

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2013 年 10 月 24 日(24.10.2013)



(10) 国際公開番号

WO 2013/157635 A1

- (51) 国際特許分類:
C23C 14/24 (2006.01) H05B 33/10 (2006.01)
H01L 51/50 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2013/061645
- (22) 国際出願日: 2013 年 4 月 19 日(19.04.2013)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2012-097033 2012 年 4 月 20 日(20.04.2012) JP
- (71) 出願人: 東京エレクトロン株式会社(TOKYO ELECTRON LIMITED) [JP/JP]; 〒1076325 東京都港区赤坂五丁目 3 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 森田 治(MORITA, Osamu); 〒9813137 宮城県仙台市泉区大沢 3-2-1 東京エレクトロン株式会社内 Miyagi (JP). 海老原 良介(EBIHARA, Ryoussuke); 〒9813137 宮城県仙台市泉区大沢 3-2-1 東京エレクトロン株式会社内 Miyagi (JP). 大槻 志門(OTSUKI, Shimon); 〒9813137 宮城県仙台市泉区大沢 3-2-1 東京エレクトロン株式会社内 Miyagi (JP). 久保田 紳治(KUBOTA, Shinji); 〒9813137 宮城県仙台市泉区大沢 3-2-1 東京エレクトロン株式会社内 Miyagi (JP).
- (74) 代理人: 酒井 宏明(SAKAI, Hiroaki); 〒1006020 東京都千代田区霞が関三丁目 2 番 5 号 霞が関ビルディング 酒井国際特許事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

[続葉有]

(54) Title: GAS FLOW DEPOSITION DEVICE AND GAS FLOW DEPOSITION METHOD

(54) 発明の名称: ガスフロー蒸着装置、及びガスフロー蒸着方法

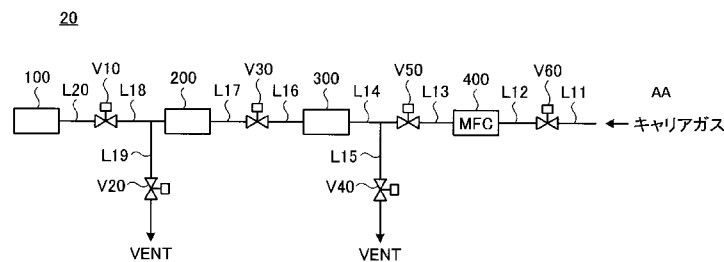


FIG. 2:
AA Carrier gas

(57) Abstract: A gas flow deposition device (20) is provided with an MFC (400) which controls the flow rate of a carrier gas, and a heat exchanger (300) which heats the carrier gas the flow rate of which is controlled by the MFC. Further, the gas flow deposition device (20) is provided with a material container (200) which houses a deposition material therein and out of which vapor of the deposition material flows together with the carrier gas heated by the heat exchanger, and a deposition head (100) from which gas containing the vapor of the deposition material and the carrier gas that have flowed out of the material container (200) is jetted. The heat exchanger (300) is formed such that a pressure difference between the pressure on the inflow side of the carrier gas and the pressure on the outflow side of the carrier gas occurs.

(57) 要約:

[続葉有]



WO 2013/157635 A1



(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR),

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

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

ガスフロー蒸着装置 20 は、キャリアガスの流量を制御する MFC 400 と、MFC によって流量を制御されたキャリアガスを加熱する熱交換器 300 とを備える。また、ガスフロー蒸着装置 20 は、蒸着材料を内部に收容し、熱交換器によって加熱されたキャリアガスとともに蒸着材料の蒸気を流出する材料容器 200 と、材料容器 200 から流出された蒸着材料の蒸気及びキャリアガスを含むガスを噴射する蒸着ヘッド 100 とを備える。熱交換器 300 は、キャリアガスの流入側の圧力とキャリアガスの流出側の圧力との差圧が生じるよう形成されている。

明 細 書

発明の名称： ガスフロー蒸着装置、及びガスフロー蒸着方法

技術分野

[0001] 本発明の種々の側面及び実施形態は、ガスフロー蒸着装置、及びガスフロー蒸着方法に関するものである。

背景技術

[0002] 近年、有機化合物を用いて発光させる有機エレクトロルミネッセンス（EL：Electro-Luminescence）素子を利用した有機ELディスプレイが注目されている。有機ELディスプレイに用いられる有機EL素子は、自発光し、反応速度が速く、消費電力が低い等の特徴を有しているため、バックライトを必要とせず、例えば、携帯型機器の表示部等への応用が期待されている。

[0003] 有機EL素子は、ガラス基板上に形成され、有機層を陽極（アノード）及び陰極（カソード）にてサンドイッチした構造をしている。有機EL素子の陽極及び陰極に電圧を印加すると、陽極からはホール（正孔）が有機層に注入され、陰極からは電子が有機層に注入される。注入されたホール及び電子は有機層にて再結合し、このとき発光が生じる。

[0004] ここで、有機EL素子の成膜には、ガスフロー蒸着装置が用いられる場合がある。ガスフロー蒸着装置は、材料容器に収容した有機材料を加熱して蒸発させ、蒸発させた有機材料ガスを蒸着ヘッドへ輸送し、蒸着ヘッドを介して基板へ噴射する。より具体的には、ガスフロー蒸着装置は、MFC（Mass Flow Controller）を用いて、例えばアルゴンガスのようなキャリアガスを流量制御して材料容器に輸送する。そして、ガスフロー蒸着装置は、材料容器で蒸発した有機材料ガスをキャリアガスとともに蒸着ヘッドへ輸送し、蒸着ヘッドから基板へ噴射する。

[0005] 例えば、特許文献1には、材料容器の外周に外部ヒータを巻きつけるとともに、材料容器の内部に内部ヒータを設置し、外部ヒータ及び内部ヒータを

用いて材料容器を加熱することによって有機材料を気化させる構造が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特開2010-31324号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] しかしながら、従来の手法では、高品質な膜を生成できないという問題がある。例えば、有機材料に不純物が含まれると、有機材料自体が劣化し、それによって生成された膜も劣化した状態になってしまう。また、有機材料の劣化が無くとも、成膜過程で不純物が基板に付着する、もしくは膜中に取り込まれることで、同様に生成された膜の品質劣化を招いてしまう。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明の一側面に係るガスフロー蒸着装置は、キャリアガスの流量を制御する流量制御部と、前記流量制御部によって流量を制御されたキャリアガスを加熱する熱交換器とを備える。また、ガスフロー蒸着装置は、蒸着材料を内部に收容し、前記熱交換器によって加熱されたキャリアガスとともに前記蒸着材料の蒸気を流出する材料容器と、前記材料容器から流出された前記蒸着材料の蒸気及び前記キャリアガスを含むガスを噴射する蒸着ヘッドとを備える。前記熱交換器は、前記キャリアガスの流入側の圧力と前記キャリアガスの流出側の圧力との差圧が生じる熱交換器であることを特徴とする。

発明の効果

[0009] 本発明の種々の側面及び実施形態によれば、基板に成膜される有機材料中に含まれる不純物を低減し、それに伴い生成される有機薄膜中の不純物を低減することが可能となる。

図面の簡単な説明

[0010] [図1]図1は、一実施形態に係る基板処理システムの概略構成図である。

[図2]図2は、一実施形態に係るガスフロー蒸着装置の概略構成図である。

[図3]図3は、一実施形態に係るガスフロー蒸着装置により形成される有機EL素子の概略構成図である。

[図4]図4は、一実施形態に係る熱交換器の概略構成図である。

[図5]図5は、一実施形態に係る熱交換器の概略構成図である。

[図6]図6は、一実施形態に係る熱交換器の他の一例の概略構成図である。

[図7]図7は、一実施形態に係る熱交換器による逆流水分の比率を示す図である。

[図8]図8は、一実施形態に係る熱交換器によるキャリアガスの温度変化を示す図である。

[図9]図9は、フィルタを有する場合におけるガスフロー蒸着装置の一例を示す概略構成図である。

[図10]図10は、フィルタを有する場合におけるガスフロー蒸着装置の一例を示す概略構成図である。

[図11]図11は、フィルタを有する場合におけるガスフロー蒸着装置の構成の一例を示す図である。

[図12-1]図12-1は、フィルタの外観の一例を示す図である。

[図12-2]図12-2は、フィルタの外観の一例を示す図である。

[図12-3]図12-3は、フィルタの外観の一例を示す図である。

[図12-4]図12-4は、フィルタの外観の一例を示す図である。

[図12-5]図12-5は、フィルタの外観の一例を示す図である。

[図12-6]図12-6は、フィルタの外観の一例を示す図である。

[図12-7]図12-7は、フィルタの外観の一例を示す図である。

[図12-8]図12-8は、フィルタの外観の一例を示す図である。

[図12-9]図12-9は、フィルタの外観の一例を示す図である。

[図13-1]図13-1は、垂直に配置した場合におけるフィルタの内部の構造の一例を示す図である。

[図13-2]図13-2は、垂直に配置した場合におけるフィルタの内部の構造

の一例を示す図である。

[図13-3]図 1 3 - 3 は、垂直に配置した場合におけるフィルタの内部の構造の一例を示す図である。

[図14-1]図 1 4 - 1 は、傾けて配置した場合におけるフィルタの内部の構造の一例を示す図である。

[図14-2]図 1 4 - 2 は、傾けて配置した場合におけるフィルタの内部の構造の一例を示す図である。

[図14-3]図 1 4 - 3 は、傾けて配置した場合におけるフィルタの内部の構造の一例を示す図である。

[図15-1]図 1 5 - 1 は、一枚の金属ゲッタでらせんを形成した場合におけるフィルタの内部の構造の一例を示す図である。

[図15-2]図 1 5 - 2 は、一枚の金属ゲッタでらせんを形成した場合におけるフィルタの内部の構造の一例を示す図である。

[図15-3]図 1 5 - 3 は、一枚の金属ゲッタでらせんを形成した場合におけるフィルタの内部の構造の一例を示す図である。

[図16-1]図 1 6 - 1 は、一枚の金属ゲッタでらせんを形成した場合におけるフィルタの内部の構造の一例を示す図である。

[図16-2]図 1 6 - 2 は、一枚の金属ゲッタでらせんを形成した場合におけるフィルタの内部の構造の一例を示す図である。

[図16-3]図 1 6 - 3 は、一枚の金属ゲッタでらせんを形成した場合におけるフィルタの内部の構造の一例を示す図である。

[図17-1]図 1 7 - 1 は、多孔質材を用いた場合におけるフィルタの内部の構造の一例を示す図である。

[図17-2]図 1 7 - 2 は、多孔質材を用いた場合におけるフィルタの内部の構造の一例を示す図である。

[図18-1]図 1 8 - 1 は、小球又は断片を用いた場合におけるフィルタの内部の構造の一例を示す図である。

[図18-2]図 1 8 - 2 は、小球又は断片を用いた場合におけるフィルタの内部

の構造の一例を示す図である。

[図19-1]図19-1は、メッシュ材を用いた場合におけるフィルタの内部の構造の一例を示す図である。

[図19-2]図19-2は、メッシュ材を用いた場合におけるフィルタの内部の構造の一例を示す図である。

[図19-3]図19-3は、メッシュ材を用いた場合におけるフィルタの内部の構造の一例を示す図である。

発明を実施するための形態

[0011] 以下、図面を参照して種々の実施形態について詳細に説明する。なお、各図面において同一又は相当の部分に対しては同一の符号を附することとする。

[0012] まず、ガスフロー蒸着装置を含んだ基板処理システム10について、図1を参照しながら説明する。図1は、一実施形態に係る基板処理システムの概略構成図である。

[0013] (基板処理システム)

図1に示すように、本実施形態にかかる基板処理システム10は、複数の処理容器を有するクラスタ型装置であり、ロードロック室LLM、搬送室TM、前処理室CM及び4つのプロセスモジュールPM1～PM4を有している。基板処理システム10は、例えば、有機EL素子の製造に使用される。

[0014] ロードロック室LLMは、大気系から搬送されたガラス基板（以下「基板G」という）を、真空度の高いプロセスモジュールPMに搬送するために内部を減圧状態に保持する。基板G上には、予め陽極としてインジウムスズ酸化物（ITO: Indium Tin Oxide）が形成されている。基板Gは、搬送室TMの搬送アームArmを用いて前処理室CMに搬送され、ITO表面をクリーニングした後、プロセスモジュールPM1に搬送される。

[0015] プロセスモジュールPM1には、図2に示したガスフロー蒸着装置20が6つ並べて配置され、ITO上に6層の有機層が連続成膜される。成膜後、基板Gは、プロセスモジュールPM4に搬送され、スパッタリングにより基

板Gの有機層上にメタル電極（陰極層）を形成する。ここで、プロセスモジュールPM4でメタル電極を形成する際には、スパッタリングのほかに真空蒸着、ペースト状の導電性材料の塗布などの手法を用いても良いこととし、またこれらに限定されるものではない。更に、基板Gは、プロセスモジュールPM2に搬送され、配線用のパターンをエッチングにより形成し、再び、プロセスモジュールPM4にてスパッタリングによりエッチング部分に金属配線を成膜し、最後に、プロセスモジュールPM3に搬送され、CVD（Chemical Vapor Deposition：気相成長法）により有機層を封止する封止膜を形成する。

[0016] （有機層の連続成膜）

次に、6層の有機層を連続成膜する機構について説明する。図2は、一実施形態に係るガスフロー蒸着装置の概略構成図である。プロセスモジュールPM1に設置された6つのガスフロー蒸着装置20は、ほぼ同一構造である。そこで、図2を参照しながら、一のガスフロー蒸着装置20についてのみ説明することにより、他のガスフロー蒸着装置20の説明を省略する。

[0017] 図2に示すように、ガスフロー蒸着装置20は、キャリアガスの流量を制御するMFC400と、MFC400によって流量を制御されたキャリアガスを加熱する熱交換器300とを備える。また、ガスフロー蒸着装置20は、蒸着材料（有機材料）を内部に収容し、熱交換器300によって加熱されたキャリアガスとともに蒸着材料の蒸気を流出する材料容器200を備える。また、ガスフロー蒸着装置20は、材料容器200から流出された蒸着材料の蒸気及びキャリアガスを含むガスを噴射する蒸着ヘッド100を備える。

[0018] MFC400のキャリアガスの流れの上流側の配管L11及び配管L12の間には、バルブV60が設けられる。また、MFC400と熱交換器300との間には、上流側から順に配管L13、配管L14が設けられ、配管L13と配管L14の間には、バルブV50が設けられる。また、バルブV50と熱交換器300との間の配管L14からはベント（VENT）用の配管

L 1 5 が分岐して設けられ、配管 L 1 5 には、バルブ V 4 0 が設けられる。

[0019] また、熱交換器 3 0 0 と材料容器 2 0 0 との間には、上流側から順に配管 L 1 6、配管 L 1 7 が設けられ、配管 L 1 6 と配管 L 1 7 との間には、バルブ V 3 0 が設けられる。また、材料容器 2 0 0 と蒸着ヘッド 1 0 0 との間には、上流側から順に配管 L 1 8、配管 L 2 0 が設けられ、配管 L 1 8 と配管 L 2 0 との間には、バルブ V 1 0 が設けられる。また、材料容器 2 0 0 とバルブ V 1 0 との間の配管 L 1 8 からはベント用の配管 L 1 9 が設けられ、配管 L 1 9 には、バルブ V 2 0 が設けられる。

