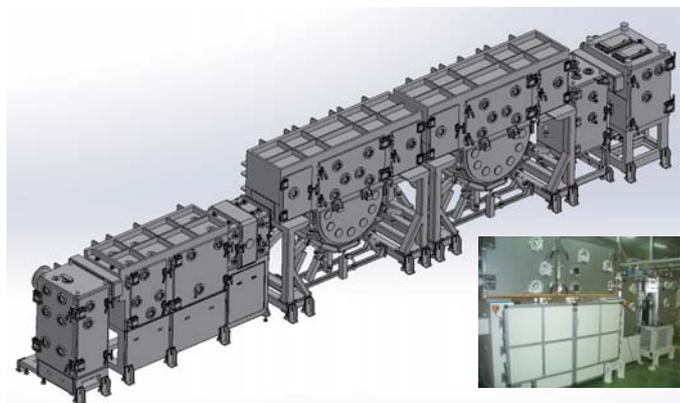


RTR 式有機 EL 照明製造装置の開発

Development of RTR Type OLED Lighting Production Equipment



藤本英志	Eishi Fujimoto	①
千住直輝	Naoki Senju	①
清水祐輔	Yusuke Shimizu	①
中静勇太	Yuta Nakashizu	①
原田寿典	Hisanori Harada	①
甲斐圭一	Keiichi Kai	②
松本祐司	Yuji Matsumoto	①

あらまし

有機EL照明を構成する有機層・金属電極層の成膜は、一般に真空蒸着法が用いられている。有機EL照明はLED照明との差別化から、基板のフレキシブル化および生産コスト低減の要求が強まっている。従来、当社はガラス基板の枚葉生産方式に対しては有機層成膜に面蒸発源を、金属電極層成膜に対しては電子ビーム蒸発源を搭載したクラスター方式を提案していたが、基板のフレキシブル化や高生産性のニーズを満たす方法のひとつとして、新たにRoll to Roll (RTR) 方式での基材ベーキング、プラズマ洗浄、有機層成膜、金属層成膜のプロセスを連続的に処理できる真空一貫成膜装置を開発した。本報告では、RTRでの有機EL照明製造装置の特長について紹介する。

Abstract

The organic layers and the metal electrode layer of OLED lighting devices are mainly manufactured by the vacuum evaporation method. Competing with LED lighting, OLED lighting is faced with strong demands for flexible substrates and lower production costs. Hitachi Zosen has been offering a cluster system mounted with planar sources for depositing the organic layers and the electron beam evaporation source for depositing the metal electrode layer, but we have newly developed Roll to Roll (RTR) vacuum sequential equipment composed of continuous processes of film baking, plasma cleaning, organic evaporating, and metal evaporating. This paper introduces the features of our developed RTR equipment for producing OLED lighting devices.

1. 緒言

有機EL照明は面発光、低消費電力、低温発光といった特長を有し、次世代照明として期待されている。有機EL素子の電極間の膜厚はミクロンレベル以下の超薄膜であることから、プラスチックフィルムや超薄板ガラス上に素子を形成させることができればLEDや他の方法では製作困難なフレキシブル照明を製作することが可能となる。また、有機EL照明の広い普及には、消費電力や発光寿命といった発光特性の改善と同時に、材料費の低減や生産性の向上によりLEDと同等の価格レベルにする

ことが必須である。

これらフレキシブル化、高生産性化へのニーズを解決する手段の一つとして、Roll to Roll方式（以下RTR）による製造が有力である。RTR装置は、ロール状に巻かれた基材フィルムの巻出しから巻取りまでの間で成膜などのプロセス処理を行う装置を指す。RTR方式には各成膜プロセスを行う際、基材フィルムを一旦停止させ基材を静止状態で成膜を行った後、基材を一定ピッチ送るといった工程を順次行っていくステップ成膜方式と、基材を一定速度で送りながら継続的に成膜を行っていく連続成膜方式があり、連続成膜方式の方が生産性は高い。

今回開発したRTR装置は、基材フィルムを連続搬送しながら真空一貫によって基材ベーキング、ドライ洗浄、有機層成膜、金属電極層成膜を行うもので、その装置構成および特長について以下報告する。

