

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2012 年 9 月 27 日(27.09.2012)



(10) 国際公開番号
WO 2012/127982 A1

- (51) 国際特許分類:
C23C 14/06 (2006.01) H01L 51/50 (2006.01)
C23C 14/24 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/054591
- (22) 国際出願日: 2012 年 2 月 24 日(24.02.2012)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2011-061510 2011 年 3 月 18 日(18.03.2011) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 東京エレクトロン株式会社(TOKYO ELECTRON LIMITED) [JP/JP]; 〒1076325 東京都港区赤坂五丁目 3 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 小野 裕司 (ONO, Yuji) [JP/JP]; 〒0231101 岩手県奥州市江刺区岩谷堂字松長根 5 2 東京エレクトロン東北株式会社内 Iwate (JP). 林 輝幸(HAYASHI, Teruyuki) [JP/JP]; 〒4070192 山梨県韮崎市穂坂町三ツ沢 6 5 0 東京エレクトロン株式会社内 Yaman-

ashi (JP). 桑田 拓岳(KUWADA, Hiroataka) [JP/JP]; 〒9813137 宮城県仙台市泉区大沢 3-2-1 東京エレクトロン技術研究所株式会社内 Miyagi (JP). 森田 治(MORITA, Osamu) [JP/JP]; 〒9813137 宮城県仙台市泉区大沢 3-2-1 東京エレクトロン技術研究所株式会社内 Miyagi (JP).

(74) 代理人: 河野 登夫(KOHNO, Takao); 〒5400035 大阪府大阪市中央区釣鐘町二丁目 4 番 3 号 河野特許事務所 Osaka (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

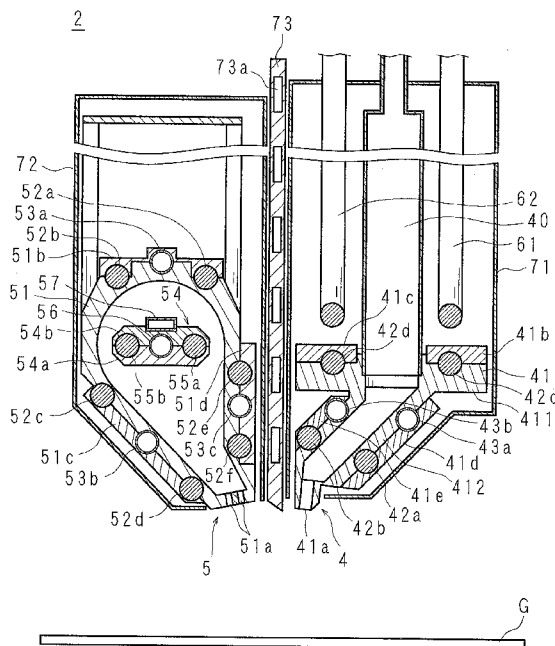
(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW,

[続葉有]

(54) Title: FILM FORMING APPARATUS, FILM FORMING METHOD, METHOD FOR MANUFACTURING ORGANIC LIGHT EMITTING ELEMENT, AND ORGANIC LIGHT EMITTING ELEMENT

(54) 発明の名称: 成膜装置、成膜方法、有機発光素子の製造方法、及び有機発光素子

[図4]



(57) Abstract: Provided are a film forming apparatus and a film forming method that can carry out intended co-deposition, a method for manufacturing an organic light emitting element, and an organic light emitting element. The film forming head of the film forming apparatus is provided with an organic film forming material supply part (4) that sprays vapor of the organic film forming material toward a substrate (G) being processed and an inorganic film forming material supply part (5) that sprays vapor of an inorganic film forming material toward the substrate (G) being processed. The organic film forming material supply part (4) and the inorganic film forming material supply part (5) are constituted so as to be movable in the horizontal direction and the vertical direction, and the arrangement thereof is controlled to form a film in which the mixing proportion of the organic material and inorganic material sprayed by spray nozzles (41a, 51a) is different in the direction of thickness.

(57) 要約:

[続葉有]

WO 2012/127982 A1



MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラ
シア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨー
ロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE,
ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV,
MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK,

SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ,
GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

所望の共蒸着を行うことができる成膜装置、成膜方法、有機発光素子の製造方法、及び有機発光素子を提供する。成膜装置の成膜ヘッドは、有機成膜材料の蒸気を被処理基板 G へ向けて噴出する有機成膜材料供給部 4 と、無機成膜材料の蒸気を被処理基板 G へ向けて噴出する無機成膜材料供給部 5 とを備える。有機成膜材料供給部 4、無機成膜材料供給部 5 は、水平方向及び垂直方向に移動可能に構成されており、噴出口 4 1 a、5 1 a から噴出される有機材料、無機材料の混合割合が厚み方向に異なる状態で成膜されるように、配置を制御される。

明 細 書

発明の名称：

成膜装置、成膜方法、有機発光素子の製造方法、及び有機発光素子 技術分野

[0001] 本発明は、有機成膜材料及び無機成膜材料のうちの２種以上の混合蒸気を被処理基板へ供給することによって共蒸着を行う成膜装置、成膜方法、該成膜方法により成膜する工程を有する有機発光素子の製造方法、及び有機発光素子に関する。

背景技術

[0002] 近年、エレクトロルミネッセンス（EL: electroluminescence）を利用した有機ＥＬ素子が開発されている。有機ＥＬ素子は、ブラウン管等に比べて消費電力が小さく、また、自発光であるため、液晶ディスプレイ（ＬＣＤ）に比べて視野角に優れている等の利点があり、今後の発展が期待されている。

[0003] 有機ＥＬ素子のもっとも基本的な構造は、ガラス基板上にアノード（陽極）層、発光層及び陰極（カソード）層を重ねて形成したサンドイッチ構造である。発光層の光を外に取り出すために、ガラス基板上のアノード層には、ＩＴＯ（Indium Tin Oxide）からなる透明電極が用いられる。

[0004] また、有機ＥＬ素子の陰極側には、陰極層から発光層への電子の移動の橋渡しを行うために、発光層の上に電子輸送層及び電子注入層（仕事関数調整層）が順に成膜されている。電子注入層としては仕事関数が小さいアルカリ金属、例えばセシウム（Ｃｓ）、Ｌｉ等が用いられ、電子輸送層には、電子輸送性の有機材料、例えばＡｌｑ₃（tris(8-hydroxyquinolino) aluminum）が用いられている。電子輸送層及び電子注入層は、それぞれ、蒸着によって成膜される。

[0005] 特許文献１，２には、上述の有機ＥＬ素子を製造する成膜装置が開示されている。該成膜装置は、被処理基板であるガラス基板を成膜処理する処理室を備えており、成膜材料の蒸気を発生させる蒸気発生部が処理室の外部に配

置されている。処理室の内部には、配管を通じて蒸気発生部に接続され、蒸気発生部で発生した成膜材料の蒸気をガラス基板へ向けて噴出する蒸着ヘッドが設けられている。

[0006] 従来の有機EL素子は、上述したように、有機成膜材料からなる電子輸送層の成膜の後に、無機成膜材料の電子注入層を成膜しており、陰極から電子が電子輸送層へ注入されるように構成するとともに、ホール（正孔）が電子注入層を突き抜け陰極界面が劣化するのを抑制している。以上の構成であるため、電子輸送層と電子注入層との界面のエネルギー障壁が大きく、駆動電圧を高くしなければ十分な発光強度を得ることができないという問題があった。

[0007] 界面のエネルギー障壁の高さを調整する方法として、有機成膜材料と無機成膜材料とを共蒸着させて電子注入層を構成することが考えられる。

例えば、蒸着ヘッドの内圧、特に有機成膜材料の蒸気圧が10Pa、処理室の内圧が0.01Pa、成膜材料の温度が450℃である場合を考える。

電子注入層にはLi、Na、Cs等のアルカリ金属やCa、Ba等のアルカリ土類金属が用いられる。Li及びCsの450℃における蒸気圧は0.01Paより高く、Naの蒸気圧は約0.01Pa、Caの蒸気圧は104Paより高いため、原理的には、各無機成膜材料を蒸着ヘッドから処理室内に噴出させることができる。しかし、特に利用が望まれているLiは沸点が高く、蒸気圧を10Pa以上にするためには成膜材料の温度を700℃以上にする必要がある。特許文献2の成膜装置を用い、2つの成膜材料を予め混合し（Pre-Mix）、得られた混合物を蒸着ヘッドから被処理基板上へ噴出することにした場合、蒸着ヘッド内で有機成膜材料が熱によるダメージを受け、所望の共蒸着を行うことは困難である。

[0008] 特許文献1の成膜装置は、電子輸送層を成膜する第1成膜機構と、カソード層を成膜する第2成膜機構を備えているが、該第1成膜機構を用い、有機成膜材料及び無機成膜材料を被処理基板上に共蒸着させることにした場合、上記と同様の問題が生じる。

従って、低沸点側の成膜材料が劣化することなく、共蒸着を行うことができ、膜厚方向に所望の濃度分布を設けて界面のエネルギー障壁の高さを調整したい場合には、これを実現できることが求められていた。

[0009] 一方、有機EL素子の発光層は、通常、有機化合物からなるホスト材料に、有機化合物からなるドーパント材料を混合して形成される。従来、ホスト材料及びドーパント材料の蒸気を各別の蒸気発生部により発生させ、1つの蒸着ヘッド内で混合し（Pre-Mix）、得られた混合物を蒸着ヘッドから被処理基板へ噴出して発光層を形成していた。しかし、ホスト材料とドーパント材料とは沸点の差が100℃以上になることもあり、蒸着ヘッド内で低沸点側材料が高沸点側材料からの伝熱により劣化する、高沸点側材料が蒸着ヘッドの壁面に堆積してクロスコンタミネーションが生じるという問題があった。

先行技術文献

特許文献

[0010] 特許文献1：特開2008-38225号公報

特許文献2：国際公開第2008/066103号パンフレット

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0011] 以上のように、低沸点側の成膜材料を劣化させることなく、各成膜材料を所要条件で蒸発させて、共蒸着を行うのを可能にすることが求められている。そして、要求性能に応じた共蒸着を可能にすることが求められている。例えば有機EL素子の発光層と陰極との間に共蒸着層を成膜する場合に、成膜方向の濃度分布を制御して、発光層側及び陰極側の界面のエネルギー障壁の大きさを調整することができ、また、成膜方向に混合割合を均一にしたい場合には、該混合割合が均一な状態で共蒸着を行うのを可能にすることが求められている。

[0012] 本発明は斯かる事情に鑑みてなされたものであり、所望の共蒸着を行うことができる成膜装置、成膜方法、該成膜方法により成膜する工程を有する有

機発光素子の製造方法、及び有機発光素子を提供するものである。

課題を解決するための手段

- [0013] 本発明者らは鋭意研究の結果、複数の成膜材料の蒸気を各別に発生させ、各成膜材料の蒸気の噴出位置を制御した状態で、被処理基板上で各蒸気を混合して成膜するように構成することにより、低沸点側の成膜材料を劣化させることなく、各成膜材料を所要条件で蒸発させることができることを見出した。そして、例えば有機EL素子の発光層と陰極との間に共蒸着層を成膜する場合に、基板の成膜方向（膜厚方向）において、成膜材料の混合割合（濃度分布）を変化させて、発光層側及び陰極側の界面のエネルギー障壁を調整することができ、発光層等で膜厚方向に混合割合を均一にしたい場合に均一にすることができることを見出した。
- [0014] すなわち、本発明に係る成膜装置は、被処理基板に成膜する処理室と、成膜材料の蒸気を前記被処理基板へ向けて噴出する複数の蒸気供給部とを備える成膜装置において、複数の蒸気供給部を所定の位置に配置して、複数の成膜材料を、成膜方向の混合割合を制御した状態で、前記被処理基板へ向けて噴出するように構成されていることを特徴とする。
- [0015] 本発明に係る成膜方法は、被処理基板を処理室内に收容し、收容された該被処理基板へ向けて複数の成膜材料の蒸気を供給することによって成膜を行う成膜方法において、前記処理室内で複数の成膜材料の蒸気の噴出位置を制御し、成膜方向の混合割合を制御した状態で前記被処理基板へ向けて噴出し、共蒸着層を形成する共蒸着層形成工程を有することを特徴とする。
- [0016] 本発明に係る有機発光素子の製造方法は、基板上に、陽極、発光層、及び陰極を設ける有機発光素子の製造方法において、前記発光層と陰極との間に、前述の成膜方法により前記共蒸着層を形成する工程を有することを特徴とする。
- [0017] 本発明に係る有機発光素子は、複数の成膜材料からなり、膜厚方向に前記複数の成膜材料の所定の濃度分布を有する共蒸着層を有することを特徴とする。

発明の効果

[0018] 複数の成膜材料の蒸気を各別に発生させ、被処理基板上で各蒸気を混合して成膜するように構成することにより、低沸点側の成膜材料を劣化させることなく、各成膜材料を所要条件で蒸発させることができる。

さらに、本発明によれば、成膜材料の混合割合を成膜方向に異ならせた共蒸着が可能になる。また、成膜材料の混合割合を均一とすべき共蒸着層を成膜する場合、混合割合を均一にすることができる。従って、発光効率を向上させることができ、良好な発光強度を有する有機発光素子の製造が可能になる。

図面の簡単な説明

[0019] [図1]本発明の実施の形態1に係る成膜システムの構成を概念的に説明する説明図である。

[図2]成膜装置の構成を模式的に示す斜視図である。

[図3]成膜装置の構成を模式的に示す側断面図である。

[図4]成膜ヘッドを示す側断面図である。

[図5]加熱装置の側面図である。

[図6]加熱装置の正面図である。

[図7]図5のVII-VII線断面図である。

[図8]無機成膜材料噴出孔の配設例を示した模式図である。

[図9]成膜ヘッドの動作を制御する制御装置の一構成例を示したブロック図である。

[図10]第1ヒータ及び第2ヒータへの給電と、容器の温度変化とを示したタイミングチャートである。

[図11]他の例の第1ヒータ及び第2ヒータへの給電と、容器の温度変化とを示したタイミングチャートである。

[図12]有機成膜材料供給部及び無機成膜材料供給部の配置と、有機成膜材料及び無機成膜材料の搬送方向における蒸気量を概念的に示した説明図である。

[図13]実施の形態1に係る成膜システムを用いて成膜された有機EL素子を模式的に示した断面図である。

[図14]有機成膜材料供給部及び無機成膜材料供給部の他の配置例及び濃度分布を示した説明図である。

[図15]前記配置例で成膜された有機EL素子を模式的に示した断面図である。

[図16]有機成膜材料供給部及び無機成膜材料供給部の他の配置例及び濃度分布を示した説明図である。

[図17]前記配置例で成膜された有機EL素子を模式的に示した断面図である。

[図18]本発明の実施の形態2に係る成膜装置を示す斜視図である。

[図19]実施の形態2に係る成膜装置を用いて成膜された有機EL素子を模式的に示した断面図である。

[図20]本発明の実施の形態3に係る成膜装置の一部を概念的に説明する説明図である。

[図21]実施の形態3に係る成膜ヘッドを示す側断面図である。

[図22]本発明の実施の形態4に係る成膜装置の構成を模式的に示す斜視図である。

[図23]実施の形態4に係る成膜装置の構成を模式的に示す側断面図である。

[図24]実施の形態4に係る第1成膜材料供給部及び第2成膜材料供給部の構成の一例を模式的に示す斜視図である。

[図25]図24の一部拡大図である。

[図26]実施の形態4に係る第1成膜材料供給部及び第2成膜材料供給部の構成の一例を模式的に示す正面図である。

[図27]実施の形態4に係る第1成膜材料供給部及び第2成膜材料供給部の配置の一例と、第1成膜材料及び第2成膜成膜材料の搬送方向における蒸気量を概念的に示した説明図である。

[図28]本発明の実施の形態5に係る成膜装置の構成の一例を模式的に示す斜

視図である。

[図29]実施の形態5に係る成膜装置の構成の一例を模式的に示す側断面図である。

[図30]実施の形態5に係る第1成膜材料供給部及び第2成膜材料供給部の構成の一例を模式的に示す斜視図である。

[図31]図30の一部拡大図である。

[図32]実施の形態5に係る第1成膜材料供給部及び第2成膜材料供給部の構成の一例を模式的に示す正面図である。

[図33]本発明の実施の形態6に係る第1成膜材料供給部、第2成膜材料供給部、及び第3成膜材料供給部の構成を模式的に示す正面図である。

[図34]実施の形態6に係る第1成膜材料供給部、第2成膜材料供給部、及び第3成膜材料供給部の構成を模式的に示す一部底面図である。

発明を実施するための形態

[0020] 以下、本発明をその実施の形態を示す図面に基づいて詳述する。

実施の形態1.

図1は、本発明の実施の形態1に係る成膜装置を備える成膜システムの構成を概念的に説明する説明図である。本実施の形態に係る成膜システムは、被処理基板G（図3参照）の搬送方向に沿って直列に並べたローダ90、トランスファーチャンバ91、成膜装置1、トランスファーチャンバ92、エッチング装置93、トランスファーチャンバ94、スパッタリング装置95、トランスファーチャンバ96、CVD装置97、トランスファーチャンバ98、及びアンローダ99を備える。なお、それぞれの装置間には、ゲートバルブ（図示せず）を備える。

[0021] ローダ90は、被処理基板G、例えば予め表面にITO層31が形成された被処理基板Gを成膜システム内に搬入する。トランスファーチャンバ91、92、94、96、98は、各処理装置間で被処理基板Gを受け渡しする。

成膜装置1は、真空蒸着法にて、被処理基板G上にホール注入層、ホール

輸送層、青発光層、赤発光層、緑発光層、電子輸送層、及び電子注入層（陰極層）を形成する。詳細は後述する。

エッチング装置 93 は、有機層の形状を所定形状に調整するための装置である。

スパッタリング装置 95 は、パターンマスクを用いて、例えば、銀（Ag）、マグネシウム銀（Mg/Ag）合金等をスパッタリングすることによって、電子輸送層上に陰極層を形成する装置である。

CVD装置 97 は、例えば窒化珪素（SiN）等の窒化膜等からなる封止層を化学気相成長（CVD）法によって成膜し、被処理基板 G 上に形成された各層を封止するための装置である。

アンローダ 99 は、被処理基板 G を成膜システム外へ搬出するための装置である。

[0022] 図 2 は、成膜装置 1 の構成を模式的に示す斜視図、図 3 は、成膜装置 1 の構成を模式的に示す側断面図である。成膜装置 1 は、被処理基板 G を収容し、内部で被処理基板 G に対して蒸着により成膜処理を行うための処理室 11 を備える。処理室 11 は、搬送方向を長手方向とし、中央部分が幅広の中空略直方体形状をなし、アルミニウム、ステンレス等からなる。処理室 11 の長手方向一端側の面（図 2 中背面側の面）には、被処理基板 G を処理室 11 内に搬入するための搬入口 11a が形成され、長手方向他端側の面（図 2 中手前側の面）には、被処理基板 G を処理室 11 外へ搬出するための搬出口 11b が形成されている。搬入口 11a 及び搬出口 11b は、搬入方向に対して直交した長手方向を有するスリット状であり、搬入口 11a 及び搬出口 11b の長手方向は略同一である。以下、搬入口 11a 及び搬出口 11b の長手方向を横方向、該横方向及び搬送方向に直交する方向を上下方向という。また、処理室 11 の適宜箇所には、排気孔 11c が形成されており、排気孔 11c には、処理室 11 の外部に配された真空ポンプ 15 が排気管 14 を介して接続されている。真空ポンプ 15 が駆動することにより、処理室 11 の内部は所定の圧力、例えば 0.01 Pa に減圧される。

[0023] 処理室 1 1 内部の底部には、被処理基板 G を搬入口 1 1 a から搬出口 1 1 b へ搬送する搬送装置 1 2 が設置されている。搬送装置 1 2 は、処理室 1 1 の底部に長手方向に沿って設けられた案内レール 1 2 a と、該案内レール 1 2 a に案内されて搬送方向、すなわち前記長手方向へ移動可能に設けられた移動部材 1 2 b と、移動部材 1 2 b の上面に設けられており、被処理基板 G を底部に対して略平行になるように支持する支持台 1 2 c とを備える。支持台 1 2 c の内部には、被処理基板 G を保持する静電チャック、被処理基板 G の温度を一定に保つための被処理基板加熱ヒータ、冷媒管等が設けられている。なお、支持台 1 2 c は、リニアモータによって移動するように構成されている。

[0024] また、処理室 1 1 の上部、搬送方向略中央部には、被処理基板 G に対して真空蒸着法にて成膜を行う複数の蒸着ヘッド 1 3 が設けられている。蒸着ヘッド 1 3 は、ホール注入層を蒸着させる第 1 ヘッド 1 3 a、ホール輸送層を蒸着させる第 2 ヘッド 1 3 b、青発光層を蒸着させる第 3 ヘッド 1 3 c、赤発光層を蒸着させる第 4 ヘッド 1 3 d、緑発光層を蒸着させる第 5 ヘッド 1 3 e、本発明に係る電子輸送層を蒸着させる成膜ヘッド 2、及び電子注入層を蒸着させる第 6 ヘッド 1 3 f を、搬送方向に沿って順に配置して構成されている。

成膜ヘッド 2 は、例えば Alq_3 等の有機成膜材料と、無機成膜材料とを共蒸着させるためのヘッドである。成膜ヘッド 2 は、後述する有機成膜材料供給部 4 及び無機成膜材料供給部 5 からなる。成膜ヘッド 2 には、処理室 1 1 の外部に配された蒸気発生部 1 7 から配管 1 6 を介して有機成膜材料が供給される。前記無機成膜材料としては、仕事関数が Alq_3 の仕事関数 3.0 (eV) より低いものが挙げられ、例えば Li (仕事関数: 2.5 (eV))、Na (同 2.28 (eV))、K (同 2.24 (eV))、Ca (同 2.71 (eV))、Cs (同 1.81 (eV))、及び Ba (同 2.11 (eV)) 等が挙げられる。

[0025] 蒸気発生部 1 7 は、容器 1 7 a と、容器 1 7 a の内部に配された加熱機構

17bとを備える。加熱機構17bは、前記有機成膜材料の蒸気を収容可能な容器状部分を有し、電源17cから供給された電力によって有機成膜材料を加熱するように構成されている。例えば電気抵抗体にて加熱するように構成されている。この加熱機構17b内に収納した有機成膜材料を加熱して、有機成膜材料の蒸気を発生させる。また、容器17aには、被処理基板Gに対して例えばAr等の不活性ガスからなる輸送ガスを供給する輸送ガス供給管17dが接続されており、輸送ガス供給管から容器17aに供給された輸送ガスと共に、有機成膜材料の蒸気を蒸気発生部17から配管16を介して成膜ヘッド2へ供給するように構成されている。

