

(19) 日本国特許庁(JP)

再公表特許(A1)

(11) 国際公開番号

W02004/062323

発行日 平成18年5月18日 (2006.5.18)

(43) 国際公開日 平成16年7月22日 (2004.7.22)

(51) Int.CI.	F 1	テーマコード (参考)
H05B 33/10 (2006.01)	H05B 33/10	3K007
H01L 51/50 (2006.01)	H05B 33/14	A
H05B 33/22 (2006.01)	H05B 33/22	Z

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 18 頁)

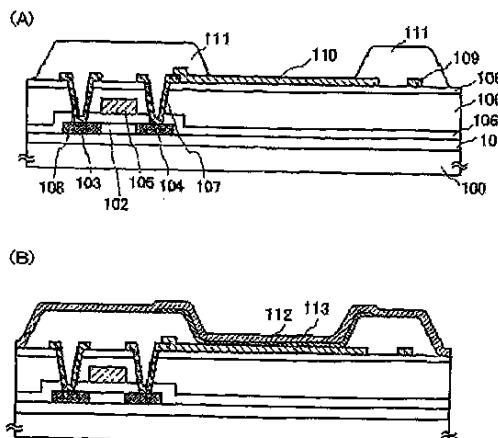
出願番号	特願2004-539103 (P2004-539103)	(71) 出願人	000153878 株式会社半導体エネルギー研究所 神奈川県厚木市長谷398番地
(21)国際出願番号	PCT/JP2003/016356	(72) 発明者	土屋 薫 日本国神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社半導体エネルギー研究所内
(22)国際出願日	平成15年12月19日 (2003.12.19)	(72) 発明者	石垣 歩 日本国神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社半導体エネルギー研究所内
(31)優先権主張番号	特願2002-380457 (P2002-380457)	(72) 発明者	斎藤 恵子 日本国神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社半導体エネルギー研究所内
(32)優先日	平成14年12月27日 (2002.12.27)	F ターム (参考)	3K007 AB18 BA06 DB03 EA00 EB00 FA01 FA03 GA00
(33)優先権主張国	日本国 (JP)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】表示装置の作製方法

(57) 【要約】

発光素子におけるショーリングや発光ムラ等の不良モードの発生を抑え、また、有機化合物を含む層(EL層)の成膜の前処理に必要とされる時間を短縮させるため、本発明では、薄膜トランジスタのソース領域またはドレイン領域と電気的に接続された前記第1の電極を形成し、第1の電極の端部を覆うように絶縁膜を形成し、第1の電極と前記絶縁膜に対し、アルゴン及び酸素を含む雰囲気中でプラズマ処理を行った後、前記第1の電極及び前記絶縁膜上に有機化合物を含む層を形成し、前記有機化合物を含む層上に第2の電極を形成することによって発光素子を形成することを特徴としている。



【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

薄膜トランジスタと、発光素子とを有する表示装置の作製方法において、
 ソース領域またはドレイン領域と電気的に接続された第1の電極を形成し、
 前記第1の電極の端部を覆うように絶縁膜を形成し、
 前記第1の電極と前記絶縁膜に対し、アルゴン及び酸素を含む雰囲気中でプラズマ処理を行った後、前記第1の電極及び前記絶縁膜上に有機化合物を含む層を形成し、
 有機化合物を含む層上に第2の電極を形成することによって前記発光素子形成することを特徴とする表示装置の作製方法。

【請求項 2】

10

薄膜トランジスタと、発光素子とを有する表示装置の作製方法において、
 ソース領域またはドレイン領域と電気的に接続された第1の電極を形成し、
 前記第1の電極の端部を覆うように絶縁膜を形成した後、前記第1の電極及び前記絶縁膜に対し、洗浄を行い、
 前記第1の電極と前記絶縁膜に対し、アルゴン及び酸素を含む雰囲気中でプラズマ処理を行った後、前記第1の電極及び前記絶縁膜上に有機化合物を含む層を形成し、
 有機化合物を含む層上に第2の電極を形成することによって前記発光素子形成することを特徴とする表示装置の作製方法。

【請求項 3】

20

薄膜トランジスタと、発光素子とを有する表示装置の作製方法において、
 ソース領域またはドレイン領域と電気的に接続された第1の電極を形成し、
 前記第1の電極の端部を覆うように絶縁膜を形成し、
 前記第1の電極及び前記絶縁膜に対し、真空加熱を行い、
 前記第1の電極及び前記絶縁膜に対し、アルゴン及び酸素を含む雰囲気中でプラズマ処理を行った後、前記第1の電極及び前記絶縁膜上に有機化合物を含む層を形成し、
 有機化合物を含む層上に第2の電極を形成することによって前記発光素子形成することを特徴とする表示装置の作製方法。

【請求項 4】

30

請求項3において、前記真空加熱の温度は、100°C～250°Cであることを特徴とする表示装置の作製方法。

【請求項 5】

請求項3において、前記真空加熱のとき、真空中度は、 1×10^{-4} Pa以下であることを特徴とする表示装置の作製方法。

【請求項 6】

請求項3において、前記第1の電極及び前記絶縁膜に対し、真空加熱を行い、前記第1の電極及び前記絶縁膜に対し、アルゴン及び酸素を含む雰囲気中でプラズマ処理を行った後、前記第1の電極及び前記絶縁膜上に有機化合物を含む層を形成し、有機化合物を含む層上に第2の電極を形成することは、真空状態またはアルゴン及び酸素を含む雰囲気中において、連続的に順次行うことを特徴とする表示装置の作製方法。

【請求項 7】

40

請求項1乃至請求項3のいずれか一において、前記第2の電極は陰極であり、かつ前記陰極は抵抗加熱法またはスパッタ法で形成することを特徴とする表示装置の作製方法。

【請求項 8】

請求項1乃至請求項3のいずれか一において、前記絶縁膜はポリイミド、アクリル、ポリアミド、ポリイミドアミド、レジストまたはベンゾシクロブテンであることを特徴とする表示装置の作製方法。

【発明の詳細な説明】**【技術分野】**

本発明は、エレクトロルミネッセンス（以下、ELと略す）素子を基板上に作り込んで形成された表示装置に関する。特に有機EL素子の製造方法に関する。

50

技術背景

近年、自発光型の発光素子としてEL素子を有した表示装置の研究が活発化しており、特に、EL材料として有機材料を用いた表示装置が注目されている。この表示装置はELディスプレイとも呼ばれ、液晶表示装置と異なり自発光型であるため視野角の問題がないという特徴がある。

EL素子は一対の電極間に有機物を含む層（EL層）が挟まれた構造となっており、EL層は通常、積層構造となっている。陽極上に正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層、または正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層の順に積層する構造が現在、一般的に採用されている。また、発光層に対して蛍光性色素等をドーピングしても良い。これらの層は、低分子系の材料を用いて形成しても良いし、高分子系の材料を用いて形成しても良い。
10

なお、本明細書において、陽極と陰極との間に設けられる全ての層を総称して有機物を含む層（EL層）という。したがって、上述した正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層及び電子注入層は、全てEL層に含まれるものとする。これらの有機化合物の成膜方法には、蒸着法、スピンドルコート法、インクジェット法といった方法が知られている。

また、EL素子には、互いに直交するように設けられた2種類のストライプ状電極の間にEL層を形成する方式（単純マトリクス方式）、又は薄膜トランジスタ（以下、TFTと略す）に接続されマトリクス状に配列された画素電極と対向電極との間にEL層を形成する方式（アクティブマトリクス方式）の2種類がある。画素密度が増えた場合には、画素（又は1ドット）毎にスイッチが設けられているアクティブマトリクス型の方が低電圧駆動できるので有利であると考えられている。
20

有機EL素子は、主に水分や酸素が原因で劣化して、部分的な輝度の低下や非発光領域を生じることがある。劣化のパターンの1つに、非駆動の保存時、及び、駆動時において、時間の経過と共に非発光領域が拡大し、最終的には全て非発光領域となってしまう不良がある。非発光領域は発光領域の周縁部から発生しやすく、拡大するとあたかも発光領域が収縮するように見えることから、この不良モードをシュリンクと呼んでいる。なお、図4（A）にはEL素子作製直後の発光状態を示しており、EL素子作製直後から時間が経ちシュリンクが発生した様子を図4（B）に示している。

特にアクティブマトリクス型のEL素子のように発光領域の最小表示単位（画素）が小さい面積である場合、画素内でシュリンクが発生するとすぐに画素全体が暗くなってしまう。従って、有機EL素子を用いた表示装置の場合、シュリンクが発生すると、高精細（画素ピッチが小さい）、且つ、信頼性の高い表示を得ることが困難である。
30

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

シュリンクの起こる過程として、絶縁膜の表面が粗く陰極のカバレッジが十分でない為、そこに空いた穴から外部の水分が浸入しEL層に達する過程と、絶縁膜などの有機物に吸収されている水分が高温保存時に蒸発しEL層へ達する過程と、基板表面全体に吸着している水分が徐々にEL層に達して劣化を起こさせる過程が考えられる。

上記絶縁膜とは、土手や隔壁と呼ばれるものであり、マトリクス方式で表示装置を作製する際、隣り合う画素間や配線の絶縁を保つために陽極の端部を覆うように形成するものである（図1（B）の30、図2（A）の111）。
40

シュリンクの起こる過程のうち外部から浸入する水分に関しては、絶縁膜の表面の荒れを少なくし、且つ、緩やかなテーパー形状、望ましくは上端部または下端部に曲率半径を有する曲面を備えた形状（図6（A）または（B）にその例を示す）とすることによって陰極のカバレッジを良好なものとして解決している。

また、絶縁膜などに吸収されている水分と基板表面に付着した水分に関しては、前処理として真空加熱を行うことにより取り除くことができる。しかし、シュリンクを発生させない為に十分な真空加熱を行うには、基板の加熱、冷却に加えて、装置の真空排気、設定温度までの加熱に長い時間がかかり、大量生産時の律速点に成り得る。なお、本明細書で
50

いう前処理とは、有機物を含む層の蒸着の直前に行い、且つ、蒸着まで一貫して真空下で行う処理のことをいう。

従来技術として、基板の前処理としてアルゴン雰囲気下で高周波電圧を印加し、プラズマ処理をしたところ、基板上の有機物を除去して発光ムラがなくなるだけでなく、シュリンクの発生を抑える効果があることが報告されている（特許文献1）。しかし、アルゴン雰囲気下で高周波電圧を印加し、プラズマ処理を行うと、ITOの仕事関数が低下するという報告もされている（非特許文献2）。また、酸素雰囲気下でプラズマ処理を行うと、陽極の端部に設けられたアクリルなど有機物の絶縁膜は削られてしまう。絶縁膜が過剰に削られると陰極と陽極が接しショートする。

【特許文献1】特開平7-142168号広報

10

【非特許文献1】Kiyoshi Sugiyama, Hisao Ishii and Yukio Ouchi : J. Appl. Phys. 87. 1. 295-298 (2000)

そこで、本発明は、有機EL素子における上記のシュリンク等の不良モードの発生を抑える目的でプラズマ処理を行うためにその問題点を解決し、前処理に必要とされる時間を短縮することが目的として考え出された。

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、有機化合物を含む層を形成する前に、アルゴン及び酸素を含む雰囲気中で高周波電圧を印加してプラズマを発生させ、発生したプラズマを第1の電極及び絶縁膜に衝突させて水やごみ等をたたき出して洗浄することによって、基板の前処理にかかる時間を短時間にすることことができ、またシュリンクや発光ムラを抑えることができ、且つ、絶縁膜が過剰に削れないということを見出した。さらに、第1の電極がITOであった場合、陽極としてのITO膜の仕事関数が低下しないことを見出した。

