

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第3877613号  
(P3877613)

(45) 発行日 平成19年2月7日(2007.2.7)

(24) 登録日 平成18年11月10日(2006.11.10)

(51) Int. Cl. F I  
**H05B 33/10 (2006.01)** H05B 33/10  
**C23C 14/24 (2006.01)** C23C 14/24 C  
**H01L 51/50 (2006.01)** H05B 33/14 A

請求項の数 3 (全 9 頁)

(21) 出願番号	特願2002-59540 (P2002-59540)	(73) 特許権者	000001889 三洋電機株式会社
(22) 出願日	平成14年3月5日(2002.3.5)		大阪府守口市京阪本通2丁目5番5号
(65) 公開番号	特開2003-257644 (P2003-257644A)	(74) 代理人	100131071 弁理士 ▲角▼谷 浩
(43) 公開日	平成15年9月12日(2003.9.12)	(72) 発明者	中野 真吾 大阪府守口市京阪本通2丁目5番5号 三洋電機株式会社内
審査請求日	平成16年3月26日(2004.3.26)	(72) 発明者	神野 浩 大阪府守口市京阪本通2丁目5番5号 三洋電機株式会社内
審査番号	不服2005-3695 (P2005-3695/J1)	(72) 発明者	中井 正也 大阪府守口市京阪本通2丁目5番5号 三洋電機株式会社内
審査請求日	平成17年3月3日(2005.3.3)		
早期審査対象出願			

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス表示装置の製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

発光層と該発光層上に電子輸送層を設けた有機エレクトロルミネッセンス素子を備えた有機エレクトロルミネッセンス表示装置の製造方法において、

前記発光層と前記電子輸送層とを同一室内において、真空中で蒸着形成する場合に、前記発光層の材料を保持し蒸発させる第一の移動型蒸着源と、前記電子輸送層の材料を保持し蒸発させる第二の移動型蒸着源とを、前記発光層および前記電子輸送層を形成すべき基板に対して下方に離間して対向配置し、前記第一および第二の移動型蒸着源を前記基板の前記発光層および前記電子輸送層を形成すべき面に対し平行移動させながら、前記発光層と前記電子輸送層とを順次形成する蒸着工程を有し、

該蒸着工程において、前記第一および第二の移動型蒸着源のうちの一方の移動型蒸着源を平行移動させながら基板に蒸着している間、他方の移動型蒸着源は前記基板の直下から外れる位置にあって、前記一方の移動型蒸着源が基板の一端から他方の一端へ移動する工程を一歩単位としたとき、前記一方の移動型蒸着源の走査回数を偶数とし、前記一方の移動型蒸着源の前記偶数の走査が終了した際に、前記一方の移動型蒸着源を始動位置に戻すことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス表示装置の製造方法。

【請求項2】

複数の色を発光する前記有機エレクトロルミネッセンス素子が形成される有機エレクトロルミネッセンス表示装置を製造する方法であって、発光層と当該発光層上に設けられる電子輸送層を各色ごとに同一形成室で連続形成することを特徴とする請求項1記載の有機

エレクトロルミネッセンス表示装置の製造方法。

【請求項 3】

前記電子輸送層を、前記発光層形成後 10 分以内に形成することを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の有機エレクトロルミネッセンス表示装置の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、有機エレクトロルミネッセンス表示装置の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

有機エレクトロルミネッセンス表示装置（以下、単に「有機 EL 表示装置」とも言う）は、現在広く普及している液晶表示装置に代わる表示装置として期待されており、実用化開発が進んでいる。特に薄膜トランジスタ（Thin Film Transistor：TFT）をスイッチング素子として備えるアクティブマトリクス型有機 EL 表示装置は次世代平面表示装置の主演として考えられている。

【0003】

図 1 は、一画素がそれぞれ赤、緑、および青色を発光する有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、単に「有機 EL 素子」ともいう）を備える有機 EL 表示装置の、上記 3 色の画素領域の平面図の概略を示している。左から順に、赤色の発光層を備える赤色画素 R p i x、緑色の発光層を備える緑色画素 G p i x、および青色の発光層を備える青色画素 B p i x が設けられている。

