

(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2019-7082

(P2019-7082A)

(43) 公開日 平成31年1月17日(2019.1.17)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
C23C 14/24 (2006.01)	C23C 14/24	B 4K029
H01M 4/40 (2006.01)	H01M 4/40	5H050
H01M 4/1395 (2010.01)	H01M 4/1395	

審査請求 有 請求項の数 15 O L 外国語出願 (全 23 頁)

(21) 出願番号	特願2018-136711 (P2018-136711)	(71) 出願人	390040660 アプライド マテリアルズ インコーポレイテッド APPLIED MATERIALS, INCORPORATED アメリカ合衆国 カリフォルニア州 95054 サンタ クララ パウアーズ アベニュー 3050
(22) 出願日	平成30年7月20日 (2018.7.20)	(74) 代理人	110002077 園田・小林特許業務法人
(62) 分割の表示	特願2015-548615 (P2015-548615) の分割	(72) 発明者	ケラー, シュテファン ドイツ国 マインアシャフ 63814, ハウプトシュトラーセ 72
原出願日	平成25年12月20日 (2013.12.20)		
(31) 優先権主張番号	12198683.0		
(32) 優先日	平成24年12月20日 (2012.12.20)		
(33) 優先権主張国	欧州特許庁 (EP)		

最終頁に続く

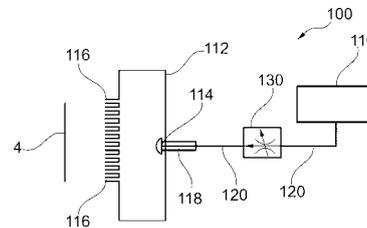
(54) 【発明の名称】 蒸発器、堆積アレンジメント、堆積装置及びこれらを操作する方法

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 アルカリ金属又はアルカリ土類金属を含む材料の蒸発及び当該材料の基板上への堆積のための堆積アレンジメントの提供。

【解決手段】 材料を液化するために構成される第1のチャンバ110、第1のチャンバ110と流体連通され、且つ第1のチャンバ110の下流にあるバルブ130を含み、バルブ130はバルブ130を通る液化された材料の流量を制御するように構成されており、蒸発ゾーン114はバルブ130と流体連通され、且つ当該バルブの下流にあり、蒸発ゾーン114は液化した材料を蒸発させるために構成され、一又は複数の排出口116は蒸発した材料を基板4に向けるように構成されている堆積アレンジメント。

【選択図】 図1



【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

アルカリ金属又はアルカリ土類金属を含む材料の蒸発及び前記材料の基板上への堆積のための堆積アレンジメントであって、

前記材料を液化するために構成された第 1 のチャンバと、

前記第 1 のチャンバと流体連通され、且つ前記第 1 のチャンバの下流にあるバルブであって、前記バルブを通る前記液化された材料の流量を制御するように構成されているバルブと、

前記バルブと流体連通され、且つ前記バルブの下流にある蒸発ゾーンであって、前記液化された材料を気化するように構成された蒸発ゾーンと、

前記気化された材料を前記基板に向けるための一又は複数の排出口とを備えるアレンジメント。

10

【請求項 2】

前記一又は複数の排出口を備える蒸気供給シャワーヘッドを更に備え、特に前記蒸気供給シャワーヘッドは直線的な蒸気供給シャワーヘッドである、請求項 1 に記載のアレンジメント。

【請求項 3】

前記蒸発ゾーンは、チャンバ又は接触面積が 1 cm^2 から 10 cm^2 である表面によってもたらされる、請求項 1 又は 2 に記載のアレンジメント。

【請求項 4】

前記バルブに接続されたコントローラを更に備え、前記コントローラは前記基板上への蒸気の堆積速度を調整するための前記バルブを制御するように構成されている、請求項 1 から 3 のいずれか一項に記載のアレンジメント。

20

【請求項 5】

前記コントローラは比例-積分-微分コントローラであり、前記コントローラは堆積速度モニタシステムの信号を受信するように構成された信号入力を備える、請求項 4 に記載のアレンジメント。

【請求項 6】

前記第 1 のチャンバは、前記第 1 のチャンバの保護ガスの注入口用に構成されたガス注入口を備え、前記アレンジメントは前記第 1 のチャンバの前記保護ガスの流量を制御するために構成された更なるバルブを更に備える、請求項 1 から 5 のいずれか一項に記載のアレンジメント。

30

【請求項 7】

前記第 1 のチャンバは、前記更なるバルブと連通している圧力ゲージを更に備える、請求項 6 に記載のアレンジメント。

【請求項 8】

前記材料は金属リチウムである、請求項 1 から 7 のいずれか一項に記載のアレンジメント。

【請求項 9】

少なくとも前記第 1 のチャンバ及び前記バルブを格納するための筐体を更に備え、前記筐体は保護雰囲気下にある前記第 1 のチャンバの交換のために構成されている、請求項 1 から 8 のいずれか一項に記載のアレンジメント。

40

【請求項 10】

アルカリ金属又はアルカリ土類金属を含む材料の蒸発及び前記材料の基板上への堆積のための堆積装置であって、

前記材料を前記基板上に堆積するための真空チャンバ、及び

請求項 1 から 9 のいずれか一項に記載のアレンジメントを備える堆積装置。

【請求項 11】

アルカリ金属又はアルカリ土類金属を含む材料を蒸発させる方法であって、

50

前記材料を第 1 のチャンバ内で液化させることと、
前記液化された材料を前記第 1 のチャンバからコントロールバルブを通して蒸発ゾーンまで導くことと、
前記材料を前記蒸発ゾーン内で蒸発させることと、
前記材料の前記蒸気を基板上に向けることと
を含む方法。

【請求項 1 2】

前記材料は金属リチウムを含む、請求項 1 1 に記載の方法。

【請求項 1 3】

前記材料は、特に 600 以上の温度で、前記蒸発ゾーン内で瞬間的に蒸発する、請求項 1 1 又は 1 2 に記載の方法。

【請求項 1 4】

前記液化された材料は、蒸発される前に、185 から 285 の温度で維持される、請求項 1 1 から 1 3 のいずれか一項に記載の方法。

【請求項 1 5】

前記バルブを通る前記液化された材料の前記流量を調整するための前記バルブを制御するためのクローズドループコントロールを更に備える、請求項 1 1 から 1 4 のいずれか一項に記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明の実施形態は、リチウムなどのアルカリ金属又はアルカリ土類金属の堆積及び蒸発に関する。本発明の実施形態は、具体的には、蒸発アレンジメント、堆積装置、及びこれら进行操作して、気化した物質を制御するための方法に関する。特に、これらは、アルカリ金属又はアルカリ土類金属を含む材料の蒸発及び当該物質の基板上への堆積のための堆積アレンジメント、アルカリ金属又はアルカリ土類金属を含む材料の蒸発及び当該物質の基板上への堆積のための堆積装置、並びにアルカリ金属又はアルカリ土類金属を含む材料を蒸発させる方法に関する。

【背景技術】

【0002】

現在の薄膜リチウムバッテリーは、概して、真空チャンバ内で製造され、基板にはリチウム層を含む幾つかの層が設けられる。リチウム層は、例えば、蒸気の状態にあるリチウムを基板上に堆積することによって形成される。リチウムは反応性が高いため、このような堆積システムを操作及び維持するためには、複数の対策に取り組むことが必要となる。例えば、空気環境の酸化性蒸気、特に H₂O への曝露、並びに真空チャンバ開放後の作業員との接触は最小限に留めなければならない。

【0003】

更に、堆積速度が速く且つ均一性の高い蒸発が望ましい。過去に多くの種類の薄膜堆積システムが実装されてきた。また、アルカリ金属及び / 又はアルカリ土類金属に関しては、幾つかの一般的な薄膜堆積システムのアレンジメントが応用されてきた。しかしながら、大容量生産に拡大しつつ材料の高い反応性を管理する際には、この方法は重大な課題に直面するため、このような一般的なアレンジメントは大容量で低コストな製造にはさほど適していない。これは、均一に堆積させる純粋なリチウムの製造に、重大な課題をもたらす。よく知られているように、このような種類の材料、特にリチウムは、ガス、材料などの周囲の環境との反応で酸化されやすい。そのため、リチウムはエネルギー密度の高いバッテリー及び蓄電池の製造に適しており、特に注目されている。

【0004】

リチウム、及び他のアルカリ金属又はアルカリ土類金属用の一般的な堆積システムは、それぞれ、スパッタリングソース又は従来の蒸発ソース並びにこれら进行操作する方法を利用する。リチウムのスパッタリング方法には、リチウムの反応性を考えると、特にコスト

10

20

30

40

50

及び製造可能性の点で課題がある。高い反応性はまず、スパッタリングに欠かせない構成要素であるターゲットの製造に影響を及ぼし、次に、その結果得られるターゲットの取扱いに影響を及ぼす。その結果、ターゲット材料は周囲空気との反応から保護することが必要となるため、非反応性のターゲットと比較して、出荷、設置、予防的保守などが、さらに難しくなる。ターゲット使用率は一般的に100%ではないため、ターゲット上の使用済み材料の処理から別の問題が発生する。その結果、ユーザーは、安全に廃棄するため、残留材料を中和又は反応させることが必要となる。しかし、より重要なことは、リチウムの融点が183℃で比較的低く、この融点は高電力密度スパッタリング領域に対して、大容量で低コストな製造に適する領域を制限するため、堆積速度も制限され得ることにある。

10

【0005】

一般的にポイントソースを利用する従来のリチウム蒸発の方法は、必要な均一性と製造可能性を実現するには複雑なため、大容量の製造にまで規模を拡大することは難しい。そのため、蒸発ソースに対して反応性の高いリチウム金属を、さらに堆積チャンバに対して反応性の蒸気を、管理又は供給するという要求は実現が難しい。しかしながら、大容量の製造及び高い稼働率の製造には、この要求は欠かせない。

