

(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2009-26751

(P2009-26751A)

(43) 公開日 平成21年2月5日(2009.2.5)

(51) Int.Cl.

H05B 33/10 (2006.01)
H01L 51/50 (2006.01)
H05B 33/22 (2006.01)

F 1

H05B 33/10
H05B 33/14
H05B 33/22

テーマコード (参考)

3 K 1 O 7

A
Z

審査請求 未請求 請求項の数 25 O L (全 35 頁)

(21) 出願番号 特願2008-159058 (P2008-159058)
(22) 出願日 平成20年6月18日 (2008.6.18)
(31) 優先権主張番号 特願2007-160895 (P2007-160895)
(32) 優先日 平成19年6月19日 (2007.6.19)
(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 藤井 廣
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 高橋 絵里香
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
F ターム (参考) 3K1O7 AA01 BB01 BB02 CC45 DD22
DD46X DD89 DD91 EE03 FF09
FF13 GG06 GG11 GG24 GG28

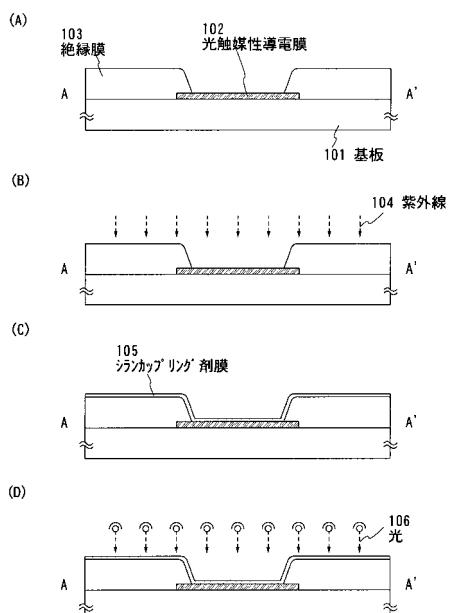
(54) 【発明の名称】パターン形成方法、発光装置の作製方法および発光装置

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】被成膜面の表面特性を制御することにより液滴吐出法を用いたパターン形成の精度を高めると共に、作製される素子の特性にも影響を与えないパターン形成方法、発光装置の作製方法および発光装置を提供する。

【解決手段】光触媒性を有する導電膜(以下、光触媒性導電膜とよぶ)および絶縁膜を有する基板表面を酸化処理した後、シランカップリング剤処理を行ってシランカップリング剤膜を形成することにより基板表面を撥液化させ、さらに光触媒性導電膜を形成する材料のバンドギヤップ以上のエネルギーに相当する波長の光(390nm以下)を照射することによって、光触媒性導電膜表面のシランカップリング剤膜のみを分解し、光触媒性導電膜表面のみを親液化することができる。

【選択図】図1



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

基板上に光触媒性導電膜を形成し、
 前記光触媒性導電膜の端部を覆うように前記基板上に絶縁膜を形成し、
 前記光触媒性導電膜および前記絶縁膜を酸化処理し、
 前記光触媒性導電膜および前記絶縁膜上にシランカップリング剤処理し、
 前記光触媒性導電膜および前記絶縁膜上に光を照射し、
 前記光触媒性導電膜上に溶液を塗布し、
 前記光触媒性導電膜表面における前記溶液に対する接触角を30°以下とすることを特徴とするパターン形成方法。

10

【請求項 2】

基板上に光触媒性導電膜を形成し、
 前記光触媒性導電膜の端部を覆うように前記基板上に絶縁膜を形成し、
 前記光触媒性導電膜および前記絶縁膜を酸化処理し、
 前記光触媒性導電膜および前記絶縁膜上にシランカップリング剤処理し、
 前記光触媒性導電膜および前記絶縁膜上に光を照射し、
 前記光触媒性導電膜上に溶液を塗布し、
 前記光触媒性導電膜表面における前記溶液に対する接触角を30°以下とし、かつ前記光触媒性導電膜表面における前記溶液に対する接触角と、前記絶縁膜表面における前記溶液に対する接触角との差を20°以上とすることを特徴とするパターン形成方法。

20

【請求項 3】

基板上に光触媒性導電膜を形成し、
 前記光触媒性導電膜の端部を覆うように前記基板上に絶縁膜を形成し、
 前記光触媒性導電膜および前記絶縁膜を酸化処理し、
 前記基板をフルオロアルキルシラン雰囲気に曝し、
 前記光触媒性導電膜および前記絶縁膜上に光を照射し、
 前記光触媒性導電膜上に溶液を塗布し、
 前記光触媒性導電膜表面における前記溶液に対する接触角を30°以下とすることを特徴とするパターン形成方法。

30

【請求項 4】

基板上に光触媒性導電膜を形成し、
 前記光触媒性導電膜の端部を覆うように前記基板上に絶縁膜を形成し、
 前記光触媒性導電膜および前記絶縁膜を酸化処理し、
 前記基板をフルオロアルキルシラン雰囲気に曝し、
 前記光触媒性導電膜および前記絶縁膜上に光を照射し、
 前記光触媒性導電膜上に溶液を塗布し、
 前記光触媒性導電膜表面における前記溶液に対する接触角を30°以下とし、かつ前記光触媒性導電膜表面における前記溶液に対する接触角と、前記絶縁膜表面における前記溶液に対する接触角との差を20°以上とすることを特徴とするパターン形成方法。

40

【請求項 5】

請求項1乃至請求項4のいずれか一において、
 前記酸化処理は、酸素に紫外線を照射して得られる活性酸素およびオゾンに晒す処理、または酸化性気体雰囲気下でのプラズマアッティング処理であることを特徴とするパターン形成方法。

【請求項 6】

請求項3乃至請求項5のいずれか一において、
 前記フルオロアルキルシランは、化学式R_n-Si-X(4-n)（但し、n=1~3、Xは加水分解基、Rはフルオロアルキル基）であることを特徴とするパターン形成方法。

【請求項 7】

50

請求項 1 乃至 請求項 6 のいずれか一において、
前記光は、前記光触媒性導電膜を形成する材料のバンドギャップ以上のエネルギーに相当する波長の光であることを特徴とするパターン形成方法。

【請求項 8】

請求項 1 乃至 請求項 7 のいずれか一において、
前記光は、390 nm 以下の波長の光であることを特徴とするパターン形成方法。

【請求項 9】

請求項 1 乃至 請求項 8 のいずれか一において、
前記光触媒性導電膜は、インジウム錫酸化物、酸化インジウムに 2 [%] 以上 20 [%] 以下の酸化亜鉛を混合したインジウム亜鉛酸化物、酸化ケイ素を組成物として有するインジウム錫酸化物、錫をドーピングした酸化インジウム、酸化亜鉛、アルミニウムをドーピングした酸化亜鉛、ガリウムをドーピングした酸化亜鉛、酸化チタン、または酸化錫であることを特徴とするパターン形成方法。

10

【請求項 10】

基板上に薄膜トランジスタを形成し、
前記薄膜トランジスタと電気的に接続された光触媒性導電膜を形成し、
前記光触媒性導電膜の端部を覆うように前記基板上に絶縁膜を形成し、
前記光触媒性導電膜および前記絶縁膜を酸化処理し、
前記光触媒性導電膜および前記絶縁膜上にシランカップリング剤処理し、
前記光触媒性導電膜および前記絶縁膜上に光を照射し、
前記光触媒性導電膜上に溶液を塗布し、導電膜を形成することにより発光素子を形成し、
前記光触媒性導電膜表面における前記溶液に対する接触角を 30° 以下とすることを特徴とする発光装置の作製方法。

20

【請求項 11】

基板上に薄膜トランジスタを形成し、
前記薄膜トランジスタと電気的に接続された光触媒性導電膜を形成し、
前記光触媒性導電膜の端部を覆うように前記基板上に絶縁膜を形成し、
前記光触媒性導電膜および前記絶縁膜を酸化処理し、
前記光触媒性導電膜および前記絶縁膜上にシランカップリング剤処理し、
前記光触媒性導電膜および前記絶縁膜上に光を照射し、
前記光触媒性導電膜上に溶液を塗布し、導電膜を形成することにより発光素子を形成し、
前記光触媒性導電膜表面における前記溶液に対する接触角を 30° 以下とし、かつ前記光触媒性導電膜表面における前記溶液に対する接触角と、前記絶縁膜表面における前記溶液に対する接触角との差を 20° 以上とすることを特徴とする発光装置の作製方法。

30

【請求項 12】

基板上に薄膜トランジスタを形成し、
前記薄膜トランジスタと電気的に接続された光触媒性導電膜を形成し、
前記光触媒性導電膜の端部を覆うように前記基板上に絶縁膜を形成し、
前記光触媒性導電膜および前記絶縁膜を酸化処理し、
前記基板をフルオロアルキルシラン雰囲気に曝し、
前記光触媒性導電膜および前記絶縁膜上に光を照射し、
前記光触媒性導電膜上に溶液を塗布し、導電膜を形成することにより発光素子を形成し、
前記光触媒性導電膜上表面における前記溶液に対する接触角を 30° 以下とすることを特徴とする発光装置の作製方法。

40

【請求項 13】

基板上に薄膜トランジスタを形成し、
前記薄膜トランジスタと電気的に接続された光触媒性導電膜を形成し、

50

前記光触媒性導電膜の端部を覆うように前記基板上に絶縁膜を形成し、
 前記光触媒性導電膜および前記絶縁膜を酸化処理し、
 前記基板をフルオロアルキルシラン雰囲気に曝し、
 前記光触媒性導電膜および前記絶縁膜上に光を照射し、
 前記光触媒性導電膜上に溶液を塗布し、導電膜を形成することにより発光素子を形成し

、
 前記光触媒性導電膜表面における前記溶液に対する接触角を30°以下とし、かつ前記光触媒性導電膜上表面における前記溶液に対する接触角と、前記絶縁膜上表面における前記溶液に対する接触角との差を20°以上とすることを特徴とする発光装置の作製方法。

【請求項14】

請求項10乃至請求項13のいずれか一において、
 前記酸化処理は、酸素に紫外線を照射して得られる活性酸素およびオゾンに晒す処理、または酸化性気体雰囲気下でのプラズマアッシング処理であることを特徴とする発光装置の作製方法。

【請求項15】

請求項12乃至請求項14のいずれか一において、
 前記フルオロアルキルシランは、化学式R_n-Si-X(4-n)(但し、n=1~3、Xは加水分解基、Rはフルオロアルキル基)であることを特徴とする発光装置の作製方法。

【請求項16】

請求項10乃至請求項15のいずれか一において、
 前記光は、前記光触媒性導電膜を形成する材料のバンドギャップ以上のエネルギーに相当する波長の光であることを特徴とする発光装置の作製方法。

【請求項17】

請求項10乃至請求項16のいずれか一において、
 前記光は、390nm以下の波長の光であることを特徴とする発光装置の作製方法。

【請求項18】

請求項10乃至請求項17のいずれか一において、
 前記光触媒性導電膜は、インジウム錫酸化物、酸化インジウムに2[%]以上20[%]以下の酸化亜鉛を混合したインジウム亜鉛酸化物、酸化ケイ素を組成物として有するインジウム錫酸化物、錫をドーピングした酸化インジウム、酸化亜鉛、アルミニウムをドーピングした酸化亜鉛、ガリウムをドーピングした酸化亜鉛、酸化チタン、または酸化錫であることを特徴とする発光装置の作製方法。

【請求項19】

請求項10乃至請求項18のいずれか一において、
 前記溶液は、有機化合物を含む層を形成する材料を含むことを特徴とする発光装置の作製方法。

【請求項20】

請求項10乃至請求項19のいずれか一において、
 前記有機化合物を含む層を形成する材料は、発光性材料、正孔注入性材料、正孔輸送性材料、電子輸送性材料、電子注入性材料であることを特徴とする発光装置の作製方法。

【請求項21】

基板上に形成された薄膜トランジスタと、
 前記薄膜トランジスタと電気的に接続された光触媒性導電膜と、
 前記光触媒性導電膜の端部を覆うように前記基板上に形成された絶縁膜と、
 前記絶縁膜上に形成されたシランカップリング剤膜と、
 前記光触媒性導電膜上に溶液を塗布して形成された有機化合物を含む層と、
 前記シランカップリング剤膜および前記有機化合物を含む層上に形成された導電膜とを有することを特徴とする発光装置。

【請求項22】

10

20

30

40

50

請求項 2 1 において、

前記光触媒性導電膜表面における前記溶液に対する接触角が 30° 以下であることを特徴とする発光装置。

【請求項 2 3】

請求項 2 1 または請求項 2 2 において、

前記光触媒性導電膜表面における前記溶液に対する接触角を 30° 以下とし、かつ前記光触媒性導電膜表面における前記溶液に対する接触角と、前記シランカップリング剤膜表面における前記溶液に対する接触角との差が 20° 以上であることを特徴とする発光装置。

【請求項 2 4】

10

請求項 2 1 乃至請求項 2 3 のいずれか一において、

前記光触媒性導電膜は、インジウム錫酸化物、酸化インジウムに 2 [%] 以上 20 [%] 以下の酸化亜鉛を混合したインジウム亜鉛酸化物、酸化ケイ素を組成物として有するインジウム錫酸化物、錫をドーピングした酸化インジウム、酸化亜鉛、アルミニウムをドーピングした酸化亜鉛、ガリウムをドーピングした酸化亜鉛、酸化チタン、または酸化錫からなることを特徴とする発光装置。

【請求項 2 5】

20

請求項 2 1 乃至請求項 2 4 のいずれか一において、

前記シランカップリング剤膜は、化学式 $R_n - Si - X (4 - n)$ (但し、 $n = 1 \sim 3$ 、 X は加水分解基、 R はフルオロアルキル基) のフルオロアルキルシランからなることを特徴とする発光装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0 0 0 1】

本発明は、被成膜面のぬれ性を制御することにより、選択的な成膜を可能にするパターン形成方法、またこのパターン形成方法により発光素子を有する発光装置を作製する方法、および発光装置に関するものである。

【0 0 0 2】

30

なお、発光素子とは、一対の電極間に有機化合物を含む膜(以下、「有機化合物を含む層」と記す)を設けた構造を有し、電界を加えることで、蛍光又は燐光が得られる素をいう。