【0004】

一画素はゲート信号線 5 1 とドレイン信号線 5 2 とに囲まれた領域に形成されている。両信号線の左上の交点付近にはスイッチング素子である第 1 TFT 1 3 0 が、また中央付近には有機 EL 素子を駆動する第 2 TFT が形成される。また、ホール注入電極 1 2 が形成される領域に有機 EL 素子が島状に形成される。

【0005】

一般に、有機 EL 表示装置が備える有機 EL 素子は、電子注入電極およびホール注入電極からそれぞれ電子とホールとを発光層に注入し、それらが発光層とホール輸送層との界面や、界面付近の発光層内部で再結合し、有機分子を励起状態にし、この有機分子が励起状態から基底状態に戻るとき蛍光を発光する。

【0006】

ここで、有機 EL 素子を形成する際に、発光層に用いる材料を選択することにより適当な色を発光する有機 EL 素子が得られる。また、そのような有機 EL 素子を適当に選択することでカラー表示装置が実現できる。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】

こうした有機 EL 素子の形成には、真空蒸着法が利用されることが多い。また同時に、生産性を考慮してバッチ方式により有機 EL 素子が製造されることが多い。バッチ方式で有機 EL 素子が製造される場合、その装置構成において通常、発光層の形成室と電子輸送層の形成室が分離されている。その場合、発光層形成後、その上に電子輸送層を形成するまでの経過時間が長くなり、発光層と電子輸送層の間の界面に水分子や酸素分子など有機 EL 素子の劣化の原因となる不純物が混入することがある。

【0008】

本発明は、こうした状況に鑑みなされたものであり、その目的は有機 EL 素子の劣化を抑える有機 EL 表示装置の製造方法を提示することにある。

【0009】

【課題を解決するための手段および発明の効果】

本発明の有機 EL 表示装置の製造方法は、前記発光層と該発光層上に設ける電子輸送層とを同一室内において、真空中で蒸着形成する場合に、前記発光層の材料を保持し蒸発さ

10

20

30

40

50

せる第一の移動型蒸着源と、前記電子輸送層の材料を保持し蒸発させる第二の移動型蒸着源とを、前記発光層および前記電子輸送層を形成すべき基板に対して下方に離間して対向配置し、前記第一および第二の移動型蒸着源を前記基板の前記発光層および前記電子輸送層を形成すべき面に対し平行移動させながら、前記発光層と前記電子輸送層とを順次形成する蒸着工程を有し、該蒸着工程において、前記第一および第二の移動型蒸着源のうちの一方の移動型蒸着源を平行移動させながら基板に蒸着している間、他方の移動型蒸着源は前記基板の直下から外れる位置にあって、前記一方の移動型蒸着源が基板の一端から他方の一端へ移動する工程を一走査単位としたとき、前記一方の移動型蒸着源の走査回数を偶数とし、前記一方の移動型蒸着源の前記偶数の走査が終了した際に、前記一方の移動型蒸着源を始動位置に戻すことを特徴とするものである。

10

## 【0010】

本発明の別の態様も、有機EL表示装置の製造方法に関する。この製造方法は、複数の色を発光する有機EL素子が形成される有機EL表示装置を製造する方法であって、発光層と当該発光層上に設けられる電子輸送層を各色ごとに同一形成室で連続形成する。

## 【0011】

また、電子輸送層を、発光層形成後10分以内に形成してもよい。また、発光層と当該発光層上に設けられる電子輸送層を真空中で蒸着形成し、その際、発光層の材料を保持し蒸発させる第一の移動型蒸着源と、電子輸送層の材料を保持し蒸発させる第二の移動型蒸着源とを、発光層および電子輸送層を形成すべき基板に対して下方に配置し、第一および第二の移動型蒸着源を基板の発光層および電子輸送層を形成すべき面に対し相対的に平行移動させ、発光層と電子輸送層を連続形成してもよい。