[0020] 通常のカスフロー蒸着処理時には、例えばアルゴンガスなどのキャリアガスは、配管 L 1 1 からバルブ V 6 0、配管 L 1 2 を介して M F C 4 0 0 へ通流する。M F C 4 0 0 で流量を制御されたキャリアガスは、配管 L 1 3、バルブ V 5 0、配管 L 1 4 を介して熱交換器 3 0 0 へ通流する。熱交換器 3 0 0 で加熱されたキャリアガスは、配管 L 1 6、バルブ V 3 0、配管 L 1 7 を介して材料容器 2 0 0 へ通流する。材料容器 2 0 0 で加熱により蒸発した有機材料のガスとキャリアガスは、配管 L 1 8、バルブ V 1 0、配管 L 2 0 を介して蒸着ヘッド 1 0 0 へ通流し、蒸着ヘッド 1 0 0 から基板へ向けて噴射される。

[0021] 図 2 に示すカスフロー蒸着装置 2 0 を 6 つ用いて 6 層連続成膜処理を実行した結果を図 3 に示す。図 3 は、一実施形態に係るカスフロー蒸着装置により形成される有機 E L 素子の概略構成図である。図 3 に示すように、基板 G が、1 ～ 6 番目のカスフロー蒸着装置 2 0 の蒸着ヘッド 1 0 0 の上方をある速度で進行することにより、基板 G の I T O 上に順に、第 1 層のホール注入層、第 2 層のホール輸送層、第 3 層の青発光層、第 4 層の緑発光層、第 5 層の赤発光層、第 6 層の電子輸送層が形成される。このうち、第 3 層～第 5 層の青発光層、緑発光層、赤発光層がホールと電子の再結合により発光する発光層である。また、有機層上のメタル層 A 1 等は、前述したとおり、基板処理システム 1 0 のプロセスモジュール P M 4 にてスパッタリングにより成膜されるが、成膜方法はスパッタリングに限定されるものではない。例えば、

真空蒸着、ペースト状導電性材料の塗布でもよい。

[0022] 続いて、熱交換器 300 の構成について具体的に説明する。図 4, 5 は、一実施形態に係る熱交換器の概略構成図である。図 4 に示すように、熱交換器 300 は、配管 L14 のバルブ V50 への接続端とは反対側の端部に接続された円盤状の分散部 312 と、配管 L16 のバルブ V30 への接続端とは反対側の端部に接続された円盤状の分散部 314 を有する。分散部 312 及び分散部 314 は、互いに円盤面を対向させて、距離を離して配置される。また、熱交換器 300 は、分散部 312 及び分散部 314 の円盤面同士を接続し、配管 L14 及び配管 L16 に比べて径が小さい複数の細管 320 を有する。複数の細管 320 は、互いに並列に配置されている。また、熱交換器 300 は、分散部 312、分散部 314、複数の細管 320、及びヒータ 350 を有する。ヒータ 350 は、分散部 312、分散部 314、複数の細管 320、及び配管 L16 を覆い、分散部 312、分散部 314、複数の細管 320、及び配管 L16 を通流するガスを加熱する。

[0023] このように、一実施形態の熱交換器 300 は、複数の細管 320 によりガス流路が形成されているので、キャリアガスの流入側の圧力とキャリアガスの流出側の圧力との差圧が生じる。例えば、一実施形態の熱交換器 300 は、細管 320 の径 ϕ を 1.0 mm、細管 320 の本数を 4 本とすることができる。なお、細管 320 の径及び本数については、これに限られない。

[0024] また、一実施形態のガスフロー蒸着装置 20 は、図 4, 5 に示した熱交換器 300 とは異なる他の熱交換器を用いることもできる。図 6 は、一実施形態に係る熱交換器の他の一例の概略構成図である。図 6 においては、配管を通流するガスを加熱するヒータについては図示を省略し、ガスが通流する配管形状のみを示している。

[0025] 図 6 に示すように、熱交換器 300 は、例えばニードル型の熱交換器であっても良い。すなわち、熱交換器 300 は、配管 L14 と配管 L16 との間に、配管の径方向に進退可能なニードル 370 が設けられ、このニードル 370 の位置を調整することによってガスが通流する流路の径を調整可能な熱

交換器である。このような熱交換器 300 であっても、キャリアガスの流入側の圧力とキャリアガスの流出側の圧力との差圧が生じる点については同様である。また、これらの熱交換器に関わらず、例えば圧力（差圧）調整可能な熱交換器のように、キャリアガスの流入側の圧力とキャリアガスの流出側の圧力との差圧が生じる熱交換器であれば、適宜使用することができる。

[0026] ところで、有機材料は通常、大気中にて保管されているので、大気中に放置されている際に有機材料には水分が付着する。そして、有機材料に付着した水分が材料容器 200 で加熱されることにより蒸発して、キャリアガスとともに蒸着ヘッド 100 に搬送され、基板に成膜された有機材料の成膜性能に劣化が生じるおそれがある。そこで、一実施形態のガスフロー蒸着装置 20 は、ガスフロー蒸着処理を行う前に水分枯らし処理を実行する。以下、水分枯らし処理について説明する。

[0027] まず、ガスフロー蒸着装置 20 は、バルブ V30 を閉じ、バルブ V40 を開いた状態で、熱交換器 300 より 1 次側のヒータを加熱させながらキャリアガスを通流させる。これにより、熱交換器 300、及び熱交換器 300 と MFC400 との間の配管 L13、L14 などに予め付着している水分を、配管 L15 を介してベント（排気）する（第 1 の水分枯らし処理）。

[0028] 続いて、ガスフロー蒸着装置 20 は、バルブ V30 を開き、バルブ V40 を閉じ、バルブ V10 を閉じ、バルブ V20 を開いた状態で、熱交換器 300 のヒータを加熱させながらキャリアガスを通流させる。これにより、材料容器 200 に収容された有機材料に付着した水分を、配管 L19 を介してベント（排気）する（第 2 の水分枯らし処理）。

[0029] ここで、一実施形態の熱交換器 300 によれば、第 2 の水分枯らし処理の際に、材料容器 200 で蒸発した水分が、熱交換器 300、又は熱交換器 300 と MFC400 との間の配管 L13、L14 などに逆拡散するのを抑制することができる。

[0030] すなわち、一実施形態の熱交換器 300 は、キャリアガスの流入側の圧力とキャリアガスの流出側の圧力との差圧が生じるように形成されている。例

えば、一実施形態の熱交換器 300 は、キャリアガスの流入側の圧力とキャリアガスの流出側の圧力との差圧が 250 Pa 以上になるよう形成されている。

[0031] これにより、水分の逆拡散率を約 1 % 以下にすることができる。ここで、水分の逆拡散率は、熱交換器 300 の上流側から下流側へ単位時間あたりに通流させたキャリアガスの量に対する、熱交換器 300 の下流側から上流側へ単位時間あたりに拡散した水分の量である。つまり、水分の逆拡散率 = (熱交換器 300 の下流側から上流側へ単位時間あたりに拡散した水分の量 / 熱交換器 300 の上流側から下流側へ単位時間あたりに通流させたキャリアガスの量) となる。

[0032] この点について、ペクレ数 (Pe) を用いて説明する。ペクレ数は逆拡散係数ともいい、移流によるキャリアガスの輸送量に対する拡散輸送量の比率を表す無次元数である。ペクレ数 (Pe) = uL/D で表される。ここで、 u : 速度、 L : 細管 320 の長さ、 D : 拡散係数である。より具体的には、速度 u はガス分子量 M_1 、分子直径 σ_1 、温度 T 、粘性係数 η 、流量 Q の使用ガス条件、孔径、及び孔数等から導かれる。速度 u = 質量流量 Q / (圧力 $P \times$ 孔開口面積 A) となる。

[0033] なお、2 成分系気体の拡散係数 D は、以下の数 1 式で表される。ここで、 M_1 、 M_2 は第 1 成分及び第 2 成分の分子量、 n は混合物中の分子数、 k はボルツマン定数、 T は絶対温度である。 Ω_D は拡散における衝突積分であり衝突分子間の分子間力の法則により決まり、温度の関数である。 σ_{12} は分子間力の法則から決定される分子の直径である。 f_D は補正項であり、ほぼ 1 である。

[0034] [数 1]

$$D = \frac{3}{16} \left(2\pi kT \frac{M_1 + M_2}{M_1 M_2} \right)^{1/2} \frac{1}{n\pi\sigma_{12}^2 \Omega_D} f_D$$

[0035] 一実施形態の熱交換器 300 は、細管 320 の径 ϕ が比較的小さい (= 熱

交換器 300 の入口側と出口側の差圧が大きい)。これはつまり、上記速度 u の式における孔開口面積 A が小さくなるので、速度 u は大きくなる。速度 u が大きくなると、ペクレ数は大きくなる。ペクレ数は、大きいほど、水分の逆拡散量が少なくなる。したがって、一実施形態の熱交換器 300 のように細管 320 の径 ϕ を小さくして熱交換器 300 の入口側と出口側の差圧を大きくするほど、水分の逆拡散量が少なくなる。

[0036] なお、参考までに、ガスの流れ方向の混合拡散の影響 x 方向 1 次元管内の定常濃度分布の基礎方程式 (数 2 式) と、数 2 式の定常解 (数 3 式) を開示する。ここで、 u : 速度、 D : 拡散係数、 C : 濃度である。

[0037] [数 2]

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - u \frac{\partial C}{\partial x}$$

[0038] [数 3]

$$\begin{aligned} D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - u \frac{\partial C}{\partial x} &= 0 \\ x = 0 : C &= C_0 \\ x \gg 0 : C &= 0 \\ C &= C_0 e^{-\frac{u}{D}x} \end{aligned}$$

[0039] 次に、一実施形態のガスフロー蒸着装置の熱交換器による逆流水分の比率について説明する。図 7 は、一実施形態に係る熱交換器による逆流水分の比率を示す図である。図 7 において、横軸は細管 320 の距離 (長さ) であり、縦軸は、水分の逆拡散率を示す。

[0040] 図 7 において、グラフ 502, 504, 506, 508 は、例えば細管 320 の径 ϕ が 2.0 mm、細管 320 の本数が 90 本の熱交換器 (比較例) の水分の逆拡散率を示している。また、グラフ 502, 504, 506, 508 はそれぞれ、キャリアガスの流量が 5 sccm, 10 sccm, 15 sccm, 20 sccm の際の水分の逆拡散率を示している。

[0041] これに対して、グラフ512, 514, 516, 518は、本実施形態のように細管320の径 ϕ が1.0mm、細管320の本数が4本の熱交換器の水分の逆拡散率を示している。また、グラフ512, 514, 516, 518はそれぞれ、キャリアガスの流量が5sccm, 10sccm, 15sccm, 20sccmの際の水分の逆拡散率を示している。

[0042] 図7に示すように、比較例においては、細管の長さが長くなるにつれて、水分の逆拡散率は小さくなってはいるが、いずれも水分の逆拡散率は1.0% ($1. \times 10^{-2}$) より大きくなっている。これに対して、本実施形態の熱交換器300では、キャリアガスの流量が5sccmである場合、細管320が約10mm以上の長さであれば、水分の逆拡散率は1%以下になり、細管320が長くなるにつれて水分の逆拡散率は小さくなる。例えば、細管320の長さが約30mmの場合、水分の逆拡散率は0.001%程度にまで小さくなる。また、本実施形態の熱交換器300では、キャリアガスの流量が10, 15, 20sccmの場合は、細管320が10mmに満たないような比較的短い長さであっても、水分の逆拡散率が1%以下になり、細管320が長くなるにつれて水分の逆拡散率は小さくなる。例えば、キャリアガスの流量が15sccmの場合、細管320の長さが約10mmの状態、水分の逆拡散率は0.001%程度にまで小さくなる。

[0043] 次に、本実施形態の熱交換器を設けたことによるキャリアガスの温度変化について説明する。図8は、一実施形態に係る熱交換器によるキャリアガスの温度変化を示す図である。図8において、横軸は細管320の距離（長さ）であり、縦軸は、キャリアガスの温度を示す。

[0044] 図8に示すように、本実施形態の熱交換器300では、細管320の長さが約3mm程度以上あれば、キャリアガスの温度を約25℃から所望の約45℃まで加熱することができる。このように、本実施形態の熱交換器300では、細管320の径を比較的小さくするとともに、本数を比較的少なくしているが、細管320の長さを極端に長くすることなく、一般的な距離を持たせれば、十分に熱交換器としての機能（加熱）を果たすことができる。

- [0045] また、細管 320 の径を比較的小さくするとともに、本数を比較的に少なくすることによって、キャリアガスの流量制御時の応答性も考慮したほうが好ましい。すなわち、熱交換器での差圧が大きければ、キャリアガスの流量をある流量から所望の他の流量へ変化させた際に、所望の他の流量になるまでの時間が多くかかるからである。
- [0046] この点、本実施形態の熱交換器 300 では、20 sccm のキャリアガス流量から、1 sccm のキャリアガス流量へ流量を変えた場合に、流量の変更指令が発生してからキャリアガスの流量が 1 sccm になるまでの時間が 5.0 sec であった。
- [0047] また、本実施形態の熱交換器 300 では、20 sccm のキャリアガス流量から、15 sccm のキャリアガス流量へ流量を変えた場合に、流量の変更指令が発生してからキャリアガスの流量が 15 sccm になるまでの時間が 2.2 sec であった。
- [0048] このように、本実施形態の熱交換器 300 によれば、細管 320 の径を比較的小さくするとともに本数を比較的に少なくすることによって、熱交換器での差圧を生じさせているが、上記実施例は MFC 400 と熱交換器 300 が比較的に長いモデルであるため、輸送路長短縮にて大幅に応答性は短縮可能となる（例えば 1 sec 以下）。また、上記例は 20 sccm → 1 sccm と大きくキャリアガスの流量を変化させているが実際の蒸発量制御は少量変化の制御となる。よってキャリアガスの流量を変化させた場合の応答性は許容できる範囲内といえる。
- [0049] 大気中に有機材料を保管した場合に、有機材料に水分が付着することがある。従来のガスフロー蒸着装置では、水分が付着した有機材料を用いてガスフロー蒸着をした場合、水分がキャリアガスとともに搬送され、基板に成膜された有機材料に水分が含まれるおそれがある。基板に成膜された有機材料に水分が含まれると、有機材料の成膜性能の劣化が問題となることがある。
- [0050] ここで、基板に対するガスフロー蒸着処理を行う前に、有機材料に付着した水分を予め除去する処理（水枯らし処理）を行うことが考えられる。例え

ば、材料容器と蒸着ヘッドとの間の輸送管にバルブを設けるとともに、材料容器とバルブとの間の輸送管から分岐するベント配管を設ける。そして、このバルブを閉じた状態で、材料容器、輸送管、及びバルブを加熱して水分を蒸発させながらキャリアガスを流し、ベント配管から水分の排気処理を行うことが考えられる。この水枯らし処理を行うことによって、有機材料に付着した水分をベント配管からある程度排気することができると考えられる。

[0051] ところで、材料容器や材料容器以降のバルブを含む輸送管は、種々の有機材料の蒸発温度に対応するため、450℃程度までは加熱可能な仕様となるが、MFCを含む1次側輸送管はMFCが精密制御機器であるため多くのものは耐熱温度がその温度まで届かない。したがって、1次側輸送管のほうが2次側輸送管より低温の仕様となる。そこで、キャリアガスを予め材料蒸発温度と同等に昇温させるために、MFCと材料容器との間に熱交換器を設置して、熱交換器でキャリアガスを加熱する場合がある。

[0052] ここで、水枯らし処理の際に水分が材料容器側から熱交換器側の1次輸送管に逆拡散した場合、1次側輸送管のほうが温度が低いため、水分が付着するおそれがある。1次側の輸送管に水分が付着した場合、この付着した水分がガスフロー蒸着処理の際に、更に高い温度設定で加熱されて再蒸発して基板まで搬送される結果、有機材料の成膜性能の劣化を招くおそれがある。