20

本発明は、薄膜トランジスタと、発光素子とを有し、前記発光素子は前記薄膜トランジスタのソース領域またはドレイン領域と電気的に接続された第1の電極と、前記第1の電極上に形成された有機化合物を含む層と、前記有機化合物を含む層上に形成された第2の電極とを有する表示装置の作製方法において、前記ソース領域またはドレイン領域と電気的に接続された前記第1の電極を形成し、前記第1の電極の端部を覆うように前記絶縁膜を形成し、前記第1の電極と前記絶縁膜に対し、アルゴン及び酸素を含む雰囲気中でプラズマ処理を行った後、前記第1の電極及び前記絶縁膜上に有機化合物を含む層を形成し、有機化合物を含む層上に第2の電極を形成することによって前記発光素子形成することを特徴とする表示装置の作製方法である。ここで、有機化合物を含む層は、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層及び電子注入層を含む。

30

アルゴン及び酸素を含む雰囲気中で行うプラズマ処理のアルゴンガスと酸素ガスの流量比はアルゴン対酸素が1対9から9対1までの範囲とする。また、前記の絶縁膜をアクリルなどの有機材料で形成するときは、そこに吸着された水分を完全に除去するために、アルゴン及び酸素を含む雰囲気中でプラズマ処理を行う直前に、真空加熱を行ってもよい。

前記真空加熱の温度は、100°C～250°C、真空度は、 1×10^{-3} Pa以下、好ましくは 1×10^{-4} Pa以下であることを特徴としている。また、アルゴン及び酸素を含む雰囲気中でプラズマ処理を行う前の洗浄度を一定に保つことができるため、前記真空加熱の他に湿式洗浄法やUV／オゾン洗浄等の他の洗浄と組み合わせることが好ましい。

40

上記構成において、前記真空加熱を行う工程と、前記アルゴン及び酸素を含む雰囲気中でプラズマ処理を行う工程と、前記有機化合物を含む層を形成する工程と、前記第2の電極を形成する工程は、大気にふれることなく、真空状態またはアルゴン及び酸素を含む雰囲気中において、連続的に順次行うことなく、さらに望ましくは封止する工程まで大気にふれることなく連続的に行うことによって、水分や酸素の侵入を抑え、信頼性を向上させる。また、上記構成において、前記第2の電極を形成する工程は、抵抗加熱法またはスパッタ法であることを特徴としており、TFTへのダメージの少ないものとする。

【発明の効果】

本発明により、基板に悪影響を与えずに、シュリンクや発光ムラの発生を抑える為の前

50

処理としてアルゴン及び酸素を含む雰囲気中でプラズマ処理を用いることできる。それにより前処理を短時間で行える。

【図面の簡単な説明】

図1は、実施の形態を示す上面図および断面図である。

図2は、実施例1を示す工程図である。

図3は、実施例1を示す図である。

図4は、時間とともに拡大するシュリンクの様子を示す図である。

図5は、本発明と従来とを比較するためのシュリンクの様子を写した写真である。

図6は、実施の形態を示すTEM写真である。

【発明を実施するための最良の形態】

10

本発明の実施の形態について、図1を用いて、以下に説明する。

(実施の形態)

図1(A)はアクティブマトリクス型表示装置の上面図であり、図1(B)は鎖線A-A'で切断した断面図である。

図1(A)において、1はソース信号線駆動回路、2は画素部、3はゲート信号線駆動回路である。また、4は封止基板、5はシール剤であり、シール剤5で囲まれた内側は、乾燥剤(図示しない)により乾燥された不活性気体が充填された空間になっている。7は、各発光素子に共通する上部電極と基板上の配線とを接続する接続領域である。

なお、外部入力端子となるFPC(フレキシブルプリントサーキット)9からビデオ信号やクロック信号を受け取る。なお、ここではFPCしか図示されていないが、このFPCにはプリント配線基盤(PWB)が取り付けられていても良い。本明細書における表示装置には、表示装置本体だけでなく、それにFPCもしくはPWBが取り付けられた状態をも含むものとする。

20

ソース信号線駆動回路1はnチャネル型TFTとpチャネル型TFTとを組み合わせたCMOS回路が形成される。nチャネル型TFTは、ゲート電極の上下層とゲート絶縁膜15を挟んで重なるチャネル形成領域と、ゲート電極の下層とゲート絶縁膜15を挟んで重なる低濃度不純物領域と、ゲート電極の下層と重ならない低濃度不純物領域と、ソース領域またはドレイン領域となる高濃度不純物領域とを有している。

また、pチャネル型TFTは、ゲート電極の上層とゲート絶縁膜15を挟んで重なるチャネル形成領域と、ゲート電極の下層とゲート絶縁膜15を挟んで重なる低濃度不純物領域62dと、ゲート電極の下層と重ならない低濃度不純物領域と、ソース領域またはドレイン領域となる高濃度不純物領域とを有している。また、駆動回路を形成するTFTは、公知のCMOS回路、PMOS回路もしくはNMOS回路で形成しても良い。また、本明細書では、基板上に駆動回路を形成したドライバー一体型を示すが、必ずしもその必要はなく、基板上ではなく外部に形成することもできる。

30

図1(B)では電流制御用TFT50と、スイッチング用TFT40と、容量41の断面図を示した。図1(B)では、スイッチング用TFT40として、ゲート絶縁膜15を間に挟んでゲート電極64と重なる複数のチャネル形成領域60aを有するnチャネル型TFTを用いた一例を示している。なお、47、48はソース配線またはドレイン配線、60bはソース領域またはドレイン領域、60cはゲート電極64と重ならない低濃度不純物領域である。容量41は、層間絶縁膜22、20を誘電体とし、電極46と電極63とで保持容量を形成し、さらにゲート絶縁膜15を誘電体とし、電極63と半導体膜42とでも保持容量を形成している。

40

また、画素部2には、スイッチング用TFT40と、第1の電極(陽極)28と接続している電流制御用TFT50とそのドレイン領域またはソース領域(高濃度不純物領域)62bに電気的に接続された下部電極となる第1の電極(陽極)28と容量41を含む複数の画素により形成される。一つの画素には複数のTFTが形成される。電流制御用TFT50は、ゲート電極の上層66b及びゲート電極の下層66aとゲート絶縁膜15を挟んで重なるチャネル形成領域62aと、ゲート電極の下層66aとゲート絶縁膜15を挟んで重なる低濃度不純物領域62dと、ゲート電極の下層66aと重ならない低濃度不純

50

物領域 62c とを有している。なお、23、24 はソース電極またはドレイン電極であつて、24 は第1の電極（陽極）28 と高濃度不純物領域 62b とを接続する接続電極である。

また、層間絶縁膜 20、21、22 としては、感光性または非感光性の有機材料（ポリイミド、アクリル、ポリアミド、ポリイミドアミド、レジストまたはベンゾシクロブテン）、スパッタ法やCVD法や塗布法による無機材料（酸化シリコン、窒化シリコン、酸化窒化シリコンなど）、またはこれらの積層などを用いることができる。図1（B）においては、ゲート電極およびゲート絶縁膜 15 を覆って窒化珪素膜からなる無機絶縁膜 20 を設けており、この無機絶縁膜 20 は、膜中に水素を含ませる条件で成膜を行い、加熱処理を行うことによって半導体層のダンギングボンドを終端する水素化のために設けられた無機絶縁膜である。酸化シリコン膜からなるゲート絶縁膜 15 の存在に関係なく下方に存在する半導体層を水素化することができる。また、層間絶縁膜 21 は、感光性の有機材料を塗布法により成膜した後、ウエットエッチングまたはドライエッチングによって上端部が曲率半径を有する曲面となるように選択的にエッチングしている。また、層間絶縁膜 21 として有機材料を用いる場合には、層間絶縁膜 21 中からの水分やガスや不純物が拡散し、後に形成する発光素子を劣化させないようにブロッキングするため、窒化シリコン膜、酸化窒化シリコン膜、酸化窒化アルミニウム膜、またはこれらの積層からなる層間絶縁膜 22 で覆うことが好ましい。また、層間絶縁膜 22 は基板 10 から発光素子への不純物の拡散や発光素子から TFT への不純物の拡散などをブロッキングすることもできる。また、層間絶縁膜 21 として、吸湿性を有する有機材料を用いる場合、後の工程で他のパターニングで使用する剥離液などの溶液に晒されると膨潤するため、再度ベークする必要があるが、層間絶縁膜 22 で覆うことによって層間絶縁膜 21 を膨潤させないようにすることができる。

また、層間絶縁膜 20～22 として無機絶縁膜を用いる場合には、p c VD法またはスパッタ法を用いて成膜すればよいが、特にRFスパッタ法でシリコンをターゲットとして用い、基板温度を室温～350℃、成膜圧力を0.1Pa～1.5Pa、13.56MHzの高周波電力（5～20W/cm²）を印加して、窒素ガスのみ、あるいは窒素ガスとアルゴンガスの混合ガスにより形成した窒化珪素膜は、Na、Li その他の周期表の1族もしくは2族に属する元素に対するブロッキング効果が極めて強く、これらの可動イオン等の拡散を効果的に抑制することができる。

本発明に用いる第2の電極（陰極）32 としては、アルミニウムに0.2～1.5wt%（好ましくは0.5～1.0wt%）のリチウムを添加した金属膜が電荷注入性および他の点で好適であるが、リチウムを含む材料を第2の電極（陰極）32 として用いる場合、リチウムの拡散によってトランジスタの動作に害を及ぼすことが懸念されるが、層間絶縁膜 22 がRFスパッタ法による窒化珪素膜であれば、リチウムがTFTに拡散することを防ぐことができる。

層間絶縁膜 21 として、感光性の有機樹脂材料を用いた場合は、図1（B）に示すように上端部に曲率半径を有する曲面を有するコンタクトホールとなりやすいが、層間絶縁膜 22 として、非感光性の有機樹脂材料、または無機材料を用いた場合には、図2（A）、（B）に示したコンタクトホールの断面図となる。

また、第1の電極（陽極）28 の両端には絶縁膜（バンク、隔壁、障壁、土手などとも呼ばれる）30 が形成され、第1の電極（陽極）28 上には有機化合物を含む層（EL層とも呼ぶ）31 が形成される。第1の電極（陽極）28 としては、透明導電膜（ITO（酸化インジウム酸化スズ合金）、酸化インジウム酸化亜鉛合金（In₂O₃ - ZnO）、酸化亜鉛（ZnO）等）を用いればよい。

有機化合物を含む層 31 は、極めて薄いため、第1の電極（陽極）28 の表面は平坦であることが好ましく、例えば、第1の電極（陽極）28 のパターニング前、またはパターニング後に化学的及び機械的に研磨する処理（代表的にはCMP技術）等により平坦化を行えばよい。CMPを行う場合には、電極 24 または絶縁膜 30 の膜厚を薄くする、或いは電極 24 の端部をテーパー形状として行えば、さらに第1の電極（陽極）28 の平坦性

10

20

30

40

50

を向上させることができる。また、第1の電極（陽極）28の平坦性を向上させるために層間絶縁膜21として有機樹脂膜を用いた場合、層間絶縁膜22として無機絶縁膜を設けることによってクラックの発生を防止して作製直後の非発光領域の発生や点欠陥の発生を抑えることが好ましい。

また、絶縁膜30としては、感光性または非感光性の有機材料（ポリイミド、アクリル、ポリアミド、ポリイミドアミド、レジストまたはベンゾシクロブテン）、CVD法やスパッタ法や塗布法による無機材料（酸化シリコン、窒化シリコン、酸化窒化シリコンなど）、またはこれらの積層などを用いることができる。また、絶縁膜30として感光性の有機材料を用いる場合、感光性の有機材料は大きく分けて2種類、感光性の光によってエッチャントに不溶解性となるネガ型、或いは光によってエッチャントに溶解性となるポジ型があるが、どちらも適宜使用することができる。また、有機材料からなる絶縁膜30とした場合、絶縁膜30を無機絶縁膜（スパッタ法の窒化珪素膜など）で覆ってもよい。10

また、第1の電極（陽極）28の表面における清浄度を向上させるため、絶縁膜30の形成前、または形成後に異物（ゴミなど）をクリーニングするための洗浄（ブラシ洗浄やスポンジ洗浄）を行い、ダークスポットや点欠陥の発生を低減させる。スポンジ洗浄などの湿式洗浄を行った後は、大気圧で100～250℃のオープンで30分～2時間加熱し、基板の水分を除去する。冷却後、UV／オゾン処理を行う。

