

## 【6】フレキシブル有機エレクトロニクス

### 6-1. フレキシブルの重要性

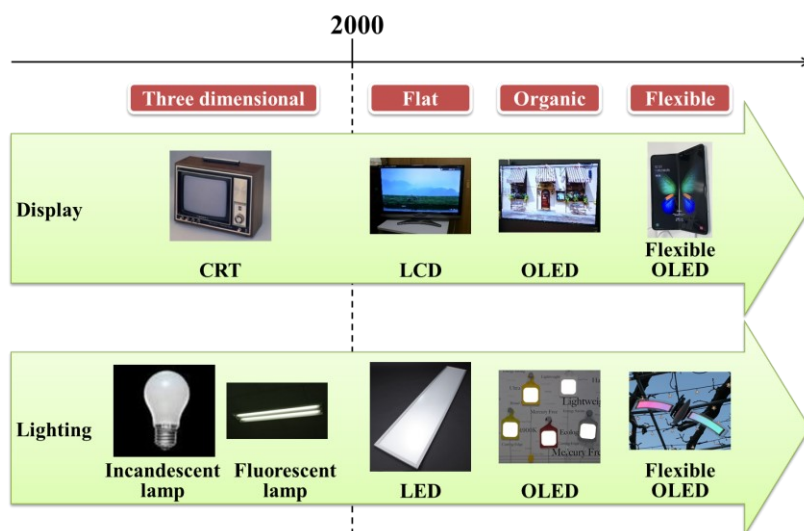
従来のディスプレイ、照明、センサ、トランジスタ、太陽電池などのデバイスは、ほとんどがガラス基板やシリコン基板などを用いたリジッドなデバイスであった。

これに対して、近年、フレキシブルな基板を用いたフレキシブルデバイス技術が急速に進展している。スマートフォンの表示ディスプレイでは、フレキシブル有機 EL ディスプレイが主流になりつつあり、今後、さまざまな用途でフレキシブル化が進展すると期待される。

フレキシブル化には、いくつかのメリットがある。まず、従来の平面デバイスと異なる形状が可能となり、商品性、デザイン性が飛躍的に向上する点が挙げられる。フレキシブル化のためには、基板が曲がるようにする必要があるが、これに伴って、基板が軽く、薄くなる。また、フレキシブル基板として、プラスチックやステンレスを用いた場合には、デバイスが割れないという特長も付与できる。加えて、フレキシブル基板は、ロール to ロール (R2R) 生産が可能であり、生産性の革新を起こすことができる。

これらの特長により、フレキシブル化は新しい商品の創出、新しい用途展開、生産性向上・コストダウンなどを可能し、これらが事業拡大、事業競争力の強化へと繋がってゆく。

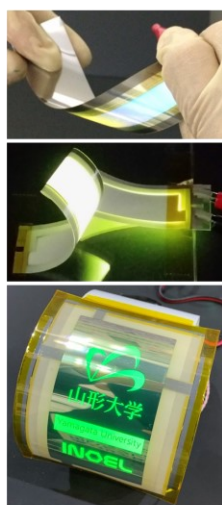
#### ディスプレイと照明の世代交代



#### フレキシブル化のメリット

- ✓ 薄い
- ✓ 軽い
- ✓ デザインフリー(曲がる、曲面可能)
- ✓ 生産方式の革新(ロールtoロール)
- ✓ 商品の特徴づけ

- ・今までにない新しい商品の創出
- ・今までにない新しい使い方
- ・事業競争力の強化
- ・生産性向上/コストダウン



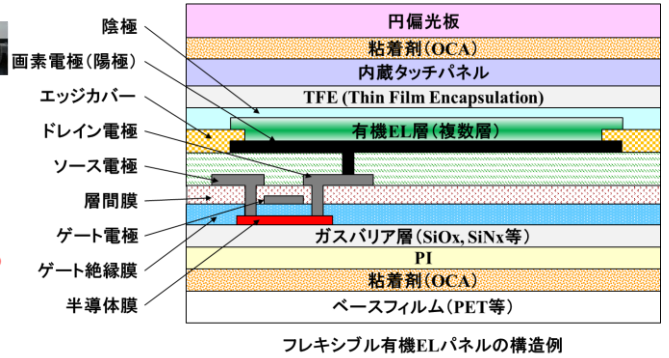
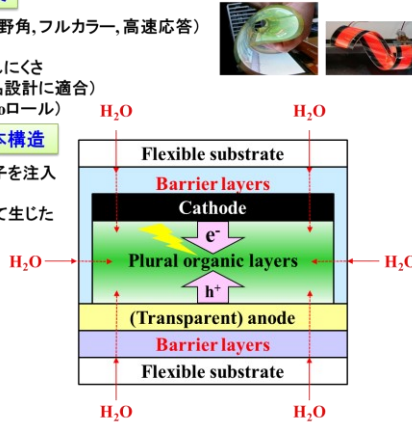
## 6-2. フレキシブル有機 EL の構造と製造プロセス

### フレキシブル有機ELの特長

- ✓高画質(高コントラスト, 広視野角, フルカラー, 高速応答)
- ✓低消費電力
- ✓薄さ(<0.15mm) / 軽さ / 割れにくさ
- ✓デザイン自由度(多様な商品設計に適合)
- ✓生産革新の可能性(ロールtoロール)

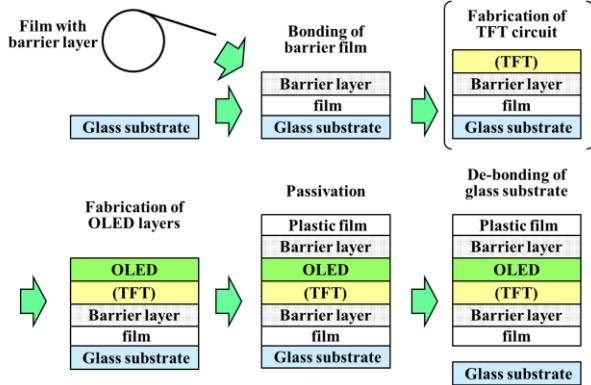
### フレキシブル有機ELの基本構造

- ✓陽極から正孔, 陰極から電子を注入する電荷注入型デバイス
- ✓正孔と電子の再結合によって生じた励起有機分子が発光
- ✓全固体デバイス
- ✓水分の遮断が必須



