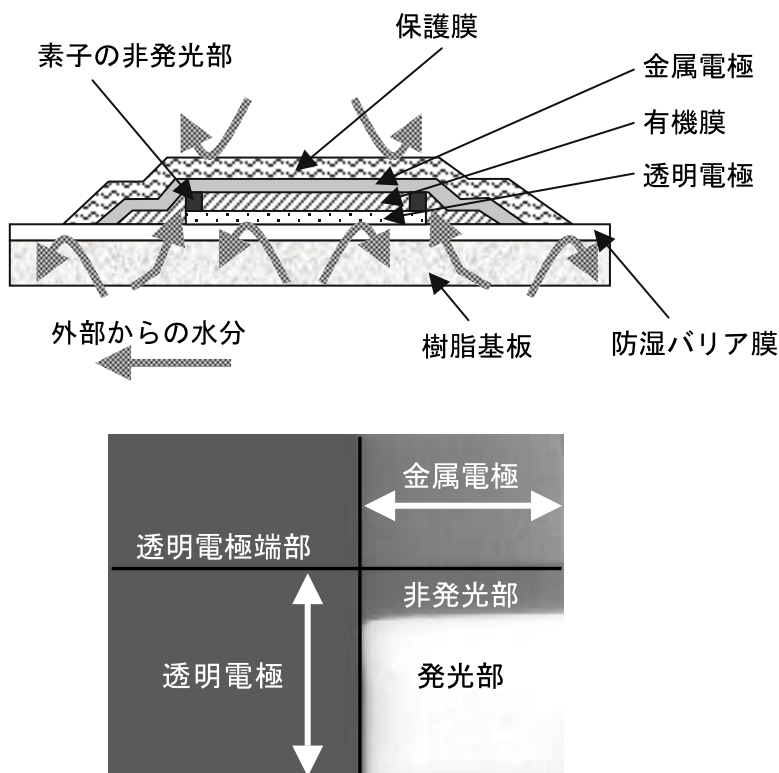


図6 素子の電極端部から非発光部が発生するしくみと透明電極端部からの非発光部進行の様子

酸素・窒素比率 $O/(O+N)$ がおよそ40%から80%のとき、膜の光学透過率が90%以上でかつ十分な防湿性をもった膜が得られるということがわかった。

4. 表面平滑化による素子特性の改善

窒化酸化シリコンをバリア膜とすることで、有機EL素子を保護するのに十分な性能が得られることが確認できた。次の課題として、われわれは表示面内に存在する非発光の点(ダークスポット)の問題に着手した。ダークスポットの要因にも

様々あり、これらすべてを一度に無くすことは非常に困難である。今回われわれは、時間の経過と共に拡大していくダークスポットについて、その軽減を試みた。これは、図9に示すように初期のころは目視で確認できるか否かの大きさであるが、環境試験下に一定時間保存したのちに観察すると、何倍にも拡大している。

