特集

フラットパネルディスプレイの製造技術

【解説】

最新の液晶用カラーフィルタ製造技術*

山田 泰**

The Newest Color Filter Manufacture Technology for Liquid Crystal / Hiroshi YAMADA

Key words: color filter, manufacture technology, liquid crystal, color resist, pigment

1. はじめに

液晶ディスプレイ (LCD) は RCA によって 1968 年に初めて開発された。そして、5 年後の 1973 年には、セイコーエプソンが腕時計に、シャープが電卓に LCD の実用化に成功している。カラー化に関しては 1981 年に東北大学の内田龍男教授がマイクロカラーフィルタを用いた反射型カラー LCD の提案をしたのが最初である。1983 年には大日本印刷 (DNP) が工業技術院との共願でカラーフィルタ (CF) 材料である顔料分散感材の特許出願をしている。1986 年にはシャープが 3 型カラー LCD-TV の発表を行うに至った。1990 年に NEC がカラー LCD 搭載のノートパソコンを発売するに至り、カラー LCD の本格的普及が始まった。ちなみに DNP が LCD 用 CF 専門メーカーとして本格的な CF 生産を開始したのは 1989 年である。TFT-LCD の製造技術の進展に伴い、CF 形成技術もより薄く、より軽く、より省電力、かつより安価なことが最優先課題として、さまざまな CF 形成方法が提案され、かつ実施されてきた。また、LCD 市場は拡大基調を今後 10 数年は保つと予想されながらも、21 世紀を迎える直前から海外との激しい価格競争に突入し、主要部材としての CF も例外ではなくなり、新たな手法の探索が始まっているのが昨今の状況である。

2. カラーフィルタの基本構成

LCD は液晶層を通過する光量を偏光で制御する方式で

あり、液晶自体が発色するわけではないため、図示した CF が必要となってくる。CF の形成技術とは主に図 1 ①着色層の形成方法のことをさす。最近では CF の付加価値を高めることになるカラムスペーサや MVA 用の線状突起物の形成も CF 専門メーカーに求められてきている。

① 色層は、その形成方法は後で詳述するが、現時点では顔料分散型のフォトリソ法で形成されているのが主流である。着色層の膜厚は $1\sim 2\mu\text{m}$ 程度である。CF は平面的には図 2 に示すごとく、ストライプ配列、デルタ配列 (トライアングル配列)、モザイク配列の 3 種類がある。ストライプ配列は OA 用、車載用等文字やグラフィックの静止画像をシャープに表示する場合、デルタ配列は鮮明な高解像度動画表示が必要な場合、モザイク配列は計測器などの斜線表示を重視する場合に選択される。各画素のサイズは解像度に依存するが、ストライプ配列では平均的には $80\mu\text{m}\times 120\mu\text{m}$ 幅、その他の配列では平均的な画素寸法は $80\mu\text{m}\times 100\mu\text{m}$ を基準に考えればよい。着色層に求められる特性は、(a) 色純度と光透過率が高いこと、(b)

図 1 カラーフィルタの基本構成図

* 原稿受付 平成 15 年 4 月 25 日

** 大日本印刷 (株) ディスプレイ製品事業部 (埼玉県北埼玉郡大利根町豊野台 1-317-6)
1990 年慶応義塾大学大学院理工学研究科博士課程応用化学専攻修了、工学博士。同年、大日本印刷 (株) に入社、現職に至る。カラーフィルタ用着色レジスト材料の開発に従事。

図2 カラーフィルタの画素配列

耐光性が高いこと、(c) 耐熱性があること、(d) 耐薬品性に優れること、(e) 平坦であること、(f) 寸法精度が高いこと、などが挙げられる。

(a) は要するに色が濃くて明るい画面が求められていることであり、CIE 色度座標上で NTSC (National Television System Committee) の想定色度座標にいかに近づくかを求められていることでもある。(b) に関しては使用するバックライトや外光で変色や退色がないことを求められており、この要求を満たすために、染料ではなく、顔料が CF に使われるようになった。(c) は配向膜の焼成処理温度や ITO 膜付け時の温度に耐え、変色や剥離を起こさないことが求められている。(d) は各工程で使用される溶剤や洗浄剤に触れても変化せず、液晶へのイオンなどの染み出しがなく、表示不良の原因を作らないことが求められるからである。

