

(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 4 月 4 日(04.04.2013)



(10) 国際公開番号

WO 2013/046517 A1

- (51) 国際特許分類:
H01L 21/205 (2006.01) C23C 16/448 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/004702
- (22) 国際出願日: 2012 年 7 月 24 日(24.07.2012)
- (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 2011-216885 2011 年 9 月 30 日(30.09.2011) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 株式会社フジキン(FUJIKIN INCORPORATED) [JP/JP]; 〒5500012 大阪府大阪市西区立売堀 2 丁目 3 番 2 号 Osaka (JP). 国立大学法人東北大学(TOHOKU UNIVERSITY) [JP/JP]; 〒9808577 宮城県仙台市青葉区片平二丁目 1 番 1 号 Miyagi (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 大見 忠弘(OHMI, Tadahiro) [JP/JP]; 〒9808577 宮城県仙台市青葉区片平二丁目 1 番 1 号国立大学法人東北大学内 Miyagi (JP). 白井 泰雪(SHIRAI, Yasuyuki) [JP/JP]; 〒9808577 宮城県仙台市青葉区片平二丁目 1 番 1 号国立大学法人東北大学内 Miyagi (JP). 永瀬 正明(NAGASE, Masaaki) [JP/JP]; 〒5500012

大阪府大阪市西区立売堀 2 丁目 3 番 2 号株式会社フジキン内 Osaka (JP). 山下 哲(YAMASHITA, Satoru) [JP/JP]; 〒5500012 大阪府大阪市西区立売堀 2 丁目 3 番 2 号株式会社フジキン内 Osaka (JP). 日高 敦志(HIDAKA, Atsushi) [JP/JP]; 〒5500012 大阪府大阪市西区立売堀 2 丁目 3 番 2 号株式会社フジキン内 Osaka (JP). 土肥 亮介(DOHI, Ryousuke) [JP/JP]; 〒5500012 大阪府大阪市西区立売堀 2 丁目 3 番 2 号株式会社フジキン内 Osaka (JP). 西野 功二(NISHINO, Kouji) [JP/JP]; 〒5500012 大阪府大阪市西区立売堀 2 丁目 3 番 2 号株式会社フジキン内 Osaka (JP). 池田 信一(IKEDA, Nobukazu) [JP/JP]; 〒5500012 大阪府大阪市西区立売堀 2 丁目 3 番 2 号株式会社フジキン内 Osaka (JP). 平尾 圭志(HIRAO, Keiji) [JP/JP]; 〒5500012 大阪府大阪市西区立売堀 2 丁目 3 番 2 号株式会社フジキン内 Osaka (JP).

(74) 代理人: 杉本 丈夫, 外(SUGIMOTO, Takeo et al.); 〒5410054 大阪府大阪市中央区南本町 4 丁目 5 番 7 号 東亜ビル Osaka (JP).

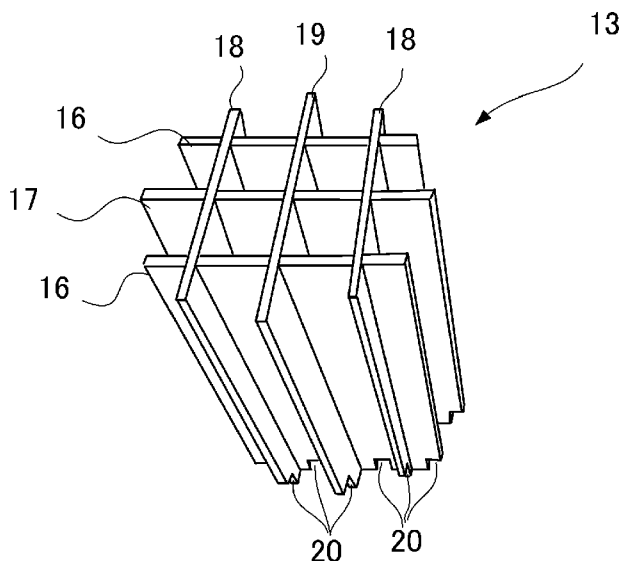
(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN,

[続葉有]

