

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第4344631号
(P4344631)

(45) 発行日 平成21年10月14日(2009.10.14)

(24) 登録日 平成21年7月17日(2009.7.17)

(51) Int.Cl.

F 1

C23C 14/24 (2006.01)
C30B 23/08 (2006.01)C23C 14/24
C30B 23/08A
M

請求項の数 6 (全 10 頁)

(21) 出願番号 特願2004-65318 (P2004-65318)
 (22) 出願日 平成16年3月9日 (2004.3.9)
 (65) 公開番号 特開2005-281710 (P2005-281710A)
 (43) 公開日 平成17年10月13日 (2005.10.13)
 審査請求日 平成19年1月10日 (2007.1.10)
 (31) 優先権主張番号 特願2004-57049 (P2004-57049)
 (32) 優先日 平成16年3月2日 (2004.3.2)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)

(73) 特許権者 591097632
 長州産業株式会社
 山口県山陽小野田市大字山野井字新山野井
 3740番地
 (74) 代理人 100081927
 弁理士 北條 和由
 (72) 発明者 小林 理
 茨城県ひたちなか市勝倉1316番地3
 株式会社日本ビーテック内
 (72) 発明者 庭山 裕康
 茨城県ひたちなか市勝倉1316番地3
 株式会社日本ビーテック内
 (72) 発明者 薩藤 建勇
 茨城県ひたちなか市勝倉1316番地3
 株式会社日本ビーテック内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】有機物薄膜堆積用分子線源

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

有機材料を蒸着するための有機物薄膜堆積用分子線源であって、蒸気発生源で発生した成膜材料の分子を成膜面へ向けて放出する分子放出口側にテープ状の案内壁を有する外ガイドと、この外ガイドの内側に設けられ、テープ状の案内壁を有する内ガイドとを設けることにより、これら外ガイドと内ガイドとの間に分子の放出方向に向けて径が次第に増大するようなテープを有する分子放出路を形成し、この分子放出路に、放出する成膜材料の分子を加熱するヒータを設けたことを特徴とする有機物薄膜堆積用分子線源。

【請求項 2】

蒸気発生源側からこの蒸気発生源で発生した成膜材料の分子を成膜面へ向けて放出する分子放出口に至るまでの間にバルブを配置したことを特徴とする請求項 1 に記載の有機物薄膜堆積用分子線源。 10

【請求項 3】

外ガイドと内ガイドとが、成膜面側に向かた方向に互いに移動可能となっていることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の有機物薄膜堆積用分子線源。

【請求項 4】

ヒータが外ガイドと内ガイドとにそれぞれ設けられていることを特徴とする請求項 1 ~ 3 の何れかに記載の有機物薄膜堆積用分子線源。

【請求項 5】

ヒータが外ガイドと内ガイドとを支持するサポート部材に隣接して分子放出路を貫通する

10

20

ように設けられていることを特徴とする請求項 1 ~ 4 の何れかに記載の有機物薄膜堆積用分子線源。

【請求項 6】

分子放出口側に設けたヒータは、蒸気発生源側のヒータに比べて巻線密度が大となっていることを特徴とする請求項 1 ~ 5 の何れかに記載の有機物薄膜堆積用分子線源。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、基板等の固体の成膜面に薄膜を形成しようとする材料を加熱することにより、その成膜材料を溶融、蒸発して、固体表面に薄膜を成長させるための蒸発分子を発生する薄膜堆積用分子線源であって、特に有機物薄膜を基板等の固体の成膜面に堆積させるのに好適な有機物薄膜堆積用分子線源に関する。 10

【背景技術】

【0002】

近年有機エレクトロルミネセンス(EL)、有機半導体に代表される有機薄膜素子が注目されている。これらの薄膜素子は、真空中にて有機材料を加熱し、その蒸気を基板上に吹き付け、冷却することで固体化および、接着を行っている。一般的には有機材料をタンゲステン等の高融点材料にて作成されたるつぼに入れ、るつぼの周囲をヒーターで加熱することにより成膜する材料を加熱し、その蒸気を発生させてそれを基板に吹き付ける方法が用いられている。 20

