

(19)日本国特許庁 (J P)

(12)特許公報 (B 1)

(11)特許番号

特許第3018000号

(P 3 0 1 8 0 0 0)

(45)発行日 平成12年 3月13日(2000.3.13)

(24)登録日 平成12年 1月 7日(2000.1.7)

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	
C30B 23/08		C30B 23/08	M
H01L 21/203		H01L 21/203	M

請求項の数10 (全9頁)

(21)出願番号	特願平10 - 258967	(73)特許権者	396020800 科学技術振興事業団 埼玉県川口市本町4丁目1番8号
(22)出願日	平成10年 9月11日(1998.9.11)	(72)発明者	鯉沼 秀臣 神奈川県横浜市緑区長津田町4259 東京 工業大学応用セラミックス研究所内
審査請求日	平成11年 9月 2日(1999.9.2)	(72)発明者	川崎 雅司 神奈川県横浜市緑区長津田町4259 東京 工業大学応用セラミックス研究所内
		(74)代理人	100082876 弁理士 平山 一幸 (外1名)
		審査官	宮澤 尚之

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 コンピナトリアル分子層エピタキシー装置

1

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】 基板を加熱する加熱手段と、複数の基板を保持し成長位置に搬送する基板ホルダーと、この基板ホルダーの成長位置にある基板に対して薄膜組成の原料を供給する多原料供給手段と、基板表面にガスを供給するガス供給手段と、基板表面での単分子層ごとのエピタキシャル成長をその場で観察するその場観察手段と、を圧力制御可能な高真空室内に備え、上記各基板ごとに成長温度、圧力及び供給原料を制御し、系統的に上記その場観察手段に基づいて分子層ごとのエピタキシャル成長をした物質群を合成するコンピナトリアル分子層エピタキシャル成長装置。

【請求項2】 前記多原料供給手段が、ターゲットテーブルに装填した複数の異なる固体原料のターゲットをエキシマレーザーで気化し前記各基板上に狙い通りの組成

2

の薄膜を形成するようにしたレーザー分子線エピタキシーであることを特徴とする、請求項1に記載のコンピナトリアル分子層エピタキシャル成長装置。

【請求項3】 前記多原料供給手段がレーザー分子線エピタキシーであって、前記その場観察手段が反射高速電子線回折であることを特徴とする、請求項1に記載のコンピナトリアル分子層エピタキシャル成長装置。

【請求項4】 前記多原料供給手段がレーザー分子線エピタキシーであって、前記基板が $-Al_2O_3$ 、YSZ、 MgO 、 $SrTiO_3$ 、 $LaAlO_3$ 、 $NdGaO_3$ 、 $YAlO_3$ 、 $LaSrGaO_4$ 、 $NdAlO_3$ 、 Y_2O_5 、 $SrLaAlO_4$ 、 $CaNdAlO_4$ 、Si及び化合物半導体のいずれかであることを特徴とする、請求項1に記載のコンピナトリアル分子層エピタキシャル成長装置。

【請求項 5】 前記多原料供給手段がレーザー分子線エピタキシーであって、ターゲットの固体原料が高温超伝導体、発光材料、誘電体、強誘電体、巨大磁気抵抗材料及び酸化物のいずれかであることを特徴とする、請求項 1 に記載のコンビナトリアル分子層エピタキシャル成長装置。

【請求項 6】 前記多原料供給手段がガスソース有機金属を流量制御してノズルにより前記各基板に吹き付けて供給するガスソース分子線エピタキシーであることを特徴とする、請求項 1 に記載のコンビナトリアル分子層エピタキシャル成長装置。

【請求項 7】 前記多原料供給手段がガスソース分子線エピタキシーであって、前記その場観察手段が光を利用した反射率差分分光法、表面光吸収法及び表面光干渉法のいずれかの方式に基づくものであることを特徴とする、請求項 1 に記載のコンビナトリアル分子層エピタキシャル成長装置。

【請求項 8】 前記多原料供給手段がガスソース分子線エピタキシーであって、前記基板が Si 及び化合物半導体であることを特徴とする、請求項 1 に記載のコンビナトリアル分子層エピタキシャル成長装置。

【請求項 9】 前記基板が、基板表面を原子レベルで平坦化し最表面原子層を特定した基板であることを特徴とする、請求項 1 に記載のコンビナトリアル分子層エピタキシャル成長装置。

【請求項 10】 前記高真空室が成長室であって、アニール室と、余熱加熱室とを備え、前記加熱手段と前記基板ホルダーとを一体的に上記成長室、アニール室及び余熱加熱室へ搬送し独立して真空チャンバーを形成することを特徴とする、請求項 1 に記載のコンビナトリアル分子層エピタキシャル成長装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】この発明は、分子層ごとにエピタキシャル成長する無機系超構造、金属や有機系超構造を形成するのに利用し、特に短時間で効率的な物質探索をするためのコンビナトリアル分子層エピタキシー装置に関する。

