

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2014-199789

(P2014-199789A)

(43) 公開日 平成26年10月23日(2014.10.23)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
H05B 33/10 (2006.01)	H05B 33/10	3K107
H01L 51/50 (2006.01)	H05B 33/14 A	

審査請求 未請求 請求項の数 26 O L (全 52 頁)

(21) 出願番号 特願2013-96132 (P2013-96132) (22) 出願日 平成25年5月1日 (2013.5.1) (31) 優先権主張番号 特願2012-105543 (P2012-105543) (32) 優先日 平成24年5月4日 (2012.5.4) (33) 優先権主張国 日本国 (JP) (31) 優先権主張番号 特願2012-105544 (P2012-105544) (32) 優先日 平成24年5月4日 (2012.5.4) (33) 優先権主張国 日本国 (JP) (31) 優先権主張番号 特願2013-53385 (P2013-53385) (32) 優先日 平成25年3月15日 (2013.3.15) (33) 優先権主張国 日本国 (JP)	(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 (72) 発明者 横山 浩平 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 (72) 発明者 池田 寿雄 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 (72) 発明者 平佐 真一 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 (72) 発明者 神保 安弘 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 最終頁に続く
---	---

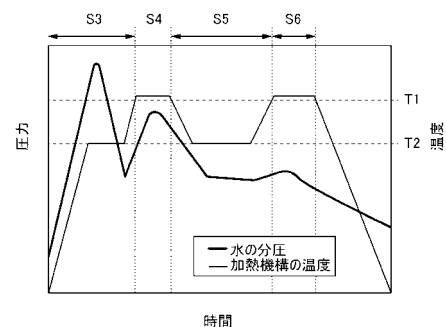
(54) 【発明の名称】 発光素子の作製方法、及び成膜装置

(57) 【要約】

【課題】信頼性の高い有機EL素子を提供する。信頼性の高い有機EL素子を作製できる成膜装置を提供する。

【解決手段】減圧下の成膜室内で、成膜材料を加熱し気化させる第1の工程と、成膜室内で、EL層に含まれる層を成膜する第2の工程と、を、排気、及び質量分析計での成膜室内の水の分圧の測定をしながら行い、第2の工程の開始時、水の分圧が、第1の工程における水の分圧の平均値より小さい値である。または、成膜装置が備える成膜室は、成膜材料室を有し、排気機構が接続されている。該成膜材料室は、仕切り弁によって成膜室と仕切られ、加熱機構を備えた成膜材料保持部を有し、質量分析計及び排気機構が接続されている。成膜材料室内で予め成膜材料に含まれる水分等の不純物を十分に除去できるため、成膜室内に成膜材料由来の水分が拡散することを抑制できる。

【選択図】図1



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

一対の電極間に発光性の有機化合物を含む層を有する発光素子の作製方法であって、
減圧下の成膜室内で、成膜材料を加熱し気化させる第 1 の工程と、
前記成膜室内で、前記発光性の有機化合物を含む層に含まれる層を成膜する第 2 の工程と、
を、排気、及び質量分析計での前記成膜室内の水の分圧の測定をしながら行い、
前記第 2 の工程の開始時、前記水の分圧が、前記第 1 の工程における前記水の分圧の平均値より小さい値である発光素子の作製方法。

【請求項 2】

一対の電極間に発光性の有機化合物を含む層を有する発光素子を基板上に作製する方法であって、
減圧下の成膜室内で、成膜材料を加熱し気化させる第 1 の工程と、
前記成膜室内に前記基板を搬入した後、前記成膜室内で、前記発光性の有機化合物を含む層に含まれる層を成膜する第 2 の工程と、
を、排気、及び質量分析計での前記成膜室内の水の分圧の測定をしながら行う発光素子の作製方法。

【請求項 3】

請求項 1 又は 2 において、
前記第 2 の工程における前記水の分圧の平均値は、前記第 1 の工程における前記水の分圧の平均値より小さい発光素子の作製方法。

【請求項 4】

請求項 1 乃至 3 のいずれか一項において、
前記第 1 の工程における加熱温度は、前記第 2 の工程における加熱温度以上である発光素子の作製方法。

【請求項 5】

請求項 1 乃至 4 のいずれか一項において、
前記第 1 の工程の前に、減圧下の前記成膜室内で、前記成膜材料が気化する温度未満で前記成膜材料を加熱する工程を有する発光素子の作製方法。

【請求項 6】

請求項 1 乃至 5 のいずれか一項において、
前記第 1 の工程と前記第 2 の工程の間に、前記成膜材料を加熱しない期間、又は前記成膜材料が気化する温度未満で前記成膜材料を加熱する期間を有する発光素子の作製方法。

【請求項 7】

請求項 1 乃至 6 のいずれか一項において、
前記成膜室の壁を加熱しながら前記第 1 の工程を行う発光素子の作製方法。

【請求項 8】

請求項 1 乃至 7 のいずれか一項において、
前記成膜室の壁を冷却しながら前記第 2 の工程を行う発光素子の作製方法。

【請求項 9】

請求項 1 乃至 8 のいずれか一項において、
前記第 2 の工程を、水の分圧が 1×10^{-4} Pa 以下の前記成膜室内で行う発光素子の作製方法。

【請求項 10】

請求項 1 乃至 9 のいずれか一項において、
前記第 2 の工程の開始時、酸素原子の分圧が、前記第 1 の工程における酸素原子の分圧の平均値より小さい値である発光素子の作製方法。

【請求項 11】

請求項 1 乃至 10 のいずれか一項において、
前記第 2 の工程を、酸素原子の分圧が 2×10^{-6} Pa 以下の前記成膜室内で行う発光

10

20

30

40

50

素子の作製方法。

【請求項 1 2】

請求項 1 乃至 1 1 のいずれか一項において、
前記質量分析計は、四重極質量分析計である発光素子の作製方法。

【請求項 1 3】

加熱機構を備えた成膜材料保持部を有し、排気機構及び質量分析計と接続する成膜室と、
前記質量分析計で測定した前記成膜室の水の分圧の値に基づき、前記加熱機構を制御する制御部と、を有する成膜装置。

【請求項 1 4】

加熱機構を備えた成膜材料保持部、壁面を加熱する機構、及び前記壁面を冷却する機構を備え、排気機構及び質量分析計と接続する成膜室を有する成膜装置。

【請求項 1 5】

請求項 1 3 又は 1 4 において、
前記質量分析計は、四重極質量分析計である成膜装置。

【請求項 1 6】

第 1 の排気機構と接続し、成膜材料室を有する成膜室を備え、
前記成膜材料室は、仕切り弁によって前記成膜室と仕切られ、質量分析計及び第 2 の排気機構と接続し、加熱機構を備える成膜材料保持部を有する成膜装置。

【請求項 1 7】

請求項 1 6 において、
前記成膜材料室が、前記成膜材料室の内壁を加熱する機構を備える成膜装置。

【請求項 1 8】

請求項 1 6 又は 1 7 において、
前記成膜材料室が、前記成膜材料室の内壁を冷却する機構を備える成膜装置。

【請求項 1 9】

請求項 1 6 乃至 1 8 のいずれか一項において、
前記成膜室が、前記成膜室の内壁を加熱する機構を備える成膜装置。

【請求項 2 0】

請求項 1 6 乃至 1 9 のいずれか一項において、
前記成膜室が、前記成膜室の内壁を冷却する機構を備える成膜装置。

【請求項 2 1】

請求項 1 6 乃至 2 0 のいずれか一項において、
前記成膜室が、質量分析計と接続する成膜装置。

【請求項 2 2】

請求項 2 1 において、
前記成膜室と接続する質量分析計は、四重極質量分析計である成膜装置。

【請求項 2 3】

請求項 1 6 乃至 2 2 のいずれか一項において、
前記成膜材料室と接続する質量分析計は、四重極質量分析計である成膜装置。

【請求項 2 4】

請求項 1 6 乃至 2 3 のいずれか一項に記載の成膜装置を用いて、一対の電極間に発光性の有機化合物を含む層を有する発光素子の作製方法であって、

前記仕切り弁が閉じられ、減圧下の前記成膜室と隔てられた減圧下の前記成膜材料室内で、前記加熱機構を用いて、前記成膜材料保持部に保持された成膜材料を加熱する第 1 の工程と、前記仕切り弁を開く第 2 の工程と、を、前記第 1 の排気機構及び前記第 2 の排気機構による排気、並びに、前記質量分析計での前記成膜材料室内の水の分圧の測定をしながら行った後、

前記成膜材料を用いて、前記成膜室内に配置された基板上に、前記発光性の有機化合物を含む層に含まれる層を成膜し、

10

20

30

40

50

前記第 2 の工程の開始時、前記成膜材料室内の水の分圧が、前記第 1 の工程における水の分圧の平均値より小さい値である発光素子の作製方法。

【請求項 25】

請求項 16 乃至 23 のいずれか一項に記載の成膜装置を用いて、一对の電極間に発光性の有機化合物を含む層を有する発光素子の作製方法であって、

前記仕切り弁が閉じられ、減圧下の前記成膜室と隔てられた減圧下の前記成膜材料室内で、前記加熱機構を用いて、前記成膜材料保持部に保持された成膜材料を加熱する第 1 の工程と、前記仕切り弁を開く第 2 の工程と、を、前記第 1 の排気機構及び前記第 2 の排気機構による排気、並びに、前記質量分析計での前記成膜材料室内の水の分圧の測定をしながら行った後、

前記成膜材料を用いて、前記成膜室内に配置された基板上に、前記発光性の有機化合物を含む層に含まれる層を成膜し、

前記第 2 の工程の開始時、前記成膜材料室内の水の分圧が、 1×10^{-4} Pa 以下である発光素子の作製方法。

【請求項 26】

請求項 24 又は 25 において、

前記第 1 の工程における前記加熱機構の温度は、前記成膜材料が気化する温度以上である発光素子の作製方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

有機エレクトロルミネッセンス (Electroluminescence、以下 EL とも記す) 現象を利用した発光素子 (以下、有機 EL 素子とも記す) の作製方法に関する。また、有機 EL 素子の作製に用いられる成膜装置に関する。

【背景技術】

【0002】

有機 EL 素子の研究開発が盛んに行われている。有機 EL 素子の基本的な構成は、一对の電極間に発光性の有機化合物を含む層 (EL 層) を挟んだものであり、薄型軽量化できる、入力信号に高速に応答できる、直流低電圧駆動が可能であるなどの特性から、次世代のフラットパネルディスプレイ素子として注目されている。また、有機 EL 素子を用いたディスプレイは、コントラストや画質に優れ、視野角が広いという特徴も有している。さらに、有機 EL 素子は面光源であるため、液晶ディスプレイのバックライトや照明等の光源としての応用も考えられている。

【0003】

有機 EL 素子に用いる有機化合物や金属材料は、水分や酸素等の不純物と反応しやすく、容易に劣化することが知られている。有機化合物又は金属材料と、該不純物とが反応することで、有機 EL 素子の寿命は大幅に低下してしまう。

【0004】

そのため、有機 EL 素子を形成する場合、下部電極の表面の水分等を除去し、その上に EL 層及び上部電極を形成し、さらに封止するまでのプロセスを、大気開放せずに行う技術が要求される。例えば、EL 層の形成、上部電極の形成、及び封止を 1 台の装置で行うことができるマルチチャンバー方式やインライン方式の薄膜形成装置が知られている (特許文献 1)。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【特許文献 1】特開 2001-102170 号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

10

20

30

40

50

ところで、有機ＥＬ素子に含まれる蒸着膜の形成を行う場合、成膜室の減圧や成膜材料の加熱等により、成膜材料に含まれる水分等の不純物が成膜室内に排出される。蒸着膜がこれら不純物の影響を受けると、作製した有機ＥＬ素子の信頼性が低くなる（寿命が短くなる）という問題がある。

【０００７】

本発明の一態様は、信頼性の高い有機ＥＬ素子を提供することを目的の一とする。また、本発明の一態様は、信頼性の高い有機ＥＬ素子を作製できる成膜装置を提供することを目的の一とする。

【課題を解決するための手段】

【０００８】

本発明の一態様は、一对の電極間に発光性の有機化合物を含む層（ＥＬ層）を有する発光素子（有機ＥＬ素子）の作製方法であって、成膜室に配置された成膜材料に含まれる水分を成膜室の外に排出する第１の工程と、該成膜材料を用いてＥＬ層に含まれる層を成膜する第２の工程とを、質量分析計を用いて成膜室の水の分圧を測定しながら行う発光素子の作製方法である。

【０００９】

成膜材料は、加熱温度によっては、第１の工程で十分な時間、加熱を行っても、成膜材料に含まれる水分が十分に放出されない場合がある。この場合、第２の工程で、該加熱温度よりも高い温度で成膜材料を気化させて成膜を行うときに、成膜材料中に残っていた水分が成膜材料から放出されてしまう。したがって、本発明の一態様では、第１の工程で、成膜材料を加熱し一部を気化させる。これにより、成膜材料に含まれる水分を十分に除去することができる。また、第２の工程で、成膜材料を気化させても、該成膜材料から放出される水分量は少ない。

【００１０】

また、質量分析計を用いて水の分圧を測定しながら、成膜材料に含まれる水分を成膜室の外に排出することで、成膜材料及び成膜室から水分が十分に除去されたことを確認した後に、成膜を行うことができる。したがって、成膜する層に水分が含まれることを抑制でき、信頼性の高い有機ＥＬ素子を作製できる。

【００１１】

本発明の一態様は、一对の電極間に発光性の有機化合物を含む層を有する発光素子を基板上に作製する方法であって、減圧下の成膜室内で、成膜材料を加熱し気化させる第１の工程と、成膜室内に基板を搬入した後、成膜室内で、発光性の有機化合物を含む層に含まれる層を成膜する第２の工程と、を、排気、及び質量分析計での前記成膜室内の水の分圧の測定をしながら行う発光素子の作製方法である。

【００１２】

また、本発明の一態様は、一对の電極間に発光性の有機化合物を含む層を有する発光素子の作製方法であって、減圧下の成膜室内で、成膜材料を加熱し気化させる第１の工程と、成膜室内で、発光性の有機化合物を含む層に含まれる層を成膜する第２の工程と、を、排気、及び質量分析計での成膜室内の水の分圧の測定をしながら行い、第２の工程の開始時、水の分圧が、第１の工程における水の分圧の平均値より小さい値である発光素子の作製方法である。

【００１３】

なお、本明細書等において、気化は、液体が気体になる現象（蒸発や沸騰）だけでなく、固体が直接気体になる現象（昇華）も含む。

【００１４】

また、本明細書等において、分圧の値は、質量分析計で測定した値である。

【００１５】

第１の工程を行うことで、成膜材料から水分が成膜室内に放出され、成膜室内の水の分圧が上昇する。その後、成膜材料に含まれる水分量が減少することで、成膜材料からの水分の放出量が次第に減少し、かつ、成膜室の外へ水分が排出されることで、成膜室内の水の

10

20

30

40

50

分圧が低下する。そして、成膜室内の水の分圧が第１の工程における水の分圧の平均値より小さい値となったら、第２の工程として、成膜材料を加熱し、ＥＬ層に含まれる層を成膜する。

【００１６】

本発明の一態様では、質量分析計を用いて成膜室内の水の分圧をリアルタイムで確認できる。したがって、水の分圧が十分に低くなった成膜室内で、有機ＥＬ素子を構成する膜を形成できる。

【００１７】

上記有機ＥＬ素子の作製方法において、第２の工程における水の分圧の平均値は、第１の工程における水の分圧の平均値より小さいことが好ましい。

10

【００１８】

上記有機ＥＬ素子の作製方法において、第１の工程における加熱温度は、第２の工程における加熱温度以上であることが好ましい。

【００１９】

上記有機ＥＬ素子の作製方法において、第１の工程の前に、減圧下の成膜室内で、成膜材料が気化する温度未満で成膜材料を加熱する工程を有することが好ましい。

【００２０】

特に、減圧下の成膜室内で、成膜材料が気化しない温度で成膜材料を加熱し、成膜室内の水の分圧の値が極大値を示した後に、第１の工程を開始することが好ましい。

20

【００２１】

第１の工程では、成膜材料が気化する温度以上の温度で加熱するため、成膜材料が気化してしまい無駄になってしまう。また、長時間の加熱、高温での加熱により、成膜材料は劣化してしまう場合がある。

【００２２】

したがって、本発明の一態様の発光素子の作製方法では、成膜材料が気化しない温度で成膜材料を加熱し、水分を除去した後、第１の工程を行う（成膜材料が気化する温度以上で成膜材料を加熱する）ことで、先の加熱で除去できなかった水分を成膜材料から除去する。これにより、第１の工程で気化される成膜材料の量を低減し、成膜材料の消費を抑制できる。また、長時間、高温で加熱することによる成膜材料の劣化を抑制できる。

【００２３】

また、上記有機ＥＬ素子の作製方法において、第１の工程と第２の工程の間に、成膜材料を加熱しない期間、又は成膜材料が気化する温度未満で成膜材料を加熱する期間を有することが好ましい。

30

【００２４】

特に、第１の工程の間で、成膜室内の水の分圧の値が極大値を示した後に、成膜材料を加熱しない期間、又は成膜材料が気化する温度未満で成膜材料を加熱する期間を有することが好ましい。

【００２５】

加熱を休止する、又は加熱温度を成膜材料が気化しない温度にすることで、成膜材料の気化を休止する。加熱を休止しても（又は加熱温度を下げて）成膜材料は高温状態であるため、引き続き、成膜材料に含まれる水分等の不純物は除去される。また、成膜材料から除去された水分等の不純物が成膜室の外に排出され続ける。これにより、第１の工程で気化される成膜材料の量を低減し、成膜材料の消費を抑制できる。また、長時間、高温で加熱することによる成膜材料の劣化を抑制できる。

40

【００２６】

また、上記有機ＥＬ素子の作製方法において、第１の工程中、成膜材料を気化して、基板に蒸着膜を形成することが好ましい。該基板に形成された蒸着膜を回収することで、成膜材料として再利用が可能である。これにより、成膜材料の節約ができるため、好ましい。

【００２７】

また、上記有機ＥＬ素子の作製方法において、成膜室の壁を加熱しながら第１の工程を行

50

うことが好ましい。さらに、成膜室の壁を第１の工程を行う前に加熱することが好ましい。

【００２８】

成膜室の壁の温度を高くすることで、水分等の不純物が壁から脱離しやすくなり、該不純物を成膜室の外に排出しやすくなるため好ましい。

【００２９】

また、上記有機ＥＬ素子の作製方法において、成膜室の壁を第２の工程を行う前に冷却することが好ましい。さらに、成膜室の壁を冷却しながら第２の工程を行うことが好ましい。

【００３０】

成膜室の壁の温度を低くすることで、水分等の不純物が壁から脱離しにくくなる。壁に付着した水分等の不純物が壁から脱離し、成膜中の膜に混入することを抑制できるため、好ましい。

【００３１】

また、上記有機ＥＬ素子の作製方法において、第２の工程は、水 ($^{18}\text{H}_2\text{O}$) の分圧が $1 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ 以下の成膜室内で行うことが好ましい。

【００３２】

ここで、リチウム等の反応性が高い材料を含む層は、水分等の不純物と反応しやすい。また、発光層に不純物が含まれると、発光素子の特性に与える影響が顕著になりやすい。したがって、これらの層の作製において、第２の工程は、水の分圧が $2 \times 10^{-5} \text{ Pa}$ 以下の成膜室内で行うことが好ましく、 $1 \times 10^{-5} \text{ Pa}$ 以下の成膜室内で行うことが特に好ましい。

【００３３】

また、酸素も、有機ＥＬ素子の信頼性に影響を与える不純物である。したがって、第２の工程の開始時、酸素原子 (^{16}O) の分圧が、第１の工程における酸素原子の分圧の平均値より小さい値であることが好ましい。また、第２の工程は、酸素原子の分圧が $2 \times 10^{-6} \text{ Pa}$ 以下の成膜室内で行うことが好ましい。

【００３４】

上記有機ＥＬ素子の作製方法において、質量分析計は、四重極質量分析計であることが好ましい。

【００３５】

また、本発明の一態様は、加熱機構を備えた成膜材料保持部を有し、排気機構及び質量分析計と接続する成膜室と、質量分析計で測定した成膜室の水の分圧の値に基づき、加熱機構を制御する制御部と、を有する成膜装置である。

【００３６】

また、本発明の一態様は、加熱機構を備えた成膜材料保持部、壁面を加熱する機構、及び壁面を冷却する機構を備え、排気機構及び質量分析計と接続する成膜室と、を有する成膜装置である。

【００３７】

上記成膜装置において、質量分析計は、四重極質量分析計であることが好ましい。

【００３８】

また、本発明の一態様の成膜装置が備える成膜室は、成膜材料室を有し、排気機構が接続されている。該成膜材料室は、仕切り弁によって成膜室と仕切られ、加熱機構を備えた成膜材料保持部を有し、質量分析計及び排気機構が接続されている。

【００３９】

仕切り弁を閉じた状態で、質量分析計を用いて成膜材料室内の水 ($^{18}\text{H}_2\text{O}$) の分圧を測定しながら、加熱機構を用いて成膜材料を加熱する。加熱された成膜材料からは、水分等の不純物が放出される。排気機構を用いて該不純物を成膜材料室の外に排出する。そして、成膜材料室内の水の分圧が十分に低いことを確認した後に、仕切り弁を開ける。成膜材料室内に含まれる水分量は十分に低減されているため、仕切り弁を開けた後に、成膜室

10

20

30

40

50

内に水分等の不純物が拡散することを抑制できる。

【0040】

仕切り弁を開けた状態で、成膜材料を用いて、成膜室に搬入された基板に蒸着膜を形成する。成膜材料は水分等の不純物が十分に除去されているため、蒸着膜に含まれる水分量を低減することができる。また、成膜材料室内に含まれる水分量が十分に低減されてから、仕切り弁を開けるため、成膜室内には、成膜材料由来の水分がほとんど含まれていない。したがって、該成膜室で成膜された蒸着膜に水分が含まれることを抑制でき、信頼性の高い有機EL素子を作製できる。

【0041】

本発明の一態様は、第1の排気機構と接続し、成膜材料室を有する成膜室を備え、成膜材料室は、仕切り弁によって成膜室と仕切られ、質量分析計及び第2の排気機構と接続し、加熱機構を備える成膜材料保持部を有する成膜装置である。