【0 0 0 3】

また、発光装置とは、画像表示デバイス、発光デバイス、もしくは光源(照明装置含む)を指す。また、発光装置にコネクター、例えば FPC (Flexible printed circuit)、TAB (Tape Automated Bonding) テープもしくは TCP (Tape Carrier Package) が取り付けられたモジュール、TAB テープや TCP の先にプリント配線板が設けられたモジュール、または発光装置に COG (Chip On Glass) 方式により IC (集積回路) が直接実装されたモジュールも全て発光装置に含むものとする。

【背景技術】

40

【0 0 0 4】

従来より、パターン形成方法の手法の一つとして、インクジェット法などの液滴吐出法が用いられている。具体的には、パターン形成用材料を含んだ液体材料からなる液滴を所望の位置に吐出してパターンを形成するものであり、フォトリソグラフィー工程等を用いることなく様々なパターンが形成可能であり、材料の消費を必要最小限に抑えられるという利点を有している。

【0 0 0 5】

50

液滴吐出法によるパターン形成では、被成膜部分に液体材料を塗布する精度を高めるために、基板上の被成膜部分のみを親液性にし、それ以外の部分を撥液性とする方法が用いられている。

【0006】

その一例として、基板表面にフルオロアルキルシラン（FAS）等を塗布して全面を撥液化した後、金属製のマスクを用いて被成膜部分にのみ紫外線を照射し、被成膜部分を親液化するというパターン形成方法が知られている。（例えば、特許文献1参照。）。

【0007】

また、別の例として、発光素子の有機化合物を含む層をパターン形成する際に一方の電極上に光触媒粒子とバインダからなる光触媒含有層を形成し、電極上にのみ光をパターン照射してバインダの有効成分を分解し、電極上のみを親液化して電極上に有機化合物を含む層を形成するというパターン形成方法も知られている。（例えば、特許文献2参照。）。

10

【0008】

しかし、これらの方法は、部分的に光を照射する為の特定の金属マスクが必要となり、また、パターン照射の為にフォトリソグラフィー技術を用いることから工程が増えるという問題を有している。さらに、後者の例の場合には、光触媒含有層の平滑化を図る為にバインダを增量することにより親液化された電極上に絶縁化されたバインダの成分が残ってしまい、発光素子の電気特性が低下するという問題も有している。

【特許文献1】特開2005-93691号公報

【特許文献2】特開2003-332080号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

20

【0009】

本発明では、被成膜面の表面特性を制御することにより液滴吐出法を用いたパターン形成の精度を高めると共に、特定の金属マスクを用いることなく、また、作製工程を増やすことなく、さらには、作製される素子の特性にも影響を与えないようなパターン形成方法、発光装置の作製方法および発光装置を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0010】

本発明は、同時に被成膜表面に撥液性の部分と親液性の部分とを作り分けることが可能なパターン形成方法である。

30

【0011】

具体的には、光触媒性を有する導電膜（以下、光触媒性導電膜とよぶ）および絶縁膜を有する基板表面を酸化処理した後、シランカップリング剤処理を行ってシランカップリング剤膜を形成することにより基板表面を撥液化させ、さらに光触媒性導電膜を形成する材料のバンドギャップ以上のエネルギーに相当する波長の光（390nm以下の波長の光）を照射することによって、光触媒性導電膜表面のシランカップリング剤膜のみを分解し、光触媒性導電膜表面のみを親液化することができるというパターン形成方法である。これにより、光触媒性導電膜表面に選択的に溶液を塗布することが可能となる。

【0012】

なお、本発明におけるシランカップリング剤処理とは、処理基板をシランカップリング剤霧囲気に曝す、または、シランカップリング剤を処理基板上に塗布することをいう。

40

【0013】

また、シランカップリング剤の代表例としては、フルオロアルキルシラン（FAS）が挙げられる。なお、フルオロアルキルシランは、化学式 $R_n - Si - X (4 - n)$ ($n = 1, 2, 3$) で表される。ここで、Rは、フルオロアルキル基であり、(CF_3) (CF_2) $X (CH_2)^y$ ($X : 0$ 以上 10 以下の整数、 $y : 0$ 以上 4 以下の整数) の構造を持ち、Xはメトキシ基、エトキシ基、アセトキシ基、またはハロゲン原子などの加水分解基である。RまたはXが複数個 Si に結合している場合は、それぞれ全てが同じであっても良いし、異なっていても良い。

【0014】

本発明の構成は、パターン形成方法であって、基板上に光触媒性導電膜を形成し、光触

50

媒性導電膜の端部を覆うように基板上に絶縁膜を形成し、光触媒性導電膜および絶縁膜を酸化処理し、光触媒性導電膜および絶縁膜上にシランカップリング剤処理し、光触媒性導電膜および絶縁膜上に光を照射し、光触媒性導電膜表面において溶液に対する接触角を30°以下、もしくは、光触媒性導電膜表面において溶液に対する接触角を30°以下とし、かつ光触媒性導電膜表面と、絶縁膜表面において溶液に対する接触角の差が20°以上となることを特徴とする。

【0015】

また、本発明の別の構成は、発光装置の作製方法であって、基板上に薄膜トランジスタを形成し、薄膜トランジスタと電気的に接続された光触媒性導電膜を形成し、光触媒性導電膜の端部を覆うように前記基板上に絶縁膜を形成し、光触媒性導電膜および絶縁膜を酸化処理し、光触媒性導電膜および絶縁膜上にシランカップリング剤処理し、光触媒性導電膜および絶縁膜上に光を照射し、光触媒性導電膜表面において溶液に対する接触角を30°以下、もしく光触媒性導電膜表面において溶液に対する接触角を30°以下とし、かつ光触媒性導電膜表面と、絶縁膜表面において溶液に対する接触角の差を20°以上とし、光触媒性導電膜上に溶液を塗布し、さらに導電膜を形成することにより発光素子を形成することを特徴とする。

10

【0016】

なお、上記各構成により基板上の光触媒性導電膜表面のみを親液化させた後、溶液を塗布することで、光触媒性導電膜上への選択的な溶液塗布が可能となる。

20

【0017】

また、上記各構成において、酸化処理は、酸素に紫外線を照射して得られる活性酸素およびオゾンに晒す処理、または酸化性気体雰囲気下でのプラズマアッシング処理であることを特徴とする。

【0018】

また、上記各構成における光触媒性導電膜には、インジウム錫酸化物、酸化インジウムに2[%]以上20[%]以下の酸化亜鉛を混合したインジウム亜鉛酸化物、酸化ケイ素を組成物として有するインジウム錫酸化物、錫をドーピングした酸化インジウム、酸化亜鉛、アルミニウムをドーピングした酸化亜鉛、ガリウムをドーピングした酸化亜鉛、酸化チタン、酸化錫等を用いることができる。

30

【0019】

上記構成において、溶液に含まれる溶媒としては、トルエン、ベンゼン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、クロロホルム、テトラリン、キシレン、アニソール、ジクロロメタン、ブチルラクトン、ブチルセルソルブ、シクロヘキサン、NMP(N-メチル-2-ピロリドン)、ジメチルスルホキシド、シクロヘキサン、ジオキサンまたは、THF(テトラヒドロフラン)、水等が挙げられる。

【0020】

なお、本発明において、発光素子を形成する際に溶液を塗布する場合には、溶液を塗布することによって発光素子を構成する有機化合物を含む層の一部または全部が形成される。従って、溶液には、発光性材料、正孔注入性材料、正孔輸送性材料、電子輸送性材料、電子注入性材料等の有機化合物を含む層を形成する材料が含まれた構成とすることができる。

40

【0021】

さらに、本発明には、上記構成により作製された発光装置も含めるものとする。

【発明の効果】

【0022】

本発明によれば、特定の金属マスクを用いることなく、また作製工程を増やすことなく被成膜面を選択的に親液化および撥液化させることにより、精度の高いパターン形成を容易に実現することができる。従って、材料のロスを削減することができるだけでなく、形状を加工するための金属マスクやフォトリソグラフィ工程なども必要としないために工程も簡略化することができ、低コスト化を図ることができる。

50

【発明を実施するための最良の形態】

【0023】

以下、本発明の実施の態様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が可能である。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。

【0024】

(実施の形態1)

本実施の形態1では、本発明のパターン形成方法として、基板表面に撥液性の部分と親液性の部分とを作り分けることによって発光素子を作製する方法について、説明する。

10

【0025】

図1(A)に示すように、基板101上に光触媒性導電膜102を形成する。なお、光触媒性導電膜102は、後に形成される発光素子の一方の電極として機能する。

20

【0026】

基板101には、ガラス基板、石英基板、アルミナなどのセラミック等絶縁物質で形成される基板、プラスチック基板、シリコンウェハ、金属板等を用いることができる。また、光触媒性導電膜102には、インジウム錫酸化物(ITO: indium tin oxide)、酸化インジウムに2[%]以上20[%]以下の酸化亜鉛(ZnO)を混合したインジウム亜鉛酸化物(IZO: indium zinc oxide)、酸化ケイ素を組成物として有するインジウム錫酸化物、錫をドーピングした酸化インジウム、酸化亜鉛(ZnO)、アルミニウムやガリウムをドーピングした酸化亜鉛(AlZnO、GaZnO)、酸化チタン(TiO_x)、酸化錫(SnO₂)等を用いることができる。

20

【0027】

光触媒性導電膜102は、スパッタリング法、CVD法、蒸着法、液滴吐出法、インクジェット法、スピンドルティング法等を用いて成膜した後、フォトリソグラフィー法などによりパターンングして所望の形状にする。また、膜厚は、10nm以上500nm以下とするのが好ましい。

30

【0028】

また、基板101、および光触媒性導電膜102の端部を覆って、絶縁膜103を形成する。なお、絶縁膜103には、酸化珪素、窒化珪素、酸化窒化珪素、または窒化酸化珪素等のような無機物からなる膜や、アクリル樹脂、ポリイミド樹脂、ポリアミド樹脂、またはシロキサン樹脂(シロキサンは、シリコン(Si)と酸素(O)との結合で骨格構造が構成される。)等の有機物からなる膜を用いることができる。

30

【0029】

次に、酸素雰囲気下で基板101上の光触媒性導電膜102および絶縁膜103上に紫外線104を照射することにより酸化処理を行う(図1(B))。なお、酸化処理として、酸素雰囲気下でアッシング処理を行っても良い。

40

【0030】

次に、光触媒性導電膜102および絶縁膜103の表面にシランカップリング剤処理を行う。ここで、図1(B)までの処理が終った基板(被処理基板1103とする)にシランカップリング剤処理を行う場合の一態様について図11を用いて説明する。

40

【0031】

図11に示す処理室1101内には、ヒーターステージ1102が設けられており、ヒーターステージ1102上に置かれた被処理基板1103とシランカップリング剤1104を有する容器1105が加熱されるようになっている。

50

【0032】

また、処理室1101には、コック1106を介して真空ポンプ1107が接続されており、処理室1101内が排気されるようになっている。また、コック1110を介して処理室1101内に窒素ガス1109が供給されるようになっている。

【0033】

50

まず、処理室 1101 内のヒーターステージ 1102 上に被処理基板 1103 と、シランカップリング剤 1104 を有する容器 1105 を備えた後、真空ポンプ 1107 により処理室 1101 内を排気した後、窒素ガス 1108 を供給する。

【0034】

次に、ヒーターステージ 1102 を 100 に加熱することにより、容器 1105 内のシランカップリング剤 1104 を蒸発させ、シランカップリング剤 1104 の蒸気中に被処理基板 1103 を放置し、その表面を処理する。この時、処理室 1101 の壁面に結露が生じるのを防止する為に処理室 1101 に備えられているヒーター 111009 で処理室 1101 を加熱しておくのが好ましい。

【0035】

これにより、被処理基板 1103 表面の光触媒性導電膜 102 および絶縁膜 103 上にシランカップリング剤膜 105 が形成される（図 1 (C)）。なお、シランカップリング剤膜 105 の膜表面は、撥液性を有する。

【0036】

シランカップリング剤処理のために用いられるシランカップリング剤の代表例としてフルオロアルキルシラン（FAS）が挙げられる。なお、フルオロアルキルシランは、化学式 $R_n - Si - X (4-n)$ ($n = 1, 2, 3$) で表される。ここで、R は、フルオロアルキル基であり、(CF_3) (CF_2) \times (CH_2) y ($x: 0$ 以上 10 以下の整数、 $y: 0$ 以上 4 以下の整数) の構造を持ち、X はメトキシ基、エトキシ基、アセトキシ基、またはハロゲン原子などの加水分解基である。R または X が複数個 Si に結合している場合は、それぞれ全てが同じであっても良いし、異なっていても良い。なお、X は、加水分解によってシラノールを形成して被成膜面上のヒドロキシル基と反応してシロキサン結合で被成膜表面と結合する。一方、R は、表面に (CF_3) 等のフルオロ基を有するため被膜表面を撥液性に改質する。なお、シランカップリング剤処理により形成されるシランカップリング剤膜は単分子～数分子程度の薄膜である。

【0037】

また、フルオロアルキルシランの具体例としては、ヘプタデカフルオロ - 1, 1, 2, 2 テトラヒドロデシルトリエトキシシラン、ヘプタデカフルオロ - 1, 1, 2, 2 テトラヒドロデシルトリメトキシシラン、ヘプタデカフルオロ - 1, 1, 2, 2 テトラヒドロデシルトリクロロシラン、トリデカフルオロ - 1, 1, 2, 2 テトラヒドロオクチルトリクロロシラン、トリデカフルオロ - 1, 1, 2, 2 テトラヒドロオクチルトリメトキシシラン、トリデカフルオロ - 1, 1, 2, 2 テトラヒドロオクチルトリエトキシシラン、トリフルオロプロピルトリメトキシシラン等が挙げられる。

【0038】

シランカップリング剤処理の際には、上述したシランカップリング剤を気化させた雰囲気下に処理基板を備えることにより、基板表面にシランカップリング剤膜を形成しても良いが、シランカップリング剤を溶媒で希釈させた溶液を被成膜面に塗布することによりシランカップリング剤膜を形成しても良い。

【0039】

なお、シランカップリング剤を溶液として被成膜面に塗布する場合に用いる溶媒としては、n-ペンタン、n-ヘキサン、n-ヘプタン、n-オクタン、n-デカン、ジシクロペンタン、ベンゼン、トルエン、キシレン、テトラヒドロナフタレン、デカヒドロナフタレン、テトラヒドロフラン、エタノール、ジメチルスルフォキシド等を用いることができる。