① 機械事業本部 システム機械ビジネスユニット システム機械設計部

② 機械事業本部 電子制御ビジネスユニット 制御機器部

2. 連続式 RTR 装置の構成および特長

一般的なフレキシブル有機EL素子の構造を図1に示す。有機EL素子は、フレキシブル基材上の透明導電膜(陽極)と陰極の間にホール輸送層、発光層、電子輸送層といった数層~二十数層の有機薄膜が積層された構造であり、陽極と陰極間に通電することで発光する。

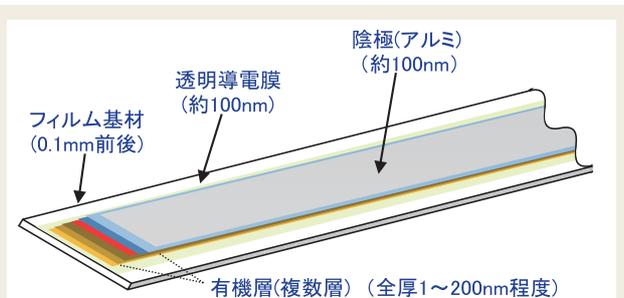


図1 フレキシブル有機EL素子の構成

今回製作したRTR装置は、フレキシブル基材にあらかじめ成膜されている陽極上に有機層と金属層を連続して成膜させるためのものであり、その構成を図2に、主な仕様を以下に示す。

- ・ 処理方式：連続式RTR
- ・ 処理プロセス：基材前処理,有機層成膜,金属層成膜
- ・ 対象基材：透明導電膜付プラスチックフィルム, 透明導電膜付超薄板ガラス
- ・ 基材幅：350mm (成膜有効幅300mm)
- ・ 基材送り速度：0.2 ~ 2m/min
- ・ 到達真空度： 5×10^{-5} Pa (無負荷時)
- ・ 基材前処理：基材加熱、プラズマ洗浄
- ・ 有機層成膜：抵抗加熱蒸着 (最大21層)
膜厚均一性 $\leq \pm 3\%$ (幅方向)
 $\leq \pm 5\%$ (送り方向)
- ・ 金属層成膜：電子ビーム蒸着 (1層)
蒸着膜厚 ≥ 100 nm (0.5m/min搬送時)

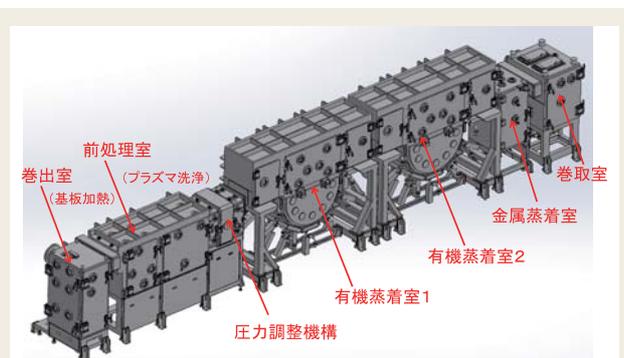


図2 有機EL照明用連続式RTR装置の構成

基材フィルムは巻出室にセットされ、巻取室に送られるまでの間に基材の前処理(基材加熱、プラズマ洗浄)、有機層成膜、金属層成膜が真空一貫で行えるものとなっている。この連続式RTR装置の特長を以下に述べる。

①高い生産性

フレキシブルフィルム基材を対象とした連続式RTR

装置の構成により、基材搬送と成膜を同時に行うことができるため、高い生産性が得られる。従来型のステップ成膜方式と比較すると、連続式RTR装置での生産で基材フィルムの成膜有効幅300mm、搬送速度0.5m/minの場合、有効成膜範囲350×450mmのG2基板におけるステップ成膜装置での生産に換算するとタクトタイム1minの生産性に相当する。搬送速度が2m/minになれば、G4基板(680×880mm)をタクトタイム1minで連続成膜できることとほぼ等価となる。ステップ成膜装置では、基材搬送と成膜の工程が分かれ、膜厚精度確保のためには一定時間以上の成膜時間が必要なことから、タクトタイム1minの実現は難しく、連続式RTRを採用した本装置の生産性は非常に高い。

②コンパクトなレイアウト

基材前処理、有機層成膜、金属層成膜が一連の装置として真空一貫処理できるように構成し、有機蒸発源がキャンロール周囲に多源配置させることで、コンパクトに装置を設置させるようにした。今回のRTR装置全長は20m以内であり、従来装置と比較して大幅に装置設置面積(フットプリント)が小さくなっている。