また、第1乃至第5ヘッド13a, 13b, 13c, 13d, 13eに対しても同様に、図示しない蒸気発生部から所定の有機成膜材料の蒸気が供給されるように構成されている。第6ヘッド13fに対しても、図示しない蒸気発生部から所定の無機成膜材料の蒸気が供給されるように構成されている。また、蒸気発生部から前記無機成膜材料を受給せず、第6ヘッド13f内で前記無機成膜材料の蒸気を発生させることにしてもよく、さらに処理室11の外部の処理室においてスパッタリング等により成膜することにしてもよい。

[0026] 図4は、成膜ヘッド2を示す側断面図である。

成膜ヘッド2は、有機成膜材料の蒸気を被処理基板Gへ向けて噴出する有機成膜材料供給部（有機蒸気供給部）4と、無機成膜材料の蒸気を被処理基板Gへ向けて噴出する無機成膜材料供給部5（無機蒸気供給部）とを有する。有機成膜材料供給部4及び無機成膜材料供給部5は、有機成膜材料及び無機成膜材料の被噴出箇所が被処理基板G上で重複するように配されている。

[0027] 有機成膜材料供給部4は、有機成膜材料の蒸気を噴出する有機成膜材料噴出孔41aを有し、外部から有機成膜材料の蒸気が流入する有機成膜材料用筐体41と、図示しない給電部材により給電されて前記有機成膜材料用筐体41を加熱する有機成膜材料加熱ヒータ42a, 42b, 42c, 42dと、空気等の熱媒体を通流させる熱媒体通流路43a, 43bとを備える。有

機成膜材料加熱ヒータ 4 2 a, 4 2 b, 4 2 c, 4 2 d 及び熱媒体通流路 4 3 a, 4 3 b は、ヒータ固定部材 4 1 b, 4 1 c, 4 1 d, 4 1 e によって有機成膜材料用筐体 4 1 の内部に埋め込まれている。

[0028] 有機成膜材料用筐体 4 1 は、長手方向が紙面に略垂直な略長方形の枠部材 4 1 1 を有し、該枠部材 4 1 1 の下面略中央部から無機成膜材料供給部 5 側へ、中空板部材 4 1 2 が突出している。該中空板部材 4 1 2 の先端部に、枠部材 4 1 1 及び中空板部材 4 1 2 の内部を通流した有機成膜材料を噴出する前記有機成膜材料噴出孔 4 1 a が形成されている。

[0029] 中空板部材 4 1 2 の外面には、有機成膜材料加熱ヒータ 4 2 a, 4 2 b と、熱媒体通流路 4 3 a, 4 3 b とを埋め込むための複数の凹部が形成されている。凹部は、例えば、側面から見ると略円弧状をなしている。有機成膜材料加熱ヒータ 4 2 a, 4 2 b 及び熱媒体通流路 4 3 a, 4 3 b は、外形がそれぞれ円柱状であり、その外周面には良好な熱伝導性の膜、例えばカーボングラファイト膜が巻かれ、前記複数の凹部に嵌め込まれている。前記凹部に嵌め込まれた有機成膜材料加熱ヒータ 4 2 a, 4 2 b 及び熱媒体通流路 4 3 a, 4 3 b は、ヒータ固定部材 4 1 d, 4 1 e によって固定されている。ヒータ固定部材 4 1 d, 4 1 e は、中空板部材 4 1 2 の前記外面に対応する板状の部材であり、有機成膜材料加熱ヒータ 4 2 a, 4 2 b 及び熱媒体通流路 4 3 a, 4 3 b に嵌り込む凹部を有している。該凹部の形状は、中空板部材 4 1 2 に形成された凹部と同様、側面からみると略半円形である。なお、ヒータ固定部材 4 1 d, 4 1 e は、有機成膜材料用筐体 4 1 に固定されている。

[0030] 同様に、枠部材 4 1 1 の上面には、他の有機成膜材料加熱ヒータ 4 2 c, 4 2 d が嵌め込まれており、ヒータ固定部材 4 1 b, 4 1 c によって、枠部材 4 1 1 に固定されている。枠部材 4 1 1 の上部の略中央部には、蒸気発生部 1 7 にて発生した有機成膜材料の蒸気を有機成膜材料用筐体 4 1 へ流入させる有機成膜材料供給管 4 0 が接続されている。有機成膜材料供給管 4 0 は、例えばステンレス製であり、有機成膜材料供給管 4 0 の外側若しくは内側

表面のいずれか、又は外側及び内側表面は、熱伝導を向上させるため、銅メッキ等の導電性膜がコーティングされている。そして、成膜ヘッド2は有機成膜材料供給管40を加熱する供給管加熱ヒータ61, 62を備えている。

有機成膜材料供給部4は以上のように構成されているので、蒸気発生部17から配管16及び有機成膜材料供給管40を介して通流された有機成膜材料の材料は保温された状態で、噴出孔41aから噴出される。

[0031] 無機成膜材料供給部5は、中空の無機成膜材料用筐体51を備える。無機成膜材料筐体は、長手方向が紙面に対して略垂直な中空略筒状をなし、下部が有機成膜材料供給部4側へ突出している。突出している部分の下面部には、長手方向両端部に沿って一様に複数の無機成膜材料噴出孔51aが形成されている。また、無機成膜材料用筐体51の内部には、電子注入層の材料である無機成膜材料、例えばアルカリ金属が装入される容器57が加熱装置54によって支持されている。容器57は、角皿状で無機成膜材料の蒸気を無機成膜材料用筐体51の内部へ送出するための開口57aを上面に有する。

[0032] 図5は加熱装置54を示す側面図、図6は加熱装置54を示す正面図、図7は図5のVII-VII線断面図である。加熱装置54は、該加熱装置54の下側を構成する第1半体54aと、加熱装置54の上側を構成する第2半体54bとを有し、第2半体54bの上面には、容器が嵌り込む溝部が形成されている。第1及び第2半体54a, 54bは金属製である。

[0033] 第1半体54aの上面には、第1ヒータ55a, 55bと、第1熱媒体通流路56とを埋め込むための複数の凹部が形成されている。凹部は、例えば側面から見ると略円弧状をなしている。図示しない給電部材により給電されて容器57を加熱する第1ヒータ55a, 55b、及び第1熱媒体通流路56は、外形がそれぞれ円柱状であり、その外周面には良好な熱伝導性を有する例えばカーボングラファイト膜等の膜が巻かれ、前記複数の凹部に嵌め込まれている。前記凹部に嵌め込まれた第1ヒータ55a, 55b及び第1熱媒体通流路56は、第2半体54bによって挟み込まれるようにして固定されている。第2半体54bは、第1半体54aに対応する板状の部材であり

、第1ヒータ55a、55b及び第1熱媒体通流路56に嵌り込む凹部を有している。該凹部の形状は、中空板部材412に形成された凹部と同様、側面からみると略半円形である。第1及び第2半体54a、54bは全周溶接されているが、ねじにより第1及び第2半体54a、54bを接合することにしてもよい。第1熱媒体通流路56の両端部は、図示しない空冷装置に接続されており、該空冷装置は、第1熱媒体通流路56b、56cに空気を通流させている。

[0034] また、無機成膜材料用筐体51の外周面には、図示しない給電部材により給電される第2ヒータ52a、52b、52c、52d、52e、52fと、第2熱媒体通流路53a、53b、53cとを嵌め込むための複数の凹部が形成され、該凹部に第2ヒータ52a、52b、52c、52d、52e、52f及び第2熱媒体通流路53a、53b、53cが嵌め込まれている。そして、第2ヒータ52a、52b、52c、52d、52e、52f及び第2熱媒体通流路53a、53b、53cは、ヒータ固定部材51b、51c、51dによって、無機成膜材料用筐体51に埋め込まれるように固定される。第2熱媒体通流路53a、53b、53cの両端部は、図示しない空冷装置に接続されており、該空冷装置は、第2熱媒体通流路53a、53b、53cに空気を通流させている。なお、前記空冷装置は、例えば、空気を通流させる方向を周期的に切り換えるように構成されている。空気を通流させる方向を周期的に切り換えることによって、無機成膜材料用筐体51の一端部と、他端部との間で温度差が発生することを防止し、容器57の長手方向における熱均一性を向上させることが可能になる。

[0035] 図8は、無機成膜材料噴出孔51aの配設例を示した模式図である。無機成膜材料噴出孔51aは、例えば図8に示すように千鳥配置されている。この無機成膜材料噴出孔51aの配置は一例である。

以上のように構成された無機成膜材料供給部5においては、第1ヒータ55a、55bが加熱されて生じた無機成膜材料の蒸気が第2ヒータ52a、52b、52c、52d、52e、52fにより保温された状態で、噴出孔

5 1 a から噴出される。

[0036] 成膜ヘッド2は、有機成膜材料供給部4及び無機成膜材料供給部5から被処理基板Gへ放射される熱を遮断する有機材料供給部用の遮熱カバー7 1と、無機成膜材料供給部5用の遮熱カバー7 2とを有する（図4参照）。遮熱カバー7 1と遮熱カバー7 2との間には、冷却水又は冷却ガスが通流される通流路7 3 aを有する遮熱板7 3が設けられている。なお、遮熱カバー7 1及び遮熱カバー7 2の遮熱カバーと、遮熱板7 3とを有する場合に限定されるものではなく、遮熱カバー、及び遮熱板7 3のいずれかを有することにしてもよい。

[0037] 図9は、成膜ヘッド2の動作を制御する制御装置5 9の一構成例を示したブロック図である。制御装置5 9は、CPU（Central Processing Unit）等の制御部5 9 aを有する。制御部5 9 aには、バスを介して、少なくとも、成膜ヘッド2の第1ヒータ5 5 a、5 5 b（以下、第1ヒータ5 5という）及び第2ヒータ、5 2 a、5 2 b、5 2 c、5 2 d、5 2 e、5 2 f（以下、第2ヒータ5 2という）の動作を制御するためのコンピュータプログラムを記憶したROM 5 9 bと、一時記憶用のRAM 5 9 cと、キーボード、マウス等の入力装置5 9 dと、表示装置等の出力装置5 9 eと、第1ヒータ5 5と、第2ヒータ5 2と、第1温度検出部5 9 fと、第2温度検出部5 9 gと、後述する第1駆動部8 1と、第2駆動部8 2とが接続されている。第1温度検出部5 9 fは、第1ヒータ5 5の周辺温度T 1、例えば加熱装置5 4の第1半体5 4 a（容器5 7）の温度を検出し、検出した温度を制御部5 9 aに与える。第2温度検出部5 9 gは、第2ヒータ5 2の周辺温度T 2、例えば無機成膜材料用筐体5 1の温度を検出し、検出した温度を制御部5 9 aに与える。なお、厳密には、第1及び第2ヒータ5 5、5 2、第1及び第2駆動部8 1、8 2は、I/Oポートに接続された電源回路を介してバスに接続されているが、I/Oポート及び電源回路は図示していない。

[0038] 制御部5 9 aは、無機成膜材料供給部5の前記周辺温度T 1が特定の目標温度に到達するように、第1及び第2温度検出部5 9 f、5 9 gの検出結果

に基づいて、第1及び第2ヒータ55, 52への給電を制御する。目標温度とは、成膜時に所要の無機成膜材料（蒸着材料）の蒸気量が得られる温度である。

[0039] 図10は、第1ヒータ55及び第2ヒータ52への給電と、容器57の温度変化とを示したタイミングチャートである。図10のグラフにおいて、横軸は時間、縦軸は温度を示す。上述の周辺温度T1, 周辺温度T2の経時的变化をグラフで示す。

まず、制御部59aは、電源回路へ制御信号を与えることによって、第1ヒータ55及び第2ヒータ52への給電を開始する。

制御部59aは、第1及び第2温度検出部59f, 59gを用いて、第1ヒータ55の周辺温度（容器57の温度）T1及び第2ヒータ52の周辺温度T2をそれぞれ検出し、少なくとも後述する第1温度において周辺温度T2が周辺温度T1より高くなるように、第1ヒータ55及び第2ヒータ52の出力を制御した状態で昇温を行う。少なくとも第1温度において周辺温度T2を周辺温度T1より高くすることにより、無機成膜材料の蒸気が無機成膜材料用筐体51の内壁に付着することが確実に防止される。

[0040] 制御部59aは第1ヒータ55の周辺温度T1が第1温度に到達した場合、第1ヒータ55への給電量を減少させる。第1温度は無機成膜材料の蒸気が発生し始める温度であり、前記目標温度よりも低い温度である。

[0041] 次いで、制御部59aは、第2温度検出部59gを用いて、第2ヒータ52の周辺温度T2が、第2温度に到達したか否かを判定する。第2温度は目標温度よりも高い温度であり、第2ヒータ52の周辺温度T2が第2温度に到達した時に、第1ヒータ55及び第2ヒータ52への給電をPID制御することにより、第2ヒータ52の周辺から放射された熱及び第1ヒータ55からの加熱によって、容器57及び無機成膜材料の温度が目標温度に収束できるような温度である。第2温度は、実験などで決定される所定の温度であってもよいし、入力された目標温度に基づいて算出される温度であってもよい。例えば目標温度が500度である場合、第2温度として520度を設定

する。制御部 59 a は第 2 ヒータ 52 の周辺温度 T_2 が第 2 温度に到達したと判定した場合、第 1 ヒータ 55 及び第 2 ヒータ 52 を P I D 制御し、成膜処理を行う。具体的には、制御部 59 a は第 1 及び第 2 温度検出部 59 f, 59 g で検出される温度を監視し、周辺温度 T_1 が目標温度に一致するように、電源回路へ制御信号を与えることによって、第 1 ヒータ 55 及び第 2 ヒータ 52 への給電を制御する。より具体的には、制御部 59 a は、周辺温度 T_2 が第 2 温度以上になった場合、第 2 ヒータ 52 による加熱を一時停止又は出力を低下させ、周辺温度 T_2 が第 2 温度未満になった場合、第 2 ヒータ 52 による加熱を再開又は増大させる。また、周辺温度 T_1 が目標温度もしくは目標温度以上になった場合、第 1 ヒータ 55 による加熱を停止又は出力を低下させ、周辺温度 T_1 が目標温度未満になった場合、第 1 ヒータ 55 による加熱を再開又は増大させる。

[0042] 以上の処理を行うことによって、周辺温度 T_1 が目標温度に保持される。なお、無機成膜材料の加熱を停止させる場合も、周辺温度 T_1 が周辺温度 T_2 以下になる条件を保持したまま、容器 57 及び無機成膜材料の温度を低下させる。これにより、無機成膜材料の蒸気が無機成膜材料用筐体 51 の内壁に付着するのが防止される。

上述の処理によって、所定の長さを有し、第 1 ヒータ 55 による加熱制御のみでは長手方向に不均一が生じやすい容器 57 において、無機成膜材料を均一に目標温度で加熱することが可能になる。つまり、容器 57 の長手方向における温度均一性を向上させることができる。

[0043] なお、容器 57 の温度を目標温度に保持するための処理は特に限定されない。

図 11 は、他の例の第 1 ヒータ 55 及び第 2 ヒータ 52 への給電と、容器 57 の温度変化とを示したタイミングチャートである。この場合、制御部 59 a は周辺温度 T_1 と周辺温度 T_2 とが略一致する状態で昇温し（但し、常時周辺温度 T_2 が周辺温度 T_1 と同じか、それよりも高くなるように制御する）、周辺温度 T_1 が第 1 温度に到達した場合、第 1 ヒータ 55 への給電量

を減少させる。そして、周辺温度 T_2 が第 2 温度に到達した場合、第 2 ヒータ 52 を PID 制御して、周辺温度 T_1 が目標温度に収束するように制御する。このとき、第 1 ヒータへの給電を停止させるか、もしくは給電量を減少させる。この処理によっても容器 57 を長手方向に均一に目標温度まで加熱することができ、無機成膜材料を均一に目標温度で加熱することができる。但し、この処理の第 1 温度及び第 2 温度は図 10 の処理の第 1 温度及び第 2 温度とは異なる値が設定され得る。

[0044] 図 12 は、有機成膜材料供給部 4 及び無機成膜材料供給部 5 の配置と、有機成膜材料及び無機成膜材料の搬送方向（成膜ヘッド 2 の下側における搬入口 11a 側の端部からの距離）における蒸気量を概念的に示した説明図である。図 12 中、A は無機成膜材料の蒸気量を示すグラフ、B は有機成膜材料の蒸気量を示すグラフである。

有機成膜材料供給部 4、無機成膜材料供給部 5 には、有機成膜材料供給部 4、無機成膜材料供給部 5 を上下方向（鉛直方向）及び水平方向（被処理基板 G の搬送方向）に移動させるための前記第 1 駆動部 81、第 2 駆動部 82 が取り付けられている。第 1 駆動部 81、第 2 駆動部 82 は処理室 11 の上部に設けられている。第 1 駆動部 81、第 2 駆動部 82 は、有機成膜材料供給部 4、無機成膜材料供給部 5 を支持する支持部 81a、82a と、ねじ軸部 81b、82b とを備える。支持部 81a、82a は図 12 の紙面に垂直な方向に突出した軸部 81c、82c を各 2 個備え、有機成膜材料供給部 4、無機成膜材料供給部 5 の遮熱カバー 71、遮熱カバー 72 は軸部 81c、82c に嵌合される突設部 4c、5c を各 2 個備えている。

第 1 駆動部 81、第 2 駆動部 82 は、ボールねじ機構によりねじ軸 81b、82b が回転することで、支持部 81a、82a を介し有機成膜材料供給部 4、無機成膜材料供給部 5 が上下方向の直線運動をするように構成されている。また、支持部 81a、82a はマイクロステージにより水平方向に移動可能であり、有機成膜材料供給部 4、無機成膜材料供給部 5 が水平方向に移動するように構成されている。そして、突設部 4c、5c が軸部 81c、

82cを中心に回転することで、有機成膜材料供給部4、無機成膜材料供給部5が θ 方向に回転するように構成されている。第1駆動部81、第2駆動部82は制御部59aにより制御されて有機成膜材料供給部4、無機成膜材料供給部5を適宜の位置に移動させる。

なお、有機成膜材料供給部4、無機成膜材料供給部5を上下方向及び水平方向に移動させる構成、並びに有機成膜材料供給部4、無機成膜材料供給部5を θ 方向に回転させる構成は上述の場合に限定されるものではない。有機成膜材料供給部4、無機成膜材料供給部5をマイクロメータにより上下方向に移動させることにしてもよく、ボールねじ機構又はリニアモータにより水平方向に移動させることにしてもよい。

[0045] 図12に示すように有機成膜材料供給部4及び無機成膜材料供給部5を配置した場合、被処理基板Gの搬送に従い、発光層の直上に無機成膜材料が大部分含まれる状態で成膜され、次第に有機成膜材料の混合量が増加するように成膜される。膜厚方向の略中央部で無機成膜材料と有機成膜材料との混合比（体積比）が略50：50になり、その後は有機成膜材料の割合が高い状態で成膜され、最後は有機成膜材料が大部分含まれる状態で成膜されて、成膜処理が終了する。

[0046] 図13は、本実施の形態1に係る成膜システムを用いて成膜された有機EL素子3を模式的に示した断面図である。

まず、予め表面にITO層31が形成された被処理基板Gがローダ90から成膜システム内に搬入され、トランスファーチャンバ91によって、更に奥の成膜装置1へ搬入される。なお、トランスファーチャンバ91とローダ90とはゲートバルブ（図示せず）を介して接続されている。

[0047] 成膜装置1の処理室11に搬入された被処理基板Gは、表面、すなわちITO層31を上に向けた姿勢で図3に示した支持台12cに静電吸着され、一定温度に保持される。なお、被処理基板Gが搬入される前に、処理室11の内部は真空ポンプ15の駆動によって、予め所定圧力、例えば0.01Pa以下に減圧されている。そして、支持台12cが案内レール12aに沿っ

て搬送方向へ移動し、被処理基板Gが蒸着ヘッド13の下方を通過していく。蒸着ヘッド13の下方を通過する過程で、図13に示すように、被処理基板Gには、ホール注入層33a、ホール輸送層33b、青発光層33c、赤発光層33d、及び緑発光層33eが順次成膜される。そして、成膜ヘッド2において、有機成膜材料及び無機成膜材料の蒸気が成膜方向に混合割合を制御された状態で、有機成膜材料及び無機成膜材料の共蒸着が行われ、電子輸送層33fが形成される。最後に、電子注入層33gが形成される。

[0048] 次に、有機層及び無機層の成膜処理を終えた被処理基板Gは、トランスファーチャンバ92によって、エッチング装置93に搬入される。エッチング装置93では、各種膜の形状等が調整される。次に、トランスファーチャンバ94によって、スパッタリング装置95に搬入される。スパッタリング装置95では、陰極層32が形成される。次に、トランスファーチャンバ96によって、被処理基板Gは、CVD装置97に搬入される。CVD装置97では、被処理基板Gに成膜された各層を窒化珪素(SiN)膜等の封止層34によって封止される。そして、封止処理された被処理基板Gは、トランスファーチャンバ98を介してアンローダ99から成膜処理システム外へ搬出される。

[0049] 本実施の形態によれば、所要条件下において、成膜方向に有機成膜材料及び無機成膜材料の混合割合を調整し、有機成膜材料及び無機成膜材料を共蒸着することが可能である。例えば450℃における蒸気圧が10Paの有機成膜材料A1q₃を有機成膜材料供給部4に供給して噴出させると共に、700℃における蒸気圧が10Paの無機成膜材料Baを噴出させ、所定の濃度分布を有するように混合させた上で共蒸着させることができる。

[0050] 本実施の形態においては、例えば図12のように有機成膜材料供給部4及び無機成膜材料供給部を配置した場合、電子輸送層33gの成膜方向（膜厚方向）で、電子注入層33gから緑発光層33eに向かうに従って無機成膜材料の混合割合が高くなる。図13においては、この場合の濃度分布を模式的に示している。

[0051] 有機成膜材料供給部 4 及び無機成膜材料供給部 5 の配置は図 1 2 に示す配置には限定されない。所望の電子注入効率を得るため、有機成膜材料供給部 4 及び無機成膜材料供給部 5 の位置を調節することができる。具体的には、無機成膜材料及び有機成膜材料の電子輸送特性等に基づいて、ホールの膜の突き抜け防止性を十分に確保しつつ緑発光層 3 3 e 側及び電子注入層 3 3 g 側界面のエネルギー障壁の高さを調節するように、有機成膜材料供給部 4 及び無機成膜材料供給部 5 の位置を調節し、無機成膜材料の成膜方向の濃度分布を制御する。

