

平成26年度戦略的基盤技術高度化支援事業

「有機EL素子の高品位封止技術の構築とその装置化に関する技術開発」

研究開発成果等報告書

平成27年3月

委託者：九州経済産業局

委託先：公益財団法人くまもと産業支援財団

目次

第1章	研究開発の概要	1
1-1	研究目的	1
1-2	研究の概要	1
1-3	研究体制	3
1-4	管理員および研究員	5
1-5	指導・協力者名及び指導・協力事項	6
1-6	成果概要	8
1-7	当該研究開発の連絡窓口	12
第2章	本論	13
2-1	ガラス溶接棒の成形技術の開発	13
2-2	ガラス溶接棒の形状最適化	16
2-3	ガラス溶接棒の品質管理技術の構築	15
2-4	レーザ加熱方法の開発	19
2-5	被溶接材料の開先形状の最適化	23
2-6	溶接雰囲気制御方法の開発	25
2-7	残留応力の低減及び除去方法の開発	27
2-8	大型化に関する課題抽出	28
2-9	溶接装置の環境制御に関する課題抽出	30
2-10	微小欠陥のインライン検査技術の開発	31
2-11	量産に向けた試作試験	31
第3章	総括	33

第1章 研究開発の概要

1-1. 研究目的

次世代照明の一つである有機 EL 素子は、その内部が水分や酸素に極めて敏感に反応して劣化するため、封止によって大気から隔離する必要があるが、従来型の封止膜や封止缶ではこれらの透過を抑えることができず大気中でさえ過酷環境となり、寿命が1万時間未満とLEDのもの（4万時間）よりも遥かに短いことが課題である。本計画では欠陥のないガラス同士の接合部を形成することで、これらの無透過を実現して有機 EL 素子の信頼性向上および長寿命化を実現するとともに、製造歩留まりを向上させ有機 EL を高品位・低価格化するガラス溶接技術を開発する。

1-2. 研究の概要

本計画は現状のガラスフリット封止タイプの有機 EL 素子の良品率が低い（40～50%）ことに鑑み、微細加工における接合・溶接技術の向上を目途に、研究開発を行う。ガラスフリットをレーザーで局所加熱し接合・封止に用いる手法の問題点を図1-2-1に示す。粉体であるがゆえに不具合が発生していることが予備実験で明らかになった。

そこで、ガラスフリットではなくガラス棒を利用した新しいガラス溶接技術を開発して有機 EL 素子のガラス封止における良品率の100%達成を目指す。このために、溶接材料・溶接工法・装置化技術の3つに課題を大別し、さらにそれぞれを幾つかのサブテーマに細分類するが、研究開発にあたってはこれらを組み合わせて試験を実施する。

1-2-1. 溶接材料の課題

ガラス棒の成形技術の開発①（以下、丸中の数字は2章の中分類番号に相当）と形状の最適化②を通して、直径φ0.2mm以下、長さ100mm、相対密度95%以上のガラス棒を製作する。また、ガラス棒の品質管理基準を構築③するために、成分・寸法・湿度などの計測方法の標準化を行う。

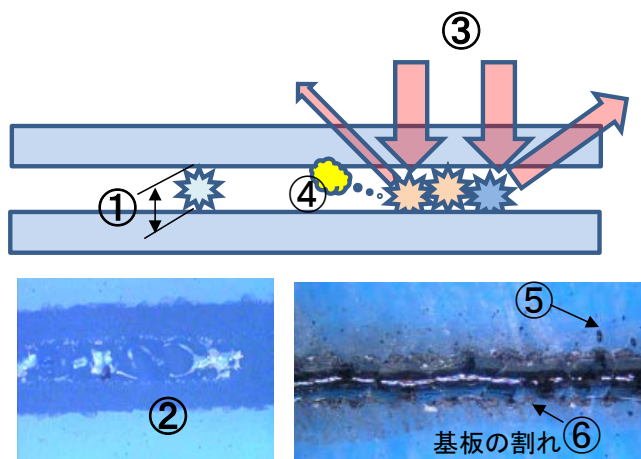
1-2-2. 溶接工法の課題

レーザー加熱方法の開発④と被溶接材料の開先形状の最適化⑤により残留応力や歪によるマイクロクラックやピンホール、またはこれらの連結による開口欠陥のゼロを目指す。また、溶接雰囲気制御方法の開発⑥により水分・酸素が完全駆逐された環境での封止や、非真空中（ガス置換等）環境での加工を実現し、有機 EL の低コスト化に資する加工技術の開発を目指す。さらに、溶接部の長期信頼性向上のため、残留応力の低減および除去方法の開発⑦により、レーザーを用いた熱処理法を見出す。

1-2-3. 装置化の課題

現状の有機 EL の実用的サイズである100mm角の基板を封止する装置の開発に必要な基礎データを得る事である。すなわち、ガルバノミラーによるレーザー走査の範囲の大型化に関する課題抽出⑧をCAEおよび実験によって行い、前述の溶接工法のサブテーマ⑥のラボ実験の結果を、100mm角に適用するための雰囲気制御手法を構築⑨する。また、微小

欠陥のインライン検査技術の開発⑩を行い、ガラス溶接部内部の欠陥を $10\mu\text{m}$ 未満のサイズから検出でき、かつ自動化に対応できる手法を開発する。最終的に⑧⑨⑩の基礎データをもとに、有機EL素子の量産製造装置のプロトタイプを作成し、ガラス封止の良品率100%達成を目指す。また、装置の製造コストを算出するとともに、将来的にマザーガラスのスケールアップへの対応を目的とした調査に供する。



※写真;ガラスパウダによるレーザ溶接封止実験

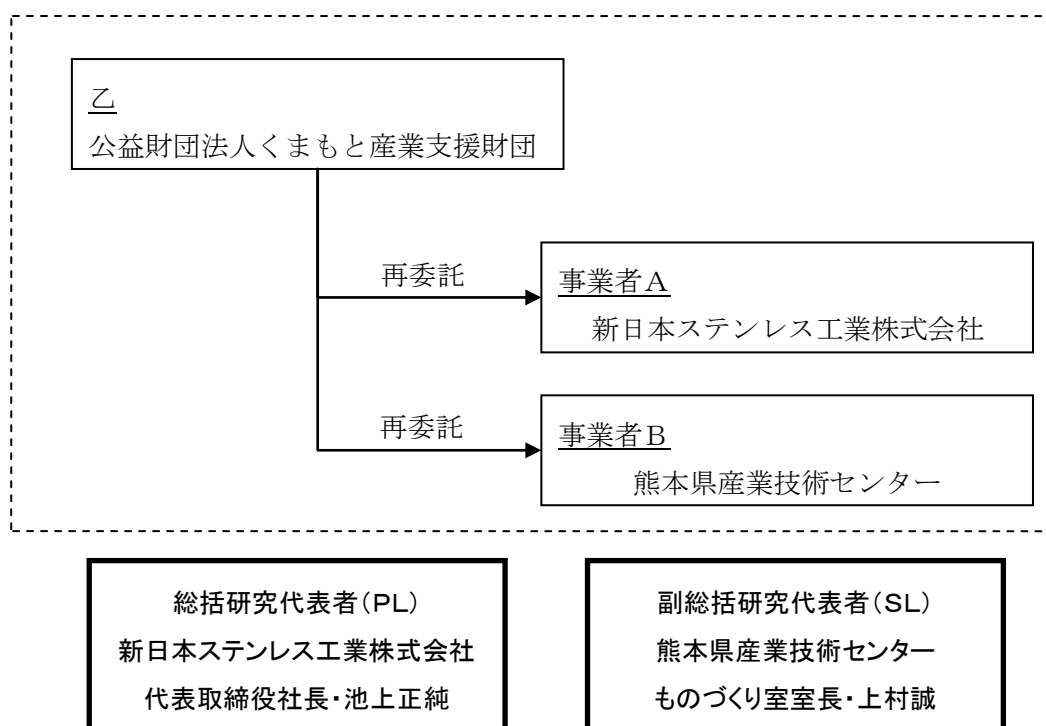
- | |
|---|
| <p>①塗布時に飛散した余分なフリットによるガラスの浮き</p> <p>②フリットの量の制御不良
(高さ不均一による未溶着部の発生)</p> <p>③光の反射・吸収が不安定(加熱が不均一)</p> <p>④溶媒成分による加熱中のアウトガス</p> <p>⑤加熱中のスパッタの飛散</p> <p>⑥基板の割れ</p> |
|---|

図 1-2-1 ガラスフリット封止の現状の問題点

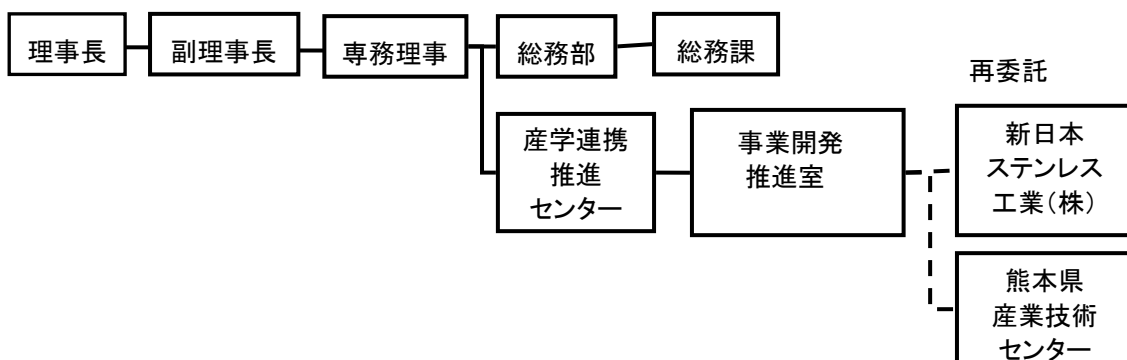
1-3. 研究体制

1-3-1. 研究組織

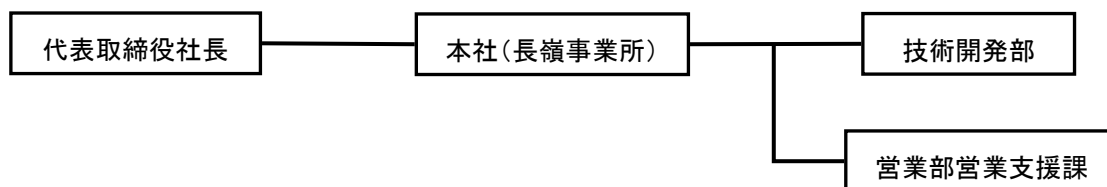
本事業は、事業管理団体を公益財団法人くまもと産業支援財団が管理し、総括研究代表者を中小企業である新日本ステンレス工業株式会社 代表取締役社長 池上 正純が務め、副総括研究代表者を熊本県産業技術センター ものづくり室 室長 上村 誠として、以下の図のような管理体制で進めた。



1-3-2. 管理体制（事業管理機関；公益財団法人くまもと産業支援財団）



1-3-2. 管理体制（再委託先；新日本ステンレス工業株式会社）



1-3-2. 管理体制（再委託先；熊本県産業技術センター）



1-4. 管理員および研究員（丸中の数字は2章の実施項目の中分類番号に相当）

1-4-1. 管理員（公益財団法人くまもと産業支援財団）

氏名	所属・役職	実施内容(番号)
井手 方史	産学連携推進センター 事業開発推進室 総括審議役	⑫
木村 孝志	産学連携推進センター 事業開発推進室 室員	⑫

1-4-2. 研究員（再委託先）

（再委託先：新日本ステンレス工業株式会社）

氏名	所属・役職	実施内容(番号)
池上 正純	代表取締役社長	④、⑥、⑦、⑧、⑨、 ⑩、⑪
中村 要	工場長	④、⑥、⑦、⑧、⑨、 ⑩、⑪
李世鐘	技術開発部一般社員	④、⑥、⑦、⑧、⑨、 ⑩、⑪

（再委託先：熊本県産業技術センター）

氏名	所属・役職	実施内容(番号)
上村 誠	ものづくり室室長	③～⑪
甲斐 彰	ものづくり室研究主任	③～⑪
濱島 英樹	ものづくり室研究主任	④～⑨
百田 寛	ものづくり室研究主任	③～⑪
村井 満	ものづくり室研究員	④～⑪
重森 清史	技術交流企画室研究主任	⑩
藤浦 雅子	非常勤研究員	④～⑨

1-5.指導・協力者名及び指導・協力事項

1-5-1. 推進委員会

本事業は外部推進委員会と内部推進委員会を設置し、研究遂行のための助言と指導、および協力を得る体制を構築している。

(外部推進委員)