【0002】

【従来の技術】近時、ランタン・バリウム・銅酸化物系超伝導体が発見され、高温超伝導酸化物の薄膜形成技術が格段の進歩をとげるにつれ、金属材料、無機材料及び有機材料など様々な新機能物質の探索及び研究が行われている。高温超伝導酸化物の薄膜形成では、ペロブスカイトなどの酸化物機能材料自体が多成分の複酸化物を基にしているため、成分の最適化や薄膜作製条件と特性との相関関係を理論的に予測することが困難であり、試行錯誤的に最適化を図らざるを得ない。

【0003】このような中で、X. - D. Xiangらは多元スパッタリング法による薄膜形成を基板上の特定

の場所をマスクで覆うマスクパターンニング技術と組み合わせ、多数の無機物質を並行して合成する無機材料のコンビナトリアル薄膜合成により酸化物高温超伝導体の探索を行い、多元系物質の機能探索に威力を発することを示している(X. - D. Xiangら、Science, 268, 1738(1995))。

【0004】またG. Briceñoらは超巨大磁気抵抗(CMR)材料の探索のために、コバルト酸化物をベースとする新材料の $Ln_x M_y CoO_3$ ($Ln = La, Y, M = Ba, Sr, Ca, Pb$)をコンビナトリアル合成法で組成の異なる128個の試料をスパッタ蒸着し、酸素雰囲気中での焼結後に磁気抵抗を測定して、 CoO_2 をベースとする複酸化物も最大磁気抵抗比72%CMRを示すことを明らかにし、焼結条件を変えただけで2回のコンビナトリアル合成で、Co系CMR材料の発見と最適化を行っている。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、上記無機材料に対するコンビナトリアル合成では、薄膜形成がいずれも室温で堆積されているため、組成制御の役割を果たしているにすぎず、また有機・無機系いずれの材料においても、分子層ごとのエピタキシャル成長で超格子構造を形成した薄膜をコンビナトリアル合成することは未だ実現されていない。

【0006】そこで、本発明は上記課題にかんがみて、分子層ごとにエピタキシャル成長して無機系超構造、金属や有機系超構造を形成するとともに、短時間で効率的な物質探索をするためのコンビナトリアル分子層エピタキシー装置を提供することを目的とするものである。

【0007】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するために、請求項1記載の発明のコンビナトリアル分子層エピタキシャル成長装置は、基板を加熱する加熱手段と、複数の基板を保持し成長位置に搬送する基板ホルダーと、基板ホルダーの成長位置にある基板に対して薄膜組成の原料を供給する多原料供給手段と、基板表面にガスを供給するガス供給手段と、基板表面での単分子層ごとのエピタキシャル成長をその場で観察するその場観察手段とを圧力制御可能な高真空室に備え、各基板ごとに成長温度、圧力及び供給原料を制御し、系統的にその場観察手段に基づいて分子層ごとのエピタキシャル成長をした物質群を合成するものである。

【0008】また請求項2記載の発明は上記構成に加え、多原料供給手段がターゲットテーブルに装填した複数の異なる固体原料のターゲットをエキシマレーザーで気化し各基板上に狙い通りの組成の薄膜を形成するようにしたレーザー分子線エピタキシーであることを特徴とする。さらに請求項3記載の発明は、多原料供給手段がレーザー分子線エピタキシーであって、その場観察手段が反射高速電子線回折であることを特徴とする。また請

求項 4 記載の発明は、多原料供給手段がレーザー分子線エピタキシーであって、基板が $-Al_2O_3$ 、YSZ、 MgO 、 $SrTiO_3$ 、 $LaAlO_3$ 、 $NdGaO_3$ 、 $YAlO_3$ 、 $LaSrGaO_4$ 、 $NdAlO_3$ 、 Y_2O_5 、 $SrLaAlO_4$ 、 $CaNdAlO_4$ 、 Si 及び化合物半導体のいずれかであることを特徴とするものである。

【0009】さらに請求項 5 記載の発明は、多原料供給手段がレーザー分子線エピタキシーであって、ターゲットの固体原料が高温超伝導体、発光材料、誘電体、強誘電体、巨大磁気抵抗材料及び酸化物のいずれかであることを特徴とする。酸化物は単成分及び多成分のいずれでもよい。また請求項 6 記載の発明は、多原料供給手段がガスソース有機金属を流量制御してノズルにより各基板に吹き付けて供給するガスソース分子線エピタキシーであることを特徴とするものである。

【0010】さらに請求項 7 記載の発明は、多原料供給手段がガスソース分子線エピタキシーであって、その場観察手段が光を利用した反射率分光法、表面光吸収法及び表面光干渉法のいずれかの方式に基づくものであることを特徴とする。また請求項 8 記載の発明は、多原料供給手段がガスソース分子線エピタキシーであって、前記基板が Si 及び化合物半導体であることを特徴とする。さらに請求項 9 記載の発明は、基板が基板表面を原子レベルで平坦化し最表面原子層を特定した基板であることを特徴とする。また請求項 10 記載の発明は、高真空室が成長室であって、アニール室と、余熱加熱室とを備え、前記加熱手段と前記基板ホルダーとを一体的に上記成長室、アニール室及び余熱加熱室に搬送し独立して真空チャンバーを形成することを特徴とする。