20

## 【0012】

また、第一および第二の移動型蒸着源を、基板の下方に基板の一端から他方の一端へ移動可能に対向配置し、第一および第二の移動型蒸着源を順次移動しながらそれら移動型蒸着源が保持する材料を蒸発させることで、発光層と電子輸送層を連続形成してもよい。また、第一および第二の移動型蒸着源が基板の一端から他方の一端へ移動する工程を一走査単位として、前記第一および第二の移動型蒸着源の走査回数をそれぞれ5回以内としてもよい。また、第一および第二の移動型蒸着源の走査回数をそれぞれ偶数とし、第一および第二の移動型蒸着源の走査が終了した際に、第一および第二の移動型蒸着源をそれぞれ始動位置に戻してもよい。

30

## 【0013】

## 【発明の実施の形態】

本実施の形態では、有機EL素子を真空蒸着法により形成する。上述の通り、一般的なバッチ方式で形成される有機EL素子の製造装置においては、発光層と電子輸送層は異なる形成室で形成される。本実施の形態では、発光層と電子輸送層は同一の形成室において連続して形成される。

## 【0014】

図2は、図1に示した有機EL表示装置の画素の代表的な断面構造を模式的に示している。ガラス基板10上に、ホール注入電極12、ホール輸送層16、発光層22、電子輸送層28、および電子注入電極32が積層されている。

40

## 【0015】

ホール注入電極12の材料として、ホール注入電極12の材料として、インジウム酸化スズ(ITO)や酸化スズ(SnO<sub>2</sub>)、酸化インジウム(In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)などを例示できる。

## 【0016】

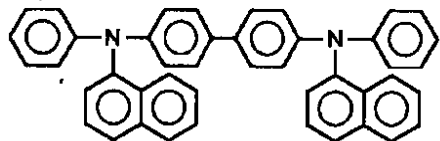
また、ホール輸送層16の材料として、N,N'-ジ(ナフタレン-1-イル)-N,N'-ジフェニル-ベンジジン(N,N'-Di(naphthalene-1-yl)-N,N'-diphenyl-benzidine:NPB)や4,4',4''-トリス(3-メチルフェニルフェニルアミノ)トリフェニルアミン(4,4',4''-tris(3-methylphenylphenylamino)triphenylamine:MTDA TA)や、N,N'-ジフェニル-N,N'-ジ(3-メチルフェニル)-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン(N,N'-diphe

50

nyl-N,N'-di(3-methylphenyl)-1,1'-biphenyl-4,4'-diamine: TPD)などを例示できる。

【0017】

【化1】

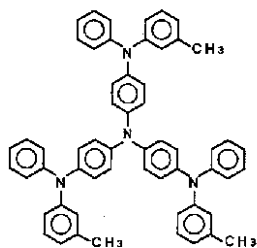


NPB

10

【0018】

【化2】

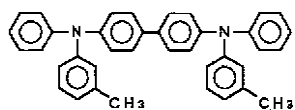


MTDATA

20

【0019】

【化3】



TPD

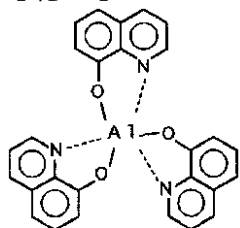
【0020】

発光層22のホストとして、アルミキノリン錯体(A1q3)やビス(ベンゾキノリノラト)ベリリウム錯体(BeBq2)を例示できる。

30

【0021】

【化4】

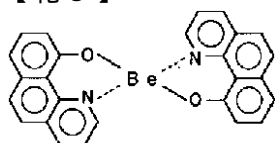


Alq3

40

【0022】

【化5】



BeBq2

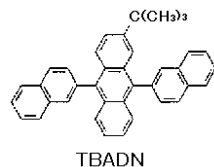
【0023】

50

一般に、キレート金属錯体を発光層の材料として形成される有機EL素子は、短い波長の色、具体的に言うと青色の発光に課題があり、そのため青色を発光する発光層には、特開2002-25770号公報に開示されているtert-ブチル置換ジナフチルアントラセン(TBADN)等のようなアセトンおよびその誘導体、またジスチルベンゼンおよびその誘導体などが発光層のホストに用いられることが多い。