氏名	所属・役職	備考
松下 満樹	株式会社東海産業 取締役	アドバイザー
森園 靖浩	熊本大学 工学部 マテリアル工学科 准教授	アドバイザー
豆野 和延	株式会社シュウテック 技術顧問	アドバイザー
平賀 靖英	平田機工株式会社 執行役員 (技術本部開発担当)	アドバイザー

(内部推進委員)

氏名	所属・役職	備考
柏木 正弘	熊本県産業技術顧問	
坂田 俊一	くまもと産業支援財団 産学連携推進センター長	
木村 孝志	くまもと産業支援財団 産学連携推進センター 事業開発推進室 室員	委
池上 正純	新日本ステンレス工業株式会社 代表取締役社長	
中村 要	新日本ステンレス工業株式会社 工場長	委
李世鐘	新日本ステンレス工業株式会社 一般社員	委
上村 誠	熊本県産業技術センター ものづくり室室長	

1-5-2. 研究開発から事業化までの計画

本事業を進めるにあたり、溶接材料となるガラスの成形を含む取扱、およびレーザー照射による溶接現象、有機 EL の製造装置への展開についてアドバイザーからそれぞれ助言・協力および指導を得る。図 1-5-1 は事業遂行の概念図であり、研究の 3 大項目はそれぞれを並行して実施することを示す。お互いが影響しあう部分を都度調整や補完することを目的に、初年度から最終年度まで通じて実施することを予定している。

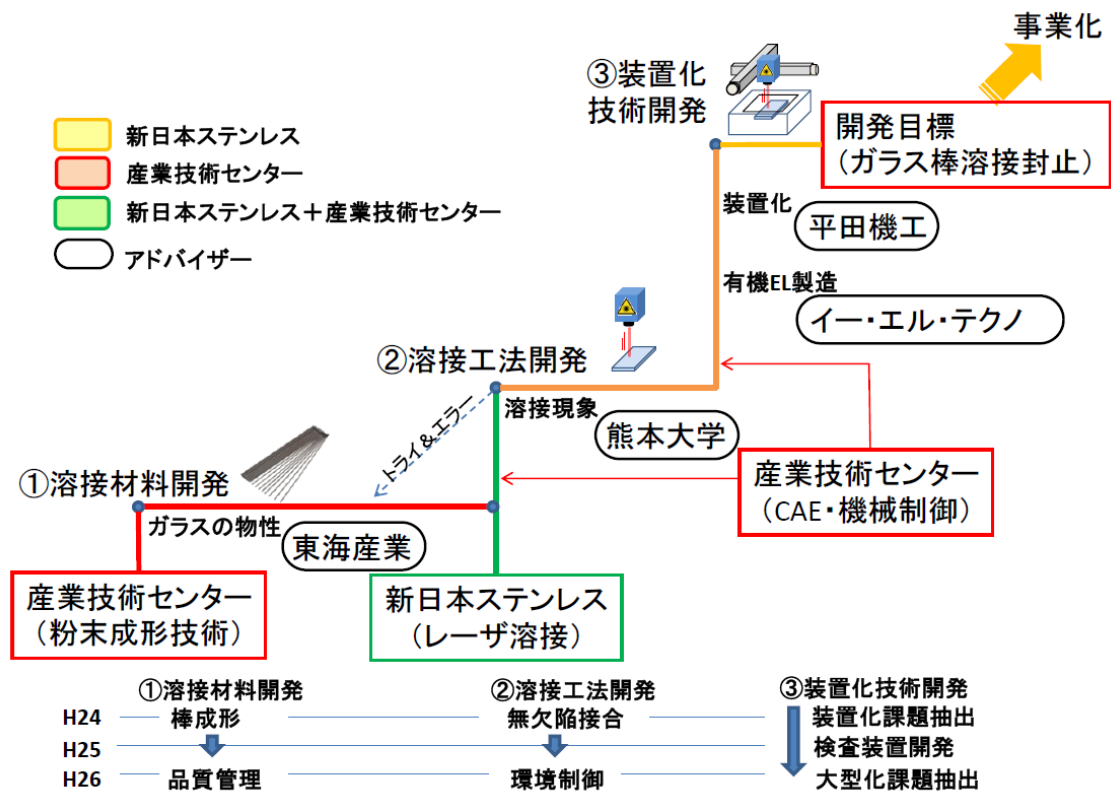


図 1-5-1 研究開発フォーメーション

1-6 成果概要

表 1-6-1 成果概要

研究課題	研究実施機関	研究目標	成果
① ガラス溶接棒の成形技術の開発	・熊本県産業技術センター	ガラス連続体の直径φ 0.2mm、長さ 100mm 以上	<ul style="list-style-type: none"> ・ガラスの調査を行いバナジウム酸系ガラスの粉を選定し、PIM 技術により棒状成形体を得た。 ・押出にメルトインデックスを利用し細線化するとともに、脱脂、焼結を最適化して目標値を有するガラス棒成形成功。 <p><u>※H25 年度に目標達成</u></p>
② ガラス溶接棒の形状最適化	・熊本県産業技術センター	ピンホールの原因となる気孔を減少させるため、成形体の密度 95% にする	<ul style="list-style-type: none"> ・溶接棒の直径を開先の形状寸法との相関も合わせて CAE によって最適条件を見出した。 ・脱脂・焼結工程を最適化して目標値を超え 98% の相対密度を達成した。 <p><u>※H25 年度に目標達成</u></p>
③ ガラス溶接棒の品質管理技術の構築	・熊本県産業技術センター	成分・湿度・熱分析などの各種評価について最適な手法の構築	<ul style="list-style-type: none"> ・焼結条件により、棒の芯と外周付近で組織と成分に差異が生じるため、脱脂・焼結雰囲気制御によりこのばらつきを解消した。 ・得られたガラス溶接棒の吸湿性が低いため、大気中での保管が可能であること確認した。 <p><u>※H26 年度に目標達成</u></p>

<p>④レーザー加熱方法の開発</p>	<p>・新日本ステンレス工業株式会社 ・熊本県産業技術センター</p>	<p>溶接部の割れの大きさが $100\mu\text{m}$ 以下（表面からの実体顕微鏡で観察できる程度以下）</p>	<p>・ガラス粉末の成形体の密度はレーザー照射による溶解および凝固（再結晶化も含む）の挙動に影響するため、最適値があることを確認した。</p> <p>・レーザー照射条件の最適化により、溶接棒の熔融時の濡れ幅を制御し、かつ基板の割れを解消（ゼロ）することが出来た。</p> <p><u>※H26年度に目標達成</u></p> <p>◎有機 EL の封止として、本接合がより優位性を発揮できる、拌み溶接の工法を新規に開発した。</p>
<p>⑤被溶接材料の開先形状の最適化</p>	<p>・新日本ステンレス工業株式会社 ・熊本県産業技術センター</p>	<p>マイクロクラック等欠陥の無い良好な溶接が得られる開先形状を見出す</p>	<p>・溶接後の残留ひずみの分布を CAE によって解析。</p> <p>・開先の溝加工で発生不可避の欠陥をガラス溶接棒の熱収縮が補う可能性が見出された。</p> <p>・矩形溝および三角溝の加工条件を最適化し、加工精度維持のための加工標準化とコスト試算を行った。</p> <p><u>※H25年度目標達成</u></p> <p>◎有機 EL の封止として、本接合がより優位性を発揮できる、拌み溶接の工法を新規に開発した。</p>

⑥ 溶接雰囲気 の制御方法 の開発	・新日本ステンレ ス工業株式会社 ・熊本県産業技術 センター	小型試作チャンバーを 製作し、真空及び置換 ガス中での溶接加工を 可能にする。	<ul style="list-style-type: none"> ・有機 EL 素子の作成に適した溶接環境雰囲気を CAE によって検証した。 ・真空環境、Ar ガス置換での加熱試験を実施した。 ・レーザー溶接に具備すべき条件を抽出し試作機の改良を実施した。 <p>※H26 年度に目標達成</p>
⑦ 残留応力 の低減およ び除去方法 の開発	・新日本ステンレ ス工業株式会社 ・熊本県産業技術 センター	ガラス内部の残留応力 および歪の測定方法の 調査・実践	<ul style="list-style-type: none"> ・CAE による残留ひずみ分布の解析を実施。 ・溶接したガラス板にひずみゲージを貼り付け、溶接の接合を外して残留ひずみを解放した時の変化量によって大きさを評価した。 <p>※H26 年度に目標達成</p>
⑧ 大型化に 関する課題 抽出	・新日本ステンレ ス工業株式会社 ・熊本県産業技術 センター	100mm 角の三次元の 解析による封止溶接の 熱応力等の解析を実施 する	<ul style="list-style-type: none"> ・レーザー加熱のパターン決定の為にガルバノスキャナの精度検証手法を構築。 ・溶接に最適な入熱量でレーザーを走査させた時の適切な溶接部の昇温速度を確保するためのヒートパターンを CAE により絞り込んだ。 ・無発光部を狭小化した有機 EL 小型デバイスをタイリングして照明を大型化することが本技術に適しており、大型化よりも高速化を進める。⑩と連動。 <p>※H26 年度に目標達成</p>

<p>⑨溶接装置の環境制御に関する課題抽出</p>	<p>・新日本ステンレス工業株式会社 ・熊本県産業技術センター</p>	<p>雰囲気制御装置を作成し、ガス置換効率を加味した作業方法の検討およびガスの流れ解析を行う。</p>	<p>・シールドガスによる局所雰囲気加工を目的とし、チャンバー内部の流れ解析を行い知見を得た。 ・溶接雰囲気制御のチャンバーを試作した。 <u>※H26年度に目標達成</u></p>
<p>⑩微小欠陥インライン検査技術の開発</p>	<p>・新日本ステンレス工業株式会社 ・熊本県産業技術センター</p>	<p>マイクロクラックやピンホールの検出に最適な手法について調査する。</p>	<p>・各種非破壊検査手法（超音波探傷法・レーザー探傷法）について有効性を検証した。 ・長さ 10 cmの溶接ラインを 8sec、分解能 10μm で検査できる検査システムを構築した。 <u>※H26年度に目標達成</u></p>
<p>⑪量産に向けた試作試験</p>	<p>・新日本ステンレス工業株式会社 ・熊本県産業技術センター</p>	<p>実用サイズの有機 EL 素子の封止工程への要求スペックを調査する。</p>	<p>・本手法の現状の一般的量産工程への適用は、重ね合わせ溶接に限られ、封止が切断工程を加味した仕様が必須と判明。 ・溶接による有機 EL の影響を検証するため、実際に発行するデバイスを作成し点灯させた。溶接部から 2 mm しか離れていないところでも発光が確認され、従来のデバイスよりも無発光部の狭小化が可能であることが示された。 <u>※H26年度に目標達成</u></p> <p>◎リード線内装型溶接棒の新規に開発。</p>

1-7 当該研究開発の連絡窓口

【事業管理者】

- ・公益財団法人くまもと産業支援財団

産学連携推進センター 事業開発推進室 総括審議役 井出 方史

TEL : 096-286-3312 FAX:096-286-3929 E-Mail:ide@kmt-ti.or.jp

産学連携推進センター 事業開発推進室 室員 木村 孝志

[TEL:096-368-2101](tel:096-368-2101) Fax:096 - 369-1938 E-mail:kimura@kumamoto-iri.jp

(熊本県産業技術センター内)

[TEL:096-286-3312](tel:096-286-3312) Fax:096 - 289-0528 E-mail:t-kimura@kmt-ti.or.jp

(くまもと産業支援財団内)

第2章 本論

2-1. ガラス溶接棒の成形技術の開発

2-1-1. ガラス粉体の棒材成形

ガラス溶接棒の素材となるガラス粉末として、従来の封止用フリットガラスよりもレーザー光の吸収効率や熱拡散性で優位と考えられるためバナジン酸系ガラスを試験材料として選定した。粉末ガラスの形状付与加工として、粉末冶金プロセスの一つである押出成形法を採用した。この手法は樹脂およびワックスなどのバインダを混合・混練した後、ダイスとよばれる金型に押し込んで任意の断面形状を形成する。得られた成形品からバインダを脱脂した後に焼結して、高密度のものを得ることが出来る。ガラス粉末の熱分析の結果から、その再結晶温度よりも低温で脱脂ができるバインダを選定し、図2-1-1に示すプロセスを適用した。本プロセスは、 $100\mu\text{m}$ 以下の無機粉末材料を流動化結合材を用いて、成形を実現するPIM (Powder Injection Molding) プロセスであり、流動化結合材内に粉体を均一分散させることにより、焼結後のバルク体が高寸法精度に製作できることを特徴としている。有機バインダとガラス粉末を1軸混合攪拌機を用いて減圧雰囲気中で混練した材料をペレット化した後、小径の成形体を得ることを目的として2軸押出機およびメルトインデックス試験装置を用いた二種類の押出成形を実施した。前者では直径1mm以下の棒が作成困難であったが、後者では0.2mm径という細線の成形が達成できた。これは成形圧力が大きくできることと、温度制御が精密なことが特徴である。成形体の真直性を確保するため、図2-1-1の工程図に示したサイジング法を工夫することにより有効長さ100mmの範囲に置いて真直性を有するガラス溶接棒の作成に成功した。図2-1-2に0.3mm径での例を示す。