次いで、基板を成膜装置内に移し、アルゴン及び酸素を含む雰囲気中で高周波電圧を印加することにより、プラズマを発生させ、発生したプラズマを第1の電極（陽極）28及び絶縁膜30等に対して衝突させる。このアルゴン及び酸素を含む雰囲気中で行うプラズマ処理により、第1の電極（陽極）28と絶縁膜30等の中にある水やごみ等をたたき出し、シュリンク、発光ムラの発生を抑えることが出来るという効果がある。さらに、前処理工程を従来よりも短時間で行うことができる。また、TFT及び絶縁膜中に取り込まれた水分を完全に除去するために、アルゴン及び酸素を含む雰囲気中で行うプラズマ処理の前に、真空加熱を行っても良い。その場合、洗浄後にオープンで加熱した直後、 5×10^{-3} Torr (0.665 Pa) 以下、好ましくは 10^{-4} Pa以下まで真空排気して、100℃～250℃、好ましくは150℃～200℃、例えば20分以上の加熱を行った後、20分の自然冷却を行って吸着水分を除去する。なお、中には250℃の熱処理に耐えない材料もあるため、真空加熱の条件は、層間絶縁膜材料や配線材料によって適宜設定することが必要である。20

次いで、 5×10^{-3} Torr (0.665 Pa) 以下、好ましくは 10^{-4} Pa以下まで真空排気した蒸着室で蒸着を行い、有機化合物を含む層（EL層）31を形成し、有機化合物を含む層31上に第2の電極（陰極）32を蒸着法（抵抗加熱法）またはスパッタ法により形成する。これにより、第1の電極（陽極）28、有機化合物を含む層（EL層）31、及び第2の電極（陰極）32を有する発光素子が形成される。30

有機化合物を含む層（EL層）31としては、高分子材料、低分子材料、無機材料、またはこれらを混合させた層、またはこれらを分散させた層、またはこれらの層を適宜組み合わせた積層とすればよい。なお、有機化合物を含む層（EL層）31の形成後に、真空加熱を行って脱気を行うことが好ましい。

有機化合物を含む層（EL層）31からの発光を、白色発光として、カラーフィルターや色変換層などを別途設けることによってフルカラー表示可能な発光表示装置としてもよい。また、簡単な表示のみを行う表示装置、照明装置として使用する場合、単色発光（代表的には白色発光）とすればよい。例えば、ホール輸送性のポリビニルカルバゾール（PVK）に電子輸送性の1, 3, 4-オキサジアゾール誘導体（PBD）を分散させてもよい。また、30wt%のPBDを電子輸送剤として分散し、4種類の色素（テトラフェニルブタジエン（TPB）、クマリン6、4-ジシアノメチレン-2-メチル-6-p-ジメチルアミノスチリル-4H-ピラン（DCM1）、ナイルレッド）を適定量分散することで白色発光が得られる。また、赤色発光する有機化合物膜や緑色発光する有機化合物膜や青色発光する有機化合物膜を適宜選択し、重ねて混色させることによって全体として白色発光を得ることも可能である。40

なお、第2の電極（陰極）32は、電子ビームを使用する蒸着法では蒸着の際に放出されるX線によってTFTにダメージを与えるため、抵抗加熱法を用いて蒸着を行うことが好ましい。第2の電極（陰極）32の材料としては、MgAg、MgIn、AlLi、CaF₂、CaNなどの合金、または周期表の1族もしくは2族に属する元素とアルミニウムとを共蒸着法により形成した膜を100nm～500nmの膜厚範囲用いればよい。第2の電極（陰極）32の膜厚が厚いほうが、有機化合物を含む層への水分や酸素の拡散をブロックすることができる。

発光素子を白色発光とする場合、着色層とブラックマトリクスからなるカラーフィルター（簡略化のため、ここでは図示しない）を基板10に設ける。

第2の電極（陰極）32は、全画素に共通の配線としても機能し、配線を経由してFPC9に電気的に接続されている。なお、図1(A)、(B)には、第2の電極（陰極）32と配線45を接続させる接続領域7を示しており、この配線45を引き回してFPC9に電気的に接続させる。10

また、端子部は、ゲート電極と同一工程で形成される電極と、ソース電極またはドレイン電極と同一工程で形成される電極と、第1の電極（陽極）28と同一工程で形成される電極との積層からなる端子電極がFPC9と導電性接着剤などの接着剤で貼りつけられている。なお、端子部の構成は特に限定されず、適宜形成すればよい。

また、基板10上に形成された発光素子を封止するためにフィラーを含むシール剤5により封止基板4を貼り合わせる。なお、封止基板4と発光素子との間隔を確保するために樹脂膜からなるスペーサを設けても良い。そして、シール剤5の内側の空間には窒素等の不活性気体が充填されている。なお、シール剤5としてはエポキシ系樹脂を用いるのが好ましい。また、シール剤5はできるだけ水分や酸素を透過しない材料であることが望ましい。さらに、空間の内部に酸素や水を吸収する効果をもつ物質（乾燥剤など）を設けても良い。20

また、本発明では封止基板4を構成する材料としてガラス基板や石英基板の他、FRP(Fiberglass-Reinforced Plastics)、PVF(ポリビニルフロライド)、マイラー、ポリエステルまたはアクリル等からなるプラスチック基板を用いることができる。また、シール剤5を用いて封止基板4を接着した後、さらに側面（露呈面）を覆うようにシール剤で封止することも可能である。

以上のようにして発光素子を閉空間に封入することにより、発光素子を外部から完全に遮断することができ、外部から水分や酸素といった有機化合物層の劣化を促す物質が侵入することを防ぐことができる。従って、シェーリングが発生しない信頼性の高い表示装置を得ることができる。30

また、本発明は図1(B)の画素部のスイッチングTFT40の構造は上述のものに限定されず、例えば、ゲート絶縁膜を介してゲート電極と重ならない低濃度不純物領域60cの他に、ゲート電極と重なる低濃度不純物領域60bをチャネル形成領域60aとドレイン領域（またはソース領域）との間に設けてもよい。また、ゲート電極形状も限定されず、単層のゲート電極としてもよい。

加えて、ここではトップゲート型TFTを例として説明したが、TFT構造に関係なく本発明を適用することが可能であり、例えばボトムゲート型（逆スタガ型）TFTやに適用することが可能である。40

また、図1(B)では、ソース領域またはドレイン領域に接する接続電極24を形成した後、第1の電極（陽極）28を形成した構造を示したが、特に限定されず、例えば、第1の電極（陽極）28を形成した後に、ソース領域またはドレイン領域に接する接続電極を形成してもよい。

また、ソース領域またはドレイン領域と接する電極を覆う層間絶縁膜をさらに設け、コンタクトホールを形成した後、その層間絶縁膜上に電極と接続する第1の電極を形成してもよい。

【実施例】

ここではTFTと接続する第1の電極は陽極であり、第1の電極（陽極）がマトリクス

50

状に配置されたアクティブマトリクス基板上有機化合物を含む層、および第2の電極（陰極）を形成する例を以下に示す（図2）。

まず、絶縁表面を有する基板100上にTFTを形成する。TFTはゲート電極105と、ゲート絶縁膜106aと、チャネル形成領域102と、ドレイン領域またはソース領域103、104と、ソース電極またはドレイン電極107、108と、絶縁膜106b、106cとからなる。第1の電極110としては、仕事関数の大きい金属（pt、Cr、W、Ni、Zn、Sn、In）、本実施例ではスパッタ法で成膜されたITOからなる導電膜を用いる。本実施例ではTFTとしてチャネル形成領域が結晶構造を有する半導体膜（代表的にはポリシリコン膜）であるpチャネル型TFTを用いる。

なお、TFTの層間絶縁膜の最上層、即ち、第1の電極（陽極）110と下面で接する絶縁層106cは無機絶縁膜（代表的にはRFスパッタ法での成膜された窒化珪素膜）とする。カバレッジの良好な無機絶縁膜を設けることによって、上に形成する第1の電極（陽極）110のクラックをなくす。また、無機絶縁膜とすることで表面の吸着水分を低減することができるため、後に有機化合物を含む層の成膜を行ってもシュリンクの発生を抑えることができる。

このRFスパッタ法で成膜されたの窒化珪素膜は、シリコンをターゲットとして用いた緻密な膜であり、LAL500を用いたエッチング速度が 0.77 nm/m in ～ 8.6 nm/m in と遅く、膜中の水素濃度がSIMS測定で $1 \times 10^{21}\text{ atoms/cm}^3$ である。なお、LAL500とは、橋本化成株式会社製「LAL500SAバッファードフッ酸」であり、NH₄HF（7.13%）とNH₄F（15.4%）を含む水溶液である。また、このRFスパッタ法の窒化珪素膜は、BTストレス試験後におけるC-V特性のシフトは差がなく、アルカリ金属や不純物のブロッキングができる。

また、層間絶縁膜106bとして有機樹脂膜を用いることで平坦性を向上させることができる。また、有機樹脂膜に代えて、PCVD法やスパッタ法による酸化珪素膜、酸化窒化珪素膜、窒化珪素膜を用いた場合には、発光素子作製直後の非発光領域の発生、および非発光領域の拡大が生じず、第1の電極（陽極）110のクラックもなくすことができる。

次いで、第1の電極（陽極）110の端部を覆う絶縁膜111を形成する（図2（A））。絶縁膜111は、TFTのコンタクトホールや配線109を覆い、隣り合う画素間や配線との絶縁を保つために形成するものである。絶縁膜111としては、無機材料（酸化シリコン、窒化シリコン、酸化窒化シリコンなど）、感光性または非感光性の有機材料（ポリイミド、アクリル、ポリアミド、ポリイミドアミド、レジストまたはベンゾシクロブテン）、またはこれらの積層などを用いることができる。光によってエッチャントに溶解性となるネガ型の感光性アクリルを用い、絶縁膜111の上端部に第1の曲率半径を有する曲面、および下端部に第2の曲率半径を有する曲面を持たせる。前記第1の曲率半径および前記第2の曲率半径は、 $0.2\mu\text{m}$ ～ $3\mu\text{m}$ とすることが好ましい。

また、本実施例は、光によってエッチャントに溶解性となるポジ型の有機樹脂を用いている。この場合、絶縁膜111の上端部のみに曲率半径を有する曲面を持たせることができる。絶縁膜111の上端部または下端部に曲率半径を有する曲面を持たせることによって、発光素子作製直後の非発光領域が生じなくなるが、絶縁膜111の形状としてはどちらでもよい。

また、絶縁膜111を窒化アルミニウム膜、窒化酸化アルミニウム膜、または窒化珪素膜からなる保護膜で覆ってもよい。無機絶縁膜からなる保護膜で覆うことによって表面の吸着水分を低減することができるため、後に有機化合物を含む層の成膜を行ってもシュリンクの発生を抑えることができる。

ここで、絶縁膜の上端部または下端部に曲率半径を有する曲面を持たせることの効果について図3を用いて説明をする。図3において、200は基板、201は下地絶縁膜、202はゲート絶縁膜、203は層間絶縁膜、204は窒化珪素膜、205は第1の電極（陽極）、206は絶縁膜、207は有機化合物を含む層、208は第2の電極（陰極）である。そして、絶縁膜206は、上端部206a（図3（A）中で丸で囲んだ領域）に曲

面を有し、下端部 206 b (図 3 中で丸で囲んだ領域) にも曲面を有しており、基板面と絶縁膜 206 の側面とのなす角 (テーパー角) θ_t ($\theta_t = 35^\circ \sim 70^\circ$) を有しているため、なだらかであり、その上に形成される有機化合物を含む層 207、第 2 の電極 (陰極) 208 のカバレッジが良好なものとなる効果がある。