【0040】

次に、シランカップリング剤膜 105 の表面に光 106 を照射する（図 1 (D)）。なお、ここで照射する光 106 は、光触媒性導電膜 102 を形成する材料のバンドギャップ以上に相当する波長の光、具体的には、390 nm 以下の波長の光を照射する。例えば、光触媒性導電膜 102 としてインジウム錫酸化物や酸化亜鉛を用いる場合には、390 nm 以下の波長の光、酸化錫を用いる場合には、350 nm 以下の波長の光を照射すると

10

20

30

40

50

よい。

【0041】

光照射により、光触媒性導電膜102上に形成されているシランカップリング剤膜のみが分解される。なお、シランカップリング剤膜は、上述したように薄い膜であるため効率よく分解することができる。これにより、光触媒性導電膜102の表面が親液性に改質される(図2(A))。

【0042】

次に、光触媒性導電膜102上にパターン形成用材料を含む溶液を液滴吐出法により、塗布してパターン形成を行う。なお、絶縁膜103上は、シランカップリング剤膜105が形成されているために撥液性を有しているが、光照射により光触媒性導電膜102上のシランカップリング剤膜105は分解されている為、光触媒性導電膜102上は親液性を有している。従って、光触媒性導電膜102上にのみパターンを形成することが可能となる。

10

【0043】

ここでは、パターン形成用材料として、発光素子の有機化合物を含む層110を形成する有機化合物材料109を用い、液滴吐出法により光触媒性導電膜102上に有機化合物を含む層110を形成する場合について説明する。

【0044】

図2(B)に示すように、液滴吐出装置108を用いて光触媒性導電膜102上に有機化合物材料109を吐出し、有機化合物を含む層110を形成する。ここで用いる有機化合物材料109は、溶媒を含む溶液であり、光触媒性導電膜102上に吐出させた後、溶媒を除去し、固化させることによって有機化合物を含む層110を形成する。なお、溶媒の除去は、乾燥によって行ってもよいし、加熱工程を加えてもよい。また、有機化合物材料109の吐出工程は減圧下で行ってもよい。

20

【0045】

また、本発明において、光触媒性導電膜102上に形成される有機化合物を含む層110は、光触媒性導電膜102と接して形成される層が少なくとも液滴吐出法により形成されればよく、一種類の材料により形成される単層構造でも良いが、複数の材料を用いて形成される積層構造であっても良い。なお、液滴吐出法で有機化合物を含む層110を形成する場合には、有機化合物を含む層110に用いることができる物質を溶媒に溶解(または分散)させた溶液を用いる。

30

【0046】

また、有機化合物を含む層110は、少なくとも発光物質を含む発光層を有している。ここでいう発光物質とは、発光効率が良好で、所望の波長の発光をし得る物質である。

【0047】

発光層に含まれる発光物質としては、高分子系の発光物質(ポリマーだけでなく、オリゴマーやデンドリマー等の中程度の分子量の化合物も含む)だけでなく低分子系の発光物質を用いることもできる。なお、低分子系の発光物質を用いる場合には、成膜する時の膜質を考慮し、バインダーとなる材料(以下、バインダー物質)を含んでいても良い。

40

【0048】

なお、高分子系の発光物質としては、ポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリチオフェン誘導体、ポリフルオレン誘導体、ポリパラフェニレン誘導体、ポリアルキルフェニレン、ポリアセチレン誘導体等が挙げられる。

【0049】

具体的には、ポリ(2,5-ジアルコキシ-1,4-フェニレンビニレン):RO-PPV、ポリ(2-ジアルコキシフェニル-1,4-フェニレンビニレン):ROPh-PPV、ポリ(2-メトキシ-5-(2-エチル-ヘキソキシ)-1,4-フェニレンビニレン):MEH-PPV、ポリ(2,5-ジメチルオクチルシリル-1,4-フェニレンビニレン):DMOS-PPV、ポリ(2,5-ジアルコキシ-1,4-フェニレン):RO-PPP、ポリ(3-アルキルチオフェン):PAT、ポリ(3-ヘキシルチオフェ

50

ン) : PHT、ポリ(3-シクロヘキシルチオフェン) : PCHT、ポリ(3-シクロヘキシル-4-メチルチオフェン) : PCHMT、ポリ(3-[4-オクチルフェニル]-2,2'ビチオフェン) : PTOPT、ポリ(3-(4オクチルフェニル)-チオフェン) : POPT-1、ポリ(ジアルキルフルオレン) : PDAF、ポリ(ジオクチルフルオレン) : PDOF、ポリプロピルフェニルアセチレン : PPA-iPr、ポリブチルフェニルフェニルアセチレン : PDPA-nBu、ポリヘキシルフェニルアセチレン : PHPA等が挙げられる。

【0050】

また、低分子系の発光物質としては、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(以下、Alq₃と示す)、トリス(4-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム(以下、Almq₃と示す)、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]-キノリナト)ベリリウム(以下、BeBq₂と示す)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)-(4-ヒドロキシフェニリル)-アルミニウム(以下、BA1qと示す)、ビス[2-(2-ヒドロキシフェニル)-ベンゾオキサゾラト]亜鉛(以下、Zn(BOX)₂と示す)、ビス[2-(2-ヒドロキシフェニル)-ベンゾチアゾラト]亜鉛(以下、Zn(BTZ)₂と示す)、4-ジシアノメチレン-2-イソプロピル-6-[2-(1,1,7,7-テトラメチル-9-ジュロリジル)エテニル]-4H-ピラン(以下、DCJTIと示す)、4-ジシアノメチレン-2-メチル-6-[2-(1,1,7,7-テトラメチル-9-ジュロリジル)エテニル]-4H-ピラン(以下、DCJTと示す)、4-ジシアノメチレン-2-tert-ブチル-6-[2-(1,1,7,7-テトラメチル-9-ジュロリジル)エテニル]-4H-ピラン(以下、DCJTBと示す)やペリフランテン、2,5-ジシアノ-1,4-ビス[2-(10-メトキシ-1,1,7,7-テトラメチル-9-ジュロリジル)エテニル]ベンゼン、N,N'-ジメチルキナクリドン(以下、DMQdと示す)、クマリン6やクマリン545T、9,10-ビス(2-ナフチル)-tert-ブチルアントラセン(以下、t-BuDNAと示す)、9,9'-ビアントリル、9,10-ジフェニルアントラセン(以下、DPAと示す)、9,10-ビス(2-ナフチル)アントラセン(以下、DNAと示す)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)-4-フェニルフェノラト-ガリウム(以下、BGaqと示す)、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(以下、BA1qと示す)、トリス(2-フェニルピリジン)イリジウム(以下、Ir(ppy)₃と示す)、2,3,7,8,12,13,17,18-オクタエチル-21H,23H-ポルフィリン-白金(以下、PtOEPと示す)、ビス[2-(3,5-ビス(トリフルオロメチル)フェニル)ピリジナト-N,C^{2'}]イリジウム(III)ピコリナート(以下、Ir(CF₃ppy)₂(pic)と示す)、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(III)アセチルアセトナート(以下、FIr(acac)と示す)、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(III)ピコリナート(以下、FIr(pic)と示す)、などの発光物質が有効である。

【0051】

また、これらの物質に用いる代表的な溶媒としては、トルエン、ベンゼン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、クロロホルム、テトラリン、キシレン、アニソール、ジクロロメタン、ブチルラクトン、ブチルセルソルブ、シクロヘキサン、NMP(N-メチル-2-ピロリドン)、ジメチルスルホキシド、シクロヘキサン、ジオキサンまたは、THF(テトラヒドロフラン)、水等が挙げられる。

【0052】

また、バインダー物質としては、ポリビニルアルコール、ポリメチルメタクリレート、ポリカーボネート、またはフェノール樹脂等を用いることができる。

【0053】

さらに、発光層は発光物質の有するエネルギーギャップ(LUMO準位とHOMO準位との間のエネルギーギャップをいう)よりも大きいエネルギーギャップを有する物質から

10

20

30

40

50

なる層中に、発光物質が分散するように混合された層（いわゆる、ホストとゲストの関係にある物質をそれぞれ含む層）であっても良い。なお、発光層において、ホストとして機能する発光物質（ホスト物質ともいう）にゲストとして機能する発光物質（ゲスト物質ともいう）を分散して存在させることにより、発光が濃度に起因して消光してしまうことを防ぐこともできる。

【0054】

なお、ホスト物質とゲスト物質とを組み合わせて発光層を形成する場合には、上述した発光物質と以下に示すようなホスト物質とを組み合わせて形成すればよい。

【0055】

具体的なホスト物質としては、トリス（8-キノリノラト）アルミニウム（以下、A1q₃と示す）、トリス（4-メチル-8-キノリノラト）アルミニウム（以下、A1m₃と示す）、ビス（10-ヒドロキシベンゾ[h]-キノリナト）ベリリウム（以下、BEBq₂と示す）、ビス（2-メチル-8-キノリノラト）-（4-ヒドロキシ-ビフェニル）-アルミニウム（以下、BA1qと示す）、ビス[2-（2-ヒドロキシフェニル）-ベンゾオキサゾラト]亜鉛（以下、Zn（BOX）₂と示す）、ビス[2-（2-ヒドロキシフェニル）-ベンゾチアゾラト]亜鉛（以下、Zn（BTZ）₂と示す）、9,10-ビス（2-ナフチル）-tert-ブチルアントラセン（以下、t-BuDNAと示す）、9,10-ビス（2-ナフチル）アントラセン（以下、DNAと示す）、ビス（2-メチル-8-キノリノラト）-4-フェニルフェノラト-ガリウム（以下、BGAqと示す）、4,4'-ジ（N-カルバゾリル）ビフェニル（以下、CBPと示す）、4,4',4''-トリ（N-カルバゾリル）トリフェニルアミン（以下、TCTAと示す）、2,2',2''-（1,3,5-ベンゼントリイル）-トリス（1-フェニル-1H-ベンゾイミダゾール）（以下、TPBiと示す）、TPAQn等を用いることができる。

【0056】

さらに、陽極からの正孔注入性を高める為に有機化合物を含む層110の一部に正孔注入層を有していても良い。この場合、正孔注入層は発光素子の陽極として機能する電極と接して設ける必要があり、例えば、ポリスチレンスルホン酸（以下、PSSと示す）をドープしたポリエチレンジオキシチオフェン（以下、PEDOTと示す）などを用いることができる。

【0057】

また、本発明における有機化合物を含む層110は、上述した発光物質（発光性材料）を含む発光層だけでなく、正孔注入性材料からなる正孔注入層、正孔輸送性材料からなる正孔輸送層、電子輸送性材料からなる電子輸送層、電子注入性材料からなる電子注入層等を含む構成としても良い。なお、この場合には、公知の正孔注入性材料、公知の正孔輸送性材料、公知の電子輸送性材料、公知の電子注入性材料を用いればよい。

【0058】

また、本実施の形態1において用いる液滴吐出装置108の一態様について、図12を用いて説明する。液滴吐出装置108の個々のヘッド1205、ヘッド1212は制御手段1207に接続され、それをコンピュータ1210で制御することにより予めプログラミングされたパターンに描画することができる。

【0059】

描画する位置は、例えば、撮像手段1204、画像処理手段1209、コンピュータ1210を用いて基板1200上に形成されたマーカー1211で認識して決定すればよい。或いは、基板1200の縁を基準にして基準点を確定させても良い。

【0060】

撮像手段1204としては、電荷結合素子（CCD）や相補型金属酸化物半導体（CMOS）を利用したイメージセンサなどを用いることができる。勿論、基板1200上に形成されるべきパターンの情報は記憶媒体1208に格納されたものであり、この情報を基にして制御手段1207に制御信号を送り、液滴吐出手段1203の個々のヘッド120

10

20

30

30

40

50

5、ヘッド1212を個別に制御することができる。吐出する材料は、材料供給源1213、材料供給源1214より配管を通してヘッド1205、ヘッド1212にそれぞれ供給される。

【0061】

ヘッド1205の内部は、点線1206が示すように液状の材料を充填する空間と、吐出口であるノズルを有する構造となっている。図示しないが、ヘッド1212もヘッド1205と同様な内部構造を有する。ヘッド1205とヘッド1212のノズルを異なるサイズで設けると、異なる材料を異なる幅で同時に描画することができる。さらに、広領域に描画する場合は、スループットを向上させるため複数のノズルより同材料を同時に吐出し、描画することができる。

10

【0062】

以上により、基板101上の光触媒性導電膜102上にのみ有機化合物を含む層110を形成することができる(図2(C))。

【0063】

次に、有機化合物を含む層110上に導電膜111を形成する。なお、導電膜111は、発光素子112の第2の電極として機能する(図2(D))。

【0064】

なお、導電膜111に用いる材料としては、導電性の材料であれば良いが、例えば、光触媒性導電膜102が発光素子112の陽極として機能する場合には、仕事関数の小さい(仕事関数3.8eV以下)金属、合金、電気伝導性化合物、およびこれらの混合物などを用いることが好ましい。具体例としては、元素周期表の1族または2族に属する元素、すなわちLiやCs等のアルカリ金属、およびMg、Ca、Sr等のアルカリ土類金属、およびこれらを含む合金(Mg:Ag、Al:Li)や化合物(LiF、CsF、CaF₂)の他、希土類金属を含む遷移金属が挙げられるが、Al、Ag、ITO(indium tin oxide)等の金属(合金を含む)と積層したものを用いてもよい。

20

【0065】

一方、光触媒性導電膜102が発光素子112の陰極として機能する場合には、導電膜111に用いる材料としては、仕事関数の大きい(仕事関数4.0eV以上)金属、合金、電気伝導性化合物、およびこれらの混合物などを用いることが好ましい。具体例としては、ITO(indium tin oxide)、酸化インジウムに2[%]以上20[%]以下の酸化亜鉛(ZnO)を混合したIZO(indium zinc oxide)の他、金(Au)、白金(Pt)、ニッケル(Ni)、タングステン(W)、クロム(Cr)、モリブデン(Mo)、鉄(Fe)、コバルト(Co)、銅(Cu)、パラジウム(Pd)、または金属材料の窒化物(窒化チタン)等が挙げられる。

30

【0066】

また、本実施の形態1における発光素子の構成としては、第1の電極として機能する光触媒性導電膜102が透光性を有し、第2の電極として機能する導電膜111が遮光性または反射性を有する場合、第1の電極として機能する光触媒性導電膜102、および第2の電極として機能する導電膜111が、いずれも透光性を有する場合が可能であるが、第1の電極および第2の電極が透光性を有する場合には、第1の電極の第2の電極に対して反対側に反射性又は遮光性の膜を設ける構造としても良い。

