

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2019-96488

(P2019-96488A)

(43) 公開日 令和1年6月20日 (2019.6.20)

|                                       |               |             |
|---------------------------------------|---------------|-------------|
| (51) Int.Cl.                          | F I           | テーマコード (参考) |
| <b>H05B 33/04 (2006.01)</b>           | H05B 33/04    | 3K107       |
| <b>H01L 51/50 (2006.01)</b>           | H05B 33/14    | 5C094       |
| <b>H01L 27/32 (2006.01)</b>           | H01L 27/32    | 5G435       |
| <b>H05B 33/02 (2006.01)</b>           | H05B 33/02    |             |
| <b>G09F 9/30 (2006.01)</b>            | G09F 9/30 365 |             |
| 審査請求 未請求 請求項の数 10 O L (全 12 頁) 最終頁に続く |               |             |

(21) 出願番号 特願2017-225209 (P2017-225209)  
 (22) 出願日 平成29年11月22日 (2017.11.22)

(71) 出願人 717007365  
 平井 彰  
 千葉県柏市豊四季280番地48  
 (72) 発明者 平井 彰  
 千葉県柏市豊四季280-48  
 Fターム (参考) 3K107 AA01 BB01 CC23 CC41 CC43  
 CC45 DD17 EE26 EE45 EE48  
 EE49 EE50  
 5C094 AA43 BA27 DA07 DA13 ED14  
 FB01 FB02  
 5G435 AA17 BB05 KK05

(54) 【発明の名称】 ガスバリアフィルムとその製造方法、ならびに当該フィルムを使用したディスプレイ

(57) 【要約】

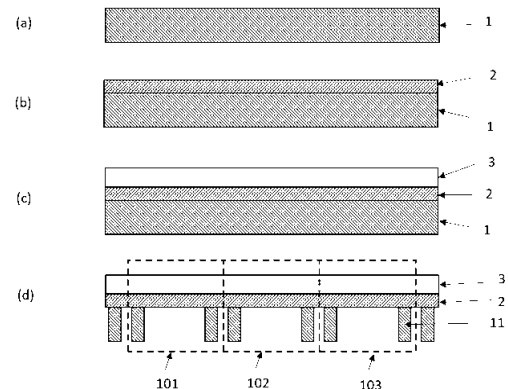
【課題】

有機発光素子によるディスプレイ前面を保護する透明バリア層と、発光素子基板の周辺と封止可能な構造を有し、フレキシブルディスプレイが可能なガスバリアフィルムを提供する。

【解決手段】

金属フィルム上に薄膜ガスバリア層を形成し、当該バリア層上に透明ポリマーフィルムを積層したのち、金属フィルムを封止形状部分、および構造上、製造上に必要な個所以外の部分をエッチングより除去してなるディスプレイ用ガスバリアフィルム。

【選択図】 図1



## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

第 1 構成材料の金属箔上の片面に第 2 構成材料の薄膜ガスバリア膜を形成し、さらに当該ガスバリア膜上に第 3 構成材料の透明ポリマーフィルムを積層した構造であって、対向するディスプレイ基板と接合封止する第 1 構成材料の金属箔の接合封止部分、および必要な個所以外の部分を除去してなるディスプレイ用ガスバリアフィルムとその製造方法、および当該ガスバリアフィルムを使用したディスプレイ。

## 【請求項 2】

第 1 構成材料の接合封止部のパターンを、同心円的な形状で複数としたことを特徴とした請求項 1 に示すガスバリアフィルム。

10

## 【請求項 3】

対向する発光素子基板の画面領域の非発光部に合わせて、第 1 構成材料である金属箔を残存させてエッチングしてなることを特徴とする請求項 1 および請求項 2 に示すガスバリアフィルム、および当該ガスバリアフィルムを使用したディスプレイ。

## 【請求項 4】

第 2 構成材料のガスバリア層は、化学気相成長法による窒化ケイ素 (SiN)、もしくは酸化ケイ素 (SiO<sub>2</sub>)、スパッタリング成膜による SiO<sub>2</sub>、もしくはパーヒドロポリシラザン (PHPS) およびその誘導体等からの分解による酸窒化ケイ素 (SiN<sub>x</sub>O<sub>y</sub>)、もしくは金属酸化物系であり、それらの積層複合体、もしくは有機成分を含む薄膜ポリマーとの多層構造体であることを特徴とする請求項 1～請求項 3 に示すガスバリアフィルム。

20

## 【請求項 5】

第 1 構成材料の金属箔が銅、もしくは銅合金であり、第 2 構成材料のガスバリア膜間との接合を、モリブデン合金薄膜、チオール系化合物、CVD-SiO<sub>2</sub> の全て、もしくは一部を使用したことを特徴とする請求項 1 から請求項 4 に示すガスバリアフィルム。

## 【請求項 6】

第 2 構成材料のガスバリア膜と第 3 構成材料の透明ポリマーとの接合を、CVD-SiO<sub>2</sub>、チオール系シランカップリング剤を使用したことを特徴とする請求項 1 から請求項 5 に示すガスバリアフィルム。