【0011】このような構成の請求項 1 記載の発明のコンビナトリアル分子層エピタキシャル成長装置では、
[多原料] × [多基板] × [温度, 圧力及び気相からのフラックス (堆積速度) などの反応パラメータ] の組合せを独立に制御し、1 シリーズの反応により単分子層ごとにエピタキシャル成長した超格子構造を系統的に合成することができる。

【0012】また請求項 2 記載の発明では、波長の短いエキシマレーザー光によりターゲットの限られた表面を瞬時に気化するので、狙い通りの組成の薄膜が形成でき、例えば無機系超構造の形成が可能である。さらに請求項 3 記載の発明では、分子層ごとのエピタキシャル成長をモニターしながら、例えば高融点、多成分の酸化物を薄膜化できる。また請求項 4 及び 5 記載の発明では、ターゲットの原料組成を忠実に基板表面に供給し、成分によらず付着確率がほぼ 1 である点が有利に働くので、単分子層ごとにエピタキシャル成長した薄膜の高温超伝導体、発光材料、誘電体、強誘電体、巨大磁気抵抗材料を形成できる。

【0013】さらに請求項 6 記載の発明では、有機金属

などの気化原料を用いて、例えば金属や有機系構造を形成することができる。また請求項 7 記載の発明では、単分子層ごとのエピタキシャル成長をモニターしながら薄膜成長ができる。さらに請求項 8 記載の発明では、単分子層ごとにエピタキシャル成長した化合物半導体が形成できる。また請求項 9 記載の発明では、格段に規則正しく長く続く RHEED 振動を観察することができるので、単分子層ごとに進行するエピタキシャル成長を確実に実現できる。さらに請求項 10 記載の発明では、基板ホルダーを加熱したまま搬送でき、さらにアニール室、余熱加熱室及び超高真空室を独立して温度制御及び圧力制御することができる。

【0014】

【発明の実施の形態】以下、図面に示した実施形態に基づいて本発明を詳細に説明する。図 1 は本発明の実施形態にかかるコンビナトリアル分子層エピタキシー装置の概略図であり、薄膜成長装置としてコンビナトリアルレーザー分子線エピタキシー装置を例示したものであり、このコンビナトリアルレーザー分子線エピタキシー装置に代えてコンビナトリアルガスソース有機金属分子線エピタキシー装置を用いてもよい。

【0015】本発明のコンビナトリアル分子層エピタキシー装置には、原料と作製する物質成分に応じて薄膜成長装置の構成が一部異なり、パルスレーザー光によって固体原料を気化して分子層ごとにエピタキシャル成長させて無機系超構造をコンビナトリアル合成するのに適するコンビナトリアルレーザー分子線エピタキシー装置と、有機金属などの気化原料を用いて金属や有機系超構造を分子層ごとにエピタキシャル成長させて形成するのに適するコンビナトリアルガスソース有機金属分子線エピタキシー装置とがある。両装置は薄膜原料の供給方法が異なる他はほぼ同一の装置構成である。

【0016】先ず、コンビナトリアルレーザー分子線エピタキシー装置について説明する。図 1 を参照すると、本実施形態に係るコンビナトリアルレーザー分子線エピタキシー装置は、真空チャンバー 2 と、この真空チャンバー 2 とゲートバルブ (図示せず) を介して高真空に排気するターボ分子ポンプ、イオンポンプ及びクライオポンプ等の超高真空ポンプ 4 と、複数の基板 5 を保持し回転可能な基板ホルダー 6 と、この基板ホルダー 6 の後部に配設され基板を加熱するランプヒーター 8 とを備えている。

【0017】さらにこの装置は、回転可能なシャフト 9 に支持された基板ホルダー 6 と、基板ホルダー 6 に対向して設けられた回転可能なターゲットテーブル 10、10 と、これらのターゲットテーブル 10、10 に装填された複数の異なる固体原料のターゲット 12 と、これらのターゲット 12 を気化するエキシマレーザー光 13、13 の光源 14、14 と、このレーザー光を集光するレンズ 15、15 と、レーザー光を真空チャンバー 2 内に導

入する窓 1 6 , 1 6 と、薄膜成長基板上の分子層エピタキシャル成長をその場でモニターする反射高速電子線回折 (以下、「R H E E D」という。) の電子銃 1 8 と、R H E E D のスクリーン 1 7 とを備えている。

【 0 0 1 8 】さらに、基板ホルダー 6 及びターゲットテーブル 1 0 , 1 0 のホームポジションと回転位置は図示しない制御装置により管理されるとともに、この制御装置により基板が成長する位置に対してターゲットの種類が選択され、エキシマレーザーをパルス状に照射する時間が制御されている。超高真空ポンプ 4 は真空チャンバー 2 を $1 0^{-10}$ Torr 程度に保持できる能力を有することが望ましく、また真空チャンバー 2 は図示しないバルブの開閉度を調節して圧力制御するようになっている。なお、超高真空ポンプはロータリーポンプを補助ポンプとして用いている。