10

【0042】

上記成膜装置において、成膜材料室は、成膜材料室の内壁を加熱する機構を備えることが好ましい。また、上記成膜装置において、成膜材料室は、成膜材料室の内壁を冷却する機構を備えることが好ましい。また、上記成膜装置において、成膜室は、成膜室の内壁を加熱する機構を備えることが好ましい。また、上記成膜装置において、成膜室は、成膜室の内壁を冷却する機構を備えることが好ましい。また、上記成膜装置において、成膜室は、質量分析計と接続することが好ましい。また、上記成膜装置において、成膜材料室に接続する質量分析計は、四重極質量分析計であることが好ましい。また、上記成膜装置において、成膜室に接続する質量分析計は、四重極質量分析計であることが好ましい。

20

【0043】

本発明の一態様は、上記成膜装置を用いた、一対の電極間に発光性の有機化合物を含む層を有する発光素子の作製方法であって、仕切り弁が閉じられ、減圧下の成膜室と隔てられた減圧下の成膜材料室内で、加熱機構を用いて、成膜材料保持部に保持された成膜材料を加熱する第1の工程と、仕切り弁を開く第2の工程と、を、第1の排気機構及び第2の排気機構による排気、並びに、質量分析計での成膜材料室内の水の分圧の測定をしながら行った後、該成膜材料を用いて、成膜室内に配置された基板上に発光性の有機化合物を含む層に含まれる層の成膜を行い、第2の工程の開始時、成膜材料室内の水の分圧が、第1の工程における水の分圧の平均値より小さい値である発光素子の作製方法である。

30

【0044】

本発明の一態様は、上記成膜装置を用いた、一対の電極間に発光性の有機化合物を含む層を有する発光素子の作製方法であって、仕切り弁が閉じられ、減圧下の成膜室と隔てられた減圧下の成膜材料室内で、加熱機構を用いて、成膜材料保持部に保持された成膜材料を加熱する第1の工程と、仕切り弁を開く第2の工程と、を、第1の排気機構及び第2の排気機構による排気、並びに、質量分析計での成膜材料室内の水の分圧の測定をしながら行った後、該成膜材料を用いて、成膜室内に配置された基板上に発光性の有機化合物を含む層に含まれる層の成膜を行い、第2の工程の開始時、成膜材料室内の水の分圧が、 1×10^{-4} Pa以下である発光素子の作製方法である。

40

【0045】

上記発光素子の作製方法において、第1の工程における加熱機構の温度は、成膜材料が気化する温度以上であることが好ましい。

【発明の効果】

【0046】

本発明の一態様では、質量分析計を用いて水の分圧を測定しながら、成膜材料に含まれる水分を成膜室の外に排出することで、成膜材料及び成膜室から水分が十分に除去されたことを確認した後に、成膜を行う。したがって、成膜する層に水分が含まれることを抑制でき、信頼性の高い有機EL素子を提供できる。

【0047】

また、本発明の一態様の成膜装置が備える成膜室では、成膜材料室内で予め成膜材料に含

50

まれる水分等の不純物を十分に除去できるため、成膜室内に成膜材料由来の水分が拡散することを抑制できる。そして、該成膜室で成膜された蒸着膜に水分が含まれることを抑制でき、信頼性の高い有機ＥＬ素子を作製できる。

【図面の簡単な説明】

【００４８】

【図１】成膜方法の一例を示す図。

【図２】成膜装置の一例を示す図。

【図３】成膜室の一例を示す図。

【図４】発光素子の一例を示す図。

【図５】電子機器の一例を示す図。

10

【図６】照明装置の一例を示す図。

【図７】実施例の発光素子を示す図。

【図８】実施例１に係る水の分圧を示す図。

【図９】実施例１に係る酸素原子の分圧を示す図。

【図１０】実施例１に係る分圧の比を示す図。

【図１１】実施例１の発光素子の輝度－電流効率特性及び電圧－電流特性を示す図。

【図１２】実施例１の発光素子の発光スペクトル及び信頼性試験の結果を示す図。

【図１３】実施例２に係る水の分圧を示す図。

【図１４】実施例２に係る水の分圧を示す図。

【図１５】実施例２の発光素子の輝度－電流効率特性及び電圧－電流特性を示す図。

20

【図１６】実施例２の発光素子の発光スペクトルを示す図。

【図１７】実施例２の発光素子の信頼性試験の結果を示す図。

【図１８】実施例３に係る水の分圧を示す図。

【図１９】実施例３に係る水の分圧を示す図。

【図２０】実施例３の発光素子の輝度－電流効率特性及び電圧－電流特性を示す図。

【図２１】実施例３の発光素子の発光スペクトルを示す図。

【図２２】実施例３の発光素子の信頼性試験の結果を示す図。

【図２３】実施例４に係る水の分圧を示す図。

【図２４】実施例４に係る水の分圧を示す図。

【図２５】実施例４の発光素子の輝度－電流効率特性及び電圧－電流特性を示す図。

30

【図２６】実施例４の発光素子の発光スペクトルを示す図。

【図２７】実施例４の発光素子の信頼性試験の結果を示す図。

【図２８】成膜室の一例を示す図。

【図２９】成膜方法の一例を示す図。

【発明を実施するための形態】

【００４９】

実施の形態について、図面を用いて詳細に説明する。但し、本発明は以下の説明に限定されず、本発明の趣旨及びその範囲から逸脱することなくその形態及び詳細を様々に変更し得ることは当業者であれば容易に理解される。従って、本発明は以下に示す実施の形態の記載内容に限定して解釈されるものではない。なお、以下に説明する発明の構成において、同一部分又は同様な機能を有する部分には同一の符号を異なる図面間で共通して用い、その繰り返しの説明は省略する。

40

【００５０】

（実施の形態１）

本実施の形態では、本発明の一態様の成膜装置と、本発明の一態様の発光素子の作製方法について図１乃至図３を用いて説明する。

【００５１】

本発明の一態様の発光素子の作製方法では、減圧下の成膜室内で、成膜材料を加熱し気化させる第１の工程と、該成膜室内で、ＥＬ層に含まれる層を成膜する第２の工程と、を、排気、及び質量分析計での該成膜室内の水の分圧の測定をしながら行う。かつ、該第２の

50

工程の開始時、水の分圧が、該第 1 の工程における水の分圧の平均値より小さい値である。

【0052】

成膜材料は、加熱温度によっては、第 1 の工程で十分な時間、加熱を行っても、成膜材料に含まれる水分が十分に放出されない場合がある。この場合、第 2 の工程で、該加熱温度よりも高い温度で成膜材料を気化させて成膜を行うときに、成膜材料中に残っていた水分が成膜材料から放出されてしまう。したがって、本発明の一態様の発光素子の作製方法では、第 1 の工程で、成膜材料を加熱し一部を気化させる。これにより、成膜材料に含まれる水分は、成膜室内に、さらには、成膜室の外に排出される。また、第 2 の工程で、成膜材料を気化させても、該成膜材料から放出される水分量は少ない。

10

【0053】

そして、成膜室内の水の分圧が第 1 の工程における水の分圧の平均値より小さい値になってから、第 2 の工程として、成膜材料を加熱し、E L 層に含まれる層を成膜する。これにより、成膜する層に水分が含まれることを抑制でき、信頼性の高い発光素子を作製できる。

【0054】

成膜装置

まず、本発明の一態様の発光素子の作製方法を適用して発光素子を作製することができる成膜装置について説明する。

【0055】

例えば、インライン方式の成膜装置やマルチチャンバー方式の成膜装置を用いて、本発明の一態様の発光素子の作製方法を適用した発光素子を作製することができる。これら成膜装置において、少なくとも 1 つの成膜室が、質量分析計及び排気機構と接続し、かつ、成膜材料を加熱するための加熱機構を有する構成であれば、本発明の一態様の発光素子の作製方法を適用することができる。

20

【0056】

本発明の一態様の成膜装置を図 2 (A) (B) に示す。

【0057】

図 2 (A) は、インライン方式の成膜装置である。図 2 (A) に示す成膜装置は、ロードロック室 101、前処理室 102、複数の成膜室（成膜室 103 a、成膜室 103 b、成膜室 103 c、成膜室 103 d、成膜室 103 e、及び成膜室 103 f）、受け渡し室 104、後処理室 105、並びにロードロック室 106 を備える。

30

【0058】

各室は、それぞれ、内部の圧力を制御できる排気機構を備えている。また、各室は、それぞれ、内部の雰囲気調整できるガス導入機構を備えていても良い。

【0059】

排気機構としては、各室の使用用途に応じて適宜排気装置を選定すれば良く、例えば、クライオポンプ、スパッタイオンポンプ、チタンサブレーションポンプ等の、吸着手段を有するポンプを備えた排気機構や、ターボ分子ポンプにコールドトラップを備えた排気機構等が挙げられる。

40

【0060】

ロードロック室 101 は排気機構と接続している。大気圧下のロードロック室 101 に基板が搬入された後、排気機構を用いて室内を減圧する。

【0061】

前処理室 102 では、基板に付着している不純物を除去するために、加熱処理等を行うことができる。

【0062】

複数の成膜室では、発光素子を構成する層を成膜することができる。本発明の一態様の成膜装置において、少なくとも 1 つの成膜室が、質量分析計と接続し、かつ、成膜材料を加熱するための加熱機構を有する構成であれば良く、また、全ての成膜室に該構成が適用さ

50

れていても良い。成膜室は、それぞれ、相互間に緩衝部を備え、緩衝部を介して隣接する成膜室と接続されている。緩衝部を設けることにより、成膜中の膜に隣接する成膜室から飛来する成膜材料が混入してしまう現象を防ぐことができる。

【0063】

受け渡し室104は排気機構と接続している。この部屋を介することで、減圧された環境に置かれている基板を大気圧下等の圧力が異なる環境に移送することができる。

【0064】

後処理室105には、発光素子が作製された基板が搬入される。また、封止基板等を成膜装置の外から搬入できる。後処理室105では、発光素子が大気に曝されないように、発光素子を封止する作業を行う。本実施の形態で示す後処理室105は、基板格納室と封止室の2部屋を備える。発光素子の封止を行う際、封止室は、不活性雰囲気又は減圧雰囲気であれば良い。減圧雰囲気としては、例えば、圧力が100Pa以下、好ましくは1Pa以下の雰囲気とすれば良い。

10

【0065】

そして、ロードロック室106から、発光素子の封止が完了した基板を搬出することができる。

【0066】

図2(B)は、マルチチャンバー方式の成膜装置である。図2(B)に示す成膜装置は、ロードロック室101、前処理室102、複数の成膜室(成膜室103a、成膜室103b、成膜室103c、成膜室103d、成膜室103e、及び成膜室103f)、受け渡し室104、後処理室105、ロードロック室106、基板待機室107、搬送室108、並びに基板搬送機構109を備える。

20

【0067】

ロードロック室101は排気機構2001と接続している。大気圧下のロードロック室101に基板が搬入された後、排気機構2001を用いて、室内を減圧する。

【0068】

前処理室102は、排気機構2002と接続している。前処理室102では、基板に付着している不純物を除去するために、加熱処理等を行うことができる。

【0069】

複数の成膜室では、発光素子を構成する層を成膜することができる。成膜室は、それぞれ排気機構と接続している(図2(B)の排気機構2003a乃至2003f参照)。本発明の一態様の成膜装置において、少なくとも1つの成膜室が、質量分析計と接続し、かつ、成膜材料を加熱するための加熱機構を有する構成であれば良く、また、全ての成膜室に該構成が適用されていても良い。

30

【0070】

質量分析計としては、偏向型(磁場型)の質量分析計や、非偏向型の質量分析計を用いることができる。偏向型の質量分析計としては、単収束質量分析計、二重収束質量分析計、サイクロイダル質量分析計等が挙げられ、非偏向型の質量分析計としては、飛行時間差型質量分析計、オメガトロン、四重極質量分析計等が挙げられる。

【0071】

質量分析計としては、特に四重極質量分析計を用いることが好ましい。四重極質量分析計は、分析部が小型であるため、目的の場所に取り付けやすい。さらに、四重極質量分析計は、高速走査であり、低質量領域で高感度である。

40

【0072】

受け渡し室104は排気機構2004と接続している。この部屋を介することで、減圧された環境に置かれている基板を大気圧下等の圧力が異なる環境に移送することができる。

【0073】

後処理室105は、排気機構2005と接続している。後処理室105には、発光素子が作製された基板が搬入される。また、封止基板等を成膜装置の外から搬入できる。後処理室105では、発光素子が大気に曝されないように、発光素子を封止する作業を行う。後

50

処理室 105 は、不活性雰囲気又は減圧雰囲気であれば良い。

【0074】

ロードロック室 106 は、排気機構 2006 と接続している。ロードロック室 106 から、発光素子の封止が完了した基板を搬出することができる。

【0075】

基板待機室 107 は、排気機構 2007 と接続している。基板待機室 107 では、発光素子の作製工程中の基板を待機させておくことができる。

【0076】

搬送室 108 は、排気機構 2008 と接続している。搬送室 108 は、基板をある一室から他の一室に搬送する受け渡し室の役割を有している。

10

【0077】

本実施の形態では、処理前の基板を収納する基板ホルダを有する場所として、ロードロック室 101、処理済みの基板を収納する基板ホルダを有する場所として、ロードロック室 106 を設けたが、本発明の一態様の成膜装置は、これに限らず、一室で基板の搬入出を行っても良い。

【0078】

次に、成膜室の構成の一例を図 3 に示す。図 3 に示す成膜室は、加熱機構 113 を備える成膜材料保持部 111 を備える。かつ、排気機構 119 及び四重極質量分析計 121 と接続している。

【0079】

図 3 (A) では、成膜室の側壁に四重極質量分析計 121 が設けられている場合を示す。図 3 (B) では、成膜室の上壁に四重極質量分析計 121 が設けられている場合を示す。四重極質量分析計 121 は、図 3 (A) (B) に示すように、基板保持部 125 や基板 123 の近傍に設けられていることが好ましい。これにより、基板 123 付近の水分量をより正確に求めることができる。また、四重極質量分析計 121 と基板保持部 125 の間の最短距離は、四重極質量分析計 121 と成膜材料保持部 111 の間の最短距離より短いことが好ましい。

20

【0080】

また、四重極質量分析計 121 は、図 3 (C) に示すように、排気機構 119 の近傍に設けられていても良い。なお、四重極質量分析計 121 は、成膜室 1 つに対して、1 つ以上接続されていれば良く、複数接続されていても良い。

30

【0081】

図 3 に示す成膜室では、四重極質量分析計 121 で水の分圧を測定しながら、加熱機構 113 で成膜材料を加熱し気化させることができる。成膜材料に含まれる水が十分に除去されたことを確認してから、基板上に蒸着膜を形成できるため、蒸着膜に含まれる水分を低減でき、信頼性の高い発光素子を作製することができる。

【0082】

さらに、四重極質量分析計 121 を用いて、酸素原子の分圧等を測定しても良い。

【0083】

成膜室に接続する排気機構としては、少なくとも直接接続された排気機構 119 を設ける。さらに、配管 127 を介して接続された排気機構 129 を設けても良い。排気機構 129 は、配管を介して他の成膜室等と接続していても良い。このとき、排気機構 119 は、排気機構 129 に比べて、成膜室内をより高真空にすることができる排気装置を備えるものとする。

40

【0084】

図 3 では、成膜材料保持部 111 に、容器に入った成膜材料 115 が保持されているときを一例として示す。成膜材料を入れる容器としては、熱容量の小さい物質 (タングステン、モリブデン等) からなる坩堝や皿を用いることができる。加熱機構 113 を用いて、成膜材料 115 を加熱する。加熱された成膜材料 115 は、気化し、基板 123 に蒸着される。

50

【0085】

なお、1つの成膜室に、成膜材料保持部111を複数備えていても良い。成膜材料保持部111によって異なる成膜材料を配置することで、該成膜室では、複数の物質を同時に気化して蒸着することができる（共蒸着できる）。

【0086】

また、図3では、基板保持部125に基板123及びマスクが保持されているときを一例として示す。基板回転機構135により基板123（及びマスク）を回転させることで、成膜の均一性を高めることができる。基板回転機構135は、基板搬送機構を兼ねていても良い。

【0087】

また、成膜室には、CCDカメラ等の撮像手段133を備えていても良い。撮像手段133を備えることで、基板123とマスクとの位置確認が可能となる。

【0088】

また、成膜室では、膜厚計測機構137の測定結果により、基板表面に成膜された膜厚が予測できる。膜厚計測機構137としては、例えば、水晶振動子等を備えていれば良い。

【0089】

なお、気化した成膜材料の蒸着を制御するため、成膜材料の気化の速度が安定するまで基板と容器を隔てるシャッターを成膜装置内に備えていることが好ましい。図3では、成膜装置内に、シャッター146とシャッター148を備える例を示す。

【0090】

成膜室は、内壁を加熱する機構や、内壁を冷却する機構を備えていることが好ましい。本実施の形態では、加熱機構117及び冷却機構（図示しない）を備える。内壁は熱伝導性の高い材質であることが好ましい。また、加熱機構117としては、電熱線からなる細管ヒータ等を用いることができる。また、冷却機構としては、細管に冷媒を導入する構成等が挙げられる。ただし、四重極質量分析計121での測定をより正確に行うため、加熱機構や冷却機構は四重極質量分析計121が接続されている付近には設けないことが好ましい。

【0091】

成膜室の壁の温度を高くすることで、水分等の不純物が壁から脱離しやすくなり、該不純物を成膜室の外に排出しやすくなる。したがって、例えば、本発明の一態様の発光素子の作製方法における第1の工程の間に、成膜室の内壁を加熱する機構を用いて、成膜室の内壁の加熱を行うことが好ましい。

【0092】

逆に、成膜室の壁の温度を低くすることで、水分等の不純物が壁から脱離しにくくなり、成膜室内に拡散することを抑制できる。したがって、例えば、本発明の一態様の有機EL素子の作製方法における第2の工程の間に、成膜室の内壁を冷却する機構を用いて、成膜室の内壁の冷却を行うことが好ましい。これにより、成膜中の膜に不純物が混入することを抑制できる。

【0093】

また、本発明の一態様の成膜装置は、四重極質量分析計121と、成膜材料保持部111が備える加熱機構113と、に接続する制御部を有していても良い。制御部は、四重極質量分析計121で測定した水の分圧の値に応じて、成膜材料保持部111が備える加熱機構113の温度を制御することができる。

【0094】

具体的には、実施者が予め、制御部にあるステップから次のステップに進むタイミングの条件を与えておく。例えば、四重極質量分析計121における水の分圧の値が、極大値を示した何分後に、又は、ある値（例えば 1×10^{-4} Pa）以下の値を何分間示した後に、加熱機構113の温度を次のステップの温度に変更するといった条件を制御部に与えておけば良い。これにより、実施者が始終、装置や質量分析計を監視していなくても、制御部が自動で、ステップに適した水の分圧を示す成膜室内で各ステップを進めるため、好ま

10

20

30

40

50

しい。また、制御部は、成膜装置全体を制御するために、さらに基板搬送機構等と接続していても良い。

【0095】

発光素子の作製方法

上述の通り、本発明の一態様の発光素子の作製方法の特徴は、E L層に含まれる層を形成する工程に係る。本発明の一態様は、E L層に含まれるある一層の形成のみに適用しても良いし、E L層を構成する複数の層の形成に適用しても良い。特に、E L層を構成する全ての層の形成に適用することが好ましい。本発明の一態様を適用して作製できる発光素子の構成や材料の一例は、実施の形態3にて詳述する。

【0096】

以下では、図3(A)に示した成膜室において、E L層に含まれる第1の膜を成膜する場合を一例とし、図1を用いて説明する。

【0097】

<ステップS1：成膜材料の配置>

まず、大気開放された成膜室において、成膜材料保持部111に成膜材料を配置する。このときの成膜材料には、水分や酸素等の大気成分が付着している。言い換えると、有機E L素子にとっての不純物が含まれている。

【0098】

<ステップS2：成膜室の減圧>

次に、排気機構119を用いて成膜室を減圧する。これにより、成膜室中の水分や酸素等の大気成分が、成膜室の外に排出される。ここで、成膜室の圧力は、 10^{-4} Pa以下とすることが好ましい。

【0099】

そして、ステップS3を開始する前に、四重極質量分析計121によって成膜室内の水の分圧の測定を始める(図1の原点に対応)。

【0100】

<ステップS3：成膜材料の加熱(低温)>

次に、成膜材料保持部111が備える加熱機構113を用いて、成膜材料115を加熱する。ステップS3における加熱機構113の温度は、成膜材料115が気化しない温度とする。図1において、ステップS3での最高温度T2は、成膜材料115が気化する温度T1より低い。これにより、成膜材料115が気化されることなく、成膜材料115に含まれている水分や酸素等の不純物が、成膜室内に放出される。成膜室内に放出された不純物は、排気機構119により成膜室の外に排出される。

【0101】

成膜材料115から除去された水分が成膜室内に拡散することで、成膜室内の水の分圧は、一度高くなる。その後、成膜材料115から成膜室内に排出される水分量の減少、及び排気機構119による水分の排気によって、水の分圧は低下する。四重極質量分析計121における水の分圧の値が極大値を示した後に、ステップS4に進むことが好ましい。

【0102】

ステップS3で除去できる不純物を予め除去しておくことが好ましい。これにより、不純物除去の際に気化してしまう成膜材料の量を抑制することができ、成膜材料の使用量を節約できる。また、長時間、高温で加熱することによる、成膜材料の劣化を抑制できる。

【0103】

<ステップS4：成膜材料の加熱(高温)>

ステップS4では、ステップS3よりも高温で成膜材料115を加熱する。具体的には、成膜材料115が気化する温度T1以上で加熱する。好ましくは、加熱機構113の温度を、ステップS6における加熱機構113の温度(成膜温度)以上とする。成膜材料115の温度が高いほど、成膜材料115に含まれている水分や酸素等の不純物は脱離しやすくなる。これにより、ステップS3では除去できなかった不純物を成膜材料115から除去できる。成膜室内に排出された不純物は、排気機構119により成膜室の外に排出され

10

20

30

40

50

る。

【0104】

また、ステップS4の前に、成膜室に基板を搬入しておくことが好ましい。基板搬送機構により基板が搬入された後、ステップS4を行うことで、気化した成膜材料を該基板に蒸着する。基板に形成された蒸着膜は、成膜材料として再利用することができる。したがって、成膜材料に含まれる不純物を除去する際に損失する成膜材料の量を抑制することができ、好ましい。