[0053] これに対して、上述した本実施形態のガスフロー蒸着装置20によれば、基板に成膜される有機材料中に含まれる水分量を低減することができる。すなわち、本実施形態のガスフロー蒸着装置20では、キャリアガスの流入側の圧力とキャリアガスの流出側の圧力との差圧が生じる熱交換器300を用いてキャリアガスを加熱して材料容器200へ輸送する。したがって、水分枯らし処理において、材料容器200で蒸発した水分が熱交換器300及び熱交換器300の上流側へ逆拡散するのを抑制することができる。その結果、水分枯らし処理により、キャリアガスの通流経路にのこる水分量を抑制することができるので、ガスフロー蒸着処理において、基板に成膜される有機材料中に含まれる水分量を低減することができる。

[0054] また、本実施形態のガスフロー蒸着方法では、まず、熱交換器 300 と材料容器 200 との間のバルブ V 30 を閉じ、MFC 400 と熱交換器 300 との間の配管 L 14 から分岐するベント配管 L 15 のバルブ V 40 を開いて、ベント配管 L 15 から第 1 の排気処理を行う。その後、本実施形態のガスフロー蒸着方法では、バルブ V 30 を開くとともにバルブ V 40 を閉じ、更に、材料容器 200 と蒸着ヘッド 100 との間のバルブ V 10 を閉じるとともに、材料容器 200 とバルブ V 10 との間の配管から分岐するベント配管 L 19 のバルブ V 20 を開いて、ベント配管 L 19 から第 2 の排気処理を行う。このように、第 2 の排気処理を行うに先立って、第 1 の排気処理を行うことによって、熱交換器 300 及び熱交換器 300 の上流側に予め付着している水分を枯らすことができるので、より一層、基板に成膜される有機材料中に含まれる水分量を低減することができる。

[0055] (フィルタ)

上述した実施形態では、熱交換器 300 を有する場合を例に示したが、これに限定されるものではない。例えば、熱交換器 300 が、フィルタとしての機能を有しても良く、熱交換器 300 の代わりにフィルタを設けても良い。以下では、流量制御部 400 によって流量を制御されたキャリアガスの不純物を除去するためのフィルタ 500 を有する場合を例に説明する。ここで、フィルタ 500 は、上述の熱交換器 300 にフィルタ機能を付加することで実現しても良く、熱交換器としての機能を有さないフィルタとして実現しても良い。以下では、熱交換器 300 を有する場合と同様の点については、説明を適宜省略する。

[0056] すなわち、ガスフロー蒸着装置 20a は、キャリアガスの流量を制御する流量制御部 400 を有する。また、ガスフロー蒸着装置 20a は、流量制御部 400 によって流量を制御されたキャリアガスの不純物を除去するためのフィルタ 500 を有する。また、ガスフロー蒸着装置 20a は、蒸着材料を内部に收容し、フィルタ 500 を通過したキャリアガスとともに蒸着材料の蒸気を流出する材料容器 200 を有する。また、ガスフロー蒸着装置 20a

は、材料容器 200 から流出された蒸着材料の蒸気及びキャリアガスを含むガスを噴射する蒸着ヘッド 100 を有する。

[0057] 図 9 は、フィルタを有する場合におけるガスフロー蒸着装置の一例を示す概略構成図である。図 9 に示すように、ガスフロー蒸着装置 20 a は、流量制御部 400 によって流量を制御されたキャリアガスの不純物を除去するためのフィルタ 500 を有し、材料容器 200 が、フィルタ 500 を通過したキャリアガスとともに蒸着材料の蒸気を流出する。

[0058] また、図 9 に示すように、ガスフロー蒸着装置 20 a は、フィルタ 500 から排気するための排気ポンプ 600 を有し、フィルタ 500 と排気ポンプ 600 との間の配管にバルブ V70 を有する。なお、図 9 に示す例では、バルブ V50 とフィルタ 500 との間の配管を「L21」と記載し、フィルタ 500 とバルブ V30 との間の配管を「L22」と記載し、フィルタ 500 とバルブ V70 との間の配管を「L23」と記載し、バルブ V70 と排気ポンプ 600 との間の配管を「L24」と記載する。

[0059] なお、図 9 に示す例では、ガスフロー蒸着装置 20 a の排気ポンプ 600 とフィルタ 500 とを接続する配管が、フィルタ 500 と材料容器 200 とを結ぶ配管とは別の配管となる場合を例に示した。これに限定されるものではない。図 10 は、フィルタを有する場合におけるガスフロー蒸着装置の一例を示す概略構成図である。例えば、図 10 に示すように、ガスフロー蒸着装置 20 a の排気ポンプ 600 とフィルタ 500 とを接続する配管が、フィルタ 500 と材料容器 200 とを結ぶ配管から枝分かれする配管となっても良い。

[0060] 図 11 は、フィルタを有する場合におけるガスフロー蒸着装置の構成の一例を示す図である。図 11 に示すように、ガスフロー蒸着装置 20 a は、フィルタ 500 や材料容器 200、蒸着ヘッド 100、フィルタ 500 と材料容器 200 と蒸着ヘッド 100 との間の配管などを加熱するためのヒータ 800 と、各部位の温度を測定するための熱電対 700 とを有する。なお、図 11 に示す例では、ガスフロー蒸着装置 20 a の排気ポンプ 600 とフィル

タ５００とを接続する配管が、フィルタ５００と材料容器２００とを結ぶ配管とは別の配管となる場合を例に示した。

[0061] ここで、フィルタ５００について更に説明する。フィルタ５００は、例えば、金属ゲッタ５１０を内部に有する。金属ゲッタ５１０としては、公知のものを好んで用いる。例えば、フィルタ５００は、単一又は複数種類のフィルタ構造などの組み合わせから形成される。フィルタ５００は、キャリアガス以外の不純物を捕捉して除去する。例えば、フィルタ５００は、有機成膜材料や薄膜に悪影響を及ぼす物質を捕捉して除去する。

[0062] なお、キャリアガスは、例えば、窒素、ヘリウム、ネオン、アルゴン、クリプトン、キセノンなどから選択される。また、フィルタ５００により捕捉される物質とは、例えば、水、水素、酸素、二酸化炭素、炭化水素類及び各種パーティクルなどを示す。なお、キャリアガスとして窒素が用いられない場合には、窒素を除去しても良い。なお、炭化水素とは、例えば、メタンをはじめとする、Ｃ－Ｈ結合部位を持つ有機ガス類である。各種パーティクルとは、例えば、ちりである。有機成膜材料とは、例えば、有機ＥＬ材料として用いられる有機化合物や有機錯体を示す。

[0063] ここで、フィルタ５００のフィルタ機構として用いられる材料としては、例えば、金属、合金、化合物からなるフィルタ剤及びフィルタ機能・捕捉機能を有する粉、断片、板、小球、多孔質材、メッシュ材などである。金属や合金、化合物は、例えば、炭素、アンモニウム、ケイ素、チタン、バナジウム、鉄、コバルト、ニッケル、銅、亜鉛、ジルコニウム、モリブデン、パラジウム、銀、タンタル、白金、金、ビスマスのうち、少なくとも１つを含む。また、フィルタとして用いられる材料は、任意の部材に塗布したり蒸着したりすることでコーティングして用いても良い。

[0064] 排気ポンプ６００は、例えば、ターボ分子ポンプ、クライオポンプ、ドライポンプ、イオンポンプのうち、少なくとも１つ以上を用いる。ただし、これに限定されるものではない。また、排気ポンプ６００は、好ましくは、コールドトラップ、ヒータ設備を有する。

[0065] 図12-1～図12-9は、フィルタの外観の一例を示す図である。フィルタ500は、図12-1に示すように、円柱状であっても良い。また、フィルタ500は、図12-2に示すように、入口側が円柱状であって、出口側が円錐状であっても良い。また、フィルタ500は、図12-3に示すように、入口側を底面とする円錐状であっても良い。また、フィルタ500は、図12-4に示すように、中央部が円柱状であって、入口側と出口側とが、中央側を底面とする円錐状であっても良い。また、フィルタ500は、図12-5に示すように、出口側が丸みを帯びた形状となっても良い。また、フィルタ500は、図12-6に示すように、入口側と出口側とが丸みを帯びた形状であっても良い。また、フィルタ500は、図12-7に示すように、2つの円錐を連結した形状であっても良い。また、フィルタ500は、図12-8に示すように、直方体であっても良い。また、フィルタ500は、図12-9に示すように、配管がフィルタの中央付近に接続されるのではなく、端部に設けられた上で、直方体の角が丸みを帯びた形状であっても良い。なお、図12-1～図12-9に示すフィルタ500の外観は一例であり、これに限定されるものではなく、図12-1～図12-9に示す形状を適宜組み合わせても良く、他の形状を用いても良い。

[0066] 次に、フィルタ500の内部構造の一例について説明する。以下では、フィルタ500において、配管L21から配管L22を結ぶ奥行き方向をz軸とした上で、水平方向をx軸、垂直方向をy軸として説明する。

[0067] 図13-1～図13-3は、垂直に配置した場合におけるフィルタ500の内部の構造の一例を示す図である。図13-1は、フィルタ500のyz平面における断面図の一例を示し、図13-2及び図13-3は、z軸上における任意の箇所におけるxy平面における断面図を示す。言い換えると、z軸上における任意の箇所においてフィルタ500を切断して配管L21側を除去した上で、断面から配管L22側を見た場合における図を示す。なお、図13-2は、フィルタ500が円柱状である場合を示し、図13-3は、フィルタ500が直方体である場合を示す。

- [0068] 図13-1～図13-3に示す例では、複数の金属ゲッタ510a～510gが、フィルタの内部に、一部開口部をのこすように垂直に固定される。言い換えると、フィルタ500は、図13-1～図13-3に示す例では、金属ゲッタ510が設けられたz軸の位置において、金属ゲッタ510によりふさがれていない箇所を有する。また、図13-1～図13-3に示す例では、金属ゲッタによりふさがれていない箇所が、らせんを描くように、金属ゲッタ510が固定される。
- [0069] 図14-1～図14-3は、傾けて配置した場合におけるフィルタの内部の構造の一例を示す図である。図14-1～図14-3に示す例では、図13-1～図13-3とは異なり、金属ゲッタ510h～510kが、垂直方向ではなく、垂直方向から配管L21側に傾いて固定される場合を例に示した。
- [0070] 図15-1～図15-3、及び、図16-1～図16-3は、一枚の金属ゲッタでらせんを形成した場合におけるフィルタの内部の構造の一例を示す図である。図15-1及び図16-1は、フィルタ500のyz平面における断面図の一例を示し、図15-2及び図16-2は、z軸上における任意の箇所におけるxy平面における断面図を示す。言い換えると、z軸上における任意の箇所においてフィルタ500を切断して配管L21側を除去した上で、断面から配管L22側を見た場合における図を示す。図15-3及び図16-3は、フィルタ500の内部に設けられた金属ゲッタ510の一例を示す。
- [0071] 図15-1～図15-3、及び図16-1～図16-3に示すように、図13-1～図14-3に示す例とは異なり、一枚の金属ゲッタ510m、nをらせんを描くように形成した上で、フィルタ500の内部に設けても良い。なお、図15-1～図15-3では、フィルタ500が円柱状である場合を示し、図16-1～図16-3は、フィルタ500が直方体である場合を示す。
- [0072] 図17-1及び図17-2は、多孔質材を用いた場合におけるフィルタの

内部の構造の一例を示す図である。図 17-1 及び図 17-2 に示すように、フィルタ 500 は、多孔質材で形成された金属ゲッタ 510 p や金属ゲッタ 510 q を、フィルタ内部に有しても良い。図 17-1 は、フィルタ 500 が円柱状である場合を示し、図 17-2 は、フィルタ 500 が直方体である場合を例に示した。この場合、キャリアガスは、多孔質材で形成された金属ゲッタ 510 を p、q 通過する。

[0073] 図 18-1 及び図 18-2 は、小球又は断片を用いた場合におけるフィルタの内部の構造の一例を示す図である。図 18-1 及び図 18-2 に示すように、フィルタ 500 は、小球又は断片となる金属ゲッタ 510 r を内部に敷き詰めても良い。図 18-1 は、フィルタ 500 が円柱状である場合を示し、図 18-2 は、フィルタ 500 が直方体である場合を例に示した。この場合、キャリアガスは、金属ゲッタ 510 r で形成された小球又は断片の間を通過する。

[0074] 図 19-1 ～図 19-3 は、メッシュ材を用いた場合におけるフィルタの内部の構造の一例を示す図である。図 19-1 に示すように、フィルタ 500 の内部にメッシュ材で形成された金属ゲッタ 510 s を設け、配管 L21 の出口をメッシュ材で形成された金属ゲッタ 510 s の内部に設けても良い。この場合、配管 L21 から流出したキャリアガスが、メッシュ材を拡散した後、配管 L22 へと移動する。なお、図 19-2 は、図 19-1 とは逆に、配管 L22 の入口がメッシュ材で形成された金属ゲッタ 510 s の内部に設けられる場合を示す。すなわち、金属ゲッタ 510 s にキャリアガスが収束された後、配管 L22 へと移動する。また、図 19-3 は、複数のメッシュ材で形成された金属ゲッタ 510 s をフィルタ 500 の中央部に設けた上で、配管 L21 の出口及び、配管 L22 の入口のいずれについても、メッシュ材で形成された金属ゲッタ 510 s の内部に設けない場合を示す。なお、図 19-1 ～図 19-3 に示す例では、メッシュ材は、1つのメッシュ材を用いても良く、複数の異なる空隙率のメッシュ材を併せて用いて良い。

[0075] また、フィルタ 500 では、金属ゲッタ 510 s を動作させる活性化温度

が、フィルタ５００にて除去する不純物の蒸発温度より少なくとも５０℃高い。例えば、フィルタ５００にて除去する水や有機溶媒の蒸発温度は、３２０℃～３３０℃までであることを踏まえ、フィルタ５００を被覆しているヒータ８００により３７０℃以上にフィルタ５００を加熱された上で用いられる。この結果、キャリアガスは、フィルタ５００にて加熱されることにもなる。

[0076] また、フィルタ５００は、概ね２５℃から８００℃まで利用可能なことが好ましい。また、フィルタ５００は、真空中、減圧環境下において利用可能であり、使用圧力範囲は、例えば、 $1.0 \times 10^{-6} \text{ Pa}$ から 10 Pa であるが、これに限定されるものではない。フィルタ５００では、出口側の圧力が、入口側の圧力と比較して低くなる。例えば、出口側の圧力が 30 Pa となる。この結果、キャリアガスの逆流を防止可能であり、フィルタ５００内部をキャリアガスが適切に通過可能となる。

[0077] ここで、ガスフロー蒸着装置２０ａは、フィルタ５００の温度と、フィルタ５００と材料容器２００との間の配管の温度と、材料容器２００と蒸着ヘッド１００との間の配管の温度とが同一の温度又は所定の温度差内になるように制御する温度制御部を有する。具体的には、熱電対７００により測定される温度に基づいてヒータ８００による加熱温度を制御することで、各部位の温度が同一の温度又は所定の温度差内になるように制御する。例えば、ガスフロー蒸着装置２０ａは、同一の温度、又は２０℃以内になるように制御する。この結果、フィルタ５００にて加熱されたことで蒸発した物質が、低い温度にさらされることで他の部位に付着することを防止可能となる。温度制御部は、例えば、ガスフロー蒸着装置２０ａに搭載されたＣＰＵなどの処理回路によって実現される。