40

【0067】

なお、各電極が透光性、もしくは遮光性を有する膜からなる場合には、透光性、もしくは遮光性を有する公知の導電性材料を適宜選択し、その膜を薄膜化させればよい。なお、ここでいう透光性を有する導電性材料とは、その膜に対する可視光の透過率が40%以上であるものをいい、遮光性を有する導電性材料としては、その膜に対する可視光の透過率が10%未満であり、また、反射性を有する導電性材料としては、その膜に対する可視光の反射率が40%以上100%以下、好ましくは70%以上100%以下であるものをいうこととする。

【0068】

50

また、導電膜 111 は、スパッタリング法、CVD 法、蒸着法、液滴吐出法、インクジェット法、スピニコーティング法等を用いて成膜した後、フォトリソグラフィー法などによりパターニングして所望の形状にする。また、膜厚は、10 nm 以上 500 nm 以下とするのが好ましい。

【0069】

以上により、選択的に形成された有機化合物を含む層 110 を有する発光素子 112 を形成することができる。

【0070】

なお、本実施の形態 1 で示す方法を用いることにより、選択的な有機化合物を含む層 110 の形成が可能となる為、材料のロスを削減することができる。また、形状を加工するためのフォトリソグラフィ工程なども必要としないために工程も簡略化することができ、低コスト化を図ることができる。

10

【0071】

(実施の形態 2)

本実施の形態 2 では、実施の形態 1 で作製された発光素子と電気的に接続された薄膜トランジスタを有する発光装置の作製方法について、図 3 を用いて説明する。

【0072】

図 13 (A) に示すように基板 200 上に絶縁膜 201 を形成する。絶縁膜 201 は、下地絶縁膜として機能し、ガラス基板からの不純物が後に形成される半導体膜に混入するのを抑制するためであり、必要に応じて形成する。絶縁膜 201 としては、窒化酸化珪素 (SiN_xO_y ($X > Y$))、酸化アルミニウム、窒化アルミニウム、酸化窒化アルミニウム、窒化酸化アルミニウム等の無機材料を用いて形成することができる。

20

【0073】

なお、絶縁膜 201 の具体的な一例としては、窒化珪素膜や、酸化窒化珪素膜を 10 nm 以下の膜厚となるように形成した単層膜や、窒化酸化珪素膜を 50 nm 以上 100 nm 以下の膜厚となるように形成した後、酸化窒化珪素膜を 100 nm 以上 150 nm 以下の膜厚となるように形成した二層構造のものが挙げられる。さらには、窒化酸化珪素膜、酸化窒化珪素膜、および窒化珪素膜が順次積層された 3 層構造を用いてもよい。

【0074】

次に、絶縁膜 201 上に第 1 の導電膜を成膜し、第 1 の導電膜上にマスクを形成する。第 1 の導電膜は、タンタル : Ta、タンゲステン : W、チタン : Ti、アルミニウム : Al、銅 : Cu、クロム : Cr、ネオジム : Nd 等から選ばれた元素、または元素を主成分とする合金材料若しくは化合物材料の単層、またはこれらの積層で形成する。また、第 1 の導電膜の形成方法としては、スパッタリング法、蒸着法、CVD 法、塗布法等を適宜用いる。次に、マスクを用いて第 1 の導電膜をエッティングして、ゲート電極 202 を形成する。

30

【0075】

次に、ゲート電極 202 上にゲート絶縁膜 203 を形成する。ゲート絶縁膜 203 としては、酸化珪素膜、窒化珪素膜または酸化窒化珪素膜などの絶縁膜を用いる。また、ゲート絶縁膜 203 として、シロキサンポリマーを含む組成物を塗布焼成して得られる膜、光硬化性有機樹脂膜、熱硬化性有機樹脂膜などを用いてもよい。

40

【0076】

次に、ゲート絶縁膜 203 上に第 1 の半導体膜 204 を形成する。本実施の形態では、第 1 の半導体膜として、非晶質半導体膜を用いた例を示す。なお、非晶質半導体膜には、シランやゲルマンに代表される半導体材料ガスを用いて気相成長法やスパッタリング法や熱 CVD 法で作製されるアモルファス半導体膜、或いは微結晶半導体膜を用いることができる。また、第 1 の半導体膜 204 の膜厚は、10 nm 以上 300 nm 以下とし、さらに 30 nm 以上 200 nm 以下とするのが好ましい。

【0077】

また、第 1 の半導体膜 204 として、スパッタリング法や PLD (Pulse Las

50

er Deposition) 法で作製される酸化亜鉛 (ZnO) や亜鉛ガリウムインジウムの酸化物を用いてもよいが、その場合にはゲート絶縁膜をアルミニウムやチタンを含む酸化物とすることが好ましい。

【0078】

次に、第1の半導体膜204上に第2の半導体膜205を形成する。第2の半導体膜205は、一導電型の不純物元素を含有する半導体膜であり、ここでは、n型を付与する不純物元素を含む半導体膜を用い、20nm以上80nm以下の厚さで形成する。なお、第2の半導体膜205は、プラズマCVD法やスパッタリング法などの公知の方法を用いて形成することができる。

【0079】

次に、公知のフォトリソ技術を用いて形成したマスクを用いて第1の半導体膜204及び第2の半導体膜205をエッティングして、第1の半導体層206、及び第2の半導体層207を得る(図13(B))。なお、公知のフォトリソ技術に代えて、液滴吐出法や印刷法(凸版、平板、凹版、スクリーンなど)を用いてマスクを形成し、選択的にエッティングを行ってもよい。

【0080】

次に、液滴吐出法により導電性材料(Ag(銀)、Au(金)、Cu(銅)、W(タンゲステン)、Al(アルミニウム)等)を含む組成物を選択的に吐出して、ソース電極またはドレイン電極の一方208、及びソース電極またはドレイン電極の他方209を形成する。なお、液滴吐出法に代えて、スパッタリング法で金属膜(Ta、W、Ti、Al、Cu、Cr、Ndなど)を形成し、公知のフォトリソ技術を用いたマスクを用いて金属膜をエッティングして、ソース電極またはドレイン電極の一方208、及びソース電極またはドレイン電極の他方209を形成してもよい。

【0081】

次に、ソース電極またはドレイン電極の一方208、及びソース電極またはドレイン電極の他方209をマスクとして第2の半導体層207の一部をエッティングして、第3の半導体層210および第4の半導体層211を形成する。さらに、ソース電極またはドレイン電極の一方208、及びソース電極またはドレイン電極の他方209をマスクとして第1の半導体層206の上部をエッティングして半導体層の一部を露出させ、さらに上部の一部を除去して第5の半導体層212を形成する。第5の半導体層212の露出した部分は、薄膜トランジスタのチャネル形成領域として機能する。

【0082】

次に、第5の半導体層212のチャネル形成領域を不純物汚染から防ぐための保護膜213を形成する。保護膜213は、スパッタリング法、またはPCVD法により得られる窒化珪素、または窒化酸化珪素を主成分とする絶縁膜を用いることができる。なお、保護膜213を形成した後に水素化処理を行ってもよい。以上により、薄膜トランジスタ214が形成される。

【0083】

次に、保護膜213上に層間絶縁膜215を形成する。層間絶縁膜215には、アクリル樹脂、ポリイミド樹脂、ポリアミド樹脂、シロキサン(シロキサンは、シリコン(Si)と酸素(O)との結合で骨格構造が構成される。)樹脂、フェノール樹脂、ノボラック樹脂、メラミン樹脂、エポキシ樹脂、ウレタン樹脂等の有機物からなる絶縁膜を用いることができる。また、層間絶縁膜215には、酸化珪素、窒化珪素または酸化窒化珪素などの無機物からなる絶縁膜を用いることもでき、これらの有機物からなる絶縁膜と無機物からなる絶縁膜とを積層してもよい。

【0084】

次に、公知のフォトリソ技術を用いて形成したマスクを用いて保護膜213及び層間絶縁膜215を選択的に除去して、ソース電極またはドレイン電極の一方208、およびソース電極またはドレイン電極の他方209に達するコンタクトホールを形成する。

【0085】

10

20

30

40

50

次に、スパッタリング法により光触媒性導電膜を成膜した後、フォトリソグラフィー法によりパターニングしてソース電極またはドレイン電極の一方 208、およびソース電極またはドレイン電極の他方 209 と電気的に接続する配線 216、および第 1 の電極 217 を形成する。光触媒性導電膜には、実施の形態 1 で示した光触媒性導電膜 102 と同様の材料を用いることができる（図 3（C））。）。

【0086】

なお、配線 216 については、ソース電極またはドレイン電極の一方 208、およびソース電極またはドレイン電極の他方 209 に用いることができる導電性材料を用いて第 1 の電極 217 と別工程で形成してもよい。

10

【0087】

また、配線 216、および第 1 の電極 217 の端部を覆って、絶縁膜 218 を形成する。なお、絶縁膜 218 には、実施の形態 1 で示した絶縁膜 103 と同様の材料を用いることができる。

【0088】

次に酸素雰囲気下で第 1 の電極 217 および絶縁膜 218 上に紫外線を照射することにより酸化処理を行う。

【0089】

次に、第 1 の電極 217 および絶縁膜 218 上にシランカップリング剤処理を行う。なお、ここでシランカップリング剤処理は、実施の形態 1 で説明した方法と同じであるので説明は省略することとする。

20

【0090】

次に、シランカップリング剤処理により形成されたシランカップリング剤膜 219 の表面に光を照射することにより、第 1 の電極 217 上に形成されているシランカップリング剤膜のみを分解し、これにより、第 1 の電極 217 の表面のみを親液性に改質する。

【0091】

次に、第 1 の電極 217 上に有機化合物材料を塗布し、有機化合物を含む層 220 を形成する。なお、本実施の形態 2 における有機化合物を含む層 220 は実施の形態 1 に示した有機化合物を含む層 110 と同様の材料を用いて同様の方法で形成することができる。以上により、有機化合物を含む層 220 は、第 1 の電極 217 上にのみ選択的に形成される。

30

【0092】

次に、有機化合物を含む層 220 上に導電膜からなる第 2 の電極 221 を形成する。なお、第 2 の電極 221 は、発光素子 224 の一方の電極として機能する。発光素子 224 は、第 1 の電極 217 と、有機化合物を含む層 220 と、第 2 の電極 221 とが重なる箇所で形成される。

【0093】

本実施の形態 2 における第 2 の電極 221 を形成する導電膜は、実施の形態 1 に示した導電膜 111 と同様の材料を用いて同様の方法で形成することができる。

【0094】

また、本実施の形態 2 における発光素子の構成も実施の形態 1 に示した場合と同様であり、第 1 の電極 217 が透光性を有し、第 2 の電極 221 が遮光性または反射性を有する場合、第 1 の電極 217 が遮光性または反射性を有し、第 2 の電極 221 が透光性を有する場合、第 1 の電極 217、および第 2 の電極 221 が、いずれも透光性を有する場合が可能である。

40

【0095】

なお、各電極が透光性、もしくは遮光性を有する膜からなる場合には、透光性、もしくは遮光性を有する公知の導電性材料を適宜選択し、その膜を薄膜化させればよい。なお、ここでいう透光性を有する導電性材料とは、その膜に対する可視光の透過率が 40% 以上であるものをいい、遮光性を有する導電性材料としては、その膜に対する可視光の透過率が 10% 未満であり、また、反射性を有する導電性材料としては、その膜に対する可視光

50

の反射率が 40 % 以上 100 % 以下、好ましくは 70 % 以上 100 % 以下であるものをいうこととする。

【0096】

また、発光素子 224 を封止するために基板 200 上に基板 223 を貼り合わせる。なお、基板 223 と発光素子 224 との間の空間 222 には窒素等の不活性気体を充填してもよい。

【0097】

以上により、薄膜トランジスタと電気的に接続された発光素子を有するアクティブマトリクス型の発光装置を作製することができる。

【0098】

なお、本実施の形態 2 で示す方法により作製されたアクティブマトリクス型の発光装置は、発光素子の有機化合物を含む層の形成において、形状を加工するためのフォトリソグラフィ工程などを必要としないために工程を簡略化することができ、また従来よりも精度良く選択的な形成を可能とする為、材料のロスを削減することができるとともに低コスト化を図ることができる。

【0099】

本実施の形態 2 に示す構成は、実施の形態 1 に示す構成と自由に組み合わせて用いることができる。

【0100】

(実施の形態 3)

本実施の形態 3 では、有機薄膜トランジスタに電気的に接続された発光素子を有する発光装置の作製方法について、図 4 を用いて説明する。

【0101】

実施の形態 2 と同様に、基板 300 上に絶縁膜 301 を形成する。次に、絶縁膜 301 上に、ゲート電極となる第 1 の導電膜 302 を形成する。第 1 の導電膜 302 に用いる材料は、窒化や酸化により絶縁性を有する金属であれば良く、特にタンタル : Ta、ニオブ : Nb、アルミニウム : Al、銅 : Cu、チタン : Ti 等が好ましい。その他、タングステン : W、クロム : Cr、ニッケル : Ni、コバルト : Co、マグネシウム : Mg 等を用いることもできる。

【0102】

なお、第 1 の導電膜 302 の作製方法について特に限定は無く、スパッタリング法や蒸着法等を用いて成膜した後、エッティング等により所望の形状に加工すればよい。また、インクジェット法等を用いて上述した第 1 の導電膜 302 を形成する材料を含む液滴を塗布することにより形成してもよい。

【0103】

次に、第 1 の導電膜 302 を窒化または酸化することで上記金属の窒化物、酸化物、または酸化窒化物からなるゲート絶縁膜 303 を形成する。なお、第 1 の導電膜のうち窒化または酸化により絶縁化したゲート絶縁膜 303 以外はゲート電極となる。