【0105】

成膜材料115から除去された水分が成膜室内に拡散することで、成膜室内の水の分圧は、一度高くなる。その後、成膜材料115から成膜室内に排出される水分量の減少、及び排気機構119による水分の排気によって、水の水蒸気分圧は低下する。四重極質量分析計121における水の水蒸気分圧の値が極大値を示した後に、次のステップに進むことが好ましい。

【0106】

<ステップS5：成膜材料の加熱（高温）の休止>

その後、加熱機構113の温度を成膜材料115が気化もしくは昇華しない温度にする、又は、加熱を休止する。これにより、成膜材料115の気化を休止させる。

【0107】

ステップS5を省略し、ステップS4の次にステップS6を行っても良いが、加熱を休止しても（又は加熱機構113の温度を下げて）成膜材料115は高温状態であるため、引き続き、成膜材料115に含まれる水分は除去される。また、成膜材料115中から除去された水分が成膜室の外に排気され続ける。これにより、不純物除去の際に気化してしまう成膜材料の量を抑制することができ、成膜材料の使用量を節約できる。また、長時間、高温で加熱することによる成膜材料の劣化を抑制できる。

【0108】

なお、ステップS2からステップS5の期間において、成膜室内に排出された不純物は、成膜室の内壁に吸着される場合がある。よって、成膜室の壁を加熱する機構を用いて成膜室の壁を加熱することが好ましい。これにより、成膜室の壁に付着した不純物の脱離、及び該不純物の成膜室の外への排出を促すことができる。成膜室の壁の加熱は、ステップS2以降でステップS6の開始前であれば、いつ行っても良い。

【0109】

<ステップS6：第1の膜の形成>

基板123を搬入する。そして、水の水蒸気分圧が、ステップS4における四重極質量分析計121での水の水蒸気分圧の平均値よりも小さい値である成膜室内で、基板123上に第1の膜を形成する。

【0110】

基板123には、発光素子の下部電極が予め形成されている。また、EL層を構成する他の層が形成されていても良い。

【0111】

ステップS6における水の水蒸気分圧の平均値は、ステップS4における水の水蒸気分圧の平均値よりも小さいことが好ましい。

【0112】

また、ステップS6は、水の水蒸気分圧が 1×10^{-4} Pa以下の成膜室内で行うことが好ましい。

【0113】

ここで、リチウム等の反応性が高い材料を含む層は、水と反応しやすい。また、発光層に不純物が含まれると、発光素子の特性に与える影響が顕著になりやすい。したがって、第1の膜が、反応性が高い材料を含む層や、発光層である場合は、水の水蒸気分圧が 2×10^{-5} Pa以下の成膜室内で行うことがより好ましく、 1×10^{-5} Pa以下の成膜室内で行うことがさらに好ましい。

【0114】

10

20

30

40

50

また、発光素子は、水だけでなく、酸素の影響によっても信頼性が低下する。したがって、酸素原子の分圧が、ステップ S 4 における四重極質量分析計 1 2 1 での酸素原子の分圧の平均値よりも小さい値である成膜室内で、基板 1 2 3 上に第 1 の膜を形成することが好ましい。また、ステップ S 6 における酸素原子の分圧の平均値は、ステップ S 4 における酸素原子の分圧の平均値よりも小さいことが好ましい。特に、ステップ S 6 は、酸素原子の分圧が 2×10^{-6} Pa 以下の成膜室内で行うことが好ましい。

【0115】

なお、ステップ S 6 で、成膜室の内壁に付着した不純物が脱離すると、不純物が成膜室中に拡散し、さらには第 1 の膜に混入することで、作製した発光素子の寿命が短い場合がある。そのため、成膜室の壁を冷却する機構を用いて、成膜室の内壁を冷却しながらステップ S 6 を行うことが好ましい。また、ステップ S 6 を行う前に、成膜室の内壁の冷却を行うことが好ましい。

10

【0116】

以上に示した作製方法では、成膜材料及び成膜室から水分が十分に除去された後に E L 層に含まれる層を形成する。したがって、E L 層に含まれる層に水分が含まれることを抑制でき、信頼性の高い発光素子を作製できる。

【0117】

本実施の形態は、他の実施の形態と自由に組み合わせることができる。

【0118】

(実施の形態 2)

20

本実施の形態では、実施の形態 1 とは異なる本発明の一態様の成膜装置と、本発明の一態様の発光素子の作製方法について図 2、図 2 8、及び図 2 9 を用いて説明する。

【0119】

成膜装置

まず、本発明の一態様の成膜装置について説明する。

【0120】

本発明の一態様の成膜装置は、排気機構と接続し、成膜材料室を有する成膜室を備え、該成膜材料室は、仕切り弁によって成膜室と仕切られ、質量分析計及び排気機構と接続し、加熱機構を備える成膜材料保持部を有する。

【0121】

30

該成膜室では、成膜材料室内で予め成膜材料に含まれる水分等の不純物を十分に除去するため、成膜室内に成膜材料由来の水分が拡散すること、及び該成膜室で成膜された蒸着膜に水分が含まれることを抑制でき、信頼性の高い発光素子を作製できる。該成膜室を用いて、E L 層に含まれるある一層のみを形成しても良いし、E L 層を構成する複数の層を形成しても良い。特に、該成膜室を用いて、E L 層を構成する全ての層を形成することが好ましい。

【0122】

本発明の一態様の成膜装置は、該成膜室を少なくとも 1 つ備えていれば良く、複数備えていても良い。また、上記構成とは異なる成膜室をさらに有していても良い。

【0123】

40

本発明の一態様の成膜装置である図 2 (A) (B) に示す成膜装置の詳細については、実施の形態 1 を参照できる。

【0124】

次に、排気機構と接続し、成膜材料室を有する成膜室の構成を図 2 8 に例示する。なお、該成膜材料室は、仕切り弁によって成膜室と仕切られ、質量分析計及び排気機構と接続し、加熱機構を備える成膜材料保持部を有する。

【0125】

図 2 8 に示す成膜室は、排気機構 4 1 9 と接続し、成膜材料室 4 5 0 を有する。

【0126】

成膜室に接続する排気機構としては、少なくとも直接接続された排気機構 4 1 9 を設ける

50

。さらに、配管 4 2 7 を介して接続された排気機構 4 2 9 を設けても良い。排気機構 4 2 9 は、配管を介して他の成膜室や、成膜材料室 4 5 0 等と接続していても良い。このとき、排気機構 4 1 9 は、排気機構 4 2 9 に比べて、成膜室内をより高真空にすることができる排気装置を備えるものとする。

【 0 1 2 7 】

また、図 2 8 では、基板保持部 4 2 5 に基板 4 2 3 及びマスクが保持されているときを一例として示す。基板回転機構 4 3 5 により基板 4 2 3 (及びマスク) を回転させることで、成膜の均一性を高めることができる。基板回転機構 4 3 5 は、基板搬送機構を兼ねていても良い。

【 0 1 2 8 】

また、成膜室には、CCD カメラ等の撮像手段 4 3 3 を備えていても良い。撮像手段 4 3 3 を備えることで、基板 4 2 3 とマスクとの位置確認が可能となる。

【 0 1 2 9 】

成膜材料室 4 5 0 は、仕切り弁 4 5 1 (ドアバルブ、ゲートバルブ等) によって成膜室と仕切られ、四重極質量分析計 4 2 1 及び排気機構 4 3 9 と接続し、加熱機構 4 1 3 を備える成膜材料保持部 4 1 1 を有する。

【 0 1 3 0 】

成膜材料室 4 5 0 に接続する排気機構としては、少なくとも直接接続された排気機構 4 3 9 を設ける。

【 0 1 3 1 】

図 2 8 では、仕切り弁 4 5 1 が閉じている場合を示す。仕切り弁 4 5 1 を開くことで、成膜材料室 4 5 0 の上面の壁が、基板に蒸着膜を形成する際の妨げにならない。また、成膜材料室 4 5 0 の側面の壁も妨げとなる場合には、妨げとならないような位置に移動できる仕様とすれば良い。また、仕切り弁 4 5 1 を閉じることで、成膜材料室 4 5 0 の雰囲気と、成膜室の雰囲気を異なる雰囲気とすることができる。仕切り弁 4 5 1 は気密性が高いため、仕切り弁 4 5 1 を閉じている場合、成膜材料室 4 5 0 は独立した部屋とみなせる (密封された空間となる) 。

【 0 1 3 2 】

図 2 8 では、成膜材料保持部 4 1 1 に、容器に入った成膜材料 4 1 5 が保持されているときを一例として示す。成膜材料を入れる容器としては、熱容量の小さい物質 (タングステン、モリブデン等) からなる坩堝や皿を用いることができる。加熱機構 4 1 3 を用いて、成膜材料 4 1 5 を加熱する。

【 0 1 3 3 】

なお、1つの成膜室に、成膜材料保持部を複数備えていても良い。成膜材料室 1 つにつき、成膜材料保持部が 1 つ備えられていても良いし、複数備えられていても良い。成膜材料保持部によって異なる成膜材料を配置することで、該成膜室では、複数の物質を同時に気化して蒸着することができる (共蒸着できる) 。

【 0 1 3 4 】

また、膜厚計測機構 4 3 7 の測定結果により、基板表面に成膜された膜厚が予測できる。膜厚計測機構 4 3 7 としては、例えば、水晶振動子等を備えていれば良い。膜厚計測機構 4 3 7 は、成膜材料室 4 5 0 の外 (成膜室内) に設けられていても良い。

【 0 1 3 5 】

なお、気化した成膜材料の蒸着を制御するため、基板と容器を隔てるシャッター 4 4 6 や、シャッター 4 4 8 を備えていることが好ましい。

【 0 1 3 6 】

成膜材料室 4 5 0 は、内壁を加熱する機構や、内壁を冷却する機構を備えていることが好ましい。本実施の形態では、加熱機構 4 4 4 及び冷却機構 (図示しない) を備える。内壁は熱伝導性の高い材質であることが好ましい。加熱機構 4 4 4 としては、電熱線からなる細管ヒータ等を用いることができる。冷却機構としては、細管に冷媒を導入する構成等が挙げられる。

10

20

30

40

50

【0137】

成膜材料室450の壁の温度を高くすることで、水分等の不純物が壁から脱離しやすくなり、該不純物を成膜材料室の外に排出しやすくなる。したがって、例えば、仕切り弁451を閉じ、成膜材料415を加熱し、排気機構439を用いて不純物を成膜材料室450の外に排出する際などに、内壁の加熱を行うことが好ましい。

【0138】

逆に、成膜材料室450の壁の温度を低くすることで、水分等の不純物が壁から脱離しにくくなり、成膜材料室450内、及び成膜室内に拡散することを抑制できる。したがって、例えば、仕切り弁451を開き、基板に蒸着膜を形成する際などに、内壁の冷却を行うことが好ましい。これにより、成膜中の膜に不純物が混入することを抑制できる。

10

【0139】

また、成膜室も、内壁を加熱する機構や、内壁を冷却する機構を備えていることが好ましい。本実施の形態では、加熱機構417及び冷却機構(図示しない)を備える。

【0140】

また、成膜室が、質量分析計と接続されていても良い。

【0141】

図28に示す成膜室では、仕切り弁451を閉じた状態で、四重極質量分析計421を用いて成膜材料室450内の水の分圧を測定しながら、加熱機構413を用いて成膜材料415を加熱する。加熱された成膜材料415からは、水分等の不純物が放出される。排気機構439を用いて該不純物を成膜材料室450の外に排出する。そして、成膜材料室450内の水の分圧が十分に低いことを確認した後に、仕切り弁451を開ける。成膜材料室450内に含まれる水分量は十分に低減されているため、仕切り弁451を開けた後に、成膜室内に水分等の不純物が拡散することを抑制できる。

20

【0142】

仕切り弁451を開けた状態で、成膜材料415を用いて、成膜室に搬入された基板423に蒸着膜を形成する。成膜材料415は、成膜材料室450内で水分等の不純物が十分に除去されているため、蒸着膜に含まれる水分量を低減することができる。また、成膜材料室450内に含まれる水分量が十分に低減されてから、仕切り弁451を開けるため、成膜室内には、成膜材料由来の水分がほとんど含まれていない。したがって、該成膜室で成膜された蒸着膜に水分が含まれることを抑制でき、信頼性の高い有機EL素子を作製できる。

30

【0143】

さらに、四重極質量分析計421を用いて、成膜材料室450内の酸素原子(^{16}O)の分圧等を測定しても良い。

【0144】

また、本発明の一態様の成膜装置は、四重極質量分析計421と、成膜材料保持部411が備える加熱機構413と、に接続する制御部を有していても良い。制御部は、四重極質量分析計421で測定した水の分圧の値に応じて、成膜材料保持部411が備える加熱機構413の温度を制御することができる。

【0145】

具体的には、実施者が予め、制御部にあるステップから次のステップに進むタイミングの条件を与えておく。例えば、四重極質量分析計421における水の分圧の値が、極大値を示した何分後に、又は、ある値(例えば $1 \times 10^{-4} \text{ Pa}$)以下の値を何分間示した後に、加熱機構413の温度を次のステップの温度に変更するといった条件を制御部に与えておけば良い。これにより、実施者が始終、装置や質量分析計を監視していなくても、制御部が自動で、ステップに適した水の分圧を示す成膜材料室内で各ステップを進めるため、好ましい。また、制御部は、成膜装置全体を制御するために、さらに仕切り弁451、基板搬送機構等と接続していても良い。

40

【0146】

発光素子の作製方法

50

以下では、図 28 に示した成膜室において、EL 層に含まれる第 1 の膜を成膜する場合を例に挙げて説明する。なお、本発明の一態様を適用して作製できる発光素子の構成や材料の一例は、実施の形態 3 にて詳述する。

【0147】

<ステップ S1：成膜材料の配置>

まず、大気開放された成膜材料室 450 において、成膜材料保持部 411 に成膜材料 415 を配置する。このときの成膜材料 415 には、水分や酸素等の大気成分が付着している。言い換えると、有機 EL 素子にとっての不純物が含まれている。

【0148】

なお、成膜室及び成膜材料室 450 が減圧下であった場合、仕切り弁 451 を閉めてから成膜材料室 450 を大気開放することが好ましい。仕切り弁 451 を閉め、成膜材料室 450 のみを大気開放することで、成膜室全体の大気開放による広範囲の汚染等を防止することができる。成膜室全体を大気開放した後、成膜室全体を排気し減圧する場合に比べて、成膜材料室 450 のみを大気開放し、排気し減圧する方が、所要時間が短くて済むため、好ましい。

【0149】

<ステップ S2：成膜材料室の減圧>

次に、排気機構 439 を用いて成膜材料室 450 を減圧する。これにより、成膜材料室 450 中の水分や酸素等の大気成分が、成膜材料室 450 の外に排出される。ここで、成膜材料室 450 の圧力は、 10^{-4} Pa 以下とすることが好ましい。

【0150】

そして、ステップ S3 を開始する前に、四重極質量分析計 421 によって成膜材料室 450 内の水の分圧の測定を始める。

【0151】

<ステップ S3：成膜材料の加熱>

次に、成膜材料保持部 411 が備える加熱機構 413 を用いて、成膜材料 415 を加熱する。これにより、成膜材料 415 に含まれている水分や酸素等の不純物が、成膜材料室 450 内に放出される。成膜材料室 450 内に放出された不純物は、排気機構 439 により成膜材料室 450 の外に排出される。

【0152】

成膜材料 415 から除去された水分が成膜材料室 450 内に拡散することで、成膜材料室 450 内の水の分圧は、一度高くなる。その後、成膜材料 415 から成膜材料室 450 内に排出される水分量の減少、及び排気機構 439 による水分の排気によって、水の分圧は低下する。

【0153】

このとき、加熱機構 413 の温度は、成膜材料 415 が気化する温度以上が好ましく、ステップ S4 における加熱機構 413 の温度（成膜温度）以上がさらに好ましい。成膜材料 415 の温度が高いほど、成膜材料 415 に含まれている水分や酸素等の不純物は脱離しやすくなる。したがって、ステップ S3 において、ステップ S4 における加熱機構 413 の温度以上で加熱することで、成膜時に成膜材料から不純物が脱離することを抑制することができる。

【0154】

特に、成膜材料 415 が気化する温度未満で、除去できる不純物を除去してから、気化する温度以上とすることが好ましい。不純物除去の際に気化してしまう成膜材料の量を抑制することができ、成膜材料の使用量を節約できる。また、長時間、高温で加熱することによる、成膜材料の劣化を抑制できる。

【0155】

また、ステップ S3 で気化させた成膜材料が成膜材料室 450 の内壁や仕切り弁 451 に付着する場合がある。内壁や仕切り弁を層構造とし、成膜材料が付着する層が大気開放時に着脱可能であると、層に付着した膜は、成膜材料として再利用することができる。した

10

20

30

40

50

がって、成膜材料に含まれる不純物を除去する際に損失する成膜材料の量を抑制することができ、好ましい。

【0156】

ステップS4の前に、加熱機構413の温度を成膜材料415が気化もしくは昇華しない温度にする、又は、加熱を休止することで、成膜材料415の気化を休止させることが好ましい。

【0157】

加熱を休止しても（又は加熱機構413の温度を下げて）成膜材料415は高温状態であるため、引き続き、成膜材料415に含まれる水分は除去される。また、成膜材料415中から除去された水分が成膜材料室450の外に排気され続ける。これにより、不純物除去の際に気化してしまう成膜材料の量を抑制することができ、成膜材料の使用量を節約できる。また、長時間、高温で加熱することによる成膜材料の劣化を抑制できる。

10

【0158】

なお、ステップS2からステップS3の期間において、成膜材料室450内に排出された不純物は、成膜材料室450の内壁に吸着される場合がある。よって、成膜材料室450の壁を加熱する機構を用いて成膜材料室450の壁を加熱することが好ましい。これにより、成膜材料室450の壁に付着した不純物の脱離、及び該不純物の成膜材料室450の外への排出を促すことができる。成膜材料室450の壁の加熱は、ステップS2以降でステップS3の開始前であれば、いつ行っても良い。

20

【0159】

また、ステップS4の前に、成膜室内は、減圧下とする。ここで、成膜室内の圧力は、 10^{-4} Pa以下とすることが好ましい。

【0160】

さらに、基板423を搬入する。基板423には、発光素子の下部電極が予め形成されている。また、EL層を構成する他の層が形成されていても良い。

【0161】

<ステップS4：仕切り弁の開放>

そして、四重極質量分析計421で測定している水の分圧が十分に低い値であることを確認して、仕切り弁451を開ける。

30

【0162】

例えば、ステップS3における水の分圧の平均値よりも小さい値となってから、仕切り弁451を開けることが好ましい。または、水の分圧が、 1×10^{-4} Pa以下となってから、仕切り弁451を開けることが好ましい。

【0163】

ここで、リチウム等の反応性が高い材料を含む層は、水と反応しやすい。また、発光層に不純物が含まれると、発光素子の特性に与える影響が顕著になりやすい。したがって、第1の膜が、反応性が高い材料を含む層や、発光層である場合は、水の分圧が 2×10^{-5} Pa以下となってから仕切り弁451を開けることが好ましく、 1×10^{-5} Pa以下となってから仕切り弁451を開けることがさらに好ましい。

40

【0164】

また、発光素子は、水だけでなく、酸素の影響によっても信頼性が低下する。したがって、仕切り弁451を開けるときの、酸素原子の分圧が、ステップS3における四重極質量分析計421での酸素原子の分圧の平均値よりも小さい値であることが好ましい。

【0165】

なお、ステップS4以降に、成膜材料室450の内壁に付着した不純物が脱離すると、不純物が成膜室中に拡散し、さらには第1の膜に混入することで、作製した発光素子の寿命が短い場合がある。そのため、成膜材料室450の壁を冷却する機構を用いて、成膜材料室450の内壁を冷却しながらステップS4以降を行うことが好ましい。また、ステップS4を行う前に、成膜材料室450の内壁の冷却を行うことが好ましい。

50

【0166】

以上に示した作製方法では、成膜材料及び成膜材料室 4 5 0 から水分が十分に除去された後に、仕切り弁 4 5 1 を開ける。したがって、成膜室内に成膜材料由来の水分が拡散すること、及び該成膜室で成膜された蒸着膜に水分が含まれることを抑制でき、信頼性の高い発光素子を作製できる。

【 0 1 6 7 】

また、図 2 9 に、図 2 8 とは異なる成膜室の構成、及び該成膜室を用いた発光素子の作製方法を示す。

【 0 1 6 8 】

図 2 9 (A) に示す成膜材料室 4 5 0 は、成膜材料保持部にそれぞれ保持された成膜材料 4 1 5 a 及び成膜材料 4 1 5 b を備える。また、成膜室 4 6 0 は、成膜材料室 4 5 0 の外にも、成膜材料保持部にそれぞれ保持された成膜材料 4 1 5 c 及び成膜材料 4 1 5 d を備える。なお、成膜材料 4 1 5 a ~ d は、同一の材料であっても、異なる材料であっても良い。

10

【 0 1 6 9 】

仕切り弁 4 5 1 を閉じることで、成膜材料室 4 5 0 の外を減圧下に保持したまま、成膜材料室 4 5 0 内のみを大気開放することができる。

【 0 1 7 0 】

成膜材料室 4 5 0 は、排気機構 4 3 9 及び四重極質量分析計 4 2 1 と接続している。

【 0 1 7 1 】

したがって、図 2 9 (B) に示すように、成膜材料 4 1 5 c 及び成膜材料 4 1 5 d を用いて基板 4 2 3 a 上に蒸着膜を形成している間に、成膜材料 4 1 5 a 及び成膜材料 4 1 5 b を加熱し、含まれている水分等の不純物を除去することができる。

20

【 0 1 7 2 】

そして、成膜材料 4 1 5 c 及び成膜材料 4 1 5 d の残量が少なくなってきた頃に、加熱を停止する。なお、次に蒸着膜を形成する基板 4 2 3 b の移動も停止する。そして、仕切り弁 4 5 1 を開く (図 2 9 (C)) 。ここでは、仕切り弁 4 5 1 だけでなく、成膜材料室 4 5 0 の側壁も可動するものとする。