【0003】

しかし、成膜材料である有機材料のほとんどが熱伝導性に劣るため、前記のような蒸発手段で成膜材料の均一な加熱が出来ず、蒸気の発生にむらが出来てしまう欠点があった。この欠点は生産性向上のために有機材料を大量にるつぼに収容しようとすると、さらに大きな問題となることは自明である。

そこで、下記特許文献 1 に記載されたように、熱的、化学的に安定しており、且つ成膜材料より格段に熱伝導の優れる材料を成膜材料と共にるつぼに収容することでこの問題の解決を図っている。

【0004】

さらに有機物成膜材料の蒸発手段の他の問題点として、有機物成膜材料は蒸気圧が高く、低温で蒸気が発生するため、單にるつぼに材料を入れ真空中に放置するだけでは、意図せずして成膜材料の蒸気が発生してしまい、基板への汚染を招く弊害もある。この問題に対して、下記特許文献 2 に記載されたように、るつぼを密閉構造とし、蒸気量をニードルバルブにて調整する案が提案されている。 30

【特許文献 1】開 2003 - 2778 号公報

【特許文献 2】開 2003 - 95787 号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

本発明者による検討では、成膜材料と共に熱伝導率の優れた材料をるつぼに収容することで、均一な蒸気発生を達成する事は出来る。しかし、大型基板の成膜面上に均一に有機物の薄膜を形成しようとすると、蒸着源と基板の間の距離を大きく取る必要があり、材料の利用効率が大きく悪化することが判明した。また、ニードルバルブによる分子放出口の遮蔽は、材料蒸気の放出及び放出停止の制御のためには優れているが、分子の放出口は狭く、点状に近いため、大型基板の成膜面上への均一な薄膜形成には問題があった。 40

【0006】

また有機物成膜材料は蒸気圧が高く、低温で蒸気が発生するが、温度低下により再凝固しやすい。このため、分子放出口付近で成膜材料の蒸気が壁面に接触し、その温度が低下すると、壁面に有機物成膜材料が析出する。この結果、分子放出口が狭まり、或いは分子放出口が閉塞するため、基板への成膜効率が低下し、或いは成膜に障害を来すことになる 50

。加えて、分子放出口に再凝固した有機物成膜材料が壁面から剥がれて塵状となって真空空間に飛散し、これが成膜する膜面に付着する機会が増大する。このため、形成する膜に欠陥が生じやすくなる。

【0007】

本発明は、前記のような従来の有機物薄膜堆積用分子線源の有する課題に鑑み、特に分子放出口における分子の放出部分の構造を検討し、その結果として、大型基板の成膜面上への均一な薄膜の形成が可能であると共に、成膜材料の分子放出口に成膜材料が析出せず、放出口の狭窄や閉塞が起こりにくい有機物薄膜堆積用分子線源を提供することを目的とするものである。

【課題を解決するための手段】

10

【0008】

上記の課題に対し、本件発明者らは以下のようにして解決されることを見いだした。まず、低温でも蒸気圧の高い材料の蒸気漏れを防ぐため、バルブを蒸気の経路に置き、放出する蒸気の遮断を可能にする。この時、バルブを閉じることで、蒸気を漏らすことなく材料加熱を行うことが出来るため、蒸気発生源側では材料温度に応じた圧力にて平衡圧に達する。これにより、蒸気発生源側では完全に均一な圧力を保つことが出来る。

さらに、成膜材料を気化するために成膜材料を加熱する蒸発部分だけでなく、蒸気が凝固しやすい分子放出口側にもヒータを配置し、分子放出口付近での蒸発材料の析出を防止する。これにより、分子放出口側での狭窄は閉塞が生じるのを防止する。

【0009】

20

すなわち、本発明による有機物薄膜堆積用分子線源は、蒸気発生源で発生した成膜材料の分子を成膜面へ向けて放出する分子放出口側に、放出する成膜材料の分子を加熱するヒータを設けたものである。より具体的には、分子放出口側に、テーパ状の案内壁を有する外ガイドと、この外ガイドの内側に設けられ、テーパ状の案内壁を有する内ガイドとを設け、これら外ガイドと内ガイドとの間に分子の放出方向に向けて径が次第に増大するようなテーパを有する分子放出路を形成している。ヒータは外ガイドと内ガイドとにそれぞれ設けられ、これにより、分子放出路の外側と内側にヒータが設けられている。