【 0 0 1 9 】ランプヒーター 8 は基板 5 に薄膜を成長させている位置にあるとき成長プロセスに適した温度で加熱しているが、その他の位置にあるときは他の余熱用のランプヒーター 7 で加熱している。これらのランプヒーターは基板ホルダー 6 の近傍に配設されている。ランプヒーターは基板ホルダー自体に配設されていてもよいが、この場合ランプヒーターは基板が成長位置にあるときは成長温度に制御され、余熱用の位置にあるときは所定温度に制御されるようになっている。

【 0 0 2 0 】図 1 に示した例では、余熱用と薄膜成長用の真空チャンバーは兼用して一つであるが、基板に薄膜を成長させるチャンバーと余熱しておく真空チャンバーとを別途に隣接して設け、各チャンバーを独立して形成しておいてもよい。

【 0 0 2 1 】また真空チャンバーには、常圧復帰のための大気及び窒素や高温超伝導関連の酸化エピタキシーのために、ノズル 1 9 で供給する酸素及び反応性ガスなどのガス供給系が設けられている。なお、図 1 のガス供給系は略図であり、通常は質量流量計で制御され、真空ポンプと連動して制御可能になっている。

【 0 0 2 2 】さらに基板としては、 $- Al_2 O_3$ 、 $Y S Z$ 、 MgO 、 $SrTiO_3$ 、 $LaAlO_3$ 、 $NdGaO_3$ 、 $YAlO_3$ 、 $LaSrGaO_4$ 、 $NdAlO_3$ 、 Y_2O_5 、 $SrLaAlO_4$ 、 $CaNdAlO_4$ 、 Si 及び化合物半導体が使用できる。

【 0 0 2 3 】ところで、分子層エピタキシーに基づく R H E E D 振動を検出し、しかもこの R H E E D 振動をモニターして単分子層ごとに制御して単分子層エピタキシャル成長を持続させるには、基板表面の原子レベルでの平坦化と最表面原子層の特定が極めて重要である。例えば ABO_3 の一般式で表されるペロブスカイト酸化物は AO と BO_2 の原子層の繰り返しで構成されるが、最表面が AO の場合、 BO_2 の場合、両者が共存する場合、その上に堆積していく膜の成長モードが異なる。

【 0 0 2 4 】例えば $SrTiO_3$ 研磨基板は最表面が主

として TiO_2 であり、表面荒さは数 nm である。この $SrTiO_3$ (1 0 0) 基板を HF/NH_3 緩衝溶液 ($pH = 4.5$) でウエットエッチング処理すると表面を原子レベルで平坦化でき、最表面原子層が TiO_2 面にできる。したがって、本実施形態では基板表面を原子レベルで平坦化し最表面原子層を特定した基板を用いるのが好ましい。

【 0 0 2 5 】ターゲットの固体原料としては固体であれば何でも使用可能であるが、例えば、 $YBa_2Cu_3O_7$ などの高温超伝導体、 ZnO 、 $(ZnMg)O$ 、 $(ZnCd)O$ などの発光材料、 $SrTiO_3$ 、 $BaTiO_3$ 、 PZT 、 $(SrBa)TiO_3$ などの誘電体や強誘電体、 $(LaSr)MgO_3$ などの巨大磁気抵抗材料等が使用可能である。さらに、単成分及び多成分の酸化物を使用して成分ごとに供給することも可能である。

【 0 0 2 6 】次に、コンビナトリアルレーザー分子線エピタキシー装置の薄膜形成時の動作について説明する。例えば真空チャンバー 2 を $1 0^{-4}$ Torr 程度の高真空に制御し、ランプヒーター 8 で基板 5 を例えば 8 5 0 の成長温度に制御しつつ、基板ホルダー 6 を回転して基板 5 を成長位置に配置する。この成長位置にある基板 5 に対向するようにターゲットテーブル 1 0 , 1 0 が回転してターゲット 1 2 , 1 2 を所定位置に配置し、このターゲット 1 2 , 1 2 にエキシマレーザー光 1 3 , 1 3 を例えばパルス状に所定時間照射する。

【 0 0 2 7 】このエキシマレーザー光の照射によってターゲットの表面で急激な発熱と光化学反応の両方が起き、原料成分が爆発的に気化し、基板上に狙い通りの組成の薄膜を形成する。さらに R H E E D の鏡面反射点では一層ごとの成長による核発生と平坦化の繰り返しに伴う振動を観測でき、厳密に一分子層ごとの自己制御性のある膜厚モニターをする。単分子層ごとのエピタキシャル成長後、ターゲットテーブル 1 0 , 1 0 が回転し、他のターゲット 1 2 , 1 2 を所定位置に配置し、他の超格子構造物である薄膜成長を行う。