絶縁膜 111 を形成した後、第 1 の電極 (陽極) 110 表面に点在する微小な粒を除去するために、多孔質なスポンジ (代表的には PVA (ポリビニルアルコール) 製、ナイロン製) に界面活性剤 (弱アルカリ性) を含ませ、第 1 の電極 (陽極) 110 表面を擦って洗浄する。その後、200 °C のオーブンで大気圧のまま 1 時間加熱する。自然冷却後、UV／オゾン処理を 370 秒行い、基板を成膜装置にセットし、アルゴン及び酸素を含む雰囲気中でプラズマ処理を行う。本実施例では、成膜装置のチャンバー内を 1×10^{-5} Torr 以下の真空度まで減圧した後、 8.3×10^{-2} Torr (11 Pa) になるまで、流量比の Ar : O₂ = 67 sccm : 133 sccm (3 : 7) でガスを導入し、75 W、Gap 50 mm で 90 秒間、高周波電圧を印加することで、アルゴン及び酸素を含む雰囲気中でプラズマ処理を行なった。
10

有機化合物を含む層 112 としては、フルカラー表示とする場合、具体的には赤色、緑色、青色の発光を示す材料層をそれぞれ蒸着マスクを用いた蒸着法、またはインクジェット法などによって適宜、選択的に成膜すればよい。

本実施例では、緑色の発光を示す有機化合物を含む層 112 を形成した。正孔注入層として、CuPc を 20 nm、正孔注入層として、芳香族アミン系材料である 4, 4-ビス - [N-(ナフチル)-N-フェニルアミノ] ビフェニル (以下、α-NPD と略す) を 40 nm 成膜した後、同一の蒸着マスクを用いて、緑色の発光層としてジメチルキナクリドン (DMQD) が添加されたトリス-6-キノリラトアルミニウム錯体 (以下、Alq₃ と略す) を 40 nm 成膜し、電子輸送層として Alq₃ を 40 nm 成膜し、電子注入層として CaF₂ を 1 nm 成膜した。
20

また、青色の発光を示す有機化合物を含む層 112 を形成する場合、正孔注入層として、CuPc を 20 nm、正孔注入層及び発光層として、α-NPD を 40 nm 成膜した後、同一のマスクを用いて、ブロッキング層としてバソキュプロイン (BCP) 10 nm 成膜し、電子輸送層として Alq₃ を 40 nm 成膜し、電子注入層として CaF₂ を 1 nm 成膜する。

また、赤色の発光を示す有機化合物を含む層 112 を形成する場合、正孔注入層として、CuPc を 20 nm、正孔注入層として、α-NPD を 40 nm 成膜した後、同一のマスクを用いて、赤色の発光層として DCM1 が添加された Alq₃ を 40 nm 成膜し、電子輸送層として Alq₃ を 40 nm 成膜し、電子注入層として CaF₂ を 1 nm 成膜する。
30

なお、第 2 の電極 (陰極) 113 は、電子ビームを使用する蒸着法では蒸着の際に放出される X 線によって TFT にダメージを与えてしまうため、抵抗加熱法を用いて蒸着を行うことが好ましい。第 2 の電極 (陰極) 113 の材料としては、MgAg、MgIn、AlLi、CaF₂、CaN などの合金、または周期表の 1 族もしくは 2 族に属する元素とアルミニウムとを共蒸着法により形成した膜を 100 nm ~ 500 nm の膜厚範囲用いればよい。第 2 の電極 (陰極) の膜厚が厚いほうが、有機化合物を含む層への水分や酸素の拡散をブロックすることができる。本実施例ではアルミニウムのみを抵抗加熱法で 200 nm 成膜した (図 2 (B))。
40

アルゴン及び酸素を含む雰囲気中でプラズマ処理を行う工程から封止工程まで真空下で行う以上の工程により、短時間で、シュリンクが無く、且つ、発光ムラのない発光素子を形成することができ、この工程を用いて有機 EL 素子を作製する。

以下に実施例と有機化合物を含む層 (EL 層) を形成する前の前処理工程の条件を変えたものとをシュリンク、発光ムラについて比較を行った。

(比較例 1) 前処理工程として、成膜装置内のチャンバーを 1×10^{-3} Pa 以下に減圧した後、170 °C で加熱を 30 分、自然冷却 30 分、行った。真空加熱から封止工程まで真空を破ることなく、実施例と同様に有機 EL 素子を作製することが出来る。
50

(比較例 2) UV／オゾン洗浄後に、前処理工程として真空加熱やアルゴン及び酸素を含む雰囲気中のプラズマ処理などを一切行わずに蒸着から封止工程まで真空を破ることなく、実施例と同様に有機EL素子を作製した。

上記の前処理工程で形成した実施例 1 および比較例 1、2 の有機EL素子に対し、初期状態の発光の状態と、65℃、湿度95%の雰囲気下において190時間保存した後のシユリンクの発生を観察した。

評価の結果を図5、表1に示す。表中、○は良好、×は悪いを示す。

また、図5の(A)には実施例の結果を示し、左側には初期状態の発光の状態の写真であり、右側には65℃、湿度95%の雰囲気下において190時間保存した後の写真である。同様に、図5の(B)には比較例1の結果を示し、左側には初期状態の発光の状態の写真であり、右側には65℃、湿度95%の雰囲気下において190時間保存した後の写真である。図5の(C)には比較例2の結果を示し、左側には初期状態の発光の状態の写真であり、右側には65℃、湿度95%の雰囲気下において190時間保存した後の写真である。

10

(表1)

	前処理(時間)	高温高湿保存後のシユリンク	発光ムラ
実施例	アルゴン酸素を含む雰囲気中で プラズマ処理(90秒)	○	○
比較例1	減圧状態で170℃(30分), 自然冷却(30分)	○	×
比較例2	—	×	×

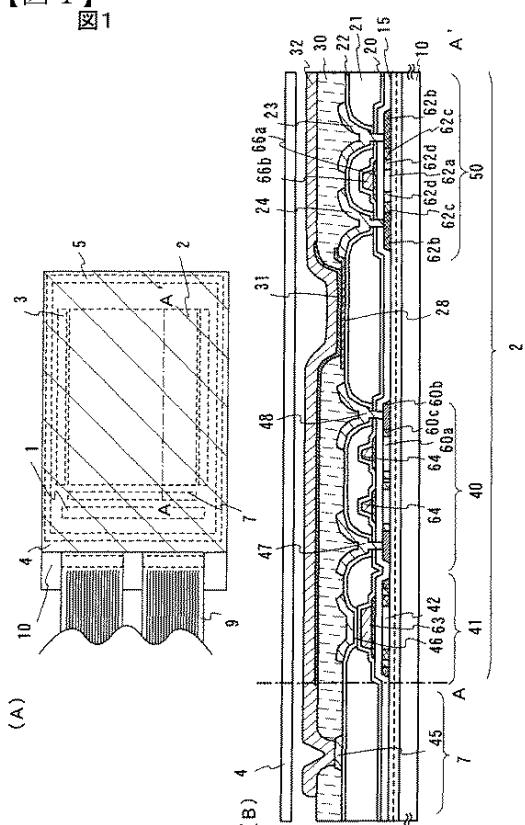
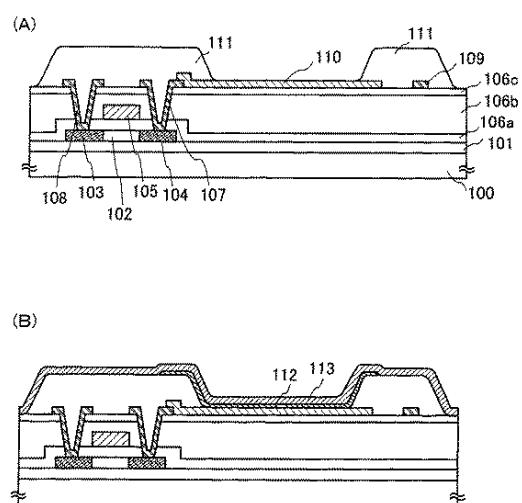
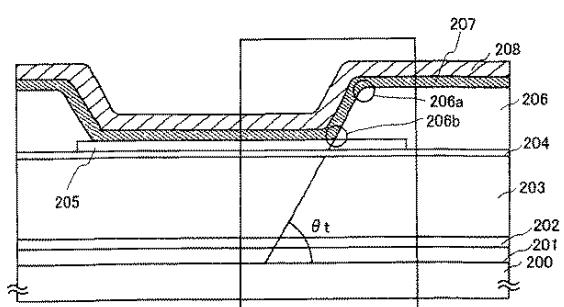
20

これらの結果から、前処理として短時間アルゴン及び酸素を含む雰囲気中でプラズマ処理を行った素子は、真空加熱を長時間行った素子と同程度に高温高湿保存後のシユリンクの発生が抑えられることが分かった。さらに、プラズマ処理によって真空加熱のみでは除去できなかった第1の電極(陽極)上に残った有機材料を除去できるので発光ムラのない有機EL素子が得られる(図5)。

30

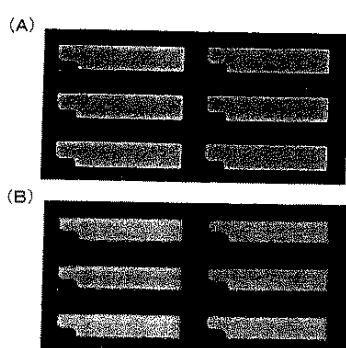
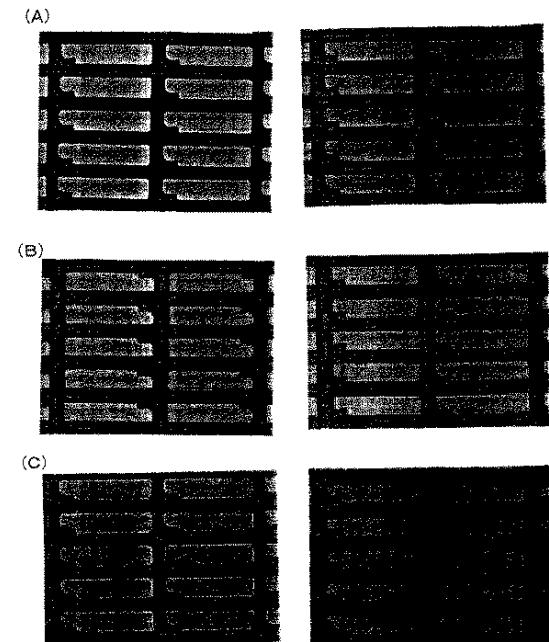
【産業上の利用可能性】

本発明により、基板に悪影響を与えずに、シユリンクや発光ムラの発生を抑える為の前処理としてアルゴン及び酸素を含む雰囲気中のプラズマ処理を用いることにより、前処理を短時間で行うことが出来る。これにより、表示装置を大量生産する際に、スループットを向上させることができる。