【0010】

このような有機物薄膜堆積用分子線源では、蒸気が再凝固しやすい分子放出口にもヒータを配置し、分子放出口付近での蒸発材料の析出を防止するようにしたことにより、蒸気の再凝固により生じる分子放射口の狭窄や閉塞が生じない。これにより、安定した蒸気の放出が可能となる。

30

【0011】

また、外ガイドと内ガイドとを支持するサポート部材に隣接して分子放出路を貫通するようにヒータを設けることにより、分子放出路を貫通するサポート部材において蒸気の再凝固が生じるのを確実に防止することが出来る。これにより、分子放射口に至るその手前の分子放出路における狭窄や閉塞も確実に防止することが出来る。

【0012】

そして、蒸気発生源から分子放出口に至るまでの間にバルブを配置することにより、蒸発開始時にバルブを閉じることで、蒸気を漏らすことなく材料加熱を行うことが出来る。このため、蒸気発生源側で材料温度に応じた圧力にて平衡圧を容易に維持することが出来る。この状態では蒸気発生源側では完全に均一な圧力を保つことが出来る。

40

【0013】

なお、分子放出口側に設けるヒータは、蒸気発生源側のヒータに比べて単位面積当たりの発熱量が大となるよう巻線密度を密にする。これにより、分子放出口における蒸気の再凝固を確実に防止することが可能となる。

さらに、外ガイドと内ガイドとを成膜面側に向かう方向に互いに移動可能とする。これにより、分子放出口の開口部を広く或いは狭く調整することが出来る。また、分子放出口の開口部の中心位置も変動させることが出来るので、薄膜を形成する成膜面の面積の大小等に応じて任意に分子の放出状態を設定することが可能となる。

50

【発明の効果】**【0014】**

以上の通り本発明による有機物薄膜堆積用分子線源では、蒸気発生源からの予定しない蒸気の放出を防止し、安定した定常状態で蒸気の放出が可能となるため、基板の成膜面上に安定して薄膜の形成が可能である。これにより、大型の基板であっても、均一な薄膜の形成が可能となる。さらに、蒸気放出口側にヒータを設けたことにより、蒸気放出口で成膜材料の蒸気が再凝固して成膜材料が析出することを防止することが出来る。これにより、分子放出口の狭窄や閉塞が起こりにくくなり、長期にわたって安定した分子の放出が可能となる。よって安定した成膜が可能となる。

【発明を実施するための最良の形態】

10

【0015】

本発明では、バルブを蒸気の経路に置き、放出する蒸気の遮断を可能にした。また、蒸気が凝固しやすい分子放出口側にヒータを配置し、分子放出口付近での蒸発材料の析出を防止するようにした。

以下、このような本発明の実施例について、図面を参照しながら具体例を挙げて詳細に説明する。

【実施例】**【0016】**

図1は、成膜材料aを昇華または蒸発して放射する分子線源セル1を示す。

この分子線源セル1の加熱材料収納部3は、SUS等の金属の高熱伝導材料からなる円筒状の蒸気発生源31を有し、このるつぼ31の中に加熱材料aが収納されている。この加熱材料aは、図6に示すように、粒状の伝熱媒体cをコアとして、その表面に膜の主成分となる成膜材料bを被覆するようにして設けたものである。この加熱材料aを前記の加熱材料収納部3のるつぼ31に収納している。

20

【0017】

また、伝熱媒体cの表面に成膜材料bを被覆する代わりに、伝熱媒体cと成膜材料bとを適当な割合で均一に混合した状態で加熱材料収納部3のるつぼ31に収納してもよい。伝熱媒体cと成膜材料bを内に収納する容積比は、70%：30%前後が適当である。

伝熱媒体cは、熱的、化学的に安定しており、且つ成膜材料bより熱伝導率の高いもので作られる。例えば伝熱媒体cは、パイロリティック・ポロン・ナイトライド(PBN)、シリコンカーバイト或いは窒化アルミニウム等の高熱伝導材料で作られている。

