

大型基板対応有機EL製造装置

OLED Manufacturing Equipment for Large-scale Substrate



藤本英志	Eishi Fujimoto	①
野田武史	Takeshi Noda	①
菊地昌弘	Masahiro Kikuchi	①
上川健司	Kenji Kamikawa	①
大工博之	Hiroyuki Daiku	①
松本祐司	Yuji Matsumoto	①
藤本恵美子	Emiko Fujimoto	②
黒瀬守	Mamoru Kurose	③
中村聡	Satoshi Nakamura	④

あ ら ま し

当社では、面蒸着方式を採用した大型基板対応有機EL製造装置の開発を進めている。有機ELデバイスを作製するための有機層成膜用の蒸発源には、高膜厚均一性や膜の劣化防止に加え、材料利用効率の向上や大面積化にも対応できることが要求される。本報では、面蒸着方式の特長、大型化への取り組み、さらに高生産性を目的とした1つのチャンバで有機層全層を蒸着できる方式でのデバイス作製結果について報告する。

Abstract

We are developing an OLED evaporation system for large-scale substrates equipped with Planar Source for organic layer deposition. Organic evaporation sources for OLED are required to have the expandability to cater to large-size substrates as well as being uniform in thickness and providing a high material yield with good film quality. This report indicates that the Planar Source has many advantages compared to other evaporation methods and describes the performance of OLED devices in which all the organic layers are deposited by Planar Source in one process chamber.

1. 緒 言

有機ELとは、OLED (Organic Light-Emitting Diode) と呼ばれ、有機材料を用いて電気エネルギーを光エネルギーに変換するエレクトロルミネッセンスという現象を利用した自発光デバイスを指す。その特徴は、薄型でフレキシブルが可能、視野角が広い、高輝度、省エネルギー、応答速度が速い、面発光と豊かな色合いで目に優しいなどが挙げられ、ディスプレイや照明用途として大きく期待されている。しかし、有機ELは機能面・製造技術面の両面で、開発途上のデバイスであり、機能面においては発光効率や寿命の向上、製造技術面においては連続製造や大型化への対応、有機材料の利用効率の向上など、高生産性を達成できる製

造技術の確立が急務である。

日立造船では独自技術である有機層成膜用面蒸発源を核とした量産用有機EL製造装置の開発を進めており、平成20年度からはNEDO委託事業「次世代大型有機ELディスプレイ基盤技術の開発（グリーンITプロジェクト）」に参画し、第6世代（G6：1500×1850mm程度）を超える大型基板に対して適用可能な量産製造システムの開発を行っている。

本稿では日立造船が開発した有機層成膜用面蒸発源の特長と大型基板適用への取り組み状況、および高生産性を目的とした新コンセプト面蒸発源での発光デバイス作製結果について紹介する。

2. 有機ELデバイス構成

有機ELデバイスは、図1に示すようにITOなどの透明電極上に有機層を多層に積み重ねた構造（1層の厚さ：数十nm）となっており、有機層の成膜は、低分子有機材料を用いた真空蒸着法によって製造されることが一般的である。真空蒸着法とは、容器（チャンバ）

① Hitz日立造船(株) 精密機械本部 開発センター
 ② Hitz日立造船(株) 事業・製品開発本部 技術研究所 環境・プラント研究室
 ③ Hitz日立造船(株) 精密機械本部 システム機械事業部 システム機械設計部
 ④ Hitz日立造船(株) 精密機械本部 システム機械事業部 製造部