【 0 0 2 8 】一つの基板に新たな格子構造を有する人工結晶や超格子を作製後、基板ホルダー 6 が回転して次の基板の処理を行う。エピタキシャル成長膜が超伝導体の場合、反応系の真空チャンバー 2 内の酸素分圧を高くして必要な酸化条件を満たしておく。なお、本実施形態では減圧度が低く、反応系内の酸素分圧を広い範囲で制御することが可能である。

【 0 0 2 9 】このようにして本実施形態のコンビナトリアルレーザー分子線エピタキシー装置では、[多原料] × [多基板] × [温度、圧力及び気相からのフラックス (堆積速度) などの反応パラメータ] の組合せを独立に制御し、1 シリーズの反応により構造を系統的に制御した物質群を合成することができる。

【 0 0 3 0 】次に、コンビナトリアルガスソース有機金属分子線エピタキシー装置について説明する。図 1 はコ

ンピナトリアルレーザー分子線エピタキシー装置の例示であるが、装置構成が共通する点が多いので図 1 を参照して説明する。図 1 を参照して本実施形態に係るコンビナトリアルガスソース有機金属分子線エピタキシー装置は、真空チャンパー 2 と、この真空チャンパー 2 とゲートバルブ（図示せず）を介して高真空に排気するターボ分子ポンプ、イオンポンプ及びクライオポンプ等の超高真空ポンプ 4 などの真空排気系とを備えている。

【 0 0 3 1 】さらに、複数の基板 5 を保持し回転可能な基板ホルダー 6 と、この基板ホルダー 6 の後部に配設され基板を加熱するランプヒーター 8 と、基板ホルダー 6 とランプヒーター 8 とを支持して回転可能なシャフト 9 とを備え、有機金属などの気化原料である複数の反応性ガスを流量制御してノズル 1 9 により基板に吹き付けるようになっており、ガス流量、ガス導入のオン・オフ又はガス導入のタイミングなどと真空排気とは連動して制御されている。

【 0 0 3 2 】またコンビナトリアルガスソース有機金属分子線エピタキシー装置では、原料がガスソース有機金属であり吸着表面反応が支配的であることから、分子層エピタキシャル成長のその場でモニターするその場観察手段としてレーザー光を照射し、その強度変化をモニターするのが効果的である。例えば直線偏光を基板にほぼ垂直に入射させ、反射光の偏光特性により表面構造の異方性を検知して分子層ごとのエピタキシャル成長をモニターする反射率差分分光方式、表面吸着原子又は分子による光吸収及び光の位相変化による反射強度変化を測定して分子層ごとのエピタキシャル成長をモニターする表面光吸収方式及び表面光干渉方式が利用できる。

【 0 0 3 3 】さらに基板としては例えば I I I - V 族、I I - V I 族、I - V I I 族、I I - I V 族、I V - V I 族の種々の組合せの化合物半導体が利用できる。さらに化合物半導体でなくても、例えば S i 基板でもよい。

【 0 0 3 4 】このような構成のコンビナトリアルガスソース有機金属分子線エピタキシー装置では、各基板ごとに単分子層ごとの成長をモニターしてエピタキシャル成長することができ、1 シリーズの反応により構造を系統的に制御した物質群を合成することができる。

【 0 0 3 5 】次に、他の実施形態を説明する。図 2 は他の実施形態にかかるコンビナトリアル分子層エピタキシャル成長装置の外観図である。他の実施形態に係るコンビナトリアル分子層エピタキシャル成長装置 2 0 は、共通室 2 2、成長室 2 4、アニール室 2 6、余熱加熱室 2 8 及び基板ホルダーロードロック室 3 4 を備え、これらの各室は真空シールドされ独立して高真空に排気される真空チャンパーとなっている。なお、図 2 中の T M P はターボ分子ポンプの略称を示すが、図示しないゲートバルブを介して超高真空ポンプにより排気されるようになっており、補助ポンプとしてロータリポンプを使用している。

【 0 0 3 6 】また各真空チャンパーは図示しないバルブの開閉度を調節して圧力制御でき、さらに図示しないバルブ及び質量流量計が所定個所に設けられて、酸素及びドライ窒素などを流量制御して導入できるようになっている。

【 0 0 3 7 】共通室 2 2 は、成長室 2 4、アニール室 2 6 及び余熱加熱室 2 8 と隔壁 3 9 に設けられた開口部 4 2, 4 2, 4 2 を介して連結され、この開口部の周囲の溝に O リング 4 1 が埋め込まれている。さらに成長室 2 4、アニール室 2 6 及び余熱加熱室 2 8 は、隔壁 3 9 に対してそれぞれ真空シールドされて固定保持されている。

【 0 0 3 8 】共通室 2 2 には、基板ホルダー 4 8、基板ホルダーのチャッカー 4 5 及びランプヒーター 8（図 3 を参照）を円筒状のハウジング 3 5 内に格納した基板加熱部 3 6 が、図 2 では 3 つ設けられている。これらの基板加熱部 3 6 は公転移動シャフト 4 3 によって回転搬送及び上下方向に移動する搬送プレート 3 8 にハウジング 3 5 のフランジ部 3 1 で真空シールドされ、かつ、保持されている。公転移動シャフト 4 3 は共通室 2 2 を真空シールドしたまま回転機構 6 0 により回転し、移動機構 7 0 により上下方向に移動するようになっている。