## 【請求項 7】

第 3 構成材料の透明ポリマーに位相差素子、偏光子の光学機能を含むことを特徴とする請求項 1 から請求項 6 に示すガスバリアフィルム。

30

## 【請求項 8】

請求項 1～7 に示すガスバリアフィルムであって、第 1 構成材料である封止形状にパターンニングした金属箔の最上面が銅、もしくはモリブデン、もしくは金、もしくはスズ系合金、もしくはそれらの積層体であり、発光基板の封止部分の最上層がケイ素系薄膜、もしくはスズ系金属薄膜、もしくは銅箔、もしくはモリブデン薄膜、もしくは金薄膜であって、相互の表面にトリアジン系分子接合剤を化学吸着せしめ、加熱圧着することで接合封止したことを特徴とする有機 EL ディスプレイ。

## 【請求項 9】

請求項 1～7 に示すガスバリアフィルムであって、第 1 構成材料である封止形状にパターンニングした金属箔の最上面が銅、もしくは金、もしくはスズ系合金、もしくはそれらの積層体であり、発光基板の封止部分の最上層がスズ系金属薄膜、もしくは銅箔、もしくは金薄膜であって、相互の表面をスズ系はんだによりはんだ付けで接合封止したことを特徴とする有機 EL ディスプレイ。

40

## 【請求項 10】

請求項 1～7 に示すガスバリアフィルムであって、第 1 構成材料である封止形状にパターンニングした金属箔の最上面が金、もしくはスズ系合金、もしくはそれらの積層体であり、発光基板の封止部分の最上層がスズ系金属薄膜、もしくは銅箔、もしくは金薄膜であって、相互を加熱圧着による原子拡散接合封止したことを特徴とする有機 EL ディスプレイ。

## 【発明の詳細な説明】

50

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、透明ガスバリア層、当該バリア層と強固に接合する透明ポリマーフィルムとディスプレイ基板との封止を行うパターン化された金属箔層から構成されるガスバリアフィルムの構造と製造方法、当該ガスバリアフィルムを使用したディスプレイに関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

有機EL発光素子を使用したディスプレイは、外部からの水分や酸素の侵入による特性劣化を防止するために、全方位を気密封止することが重要である。画像表示側は透明である必要があることからガラス基板を使用し、周辺の封止は低軟化点ガラスフリットを使用するというプラズマディスプレイ（Plasma Display Panel：PDP）の構造を転用することによって、有機EL発光素子が長寿命化された。

10

## 【0003】

また、折り曲げができるフレキシブルディスプレイを実現するために、発光素子基板をフィルム化し、画像表示部分が無機薄膜層と有機薄膜層を積層する薄膜封止構造も採用されている。薄膜封止構造は、ガスバリア機能を有する無機薄膜を複数回成膜し、その間隙に応力緩和等のための有機膜を積層した構造であり、これらは真空プロセスで行なわれる。

さらに、有機化合物である発光素子上にバリア膜を形成するために、膜形成時の熱的影響を考慮しなければならない。また、周辺の封止部分は無機薄膜のみにする必要がある、各薄膜はパターン成膜が必要であることから、製造プロセスが非常に複雑である。

20

## 【0004】

一方、透明ポリマーフィルム上にシリコン系薄膜層を連続的に形成した構造を中心とするガスバリア膜が発表されており、水蒸気透過率（Water vapor transmitting rate：WVTR）が有機EL用として必要といわれる $10^{-6}\text{g/m}^2 \cdot \text{day}$ をクリアするものや、フレキシビリティに優れた特性を有するガスバリアフィルムが発表されている。これらには、均一な品質を確保する点で有利なロール状フィルムを使用して連続的な製造プロセスが採用されている。

## 【先行技術文献】

## 【特許文献】

30

## 【0005】

【特許文献1】W02011-07436（Japan Pat.5761030）

【特許文献2】特許出願2016-175161

【特許文献3】特開2008-207221（Japan Pat.5070557）

## 【発明の概要】

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0006】

ガスバリア膜はシリコン系の薄膜が多く使用されており、成膜プロセスとしては化学気相成長法（Chemical vapor deposition：CVD）による窒化ケイ素（SiN）や二酸化ケイ素（SiO<sub>2</sub>）、スパッタリング成膜（Sputtering deposition：SPD）によるSiO<sub>2</sub>薄膜などである。SiNは正式にはSi<sub>3</sub>N<sub>4</sub>と表現されるが、現実的には成膜条件によってSiN<sub>x</sub>となるために、SiNという表現とする。同様にSiO<sub>2</sub>もプロセス条件によってSiO<sub>y</sub>（ $y \leq 2$ ）となるが、SiO<sub>2</sub>と記載する。

40

また、近年特許文献1に示すように、SiH<sub>2</sub>NHで示されるSiO<sub>2</sub>前駆体パーヒドロポリシラザン（Per-hydro-poly-silazane：PHPS）のワニスフィルム上への塗布し、当該化合物の分解によって得られる酸窒化ケイ素（SiN<sub>x</sub>O<sub>y</sub>）膜や、メチルシロキサンやフルオロアルキルなどを導入して塗布性やフレキシビリティを改善したガスバリア膜などが提案されており、有機EL照明などに使用されている。また、酸化アルミニウムなどを使用したガスバリア技術なども提案されており、有機ELディスプレイの画像表面側に対するガスバリア技術は大きく進展している。