[0078] ここで、フィルタ５００を有するガスフロー蒸着装置２０ａにおける動作について簡単に説明する。ガスフロー蒸着装置２０ａでは、成膜時には、フィルタ５００をヒータ８００により加熱し、金属ゲッタ５１０の活性化温度にまで一度上げた後、フィルタ５００が最も効率良く機能する温度に保温す

る。フィルタ５００が最も効率良く機能する温度とは、捕捉する物質、金属ゲッタ５１０によって異なる。フィルタ５００が最も効率良く機能する温度とは、例えば、２５℃～３５０℃である。

[0079] その後、ガスフロー蒸着装置２０ａに導入されると、キャリアガスの流量を流量制御部４００がキャリアガスの流量を調整し、流量調整されたキャリアガスがフィルタ５００に送られる。フィルタ５００では、不純物を除去することで高純度化する。そして、高純度化されたキャリアガスが、材料容器２００側に設けられたバルブＶ３０を開けることで、材料容器２００に送られる。なお、この際には、バルブＶ７０を閉じておくことで、高純度化されたキャリアガスが排気されるのを防ぐ。

[0080] ガスフロー蒸着装置２０ａは、フィルタ５００と材料容器２００との間の配管を閉じた上で、フィルタ５００を所定の温度に加熱することで、フィルタ５００に蓄積された不純物を除去する制御部を有する。このため、以下では、フラッシング時における動作について説明する。言い換えると、フィルタ５００をクリーニングする場合における動作について説明する。この場合、ガスフロー蒸着装置２０ａでは、フィルタ５００をヒータ８００により加熱し、フラッシングに適した温度まで上げる。例えば、少なくとも一度活性化温度にまであげた上で、３００℃から８００℃にまで上げる。その上で、温度を保持した上で、３０分以上加熱する。なお、加熱時間は任意の時間であって良く、３０分未満であっても良く、３０分以上であっても良い。この結果フィルタ５００からの脱ガス及びフィルタ５００の再活性化を行う。

[0081] そして、バルブＶ３０を閉じ、バルブＶ７０を開けることで、フィルタ５００から発生した脱ガスを排気する。また、この際、例えば、バルブＶ５０を一度あけてキャリアガスをフィルタ５００に一度ためた後、加熱して排気しても良く、バルブＶ５０をあけたまま、キャリアガスを流しながら、加熱して排気しても良い。

[0082] すなわち、ガスフロー蒸着装置２０ａは、フィルタ５００から排気するための配管を更に有し、フィルタ５００と材料容器２００との間の配管を閉じ

、フィルタ５００から排気するための配管を開けた上で、流量制御部４００からキャリアガスをフィルタ５００に流出させながらフィルタ５００を所定の温度に加熱することで、フィルタ５００に除去されて蓄積された不純物を除去しても良い。

[0083] このように、ガスフロー蒸着装置２０ａは、キャリアガスの流量を制御する流量制御部４００と、流量制御部４００によって流量を制御されたキャリアガスの不純物を除去するためのフィルタ５００と、蒸着材料を内部に収容し、フィルタ５００を通過したキャリアガスとともに蒸着材料の蒸気を流出する材料容器２００と、材料容器２００から流出された蒸着材料の蒸気及びキャリアガスを含むガスを噴射する蒸着ヘッド１００とを有する。

[0084] また、キャリアガスの流量を制御する流量制御部４００から流出したキャリアガスの不純物をフィルタ５００で除去し、不純物が除去されて第１のバルブ、例えば、配管Ｌ２２を介して材料容器に流入したキャリアガスとともに材料容器２００の内部に収容した蒸着材料の蒸気を流出し、第２のバルブ、例えば、配管Ｌ１８を介して流出した蒸着材料の蒸気及びキャリアガスを含むガスを蒸着ヘッド１００から噴射する。

[0085] この結果、キャリアガスを高純度化でき、例えば、基板に成膜される有機材料中に含まれる水分量を低減することができる。

[0086] また、ガスフロー蒸着装置２０ａでは、フィルタ５００の温度と、フィルタ５００と材料容器２００との間の配管の温度と、材料容器２００と蒸着ヘッド１００との間の配管の温度とが同一の温度又は所定の温度差内になるように制御する。この結果、一度蒸発したものが付着することを防止可能となる。

[0087] また、ガスフロー蒸着装置２０ａでは、フィルタ５００は、金属ゲッタ５１０を有し、金属ゲッタ５１０を動作させる活性化温度が、フィルタ５００にて除去する不純物の蒸発温度より少なくとも５０℃高い。この結果、効率良く不純物を除去可能となる。

[0088] また、ガスフロー蒸着装置２０ａでは、フィルタ５００は、出口側の圧力

が、入口側の圧力と比較して低くなる。この結果、逆流を防止することが可能となる。

[0089] また、ガスフロー蒸着装置 20a では、フィルタ 500 と材料容器 200 との間の配管を閉じた上で、フィルタ 500 を所定の温度に加熱することで、フィルタ 500 に除去されて蓄積された不純物を除去する制御部を有する。この結果、フィルタ 500 を恒久的に使用可能となる。

[0090] また、ガスフロー蒸着装置 20a では、フィルタ 500 から排気するための配管を更に有し、フィルタ 500 と材料容器 200 との間の配管を閉じ、フィルタ 500 から排気するための配管を開けた上で、流量制御部 400 からキャリアガスをフィルタ 500 に流出させながらフィルタ 500 を所定の温度に加熱することで、フィルタ 500 に除去されて蓄積された不純物を除去する制御部を有する。この結果、効率良く不純物を除去可能となる。

符号の説明

- [0091] 10 基板処理システム
20 ガスフロー蒸着装置
100 蒸着ヘッド
200 材料容器
300 熱交換器
320 細管
350 ヒータ
370 ニードル
400 流量制御部
500 フィルタ
V10, V20, V30, V40, V50, V60 バルブ

請求の範囲

- [請求項1] キャリアガスの流量を制御する流量制御部と、
 前記流量制御部によって流量を制御されたキャリアガスを加熱する熱交換器と、
 蒸着材料を内部に収容し、前記熱交換器によって加熱されたキャリアガスとともに前記蒸着材料の蒸気を流出する材料容器と、
 前記材料容器から流出された前記蒸着材料の蒸気及び前記キャリアガスを含むガスを噴射する蒸着ヘッドと、を備え、
 前記熱交換器は、前記キャリアガスの流入側の圧力と前記キャリアガスの流出側の圧力との差圧が生じる熱交換器である
 ことを特徴とするガスフロー蒸着装置。
- [請求項2] 前記熱交換器は、前記差圧が250Pa以上になるよう形成された熱交換器である
 ことを特徴とする請求項1に記載のガスフロー蒸着装置。
- [請求項3] 前記熱交換器は、前記キャリアガスの流入側から前記キャリアガスの流出側へ通流したキャリアガスの量に対する、前記キャリアガスの流出側から前記キャリアガスの流入側へ通流した水の量の割合が、1パーセント以下になるよう形成された熱交換器である
 ことを特徴とする請求項1又は2に記載のガスフロー蒸着装置。
- [請求項4] 前記熱交換器は、ペクレ数が5以上になるよう形成された熱交換器である
 ことを特徴とする請求項1乃至3のいずれか1項に記載のガスフロー蒸着装置。
- [請求項5] 前記流量制御部によって前記キャリアガスの流量を第1の流量から第2の流量へ変えた場合において、前記流量の変更指令が発生してから前記キャリアガスの流量が前記第2の流量になるまでの時間が5sec以下である
 ことを特徴とする請求項1乃至4のいずれか1項に記載のガスフロ

一蒸着装置。

[請求項6]

キャリアガスの流量を制御する流量制御部から流出したキャリアガスを熱交換器で加熱する第1の工程と、

前記第1の工程で加熱され第1のバルブを介して材料容器に流入したキャリアガスとともに前記材料容器の内部に収容した蒸着材料の蒸気を流出する第2の工程と、

前記第2の工程の後第2のバルブを介して流出した前記蒸着材料の蒸気及び前記キャリアガスを含むガスを蒸着ヘッドから噴射する第3の工程と、を備えたガスフロー蒸着方法であって、

前記第1のバルブを閉じた状態で前記流量制御部と前記熱交換器との間の配管から分岐する第1のベント配管から第1の排気処理を行い、

前記第1の排気処理の後、前記第1のバルブを開くとともに前記第2のバルブを閉じ、前記材料容器と前記第2のバルブの間の配管から分岐する第2のベント配管から第2の排気処理を行い、

前記第2の排気処理の後、前記蒸着材料の蒸気及び前記キャリアガスを含むガスを前記蒸着ヘッドから噴射する

ことを特徴とするガスフロー蒸着方法。

[請求項7]

キャリアガスの流量を制御する流量制御部と、

前記流量制御部によって流量を制御されたキャリアガスの不純物を除去するためのフィルタと、

蒸着材料を内部に収容し、前記フィルタを通過したキャリアガスとともに前記蒸着材料の蒸気を流出する材料容器と、

前記材料容器から流出された前記蒸着材料の蒸気及び前記キャリアガスを含むガスを噴射する蒸着ヘッドと

を備えることを特徴とするガスフロー蒸着装置。

[請求項8]

前記フィルタの温度と、前記フィルタと前記材料容器との間の配管の温度と、前記材料容器と蒸着ヘッドとの間の配管の温度とが同一の

温度又は所定の温度差内になるように制御する温度制御部を更に有することを特徴とする請求項 7 に記載のガスフロー蒸着装置。

[請求項9] 前記フィルタは、金属ゲッタを有し、前記金属ゲッタを動作させる活性化温度が、前記フィルタにて除去する不純物の蒸発温度より少なくとも 50℃高いことを特徴とする請求項 7 に記載のガスフロー蒸着装置。

[請求項10] 前記フィルタは、出口側の圧力が、入口側の圧力と比較して低いことを特徴とする請求項 7 に記載のガスフロー蒸着装置。

[請求項11] 前記フィルタと前記材料容器との間の配管を閉じた上で、前記フィルタを所定の温度に加熱することで、前記フィルタに除去されて蓄積された不純物を除去する制御部を有することを特徴とする請求項 7 に記載のガスフロー蒸着装置。

[請求項12] 前記フィルタから排気するための配管を更に有し、
前記フィルタと前記材料容器との間の配管を閉じ、前記フィルタから排気するための配管を開けた上で、前記流量制御部から前記キャリアガスを前記フィルタに流出させながら前記フィルタを所定の温度に加熱することで、前記フィルタに除去されて蓄積された不純物を除去する制御部を有することを特徴とする請求項 7 に記載のガスフロー蒸着装置。

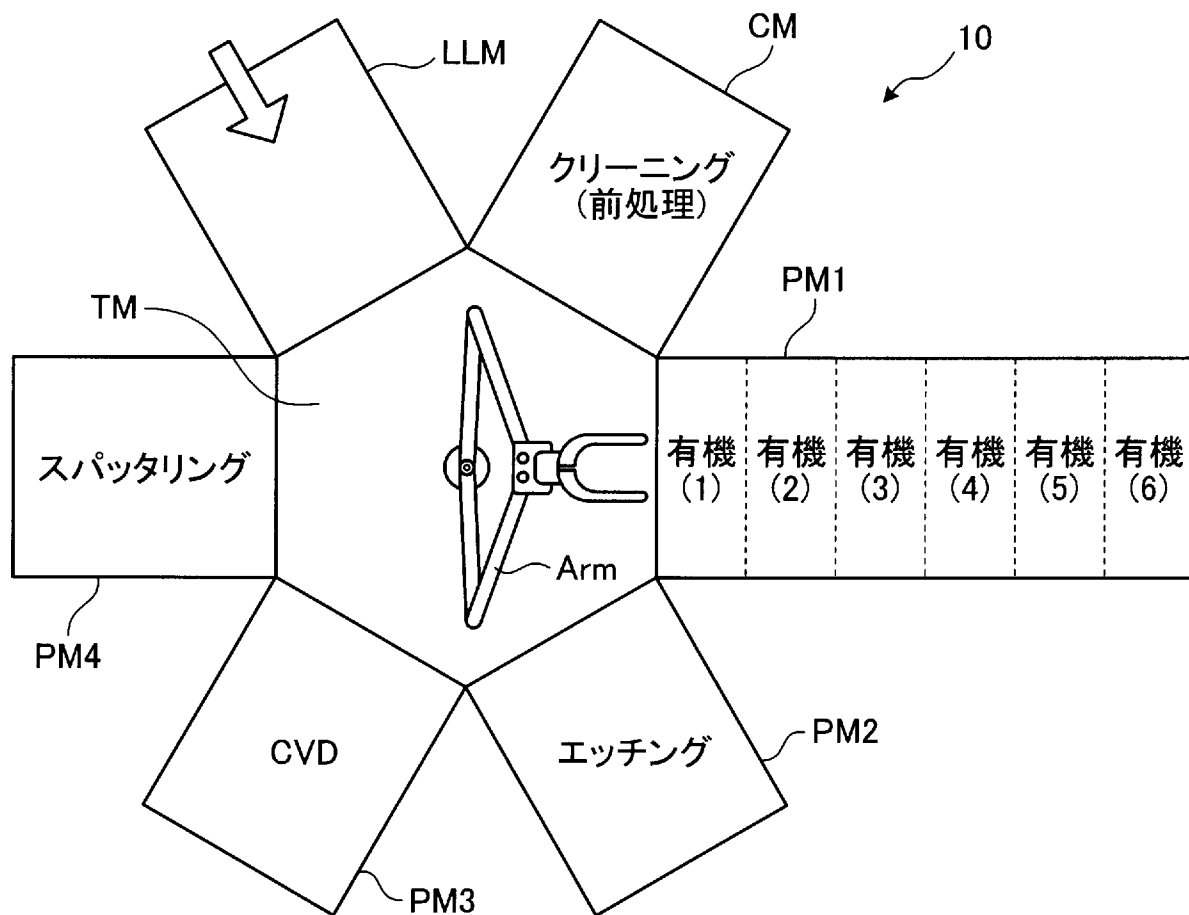
[請求項13] キャリアガスの流量を制御する流量制御部から流出したキャリアガスの不純物をフィルタで除去し、

不純物が除去されて第 1 のバルブを介して材料容器に流入したキャリアガスとともに前記材料容器の内部に収容した蒸着材料の蒸気を流出し、

第 2 のバルブを介して流出した前記蒸着材料の蒸気及び前記キャリアガスを含むガスを蒸着ヘッドから噴射する

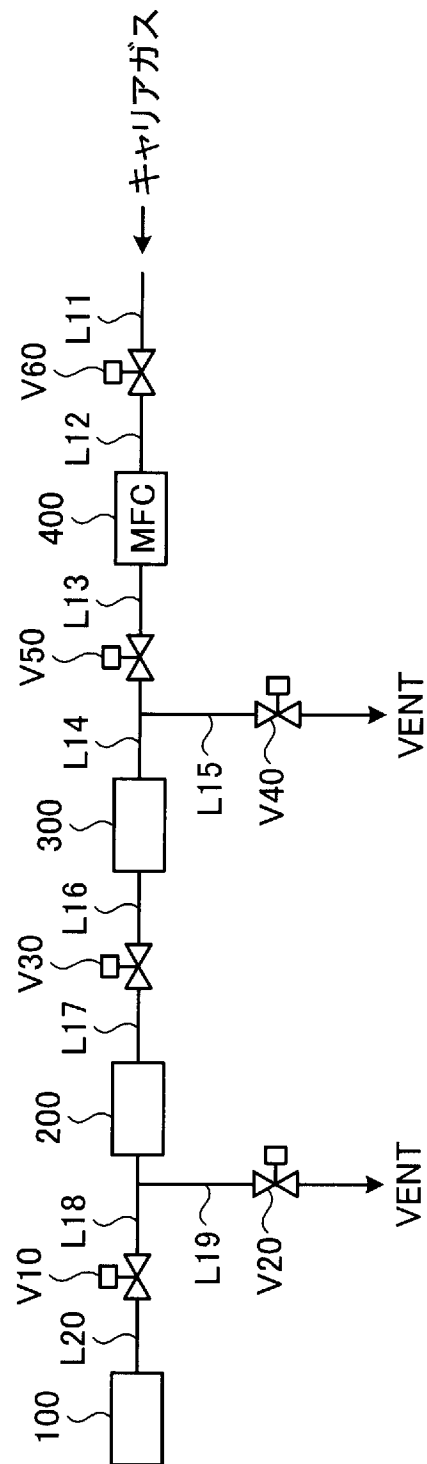
ことを特徴とするガスフロー蒸着方法。

[図1]

