

有機エレクトロルミネセンスディスプレイ

——最近の進展——

細川 地潮・楠本 正

有機エレクトロルミネセンス(以下、有機ELとする)は30年以上前に発見がなされた。当初より、電圧印加のもと電子と正孔が有機蛍光体に注入され、蛍光体内で再結合しELが生じることが理解されていた¹⁾。コダックグループは、ITO/正孔輸送層/発光層/陰極という2層型有機EL素子により有機PN接合の有効性を実証し緑色の高輝度発光を達成した。この構成では、電荷の注入効率、再結合効率を改善している。ちょうど10年前のことである²⁾。以来、有機ELの実用化を目指した研究開発が加速し、さまざまな発光材料、正孔注入輸送材料、電極材料などが新たに見いだされ、画期的な性能向上がなされている³⁻⁵⁾。現在、最高レベルの効率はDC駆動の条件で青、緑、赤に対しそれぞれ6, 12, 1.3 lm/Wである(表1参照)³⁻⁵⁾。表1より赤を除いてかなりの高水準に達しているのがわかる。図1には、これら高効率素子を実現する際に用いられる有機発光層の材料を示す。

また長らく懸案だった寿命の問題も解決し、緑、青、黄色の各色において、実用性能を到達しはじめている³⁻⁶⁾(表1参照)。なかには初期5,000 nitにて半減寿命1,000時間以上到達した例もあり、長寿命化は加速している⁶⁾。以上は、発光材料に有機分子を利用したものであるが、欧米で急速に発展しているのは、共役系ポリマーを用いた有機ELである。この系でも、半減寿命5,000時間程度が得られている⁷⁾。これら長寿命到達を受けてディスプレイを目指した開発が本格化してきた。特に自己発光、軽量薄型、広視野角、高速応答の特長を生かした応用の動きがでてきている。97年11月、パイオニア社から緑色のモノクロ有機ELディスプレイ(256×64ピクセル)⁸⁾の商品化が発表された。また、TDK社も同様のサイズ、精細度のディスプ

レイを商品化を前提として発表している⁹⁾。出光興産からは、5月のSIDにて5インチQVGA(240×320ピクセル)の青色モノクロ有機ELの試作パネルが発表された⁴⁾。このパネルでは、高速応答性を生かして、単純マトリクス駆動でビデオレイトの動画を表示することにはじめて成功している。

このように、有機ELディスプレイはいよいよモノカラーディスプレイから実用化が始まったが、今後の応用の面では、カラー化、特にフルカラー化は大きな技術課題と考えられる。そこでここでは、まずフルカラー化について有機ELの最近の話題を中心に紹介し、次に筆者らが開発を進めているカラー化方式である色変換法について紹介した後、最後に今後の展望について述べたい。

1. 有機ELのカラー化方式

有機ELの代表的なカラー化方式は、現在3方式ある。

① 白色ELにカラーフィルターを組み合わせたもの(白色ベース法)、② 赤、緑、青色の発光層を電極上に並置するもの(3色発光層法)、③ 青色ELの高いエネルギーで赤、緑色の有機蛍光体を励起し、赤、緑色発光を得るもの(色変換法)⁴⁾である。筆者らのグループは、この方式のうち色変換法によって、5インチのQVGAフルカラーディスプレイ上に、ビデオレイトの動画を実現した。高速応答を利用した単純マトリクス駆動フルカラーは、有機ELでは初めてであって、97年7月のことである^{10,11)}。一方、3カ月後、3色発光層法によるフルカラーディスプレイがNECグループからエレクトロニクスショーに展示された。白色ベース法によるカラーディスプレイは、TFT駆動によってTDKグループが実現した。これら3方式以外でも、赤EL素子、緑EL素子、青EL素子を積層による方法¹²⁾や発光中心として機能する発光層中の蛍光性色素を酸素存在

出光興産(株)中央研究所(〒299-0205 袖ヶ浦市上泉 1280)
E-mail: 69001647@sie.idemitsu.co.jp

表1 最高レベルの有機EL特性.