【 0 1 7 3 】

そして、成膜材料室 4 5 0 内で不純物が十分に除去された成膜材料 4 1 5 a 及び成膜材料 4 1 5 b を用いて、基板 4 2 3 b 上に蒸着膜を形成する (図 2 9 (D)) 。

30

【 0 1 7 4 】

なお、成膜材料 4 1 5 c 及び成膜材料 4 1 5 d が、別の成膜材料室内に備えられている場合は、仕切り弁を閉じた後、該成膜材料室を大気開放し、材料の交換等を行うことができる (図 2 9 (E)) 。

【 0 1 7 5 】

このように、本発明の一態様を適用した成膜装置では、成膜材料に含まれる水分等の不純物の除去と並行して、蒸着膜の形成を行うことができるため、効率良く発光素子を作製することができ、好ましい。

【 0 1 7 6 】

また、一つの成膜材料保持部に配置する成膜材料の量を少量としても、装置の処理効率が低下しないため、長時間の加熱等による成膜材料の劣化を抑制することができ、好ましい。

40

【 0 1 7 7 】

本実施の形態は、他の実施の形態と自由に組み合わせることができる。

【 0 1 7 8 】

(実施の形態 3)

本実施の形態では、本発明の一態様を適用して作製できる発光素子の一例について図 4 を用いて説明する。

【 0 1 7 9 】

本実施の形態で例示する発光素子は、一对の電極 (第 1 の電極及び第 2 の電極) と、該一

50

対の電極間に設けられたＥＬ層と、を有する。該一对の電極は、一方が陽極、他方が陰極として機能する。該ＥＬ層は、少なくとも発光層を有する。ＥＬ層のうち、蒸着可能な材料からなる層は、本発明の一態様を適用して形成することができる。蒸着可能な材料としては、例えば、低分子系化合物や無機化合物が挙げられる。

【０１８０】

本発明の一態様を適用して作製した発光素子は、水分等の不純物の含有量が低減されている。したがって、信頼性が高い発光素子を実現することができる。

【０１８１】

本発明の一態様は、トップエミッション（上面射出）構造、ボトムエミッション（下面射出）構造、デュアルエミッション（両面射出）構造のいずれの発光素子を作製する場合にも適用することができる。

10

【０１８２】

図４（Ａ）に示す発光素子は、第１の電極２０１及び第２の電極２０５の間にＥＬ層２０３を有する。本実施の形態では、第１の電極２０１が陽極として機能し、第２の電極２０５が陰極として機能する。

【０１８３】

第１の電極２０１と第２の電極２０５の間に、発光素子の閾値電圧より高い電圧を印加すると、ＥＬ層２０３に第１の電極２０１側から正孔が注入され、第２の電極２０５側から電子が注入される。注入された電子と正孔はＥＬ層２０３において再結合し、ＥＬ層２０３に含まれる発光物質が発光する。

20

【０１８４】

ＥＬ層２０３は、上述の通り、少なくとも発光層を有する。ＥＬ層２０３は、発光層以外の層として、正孔注入性の高い物質、正孔輸送性の高い物質、正孔ブロック材料、電子輸送性の高い物質、電子注入性の高い物質、又はバイポーラ性の物質（電子輸送性及び正孔輸送性が高い物質）等を含む層をさらに有していても良い。

【０１８５】

ＥＬ層２０３には低分子系化合物及び高分子系化合物のいずれを用いることもでき、無機化合物を含んでいても良い。

【０１８６】

ＥＬ層２０３の具体的な構成例を、図４（Ｂ）に示す。図４（Ｂ）に示すＥＬ層２０３では、正孔注入層３０１、正孔輸送層３０２、発光層３０３、電子輸送層３０４及び電子注入層３０５が、第１の電極２０１側からこの順に積層されている。

30

【０１８７】

図４（Ｃ）に示す発光素子は、第１の電極２０１及び第２の電極２０５の間にＥＬ層２０３を有し、さらに、ＥＬ層２０３及び第２の電極２０５の間に、中間層２０７を有する。

【０１８８】

中間層２０７の具体的な構成例を、図４（Ｄ）に示す。中間層２０７は、電荷発生領域３０８を少なくとも有する。中間層２０７は、電荷発生領域３０８以外の層として、電子リレー層３０７や、電子注入バッファ層３０６をさらに有していても良い。

【０１８９】

第１の電極２０１と第２の電極２０５の間に、発光素子の閾値電圧より高い電圧を印加すると、電荷発生領域３０８において、正孔と電子が発生し、正孔は第２の電極２０５へ移動し、電子は電子リレー層３０７へ移動する。電子リレー層３０７は電子輸送性が高く、電荷発生領域３０８で生じた電子を電子注入バッファ層３０６に速やかに受け渡す。電子注入バッファ層３０６はＥＬ層２０３に電子を注入する障壁を緩和し、ＥＬ層２０３への電子注入効率を高める。従って、電荷発生領域３０８で発生した電子は、電子リレー層３０７と電子注入バッファ層３０６を経て、ＥＬ層２０３のＬUMO準位に注入される。

40

【０１９０】

また、電子リレー層３０７は、電荷発生領域３０８を構成する物質と電子注入バッファ層

50

層 306 を構成する物質が界面で反応し、互いの機能が損なわれてしまう等の相互作用を防ぐことができる。

【0191】

図 4 (E) (F) に示す発光素子のように、第 1 の電極 201 及び第 2 の電極 205 の間に複数の EL 層が積層されていても良い。この場合、積層された EL 層の間には、中間層 207 を設けることが好ましい。例えば、図 4 (E) に示す発光素子は、第 1 の EL 層 203a と第 2 の EL 層 203b との間に、中間層 207 を有する。また、図 4 (F) に示す発光素子は、EL 層を n 層 (n は 2 以上の自然数) 有し、積層された EL 層の間には、中間層 207 が設けられている。

【0192】

EL 層 203 (m) と EL 層 203 ($m+1$) の間に設けられた中間層 207 における電子と正孔の挙動について説明する。第 1 の電極 201 と第 2 の電極 205 の間に、発光素子の閾値電圧より高い電圧を印加すると、中間層 207 において正孔と電子が発生し、正孔は第 2 の電極 205 側に設けられた EL 層 203 ($m+1$) へ移動し、電子は第 1 の電極 201 側に設けられた EL 層 203 (m) へ移動する。EL 層 203 ($m+1$) に注入された正孔は、第 2 の電極 205 側から注入された電子と再結合し、当該 EL 層 203 ($m+1$) に含まれる発光物質が発光する。また、EL 層 203 (m) に注入された電子は、第 1 の電極 201 側から注入された正孔と再結合し、当該 EL 層 203 (m) に含まれる発光物質が発光する。よって、中間層 207 において発生した正孔と電子は、それぞれ異なる EL 層において発光に至る。

【0193】

なお、EL 層同士を接して設けることで、両者の間に中間層と同じ構成が形成される場合は、EL 層同士を接して設けることができる。例えば、EL 層の一方の面に電荷発生領域が形成されている場合、その面に接して EL 層を設けることができる。

【0194】

また、それぞれの EL 層の発光色を異なるものにすることで、発光素子全体として、所望の色の発光を得ることができる。例えば、2 つの EL 層を有する発光素子において、第 1 の EL 層の発光色と第 2 の EL 層の発光色を補色の関係になるようにすることで、発光素子全体として白色発光する発光素子を得ることも可能である。なお、補色とは、混合すると無彩色になる色同士の関係をいう。つまり、補色の関係にある色を発光する物質から得られた光を混合すると、白色発光を得ることができる。また、3 つ以上の EL 層を有する発光素子の場合でも同様である。

【0195】

図 4 (A) 乃至 (F) は、互いに組み合わせて用いることができる。例えば、図 4 (F) の第 2 の電極 205 と EL 層 203 (n) の間に中間層 207 を設けることもできる。

【0196】

以下に、それぞれの層に用いることができる材料を例示する。なお、各層は、単層に限られず、二層以上積層しても良い。

【0197】

陽極

陽極として機能する電極 (第 1 の電極 201) は、導電性を有する金属、合金、導電性化合物等を一種又は複数種用いて形成することができる。特に、仕事関数の大きい (4.0 eV 以上) 材料を用いることが好ましい。例えば、インジウムスズ酸化物 (ITO: Indium Tin Oxide)、珪素若しくは酸化珪素を含有したインジウムスズ酸化物、インジウム亜鉛酸化物、酸化タングステン及び酸化亜鉛を含有した酸化インジウム、グラフェン、金、白金、ニッケル、タングステン、クロム、モリブデン、鉄、コバルト、銅、パラジウム、又は金属材料の窒化物 (例えば、窒化チタン) 等が挙げられる。

【0198】

なお、陽極が電荷発生領域と接する場合は、仕事関数の大きさを考慮せずに、様々な導電性材料を用いることができ、例えば、アルミニウム、銀、アルミニウムを含む合金等も用

10

20

30

40

50

いることができる。

【0199】

陰極

陰極として機能する電極（第2の電極205）は、導電性を有する金属、合金、導電性化合物などを1種又は複数種用いて形成することができる。特に、仕事関数が小さい（3.8 eV以下）材料を用いることが好ましい。例えば、元素周期表の第1族又は第2族に属する元素（例えば、リチウム、セシウム等のアルカリ金属、カルシウム、ストロンチウム等のアルカリ土類金属、マグネシウム等）、これら元素を含む合金（例えば、Mg - Ag、Al - Li）、ユーロピウム、イッテルビウム等の希土類金属、これら希土類金属を含む合金、アルミニウム、銀等を用いることができる。

10

【0200】

なお、陰極が電荷発生領域と接する場合は、仕事関数の大きさを考慮せずに、様々な導電性材料を用いることができる。例えば、ITO、珪素又は酸化珪素を含有したインジウムスズ酸化物等も用いることができる。

【0201】

発光素子は、陽極又は陰極の一方が可視光を透過する導電膜であり、他方が可視光を反射する導電膜である構成としても良いし、陽極及び陰極の両方が可視光を透過する導電膜である構成としても良い。

【0202】

可視光を透過する導電膜は、例えば、酸化インジウム、ITO、インジウム亜鉛酸化物、酸化亜鉛、ガリウムを添加した酸化亜鉛などを用いて形成することができる。また、金、白金、ニッケル、タングステン、クロム、モリブデン、鉄、コバルト、銅、パラジウム、もしくはチタン等の金属材料、又はこれら金属材料の窒化物（例えば、窒化チタン）等も、透光性を有する程度に薄く形成することで用いることができる。また、グラフェン等を用いても良い。

20

【0203】

可視光を反射する導電膜は、例えば、アルミニウム、金、白金、銀、ニッケル、タングステン、クロム、モリブデン、鉄、コバルト、銅、もしくはパラジウム等の金属材料、アルミニウムとチタンの合金、アルミニウムとニッケルの合金、アルミニウムとネオジムの合金等のアルミニウムを含む合金（アルミニウム合金）、又は、銀と銅の合金等の銀を含む合金を用いて形成することができる。銀と銅の合金は、耐熱性が高いため好ましい。また、上記金属材料や合金に、ランタン、ネオジム、又はゲルマニウム等が添加されていても良い。

30

【0204】

電極は、それぞれ、真空蒸着法やスパッタリング法を用いて形成すれば良い。また、銀ペースト等を用いる場合には、塗布法やインクジェット法を用いれば良い。

【0205】

正孔注入層301

正孔注入層301は、正孔注入性の高い物質を含む層である。

【0206】

正孔注入性の高い物質としては、例えば、モリブデン酸化物、バナジウム酸化物、ルテニウム酸化物、タングステン酸化物、マンガン酸化物等の金属酸化物や、また、フタロシアニン（略称：H₂Pc）、銅（II）フタロシアニン（略称：CuPc）等のフタロシアニン系の化合物を用いることができる。

40

【0207】

また、ポリ（N - ビニルカルバゾール）（略称：PVK）、ポリ（4 - ビニルトリフェニルアミン）（略称：PVTPA）などの高分子化合物や、ポリ（3,4 - エチレンジオキシチオフェン）/ポリ（スチレンスルホン酸）（PEDOT / PSS）等の酸を添加した高分子化合物を用いることができる。

【0208】

50

また、正孔注入層 301 を、電荷発生領域としても良い。陽極と接する正孔注入層 301 が電荷発生領域であると、仕事関数を考慮せずに様々な導電性材料を該陽極に用いることができる。電荷発生領域を構成する材料については後述する。

【0209】

正孔輸送層 302

正孔輸送層 302 は、正孔輸送性の高い物質を含む層である。

【0210】

正孔輸送性の高い物質としては、電子よりも正孔の輸送性の高い物質であれば良く、特に、 $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上の正孔移動度を有する物質であることが好ましい。例えば、4, 4' - ビス [N - (1 - ナフチル) - N - フェニルアミノ] ビフェニル (略称 : NP B 又は - NP D)、4 - フェニル - 4' - (9 - フェニルフルオレン - 9 - イル) トリフェニルアミン (略称 : B P A F L P) 等の芳香族アミン化合物、4, 4' - ジ (N - カルバゾリル) ビフェニル (略称 : C B P)、9 - [4 - (10 - フェニル - 9 - アントリル) フェニル] - 9 H - カルバゾール (略称 : C z P A)、9 - フェニル - 3 - [4 - (10 - フェニル - 9 - アントリル) フェニル] - 9 H - カルバゾール (略称 : P C z P A) 等のカルバゾール誘導体、2 - t e r t - ブチル - 9, 10 - ジ (2 - ナフチル) アントラセン (略称 : t - B u D N A)、9, 10 - ジ (2 - ナフチル) アントラセン (略称 : D N A)、9, 10 - ジフェニルアントラセン (略称 : D P A n t h) 等の芳香族炭化水素化合物、P V K、P V T P A 等の高分子化合物など、種々の化合物を用いることができる。

【0211】

発光層 303

発光層 303 には、蛍光を発光する蛍光性化合物や燐光を発光する燐光性化合物等の発光物質を用いることができる。

【0212】

発光層 303 に用いることができる蛍光性化合物としては、例えば、N, N' - ビス [4 - (9 H - カルバゾール - 9 - イル) フェニル] - N, N' - ジフェニルスチルベン - 4, 4' - ジアミン (略称 : Y G A 2 S)、N - (9, 10 - ジフェニル - 2 - アントリル) - N, 9 - ジフェニル - 9 H - カルバゾール - 3 - アミン (略称 : 2 P C A P A)、ルブレン等が挙げられる。

【0213】

また、発光層 303 に用いることができる燐光性化合物としては、例えば、ビス [2 - (4', 6' - ジフルオロフェニル) ピリジナト - N, C^{2'}] イリジウム (I I I) ピコリナート (略称 : F I r p i c)、トリス (2 - フェニルピリジナト - N, C^{2'}) イリジウム (I I I) (略称 : I r (p p y)₃)、(アセチルアセトナト) ビス (3, 5 - ジメチル - 2 - フェニルピラジナト) イリジウム (I I I) (略称 : I r (m p p r - M e)₂ (a c a c)) 等の有機金属錯体が挙げられる。

【0214】

なお、発光層 303 は、上述した発光物質 (ゲスト材料) を他の物質 (ホスト材料) に分散させた構成としてもよい。ホスト材料としては、各種のものを用いることができ、ゲスト材料よりも最低空軌道準位 (L U M O 準位) が高く、最高被占有軌道準位 (H O M O 準位) が低い物質を用いることが好ましい。

【0215】

ゲスト材料をホスト材料に分散させた構成とすることにより、発光層 303 の結晶化を抑制することができる。また、ゲスト材料の濃度が高いことによる濃度消光を抑制することができる。

【0216】

ホスト材料としては、上述の正孔輸送性の高い物質 (例えば、芳香族アミン化合物やカルバゾール誘導体) や、後述の電子輸送性の高い物質 (例えば、キノリン骨格又はベンゾキノリン骨格を有する金属錯体や、オキサゾール系配位子又はチアゾール系配位子を有する

金属錯体)等を用いることができる。具体的には、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(III)(略称:Alq)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(4-フェニルフェノラト)アルミニウム(III)(略称:BAIq)などの金属錯体、3-(4-ビフェニル)-4-フェニル-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,2,4-トリアゾール(略称:TAZ)、バソフェナントロリン(略称:BPhen)、バソキュプロイン(略称:BCP)などの複素環化合物や、CzPA、DNA、t-BuDNA、DPAnthなどの縮合芳香族化合物、NPB等の芳香族アミン化合物等を用いることができる。

【0217】

また、ホスト材料は複数種用いることができる。例えば、結晶化を抑制するためにルブレ等等の結晶化を抑制する物質をさらに添加してもよい。また、ゲスト材料へのエネルギー移動をより効率良く行うためにNPB、あるいはAlq等をさらに添加してもよい。

10

【0218】

また、発光層を複数設け、それぞれの層の発光色を異なるものにすることで、発光素子全体として、所望の色の発光を得ることができる。例えば、発光層を2つ有する発光素子において、第1の発光層の発光色と第2の発光層の発光色を補色の関係になるようにすることで、発光素子全体として白色発光する発光素子を得ることも可能である。また、発光層を3つ以上有する発光素子の場合でも同様である。

【0219】

電子輸送層304

電子輸送層304は、電子輸送性の高い物質を含む層である。

20

【0220】

電子輸送性の高い物質としては、正孔よりも電子の輸送性の高い有機化合物であれば良く、特に、 $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上の電子移動度を有する物質であることが好ましい。

【0221】

電子輸送性の高い物質としては、例えば、Alq、BAIqなど、キノリン骨格又はベンゾキノリン骨格を有する金属錯体等や、ビス[2-(2-ヒドロキシフェニル)ベンゾオキサゾラト]亜鉛(略称:Zn(BOX)₂)、ビス[2-(2-ヒドロキシフェニル)ベンゾチアゾラト]亜鉛(略称:Zn(BTZ)₂)などのオキサゾール系、チアゾール系配位子を有する金属錯体などを用いることができる。また、TAZ、BPhen、BCPなども用いることができる。

30

【0222】

電子注入層305

電子注入層305は、電子注入性の高い物質を含む層である。

【0223】

電子注入性の高い物質としては、例えば、リチウム、セシウム、カルシウム、フッ化リチウム、フッ化セシウム、フッ化カルシウム、酸化リチウム等のようなアルカリ金属、アルカリ土類金属、又はそれらの化合物を用いることができる。また、フッ化エルビウムのような希土類金属化合物を用いることができる。また、上述した電子輸送層304を構成する物質を用いることもできる。

40

【0224】

電荷発生領域

正孔注入層を構成する電荷発生領域や、電荷発生領域308は、正孔輸送性の高い物質とアクセプター性物質(電子受容体)を含む領域である。アクセプター性物質は、正孔輸送性の高い物質に対して質量比で0.1以上4.0以下の比率で添加されていることが好ましい。

【0225】

また、電荷発生領域は、同一膜中に正孔輸送性の高い物質とアクセプター性物質を含有する場合だけでなく、正孔輸送性の高い物質を含む層とアクセプター性物質を含む層とが積層されていても良い。但し、電荷発生領域を陰極側に設ける場合には、正孔輸送性の高い

50

物質を含む層が陰極と接する構造となり、電荷発生領域を陽極側に設ける積層構造の場合には、アクセプター性物質を含む層が陽極と接する構造となる。

【0226】

正孔輸送性の高い物質としては、電子よりも正孔の輸送性の高い有機化合物であれば良く、特に、 $10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ 以上の正孔移動度を有する有機化合物であることが好ましい。

【0227】

具体的には、NPB、BPAPLP等の芳香族アミン化合物、CBP、CzPA、PCzPA等のカルバゾール誘導体、t-BuDNA、DNA、DPAnth等の芳香族炭化水素化合物、PVK、PVTPA等の高分子化合物など、正孔輸送層302に用いることができる物質として例示した正孔輸送性の高い物質を用いることができる。

10

【0228】

アクセプター性物質としては、7,7,8,8-テトラシアノ-2,3,5,6-テトラフルオロキノジメタン(略称:F₄-TCNQ)、クロラニル等の有機化合物、遷移金属酸化物、元素周期表における第4族乃至第8族に属する金属の酸化物を挙げることができる。具体的には、酸化バナジウム、酸化ニオブ、酸化タンタル、酸化クロム、酸化モリブデン、酸化タングステン、酸化マンガン、酸化レニウムは電子受容性が高いため好ましい。特に、酸化モリブデンは、大気中で安定であり、吸湿性が低く、扱いやすいため、好ましい。

【0229】

20

電子注入バッファ層306

電子注入バッファ層306は、電子注入性の高い物質を含む層である。電子注入バッファ層306は、電荷発生領域308からEL層203への電子の注入を容易にする。電子注入性の高い物質としては、前述の材料を用いることができる。また、電子注入バッファ層306は、前述の電子輸送性の高い物質とドナー性物質を含む構成としても良い。

【0230】

電子リレー層307

電子リレー層307では、電荷発生領域308においてアクセプター性物質が引き抜いた電子を速やかに受け取る。

【0231】

30

電子リレー層307は、電子輸送性の高い物質を含む。該電子輸送性の高い物質としてはフタロシアニン系の材料又は金属-酸素結合と芳香族配位子を有する金属錯体を用いることが好ましい。

【0232】

該フタロシアニン系材料としては、具体的にはCuPc、PhO-VOPc(Vanadyl 2,9,16,23-tetraphenoxy-29H,31H-phthalocyanine)等が挙げられる。

【0233】

該金属-酸素結合と芳香族配位子を有する金属錯体としては、金属-酸素の二重結合を有する金属錯体を用いることが好ましい。金属-酸素の二重結合はアクセプター性を有するため、電子の移動(授受)がより容易になる。

40

【0234】

また、該金属-酸素結合と芳香族配位子を有する金属錯体としては、フタロシアニン系材料が好ましい。

【0235】

なお、上述したフタロシアニン系材料としては、フェノキシ基を有するものが好ましい。具体的にはPhO-VOPcのような、フェノキシ基を有するフタロシアニン誘導体が好ましい。フェノキシ基を有するフタロシアニン誘導体は、溶媒に可溶であるため、発光素子を形成する上で扱いやすい、かつ、成膜に用いる装置のメンテナンスが容易であるという利点を有する。

50

【0236】

電子リレー層307は、上述のドナー性物質をさらに含んでいても良い。電子リレー層307にドナー性物質を含ませることによって、電子の移動が容易となり、発光素子をより低電圧で駆動することが可能になる。