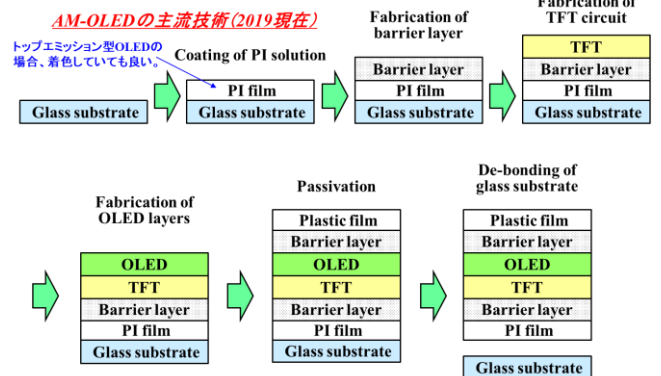
### Bonding / De-bonding method

バリアフィルムをガラス基板に貼り付け、その上にデバイスを作製し、最後にガラス基板を剥がす。

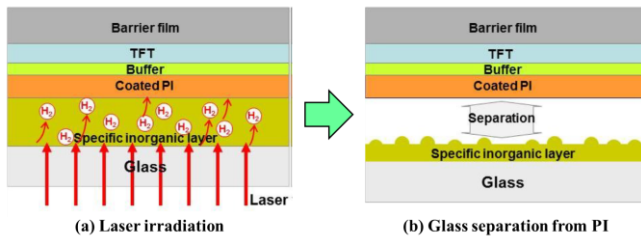


### Coating / De-bonding method

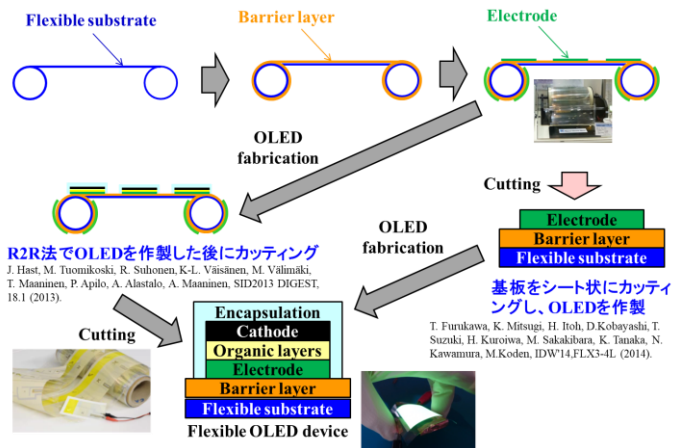
ガラス基板上にポリイミド(PI)などを塗布形成し、その上にデバイスを作製し、最後にガラス基板を剥がす。



### レーザーリフトオフ(LLO: Laser Lift-off)



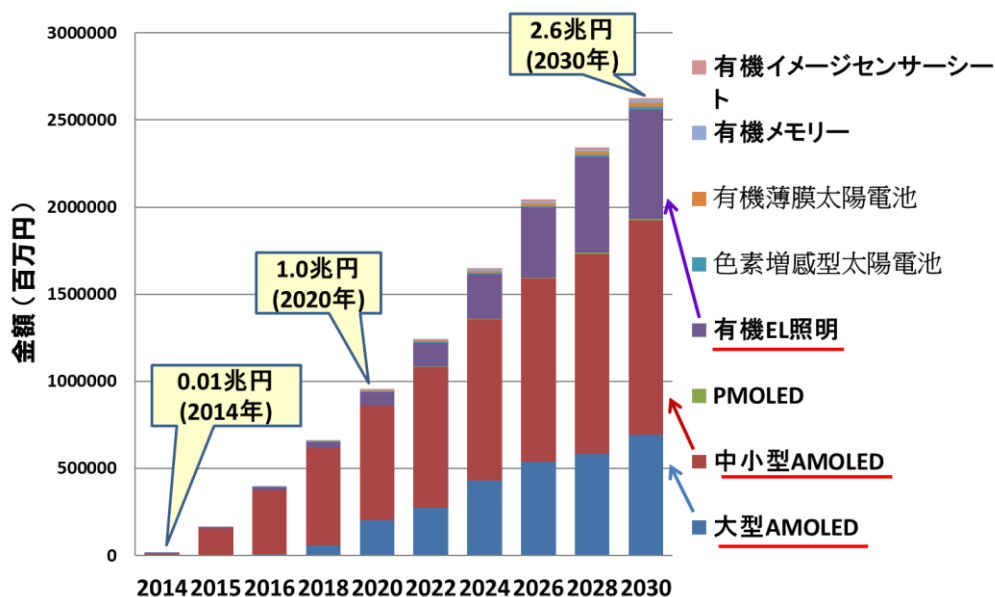
### R2R fabrication of barrier layer and electrode for OLEDs



R2R法でOLEDを作製した後にカッティング  
J. Hest, M. Tuomikoski, R. Suhoonen, K.-L. Väisänen, M. Välimäki, T. Manninen, P. Ajilo, A. Alastalo, A. Manninen, SID2013 DIGEST, 18.1 (2013).