【0006】

従来のアルカリ金属及びアルカリ土類の堆積システムには、スルーブットが不十分で、高スルーブットの大型基板に対するスケラビリティを十分容易に実現できないものがあることがわかっている。アルカリ金属及びアルカリ土類金属の堆積ソース及びシステム、特にリチウムの堆積ソース及び堆積アレンジメントに関しては、大型化する基板を収容するように拡大され、高いスルーブットの堆積を可能にすることが必要とされている。そのため、薄膜バッテリーやエレクトロクロミックウインドウなどのデバイスのコスト競争力のある製造が検討されなければならない。更に、堆積プロセスの均一性も考慮されることが望ましい。

20

【発明の概要】**【0007】**

上述を考慮して、請求項及び特に独立請求項に従って、堆積アレンジメント、堆積装置及び蒸発方法が提供される。本発明の更なる態様、利点及び特徴は、従属請求項、明細書及び添付の図面から明らかである。

30

【0008】

一実施形態により、アルカリ金属又はアルカリ土類金属を含む材料の蒸発及び当該材料の基板上への堆積のための堆積アレンジメントが提供される。本アレンジメントは、材料を液化するために構成される第1のチャンバ、第1のチャンバと流体連通され、且つ第1のチャンバの下流にあるバルブを含み、バルブは当該バルブを通る液化された材料の流量を制御するように構成されており、蒸発ゾーンはバルブと流体連通され、且つ当該バルブの下流にあり、当該蒸発ゾーンは液化された材料を蒸発させるために構成され、一又は複数の排出口は蒸発した材料を基板に向けるように構成されている。

【0009】

別の実施形態によれば、アルカリ金属又はアルカリ土類金属を含む材料の蒸発及び当該材料の基板上への堆積のための堆積装置が提供される。本装置は、当該材料を基板上に堆積するための真空チャンバ、及び堆積アレンジメントを含む。本アレンジメントは、材料を液化するために構成される第1のチャンバ、第1のチャンバと流体連通され、且つ第1のチャンバの下流にあるバルブを含み、バルブは当該バルブを通る液化された材料の流量を制御するように構成されており、蒸発ゾーンはバルブと流体連通され、且つ当該バルブの下流にあり、当該蒸発ゾーンは液化された材料を蒸発させるために構成され、一又は複数の排出口は蒸発した材料を基板に向けるように構成されている。

40

【0010】

更なる実施形態によれば、アルカリ金属又はアルカリ土類金属、特に金属リチウムを含む材料を蒸発させる方法が提示される。本方法は、第1のチャンバ内の材料を液化するこ

50

と、液化された材料を第 1 のチャンバからコントロールバルブを通して蒸発ゾーンまで導くこと、蒸発ゾーンで材料を蒸発させること、及び材料の蒸気を基板上に向けることを含む。

【0011】

本発明の上記の特徴を詳細に理解することができるように、実施形態を参照することによって、上で簡単に概説した本発明のより具体的な説明を得ることができる。添付図面は本発明の実施形態に関し、以下に添付図面の説明を示す。

【図面の簡単な説明】

【0012】

【図 1】本明細書に記載の実施形態による、リチウムなどのアルカリ金属又はアルカリ土類金属の蒸発のための堆積アレンジメントの概略図で、液化ゾーン、流量制御のためのコントロールバルブ及びバルブ下流の蒸発ゾーンを含む。 10

【図 2】本明細書に記載の更なる実施形態による、リチウムなどのアルカリ金属又はアルカリ土類金属の蒸発のための別の堆積アレンジメント並びに装置の概略図で、液化ゾーン、流量制御のためのコントロールバルブ及びバルブ下流の蒸発ゾーンを含む。

【図 3】本明細書に記載の更に別の実施形態による、リチウムなどのアルカリ金属又はアルカリ土類金属の蒸発のための更に別の堆積アレンジメント並びに装置の概略図で、液化ゾーン、流量制御のためのコントロールバルブ及びバルブ下流の蒸発ゾーンを含む。

【図 4】本明細書に記載の実施形態による、リチウムなどのアルカリ金属又はアルカリ土類金属の蒸発のための堆積アレンジメントの概略図で、液化ゾーン、流量制御のためのコントロールバルブ及びバルブ下流の蒸発ゾーンを含む。 20

【図 5】本明細書に記載の実施形態による、蒸発方法のフロー図で、材料は液化され、流量はバルブによって制御され、バルブの下流で材料は蒸発される。

【図 6】本明細書に記載の更に別の実施形態による、リチウムなどのアルカリ金属又はアルカリ土類金属の蒸発のための更に別の堆積アレンジメント並びに装置の概略図である。

【図 7】本明細書に記載の実施形態による、堆積アレンジメントの幾つかの実施形態で使用される第 1 のチャンバの概略図である。

【発明を実施するための形態】

【0013】

ここで、本発明の種々の実施形態が詳細に参照されることになり、その 1 つまたは複数の例が図示される。図面に関する以下の説明の中で、同じ参照番号は同じ構成要素を指している。概して、個々の実施形態に関する違いのみが説明される。各実施例は本発明の説明として提示されるが、本発明を限定することを意図していない。さらに、1 つの実施形態の一部として図示及び説明される特徴は、更なる実施形態をもたらすために、他の実施形態において用いることができるか、または他の実施形態と併用することができる。説明はそのような変更及び変形を含むことを意図している。 30

【0014】

図 1 は、アルカリ金属及びアルカリ土類金属、特にリチウムの蒸発のための堆積アレンジメント 100 を示す。第 1 のチャンバ又はタンク 110 は、堆積される材料を受け取るために設けられる。一般的には、材料がアレンジメント内で蒸発するように、すなわち、リチウムなどのアルカリ金属及びアルカリ土類金属が非反応性雰囲気下でタンク 110 内に提供され得るように、タンクは提供される。例えば、蒸発させる材料は一般的に反応性が高いが、非反応性雰囲気は、蒸発させる材料の反応の防止に好適なアルゴン又は他の不活性ガスであってもよい。 40

【0015】

タンク 110 は、融点を例えば 5 から 100 超える温度まで、堆積される材料の融点を例えば 20 から 60 (例えば、20 又は 40) 超える温度まで材料を加熱するように構成されている。そのため、堆積させる材料は、液体の状態でバルブ 130 を經由して蒸気供給シャワーヘッド 112 又は各ノズルへ移送される。したがって、本明細書に記載の他の実施形態と組み合わせられ得る幾つかの実施形態によれば、一又は複数の導管 50

120及び/又はバルブ130は、液体のアルカリ金属又はアルカリ土類金属が蒸発ゾーン、例えば、シャワーヘッド内又はシャワーヘッドの近傍に提供され得るように、加熱されるように構成可能である。

【0016】

一般的な実施形態によれば、リチウムなどのアルカリ金属及びアルカリ土類金属のための堆積システムは、アルカリ金属及びアルカリ土類金属を基板上に堆積させるため、アルカリ金属及びアルカリ土類金属の蒸気を基板に向けるための一又は複数の排出口を有する。排出口は、例えば、シャワーヘッド又は他の蒸気供給システムに設けられる、一又は複数の開口部或いは一又は複数のノズルであってもよい。本明細書に記載の他の実施形態と組み合わせられ得る幾つかの実施形態によれば、蒸発器アレンジメントは蒸気を基板に向けて導くノズルを含み得る。図1に示すように、アレンジメントは、蒸気供給シャワーヘッド112、例えば、複数のノズル116を有する直線的な蒸気供給シャワーヘッド112を含み得る。

10

【0017】

既存のリチウム蒸発器に関して、前駆体リザーバは単一のチャンバ構成要素であって、ここでリチウム金属は溶けて蒸発し、堆積チャンバ内のシャワーヘッドに到達する。そのため、蒸発した材料、すなわち蒸気は、単一の分離バルブを通して、蒸気の状態で誘導される。図1に示すように、また、本明細書に記載の実施形態によれば、リチウムなどの蒸発させる材料の領域は、2つのチャンバ、ゾーン、又は領域に分離される。タンク110などの第1のチャンバは、アルカリ金属又はアルカリ土類金属を液化し、液化したアルカリ金属又はアルカリ土類金属は、バルブ130を通して、アルカリ金属又はアルカリ土類金属を蒸発させるバルブ下流の更なる領域、ゾーン、又はチャンバに誘導される。

20

【0018】

図1に示すように、液体金属は、第1のチャンバ110から導管120を通り、さらにバルブを通して、材料供給システムに誘導される。蒸気供給シャワーヘッド112に入る前に、液体材料は、バルブ130から導管120を通してシャワーヘッド112まで誘導される。そのため、加熱ユニット118は、蒸発ゾーン114に液体材料を供給する前に、材料をより高い温度まで加熱するため、シャワーヘッド112に隣接して提供されてもよい。材料は蒸発ゾーン114で蒸発される。材料はシャワーヘッド112内に供給され、ノズル116を通して基板4に向けられる。

30

【0019】

本明細書に記載の他の実施形態と組み合わせられ得る幾つかの実施形態によれば、バルブは液体材料の流量を制御又は調整するためのコントロールバルブであってもよい。このバルブは、液化ゾーンと蒸発ゾーンを分けることができる。第1のチャンバすなわちタンク110は固体のリチウム金属を保存する。これは固体のリチウム金属の溶解及び/又は液化に使用される。溶解又は液化されたリチウム金属は、液体の状態第2のチャンバすなわち別の蒸発ゾーンに流れ込む。本明細書ではリチウム金属が引き合いに出されることがあるが、反応性の高い他のアルカリ金属又はアルカリ土類金属も、本明細書に記載のアレンジメントの恩恵を受けることができる。特にアルカリ金属が使用可能で、アルカリ金属に対してアレンジメント及び装置が構成可能である。したがって、ナトリウム、カリウム、ルビジウム又はセシウムも所望の応用に対して蒸発させることができる。しかし、リチウムの利用及びリチウムのための構成が一般的な実施形態である。リチウムは、他のアルカリ金属又はアルカリ土類金属と比較して反応性がより高く、複数の応用に使用され得る。

40

【0020】

上述を考慮して、本明細書に記載の他の実施形態と組み合わせられ得る幾つかの実施形態によれば、蒸発させる材料をアレンジメント、装置又はシステムに供給するためのタンク110又は各チャンバは交換可能及び/又は再充填可能である。一般的に、これは、アルゴンやその他の不活性ガスなどの保護雰囲気下で材料が蒸発される間に、交換可能である。