30

【0018】

図1に示すように、るつぼ31の周囲にはヒータ32が配置され、その外側は液体窒素等で冷却されるシュラウド39で囲まれている。るつぼ31に設けた熱電対等の温度測定手段(図示せず)により、ヒータ32の発熱量を制御し、るつぼ31の加熱材料aを加熱することにより、るつぼ31内の成膜材料bが昇華または蒸発し、その分子が発生する。また、ヒータ32の発熱を停止し、シュラウド39でるつぼ31の内部を冷却することにより、加熱材料aが冷却され、成膜材料の昇華または蒸発が停止される。

【0019】

加熱時には、伝熱媒体cを介して成膜材料bが加熱される。伝熱媒体bは成膜材料bより熱伝導率が高いため、成膜材料bだけではるつぼ31の中央にまで熱が伝わらない場合でも、この伝熱媒体cによりるつぼ31の中央まで熱が伝わり、そのるつぼ31の中央にある成膜材料bも加熱して溶融、蒸発させる。これにより、るつぼ31に収納された成膜材料bが満遍なく加熱、溶融、蒸発される。

40

【0020】

また伝熱媒体cは、PBN、シリコンカーバイト或いは窒化アルミニウム等のように、熱的、化学的に安定した材料で作られているため、ヒータ32により成膜材料bが蒸発される程度に加熱されても、溶融、蒸発することはない。従って、るつぼ31の蒸気放出口2から放射される蒸発分子の中に伝熱媒体bを形成する分子が含まれることはなく、結晶成長する膜の組成に影響を与えない。

50

【0021】

なお、成膜材料**b**がEL発光能を有する有機低分子または有機高分子材料である場合、その気化温度は、銅等の金属等に比べて遙かに低く、大半は200以下である。他方、耐熱温度も比較的低く、前記のような有機低分子または有機高分子材料の蒸発には、その気化温度以上、耐熱温度以下の温度で加熱する必要がある。

【0022】

このるつぼ31の成膜材料の分子が放出される側にバルブ33が設けられている。このバルブ33は、ニードルバルブであり、先鋭なニードル34と、そのニードル34の先端が嵌まり込むことにより、流路が閉じられ或いは流路断面積が絞られる分子通過孔を有する弁座35を有している。前記のニードル34は、ペローズ37を介してサーボモータ36により導入されるリニア運動によりその中心軸方向に移動される。10

【0023】

図1に示すように、このバルブ33により開閉される弁座35の分子通過孔は、導入路21を介して分子放出部11に通じている。この分子放出部11は円筒形の分子加熱室12を有し、この分子加熱室12の周囲にヒータ15が設けられている。この分子加熱室12は、蒸発した分子を分子加熱室12側に導く導入路21を介して前記のバルブ33側と連絡されている。前記のバルブ33側からリークし、導入路21を経て分子放出部11に至った成膜材料の分子は、この分子加熱室12内でヒータ15により所要の温度に再加熱され、分子放出口14から真空槽の中に設置された基板に向けて放射される。

【0024】

図2と図3にこの分子線源セル1の先端である分子放出部11の詳細を示している。分子加熱室12の先端周辺部と分子放出口14との間には外ガイド13が設けられている。この外ガイド13の内面は、分子加熱室12の先端周辺部側から分子放出口14に向けて次第に径が大きくなるようなテーパ状のガイド面となっている。20

【0025】

さらにこの外ガイド13の内側には、内ガイド16が設けられている。図3に示すように、この内ガイド16の外面はガイド面となっており、このガイド面は、前記外ガイド13の内面のガイド面と同じ勾配のテーパ、すなわち分子加熱室12の先端周辺部側から分子放出口14に向けて次第に径が大きくなるようなテーパ状である。この内ガイド16のガイド面と外ガイド13のガイド面との間は、前記分子加熱室12の先端周辺部側から分子放出口14に至る分子放出路17となっている。30

【0026】

内ガイド16と外ガイド13との間の分子放出路17には、サポート23が45°間隔で放射状に挿入されている。図示した実施例のサポート23は、内ガイド16と外ガイド13の円周方向に間隔を置いた2枚の板状の部材からなる。これらサポート23の中にネジ24が挿入され、サポート23はこれらのネジ24により内ガイド16と外ガイド13とに固定されている。これらサポート23やネジ24等を主な構成部材とするサポート部材の支持構造により、内ガイド16と外ガイド13とは、それらの中心軸が一致するように同心状に配置され、固定されている。