【0104】

次に、ゲート絶縁膜 303 を覆う半導体層 304 を形成する。半導体層 304 を形成する有機半導体材料はキャリア輸送性があり、かつ電界効果によりキャリア密度の変化が起こりうる有機材料であれば、低分子、高分子のいずれも用いることができ、その種類としては、多環芳香族化合物、共役二重結合化合物、金属フタロシアニン錯体、電荷移動錯体、縮合環テトラカルボン酸ジイミド類、オリゴチオフェン類、フラー-レン類、カーボンナノチューブ等が挙げられる。例えばポリピロール、ポリチオフェン、ポリ(3アルキルチオフェン)、ポリフェニレンビニレン、ポリ(p-フェニレンビニレン)、ポリアニリン、ポリジアセチレン、ポリアズレン、ポリピレン、ポリカルバゾール、ポリセレノフェン、ポリフラン、ポリ(p-フェニレン)、ポリインドール、ポリピリダジン、ナフタセン、ヘキサセン、ヘプタセン、ピレン、クリセン、ペリレン、コロネン、テリレン、オバレン、クオテリレン、サーカムアントラセン、トリフェノジオキサジン、トリフェノジチア

10

20

30

40

50

ジン、ヘキサセン-6、15-キノン、ポリビニルカルバゾール、ポリフェニレンスルフィド、ポリビニレンスルフィド、ポリビニルピリジン、ナフタレンテトラカルボン酸ジイミド、アントラセンテトラカルボン酸ジイミド、C60、C70、C76、C78、C84及びこれらの誘導体を用いることができる。

【0105】

また、これらの具体例としては、一般的にP型半導体とされるテトラセン、ペンタセン、セクシチオフェン(6T)、銅フタロシアニン、ビス-(1、2、5-チアジアゾロ)-p-キノビス(1、3-ジチオール)、ルブレン、ポリ(2、5-チエニレンビニレン)(PTV)、ポリ(3-ヘキシルチオフェン-2、5-ジイル)(P3HT)、ポリ(9、9'-ジオクチル-フルオレン-co-ビチオフェン)(F8T2)、一般的にN型半導体とされる7,7,8,8,-テトラシアノキノジメタン(TCNQ)、3,4,9,10-ペリレンテトラカルボン酸二無水物(PTCDA)、1,4,5,8,-ナフタレンテトラカルボン酸二無水物(NTCDA)、N,N'-ジオクチル-3,4,9,10-ペリレンテトラカルボン酸ジイミド(PTCDI-C8H)、銅ヘキサデカフルオロフタロシアニン(F₁₆CuPc)、N,N'-ビス(2,2,3,3,4,4,5,5,6,6,7,7,8,8,8-ペンタデカフルオロオクチル-1,4,5,8-ナフタレンテトラカルボン酸ジイミド(NTCDI-C8F)、3',4'-ジブチル-5,5',-ビス(ジシアノメチレン)-5,5',-ジヒドロ-2,2':5',2',-テルチオフェン)(DCMT)、メタノフラーレン[6,6]-フェニルC₆、1-酪酸メチルエステル(PCM)等がある。

10

20

【0106】

なお、有機半導体においてP型やN型の特性はその物質固有のものでは無く、キャリアを注入する電極との関係や注入の際の電界の強度に依存し、どちらになりやすいという傾向はあるもののP型半導体としてもN型半導体としても使用することができる。なお、本実施の形態においては、P型半導体がより好ましい。

【0107】

これらの有機半導体材料は、蒸着法、スピンドル法、液滴吐出法などの方法により成膜することができる。

【0108】

次に、半導体層304の上に密着性や界面の化学安定性を向上させるためバッファ層305を形成する。バッファ層305としては導電性を有する有機材料(電子受容性を示す有機化合物、例えば7,7,8,8-テトラシアノキノジメタン(TCNQ)、2,3,5,6-テトラフルオロ-7,7,8,8-テトラシアノキノジメタン(F₄-TCNQ)等)、または有機化合物と金属酸化物の複合材料を用いればよい。なお、バッファ層305は必要がなければなくともよい。

30

【0109】

次に、バッファ層305上にソース電極またはドレイン電極306を形成する。ソース電極またはドレイン電極306に使用する材料は、特に限定されるものではないが、金:Au、白金:Pt、アルミニウム:Al、タンクステン:W、チタン:Ti、銅:Cu、タンタル:Ta、ニオブ:Nb、クロム:Cr、ニッケル:Ni、コバルト:Co、マグネシウム:Mg等の金属、及びそれらを含む合金を用いることができる。その他の材料として、ポリアニリン、ポリピロール、ポリチオフェン、ポリアセチレン、ポリジアセチレンなどの導電性高分子化合物等を用いることもできる。

40

【0110】

なお、ソース電極またはドレイン電極306、307の形成方法は、半導体層304が分解しないようなものであれば特に限定は無く、スパッタリング法や蒸着法などにより成膜した後、エッティング法等により所望の形状に加工し作製すればよい。その他、インクジェット法等による形成も可能である。以上により、有機薄膜トランジスタ308が形成される。

【0111】

50

また、半導体層304の下面に接して、ポリイミド、ポリアミック酸、ポリビニルフェニール等の有機絶縁材料を成膜しても良い。このような構成により、有機半導体材料の配向をさらに高めるほか、ゲート絶縁膜303と半導体層304との密着性をさらに向上させることができる。

【0112】

次に、有機薄膜トランジスタ308を覆う層間絶縁膜309を形成する。層間絶縁膜309を選択的にエッチングしてソース電極またはドレイン電極306、307に達するコンタクトホールを形成した後、ソース電極またはドレイン電極306、307に電気的に接続する配線310、および第1の電極311を形成する。

【0113】

ここでは、スパッタリング法により光触媒性導電膜を成膜した後、フォトリソグラフィー法によりパターニングしてソース電極またはドレイン電極306、307と電気的に接続する配線310、および第1の電極311を形成する。光触媒性導電膜には、実施の形態1で示した光触媒性導電膜102と同様の材料を用いることができる(図4(C))。)

【0114】

なお、配線310については、ソース電極またはドレイン電極306、307に用いることができる導電性材料を用いて第1の電極311と別工程で形成してもよい。

【0115】

また、配線310、および第1の電極311の端部を覆って、絶縁膜312を形成する。なお、絶縁膜312には、実施の形態1で示した絶縁膜103と同様の材料を用いることができる。

【0116】

次に、酸素雰囲気下で第1の電極311および絶縁膜312上に紫外線を照射することにより酸化処理を行う。

【0117】

次に、第1の電極311および絶縁膜312上にシランカップリング剤処理を行う。なお、ここでシランカップリング剤処理は、実施の形態1で説明した方法と同じであるので説明は省略することとする。

【0118】

次に、シランカップリング剤処理により形成されたシランカップリング剤膜313の表面に光を照射することにより、第1の電極311上に形成されているシランカップリング剤膜のみを分解し、これにより、第1の電極311の表面のみを親液性に改質する。

【0119】

次に、第1の電極311上に有機化合物材料を塗布し、有機化合物を含む層314を形成する。なお、本実施の形態3における有機化合物を含む層314は実施の形態1に示した有機化合物を含む層110と同様の材料を用いて同様の方法で形成することができる。以上により、有機化合物を含む層314は、第1の電極311上にのみ選択的に形成される。

【0120】

次に、有機化合物を含む層314上に導電膜からなる第2の電極315を形成する。なお、第2の電極315は、発光素子316の一方の電極として機能する。発光素子316は、第1の電極311と、有機化合物を含む層314と、第2の電極315とが重なる箇所で形成される。

【0121】

本実施の形態3における第2の電極315を形成する導電膜は、実施の形態1に示した導電膜111と同様の材料を用いて同様の方法で形成することができる。

【0122】

また、本実施の形態3における発光素子の構成も実施の形態1に示した場合と同様であり、第1の電極311が透光性を有し、第2の電極315が遮光性または反射性を有する

10

20

30

40

50

場合、第1の電極311が遮光性または反射性を有し、第2の電極315が透光性を有する場合、第1の電極311、および第2の電極315が、いずれも透光性を有する場合が可能である。

【0123】

なお、各電極が透光性、もしくは遮光性を有する膜からなる場合には、透光性、もしくは遮光性を有する公知の導電性材料を適宜選択し、その膜を薄膜化させればよい。なお、ここでいう透光性を有する導電性材料とは、その膜に対する可視光の透過率が40%以上であるものをいい、遮光性を有する導電性材料としては、その膜に対する可視光の透過率が10%未満であり、また、反射性を有する導電性材料としては、その膜に対する可視光の反射率が40%以上100%以下、好ましくは70%以上100%以下であるものをいうこととする。

10

【0124】

また、発光素子316を封止するために基板300上に基板323を貼り合わせる。なお、基板323と発光素子316との間の空間321には窒素等の不活性気体を充填してもよい。

【0125】

以上により、有機薄膜トランジスタと電気的に接続された発光素子を有するアクティブマトリクス型の発光装置を作製することができる。

【0126】

なお、本実施の形態3で示す方法により作製されたアクティブマトリクス型の発光装置は、発光素子の有機化合物を含む層の形成において、形状を加工するためのフォトリソグラフィ工程などを必要としないために工程を簡略化することができ、また従来よりも精度良く選択的な形成を可能とする為、材料のロスを削減することができるとともに低コスト化を図ることができる。

20

【0127】

本実施の形態3に示す構成は、実施の形態1に示す構成と自由に組み合わせて用いることができる。

【0128】

また、本実施の形態3において用いる有機薄膜トランジスタは、図4(B)に示した有機薄膜トランジスタ308の構造に限定されず、図5(A)、または図5(B)に示す構造としてもよい。

30

【0129】

図5(A)には、逆スタガ型のトップコンタクト型構造と呼ばれる有機薄膜トランジスタの一例を示す。基板500上に設けられた有機薄膜トランジスタ501は、ゲート電極502と、ゲート電極502上に形成されたゲート絶縁膜503と、ゲート絶縁膜503上であって、ゲート電極502と重なる位置に形成された半導体層504と、半導体層504に電気的に接続される、ソース電極またはドレイン電極505で構成されている。なお、半導体層504の一部は、ゲート絶縁膜503とソース電極またはドレイン電極505に挟持されている。

【0130】

ゲート電極502は、第1の導電膜302と同様の材料及び手法により、形成することができる。その他、液滴吐出法や印刷法等を用いてゲート電極502を形成することができる。液滴吐出法や印刷法等において用いる微粒子の代表例としては、金、銅、金と銀の合金、金と銅の合金、銀と銅の合金、金と銀と銅の合金のいずれかを主成分とする微粒子や、ITOなどの導電性酸化物を主成分とする微粒子等が挙げられる。

40

【0131】

ゲート絶縁膜503は、窒化珪素、酸化珪素、窒化アルミニウム等の無機材料の他、アクリル樹脂、ポリイミド樹脂、ポリアミド樹脂、シロキサン(シロキサンは、シリコン(Si)と酸素(O)との結合で骨格構造が構成される。)樹脂、フェノール樹脂、ノボラック樹脂、メラミン樹脂、エポキシ樹脂、ウレタン樹脂等の有機材料を用いることができる。

50

、蒸着法、スピンドルコート法、液滴吐出法などの方法により形成することができる。

【0132】

また、半導体層504は、半導体層304と同様の材料および方法を用いて形成することができる。

【0133】

さらに、ソース電極またはドレイン電極505は、ソース電極またはドレイン電極306、307に用いることができる材料および方法を用いて形成することができる。

【0134】

図5(B)には、逆スタガ型のボトムコンタクト型構造と呼ばれる有機薄膜トランジスタの一例を示す。基板510上に設けられた有機薄膜トランジスタ511は、ゲート電極512と、ゲート電極512上に形成されたゲート絶縁膜513と、ゲート絶縁膜513上に形成されたソース電極またはドレイン電極514と、ソース電極またはドレイン電極514上に形成された半導体層515で構成されている。なお、ソース電極またはドレイン電極514の一部は、ゲート絶縁膜513及び半導体層515に挟持されている。

10

【0135】

ゲート電極512は、第1の導電膜302と同様の材料及び手法により、形成することができる。その他、液滴吐出法や印刷法等を用いてゲート電極512を形成することもできる。液滴吐出法や印刷法等において用いる微粒子の代表例としては、金、銅、金と銀の合金、金と銅の合金、銀と銅の合金、金と銀と銅の合金のいずれかを主成分とする微粒子や、ITOなどの導電性酸化物を主成分とする微粒子等が挙げられる。

20

【0136】

ゲート絶縁膜513は、窒化珪素、酸化珪素、窒化アルミニウム等の無機材料の他、アクリル樹脂、ポリイミド樹脂、ポリアミド樹脂、シロキサン(シロキサンは、シリコン(Si)と酸素(O)との結合で骨格構造が構成される。)樹脂、フェノール樹脂、ノボラック樹脂、メラミン樹脂、エポキシ樹脂、ウレタン樹脂等の有機材料を用いることができ、蒸着法、スピンドルコート法、液滴吐出法などの方法により形成することができる。

20

【0137】

また、ソース電極またはドレイン電極514は、ソース電極またはドレイン電極306に用いることができる材料および方法を用いて形成することができる。

30

【0138】

さらに、半導体層515は、半導体層304と同様の材料および方法を用いて形成することができる。

【0139】

(実施の形態4)

本実施の形態4では、ガラス基板上にパッシブマトリクス型の発光装置を作製する例を図6～図8を用いて説明する。

40

【0140】

パッシブマトリクス型(単純マトリクス型)発光装置は、ストライプ状(帯状)に並列された複数の陽極と、ストライプ状に並列された複数の陰極とが互いに直交するように設けられており、その交差部に発光性又は蛍光性を有する有機化合物を含む層が挟まれた構造となっている。従って、選択された(電圧が印加された)陽極と選択された陰極との交点にあたる画素が点灯することになる。

【0141】

図6(A)は、封止前における画素部の上面図であり、図6(A)中の鎖線A-A'で切断した断面図が図6(B)であり、鎖線B-B'で切断した断面図が図6(C)である。

【0142】

第1の基板600上には、下地膜として絶縁膜601が形成されている。なお、下地膜が必要でなければ特に形成しなくともよい。絶縁膜601上には、ストライプ状に複数の第1の電極602が等間隔で配置されている。また、第1の電極602上には、各画素に

50

対応する開口部を有する隔壁 603 が設けられ、開口部を有する隔壁 603 は絶縁材料（感光性または非感光性の有機材料（アクリル樹脂、ポリイミド樹脂、ポリアミド樹脂、シロキサン（シロキサンは、シリコン（Si）と酸素（O）との結合で骨格構造が構成される。）樹脂、フェノール樹脂、ノボラック樹脂、メラミン樹脂、エポキシ樹脂、ウレタン樹脂、レジスト、ベンゾシクロブテン、またはSOG膜（例えば、アルキル基を含むSiO_x膜））で構成されている。なお、各画素に対応する開口部が発光領域 604 となる。