50

【 0 0 2 1 】

本明細書に記載の他の実施形態と組み合わせることができるいくつかの実施形態によれば、第1のチャンバは、開放型チャンバ又は閉鎖型チャンバであってもよい。一般的に、開放型チャンバの開口部は、堆積アレンジメント内で溶解され蒸発される材料の再充填に使用され得る。閉鎖型チャンバは、チャンバを解放するように構成された蓋と共に提供されてもよい。溶解され蒸発される材料は、蓋が開いているときに充填可能である。堆積アレンジメントの材料供給システムには、大気圧 + 5 0 m b a r の圧力から大気圧 + 3 0 0 m b a r の圧力までの超過圧力がもたらされるが、蓋を有するチャンバは保護雰囲気を容易に準備することができる。

【 0 0 2 2 】

本明細書に記載のように、材料供給システムは、液体材料が蒸発ゾーンに向かって供給される堆積アレンジメントの一部を含む。一般的に、材料供給システムは、第1のチャンバ、導管及びバルブを含み得る。さらに、材料供給システムは、一又は複数のパージガス導管、保護ガス用の供給システム及び/又は材料供給システムの温度を制御するための構成要素を含み得る。

10

【 0 0 2 3 】

本明細書に記載の他の実施形態と組み合わせることができる、本明細書に記載の種々の実施形態によれば、材料を蒸発させるための更なるチャンバ又は蒸発ゾーンは、蒸気を基板に向けるためのノズル、蒸気供給シャワーヘッド 1 1 2、更なるチャンバ又は蒸発ゾーン 1 1 4、又はバルブ 1 3 0 と蒸気供給シャワーヘッド 1 1 2 との間にもたらされる、或いは蒸気供給シャワーヘッド内にもたらされるそれぞれの領域であってもよい。

20

【 0 0 2 4 】

本明細書に記載の他の実施形態と組み合わせることができる一般的な実装によれば、蒸発ゾーン 1 1 4 は、蒸発のためのエネルギーを供給するように構成されたチャンバ、るつぼ、ポート、又は面であってもよい。一般的に、ゾーン又は表面は、材料を蒸発させるのに十分なエネルギーを提供するため、 1 cm^2 から $5 0 \text{ cm}^2$ の範囲で、例えば 1 cm^2 から $1 0 \text{ cm}^2$ の十分な接触面積を有する。そのため、表面積は、一又は複数のフィンが基部から突出するフィン構造によって、カップ様の形状によって、或いはスプーン様の形状によって与えられてもよい。

30

【 0 0 2 5 】

幾つかの実施形態によれば、本明細書で理解されるシャワーヘッドは、シャワーヘッド内の圧力がシャワーヘッド外の圧力よりも、例えば少なくとも1桁以上高くなるような開口部を有する筐体を含む。

【 0 0 2 6 】

直線的な蒸気供給シャワーヘッド 1 1 2 を提供することにより、基板 4 上の堆積の均一性は高められ得る。しかしながら、複数のノズルはまた、材料を使用するとタンク 1 1 0 に新たな材料を供給するニーズを高めるだけでなく、蒸気供給シャワーヘッド 1 1 2 に向けた連続的な制御された材料の流れをさらに要求する結果となることを考慮しなければならない。例えば、タンク交換による新しい材料供給の能力により、蒸発アレンジメントについての、本明細書に記載の実施形態による蒸発アレンジメントを有する蒸発のための装置についての、或いは本明細書に記載の実施形態による蒸発アレンジメントを有する蒸発のためのシステムについての連続的又は準連続的な操作が提供され得る。

40

【 0 0 2 7 】

上述のように、図 1 は、タンク 1 1 0 が導管 1 2 0 によりバルブ 1 3 0 に接続され、蒸発シャワーヘッド 1 1 2 を有する更なる導管 1 2 0 に更に接続されている、蒸発アレンジメント 1 0 0 の概略断面図を示している。リチウムなどの材料は、タンク 1 1 0 内で液化され、液体状態でバルブ 1 3 0 を通って誘導され、バルブ 1 3 0 を超えた後、ノズル 1 1 6 などの排出口を経て、基板 4 に向かって蒸発する。

【 0 0 2 8 】

幾つかの実施形態によれば、一又は複数の基板は垂直に処理される。すなわち、直線的

50

なガス供給シャワーヘッド 1 1 2 はチャンバ内に垂直に配置され、基板位置決め装置は、図 1 に例示的に示すように、基板 4 を垂直処理位置に保持する。このアレンジメントの 1 つの利点は、処理中に生成される任意の粒子がチャンバの底部に向かって落下し、基板 4 を汚染しないことである。

【 0 0 2 9 】

しかしながら、蒸発ゾーンに加えて液体材料を有する材料供給システムは、本明細書に記載の実施形態による堆積アレンジメントが他の堆積ソースと比較してより柔軟に使用し得るように、シャワーヘッドの任意の配向を可能にしている。例えば、半導体処理ではトップダウン蒸発が使用可能であり、例えば、フレキシブル基板に対してはボトムアップ蒸発が使用可能であり、或いは他の任意の配向も使用可能である。この堆積の方向性に関する柔軟性は、独立したリザーバと堆積ゾーンを有することに起因する。したがって、るつば堆積と比較した場合のもう 1 つの利点は、任意選択的に提供され得る。

10

【 0 0 3 0 】

図 1 に示したシャワーヘッドは直線的なシャワーヘッドであるが、他の形状のシャワーヘッドも本発明の範囲に含まれる。シャワーヘッドをどのような形状にすべきかは、チャンバのタイプと基板の形状の 2 つに依存する。例えば、単一ノズルなどのポイントソース、又は円形シャワーヘッドは、半導体ウエハを処理するときなど、円形基板を処理するチャンバに対して選択されることがある。一方、矩形シャワーヘッドは、大型の矩形基板の処理に対して選択されることがあるが、バッチ処理はまた、このようなタイプのシャワーヘッドをより好ましいものにし得る。大型の矩形又は正方形の基板の連続インライン処理では、基板がシャワーヘッドの近くを通過する際、基板全体へのプロセスガスの供給をよりうまく制御するため、直線的なシャワーヘッドが選択されることがある。しかしながら、ポイントソースノズルに関しては、課題は、大面積基板上に一様な堆積を実現するための、複数のポイントソースの管理に起因することを考慮しなければならない。したがって、特に、インライン処理装置又はダイナミック処理装置では、直線的な蒸気供給シャワーヘッドが有利に使用し得る。円形、矩形或いは複数の直線的な蒸気供給シャワーヘッドは、様々な形状及びサイズの基板の静的な堆積処理に対して使用し得る。

20

【 0 0 3 1 】

本明細書に記載の他の実施形態と組み合わせられ得る幾つかの実施形態によれば、本明細書に記載の実施形態は、大面積基板上での蒸発、例えば、エレクトロクロミックウインドウ或いはリチウム製造に対して利用し得る。幾つかの実施形態によれば、大面積基板は、又は、一又は複数の基板を持つそれぞれのキャリアは、少なくとも 0.67 m^2 のサイズを有することがある。一般的には、サイズは、約 0.67 m^2 ($0.73 \times 0.92 \text{ m} - \text{Gen} 4.5$) から約 8 m^2 までであってもよく、より一般的には約 2 m^2 から約 9 m^2 まで、又は 12 m^2 に及ぶことさえあり得る。一般的には、本明細書に記載の実施形態により、構造、カソードアセンブリなどの装置及び方法が提供される基板又はキャリアは、本明細書に記載の大面積基板である。例えば、大面積基板又はキャリアは、約 0.67 m^2 の基板 ($0.73 \times 0.92 \text{ m}$) に対応する GEN 4.5、約 1.4 m^2 の基板 ($1.1 \text{ m} \times 1.3 \text{ m}$) に対応する GEN 5、約 4.29 m^2 の基板 ($1.95 \text{ m} \times 2.2 \text{ m}$) に対応する GEN 7.5、約 5.7 m^2 の基板 ($2.2 \text{ m} \times 2.5 \text{ m}$) に対応する GEN 8.5、又は約 8.7 m^2 の基板 ($2.85 \text{ m} \times 3.05 \text{ m}$) に対応する GEN 10 とさえすることができる。GEN 11 及び GEN 12 などのよりいっそう大きな世代、並びに対応する基板面積が、同様に実現され得る。

30

40

【 0 0 3 2 】

本明細書に記載のアレンジメント、装置、システム、方法及び処理は、ガラス基板の被覆に利用可能である。しかしながら、これらを使用して、例えば、直径 200 mm 又は 300 mm のシリコンウエハなどのウエハを被覆することも可能である。例えば、基板キャリアには、一又は複数のウエハが備わっていてもよい。蒸気供給シャワーヘッド、例えば、気化器チューブの長さは、基板厚み h を有する大面積基板上に、或いはキャリア内に配置されるすべての基板上に、一様な被覆を実現するように調整可能である。更に、合成材

50

料又は金属のフレキシブル基板は、本明細書に記載の実施形態により処理され得る。一般的な実装によれば、基板位置決め装置、基板支持体又は基板移送システムは、基板を処理領域内に配置する及び/又は処理領域を通して移動させるように、提供及び構成され得る。

【0033】

本明細書に記載の実施形態は、リチウムなどのアルカリ金属堆積システム、並びに高速な堆積速度でしかも安価な製造コストで一様な薄膜を製造するためのソース技術を提供する。堆積ソース、アレンジメント、装置、システム及び方法は、リチウムなどのアルカリ金属の一様な堆積を必要とする多くの分野に応用可能である。これは、リチウムを電荷輸送構成要素として使用する電気化学デバイスになり得る。このような電気化学デバイスの例には、エレクトロクロミックウインドウ及びデバイス並びに薄膜固体バッテリーが含まれる。本明細書に記載の実施形態は、リチウム金属などのアルカリ金属を堆積させるための既存の解決策のコストと製造可能性を大幅に引き下げる。