【0024】

【化6】



TBADN

10

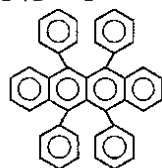
【0025】

また、発光層22は、上述のキレート金属錯体や縮合多環芳香族をホストとしてルブレンやキナクリドン(Quinacridone)およびその誘導体などのドーパントをドーブさせることで所望の発光特性が得られる。また、電子輸送層28の材料として、Alq3やBeBq2を例示できる。また、電子注入電極32の材料として、Liを微量に含むアルミニウム合金(AlLi)やマグネシウムインジウム合金(MgIn)、マグネシウム銀合金(MgAg)などが例示できる。さらに電子注入電極32として電子輸送層28に接する側にフッ化リチウムの層とその上にアルミニウムによる層が形成される2層構造の電極も例示

20

【0026】

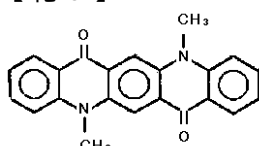
【化7】



Rubrene

【0027】

【化8】



Quinacridone

【0028】

図3は、本実施の形態に係る有機EL素子の製造方法を用いて有機材料を基板に蒸着させる際の、基板および蒸着源の位置関係を模式的に表している。図3(a)は、上方から見た平面図を示し、図3(b)は側方から見た側面図を示している。発光層の材料を保持し蒸発させる第一蒸着源62と、電子輸送層の材料を保持し蒸発させる第二蒸着源64の二つの移動型蒸着源が、ガラス基板10の下方に離間して対向配置される。これら二つの移動型蒸着源は、石英からなる容器セルが6個接続されている。また、各容器セルにはそれぞれ電気ヒータが備えられており、その電気ヒータで容器セルを加熱することで上部に設けられた開口部から各材料が蒸発する。また、それら、開口部は開閉可能となっており、蒸発源に保持される材料を蒸発すべき時期においてのみその開口部は開く構成となっている。これにより、各材料のクロスコンタミネーションが回避できる。

40

【0029】

いま、ガラス基板10にはホール輸送層が積層されている。また、所望の色に対応した発光層および電子輸送層をガラス基板10の所定の領域に形成するため、メタルマスク50

50

が置かれている。このメタルマスク50の位置を適切に調整することで、各色ごとに選択的に有機層が形成される。

#### 【0030】

まず、発光層の材料が第一蒸着源62において蒸発される。その際、第一蒸着源62はガラス基板10の一端から他方の一端まで移動する。これにより、ガラス基板10上に発光層が均等に形成される。発光層の形成が終了すると、つづいて電子輸送層の材料が第二蒸着源64において蒸発される。第二蒸着源64も第一蒸着源62と同様に移動することで電子輸送層を均等に形成する。ここで、ガラス基板10の一端から他方の一端までの工程を一走査単位としており、往復すると走査回数は2回となる。一般に、移動型蒸着源を始動位置に戻すという製造工程の関係で、走査回数は1往復ごとに、つまり偶数に設定される。

10

#### 【0031】

また、第一蒸着源62および第二蒸着源64の走査回数は、発光層および電子輸送層の蒸着レートおよび各層の膜厚によって決定する。ただし、走査回数が増えると、それだけ発光層および電子輸送層内に界面が発生する。この界面に不純物が吸着し、それが有機EL素子の劣化の要因となるので、走査回数は少ない方が好ましい。しかしながら、形成すべき層の膜厚が厚い場合、走査回数が増えてしまうことがある。したがって、走査回数に余裕を持たせることで設計の自由度が広がるメリットがある。