【0143】

開口部を有する隔壁 603 上に、第1の電極 602 と交差する互いに平行な複数の逆テープ状の隔壁 605 が設けられる。逆テープ状の隔壁 605 はフォトリソグラフィ法に従い、未露光部分がパターンとなるポジ型感光性樹脂を用い、パターンの下部がより多くエッチングされるように露光量または現像時間を調節することによって形成する。

10

【0144】

次に、実施の形態1と同様の方法を用いて、酸素雰囲気下で第1の電極 602、隔壁 603 および隔壁 605 上に紫外線を照射することにより酸化処理を行い、続いて第1の電極 602 および隔壁 605 上にシランカップリング剤処理を行う。

【0145】

シランカップリング剤処理により形成されたシランカップリング剤膜 606 の表面に光を照射することにより、第1の電極 602 上に形成されているシランカップリング剤膜のみを分解し、これにより、第1の電極 602 の表面のみを親液性に改質する。

20

【0146】

また、平行な複数の逆テープ状の隔壁 605 を形成した直後における斜視図を図7に示す。なお、図6と同一の部分には同一の符号を用いている。

【0147】

逆テープ状の隔壁 605 の高さは、有機化合物を含む層（607R、607G、607B）及び第2の電極 608 より大きく設定する。図7に示す構成を有する基板に対して有機化合物を含む層（607R、607G、607B）と、導電膜とを積層形成すると、図6に示すように電気的に独立した複数の領域に分離され、有機化合物を含む層（607R、607G、607B）と、導電膜からなる第2の電極 608 とが形成される。

【0148】

すなわち、第2の電極 608 は、第1の電極 602 と交差する方向に伸長する互いに平行なストライプ状の電極である。なお、本発明においては、第1の電極 602 上のみを親液化させ、逆テープ状の隔壁 605 上を撥液化処理している為、第1の電極 602 上に選択的に有機化合物を含む層（607R、607G、607B）を形成することができる。

30

【0149】

なお、本実施の形態4における有機化合物を含む層（607R、607G、607B）の形成方法は、実施の形態1～3に示すのと同様に液滴吐出法を用いることができる。また、第2の電極 608 の形成方法は、実施の形態1～3に示すのと同様の方法を用いて形成することができる。第2の電極 608 を形成する際に逆テープ状の隔壁 605 上にも導電膜が形成されるが、第2の電極 608 とは電気的に分断されている。

40

【0150】

ここでは、有機化合物を含む層（607R、607G、607B）を選択的に形成し、3種類（R、G、B）の発光が得られるフルカラー表示可能な発光装置を形成する例を示している。有機化合物を含む層（607R、607G、607B）はそれぞれ互いに平行なストライプパターンで形成されている。

【0151】

また、全面に同じ発光色を発光する発光層を含む積層膜を形成し、単色の発光素子を設けてもよく、モノクロ表示可能な発光装置、或いはエリアカラー表示可能な発光装置としてもよい。また、白色発光が得られる発光装置と、カラーフィルタと組み合わせることによってフルカラー表示可能な発光装置としてもよい。

【0152】

50

また、必要であれば、封止缶や封止のためのガラス基板などの封止材を用いて封止する。ここでは、第2の基板としてガラス基板を用い、シール材などの接着材を用いて第1の基板と第2の基板とを貼り合わせ、シール材などの接着材で囲まれた空間を密閉なものとしている。密閉された空間には、充填材や、乾燥した不活性ガスを充填する。

【0153】

また、発光装置の信頼性を向上させるために、第1の基板と封止材との間に乾燥材などを封入してもよい。乾燥材によって微量な水分が除去され、十分乾燥される。また、乾燥材としては、酸化カルシウムや酸化バリウムなどのようなアルカリ土類金属の酸化物のような化学吸着によって水分を吸収する物質を用いることが可能である。なお、他の乾燥材として、ゼオライトやシリカゲル等の物理吸着によって水分を吸着する物質を用いてもよい。

10

【0154】

ただし、発光素子を覆って接する封止材が設けられ、十分に外気と遮断されている場合には、乾燥材は、特に設けなくともよい。

【0155】

次に、FPCなどを実装した発光モジュールの上面図を図8に示す。図8において、画像表示を構成する画素部は、走査線群とデータ線群が互いに直交するように交差している。

【0156】

また、図6における第1の電極602が図8の走査線802に相当し、第2の電極608がデータ線803に相当し、逆テープ状の隔壁605が隔壁804に相当する。データ線803と走査線802の間には発光層が挟まれてあり、領域805で示される交差部が画素1つ分となる。

20

【0157】

なお、データ線803は配線端で接続配線808と電気的に接続され、接続配線808が入力端子807を介してFPC809bに接続される。また、走査線802は入力端子806を介してFPC809aに接続される。

【0158】

また、必要であれば、射出面に偏光板、又は円偏光板（楕円偏光板を含む）、位相差板（1/4板、1/2板）、カラーフィルタなどの光学フィルムを適宜設けてよい。また、偏光板又は円偏光板に反射防止膜を設けてよい。例えば、表面の凹凸により反射光を拡散し、映り込みを低減できるアンチグレア処理を施すことができる。

30

【0159】

なお、図8では、駆動回路を基板上に設けていない例を示したが、以下のように駆動回路を有するICチップを実装させてもよい。

【0160】

ICチップを実装させる場合、画素部の周辺（外側）の領域に、画素部へ各信号を伝送する駆動回路が形成されたデータ線側IC、走査線側ICをCOG方式によりそれぞれ実装する。COG方式以外の実装技術としてTCPやワイヤボンディング方式を用いて実装してもよい。TCPはTABテープにICを実装したものであり、TABテープを素子形成基板上の配線に接続してICを実装する。

40

【0161】

なお、データ線側IC、および走査線側ICは、シリコン基板を用いたものであってもよいし、ガラス基板、石英基板もしくはプラスチック基板上にTFTで駆動回路を形成したものであってもよい。また、ここでは片側に一つのICを設けた例を説明しているが、片側に複数個に分割して設けてよい。

【0162】

以上により、パッシブマトリクス型の発光装置を作製することができる。

【0163】

なお、本実施の形態4で示す方法により作製されたパッシブマトリクス型の発光装置は

50

、発光素子の有機化合物を含む層の形成において、従来よりも精度良く選択的な形成を可能とする為、材料のロスを削減することができるとともに低コスト化を図ることができる。

【0164】

本実施の形態4に示す構成は、実施の形態1に示す構成と自由に組み合わせることができる。

【0165】

(実施の形態5)

本実施の形態5では、本発明において、基板上に形成された発光素子が基板間に封止された発光装置について図9を用いて説明する。なお、図9(A)は発光装置を示す上面図、図9(B)は図9(A)をA-A'で切断した断面図である。点線で示された901は駆動回路部(ソース側駆動回路)、902は画素部、903は駆動回路部(ゲート側駆動回路)である。また、904は封止基板、905はシール材であり、シール材905で囲まれた内側である907は、空間になっている。

10

【0166】

なお、908はソース側駆動回路901及びゲート側駆動回路903に入力される信号を伝送するための配線であり、外部入力端子となるFPC(フレキシブルプリントサーキット)909からビデオ信号、クロック信号、スタート信号、リセット信号等を受け取る。なお、ここではFPCしか図示されていないが、このFPCにはプリント配線基板(PWB)が取り付けられていても良い。本明細書における発光装置には、発光装置本体だけではなく、それにFPCもしくはPWBが取り付けられた状態をも含むものとする。

20

【0167】

次に、断面構造について図9(B)を用いて説明する。素子基板910上には駆動回路部及び画素部が形成されているが、ここでは、駆動回路部であるソース側駆動回路901と、画素部902が示されている。

20

【0168】

なお、ソース側駆動回路901はnチャネル型TFT923とpチャネル型TFT924とを組み合わせたCMOS回路が形成される。また、駆動回路を形成する回路は、公知のCMOS回路、PMOS回路もしくはNMOS回路で形成しても良い。また、本実施例では、基板上に駆動回路を形成したドライバー一体型を示すが、必ずしもその必要はなく、基板上ではなく外部に駆動回路を形成することもできる。

30

【0169】

また、画素部902はスイッチング用TFT911と、電流制御用TFT912とそのドレインに電気的に接続された第1の電極913とを含む複数の画素により形成される。なお、第1の電極913の端部を覆って絶縁物914が形成されている。ここでは、ポジ型の感光性アクリル樹脂膜を用いることにより形成する。

【0170】

絶縁物914には、感光性の絶縁材料であって、光によってエッチャントに不溶解性となるネガ型、光によってエッチャントに溶解性となるポジ型のいずれも使用することができる、また、有機化合物だけでなく無機化合物(例えば、酸化珪素、酸窒化珪素等)を使用することもできる。

40

【0171】

また、第1の電極913および絶縁物914上には、実施の形態1~4に示したのと同様に酸素雰囲気下での酸化処理の後、シランカップリング剤処理がなされている。さらに、光照射による第1の電極913上の選択的な親液化処理がなされているので、絶縁物914上にはシランカップリング剤膜917が形成されている。

【0172】

第1の電極913上には、有機化合物を含む層900および第2の電極916がそれぞれ形成されている。また、第1の電極913、有機化合物を含む層900、および第2の電極916が積層された部分に発光素子915が形成される。

50

【0173】

なお、第1の電極913、有機化合物を含む層900、および第2の電極916は、それぞれ実施の形態1～4に示したものと同様の材料を用いて同様の方法で形成することができるで説明は省略する。

【0174】

また、第2の電極916は、外部入力端子と電気的に接続される。

【0175】

また、図9は、シール材905で封止基板904を素子基板910と貼り合わせることにより、素子基板910、封止基板904、およびシール材905で囲まれた空間907に発光素子915が備えられた構造になっている。なお、空間907には、不活性気体(窒素やアルゴン等)が充填される場合の他、シール材905で充填される構成も含むものとする。

10

【0176】

なお、シール材905にはエポキシ系樹脂を用いるのが好ましい。また、これらの材料はできるだけ水分や酸素を透過しない材料であることが望ましい。また、封止基板904に用いる材料としてガラス基板や石英基板の他、FRP(Fiberglass-Reinforced Plastics)、PVF(ポリビニルフロライド)、ポリエステルまたはアクリル等からなるプラスチック基板を用いることができる。

20

【0177】

また、必要に応じてカラーフィルター等の色度変換膜を設けてもよい。

【0178】

以上のようにして、基板上に形成された発光素子が基板間に封止された発光装置を得ることができる。

【0179】

なお、本実施の形態5において形成された発光装置は、基板間に封止された発光素子が有機化合物を含む層の形成において、従来よりも精度良く選択的な形成を可能とするものである為、材料のロスを削減することができるとともに低コスト化を図ることができる。

30

【0180】

本実施の形態5に示す構成は、実施の形態1～実施の形態3に示す構成と自由に組み合わせることができる。

(実施の形態6)

【0181】

本実施の形態では、本発明により作製された発光装置における駆動回路の実装方法について、図10を用いて説明する。

【0182】

図10(A)の場合には、画素部1001の周辺にソース信号線駆動回路1002、及びゲート側駆動回路1003a、1003bを実装される。すなわち、公知の異方性導電接着剤、及び異方性導電フィルムを用いた実装方法、COG方式、ワイヤボンディング方法、並びに半田バンプを用いたリフロー処理等により基板1000上にICチップ1005を実装することで、ソース信号線駆動回路1002、及びゲート側駆動回路1003a、1003b等が実装される。なお、ICチップ1005は、FPC(フレキシブルプリントサーキット)1006を介して、外部回路と接続される。

40

【0183】

なお、ソース信号線駆動回路1002の一部、例えばアナログスイッチを基板上に一体形成し、かつその他の部分を別途ICチップで実装してもよい。

【0184】

また、図10(B)の場合には、画素部1001とゲート側駆動回路1003a、1003b等が基板上に一体形成され、ソース信号線駆動回路1002等が別途ICチップで実装される。すなわち、COG方式などの実装方法により、画素部1001とゲート側駆動回路1003a、1003b等が一体形成された基板1000上にICチップ1005

50

を実装することで、ソース信号線駆動回路 1002 等が実装される。なお、IC チップ 1005 は、FPC 1006 を介して、外部回路と接続される。

【0185】

なお、ソース信号線駆動回路 1002 の一部、例えばアナログスイッチを基板上に一体形成し、かつその他の部分を別途 IC チップで実装してもよい。

【0186】

さらに、図 10 (C) の場合には、TAB 方式によりソース信号線駆動回路 1002 等が実装される。なお、IC チップ 1005 は、FPC 1006 を介して、外部回路と接続される。図 10 (C) の場合には、ソース信号線駆動回路 1002 等を TAB 方式により実装しているが、ゲート側駆動回路等を TAB 方式により実装してもよい。

10

【0187】

IC チップ 1005 を TAB 方式により実装すると、基板に対して画素部を大きく設けることができ、狭額縁化を達成することができる。

【0188】

また、IC チップ 1005 の代わりにガラス基板上に IC を形成した IC (以下、ドライバ IC と表記する) を設けてもよい。IC チップ 1005 は、円形のシリコンウェハから IC チップを取り出すため、母体基板形状に制約がある。一方ドライバ IC は、母体基板がガラスであり、形状に制約がないため、生産性を高めることができる。そのため、ドライバ IC の形状寸法は自由に設定することができる。例えば、ドライバ IC の長辺の長さを 15 mm 以上 80 mm 以下として形成すると、IC チップを実装する場合と比較し、必要な数を減らすことができる。その結果、接続端子数を低減することができ、製造上の歩留まりを向上させることができる。

20

【0189】

ドライバ IC は、基板上に形成された結晶質半導体膜を用いて形成することができ、結晶質半導体膜は連続発振型のレーザ光を照射することで形成するとよい。連続発振型のレーザ光を照射して得られる半導体膜は、結晶欠陥が少なく、大粒径の結晶粒を有する。その結果、このような半導体膜を有するトランジスタは、移動度や応答速度が良好となり、高速駆動が可能となり、ドライバ IC に好適である。

【0190】

本実施の形態 6 に示す構成は、実施の形態 1 ~ 実施の形態 5 に示す構成と自由に組み合わせることができる。

30

【0191】

(実施の形態 7)