50

## 【0007】

しかし、フレキシブルディスプレイを実現するには、画像表面側だけのバリア性だけではなく全方位のバリア性が必要であり、特にガスバリアフィルムと有機EL発光素子基板との接合封止部分のバリア性が不可欠である。また、ディスプレイにおいては、画像表示部分と外周部の寸法は1mm以下である液晶ディスプレイと同様の狭額縁であることが要求される。さらに、有機EL素子基板は、発光素子部と駆動回路部があり、一般的には数 $\mu\text{m}$ の高さがある。

PDP技術を転用した封止構造ではガラスフリットの厚さを、有機EL素子の高さ以上にすることで解決しているが、当該技術はガラスフリットの軟化温度が400℃以上であり、ガラス基板を前提としていることから、フレキシブルディスプレイでは使用できない。

10

## 【0008】

また、薄膜封止構造では、発光素子部と駆動回路部の全体をガスバリア膜で被覆することにより素子基板上の凸形状課題を解決しているが、真空中で無機バリア膜と有機膜を交互に形成し、さらに周囲部分は無機バリア膜のみとしなければならず、生産上のプロセス負荷が大きい。

一方、前述したガスバリア膜を形成したフィルムは平坦な構造であり、有機EL素子基板上の数ミクロン高さの素子を被覆して発光素子基板と接合封止するには、かなり大きな幅を必要とし、1mm程度の狭額縁封止は困難である。

【課題を解決するための手段】

## 【0009】

20

本発明は、第1構成材料の金属箔上の片面に第2構成材料のガスバリア膜を形成し、さらに当該ガスバリア膜上に第3構成材料の透明ポリマーフィルムを積層した構造を基本構造とし、第1構成材料である金属箔を発光基板との接合封止パターン状にエッチングすることにより個別のディスプレイ対応のガスバリアフィルムとなり、発光基板との接合封止は金属箔で行い、ガスバリアフィルムとしての強度は透明ポリマーが主体となる。

【発明の効果】

## 【0010】

本発明のガスバリアフィルムは、第1構成材料の金属箔上に第2構成材料のガスバリア膜を形成し、さらに第3構成材料の透明ポリマーを形成することから、連続的な製造が容易で、フレキシブルディスプレイにとって重要な薄型化と耐屈曲性を容易に実現できる。

30

また、パターン化した接合封止部の金属箔の高さにより発光素子基板の発光部などの凸部を保護し、狭額縁で折り曲げ性に優れた有機EL発光ディスプレイを提供する。

【図面の簡単な説明】

## 【0011】

【図1】本発明によるガスバリアフィルムの製造工程ごとの断面図の例である。

【図2】本発明のガスバリアフィルムの前記図1(d)工程における形状の下面からの平面図である。

【図3】請求項2に示す封止部の形状と断面図(A-A')である。

【図4】本発明のガスバリアフィルムで接合封止した有機ELディスプレイの断面図の例である。

40

【図5】本発明による有機ELディスプレイの全体平面図である。

【図6】TTCAの浸漬時間による吸着量変化である。

【図7】TTCA溶液への浸漬前後の銅箔表面のCu2pスペクトル変化である。

【発明を実施するための形態】

## 【0012】

本発明は、第1構成材料である金属箔、第2構成材料であるガスバリア層、第3構成材料である透明ポリマー層からなる基本構造とし、第1構成材料の金属箔によって発光基板と接合する

以下、本発明の請求項の内容、および図に示される例について、実施例を含めて詳細に説明する。

50

## 【0013】

請求項1に示すように、本発明においては、ガスバリア膜2は透明ポリマーフィルム3上ではなく、金属箔1上に成膜する。金属箔1は入手性などで銅もしくは銅合金が好ましく、フレキシブルプリント基板（Flexible printed circuit board：FPCB）の導電体として使用されている銅箔やその合金を使用することもできる。銅の熱膨張係数は約18ppm/°Cであり、ケイ素系バリア膜の膨張係数である約10ppm/°C以下との差異が小さくカールを抑制しやすい。銅箔には、その製造方法から電解銅箔と圧延銅箔があるが、耐屈曲性には圧延銅が高い性能を有しているが、使用目的によって使い分けることができる。

本発明において金属箔1の厚みは限定されるものではないが、図4に示すように発光基板側20には発光素子部と駆動回路部21があり、数 $\mu\text{m}$ の厚みを有している。このことから、金属箔1の厚さは接合封止状態で発光素子部と駆動回路部21の厚さと同等以上の厚さを使用することで、発光素子などの厚みによる課題を解決することができる。

## 【0014】

第1の構成材料である金属箔1上に、第2の構成材料であるガスバリア膜2を形成する。金属箔1表面はガスバリア膜2との接合面積を増加させるために粗化处理を行なうこともできるが、ガスバリア膜2の厚さが一般的には1 $\mu\text{m}$ 以下であることから、ガスバリア性能を低減しない表面粗さであることが必要である。

ガスバリア層2の形成手段は、請求項4に示すようにCVD成膜による $\text{SiO}_2$ 、 $\text{SiN}$ 、スパッタリング成膜による $\text{SiO}_2$ 、さらにはPHPSによる $\text{SiN}_x\text{O}_y$ 、複数プロセスによる積層体、および無機バリア膜間に応力緩和とピンホール欠陥対策のために有機膜を積層することもできる。