[0052] 図 1 4 は有機成膜材料供給部 4 及び無機成膜材料供給部 5 の他の配置例及び濃度分布を示した説明図、図 1 5 は前記配置例で成膜された有機 E L 素子を模式的に示した断面図である。図 1 4 中、A は無機成膜材料の蒸気量を示すグラフ、B は有機成膜材料の蒸気量を示すグラフである。

有機成膜材料供給部 4 を無機成膜材料供給部 5 より下側に突出させている。これにより図 1 5 に示すように、無機成膜材料の濃度を緑発光層 3 3 e 側と電子注入層 3 3 g 側とで高くなるようにしている。

[0053] 図 1 6 は有機成膜材料供給部 4 及び無機成膜材料供給部 5 の他の配置例及び濃度分布を示した説明図、図 1 7 は前記配置例で成膜された有機 E L 素子を模式的に示した断面図である。図 1 6 中、A は無機成膜材料の蒸気量を示すグラフ、B は有機成膜材料の蒸気量を示すグラフである。

有機成膜材料供給部 4 を被処理基板 G の搬送方向の上流側に、無機成膜材料供給部 5 を搬送方向の下流側に配置している。これにより図 1 7 に示すように、緑発光層 3 3 e 側から電子注入層 3 3 g 側へ向かうに従い、無機成膜材料の濃度が高くなるようにしている。

[0054] 以上のように構成されているので、本実施の形態においては、電子輸送層 3 3 f の緑発光層 3 3 e との界面、及び電子注入層 3 3 g との界面のエネルギー障壁の高さが調節されて、電子注入効率が調整されるとともに、緑発光層 3 3 e 側からホールが陰極層 3 2 へ突き抜けるのが確実に防止されて陰極界面の劣化が抑制され、発光効率が向上する。すなわち、本実施の形態にお

いては、有機成膜材料及び無機成膜材料に応じた膜厚方向の濃度分布を適宜設定し、電子輸送層 33f の緑発光層 33e 側及び電子注入層 33g 側の界面の状態を調整して、電子注入率を制御することができる。

以上のように、本実施の形態においては、有機発光素子の発光層と陰極との間に共蒸着層を成膜する場合に、膜の発光層側界面及び陰極側界面のエネルギー障壁の高さを制御して電子注入効率を調整し、発光効率を向上させ、良好な発光強度を有する有機発光素子を製造するという課題を解決することができる。

[0055] なお、本実施の形態においては、第 1 駆動部 81、第 2 駆動部 82 が有機成膜材料供給部 4、無機成膜材料供給部 5 を水平方向、及び上下方向に移動可能に構成し、 θ 方向に回転可能に構成した場合につき説明しているがこれに限定されるものではない。第 1 駆動部 81、第 2 駆動部 82 が有機成膜材料供給部 4、無機成膜材料供給部 5 を水平方向にのみ移動させるものであってもよい。但し、上下方向にも移動可能であり、 θ 方向にも回転可能に構成する方がきめ細かく濃度分布を制御することができるので好ましい。

また、有機成膜材料供給部 4、無機成膜材料供給部 5 を自動で移動させる場合に限定されず、手動で移動させることにしてもよい。

さらに第 1 駆動部 81、第 2 駆動部 82 を処理室 11 の上部に設けた場合につき説明しているがこれに限定されず、例えば蒸気を処理室 11 の下側から噴出させて成膜する場合等においては、第 1 駆動部 81、第 2 駆動部 82 を処理室 11 の下部に設けることにしてもよい。

そして、本実施の形態においては有機成膜材料供給部 4 及び無機成膜材料供給部 5 の両方が移動可能に構成されている場合につき説明しているがこれに限定されるものではなく、いずれか一方のみ移動可能に構成することにしてもよい。この場合、有機成膜材料供給部 4 は先端部が処理室 11 の上面から突出する有機成膜材料供給管 40 を備えるので、処理室 11 に内設されている無機成膜材料供給部 5 を移動可能に構成する方が好ましい。

[0056] 実施の形態 2.

本発明の実施の形態２に係る成膜システムは、実施の形態１に係る成膜システムと同様の構成を有し、第６ヘッド１３ｆを有さない点が実施の形態１に係る成膜システムと異なる。

図１８は、実施の形態２に係る成膜装置１０１を示す斜視図である。図中、図２と同一部分は同一符号を付して詳細な説明は省略する。

成膜装置１０１は、上述したように蒸着ヘッド１３として第６ヘッド１３ｆを有さず、ホール注入層を蒸着させる第１ヘッド１３ａ、ホール輸送層を蒸着させる第２ヘッド１３ｂ、青発光層を蒸着させる第３ヘッド１３ｃ、赤発光層を蒸着させる第４ヘッド１３ｄ、緑発光層を蒸着させる第５ヘッド１３ｅ、及び成膜ヘッド２０２を、搬送方向に沿って順に配置して構成されている。成膜ヘッド２０２は、実施の形態１に係る成膜ヘッド２と同一の構成を有する。すなわち、図４に示した構成と同一の構成を有する。

[0057] 以下、図１２に示す配置と同様に、搬入口１１ａ側に無機成膜材料供給部５を、搬出口１１ｂ側に有機成膜材料供給部４を配置した場合につき説明する。

図１９は、本実施の形態２に係る成膜装置１０１を用いて成膜された有機ＥＬ素子３０３を模式的に示した断面図である。図１９に示すように、被処理基板Ｇには、ホール注入層３３ａ、ホール輸送層３３ｂ、青発光層３３ｃ、赤発光層３３ｄ、緑発光層３３ｅが順次成膜される。そして、最終の成膜ヘッド２０２において、有機成膜材料及び無機成膜材料の蒸気が成膜方向に混合割合を制御された状態で、被処理基板Ｇに有機成膜材料及び無機成膜材料の共蒸着が行われる。すなわち、被処理基板Ｇには、有機成膜材料と、無機成膜材料とが混合した電子輸送・注入層３３ｈが形成される。ここでは、有機成膜材料供給部４及び無機成膜材料供給部５が上述のように配置されているので、陰極層３２側から緑発光層側３３ｅ側に向かうに従い、無機成膜材料の濃度が増加するように成膜されている。

[0058] 本実施の形態においては、電子輸送・注入層３３ｈの無機成膜材料の成膜方向の濃度分布を制御しているので、実施の形態１と同様に、緑発光層側３

3 e 側から陰極層 3 2 側へのホールの突き抜けを良好に防止して陰極界面の劣化を防止しつつ、緑発光層 3 3 e と電子輸送・注入層 3 3 h との界面、及び電子輸送・注入層 3 3 h と陰極層 3 2 との界面のエネルギー障壁を所望の値に調節して所定の電子注入効率を得ることができ、得られた有機 EL 素子は良好な発光強度を有する。

[0059] 実施の形態 3.

本発明の実施の形態 3 に係る成膜システムの成膜装置 1 0 2 は、処理室 1 1 では緑発光層 3 3 e までの成膜を行い、電子輸送・注入層 3 3 i を処理室 1 1 から独立した処理室 1 1 1 で行うように構成されていること以外は、実施の形態 1 及び 2 に係る成膜システムと同様の構成を有する。

電子輸送層 3 3 f までの成膜は実施の形態 1 及び 2 と同様にして行うので詳細な説明は省略する。

[0060] 図 2 0 は、実施の形態 3 に係る成膜装置 1 0 2 の一部を概念的に説明する説明図、図 2 1 は実施の形態 3 に係る成膜ヘッド 2 0 3 を示す側断面図である。

成膜ヘッド 2 0 3 は、実施の形態 1 に係る有機成膜材料供給部 4 及び無機成膜材料供給部 5 を内设する。図中、図 4 と同一部分は同一符号を付して詳細な説明は省略する。

箱状をなす金属製の成膜ヘッド 2 0 3 は、有機成膜材料供給部 4 から噴出される有機成膜材料と、無機成膜材料供給部 5 から噴出される無機成膜材料とを混合するための混合室 2 0 4 を底面に備える。混合室 2 0 4 の底面には、混合された成膜材料を噴出させるための噴出口 2 0 3 a が設けられている。

有機成膜材料供給部 4 の有機成膜材料供給管 4 0 は成膜ヘッド 2 0 3 の上面を貫通され、該上面から突出した部分には流量調整部 8 0 が設けられている。この流量調整部 8 0 により蒸気発生部 1 7 から供給される有機成膜材料の流量が制御された状態で、該有機成膜材料が成膜ヘッド 2 0 3 へ供給される。

成膜装置 102 において、処理室 11 と処理室 111 とは、ゲートバルブ 113、トランスファーマジュール 112、及びゲートバルブ 113 を介して接続されている。緑発光層 33e まで成膜された被処理基板 G は処理室 11 から処理室 111 へトランスファーマジュール 112 を介してロボットアーム等により搬送されるように構成されている。そして、被処理基板 G を支持する支持台 12c が、移動部材 12b によって処理室 111 内を成膜装置 102 の長手方向に搬送されるように構成されている。又は、成膜ヘッド 203 を被処理基板 G の上側を前記長手方向に移動できるように構成することにしてもよい。

[0061] 本実施の形態においては、無機成膜材料に対する有機成膜材料の混合量（供給量）を段階的に制御し、各段階で成膜ヘッド 203 の噴出口 203a の下側に緑発光層 33e まで成膜された被処理基板 G を前記長手方向に搬送し、又は成膜ヘッド 203 を前記長手方向に移動させ、混合された成膜材料を該被処理基板 G へ噴出させることにより、膜厚方向に濃度分布を制御された電子輸送・注入層 33i が成膜される。

[0062] 実施の形態 1 及び 2 においては、処理基板 G の搬送方向に有機成膜材料供給部 4 及び無機成膜材料供給部 5 を並設し、被処理基板 G を搬送しながら電子輸送層 33f 又は電子輸送・注入層 33h を成膜するので、図 12 に示されるように、成膜の膜厚方向の端部側の組成を有する部分の厚みより中央部側の組成を有する部分の厚みが厚くなる。

本実施の形態においては、所定時間毎に一定量、有機成膜材料の混合量を増加させることができ、成膜方向の各組成の厚みを略均一にすることができる。

本実施の形態においては、電子輸送・注入層 33i の有機成膜材料の成膜方向の濃度分布を制御するので、実施の形態 1 と同様に、緑発光層 33e 側から陰極層 32 側へのホールの突き抜けを良好に防止して陰極界面の劣化を防止しつつ、緑発光層 33e と電子輸送・注入層 33i との界面、陰極層 32 と電子輸送・注入層 33i との界面のエネルギー障壁を調節して電子注入

効率を調整することができ、発光強度が向上する。

[0063] なお、本実施の形態においては、成膜装置 102 により電子輸送・注入層 33i を形成する場合につき説明しているがこれに限定されるものではなく、緑発光層側 33e まで成膜された被処理基板 G に、成膜装置 102 により電子輸送層を形成し、さらに電子注入層を形成することにしてもよい。

また、有機成膜材料の供給量を制御して無機成膜材料と混合する場合に限定されるものではなく、無機成膜材料の供給量を制御することにしてもよく、有機成膜材料及び無機成膜材料の両方の供給量を制御することにしてもよい。

さらに、以上の実施の形態 1 乃至 3 においては、本発明の成膜方法により、電子輸送層 33f 又は電子輸送・注入層 33h, 33i を形成する場合につき説明しているがこれに限定されるものではない。

[0064] 実施の形態 4.

本発明の実施の形態 4 に係る成膜システムは、実施の形態 1 に係る成膜システムと同様の構成を有し、成膜システムに備えられる成膜装置 121 の第 3 ヘッド 13g の構成が実施の形態 1 に係る成膜装置 1 の第 3 ヘッド 13c の構成と異なる。

図 22 は実施の形態 4 に係る成膜装置 121 の構成を模式的に示す斜視図、図 23 は成膜装置 121 の構成を模式的に示す側断面図である。図中、図 2 及び図 3 と同一部分は同一符号を付して詳細な説明を省略する。

[0065] 成膜装置 121 の処理室 11 の上部、搬送方向略中央部には、被処理基板 G に対して真空蒸着法にて成膜を行う複数の蒸着ヘッド 13 が設けられている。蒸着ヘッド 13 は、ホール注入層を蒸着させる第 1 ヘッド 13a、ホール輸送層を蒸着させる第 2 ヘッド 13b、青発光層を蒸着させる第 3 ヘッド 13g、赤発光層を蒸着させる第 4 ヘッド 13d、緑発光層を蒸着させる第 5 ヘッド 13e、電子輸送層を蒸着させる第 6 ヘッド 13f、及び実施の形態 1 に係る発明と同一の構成の成膜ヘッド 122 を、搬送方向に沿って順に配置して構成されている。成膜ヘッド 122 は実施の形態 1 の成膜装置 1 の

成膜ヘッド2と同様に、有機成膜材料供給部4と無機成膜材料供給部5との位置を変更可能であってもよく、前記位置を固定していてもよい。

[0066] 第3ヘッド13gは、第1成膜材料と、第2成膜材料とを共蒸着させるための装置である。一例として、第1成膜材料が有機化合物からなるホスト材料であり、第2成膜材料が有機化合物からなるドーパント材料である場合が挙げられる。第3ヘッド13gは、被処理基板Gの搬送方向の上流側から順に第2成膜材料供給部124、第1成膜材料供給部125を配してなる。

第2成膜材料供給部124、第1成膜材料供給部125には、蒸気発生部145、146から気体状の第2成膜材料、第1成膜材料が供給される。

蒸気発生部145、146は、容器145a、146aと、容器145a、146aの内部に配された加熱部145b、146bとを備える。加熱部145b、146bは、第2成膜材料、第1成膜材料をそれぞれ収容可能な容器状部分を有し、該容器状部分に収容された第2成膜材料、第1成膜材料をそれぞれ加熱して、各材料の蒸気を発生させる。また、容器145a、146aには、被処理基板Gに対して例えばAr等の不活性ガスからなる輸送ガスを供給する輸送ガス供給管145c、146cが接続されている。輸送ガス供給管145c、146cから容器145a、146aに供給された輸送ガスと共に、第2成膜材料、第1成膜材料の蒸気が蒸気発生部145、146から配管147、148を介して第2成膜材料供給部124、第1成膜材料供給部125へ供給される。このように構成し、第1成膜材料及び第2成膜材料の蒸気を各別に発生させ、被処理基板上で各蒸気を混合して成膜することにより、低沸点側の成膜材料を劣化させることなく、各成膜材料を所要条件で蒸発させることができる。また、第1成膜材料及び第2成膜材料の蒸気量（蒸気濃度）を輸送ガス供給管146c、145cから供給された輸送ガスにより調整できるため、温度によってのみ制御する場合に比べ応答性が高く、安定して成膜材料の蒸気を供給することが可能となる。

[0067] 図24は第2成膜材料供給部124及び第1成膜材料供給部125の構成の一例を模式的に示す斜視図、図25は図24の一部拡大図、図26は第2

成膜材料供給部 1 2 4 及び第 1 成膜材料供給部 1 2 5 の構成の一例を模式的に示す正面図である。

第 2 成膜材料供給部 1 2 4 及び第 1 成膜材料供給部 1 2 5 は角筒状をなし、被処理基板 G の搬送方向に直交する方向に長い二側面を有する。

第 2 成膜材料供給部 1 2 4, 第 1 成膜材料供給部 1 2 5 は、下部に、処理室 1 1 の中央部下側に向けて斜めに延出する延出部 1 2 4 a, 1 2 5 a を備える。第 2 成膜材料供給部 1 2 4, 第 1 成膜材料供給部 1 2 5 の延出部 1 2 4 a, 1 2 5 a の上側には、例えば金属等からなる整流板 1 2 4 d, 1 2 5 d が設けられている。整流板 1 2 4 d, 1 2 5 d は複数の開口を有し、伝熱性が良好である。この整流板 1 2 4 d, 1 2 5 d によって、延出部 1 2 4 a, 1 2 5 a 内を蒸気が均一に通流される。

第 2 成膜材料供給部 1 2 4, 第 1 成膜材料供給部 1 2 5 内には、加熱ヒータ、及び空気等の熱媒体を通流させる熱媒体通流路を備えることにしてもよい。

[0068] 延出部 1 2 4 a, 1 2 5 a は、端部に、被処理基板 G の搬送方向に突出し、蒸気を噴出する複数の噴出孔 1 2 4 c, 1 2 5 c を有するノズル 1 2 4 b, 1 2 5 b を備える。ノズル 1 2 4 b, 1 2 5 b は、第 2 成膜材料供給部 1 2 4, 第 1 成膜材料供給部 1 2 5 の長手方向に複数、歯状に並設されている。ノズル 1 2 4 b, 1 2 5 b は、下面が処理室 1 1 の底面に対向するように配されており、噴出孔 1 2 4 c, 1 2 5 c の開口面が前記底面に対向している。第 2 成膜材料供給部 1 2 4 及び第 1 成膜材料供給部 1 2 5 は、全体として正面視が、かかとのないブーツ状をなしている。

噴出孔 1 2 4 c, 1 2 5 c の底面は略真円状をなし、内径は略 3 mm ~ 8 mm である。噴出孔 1 2 4 c, 1 2 5 c の分布密度は、ノズル 1 2 4 b, 1 2 5 b の突出方向の中央部側が端部側より高くなるようにしている。噴出孔 1 2 4 c, 1 2 5 c の 1 ノズル当たりの個数の一例として、8 個が挙げられる。

図 2 4 及び図 2 5 に示すように、ノズル 1 2 4 b 及び 1 2 5 b のうちの

方のノズルが他方のノズル間に入り込んで、ノズル 1 2 4 b, 1 2 5 b が、第 2 成膜材料供給部 1 2 4, 第 1 成膜材料供給部 1 2 5 の長手方向に略一直線上に交互に並ぶことができるように構成されている。この場合、同一のセンターライン上に 2 種の成膜材料の噴出孔 1 2 4 c, 1 2 5 c が並ぶことになる。

[0069] 第 2 成膜材料供給部 1 2 4, 第 1 成膜材料供給部 1 2 5 は、例えば銅母材からなる。内面は例えばニッケル等によりコーティングされており、本体部分はつや消しにより、放射率が例えば 0.9 以上になるようにしている。本体部分の内面は黒色化することにしてもよい。延出部 1 2 4 a, 1 2 5 a の内面は、研磨を行ってつやを出し、放射率が例えば 0.05~0.1 と低くなるようにしている。

また、第 2 成膜材料供給部 1 2 4 と第 1 成膜材料供給部 1 2 5 との間の、ノズル 1 2 4 b 及びノズル 1 2 5 b の上方に、遮熱板を設けることにしてもよい。

[0070] 第 2 成膜材料供給部 1 2 4, 第 1 成膜材料供給部 1 2 5 には、成膜ヘッド 2 の有機成膜材料供給部 4, 無機成膜材料供給部 5 と同様に、第 2 成膜材料供給部 1 2 4, 第 1 成膜材料供給部 1 2 5 を上下方向（鉛直方向）及び水平方向（被処理基板 G の搬送方向）に移動させるための第 1 駆動部 8 1, 第 2 駆動部 8 2 が取り付けられている。第 1 駆動部 8 1, 第 2 駆動部 8 2 は処理室 1 1 の上部に設けられている。第 1 駆動部 8 1, 第 2 駆動部 8 2 は、第 2 成膜材料供給部 1 2 4, 第 1 成膜材料供給部 1 2 5 を支持する支持部 8 1 a, 8 2 a と、ねじ軸部 8 1 b, 8 2 b とを備える。支持部 8 1 a, 8 2 a は図 2 6 の紙面に垂直な方向に突出した軸部 8 1 c, 8 2 c を各 2 個備え、第 2 成膜材料供給部 1 2 4, 第 1 成膜材料供給部 1 2 5 は軸部 8 1 c, 8 2 c に嵌合される突設部 1 2 4 e, 1 2 5 e を側面に各 2 個備えている。

[0071] 第 1 駆動部 8 1, 第 2 駆動部 8 2 は、ボールねじ機構によりねじ軸 8 1 b, 8 2 b が回転することで、支持部 8 1 a, 8 2 a を介し第 2 成膜材料供給部 1 2 4, 第 1 成膜材料供給部 1 2 5 が上下方向の直線運動をするように構

成されている。また、支持部 8 1 a, 8 2 a はマイクロステージにより水平方向に移動可能であり、第 2 成膜材料供給部 1 2 4, 第 1 成膜材料供給部 1 2 5 が水平方向に移動するように構成されている。そして、突設部 1 2 4 e, 1 2 5 e が軸部 8 1 c, 8 2 c を中心に回転することで、第 2 成膜材料供給部 1 2 4, 第 1 成膜材料供給部 1 2 5 が θ 方向に回転するように構成されている。第 1 駆動部 8 1, 第 2 駆動部 8 2 は制御部 5 9 a により制御されて第 2 成膜材料供給部 1 2 4, 第 1 成膜材料供給部 1 2 5 を適宜の位置に移動させる。

なお、第 2 成膜材料供給部 1 2 4, 第 1 成膜材料供給部 1 2 5 を上下方向及び水平方向に移動させる構成、並びに第 2 成膜材料供給部 1 2 4, 第 1 成膜材料供給部 1 2 5 を θ 方向に回転させる構成は上述の場合に限定されるものではない。第 2 成膜材料供給部 1 2 4, 第 1 成膜材料供給部 1 2 5 をマイクロメータにより上下方向に移動させることにしてもよく、ボールねじ機構又はリニアモータにより水平方向に移動させることにしてもよい。

[0072] 図 2 4 ~ 図 2 6 は、第 2 成膜材料供給部 1 2 4, 第 1 成膜材料供給部 1 2 5 の位置を制御して、ノズル 1 2 4 b, 1 2 5 b が交互に並んだ状態を示している。ここで、ノズル 1 2 4 b, 1 2 5 b の下面と被処理基板 G との間隔は、略 5 0 m m ~ 1 5 0 m m に制御するのが好ましく、一例として 1 0 0 m m である場合が挙げられる。

この場合、ノズル 1 2 4 b, 1 2 5 b の噴出孔 1 2 4 c, 1 2 5 c から噴出される第 2 成膜材料、第 1 成膜材料の蒸気がセンターライン上で良好に混合した状態で、被処理基板 G へ供給される。

従って、Post-Mix 型の成膜装置を用いて、均一な混合割合で成膜したい場合に、第 1 成膜材料と第 2 成膜材料との混合状態にムラがあり、被処理基板 G の搬送方向の端部側において第 1 成膜材料と第 2 成膜材料との混合が不完全であり、いずれかの材料の割合が多くなることがない。すなわち、前後の工程により形成される膜との界面に、不完全混合層が形成されるのが抑制される。