本実施の形態では、本発明により形成された発光素子を有する発光装置を用いて完成させた様々な電子機器について、図 13 を用いて説明する。

【0192】

本発明により作製された発光装置を備えた電子機器として、テレビジョン装置 (単にテレビ、又はテレビジョン受信機ともよぶ)、ビデオカメラ、デジタルカメラなどのカメラ、ゴーグル型ディスプレイ (ヘッドマウントディスプレイ)、ナビゲーションシステム、音響再生装置 (カーオーディオ、オーディオコンポ等)、ノート型パーソナルコンピュータ、ゲーム機器、携帯情報端末 (モバイルコンピュータ、携帯電話、携帯型ゲーム機または電子書籍等)、記録媒体を備えた画像再生装置 (具体的にはデジタルビデオディスク (DVD) 等の記録媒体を再生し、その画像を表示しうる表示装置を備えた装置)、照明器具などが挙げられる。その好ましい形態について、図 13 を参照して説明する。

40

【0193】

図 13 (A) は表示装置であり、筐体 8001、支持台 8002、表示部 8003、スピーカー部 8004、ビデオ入力端子 8005 等を含む。本発明を用いて形成される発光装置をその表示部 8003 に適用することができる。なお、表示装置は、パーソナルコンピュータ用、TV 放送受信用、広告表示用などの全ての情報表示用装置が含まれる。また、本発明を用いて形成される発光装置は、材料のロス削減等が可能である為、これを表示

50

装置の表示部に適用することにより、表示装置の低コスト化を図ることができる。

【0194】

図13(B)はノート型パーソナルコンピュータであり、本体8101、筐体8102、表示部8103、キーボード8104、外部接続ポート8105、マウス8106等を含む。本発明を用いて形成される発光装置をその表示部8103に適用することができる。また、本発明を用いて形成される発光装置は、材料のロス削減等が可能である為、これをノート型パーソナルコンピュータの表示部に適用することにより、ノート型パーソナルコンピュータの低コスト化を図ることができる。

【0195】

図13(C)はビデオカメラであり、本体8201、表示部8202、筐体8203、外部接続ポート8204、リモコン受信部8205、受像部8206、バッテリー8207、音声入力部8208、操作キー8209、接眼部8210等を含む。本発明を用いて形成される発光装置をその表示部8202に適用することができる。また、本発明を用いて形成される発光装置は、材料のロス削減等が可能である為、これをビデオカメラの表示部に適用することにより、ビデオカメラの低コスト化を図ることができる。

【0196】

図13(D)は卓上照明器具であり、照明部8301、傘8302、可変アーム8303、支柱8304、台8305、電源8306を含む。本発明を用いて形成される発光装置を照明部8301に適用することができる。なお、照明器具には天井固定型の照明器具または壁掛け型の照明器具なども含まれる。また、本発明を用いて形成される発光装置は、材料のロス削減等が可能である為、これを照明器具に適用することにより、照明器具の低コスト化を図ることができる。

【0197】

ここで、図13(E)は携帯電話であり、本体8401、筐体8402、表示部8403、音声入力部8404、音声出力部8405、操作キー8406、外部接続ポート8407、アンテナ8408等を含む。本発明を用いて形成された発光装置をその表示部8403に適用することができる。また、本発明を用いて形成される発光装置は、材料のロス削減等が可能である為、これを携帯電話の表示部に適用することにより、携帯電話の低コスト化を図ることができる。

【0198】

以上のようにして、本発明の作製方法を用いて形成された発光素子を用いた電子機器を得ることができる。本発明の作製方法を用いて形成された発光素子を有する発光装置の適用範囲は極めて広く、この発光装置をあらゆる分野の電子機器に適用することが可能である。

【0199】

なお、本実施の形態7に示す電子機器は、実施の形態1～実施の形態6に示した構成を自由に組み合わせて実施することが可能である。

【実施例1】

【0200】

本実施例では、本発明の効果を実験結果に基づいて説明する。

【0201】

ガラス基板上に酸化珪素を含むインジウム錫酸化物を用いてスパッタリング法により光触媒性導電膜を110nmの膜厚で形成し、光触媒性導電膜上に感光性アクリル樹脂を成膜し、フォトリソグラフィー法によりパターニングして光触媒性導電膜上の一部に絶縁膜を形成した。

【0202】

次に、酸素雰囲気下で基板表面に紫外線を照射して、基板表面の酸化処理を行った。

【0203】

次に、実施の形態1において説明した図11に示す処理室で基板表面にシランカップリング剤膜を形成した。本実施例では、シランカップリング剤としてヘプタデカフルオロ-

10

20

30

40

50

1, 1, 2, 2, テトラヒドロデシルトリメトキシシランを用いた。

【0204】

次に、シランカップリング剤膜の表面にメタルハライドランプを用いて紫外線を照射し、光触媒性導電膜上のシランカップリング剤膜のみ分解させることにより、光触媒性導電膜上を親液性に改質させた。なお、本実施例では、光の照射時間を4パターン（2分、5分、10分、15分）に変えて改質処理を行った。

【0205】

ここで、次に示す（1）～（3）のサンプルを用いて、シランカップリング剤膜形成後の光照射前後における光触媒性導電膜上および絶縁膜上における接触角の測定を行った。

【0206】

（1）純水、（2）ポリチオフェン系ポリマーを含む組成物（セブルジーダ OC-AE 信越ポリマー製）：エチレングリコール：界面活性剤（オルフィン E1010 日信化学工業製）=1:1:0.005（重量比）の混合溶液、（3）ポリチオフェン系ポリマーを含む組成物（セブルジーダ OC-AE 信越ポリマー製）：エチレングリコール：界面活性剤（NIKKOL BT-9 日光ケミカルズ製）=1:1:0.005（重量比）の混合溶液とし、（1）～（3）のサンプルを用いて接触角を測定した結果を図14に示す。

【0207】

上記結果から、光触媒性導電膜表面の方が、絶縁膜表面よりもシランカップリング剤膜形成後の光照射後における接触角の低下が大きいことが分かる。また、本実施例における光照射時間（5分～15分）においては、（1）～（3）のサンプルのいずれの場合においても光触媒性導電膜表面と、絶縁膜表面において溶液に対する接触角の差が20°以上となった。

【0208】

また、（2）と（3）のサンプルに関しては、シランカップリング剤膜形成後に光照射がなされた光触媒性導電膜表面において溶液に対する接触角が30°以下であり、かつ光触媒性導電膜表面と、縁膜表面において溶液に対する接触角の差が20°以上となる場合において、インクジェット法による成膜を行ったが、光触媒性導電膜上にのみ良好にパターン形成ができた。

【0209】

従って、本実施例の結果から分かるように、本発明を用いることにより、被成膜表面上に接触角の異なる部分を形成することができるので、インクジェット法などの液滴吐出法を用いた際の良好なパターン形成が可能となる。

【図面の簡単な説明】

【0210】

【図1】本発明のパターン形成方法について説明する図。

【図2】本発明のパターン形成方法について説明する図。

【図3】逆スタガ型薄膜トランジスタを含む発光装置の一例を示す図。

【図4】有機薄膜トランジスタを含む発光装置の一例を示す図。

【図5】有機薄膜トランジスタの構造を説明する図。

【図6】パッシブマトリクス型発光装置の上面図および断面図。

【図7】パッシブマトリクス型発光装置の斜視図。

【図8】パッシブマトリクス型発光装置の上面図。

【図9】発光装置の封止構造を示す図。

【図10】発光装置に実装される駆動回路について説明する図。

【図11】シランカップリング剤処理について説明する図。

【図12】液滴吐出装置について説明する図。

【図13】電子機器の例を示す図。

【図14】実施例1における実験結果を示すグラフ。

【符号の説明】

10

20

30

40

50

【 0 2 1 1 】

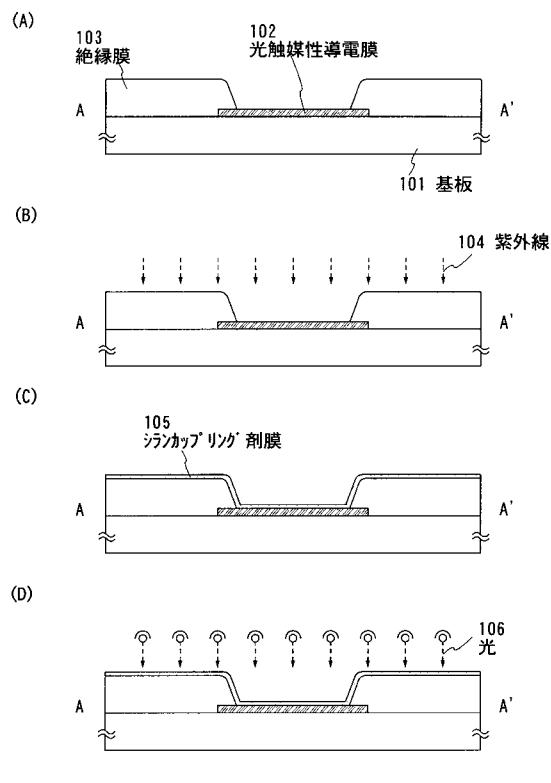
1 0 1	基板	
1 0 2	光触媒性導電膜	
1 0 3	絶縁膜	
1 0 4	紫外線	
1 0 5	シランカップリング剤膜	
1 0 6	光	
1 0 8	液滴吐出装置	
1 0 9	有機化合物材料	
1 1 0	有機化合物を含む層	10
1 1 1	導電膜	
1 1 2	発光素子	
2 0 0	基板	
2 0 1	絶縁膜	
2 0 2	ゲート電極	
2 0 3	ゲート絶縁膜	
2 0 4	第1の半導体膜	
2 0 5	第2の半導体膜	
2 0 6	第1の半導体層	
2 0 7	第2の半導体層	20
2 0 8	ソース電極またはドレイン電極	
2 0 9	ソース電極またはドレイン電極	
2 1 0	第3の半導体層	
2 1 1	第4の半導体層	
2 1 2	第5の半導体層	
2 1 3	保護膜	
2 1 4	薄膜トランジスタ	
2 1 5	層間絶縁膜	
2 1 6	配線	
2 1 7	第1の電極	30
2 1 8	絶縁膜	
2 1 9	シランカップリング剤膜	
2 2 0	有機化合物を含む層	
2 2 1	第2の電極	
2 2 4	発光素子	
3 0 0	基板	
3 0 1	絶縁膜	
3 0 2	第1の導電膜	
3 0 3	ゲート絶縁膜	
3 0 4	半導体層	40
3 0 5	バッファ層	
3 0 6	ドレイン電極	
3 0 8	有機薄膜トランジスタ	
3 0 9	層間絶縁膜	
3 1 0	配線	
3 1 1	第1の電極	
3 1 2	絶縁膜	
3 1 3	シランカップリング剤膜	
3 1 4	有機化合物を含む層	
3 1 5	第2の電極	50

3 1 6	発光素子	
5 0 0	基板	
5 0 1	有機薄膜トランジスタ	
5 0 2	ゲート電極	
5 0 3	ゲート絶縁膜	
5 0 4	半導体層	
5 0 5	ドレイン電極	
5 1 0	基板	
5 1 1	有機薄膜トランジスタ	10
5 1 2	ゲート電極	
5 1 3	ゲート絶縁膜	
5 1 4	ドレイン電極	
5 1 5	半導体層	
6 0 0	第1の基板	
6 0 1	絶縁膜	
6 0 2	第1の電極	
6 0 3	隔壁	
6 0 4	発光領域	
6 0 5	隔壁	
6 0 6	シランカップリング剤膜	20
6 0 8	第2の電極	
8 0 2	走査線	
8 0 3	データ線	
8 0 4	隔壁	
8 0 5	領域	
8 0 6	入力端子	
8 0 7	入力端子	
8 0 8	接続配線	
9 0 0	有機化合物を含む層	
9 0 1	ソース側駆動回路	30
9 0 2	画素部	
9 0 3	ゲート側駆動回路	
9 0 4	封止基板	
9 0 5	シール材	
9 0 7	空間	
9 0 9	FPC(フレキシブルプリントサーキット)	
9 1 0	素子基板	
9 1 1	スイッチング用TFT	
9 1 2	電流制御用TFT	
9 1 3	第1の電極	40
9 1 4	絶縁物	
9 1 5	発光素子	
9 1 6	第2の電極	
9 1 7	シランカップリング剤膜	
9 2 3	nチャネル型TFT	
9 2 4	pチャネル型TFT	
1 0 0 0	基板	
1 0 0 1	画素部	
1 0 0 2	ソース信号線駆動回路	
1 0 0 5	I Cチップ	50

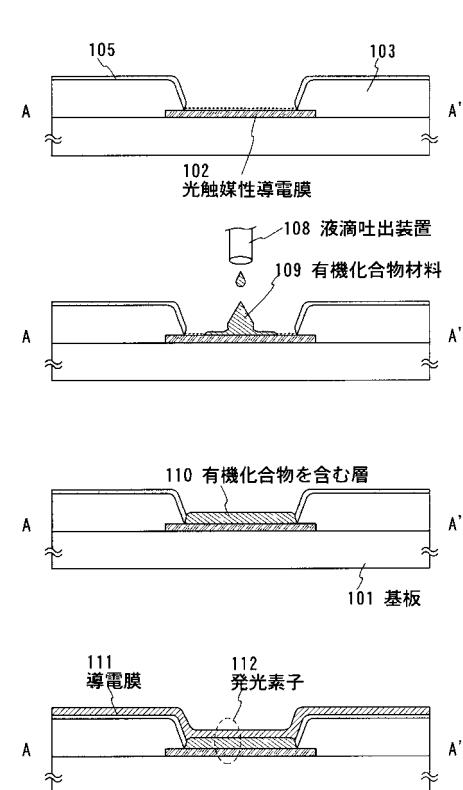
1 0 0 6	F P C (フレキシブルプリントサーキット)	
1 1 0 1	処理室	
1 1 0 2	ヒーターステージ	
1 1 0 3	被処理基板	
1 1 0 4	シランカップリング剤	
1 1 0 5	容器	
1 1 0 6	コック	
1 1 0 7	真空ポンプ	
1 2 0 0	基板	10
1 2 0 3	液滴吐出手段	
1 2 0 4	撮像手段	
1 2 0 5	ヘッド	
1 2 0 6	点線	
1 2 0 7	制御手段	
1 2 0 8	記憶媒体	
1 2 0 9	画像処理手段	
1 2 1 0	コンピュータ	
1 2 1 1	マーカー	
1 2 1 2	ヘッド	
1 2 1 3	材料供給源	20
1 2 1 4	材料供給源	
8 0 0 1	筐体	
8 0 0 2	支持台	
8 0 0 3	表示部	
8 0 0 4	スピーカー部	
8 0 0 5	ビデオ入力端子	
8 1 0 1	本体	
8 1 0 2	筐体	
8 1 0 3	表示部	
8 1 0 4	キーボード	30
8 1 0 5	外部接続ポート	
8 1 0 6	マウス	
8 2 0 1	本体	
8 2 0 2	表示部	
8 2 0 3	筐体	
8 2 0 4	外部接続ポート	
8 2 0 5	リモコン受信部	
8 2 0 6	受像部	
8 2 0 7	バッテリー	
8 2 0 8	音声入力部	40
8 2 0 9	操作キー	
8 2 1 0	接眼部	
8 3 0 1	照明部	
8 3 0 2	傘	
8 3 0 3	可変アーム	
8 3 0 4	支柱	
8 3 0 5	台	
8 3 0 6	電源	
8 4 0 1	本体	
8 4 0 2	筐体	50