【0237】

該電子輸送性の高い物質や該ドナー性物質のLUMO準位は、電荷発生領域308に含まれるアクセプター性物質のLUMO準位と、電子輸送層304に含まれる電子輸送性の高い物質のLUMO準位（又は電子リレー層307が（電子注入バッファ層306を介して）接するEL層203のLUMO準位）の間となるようにする。LUMO準位は、 -5.0 eV 以上 -3.0 eV 以下とするのが好ましい。なお、電子リレー層307にドナー性物質を含ませる場合、電子輸送性の高い物質として、電荷発生領域308に含まれるアクセプター性物質のアクセプター準位より高いLUMO準位を有する物質を用いることができる。

10

【0238】

なお、上述したEL層203及び中間層207を構成する層は、それぞれ、蒸着法（真空蒸着法を含む）、転写法、印刷法、インクジェット法、塗布法等の方法で形成することができる。

【0239】

本実施の形態は、他の実施の形態と自由に組み合わせることができる。

【0240】

（実施の形態4）

本実施の形態では、本発明の一態様を適用した電子機器及び照明装置の一例について、図5及び図6を用いて説明する。

20

【0241】

本発明の一態様を適用して作製した発光素子を用いて、パッシブマトリクス方式の発光装置や、トランジスタによって発光素子の駆動が制御されたアクティブマトリクス方式の発光装置を作製することができる（以下では、本発明の一態様の発光装置と記す）。該発光装置を電子機器又は照明装置等に適用することができる。本実施の形態の電子機器及び照明装置に用いる発光装置は、本発明の一態様を適用して作製した発光素子を有するため、信頼性が高い。

30

【0242】

本発明の一態様の発光装置を適用した電子機器として、例えば、テレビジョン装置（テレビ、又はテレビジョン受信機ともいう）、コンピュータ用などのモニタ、デジタルカメラ、デジタルビデオカメラ、デジタルフォトフレーム、携帯電話機（携帯電話、携帯電話装置ともいう）、携帯型ゲーム機、携帯情報端末、音響再生装置、パチンコ機などの大型ゲーム機などが挙げられる。これらの電子機器及び照明装置の具体例を図5及び図6に示す。

【0243】

図5（A）は、テレビジョン装置の一例を示している。テレビジョン装置7100は、筐体7101に表示部7102が組み込まれている。表示部7102では、映像を表示することが可能である。本発明の一態様の発光装置は、表示部7102に用いることができる。また、ここでは、スタンド7103により筐体7101を支持した構成を示している。

40

【0244】

テレビジョン装置7100の操作は、筐体7101が備える操作スイッチや、別体のリモコン操作機7111により行うことができる。リモコン操作機7111が備える操作キーにより、チャンネルや音量の操作を行うことができ、表示部7102に表示される映像を操作することができる。また、リモコン操作機7111に、当該リモコン操作機7111から出力する情報を表示する表示部を設ける構成としてもよい。

【0245】

なお、テレビジョン装置7100は、受信機やモデムなどを備えた構成とする。受信機に

50

より一般のテレビ放送の受信を行うことができ、さらにモデムを介して有線又は無線による通信ネットワークに接続することにより、一方向（送信者から受信者）又は双方向（送信者と受信者間、あるいは受信者間同士など）の情報通信を行うことも可能である。

【0246】

図5（B）は、コンピュータの一例を示している。コンピュータ7200は、本体7201、筐体7202、表示部7203、キーボード7204、外部接続ポート7205、ポインティングデバイス7206等を含む。なお、コンピュータは、本発明の一態様の発光装置をその表示部7203に用いることにより作製される。

【0247】

図5（C）は、携帯型ゲーム機の一例を示している。携帯型ゲーム機7300は、筐体7301a及び筐体7301bの2つの筐体で構成されており、連結部7302により、開閉可能に連結されている。筐体7301aには表示部7303aが組み込まれ、筐体7301bには表示部7303bが組み込まれている。また、図5（C）に示す携帯型ゲーム機は、スピーカ部7304、記録媒体挿入部7305、操作キー7306、接続端子7307、センサ7308（力、変位、位置、速度、加速度、角速度、回転数、距離、光、液、磁気、温度、化学物質、音声、時間、硬度、電場、電流、電圧、電力、放射線、流量、湿度、傾度、振動、におい又は赤外線を測定する機能を含むもの）、LEDランプ、マイクロフォン等を備えている。もちろん、携帯型ゲーム機の構成は上述のものに限定されず、少なくとも表示部7303a、表示部7303bの両方、又は一方に本発明の一態様の発光装置を用いていればよく、その他付属設備が適宜設けられた構成とすることができる。図5（C）に示す携帯型ゲーム機は、記録媒体に記録されているプログラム又はデータを読み出して表示部に表示する機能や、他の携帯型ゲーム機と無線通信を行って情報を共有する機能を有する。なお、図5（C）に示す携帯型ゲーム機が有する機能はこれに限定されず、様々な機能を有することができる。

【0248】

図5（D）は、携帯電話機の一例を示している。携帯電話機7400は、筐体7401に組み込まれた表示部7402の他、操作ボタン7403、外部接続ポート7404、スピーカ7405、マイク7406などを備えている。なお、携帯電話機7400は、本発明の一態様の発光装置を表示部7402に用いることにより作製される。

【0249】

図5（D）に示す携帯電話機7400は、表示部7402を指などで触れることで、情報を入力することができる。また、電話を掛ける、或いはメールを作成するなどの操作は、表示部7402を指などで触れることにより行うことができる。

【0250】

表示部7402の画面は主として3つのモードがある。第1は、画像の表示を主とする表示モードであり、第2は、文字等の情報の入力を主とする入力モードである。第3は表示モードと入力モードの2つのモードが混合した表示＋入力モードである。

【0251】

例えば、電話を掛ける、或いはメールを作成する場合は、表示部7402を文字の入力を主とする文字入力モードとし、画面に表示させた文字の入力操作を行えばよい。

【0252】

また、携帯電話機7400内部に、ジャイロ、加速度センサ等の傾きを検出するセンサを有する検出装置を設けることで、携帯電話機7400の向き（縦か横か）を判断して、表示部7402の画面表示を自動的に切り替えるようにすることができる。

【0253】

また、画面モードの切り替えは、表示部7402を触れること、又は筐体7401の操作ボタン7403の操作により行われる。また、表示部7402に表示される画像の種類によって切り替えるようにすることもできる。例えば、表示部に表示する画像信号が動画のデータであれば表示モード、テキストデータであれば入力モードに切り替える。

【0254】

10

20

30

40

50

また、入力モードにおいて、表示部 7402 の光センサで検出される信号を検知し、表示部 7402 のタッチ操作による入力が一定期間ない場合には、画面のモードを入力モードから表示モードに切り替えるように制御してもよい。

【0255】

表示部 7402 は、イメージセンサとして機能させることもできる。例えば、表示部 7402 に掌や指で触れ、掌紋、指紋等を撮像することで、本人認証を行うことができる。また、表示部に近赤外光を発光するバックライト又は近赤外光を発光するセンシング用光源を用いれば、指静脈、掌静脈などを撮像することもできる。

【0256】

図 5 (E) は、2 つ折り可能なタブレット型端末 (開いた状態) の一例を示している。タブレット型端末 7500 は、筐体 7501 a、筐体 7501 b、表示部 7502 a、表示部 7502 b を有する。筐体 7501 a と筐体 7501 b は、軸部 7503 により接続されており、該軸部 7503 を軸として開閉動作を行うことができる。また、筐体 7501 a は、電源 7504、操作キー 7505、スピーカ 7506 等を備えている。なお、タブレット型端末 7500 は、本発明の一態様の発光装置を表示部 7502 a、表示部 7502 b の両方、又は一方に用いることにより作製される。

10

【0257】

表示部 7502 a や表示部 7502 b は、少なくとも一部をタッチパネルの領域とすることができ、表示された操作キーにふれることでデータ入力を行うことができる。例えば、表示部 7502 a の全面にキーボードボタンを表示させてタッチパネルとし、表示部 7502 b を表示画面として用いることができる。

20

【0258】

図 6 (A) は卓上照明器具であり、照明部 7601、傘 7602、可変アーム 7603、支柱 7604、台 7605、電源 7606 を含む。なお、卓上照明器具は、本発明の一態様の発光装置を照明部 7601 に用いることにより作製される。なお、照明器具には天井固定型の照明器具又は壁掛け型の照明器具なども含まれる。

【0259】

図 6 (B) は、本発明の一態様の発光装置を、室内の照明器具 7701 に用いた例である。本発明の一態様の発光装置は大面積化も可能であるため、大面積の照明装置に用いることができる。その他、ロール型の照明器具 7702 として用いることもできる。なお、図 6 (B) に示すように、室内の照明器具 7701 を備えた部屋で、図 6 (A) で説明した卓上照明器具 7703 を併用してもよい。

30

【0260】

本実施の形態は、他の実施の形態と自由に組み合わせることができる。

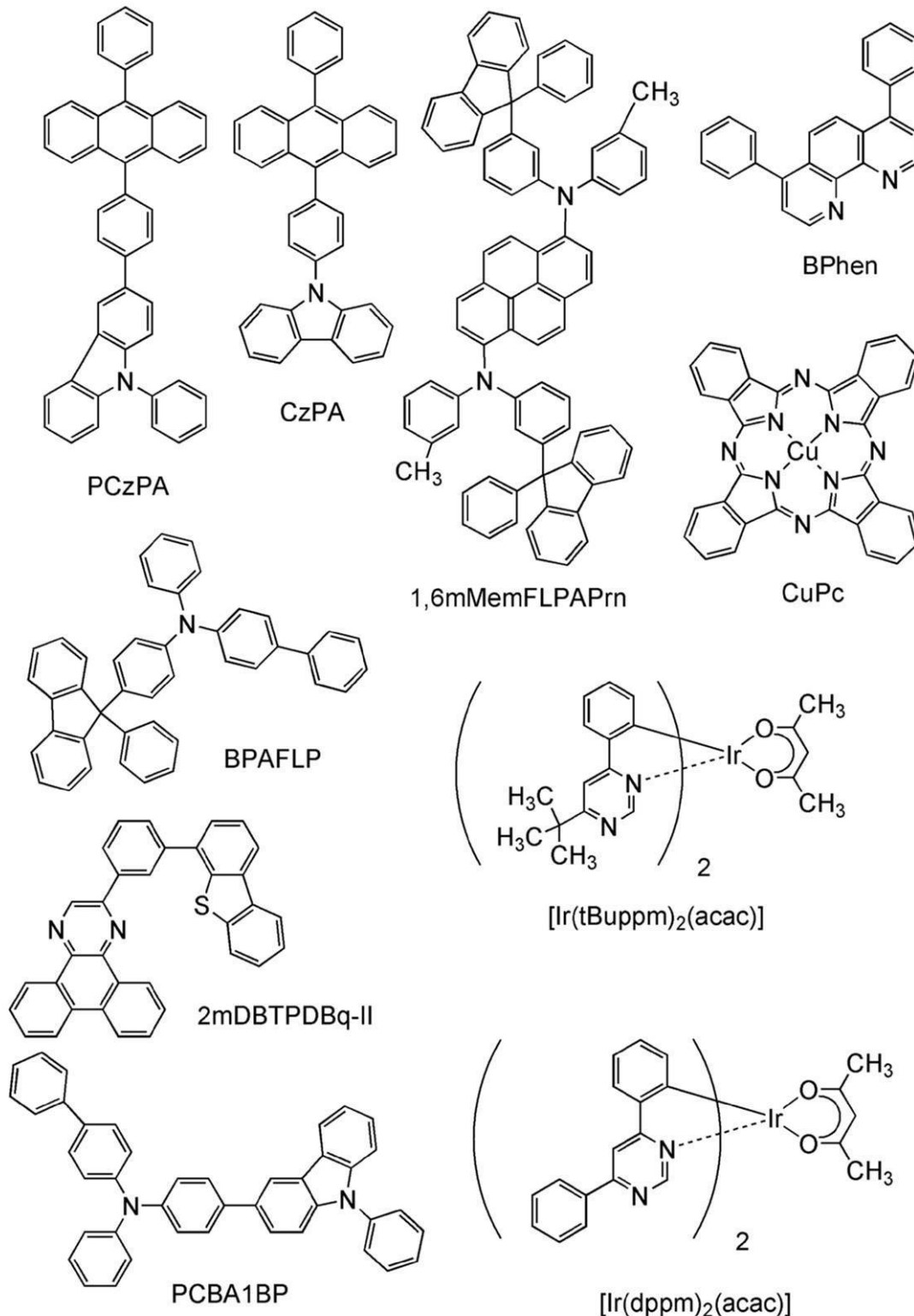
【実施例 1】

【0261】

本実施例では、本発明の一態様の発光素子の作製方法を用いて作製した発光素子について図 7 (A) を用いて説明する。本実施例で用いた材料の化学式を以下に示す。

【0262】

【化 1】



10

20

30

40

【 0 2 6 3 】

本実施例で示す発光素子 1 及び比較発光素子 2 は、基板 1 1 0 0 上に設けられ、第 1 の電極 1 1 0 1 及び第 2 の電極 1 1 0 3 の間に EL 層 1 1 0 2 を備える構成であり、EL 層 1 1 0 2 に含まれる層の材料、膜厚は同様である。発光素子 1 及び比較発光素子 2 は、中間層 5 0 5 に含まれるリチウム膜の作製方法が異なる。以下では、発光素子の作製方法について、2 つの素子で共通の事項を説明した後、2 つの素子で異なる事項（つまり、該リチウム膜の作製方法）を説明する。

【 0 2 6 4 】

50

(発光素子 1 及び比較発光素子 2 の作製方法)

まず、ガラス基板である基板 1 1 0 0 上に、酸化珪素を含むインジウム錫酸化物 (I T S O) をスパッタリング法にて成膜し、第 1 の電極 1 1 0 1 を形成した。なお、その膜厚は 1 1 0 n m とし、電極面積は 2 m m × 2 m m とした。

【 0 2 6 5 】

次に、前処理として、基板表面を洗浄後、窒素雰囲気下、2 0 0 ° で 1 時間の乾燥処理を行った。

【 0 2 6 6 】

その後、 1.0×10^{-4} P a 程度まで内部が減圧された真空蒸着装置に基板を導入し、真空蒸着装置内の加熱室において、基板温度 1 5 0 ° で 1 時間の真空焼成を行った後、基板温度が室温に下がるまで放冷した。

10

【 0 2 6 7 】

次に、第 1 の電極 1 1 0 1 が形成された面が下方となるように、第 1 の電極 1 1 0 1 が形成された基板 1 1 0 0 を真空蒸着装置内に設けられた基板ホルダに固定し、 1.0×10^{-4} P a 程度まで減圧した後、第 1 の電極 1 1 0 1 上に、抵抗加熱を用いた蒸着法により、9 - フェニル - 3 - [4 - (1 0 - フェニル - 9 - アントリル) フェニル] - 9 H - カルバゾール (略称 : P C z P A) と酸化モリブデン (V I) とを共蒸着することで、第 1 の正孔注入層 5 0 1 a を形成した。その膜厚は 3 7 n m とし、P C z P A と酸化モリブデンの比率は、質量比で 2 : 1 (= P C z P A : 酸化モリブデン) となるように調節した。なお、共蒸着法とは、一つの処理室内で、複数の蒸発源から同時に蒸着を行う蒸着法である。

20

【 0 2 6 8 】

次に、第 1 の正孔注入層 5 0 1 a 上に、P C z P A を 3 0 n m となるように成膜し、第 1 の正孔輸送層 5 0 2 a を形成した。

【 0 2 6 9 】

次に、第 1 の正孔輸送層 5 0 2 a 上に、9 - [4 - (1 0 - フェニル - 9 - アントリル) フェニル] - 9 H - カルバゾール (略称 : C z P A) と、N , N ' - ビス (3 - メチルフェニル) - N , N ' - ビス [3 - (9 - フェニル - 9 H - フルオレン - 9 - イル) フェニル] - ピレン - 1 , 6 - ジアミン (略称 : 1 , 6 m M e m F L P A P r n) とを共蒸着することで、第 1 の発光層 5 0 3 a を形成した。その膜厚は、3 0 n m とし、C z P A と 1 , 6 m M e m F L P A P r n の比率は、質量比で 2 : 0 . 0 5 (C z P A : 1 , 6 m M e m F L P A P r n) となるように調節した。

30

【 0 2 7 0 】

次に、第 1 の発光層 5 0 3 a 上に、C z P A を膜厚 5 n m となるように成膜し、さらに、バソフェナントロリン (略称 : B P h e n) を膜厚 1 5 n m となるように成膜することで、第 1 の電子輸送層 5 0 4 a を形成した。

【 0 2 7 1 】

次に、第 1 の電子輸送層 5 0 4 a 上に、リチウム (L i) を 0 . 1 5 n m となるように蒸着し、さらに、銅フタロシアニン (略称 : C u P c) を膜厚 2 n m となるように蒸着することで、中間層 5 0 5 を形成した。上述の通り、中間層 5 0 5 に含まれるリチウム膜の形成方法は、発光素子 1 及び比較発光素子 2 で異なる。詳細は後述する。

40

【 0 2 7 2 】

次に、中間層 5 0 5 上に、4 - フェニル - 4 ' - (9 - フェニルフルオレン - 9 - イル) トリフェニルアミン (略称 : B P A F L P) と酸化モリブデン (V I) とを共蒸着することで、第 2 の正孔注入層 5 0 1 b を形成した。その膜厚は、3 7 n m とし、B P A F L P と酸化モリブデンの比率は、質量比で 2 : 1 (= B P A F L P : 酸化モリブデン) となるように調節した。

【 0 2 7 3 】

次に、第 2 の正孔注入層 5 0 1 b 上に、B P A F L P を 2 0 n m の膜厚となるように成膜し、第 2 の正孔輸送層 5 0 2 b を形成した。

【 0 2 7 4 】

50

次に、2 - [3 - (ジベンゾチオフェン - 4 - イル)フェニル]ジベンゾ[f , h]キノキサリン (略称: 2 m D B T P D B q - I I)、4 - フェニル - 4' - (9 - フェニル - 9 H - カルバゾール - 3 - イル)トリフェニルアミン (略称: P C B A 1 B P)、及び (アセチルアセトナト)ピス (6 - t e r t - ブチル - 4 - フェニルピリミジナト)イリジウム (I I I) (略称: [I r (t B u p p m)₂ (a c a c)]) を共蒸着し、第2の正孔輸送層502b上に第2の発光層503bを形成した。ここで、2 m D B T P D B q - I I、P C B A 1 B P、及び [I r (t B u p p m)₂ (a c a c)] の質量比は、1 . 2 : 0 . 8 : 0 . 1 2 (= 2 m D B T P D B q - I I : P C B A 1 B P : [I r (t B u p p m)₂ (a c a c)]) となるように調節した。また、第2の発光層503bの膜厚は10nmとした。

10

【0275】

さらに、2 m D B T P D B q - I I、P C B A 1 B P、及び (アセチルアセトナト)ピス (4 , 6 - ジフェニルピリミジナト)イリジウム (I I I) (略称: [I r (d p p m)₂ (a c a c)]) を共蒸着し、第2の発光層503b上に第3の発光層503cを形成した。ここで、2 m D B T P D B q - I I、P C B A 1 B P、及び [I r (d p p m)₂ (a c a c)] の質量比は、1 . 6 : 0 . 4 : 0 . 1 2 (= 2 m D B T P D B q - I I : P C B A 1 B P : [I r (d p p m)₂ (a c a c)]) となるように調節した。また、第3の発光層503cの膜厚は30nmとした。

【0276】

次に、第3の発光層503c上に、2 m D B T P D B q - I Iを膜厚15nmとなるように成膜し、さらに、B P h e nを膜厚15nmとなるように成膜することで、第2の電子輸送層504bを形成した。

20

【0277】

次に、第2の電子輸送層504b上に、フッ化リチウム (L i F) を1nmとなるように蒸着することで、電子注入層506を形成した。

【0278】

最後に、陰極として機能する第2の電極1103として、アルミニウムを200nmの膜厚となるように蒸着することで、本実施例の発光素子を作製した。

【0279】

なお、上述した蒸着過程において、蒸着は全て抵抗加熱法を用いた。

30

【0280】

そして、本実施例の発光素子を、窒素雰囲気グローブボックス内において、発光素子が大気に曝されないようにガラス基板により封止する作業を行った後、これらの発光素子の動作特性について測定を行った。なお、測定は室温 (25℃) に保たれた雰囲気で行った。

【0281】

ここで、発光素子1及び比較発光素子2の違いである、中間層505に含まれるリチウム膜の作製方法について図8乃至図10を用いて説明する。

【0282】

図8に、本実施例の発光素子に含まれるリチウム膜を成膜する成膜室内の水 (¹⁸H₂O) の分圧を、四重極質量分析計によって測定した結果を示す。また、図9に、該成膜室内の酸素原子 (¹⁶O) の分圧を、四重極質量分析計によって測定した結果を示す。図8 (A) 及び図9 (A) に、四重極質量分析計によって測定を始めてから3 . 5時間後までの測定結果を示し、図8 (B) 及び図9 (B) に、発光素子1及び比較発光素子2のリチウム膜を作製した期間を含む、2 . 20時間後から3 . 30時間後までの測定結果を示す。

40

【0283】

まず、成膜材料保持部が備える加熱機構 (ここではヒーター) の温度を320℃まで上昇させた後、320℃前後の温度を保持させ、成膜材料 (リチウム) に含まれる水分を除去した。

【0284】

50

次に、約 1.95 時間後から、加熱機構の温度をさらに上昇させ、リチウムが気化する温度以上とした。

【0285】

そして、2.22 時間後から 2.37 時間後の間（図 8（B）及び図 9（B）に示す期間 A）に、比較発光素子 2 のリチウム膜を形成した。期間 A の水の分圧の平均値は、 1.1×10^{-5} Pa であり、酸素原子の分圧の平均値は、 2.38×10^{-6} Pa であった。