そして、第2成膜材料供給部124、第1成膜材料供給部125の延出部124a、125aの放射率を他部より低くしているので熱伝導性が低く、例えば第1成膜材料を380℃に、第2成膜材料を230℃に加熱する場合のように、両者の沸点差が大きいときでも、ノズル124b、125bが交互に並ぶことで互いに影響を受けることがない。すなわち、第2成膜材料が第1成膜材料からの伝熱により劣化することはない。

[0073] また、本実施の形態の成膜装置121は、実施の形態1に係る成膜装置1の成膜ヘッド2と同様に、第2成膜材料供給部124、第1成膜材料供給部125の位置を制御し、膜厚方向において第2成膜材料及び第1成膜材料の混合割合（濃度分布）を変化させることができる。

図27は、第2成膜材料供給部124及び第1成膜材料供給部125の配置の一例と、第2成膜材料及び第1成膜成膜材料の搬送方向（第3ヘッド13gの下側における搬入口11a側の端部からの距離）における蒸気量を概念的に示した説明図である。図27中、Aは第2成膜材料の蒸気量を示すグラフ、Bは第1成膜材料の蒸気量を示すグラフである。

[0074] 図27に示すように第2成膜材料供給部124、第1成膜材料供給部125を配置した場合、被処理基板Gの搬送に従い、ホール輸送層の直上に第2成膜材料が大部分含まれる状態で成膜され、次第に第1成膜材料の混合量が増加するように成膜される。膜厚方向の略中央部で無機成膜材料と有機成膜材料との混合比（体積比）が略50：50になり、その後は第1成膜材料の割合が高い状態で成膜され、最後に第1成膜材料が大部分含まれる状態で成膜されて、成膜処理が終了する。従って、膜厚方向の上側に向かうに従って、第1成膜材料の混合割合が高くなるように成膜される。

[0075] また、第2成膜材料供給部124が第1成膜材料供給部125より下側に突出するように配置した場合、グラフAの分布幅がグラフBの分布幅より狭くなるので、第1成膜材料の濃度を、膜厚方向の両端部側に向かうに従って高くなるようにすることができる。

そして、第1成膜材料供給部125を被処理基板Gの搬送方向の上流側に

、第2成膜材料供給部124を搬送方向の下流側に配置することにより、膜厚方向の上側に向かうに従って、第2成膜材料の混合割合が高くなるようにすることができる。

本実施の形態においては、以上のように、形成する共蒸着層の要求性能に応じて、成膜材料の混合割合を成膜方向に均一にし、又は前記混合割合を成膜方向に異ならせて共蒸着を行うことができる。すなわち、形成する発光層等の共蒸着層の要求性能に応じて、成膜材料の混合割合を成膜方向（膜厚方向）に制御するという課題を解決することができる。

[0076] なお、本実施の形態においては、第1駆動部81、第2駆動部82が第2成膜材料供給部124、第1成膜材料供給部125を水平方向、及び上下方向に移動可能に構成し、 θ 方向に回転可能に構成した場合につき説明しているがこれに限定されるものではない。第1駆動部81、第2駆動部82が第2成膜材料供給部124、第1成膜材料供給部125を水平方向にのみ移動させるものであってもよい。但し、上下方向にも移動可能であり、 θ 方向にも回転可能に構成する方がきめ細かく濃度分布を制御することができるので好ましい。

また、第2成膜材料供給部124、第1成膜材料供給部125を自動で移動させる場合に限定されず、手動で移動させることにしてもよい。

さらに第1駆動部81、第2駆動部82を処理室11の上部に設けた場合につき説明しているがこれに限定されず、例えば蒸気を処理室11の下側から噴出させて成膜する場合等においては、第1駆動部81、第2駆動部82を処理室11の下部に設けることにしてもよい。

そして、本実施の形態においては第2成膜材料供給部124、第1成膜材料供給部125の両方が移動可能に構成されている場合につき説明しているがこれに限定されるものではなく、いずれか一方のみ移動可能に構成することにしてもよい。

[0077] また、ノズル124b、125bは交互に嵌め合わされるように構成される場合には限定されない。例えば同一のノズルが2つずつ並ぶようにしても

よい。

そして、第2成膜材料供給部124、第1成膜材料供給部125の材質、内面のコーティングの内容も上述した場合には限定されない。

さらに、この第2成膜材料供給部124、第1成膜材料供給部125の構成は青色発光層を形成するときに適用する場合に限定されず、他色の発光層を形成する場合にも適用することができ、他の機能を有する層を形成する場合にも適用することができる。そして、第1成膜材料及び第2成膜材料が有機材料である場合には限定されず、少なくとも一方が無機材料であってもよい。

[0078] 実施の形態5.

本発明の実施の形態5に係る成膜システムは、実施の形態4に係る成膜システムと同様の構成を有し、成膜装置122の第3ヘッド13iの第2成膜材料供給部124及び第1成膜材料供給部125が固定されている点が、実施の形態4に係る成膜装置121の第3ヘッド13gと異なる。このように構成し、第1成膜材料及び第2成膜材料の蒸気を各別に発生させ、被処理基板上で各蒸気を混合して成膜することにより、低沸点側の成膜材料を劣化させることなく、各成膜材料を所要条件で蒸発させることができる。また、第1成膜材料及び第2成膜材料の蒸気量（蒸気濃度）を輸送ガス供給管146c、145cから供給された輸送ガスにより調整できるため、温度によってのみ制御する場合に比べ応答性が高く、安定に成膜材料蒸気を供給することが可能となる。

特に、不完全な混合層が形成されることを抑制したい場合には、後述するように、ノズル124b、125bが交互に並んだ状態で固定することにすればよい。以下、不完全な混合層が形成されることを抑制したい場合の実施形態について図28及び図29を参照して説明する。

図28は成膜装置122の構成の一例を模式的に示す斜視図、図29は成膜装置122の構成の一例を模式的に示す側断面図である。図中、図2及び図3と同一部分は同一符号を付して詳細な説明を省略する。

[0079] 成膜装置 1 2 2 の処理室 1 1 の上部、搬送方向略中央部には、被処理基板 G に対して真空蒸着法にて成膜を行う複数の蒸着ヘッド 1 3 が設けられている。蒸着ヘッド 1 3 は、ホール注入層を蒸着させる第 1 ヘッド 1 3 a、ホール輸送層を蒸着させる第 2 ヘッド 1 3 b、青発光層を蒸着させる第 3 ヘッド 1 3 i、赤発光層を蒸着させる第 4 ヘッド 1 3 d、緑発光層を蒸着させる第 5 ヘッド 1 3 e、電子輸送層を蒸着させる第 6 ヘッド 1 3 f、及び実施の形態 1 に係る発明と同一の構成の成膜ヘッド 1 2 2 を、搬送方向に沿って順に配置して構成されている。成膜ヘッド 1 2 2 は実施の形態 1 の成膜装置 1 の成膜ヘッド 2 と同様に、有機成膜材料供給部 4 と無機成膜材料供給部 5 との位置を変更可能であってもよく、前記位置を固定していてもよい。

[0080] 第 3 ヘッド 1 3 i は、第 1 成膜材料と、第 2 成膜材料とを共蒸着させるための装置である。一例として、第 1 成膜材料が有機化合物からなるホスト材料であり、第 2 成膜材料が有機化合物からなるドーパント材料である場合が挙げられる。第 3 ヘッド 1 3 g は、被処理基板 G の搬送方向の上流側から順に第 2 成膜材料供給部 1 2 4、第 1 成膜材料供給部 1 2 5 を配してなる。

第 2 成膜材料供給部 1 2 4、第 1 成膜材料供給部 1 2 5 には、蒸気発生部 1 4 5、1 4 6 から気体状の第 2 成膜材料、第 1 成膜材料が供給される。

蒸気発生部 1 4 5、1 4 6 は、容器 1 4 5 a、1 4 6 a と、容器 1 4 5 a、1 4 6 a の内部に配された加熱部 1 4 5 b、1 4 6 b とを備える。加熱部 1 4 5 b、1 4 6 b は、第 2 成膜材料、第 1 成膜材料をそれぞれ収容可能な容器状部分を有し、該容器状部分に収容された第 2 成膜材料、第 1 成膜材料をそれぞれ加熱して、各材料の蒸気を発生させる。また、容器 1 4 5 a、1 4 6 a には、被処理基板 G に対して例えば A r 等の不活性ガスからなる輸送ガスを供給する輸送ガス供給管 1 4 5 c、1 4 6 c が接続されている。輸送ガス供給管 1 4 5 c、1 4 6 c から容器 1 4 5 a、1 4 6 a に供給された輸送ガスと共に、第 2 成膜材料、第 1 成膜材料の蒸気が蒸気発生部 1 4 5、1 4 6 から配管 1 4 7、1 4 8 を介して第 2 成膜材料供給部 1 2 4、第 1 成膜材料供給部 1 2 5 へ供給される。

[0081] 図30は第2成膜材料供給部124及び第1成膜材料供給部125の構成の一例を模式的に示す斜視図、図31は図30の一部拡大図、図32は第2成膜材料供給部124及び第1成膜材料供給部125の構成の一例を模式的に示す正面図である。

第2成膜材料供給部124及び第1成膜材料供給部125は角筒状をなし、被処理基板Gの搬送方向に直交する方向に長い二側面を有する。

第2成膜材料供給部124、第1成膜材料供給部125は、下部に、処理室11の中央部下側に向けて斜めに延出する延出部124a、125aを備える。第2成膜材料供給部124、第1成膜材料供給部125の延出部124a、125aの上側には、延出部124a、125a内を蒸気が均一に流通できるように、目皿124d、125dが設けられている。

第2成膜材料供給部124、第1成膜材料供給部125内には、加熱ヒータ、及び空気等の熱媒体を通流させる熱媒体通流路を備えることにしてもよい。

[0082] 延出部124a、125aは、端部に、被処理基板Gの搬送方向に突出し、蒸気を噴出する複数の噴出孔124c、125cを有するノズル124b、125bを備える。ノズル124b、125bは、第2成膜材料供給部124、第1成膜材料供給部125の長手方向に複数、歯状に並設されている。ノズル124b、125bは、下面が処理室11の底面に対向するように配されており、噴出孔124c、125cの開口面が前記底面に対向している。第2成膜材料供給部124及び第1成膜材料供給部125は、全体として正面視が、かかとのないブーツ状をなしている。

噴出孔124c、125cの底面は略真円状をなし、内径は略3mm～8mmである。噴出孔124c、125cの分布密度は、ノズル124b、125bの突出方向の中央部側が端部側より高くなるようにしている。噴出孔124c、125cの1ノズル当たりの個数の一例として、8個が挙げられる。

図30及び図31に示すように、ノズル124b及び125bのうちの一

方のノズルが他方のノズル間に入り込んでおり、ノズル 1 2 4 b, 1 2 5 b が、第 2 成膜材料供給部 1 2 4, 第 1 成膜材料供給部 1 2 5 の長手方向に略一直線上に交互に並んでいる。すなわち、同一のセンターライン上に 2 種の成膜材料の噴出孔 1 2 4 c, 1 2 5 c が並ぶことになる。

ノズル 1 2 4 b, 1 2 5 b の下面と被処理基板 G との間隔は、略 5 0 m m ~ 1 5 0 m m に制御するのが好ましく、一例として 1 0 0 m m である場合が挙げられる。

[0083] 第 2 成膜材料供給部 1 2 4, 第 1 成膜材料供給部 1 2 5 は、例えば銅母材からなる。内面は例えばニッケル等によりコーティングされており、本体部分はつや消しにより、放射率が例えば 0. 9 以上になるようにしている。本体部分の内面は黒色化することにしてもよい。延出部 1 2 4 a, 1 2 5 a の内面は、研磨を行ってつやを出し、放射率が例えば 0. 0 5 ~ 0. 1 と低くなるようにしている。

[0084] 本実施の形態においては、ノズル 1 2 4 b, 1 2 5 b の噴出孔 1 2 4 c, 1 2 5 c から噴出される第 2 成膜材料、第 1 成膜材料の蒸気がセンターライン上で良好に混合するよう、被処理基板 G へ供給される。

従って、複数の材料蒸気をより均一に供給することができる。すなわち、前後の工程により形成される膜との界面に、不完全混合層が形成されるのを効果的に抑制することができる。

そして、第 2 成膜材料供給部 1 2 4, 第 1 成膜材料供給部 1 2 5 の延出部 1 2 4 a, 1 2 5 a の放射率を他部より低くしているので熱伝導性が低く、例えば第 1 成膜材料を 3 8 0 °C に、第 2 成膜材料を 2 3 0 °C に加熱する場合のように、両者の沸点差が大きいときでも、ノズル 1 2 4 b, 1 2 5 b が交互に並ぶことで互いに影響を受けることがない。すなわち、第 2 成膜材料が第 1 成膜材料からの伝熱により劣化することはない。

[0085] なお、ノズル 1 2 4 b, 1 2 5 b は交互に嵌め合わされるように構成される場合には限定されない。例えば同一のノズルが 2 つずつ並ぶようにしてもよい。

そして、第2成膜材料供給部124、第1成膜材料供給部125の材質、内面のコーティングの内容も上述した場合には限定されない。

さらに、この第2成膜材料供給部124、第1成膜材料供給部125の構成は青色発光層を形成するときに適用する場合に限定されず、他色の発光層を形成する場合にも適用することができ、他の機能を有する層を形成する場合にも適用することができる。そして、第1成膜材料及び第2成膜材料が有機材料である場合には限定されず、少なくとも一方が無機材料であってもよい。

[0086] 実施の形態6.

本発明の実施の形態6に係る成膜システムは、実施の形態4に係る成膜システムと同様の構成を有し、成膜装置の第3ヘッド13hが第3成膜材料供給部126を備える点が、実施の形態4に係る成膜装置1の第3ヘッド13gと異なる。例えば発光層を成膜する場合には、第1成膜材料供給部125、第2成膜材料供給部124、及び第3成膜材料供給部126のうちのいずれかの成膜材料供給部がホスト材料を供給し、他の2つの成膜材料供給部がドーパント材料を供給する。この構成で、第1成膜材料、第2成膜材料、及び第3成膜材料の蒸気を各別に発生させ、被処理基板上で各蒸気を混合して成膜することにより、低沸点側の成膜材料を劣化させることなく、各成膜材料を所要条件で蒸発させることができる。また、第1成膜材料、第2成膜材料、及び第3成膜材料の蒸気量（蒸気濃度）をそれぞれの輸送ガス供給管から供給された輸送ガスにより調整できるため、温度によってのみ制御する場合に比べて応答性が高く、安定して成膜材料の蒸気を供給することが可能となる。

図33は第2成膜材料供給部124、第3成膜材料供給部126、及び第1成膜材料供給部125の構成の一例を模式的に示す正面図、図34は第2成膜材料供給部124、第3成膜材料供給部126、及び第1成膜材料供給部125の構成の一例を模式的に示す一部底面図である。図中、図24～図26と同一部分は同一符号を付して詳細な説明を省略する。

[0087] 第3ヘッド13hは、被処理基板Gの搬送方向の上流側から順に、第2成膜材料供給部124、第3成膜材料供給部126、及び第1成膜材料供給部125を備える。第3成膜材料供給部126は、下部に、処理室11の中央部下側に向けて延出する延出部126aを備える。第3成膜材料供給部126の延出部126の上側には、延出部126a内を蒸気が均一に通流できるように、整流板が設けられていてもよい（図示せず）。

延出部126aは、端部に、処理室11の底面に向かうように突出し、蒸気を噴出する複数の噴出孔126cを有するノズル126bを備える。ノズル126bは、第3成膜材料供給部126の長手方向に複数、歯状に並設されている。

[0088] 第3成膜材料供給部126は、例えば銅母材からなる。内面は例えばニッケル等によりコーティングされており、本体部分がつや消しにより、放射率が例えば0.9以上になるようにしている。本体部分の内面は黒色化することにしてもよい。延出部126aの内面は、研磨を行ってつやを出し、放射率が例えば0.05～0.1になるようにしている。

第3成膜材料供給部126には、蒸気発生部（図示せず）から気体状の第3成膜材料としての有機材料が供給される。

[0089] そして、第3成膜材料供給部126には、該第3成膜材料供給部126を上下方向及び被処理基板Gの搬送方向に移動させるための第3駆動部83が取り付けられている。第3駆動部83は処理室11の上部に設けられている。第3駆動部83は、第3成膜材料供給部126を支持する支持部83aと、ねじ軸部83bとを備える。支持部83aは図28の紙面に垂直な方向に突出した軸部83cを2個備え、第3成膜材料供給部126は軸部83cに嵌合される突設部126eを側面に2個備えている。

第3駆動部83は、ボールねじ機構によりねじ軸83bが回転することで、支持部83aを介し第3成膜材料供給部126が上下方向の直線運動をするように構成されている。また、支持部83aはマイクロステージにより水平方向に移動可能であり、第3成膜材料供給部126が水平方向に移動する

ように構成されている。そして、突設部 1 2 6 e が軸部 8 3 c を中心に回転することで、第 3 成膜材料供給部 1 2 6 が θ 方向に回転するように構成されている。第 3 駆動部 8 3 は制御部 5 9 a により制御されて第 3 成膜材料供給部 1 2 6 を適宜の位置に移動させる。

なお、第 3 成膜材料供給部 1 2 6 を上下方向及び水平方向に移動させる構成、並びに第 3 成膜材料供給部 1 2 6 を θ 方向に回転させる構成は上述の場合に限定されるものではない。第 3 成膜材料供給部 1 2 6 をマイクロメータにより上下方向に移動させることにしてもよく、ボールねじ機構又はリニアモータにより水平方向に移動させることにしてもよい。

[0090] 本実施の形態においては、図 3 4 に示すように、第 2 成膜材料供給部 1 2 4、第 3 成膜材料供給部 1 2 6、第 1 成膜材料供給部 1 2 5 のノズル 1 2 4 b、1 2 6 b、1 2 5 b は、第 2 成膜材料供給部 1 2 4、第 1 成膜材料供給部 1 2 5、第 3 成膜材料供給部 1 2 6 の長手方向に、それぞれノズル 2 個分の間隔を取った状態で、並設されている。従って、三つのノズルのうちの一つのノズル間に他の 2 つのノズルが入り込んで、ノズル 1 2 5 b、1 2 4 b、1 2 6 b が、第 1 成膜材料供給部 1 2 5、第 2 成膜材料供給部 1 2 4、第 3 成膜材料供給部 1 2 6 の長手方向に略一直線上に順に並ぶことができるように構成されている。この場合、同一のセンターライン上に 3 種の成膜材料の噴出孔 1 2 5 c、1 2 4 c、1 2 6 c が並ぶことになる。

[0091] この場合、ノズル 1 2 5 b、1 2 4 b、1 2 6 b の噴出孔 1 2 5 c、1 2 4 c、1 2 6 c から噴出される第 1 成膜材料、第 2 成膜材料、第 3 成膜材料の蒸気がセンターライン上で良好に混合した状態で、被処理基板 G へ供給される。

従って、前後の工程により形成される膜との界面に、不完全混合層が形成されるのが抑制されることがない。

そして、第 1 成膜材料供給部 1 2 5、第 2 成膜材料供給部 1 2 4、第 3 成膜材料供給部 1 2 6 の延出部 1 2 5 a、1 2 4 a、1 2 6 a の放射率を他部より低くしているので、成膜材料間の沸点差が大きい場合でも、ノズル 1 2

5 b, 1 2 4 b, 1 2 6 b が交互に並ぶことで、互いに影響を受けることがない。

[0092] また、本実施の形態の成膜装置の第3ヘッド1 3 hは、実施の形態4に係る成膜装置1 2 1の第3ヘッド1 3 gと同様に、第2成膜材料供給部1 2 4, 第3成膜材料供給部1 2 6, 第1成膜材料供給部1 2 5の位置を制御し、膜厚方向において第2成膜材料、第3成膜材料及び第1成膜材料の混合割合（濃度分布）を変化させることができる。

[0093] 以上、本実施の形態において説明したように、本発明の成膜材料供給部の延出部の構成及び位置制御の構成は、成膜材料供給部の個数が3以上である場合にも適用することができる。

なお、本実施の形態においては、第1駆動部8 1, 第3駆動部8 3, 第2駆動部8 2が第2成膜材料供給部1 2 4, 第3成膜材料供給部1 2 6, 第1成膜材料供給部1 2 5を水平方向、及び上下方向に移動可能に構成し、 θ 方向に回転可能に構成した場合につき説明しているがこれに限定されるものではない。第1駆動部8 1, 第3駆動部8 3, 第2駆動部8 2が第2成膜材料供給部1 2 4, 第3成膜材料供給部1 2 6, 第1成膜材料供給部1 2 5を少なくともいずれかの一方向に移動させるものであってもよい。

また、第2成膜材料供給部1 2 4, 第3成膜材料供給部1 2 6, 第1成膜材料供給部1 2 5を自動で移動させる場合に限定されず、手動で移動させることにしてもよい。

さらに第1駆動部8 1, 第3駆動部8 3, 第2駆動部8 2を処理室1 1の上部に設けた場合につき説明しているがこれに限定されない。

そして、本実施の形態においては第2成膜材料供給部1 2 4, 第3成膜材料供給部1 2 6, 第1成膜材料供給部1 2 5の全てが移動可能に構成されている場合につき説明しているがこれに限定されるものではなく、少なくともいずれか一つが移動可能に構成することにしてもよい。

[0094] また、ノズル1 2 5 b, 1 2 4 b, 1 2 6 bが順に嵌め合わされるように構成される場合には限定されず、任意の並び方を設定することができる。

そして、第2成膜材料供給部124、第3成膜材料供給部126、第1成膜材料供給部125の材質、内面のコーティングの内容も上述した場合には限定されない。

さらに、この第2成膜材料供給部124、第3成膜材料供給部126、第1成膜材料供給部125の構成は青色発光層を形成するときに適用する場合に限定されず、他色の発光層を形成する場合にも適用することができ、他の機能を有する層を形成する場合にも適用することができる。そして、第1成膜材料、第2成膜材料、及び第3成膜材料が有機材料である場合には限定されず、少なくとも一つが無機材料であってもよい。

そして、前記実施の形態5のように、前後の工程により形成される膜との界面に、不完全混合層が形成しないようにするという課題を解決するために、第2成膜材料供給部124、第3成膜材料供給部126、及び第1成膜材料供給部125を移動可能に構成せず、ノズル125b、124b、126bがセンターライン上に順に並んだ状態で固定されているように構成することもできる。

[0095] なお、以上の実施の形態1乃至6において説明した場合に、有機成膜材料供給部4、無機成膜材料供給部5の構成、及び第2成膜材料供給部124、第1成膜材料供給部125、第3成膜材料供給部126の構成は限定されない。