【0027】

内ガイド16は、薄膜を成膜する基板の成膜面に向かた方向に外ガイド13に対して移動し、任意の位置で固定できるようになっている。その内ガイド16の移動可能な方向は、図3において上下の方向である。図3において二点鎖線で示す内ガイド16の位置は、実線で示す内ガイド16の位置より分子放出部11側に後退した位置である。内ガイド16が二点鎖線で示す位置にあるときは、内ガイド16が実線で示す位置にあるときに比べて、内ガイド16の外面であるテーパ状のガイド面が外ガイド13の内面であるガイド面に近づき、分子放出路17が狭くなっている。図4は、内ガイド16が図3において実線で示す位置にあるときの状態である。また、図5は、内ガイド16が図3において二点鎖線で示す位置にあるときの状態である。このように内ガイド16は、図3において上下の方向に移動可能であり、且つその任意の位置で固定される。4050

【0028】

外ガイド13の外側には、ヒータ18と冷却器22とを備えた冷熱ユニット21が配置され、外ガイド13がこの冷熱ユニット21により囲まれている。冷熱ユニット21の冷却器22は、水や液体窒素等の冷却水により外ガイド13をその周囲から冷却する。また、冷熱ユニット21のヒータ18は、例えばマイクロヒータを使用したもので、外ガイド13をその周囲から加熱し、これによりその内側の分子放出路17を加熱する。冷熱ユニット21のヒータ18の発熱量密度、つまり単位面積当たり発生する熱量は、分子加熱室12の周囲に設けたヒータ15の発熱量密度より大きくなっている。のために、ヒータ18の巻線密度は、分子加熱室12のヒータ15の巻線密度より密になっている。

【0029】

さらに、内ガイド16にもヒータ19が組み込まれている。このヒータ19は、例えばマイクロヒータを使用したもので、内ガイド16をその内側から加熱し、その外側の分子放出路17を加熱する。内ガイド16のヒータ19の発熱量密度、つまり単位面積当たり発生する熱量は、分子加熱室12の周囲に設けたヒータ15の発熱量密度より大きくする。のために、ヒータ19の巻線密度は、分子加熱室12のヒータ15の巻線密度より密になっている。

【0030】

外ガイド13と内ガイド16との間の分子放出路17には、ヒータ20が貫通して配線されている。このヒータ20は、前記サポート23に挿入されたネジ24と共にサポート23の中に挿入された状態で分子放出路17を貫通しており、サポート23及びその中のネジ24に近接している。この分子放出路17を貫通するヒータ20は、分子放出路17の外側のヒータ18と内側のヒータ19とを接続するヒータの中間線を利用するものが適当であるが、ヒータ20をそれらヒータ18とヒータ19と別の独立したものとしてもよい。

【0031】

このように、蒸気が再凝固しやすい分子放出口付近、具体的には分子放出路17の外側と内側とにそれぞれヒータ18、19を配置した他、分子放出路17を貫通するようにヒータ20を設けていることにより、分子放出口14付近での蒸発材料の析出が確実に防止される。これにより、蒸気の再凝固により生じる分子放射口の狭窄や閉塞が生じない。特にヒータ20は、前記サポート23に挿入されたネジ24と共にサポート23の中に挿入された状態で分子放出路17を貫通しているため、その分子放出路17を貫通して設けられているサポート23やネジ24等のサポート部材において蒸気の再凝固が生じるのを確実に防止することが出来る。

【0032】

図7と図8は、実際の分子放出試験において、分子加熱室12側のヒータ15の他に、外ガイド13側のヒータ18と内ガイド16側のヒータ19とを設けて分子放出路17を加熱したときに、内ガイド16の壁面の温度を測定した結果である。図7は、内ガイド16の壁面の分子放出口14に近い先端側を測温点として測定した結果である。図8は、サポート23の分子加熱室12に近い基部側を測温点として測定した結果である。分子加熱室12側をヒータ15で加熱しながら、その分子加熱室12の壁面温度を200~400の範囲で変えて測定している。外ガイド13側のヒータ18と内ガイド16側のヒータ19を設けない場合も含め、分子放出口14側のヒータの巻線密度が異なるものを数種類使用して測定した。ヒータ18、19の巻線密度は、分子加熱室12側のヒータ15との比で示している。