【図1】
図1【図2】
図2【図3】
図3

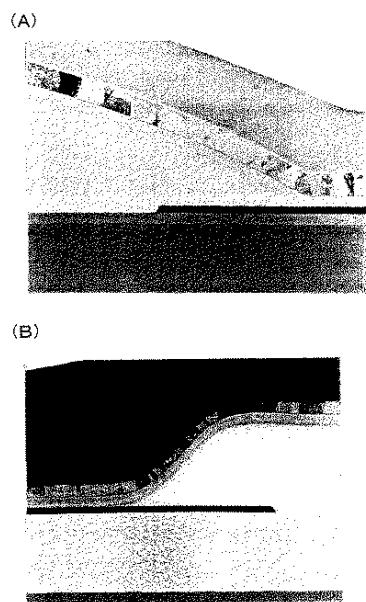
【図4】

図4

【図5】
図5

【図6】

図6



【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/JP03/16356												
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.C1 ⁷ H05B33/14, 33/10, 33/22														
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC														
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int.C1 ⁷ H05B33/14, 33/10, 33/22														
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2004 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2004 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2004														
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)														
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT <table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <thead> <tr> <th style="text-align: left; padding-right: 10px;">Category*</th> <th style="padding-right: 10px;">Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages</th> <th style="padding-right: 10px;">Relevant to claim No.</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td style="text-align: center; padding-top: 5px;">Y</td> <td>WO 99/48339 A (SEIKO EPSON CORP.), 23 September, 1999 (23.09.99), Full text & JP 2002-334782 A & JP 11-271753 A</td> <td style="text-align: center; padding-top: 5px;">1-8</td> </tr> <tr> <td style="text-align: center; padding-top: 5px;">P, Y</td> <td>WO 2003/70855 A (HAYASHIBARA SEIBUTSU KAGAKU LAB., TOYOTA CHUO KENKYUSHO KABUSHIKI KAISHA, TOYOTA JIDOSHA KABUSHIKI KAISHA), 28 August, 2003 (28.08.03), Full text & JP 2003-249371 A</td> <td style="text-align: center; padding-top: 5px;">1-8</td> </tr> <tr> <td style="text-align: center; padding-top: 5px;">P, Y</td> <td>JP 2003-217843 A (SEIKO EPSON CORP.), 31 July, 2003 (31.07.03), Full text (Family: none)</td> <td style="text-align: center; padding-top: 5px;">1-8</td> </tr> </tbody> </table>			Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.	Y	WO 99/48339 A (SEIKO EPSON CORP.), 23 September, 1999 (23.09.99), Full text & JP 2002-334782 A & JP 11-271753 A	1-8	P, Y	WO 2003/70855 A (HAYASHIBARA SEIBUTSU KAGAKU LAB., TOYOTA CHUO KENKYUSHO KABUSHIKI KAISHA, TOYOTA JIDOSHA KABUSHIKI KAISHA), 28 August, 2003 (28.08.03), Full text & JP 2003-249371 A	1-8	P, Y	JP 2003-217843 A (SEIKO EPSON CORP.), 31 July, 2003 (31.07.03), Full text (Family: none)	1-8
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.												
Y	WO 99/48339 A (SEIKO EPSON CORP.), 23 September, 1999 (23.09.99), Full text & JP 2002-334782 A & JP 11-271753 A	1-8												
P, Y	WO 2003/70855 A (HAYASHIBARA SEIBUTSU KAGAKU LAB., TOYOTA CHUO KENKYUSHO KABUSHIKI KAISHA, TOYOTA JIDOSHA KABUSHIKI KAISHA), 28 August, 2003 (28.08.03), Full text & JP 2003-249371 A	1-8												
P, Y	JP 2003-217843 A (SEIKO EPSON CORP.), 31 July, 2003 (31.07.03), Full text (Family: none)	1-8												
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.														
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed														
Date of the actual completion of the international search 17 February, 2004 (17.02.04)		Date of mailing of the international search report 02 March, 2004 (02.03.04)												
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer Telephone No.												
Facsimile No.														

INTERNATIONAL SEARCH REPORTInternational application No.
PCT/JP03/16356**C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, Y	JP 2003-257948 A (SEIKO EPSON CORP.), 12 September, 2003 (12.09.03), Full text (Family: none)	1-8

Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (July 1998)

国際調査報告		国際出願番号 PCT/JP03/16356	
A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））			
Int. Cl' H05B33/14, 33/10, 33/22			
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））			
Int. Cl' H05B33/14, 33/10, 33/22			
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2004年 日本国実用新案登録公報 1996-2004年 日本国登録実用新案公報 1994-2004年			
国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）			
C. 関連すると認められる文献			
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号	
Y	WO 99/48339 A (SEIKO EPSON CORP.) 1999.09.23、全文 & JP 2002-33478 2 A & JP 11-271753 A	1-8	
P Y	WO 2003/70855 A (HAYASHIBARA SEIBUTU KAGAKU LAB. & TOYOTA CHUO KENKYUSHO KK & TOYOTA JIDOSHA KK) 2003.08.28、全文 & JP 2003-249 371 A	1-8	
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。			
<p>* 引用文献のカテゴリー</p> <p>「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願</p> <p>日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」同一パテントファミリー文献</p>			
国際調査を完了した日 17.02.2004	国際調査報告の発送日 02.3.2004		
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号 100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官（権限のある職員） 越河 勉 印	2V	9313
電話番号 03-3581-1101 内線 3230			

様式PCT/ISA/210 (第2ページ) (1998年7月)

国際調査報告		国際出願番号 PCT/JP03/16356
C(続き) . 関連すると認められる文献	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求の範囲の番号
P Y	JP 2003-217843 A (セイコーホームズ株式会社) 2003. 07. 31、全文 (ファミリー無し)	1-8
P Y	JP 2003-257948 A (セイコーホームズ株式会社) 2003. 09. 12、全文 (ファミリー無し)	1-8

様式PCT/ISA/210 (第2ページの続き) (1998年7月)

フロントページの続き

(81)指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), EPC
AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM,
GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK,
DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, M
G, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, UZ, VC, VN
, YU, ZA, ZM, ZW

(注) この公表は、国際事務局（W I P O）により国際公開された公報を基に作成したものである。なおこの公表に
係る日本語特許出願（日本語実用新案登録出願）の国際公開の効果は、特許法第184条の10第1項(実用新案法
第48条の13第2項)により生ずるものであり、本掲載とは関係ありません。

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第7部門第1区分

【発行日】平成19年2月8日(2007.2.8)

【国際公開番号】WO2004/062323

【年通号数】公開・登録公報2006-019

【出願番号】特願2004-539103(P2004-539103)

【国際特許分類】

H 05 B	33/10	(2006.01)
H 01 L	51/50	(2006.01)
H 05 B	33/22	(2006.01)

【F I】

H 05 B	33/10	
H 05 B	33/14	A
H 05 B	33/22	Z

【手続補正書】

【提出日】平成18年12月14日(2006.12.14)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

薄膜トランジスタと、発光素子とを有する表示装置の作製方法において、

前記薄膜トランジスタのソース領域またはドレイン領域と電気的に接続された第1の電極を形成し、

前記第1の電極の端部を覆うように絶縁膜を形成し、

前記第1の電極の表面を多孔質なスポンジで洗浄した後、加熱を行い、

前記第1の電極と前記絶縁膜に対し、アルゴン及び酸素を含む雰囲気中でプラズマ処理を行い、

前記第1の電極及び前記絶縁膜上に有機化合物を含む層を形成し、

前記有機化合物を含む層上に第2の電極を形成して前記発光素子を形成することを特徴とする表示装置の作製方法。

【請求項2】

薄膜トランジスタと、発光素子とを有する表示装置の作製方法において、

前記薄膜トランジスタのソース領域またはドレイン領域と電気的に接続された第1の電極を形成し、

前記第1の電極の端部を覆うように絶縁膜を形成し、

前記第1の電極の表面を多孔質なスポンジで洗浄した後、加熱を行い、

前記第1の電極及び前記絶縁膜に対し、真空加熱を行い、

前記第1の電極及び前記絶縁膜に対し、アルゴン及び酸素を含む雰囲気中でプラズマ処理を行い、

前記第1の電極及び前記絶縁膜上に有機化合物を含む層を形成し、

前記有機化合物を含む層上に第2の電極を形成して前記発光素子を形成することを特徴とする表示装置の作製方法。

【請求項3】

請求項2において、

前記真空加熱の温度は、100℃～250℃であることを特徴とする表示装置の作製方

法。

【請求項 4】

請求項 2 または請求項 3 において、

前記真空加熱の真^ク空度は、 1×10^{-4} Pa 以下であることを特徴とする表示装置の作製方法。

【請求項 5】

請求項 2 乃至 4 のいずれか一において、

前記第 1 の電極及び前記絶縁膜に対して前記真空加熱を行い、前記第 1 の電極及び前記絶縁膜に対して前記アルゴン及び酸素を含む雰囲気中でプラズマ処理を行い、前記第 1 の電極及び前記絶縁膜上に前記有機化合物を含む層を形成し、前記有機化合物を含む層上に前記第 2 の電極を形成する工程において、真^ク空状態またはアルゴン及び酸素を含む雰囲気中で、連続的に順次行うことを特徴とする表示装置の作製方法。

【請求項 6】

請求項 1 乃至 5 のいずれか一において、

前記第 2 の電極は、抵抗加熱法またはスパッタ法で形成することを特徴とする表示装置の作製方法。

【請求項 7】

請求項 1 乃至 6 のいずれか一において、

前記絶縁膜は、ポリイミド、アクリル、ポリアミド、ポリイミドアミド、レジストまたはベンゾシクロブテンであることを特徴とする表示装置の作製方法。

【請求項 8】

請求項 1 乃至 6 のいずれか一において、

前記絶縁膜は、酸化シリコン、窒化シリコン、または酸化窒化シリコンであることを特徴とする表示装置の作製方法。

【請求項 9】

請求項 1 乃至 請求項 8 のいずれか一において、

前記プラズマ処理において、前記アルゴン及び前記酸素の流量比を 1 対 9 から 9 対 1 までの範囲とすることを特徴とする表示装置の作製方法。

【請求項 10】

請求項 1 乃至 請求項 9 のいずれか一において、

前記第 1 の電極として、酸化インジウム酸化スズ合金、酸化インジウム酸化亜鉛合金、または酸化亜鉛を用いることを特徴とする表示装置の作製方法。

【請求項 11】

請求項 1 乃至 請求項 10 のいずれか一において、

前記第 1 の電極は、陽極となることを特徴とする表示装置の作製方法。

【請求項 12】

請求項 1 乃至 請求項 11 のいずれか一において、

前記第 2 の電極は、陰極となることを特徴とする表示装置の作製方法。

【請求項 13】

請求項 1 乃至 請求項 12 のいずれか一において、

前記絶縁膜の形成において、前記絶縁膜の上端部に第 1 の曲率半径を有する曲面、および前記絶縁膜の下端部に第 2 の曲率半径を有する曲面を形成することを特徴とする表示装置の作製方法。

【請求項 14】

請求項 13 において、

前記第 1 の曲率半径および前記第 2 の曲率半径は、 $0.2 \mu\text{m} \sim 3 \mu\text{m}$ となることを特徴とする表示装置の作製方法。

【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【書類名】明細書

【発明の名称】表示装置の作製方法

【技術分野】

【0001】

本発明は、エレクトロルミネッセンス（以下、ELと略す）素子を基板上に作り込んで形成された表示装置に関する。特に有機EL素子の製造方法に関する。

【技術背景】

【0002】

近年、自発光型の発光素子としてEL素子を有した表示装置の研究が活発化しており、特に、EL材料として有機材料を用いた表示装置が注目されている。この表示装置はELディスプレイとも呼ばれ、液晶表示装置と異なり自発光型であるため視野角の問題がないという特徴がある。

【0003】

EL素子は一对の電極間に有機物を含む層（EL層）が挟まれた構造となっており、EL層は通常、積層構造となっている。陽極上に正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層、または正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層の順に積層する構造が現在、一般的に採用されている。また、発光層に対して蛍光性色素等をドーピングしても良い。これらの層は、低分子系の材料を用いて形成しても良いし、高分子系の材料を用いて形成しても良い。

【0004】

なお、本明細書において、陽極と陰極との間に設けられる全ての層を総称して有機物を含む層（EL層）という。したがって、上述した正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層及び電子注入層は、全てEL層に含まれるものとする。これらの有機化合物の成膜方法には、蒸着法、スピンドルコート法、インクジェット法といった方法が知られている。

【0005】

また、EL素子には、互いに直交するように設けられた2種類のストライプ状電極の間にEL層を形成する方式（単純マトリクス方式）、又は薄膜トランジスタ（以下、TFTと略す）に接続されマトリクス状に配列された画素電極と対向電極との間にEL層を形成する方式（アクティブマトリクス方式）の2種類がある。画素密度が増えた場合には、画素（又は1ドット）毎にスイッチが設けられているアクティブマトリクス型の方が低電圧駆動できるので有利であると考えられている。

【0006】

有機EL素子は、主に水分や酸素が原因で劣化して、部分的な輝度の低下や非発光領域を生じることがある。劣化のパターンの1つに、非駆動の保存時、及び、駆動時において、時間の経過と共に非発光領域が拡大し、最終的には全て非発光領域となってしまう不良がある。非発光領域は発光領域の周縁部から発生しやすく、拡大するとあたかも発光領域が収縮するように見えることから、この不良モードをシュリンクと呼んでいる。なお、図4（A）にはEL素子作製直後の発光状態を示しており、EL素子作製直後から時間が経ちシュリンクが発生した様子を図4（B）に示している。