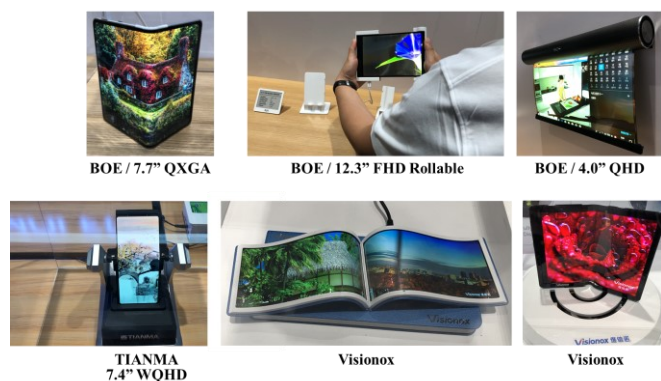
T. Furukawa, K. Mitsugi, H. Itoh, D. Kobayashi, T. Suzuki, H. Kuroiwa, M. Sakakibara, K. Tanaka, N. Kawamura, M. Koden, IDW'14, FLX3-4L (2014).

### 6-3. フレキシブル有機 EL の事業動向

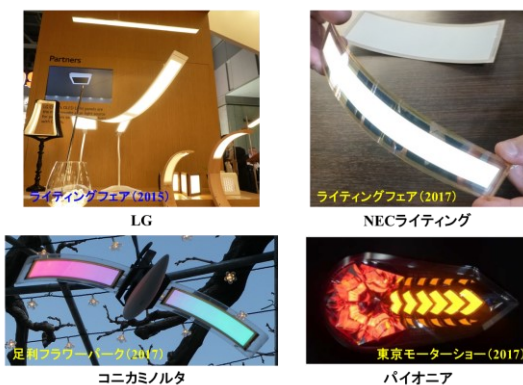


出典:2015有機&プリントエレクトロニクスの将来展望(富士カメラ総研)

#### フレキシブル有機ELディスプレイ試作品(SID2019)



#### フレキシブル有機EL照明



### 6-4. フレキシブル基板技術

フレキシブル基板としては、超薄板ガラス、ステンレス箔、プラスチックフィルムが有力である。ガラスやステンレスは硬いというイメージがあるが、厚さ50μm程度に薄くすることで曲げられるようになる。これら3つの基板にはそれぞれ長所・短所がある。これらを表1にまとめる。

表1. フレキシブル基板の比較

	ガラス	ステンレス箔	バリアフィルム
比重	~2.5	~7.8	~1.4
耐熱性	高い	高い	低い
表面平滑性	◎	課題あり	課題あり
ハンドリング	割れやすい	導電性が課題	
伸び縮み	小	小	大
水分バリア性	◎	◎	×



### 6-4-a) 超薄板ガラス(Ultra-thin glass)


**超薄板ガラス(Ultra-thin glass)**

**特長**


- ✓ ガスバリア性
- ✓ 表面平坦性
- ✓ 寸法安定性
- ✓ 耐熱性、耐薬品性

**課題**

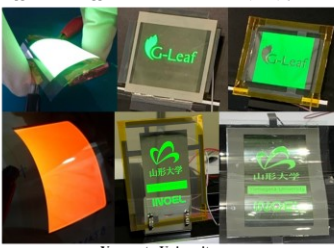
- ✓ ハンドリング (割れやすい)



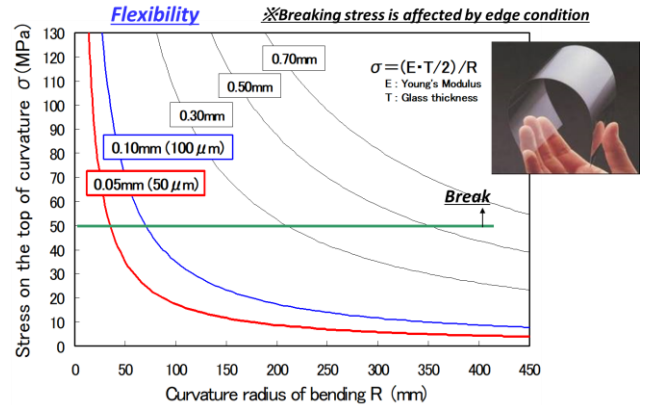
[supplied from Nippon Electric Glass Co., Ltd. (NEG)]



NEC Lighting  
Lighting Fair (March 2015)



Yamagata University  
(Collaborating with Nippon Electric Glass, etc.)



#### R2R fabrication process of TCO layer with a certain pattern

Ultra-thin glass (TCO: Transparent Conducting Oxide)

Wet cleaning - R2R wet cleaning equipment (FEBACS)

TCO deposition - R2R vacuum deposition equipment (KOBELCO)

Wet cleaning - R2R wet cleaning equipment (FEBACS)

Etching paste  
Etching paste printing / Heating (150~170°C) - R2R screen printing equipment (SERIA)  
*No photolithography*

Etching & wet cleaning - R2R wet cleaning equipment (FEBACS)

Cutting → (Annealing with heat or photo) → OLED device

[ T. Furukawa, M. Koden, IEICE Trans. Electron, E100-C (2017)949 ]

◆ 基板サイズ: 92mm × 92mm  
◆ 発光エリア: 75mm × 75mm  
◆ 有機ELパネル作製: NECライティング(現ホタルクス) Lighting Fair (March 2015)

\*UniversalPHOLED® Phosphorescent OLED Technology and Materials from Universal Display Corporation

[1] 超薄板ガラス: 日本電気硝子製  
\*Ref. K. Fujiwara, New Glass, 24, 90 (2009).

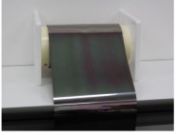
[2] 高機能ステンレス箔: 新日鐵住金グループ(現日本製鉄)製  
\*Ref. N. Yamada, T. Ogura, S. Ito, and K. Nose, IDW'11, FLX6-2 (2011).

M. Koden, H. Kobayashi, T. Moriya, N. Kawamura, T. Furukawa, H. Nakada, IDW'14, FLX6/FMC6-1 (2014).

### 6-4-b) 高機能ステンレス箔(Stainless steel foil)

**ステンレス箔の特長**

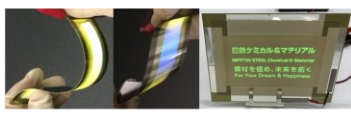
- ✓ 耐熱性
- ✓ 寸法安定性
- ✓ ガスバリア性
- ✓ 形状安定性・・・割れない、腰がある
- ✓ 耐プロセス安定性



日本製鉄グループ製  
高機能ステンレス箔  
N. Yamada, S. Yamaguchi, J. Nakatsuka, Y. Hagiwara, K. Uemura, IDW'15, FMC3-1 (2015).