発光色	青	緑	赤	黄
発光層材料	DPVBi系	Alq	Alq	Alq
発光中心	ジスチリルアリーレン系	キナクリドン	DCM系	ルブレン, クマリン
CIE色度座標	0.18, 0.27	0.26, 0.65	0.61, 0.38	0.39, 0.55
効率 (lm/W)	6	12	1.3	~10 cd/A
寿命 (h)	1万	>1万	不明	数万

寿命はDC駆動, 初期輝度200~300 nitでの値.

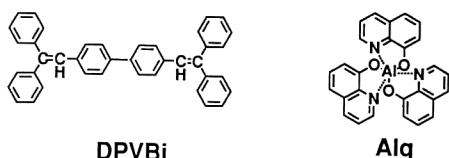


図1 有機EL発光層の材料.

下, 光照射により変質させEL色を変化させるフォトブリーチ法¹³⁾も提案されている. 一気にカラー化の可能性が開花はじめており, 今後は, 種々の方式が競い合って輝度, 効率などの性能が向上すると予想される.

さてこれら方式のうち, どれが本命であろうか. 現段階では断じる段階ではないと思われるが, 大胆に予測してみたい. 最終的に競争力がありスタンダートとなる方式は, ディスプレイとしての性能がすぐれ, 生産性にすぐれた方式であろう. 性能がすぐれるという面では, 赤, 緑, 青のそれぞれに最高の効率, 寿命を実現する発光材料を用いることができる3色発光層法が, 最有力と思われる. しかし現在, 青, 赤に関しては, 表1にみるように, 残念ながらフルカラーの3原色として用いるには色度の点で無理がある状態である. 当然, 材料開発が行われるだろうが, 寿命, 効率, 色度を併せもった材料開発には, かなりの時間が必要であると考えられる. 第2の問題点としては, 有機発光層は有機溶媒などで容易に溶解するため, フォトリソグラフによるパターン加工ができない点である. したがって蒸着マスクの開口部に第1色目の発光層を蒸着した後, マスクを移動し別の発光層を第2色目として蒸着し, さらに同様に第3色目の発光層を蒸着する方法がとられているようである. 理屈の上からは可能と思われるが, 100 μm以下のピッチで発光層を色分けする精度の面, さらにマスク移動時の粉塵による欠陥発生面の面, 生産性の面を考えると実用化のバリアーは決して小さいものではないと予想される. 画期的な製造方法の出現が期待される場所である. これを目指した動きとして, すでに陰極をマスクとしてドライエッチングを行い3つの発光層を並べ配置する方法が発表されている¹⁴⁾. しかし, まだまだ初期の段階であり, 高精細ディスプレイの作製にはブレイクスルーが必要とされ

ている.

一方, 生産性の面では, カラーフィルターを用いる白色ベース法や色変換する有機蛍光体アレイを用いる色変換法は, 液晶ディスプレイに利用されているカラーフィルターの製造技術を利用できる点で有利であると考えられる. 欠陥解析もカラーフィルターの検査装置を利用でき, ディスプレイ技術が急速に進展することが予想できる. ただし効率の面では, カラーフィルターは損失が多いので, 白色ベース法は苦戦すると思われる. 8~10 lm/W程度の高効率かつ長寿命の白色発光材の実現が必要であろうが, 現段階ではその可能性は見えていない¹⁵⁾. 一方, 色変換法は, 効率の面ではかなり有利に働き, 色純度も良好な方法である. 青から緑の変換効率は, 輝度, 輝度比でほぼ100%であり, 青から赤の変換効率も30%の領域に入っている¹⁶⁾. 表1にある効率6 lm/Wの青色発光を用いればすでにかんがりの色純度のよい赤を効率1.8 lm/Wで得ることができている. 寿命, 色度, 効率を併せもった赤色EL材料を開発するよりは, 蛍光収率の高い赤色用の色変換材を開発する方が容易な点も予想され, 色変換効率の向上も見込まれる.