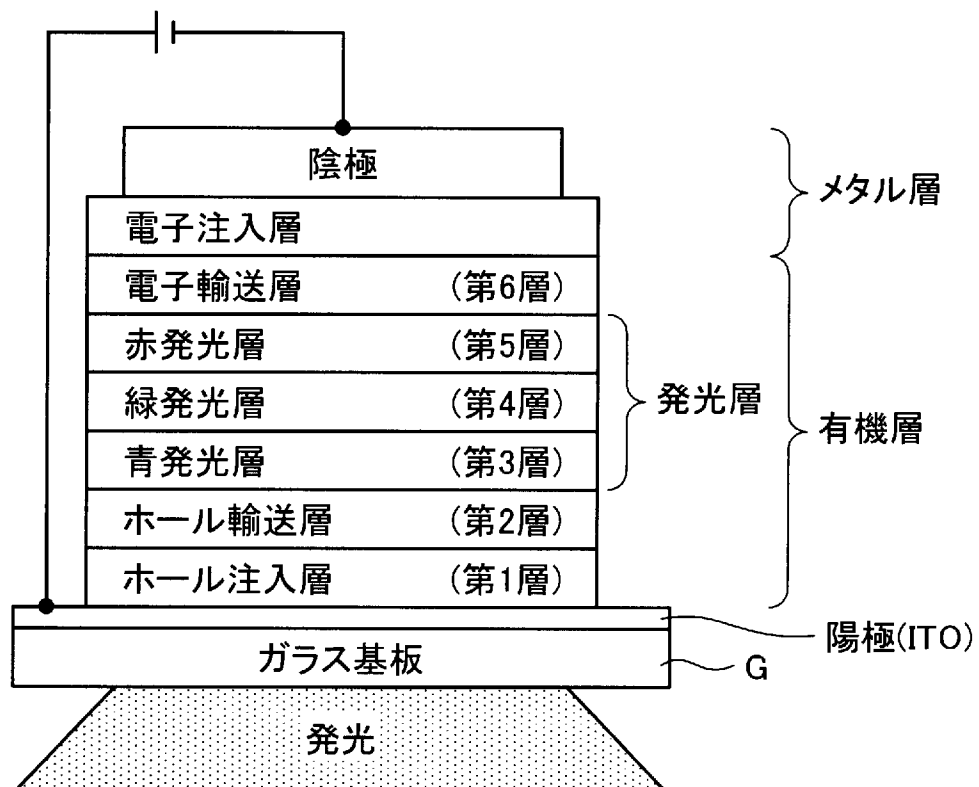


[図2]

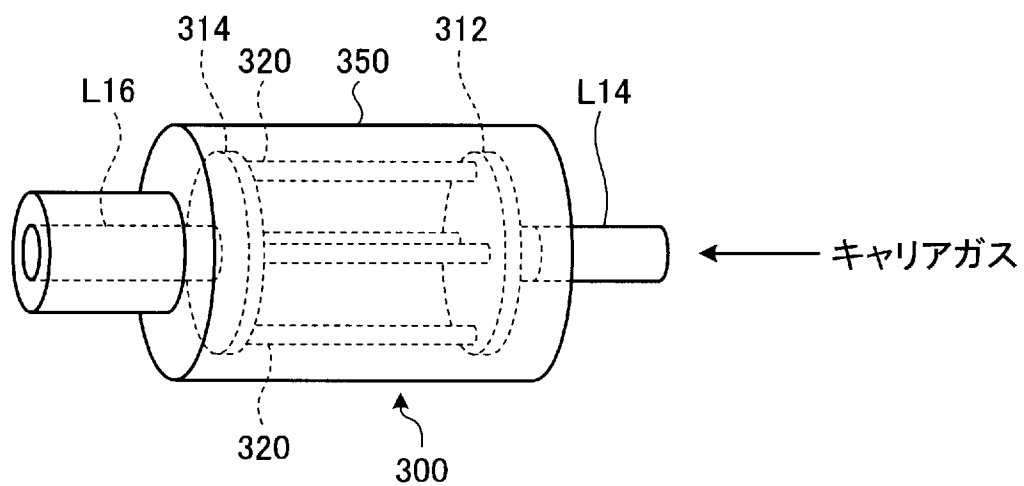
20



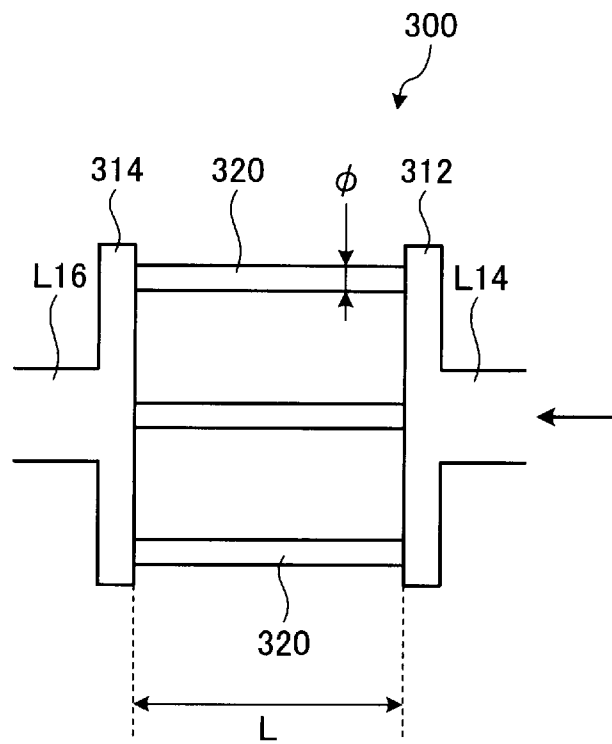
[図3]



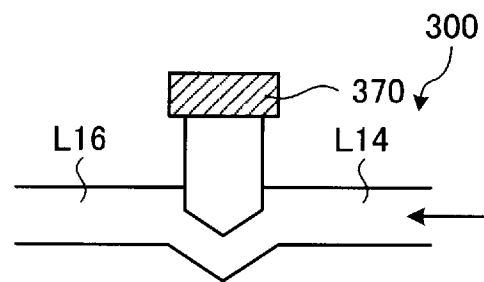
[図4]



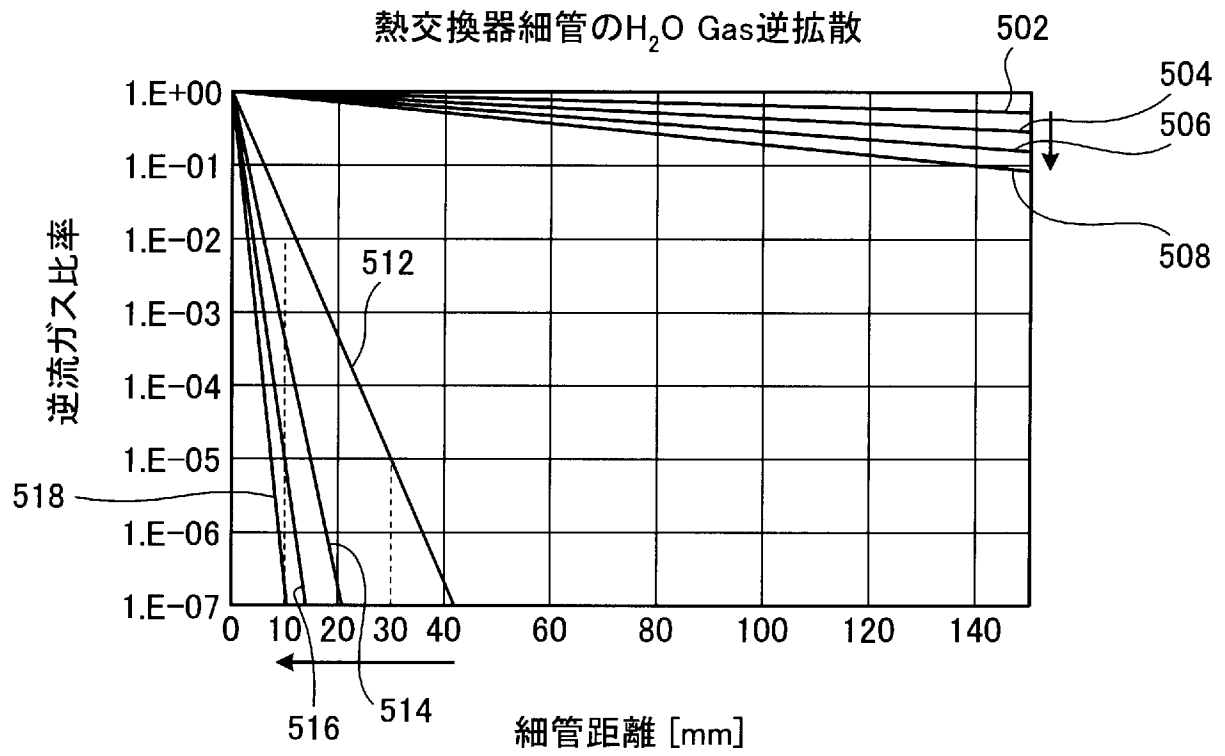
[図5]



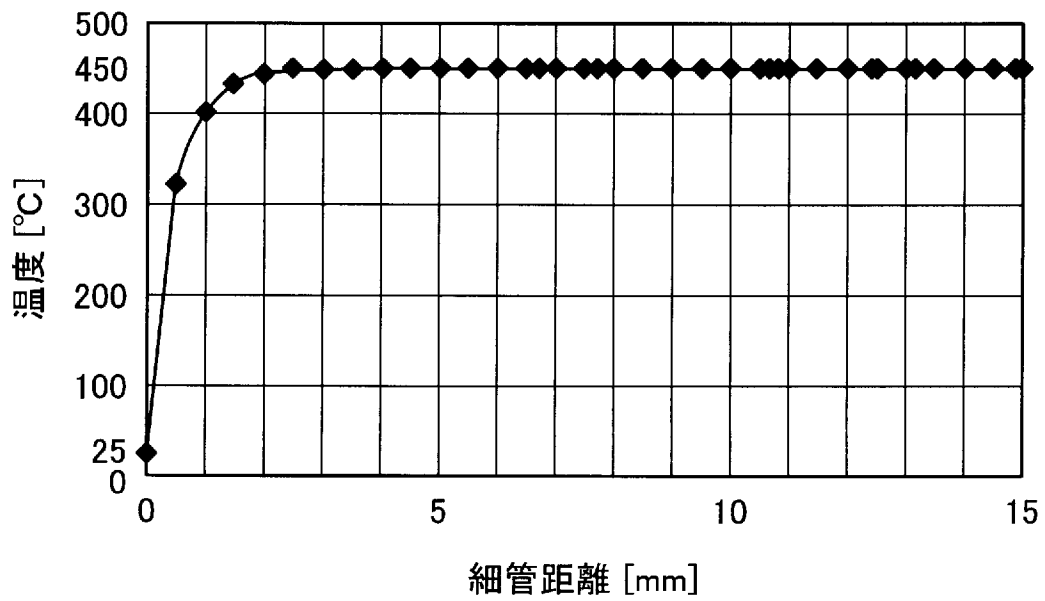
[図6]



[図7]

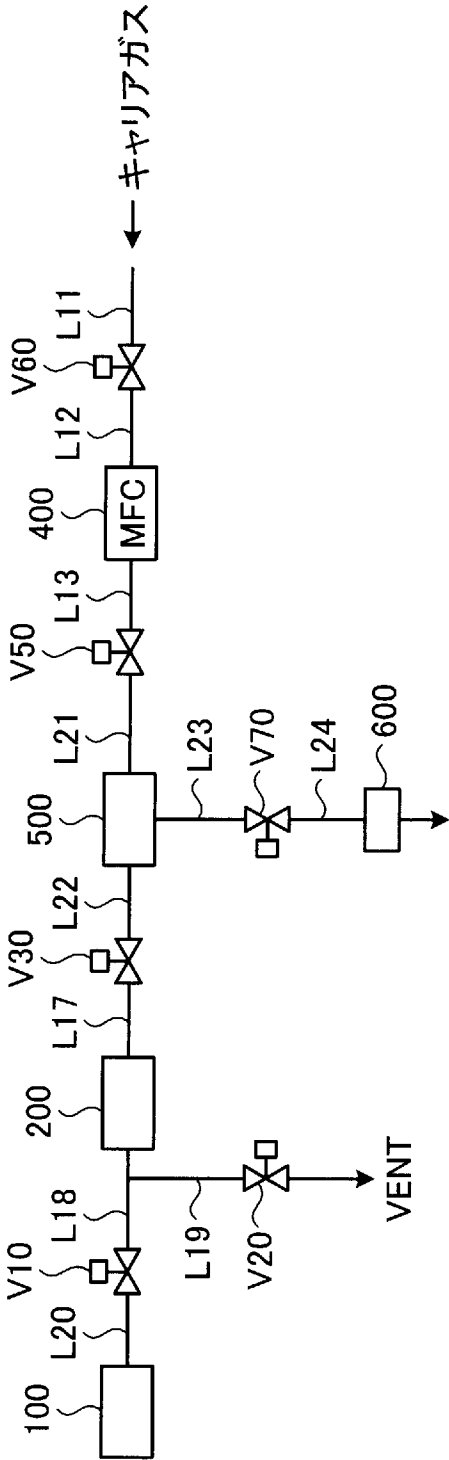


[図8]



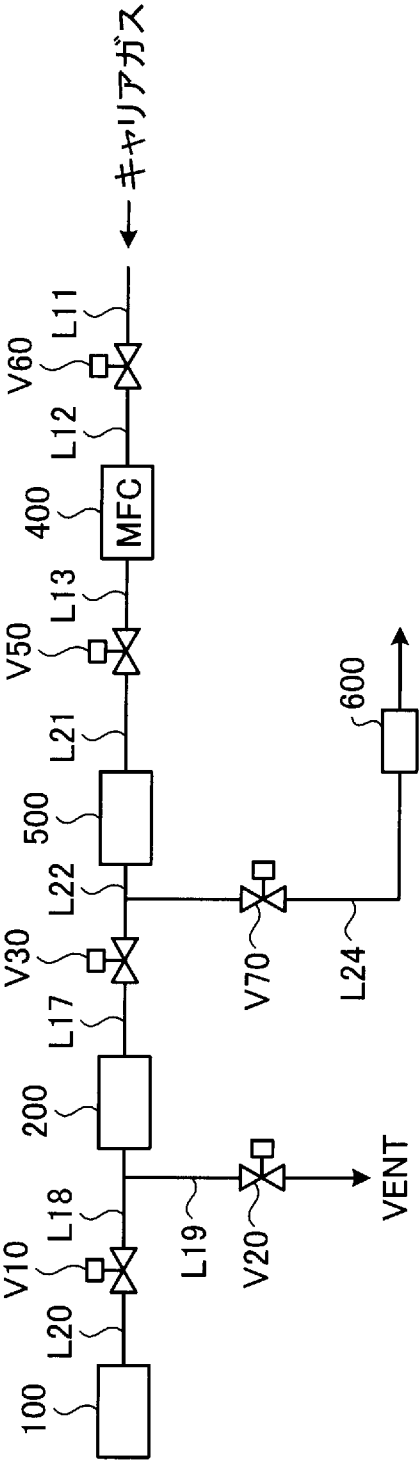
[図9]