② ガラス基板は CF の重量とコストの大部分を決定する。重量に関していえば、LCD の大部分を占めているといっても過言ではない。したがって、LCD の軽量化はガラス基板を薄くすることで達成できる。また、コストダウンはガラス基板の大型化と多面付けで達成できるといわれている。ガラス基板に対する要求特性は、表面品質としては 1 万ルックスの検査で、汚れや傷、表面凹凸・ダスト・パーティクルの欠陥が認められないこと。内部品質としては 0.1 mm 径以上の泡や異物がないこと。端面品質としては 0.5 mm 以上の欠けが認められないことなどである。ガラス基板の端面処理は R 面取り幅として 0.1~0.6 を必要としており、これはガラスの欠けを抑え、製造プロセスでのパーティクル発生を抑える役割を果たしている。ガラス基板のメーカーとしては、コーニング、旭硝子、NH テクノ、日本電気ガラスがある。

③ ブラックマトリックス (BM) は下記の機能を要求されている。

- (a) 画素 (開口部) 以外の部分での外部とバックライトからの光を遮断し、コントラストを向上させる。
- (b) 隣接する RGB 画素の混色を防止する。
- (c) TFT の半導体層を構成する a-Si が光導電性を有するため、ドレイン電極とソース電極間の非導通状態を

維持するために外光を遮蔽する。

上記の目的を達成するために、BM 自体には光学濃度 3 以上の遮光率、低反射率、微細パターン性が要求される。BM 用材料は金属と樹脂とがある。

金属薄膜 BM は、反射率が 4% 以下となる 2 層クロム (金属クロム/酸化クロム) が実用化されている。膜厚は 0.1~0.2 μm である。製法はスパッタ法で成膜を行い、フォトリソでエッチングして、所要の線幅 8~10 μm を有する BM を得ている。また、クロム以外の金属としてニッケルの無電解メッキで BM を形成する方法も提案されている。

樹脂 BM は樹脂中に分散する材料として、カーボンブラック、チタンブラック、硫化ビスマス、酸化鉄などの無機類が使用されている。金属薄膜 BM の環境面への影響を考慮して、より環境負荷の少ない樹脂 BM への切り替えが進むとともに、広視野角 CF の一種である IPS 方式の CF 向けに使用されている。コスト的には金属薄膜 BM より安価になるとされているが、膜厚が 1~2 μm と厚くなり、画素の凹凸が大きくなること、光を吸収する材料でフォトリソ方式をとっているため、解像度やプロセス安定性に難がある。

④ 透明導電膜は ITO (Indium Tin Oxide) である。CF 上に形成される ITO 膜の膜厚は TFT 向けの場合は 1500 Å 前後で、その抵抗値は 10~30 Ω/sq である。STN 向けは 5 Ω/sq 以下を求められる。

透明導電膜の成膜方式はスパッタ法、真空蒸着法、スプレー法、ディップ法、CVD 法などの方法があるが、高速成膜が可能であり量産性に優れ、かつ、膜性能が優れているため、ITO のそれは今ではマグネトロン方式の連続スパッタ方式が主流である。

3. CF 基板形成方法

前述したように CF 基板形成方法は着色層をガラス基板上にいかに形成するかのパターニング技術である。図 3 に CF 形成法の分類を示し、着色材として顔料を用いた主要な手法を順次解説していくことにする。

3.1 PDCR 法 (Pigment Dispersed Color Resist)

LCD 用 CF の開発当初は感光性親水性樹脂に染料を染色する手法をとっていたが、染料は耐熱性、耐光性がなく、退色する問題点があった。CF の耐熱性、耐光性を向上させるために、顔料を溶液中に微分散し、着色材として用いたのが「顔料分散法」である。ここではパターニング手法と材料とを明確に区別していくため、PDCR 法と呼ぶことにする。PDCR 法のフォトリソ工程は細かいノウハウにかかわる工程を除いて概略を示すと図 4 のようになる。フォトリソで直接カラー画素を形成する手法である。PDCR 法のプロセス上の問題点は最初に塗布した着色感材が 3 回の熱履歴を受けることになるので、熱変性の影響も考慮して色設計上での色から塗布するか注意深く検討する