10

【0034】

図2は、堆積アレンジメント100を有する堆積装置200の概略断面図を示している。したがって、図2は1つの実施形態を図解するもので、更なる実施形態を説明するために使用され得る。リチウムなどの材料が中で蒸発する第1のチャンバ、すなわちタンク110は、筐体210内に設けられる。例えば、筐体は絶縁可能である。これによって、温度制御された環境が、導管120に加えて、第1のチャンバ及びバルブに対してもたらされる。一般的な実施形態によれば、温度は185 から285 までに、例えば、約230 又は200 に制御可能である。リチウム以外のアルカリ金属又はアルカリ土類金属については、他の温度を、融点に応じて、例えばカリウムであれば63 以上に設定及び調整可能である。本明細書に記載の他の実施形態と組み合わせることができる一般的な実施形態によれば、材料を液化する温度は、基板上に堆積される材料の融点よりも5 から100 上で、例えば50 上で設定可能である。

20

【0035】

タンク110、導管120及びバルブ130を含む材料供給システムを、各アルカリ金属の融点或いはそれ以上にまで加熱すると、金属は溶解又は液化され、液体状態で導管を通して流れる。一般的な実施形態によれば、筐体210内の一又は複数の構成要素は独立に加熱可能であってもよく、及び/又は筐体の内部は全体として加熱可能であってもよい。一般的には、壁211によって示される絶縁体は、加熱エネルギーの損失を低減するように提供され得る。追加的に又は代替的に、筐体210内の個々の構成要素は個別に絶縁され得る(図示せず)。

30

【0036】

本明細書に記載の他の実施形態と組み合わせることができる一般的な実施形態によれば、材料供給システム及び特にバルブと導管は、基本的に一定の流量の液体リチウムを供給するように構成されている。したがって、蒸発ゾーンに向かって基本的に一定の流量となるように、導管の直径は十分に小さくしなければならない。そのため、例えば、導管は断面積が 1 mm^2 から 10 mm^2 となる直径を有する。したがって、直径及び所望の流量はまた、大きな基板の堆積アレンジメントが小さな基板の堆積アレンジメントと比較してより大きな導管直径を有するように、シャワーヘッドのサイズ及びそれぞれの処理ゾーンに依存する。

40

【0037】

同程度に細い導管内の材料の量が限られること、及び液体材料供給システム内の温度、並びに堆積処理の中断に対して蒸発ゾーンが維持され得ることを考慮すると、堆積アレンジメントは容易且つ迅速にオンとオフを切り換えることができる。したがって、蒸発ゾーンと基板との間にはシャッターは不要である。

【0038】

本明細書に記載の他の実施形態と組み合わせることができる更なる実施形態によれば、特に大面積基板又は大面積キャリアの場合には、シャワーヘッドには一又は複数の材料供

50

給システムを設けることができる。そのため、第1のチャンバ、導管、コントローラバルブ、及び蒸発ゾーンが、一又は複数の材料供給システムの各々に対して提供され得る。蒸気供給シャワーヘッド内の材料の蒸気を提供するため、各材料供給システムは、蒸気供給シャワーヘッドの所望の位置に設けることができる。例えば、2つ以上の材料供給システムは、堆積速度を上げるため、蒸気供給シャワーヘッドに同一材料を供給するように設けられてもよい。更に、異なる材料供給システムに供給される異なる材料の化合物を堆積させるため、蒸気供給シャワーヘッドに2種類以上の材料を供給することも可能である。

【0039】

図2に示すように、バルブ130は導管120を介してタンク110に接続され、更に導管120によって蒸気供給シャワーヘッドと接続されている。本明細書に記載の更なる実施形態によれば、導管の数を低減し得るように、バルブはタンク110に隣接して、シャワーヘッドに隣接して、或いは更にアルカリ金属を蒸発させるための更なるチャンバに隣接して配置され得る。しかしながら、一般的には、バルブへの蒸発温度の影響を軽減するため、バルブは蒸発ゾーンから少し離れた距離に配置される。導管120は、本明細書に記載の図面に示されているように、例示的なものである。一又は複数の導管は、材料を溶解及び/又は液化するように構成された第1のチャンバ、液体材料の流れを制御するように構成されたバルブ、蒸発ゾーン及び流体連通するように接続された蒸気供給シャワーヘッドを有するように配置され得る。

10

【0040】

図2に示すように、また、本明細書に記載の幾つかの実施形態によれば、真空フィードスルー218は、導管が液体金属などの金属を真空チャンバ220に供給するように設けられる。フィードスルー218は、筐体210の低温と蒸発ゾーンの高温との間に熱絶縁を設けること、及び/又は筐体210と真空チャンバ220との間に真空分離を設けることができる。真空チャンバ220は、金属を基板4上に堆積させるように構成されている。図2に示すように、蒸気供給シャワーヘッド112は、蒸発ゾーン214によって示されているように、液体リチウムを蒸発させるように加熱される。液体材料は、蒸気供給シャワーヘッド112へ誘導される。蒸気供給シャワーヘッドは、例えば、内側加熱チューブ240などの加熱ユニットによって加熱される。例えば、内側加熱チューブは、結合部244によって電源242に接続される電気加熱素子であってもよい。図2は更に、蒸気供給シャワーヘッド112の絶縁体212を示す。この絶縁は、加熱用電力の低減及び/又は蒸気供給シャワーヘッドの様な加熱をもたらす。これらの追加的又は代替的な修正によれば、蒸気供給シャワーヘッド112の加熱は、赤外線ヒータなどの加熱ランプによる輻射加熱、誘導加熱、(図2に関して上述されている)電気加熱、及びこれらの組み合わせによって、供給可能である。

20

30

【0041】

例えば、ノズル160など、蒸気供給シャワーヘッドに設けられている排出口は、リチウムの蒸気を基板4に向けて誘導又は方向付けする。一般的な実施形態によれば、排出口又はノズルはまた、蒸気供給シャワーヘッドの開口部として設けられている。更に、直線的な蒸気供給シャワーヘッドに関しては、開口部又はノズルは例えば、開口部又はノズルの一又は複数のラインとなってもよい。矩形の蒸気供給シャワーヘッドに関しては、開口部又はノズルは矩形の形状に沿って、また矩形の形状の内側に供給されてもよい。円形の蒸気供給シャワーヘッドに関しては、開口部又はノズルは円形の形状に沿って、また円形の形状の内側に供給されてもよい。一般的には、開口部又はノズルは、基板4上への蒸気の堆積が一様になるように供給されてもよい。そのため、開口部又はノズルは、上述の形状の1つに沿って、少なくとも部分的に一様に供給されてもよい。しかしながら、形状の周辺でのエッジ効果を補償するため、開口部又はノズルの密度は蒸気供給シャワーヘッドの一部の領域で可変であってもよい。

40

【0042】

幾つかの実施形態によれば、また図2に示したように、堆積速度測定デバイス235を真空チャンバ220内に設けることができる。それによって、リチウム又は他のアルカリ

50

金属の基板上での堆積速度をモニタすることができる。一般的な実施形態によれば、厚みの測定に一又は複数の発振水晶が利用可能である。追加的に又は代替的に、シャワーヘッド内部又はシャワーヘッドの更なる測定部分又は開口部での光学的測定方法は、堆積速度の決定に利用可能である。更なる追加的又は代替的選択肢によれば、堆積速度を決定するため、シャワーヘッド内側の圧力測定、基板上に堆積した層の厚み測定、例えば、層の渦電流測定などの導電率測定が実行され得る。堆積速度に関連する信号は、コントロールバルブの制御に利用可能である。

【0043】

図2の信号ライン232によって示したように、堆積速度測定デバイス235の測定結果に対応する信号は、堆積速度測定デバイス235から受信した信号に基づいてバルブ130を制御するコントローラ230に送信可能である。例えば、比例-積分-微分コントローラ(PIDコントローラ)が使用可能である。PIDコントローラは信号ライン232を介して信号を受信し、また、公称層厚み値又は所望の堆積速度と相関する別の値を更に受信及び/又は保存する。本明細書に記載の他の実施形態と組み合わせられ得る幾つかの実施形態によれば、フィードバックコントローラはバルブ130の制御のために提供される。その結果、バルブを通して流れる液体材料の流量のクローズドループ制御が提供可能である。したがって、堆積速度及び/又は堆積の均一性の単純化した制御が提供可能となる。

10

【0044】

本明細書に記載の他の実施形態と組み合わせられ得る一般的な実施形態によれば、バルブ130はコントロールバルブ、すなわちバルブを通る流量を制御するバルブとなり得る。例えば、コントロールバルブは、 $\pm 50 \text{ g/h}$ 以下の精度で、例えば、 $\pm 0.1 \text{ g/h}$ から 5 g/h までの精度で流量を制御するように構成可能である。

20

【0045】

本明細書に記載の実施形態によれば、堆積速度の制御は単純化され、より安定している。液体材料の流量の制御により、材料が溶解して蒸発するチャンバ内のチャンバ温度によって堆積を制御する必要はない。温度は安定するが、リザーバ内容物が保持される期間中に、蒸発速度は変化することがあるため、このようなチャンバ温度制御は難しい。これは、蒸発速度が加熱されたチャンバに接する金属リチウムの「表面積」に依存し、金属リチウムと非金属リチウム化合物(反応後又は酸化後のリチウムのより高い溶解相)との体積比率が変化しやすいため、蒸発速度がリザーバの保持期間全体を通じて変化することがあるためである。本明細書に記載の実施形態は、バルブを通して流れる液体リチウムの量によって堆積速度を制御するが(例えば、質量流量コントローラ)、液体リチウムは「フラッシュ蒸発チャンバ」内で、すなわち、蒸気供給シャワーヘッド又はバルブと蒸気供給シャワーヘッドとの間の別のチャンバ内で完全に蒸発する。リチウムの完全な蒸発は、金属リチウムが第1のチャンバ内で溶解し(リチウムの融点を超えるが反応後のリチウム化合物の融点を超えない温度を保つことによって)、第2のフラッシュ蒸発チャンバに流れるときにのみ保証される。一般的な実施形態によれば、蒸発チャンバ又は蒸発ゾーン内の温度は 600 以上、例えば 800 以上、 800 から 1000 になることがある。