20a

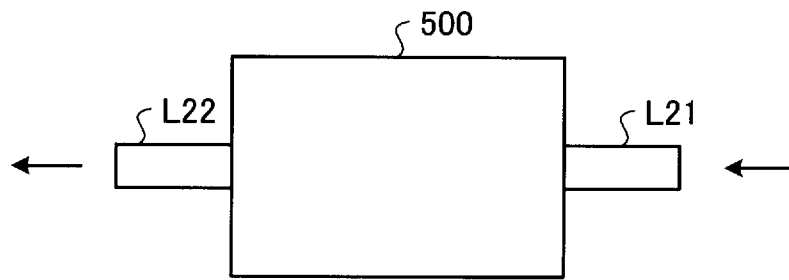


[図10]

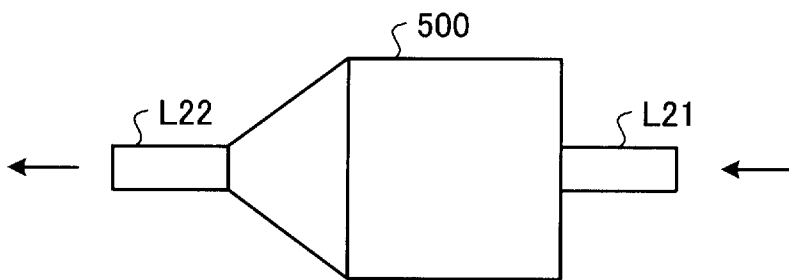
20a



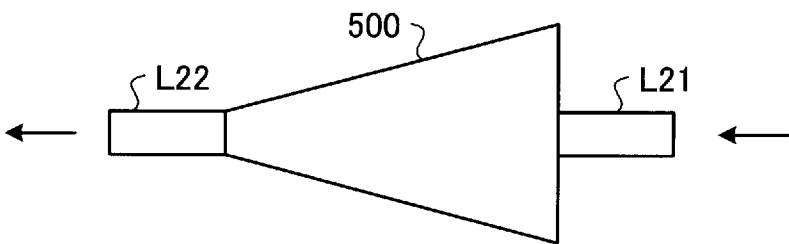
[図12-1]



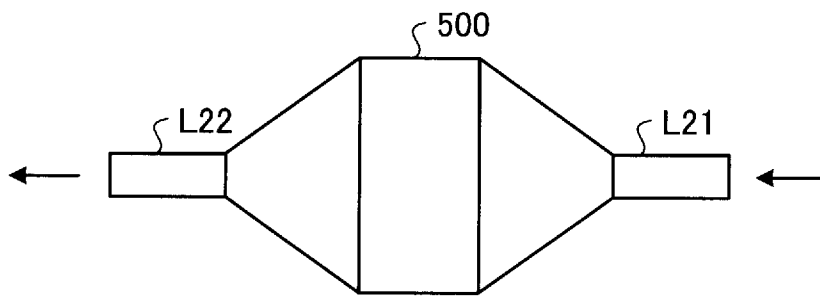
[図12-2]



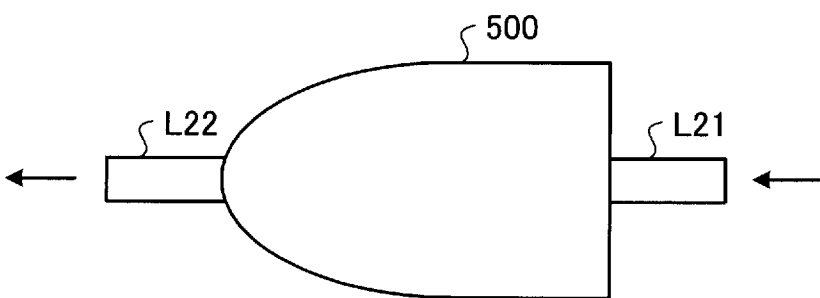
[図12-3]



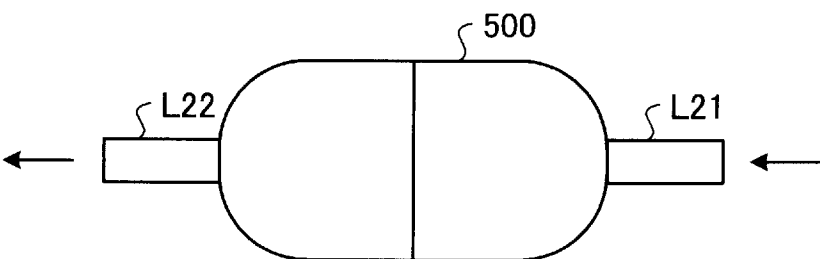
[図12-4]



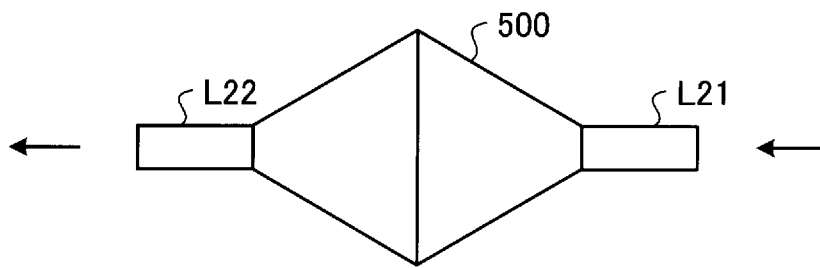
[図12-5]



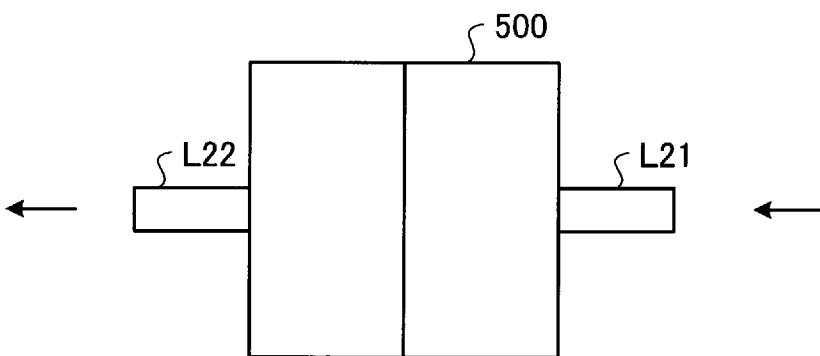
[図12-6]



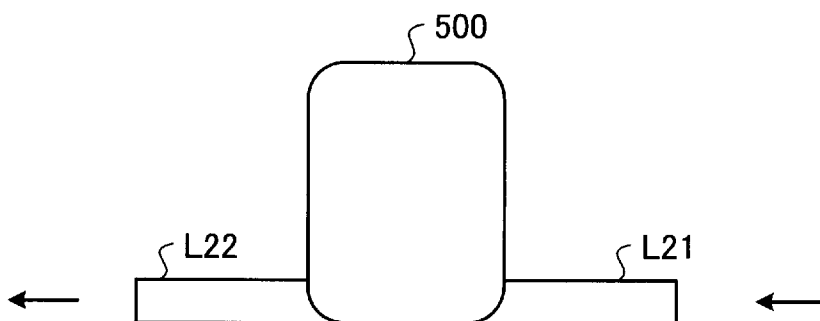
[図12-7]



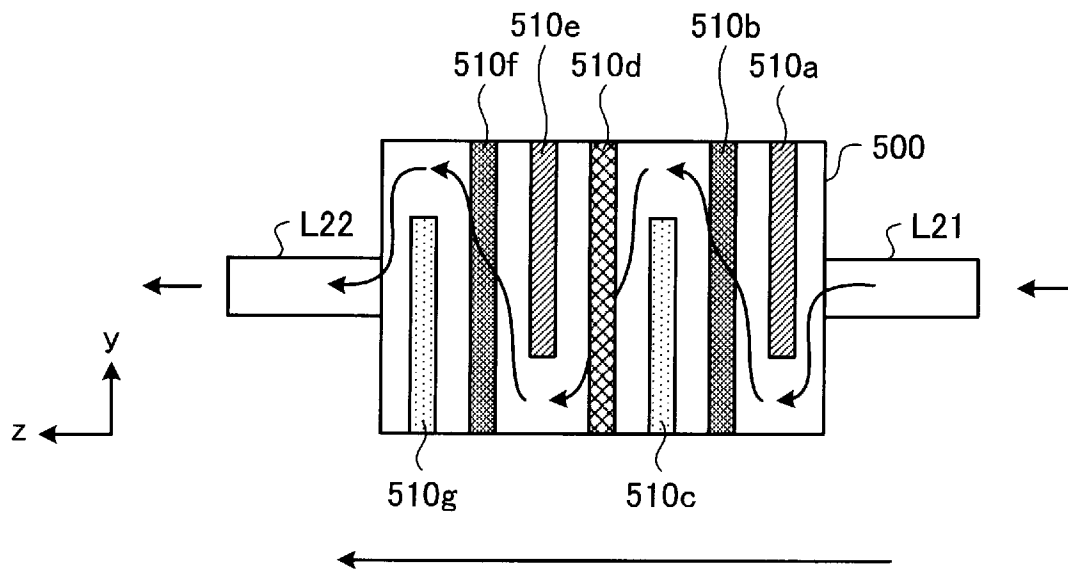
[図12-8]



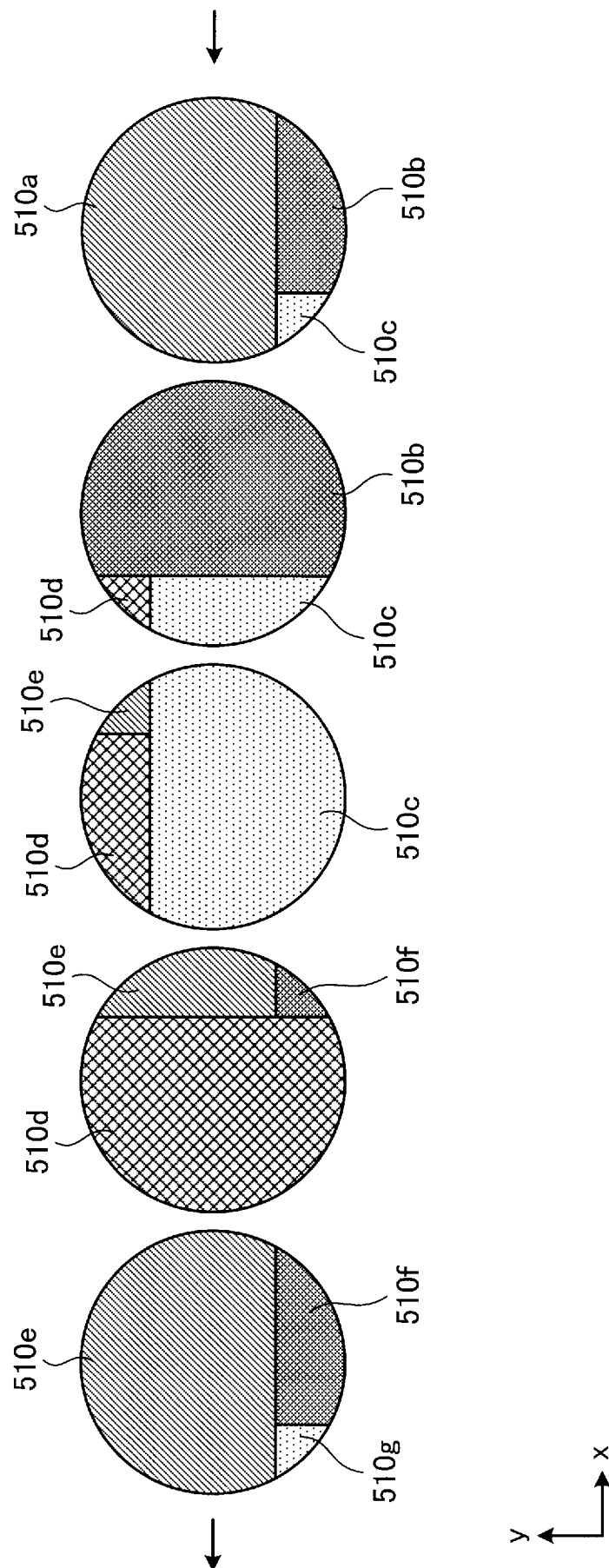
[図12-9]



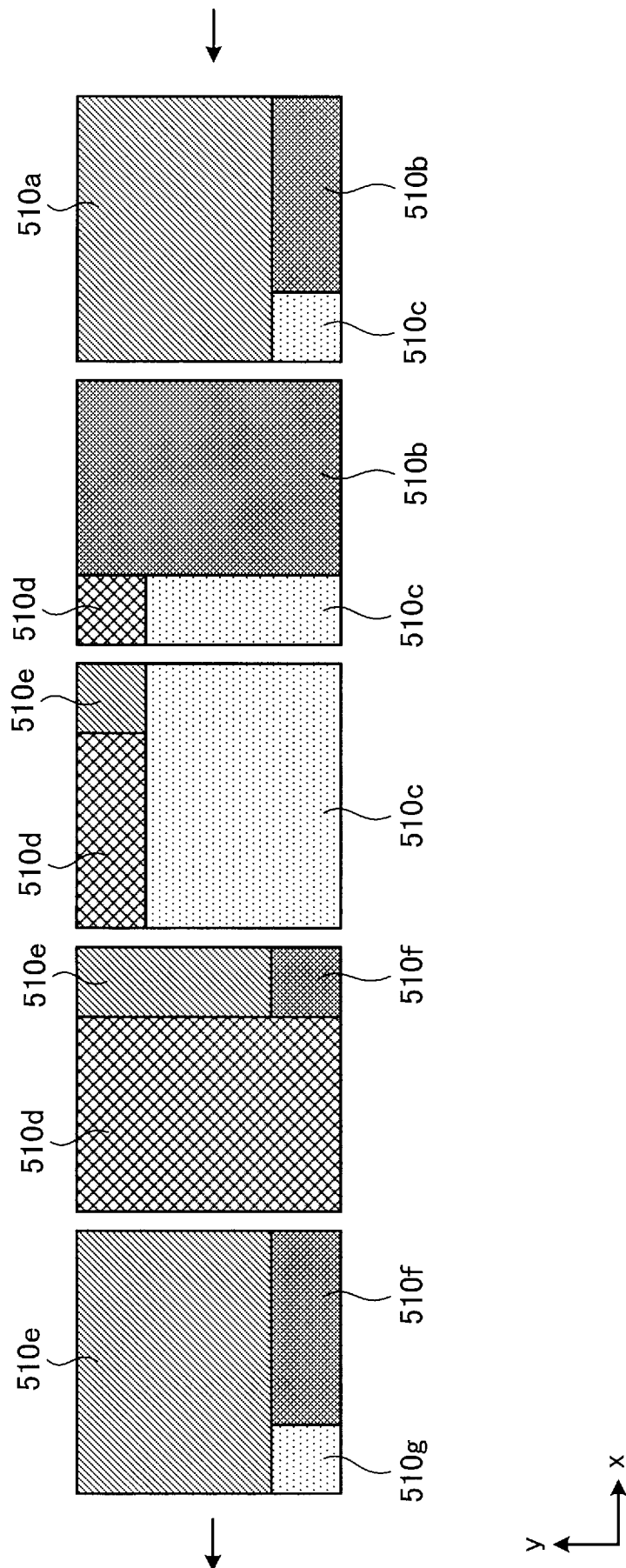
[図13-1]