【 0 0 3 9 】ハウジング 3 5 の他端のフランジ部 3 3 は、搬送プレート 3 8 が下方の終点に移動したとき隔壁 3 9 の開口部 4 2 の周囲の溝に埋め込まれた O リング 4 1 に当接し、共通室 2 2 と隔離して真空シールドされている。このとき各基板加熱部 3 6, 3 6, 3 6 と、成長室 2 4、アニール室 2 6 及び余熱加熱室 2 8 とで形成される各真空チャンパーは独立して真空排気及び圧力制御され、かつ、所定温度に加熱されるようになっている。

【 0 0 4 0 】図 2 に示すように、共通室 2 2 にゲートバルブ 4 6 を介して設けられた基板ホルダーロードロック室 3 4 には、基板 5 が装填された基板ホルダー 4 8 を複数個保持したストッカー 4 9 が設置されており、基板ホルダーロードロック室 3 4 を高真空に保持したまま外部から操作するクリップ 5 2 で基板ホルダー 4 8 を基板加熱部 3 6 のチャッカーに装填するようになっている。

【 0 0 4 1 】成長室 2 4 の構成は図 1 に示したコンビナトリアルレーザー分子線エピタキシー装置の構成と同様であるが、ランプヒーターは成長室 2 4 に対して一つだけ設けられている点異なる。なお、レーザー分子線エピタキシーでは、図 2 に示すように、成長室 2 4 にゲートバルブ 4 7 を介して設けられたターゲットロードロック室 3 2 にターゲット 1 2 を複数個保持したプレート 5 4 が設置されており、ターゲットロードロック室 3 2 を高真空に保持したまま外部から操作するクリップ 5 6 でターゲット 1 2 を図示しないターゲットテーブルに装填できるようになっている。

【 0 0 4 2 】次に、基板加熱部について説明する。図 3 は他の実施形態にかかる基板加熱部の詳細断面図であ

り、搬送プレートが下方の終点に移動して基板加熱部が隔壁に当接している状態を示す図である。図 3 に示すように、基板加熱部 3 6 は、フランジ 3 1, 3 3 を両端に有する円筒状のハウジング 3 5 と、このハウジングの中心線上に設けられたランプホルダー 8 2 と、このランプホルダーに設置されたランプヒーター 8 とを有し、基板ホルダーを回転させる基板回転機構を備えている。なお、ランプヒーター 8 は安全性と温度制御性のため水冷配管が設けられ、水冷されている。

【 0 0 4 3 】基板回転機構は、ランプホルダー 8 2 の外側に配設された基板ホルダー回転部 8 4 と、この回転部に設けられていて基板ホルダー 4 8 をランプヒーター 8 の焦点位置に配置するチャッカー 4 5 とを備えている。基板ホルダー回転部 8 4 の上部には回転用ギヤ 8 3 が設けられ、自転シャフト 8 6 のギヤ 8 5 と噛み合っており、またこの自転シャフト 8 6 の他端に設けられた自転用ギヤ 8 8 は公転用ギヤ 6 5 と噛み合っている。さらに基板ホルダー回転部の下部にはベアリング 8 7 が設けられている。

【 0 0 4 4 】次に、搬送プレートを回転搬送する回転機構と上下方向に移動する移動機構とを説明する。図 2 を参照して、搬送プレート 3 8 を回転させる回転機構 6 0 は、移動プレート 7 2 に設けられたモーター 6 1 と、このモーターの回転駆動力を伝達するシャフト 6 2 と、このシャフトの端部に設けられた駆動ギヤ 6 4 とを備え、この駆動ギヤ 6 4 が公転移動シャフトに設けられた公転用ギヤ 6 5 に噛み合っており、回転駆動力を伝達するようになっている。なお、回転シャフト 6 2 は、移動プレート 7 2 と成長室 2 2 との間を真空シールドするために設けられたフレキシブルチューブ 8 2 の内部を通っている。

【 0 0 4 5 】図 3 を参照して、公転移動シャフト 4 3 の端部には搬送プレート 3 8 を複数の固定用シャフト 9 1 を介して固定する支持部 9 2 が固定されて設けられており、この支持部 9 2 に対してベアリング 9 3 を介して所定トルクで回転するように、公転用ギヤ 6 5 が設けられている。

【 0 0 4 6 】図 2 を参照して、移動機構 7 0 は、共通室 2 2 の上蓋 7 1 に固定されたブラケット 7 3 と、このブラケットに設けられたモーター 7 4 により回転駆動する回転シャフト 7 5 と、この回転シャフトの回転により上下移動する移動プレート 7 2 とを備え、公転移動シャフト 4 2 は移動プレート 7 2 と成長室 2 2 との間に真空シールドするために設けられたフレキシブルチューブ 8 3 の内部を通り、移動プレート 7 2 上に固定された磁気シールドユニット 7 7 により磁気シールドされ、かつ、回転可能に保持されている。なお、この磁気シールドユニットは磁性流体により公転移動シャフトを真空シールドしている。