30

【0046】

更に、本明細書に記載の実施形態によれば、バルブは、液体リチウム金属などの液体アルカリ金属がバルブを通して流れるように、構成及び/又は配置される。そのため、特に、タンク110などのソースと蒸気供給シャワーヘッド112などの蒸発ゾーン又は第2のチャンバとを分離するバルブに関して、ハードウェア要件は軽減される。材料が溶解して蒸発する1チャンバ蒸発器に関しては、蒸発したリチウム金属の蒸気が凝集して経路を閉塞しないようにするため、バルブは 600 から 800 の範囲の温度に耐えなければならない。本明細書に記載の実施形態によれば、バルブ、導管、及び/又は他の質量流量コントローラだけは、約 350 又はそれ以下の温度に耐えることが必要となる。そのため、リチウムへの曝露による材料の腐食は、より高温の液体リチウム又は蒸発したリチウムに対するよりも大きくなることを考慮すべきである。したがって、リチウムの蒸気と比

40

50

較して、液体リチウムのみ contacts する拡張された構成要素群を提供することは、システム全体の腐食を軽減する。

【0047】

本明細書に記載の実施形態によれば、蒸気供給チャンバが設けられ、そこでは前駆体リザーバの設計は、材料を溶解又は液化するように構成されている。材料又は前駆体のフローは、例えばマイクロバルブによって制御される。第2のチャンバ又はゾーンは、バルブを通して第2のチャンバ又はゾーンに流れ込むリチウムなどの液体アルカリ金属を、フラッシュ蒸発などで蒸発させるために使用される。したがって、堆積速度は前記バルブを通るフローによって制御され得る。

【0048】

本明細書に記載の他の実施形態と組み合わせることができる一般的な実施形態によれば、アルカリ金属又はアルカリ土類金属、一般的には、金属リチウムの蒸発のための堆積アレンジメント、そのような堆積アレンジメントを含む装置、及びこれらを実行する方法は、金属リチウム（或いは他のアルカリ金属）の堆積が望まれる処理に利用可能である。例えば、これは、エレクトロクロミックウインドウ及び薄膜バッテリーなどの電気化学デバイス、OLEDデバイス製造時のリチウム堆積などになり得る。

【0049】

ここで図3を参照すると、本発明の実施形態による処理チャンバのより詳細な概略図が描かれている。図3は、真空チャンバなどの処理チャンバ320用の蒸気供給システム300を示している。この図には、処理チャンバ320のチャンバ壁2のみが示されている。蒸気供給システム300は、基板4に対向して配置される、垂直に配向された直線的なガス供給シャワーヘッド312を備える。直線的なガス供給シャワーヘッド312は、幾つかのガス通路を備え、直線的なガス供給シャワーヘッド312に対して、例えば直角に配向され得る、ガス導管又は注入管305に接続されている。この直線的なガス供給シャワーヘッド312は、結果的に、プロセス領域355にプロセス蒸気を流す蒸気供給器として働く。

【0050】

タンク110、コントロールバルブ130及び導管120を含む材料供給システムが提供される。任意選択により、コントロールバルブに対して、タンク110、すなわち第1のチャンバからの材料のフローを開閉するための別のバルブ（遮断バルブ、図3には図示せず）がバルブの上流に含まれてもよい。一般的には、システムの構成要素の腐食を避けるため、これらの構成要素を温度の高い蒸発ゾーンからさらに遠ざけることが有効である。コントロールバルブ又は遮断バルブなどの構成要素を、蒸発させる材料が低い温度になる、例えば、融点をわずかに上回る温度になる領域に設けることにより、これらの構成要素の腐食は低減する。

【0051】

図3はまた、堆積用の真空チャンバに隣接する筐体の壁6を図解している。筐体は、例えば、チャンバすなわちタンク110、バルブ130及び導管120を包括するグローブボックス40であってもよい。タンク110は取り換え、交換可能であり、或いは保護ガス下で、又は別の保護雰囲気下で、新しいリチウムを充填することができる。保護ガスとして、例えば、アルゴンが使用可能である。導管120及び第1のチャンバすなわちタンク110は、加熱用被覆15によって加熱可能である。しかし、これらの構成要素の筐体は一般的に、図6に関してより詳細に説明されているように全体的に加熱される。図3に示すように、本明細書に記載の実施形態は一般的に、液体材料が誘導される筐体と図3の注入管305などの蒸発ゾーンとの間の絶縁体などの、熱分離を更に含む。

【0052】

リチウムの堆積を可能にするため、材料供給システム及び堆積システムの構成要素は、リチウムを使用するように構成されている。このような材料は、特に炭素の重量含有量が0.12%以下のステンレス鋼、モリブデン、タンタル、コロンビウム、及びこれらの組み合わせから成る群から選択可能である。例えば、バルブは、リチウム又は他のアルカリ

10

20

30

40

50

金属による腐食を低減するため、モリブデン又は炭素の重量含有量が0.112%以下のステンレス鋼から作られたバルブ本体を有するように準備可能である。

【0053】

一般的な実施形態によれば、チャンバすなわちタンク110及び/又はシャワーヘッド312及び注入管305、バルブ130及び導管120に使用される材料は、反応性材料に曝露されるように構成される。一般的には、蒸気供給システム全体は、リチウムなど、これらの反応性材料に対して不活性な材料から構成される。

【0054】

図3はさらに別の加熱用被覆315を示し、これによって蒸発ゾーンを加熱する。図3に示すように、直線的な蒸気供給シャワーヘッド及び注入管305は、加熱用被覆315によって加熱される。また、本明細書に記載の他の加熱手段が追加的に又は代替的に提供可能である。バルブ130及び導管120を流れる液体材料は、800以上の温度に対して構成されている注入管305に誘導される。注入管の操作中、注入管下流の構成要素は800以上の温度まで加熱される。蒸発用の更なるチャンバ又はゾーンを形成する注入管内では、注入管305に入る材料は即座に蒸発し、蒸気はシャワーヘッドまで誘導され、基板上に蒸気を堆積させるため、蒸気は開口部又はノズルを流れて基板4まで誘導される。

10

【0055】

液体の流量制御と組み合わせ、例えば、リチウム(又は、他のアルカリ金属)用の直線的な蒸気供給シャワーヘッドを設けることにより、一様な大面積の被覆が可能になる。フローの制御はコントロールバルブによってもたらされるが、堆積速度モニタ及び/又は流量計とは独立である。そのため、直線的な蒸気供給シャワーヘッドはインライン堆積ツールに対して有効利用が可能で、一又は複数の基板或いは基板を有する一又は複数のキャリアは、シャワーヘッドを越えて移送される。

20

【0056】

図4は、アルカリ金属又はアルカリ土類金属の蒸発のための堆積アレンジメント及び対応する制御の更なる態様を図解している。図4に関して説明されている態様は、個々に結合すること、或いは本明細書に記載の他の実施形態と組み合わせることができる。第1のチャンバ410は、例えば、液体リチウム402を提供する。一般的には、200の温度が設定可能である。そのため、チャンバ220内で基板4に堆積する金属リチウムは、液体状態でチャンバ220に向かって流れることができる。非金属リチウム化合物(例えば、酸化リチウム)などのリチウム化合物は、リチウムの高い反応性によって生成されるが、このような温度では溶解せず、チャンバ220に向かって流れない。したがって、このようなリチウム化合物は処理から除外し得る。

30

【0057】

リチウムを溶解するための第1のチャンバは、圧力及び環境が制御された雰囲気411下にある。アルゴンなどの保護ガスは、チャンバ410内で導管421を介して供給される。バルブ420は、アルゴン環境を100~300mbarの範囲、例えば200mbarの圧力で制御する。チャンバ410のメンテナンス中又は再充填中には、タンクからアルゴンをパージするため、手動バルブ426が利用可能である。チャンバ内の圧力は圧力ゲージ422によってモニタされる。追加的に又は代替的に、圧力ゲージは、ゾーン411の圧力が追加的に又は代替的に測定され得るように、チャンバ410の上部に向かって設けることが可能である。更に、幾つかの実施形態によれば、リチウムレベルセンサは、チャンバ410内の液体リチウムレベルが追加的に測定され得るように、チャンバ410に対して設けることが可能である。検出された信号は、信号ライン423によってコントロール424に提供される。コントロール424は、チャンバ410内のアルゴンの流れを調整するためのバルブ420を制御する。そのため、制御された保護環境は、チャンバ410に提供可能である。チャンバ410は、上述のように、本明細書に記載の実施形態に従い、加熱素子により加熱される。更に、熱制御を改善するための絶縁体(図4には図示せず)が、提供可能である。

40

50

【 0 0 5 8 】

液体金属リチウムは導管 1 2 0 を経緯して、バルブ 4 3 0 に向かって流れる。そのため、参照番号 1 5 によって示されるように、リチウムの凝固による導管の閉塞を避けるため、導管に加熱用被覆 1 5 が用意されることがある。バルブ 4 3 0 はバルブハウジング 4 6 0 を有する。液体リチウムはバルブハウジングから流れ出る。液体リチウムの量はアクチュエータ 4 6 2 によって制御される。アクチュエータ 4 6 2 は電気式であってもよい。空気圧又は油圧式の他のアクチュエータも使用し得る。但し、堆積装置内の温度が上昇した制御された雰囲気下では、電気式駆動が有用となることがある。コネクタ 4 3 1 は、コントローラ 4 3 5 から信号ライン 4 3 4 の入力をもたらす。コントローラ 4 3 5 は、バルブ 4 3 0 を通る液体リチウムの流量の制御信号を提供する。コントローラは、チャンバ 2 2 0 内で基板 4 上へのリチウムの堆積速度の制御を可能にする任意のコントローラであってもよい。一実施例として、例えば、PID コントローラを利用し得るフィードバック制御が使用可能である。これは、チャンバ 2 2 0 内の堆積速度をコントローラ 4 3 5 に関連付ける信号を提供する信号ライン 4 3 2、及び PID コントローラとの比較として公称値を提供する信号ライン 4 3 3 によって、図 4 に示されている。追加的又は代替的な修正によれば、質量流量コントローラの信号又は堆積速度に相関する別の信号は、コントローラ 4 3 5 の制御信号として使用され得る。