図3 CF形成方法

図4 PDCR法

点にある。現時点では、前述したようにPDCR法が主流になっておりレジストを提供するメーカーも多い。代表的なメーカーは富士フィルムアーチ、JSR、東京応化 (TOK)、インクテック、住友化学、日立化成、東洋インキ製造であるが、近年、韓国や台湾の化学メーカーがレジストビジネスに参入してきた。

図5 エッチング法

3.2 エッチング法

東レが1988年から開発し、実施している手法である。感光性のない着色ポリイミド膜をポジレジストを介してエッチングを行い画素形成を行う。そのプロセスを図5に示す。PDCR法と同じくスピンコート法でガラス基板上に材料を塗布していく。耐熱性の高いCFが形成できる反面、プロセスがPDCR法より増えてしまう。

3.3 FMT法

富士写真フィルムが開発した手法で、FMTとはFilmed Mass Transferの略称であり、あらかじめ感光性樹脂をフィルム (トランサ) に塗布しておき、それをガラス基板上に転写し、その後フォトリソプロセスで画素形成する手法である。そのプロセスの概略を図6に示す。この手法の特徴は、富士写真フィルムにてコーティングされたトランサフィルムを購入しさえすれば、高価なスピナ装置を設置せずに、安価な転写装置を準備するだけで、後の現像工程は3.1のプロセスと同一になる点である。また、PVAからなる酸素遮断膜1.6 μ mを設け、PDCR層の露光時のラジカル減衰を防ぎ、感度を30倍ほど上げているのが特

図6 FMT法

徴である。さらに、樹脂BMを形成する手法として、画素形成後、バック露光にてBMを画素間に埋める手法も開発している。ガラス基板が大型化すればするほど、理論的には優位に立つ画素形成技術といえる。課題は生産性に優れたフィルムコーティングでPDCRのトランサを製作するため、色相を細かくチューニングできず、小ロット向きでないこと、また、フィルムコーティングの精度がスピンコート品質に達しておらず、CF専門メーカーでの採用が進んでいないことである。国内のLCDメーカーのうち、数社がFMT法を採用しCFを内製している。

3.4 凹版法

印刷法の問題点である解像度、パターン精度、膜厚精度などの解決を目指したのが東洋紙業が試みた凹版法である。この方式の特徴は光重合性のインキを使用して、離形層を設けた凹版部に充填されたインキを、まずUV硬化して、その後ブランケットに転移させ、粘着層を設けたガラス基板にブランケットから転移することで、100%転写に成功し、良好な画素平坦性を得ている。印刷法によるCF形成の魅力は大量複製による低コスト化である。

3.5 PVED法

PVEDとはPhoto-voltaic Electro-depositionの意味で、光起電力によるパターンを利用して電着を行う方法である。富士ゼロックスが1995年頃から開発してきた方式で、原理は、ガラス基板上にITO膜とn型半導体 TiO_2 膜を形成し、ガラス基板側からフォトマスクを介して露光し、ITO膜を作用電極にして電解液に接触させると、露光部のパターンに沿って、 TiO_2 膜上に電着膜が数秒で形成される。ガラス基板上にフォトリソ工程を必要としないことから、着色パターンとBMパターンのフォトマスクを用意すれば任意のパターン形成が容易になる。電着層の固化は最後に一括してベーキング処理で達成される。

3.6 レジスト電着法

電着法は1963年に自動車の下塗り塗装方法として工業化して40年近い歴史があるが、CFへの適用は神東塗料が1981年から研究開発を始め、1991年から事業化している。CFにはアニオン電着を使用しており、樹脂成分はポリエステル+メラミン系の熱硬化性樹脂である。そのため250~260℃でも黄変しないとされている。ガラス基板上のITO膜をパターンニングし電極とし、RGBそれぞれに対応する電極に通電することで、各色の電着を行い、最後に焼成処理を行っている。BMの成膜はフォトリソ法で、スピンコート法でCF上に塗布後、UVのバック露光でキュアしている。これに対して、日本ペイントは逐光現像型ポジ型レジストを開発し、大日本印刷は階調露光型レジストを使用してITO膜をパターンニングすることなく、レジストワークのみで、順次電着していく方法を開発している。これらをレジスト電着法という。特徴はBMをも電着できることであり、同様のプロセスですべての画素形成ができる点にある。