以上により色変換法は, 現状では実用化の面で最も有利な方式であると思われる. 筆者らのグループではこれをいち早く見だし¹⁶⁾, 色変換法を推進している. しかし, 3方式のうちどれが決定版かは, 結局は画期的材料の登場によって決する面があり, 今後の進展によっては, 3色発光層法や白色ベース法, さらに3方式の複合化などが浮上してくる場面も当然ありえよう.

次に, 単純マトリクスで初めてフルカラービデオ画像の表示に成功した色変換法による有機フルカラーELディスプレイについて紹介したい.

2. 色変換による有機フルカラーELディスプレイ¹¹⁾

ここでは, 5インチQVGAフルカラーディスプレイ作製のための要素技術を簡単に説明する. 特に, 筆者らは昨年までにピクセルサイズがミリメートル程度のカラーディスプレイの試作を行ってきたが, 高精細ディスプレイを実現するために, 青色EL素子の陰極ならびに有機蛍光体アレイである色変換層(CCM)のそれぞれに対して, 100

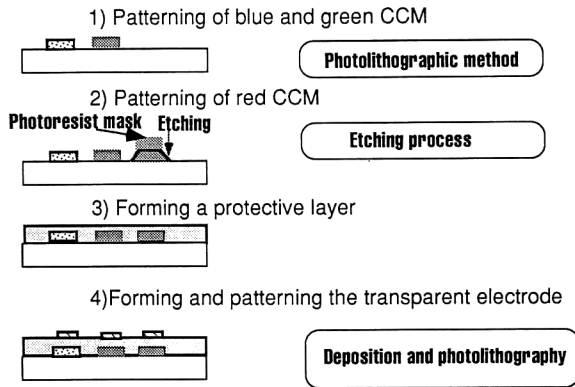


図2 CCMのパターン工程.

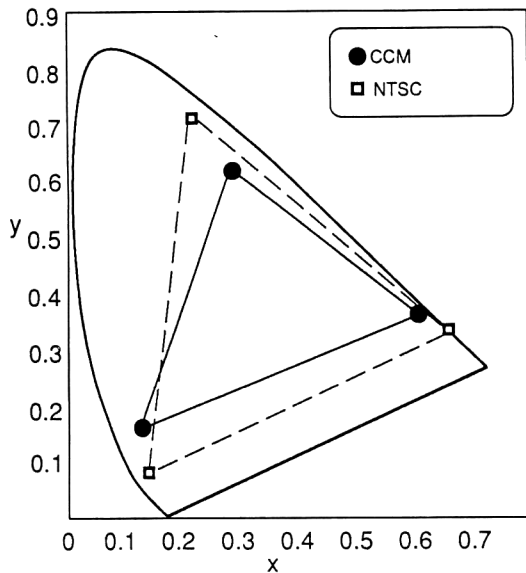


図3 CCM発光のCIE色度図.

μm 程度の高精細化が必要となった。

2.1 モノクロ (青色) EL ディスプレイ

まず、5インチ QVGA 青色有機 EL ディスプレイを試作することで、陰極の高精細技術と、高速応答性を生かした単純マトリクスによる動画表示を確認した。

陰極の高精細技術については、今回は陰極作製後にパターン化するのではなく、層間絶縁層を用いた陰極分離法を用いた。これは、有機層と陰極を蒸着する以前に、陽極に垂直方向に、ストライプ状の絶縁体リブ (隔壁) を作製する方法である。リブの形状や加工法の検討により、5インチ QVGA 程度の精細度が十分実現できた。

駆動面でも、256 階調での単純マトリクス駆動による動画 (ビデオレート) が確認された⁴⁾。

2.2 色変換層

高精細フルカラー有機 EL ディスプレイを実現するには、 $100 \mu\text{m}$ 程度のパターン化した CCM を作製する必要が



図4 5インチ QVGA フルカラー有機 EL ディスプレイの写真.