10

【 0 0 5 9 】

したがって、バルブ 4 3 0 は、バルブハウジング 4 6 0 及び導管 1 2 0 を通る流量を制御する。バルブ 4 3 0 の下流には、バルブ 4 3 0 及び次に第 1 のチャンバ 4 1 0 によって堆積チャンバ 2 2 0 と流体連通する、さらなる導管 1 2 0 がある。チャンバ 2 2 0 では、基板への堆積の前に、液体金属リチウムがフラッシュ蒸発される。そのため、蒸発ゾーン又は蒸発チャンバは、6 0 0 以上、或いは 8 0 0 以上もの温度になり得るチャンバ 2 2 0 内に設けられる。これらの一般的な修正によれば、蒸発ゾーン又は蒸発チャンバは、バルブとチャンバ 2 2 0 との間に設けることもできる。但し、シャワーヘッド近傍又はシャワーヘッド内の蒸発は、操作中の蒸気温度（例えば、> 6 0 0 ）で維持される構成要素を減らすことを考慮すべきである。

20

【 0 0 6 0 】

図 5 は、アルカリ金属又はアルカリ土類金属、特に金属リチウムを含む材料を蒸発させる方法の実施形態を図解するフロー図 5 0 0 を示している。この方法は、参照番号 5 0 2 によって示されるように、第 1 のチャンバ内での材料の液化を含む。ステップ 5 0 4 では、液化された材料は、第 1 のチャンバからコントロールバルブを通して、第 2 のチャンバまで誘導される。ステップ 5 0 6 では、材料は第 2 のチャンバ内で蒸発され、材料の蒸気はステップ 5 0 8 で基板の上に向けられる。

30

【 0 0 6 1 】

一般的な実施形態によれば、蒸発のステップ 5 0 6 は、特に 6 0 0 以上の温度で、フラッシュ蒸発によってもたらされる。例えば、温度は 8 0 0 以上となることがある。但し、ステップ 5 0 6 の前に、すなわちステップ 5 0 2 及び 5 0 4 では、液化された材料は、堆積される材料の融点よりも 5 から 3 0、6 0 或いは 1 0 0 高い温度に維持される。例えば、金属リチウムでは 1 9 0 から 2 9 0 に維持される。したがって、材料を蒸発させるための第 2 のチャンバの上流に設けられる堆積アレンジメントの構成要素及び堆積装置は、高温に対する耐性は限定的になり得る。すなわち、これらの構成要素は、本明細書に記載の実施形態に従いリチウム又は他の材料が液体になる温度にだけは耐える必要がある。これらの材料はまた、反応性が高いため、これは特に有利になり得る。

40

【 0 0 6 2 】

本明細書に記載の他の実施形態と組み合わせることができる更なる実施形態によれば、バルブを通る液化材料の流量を調整するためのバルブを制御するため、ステップ 5 1 0 で更に説明されるように、クローズドループ制御が設定可能である。バルブのクローズドループ制御は、バルブを通る液体材料の流量は単に制御が必要となるだけであるため、通常のリチウム蒸発器と比較して単純化され得る。フィードバック制御の信号は、蒸気堆積の

50

ための真空チャンバ内での堆積速度モニタ、液化材料を第2のチャンバへ誘導するシステム内の質量流量コントローラなどの流量計、渦電流測定などの層厚測定、シャワーヘッド内の蒸気圧測定、及びこれらの組み合わせから成る群から選択され得る。

【0063】

本明細書に記載の実施形態によれば、堆積速度の制御は単純化され、より安定している。バルブを通る液体材料の流量の制御により、材料が溶解して蒸発するチャンバ内のチャンバ温度で堆積を制御する必要はない。温度は安定するが、リザーバ内容物が保持される期間中に、蒸発速度は変化することがあるため、このようなチャンバ温度制御は難しい。これは、蒸発速度が加熱されたチャンバに接する金属リチウムの「表面積」に依存し、金属リチウムと非金属リチウム化合物（反応後又は酸化後のリチウムのより高い溶解相）との体積比率が変化しやすいため、蒸発速度がリザーバの保持期間全体を通じて変化することがあるためである。本明細書に記載の実施形態は、バルブを流れる液体リチウムの量によって堆積速度を制御するが（例えば、質量流量コントローラ）、液体リチウムは「フラッシュ蒸発チャンバ」内で、すなわち、蒸気供給シャワーヘッド又はバルブと蒸気供給シャワーヘッドとの間の別のチャンバ内で完全に蒸発する。リチウムの完全な蒸発は、金属リチウムが第1のチャンバ内で溶解し（リチウムの融点を超えるが反応後のリチウム化合物の融点を超えない温度を保つことによって）、第2のフラッシュ蒸発チャンバに流れるときにのみ保証される。

10

【0064】

本明細書に記載の実施形態によれば、液体材料が蒸発する第2のチャンバ、ゾーン又は領域は、様々な構成要素によって提供されることが、考慮されなければならない。第2のチャンバ、ゾーン又は領域は、液体材料のフローを制御するためのバルブの下流に設けられる。すなわち、バルブは第2のチャンバ、ゾーン又は領域と、材料を液化するためのチャンバとの間にある。例えば、材料を蒸発させるのに十分なエネルギーを供給するため、或いは蒸気供給シャワーヘッドの注入管によって供給され得るように、第2のチャンバ、ゾーン又は領域は、独立のチャンバによって設けることが可能であり、蒸発ノズル又は蒸気供給シャワーヘッドによって設けることが可能であり、蒸気供給シャワーヘッド内の又は蒸気供給シャワーヘッドに隣接する表面によって、 1 cm^2 から 50 cm^2 までの範囲内で、例えば 1 cm^2 から 10 cm^2 の範囲内で十分な接触面積を有するように、設けることが可能である。例えば、注入管は蒸気供給シャワーヘッドと一体形成され得る。したがって、第2のチャンバ、ゾーン又は領域は、コントロールバルブ（例えば、バルブ130及び430を参照）から蒸気供給ノズル又はシャワーヘッドまでの経路上で、温度が上昇するように、一般的にはフラッシュ蒸発用に温度が急激に上昇するように、設けられる。一般的には、すべての液体材料が蒸発すると、液体材料の流量の制御はまた堆積速度を制御する。

20

30

【0065】

以上のことを考慮して、本明細書に記載の実施形態のためのハードウェア要件、特に、材料のソースと蒸発のための第2のチャンバ、ゾーン又は領域とを分離するバルブ（例えば、バルブ130及び430を参照）のためのハードウェア要件は軽減される。バルブ上流のチャンバ内でリチウムが溶解して蒸発する通常の単一チャンバシステムに関しては、蒸発したリチウム金属の蒸気が凝集して経路を閉塞しないようにするため、バルブは600から800の範囲の温度に耐えなければならない。本明細書に記載の実施形態によれば、材料ソースと第2のチャンバ、ゾーン又は領域との間を流体連通する導管に加えて、バルブ及び/又は質量流量コントローラは、起こり得る350程度に耐えることが必要となる。

40

【0066】

図6は、堆積アレンジメント600を有する堆積装置の一部分の概略断面図を示している。したがって、図6は一実施形態を説明しているが、更なる実施形態を説明するために使用され得る。リチウムなどの材料が中で蒸発する第1のチャンバ、すなわちタンク110は、筐体650内に設けられる。例えば、筐体は絶縁可能である。これによって、温度

50

制御された環境が、導管 120 に加えて、第 1 のチャンバ及びバルブ本体 460 に対してもたらされる。一般的な実施形態によれば、温度は 185 から 250 まで、例えば、約 200 まで制御可能である。リチウム以外のアルカリ金属又はアルカリ土類金属については、他の温度を、融点に応じて、例えばカリウムであれば 63 以上に設定及び調整可能である。本明細書に記載の他の実施形態と組み合わせることができる一般的な実施形態によれば、材料を液化する温度は、基板上に堆積される材料の融点よりも 5 から 100 上で設定可能である。

【0067】

図 6 に示すように、第 1 のチャンバ 110 は、ハウジング 610 の開口部によって曝露され得るフランジ 680 を有する。フランジ 680 は、堆積アレイメント 600 に提供される材料を再充填するため、容器 684 のフランジ 682 に接続可能である。容器 684 と第 1 のチャンバ、すなわちタンク 110 との接続は、矢印 685 によって示されている。一般的な実施形態によれば、再充填の手続きは、アルゴン雰囲気などの保護雰囲気下で行われる。したがって、グローブボックスの接続、又は再充填のための領域を通常雰囲気から分離する他の好適な方法が使用可能である。

10

【0068】

本明細書に記載の他の実施形態と組み合わせることができる一般的な実施形態によれば、第 1 のチャンバの加熱された部分の中で材料を溶解するため、第 1 のチャンバには、加熱システム 615 を全体的に又は部分的に設けることができる。第 1 のチャンバ 110 はコントロールバルブ 460 と流体連通している。流体連通は導管 120 によってもたらされる。バルブの下流で、蒸気供給シャワーヘッド 112 は、バルブ 460 との流体連通によってもたらされる。更なる実施形態によれば、第 1 のチャンバの加熱はまた、上述のように筐体 650 の加熱によってももたらされ得る。

20

【0069】

筐体 650 を加熱すると、タンク 110、導管 120 及びバルブ 130 は、各アルカリ金属の融点まで加熱され、金属は溶解又は液化され、液体状態で導管の中を流れる。一般的な実施形態では、付加的に、コントローラ 622 によって制御可能なファン 620 などのガス循環ユニットが提供される。例えば、コントローラ 622 はハウジング 610 の外側に備えることができる。ファン 620 は、筐体 650 内部のガス循環を可能にする。これにより、筐体 650 の内側には一様な雰囲気がもたらされ得る。

30

【0070】

本明細書に記載の他の実施形態と組み合わせることができる一般的な実施形態によれば、筐体 650 内の圧力は大気圧で、温度は蒸発する材料の融点をわずかに超える温度、例えば、200 になっており、一実装によれば、反応性材料は材料供給及び調整システム内にあり、上述のように保護雰囲気下にあるため、筐体 650 内のガスは空気であってもよい。更なる実装によれば、アルゴンなどの保護ガスはまた、筐体 650 内に供給され得るため、反応性ガスと溶解される材料との接触をよりうまく避けることができる。