#### 【0032】

##### 【実施例】

20

以下、本発明を実施例をもとに詳細に説明するが、本発明はその要旨を越えない限り、以下の実施例に限定されない。また、本実施例における有機EL素子の発光層と電子輸送層は、図3で示した製造方法により形成された。再度、その方法を簡単に説明する。発光層の材料を蒸発させる第一蒸着源62と、電子輸送層の材料を蒸発させる第二蒸着源64の二つの移動型蒸着源とを、ガラス基板10の下方に対向配置する。まず、第一蒸着源62を移動させながら発光層を蒸着させる。発光層の蒸着が終了した後、第二蒸着源64を移動させながら電子輸送層を蒸着させる。

#### 【0033】

この製造方法は、形成室を複数備えるマルチチャンバー型製造装置に組み入れられており、所定の色の発光層および電子輸送層が同一の形成室で基板の上に形成された後、その基板は異なる形成室へ移動し別の色の発光層が形成される。

30

#### 【0034】

図4および図5で示す実験結果は緑色を発光する有機EL素子に関するものである。また、蒸着源の走査回数は2回、つまり1往復とした。発光層の材料は、Alq3をホストとして10%のTBADNと1%のキナクリドン誘導体がドーブされた。また、電子輸送層の材料はAlq3であった。発光層および電子輸送層の膜厚は、ともに37.5nmであった。また、ホール輸送層の材料はNPBであり、その膜厚は150nmであった。また、各材料を蒸発させる温度は、NPBでは340~350、Alq3では310~320、TBADNでは210~220、キナクリドン誘導体では220~230であった。また、形成室の真空度は略 $2 \times 10^{-5}$  Paであった。

40

#### 【0035】

図4は、発光層と電子輸送層を連続形成された有機EL素子と、連続形成されなかった有機EL素子の輝度の経時変化を示している。ここでは、初期輝度を基準とした輝度を表している。輝度の測定は、初期輝度を $800 \text{ cd/m}^2$ に設定し、電流密度 $20 \text{ mA/cm}^2$ の定電流駆動で有機EL素子を発光させることによって行った。また、図5で示す輝度の測定も同様に行った。

#### 【0036】

電子輸送層を連続して形成しない有機EL素子の輝度は、約50時間で半減した。一方、電子輸送層を連続形成した有機EL素子の輝度は、半減するに約2000時間必要とし、その特性に大きな改善が見られる。

50

## 【0037】

図5は、電子輸送層を形成する際の、移動型蒸着源の走査回数による輝度の経時変化を示している。ここで、走査回数は、上述の通り移動型蒸着源を始動位置戻すという製造工程の関係から偶数となっている。また、二つの移動型蒸着源の速度は走査回数によらず一定とした。

## 【0038】

走査回数が2回および4回の場合、輝度の経時変化はほぼ等しく、輝度が半減するまで約2000時間必要であった。一方、走査回数を8回とした場合、約30時間で輝度は半減した。また、走査回数が20回の場合、約2時間で輝度が半減した。このことから、走査回数は好ましくは5回、より好ましくは4回以内と想定できる。

10

## 【0039】

ここで、蒸着源の速度が一定であることから走査回数が増加すると、蒸着材料の蒸着レートが低下する。この結果、電子輸送層の形成時間が長くなり、界面が発生するとともに、電子輸送層への不純物の混入が大きくなっていると想定できる。これにより、走査回数が増加すると有機EL素子の劣化の進行が速くなると想定できる。

## 【0040】

以上、本実施例によれば、発光層と電子輸送層を同一の形成室で連続して形成することで、発光層と電子輸送層の間に生じる界面への不純物の混入を抑えることできる。これにより、界面の不純物が原因となり生じる有機EL素子の劣化を低減できる。

## 【0041】

また、電子輸送層を形成する際の蒸着源の走査回数を少なくすることで、同様に電子輸送層内に発生する界面を無くすことができ、これにより界面に混入する不純物が原因となり生じる有機EL素子の劣化を低減できる。