## 【0015】

一般的にプラズマ処理によって、表面の汚れを除去し金属表面にヒドロキシル基（-OH基）を形成して濡れ性改善をすることができる。この場合は、銅箔上に形成するSi系材料と脱水縮合反応によってCu-O-Si-という強固な共有結合が形成される。

しかし本発明においては、特にヒドロキシル基にこだわらなくてもよい。銅箔表面は、一般的な金属表面と同様に表面に酸化膜が存在するが、X線光電子分光分析（X-ray photoelectron spectroscopy：XPS）によって、不對電子（Dangling bond）である $\text{Cu}^{2+}$ が存在しており、これが強い反応性を示すことが分かっている。なお、XPS装置は、ULVACPHI Ver saProbe<sup>®</sup>9417；で、X線は $\text{AlK}\alpha$ 線を使用した。

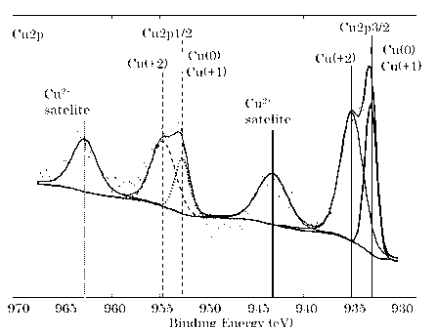
また、CVDによる $\text{SiO}_2$ 膜においても同様に $\text{Si}^{3+}$ などのDangling bondがあり、これによって銅箔とガスバリア膜のケイ素間で強い結合が形成される。同様に、スパッタリングモリブデン（Mo）薄膜にも $\text{Mo}^{5+}$ というDangling bondがあることを明確にした。この不對電子は、半導体物性には悪い影響を与えるが、材料間の接合については非常に大きな効果を及ぼす。

次項に各XPS分析と波形分離解析による結果を示す。

## 【0016】

<Cuの不對電子Cu（2+）を示すXPSスペクトル>

試料：PETフィルム上にスパッタリング成膜。膜厚500 $\text{\AA}$ 。

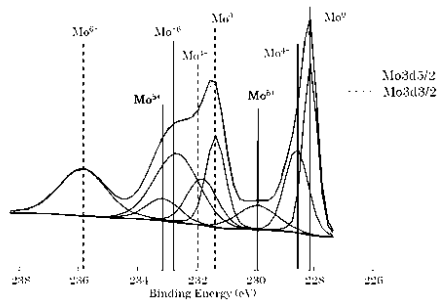


## 【0017】

<Moの不安定電子Mo (5+) を示すXPSスペクトル>

試料：ガラス基板上にスパッタリング成膜。膜厚500 Å。

設備ULVAC製SDP-s1550VM 基板温度160℃, Ar-O<sub>2</sub>ガス0.63Pa



10

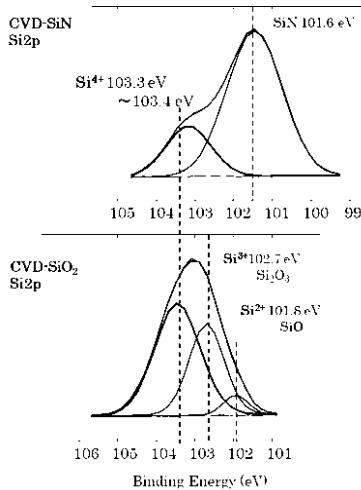
【0018】

<CVD-SiO<sub>2</sub>の不安定電子Si (3+) , Si(2+)を示すXPSスペクトル>

試料：ガラス状にCVD成膜。膜厚1,000 Å。

装置アプライドマテリアルズP5000, RFパワー180W

基板温度400℃, ガス流量SiH<sub>4</sub>=35scc, N<sub>2</sub>O=1500scc, ガス圧2.5Torr



20

CVD-SiNには不安定電子はないが、CVD-SiO<sub>2</sub>には存在する。また、CVD-SiNの表面には、SiO<sub>2</sub>も存在しており、例えばプラズマ処理によってヒドロキシル基とすることで、脱水縮合やシランカップリング剤を化学吸着させることによって、接合反応に利用できる。

30

【0019】

本発明において、第1構成材料である金属箔1と第2構成材料であるガスバリア層の密着強度は、前述のDangling bondによって直接的に化学結合を促進させることもできるが、いわゆるチオール系分子接合剤を利用することもできる。

これらは、チオール基(-SH)を有している有機化合物であり、代表的な化合物としては、TTCA (1,3,5-triazin-2,4,6-trithiol / trithiocyanuric acid)や、エトキシシリル基を導入したTES (6-Triethoxysilylpropylamino-1,3,5-triazine-2,4-dithiol monosodium) などがある。これはトリアジン環をベースとしたものであるが、3-メルカプトプロピルトリメトキシシランのようにトリアジン環を含まないチオール系化合物も利用できる。