この拡大するダークスポットの原因の一つとして、防湿バリア膜の欠陥が考えられる。先述したように、基板上に成膜される防湿バリア膜は

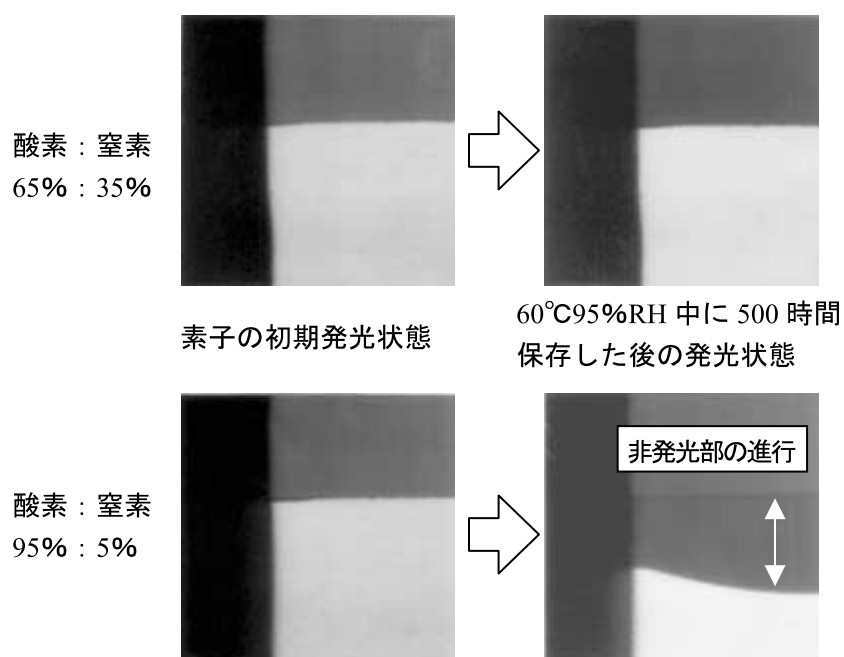


図7 窒化酸化シリコンバリア膜の窒素酸素比とそのバリア膜を有する有機EL素子の保存性

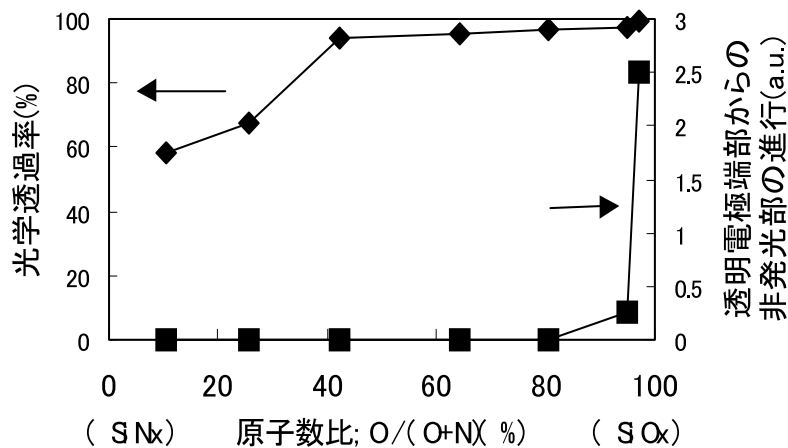


図8 窒化酸化シリコン膜における酸素・窒素比に対する光学透過率および防湿性の関係

100nm ~ 200nm としているため、ピンホールなどの欠陥は生じやすいと考えられる⁽⁷⁾。図10にバリア膜上に存在するピンホールのAFM像を示す。この欠陥のサイズはサブミクロンオーダーで、基板

上に微小な突起やへこみがあるだけでバリア層にピンホールなどの欠陥が生じ、結果としてダークスポットが発生することがわかる。

そこでこの問題を解決するために、防湿膜を成

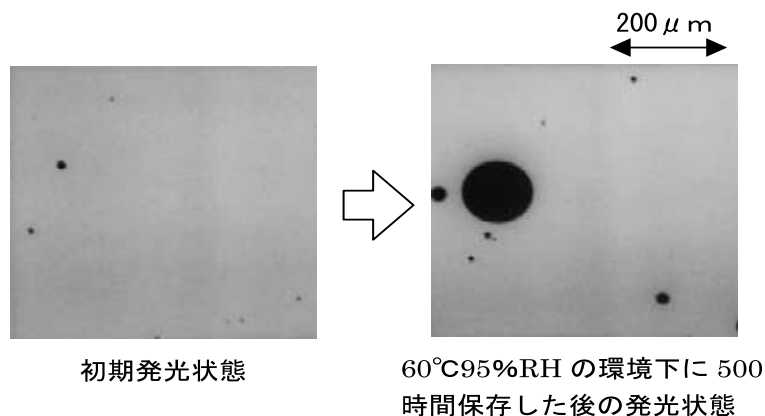


図9 保存試験後でのダークスポット拡大の様子

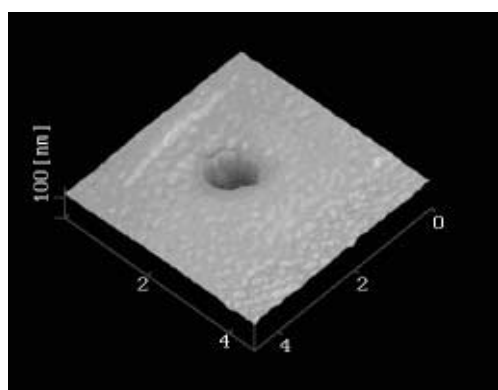


図10 バリア膜上に存在するピンホール欠陥のAFM像

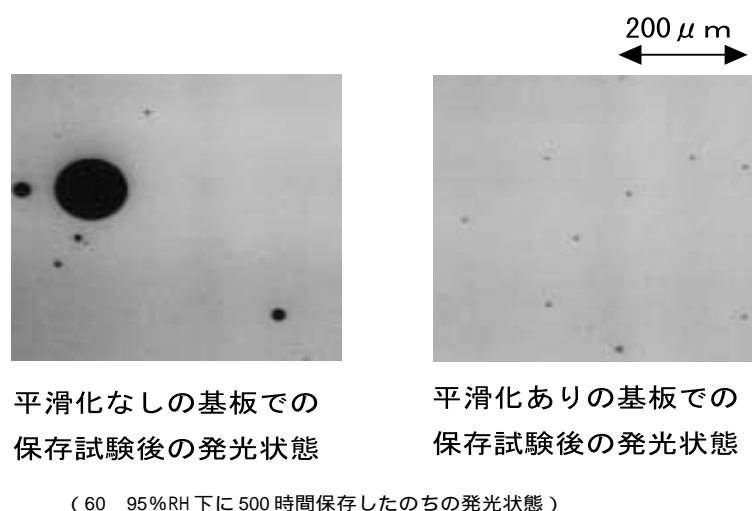


図11 平滑化のありなしによるEL素子の保存性の比較

膜する前に樹脂基板上的突起やくぼみをUV硬化樹脂を塗布することで平滑化することを行なった。樹脂基板におよそ5 μm厚さでUV硬化樹脂を塗布しその上にバリア層を成膜,有機EL素子を作製した。平滑化を行なったものと平滑化を行なわないものをそれぞれ60 95%RHの環境下に保存し,500時間後のダークスポットの拡大について比較したところ図11に示すように,明らかな改善が見られた。