20

## 【0042】

## 【発明の効果】

本発明によれば、ホール輸送層と発光層との間、および発光層と電子輸送層との間に形成された界面をなくすことができ、その界面に起因する有機EL素子の劣化を低減できる。また、別の観点では、電子輸送層内に発生する界面を抑えることで、同様に、その界面に混入する不純物に起因する有機EL素子の劣化を低減できる。

## 【図面の簡単な説明】

30

【図1】 アクティブマトリックス型有機EL表示装置の平面図であり、特に赤、緑、および青色の3画素の領域を示した図である。

【図2】 有機EL素子の一般的な構造を示した断面図である。

【図3】 複数の容器セルからなる蒸着源と有機材料が蒸着される基板の位置関係を模式的に示した図である。

【図4】 発光層と電子輸送層を連続形成した有機EL素子と連続形成しなかった有機EL素子の輝度の経時変化を示した図である。

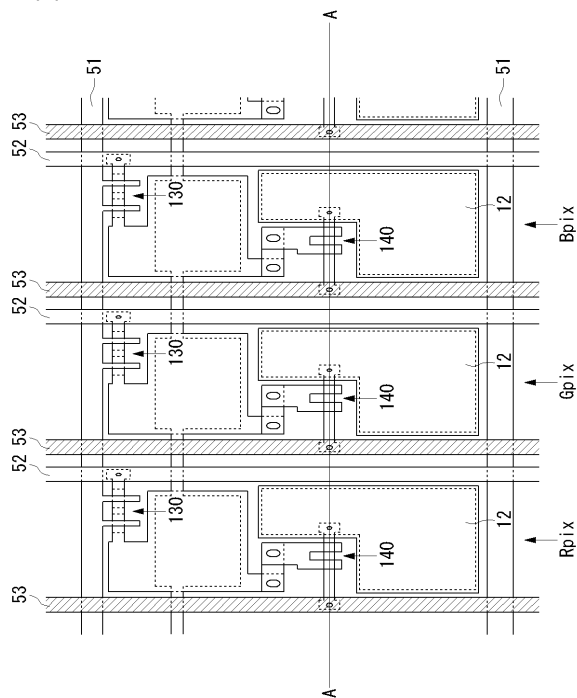
【図5】 電子輸送層を形成する際の蒸着源の走査回数の違いによる有機EL素子の輝度の経時変化を示した図である。

## 【符号の説明】

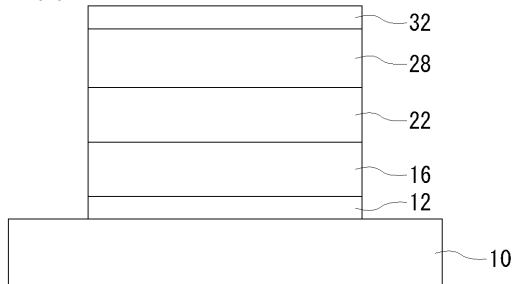
40

10 ガラス基板、 12 ホール注入電極、 16 ホール輸送層、 22 赤色発光層、  
24 緑色発光層、 26 青色発光層、 28 電子輸送層、 62 第一蒸着源、  
64 第二蒸着源、 Bpix 青色画素、 Gpix 緑色画素、 Rpix 赤色画素。