40

【0020】

TTCAはトリアジン環に3個のチオール基を付加した構造であり、極性プロトン供与性溶媒であるメタノールやエチレングリコールモノブチルエーテルなどのセロソルブ系溶剤に溶解した溶液に金属を浸漬すると、簡単に表面に吸着することが分かっている。本発明の第1構成材料である金属箔を、当該TTCA溶液に浸漬することにより、金属表面にTTCA膜を形成することができる。特に、Dangling bondを有する銅やモリブデンなどには数十秒間の浸漬で、TTCAが安定的に吸着する。

同様に、TTCAの一部にアルコキシシリル基を導入した分子接合剤である6-トリエトキシシリルプロピルアミノ-1, 3, 5-トリアジン-2, 4-ジチオールモノソディウム (略称：TES)

50

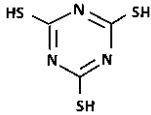
の水溶液に浸漬しても金属表面に吸着する。

これらの分子接合剤のプロセス上のメリットは、ウエットプロセスであり各基板材料の洗浄工程と同様の処理でありプロセス的な負荷が少ないことと、分子接合剤の膜が薄く透明であり、さらに絶縁膜であることから、接合封止部分以外の全面に処理が可能であることである。

次項にこれらの化学式を記載する。

【0021】

<化1>

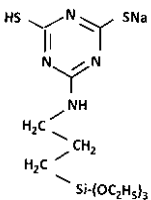


10

TTCA (1,3,5-triazine-2,4,6-trithiol / trithiocyanuric acid)

【0022】

<化2>

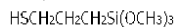


20

TES (6-Triethoxysilylpropylamino-1,3,5-triazine-2,4-dithiol monosodium)

【0023】

<化3>



3-メルカプトプロピルトリメトキシシラン

【0024】

化合物1に記載したTTCAは、特許文献2に示したように極性プロトン供与性有機溶媒溶液にスズ系合金を浸漬することで、表面に容易に化学吸着することがわかっている。さらに、Dangling bondを有する表面には短時間で吸着する。表1は、TTCAの0.1wt%ブチルセロソルブ溶液 (Ethylene glycol mono-butyl ether) の浸漬時間によるTTCAのS原子濃度の変化を示したものである。これは、0.5分間の浸漬で吸着量が飽和状態となっていることを示している。このような現象は、Mo膜、CVD-SiO<sub>2</sub>膜、さらにはTES水溶液においても同様に発生する。

30

図7に、前記銅箔をTTCAブチルセロソルブ溶液浸漬した場合のXPSスペクトル変化を示した。これによると、Dangling bondであるCu<sup>2+</sup>のスペクトルが浸漬処理後に消失しており、TTCAのチオール基がCu<sup>2+</sup> (Cu-O) がチオール基と結合してCu-S-トリアジン環となり、Cu+に変化していることを示している。

以上のように、金属箔1とガスバリア層2とは、直接的接合だけでなく、分子接合剤による接合も可能であることがわかる。

40

【0025】

次に、第2の構成材料であるガスバリア膜2上に、第3の構成材料である透明ポリマー層3を形成する。本発明によるガスバリアフィルムの構造は、最終的に金属箔1を、接合封止部等を残してエッチングにより除去するために、ガスバリアフィルム全体の強度は透明ポリマー3に依存する割合が大きい。キャリアフィルムを使用してプロセス間のハンドリング性を向上させたり、位相差や偏光子などの光学フィルムと一体化したりすることも可能であるが、透明ポリマーの選定は重要である。

【0026】

フレキシブルディスプレイにおいて重要なことの一つは、ディスプレイ全体の厚さであ

50

る。厚さ $d$ の材料を材料の中心で対称に半径 $R$ で折り曲げた時、材料の内側には圧縮歪、外側には引張歪が発生して材料に印加される。その歪率は、 $d/2R$ で示される。積層構造で、一方が無機物のようなヤング率が高い材料の場合、折り曲げ中心が高い材料になるため、ヤング率が低い材料に $d/R$ の歪が印加される。

$R=5\text{mm}$ 、 $d=100\text{ }\mu\text{m}$ とし、折り曲げ中心が材料の中心とした場合、引張と圧縮の各歪は $d/2R=1.00\%$ となる。この歪を吸収できない場合は永久歪となって元の形状に戻ることができなくなったり、積層部が剥離したりするために商品としての価値を保証できない。

#### 【0027】

折り曲げ時に発生する歪の点から、フレキシブルディスプレイ用のガスバリアフィルムとして、透明ポリマーの厚さはできるだけ薄い方が良い。前述したように、ガスバリア用透明フィルム基材としてPETやCOPを用いて開発されることが多い。しかしながら、有機ELディスプレイにおいては、外光の電極反射防止のために逆分散型1/4波長フィルムと偏光板からなる円偏光板の使用が必須であることから、複屈折性の大きいPETフィルムを使用することは難しく、複屈折の小さな透明ポリマーを使用しなければならない。1/4波長フィルムとしては、ポリカーボネートフィルム（Polycarbonate：PC）やCOPフィルムの圧延品が利用できるが、厚さは60～70 $\mu\text{m}$ 程度であり、フレキシブルディスプレイとしては折り曲げ半径が限定されるが、第3の構成材料として使用することが可能である。