【 0 0 4 7 】先ず、移動機構の動作を説明する。移動プレート 7 2 が上始点にあるとき、モーター 7 4 により回

転シャフト 7 5 が回転し移動プレート 7 2 が下降する。このとき移動プレート 7 2 と成長室 2 2 の上蓋 7 1 間のフレキシブルチューブ 8 2, 8 3 が縮んでいく。移動プレート 7 2 が下降するにつれて公転移動シャフト 4 3 が下降し、この公転移動シャフト 4 3 の下降につれて搬送プレート 3 8 に設けられた基板加熱部 3 6 のフランジ 3 3 がリング 4 1 に当接し、リング 4 1 を圧縮して停止する。したがって、各真空チャンバーは基板加熱部で真空シールドされ、さらに独立して真空排気及び圧力制御され、かつ、所定温度に加熱できる。

【 0 0 4 8 】次に、搬送プレート及び基板回転機構の動作について説明する。移動プレート 7 2 が上始点にあるときモーター 6 1 により回転駆動力がシャフト 6 2 に伝達し、駆動ギヤ 6 4 が回転する。この駆動ギヤ 6 4 により公転用ギヤ 6 5 とともに公転移動シャフト 4 3 が回転し、この回転につれて搬送プレートが回転し、基板加熱部 3 6 が公転する。このとき自転用ギヤ 8 8 も回転するため、自転シャフト 8 6 により回転駆動力を回転ギヤ 8 3 に伝達し、基板ホルダー回転部 8 5 が回転し、基板ホルダー 4 8 が回転する。なお、公転移動シャフト 4 3、回転シャフト 6 2 及び自転シャフト 8 6 は各真空チャンバーにおいて真空シールドされたまま回転する。したがって、搬送プレートに設けられた基板加熱部を各真空チャンバーまで搬送することができるとともに、基板ホルダーを回転することができる。

【 0 0 4 9 】搬送プレート 3 8 が下方の終点に移動して基板加熱部が共通室と隔離して真空シールドされているとき、回転シャフト 6 2 の回転駆動力を公転用ギヤ 6 5 に伝達するが、基板加熱部はリングに当接してロック状態にあるため、公転用ギヤ 6 5 だけがベアリング 9 3 に沿って回転し、この回転につれて自転用ギヤ 8 8 が回転して基板ホルダー回転部 8 5 が回転し、基板ホルダー 4 8 が回転する。したがって、各真空チャンバー内で基板ホルダーを回転することができる。

【 0 0 5 0 】つぎに他の実施形態のプロセスにおける動作について説明する。なお、成長室ではレーザー分子線エピタキシーの例を用いて説明した。さらに具体的な条件は例示である。所定圧力の室温下、搬送プレート 3 8 が上始点のホームポジションにあるとき第 1 基板ホルダー 4 8 を余熱加熱室に対応する基板加熱部のチャッカー 4 5 に装填後、搬送プレート 3 8 が下降して各基板加熱部 3 6 が隔壁のリング 4 1 に当接し、圧縮して停止する。余熱加熱室 2 8 を高真空の例えば 10^{-6} Torr に維持しクリーニングを行うとともに昇温レート 10 / 分で 9 5 0 まで温度を上げていく。

【 0 0 5 1 】所定時間経過後、各基板加熱部の温度を維持したまま各真空チャンバー及び共通室を所定圧力に戻し、搬送プレート 3 8 が上始点まで移動する。この搬送プレート 3 8 が回転し、余熱加熱室 2 8 に対応して第 1 基板ホルダー 4 8 を装填している基板加熱部 3 6 を成長

室 2 4 まで搬送する。このとき室温のもと、つまりランプヒーター 8 を OFF にした基板加熱部 3 6 に、次の処理をする第 2 基板ホルダー 4 8 を余熱加熱室 2 8 に対応する基板加熱部 3 6 のチャッカー 4 5 に装填しておく。

【 0 0 5 2 】搬送プレート 3 8 が下降して各真空チャンパーを隔離し、成長室 2 4 を高真空の例えば 10^{-4} Torr に維持し、9 5 0 に加熱したまま所定時間、レーザー分子線エピタキシー成長を行う。このとき余熱加熱室 2 8 では 10^{-6} Torr に維持され、昇温レート 1 0 / 分で 9 5 0 まで昇温中である。

【 0 0 5 3 】成長室 2 4 において、単分子層ごとの分子層エピタキシャル成長で超格子構造などを基板ホルダーを回転して各基板に形成後、設定温度の 9 5 0 を維持したまま各真空チャンパー及び共通室 2 2 を所定圧力に戻し、搬送プレート 3 8 が上始点まで移動する。この搬送プレート 3 8 が回転し、成長室 2 4 に対応して第 1 基板ホルダー 4 8 を装填している基板加熱部 3 6 をアニール室 2 6 まで搬送する。このとき、余熱加熱室 2 8 に対応する基板加熱部 3 6 のチャッカー 4 5 に、第 3 基板ホルダー 4 8 を装填しておく。