③高い拡張性

本RTR装置は、プロセス単位で真空チャンバを接続する構成としたため、有機蒸着室の増設や金属蒸着室と巻取室の間に封止室を増設したい場合でも、簡単に対応できる。また、有機層の成膜についても1源用、2源共蒸着用・3源共蒸着用の各蒸発源を層構成に合わせて配置させることが可能となっている。

3. RTR 装置に搭載したプロセス機構

有機EL照明用連続式RTR装置に搭載した各機構について以下説明する。

3.1 基材フィルム搬送

有機EL照明用連続式RTR装置の基材には、陽極として透明導電膜がパターンニングされたフィルムが使用される。基材フィルム搬送について、以下の対策を行った。

(1) 多種の基材への対応

フレキシブル有機EL照明に使用される基材は、PETやPENといったプラスチックフィルム以外に超薄板ガラスが使用される場合があり、これらの基材が搬送できるように装置設計を行った。超薄板ガラスは破断しやすいため、基材の曲げ半径を大きくとれるよう、搬送ロール径を $\phi 200$ mm以上とした。

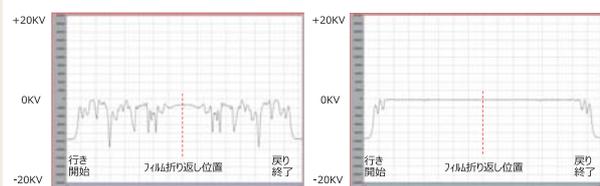
(2) 洗浄・成膜面の非接触搬送

有機EL照明は超薄膜の積層構造となっており、微小のゴミ(パーティクル)や傷も嫌うことから、搬送にあたって、基材フィルムの成膜面側に配置するロールには段差を設けて基材両端をロールで支持させ、成膜面側の有効幅部分はロールに接触させずに搬送を行うようにした。

(3) 基材への剥離帯電の防止

基材の巻出し・巻取りに際し合紙の剥取り・挟み込みを行う際、剥離帯電が起こりやすい。高真空中では帯

電防止の有効な手段は少ないため、今回、真空紫外線光源ユニット (VUV) による除電を検討した。2軸延伸PETフィルム (100 μ m) を1.0 \times 10⁻³Paの高真空下のRTR実験機で5.0m/minの搬送速度で往復搬送させたときのVUVの効果を図3に示す。VUVによって除電後の帯電は-0.2kV程度まで低下することが確認できた。



(a) 除電OFF

(b) 除電ON

図3 真空紫外線光源ユニットによる除電効果

3.2 フィルムゲートバルブ RTR装置化の目的の一つは、基材の連続搬送と成膜を同時に行うことによって生産性を向上させることである。巻出室と前処理室間、金属蒸着室と巻取室間にフィルムゲートバルブを設置し、基材交換にあたって基材の搬送を停止した後フィルムゲートバルブを閉止し、巻出室と巻取室だけを大気開放することで、前処理室および有機蒸着室、金属蒸着室内の真空度を維持したままフィルムを交換できる構成とした。図4にフィルムゲートバルブの外観を、図5に構造を示す。

ゲートバルブ下部のシリンダが特殊形状のパッキンに連結しており、シリンダ動作に連動して、シール動作する機構となっている。最大0.2mm厚までのフィルムで挟み込みによるシールが可能である。