#### 【0028】

折り曲げ半径を極小化するためには、第3構成材料である透明ポリマーを薄くすることが必要であり、このためには低分子の前駆体ワニス（ワニス）を第2構成材料であるガスバリア層上に塗布し、熱処理やUV処理でポリマー化する方法を使用することができる。これによって、ヤング率が3GPa前後の厚さ10 $\mu\text{m}$ 程度の透明ポリマーを形成することができる。

#### 【0029】

本発明においては、請求項7に示すように、第3構成材料の一要素として1/4波長版と偏光子からなる円偏光板を使用することができる。一般的な偏光子は、ポリビニルアルコール（Poly-vinyl alcohol：PVA）にヨウ素や二色性染料を吸着させたのち、一方向に延伸することで偏光性能を付与したものであり、その厚さは約5 $\mu\text{m}$ 程度で薄い。しかしながら、二色性染料は水溶性ではないが、ヨウ素やPVAは水溶性であるため、両側に複屈折性の低い透明ポリマーであるトリアセチルセルロース（Tri-acetyl cellulose：TAC）やアクリルフィルム（Polymethyl methacrylate：PMMA）を保護フィルムとして使用している。近年、配向技術を利用した逆分散型1/4波長素子、および偏光子の薄型化のために、二色性染料や液晶組成物を使用した薄膜光学素子が開発されている。これらは非水溶性であり、延伸プロセスもないために単独の膜状態で耐熱性や耐湿性もあり、さらに他の基材表面への転写も可能である。本発明においては、前記の従来型光学フィルムも使用できるが、全体の厚さを薄くして折り曲げ半径を極小化するために、薄膜光学素子を使用するほうが好ましい。

#### 【0030】

第2構成材料であるガスバリア層は、 $\text{SiN}$ や $\text{SiO}_2$ のSi系や、酸化アルミなどの金属酸化物系の無機膜が主体であり、構成によっては最上層が有機膜となる。いずれにおいても、第3構成材料である透明ポリマーとの間の高い接合強度を確保しなければ折り曲げ時に剥離する可能性があることから、分子接合技術などを使用することが好ましい。特に、すでにフィルム化したポリマーを使用する場合は、ファンデルワールス力などではなく、共有結合によって接合することが不可欠である。既知の方法として、各表面にヒドロキシル基（-OH）を形成し、脱水縮合反応によって接合する方法がある。

本発明においては、請求項6に示すように、第2構成材料のガスバリア層2の最上面にDangling bondのあるCVD- $\text{SiO}_2$ 膜を形成し、この部分に分子接合剤を化学吸着させ、第3構成材料である透明ポリマーと反応させることによって、共有結合による強固な接合を形成することができる。

#### 【0031】

本発明におけるガスバリアフィルムは、図1-d)、図2に示すように、本発明によるガ



スバリアフィルムの第1構成材料である金属箔をエッチングによって封止形状にパターニングする。パターニングはマスク露光によるフォトリソグラフやレジスト印刷により行われ、FPCBのパターニング技術を使用することができる。また、これらの処理はロール状で連続的に行ってもよいし、発光素子側のガラス基板と同程度の寸法の基板に貼付した状態で行ってもよい。さらに、金属箔のパターニングでは、発光素子基板との接合封止に必要な位置決めマーク（アライメントマーク）を形成することで、位置精度の高い接合を実現することができる。

#### 【0032】

接合封止部の形状は、請求項2に記載するように同心円状に分割することができる。この例を図3に示す。形状としては11aでも11bでも構わない。例えば、封止幅を1mmとした場合に0.2mm金属箔/0.2mm空間/0.2mm金属箔/0.2mm空間/0.2mm金属箔のように分割する。これによって、封止ライン1本あたりの圧力が増加して、局所的に変形が必要な場合変形しやすくなる。

#### 【0033】

本発明によるガスバリアフィルムと発光素子基板との接合封止の具体的な方法について述べる。ガスバリアフィルムの第1構成材料は金属箔であり、多くの接合法を使用することができる。ここでは銅もしくは銅合金について説明するが、他の金属でも同様の処理をすることができる。発光素子基板の封止部分は、SiNやSiO<sub>2</sub>、SiNxOyなどによる絶縁膜が形成されている。

接合封止方法は、分子接合剤による薄膜層接合、金属間の原子拡散による直接接合、およびSn系低融点合金による間接層接合の3方法に分類することができる。

#### 【0034】

分子接合技術は、0019項から0024項に記載したように、各基材表面に吸着させた有機化合物同士による共有結合によって基材間を接合する技術であり、有機化合物は分子接合剤と呼ばれる。この層は数nm程度の厚さであることから薄膜層接合と分類される。

本発明によるガスバリアフィルムのパターニングされた金属箔11を含む全面に、TTCA溶液もしくはTES水溶液を短時間接触させて、エアーナイフにより乾燥する。発光基板側はSi系絶縁膜であり、全面にTES水溶液を短時間接触させてエアーナイフによる乾燥処理を行う。両基板のアライメントを行い、接合面積あたり約15kg/cm<sup>2</sup>の圧力、温度120℃で1～2分間加圧する。温度はレーザー光による加温が好ましい。