内を 10^{-4} Pa以下の高真空にし、チャンバ内のるつぼ（蒸発源）に有機材料を入れ加熱・蒸発させ、対向する基板に成膜する方法である。

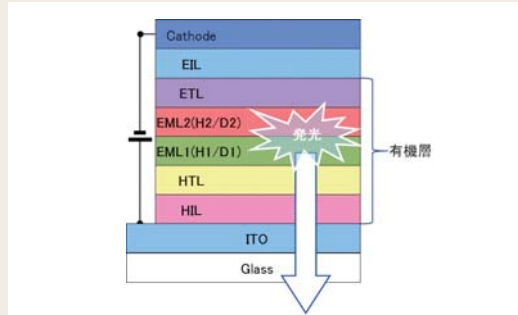


図1 有機ELデバイス層構成例

有機層の成膜について考慮すべき主な条件を以下に示す。

①膜厚均一性：有機層は層の厚さにより発光ムラが生じないように、基板上に均一な膜厚に成膜させることが必要である。膜厚均一性は基板上の複数箇所での膜厚を計測し、以下の式で求められる。

$$\text{膜厚均一性 (\%)} = (\text{Max} - \text{Min}) / (\text{Max} + \text{Min}) \times 100$$

Max：基板上で計測した膜厚最大値

Min：基板上で計測した膜厚最小値

膜厚均一性は $\pm 3\%$ 以下を要求されることが多い。

②複数層・共蒸着への対応：有機ELデバイスは有機層の積層構造であるため、複数の蒸着チャンバまたは、蒸着チャンバ内に複数の蒸発源の搭載が必要となる。また、有機層の一部、特に発光層では複数の有機材料を同時に蒸着させる共蒸着が行われるため、1つのチャンバで2ないし3源を同時に蒸着することができる蒸着装置が必要である。

③基板温度上昇：蒸着前後における基板温度上昇は最小に抑える必要がある。これは有機層の熱変質防止やシャドーマスクの熱伸びによるマスクパターンと基板パターンのずれを防止するためである。

④材料利用効率：有機材料は非常に高価であるため、蒸着装置には材料利用効率（材料使用量に対する基板上への成膜量の割合）を高く保つことが要求される。

⑤パーティクル防止：有機ELの全層の厚さは合計しても数十～数百nm以下である。よってパーティクル（ごみ）の存在はデバイスの歩留まりを悪化させる。基板へのパーティクル付着を防止するため、蒸着方向は基板の成膜面を下に向け、基板の下方にある蒸発源から蒸発分子を受けるアップデポジションが主流である。しかし、成膜面は搬送時に触れることができず、基板端部を把持しなければならないため、基板が大型化すると基板たわみが大きくなり基板搬送が難しいという問題が生じる。したがって、基板搬送が容易な基板横向き搬送／横向き蒸着（サイドデポジション）や、上向き搬送／下向き蒸着（ダウンデポジション）の手法が必要となるが、あわせて基板上へのパーティクル付着防止対策も必要不可欠となる。

3. 蒸着方式の比較と面蒸発源の特長

有機薄膜層の成膜時に使用される真空蒸着の方法は図2に示す3つの方法に分類できる。

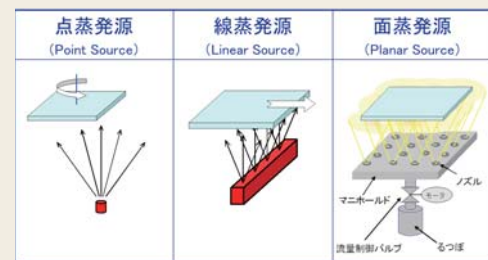


図2 有機蒸着方式の比較

点蒸発源（ポイントソース）方式は、るつぼを基板から偏心させて設置し、膜厚均一性を維持するため基板を回転させながら蒸着する方式である。真空チャンバ内の基板下側に設置した器状のるつぼに材料を入れて加熱蒸発させるため、基板を下側に向けたアップデポジションで蒸着が行われる。主としてG3（550×650mm程度）基板以下の小型基板に対して適用されている。

線蒸発源（リニアソース）方式は、線状のるつぼを複数配置し、基板と相対移動させることにより蒸着する方式である。膜厚均一性を確保するために、蒸発源から蒸発される材料の蒸着レートと基板・蒸発源の相対移動速度を高精度に制御する必要がある。