【0071】

本明細書に記載の他の実施形態と組み合わせることができる更なる実施形態によれば、第 1 のチャンバ、一又は複数の導管及びバルブによって提供される材料供給システムは、パージバルブ 640 及びパージ導管 642 を更に含み得る。パージ導管 642 並びに、その結果として、パージバルブ 640 は、例えば、第 1 のチャンバ 110 に対向するフランジ 680 の一部分に結合される。導管は、追加的に又は代替的に、第 1 のチャンバ又は導管の位置に設けることが可能である。例えば、タンクからバルブまでの導管はパージ導管に接続可能である。更なる修正によれば、パージ導管は、材料供給システムに接続される複数のパージ導管を有するパージ導管アレイメントとして設けることが可能である。しかしながら、一般的には、パージ導管は材料供給システムの少なくとも上流端部に設けられる。堆積アレイメントの操作方法によれば、パージバルブは高温アルゴンのソースに接続可能である。これにより、例えば、材料供給システムの一部でガスが閉塞しているとき、高温のアルゴンで材料供給システムをフラッシュすることができる。例えば、アルゴ

40

50

ンは、液体リチウムを有するタンクの周囲に誘導されたアルゴン管によって加熱され得る。更に、操作の設定中に、材料供給システムにリチウム又は別のアルカリ金属が供給される前に、システムに酸素及び/又は水分が入るのを避けるため、材料供給システムはアルゴンでパージすることができる。

【0072】

図6に示すように、バルブ130は導管120を介してタンク110に接続され、更に導管120によって蒸気供給シャワーヘッドと接続されている。図6に示すように、また、本明細書に記載の幾つかの実施形態によれば、真空フィードスルー218は、導管が液体金属などの金属をシャワーヘッド112を覆うチャンパの一部分に供給するように設けられる。一般的な実装によれば、任意選択により設けることが可能である。筐体650からシャワーヘッドを格納するチャンパの一部分までのフィードスルー下流の導管部分は、加熱ユニット618によって加熱される。そのため、筐体650下流の堆積アレンジメントの一部分は、筐体650内に配置される堆積アレンジメントの一部分と比較して、より高い温度まで加熱可能である。

10

【0073】

シャワーヘッドを格納するチャンパの一部分は、フランジ604を介して真空チャンパに接続可能である。また、図6に示すように、蒸発ゾーン114によって示されているように液体リチウムを加熱するため、蒸気供給シャワーヘッド112に隣接して、又は蒸気供給シャワーヘッド112内で蒸発面は加熱される。蒸発ゾーン114内で蒸発した材料は、蒸気供給シャワーヘッド112内へ誘導、及び又は蒸気供給シャワーヘッド112内で供給される。

20

【0074】

本明細書に記載の他の実施形態と組み合わせることができる一般的な実施形態によれば、蒸発ゾーン114は、蒸発のためのエネルギーを供給するように構成されたチャンパ、るつぼ、ポート、又は面になり得る。一般的には、材料の蒸発に十分なエネルギーを供給するため、ゾーン又は面は、例えば、 1 cm^2 から 10 cm^2 の範囲の十分な表面積を有する。そのため、液体材料はゾーン内に又は表面上に連続的に供給され、その表面に到達すると蒸発される。加熱ユニット618は、上述のように、蒸発ゾーン114に向かって液体材料の温度を連続的に上げるように構成され得る。

30

【0075】

蒸気供給シャワーヘッドは、内側加熱チューブ240などの加熱ユニットによって加熱されるが、加熱ユニットの更なる詳細、態様、特徴、及び追加的又は代替的な実装は、本明細書に記載の他の実施形態で説明される。一般的には、蒸気供給シャワーヘッド112の熱絶縁のため、シャワーヘッドには絶縁体212が設けられる。蒸気供給シャワーヘッドに設けられるノズル116などの排出口は、例えばリチウムの蒸気を基板に向けて誘導又は方向付けする。一般的な実施形態によれば、排出口又はノズルは、本明細書で参照されている他の実施形態に関して説明されているように設けることができる。

【0076】

更に、本明細書に記載の実施形態によれば、バルブ460は、液体金属リチウムなどの液体アルカリ金属がバルブを通して流れるように、構成及び/又は配置されている。コントロールバルブ460の制御を改善し、例えば、室温で外部にあるバルブのアクチュエータに対する熱損失を補償するため、コントロールバルブ460には分離された加熱素子415を設けることが可能で、また任意選択により分離された熱絶縁体及びバルブの温度の制御回路を設けることも可能である。そのため、コントロールバルブの温度変動は軽減され得る。したがって、液体材料の流量制御は改善され得る。

40

【0077】

図7は、本明細書に記載の堆積アレンジメントのいずれかに実装可能な、第1のチャンパ110の代替的な解決策を示す。第1のチャンパ、すなわちタンク110は、第1のチャンパの一部分712を含む。第1のチャンパの一部分712は、フランジ680によって固体材料で満たされ得る。第1のチャンパの一部分712は、第2のチャンパの一部分

50

710に接続される。材料は、第2のチャンバの一部分710内で溶解される。そのため、加熱素子615を設けることができる。例えば、電気ヒータが使用可能である。追加的に、又は代替的に、輻射ヒータが使用可能である。第2のチャンバの一部分120内の溶解した材料は、本明細書に記載のように、液体状態で導管120、すなわち材料供給システムを流れる。更なる実施形態によれば、第1のチャンバの一部分712には、材料を第2のチャンバ710に向けて及び第2のチャンバ710の中へ移送するためのアクチュエータを設けることが可能である。例えば、供給スクリューを第1のチャンバの一部分の中に設けることが可能である。更なる実装によれば、第1のチャンバの一部分及び第2のチャンバの一部分は、同一チャンバ内の2つの隣接空間によって設けることが可能である。第1のチャンバの一部分又は第1のチャンバ、及び第2のチャンバの一部分又は第2のチャンバを設けることによって、固体材料が挿入されても、溶解ゾーンの温度が急激に降下しないように、新しい材料の供給はより適切に制御可能である。特に、第2のチャンバの一部分の温度は、より安定的になるように制御可能である。

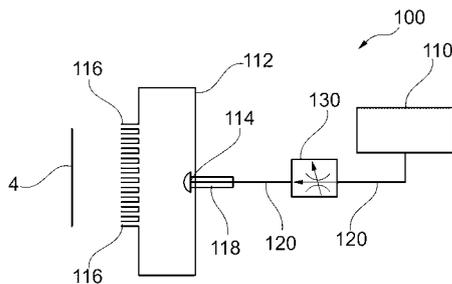
10

【0078】

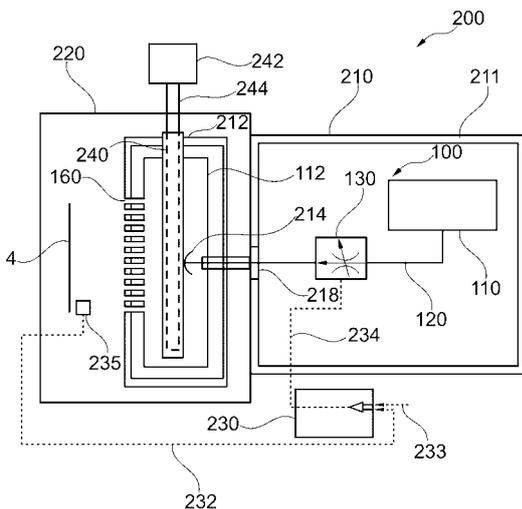
別の選択肢によれば、材料は第1のチャンバの一部分712で溶解可能で、任意選択により、第1のチャンバの一部分と第2のチャンバの一部分との間にバルブを設けることが可能である。したがって、第1のチャンバの一部分又は第1のチャンバ、及び第2のチャンバの一部分又は第2のチャンバを設けることによって、固体材料が挿入されても、溶解ゾーンの温度が急激に降下しないように、新しい材料の供給はより適切に制御可能である。特に、第2のチャンバの一部分の温度は、より安定的になるように制御可能である。以上の説明は本発明の実施形態を対象としているが、本発明の基本的な範囲を逸脱することなく本発明の他の追加の実施形態を考案することができ、本発明の範囲は、添付の特許請求の範囲によって定められる。