金属箔は、銅箔、銅箔+Mo膜、銅+Ni+Au膜、銅+Sn系合金膜、銅+Sn系合金+Au膜、銅+Sn系合金+銅膜などが使用できる。

分子接合剤間の反応温度は、120～130℃程度であり、一方Sn系低融点合金でBi（58部）-Sn（42部）を選定した場合の融点は138℃であることから、融点以下の温度で変形するために基板の凹凸に沿って変形し、確実に接合封止することができる。

#### 【0035】

原子拡散による直接接合は、特許文献3に示すような接合技術も使用することができるが、10<sup>-6</sup>Pa以下の超高真空中で透明度に影響を与えないような1nm程度の金属膜をスパッタ成膜しなければならない、大型基板、フィルムという対象物には適さない。

ここでは、古くから半導体実装におけるワイヤボンディング、TCP（Tape carrier package）のILB（Inner lead bonding）、半導体チップ実装で利用してきた金属間拡散融合技術を接合封止に転用する。この技術で、特に接合封止に使用できる組み合わせは、Sn-Au、Au-Auなどである。前記ILBでは、Snめっき処理をしたCuのLeadと半導体チップのAuバンブとを加熱圧着して接合する技術で、280℃程度でSn-Au接合が行われる。また、LSIチップ上に形成したAuバンブを平坦化したり、サブミクロンサイズのAu粒子を使用したりした場合、150～180℃程度でAu-Au接合が行われる。

この場合、発光基板側の封止部分の最表面をSnもしくはAuに金属化しなければならない。また、ガスバリアフィルムの金属箔部分11を、銅+Au薄膜、銅+Sn系合金薄膜+Au薄膜、もしくは発光基板側がAu薄膜の場合はSn薄膜にすることで、原子拡散による直接接合が実現できる。

## 【0036】

第3の方法として、Sn系合金すなわち低融点はんだ付けによる接合封止を行うことができ、中間層接合として分類される。第1構成材料が銅の場合は、そのままでよいしNi-Auなどの表面層を設けてもよい。発光素子基板の接合封止部分は、はんだ付け可能な金属層を形成しなければならない。Snを主成分としたはんだは、鉛(Pb)フリー、低融点であり、さらには耐屈曲性を向上させるために、材料組成の選定が重要であると同時に、その厚さも薄いほうがよい。

## 【0037】

以上のように、本発明によるガスバリアフィルムの第1構成材料である金属箔、特に銅箔と発光素子基板との接合封止方法は、最も付加的な表面処理工程が少ない分子接合剤による薄膜層接合封止、金属間の原子拡散を利用した直接接合封止、そしてはんだ付けによる間接層接合封止の3つのプロセスを使うことができる。

10

## 【産業上の利用可能性】

## 【0038】

本発明によるガスバリアフィルムは、第1構成材料として金属箔、特に銅箔をベース基材として使用しており、この上に形成する第2構成材料であるガスバリア層、第3構成材料の透明ポリマー層をシートやロールフィルムで連続的に生産でき、非常に量産性に優れた製造方式が実現できた。圧延銅箔を使用することで、非常に高い折り曲げ強度が実現できただけでなく、接合封止の銅箔の厚さによってディスプレイ基板上の発光素子等の保護も可能であり、全方位における高いガスバリア性能を得ることができた。

20

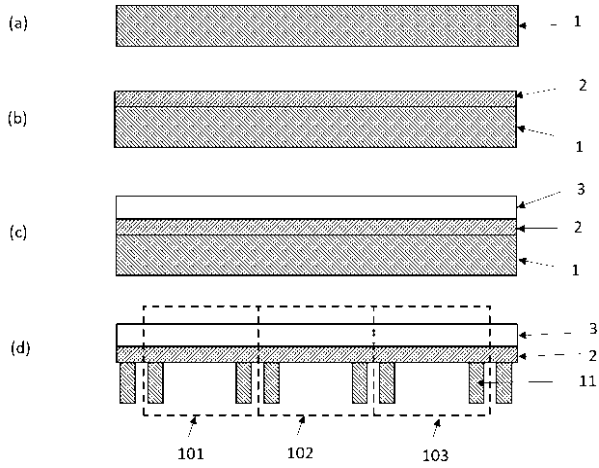
## 【符号の説明】

## 【0039】

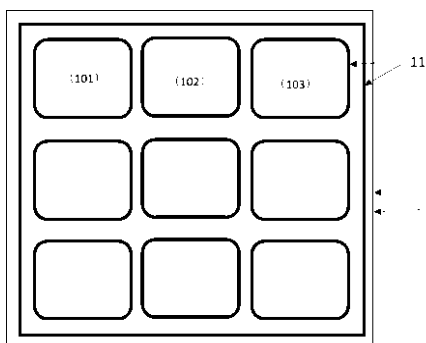
- 1 金属箔
- 2 ガスバリア層
- 3 透明ポリマー
- 11 パターニング金属箔
- 11a 11b 請求項2における封止部分の形状と断面図
- 12 パターニング金属箔、もしくは感光性樹脂スペーサー
- 20 発光素子基板
- 21 発光領域および回路
- 22 入出力電極
- 101~103 ディスプレイパネル区分