【0007】

特にアクティブマトリクス型のEL素子のように発光領域の最小表示単位（画素）が小さい面積である場合、画素内でシュリンクが発生するとすぐに画素全体が暗くなってしまう。従って、有機EL素子を用いた表示装置の場合、シュリンクが発生すると、高精細（画素ピッチが小さい）、且つ、信頼性の高い表示を得ることが困難である。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

シュリンクの起こる過程として、絶縁膜の表面が粗く陰極のカバレッジが十分でない為、そこに空いた穴から外部の水分が浸入しEL層に達する過程と、絶縁膜などの有機物に吸収されている水分が高温保存時に蒸発しEL層へ達する過程と、基板表面全体に吸着している水分が徐々にEL層に達して劣化を起こさせる過程が考えられる。

【0009】

上記絶縁膜とは、土手や隔壁と呼ばれるものであり、マトリクス方式で表示装置を作製する際、隣り合う画素間や配線の絶縁を保つために陽極の端部を覆うように形成するものである（図1（B）の30、図2（A）の111）。

【0010】

シュリンクの起こる過程のうち外部から浸入する水分に関しては、絶縁膜の表面の荒れを少なくし、且つ、緩やかなテーパー形状、望ましくは上端部または下端部に曲率半径を有する曲面を備えた形状（図6（A）または（B）にその例を示す）とすることによって陰極のカバレッジを良好なものとして解決している。

【0011】

また、絶縁膜などに吸収されている水分と基板表面に付着した水分に関しては、前処理として真空加熱を行うことにより取り除くことができる。しかし、シュリンクを発生させない為に十分な真空加熱を行うには、基板の加熱、冷却に加えて、装置の真空排気、設定温度までの加熱に長い時間がかかり、大量生産時の律速点に成り得る。なお、本明細書でいう前処理とは、有機物を含む層の蒸着の直前に行い、且つ、蒸着まで一貫して真空下で行う処理のことをいう。

【0012】

従来技術として、基板の前処理としてアルゴン雰囲気下で高周波電圧を印加し、プラズマ処理をしたところ、基板上の有機物を除去して発光ムラがなくなるだけでなく、シュリンクの発生を抑える効果があることが報告されている（特許文献1）。しかし、アルゴン雰囲気下で高周波電圧を印加し、プラズマ処理を行うと、ITOの仕事関数が低下するという報告もされている（非特許文献2）。また、酸素雰囲気下でプラズマ処理を行うと、陽極の端部に設けられたアクリルなど有機物の絶縁膜は削られてしまう。絶縁膜が過剰に削られると陰極と陽極が接しショートする。

【特許文献1】特開平7-142168号広報

【非特許文献1】Kiyoshi Sugiyama, Hisao Ishii and Yukio Ouchi : J. Appl. Phys. 87. 1. 295-298 (2000)

【0013】

そこで、本発明は、有機EL素子における上記のシュリンク等の不良モードの発生を抑える目的でプラズマ処理を行うためにその問題点を解決し、前処理に必要とされる時間を短縮することが目的として考え出された。

【課題を解決するための手段】

【0014】

本発明者らは、有機化合物を含む層を形成する前に、アルゴン及び酸素を含む雰囲気中で高周波電圧を印加してプラズマを発生させ、発生したプラズマを第1の電極及び絶縁膜に衝突させて水やごみ等をたたき出して洗浄することによって、基板の前処理にかかる時間を短時間にすることができる、またシュリンクや発光ムラを抑えることができ、且つ、絶縁膜が過剰に削れないということを見出した。さらに、第1の電極がITOであった場合、陽極としてのITO膜の仕事関数が低下しないことを見出した。

【0015】

本発明は、薄膜トランジスタと、発光素子とを有し、前記発光素子は前記薄膜トランジスタのソース領域またはドレイン領域と電気的に接続された第1の電極と、前記第1の電極上に形成された有機化合物を含む層と、前記有機化合物を含む層上に形成された第2の電極とを有する表示装置の作製方法において、前記ソース領域またはドレイン領域と電気的に接続された前記第1の電極を形成し、前記第1の電極の端部を覆うように前記絶縁膜

を形成し、前記第1の電極と前記絶縁膜に対し、アルゴン及び酸素を含む雰囲気中でプラズマ処理を行った後、前記第1の電極及び前記絶縁膜上に有機化合物を含む層を形成し、有機化合物を含む層上に第2の電極を形成することによって前記発光素子形成することを特徴とする表示装置の作製方法である。ここで、有機化合物を含む層は、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層及び電子注入層を含む。

【0016】

アルゴン及び酸素を含む雰囲気中で行うプラズマ処理のアルゴンガスと酸素ガスの流量比はアルゴン対酸素が1対9から9対1までの範囲とする。また、前記の絶縁膜をアクリルなどの有機材料で形成するときは、そこに吸着された水分を完全に除去するために、アルゴン及び酸素を含む雰囲気中でプラズマ処理を行う直前に、真空加熱を行ってもよい。

【0017】

前記真空加熱の温度は、100°C～250°C、真空度は、 1×10^{-3} Pa以下、好ましくは 1×10^{-4} Pa以下であることを特徴としている。また、アルゴン及び酸素を含む雰囲気中でプラズマ処理を行う前の洗浄度を一定に保つことができるため、前記真空加熱の他に湿式洗浄法やUV／オゾン洗浄等の他の洗浄と組み合わせることが好ましい。

【0018】

上記構成において、前記真空加熱を行う工程と、前記アルゴン及び酸素を含む雰囲気中でプラズマ処理を行う工程と、前記有機化合物を含む層を形成する工程と、前記第2の電極を形成する工程は、大気にふれることなく、真空状態またはアルゴン及び酸素を含む雰囲気中において、連続的に順次行なうことが好ましく、さらに望ましくは封止する工程まで大気にふれることなく連続的に行なうことによって、水分や酸素の侵入を抑え、信頼性を向上させる。また、上記構成において、前記第2の電極を形成する工程は、抵抗加熱法またはスパッタ法であることを特徴としており、TFTへのダメージの少ないものとする。

【発明の効果】

【0019】

本発明により、基板に悪影響を与えずに、シュリンクや発光ムラの発生を抑える為の前処理としてアルゴン及び酸素を含む雰囲気中でプラズマ処理を用いることできる。それにより前処理を短時間で行える。

【発明を実施するための最良の形態】

【0020】

本発明の実施の形態について、図1を用いて、以下に説明する。

【0021】

(実施の形態)

図1(A)はアクティブマトリクス型表示装置の上面図であり、図1(B)は鎖線A-A'で切断した断面図である。

【0022】

図1(A)において、1はソース信号線駆動回路、2は画素部、3はゲート信号線駆動回路である。また、4は封止基板、5はシール剤であり、シール剤5で囲まれた内側は、乾燥剤(図示しない)により乾燥された不活性気体が充填された空間になっている。7は、各発光素子に共通する上部電極と基板上の配線とを接続する接続領域である。

【0023】

なお、外部入力端子となるFPC(フレキシブルプリントサーキット)9からビデオ信号やクロック信号を受け取る。なお、ここではFPCしか図示されていないが、このFPCにはプリント配線基盤(PWB)が取り付けられていても良い。本明細書における表示装置には、表示装置本体だけでなく、それにFPCもしくはPWBが取り付けられた状態をも含むものとする。

【0024】

ソース信号線駆動回路1はnチャネル型TFTとpチャネル型TFTとを組み合せたCMOS回路が形成される。nチャネル型TFTは、ゲート電極の上下層とゲート絶縁膜15を挟んで重なるチャネル形成領域と、ゲート電極の下層とゲート絶縁膜15を挟んで

重なる低濃度不純物領域と、ゲート電極の下層と重ならない低濃度不純物領域と、ソース領域またはドレイン領域となる高濃度不純物領域とを有している。

【0025】

また、pチャネル型TFTは、ゲート電極の上層とゲート絶縁膜15を挟んで重なるチャネル形成領域と、ゲート電極の下層とゲート絶縁膜15を挟んで重なる低濃度不純物領域62dと、ゲート電極の下層と重ならない低濃度不純物領域と、ソース領域またはドレイン領域となる高濃度不純物領域とを有している。また、駆動回路を形成するTFTは、公知のCMOS回路、PMOS回路もしくはNMOS回路で形成しても良い。また、本明細書では、基板上に駆動回路を形成したドライバー一体型を示すが、必ずしもその必要はなく、基板上ではなく外部に形成することもできる。

【0026】

図1(B)では電流制御用TFT50と、スイッチング用TFT40と、容量41の断面図を示した。図1(B)では、スイッチング用TFT40として、ゲート絶縁膜15を間に挟んでゲート電極64と重なる複数のチャネル形成領域60aを有するnチャネル型TFTを用いた一例を示している。なお、47、48はソース配線またはドレイン配線、60bはソース領域またはドレイン領域、60cはゲート電極64と重ならない低濃度不純物領域である。容量41は、層間絶縁膜22、20を誘電体とし、電極46と電極63とで保持容量を形成し、さらにゲート絶縁膜15を誘電体とし、電極63と半導体膜42とでも保持容量を形成している。

【0027】

また、画素部2には、スイッチング用TFT40と、第1の電極(陽極)28と接続している電流制御用TFT50とそのドレイン領域またはソース領域(高濃度不純物領域)62bに電気的に接続された下部電極となる第1の電極(陽極)28と容量41を含む複数の画素により形成される。一つの画素には複数のTFTが形成される。電流制御用TFT50は、ゲート電極の上層66b及びゲート電極の下層66aとゲート絶縁膜15を挟んで重なるチャネル形成領域62aと、ゲート電極の下層66aとゲート絶縁膜15を挟んで重なる低濃度不純物領域62dと、ゲート電極の下層66aと重ならない低濃度不純物領域62cとを有している。なお、23、24はソース電極またはドレイン電極であって、24は第1の電極(陽極)28と高濃度不純物領域62bとを接続する接続電極である。

【0028】

また、層間絶縁膜20、21、22としては、感光性または非感光性の有機材料(ポリイミド、アクリル、ポリアミド、ポリイミドアミド、レジストまたはベンゾシクロブテン)、スパッタ法やCVD法や塗布法による無機材料(酸化シリコン、窒化シリコン、酸化窒化シリコンなど)、またはこれらの積層などを用いることができる。図1(B)においては、ゲート電極およびゲート絶縁膜15を覆って窒化珪素膜からなる無機絶縁膜20を設けており、この無機絶縁膜20は、膜中に水素を含ませる条件で成膜を行い、加熱処理を行うことによって半導体層のダングリングボンドを終端する水素化のために設けられた無機絶縁膜である。酸化シリコン膜からなるゲート絶縁膜15の存在に関係なく下方に存在する半導体層を水素化することができる。

【0029】

また、層間絶縁膜21は、感光性の有機材料を塗布法により成膜した後、ウエットエッティングまたはドライエッティングによって上端部が曲率半径を有する曲面となるように選択的にエッティングしている。また、層間絶縁膜21として有機材料を用いる場合には、層間絶縁膜21中の水分やガスや不純物が拡散し、後に形成する発光素子を劣化させないようにプロッキングするため、窒化シリコン膜、酸化窒化シリコン膜、酸化窒化アルミニウム膜、またはこれらの積層からなる層間絶縁膜22で覆うことが好ましい。また、層間絶縁膜22は基板10から発光素子への不純物の拡散や発光素子からTFTへの不純物の拡散などをプロッキングすることもできる。

【0030】

また、層間絶縁膜21として、吸湿性を有する有機材料を用いる場合、後の工程で他のパターニングで使用する剥離液などの溶液に晒されると膨潤するため、再度ベークする必要があるが、層間絶縁膜22で覆うことによって層間絶縁膜21を膨潤させないようにすることができる。

【0031】

また、層間絶縁膜20～22として無機絶縁膜を用いる場合には、PCVD法またはスパッタ法を用いて成膜すればよいが、特にRFスパッタ法でシリコンをターゲットとして用い、基板温度を室温～350℃、成膜圧力を0.1Pa～1.5Pa、13.56MHzの高周波電力(5～20W/cm²)を印加して、窒素ガスのみ、あるいは窒素ガスとアルゴンガスの混合ガスにより形成した窒化珪素膜は、Na、Liその他の周期表の1族もしくは2族に属する元素に対するプロッキング効果が極めて強く、これらの可動イオン等の拡散を効果的に抑制することができる。