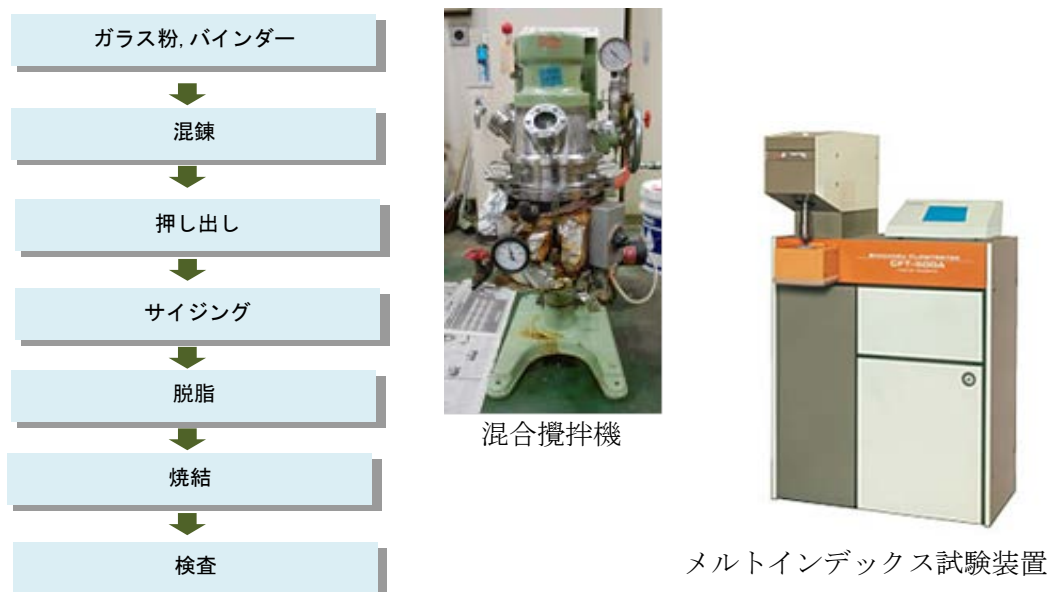


図 2-1-1 溶接棒製造プロセス

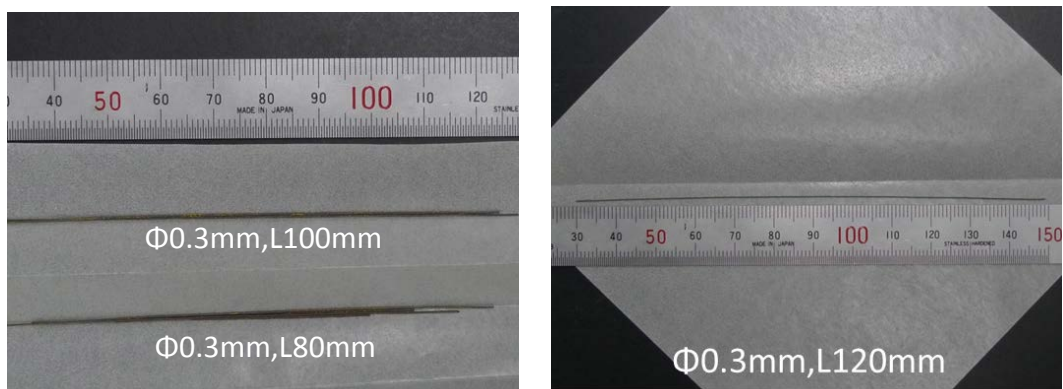


図 2-1-2 サイジングの効果

2-2. ガラス溶接棒の形状最適化

2-2-1. ガラス溶接棒の直径と開先形状

ガラス棒が溶解してガラス基板に加工された溝（開先）に濡れ広がる際の挙動について、溶接前の棒の直径が及ぼす影響を CAE（ANSYS FLUENT 14.0）の二次元の流れ解析により調査した。解析は図 2-2-1 に示すように、矩形の溝を掘ったガラス基板に蓋となるカバーガラス基板を載せたモデルとした。開先のサイズは幅 $300\mu\text{m}$ × 深さ $300\mu\text{m}$ とし、一般的なダイシングマシンを用いた場合のガラス加工の最小のサイズを適用した。熔融したガラスの接触角をパラメータとして、これが開先の縁（基板の合わせ面）まで到達することが出来なくなる条件まで計算を行う。ガラス棒の直径が $200\mu\text{m}$ および $150\mu\text{m}$ 、 $100\mu\text{m}$ における凝固後の解析の結果を図 2-2-2~図 2-2-4 に示す。

適度の接触角があれば、ガラス棒は開先の断面積よりも十分に小さい断面積で基板の合わせ面を封止することが出来ると判った。このことは、溶接前のガラス棒が基板を浮き上がらせることがなく加工が出来ることを意味する。バナジン酸塩ガラスパウダの熔融時のガラス基板上での濡れ広がり調査するため、パウダの塊を 700°C に昇温させ溶解凝固させたものを図 2-2-5 に示す。側面の観察写真から液相になったバナジン酸塩ガラスの接触角度は 45° 未満と推定される。

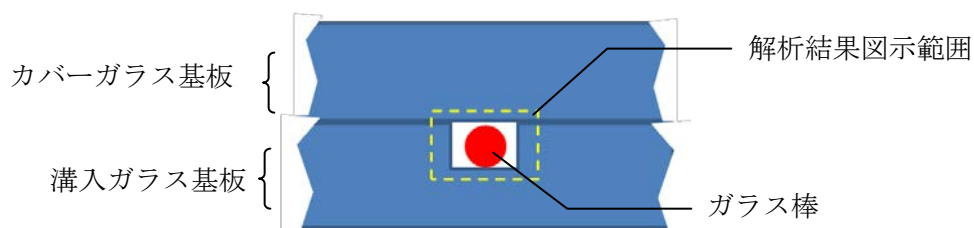


図 2-2-1 ガラスの濡れ広がり解析のモデル

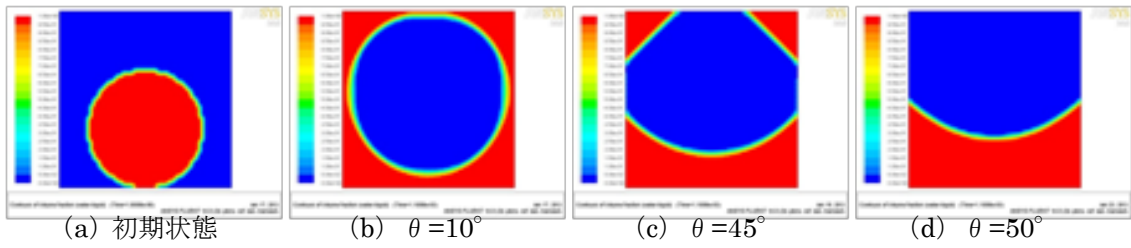


図 2-2-2 ガラス棒直径 200 μm の濡れ広がり解析

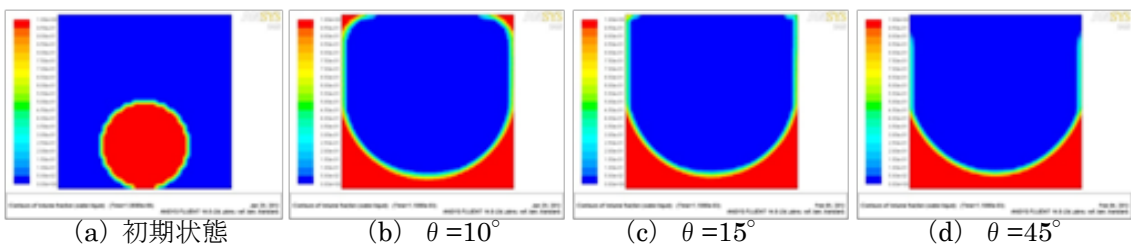


図 2-2-3 ガラス棒直径 150 μm の濡れ広がり解析

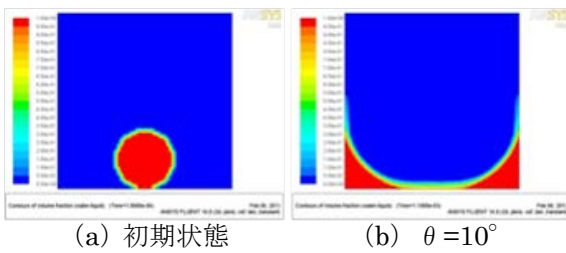


図 2-2-4 ガラスの濡れ広がり解析のモデル

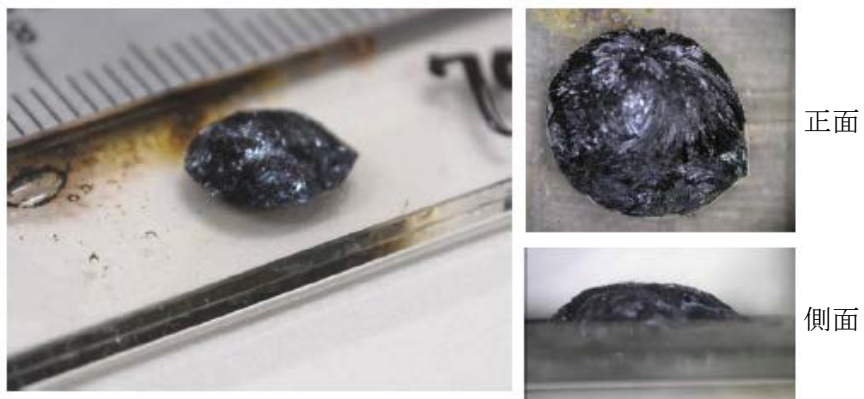


図 2-2-5 700°C に加熱後冷却したバナジウム酸塩ガラスの濡れ広がり状況

2-2-3. ガラス棒の密度制御

溶接の欠陥（ブローホール、ピンホール）を防ぎ、レーザー光の吸収率と熱伝導の制御を行うためには、ガラス溶接棒の密度を高くする必要があると考えられる。そこで、図 2-2-1 に示す熱処理方法を用いて種々のガス圧および加熱温度で実験を行い、焼結収縮率と焼結密度の制御実験を行った。その結果、ガラス棒の相対密度が 98%まで向上する条件を見出した。