電着法の特長は均一な着色層膜厚が得られること、顔料含有量が多い膜が得られること、大面積がPDCR法と比較すると安価な装置でできることなどであり、さらにはCOA (Color filter On Array) への展開が期待できることである。問題点としては電極が必要なこと、顔料分散液の注意深い管理が必要なこと、ウェット処理であるため水分系処理のノウハウの蓄積が求められることが、共通の課題でもある。

3.7 レーザ転写法

サーマルプリンタの原理をCFの形成に応用する試みは、PDCR法や電着法のウェットプロセスとは異なるドライプロセスへの魅力や、レーザービームを絞ることによって達成できる細線描画への可能性が期待できるからである。この方式はFMT法と同様に色相の細かいチューニングができない点、転写フィルムのコーティング精度がスピンコート品質に達していない点などがこれからの課題である。また、LCDの低価格化に対応するため、生産性をいかに上げていくかが本方式のキーポイントである。

図7 インクジェット法

3.8 インクジェット法

インクジェットの手法で画素を形成する際、ガラス基板には紙と違ってインクを吸収する機能がないためインクジェットからの液滴が乾燥するまではインクの拡散を防ぐため、BMを隔壁代わりにして画素形成する方法である。色素が顔料系の場合は樹脂系のインクが使用される。エプソンがこの方式をとっている。図7にそのプロセスを示す。この方式で課題となるのは、インクジェット用インクの開発と着色層の混色を防ぐ手段の開発、また、レーザ転写法と同様に生産性が高い装置の開発である。

3.9 電子写真法

電子写真法でCFを形成しようという試みはキヤノン、凸版印刷が行っている。電子写真感光体にCFの各色に対応した静電潜像を作り、着色樹脂を透明基板に転写することを原理としている。CF製造工程を大幅に短縮できている。

以上で図3に基づく顔料系のCF形成技術の解説を終

え、染料系のCF形成技術について簡単に述べる。顔料をレイリー散乱の領域まで微粒子化することで染料と同等の分光透過特性を得るまでになっているが、現実的には、明るくすれば色は薄くなり、濃くすると暗くなるという二律背反の特性を有していることは否定できない。これに対して、染料は色の明るさ、再現性は顔料より優れ、ガマットの拡大も期待できるため、耐熱性のある染料の登場が待たれている。また、現在LCDの用途が、従来のCRT代替やノートパソコン用としての展開から、液晶TV市場の急速な拡大、動画・写真対応携帯電話の普及拡大を考慮に入れると、液晶TV用途では現行TV並みの色の濃さや明るさ、コントラストを達成する必要がある、顔料から新規染料への転換も再度視野に入れながら見ていく必要がある。

一方、ガラス基板の大型化、薄型化が過去の成功の延長線上にあるのかという疑問も出てきている。そこで検討されるのが、代替材料としてのプラスチックフィルムの採用である。プラスチックフィルムの活用を前提とすると、プロセスの見直しとして、フレキシブル有機TFTの開発促進に期待が集まる。このように低温処理化の可能性が出てくると染料の再登場の可能性も高くなってくる。

以下に染料系のCF形成技術の概略を簡単に述べる。染色法はCFの最初に行われた技術であり、材料が安価な点が強みである。染料溶解法はポリイミド前駆体に染料を溶解させ、ポリイミド樹脂の網目構造に染料が取り込まれた形にして、耐熱性220℃を達成している。プロセスはエッチング法と同じである。インクジェット法は水性インクを紙のように吸収する層をガラス基板上に設けた方式でキヤノンが開発している。RGB同時に着色する方式を取っている。受像層はアクリル系共重合体であり、熱キュア型である。その他、蒸着技術や銀塩写真技術の転用、昇華転写技術を利用した方法などがある。

4. おわりに

21世紀になり、ディスプレイ業界ではフレキシブルディスプレイとかペーパーライクディスプレイというコンセプトが、現実味をもった開発課題となってきた。また、液晶ディスプレイの大幅な価格ダウンとともに、ガラス基板の大型化が急速に進み、これまでと同様の生産設備および方法ではディスプレイの価格ダウンに見合うだけのカラーフィルタのコストダウンの実現が難しくなっている。そのためにも、従来の生産方法とは異なる新たな生産方法を考え出す必要がある。さらに、ガラス基板からプラスチック基板へ素材が替わるだけでプロセスは大きく変革する。いかに、革新的な生産方法・設備とプロセスを開発していくかが、今後のカラーフィルタ製造技術での大きな課題である。