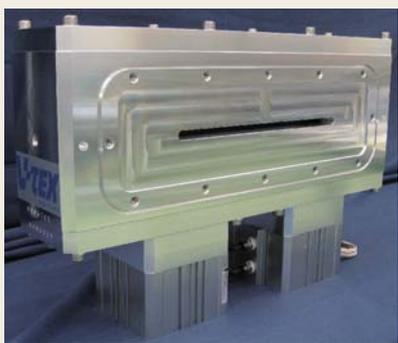


図4 フィルムゲートバルブの外観

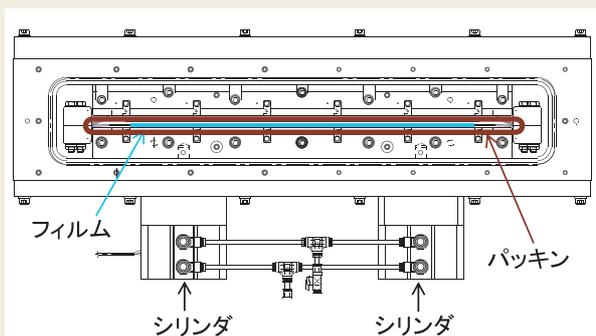


図5 フィルムゲートバルブの構造

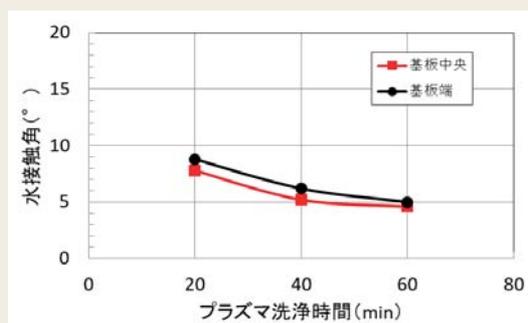
3.3 フィルム加熱およびプラズマ洗浄 有機ELは水分や酸素に弱く、素子の劣化が早まる要因となっている。使用する基材に残留する水分は有機層成膜前に放出させておく必要がある。

フィルムから水を効率的に放出させるため、水の吸収波長である3~4 μ mの波長のヒータを用い、フィルム加熱させることとした。放射温度計を用いてフィルム表面温度を計測し、フィルム表面温度が目標温度となるようにヒータ出力制御を行う構成とした。

基材は加熱後、プラズマ洗浄を行い、基材表面の有機物除去を行うことが一般的である。プラズマ洗浄機構の主仕様を以下に示す。

- ・プラズマ方式：平行平板方式、アノードカップリング
- ・圧力条件：1~10Pa
- ・電源出力：750W (RF電源出力) 13.56MHz
- ・ガス供給：O₂/Ar/N₂ (3系統)

プラズマ洗浄機構の仕様は当社が保有するプラズマ洗浄装置実証機でのテスト結果を元に決定した。図6に出力300WでのO₂プラズマ洗浄させたときのガラス基板の水接触角の変化を示す。

図6 O₂プラズマ洗浄によるガラス基板の水接触角の変化

水接触角の目標値を10°以下とした場合、処理時間が20secであっても目標値を満足できるが、尤度を持たせるため、基材を0.5m/minで搬送させたときに、プラズマ処理時間が40sec以上確保できるようにプラズマ洗浄機構の設計を行った。

RTR装置の前処理室の外観およびプラズマ発生状況を図7に示す。フィルム搬送時においても安定したプラズマ発生を確認できた。



図7 前処理室の外観とプラズマ発生状況

3.4 差圧調整機構 連続式RTR装置で基材前処理プロセスと真空蒸着プロセスを連続一貫処理させるにあたり、各プロセスの圧力調整を適切に行えるようにしなければならない。前処理室は数Paの処理圧力であり蒸着室は 10^{-5} Pa台での真空度に保つ必要がある。そのため、当社が以前にフィルムを大気から高真空室へ連続的に投入できるATV (Air to Vacuum) 機構として開発した機構の一部を、前処理室と蒸着室間の差圧調整機構として適用した。差圧調整機構の外観を図8に、構造を図9に示す。基材フィルムは差圧調整機構を經由して、前処理室から有機蒸着室へ連続的に搬送される。PETフィルムだけでなく超薄板ガラスでも各室の圧力を保持しながらの安定搬送が可能である。



図8 圧力調整機構の外観

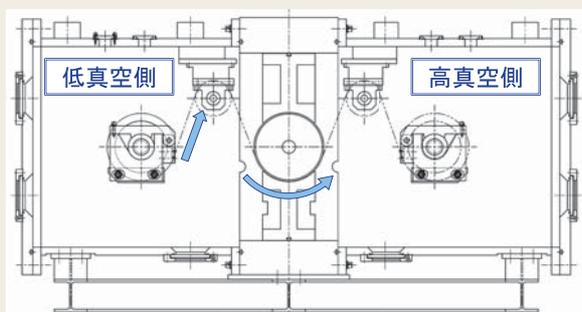


図9 圧力調整機構の構造

3.5 有機層蒸着 有機EL照明の有機層成膜は、低分子系材料を用いた真空蒸着法による成膜が主流である。有機層成膜には、基板や蒸発源の回転や揺動を行わず、静止状態で蒸着が行える面蒸発源を当社は開発し提案してきた。面蒸発源は、有機材料を投入す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気量をバルブで制御し、マニホールド上の複数ノズルから蒸気を噴出させ、マニホールドに対向する基板に、基板・蒸発源の両方も静止状態で成膜を行う方式である。