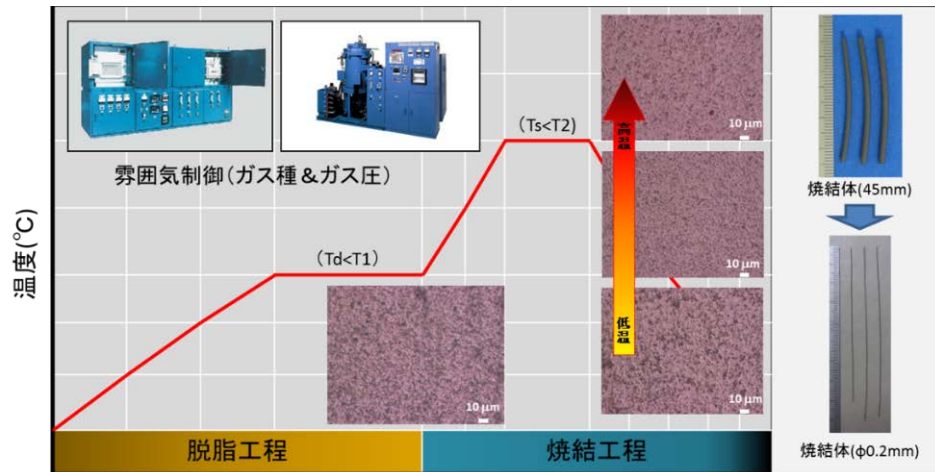


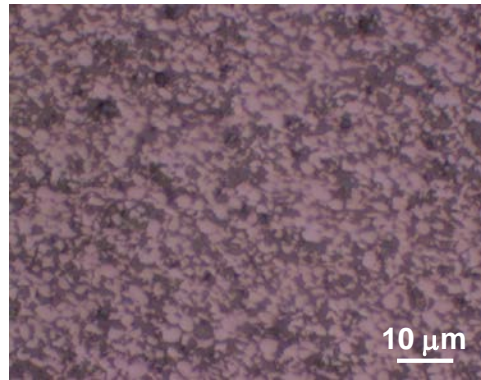
図 2-2-6 成形体の熱処理プロセスと焼結密度制御

2-3. ガラス溶接棒の品質管理技術の構築

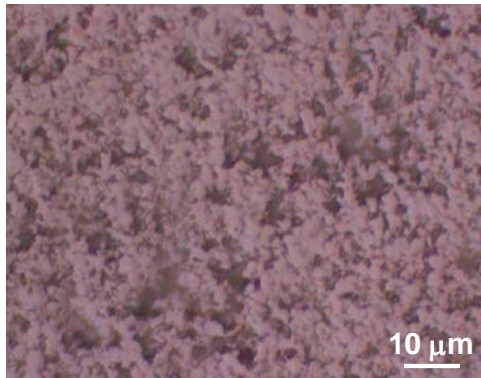
2-3-1. ガラス棒の成分および組織

ガラス棒の成形および焼結の成分および組織への影響について、光学顕微鏡による断面観察を行った。バナジン酸塩ガラス棒について、脱脂後および異なる焼結温度（水準 1～3）で作成したものを切断してエポキシ樹脂に包埋させ、観察する断面を研磨して得られた光学顕微鏡観察写真を図 2-3-1 に示す。薬品によるエッチングは施しておらず、脱脂前にバインダが占めていた部分は写真中で黒い模様となって表れており、密度に差異があることがわかる。

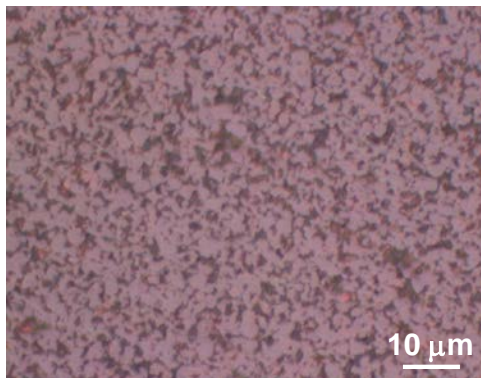
(a) 脱脂のみ



(b) 焼結温度水準 1



(c) 焼結温度水準 2



(d) 焼結温度水準 3

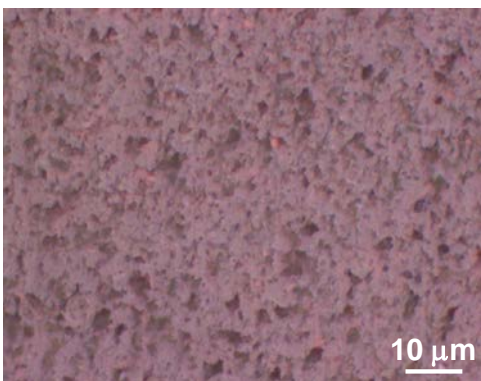


図 2-3-2 ガラス溶接棒の光学顕微鏡観察組織

2-3-2. 製造時における品質管理項目

作成したガラス溶接棒の品質管理方法について、試作時の寸法形状および密度のバラつきから標準化を行った。管理項目を質量及び棒径としてその仕様を表 2-3-1 に示す。

表 2-3-1

管理項目	方法と仕様
質量(mg)	単位長さを 50mm とし、その総重量を mg 単位で測定 8.5mg 以上 (φ0.3mm)
棒径(μ m)	100mm 長の溶接棒の 4 等分線 3 箇所について測定 それぞれに±15 μ m 以内

2-3-3. 吸湿による水分量に関する品質管理

一般的に溶接では溶加材やフラックスに吸湿した水分量がピンホールやブローホールの要因となるため、湿度が重要な管理項目とされている。そこで、ガラス溶接棒の湿度に対する品質管理基準を構築するために、恒温恒湿器（エスペック株式会社 PL-4KPH-E）を用い高温高湿の環境暴露を行い、所定時間経過後に加熱乾燥式水分計（株式会社エー・アンド・デイ ML-50）を用いて水分率の計測を実施した。比較基準として、問題なく封止に使用できている溶接棒（サンプル A）の水分率は 2.0% であり、これは焼結後に恒温恒湿室の標準状態で数日間保管されたものである。高温高湿度の環境に任意の時間で暴露したサンプル B およびサンプル C の水分量に変化は見られなかった（表 2-3-2）。このことから、ガラス溶接棒は吸湿に対して耐性があり、湿度の高い雰囲気であっても水分量は増加しないことから、湿度に関して特別な品質管理基準を設ける必要はなく、保管が容易な材料であることが示された。

表 2-3-2

サンプル	環境制御の内容	水分率※
A	焼結後、標準状態（20℃、RH50%）にて数日間保管	2.0%
B	恒温恒湿器内（40℃、RH98%）に 1 時間	2.0%
C	恒温恒湿器内（40℃、RH98%）に 72 時間	2.0%

※水分率は、W-D/D（W:乾燥前試料質量、D:乾燥後試料質量）を用いた。

2-4. レーザー加熱方法の開発

2-4-1. ガラス成形体の密度とレーザー照射による溶融の挙動

本研究開発事業で用いるレーザー照射装置（住友重機メカトロニクス JK200FL+ガルバノスキャナを図 2-4-1 に示す。

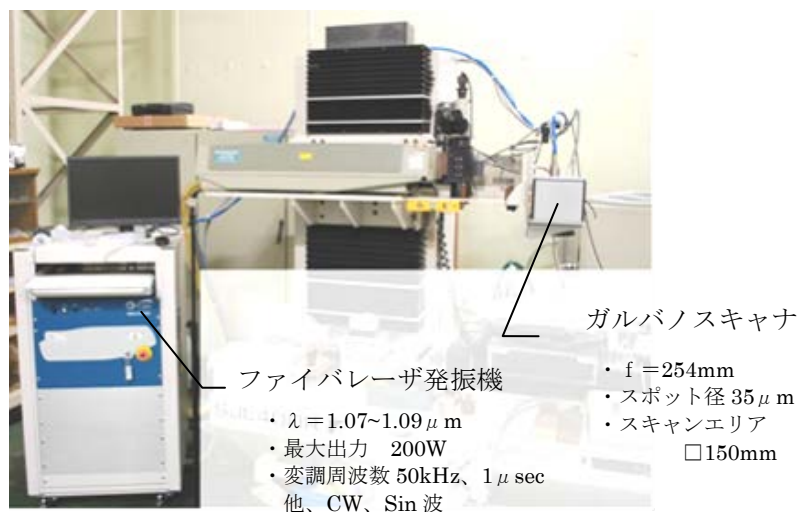


図 2-4-1 レーザー照射装置の外観

照射の対象として成形体の密度が異なるよう、a) ガラスの溝にパウダを詰め込んだもの（粉末まま）1.2、b) プレスを用いて圧縮したもの 2.0、c) プレスした後焼結したもの 2.7、d) バルク材 3.7、の 4 種類を用意した。成形体の密度は He ガスを用いた乾式自動密度計を用い、粉末のままの状態は高密度（容器への充填密度）を測定した。

レーザー強度、スキャンスピード、デフォーカス量をパラメータとして実験を行い、連続する溶接ビードが得られるレーザー照射条件を見出した。溶接ビードの外観を図 2-4-2 に示す。スポット径はデフォーカス量によって変更できるものの、スポット内における強度に分布があるため、レーザー強度を下げるとビードの幅が狭くなる。

また、密度がプレス成形体 (b) はレーザー強度大の条件において材料が溶融凝固してできた溶接ビードの内側に、針状の組織のある再結晶領域が形成されている。これは溶解した際に嵩が減ることにより、溶接ビードが母材から浮いて空隙が生じたため、熱が伝熱で拡散することなく溶接ビード内に滞留した結果、冷却速度が低下し中心部で再結晶が生じたものと考えられる。一方、密度が高い焼結体(c)やバルク材(d)は溶融時の体積変化が比較的少なく、伝熱による熱拡散があるため溶接ビード幅が小さくなり、再結晶も起こりにくい条件になったと考えられる。なお、パウダ (a) のレーザー照射強度大の条件において、図 2-4-3 のように、凝固したガラス粉末が蓋のガラス基板に付着しており基板には溶接ビードよりも一回り大きな割れが確認された。これは、溶融池へのガラス粉末供給が断たれたため、溶接ビードが小さくなり熱が集中したものと考えられる。

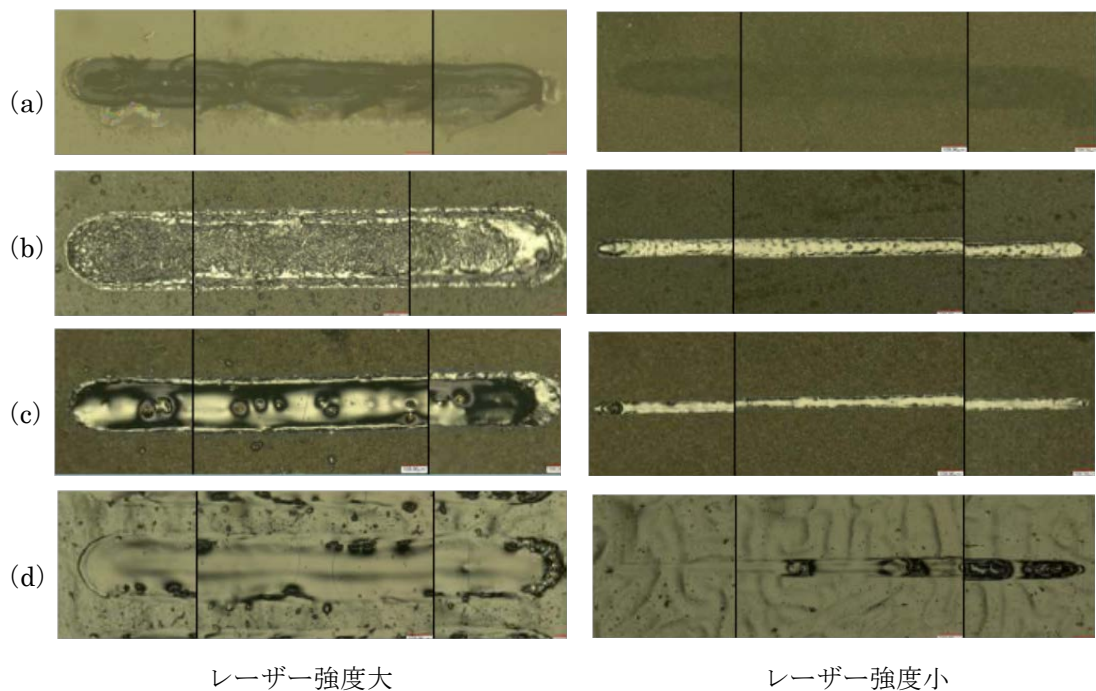


図 2-4-2 密度およびレーザー照射強度による溶接ビードの違い



図 2-4-3 カバーガラス基板に付着したガラスパウダ（合わせ面を観察）

2-4-2. CAE によるレーザー照射中の熱応力状態の評価

図 2-4-1 に解析モデルの概要を示す。解析は、レーザー光に垂直な A 断面、レーザー光に平行な B 断面について 2 次元解析を行った。図 2-4-5 にそれぞれの温度分布及び最大主応力と最小主応力を示す。これにより、レーザー光の走査により、レーザー受光部が照射直前に引っ張り力を受けた後、照射直後には圧縮になる急激な変動があることや、基板の合わせ面でカバー側の基板が大きな圧縮力を受けていることが分かった。