5. 有機ELフィルムディスプレイの試作

われわれは,前章までに述べてきた検討結果を集約し,樹脂基板上有機ELディスプレイを作製した。試作した有機ELフィルムディスプレイとその仕様を図12に示す。

これからもわかるように,このディスプレイは非常に薄型であると同時に,曲面表示も可能である。

6. まとめ

今回われわれは,樹脂基板上有機ELディスプレイを作製するため必要な要素技術の検討を行い,実際に有機ELフィルムディスプレイの試作を行なった。窒化酸化シリコンのスパッタ膜を樹脂基板上に成膜し,またプラズマCVDによる窒化シリコン膜を素子の保護膜として用いることで,これまでにはない薄さ,軽さ,そしてフレキシビリティをもつディスプレイを作製することができた。

今後の課題はこの有機ELフィルムディスプレイの信頼性をいかに向上させていくかである。これまでのわれわれの検討によってデバイスの保存性は大きく向上したが,まだまだ不十分なレベルである。また,われわれが試作したディスプレイは単色であるが,アプリケーションによりカラー化が求められることは明らかであり,これらを実現するためのプロセス検討も必要になってくる。



表示エリア	対角3インチ
表示ピクセル数	160×120ドット
厚さ	0.2 mm
重さ	3g(駆動ICを含む)
駆動方法	パッシブ
色	青色256階調

図12 試作した有機ELフィルムディスプレイとその仕様

実用化に向けての問題は多く残されてはいるものの、それらを一つ一つクリアして着実に前進していきたい。そして今後、フィルムディスプレイを用いたさまざまなアプリケーションをユーザーと共に築いていくことによって、有機ELディスプレイがより発展を遂げることができるのではないかと考えている。

7. 謝辞

有機ELフィルムディスプレイを作製するにあたって、材料、プロセス、駆動回路、さまざまな面でサポートをいただいた、マテリアル研究グループおよびデバイス開発グループの関係各位に感謝します。

参考文献

- 1) 谷千束, ディスプレイ先端技術, 107-111 (1998)
- 2) J.C.Scott and G.G.Malliaras, Semiconducting Polymers, chapter 13, 449-456 (1999)
- 3) G.Gu, P.E.Burrows, S. Ventatesh, and S. R. Forrest: "Vacuum-deposited, nonpolymeric flexible organic light-emitting devices" Optics Letters (1997)
- 4) J.K.Mahon, J.J.Brown, P.E.Burrows, G.L.Graff, M.E.Gross and M.Sullivan: "Recent Progress in Flexible OLED Displays" Display Works 2000
- 5) H.Kubota, S.Miyaguchi, S.Ishizuka, T.Wakimoto, J.Funaki, Y.Fukuda, T.Watanabe, H.Ochi,

- T.Sakamoto, T.Miyake, M.Tsuchida, I.Ohshita and T.Tohma, Journal of Luminescence, 87, 56-60 (2000)
- 6) A.sugimoto, A.Yoshida, T.Miyadera and S.Miyaguchi, Proceedings of The 10th International Workshop on Inorganic and Organic Electroluminescence (EL'00) 365-366 (2000)
- 7) A.yoshida, A.Sugimoto, T.Miyadera, S.Miyaguchi, Journal of Photopolymer Science and Technology, 14, 327-332 (2001)

著者

杉本 晃 (すぎもと あきら)

- a. 研究開発本部総合研究所 開発統括部 デバイス開発グループ
- b. 1992年4月
- c. 投射型ディスプレイ装置、液晶ディスプレイ装置の研究開発を経て、現在有機ELフィルムディスプレイの開発に従事する。

吉田 綾子 (よしだ あやこ)

- a. 研究開発本部総合研究所 開発統括部 デバイス開発グループ
- b. 1993年4月
- c. SHGブルーレーザーの研究開発を経て、現在有機ELフィルムディスプレイの開発に従事する。

宮寺 敏之 (みやでら としゆき)

- a. 研究開発本部総合研究所 開発統括部 デバイス開発グループ
- b. 1982年4月
- c. 光記録材料の研究開発を経て、現在有機ELフィルムディスプレイの開発に従事する。