表2 5インチ QVGA フルカラー有機 EL ディスプレイの仕様.

項目	仕様
サブピクセル形状	$90 \times 300 \mu\text{m}$
ピクセルピッチ	$330 \mu\text{m}$
サブピクセル数	$(320 \times 3) \times 240$
表示面積	$105 \times 80 \text{mm}$

ある。今回、筆者らはフォトリソグラフィー法を用いて高精細なパターン化を行った (図2参照)¹¹⁾。

青色については、青色有機 EL の色純度を調節するために、カラーフィルター材料を用いた。また、緑、赤色については、有機蛍光材料を用いてフォトリソグラフィー法でパターン化した。図3に今回の青色有機 EL と CCM を組み合わせたカラー化方式での RGB 3 原色についての CIE 色度図を NTSC (CRT 対応) と比較して示す。まだ試作段階であるが、NTSC に比べてもかなり良い RGB 色度が得られている。

今回は、ディスプレイの性能を向上させるために、特に平坦性と均一性に注意した。まず、CCM 各色の膜厚の均一化を行った。また、CCM 層の上に保護層を設けているが、そこでも平坦性と均一性を図った。

さらに、この CCM 層の上に作製する陽極 (透明電極) 材料として、 InZnO (酸化亜鉛インジウム)¹⁷⁾ を今回は用いた。その理由は、 InZnO が ITO に比べ低温製膜が可能であり、エッチング性にすぐれ、また表面平坦性にすぐれていたからである。この陽極上に、絶縁体リブを作製後、有機物と陰極の蒸着を行う。したがって、CCM とパターン化された陽電極の形状と性能が青色有機 EL 素子の性能に大きな影響を与える。特に、陽極と陰極間の短絡や電流漏洩の問題に注意しなくてはならない¹¹⁾。

2.3 フルカラー有機 EL ディスプレイ¹¹⁾

図4に今回試作した、5インチ QVGA フルカラーディ

スプレイの写真を示す。実際に、256階調のビデオレートでのフルカラー動画表示が初めて確認された。また、視野角依存性も少なく、上下160°の範囲でも大きな画像の変化(コントラスト、色度などの変化)は観測されず自発光の特長がでている。

また、表2にこのディスプレイのサイズの仕様を示す。先に述べた陰極とCCMの高精細パターンニング技術により、表に示すような100 μm のピクセルサイズのディスプレイの試作が可能となった。

ただし現段階では、青から赤の変換効率の向上が必要であり、パネルの消費電力の推計値として白色100 nit時、約5 Wである。LCDに比較すればかなり大きく、課題として低消費電力化が残っている。

3. 今後の展望

以上のように、すでに薄型軽量、広視野角、高速応答の特徴は確立し、モノカラーディスプレイは実用化段階に入った。さらに、これからの発展によってどのように成長を遂げるかは、まだまだ未知の段階である。したがって、この時点で長い開発の歴史をもつLCDやPDPの到達点と比較するのは、適切でないと思われる。しかし、LCDに匹敵するディスプレイに育つための課題は、明確に認識できるようになってきたのではないだろうか。第1の課題は、赤色を高効率に実現できる発光材料である。表1より赤の発光効率は2 lm/W以下であり、青、緑に比べ開発の余地がある。現在、EL材料、色変換材料とも積極的に研究されているところである。第2の課題は低消費電力化である。単純マトリクス駆動下では印加電圧が高電圧化し、実際の効率は、表1の効率の1/2~1/3となることが関係している。これを避けるにはTFT駆動する方法が考えられているが、TFT駆動は高コスト化するため有機ELの魅力が薄れてくる。したがって、この問題により有機ELはLCDほどには成長できないとみる向きもある。