今回、RTR装置で、基材を送りながら成膜する連続成膜方式に対応させるため、面蒸発源の構成を転用し、マニホールドを矩形としたリニアソースとした。面蒸発源転用リニアソースの構成を図10に示す。

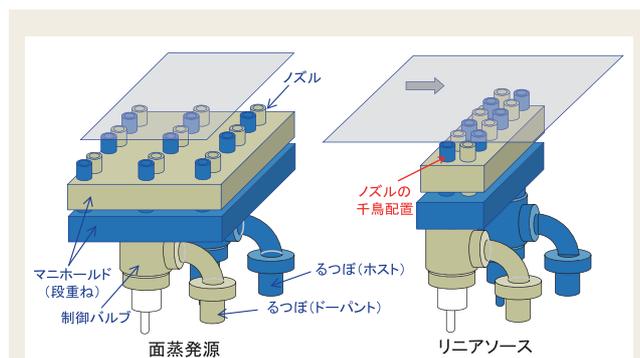


図10 面蒸発源転用リニアソースの構成

RTRによる連続成膜の場合、基材上に成膜される有機層の膜厚は、蒸発源からの発生蒸発量と基材の送り速度との関係で決まる。基材送り速度は一定であるため、所定膜厚に膜厚制御するためには、蒸発源からの発生蒸発量を精度良く制御できることが必要である。発生蒸発量の制御は、るつぼ温度の制御により行われるのが一般的であるが、有機材料は熱伝導性が悪く、るつぼ温度制御方式では目標蒸着量への到達に時間がかかるという問題があった。今回、バルブ開度制御方式を採用することで、高速かつ高精度の蒸発レート制御を可能とした。

有機層成膜では、複数の有機材料を同時に蒸着させ、一定の割合で混合した状態の層を成膜させる共蒸着という手法が取られることが多いが、マニホールドを段重ね構造とし、るつぼからノズルまでの蒸気の経路を各源で完全に独立させ、個別の温度管理を行うことで、各蒸着材料が最適な温度で気化され、均一に混合されて蒸着されるような構造としている。更に段重ねマニホールドの採用で、2ないし3源共蒸発源であっても基材流れ方向の蒸発源搭載スペースを減少させることができる。また、共蒸着を行う上下段のノズルを単純に平行に配列させると、共蒸着の膜厚方向の混合比に大きな差が発生する懸念があるため、ノズルは1列の交互配置または2列の千鳥配置としている。

2源共蒸発源用マニホールドのノズル千鳥配置での混合比のシミュレーション結果を図11に示す。シングルから

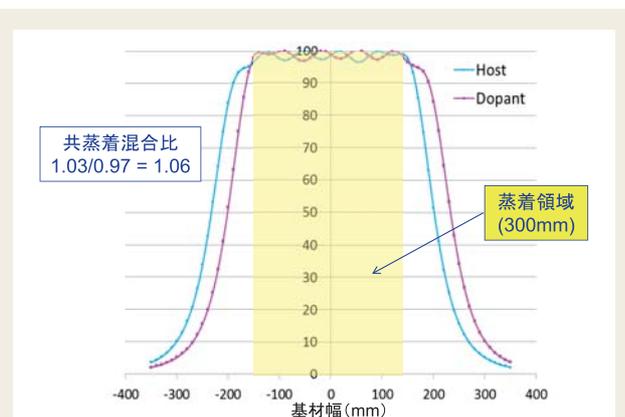


図11 ノズル千鳥配置での膜厚均一性および共蒸着混合比シミュレーション結果

3源共蒸発源まで、すべて蒸発源-基板間距離 (TS) を 50mmで統一し、蒸着領域 (300mm幅) での膜厚均一性が $\pm 3\%$ 以内、共蒸着時の混合比ずれが $\pm 6\%$ 以内の仕様で蒸発源設計・製作を行うことが可能である。