【0033】

外ガイド13や内ガイド16やそれらを固定しているサポート部材は、分子を放出する外側に面しているため、輻射熱により温度が低下しやすくなる。そのため、分子放出口14から放出されようとする成膜材料の分子は、外ガイド13や内ガイド16に接すると、そこで熱を奪われ、再凝固しやすい。

そこで、外ガイド13側にヒータ18を設け、その巻線密度を分子加熱室12側のヒー

10

20

30

40

50

タ15の巻線密度の4倍以上とすることにより、内ガイド16の壁面温度を分子加熱室12の壁面温度に近くすることができる。さらに、内ガイド16側にもヒータ19を設け、双方のヒータ18、19の巻線密度を分子加熱室12側のヒータ15の巻線密度の12倍とすることにより、内ガイド16の壁面温度を分子加熱室12の壁面温度以上に維持できる。さらに、分子放出路17を貫通しているネジ24と共にサポート23の中にヒータ20を挿入しているため、分子放出路17を貫通して設けられているサポート23やネジ24等のサポート部材も同等の温度に維持出来る。

【図面の簡単な説明】

【0034】

【図1】本発明による有機物薄膜堆積用分子線源の一実施例を示す縦断側面図である。 10

【図2】同有機物薄膜堆積用分子線源の分子放出部を示す正面図である。

【図3】同有機物薄膜堆積用分子線源の分子放出部とその外側に配置した冷熱ユニットを示す要部拡大縦断側面図である。

【図4】同有機物薄膜堆積用分子線源により基板に成膜する状態を示す要部拡大縦断側面図である。

【図5】同有機物薄膜堆積用分子線源において、内ガイドを図4の位置からずらした位置で基板に成膜する状態を示す要部拡大縦断側面図である。 20

【図6】前記有機物薄膜堆積用分子線源のるつぼに収納される加熱部材を示す縦断側面図である。

【図7】同有機物薄膜堆積用分子線源において、分子加熱室側に加え、分子放出口側にもヒータを設けて分子を放出するときの分子加熱室側と分子放出口側との温度を示すグラフである。

【図8】同有機物薄膜堆積用分子線源において、分子加熱室側に加え、分子放出口側にもヒータを設けて分子を放出するときの分子加熱室側と分子放出口側との温度を示すグラフである。