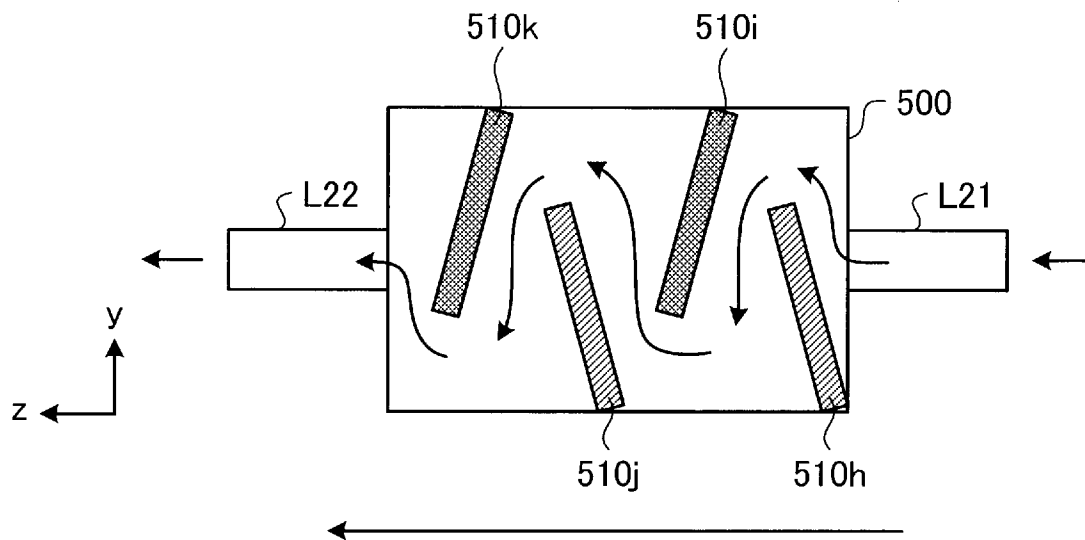
[図13-2]



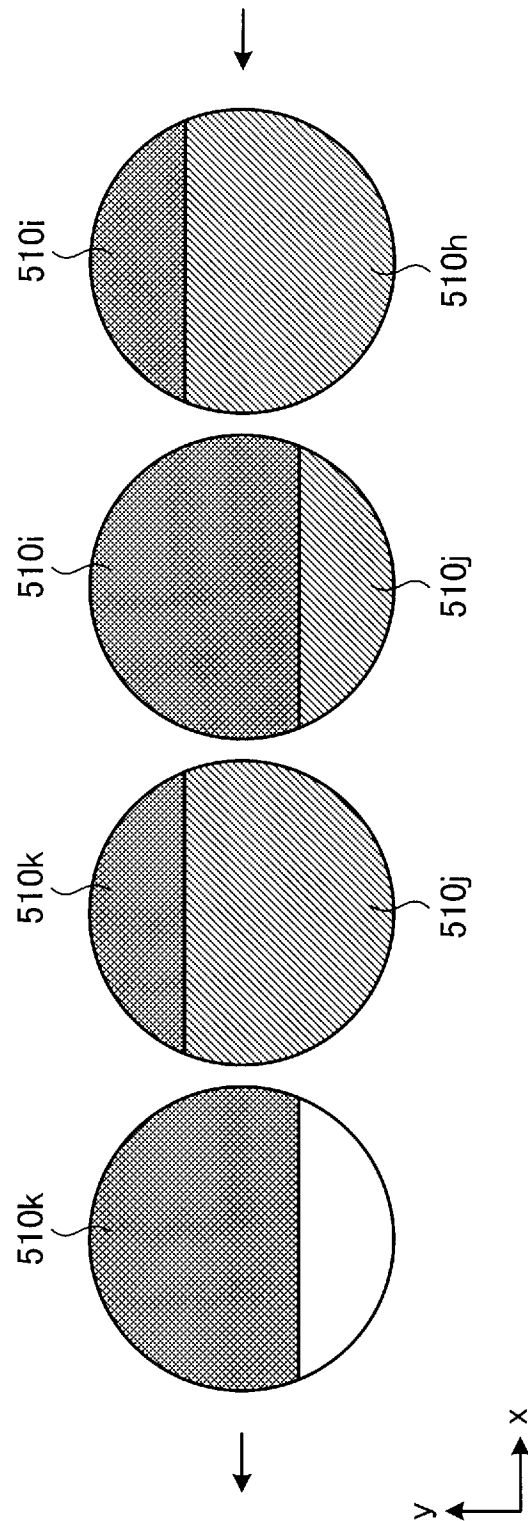
[図13-3]



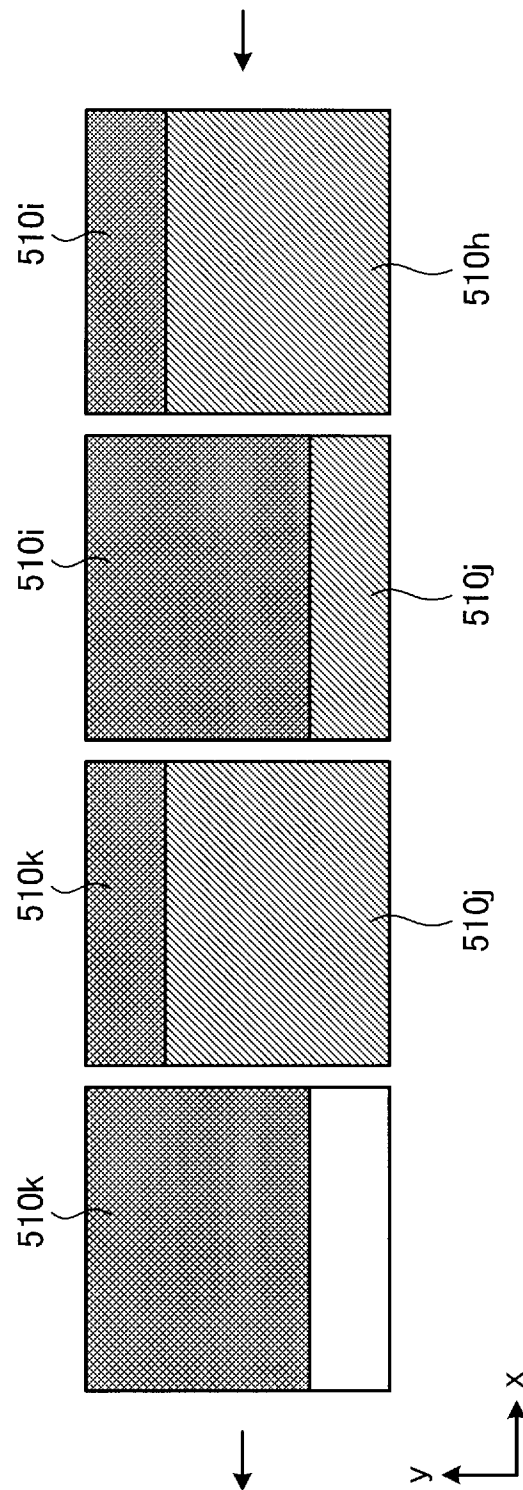
[図14-1]



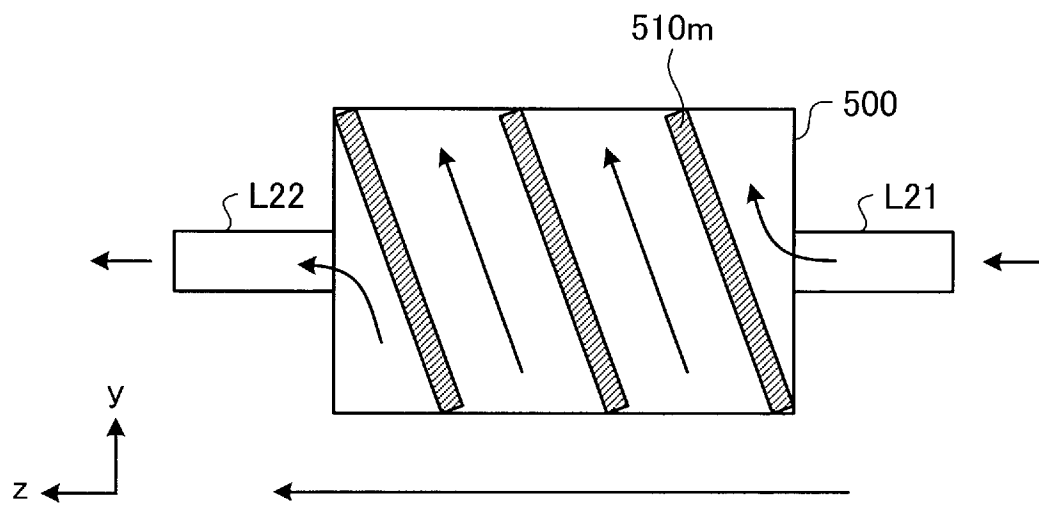
[図14-2]



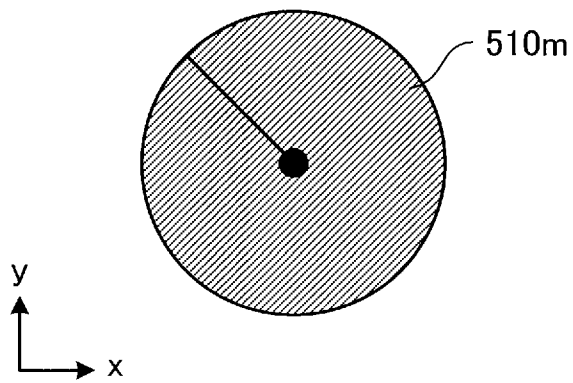
[図14-3]



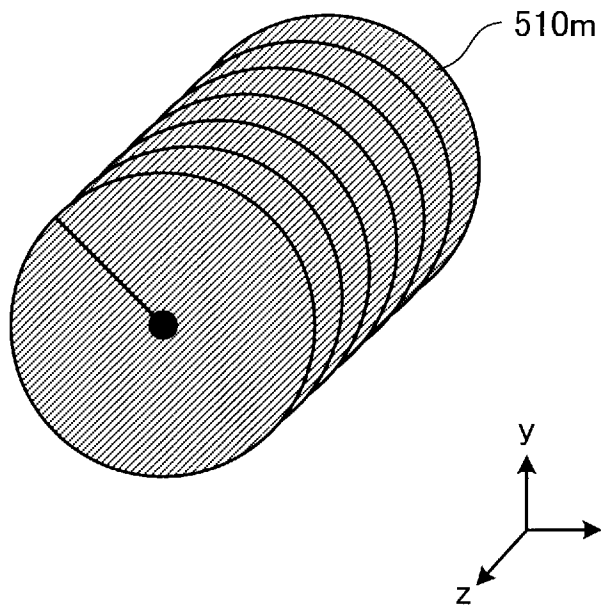
[図15-1]



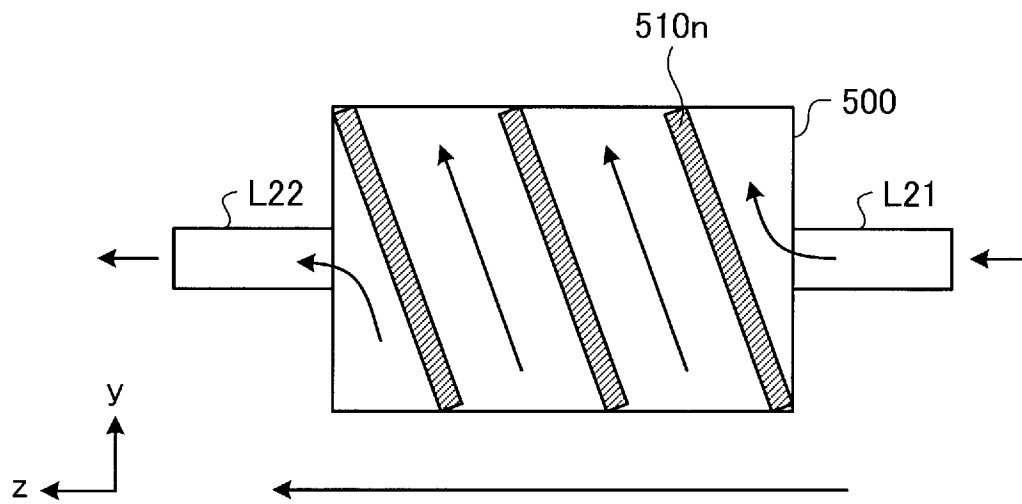
[図15-2]



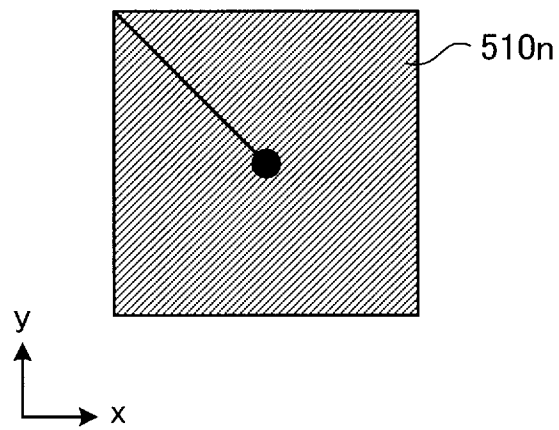
[図15-3]



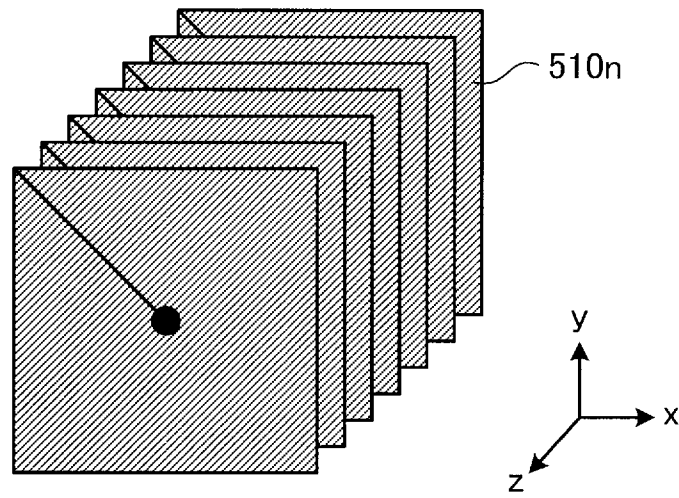
[図16-1]



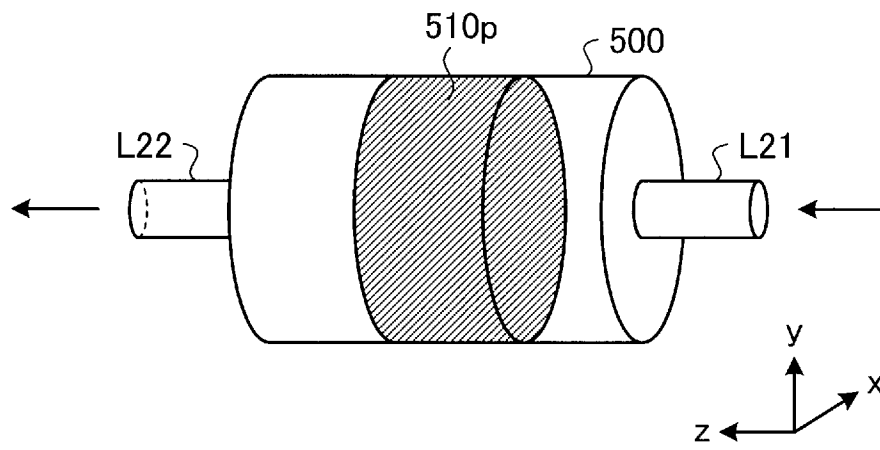
[図16-2]