また、実施の形態1乃至3においては、共蒸着の材料が有機材料及び無機材料である場合につき説明しているがこれに限定されるものではない。本発明の蒸気供給部の位置を制御して膜厚方向の混合割合を制御する方法は、共蒸着の材料がいずれも有機材料、又はいずれも無機材料である場合にも適用することが可能である。

[0096] 本発明の成膜方法により、例えば有機EL素子の陽極と発光層との間に、成膜方向で有機成膜材料と無機成膜材料との混合比が変わるように成膜することができる。生成された膜は、発光層側から陽極層側への電子の突き抜けを良好に防止して陽極界面の劣化を防止しつつ、成膜の発光層側及び陽極層

側の界面のエネルギー障壁の高さを調節してホール注入効率を調整することができ、発光強度が向上する。

また、本発明の成膜方法により、構成成膜材料の混合割合を均一にした状態で発光層等の共蒸着層を形成したり、前記混合割合を膜厚方向に変化させた状態で発光層等の共蒸着層等を形成したりすることができる。

本発明の成膜方法により、発光効率が向上し、良好な発光強度を有する有機発光素子の製造が可能になる。

[0097] そして、本発明の成膜方法は有機EL素子以外の素子の成膜にも適用することが可能である。

以上のように説明した実施の形態は本発明の例示であり、本発明は請求の範囲に記載された事項及び請求の範囲の記載に基づいて定められる範囲内において種々変更した形態で実施することができる。

符号の説明

- [0098] 1、101、102、121、122 成膜装置
2、122、202、203 成膜ヘッド
3 有機EL素子
33f 電子輸送層
33h、33i 電子輸送・注入層
11 処理室
12 搬送装置
13 蒸着ヘッド
13c、13g、13h、13i 第3ヘッド
14 排気管
15 真空ポンプ
16、147、148 配管
17、145、146 蒸気発生部
4 有機成膜材料供給部
40 有機成膜材料供給管

4 1 有機成膜材料用筐体

4 1 a 噴出孔

4 1 a、4 1 b、4 1 c、4 1 d ヒータ固定部材

4 2 a、4 2 b、4 2 c、4 2 d ヒータ

4 3 a、4 3 b 熱媒体通流路

5 無機成膜材料供給部

5 1 無機成膜材料用筐体

5 1 a 噴出孔

5 1 b、5 1 c、5 1 d ヒータ固定部材

5 2 a、5 2 b、5 2 c、5 2 d、5 2 e、5 2 f 第2ヒータ

5 3 a、5 3 b、5 3 c 第2熱媒体通流路

5 4 加熱装置

5 5 a、5 5 b 第1ヒータ

5 6 第1熱媒体通流路

5 7 容器

6 1、6 2 供給管加熱ヒータ

7 1、7 2 遮熱カバー

1 2 4 第2成膜材料供給部

1 2 5 第1成膜材料供給部

1 2 6 第3成膜材料供給部

1 2 4 a、1 2 5 a、1 2 6 a 延出部

1 2 4 b、1 2 5 b、1 2 6 b ノズル

1 2 4 c、1 2 5 c、1 2 6 c 噴出孔

1 2 4 d、1 2 5 d 整流板

1 2 4 e、1 2 5 e、1 2 6 e 突設部

G 被処理基板

請求の範囲

- [請求項1] 被処理基板に成膜する処理室と、成膜材料の蒸気を前記被処理基板へ向けて噴出する複数の蒸気供給部とを備える成膜装置において、
複数の蒸気供給部を所定の位置に配置して、複数の成膜材料を、成膜方向の混合割合を制御した状態で、前記被処理基板へ向けて噴出するように構成されていることを特徴とする成膜装置。
- [請求項2] 蒸気供給部のうちの少なくとも一つを移動させる蒸気供給部移動手段を備え、該蒸気供給部移動手段により複数の蒸気供給部を所定の位置に配置するように構成されていることを特徴とする請求項1に記載の成膜装置。
- [請求項3] 各蒸気供給部にはそれぞれ、蒸気を噴出する複数の噴出孔を有するノズルが、前記処理室の中央部に向けて突出する状態で複数並設され、
各蒸気供給部の各ノズルが略一直線上に並ぶことができるように構成されていることを特徴とする請求項1又は2に記載の成膜装置。
- [請求項4] 前記処理室の外部に設けられており、有機成膜材料の蒸気を発生させる有機蒸気発生部と、
該有機蒸気発生部で発生させた有機成膜材料の蒸気を該被処理基板へ向けて噴出する有機蒸気供給部と、
無機成膜材料の蒸気を前記被処理基板へ向けて噴出する無機蒸気供給部と
を備えることを特徴とする請求項1から3までのいずれか1つに記載の成膜装置。
- [請求項5] 前記処理室の外部に設けられており、有機成膜材料の蒸気を発生させる有機蒸気発生部と、
該有機蒸気発生部で発生させた有機成膜材料の蒸気を該被処理基板へ向けて噴出する有機蒸気供給部と
をそれぞれ複数備えることを特徴とする請求項1から3までのいづ

れか 1 つに記載の成膜装置。

- [請求項6] 前記被処理基板を前記処理室内で移動させる手段を備え、
前記蒸気供給部移動手段は、蒸気供給部のうちの少なくとも一つを、前記被処理基板の移動方向と略一致する方向に移動させることを特徴とする請求項 1 から 5 までのいずれか 1 つに記載の成膜装置。
- [請求項7] 前記蒸気供給部移動手段は、蒸気供給部のうちの少なくとも一つを、成膜方向と略一致する方向に移動させることを特徴とする請求項 1 から 6 までのいずれか 1 つに記載の成膜装置。
- [請求項8] 蒸気供給部のうちの少なくとも一つを θ 方向に回転させる蒸気供給部回転手段を備えることを特徴とする請求項 1 から 7 までのいずれか 1 つに記載の成膜装置。
- [請求項9] 前記蒸気供給部移動手段は、前記無機蒸気供給部を移動させることを特徴とする請求項 4 に記載の成膜装置。
- [請求項10] 被処理基板を処理室内に收容し、收容された該被処理基板へ向けて複数の成膜材料の蒸気を供給することによって成膜を行う成膜方法において、
前記処理室内で複数の成膜材料の蒸気の噴出位置を制御し、成膜方向の混合割合を制御した状態で前記被処理基板へ向けて噴出し、共蒸着層を形成する共蒸着層形成工程を有することを特徴とする成膜方法。
- [請求項11] 前記処理室の外部で有機成膜材料の蒸気を発生させる工程を有し、
前記共蒸着層形成工程は、前記処理室の外部で発生させた有機成膜材料の蒸気、及び無機成膜材料の蒸気それぞれを、前記被処理基板へ向けて噴出して共蒸着層を形成することを特徴とする請求項 10 に記載の成膜方法。
- [請求項12] 基板上に、陽極、発光層、及び陰極を設ける有機発光素子の製造方法において、
前記発光層と陰極との間に、請求項 10 に記載の成膜方法により前

記共蒸着層を形成する工程を有することを特徴とする有機発光素子の製造方法。

[請求項13] 基板上に、陽極、発光層、及び陰極を設ける有機発光素子の製造方法において、

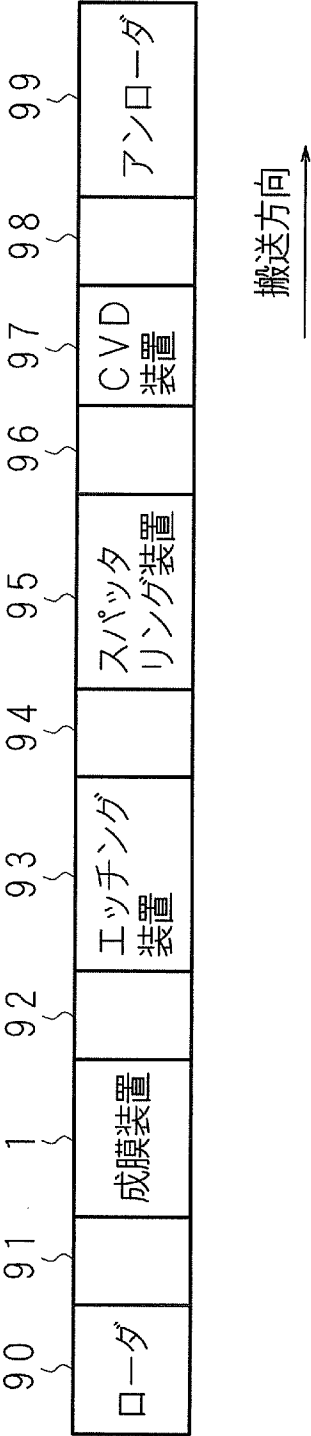
前記発光層と陰極との間に、請求項11に記載の成膜方法により前記共蒸着層を形成する工程を有し、

前記無機成膜材料は、Li、Na、K、Ca、Cs、及びBaからなる群から選択される金属であることを特徴とする有機発光素子の製造方法。

[請求項14] 複数の成膜材料からなり、膜厚方向に前記複数の成膜材料の所定の濃度分布を有する共蒸着層を有することを特徴とする有機発光素子。

[請求項15] 前記複数の成膜材料は、有機成膜材料と無機成膜材料とからなることを特徴とする請求項14に記載の有機発光素子。

[図1]



11

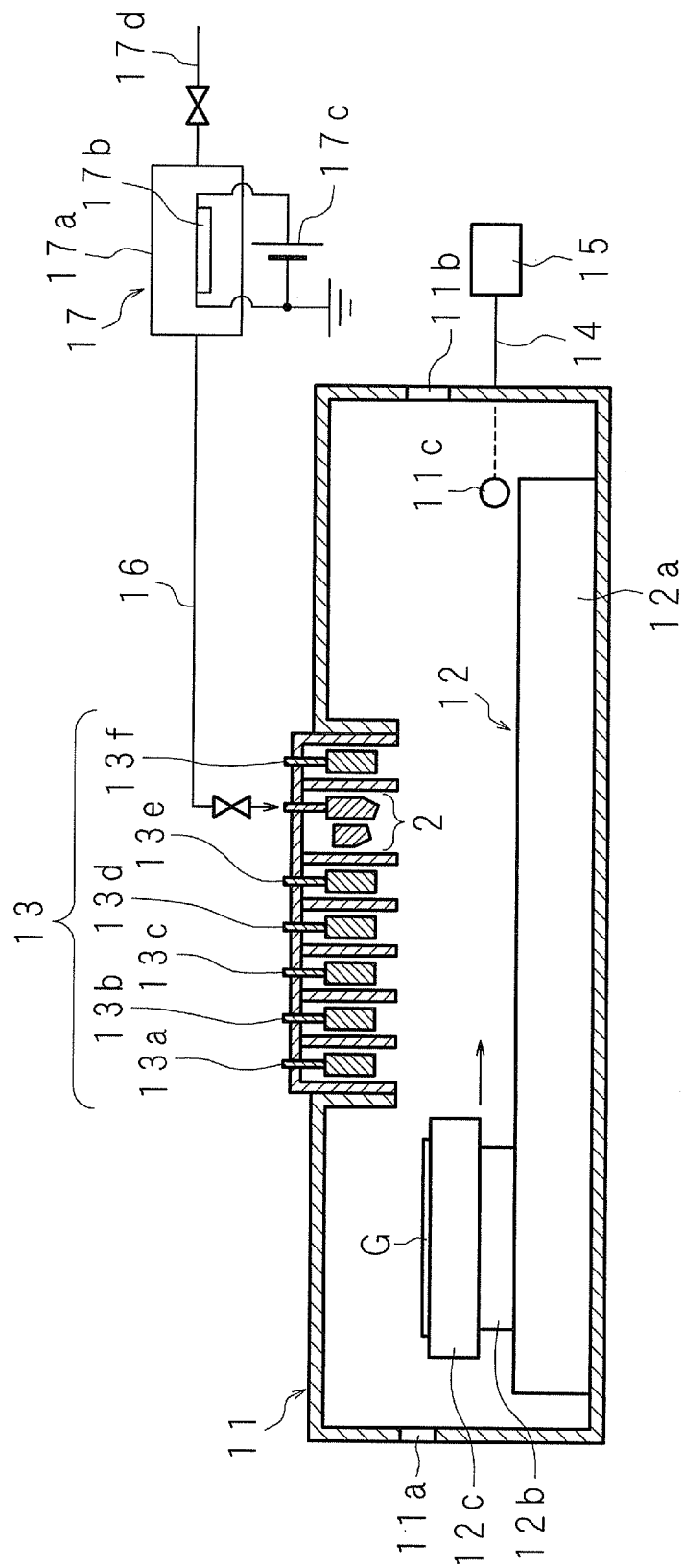
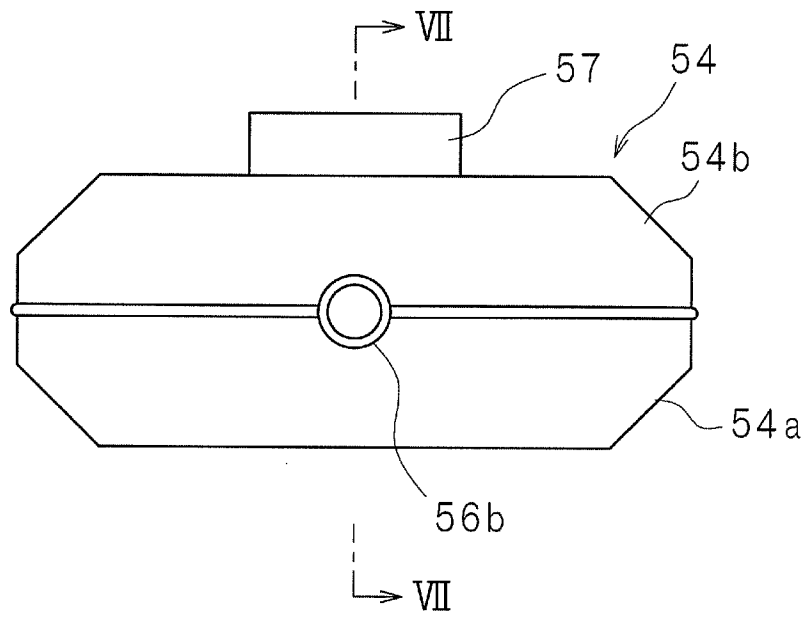
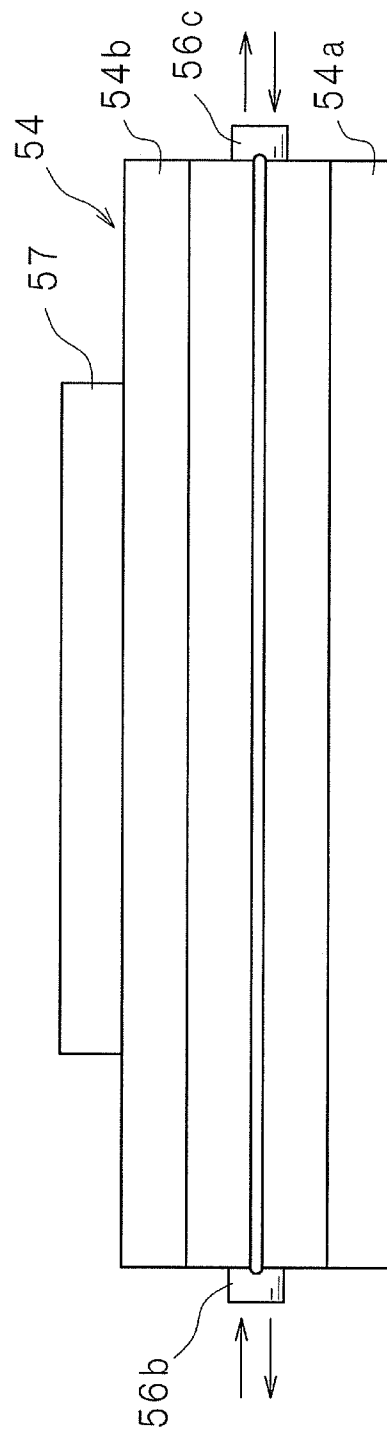


Figure 2 is a detailed cross-sectional view of a semiconductor device assembly. The diagram shows a substrate 2 with a central circular region 54 containing a central element 55a. Surrounding this are various layers and components labeled 51a through 57. A vertical structure 73 is shown on the right, with a central channel 41 and side walls 42. The top of the device features a series of vertical pillars 61 and 62. The bottom of the device is labeled G.

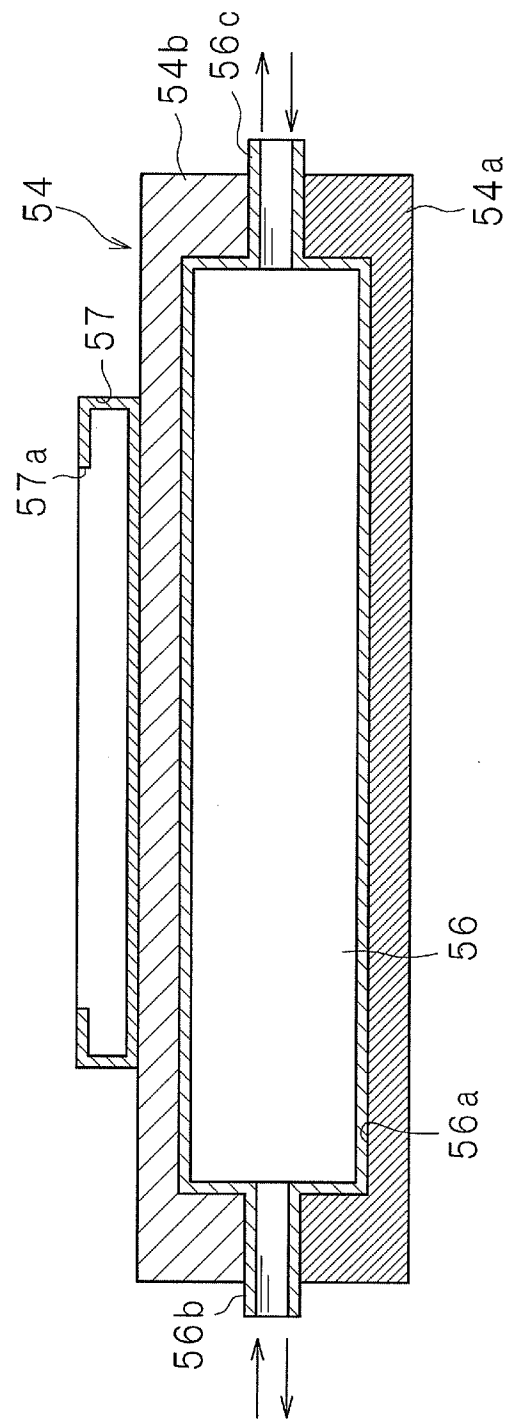
[図5]



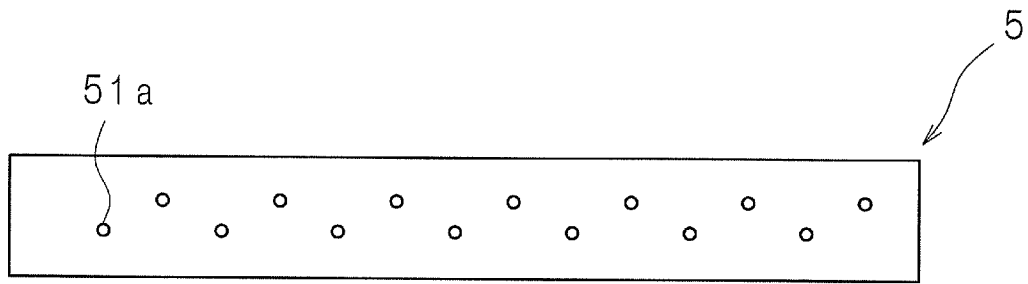
[図6]



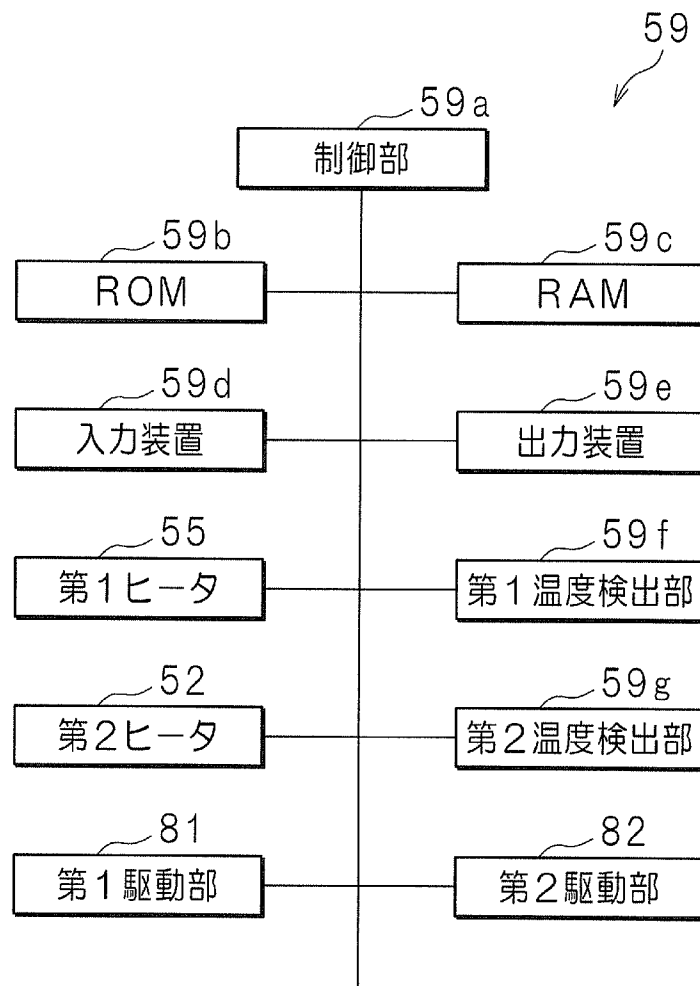
[図7]