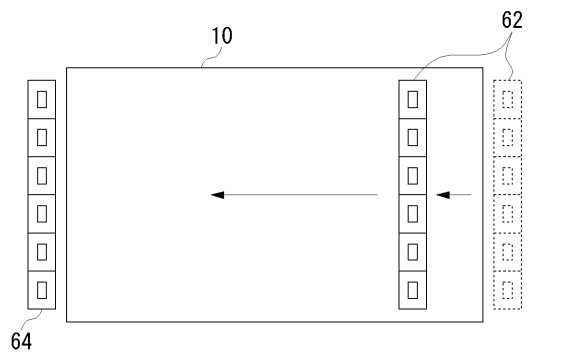
【 図 1 】



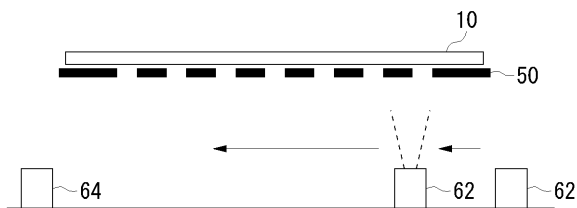
【 図 2 】



【 図 3 】

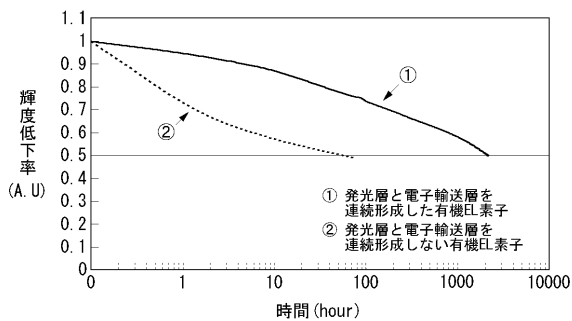


(a)

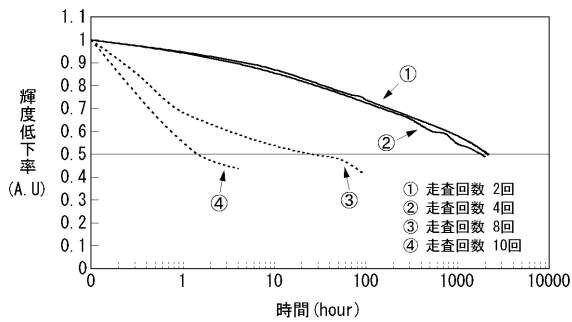


(b)

【 図 4 】



【 図 5 】



---

フロントページの続き

合議体

審判長 江塚 政弘

審判官 井口 猶二

審判官 青木 和夫

- (56)参考文献 特開2002-322556(JP,A)  
特開2003-133067(JP,A)  
特開平2001-247959(JP,A)  
特開平11-45779(JP,A)  
米国特許第6187457(US,A)  
実開昭56-160964(JP,U)

专利名称(译)	制造有机电致发光显示装置的方法		
公开(公告)号	<a href="#">JP3877613B2</a>	公开(公告)日	2007-02-07
申请号	JP2002059540	申请日	2002-03-05
[标]申请(专利权)人(译)	三洋电机株式会社		
申请(专利权)人(译)	三洋电机株式会社		
当前申请(专利权)人(译)	三洋电机株式会社		
[标]发明人	中野真吾 神野浩 中井正也		
发明人	中野 真吾 神野 浩 中井 正也		
IPC分类号	H05B33/10 C23C14/24 H01L51/50 C23C14/12 H01L51/40 H01L51/56		
CPC分类号	H01L51/56 C23C14/12 C23C14/24 H01L51/001		
FI分类号	H05B33/10 C23C14/24.C H05B33/14.A		
F-TERM分类号	3K007/AB12 3K007/AB13 3K007/AB15 3K007/AB18 3K007/DB03 3K007/FA01 3K107/AA01 3K107/BB01 3K107/CC23 3K107/FF00 3K107/GG04 3K107/GG28 3K107/GG32 3K107/GG34 4K029/AA09 4K029/BA62 4K029/BC07 4K029/CA01 4K029/DB06 4K029/DB14		
助理审查员(译)	青木一夫		
其他公开文献	JP2003257644A		
外部链接	<a href="#">Espacenet</a>		

摘要(译)

摘要：在形成有机EL元件时，在空穴传输层和发光层之间以及发光层和电子传输层之间产生的界面促进了有机EL元件的劣化。发光层的材料在第一气相沉积源中蒸发。此时，第一蒸镀源62从玻璃基板10的一端移动到另一端。由此，在玻璃基板10上均匀地形成发光层。当完成发光层的形成时，电子传输层的材料在第二气相沉积源64中蒸发。第二气相沉积源64也与第一气相沉积源62类似地移动，以均匀地形成电子传输层。