20

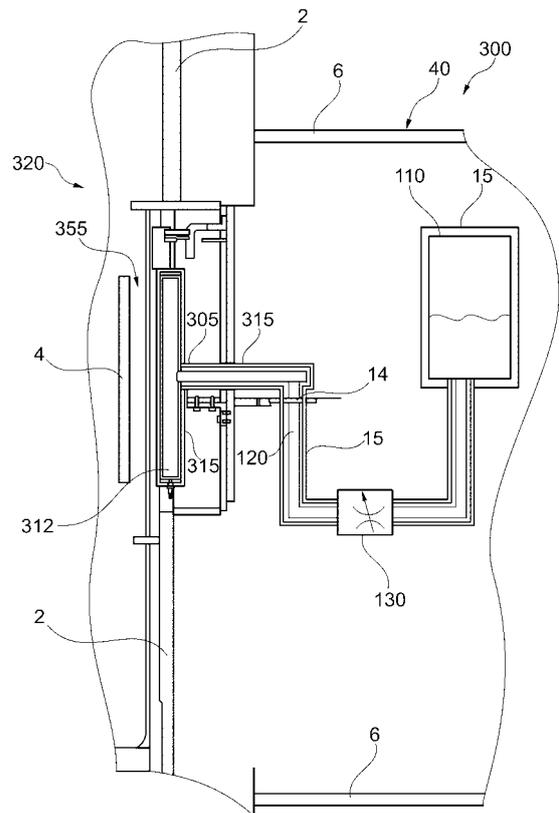
【図1】



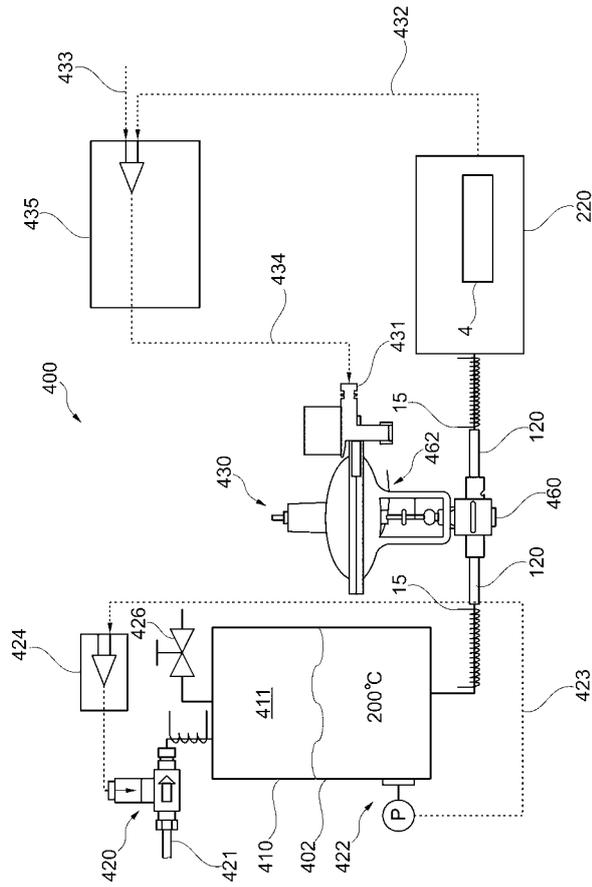
【図2】



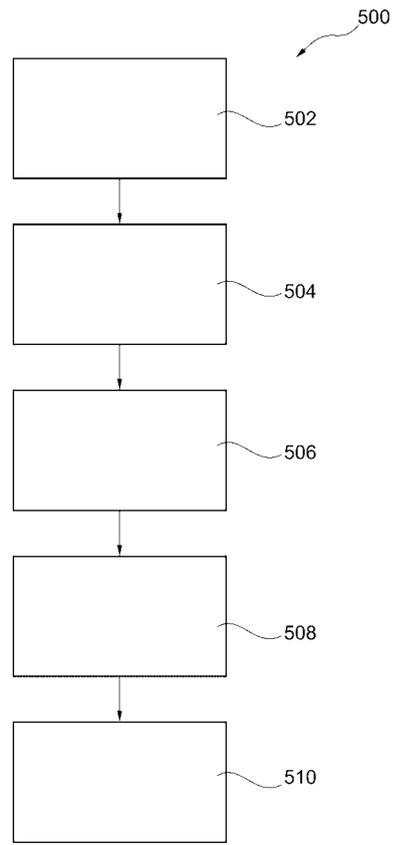
【図3】



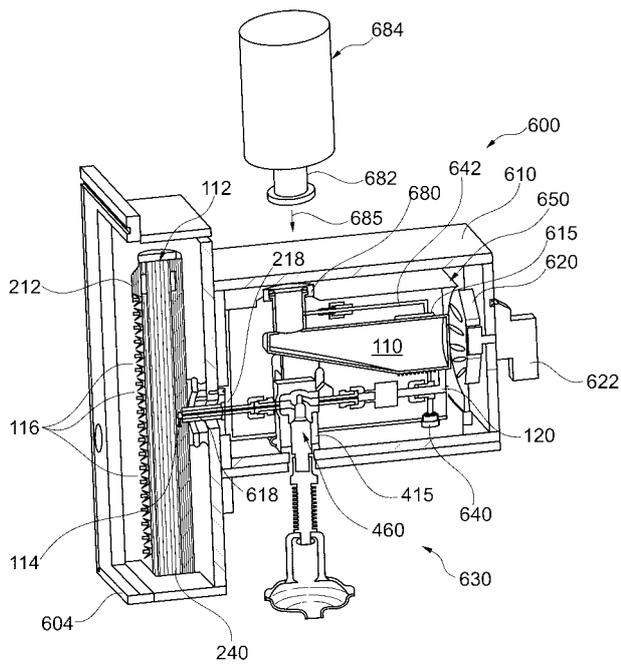
【 図 4 】



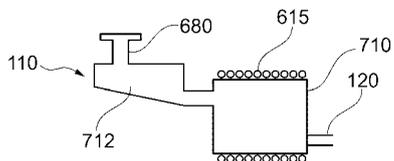
【 図 5 】



【 図 6 】



【 図 7 】



【手続補正書】

【提出日】平成30年8月20日(2018.8.20)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

アルカリ金属又はアルカリ土類金属を含む材料の蒸発及び前記材料の基板上への堆積のための堆積アレンジメントであって、

前記材料を液化するために構成された第1のチャンバと、

前記第1のチャンバと流体連通され、且つ前記第1のチャンバの下流にあるバルブであって、前記バルブを通る前記液化された材料の流量を制御するように構成され、蒸気供給シャワーヘッドと導管を介して接続されているバルブ、

筐体と、気化された材料を前記筐体内から前記基板に向けるための複数のノズルを有するとともに、当該蒸気供給シャワーヘッド内の圧力を、前記蒸気供給シャワーヘッドと前記基板との間の領域における圧力よりも高く維持するように構成された、前記蒸気供給シャワーヘッドと、

前記蒸気供給シャワーヘッド内に配置されるとともに前記バルブと流体連通され、且つ前記バルブの下流にある蒸発ゾーンであって、前記液化された材料を気化するように構成され、且つチャンバ又は接触面積が 1 cm^2 から 10 cm^2 である表面によってもたらされる蒸発ゾーンと、

を備えるアレンジメント。

【請求項2】

前記蒸気供給シャワーヘッドは直線的な蒸気供給シャワーヘッドである、請求項1に記載のアレンジメント。

【請求項3】

前記バルブに接続されたコントローラを更に備え、前記コントローラは前記基板上への蒸気の堆積速度を調整するための前記バルブを制御するように構成されている、請求項1又は2に記載のアレンジメント。

【請求項4】

前記コントローラは比例-積分-微分コントローラであり、前記コントローラは堆積速度モニタシステムの信号を受信するように構成された信号入力を備える、請求項3に記載のアレンジメント。

【請求項5】

前記第1のチャンバは、前記第1のチャンバの保護ガスの注入口用に構成されたガス注入口を備え、前記アレンジメントは前記第1のチャンバの前記保護ガスの流量を制御するために構成された更なるバルブを更に備える、請求項1から4のいずれか一項に記載のアレンジメント。

【請求項6】

前記第1のチャンバは、前記更なるバルブと連通している圧力ゲージを更に備える、請求項5に記載のアレンジメント。

【請求項7】

前記材料は金属リチウムである、請求項1から6のいずれか一項に記載のアレンジメント。

【請求項8】

少なくとも前記第1のチャンバ及び前記バルブを格納するための筐体を更に備え、前記筐体は保護雰囲気下にある前記第1のチャンバの交換のために構成されている、請求項1から7のいずれか一項に記載のアレンジメント。

【請求項 9】

前記蒸気供給シャワーヘッドは、内側加熱チューブなどの加熱ユニットによって加熱される、請求項 1 から 8 のいずれか一項に記載のアレンジメント。

【請求項 10】

アルカリ金属又はアルカリ土類金属を含む材料の蒸発及び前記材料の基板上への堆積のための堆積装置であって、

前記材料を前記基板上に堆積するための真空チャンバ、及び
請求項 1 から 9 のいずれか一項に記載のアレンジメント
を備える堆積装置。

【請求項 11】

アルカリ金属又はアルカリ土類金属を含む材料を蒸発させる方法であって、
前記材料を第 1 のチャンバ内で液化させることと、
前記液化された材料を前記第 1 のチャンバからコントロールバルブを通して蒸気供給シャワーヘッド内の蒸発ゾーンまで導くことと、
前記材料を前記蒸発ゾーン内で蒸発させることであって、チャンバ又は接触面積が 1 cm^2 から 10 cm^2 である表面を提供することを含む、蒸発させることと、
前記材料の蒸気を基板上に向けることと

を含む方法であって、

前記蒸気供給シャワーヘッドが、筐体と、気化された材料を前記筐体内から前記基板に向けるための複数のノズルを有するとともに、当該蒸気供給シャワーヘッド内の圧力を、前記蒸気供給シャワーヘッドと前記基板との間の領域における圧力よりも高く維持するように構成されている、方法。

【請求項 12】

前記材料は金属リチウムを含む、請求項 11 に記載の方法。

【請求項 13】

前記材料は、特に 600 以上の温度で、前記蒸発ゾーン内で瞬間的に蒸発する、及び / 又は前記液化された材料は、蒸発される前に、 185 から 285 の温度で維持される、請求項 11 又は 12 に記載の方法。

【請求項 14】

前記バルブを通る前記液化された材料の流量を調整するための前記コントロールバルブを制御するためのクローズドループコントロールを更に備える、請求項 11 から 13 のいずれか一項に記載の方法。

【請求項 15】

前記基板上での前記蒸気の堆積速度を調節するために前記コントロールバルブを制御することをさらに含む、請求項 11 から 13 のいずれか一項に記載の方法。

フロントページの続き

- (72)発明者 シュースラー, ウーヴェ
ドイツ国 アシャッフエンブルク 6 3 7 4 3, バーンホーフシュトラッセ 2 2
- (72)発明者 ディエゲス - カンポ, ホセ マヌエル
ドイツ国 ハーナウ 6 3 4 5 7, ヘルガースヴィーゼンヴェーク 1 1
- (72)発明者 バンゲルト, シュテファン
ドイツ国 シュタイナウ 3 6 3 9 6, ザイデンレーターシュトラッセ 6
- (72)発明者 クワック ビョン - ソン, レオ
アメリカ合衆国 オレゴン 9 7 2 2 9, ポートランド, ノースウエスト ヘンリー コート
9 7 2 3
- Fターム(参考) 4K029 BA02 CA01 DA03 DB12 DB15 EA02
5H050 AA19 BA16 CB12 GA24 GA27 GA29 HA14

【外国語明細書】

2019007082000001.pdf