しかし、有機EL素子における電極接合の改良が現在急速に進んでおり、低電圧、高効率駆動の動きが急である¹⁸⁻²¹⁾。従来、有機層と電極の接合はブロッキング状態であって、電荷注入には高電界が必要であった。この原因により特に単純マトリクス駆動では10 V以上の高電圧駆動となっているが、Li化合物からなる電子注入層の利用¹⁸⁻²⁰⁾、透明電極の高仕事関数化²¹⁾など、ブロッキング接

合の改良がなされており、今後、駆動電圧の低減とともに急速に消費電力も改善されると予想される。この1, 2年中にはこれらの改良もめどがつき、カラー化の流れと融合するであろう。このとき、有機ELはTFT-LCDの性能に匹敵する性能を実現できるローコストのディスプレイとして登場するのではないだろうか。

文 献

- 1) W. Helfrich and W. G. Schneider: *Phys. Rev. Lett.*, **14** (1965) 229.
- 2) C. W. Tang and S. A. VanSlyke: *Appl. Phys. Lett.*, **51** (1987) 913.
- 3) 仲田 仁, ほか: ディスプレイ アンド イメージング, **5** (1997) 273.
- 4) C. Hosokawa, M. Eida, M. Matsuura, K. Fukuoka, H. Nakamura and T. Kusumoto: *Proc. of Society for Information Display (SID) 97* (1997) p. 1073.
- 5) C. W. Tang: *Proc. of SID 96* (1997) p. 181.
- 6) 中谷賢司, ほか: 高分子錯体研究会講演要旨集 (1997) p. 33.
- 7) A. Berntsen, P. V. Weijer, Y. Croonen, C. Leidenbaum and J. Vleggaar: *Conf. Rec. of the IDRC (International Display Research Conference) 97* (1997) F28.
- 8) H. Nakada and T. Tohma: *Proc. of SID 96* (1996) p. 849.
- 9) TDK社, エレクトロニクスショー-97 (1997).
- 10) 出光興産, ファインプロセステクノロジー-97 (1997).
- 11) M. Matsuura, M. Eida, K. Fukuoka, K. Fukuoka, H. Tokailin, C. Hosokawa and T. Kusumoto: *Proc. of IDW (International Display Workshop) '97* (1997) p. 581.
- 12) Z. Shen, P. E. Burrows, V. Bulovic, S. R. Forrest and M. E. Thompson: *Science*, **276** (1997) 2009.
- 13) 城戸淳二, 山田由紀, 原田 学: 第44回応用物理学関係連合講演会予稿集 (1997) p. 1156.
- 14) C. Wu, J. C. Sturm, R. A. Register and M. E. Thompson: *Appl. Phys. Lett.*, **69** (1996) 3117.
- 15) J. Kido, H. Sionoya and K. Nagai: *Appl. Phys. Lett.*, **67** (1995) 2281.
- 16) M. Matsuura, H. Tokailin, M. Eida, C. Hosokawa, Y. Hironaka and T. Kusumoto: *Proc. Asia Display 95* (1995) p. 269.
- 17) A. Kaijo: *Proc. IDW 96* (1996) p. 365.
- 18) T. Wakimoto, Y. Fukuda, K. Nagayama, A. Yokoi, H. Nakada and M. Tsuchida: *IEEE Transactions on Electron Devices*, **44** (1997) 1245.
- 19) L. S. Hung, C. W. Tang and M. G. Mason: *Appl. Phys. Lett.*, **70** (1997) 152.
- 20) F. G. Celii and S. J. Jacobs: *Conf. Rec. of the IDRC 97* (1997) p. 314.
- 21) C. C. Wu, C. I. Wu, J. C. Sturm and A. Kahn: *Appl. Phys. Lett.*, **70** (1997) 1348.

(1997年12月12日受理)