- 8 4 0 3 表示部
 8 4 0 4 音声入力部
 8 4 0 5 音声出力部
 8 4 0 6 操作キー
 8 4 0 7 外部接続ポート
 8 4 0 8 アンテナ

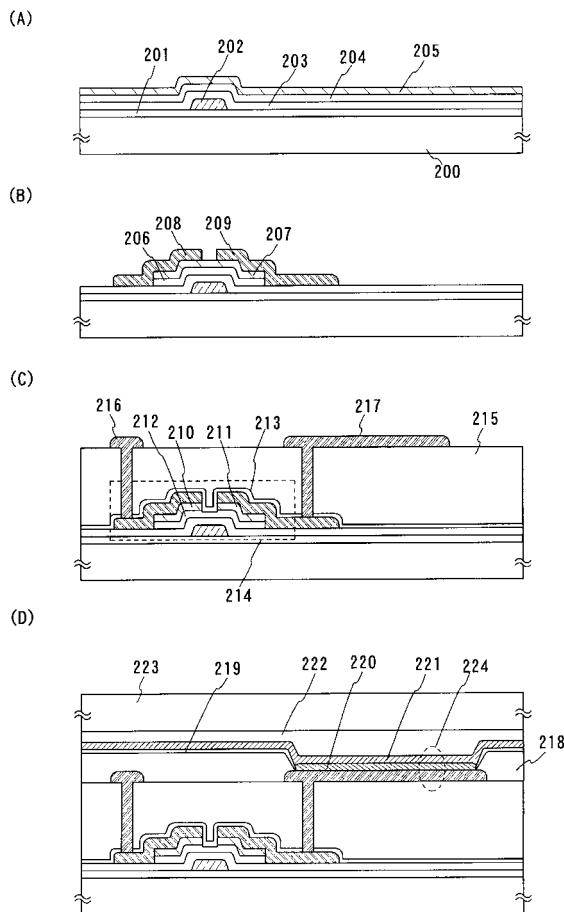
【図1】



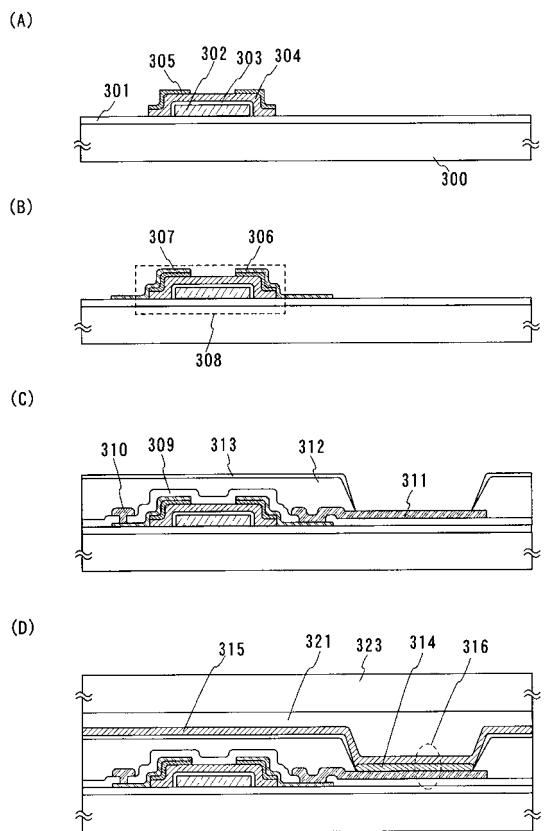
【図2】



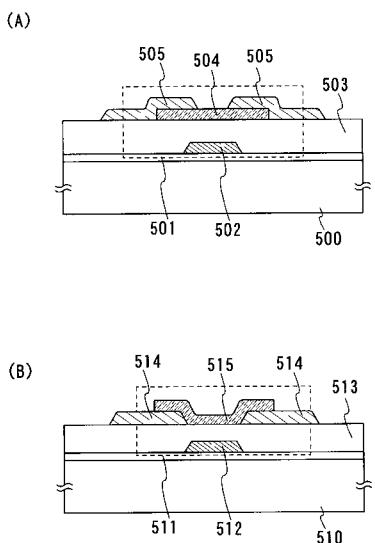
【図3】



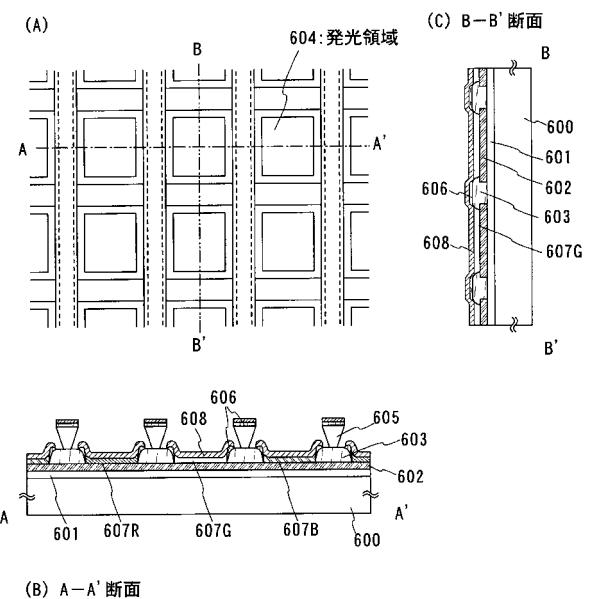
【図4】



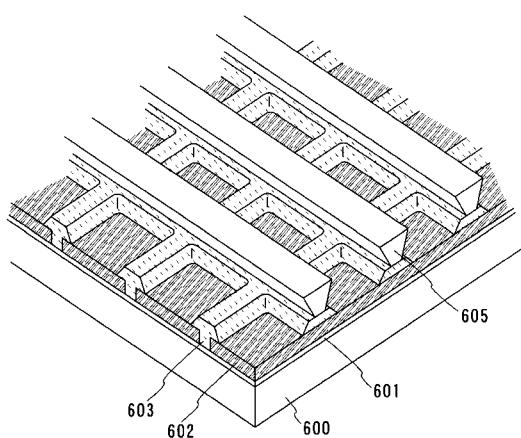
【図5】



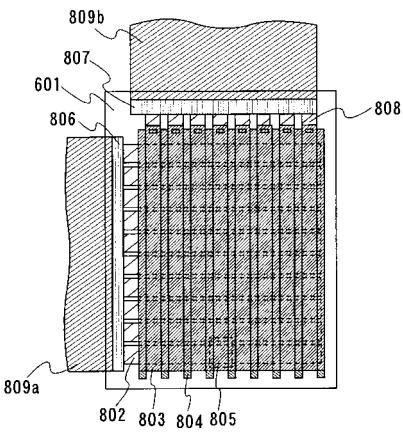
【図6】



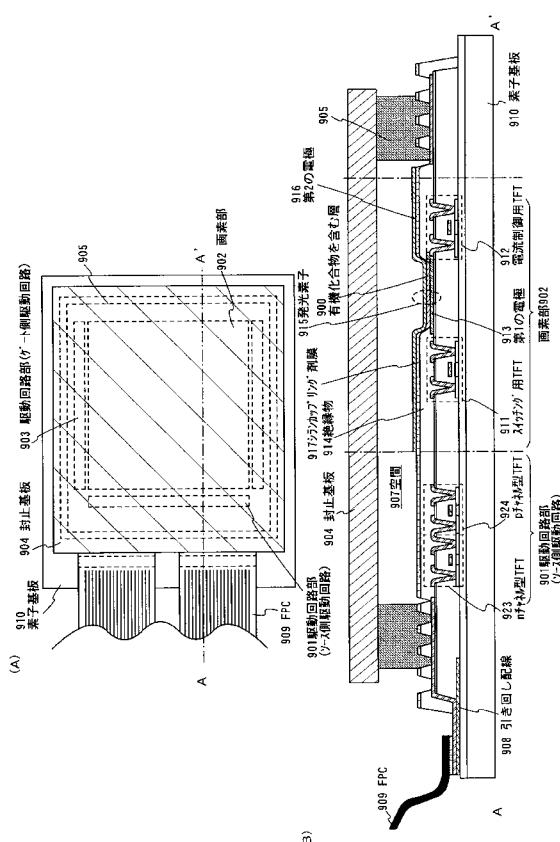
【図 7】



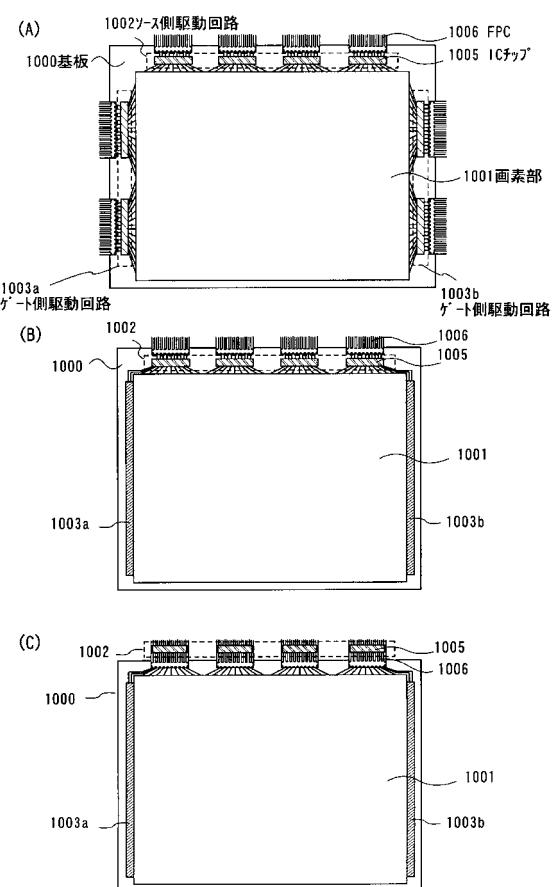
【図 8】



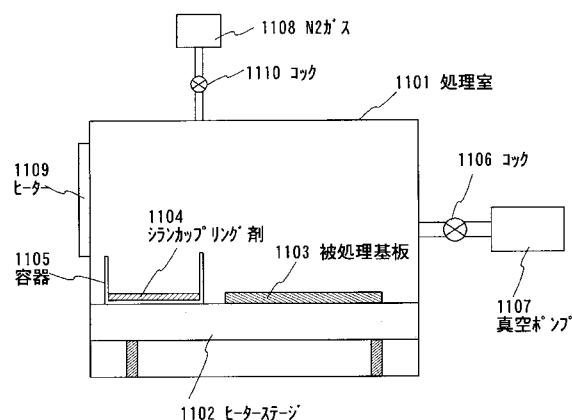
【図 9】



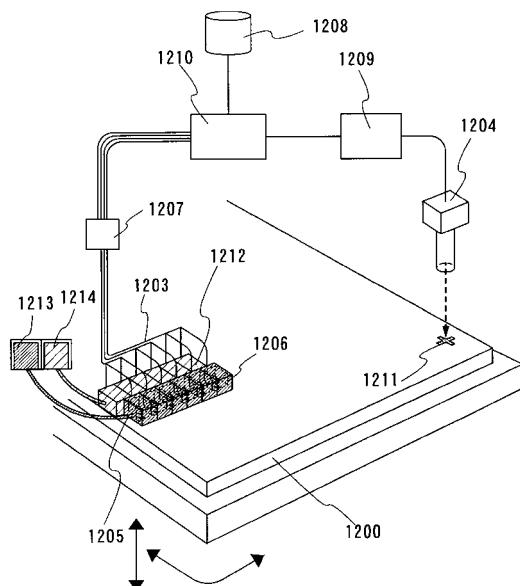
【図 10】



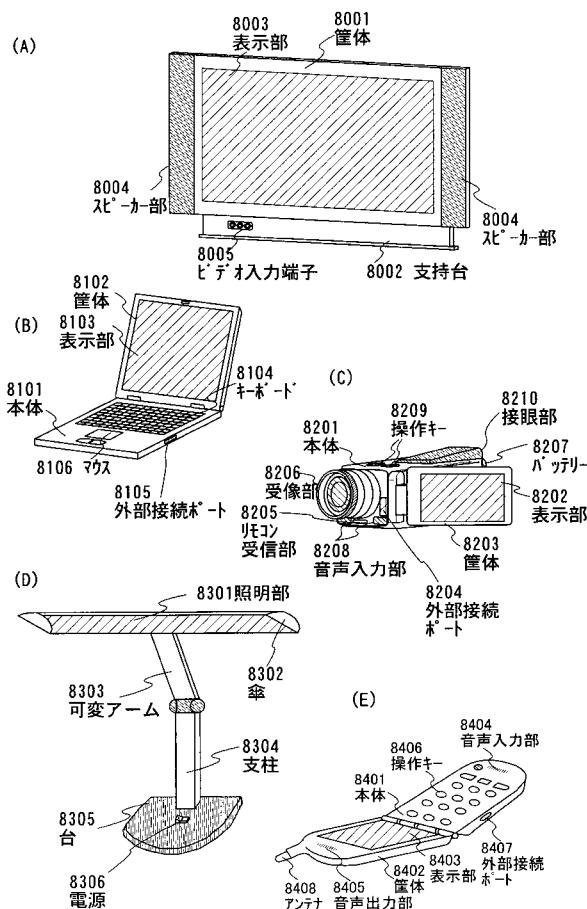
【図 1 1】



【図 1 2】



【図 1 3】



【図 1 4】