【 0 0 5 4 】搬送プレート 3 8 が下降して各真空チャンパーを隔離し、アニール室 2 8 を例えば 1 Torr に維持したまま、例えば 9 5 0 から降温レート 1 0 / 分で所定時間アニールを行う。このアニール室 2 8 では酸素分圧が最適に制御されている。ランプヒーター 8 を OFF にしてアニール室 2 8 が室温になったら、他の基板加熱部 3 6、3 6 は 9 5 0 に維持したまま、各真空チャンパー及び共通室 2 2 を所定圧力に戻し、搬送プレート 3 8 が上始点まで移動して、この搬送プレート 3 8 が回転してホームポジションに戻る。そして、エピタキシャル成長後の基板ホルダーを取り出してストッカー 4 9 に格納後、新たな第 4 基板ホルダーを基板加熱部 3 6 のチャッカー 4 5 に装填し、逐次処理していく。

【 0 0 5 5 】このようにして他の実施形態では、[多原料] × [多基板] × [温度, 圧力及び気相からのフラックス (堆積速度) などの反応パラメータ] の組合せを独立に制御し、1 シリーズの反応により構造を系統的に制御した物質群を合成することができる。さらに、基板に単分子層エピタキシャル成長層を形成する成長室 2 4、薄膜成長させた基板をアニールするアニール室 2 8 及び基板をクリーニングしつつ加熱する余熱加熱室 2 8 を、各対応した基板加熱部 3 6、3 6、3 6 とともに独立して圧力制御及び温度制御しているため、基板温度を下げることなく搬送でき、異なる基板温度及び圧力でのプロセスを連続的に行うことができる。

【 0 0 5 6 】

【 発明の効果 】以上の説明から理解されるように、本発明のコンビナトリアル分子層エピタキシャル成長装置では、[多原料] × [多基板] × [温度, 圧力及び気相からのフラックス (堆積速度) などの反応パラメータ] の

組合せを独立に制御し、1 シリーズの反応により単分子層ごとにエピタキシャル成長した超格子構造を系統的に合成することができるという効果を有する。

【 図面の簡単な説明 】

【 図 1 】本発明の一実施形態にかかるコンビナトリアル分子層エピタキシー装置の概略図である。

【 図 2 】他の実施形態にかかるコンビナトリアルレーザー分子線エピタキシー装置要部の外観図である。

【 図 3 】他の実施形態にかかる基板加熱部の詳細断面図であり、搬送プレートが下方の終点に移動して基板加熱部が隔壁に当接している状態を示す図である。

【 符号の説明 】

2	真空チャンパー
4	超高真空ポンプ
5	基板
6	基板ホルダー
8	ランプヒーター
10	ターゲットテーブル
12	ターゲット
13	エキシマレーザー光
14	光源
15	レンズ
16	窓
17	スクリーン
18	電子銃
19	ノズル
20	コンビナトリアルレーザー分子線エピタキシー装置
22	共通室
24	成長室
26	アニール室
28	余熱加熱室
34	基板ホルダーロードロック室
35	ハウジング
36	基板加熱部
38	搬送プレート
39	隔壁
41	Oリング
42	開口部
40	43 公転移動シャフト
45	チャッカー
48	基板ホルダー
52	クリップ
60	回転機構
62	シャフト
64	駆動ギヤ
65	公転用ギヤ
70	移動機構
71	上蓋
50	72 移動プレート

- 7 3 ブラケット
- 7 4 モーター
- 7 5 回転シャフト
- 7 7 磁気シールユニット
- 8 2 フレキシブルチューブ
- 8 3 回転用ギヤ
- 8 4 基板ホルダー回転部
- 8 5 ギヤ
- 8 6 自転シャフト
- 8 7 ベアリング
- 8 8 自転用ギヤ
- 9 1 固定用シャフト
- 9 2 支持部
- 9 3 ベアリング

【要約】

【課題】 分子層ごとにエピタキシャル成長して無機系超構造、金属や有機系超構造を形成するとともに、短時間で効率的な物質探索をするためのコンビナトリアル分子層エピタキシー装置を提供する。

【解決手段】 真空チャンバー 2 と、超高真空ポンプ 4 と、複数の基板 5 を保持し回転可能な基板ホルダー 6 と、基板ホルダー 6 を加熱するランプヒーター 8 と、基板ホルダー 6 に対向して設けられた回転可能なターゲットテーブル 10、10 と、複数の異なる固体原料のターゲット 12 と、これらのターゲット 12 を気化するエキシマレーザー光 13、13 と、レーザー光を真空チャンバー 2 内に導入する窓 16、16 と、薄膜成長基板上的分子層エピタキシャル成長をその場でモニターする反射高速電子線回折の電子銃 18 と、RHEED のスクリーン 17 とを備えている。

【図 1】