日立造船が開発した面蒸発源方式は、真空蒸着法の原理を採用しつつ、蒸発源・基板間距離（T/S）を短く、蒸着中の基板・蒸発源の両方とも移動を伴わない静止成膜を実現させるものである。るつぼ部をチャンバ外に配置し、るつぼから真空チャンバ内のマニホールドに送り込まれる蒸発量を流量制御バルブで制御し、マニホールド上の複数ノズルから蒸発分子を噴出させることにより、マニホールドに対向する基板に成膜を行う。蒸着レートは、膜厚計の出力信号を流量制御バルブの開度にフィードバックすることで所定値に制御される。基板に対向するノズル、マニホールドは加熱されているが、ノズル開口部以外の部分は冷却板で覆われ、また蒸発源直上にシャッタ機構を設けることにより、基板温度上昇を抑制している。面蒸発源の特長を以下に挙げる。

(1) 高材料利用効率と高膜厚均一性の両立 面蒸発源は、基板・蒸発源間距離が近いこと、材料利用効率が高い。また、非成膜時間中は流量制御バルブを閉止するため、基板交換など非成膜時間の長短にかかわらず、材料利用効率を高く維持することができる。

材料利用効率や膜厚均一性は、基板・蒸発源間距離やノズルレイアウトに依存するが、日立造船では、このような基板・蒸発源間距離やノズルレイアウトに対して最適設計を行うことができる蒸発源設計シミュレータを開発し、基板サイズの変化に対する膜厚分布や材料利用効率のデータベースを構築している。

図3に基板・蒸発源間を200mm、膜厚均一性を $\pm 2\%$ 、 $\pm 3\%$ 、 $\pm 4\%$ 以下にした場合の基板サイズと材料利用効率のシミュレーション結果、及び実際の材料利用効率の計測値を示す。シミュレーションでは、基板と蒸発源間距離が一定の場合、基板サイズが大きくなるに従い、材料利用効率が高くなり、膜厚均一性を $\pm 3\%$ 以下の場合、G6では60%以上の材料利用効率を得られる。実際の蒸着による計測結果もG2 (370×470mm程度) 基板で21%、G3基板で31%、G4 (730×920mm程度) 基板で42%となり、シミュレーション結果とほぼ一致している。また、材料利用効率と膜厚均一性はトレードオフの関係²⁾にあるため、膜厚均一性の許容値を緩和すれば、さらに高い材料利用効率を得られる。このように、弊社開発の蒸発源設計シミュレータを用いれば、どのようなサイズの基板においても、ニーズに合った最適な設計・製作が可能となる。

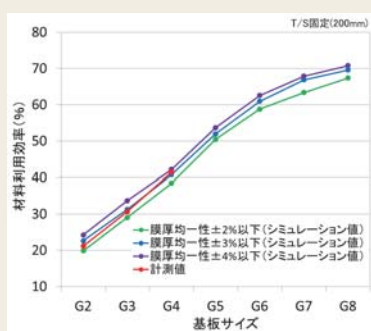


図3 基板サイズと材料利用効率の関係

(2) 蒸着方向の高自由度 面蒸発源は、基板・蒸発源の相対運動を伴わない静止成膜方式であるため、図4に示すように蒸着方向を容易に変更することができる。蒸着方向を自由に選択できることは、基板の保持を容易にするだけでなく、前後工程の基板の向きにあわせた蒸着方向の選択が可能となり、基板の反転や方向変更作業が減り、効率の良い生産の実現につながる。

(3) 低パーティクル構造 面蒸発源は静止成膜方式であるため、電流のリークや非発光など深刻な問題の発生原因となるパーティクルをミニマイズさせることができる。

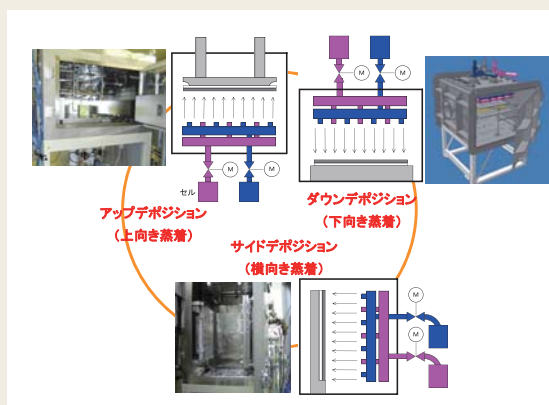


図4 面蒸発源の蒸着方向選択性

(4) 材料交換容易性 るつぼ部分がチャンバ外にあり、バルブで締め切ることで、チャンバ内の真空を保ったまま材料交換を行うことができる。このことは、装置ダウンタイムの減少、装置稼働率の向上につながる。