**ステンレス箔の課題**

- ✓ 表面平坦性
- ✓ 導電性



日本製鉄グループと山形大学で共同開発した  
フレキシブル有機EL

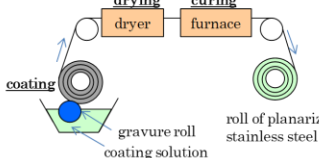
**技術の特長**

■ 日本製鉄グループ製高機能ステンレス箔の特長

- ・厚さ50μm
- ・優れた表面平坦性 (Ra~0.6nm)
- ・優れた耐熱性、プロセス耐性
- ・高いガスバリア性

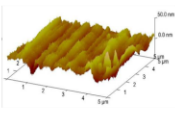
<平坦化膜> (日本製鉄グループ)

- ✓ 塗布型材料 (ゾルゲル材料)  
organoalkoxysilane/alkoxysilane より作製
- ✓ ロールtoロール (R2R) 工程で作製
- ✓ 膜厚~3μm
- ✓ 耐熱性: 400°C以上

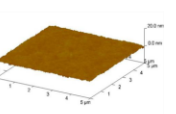


N. Yamada, S. Yamaguchi, J. Nakatsuka, Y. Hagiwara, K. Uemura, IDW'15, FMC3-1 (2015).

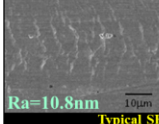
Ra: 6.2nm  
Rmax: 78.2nm



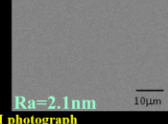
Ra: 0.6nm  
Rmax: 8.9nm



Ra=10.8nm




Ra=2.1nm




Typical SEM photograph

Coating film (HP, 3nm)



Stainless steel foil (NSSC190, 50mm)



### 6-4-c) バリアフィルム (Barrier film)

\*C(=O)c1ccc(cc1)C(=O)OCCO\*  
 PET (polyethylene terephthalate)

\*C(=O)c1ccc2ccccc2c1C(=O)OCCO\*  
 PEN (polyethylene naphthalate)

\*C(=O)c1ccc(cc1)C(C)(C)c2ccc(cc2)OC(=O)\*  
 PC (polycarbonate)

\*C(=O)c1ccc(cc1)S(=O)(=O)c2ccc(cc2)O\*  
 PES (polyethersulphone)

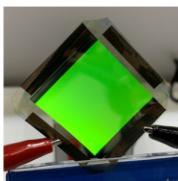
\*C1=CC=C(C=C1)C2=CC=CC=C2C1  
 COP (cyclic olefin polymer)

\*N(C(=O)R)C(=O)N(R)C(=O)\*  
 PI (polyimide)

### 耐熱フィルムEXPEEK®を用いたフレキシブル有機EL

#### 倉敷紡績製耐熱フィルムEXPEEKの特長

- ・二軸同時延伸PEEK(ポリエーテルエーテルケトン)樹脂フィルム
- ・ポリイミドと同等の耐熱性(Tg~300°C)
- ・良好な耐薬品性
- ・着色・曇りを抑えた良好な視認性(透明性の高さ)
- ・低熱収縮
- ・良好な表面平滑性(凝集力が高く滑り性が良いため、易滑処理不要)

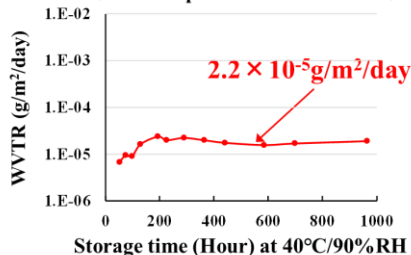


「JFlex2020展」(2020.1 / 東京ビッグサイト)

#### 主な技術成果

■ 高いガスバリア性:  $10^{-5}$ g/m<sup>2</sup>/day台のWVTR (Water Vapor Transmission Rate)

Barrier film
Adhesive barrier resin
Al (1μm)
Ca (100nm)
SiNx (Sputtering) 100nm
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (ALD) 90nm
SiNx (Sputtering) 100nm
EXPEEK (25μm)

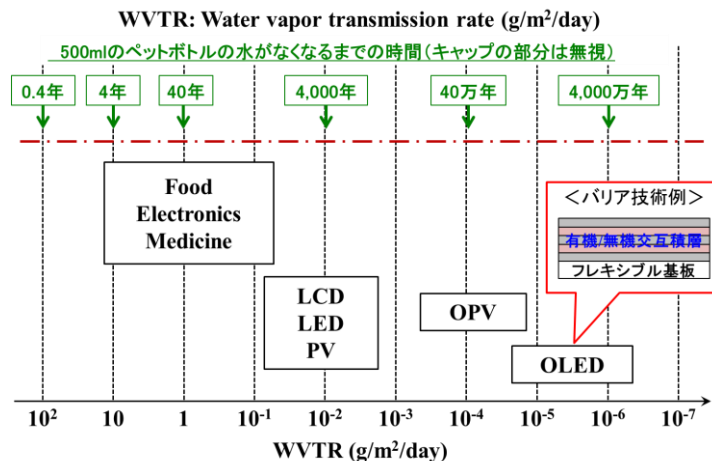


### 6-5. バリア技術・フレキシブル封止技術

#### 6-5-a) ガスバリア性評価

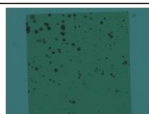
フレキシブル有機 EL は水分などのガス侵入によって容易にデバイスが劣化するので、非常に高いガスバリア性が求められる。