【0286】

その後、成膜室内に配置されている基板を、比較発光素子 2 の支持基板から、発光素子 1 の支持基板に交換した。そして、水の分圧が、期間 A の水の分圧の平均値より小さい値を示していることを確認し、3.13 時間後から 3.27 時間後の間（図 8（B）及び図 9（B）に示す期間 B）に、発光素子 1 のリチウム膜を形成した。なお、期間 B の水の分圧の平均値は、 7.8×10^{-6} Pa であり、酸素原子の分圧の平均値は、 1.23×10^{-6} Pa であった。このように、発光素子 1 は、比較発光素子 2 に比べて、水の分圧や酸素原子の分圧が小さい成膜室内で、リチウム膜を形成した。

【0287】

ここで、図 8 及び図 9 に示した水 ($^{18}\text{H}_2\text{O}$) の分圧に対する酸素原子 (^{16}O) の分圧の比 (16/18) を図 10 に示す。また、図 10 には、比較として、水 ($^{18}\text{H}_2\text{O}$) の分圧に対する分子量 17 の水酸化物イオン ($^{17}\text{OH}^-$) の分圧の比 (17/18) も表す。

【0288】

図 10 において、質量数 18 の分圧に対する質量数 17 の分圧の比は、時間によってほとんど変化しなかった。一方、質量数 18 の分圧に対する質量数 16 の分圧の比は、時間によって大きく変化した。これにより、質量数 17 の分圧は、成膜材料に含まれる水分や、成膜室中の水分の影響を受けることが示唆される。一方、質量数 16 の分圧には、該水分だけでなく、成膜材料に含まれる酸素量も影響することが示唆される。この結果から、本発明の一態様では、四重極質量分析計で成膜室内の酸素原子 (^{16}O) の分圧を測定しながら、成膜を行うことが好ましいと言える。

【0289】

以上により得られた発光素子 1 及び比較発光素子 2 の素子構造を表 1 に示す。

【0290】

【表 1】

第1の電極							
ITSO 110nm							
第1の 正孔注入層	第1の 正孔輸送層	第1の発光層		第1の 電子輸送層		中間層	
PCzPA:MoOx (=2:1) 37nm	PCzPA 30nm	CzPA:1.6mMemFLPAPrn (=2:0.05) 30nm		CzPA 5nm	BPhen 15nm	Li 0.15nm	CuPc 2nm
第2の 正孔注入層	第2の 正孔輸送層	第2の発光層		第3の発光層			
BPAFLP:MoOx (=2:1) 37nm	BPAFLP 20nm	2mDBTPDBq-II:PCBA1BP :[Ir(tBuppm)2(acac)] (=1.2:0.8:0.12) 10nm		2mDBTPDBq-II:PCBA1BP :[Ir(dppm)2(acac)] (=1.6:0.4:0.12) 30nm			
第2の電子輸送層		電子注入層	第2の電極				
2mDBTPDBq-II 15nm		BPhen 15nm	LiF 1nm	Al 200nm			

【0291】

発光素子 1 及び比較発光素子 2 の輝度 - 電流効率特性を図 11（A）に示す。図 11（A）において、横軸は輝度 (cd/m^2)、縦軸は電流効率 (cd/A) を表す。また、電

圧 - 電流特性を図 1 1 (B) に示す。図 1 1 (B) において、横軸は電圧 (V)、縦軸は電流 (m A) を表す。本実施例の発光素子に 0 . 1 m A の電流を流した際の発光スペクトルを、図 1 2 (A) に示す。図 1 2 (A) において、横軸は波長 (n m)、縦軸は発光強度 (任意単位) を表す。

【 0 2 9 2 】

また、各発光素子における輝度 1000 cd/m^2 付近のときの電圧 (V)、電流密度 (mA/cm^2)、C I E 色度座標 (x , y)、輝度 (cd/m^2)、電流効率 (cd/A)、パワー効率 (lm/W) を表 2 に示す。

【 0 2 9 3 】

【 表 2 】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm^2)	色度 (x, y)	輝度 (cd/m^2)	電流効率 (cd/A)	パワー効率 (lm/W)
発光素子1	5.9	1.38	(0.40, 0.39)	900	66	35
比較発光素子2	6.0	1.66	(0.39, 0.40)	1100	65	34

【 0 2 9 4 】

図 1 1 (A) (B) より、発光素子 1 及び比較発光素子 2 は、輝度 - 電流効率特性及び電圧 - 電流特性にほとんど差が見られなかった。また、図 1 2 (A) より、発光素子 1 及び比較発光素子 2 は、ほとんど同様の発光スペクトルを示した。

【 0 2 9 5 】

次に、発光素子 1 及び比較発光素子 2 の信頼性試験を行った。信頼性試験の結果を図 1 2 (B) に示す。図 1 2 (B) において、縦軸は初期輝度を 100% とした時の規格化輝度 (%) を示し、横軸は素子の駆動時間 (h) を示す。信頼性試験は、室温で行い、初期輝度を 5000 cd/m^2 に設定し、電流密度一定の条件で本実施例の発光素子を駆動した。図 1 2 (B) から、発光素子 1 の 2300 時間後の輝度は初期輝度の 76% を保ち、比較発光素子 2 の 1500 時間後の輝度は初期輝度の 72% を保っていた。この信頼性試験の結果から、発光素子 1 は比較発光素子 2 に比べて、長寿命であることが明らかとなった。

【 0 2 9 6 】

発光素子 1 と比較発光素子 2 の作製工程では、リチウム膜の形成時の、成膜室の環境 (水の分圧や酸素原子の分圧) が異なった。また、比較発光素子 2 では、リチウム膜を形成する期間 (期間 A) の前に、成膜材料を加熱し気化させる期間が無かった。一方、本発明の一態様を適用した発光素子 1 では、リチウム膜を形成する期間 (期間 B) の前に、成膜材料を加熱し気化させる期間 (期間 A) があった。そして、期間 B の開始時、成膜室内の水の分圧は、期間 A における水の分圧の平均値より小さい値であった。また、期間 B の開始時、成膜室内の酸素原子の分圧は、期間 A における酸素原子の分圧の平均値より小さい値であった。

【 0 2 9 7 】

発光素子 1 と比較発光素子 2 で信頼性試験の結果に差が出たのは、上記リチウム膜の形成時の条件の違いによると考えられる。本実施例より、本発明の一態様を適用することで、長寿命の発光素子を作製できることが示された。

【 実施例 2 】

【 0 2 9 8 】

本実施例では、本発明の一態様の発光素子の作製方法を用いて作製した発光素子について図 7 (B) を用いて説明する。本実施例で用いた材料は、実施例 1 で示した材料であるため、化学式については省略する。

【 0 2 9 9 】

本実施例で示す発光素子 3 及び比較発光素子 4 は、基板 1100 上に設けられ、第 1 の電

10

20

30

40

50

極 1 1 0 1 及び第 2 の電極 1 1 0 3 の間に E L 層 1 1 0 2 を備える構成であり、E L 層 1 1 0 2 に含まれる層の材料、膜厚は同様である。

【0300】

発光素子 3 及び比較発光素子 4 が備える一対の電極は、実施例 1 での作製条件（材料、膜厚等）と同様である。また、発光素子 3 及び比較発光素子 4 が備える E L 層 1 1 0 2 は、正孔注入層 5 0 1、正孔輸送層 5 0 2、発光層 5 0 3、電子輸送層 5 0 4、及び電子注入層 5 0 6 からなる。

【0301】

正孔注入層 5 0 1 は、実施例 1 で示した第 1 の正孔注入層 5 0 1 a と同様の材料からなり、膜厚は 5 0 nm である。発光素子 3 及び比較発光素子 4 は、正孔注入層 5 0 1 の作製方法が異なる。

10

【0302】

正孔輸送層 5 0 2、発光層 5 0 3、電子輸送層 5 0 4、及び電子注入層 5 0 6 は、それぞれ、実施例 1 での第 1 の正孔輸送層 5 0 2 a、第 1 の発光層 5 0 3 a、第 1 の電子輸送層 5 0 4 a、及び電子注入層 5 0 6 の作製条件（材料、膜厚等）と同様である。

【0303】

以下では、発光素子 3 及び比較発光素子 4 の違いである、正孔注入層 5 0 1 の作製方法について図 1 3 及び図 1 4 を用いて説明する。

【0304】

図 1 3 及び図 1 4 に、本実施例の発光素子に含まれる正孔注入層 5 0 1 を成膜する成膜室内の水（ $^1\text{H}_2\text{O}$ ）の分圧を、四重極質量分析計によって測定した結果を示す。図 1 3 に、四重極質量分析計によって測定を始めてから 3 . 0 時間後までの測定結果を示し、図 1 4 (A) に、比較発光素子 4 の正孔注入層 5 0 1 を作製した期間を含む、0 . 7 0 時間後から 0 . 9 0 時間後までの測定結果を示し、図 1 4 (B) に、発光素子 3 の正孔注入層 5 0 1 を作製した期間を含む、2 . 7 5 時間後から 2 . 9 5 時間後までの測定結果を示す。

20

【0305】

まず、成膜材料保持部が備える加熱機構（ここではヒーター）の温度を 1 5 0 まで上昇させた後、加熱機構の温度をさらに上昇させ、PCzPA 及び酸化モリブデンが気化する温度以上とした。

30

【0306】

そして、0 . 7 8 時間後から 0 . 8 3 時間後の間（図 1 4 (A) に示す期間 C）に、比較発光素子 4 の正孔注入層を形成した。期間 C の水の分圧の平均値は、 $1 . 1 9 \times 10^{-4}$ Pa であった。

【0307】

その後、成膜室内に配置されている基板を、比較発光素子 4 の支持基板から、発光素子 3 の支持基板に交換した。そして、水の分圧が、期間 C の水の分圧の平均値より小さい値を示していることを確認し、2 . 8 3 時間後から 2 . 8 8 時間後の間（図 1 4 (B) に示す期間 D）に、発光素子 3 の正孔注入層を形成した。なお、期間 D の水の分圧の平均値は、 $9 . 1 8 \times 10^{-5}$ Pa であった。このように、発光素子 3 は、比較発光素子 4 に比べて、水の分圧が小さい成膜室内で、正孔注入層を形成した。

40

【0308】

以上により得られた発光素子 3 及び比較発光素子 4 の素子構造を表 3 に示す。

【0309】

【表 3】

第1の電極	正孔注入層	正孔輸送層	発光層	電子輸送層		電子注入層	第2の電極
ITO 110nm	PCzPA:MoOx (=2:1) 50nm	PCzPA 30nm	CzPA:1,6mMemFLPAPrn (=2:0.05) 30nm	CzPA 5nm	BPhen 15nm	LiF 1nm	Al 200nm

【0310】

発光素子3及び比較発光素子4の輝度-電流効率特性を図15(A)に示す。図15(A)において、横軸は輝度(cd/m^2)、縦軸は電流効率(cd/A)を表す。また、電圧-電流特性を図15(B)に示す。図15(B)において、横軸は電圧(V)、縦軸は電流(mA)を表す。本実施例の発光素子に0.1mAの電流を流した際の発光スペクトルを、図16に示す。図16において、横軸は波長(nm)、縦軸は発光強度(任意単位)を表す。

10

【0311】

また、各発光素子における輝度1000 cd/m^2 付近のときの電圧(V)、電流密度(mA/cm^2)、CIE色度座標(x、y)、輝度(cd/m^2)、電流効率(cd/A)、パワー効率(lm/W)を表4に示す。

【0312】

【表 4】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm^2)	色度(x, y)	輝度 (cd/m^2)	電流効率 (cd/A)	パワー効率 (lm/W)
発光素子3	3.1	13.7	(0.14, 0.16)	1100	7.7	7.8
比較発光素子4	3.1	11.9	(0.14, 0.16)	900	7.3	7.4

20

【0313】

図15(A)(B)より、発光素子3及び比較発光素子4は、輝度-電流効率特性及び電圧-電流特性にほとんど差が見られなかった。また、図16より、発光素子3及び比較発光素子4は、ほとんど同様の発光スペクトルを示した。

30

【0314】

次に、発光素子3及び比較発光素子4の信頼性試験を行った。信頼性試験の結果を図17に示す。図17において、縦軸は初期輝度を100%とした時の規格化輝度(%)を示し、横軸は素子の駆動時間(h)を示す。信頼性試験は、室温で行い、初期輝度を1000 cd/m^2 に設定し、電流密度一定の条件で本実施例の発光素子を駆動した。図17から、比較発光素子4の570時間後の輝度は、初期輝度の70%未満であった。一方、発光素子3の1800時間後の輝度は初期輝度の86%を保っていた。この信頼性試験の結果から、発光素子3は比較発光素子4に比べて、長寿命であることが明らかとなった。

【0315】

発光素子3と比較発光素子4の作製工程では、正孔注入層の形成時の、成膜室の環境(水の分圧)が異なった。また、比較発光素子4では、正孔注入層を形成する期間(期間C)の前に、成膜材料を加熱し気化させる期間が無かった。一方、本発明の一態様を適用した発光素子3では、正孔注入層を形成する期間(期間D)の前に、成膜材料を加熱し気化させる期間(期間C)があった。そして、期間Dの開始時、成膜室内の水の分圧は、期間Cにおける水の分圧の平均値より小さい値であった。

40

【0316】

発光素子3と比較発光素子4で信頼性試験の結果に差が出たのは、上記正孔注入層の形成時の条件の違いによると考えられる。本実施例より、本発明の一態様を適用することで、長寿命の発光素子を作製できることが示された。

【実施例3】

50

【0317】

本実施例では、本発明の一態様の発光素子の作製方法を用いて作製した発光素子について図7(B)を用いて説明する。本実施例で用いた材料は、実施例1で示した材料であるため、化学式については省略する。

【0318】

本実施例で示す発光素子5及び比較発光素子6は、基板1100上に設けられ、第1の電極1101及び第2の電極1103の間にEL層1102を備える構成であり、EL層1102に含まれる層の材料、膜厚は同様である。

【0319】

発光素子5及び比較発光素子6が備える一对の電極は、実施例1での作製条件(材料、膜厚等)と同様である。また、発光素子5及び比較発光素子6が備えるEL層1102は、正孔注入層501、正孔輸送層502、発光層503、電子輸送層504、及び電子注入層506からなる。

10

【0320】

正孔注入層501、正孔輸送層502、電子輸送層504、及び電子注入層506は、それぞれ、実施例1での第1の正孔注入層501a、第1の正孔輸送層502a、第1の電子輸送層504a、及び電子注入層506の作製条件(材料、膜厚等)と同様である。

【0321】

発光層503は、実施例1で示した第1の発光層503aと同様の材料、膜厚からなる。発光素子5及び比較発光素子6は、発光層503の作製方法が異なる。

20

【0322】

以下では、発光素子5及び比較発光素子6の違いである、発光層503の作製方法について図18及び図19を用いて説明する。

【0323】

図18及び図19に、本実施例の発光素子に含まれる発光層503を成膜する成膜室内の水($^1\text{H}_2\text{O}$)の分圧を、四重極質量分析計によって測定した結果を示す。図18に、四重極質量分析計によって測定を始めてから2.3時間後までの測定結果を示し、図19(A)に、比較発光素子6の発光層503を作製した期間を含む、0.50時間後から0.70時間後までの測定結果を示し、図19(B)に、発光素子5の発光層503を作製した期間を含む、2.10時間後から2.30時間後までの測定結果を示す。

30

【0324】

まず、成膜材料保持部が備える加熱機構(ここではヒーター)の温度を150℃まで上昇させ、150℃前後の温度を保持させた後、加熱機構の温度をさらに上昇させ、CzPA及び1,6mmFLPAPrnが気化する温度以上とした。

【0325】

そして、0.55時間後から0.62時間後の間(図19(A)に示す期間E)に、比較発光素子6の発光層を形成した。期間Eの水の分圧の平均値は、 $1.70 \times 10^{-5} \text{ Pa}$ であった。

【0326】

その後、成膜室内に配置されている基板を、比較発光素子6の支持基板から、発光素子5の支持基板に交換した。そして、水の分圧が、期間Eの水の分圧の平均値より小さい値を示していることを確認し、2.15時間後から2.22時間後の間(図19(B)に示す期間F)に、発光素子5の発光層を形成した。なお、期間Fの水の分圧の平均値は、 $9.88 \times 10^{-6} \text{ Pa}$ であった。このように、発光素子5は、比較発光素子6に比べて、水の分圧が小さい成膜室内で、発光層を形成した。

40

【0327】

以上により得られた発光素子5及び比較発光素子6の素子構造を表5に示す。

【0328】

【表 5】

第1の電極	正孔注入層	正孔輸送層	発光層	電子輸送層		電子注入層	第2の電極
ITO 110nm	PCzPA:MoOx (=2:1) 37 nm	PCzPA 30 nm	CzPA:1,6mMemFLPAPrn (=2:0.05) 30 nm	CzPA 5 nm	BPhen 15 nm	LiF 1nm	Al 200nm

【0329】

発光素子 5 及び比較発光素子 6 の輝度 - 電流効率特性を図 20 (A) に示す。図 20 (A) において、横軸は輝度 (cd/m^2)、縦軸は電流効率 (cd/A) を表す。また、電圧 - 電流特性を図 20 (B) に示す。図 20 (B) において、横軸は電圧 (V)、縦軸は電流 (mA) を表す。本実施例の発光素子に 0.1 mA の電流を流した際の発光スペクトルを、図 21 に示す。図 21 において、横軸は波長 (nm)、縦軸は発光強度 (任意単位) を表す。

10

【0330】

また、各発光素子における輝度 $1000 \text{ cd}/\text{m}^2$ 付近のときの電圧 (V)、電流密度 (mA/cm^2)、CIE 色度座標 (x, y)、輝度 (cd/m^2)、電流効率 (cd/A)、パワー効率 (lm/W) を表 6 に示す。

【0331】

【表 6】

20

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm^2)	色度 (x, y)	輝度 (cd/m^2)	電流効率 (cd/A)	パワー効率 (lm/W)
発光素子5	3.1	18.4	(0.14, 0.16)	1400	7.6	7.7
比較発光素子6	3.1	14.6	(0.14, 0.15)	1100	7.6	7.7

【0332】

図 20 (A) (B) より、発光素子 5 及び比較発光素子 6 は、輝度 - 電流効率特性及び電圧 - 電流特性にほとんど差が見られなかった。また、図 21 より、発光素子 5 及び比較発光素子 6 は、ほとんど同様の発光スペクトルを示した。

30

【0333】

次に、発光素子 5 及び比較発光素子 6 の信頼性試験を行った。信頼性試験の結果を図 22 に示す。図 22 において、縦軸は初期輝度を 100% とした時の規格化輝度 (%) を示し、横軸は素子の駆動時間 (h) を示す。信頼性試験は、室温で行い、初期輝度を $1000 \text{ cd}/\text{m}^2$ に設定し、電流密度一定の条件で本実施例の発光素子を駆動した。図 22 から、比較発光素子 6 の 2500 時間後の輝度は、初期輝度の 76% を保っていた。一方、発光素子 5 の 2500 時間後の輝度は初期輝度の 79% を保っていた。この信頼性試験の結果から、発光素子 5 は比較発光素子 6 に比べて、長寿命であることが明らかとなった。

【0334】

発光素子 5 と比較発光素子 6 の作製工程では、発光層の形成時の、成膜室の環境 (水の分圧) が異なった。また、比較発光素子 6 では、発光層を形成する期間 (期間 E) の前に、成膜材料を加熱し気化させる期間が無かった。一方、本発明の一態様を適用した発光素子 5 では、発光層を形成する期間 (期間 F) の前に、成膜材料を加熱し気化させる期間 (期間 E) があった。そして、期間 F の開始時、成膜室内の水の分圧は、期間 E における水の分圧の平均値より小さい値であった。

40

【0335】

発光素子 5 と比較発光素子 6 で信頼性試験の結果に差が出たのは、上記発光層の形成時の条件の違いによると考えられる。本実施例より、本発明の一態様を適用することで、長寿命の発光素子を作製できることが示された。

【実施例 4】

50

【0336】

本実施例では、本発明の一態様の発光素子の作製方法を用いて作製した発光素子について図7(B)を用いて説明する。本実施例で用いた材料は、実施例1で示した材料であるため、化学式については省略する。

【0337】

本実施例で示す発光素子7及び比較発光素子8は、基板1100上に設けられ、第1の電極1101及び第2の電極1103の間にEL層1102を備える構成であり、EL層1102に含まれる層の材料、膜厚は同様である。

【0338】

発光素子7及び比較発光素子8が備える一对の電極は、実施例1での作製条件(材料、膜厚等)と同様である。また、発光素子7及び比較発光素子8が備えるEL層1102は、正孔注入層501、正孔輸送層502、発光層503、電子輸送層504、及び電子注入層506からなる。

【0339】

正孔注入層501、正孔輸送層502、電子輸送層504、及び電子注入層506は、それぞれ、実施例1での第2の正孔注入層501b、第2の正孔輸送層502b、第2の電子輸送層504b、及び電子注入層506の作製条件(材料、膜厚等)と同様である。ただし、正孔注入層501の膜厚は50nmとした。

【0340】

発光層503は、実施例1で示した第3の発光層503cと同様の材料からなり、膜厚は40nmである。発光素子7及び比較発光素子8は、発光層503の作製方法が異なる。

【0341】

以下では、発光素子7及び比較発光素子8の違いである、発光層503の作製方法について図23及び図24を用いて説明する。

【0342】

図23及び図24に、本実施例の発光素子に含まれる発光層503を成膜する成膜室内の水($^1\text{H}_2\text{O}$)の分圧を、四重極質量分析計によって測定した結果を示す。図23に、四重極質量分析計によって測定を始めてから2.7時間後までの測定結果を示し、図24(A)に、比較発光素子8の発光層503を作製した期間を含む、0.65時間後から0.85時間後までの測定結果を示し、図24(B)に、発光素子7の発光層503を作製した期間を含む、2.50時間後から2.70時間後までの測定結果を示す。

【0343】

まず、成膜材料保持部が備える加熱機構(ここではヒーター)の温度を150℃まで上昇させ、150℃前後の温度を保持させた後、加熱機構の温度をさらに上昇させ、2mDBTPDBq-III、PCBA1BP及び $[\text{Ir}(\text{dppm})_2(\text{acac})]$ が気化する温度以上とした。

【0344】

そして、0.70時間後から0.80時間後の間(図24(A)に示す期間G)に、比較発光素子8の発光層を形成した。期間Gの水の分圧の平均値は、 $1.80 \times 10^{-5} \text{ Pa}$ であった。