4. 基板大型化への取り組み

有機ELデバイスの低コスト化には基板大型化対応が不可避である。図5に日立造船の基板大型化開発経緯グラフを示す。H15年に面蒸発源の開発を開始して以来、H17年に250mm角、H20年度に370×470mm (G2)、H21年度に600×700mm (G3)、H22～23年度にかけて730×920mm (G4) と基板大型化に向けた開発を行ってきた。H24年度では、1500×1850mm (G6) 対応蒸発源を完成させる予定である。

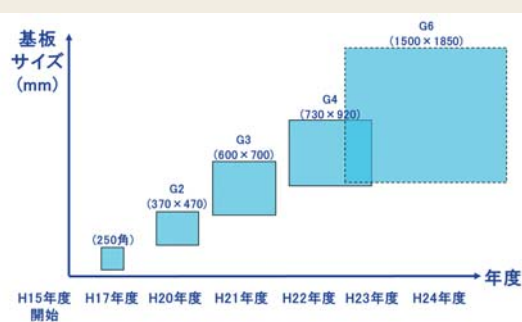


図5 基板大型化開発経緯

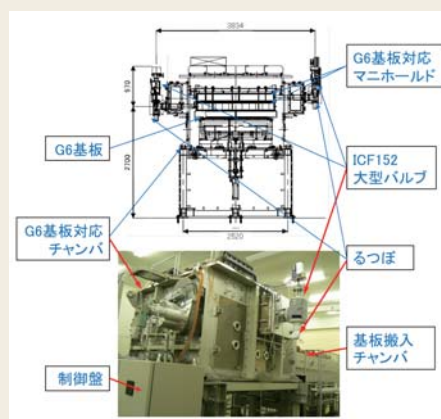


図6 第6世代対応蒸着装置

試作した第6世代対応蒸着装置を図6に示す。搭載マニホールドは2段となっており、それぞれのマニホールドから蒸発分子を下向き噴出するダウンデポジション方式を採用している。マニホールドは、高膜厚均一性および高材料利用効率を両立させるため、ノズル配置を最適化している。付帯設備としてロードロックチャンバを持ちロボットハンドによる基板の出し入れが可能な構成になっている。

この面蒸発源において、蒸着レートを $1\text{\AA}/\text{sec}$ とした場合の膜厚分布について、事前シミュレーションと実際の結果の比較データを図7に示す。膜厚均一性が $\pm 3\%$ 以内を満たすとともに、膜厚分布の傾向がシミュ

レーションと一致する結果が得られた。

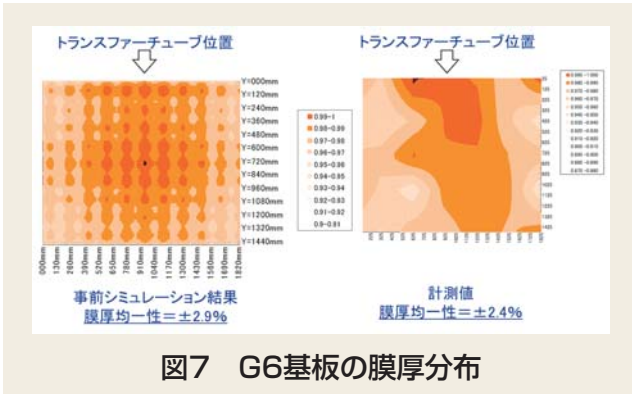


図7 G6基板の膜厚分布

5. 新コンセプト面蒸発源

5.1 構成 現在、多く使われているポイントソースでの蒸着方式では、1つのチャンバで1層しか蒸着することができないため、多層の成膜には層数分のチャンバが必要となり、搬送頻度の増大による実蒸着時間比率（工程全体に対する蒸着時間の割合）の低下、フットプリント（装置設置面積）の増大につながっている。