【0032】

本発明に用いる第2の電極(陰極)32としては、アルミニウムに0.2～1.5wt% (好ましくは0.5～1.0wt%) のリチウムを添加した金属膜が電荷注入性およびその他の点で好適であるが、リチウムを含む材料を第2の電極(陰極)32として用いる場合、リチウムの拡散によってトランジスタの動作に害を及ぼすことが懸念されるが、層間絶縁膜22がRFスパッタ法による窒化珪素膜であれば、リチウムがTFTに拡散することを防ぐことができる。

【0033】

層間絶縁膜21として、感光性の有機樹脂材料を用いた場合は、図1(B)に示すように上端部に曲率半径を有する曲面を有するコンタクトホールとなりやすいが、層間絶縁膜22として、非感光性の有機樹脂材料、または無機材料を用いた場合には、図2(A)、(B)に示したコンタクトホールの断面図となる。

【0034】

また、第1の電極(陽極)28の両端には絶縁膜(バンク、隔壁、障壁、土手などとも呼ばれる)30が形成され、第1の電極(陽極)28上には有機化合物を含む層(EL層とも呼ぶ)31が形成される。第1の電極(陽極)28としては、透明導電膜(ITO(酸化インジウム酸化スズ合金)、酸化インジウム酸化亜鉛合金(In₂O₃—ZnO)、酸化亜鉛(ZnO)等)を用いればよい。

【0035】

有機化合物を含む層31は、極めて薄いため、第1の電極(陽極)28の表面は平坦であることが好ましく、例えば、第1の電極(陽極)28のパターニング前、またはパターニング後に化学的及び機械的に研磨する処理(代表的にはCMP技術)等により平坦化を行えばよい。CMPを行う場合には、電極24または絶縁膜30の膜厚を薄くする、或いは電極24の端部をテーパー形状として行えば、さらに第1の電極(陽極)28の平坦性を向上させることができる。

【0036】

また、第1の電極(陽極)28の平坦性を向上させるために層間絶縁膜21として有機樹脂膜を用いた場合、層間絶縁膜22として無機絶縁膜を設けることによってクラックの発生を防止して作製直後の非発光領域の発生や点欠陥の発生を抑えることが好ましい。

【0037】

また、絶縁膜30としては、感光性または非感光性の有機材料(ポリイミド、アクリル、ポリアミド、ポリイミドアミド、レジストまたはベンゾシクロブテン)、CVD法やスパッタ法や塗布法による無機材料(酸化シリコン、窒化シリコン、酸化窒化シリコンなど)、またはこれらの積層などを用いることができる。

【0038】

また、絶縁膜30として感光性の有機材料を用いる場合、感光性の有機材料は大きく分けて2種類、感光性の光によってエッチャントに不溶解性となるネガ型、或いは光によってエッチャントに溶解性となるポジ型があるが、どちらも適宜使用することができる。ま

た、有機材料からなる絶縁膜30とした場合、絶縁膜30を無機絶縁膜（スパッタ法の窒化珪素膜など）で覆ってもよい。

【0039】

また、第1の電極（陽極）28の表面における清浄度を向上させるため、絶縁膜30の形成前、または形成後に異物（ゴミなど）をクリーニングするための洗浄（ブラシ洗浄やスポンジ洗浄）を行い、ダークスポットや点欠陥の発生を低減させる。スポンジ洗浄などの湿式洗浄を行った後は、大気圧で100～250℃のオーブンで30分～2時間加熱し、基板の水分を除去する。冷却後、UV／オゾン処理を行う。

【0040】

次いで、基板を成膜装置内に移し、アルゴン及び酸素を含む雰囲気中で高周波電圧を印加することにより、プラズマを発生させ、発生したプラズマを第1の電極（陽極）28及び絶縁膜30等に対して衝突させる。このアルゴン及び酸素を含む雰囲気中で行うプラズマ処理により、第1の電極（陽極）28と絶縁膜30等の中にある水やごみ等をたたき出し、シュリンク、発光ムラの発生を抑えることが出来るという効果がある。さらに、前処理工程を従来よりも短時間で行うことができる。

【0041】

また、TFT及び絶縁膜中に取り込まれた水分を完全に除去するために、アルゴン及び酸素を含む雰囲気中で行うプラズマ処理の前に、真空加熱を行っても良い。その場合、洗浄後にオーブンで加熱した直後、 5×10^{-3} Torr (0.665 Pa) 以下、好ましくは 10^{-4} Pa 以下まで真空排気して、100℃～250℃、好ましくは150℃～200℃、例えば20分以上の加熱を行った後、20分の自然冷却を行って吸着水分を除去する。なお、中には250℃の熱処理に耐えない材料もあるため、真空加熱の条件は、層間絶縁膜材料や配線材料によって適宜設定することが必要である。

【0042】

次いで、 5×10^{-3} Torr (0.665 Pa) 以下、好ましくは 10^{-4} Pa 以下まで真空排気した蒸着室で蒸着を行い、有機化合物を含む層（EL層）31を形成し、有機化合物を含む層31上に第2の電極（陰極）32を蒸着法（抵抗加熱法）またはスパッタ法により形成する。これにより、第1の電極（陽極）28、有機化合物を含む層（EL層）31、及び第2の電極（陰極）32を有する発光素子が形成される。

【0043】

有機化合物を含む層（EL層）31としては、高分子材料、低分子材料、無機材料、またはこれらを混合させた層、またはこれらを分散させた層、またはこれらの層を適宜組み合わせた積層とすればよい。なお、有機化合物を含む層（EL層）31の形成後に、真空加熱を行って脱気を行うことが好ましい。

【0044】

有機化合物を含む層（EL層）31からの発光を、白色発光として、カラーフィルターや色変換層などを別途設けることによってフルカラー表示可能な発光表示装置としてもよい。また、簡単な表示のみを行う表示装置、照明装置として使用する場合、単色発光（代表的には白色発光）とすればよい。

【0045】

例えば、ホール輸送性のポリビニルカルバゾール（PVK）に電子輸送性の1, 3, 4-オキサジアゾール誘導体（PBD）を分散させてもよい。また、30wt%のPBDを電子輸送剤として分散し、4種類の色素（テトラフェニルブタジエン（TPB）、クマリン6、4-ジシアノメチレン-2-メチル-6-p-ジメチルアミノスチリル-4H-ピラン（DCM1）、ナイルレッド）を適定量分散することで白色発光が得られる。また、赤色発光する有機化合物膜や緑色発光する有機化合物膜や青色発光する有機化合物膜を適宜選択し、重ねて混色させることによって全体として白色発光を得ることも可能である。

【0046】

なお、第2の電極（陰極）32は、電子ビームを使用する蒸着法では蒸着の際に放出されるX線によってTFTにダメージを与えてしまうため、抵抗加熱法を用いて蒸着を行う

ことが好ましい。第2の電極（陰極）32の材料としては、MgAg、MgIn、AlLi、CaF₂、CaNなどの合金、または周期表の1族もしくは2族に属する元素とアルミニウムとを共蒸着法により形成した膜を100nm～500nmの膜厚範囲用いればよい。第2の電極（陰極）32の膜厚が厚いほうが、有機化合物を含む層への水分や酸素の拡散をブロックすることができる。

【0047】

発光素子を白色発光とする場合、着色層とブラックマトリクスからなるカラーフィルター（簡略化のため、ここでは図示しない）を基板10に設ける。

【0048】

第2の電極（陰極）32は、全画素に共通の配線としても機能し、配線を経由してFPC9に電気的に接続されている。なお、図1(A)、(B)には、第2の電極（陰極）32と配線45を接続させる接続領域7を示しており、この配線45を引き回してFPC9に電気的に接続させる。

【0049】

また、端子部は、ゲート電極と同一工程で形成される電極と、ソース電極またはドレン電極と同一工程で形成される電極と、第1の電極（陽極）28と同一工程で形成される電極との積層からなる端子電極がFPC9と導電性接着剤などの接着剤で貼りつけられている。なお、端子部の構成は特に限定されず、適宜形成すればよい。

【0050】

また、基板10上に形成された発光素子を封止するためにフィラーを含むシール剤5により封止基板4を貼り合わせる。なお、封止基板4と発光素子との間隔を確保するために樹脂膜からなるスペーサを設けても良い。そして、シール剤5の内側の空間には窒素等の不活性気体が充填されている。なお、シール剤5としてはエポキシ系樹脂を用いるのが好ましい。また、シール剤5はできるだけ水分や酸素を透過しない材料であることが望ましい。さらに、空間の内部に酸素や水を吸収する効果をもつ物質（乾燥剤など）を設けても良い。

【0051】

また、本発明では封止基板4を構成する材料としてガラス基板や石英基板の他、FRP(Fiberglass-Reinforced Plastics)、PVF(ポリビニルフロライド)、マイラー、ポリエステルまたはアクリル等からなるプラスチック基板を用いることができる。また、シール剤5を用いて封止基板4を接着した後、さらに側面（露呈面）を覆うようにシール剤で封止することも可能である。

【0052】

以上のようにして発光素子を閉空間に封入することにより、発光素子を外部から完全に遮断することができ、外部から水分や酸素といった有機化合物層の劣化を促す物質が侵入することを防ぐことができる。従って、シュリンクが発生しない信頼性の高い表示装置を得ることができる。

【0053】

また、本発明は図1(B)の画素部のスイッチングTFT40の構造は上述のものに限定されず、例えば、ゲート絶縁膜を介してゲート電極と重ならない低濃度不純物領域60cの他に、ゲート電極と重なる低濃度不純物領域60bをチャネル形成領域60aとドレン領域（またはソース領域）との間に設けてもよい。また、ゲート電極形状も限定されず、単層のゲート電極としてもよい。

【0054】

加えて、ここではトップゲート型TFTを例として説明したが、TFT構造に関係なく本発明を適用することが可能であり、例えばボトムゲート型（逆スタガ型）TFTに適用することが可能である。

【0055】

また、図1(B)では、ソース領域またはドレン領域に接する接続電極24を形成した後、第1の電極（陽極）28を形成した構造を示したが、特に限定されず、例えば、第

1の電極（陽極）28を形成した後に、ソース領域またはドレイン領域に接する接続電極を形成してもよい。

【0056】

また、ソース領域またはドレイン領域と接する電極を覆う層間絶縁膜をさらに設け、コンタクトホールを形成した後、その層間絶縁膜上に電極と接続する第1の電極を形成してもよい。

【実施例】

【0057】

ここではTFTと接続する第1の電極は陽極であり、第1の電極（陽極）がマトリクス状に配置されたアクティブマトリクス基板上に有機化合物を含む層、および第2の電極（陰極）を形成する例を以下に示す（図2）。

【0058】

まず、絶縁表面を有する基板100上にTFTを形成する。TFTはゲート電極105と、ゲート絶縁膜106aと、チャネル形成領域102と、ドレイン領域またはソース領域103、104と、ソース電極またはドレイン電極107、108と、絶縁膜106b、106cとからなる。第1の電極110としては、仕事関数の大きい金属（Pt、Cr、W、Ni、Zn、Sn、In）、本実施例ではスパッタ法で成膜されたITOからなる導電膜を用いる。本実施例ではTFTとしてチャネル形成領域が結晶構造を有する半導体膜（代表的にはポリシリコン膜）であるpチャネル型TFTを用いる。

【0059】

なお、TFTの層間絶縁膜の最上層、即ち、第1の電極（陽極）110と下面で接する絶縁層106cは無機絶縁膜（代表的にはRFスパッタ法で成膜された窒化珪素膜）とする。カバーレッジの良好な無機絶縁膜を設けることによって、上に形成する第1の電極（陽極）110のクラックをなくす。また、無機絶縁膜とすることで表面の吸着水分を低減することができるため、後に有機化合物を含む層の成膜を行ってもシユリンクの発生を抑えることができる。