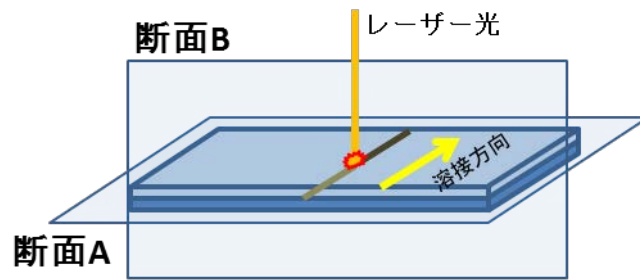


図 2-4-4 解析モデルの概要

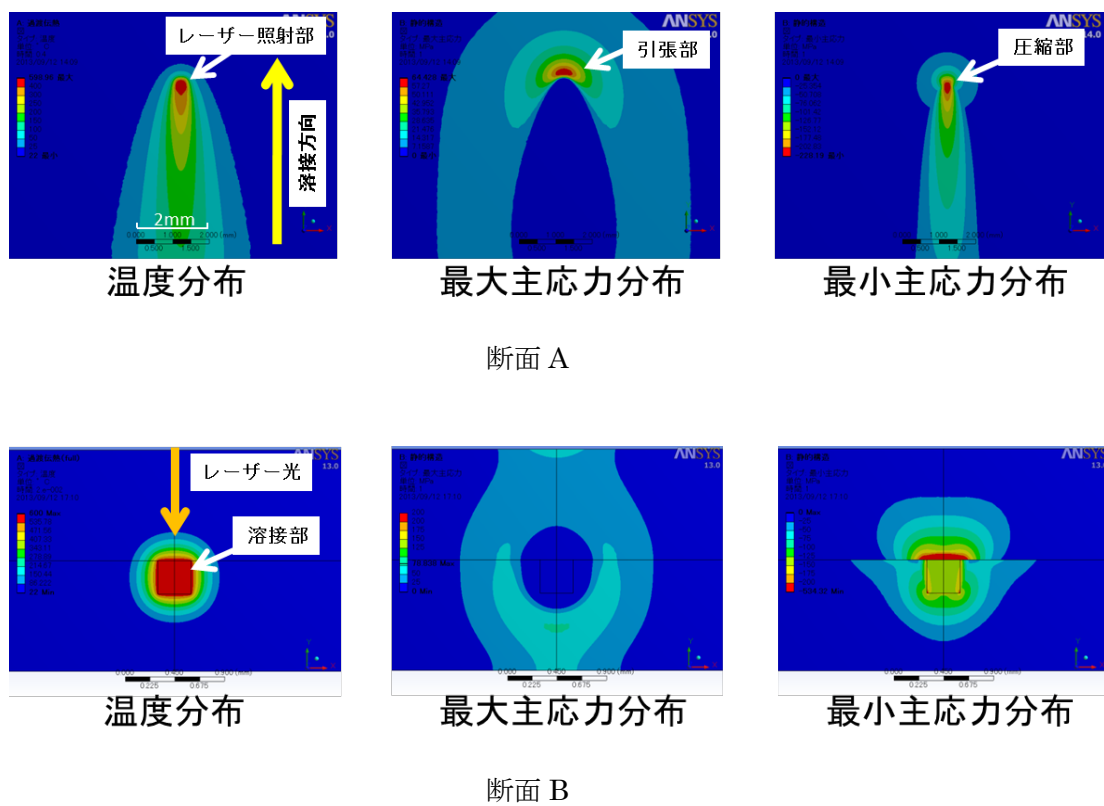


図 2-4-5 レーザー照射の 2 次元解析結果

2-4-3 ガラス棒へのレーザー照射実験

ガラス溶接棒に対するレーザー照射実験を行った結果を図 2-4-6 に示す。図はカバーガラス側越しの観察像である。下段の不良状態はパウダをレーザー照射したものと同じようにカバーガラスに飛散しながら付着し、基板に多くのクラックを発生させている。レーザーの照射条件を最適化し、同図上段の良好状態の溶接を得た。ガラス溶接棒は円形断面であるため、線接触であり基板への濡れが細くなるが、レーザー照射条件の最適化によって幅広く濡れるようできる (図 2-4-4(a))。また、同図(b)に示すように、カバーガラスのクラックを極力抑えることができた。

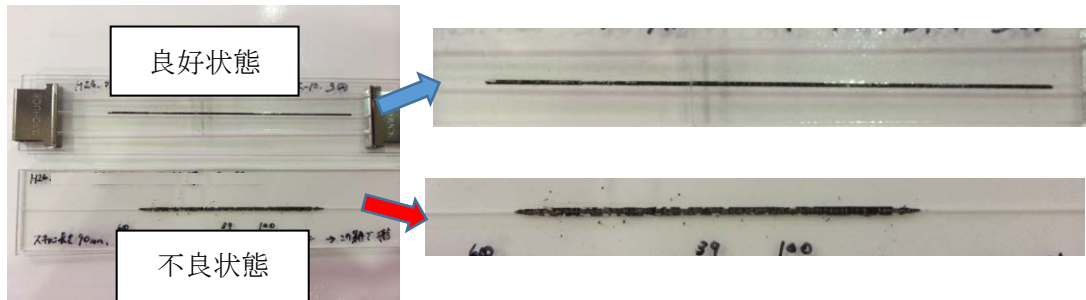
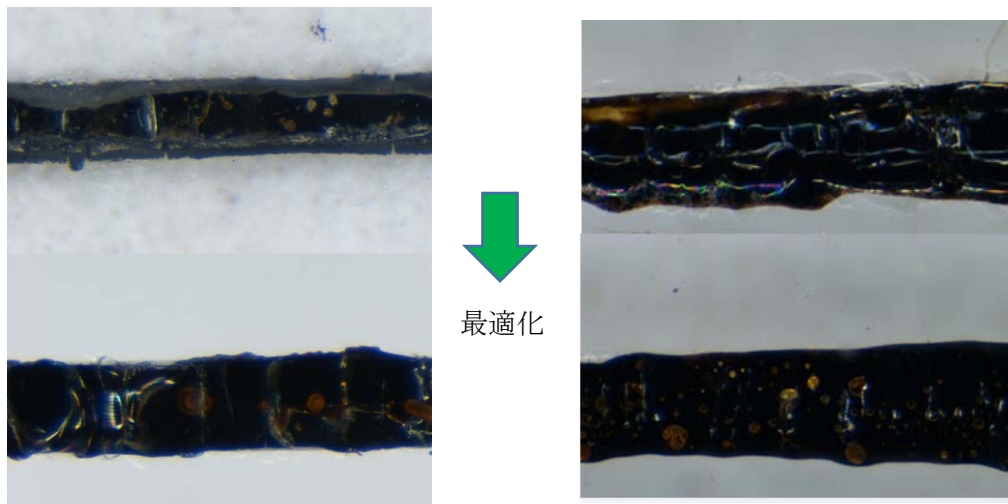


図 2-4-6 直線状に溶接した状態



(a) 濡れ幅の改善

(b) カバーガラスのクラック抑制

図 2-4-7 ガラス溶接棒のレーザー照射条件の最適化

2-4-4. 高速スキャンによる均熱昇温の CAE 解析による検討

レーザー加熱によってガラス溶接棒を均熱昇温させることは、熱応力の不均一を生じさせないために重要と予想される。そこで、ガラス溶接棒を昇温可能なレーザー出力を用いて、均熱昇温が可能か否かについて 100mm 角ガラス基板の縁にレーザーを反時計回りに走査させる条件で CAE 解析を実施した。図 2-4-8 に示す解析結果より約 1 秒間で溶接部を周回することが必須で、現状のスキャン速度では溶接部全体を均熱することは困難であることが分かった。現在のガルバノスキャナでは、その速度が達成できないことから、走査長をコントロールする手法を考案し CAE によってその効果は把握できたものの、一般的なガルバノスキャナでは不可能な走査軌跡を実現する必要があるため、そのためには新たな CAM プログラムを作成する必要があることが分かった。

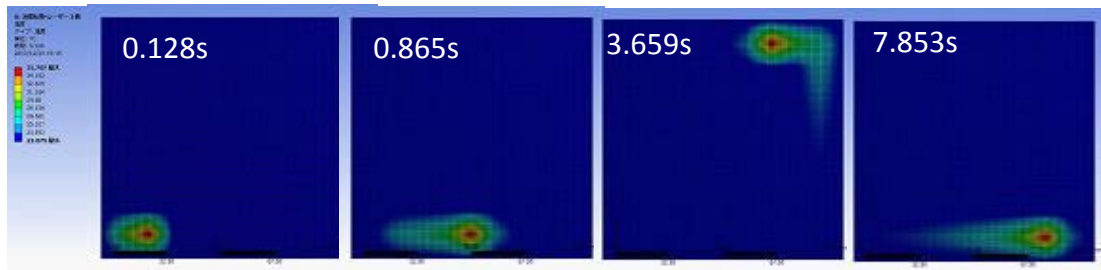


図 2-4-8 レーザー走査部の温度分布

2-5. 被溶接材料の開先形状の最適化

2-5-1. CAE による開先形状が及ぼすガラス溶接棒の濡れ広がりへの影響

ガラスの基板に刻んだ溝を溶接の開先とし、これに直径 $200\ \mu\text{m}$ の溶接棒を設置して溶融させた場合のガラスの濡れ広がりについて、CAE (ANSYS FLUENT 14.0) の流れ解析による評価を行った。幅 $300\ \mu\text{m}$ 、深さ $300\ \mu\text{m}$ の矩形開先溝の解析結果を図 2-5-1 に示す。接触角度 θ が 45° 以下であれば、溶解したガラス溶接棒は立ち壁を登り、封止が必要な基板の合わせ面の隅を塞ぐ事が出来る。一方、開先が浅く、溶接前にガラス溶接棒が上下の基板に接している場合 (図 2-5-2) は基板の接合は可能であるが、基板の合わせ面の隅に届かない結果が得られた。封止の性能としては前者の方が望ましいと考えられる。

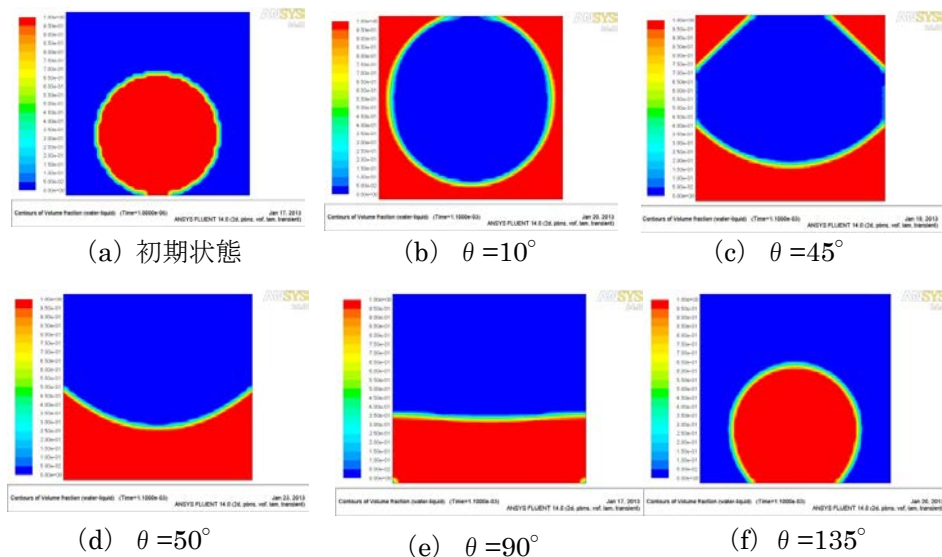


図 2-5-1 矩形開先 ($300 \times 300\ \mu\text{m}$) 内における溶接棒の濡れ広がり解析

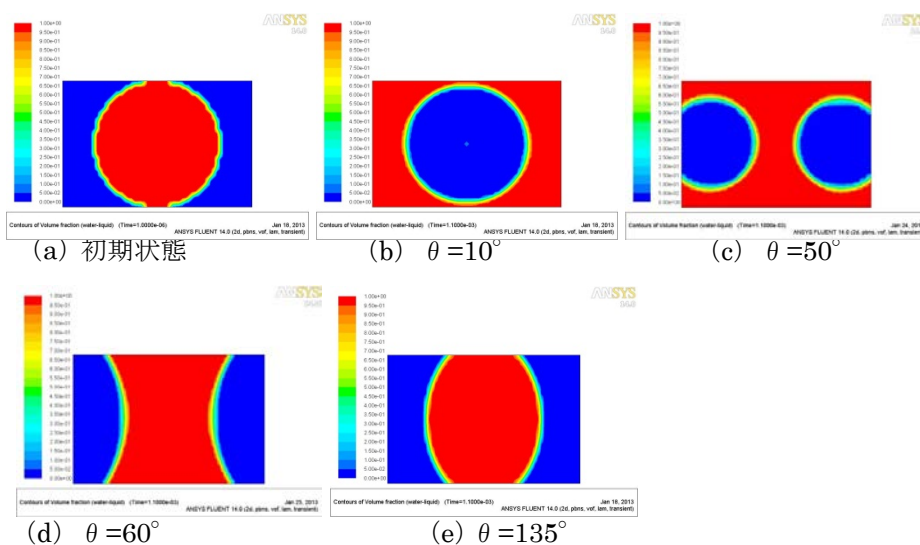


図 2-5-2 矩形開先 ($300 \times 200 \mu\text{m}$) 内における溶接棒の濡れ広がり解析

幅 $600 \mu\text{m}$ 、深さ $300 \mu\text{m}$ の三角形開先溝における解析結果を図 2-5-3 に示す。接触角度 θ が 40° 以下であれば先の解析と同様、溶解したガラス溶接棒は立ち壁を登り、封止が必要な基板の合わせ面の隅を塞ぐ事が出来る。