従来型の面蒸発源装置を図8に示す。面蒸発源のマニホールドの数はノズルの配置上3段が限界であることから、1つのマニホールドで1材料を蒸着させることになり、1チャンバで最大3材料の成膜が行えることにとどまっていた。

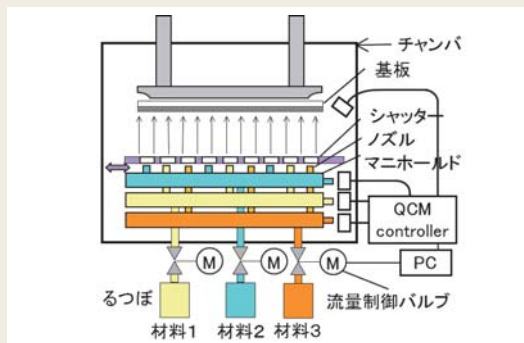


図8 従来型の面蒸発源装置

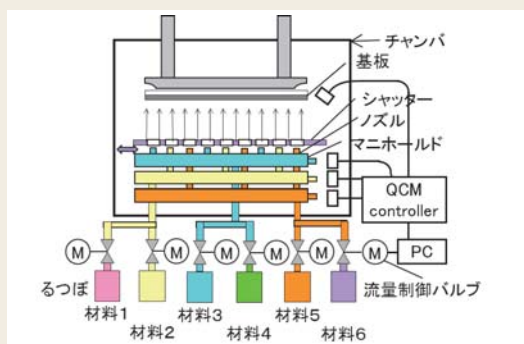


図9 多源搭載面蒸発源

新コンセプト面蒸発源である多源搭載面蒸発源を図9に示す。3段のマニホールドにそれぞれ複数の流量制

御バルブ・るつぼを設置し、バルブで蒸着材料を切り替える方式を採用し、複数の材料を蒸着できるようにした。このようにすれば1つのチャンバに多源のるつぼを搭載することができ、分岐数を多くすることができればデバイスに必要なすべての有機層を1つのチャンバすべてで成膜させることも可能となる。

多源搭載面蒸発源のメリットを以下に示す。

(1) 蒸着時のシャドーマスクと基板間のアライメント回数を短縮させることができ、アライメント時間をミニマイズできる。また、各層間の成膜にかかわる基板搬送が不要となる結果、生産時間に占める基板搬送時間などの非蒸着時間比率が低くなり、実蒸着時間比率が高くなる。

(2) 装置のフットプリントを小さくできる。特に同じ層を順番に複数回重ねて成膜するタンデム構造デバイスの生産に対しては、飛躍的にフットプリントが減少する。

(3) 蒸着材料や層数、膜厚などの製造条件を簡単に変更することができる。

5.2 デバイス特性 多源搭載面蒸発源では、クロスコンタミの問題がある。クロスコンタミとは、同一チャンバ内で蒸着材料を切り替えた時に、目的とする成膜層にそれ以前の成膜材料成分が混入することである。この問題については、代表的な有機EL材料であるAlq3と α -NPDの2材料使用したHPLCによる材料混入試験において、滞留時間を設けることにより混入がないことを確認している。²⁾ 今回はデバイスを作製し、多源搭載面蒸発源の性能を調査した。装置構成および膜構成を図10に示す。