30

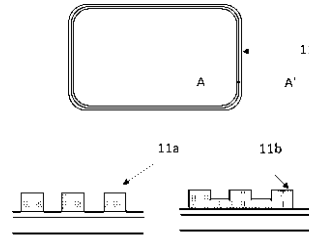
【図 1】



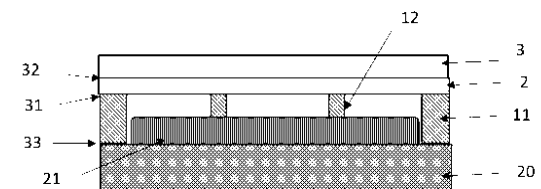
【図 2】



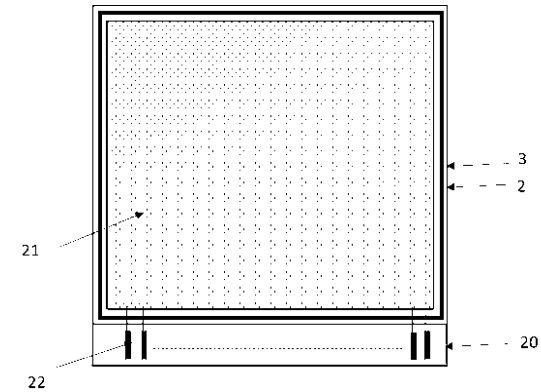
【図 3】



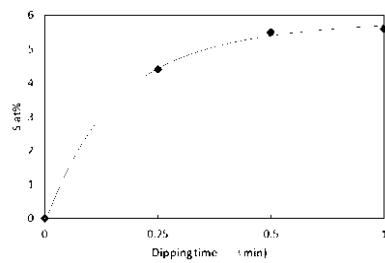
【図 4】



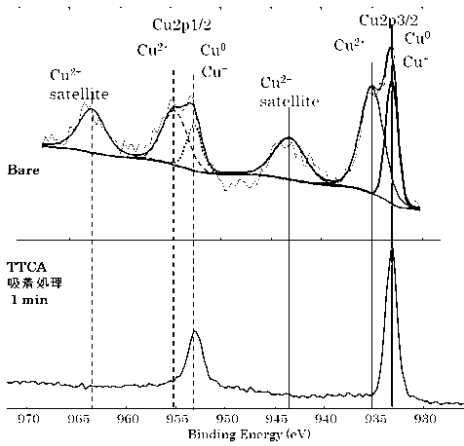
【図 5】



【図 6】



【図 7】



---

フロントページの続き

| (51)Int.Cl.    |             |                  | F I     |      |         | テーマコード (参考) |
|----------------|-------------|------------------|---------|------|---------|-------------|
| <b>G 0 9 F</b> | <b>9/00</b> | <b>(2006.01)</b> | G 0 9 F | 9/00 | 3 3 8   |             |
|                |             |                  | G 0 9 F | 9/30 | 3 0 9   |             |
|                |             |                  | G 0 9 F | 9/30 | 3 4 9 Z |             |

|                |                                                                                                                                                                                                                                                   |         |            |
|----------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---------|------------|
| 专利名称(译)        | 阻气薄膜，其制造方法以及使用该薄膜的显示器                                                                                                                                                                                                                             |         |            |
| 公开(公告)号        | <a href="#">JP2019096488A</a>                                                                                                                                                                                                                     | 公开(公告)日 | 2019-06-20 |
| 申请号            | JP2017225209                                                                                                                                                                                                                                      | 申请日     | 2017-11-22 |
| [标]申请(专利权)人(译) | 平井 彰                                                                                                                                                                                                                                              |         |            |
| 申请(专利权)人(译)    | 平井 彰                                                                                                                                                                                                                                              |         |            |
| [标]发明人         | 平井彰                                                                                                                                                                                                                                               |         |            |
| 发明人            | 平井 彰                                                                                                                                                                                                                                              |         |            |
| IPC分类号         | H05B33/04 H01L51/50 H01L27/32 H05B33/02 G09F9/30 G09F9/00                                                                                                                                                                                         |         |            |
| FI分类号          | H05B33/04 H05B33/14.A H01L27/32 H05B33/02 G09F9/30.365 G09F9/00.338 G09F9/30.309 G09F9/30.349.Z                                                                                                                                                   |         |            |
| F-TERM分类号      | 3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC23 3K107/CC41 3K107/CC43 3K107/CC45 3K107/DD17 3K107/EE26 3K107/EE45 3K107/EE48 3K107/EE49 3K107/EE50 5C094/AA43 5C094/BA27 5C094/DA07 5C094/DA13 5C094/ED14 5C094/FB01 5C094/FB02 5G435/AA17 5G435/BB05 5G435/KK05 |         |            |
| 外部链接           | <a href="#">Espacenet</a>                                                                                                                                                                                                                         |         |            |

#### 摘要(译)

[问题] 提供一种阻气膜，该阻气膜具有用于通过有机发光器件保护显示器的前表面的透明阻挡层，以及能够密封发光器件基板的外围并能够实现柔性显示的结构。[解决方案] 在金属膜上形成薄膜气体阻挡层并在阻挡层上层压透明聚合物膜之后，通过蚀刻从密封形状部分和结构以及除制造所需的那些部分之外的其他部分去除金属膜。显示器的阻气膜。

[选型图]图1