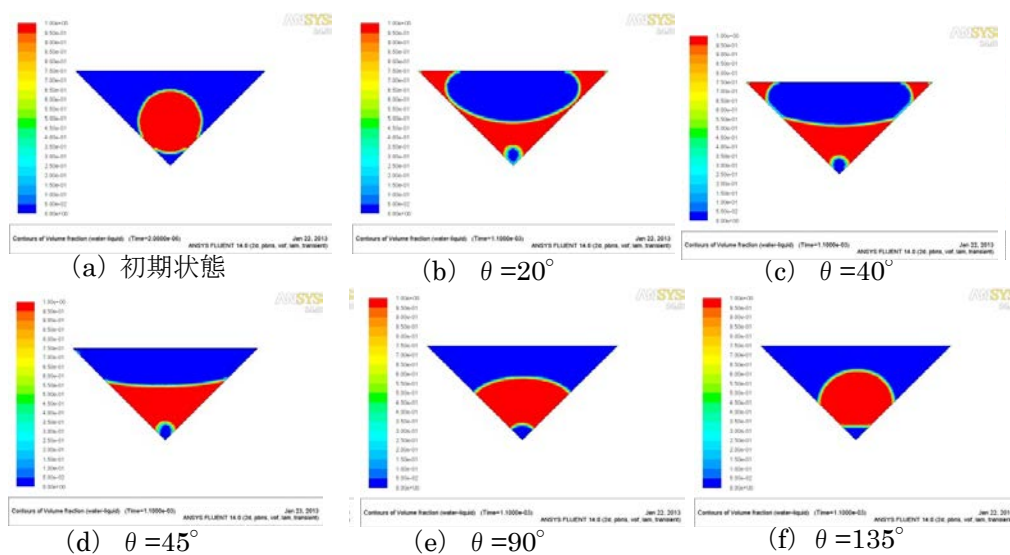


図 2-5-3 三角形開先 ($600 \times 300 \mu\text{m}$) 内における溶接棒の濡れ広がり解析

2-5-2. 白板ガラス加工実験とコスト試算

CAE による最適化された溝形状の情報を基に、研削加工によって矩形溝及び三角溝を作成する。図 2-5-4 に示すように研削加工条件の不適によって発生する欠陥は溝の縁のチップング、溝の底面に発生する送り方向に垂直なき裂であり、これらは溶接品質を左右する。そこで、研削条件を最適化するために、砥石の送り速度と切り込み量の二つをパラメータ

として加工実験を行い評価した。

本研究開発におけるガラス溶接棒の線径が $\phi 0.2\text{mm}$ であり、これに対応した寸法精度(溝幅)の溝を、100mm 角基板の素子封止に必要な4辺に溝加工を実施した。その例を、図 2-5-5 に示す。なお、加工のコストはプロファイルを維持するためのドレッシングの頻度に大きく影響され、両 V 砥石はストレート砥石に比べ 5000Pass を超えた時点で2倍のコスト高になることが分かった。

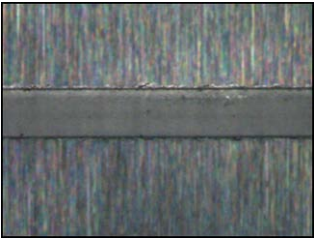
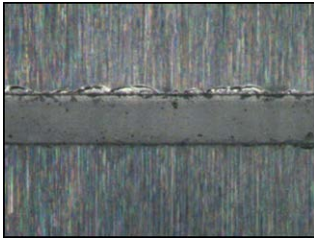
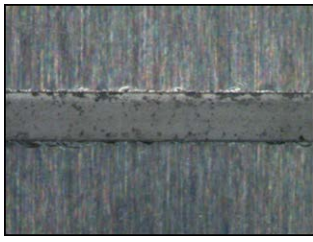
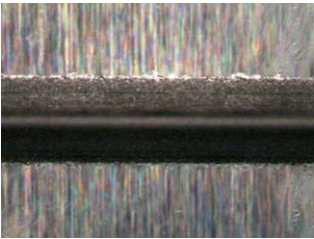
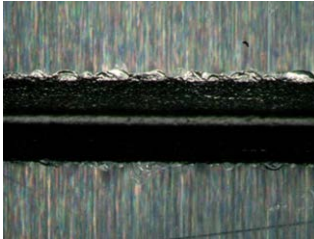
	(正常) 最適条件	(欠陥) チッピング	(欠陥) 底面き裂
矩形			
三角			

図 2-5-4 良好な研削加工溝と欠陥の事例

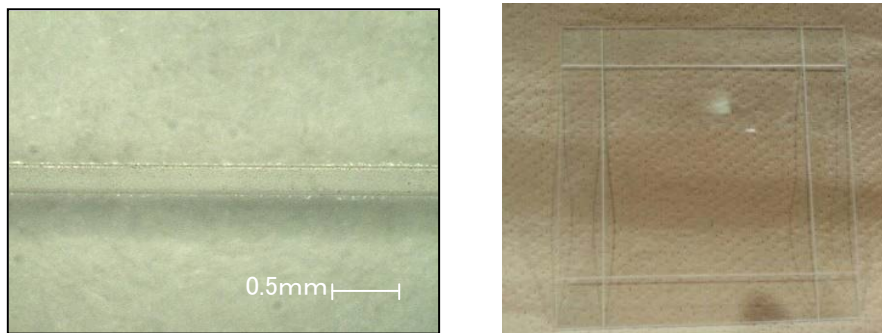


図 2-5-5 矩形溝の4辺施工例

2-6. 溶接雰囲気制御方法の開発

2-6-1. 雰囲気制御装置の製作

当該装置は、塵埃、酸素、水分などに対する耐性が低い有機 EL 素子を非真空の条件下で封止するため、ワーク周辺の局所環境雰囲気を生成するガスシールドが可能な仕様とした。図 2-6-1 に作成した環境制御装置を示す。真空排気系およびアルゴンと窒素ガスを導入する配管システムを備え、そのガス圧力は $\pm 1.0\text{kgf/cm}^2$ でパーシャル制御が可能である。

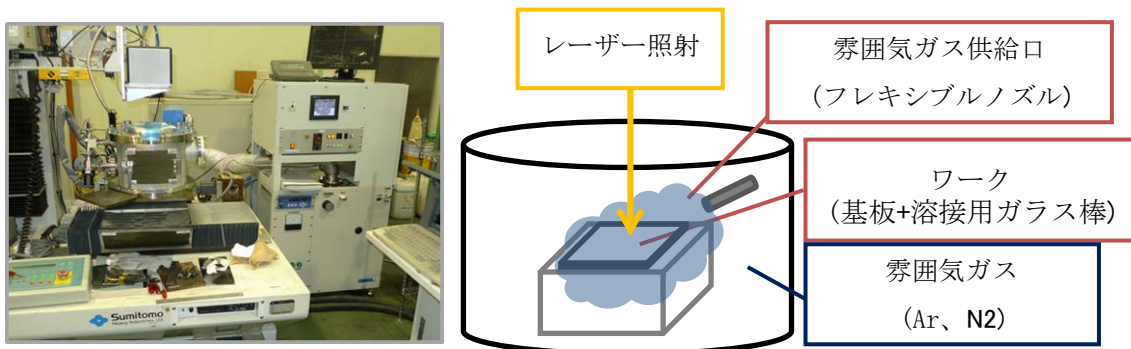


図 2-6-1 雰囲気制御装置外観と概略図

2-6-2. 各種環境下におけるガラス溶接棒のレーザー照射時の挙動

溝付白板ガラスの溝にガラス溶接棒を静置し、光学ウィンドウを有する雰囲気制御装置チャンバーの中に置き、各種環境（大気、Ar 雰囲気、真空）の中でレーザー照射による溶融実験を行った。溶融後チャンバーから取り出し、光学顕微鏡によって観察した写真を図 2-6-2 に示す。真空中で溶融させるとスパッタおよびフィッシュアイの発生が見られた。これは、ガラス溶接棒内にある成分あるいは残存ガス（ピンホール含む）が溶融時の高温において、内部との圧力差ため膨張が促進されたことに由来すると考えられる。一方、大気中と Ar 雰囲気中のものには大きな差異がみられず、周囲のガラスの変質も確認されないことから溶接自体には酸化を防ぐガスシールドの必要性は特にないものと考えられる。

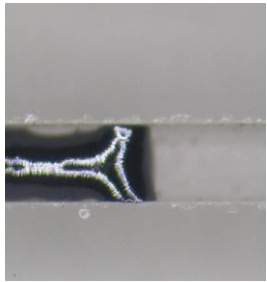

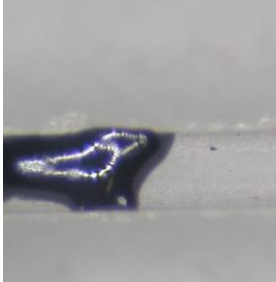
環境	大気中	真空 -0.1MPa	アルゴン
光学顕微鏡による拡大観察			

図 2-6-2 各種雰囲気環境下でレーザー照射した溶接棒

2-6-3. レーザー照射時の温度分布に及ぼす雰囲気の影響

図 2-6-2 にアルゴンガス雰囲気 1 気圧（大気圧）でガラス溶接棒温度を変化させた時の解析結果を示す。これによると、温度分布の傾向はほぼ同じであるが、ガラス基板の熱伝導率が低いことに起因して熱は基板方向ではなく雰囲気方向へ拡散することがわかる。すなわち、雰囲気により保温や冷却の制御が可能ということが推察される。

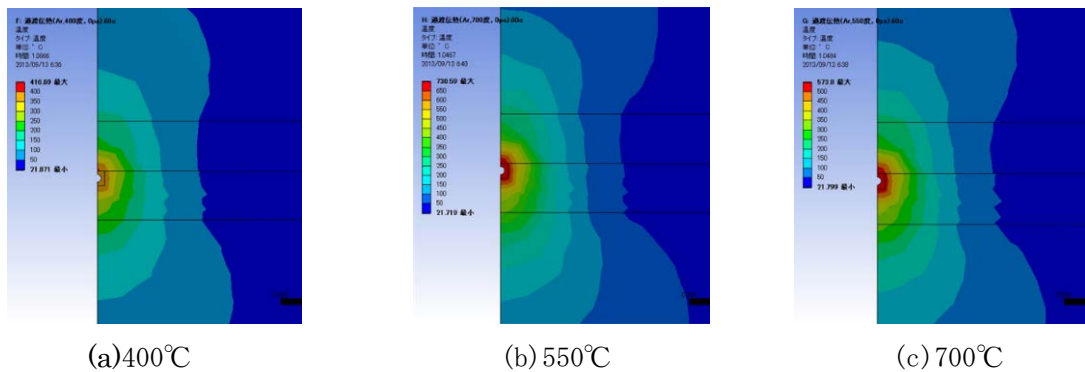


図 2-6-2 ガラス棒初期温度による 1 秒後の温度分布の違い (1 気圧 Ar 雰囲気中)

さらに、ガラス溶接棒温度を 700°C、雰囲気ガスが窒素の雰囲気圧力の違いによる熱拡散の差異に関する結果を示す。これにより、圧力が大きい方、熱拡散が大きいことが確認できた。その結果を図 2-6-4 に示す。