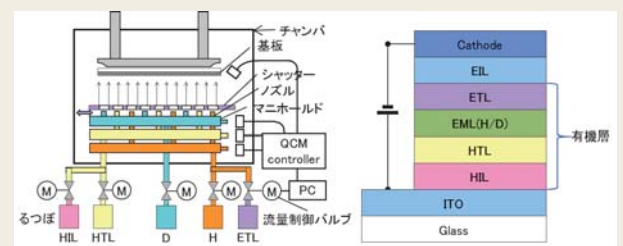


図10 装置構成及び膜構成

有機層は4層5材料とし、中段のマニホールドでHIL材料とHTL材料の2材料を、下段のマニホールドでEMLのH材料とETL材料の2材料を使い蒸着を行った。発光層であるEMLは、下段のホスト（H）材料と上段のドーパント（D）材料の共蒸着により成膜を行った。

面蒸発源デバイスとポイントソースで作製したデバイスとの特性の比較を行った。図11および図12に作製したデバイスの初期特性を示す。結果の比較を、図11および図12に示す。図11は電圧-電流密度、図12は電流密度-輝度の関係を示したもので、両特性結果ともにリファレンスデータとほぼ一致した結果が得られ、多源搭載面蒸発源の信頼性が確認できた。

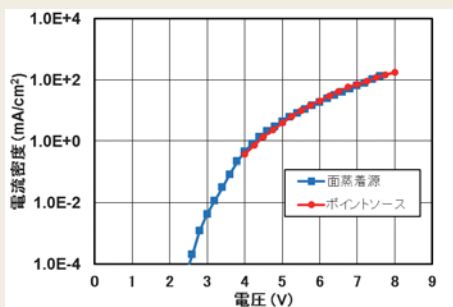


図11 電圧-電流密度特性

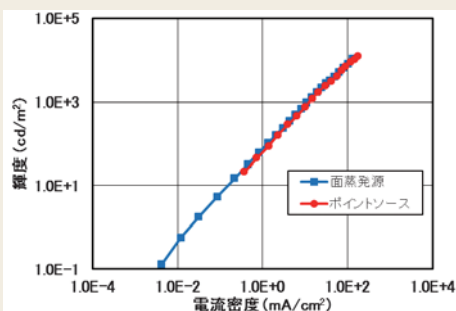


図12 電流密度-輝度特性

作製したデバイスの発光写真を図13に示す。右の1面発光デバイスが60×70mm、左のライン発光デバイスが5×70mmの7ラインとなっている。両方とも、ムラのないきれいな発光が得られた。



図13 発光デバイス写真

6. 今後の課題

有機ELデバイス製造の生産性を高めるためには、

さらなる大型化、高蒸着レート、実蒸着時間比率を高める必要がある。

面蒸着源方式においては、更なる蒸着温度の低温化と高蒸着レートの実現、材料切り替え時間短縮などに取り組む生産性向上を図るとともに、G6基板対応有機EL製造装置を早期に完成させ商品化させる所存である。

7. 謝辞

本成果の一部は、独立行政法人新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）委託研究開発「次世代大型有機ELディスプレイ基盤技術の開発（グリーンITプロジェクト）」によるものです。また、青色発光デバイス材料は、出光興産株式会社よりご提供いただいたものです。

参考文献

- 1) 松本祐司ほか：日立造船の有機EL製造装置、Electronic Journal 別冊2008有機ELテクノロジー大全、2008
- 2) 藤本英志ほか：大型基板対応有機EL製造装置、Hitz技報、2010、70（2）、143
- 3) Eishi Fujimoto他、OLED Manufacturing System Equipped by Planar Evaporation Source, SID10 Digest, 2010, 46（3）、695

【文責者連絡先】

Hitz日立造船(株)
精密機械本部 開発センター
藤本英志

Tel : 06-6551-9206 Fax : 06-6551-9849

e-mail : fujimoto_e@hitachizosen.co.jp

Hitachi Zosen Corporation

Business & Product Development Center

Eishi Fujimoto

Tel : +81-6-6551-9206 Fax : +81-6-6551-9849

e-mail : fujimoto_e@hitachizosen.co.jp



藤本 英志



野田 武史



菊地 昌弘



上川 健司



大工 博之



松本 祐司



藤本 恵美子



黒瀬 守



中村 聡