ガスバリア性の評価において、頻繁に用いられる指標が WVTR (Water Vapor Transmission Rate) である。



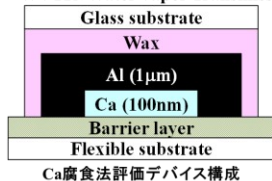
### バリア性評価法

	有機ELデバイス	Ca腐食法	差圧法
概要	有機ELデバイスで、非発光部分の経時変化を観察	Ca層を形成したサンプルが水分によって劣化する状況を可視化し評価	評価装置にサンプルをセットし、透過してくるガスの量を検出してWVTR値を算出
長所	・実際の有機ELデバイスの劣化として評価できる。	・WVTR値を算出できる ・劣化状況の可視化できるので、劣化原因の推定に活用できる。 ・Ca劣化と有機ELの劣化が酷似。 ・多数サンプルの平行評価が可能。	・WVTR値を算出できる ・評価用サンプル作製不要(サンプルを装置にセットするだけ)。 ・光透過率の低いサンプルも評価可能。
短所	・他の攪乱要因(デバイス内からのアウトガスの影響など)に注意が必要。 ・WVTRの算出が困難。	・評価サンプルの作製が必要。 ・光透過率の低いサンプルは評価が困難。 ・水分以外のガスの影響を評価できない。	・サンプルに大きな欠陥(傷、ピンホールなど)があると、その箇所からの水分透過でWVTRが決まってしまう、適切な技術評価ができない。 ・多数サンプルの平行評価が困難(現行装置)。 ・劣化が可視化できないため、WVTR値しか得られない。

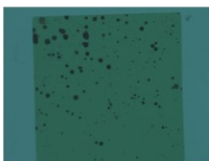


### Ca腐食法 (Ca corrosion method)

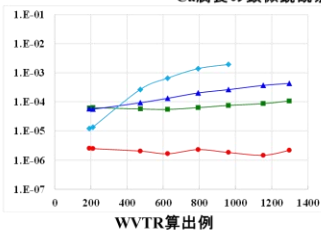
- ✓ 基板上に形成したCaが水分によって変化する様子を観察
- ・特に、バリア膜の欠陥の評価などに有効
- ✓ Ca腐食法での結果に基づき、WVTR値を算出
- ・WVTR: Water Vapor Transmission Rate (g/m<sup>2</sup>/day)



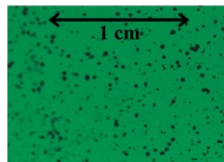
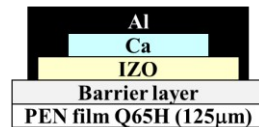
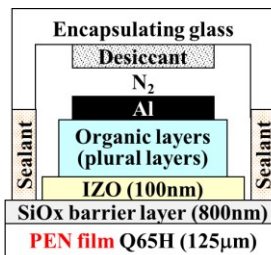
Ca腐食測定装置



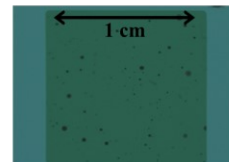
Ca腐食の顕微鏡観察例



(参考文献)  
G. Nisato, M. Kuilder, P. Bouten, L. Moro, O. Philips, N. Rutherford, SID 03 DIGEST, P-88 (2003).



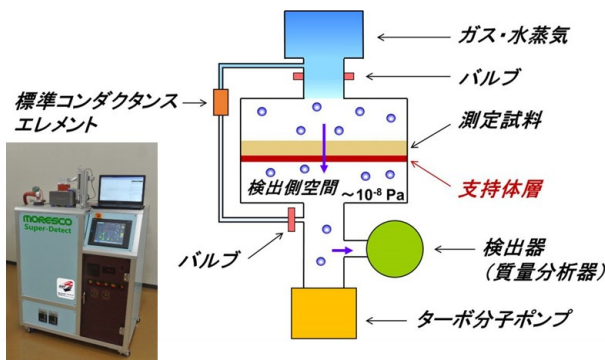
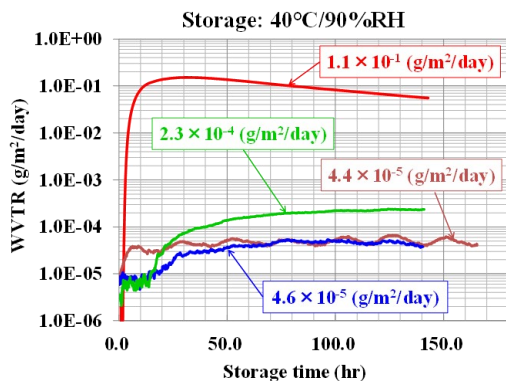
Dark spots of OLED (after 560hours)



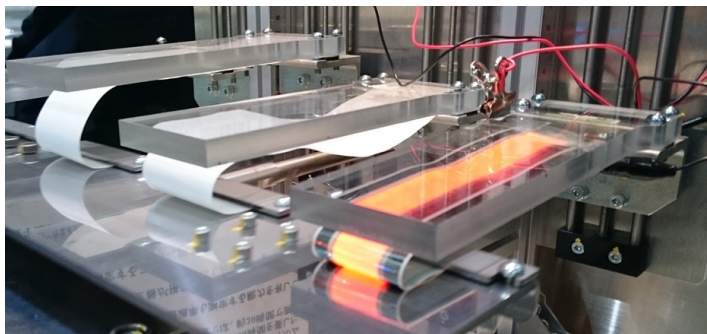
Ca test (after 595 hours)

<Storage tests under 40 °C and 90 %RH>

[ K. Taira, T. Furukawa, N. Kawamura, M. Koden, T. Takahashi, IDW'17, FLXp1-8L (2017). ]



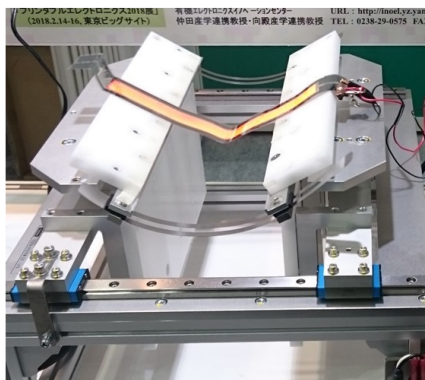
WVTR測定装置 (MA)