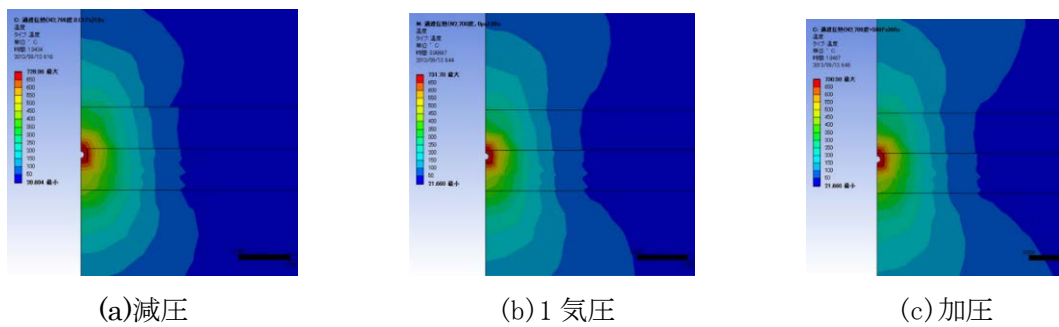


図 2-6-3 雰囲気圧の熱拡散への影響

2-7. 残留応力の低減および除去方法の開発

2-7-1. CAE によるガラス溶接部・開先近傍の断面における残留ひずみ分布の解析

ガラス基板および溶接部の残留ひずみを CAE によって見積もった。溶接棒となるバナジン酸塩ガラスも白板ガラス同じ物性であると仮定し計算を行った。300 μm \times 300 μm の矩形開先に ϕ 200 μm の溶接棒が接触角 10° で濡れ広がった解析結果 (図 2-5-1 (b) に相当) を用いて、レーザー照射を受けて開先の四隅に濡れ広がった溶接棒が伝熱によって冷却され固化した瞬間に 300°C であったと仮定する。その後、壁面への伝熱によって熱がガラス基板に移動した 0.02 秒後の温度分布 (図 2-7-1 (a)) をひずみ 0 の初期状態として、冷却により全ての要素が常温に到達するまでを計算した。解析の結果を図 2-7-2(b)、(c) に示す。

引張の応力・ひずみは材料のき裂発生や破壊を生じさせるため、最大主ひずみに着目する必要がある。解析結果 (同図 (a)) によれば、溶融固化ガラスの隅の頂点部分に引張が生じているものの、濡れ広がり結果その部分は肉が厚くなっていることため、割れへの耐性が期待できる。一方、最小主ひずみ (圧縮ひずみ) は基板の開先に集中していることから、基板に溝加工によるクラックがあったとしても、そのき裂を閉じようとする力が発

生するため、有利になる可能性がある。バナジン酸塩ガラスの正確な物性は未知であるが、添加物等により熱膨張係数を制御することにより、残留ひずみを用いて欠陥の影響を低減できる可能性が示唆された。

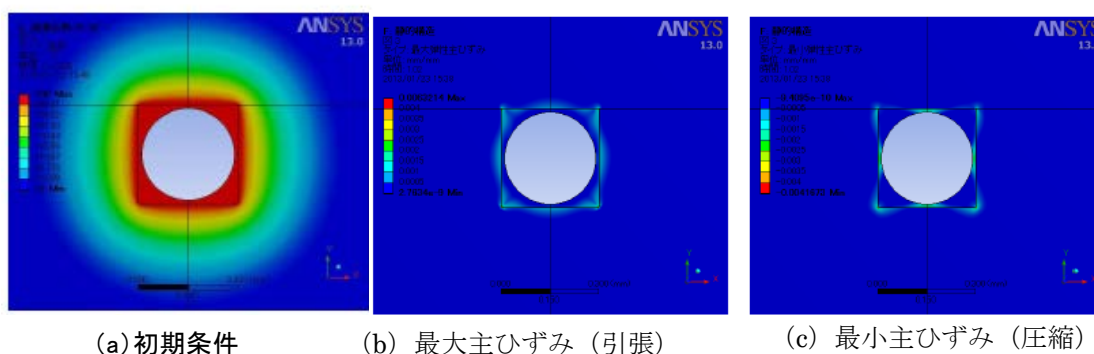


図 2-7-1 CAE によるガラス溶接部・開先近傍の残留ひずみ分布の解析結果

2-7-2. ひずみゲージによるガラス溶接部付近の残留ひずみの計測

実際の溶接部の残留応力を推定するため、ひずみゲージを用いた測定を試みた。加工時の直接測定は困難であるため、重ね合わせで一旦接合したガラス板を用い、その溶接を外力で外した時に解放されるひずみを計測した。ひずみゲージはゲージ長さ 0.2mm のものを用いて、上下二枚のガラス板の表面側に貼り付けた。測定位置は図 2-7-3 に示すように、加工溝と直行になる方向のひずみを測定するよう、溝の中心(A)、加工溝の端部(B)の二か所、さらに溝の長手方向に片面 1 枚(C)として、カバーガラスと溝入ガラスのそれぞれの外側表面の計 6 箇所とした。

初期状態をひずみ 0 として、接合部破断後（ひずみ解放）のゲージ読み取り値を図 2-7-3 に示す。測定値は $10\mu\epsilon$ 以下と極端に小さく、どのゲージも変化量は無いのとみなせる。これは、溶接のひずみ発生領域がゲージ長さ (0.2mm) よりも更に小さい可能性や、溶接部の直近でガラスが割れて外表面までひずみが伝播しない、といったゲージによる計測の限界に起因する事象が考えられる。わずかであるが、溶接方向のひずみ（ゲージ C、C'）がマイナス側（縮み）に変形していることから、接合時は軽微な引張の残留ひずみがあったものと考えられる。また、カバーガラス側と、溝加工側のガラス板の挙動に差異があるように見える。これは、ガラスの断面形状の差異および、溶融したガラスが棒状のままカバーガラス側に付着したことが影響していると考えられる。

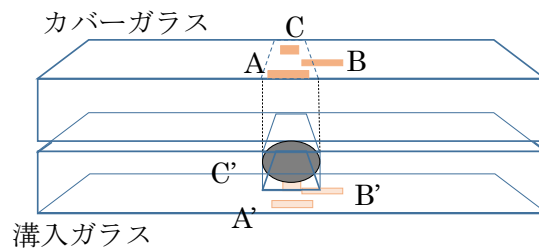
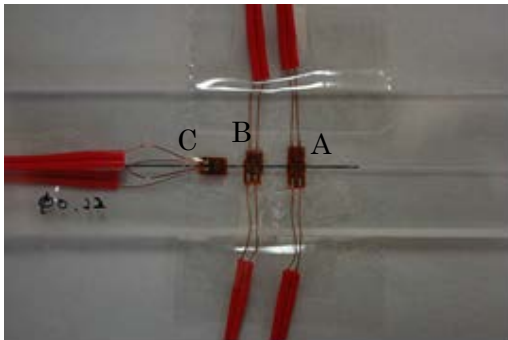


図 2-7-2 ひずみゲージを張り付けた状態（接合部分離前）

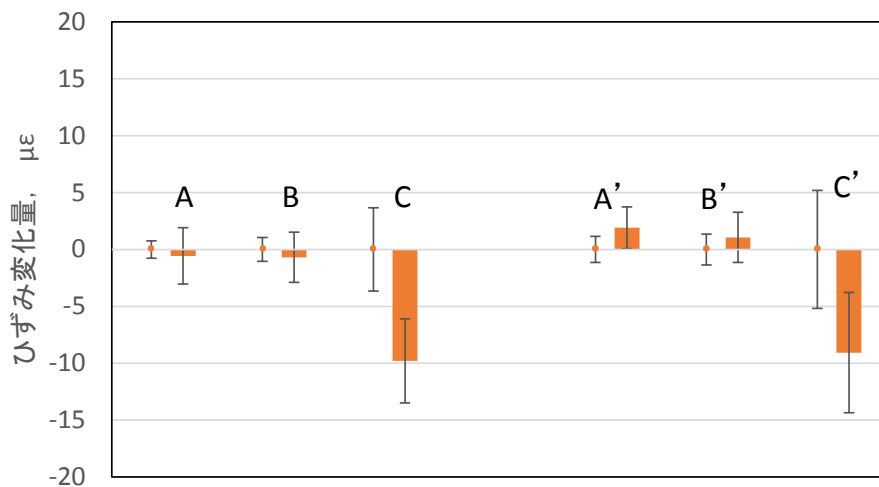


図 2-7-3 接合を外した後のひずみゲージの値

2-8. 大型化に関する課題抽出

有機 EL の大型化の動向を調査し、開発の方向性を見極める必要が生じている。すなわち大型技術の進展によりさらなる高コスト化が顕著に進んでいる現状を鑑みた場合、大型化の方向性を再考すべき時ではないかと考えられる。

当該研究開発では雰囲気調整装置を用いて最適化した封止条件を基に、真空チャンバーを装備しない手法を構築中である。極細のガラス溶接棒を利用した封止は未発光部が極小となることから、個々は小さくてもタイリングによって見かけ上大きな照明を作り得ることができる。さらに今回、押み溶接によって封止した図 2-8-1 に示す発光用試作デバイス（詳細は 2-11 節）ではエッジに発光素子を近づけることができ、かつガラス内部を水平方向に伝播した光がエッジに到達して光るといった特性を持つので、タイリングに非常に適している。この封止技術は既存の封止プロセスとは一線を画しており、コスト低減のための大型化よりもむしろ高速化を目指すべきとの判断になる。

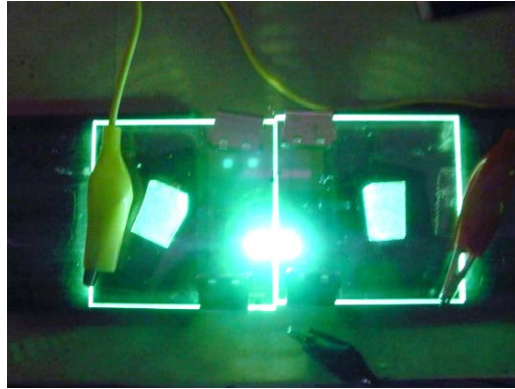


図 2-8-1 二枚並べたガラス溶接棒封止の□2 mm発光の試作デバイス (□50 mm)

2-9. 溶接装置の環境制御に関する課題抽出

2-6-2. ガスシールド機構

本研究開発では実用化を見据えて、加工チャンバーに装填・ガスパージ（または真空引き）・加工・排出といった工程を必要としないガスシールドによるエリア環境制御を目指している。そこで、ガスシールド機構の効率的な利用のためにガス導入方法について CAE によって検討を行った。解析結果を図 2-9-1 から 2-9-2 に示す。

チャンバー内に基板用ステージの高さ、ガス導入の方向や位置を検証した結果、基板を設置するステージが排気口と同程度の高さである場合に、巻き込み防止や風速および乱流エネルギー分布の均一性が良好であることが示された。導入管と基板の位置関係は主に巻き込みに影響するものと考えられ、レーザー照射光軸との兼ね合いにより妥協点を見出す必要がある。

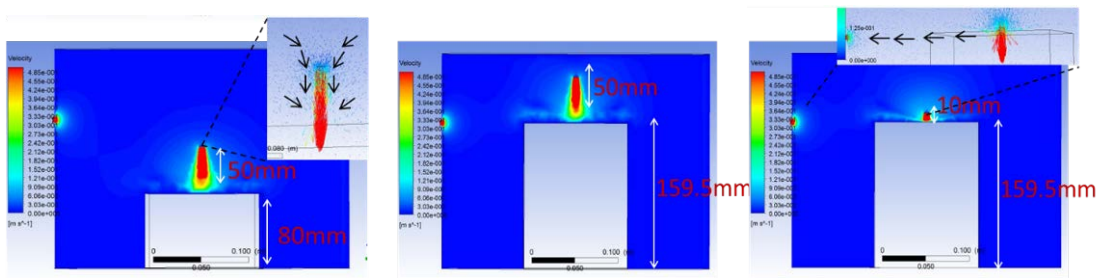


図 2-9-1 加工ステージ高さおよびガス導入距離の影響

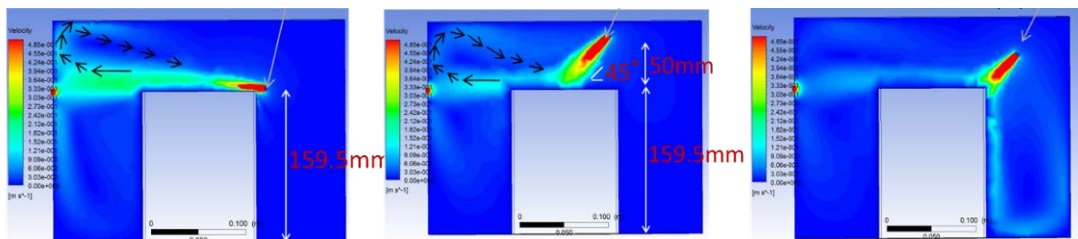


図 2-9-2 ガス吹き出し方向の影響

2-10. インライン計測システムの開発

本研究開発で制作したガラス溶接部の欠陥検出を行うインライン計測システムを図 2-10-1 に示す。構成はラインセンサーカメラと照明をユニット化した検出部とそれを走査する 1 軸ステージ、検査対象のガラスをその上面に保持する筐体、PC を主体としたコントローラーから成る。開発した欠陥検出フローと結果出力表示画面を図 2-10-2 に示す。溶接の長手方向に検出部を走査し、得られる画像を粒子解析して特異点（欠陥と認識）を抽出して赤丸で表示する。長さ 10 cm の 1 ライン溶接部の検査時間は約 8 秒であり、検出系の分解能は現時点で約 $10\ \mu\text{m}$ に設定している。