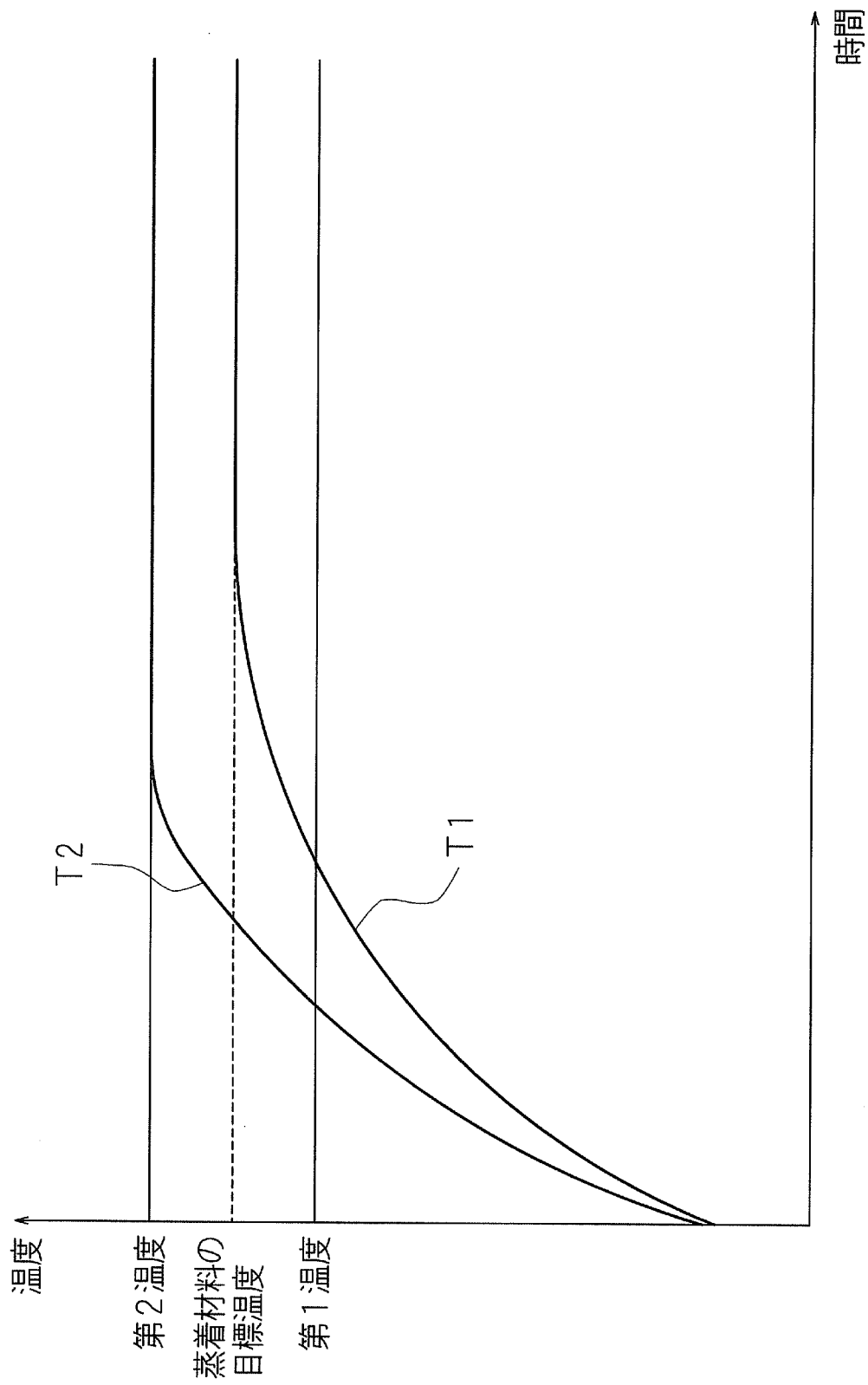
[図8]



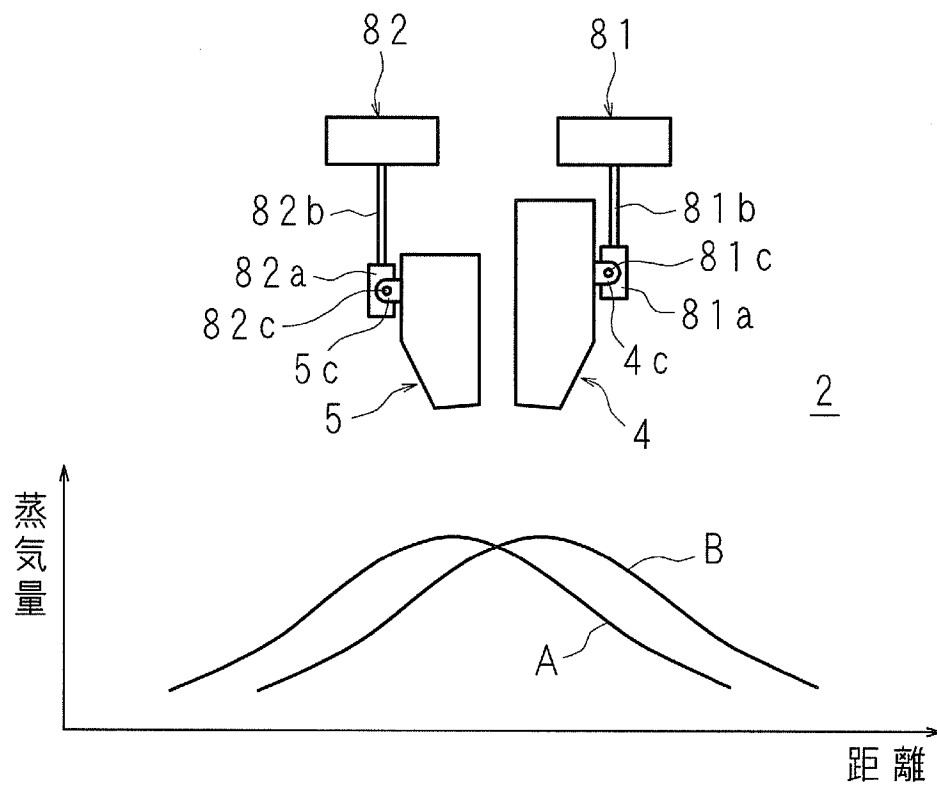
[図9]



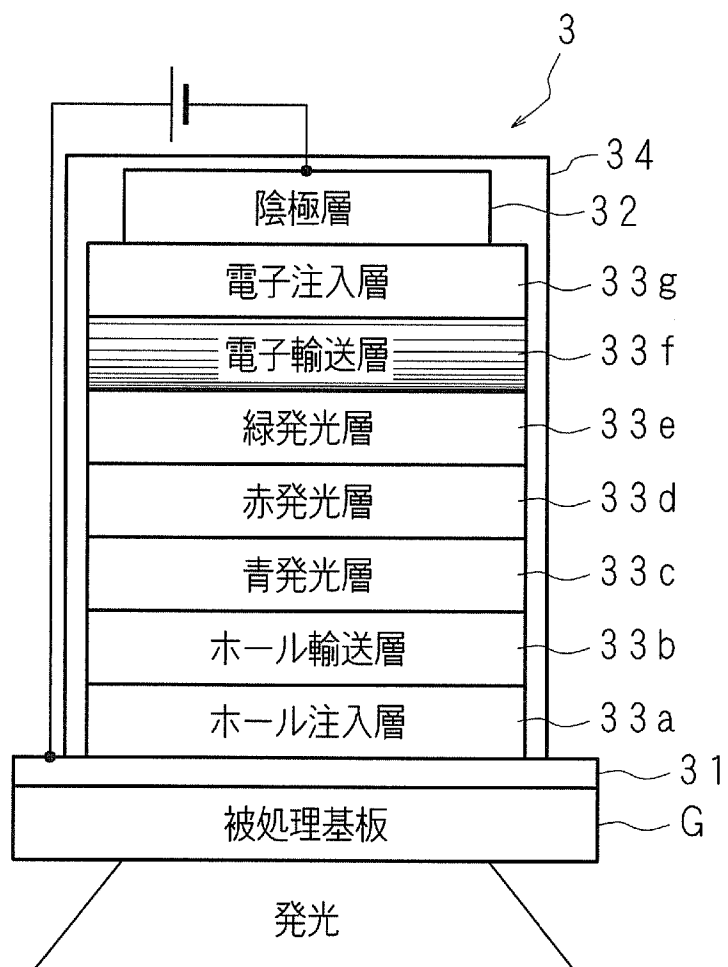
[図10]



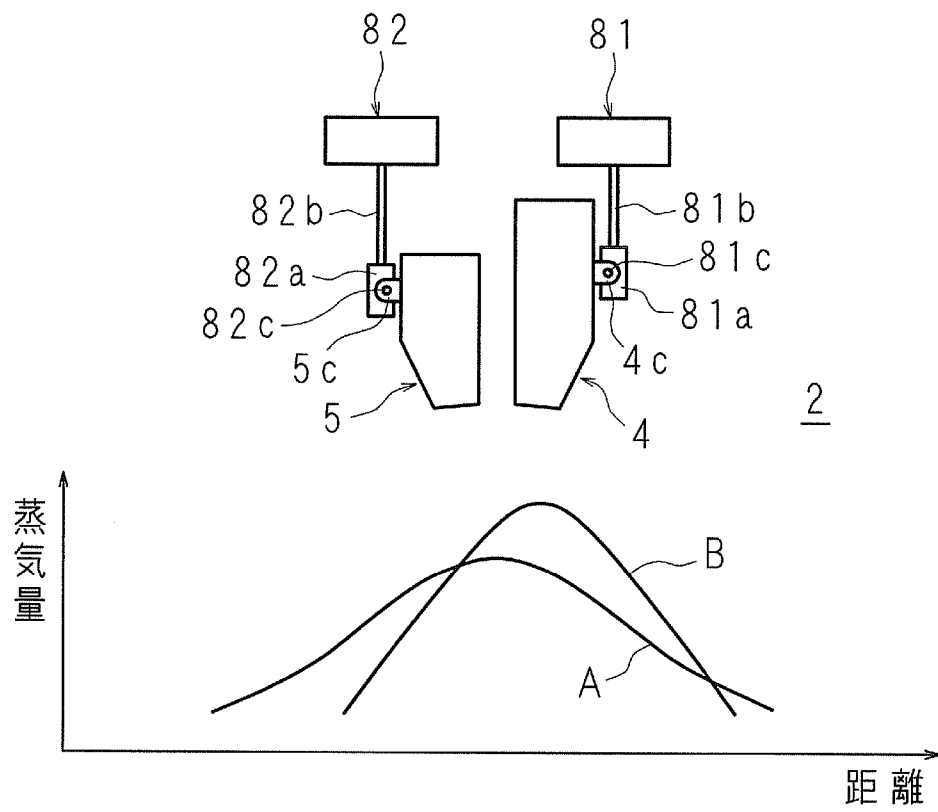
[図12]



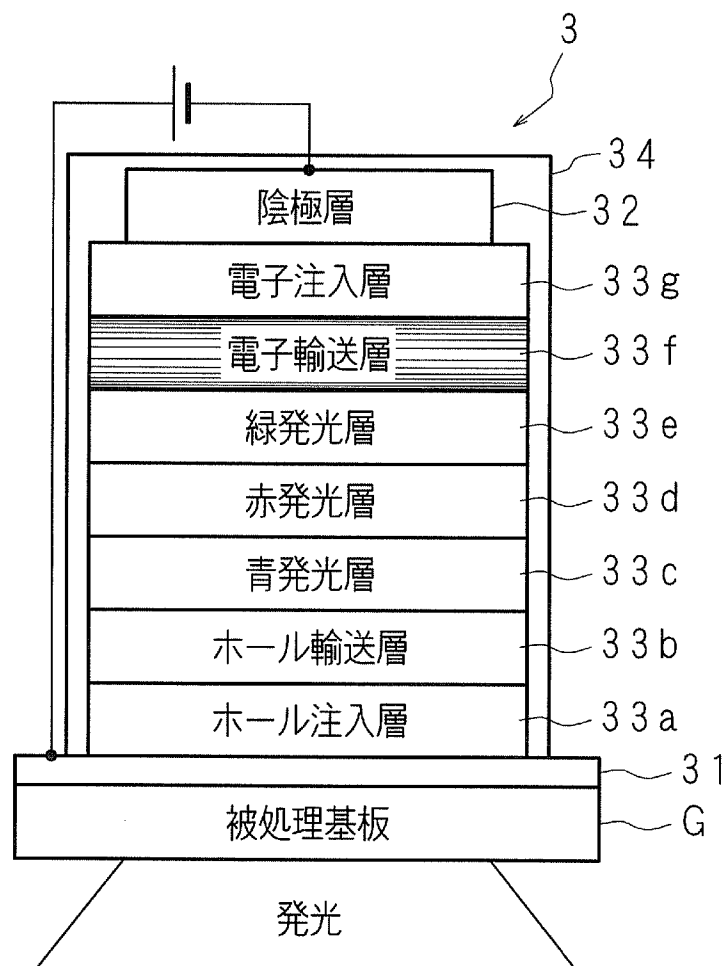
[図13]



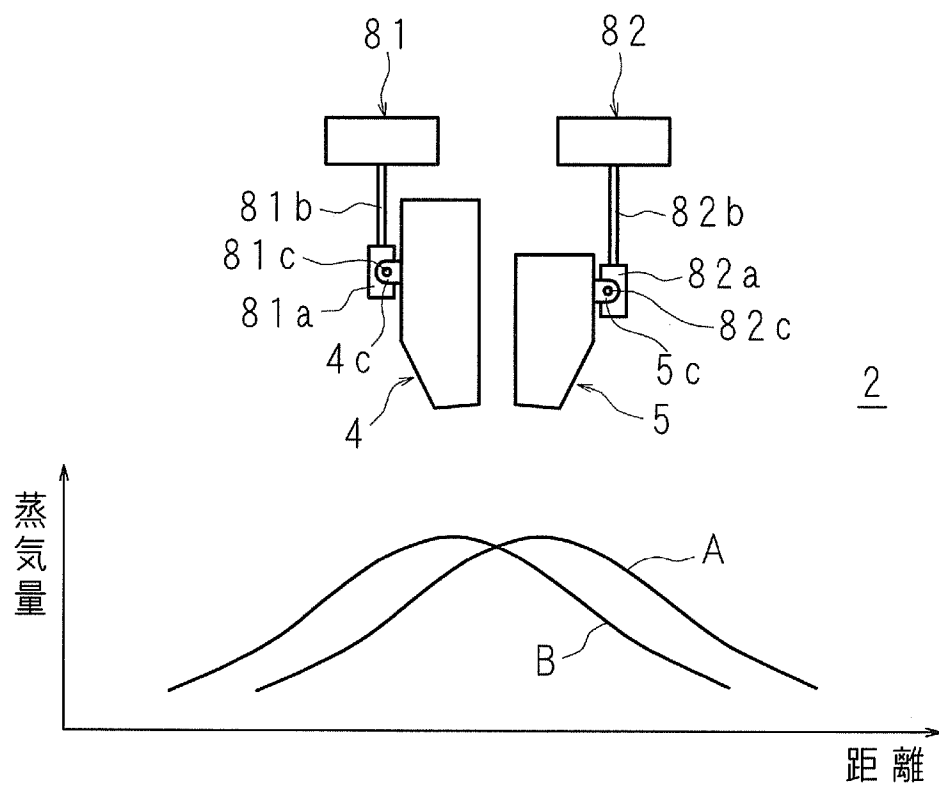
[図14]



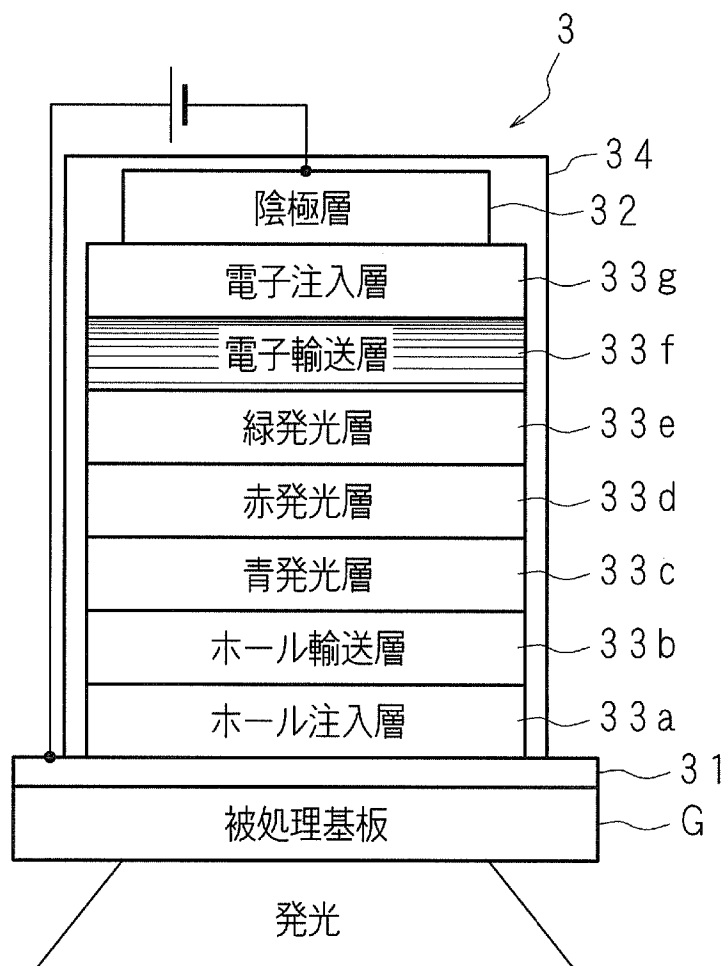
[図15]



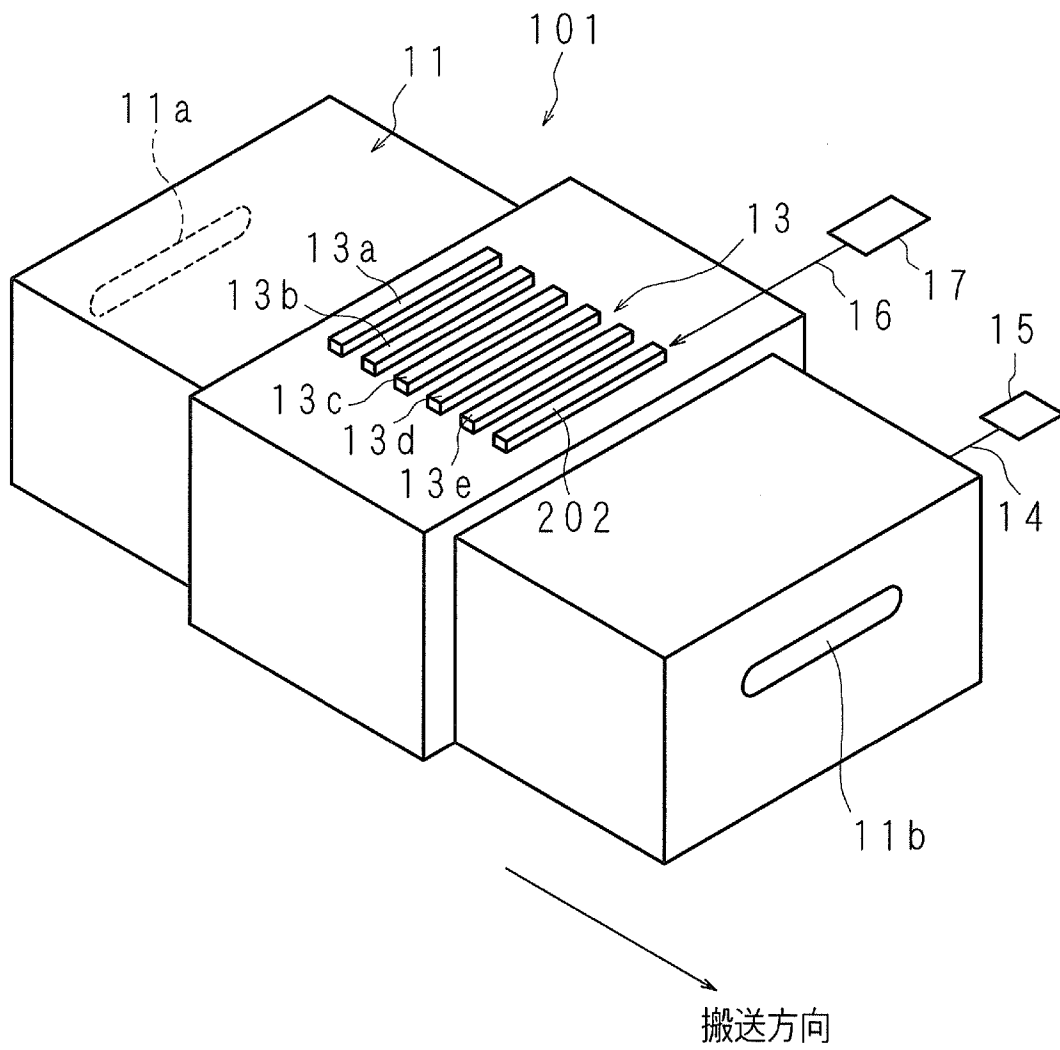
[図16]



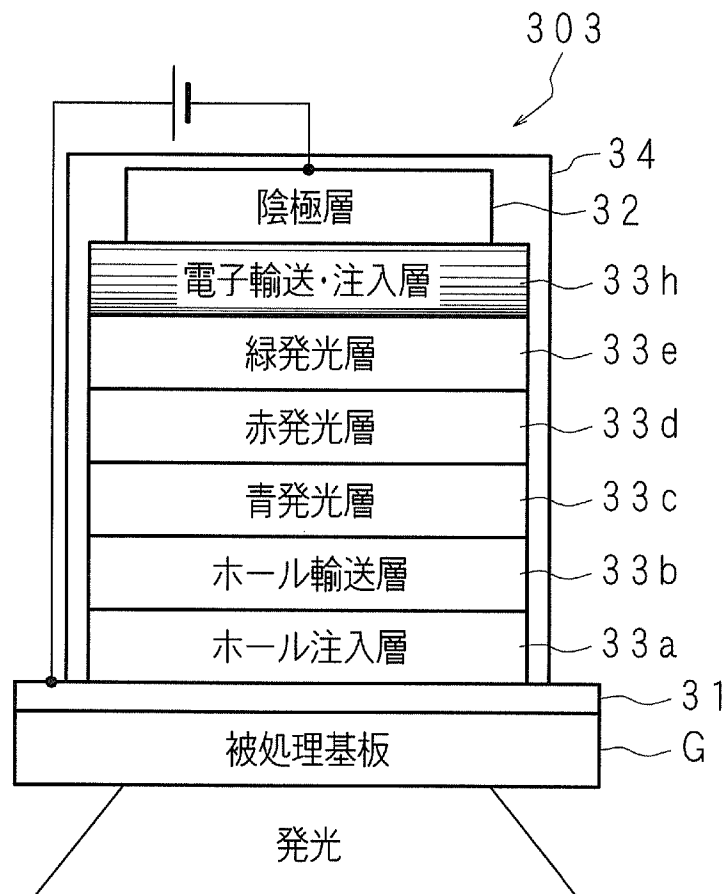
[図17]