U字折り返し試験機



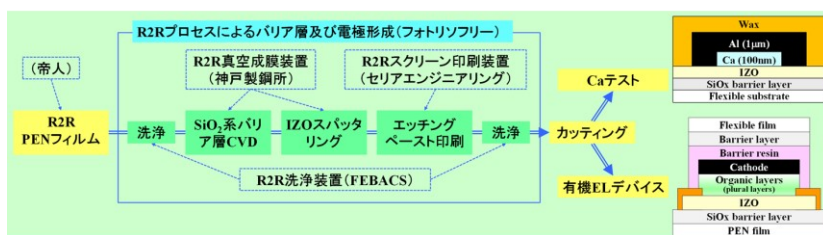
両方向屈曲



V字折り曲げ

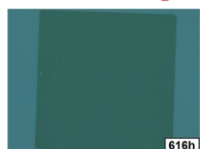
6-5-b) 無機ガスバリア層形成技術

ロールtoロール(R2R)方式でフィルム上に単層バリア層と透明電極層を形成



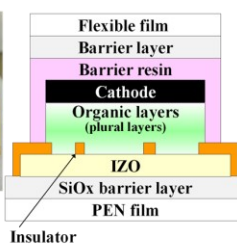
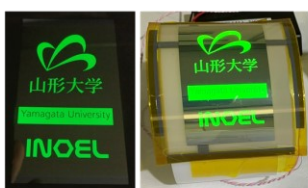
■ 高いガスバリア:

WVTR:  $6.3 \times 10^{-6} \text{g/m}^2/\text{day}$



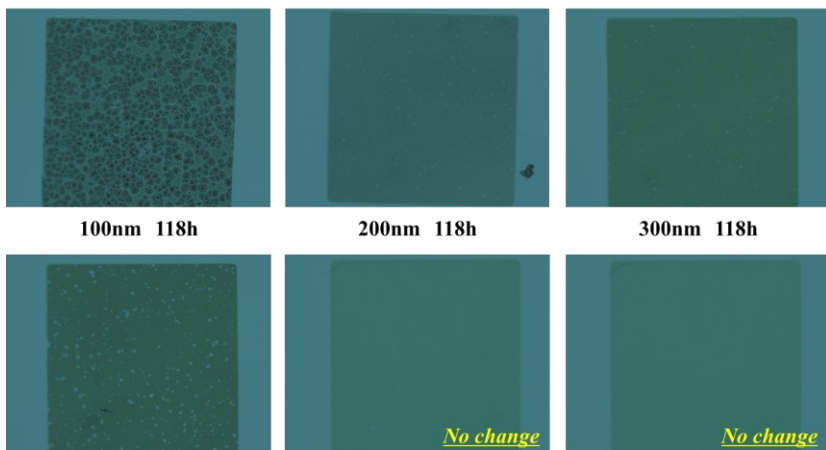
Caテスト(バリア層厚さ:720nm)  
40°C/90%RHで616時間保存後

■ フレキシブル有機ELデバイス



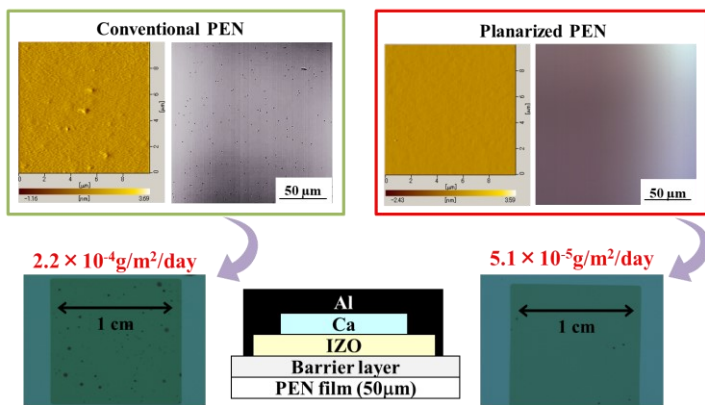
[ K. Taira, T. Furukawa, N. Kawamura, M. Koden, T. Takahashi, *IDW'17*, FLXp1-8L (2017). ]

**Sample: SiO<sub>x</sub> (Xnm) by R2R CVD on PEN (40°C/90%RH)**



〔 T. Furukawa, N. Kawamura, M. Kodon, H. Itoh, H. Kuroiwa, K. Nagai, LOPEC (2017). 〕

**Influence of planarization layer on barrier properties**



Ca corrosion images after 595 hours. The thickness of the barrier layer: 800nm  
 Ca corrosion images after 640 hours. The thickness of the barrier layer: 600nm

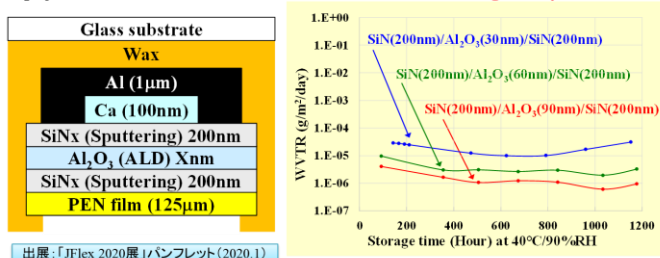
※IZO:100nm (with patterning)  
 〔 K. Taira, T. Furukawa, N. Kawamura, M. Kodon, T. Takahashi, IDW'17 (2017) FLXp1-8L. 〕

**6-5-c) 積層ガスバリア技術**

**ALD膜を用いたバリア層**

- 技術の特長
  - ALD法による高い被覆性を有するバリア層形成
  - SiNxバリア膜との積層による高いバリア性:  
WVTR: 10<sup>-6</sup>g/m<sup>2</sup>/day台 (WVTR: Water Vapor Transmission Rate)
  - 装置: 株式会社菅製作所製ALD装置 (基板サイズ: 10cm角)
- 主な技術成果
  - ALD装置 (株式会社菅製作所製)

■Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>膜 (ALD法) と SiNx膜 (スパッタ法) との積層バリア膜: 10<sup>-6</sup>g/m<sup>2</sup>/day台の WVTR



出展: 「JFlex 2020展」/パンフレット (2020.1)

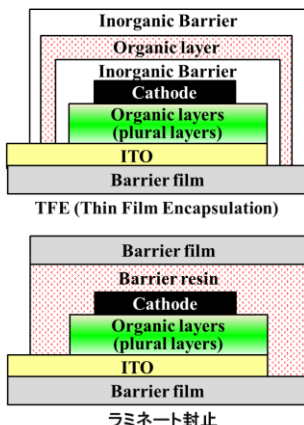
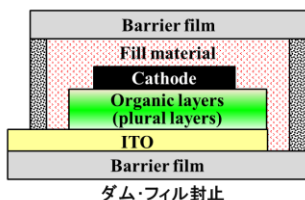


### 6-5-d) フレキシブル封止技術

#### フレキシブル有機EL封止技術

##### 求められる要件(典型的なケース)

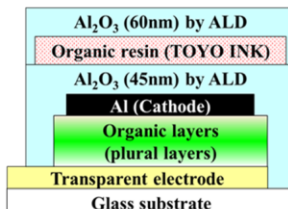
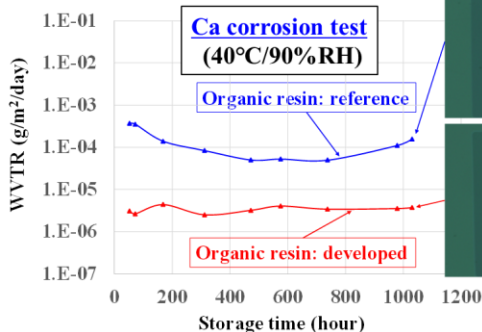
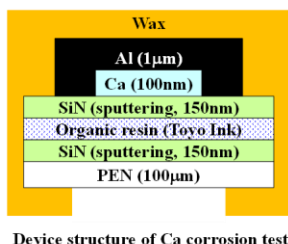
- ✓封止性能(水蒸気バリア性)
- ✓光透過性[\*]
- ✓薄さ
- ✓フレキシブル性
- ✓曲げ耐性
- ✓コスト



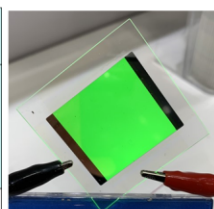
◆基板サイズ: 92mm × 92mm  
◆発光エリア: 75mm × 75mm  
◆有機ELパネル作製: NECライティング(現ホタルクス) Lighting Friar (March 2015)  
\*UniversalPHOLED® Phosphorescent OLED Technology and Materials from Universal Display Corporation  
[1] 超薄板ガラス: 日本電気硝子製  
\*Ref. K. Fujiwara, New Glass, 24, 90 (2009).  
[2] 高性能ステンレス箔: 新日鐵住金グループ(現日本製鉄)製  
\*Ref. N. Yamada, T. Ogura, S. Ito, and K. Nose, IDW'11, FLX6-2 (2011).  
M. Kodon, H. Kobayashi, T. Moriya, N. Kawamura, T. Furukawa, H. Nakada, IDW'14, FLX6/FMC6-1 (2014).

### 薄膜封止 TFE (Thin Film Encapsulation)

#### 東洋インキ製薄膜封止TFE用「無溶剤型UV-IJ樹脂インキ」



山形大学:「JFlex2020展」(2020.1/東京ビッグサイト)

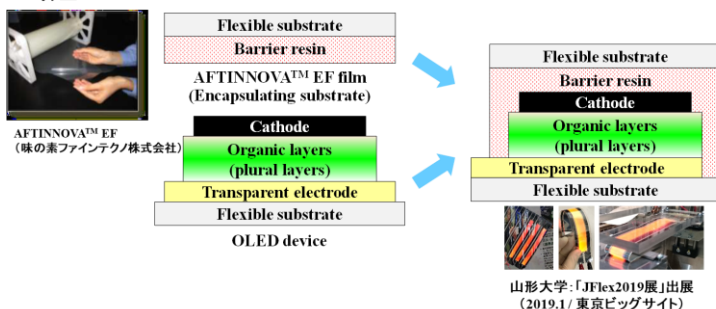


- 共同研究  
東洋インキSCホールディングス株式会社  
関連プログラム
- 山形大学フレキシブルエレクトロニクス産学連携コンソーシアム(YU-FLEC) [2018/1~2023/3]
  - 文部科学省:オープンイノベーション機構の整備事業「山形大学/オープンイノベーション機構」[2018年度~2022年度]
- 成果発表
- 山形大学:「JFlex2020展」,「JFlex2019展」

ラミネート封止を用いたフレキシブル有機EL(味の素ファインテックとの連携)

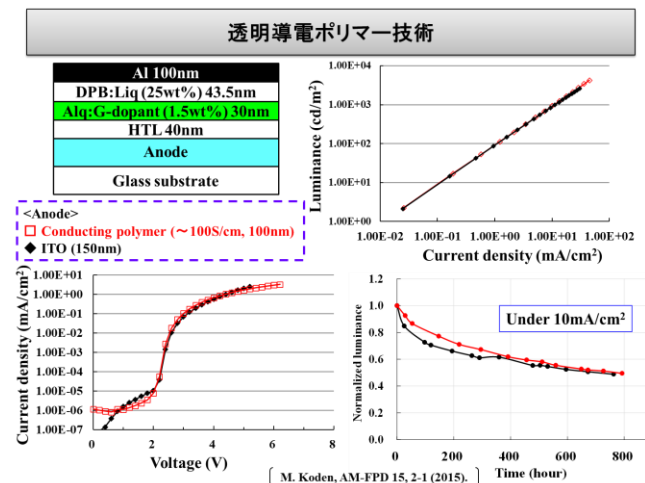
#### 技術の特長

- デバイス側面からの水分侵入(サイドリーク)を阻止する樹脂技術を用いた封止基板 AFTINNOVA™ EF (味の素株式会社/味の素ファインテック株式会社)
- シンプルなデバイス構成、簡便なプロセス
- AFTINNOVA™ EFによる応力緩和効果によりフレキシブル有機EL屈曲時の欠陥発生を抑制