有機EL材料は非常に高価であり、1gあたりの価格が数万円以上の材料も少なくない。有機EL照明のコストダウンには、材料利用効率 (るつぼに投入した有機材料のうち基板有効エリアに成膜される割合) を高める必要がある。TSを短くすることで、シングルから3源共蒸発源まで、有機材料の材料利用効率を60%以上に高めることができる。また、基材交換など非蒸着時はバルブを閉止もしくは微小開度に設定することにより、有機EL材料の無駄な消費を減らすことが可能となっている。

矩形マニホールドの面蒸発源転用リニアソースのRTR装置への搭載状況を図12に示す。面蒸発源転用リニアソースは、高精度の蒸着レート制御性、高膜厚均一性、バルブ締切りによる非蒸着時の材料消費低減といった従来の面蒸発源の特長に加え、TSを短くすることによる高材料利用効率、省スペースによるRTRのキャンロール周りに多源搭載を実現させることができた。



図12 面蒸発源転用リニアソースの搭載状況

3.6 金属層蒸着 有機EL照明の有機層上の陰極にはアルミが用いられることが多い。電子ビーム (以下EB) 蒸着法は、抵抗加熱蒸着法と比べると、多種多様な材料を高速で成膜できるという特長を持つが、EB照射時に材料表面から発生するX線や反射電子の影響で下地の有機層にダメージが入り、有機EL素子性能が低下する問題があった。この問題に対し、当社では、EB源の低加速電圧化や、るつぼ保温機構の搭載により、X線や反射電子を低減させたEB蒸発源を開発し、更に、インラインやRTRのような長時間の連続蒸着に対応できる線材形状の材料供給機構を備えた有機EL製造用EB蒸着装置を開発・提案している。

図13に供給機構の構成例を示す。蒸着開始→蒸着停止→基材送り→蒸着開始を繰り返すステップ成膜方式の場合と、一定蒸着レートで蒸着を継続させる必要のある連続成膜方式では異なる材料供給方式を採用している。

ステップ成膜方式のようなバッチ式の成膜方式では、ターゲット上に蒸着材料を充填するるつぼを複数配置し、1つのるつぼで基板上への成膜を行っている間に空いているるつぼに線材の材料を切断しながら供給する方式と

している。材料の供給量にあたり、供給位置で、るつぼ内に入っている溶融アルミの湯面位置をカメラで監視することにより、供給過多・不足を防止している。

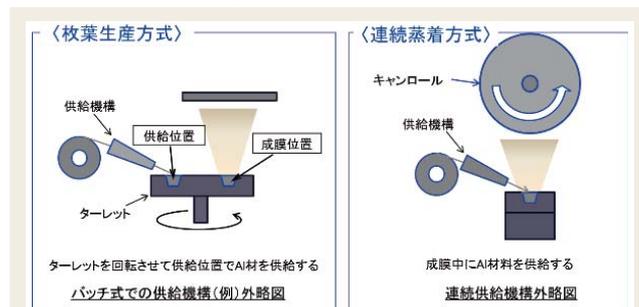


図13 各方式でのアルミ材料供給機構例

これに対し、連続成膜方式では、蒸着材料の線材を、るつぼに連続的に供給する方式が必須となる。RTRによる連続成膜方式では、前述した有機層成膜と同様、膜厚を精度良く制御するためには、蒸発源からの発生蒸発量を適切に制御することが必要であるが、蒸着中のるつぼに連続的に蒸着材料を供給する場合、材料供給量と蒸着量が等しくないと、溶湯温度や湯面の変動に伴い、正しい蒸着レートが計測できなくなることや、極端な場合、るつぼからの材料が溢れ出しや、るつぼ内が空焚きになり蒸着レートが不安定になる不具合が生ずる。このような不具合を防止するため、るつぼ内の湯面をできるだけ一定に保ちながら、線材を供給することが望ましい。

線材の材料供給機構の外観を図14に、構造を図15に示す。一定の蒸着レートで長時間連続成膜可能な材料供給を実現させるため、材料容器の重量を計測し、重量変動に応じて線材の供給速度を変化させ連続的に材料供給を行う機構となっている。