【0345】

その後、成膜室内に配置されている基板を、比較発光素子8の支持基板から、発光素子7の支持基板に交換した。そして、水の分圧が、期間Gの水の分圧の平均値より小さい値を示していることを確認し、2.51時間後から2.62時間後の間(図24(B)に示す期間H)に、発光素子7の発光層を形成した。なお、期間Hの水の分圧の平均値は、 $1.24 \times 10^{-5} \text{ Pa}$ であった。このように、発光素子7は、比較発光素子8に比べて、水の分圧が小さい成膜室内で、発光層を形成した。

【0346】

以上により得られた発光素子7及び比較発光素子8の素子構造を表7に示す。

【0347】

10

20

30

40

50

【表 7】

第1の電極	正孔注入層	正孔輸送層	発光層	電子輸送層		電子注入層	第2の電極
ITO 110nm	BPAFLP:MoOx (=2:1) 50 nm	BPAFLP 20 nm	2mDBTPDBq-II:PCBA1BP:[Ir(dppm) ₂ (acac)] (=1.6:0.4:0.12) 40 nm	2mDBTPDBq-II 15 nm	BPhen 15 nm	LiF 1nm	Al 200nm

【0348】

発光素子7及び比較発光素子8の輝度-電流効率特性を図25(A)に示す。図25(A)において、横軸は輝度(cd/m^2)、縦軸は電流効率(cd/A)を表す。また、電圧-電流特性を図25(B)に示す。図25(B)において、横軸は電圧(V)、縦軸は電流(mA)を表す。本実施例の発光素子に0.1mAの電流を流した際の発光スペクトルを、図26に示す。図26において、横軸は波長(nm)、縦軸は発光強度(任意単位)を表す。

10

【0349】

また、各発光素子における輝度 $1000\text{cd}/\text{m}^2$ 付近のときの電圧(V)、電流密度(mA/cm^2)、CIE色度座標(x, y)、輝度(cd/m^2)、電流効率(cd/A)、パワー効率(lm/W)を表8に示す。

【0350】

【表 8】

	電圧(V)	電流密度 (mA/cm^2)	色度(x, y)	輝度 (cd/m^2)	電流効率 (cd/A)	パワー効率 (lm/W)
発光素子7	2.9	1.1	(0.56, 0.44)	800	77	84
比較発光素子8	3.0	1.5	(0.56, 0.44)	1100	76	80

20

【0351】

図25(A)(B)より、発光素子7及び比較発光素子8は、輝度-電流効率特性及び電圧-電流特性にほとんど差が見られなかった。また、図26より、発光素子7及び比較発光素子8は、ほとんど同様の発光スペクトルを示した。

【0352】

次に、発光素子7及び比較発光素子8の信頼性試験を行った。信頼性試験の結果を図27に示す。図27において、縦軸は初期輝度を100%とした時の規格化輝度(%)を示し、横軸は素子の駆動時間(h)を示す。信頼性試験は、室温で行い、初期輝度を $5000\text{cd}/\text{m}^2$ に設定し、電流密度一定の条件で本実施例の発光素子を駆動した。図27から、比較発光素子8の2000時間後の輝度は、初期輝度の77%を保っていた。一方、発光素子7の2400時間後の輝度は初期輝度の81%を保っていた。この信頼性試験の結果から、発光素子7は比較発光素子8に比べて、長寿命であることが明らかとなった。

30

【0353】

発光素子7と比較発光素子8の作製工程では、発光層の形成時の、成膜室の環境(水の分圧)が異なった。また、比較発光素子8では、発光層を形成する期間(期間G)の前に、成膜材料を加熱し気化させる期間が無かった。一方、本発明の一態様を適用した発光素子7では、発光層を形成する期間(期間H)の前に、成膜材料を加熱し気化させる期間(期間G)があった。そして、期間Hの開始時、成膜室内の水の分圧は、期間Gにおける水の分圧の平均値より小さい値であった。

40

【0354】

発光素子7と比較発光素子8で信頼性試験の結果に差が出たのは、上記発光層の形成時の条件の違いによると考えられる。本実施例より、本発明の一態様を適用することで、長寿命の発光素子を作製できることが示された。

【符号の説明】

【0355】

101 ロードロック室

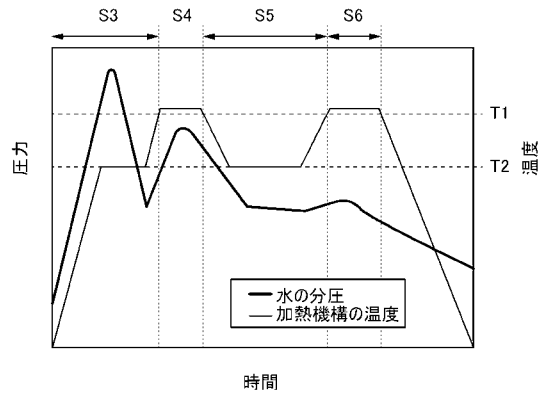
50

1 0 2	前処理室	
1 0 3 a	成膜室	
1 0 3 b	成膜室	
1 0 3 c	成膜室	
1 0 3 d	成膜室	
1 0 3 e	成膜室	
1 0 3 f	成膜室	
1 0 4	受け渡し室	
1 0 5	後処理室	
1 0 6	ロードロック室	10
1 0 7	基板待機室	
1 0 8	搬送室	
1 0 9	基板搬送機構	
1 1 1	成膜材料保持部	
1 1 3	加熱機構	
1 1 5	成膜材料	
1 1 7	加熱機構	
1 1 9	排気機構	
1 2 1	四重極質量分析計	
1 2 3	基板	20
1 2 5	基板保持部	
1 2 7	配管	
1 2 9	排気機構	
1 3 3	撮像手段	
1 3 5	基板回転機構	
1 3 7	膜厚計測機構	
1 4 6	シャッター	
1 4 8	シャッター	
2 0 1	第 1 の電極	
2 0 3	E L 層	30
2 0 3 a	第 1 の E L 層	
2 0 3 b	第 2 の E L 層	
2 0 5	第 2 の電極	
2 0 7	中間層	
3 0 1	正孔注入層	
3 0 2	正孔輸送層	
3 0 3	発光層	
3 0 4	電子輸送層	
3 0 5	電子注入層	
3 0 6	電子注入バッファ層	40
3 0 7	電子リレー層	
3 0 8	電荷発生領域	
4 1 1	成膜材料保持部	
4 1 3	加熱機構	
4 1 5	成膜材料	
4 1 5 a	成膜材料	
4 1 5 b	成膜材料	
4 1 5 c	成膜材料	
4 1 5 d	成膜材料	
4 1 7	加熱機構	50

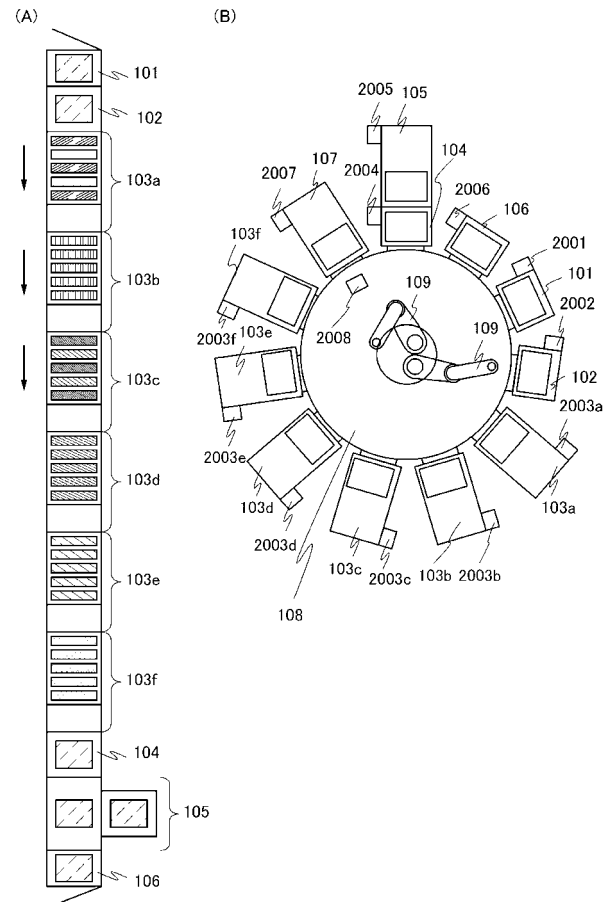
4 1 9	排気機構	
4 2 1	四重極質量分析計	
4 2 3	基板	
4 2 3 a	基板	
4 2 3 b	基板	
4 2 5	基板保持部	
4 2 7	配管	
4 2 9	排気機構	
4 3 3	撮像手段	
4 3 5	基板回転機構	10
4 3 7	膜厚計測機構	
4 3 9	排気機構	
4 4 4	加熱機構	
4 4 6	シャッター	
4 4 8	シャッター	
4 5 0	成膜材料室	
4 5 1	仕切り弁	
4 6 0	成膜室	
5 0 1	正孔注入層	
5 0 1 a	第 1 の正孔注入層	20
5 0 1 b	第 2 の正孔注入層	
5 0 2	正孔輸送層	
5 0 2 a	第 1 の正孔輸送層	
5 0 2 b	第 2 の正孔輸送層	
5 0 3	発光層	
5 0 3 a	第 1 の発光層	
5 0 3 b	第 2 の発光層	
5 0 3 c	第 3 の発光層	
5 0 4	電子輸送層	
5 0 4 a	第 1 の電子輸送層	30
5 0 4 b	第 2 の電子輸送層	
5 0 5	中間層	
5 0 6	電子注入層	
1 1 0 0	基板	
1 1 0 1	第 1 の電極	
1 1 0 2	E L 層	
1 1 0 3	第 2 の電極	
2 0 0 1	排気機構	
2 0 0 2	排気機構	
2 0 0 3 a ~ f	排気機構	40
2 0 0 4	排気機構	
2 0 0 5	排気機構	
2 0 0 6	排気機構	
2 0 0 7	排気機構	
2 0 0 8	排気機構	
7 1 0 0	テレビジョン装置	
7 1 0 1	筐体	
7 1 0 2	表示部	
7 1 0 3	スタンド	
7 1 1 1	リモコン操作機	50

7 2 0 0	コンピユー タ	
7 2 0 1	本体	
7 2 0 2	筐体	
7 2 0 3	表示部	
7 2 0 4	キーボ ード	
7 2 0 5	外部接 続ポ ート	
7 2 0 6	ポイン ティン グデ バイス	
7 3 0 0	携 帯 型 ゲ ー ム 機	
7 3 0 1 a	筐 体	
7 3 0 1 b	筐 体	10
7 3 0 2	連 結 部	
7 3 0 3 a	表 示 部	
7 3 0 3 b	表 示 部	
7 3 0 4	ス ピ ー カ 部	
7 3 0 5	記 録 媒 体 挿 入 部	
7 3 0 6	操 作 キ ー	
7 3 0 7	接 続 端 子	
7 3 0 8	セ ン サ	
7 4 0 0	携 帯 電 話 機	
7 4 0 1	筐 体	20
7 4 0 2	表 示 部	
7 4 0 3	操 作 ボ タ ン	
7 4 0 4	外 部 接 続 ポ ー ト	
7 4 0 5	ス ピ ー カ	
7 4 0 6	マ イ ク	
7 5 0 0	タ ブ レ ッ ト 型 端 末	
7 5 0 1 a	筐 体	
7 5 0 1 b	筐 体	
7 5 0 2 a	表 示 部	
7 5 0 2 b	表 示 部	30
7 5 0 3	軸 部	
7 5 0 4	電 源	
7 5 0 5	操 作 キ ー	
7 5 0 6	ス ピ ー カ	
7 6 0 1	照 明 部	
7 6 0 2	傘	
7 6 0 3	可 変 ア ー ム	
7 6 0 4	支 柱	
7 6 0 5	台	
7 6 0 6	電 源	40
7 7 0 1	照 明 器 具	
7 7 0 2	照 明 器 具	
7 7 0 3	卓 上 照 明 器 具	