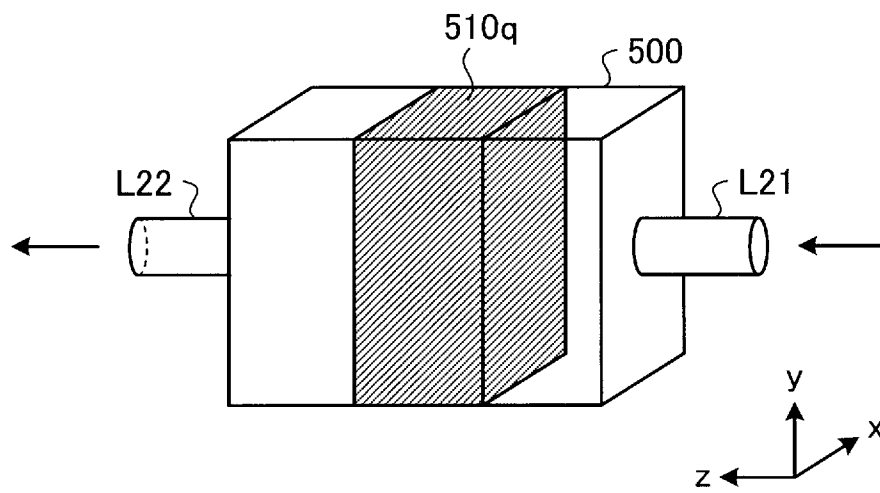
[図16-3]



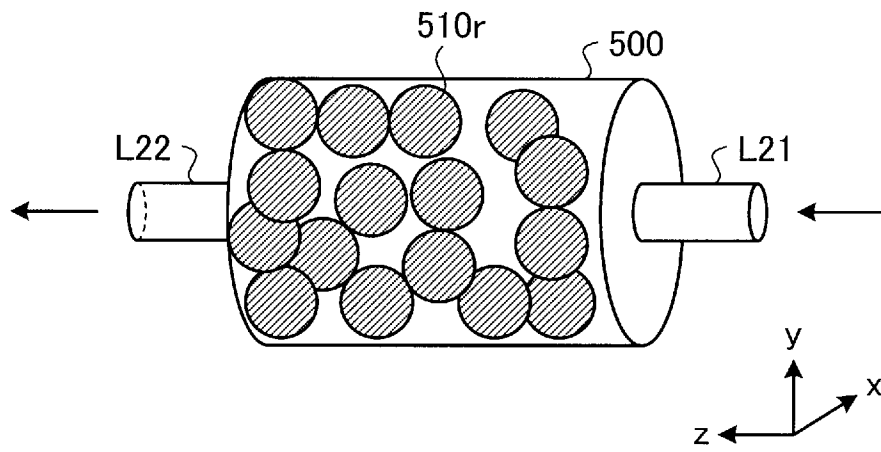
[図17-1]



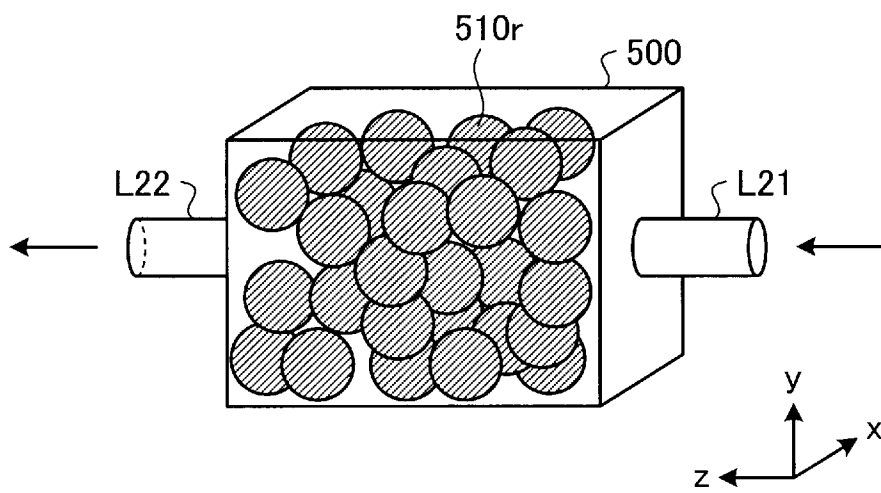
[図17-2]



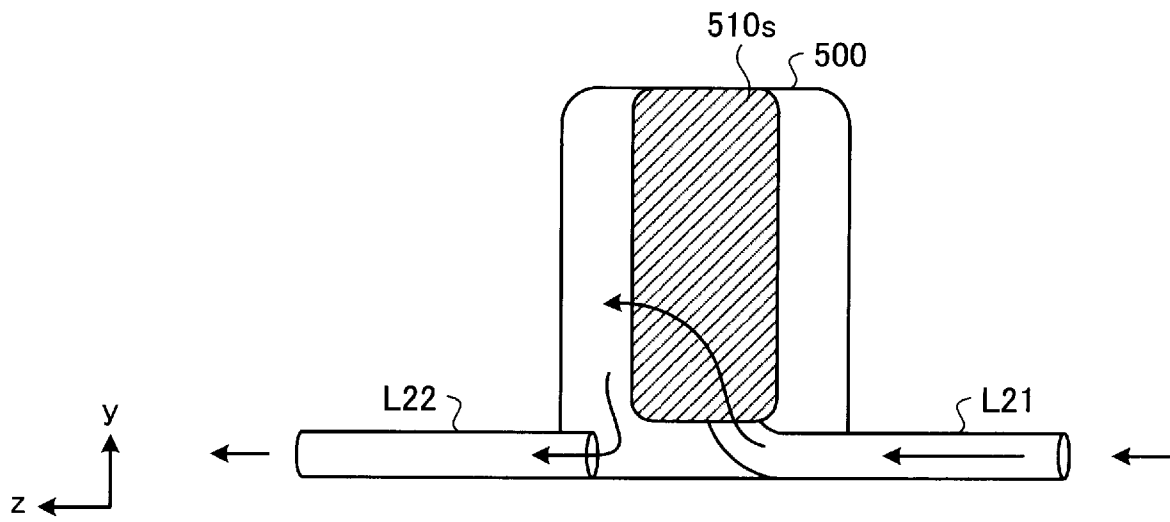
[図18-1]



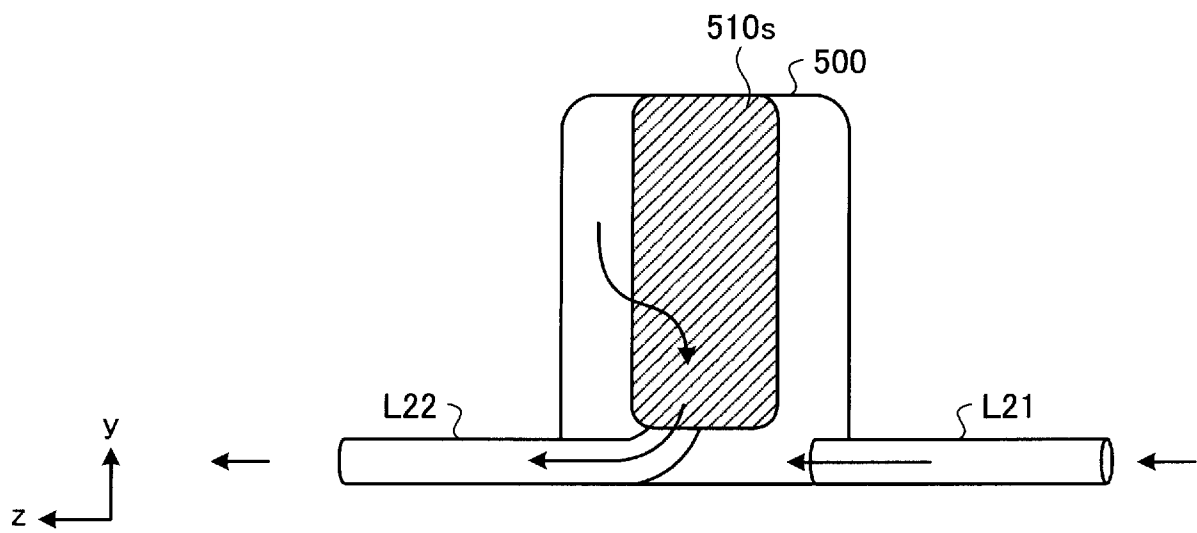
[図18-2]



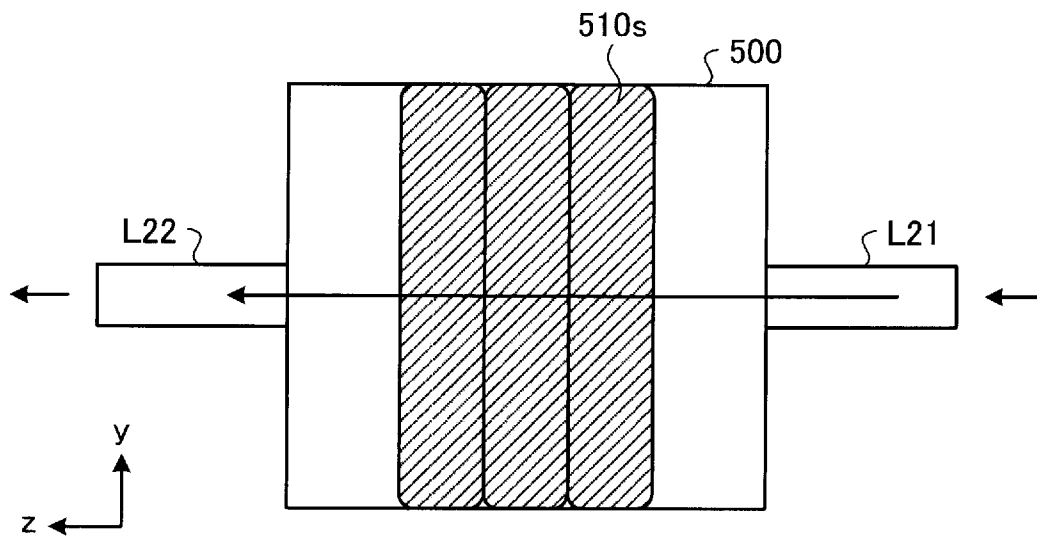
[図19-1]



[図19-2]



[図19-3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/061645

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C23C14/24(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/10(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C23C14/24, H01L51/50, H05B33/10

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2013
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2013	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2013

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2009/034939 A1 (Ulvac, Inc.), 19 March 2009 (19.03.2009), paragraphs of Best Mode for carrying out the Invention; drawings & WO 2009/034915 A1 & WO 2009/034916 A1 & WO 2009/034938 A1 & US 2010/0178424 A1 & US 2010/0170439 A1 & US 2010/0170444 A1 & US 2010/0209609 A1 & EP 2190263 A1 & EP 2187708 A1 & EP 2187709 A1 & EP 2190264 A1 & CN 101803461 A & CN 101803459 A & CN 101803460 A & CN 101803462 A & KR 10-2010-0053637 A & KR 10-2010-0040952 A & KR 10-2010-0051853 A & KR 10-2010-0053631 A & TW 200918680 A & TW 200925303 A & TW 200927964 A & TW 200932929 A	1-5, 7-13

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

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date

“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

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

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

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

“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
12 June, 2013 (12.06.13)

Date of mailing of the international search report
25 June, 2013 (25.06.13)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/061645

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2010-24498 A (Tokyo Electron Ltd.), 04 February 2010 (04.02.2010), paragraphs of Best Mode for carrying out the Invention; drawings & WO 2010/007981 A1	6
X	JP 59-80777 A (Hitachi, Ltd.), 10 May 1984 (10.05.1984), paragraphs of examples of the invention; drawings (Family: none)	6
X	JP 9-269100 A (Frontec Inc.), 14 October 1997 (14.10.1997), claim 1; paragraphs of Mode for Carrying out the Invention; examples; drawings (Family: none)	6
X	JP 2001-73116 A (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.), 21 March 2001 (21.03.2001), paragraphs of Mode for Carrying out the Invention; drawings (Family: none)	6

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/061645

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

Ultimately, the inventions in claims 1-5, 6, 7-12, and 13 have a common technical feature that involves a carrier gas flow rate control unit and a gas-flow deposition device with a deposition head (or a method that utilizes said device). However, since this technical feature has been described in the documents listed in the section "C. Documents considered to be relevant" of this international search report, the technical feature cannot be considered a "special technical feature" that complies with unity of invention.

Consequently, it is clear that the inventions in claims 1-5, 6, 7-12, and 13 do not comply with unity of invention.

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- ☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C23C14/24(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/10(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C23C14/24, H01L51/50, H05B33/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 3 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 3 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 3 年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	WO 2009/034939 A1 (株式会社アルバック) 2009.03.19, 発明を実施するための最良の形態の項及び図面 & WO 2009/034915 A1 & WO 2009/034916 A1 & WO 2009/034938 A1 & US 2010/0178424 A1 & US 2010/0170439 A1 & US 2010/0170444 A1 & US 2010/0209609 A1 & EP 2190263 A1 & EP 2187708 A1 & EP 2187709 A1 & EP 2190264 A1 & CN 101803461 A & CN 101803459 A & CN 101803460 A & CN 101803462 A & KR 10-2010-0053637 A & KR 10-2010-0040952 A & KR 10-2010-0051853 A	1-5, 7-13

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

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

1 2 . 0 6 . 2 0 1 3

国際調査報告の発送日

2 5 . 0 6 . 2 0 1 3

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

植前 充司

4 G

9 4 4 5

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

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
	& KR 10-2010-0053631 A & TW 200918680 A & TW 200925303 A & TW 200927964 A & TW 200932929 A	
X	JP 2010-24498 A (東京エレクトロン株式会社) 2010.02.04, 発明を実施するための最良の形態の項及び図面 & WO 2010/007981 A1	6
X	JP 59-80777 A (株式会社日立製作所) 1984.05.10, 発明の実施例の項及び図面 (ファミリーなし)	6
X	JP 9-269100 A (株式会社フロンテック) 1997.10.14, 請求項1、 発明の実施の形態の項、実施例及び図面 (ファミリーなし)	6
X	JP 2001-73116 A (三菱重工業株式会社) 2001.03.21, 発明の実施の形態の項及び図面 (ファミリーなし)	6

第Ⅱ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（P C T 17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求項 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。
つまり、
2. ☐ 請求項 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求項 _____ は、従属請求の範囲であってP C T 規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第Ⅲ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるところこの国際調査機関は認めた。

請求項1～5, 6, 7～12, 13に係る発明は、結局のところ、キャリアガスの流量制御部、蒸着ヘッドを有するガスフロー蒸着装置（あるいは当該装置を用いた方法）という点を共通する技術的特徴とするものであるが、当該技術的特徴は、この国際調査報告の「C. 関連すると認められる文献」の項であげる各文献に記載されている通りであるから、発明の単一性を満たすための、「特別な技術的特徴」とはなり得ない。

してみれば、請求項1～5, 6, 7～12, 13に係る発明は、発明の単一性を満たしていないことは明らかである。

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求項について作成した。
2. ☒ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求項について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求項のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求項について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料及び、該当する場合には、異議申立手数料の納付と共に、出願人から異議申立てがあった。
- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあったが、異議申立手数料が納付命令書に示した期間内に支払われなかった。
- ☐ 追加調査手数料の納付はあったが、異議申立てはなかった。