図14 アルミ線材材料供給機構の外観

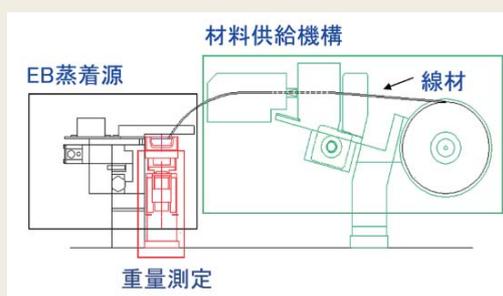


図15 アルミ線材材料供給機構の構造

このアルミ線材供給機構を用い蒸着を行った結果を図16に示す。容器重量が低下するとアルミ線材の供給速度が上がるが、材料の滴下に伴い、るつぼ温度が低下し成膜レートが低下する。成膜速度の低下はEB出力調整にフィードバックされ、EB出力の増加により、目標蒸着レートに復帰する。この一連の制御工程により、重量変動 $\pm 0.3\%$ 以下、成膜速度変動 $\pm 8\%$ 以下を達成した。



図16 アルミ蒸着結果

連続蒸着を行った結果を図17に示す。アルミ線材供給速度の適正化により、8時間の安定した連続蒸着運転を達成している。

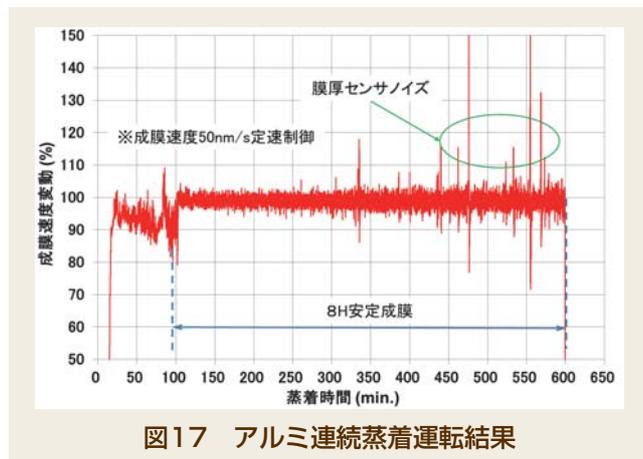


図17 アルミ連続蒸着運転結果

4. 結 言

本稿では、有機EL照明用連続式RTR装置の紹介を行った。プラスチックフィルムおよび超薄板ガラスの基材に対応でき、真空一貫によって基材ベーキング、ドライ洗浄、有機層成膜、金属電極層成膜を連続して行うことができる装置であり、高い生産性と省スペースを両立させ

ている。有機層蒸着では、日立造船独自技術である面蒸発源を転用した制御バルブ搭載の蒸発源を搭載することで、高膜厚均一性と高材料利用率を実現し、金属層蒸着では、有機ELデバイス用電子ビーム蒸発源に材料供給機構を搭載することで、長時間連続運転を可能としている。今後、有機EL照明だけではなく、需要が期待されるフレキシブル有機素子に対しても、生産性の高い製造装置を供給することで、その普及に貢献していきたいと考える。

参考文献

- 1) Fujimoto, E et al., SID 10 DIGEST, 695 (2010)
- 2) 藤本 英志, 松本 祐司 他, Hitz技報, 70巻第2号 (2010)
- 3) 藤本 英志 月刊ディスプレイ, 17巻9号, 60 (2011)
- 4) 山田 実, 山成 淳一 他, Hitz技報, 73巻第1号 (2012)
- 5) 清水 祐輔, 山成 淳一 他, 有機EL討論会第23回例会, P13-14 (2016)
- 6) 藤本 英志, 松本 祐司 他, 有機EL討論会第24回例会, P13-14 (2017)
- 7) 藤本 英志, 有機ELに関する発光効率向上、部材開発、新しい用途展開, 技術情報協会, P366-374 (2018)

【文責者連絡先】

Hitz日立造船(株) 機械事業本部
システム機器ビジネスユニット システム機械設計部
藤本英志
Tel : 06-6555-9883 Fax : 06-6551-9691
e-mail : fujimoto_e@hitachizosen.co.jp

Hitachi Zosen Corporation
Machinery Business Headquarters
System Machinery Business Unit
Systematic Machinery Design Department
Eishi Fujimoto
Tel : +81-6-6555-9883 Fax : +81-6-6551-9691
e-mail : fujimoto_e@hitachizosen.co.jp



藤本 英志



千住 直輝



清水 祐輔



中 静 勇 太



原 田 寿 典



甲 斐 圭 一



松 本 祐 司