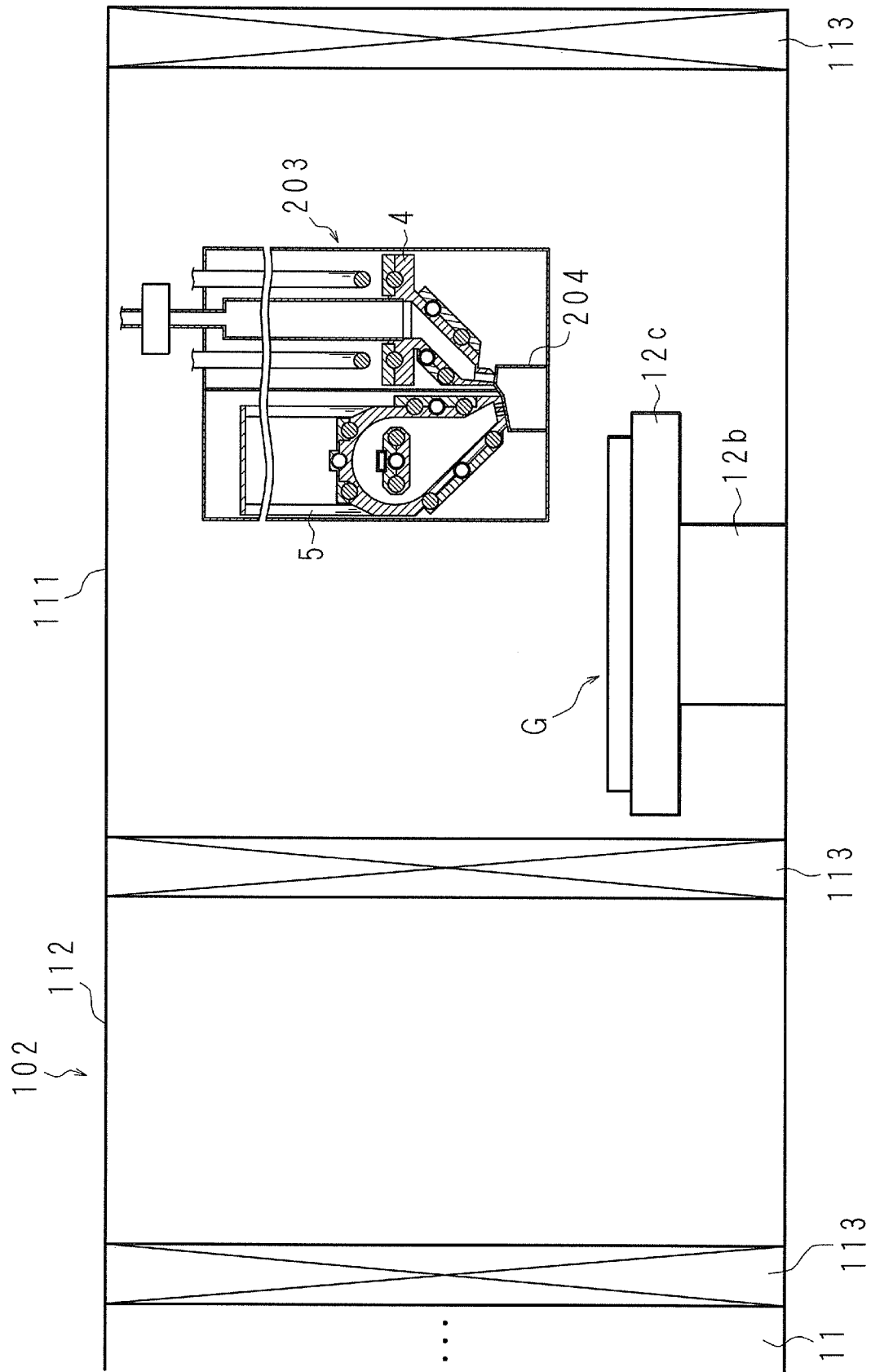
[図18]



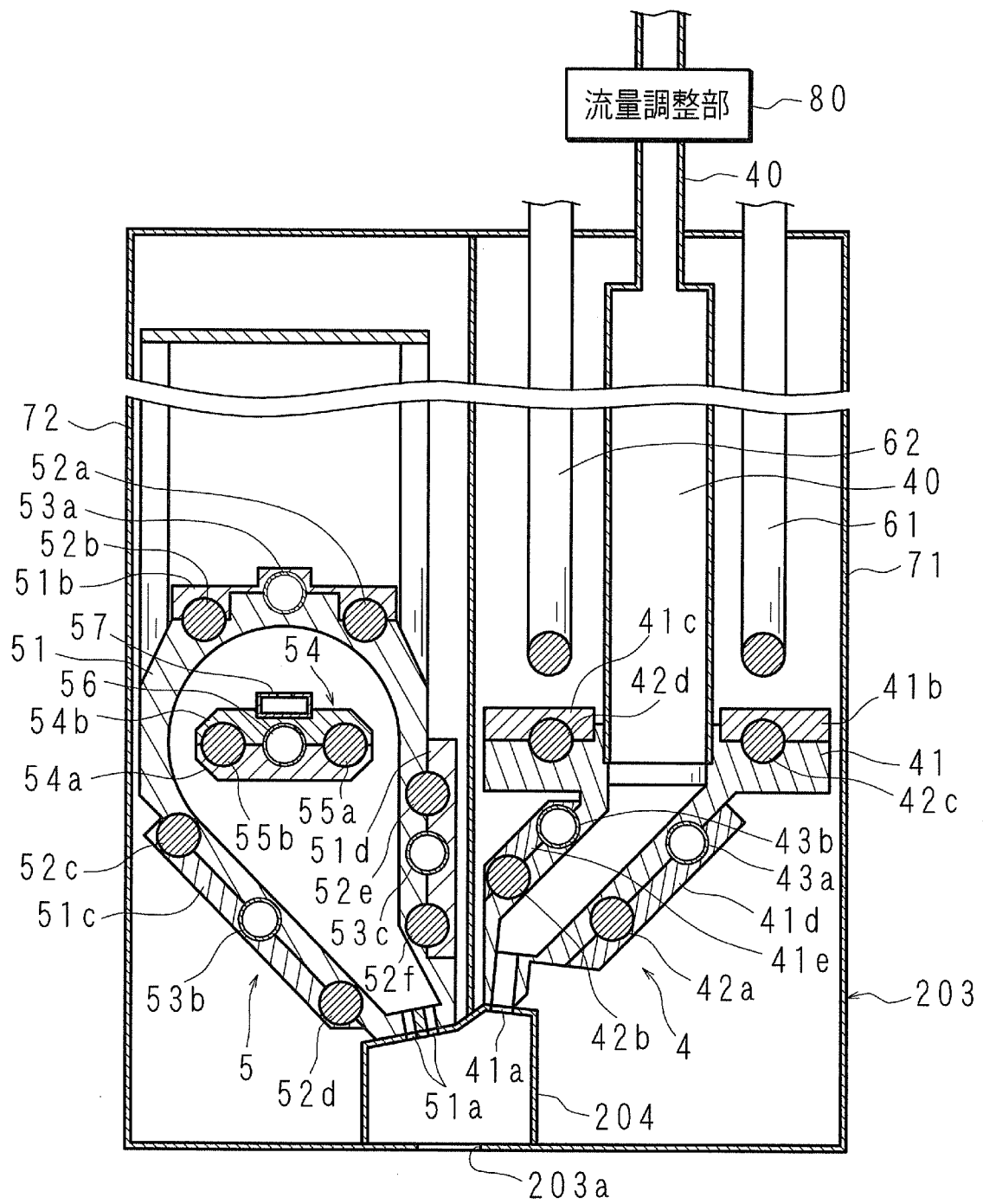
[図19]



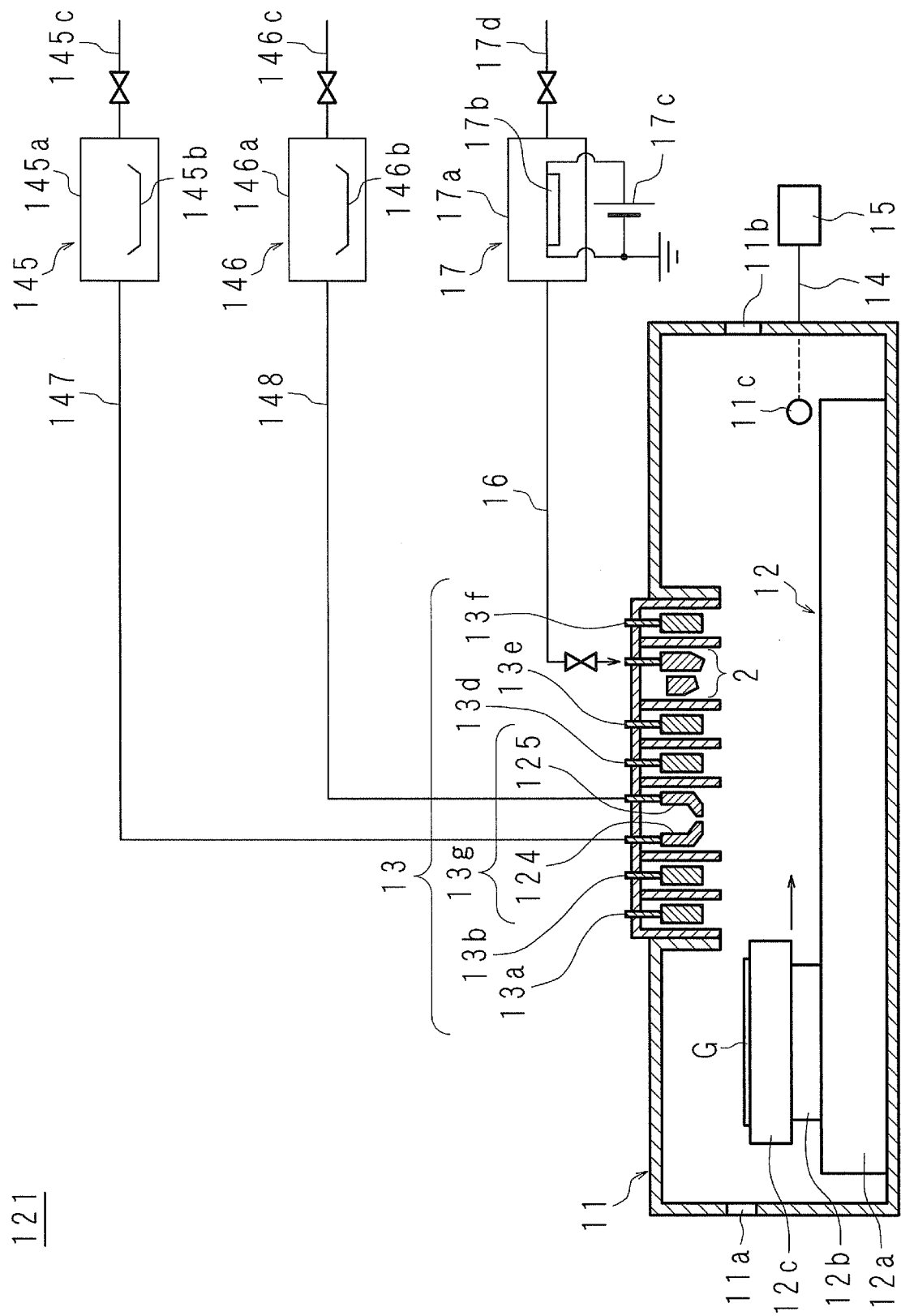
[図20]



[図21]

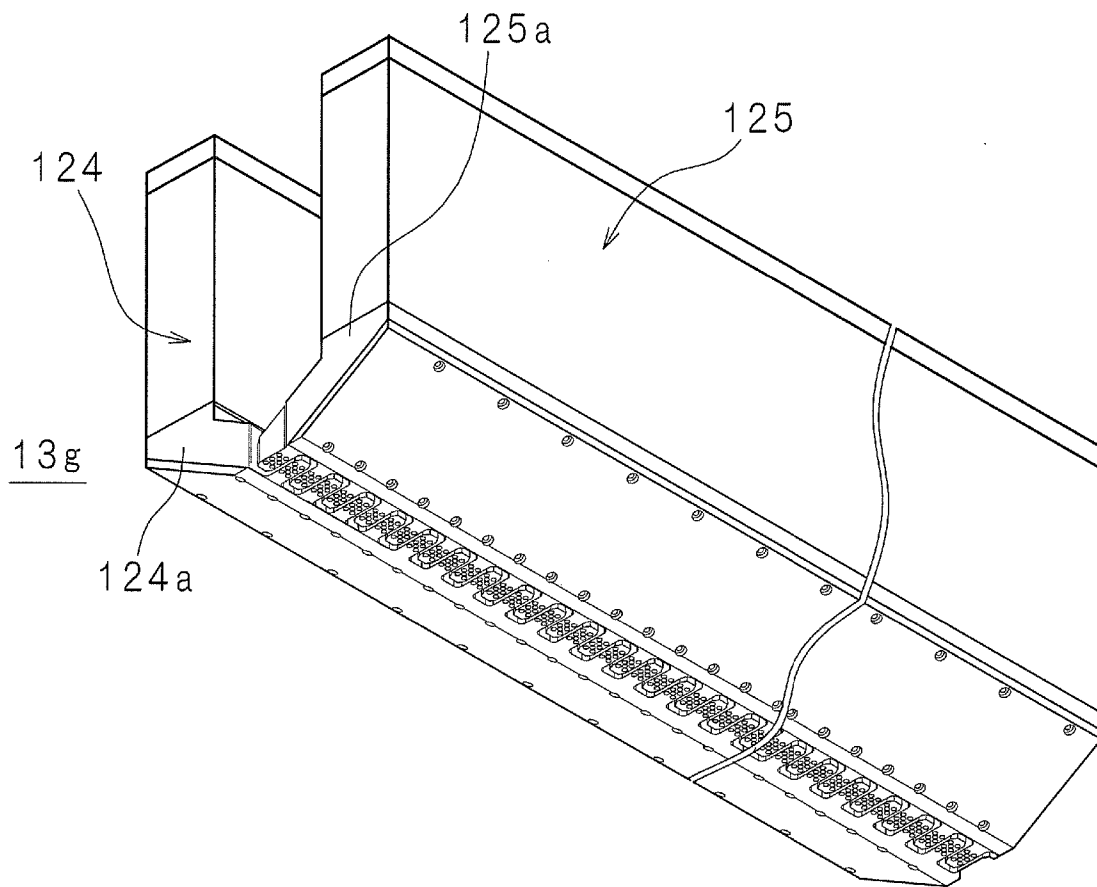


[図23]

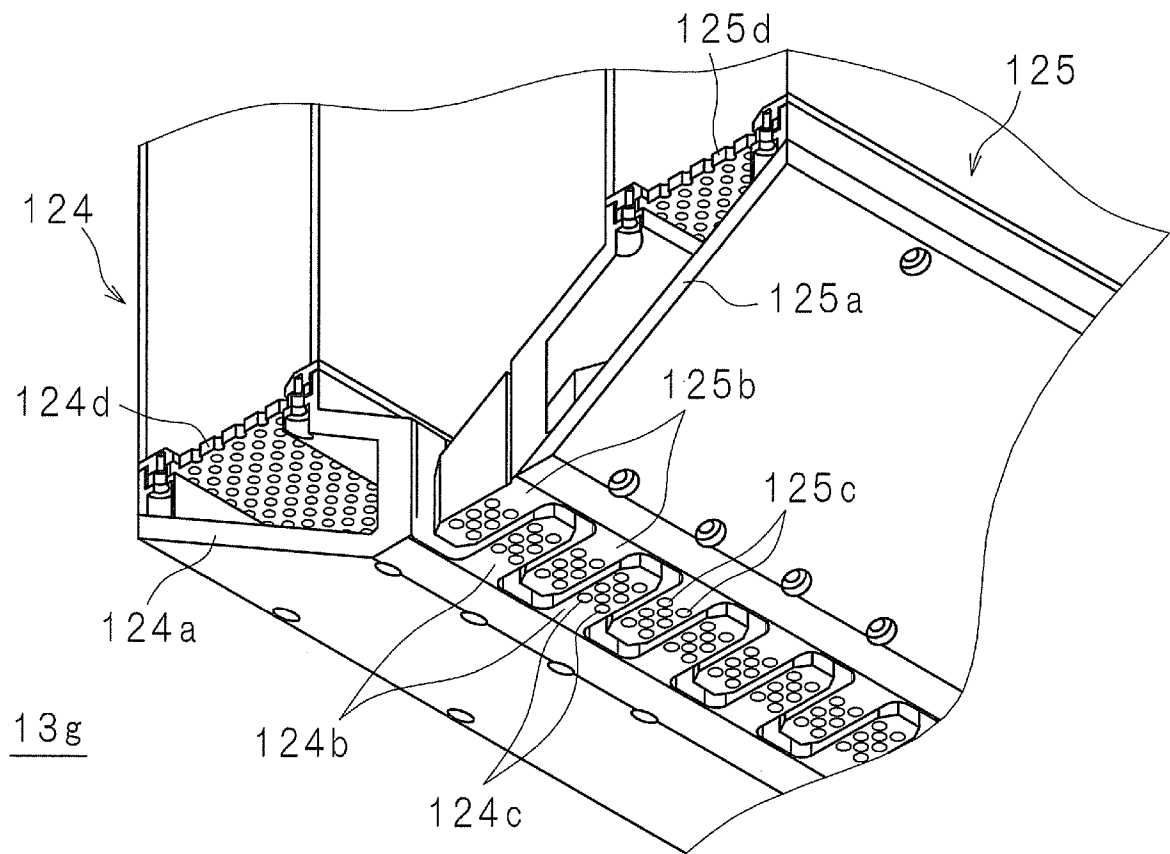


121

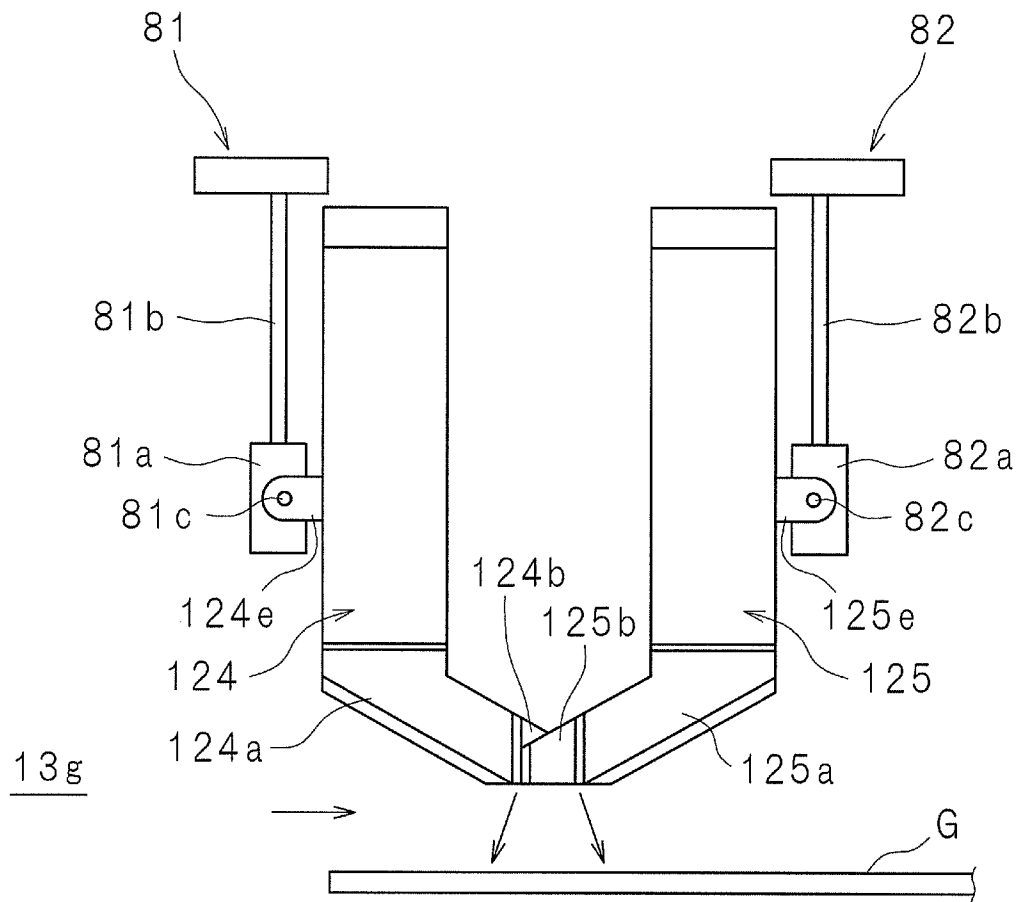
[図24]



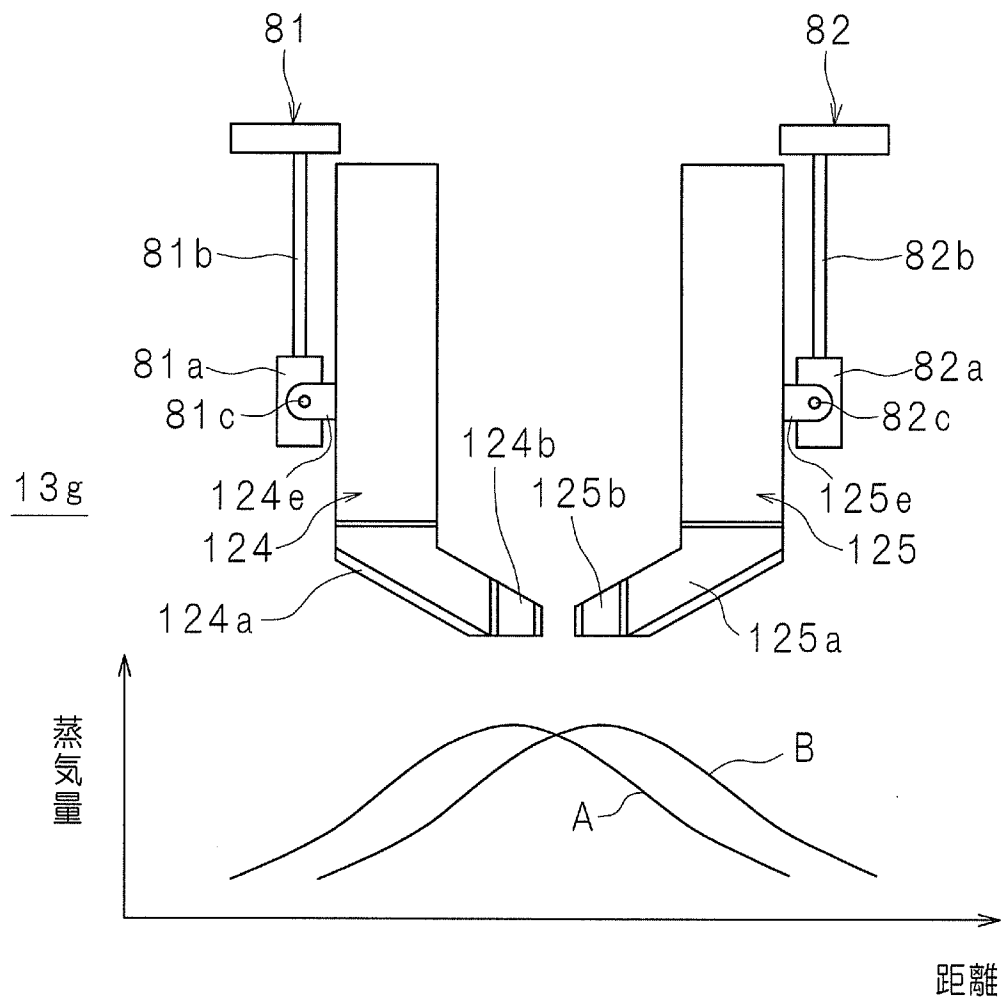
[図25]