【符号の説明】

【0035】

1 分子線源セル

11 分子放出部

12 分子加熱部

14 分子放出口

13 外ガイド

16 内ガイド

17 分子放出路

18 ヒータ

19 ヒータ

20 ヒータ

23 サポート

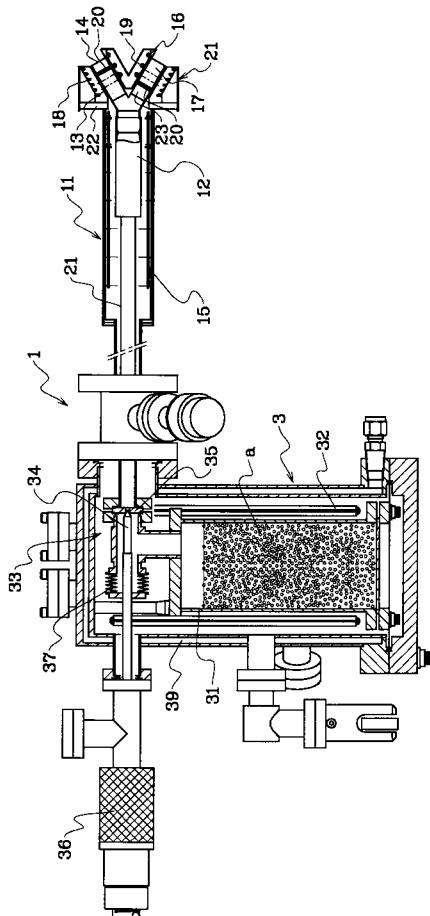
24 ネジ

10

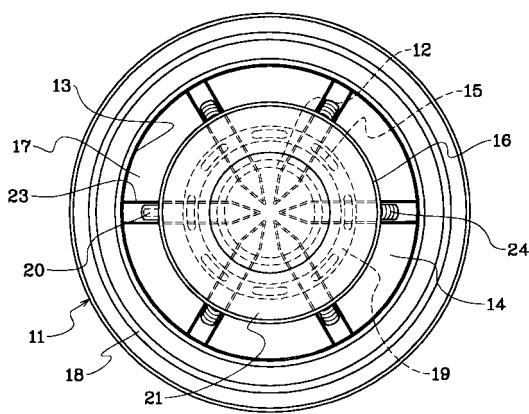
20

30

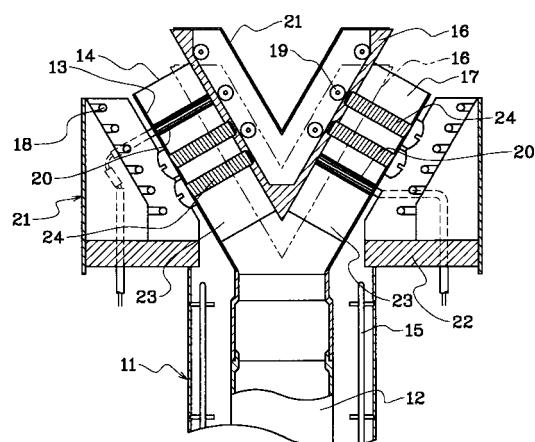
【図1】



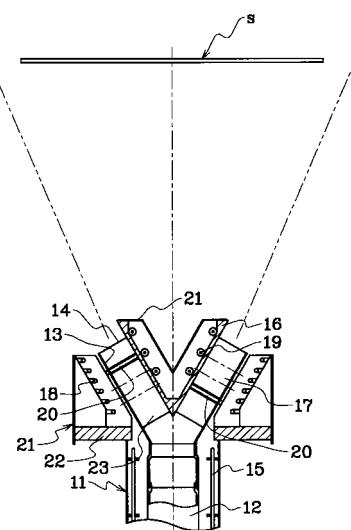
【図2】



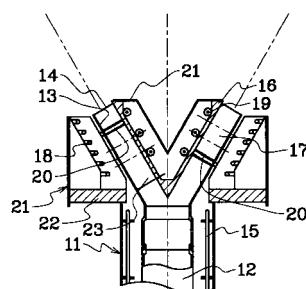
【図3】



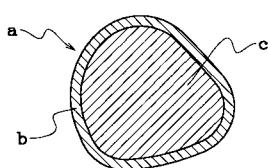
【図4】



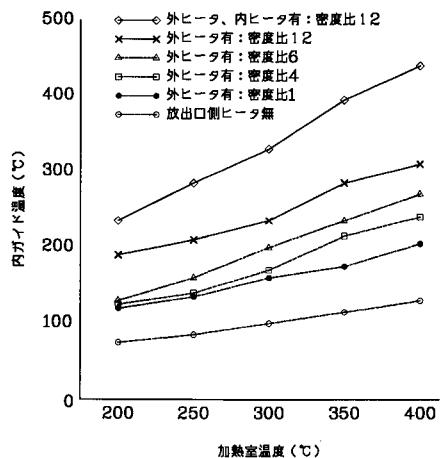
【図5】



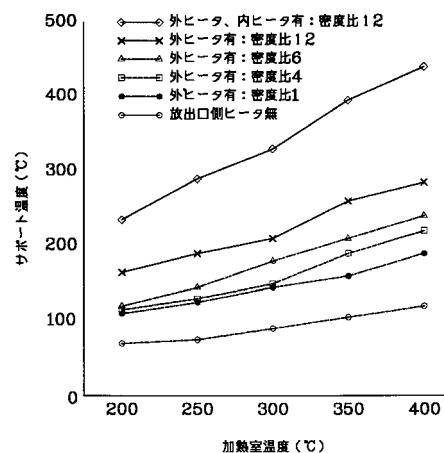
【図6】



【図7】



【図8】



フロントページの続き

審査官 宮澤 尚之

(56)参考文献 特開昭62-190719(JP,A)
特開2000-017425(JP,A)
特開平10-251838(JP,A)
特開平08-078331(JP,A)
特開2004-162108(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C23C 14/24
C30B 23/08
H01L 21/203