図 2-10-1 インライン計測システム外観

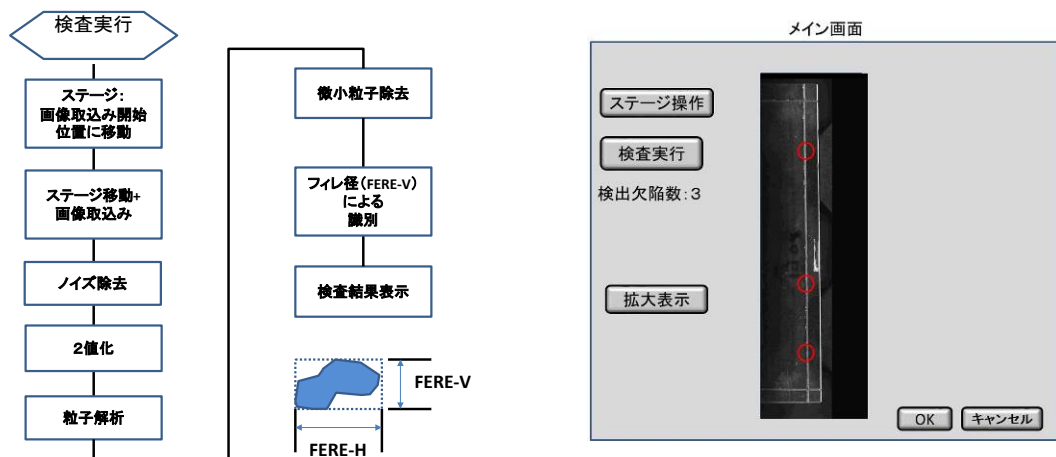


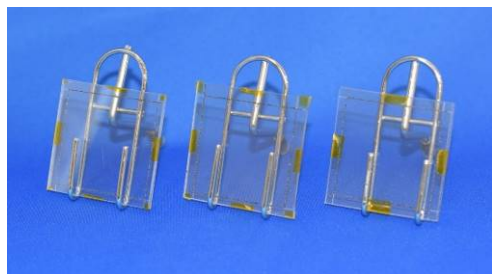
図 2-10-2 インライン計測システムの処理フローと結果表示画面

2-11. 量産に向けた試作試験

2-11-1 封止溶接の試作

これまでの成果をもとに、二枚のガラス板の周囲を全周溶接し封止の試作を行った。重ね合わせ溶接 ($\square 50\ \text{mm}$) と拌み溶接 ($\square 30\ \text{mm}$) の加工品の写真を図 2-11-1 に示す。なお、後者は ITO 膜と電極金属の蒸着膜を成膜したガラス板での試験も実施した。異なる位置および方向への溶接により発生する全体的な溶接ひずみ（応力）の影響は実加工レベルでは

検出されず、同図(a)のガラス縁に貼った小さなポリイミドテープの仮固定でもずれることなく全周の溶接ができた。



(a)重ね合わせ溶接 (□50 mm)



(b) 拌み溶接 (□30 mm)

図 2-11-1 ガラス板の四辺全周封止溶接の試作

2-11-2 発光デバイスの試作

ガラス溶接の有機薄膜層へのダメージを評価するために、発光する素子を溶接部に近接させて作成し、拌み溶接を実施した。試作したデバイスの概略を図 2-11-2 に示す。発光する素子は ITO と蒸着有機薄膜層、蒸着アルミが連なったところのみに形成されるため、同図では□50 mmのガラス板に□2 mmの発光部が二か所出現する。この発光部分は溶接部から 2 mm、4 mmの間隔で離している。同図の右側が溶接後に通电させたものであり、二か所とも光っていることからガラス棒溶接による熱やひずみは素子に大きなダメージを与えていないことがわかる。また前述の図 2-7-1 の通り、拌み溶接用に板の縁に施した開先加工の部分全周の発光が確認された。

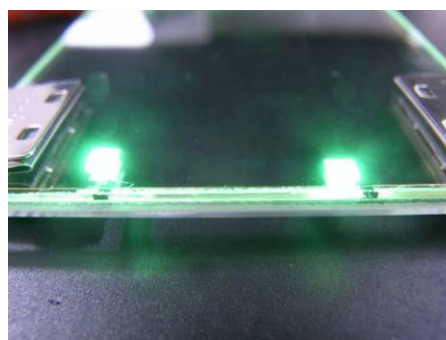
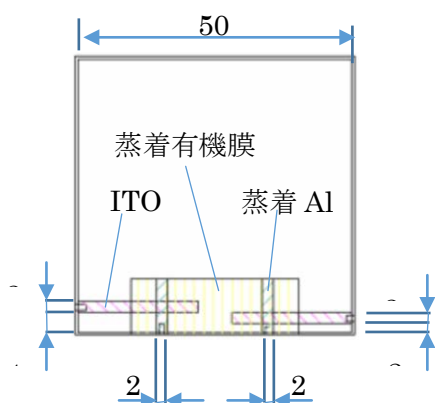


図 2-11-2 拌み溶接近隣で発光させた試作デバイス

2-11-3 リード内装型ガラス溶接棒製造プロセスの検討

従来の封止の方法では接着面積を稼ぐために未発光部が過大となり、タイリングの場合にここが格子状の暗線を作ってしまうが、リード線を封止剤に内装すれば未発光部をより狭小化できるため、タイリング時には目立たなくなる。そこで、リード線となる細い金属

ワイヤを芯としたガラス溶接棒を作成した。図 2-11-3 に示す写真は、得られたリード線内装型ガラス溶接棒の外観および断面である。図 2-11-4 にはこれを利用してガラス板を張り合わせたデモ用サンプルを示す。溶接棒は白板ガラスに濡れ広がっていることから、良好な接合が得られていること、LED に電気を供給できていることがわかる。

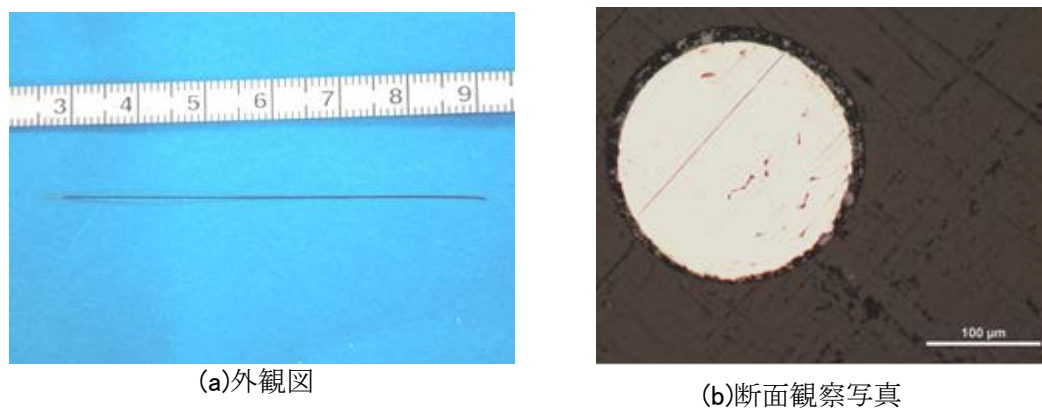


図 2-11-3 リード線内装型ガラス溶接棒

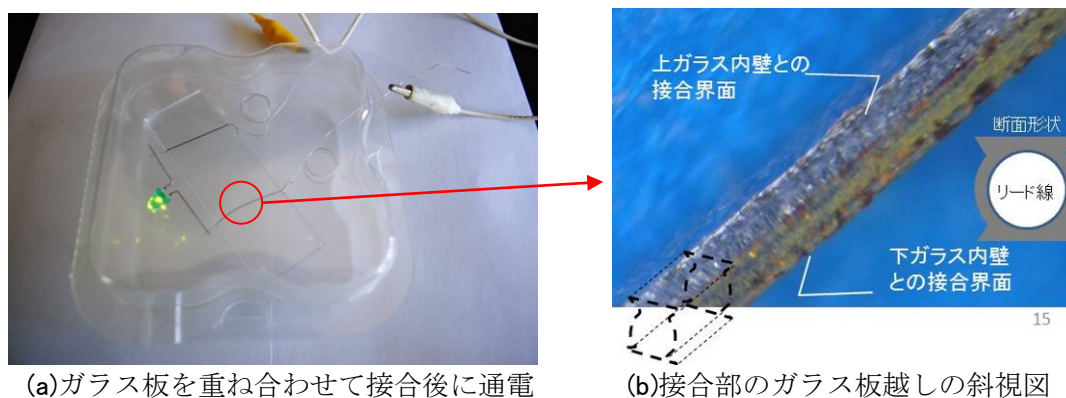


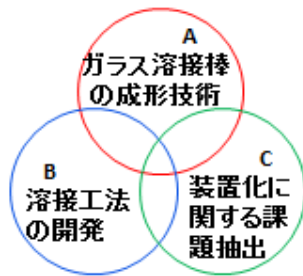
図 2-11-4 リード線内装型ガラス溶接棒による接合サンプル

第 3 章 全体総括

3-1 計画の遂行にあたって

本開発事業では、計画にあった 11 の取り組みの項目を (A) ガラス溶接棒の成形技術、(B) 溶接工法の開発、(C) 装置化に関する課題抽出、の 3 つのカテゴリに大別し、さらにそれぞれ中項目・小項目に分類して取り組んできた (図 3-1-1)。細分化された実施項目は、単独のカテゴリではなく複数に掛っており、それぞれが影響しあうようになっているため並行して手掛ける必要があった。それぞれの実施項目の結果を踏まえるだけでなく、影響しあう項目の妥協点あるいは相乗効果が見出される点を見出すことにより実験の冗長化を回避し、開発の速度を上げられたものと思われる。

- A ガラス溶接棒の成形技術
- B 溶接工法の開発
- C 装置化に関する課題抽出



カテゴリ	研究開発実施項目 (平成25年度)	関連する カテゴリ		
		A	B	C
A	①ガラス棒(成形体)の形状最適化	○		○
	②ガラス棒の形状制御(成形加工)	○	○	
	③ガラス溶接棒の品質管理技術	○	○	
B	④ガラス棒歪度とレーザー照射時の挙動	○	○	○
	⑤レーザー溶接の実証試験	○	○	○
	⑥ガラス開先の加工と性状		○	○
	⑦各種雰囲気中でガラスの挙動	○	○	○
	⑧溶接後の残留応力・歪の測定方法		○	○
C	⑨ガルバノスキャナの操作方法検証	○	○	○
	⑩環境制御システムの構築	○	○	○
	⑪欠陥計測システム設計・試作	○	○	○

図 3-1-1 研究開発事業の各実施項目の関連性

3-2 研究の成果

当初計画の課題各項目の目標値はおおむね達成できた。しかしながら、大型化については単一のデバイスで狙うよりも小型のものを並べるタイリングで目指すように方向性を修正した。これは、世界的な有機 EL の開発および市場の動向を踏まえたものであり、さらには本研究開発事業で従来品とは一線を画す有機 EL の実現可能性が見出された結果による。また、計画以外の部分で実用化のために生じた課題等に積極的にチャレンジし、新しい溶接棒（リード内装型）の発案と試作に成功した。

3-3 事業化への取り組み

近年、有機エレクトロニクスはウェアラブルやフレキシブルに利用するといった潮流があり、照明である EL も同様な製品開発が主流となっている。その一方で、無機半導体との組み合わせで高効率化を発揮する電子デバイスやセンサーが開発されており、固い基材への小さな領域での封止の技術は将来的にも必須になることがわかる。また、本研究開発事業の成果は有機 EL のみならず、ガラス接合の技術および微細ガラス成形体製造技術としてさまざまな分野への応用が期待されていることから、これらの出口をも見据えた補完研究は継続して行われる意義がある。

事業化後の売上目標を達成するための取り組みとして、川下企業の開拓を目的に、研究で獲得した成果を展示会等で積極的に広報活動を行ってきた。幅広い業種、国内外の企業や研究機関からサンプル資料の要望があるなど、手応えを感じる事ができた。