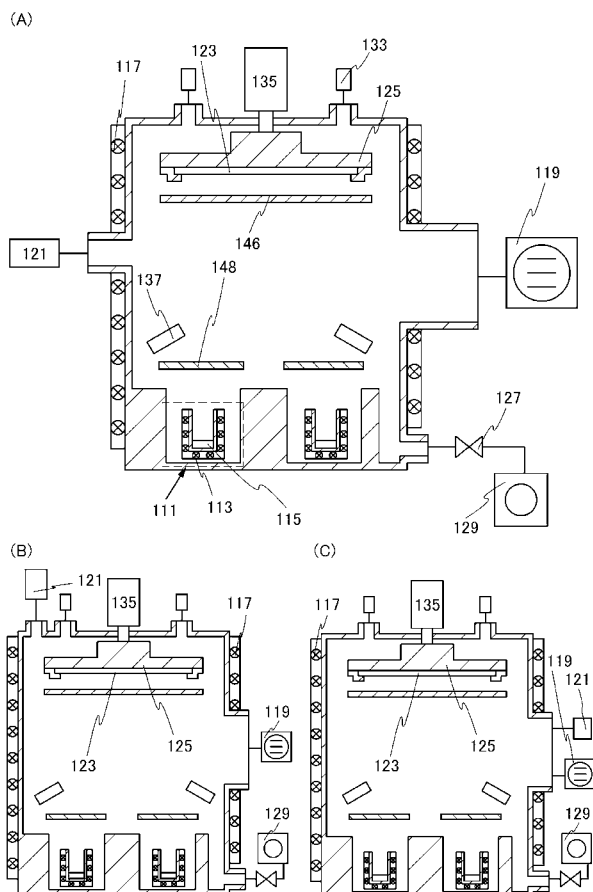
【図 1】



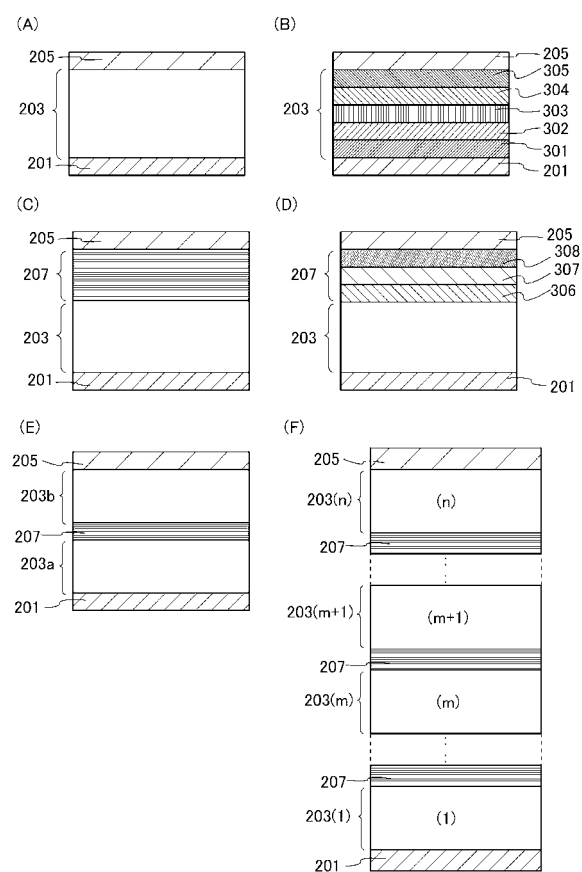
【図 2】



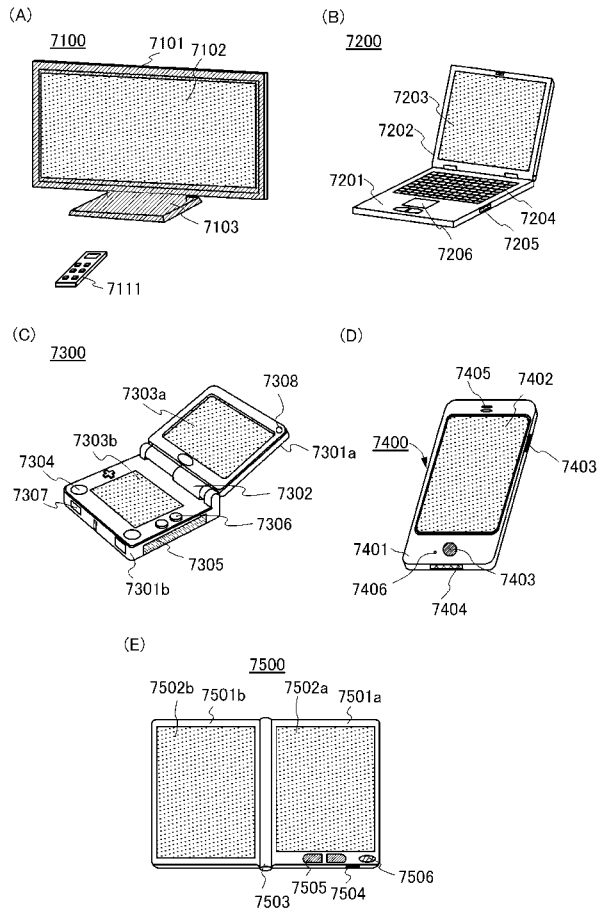
【図 3】



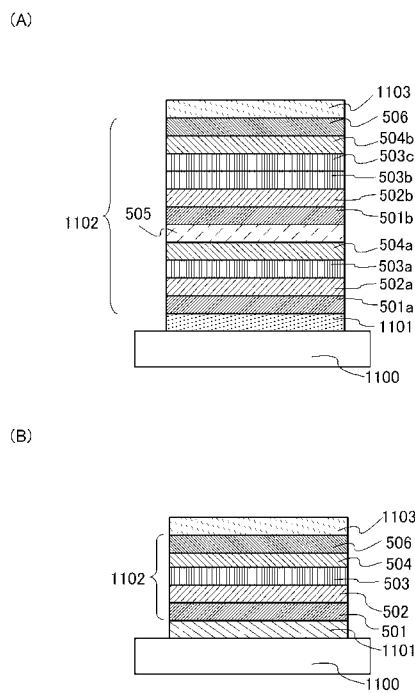
【図 4】



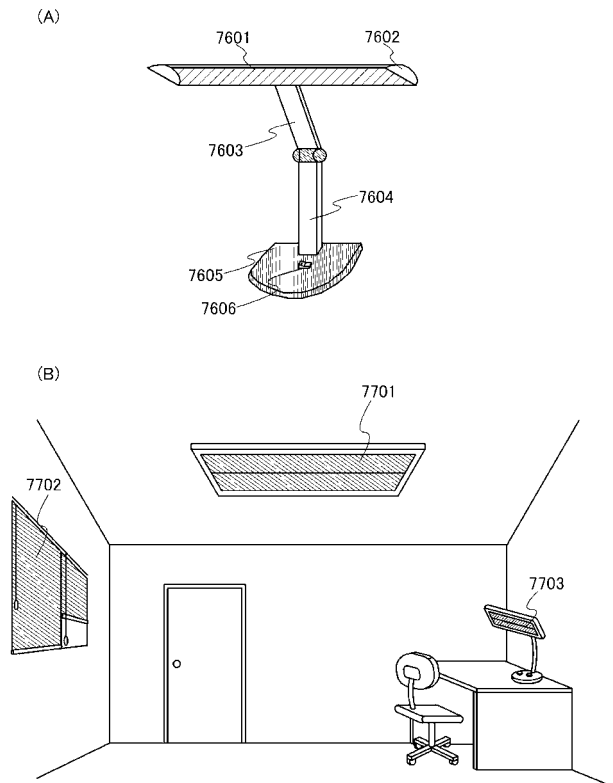
【図 5】



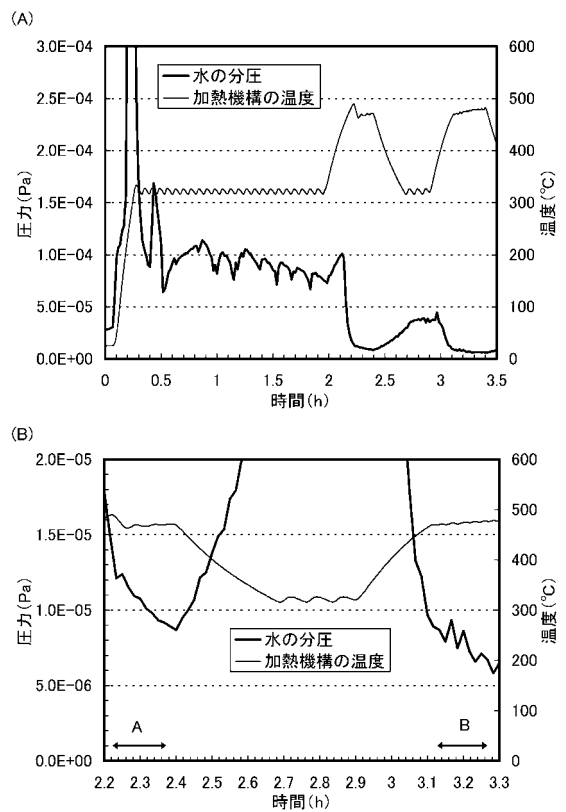
【図 7】



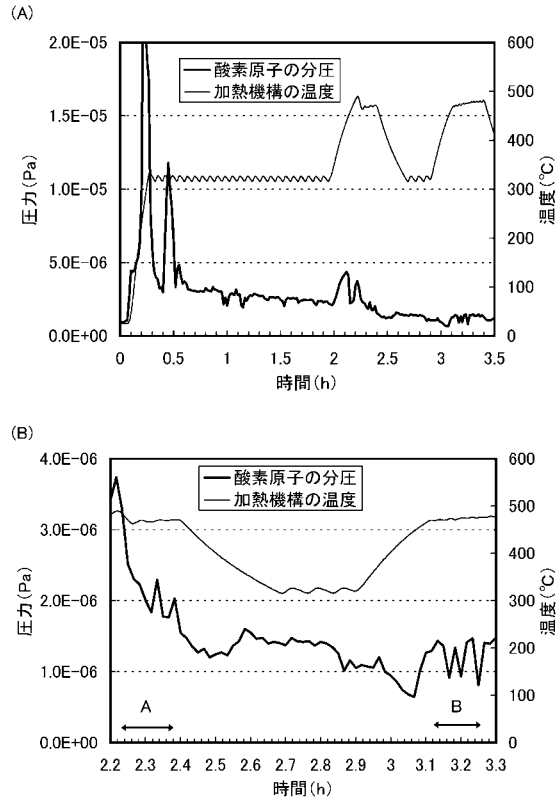
【図 6】



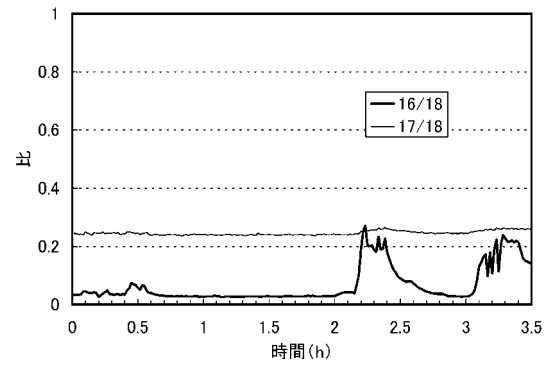
【図 8】



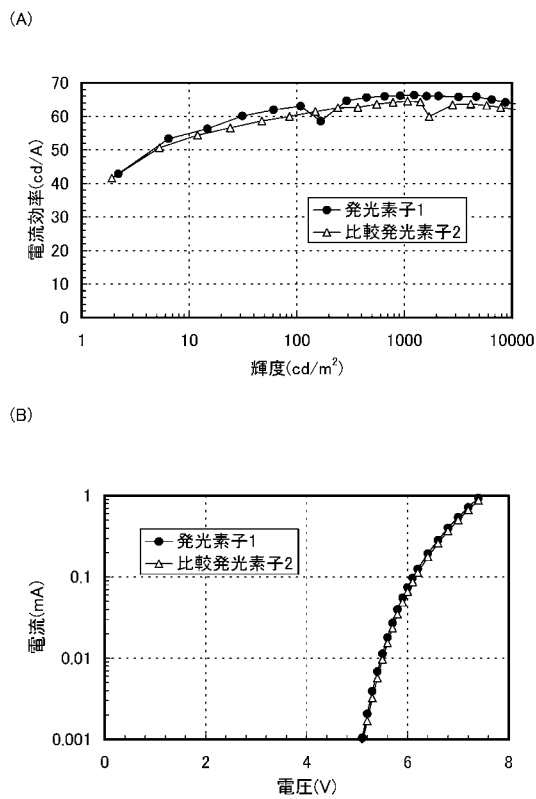
【図 9】



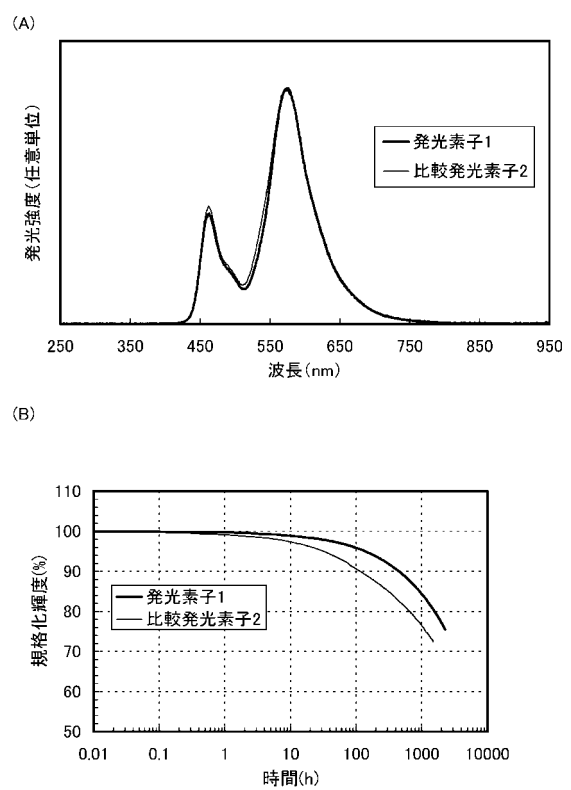
【図 10】



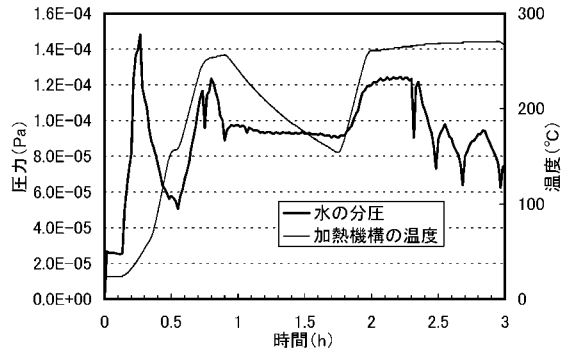
【図 11】



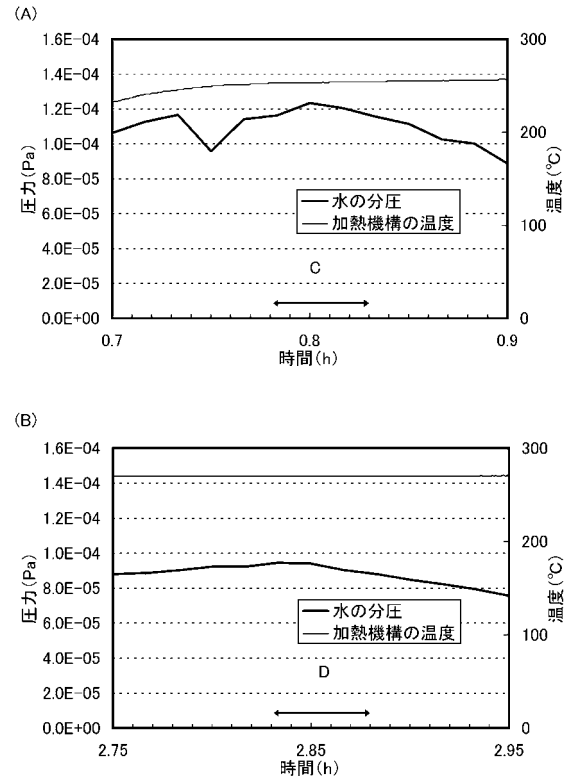
【図 12】



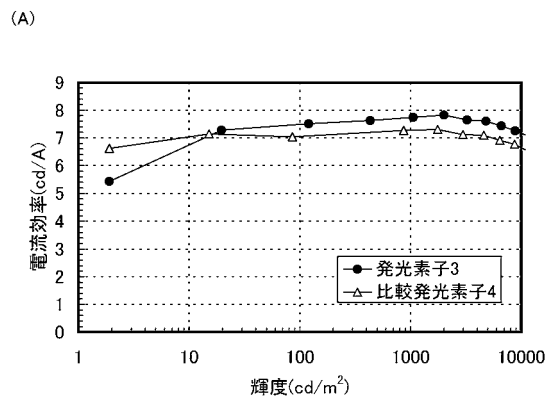
【図 1 3】



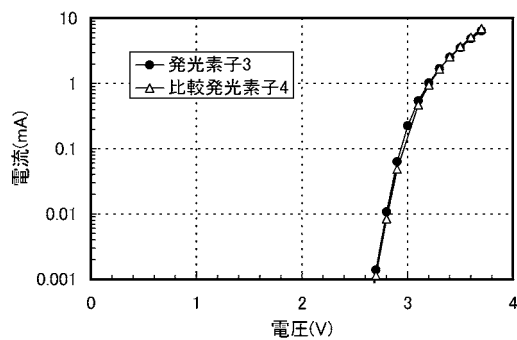
【図 1 4】



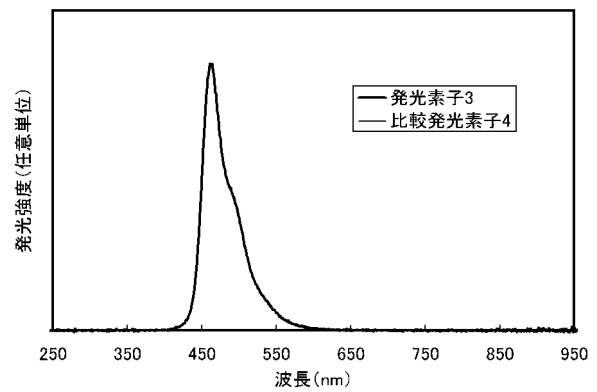
【図 1 5】



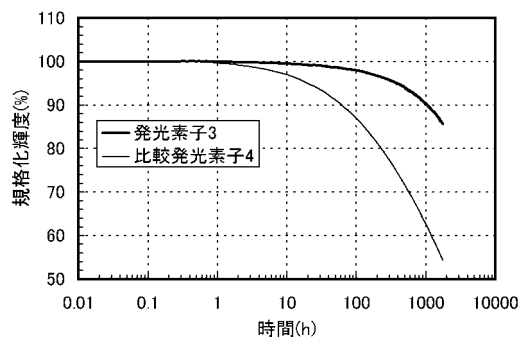
(B)



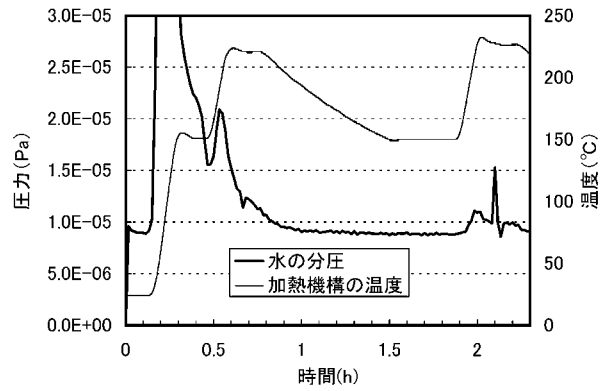
【図 1 6】



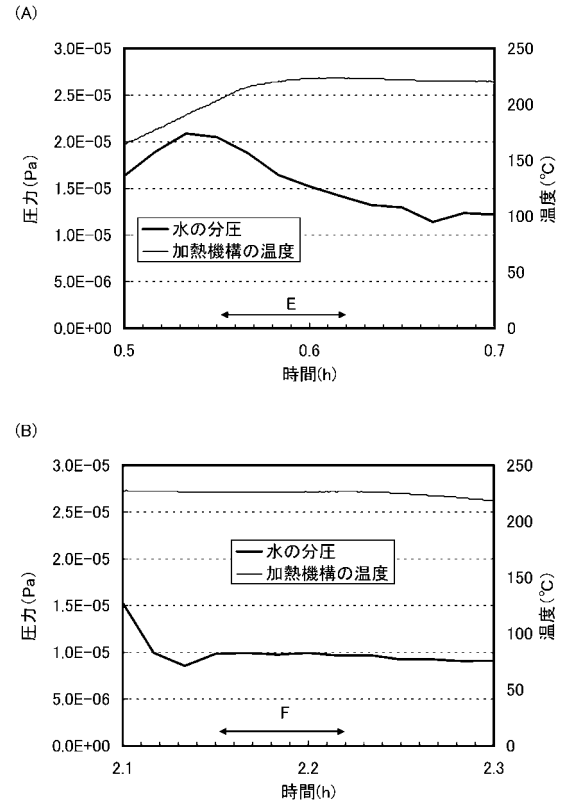
【図 1 7】



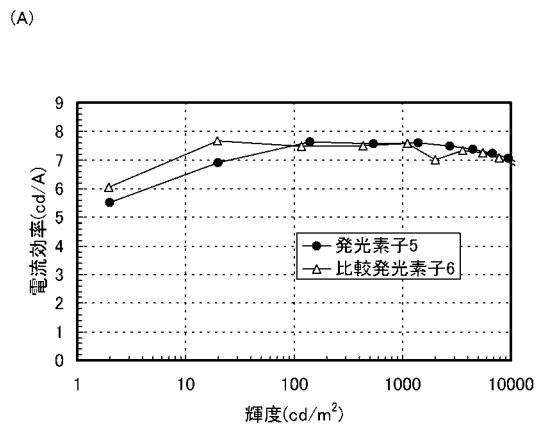
【図 18】



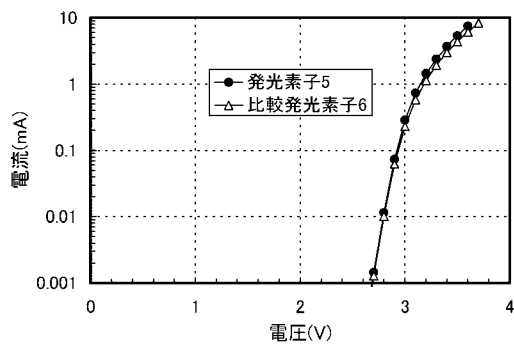
【図 19】



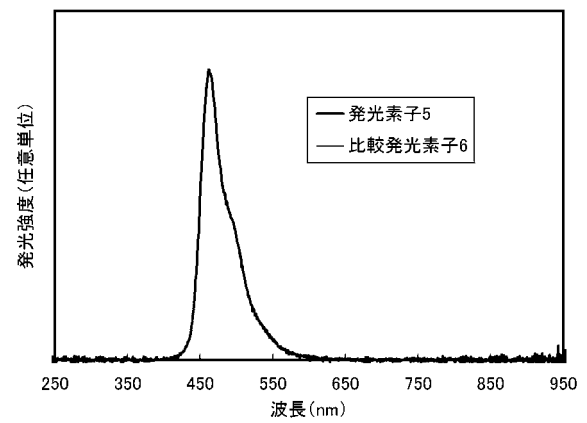
【図 20】



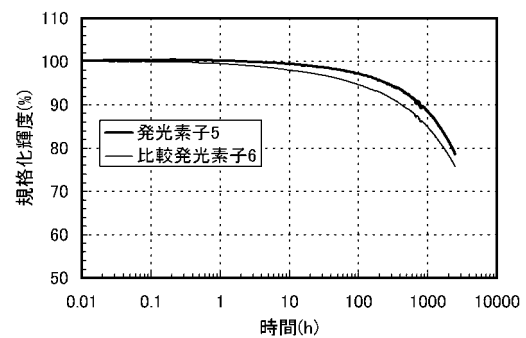
(B)



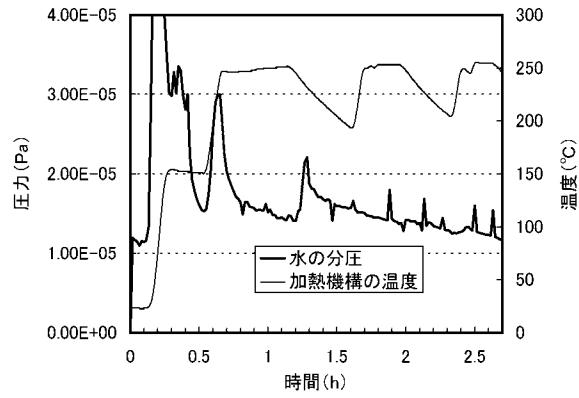
【図 21】



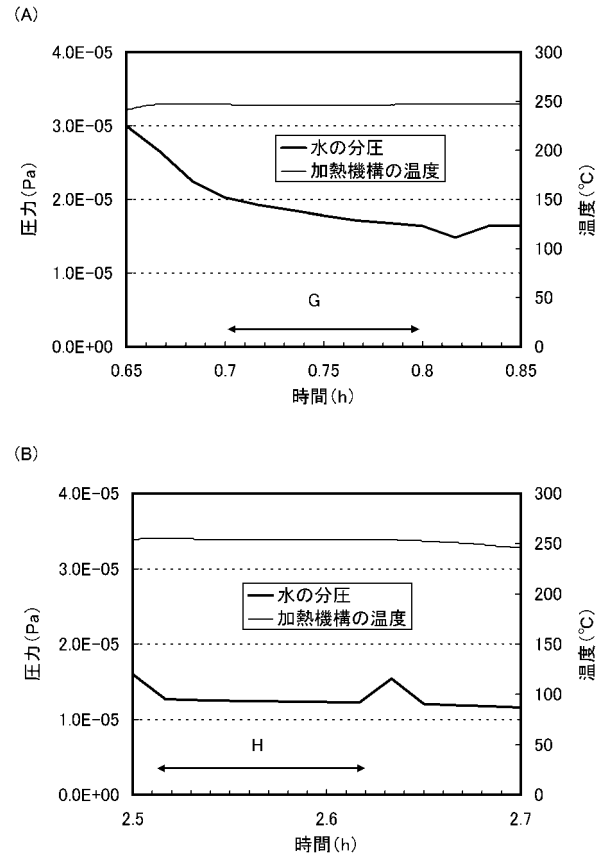
【図 22】



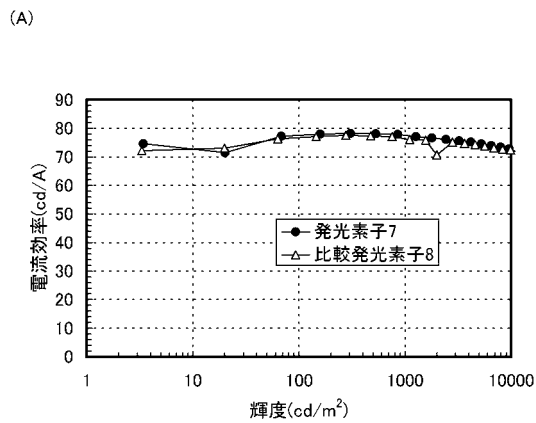
【図 2 3】



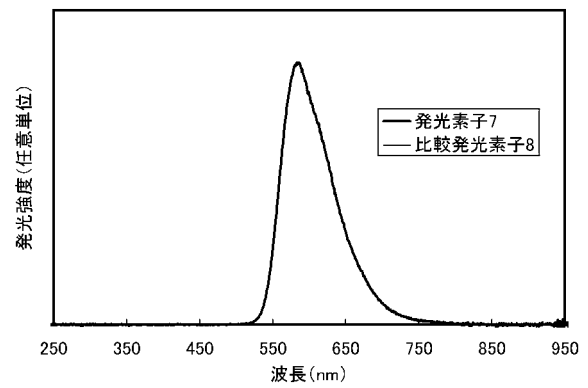
【図 2 4】



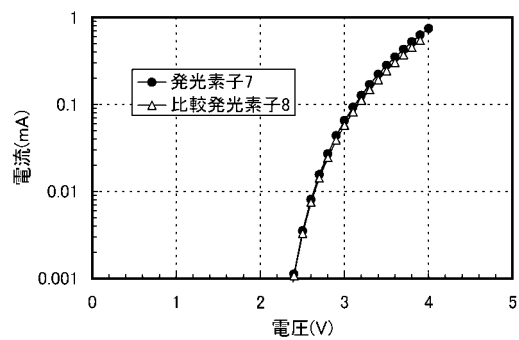
【図 2 5】



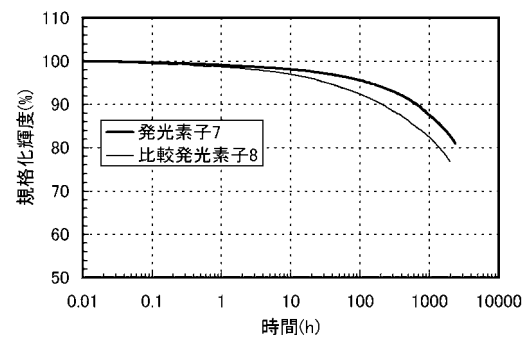
【図 2 6】



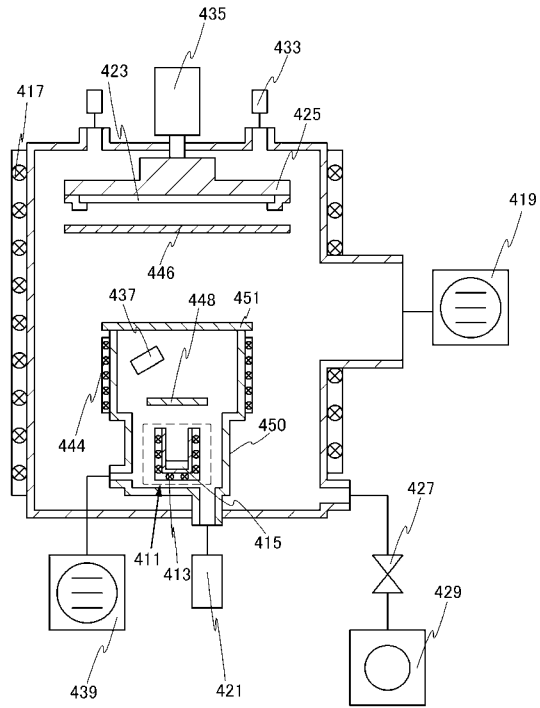
(B)



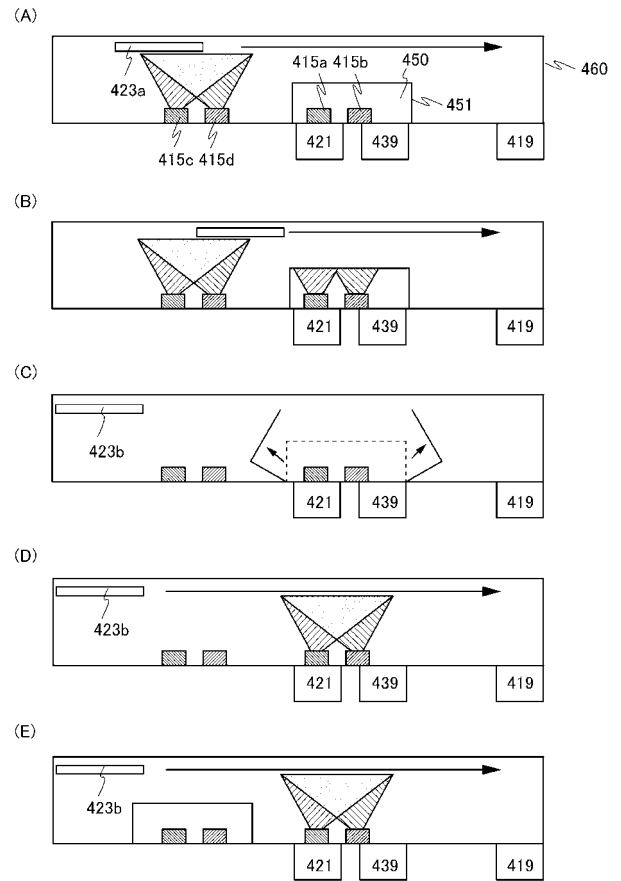
【図 2 7】



【図 28】



【図 29】



フロントページの続き

(72)発明者 高瀬 奈津子

神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内

Fターム(参考) 3K107 AA01 BB01 BB02 BB03 CC21 FF16 GG04 GG26 GG28 GG32