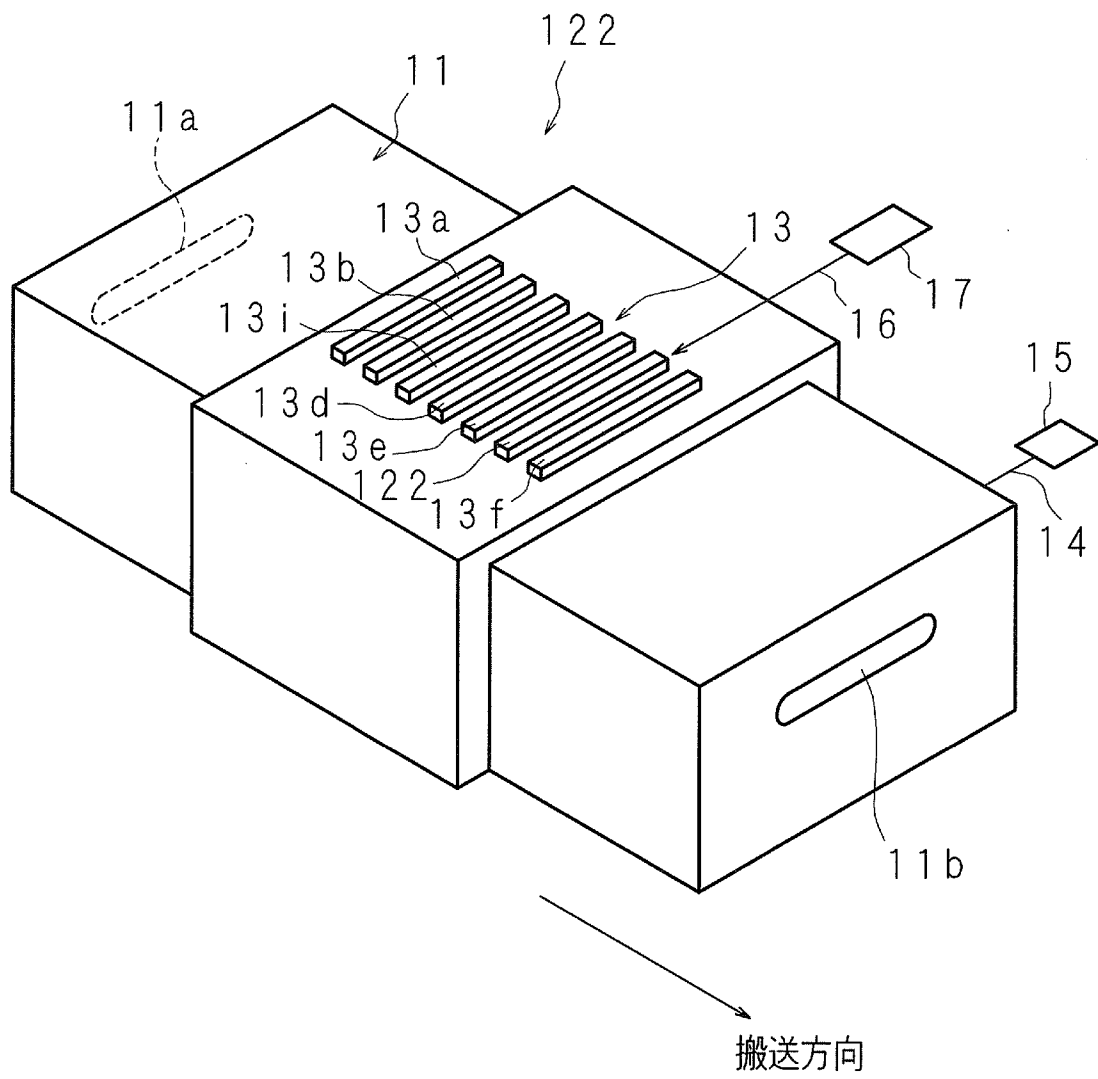


[図26]

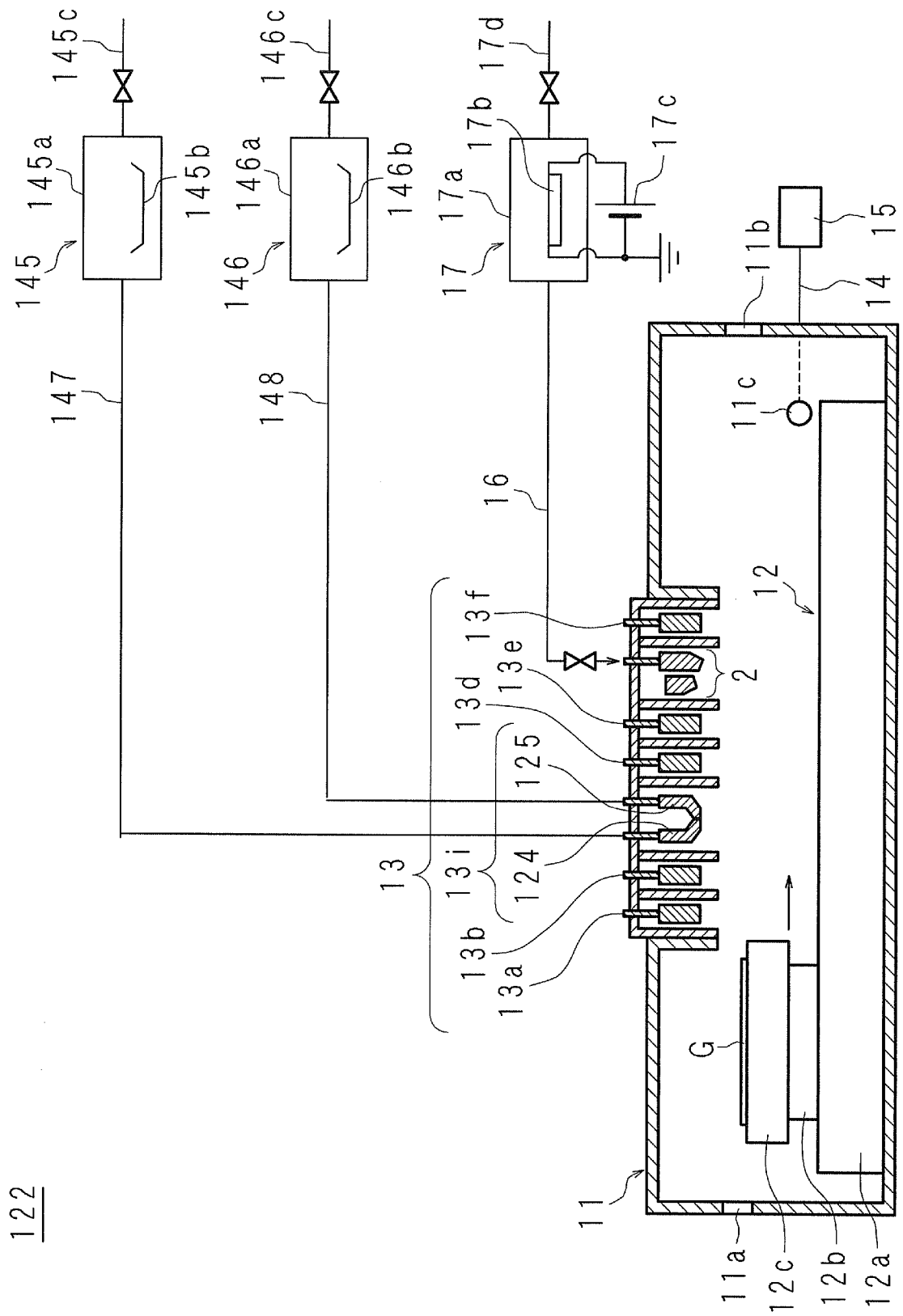


[図27]

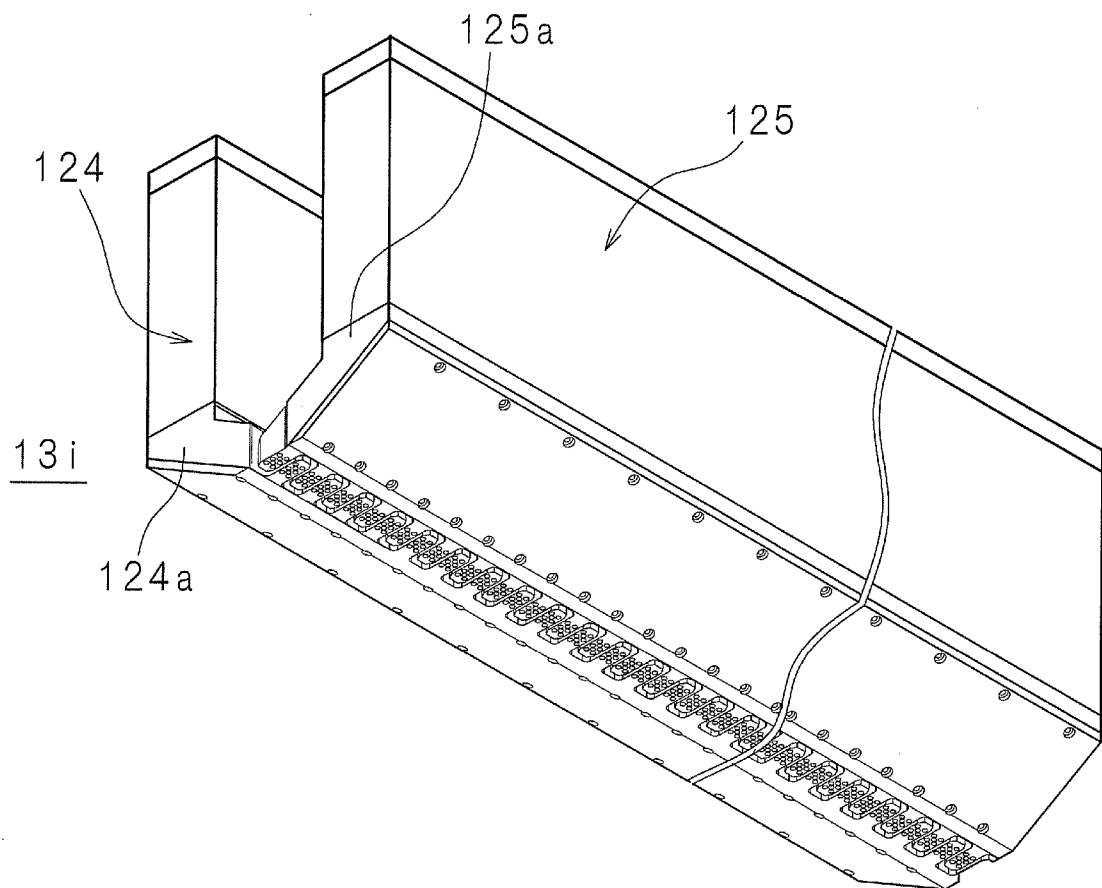




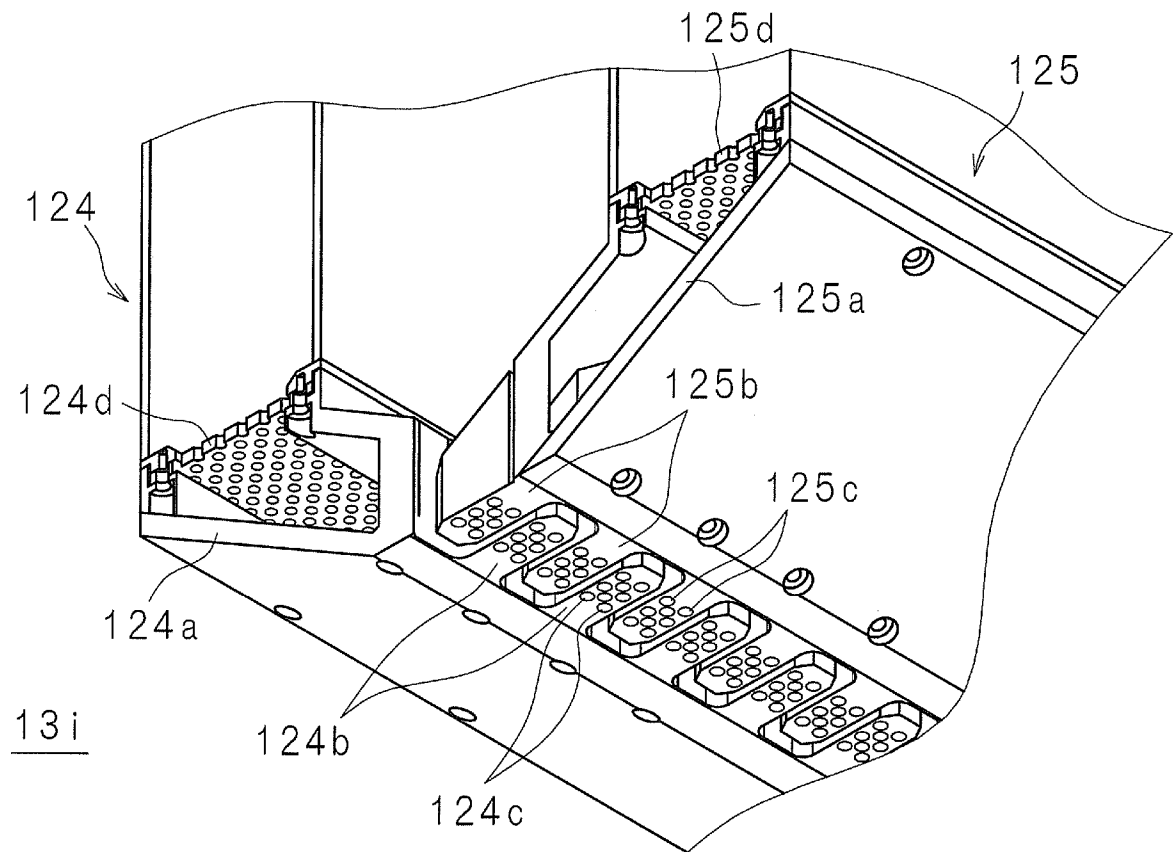
[図29]



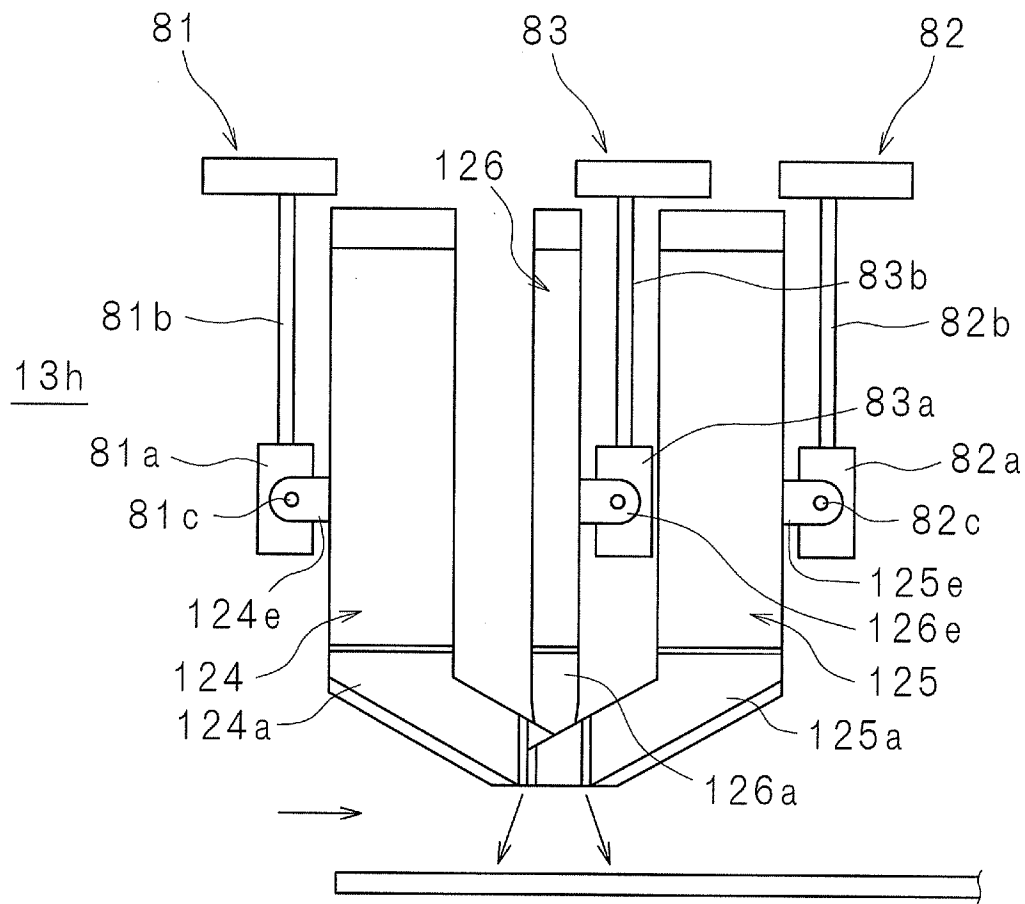
[図30]



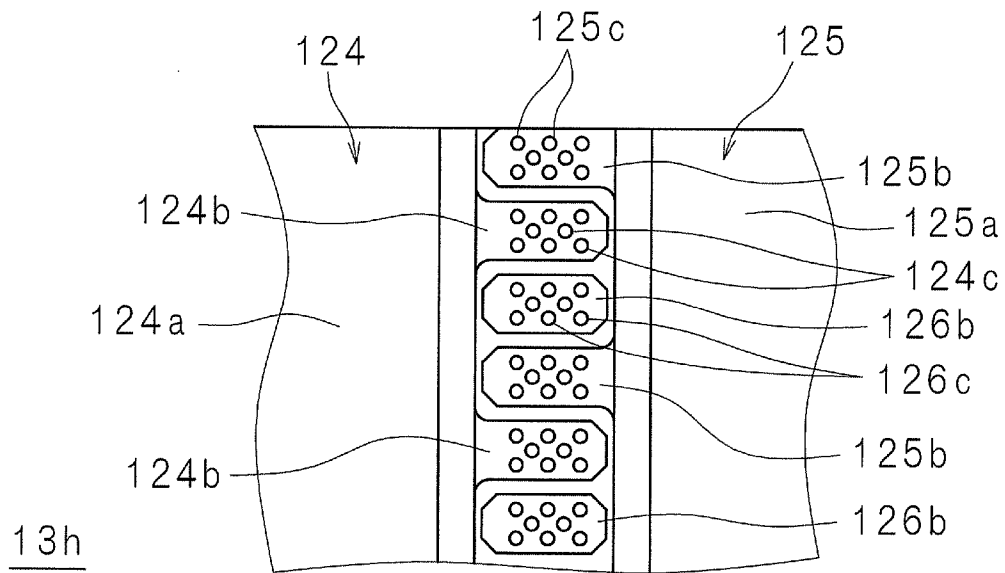
[図31]



[図33]



[図34]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/054591

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C23C14/06(2006.01)i, C23C14/24(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i

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)

C23C14/00-14/58, H01L51/50

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	1996-2012
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2012	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2012

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2010-121215 A (Semiconductor Energy Laboratory Co., Ltd.), 03 June 2010 (03.06.2010), claims; example 3 (Family: none)	1, 2, 6-8, 10, 14
X	JP 2011-017059 A (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.), 27 January 2011 (27.01.2011), claims; examples & US 2011/0005462 A1 & EP 2284292 A1	1, 3, 10, 14
X	JP 2000-160328 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 13 June 2000 (13.06.2000), claims; example 3; drawings (Family: none)	1, 4, 5, 9-15

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ 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 application or patent 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

“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
07 May, 2012 (07.05.12)

Date of mailing of the international search report
22 May, 2012 (22.05.12)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/054591

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2010-248629 A (Semiconductor Energy Laboratory Co., Ltd.), 04 November 2010 (04.11.2010), entire text & US 2010/0247747 A1 & KR 10-2010-0108283 A & TW 201102447 A	1-15
A	JP 2007-070687 A (Semiconductor Energy Laboratory Co., Ltd.), 22 March 2007 (22.03.2007), entire text & US 2007/0054051 A1 & CN 1928149 A & CN 102199745 A	1-15

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C23C14/06(2006.01)i, C23C14/24(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i

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 (I P C))

Int.Cl. C23C14/00-14/58, H01L51/50

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 2 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 2 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 2 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 請求項の番号
X	JP 2010-121215 A (株式会社半導体エネルギー研究所) 2010.06.03, 特許請求の範囲、実施例 3 (ファミリーなし)	1, 2, 6-8, 10, 14
X	JP 2011-017059 A (三菱重工業株式会社) 2011.01.27, 特許請求の範囲、実施例 & US 2011/0005462 A1 & EP 2284292 A1	1, 3, 10, 14
X	JP 2000-160328 A (出光興産株式会社) 2000.06.13, 特許請求の範囲、実施例 3、図面 (ファミリーなし)	1, 4, 5, 9-15

☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「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

の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

国際調査を完了した日

0 7 . 0 5 . 2 0 1 2

国際調査報告の発送日

2 2 . 0 5 . 2 0 1 2

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

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)

亀代 陽子

4 G

3 9 4 6

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 1 6

C (続き) . 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 請求項の番号
A	JP 2010-248629 A (株式会社半導体エネルギー研究所) 2010. 11. 04, 全文 & US 2010/0247747 A1 & KR 10-2010-0108283 A & TW 201102447 A	1-15
A	JP 2007-070687 A (株式会社半導体エネルギー研究所) 2007. 03. 22, 全文 & US 2007/0054051 A1 & CN 1928149 A & CN 102199745 A	1-15