【0060】

このRFスパッタ法で成膜されたの窒化珪素膜は、シリコンをターゲットとして用いた緻密な膜であり、LAL500を用いたエッチング速度が0.77 nm/min～8.6 nm/minと遅く、膜中の水素濃度がSIMS測定で 1×10^{21} atoms/cm³である。なお、LAL500とは、橋本化成株式会社製「LAL500 SAバッファードフッ酸」であり、NH₄HF₂（7.13%）とNH₄F（15.4%）を含む水溶液である。また、このRFスパッタ法の窒化珪素膜は、BTストレス試験後におけるC-V特性のシフトは差がなく、アルカリ金属や不純物のプロッキングができる。

【0061】

また、層間絶縁膜106bとして有機樹脂膜を用いることで平坦性を向上させることができる。また、有機樹脂膜に代えて、PCVD法やスパッタ法による酸化珪素膜、酸化窒化珪素膜、窒化珪素膜を用いた場合には、発光素子作製直後の非発光領域の発生、および非発光領域の拡大が生じず、第1の電極（陽極）110のクラックもなくすことができる。

【0062】

次いで、第1の電極（陽極）110の端部を覆う絶縁膜111を形成する（図2（A））。絶縁膜111は、TFTのコンタクトホールや配線109を覆い、隣り合う画素間や配線との絶縁を保つために形成するものである。絶縁膜111としては、無機材料（酸化シリコン、窒化シリコン、酸化窒化シリコンなど）、感光性または非感光性の有機材料（ポリイミド、アクリル、ポリアミド、ポリイミドアミド、レジストまたはベンゾシクロブテン）、またはこれらの積層などを用いることができる。光によってエッチャントに不溶解性となるネガ型の感光性アクリルを用い、絶縁膜111の上端部に第1の曲率半径を有する曲面、および下端部に第2の曲率半径を有する曲面を持たせる。前記第1の曲率半径および前記第2の曲率半径は、0.2 μm～3 μmとすることが好ましい。

【0063】

また、本実施例は、光によってエッチャントに溶解性となるポジ型の有機樹脂を用いている。この場合、絶縁膜111の上端部のみに曲率半径を有する曲面を持たせることができる。絶縁膜111の上端部または下端部に曲率半径を有する曲面を持たせることによって、発光素子作製直後の非発光領域が生じなくなるが、絶縁膜111の形状としてはどちらでもよい。

【0064】

また、絶縁膜111を窒化アルミニウム膜、窒化酸化アルミニウム膜、または窒化珪素膜からなる保護膜で覆ってもよい。無機絶縁膜からなる保護膜で覆うことによって表面の吸着水分を低減することができるため、後に有機化合物を含む層の成膜を行ってもシクリンクの発生を抑えることができる。

【0065】

ここで、絶縁膜の上端部または下端部に曲率半径を有する曲面を持たせることの効果について図3を用いて説明をする。図3において、200は基板、201は下地絶縁膜、202はゲート絶縁膜、203は層間絶縁膜、204は窒化珪素膜、205は第1の電極（陽極）、206は絶縁膜、207は有機化合物を含む層、208は第2の電極（陰極）である。

【0066】

そして、絶縁膜206は、上端部206a（図3（A）中で丸で囲んだ領域）に曲面を有し、下端部206b（図3中で丸で囲んだ領域）にも曲面を有しており、基板面と絶縁膜206の側面とのなす角（テーパー角） θ_t ($\theta_t = 35^\circ \sim 70^\circ$) を有しているため、なだらかであり、その上に形成される有機化合物を含む層207、第2の電極（陰極）208のカバレッジが良好なものとなる効果がある。

【0067】

絶縁膜111を形成した後、第1の電極（陽極）110表面に点在する微小な粒を除去するために、多孔質なスポンジ（代表的にはPVA（ポリビニルアルコール）製、ナイロン製）に界面活性剤（弱アルカリ性）を含ませ、第1の電極（陽極）110表面を擦って洗浄する。その後、200℃のオーブンで大気圧のまま1時間加熱する。自然冷却後、UV／オゾン処理を370秒行い、基板を成膜装置にセットし、アルゴン及び酸素を含む雰囲気中でプラズマ処理を行う。本実施例では、成膜装置のチャンバー内を 1×10^{-5} Torr以下での真空度まで減圧した後、 8.3×10^{-2} Torr (11 Pa) になるまで、流量比のAr:O₂=67 sccm:133 sccm (3:7) でガスを導入し、75W、Gap 50 mmで90秒間、高周波電圧を印加することで、アルゴン及び酸素を含む雰囲気中でプラズマ処理を行なった。

【0068】

有機化合物を含む層112としては、フルカラー表示とする場合、具体的には赤色、緑色、青色の発光を示す材料層をそれぞれ蒸着マスクを用いた蒸着法、またはインクジェット法などによって適宜、選択的に成膜すればよい。

【0069】

本実施例では、緑色の発光を示す有機化合物を含む層112を形成した。正孔注入層として、CuPcを20 nm、正孔注入層として、芳香族アミン系材料である4,4-ビス-[N-(ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル（以下、 α -NPDと略す）を40 nm成膜した後、同一の蒸着マスクを用いて、緑色の発光層としてジメチルキナクリドン(DMQD)が添加されたトリス-6-キノリラトアルミニウム錯体（以下、Alq₃と略す）を40 nm成膜し、電子輸送層としてAlq₃を40 nm成膜し、電子注入層としてCaF₂を1 nm成膜した。

【0070】

また、青色の発光を示す有機化合物を含む層112を形成する場合、正孔注入層として、CuPcを20 nm、正孔注入層及び発光層として、 α -NPDを40 nm成膜した後、同一のマスクを用いて、プロッキング層としてバソキュプロイン(BCP) 10 nm成

膜し、電子輸送層としてAl₂O₃を40nm成膜し、電子注入層としてCaF₂を1nm成膜する。

【0071】

また、赤色の発光を示す有機化合物を含む層112を形成する場合、正孔注入層としてCuPcを20nm、正孔注入層として、α-NPDを40nm成膜した後、同一のマスクを用いて、赤色の発光層としてDCM1が添加されたAl₂O₃を40nm成膜し、電子輸送層としてAl₂O₃を40nm成膜し、電子注入層としてCaF₂を1nm成膜する。

【0072】

なお、第2の電極（陰極）113は、電子ビームを使用する蒸着法では蒸着の際に放出されるX線によってTFTにダメージを与えてしまうため、抵抗加熱法を用いて蒸着を行うことが好ましい。第2の電極（陰極）113の材料としては、MgAg、MgIn、AlLi、CaF₂、CaNなどの合金、または周期表の1族もしくは2族に属する元素とアルミニウムとを共蒸着法により形成した膜を100nm～500nmの膜厚範囲用いればよい。第2の電極（陰極）の膜厚が厚いほうが、有機化合物を含む層への水分や酸素の拡散をブロックすることができる。本実施例ではアルミニウムのみを抵抗加熱法で200nm成膜した（図2（B））。

【0073】

アルゴン及び酸素を含む雰囲気中でプラズマ処理を行う工程から封止工程まで真空下で行う以上の工程により、短時間で、シュリンクが無く、且つ、発光ムラのない発光素子を形成することができ、この工程を用いて有機EL素子を作製する。

【0074】

以下に実施例と有機化合物を含む層（EL層）を形成する前の前処理工程の条件を変えたものをシュリンク、発光ムラについて比較を行った。

【0075】

（比較例1）前処理工程として、成膜装置内のチャンバーを 1×10^{-3} Pa以下に減圧した後、170℃で加熱を30分、自然冷却30分、行った。真空加熱から封止工程まで真空を破ることなく、実施例と同様に有機EL素子を作製することが出来る。

【0076】

（比較例2）UV／オゾン洗浄後に、前処理工程として真空加熱やアルゴン及び酸素を含む雰囲気中のプラズマ処理などを一切行わずに蒸着から封止工程まで真空を破ることなく、実施例と同様に有機EL素子を作製した。

【0077】

上記の前処理工程で形成した実施例1および比較例1、2の有機EL素子に対し、初期状態の発光の状態と、65℃、湿度95%の雰囲気下において190時間保存した後のシユリンクの発生を観察した。

【0078】

評価の結果を図5、表1に示す。表中、○は良好、×は悪いを示す。

【0079】

また、図5の（A）には実施例の結果を示し、左側には初期状態の発光の状態の写真であり、右側には65℃、湿度95%の雰囲気下において190時間保存した後の写真である。同様に、図5の（B）には比較例1の結果を示し、左側には初期状態の発光の状態の写真であり、右側には65℃、湿度95%の雰囲気下において190時間保存した後の写真である。図5の（C）には比較例2の結果を示し、左側には初期状態の発光の状態の写真であり、右側には65℃、湿度95%の雰囲気下において190時間保存した後の写真である。

【表1】

【0080】

これらの結果から、前処理として短時間アルゴン及び酸素を含む雰囲気中でプラズマ処理を行った素子は、真空加熱を長時間行った素子と同程度に高温高湿保存後のシユリンク

の発生が抑えられることが分かった。さらに、プラズマ処理によって真空加熱のみでは除去できなかった第1の電極（陽極）上に残った有機材料を除去できるので発光ムラのない有機EL素子が得られる（図5）。

【産業上の利用可能性】

【0081】

本発明により、基板に悪影響を与える前に、シユリンクや発光ムラの発生を抑える為の前処理としてアルゴン及び酸素を含む雰囲気中のプラズマ処理を用いることにより、前処理を短時間で行うことが出来る。これにより、表示装置を大量生産する際に、スループットを向上させることができる。

【図面の簡単な説明】

【0082】

【図1】 図1は、実施の形態を示す上面図および断面図である。

【図2】 図2は、実施例1を示す工程図である。

【図3】 図3は、実施例1を示す図である。

【図4】 図4は、時間とともに拡大するシユリンクの様子を示す図である。

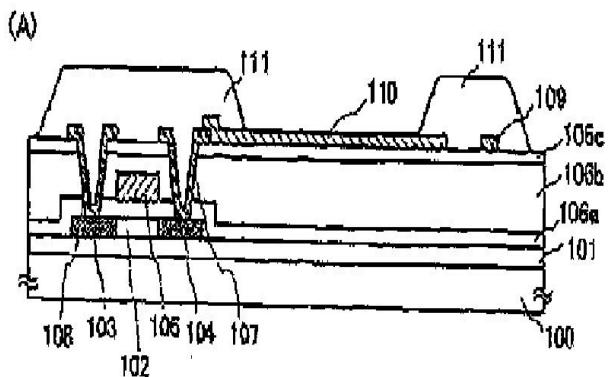
【図5】 図5は、本発明と従来とを比較するためのシユリンクの様子を写した写真である。

【図6】 図6は、実施の形態を示すTEM写真である。

专利名称(译)	制造显示装置的方法		
公开(公告)号	JPWO2004062323A1	公开(公告)日	2006-05-18
申请号	JP2004539103	申请日	2003-12-19
[标]申请(专利权)人(译)	株式会社半导体能源研究所		
申请(专利权)人(译)	半导体能源研究所有限公司		
[标]发明人	土屋 薫 石垣 步 斎藤 恵子		
发明人	土屋 薫 石垣 步 斎藤 恵子		
IPC分类号	H05B33/10 H01L51/50 H05B33/22 H01L27/32 H01L51/56 H05B33/26		
CPC分类号	H05B33/26 H01L27/3246 H01L51/5206 H05B33/10		
FI分类号	H05B33/10 H05B33/14.A H05B33/22.Z		
F-TERM分类号	3K007/AB18 3K007/BA06 3K007/DB03 3K007/EA00 3K007/EB00 3K007/FA01 3K007/FA03 3K007/GA00		
优先权	2002380457 2002-12-27 JP		
其他公开文献	JPWO2004062323A5 JP4554367B2		
外部链接	Espacenet		

摘要(译)

在本发明中，为了抑制发光元件中的收缩或不均匀发光等失效模式的发生，缩短含有有机化合物(EL层)的层的成膜前处理所需的时间，形成电连接到源区或漏区的第一电极，形成绝缘膜以覆盖第一电极的端部，并使用氩在第一电极和绝缘膜上形成绝缘膜在含氧气氛中等离子体处理后在第一电极和绝缘膜上形成含有有机化合物的层，并在含有有机化合物的层上形成第二电极从而形成发光元件。



(B)