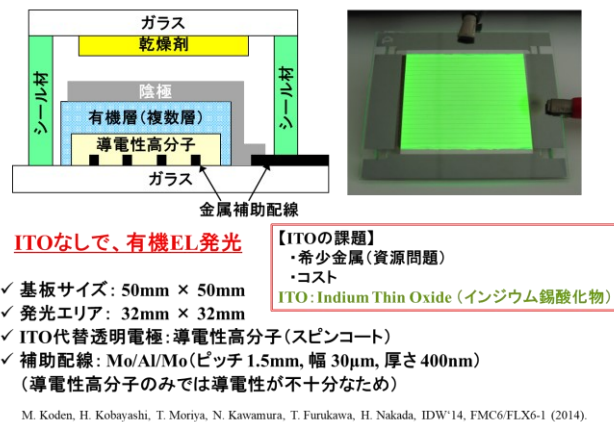


## 6-6. 電極技術

### 6-6-a) 透明導電ポリマー



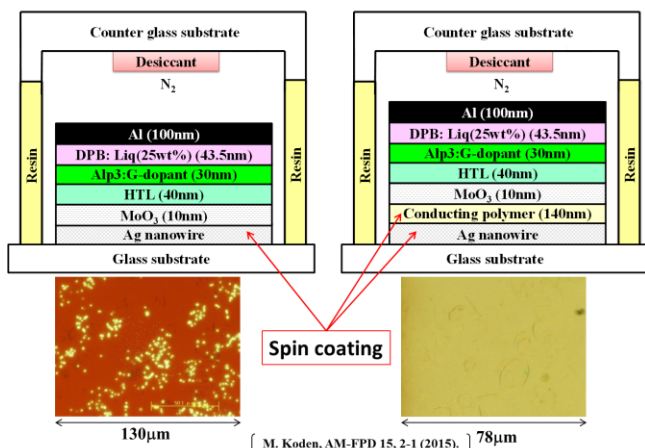
### 導電性高分子を透明電極として用いた有機ELパネル



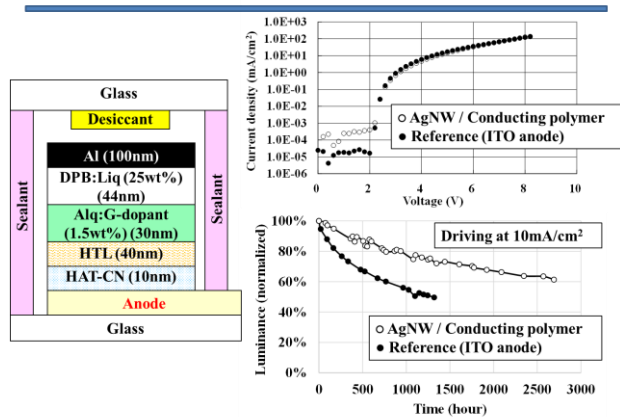
### 6-6-b) 銀ナノワイヤー(AgNW)

銀ナノワイヤー(AgNW)は、太さがナノスケールのワイヤ状の銀であり、塗布によって高い光透過性を有する導電膜を形成できる。

#### 銀ナノワイヤー(AgNW)電極を用いたOLED

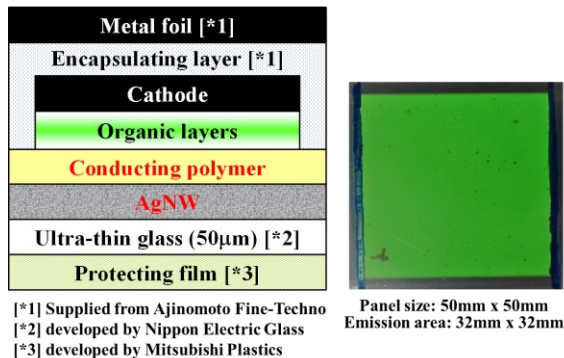


#### OLED with AgNW & conducting polymer



#### Flexible OLED with AgNW & conducting polymer

**Flexible OLED without ITO was successfully fabricated.**



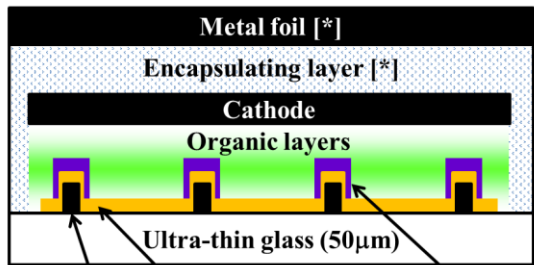
6-6-c) ロール to ロール(R2R)印刷技術を用いた non-ITO 電極

**印刷型Non-ITO電極技術**

**Flexible OLED without ITO was successfully fabricated.**

- ✓ Substrate size : 50mm X 50mm
- ✓ Emission area : 32mm X 32mm

- Collaboration by:
- ✓ Yamagata University
  - ✓ Dai Nippon Printing
  - ✓ DIC
  - ✓ Komori Machinery
  - ✓ SERIA
  - ✓ Taiyo Kikai



[\*] supplied from Ajinomoto Fine-Techno



T. Furukawa, N. Kawamura, M. Sakakibara, M. Koden, International Display Manufacturing Conference (IDMC'15), S4-4 (2015). [招待講演] (台湾) "Printed Transparent Electrode for OLED Lighting Devices"