(54) Title: VAPORIZER

(54) 発明の名称: 気化器

[図3]



(57) Abstract: The present invention provides a vaporizer which can stabilize the behavior of pressure inside the vaporizer. This vaporizer comprises a chamber having an inflow port and an outflow port, a heating device for heating the chamber interior, a separating wall structure (13) which is provided inside the chamber and divides a fluid material inside the chamber into a plurality of sections, and liquid flow passages (20) which are provided in the bottom of the separating wall structure (13) and allowing the passage of liquid among the sections divided by the separating wall structure (13), the separating wall structure having separating walls in the shape of a grid, a honeycomb, a mesh, or pipes.

(57) 要約: 本発明は、気化器内の圧力の挙動を安定させることができる気化器を提供する。本発明の気化器は、流入口及び流出口を備えるチャンバーと、該チャンバー内を加熱する加熱装置と、該チャンバー内に設けられ、該チャンバー内の液体材料を複数の区画に区分けする隔壁構造体 13 と、

隔壁構造体 13 の下部に設けられ、隔壁構造体 13 で区分けされた各区画間の液流通を許容する液流通部 20 と、を備え、前記隔壁構造体が、格子状、ハニカム状、メッシュ状、又は、パイプ状の隔壁を有することとした。



IS, 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, 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.

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).

- (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

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称 : 気化器

技術分野

[0001] 本発明は、気化器に係り、詳しくは主として液体の有機金属材料を気化するための気化器に関する。

背景技術

[0002] 従来、化合物半導体やITO膜等の成膜工程において、有機金属気相成長法(MOCVD: Metal Organic Chemical Vapor Deposition)が用いられている。そして、有機金属気相成長法では、液体の有機金属材料をキャリアガスでバブリングして気体とする、いわゆるバブリング法を用いた気化器が広く知られている(特許文献1、2等)。

[0003] しかしながら、バブリング法を用いる気化器では、バブリング流量、液面レベル、バブリングの気泡径、液温度などの様々なパラメータの変動によって気化ガスの供給濃度に変動を生じるという問題があった。

[0004] そのため、キャリアガスを用いることなく、原料ガスを気化器内で加熱して気化させ、気化させた原料ガスそのものを高温対応の圧力調整式流量制御装置により流量制御して反応容器に供給する、液体材料気化供給システムが提案されている(特許文献3)。この液体材料気化供給システムを用いて有機金属ガスの流量制御を行うことにより、バブリング法で問題となるバブリング流量等の影響を受けずに流量を制御することが可能となる。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1: 特開2002-88477号公報

特許文献2: 特開2010-284628号公報

特許文献3: 特開2009-252760号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] しかしながら、上記液体材料気化供給システムでは、制御されたタイミングで間欠的に液体材料である有機金属材料が気化器内に供給されるが、液体材料を供給した後の気化器内の圧力の挙動が、液体材料が供給される毎に異なり、不安定であった。

[0007] そこで、本発明は、気化器内の圧力の挙動を安定させることができる気化器を提供することを主たる目的とする。

課題を解決するための手段

[0008] 上記目的を達成するため、本発明に係る気化器は、流入口及び流出口を備えるチャンバーと、該チャンバー内に收容される液体材料を加熱する加熱装置と、該チャンバー内の液体材料を複数の区画に区分けする隔壁構造体と、前記隔壁構造体で区分けされた各区画間の液流通を許容する液流通部と、を備え、前記隔壁構造体は、格子状、ハニカム状、メッシュ状、又は、パイプ状の隔壁を有することを特徴とする。

[0009] 前記液流通部は、前記隔壁構造体の下端に形成された切り欠き部であることが好ましい。

[0010] 前記隔壁構造体は、好ましくは、複数枚の隔壁プレートを交差状に連結することにより形成される。

[0011] 前記隔壁プレートは第1の隔壁プレートと第2の隔壁プレートとを含み、前記第1の隔壁プレートは、上端から下方へ延びる第1のスリットを有し、該第1のスリットに前記第2の隔壁プレートを挿し込むことによって該第2の隔壁プレートと連結されることが好ましい。

[0012] 前記隔壁プレートは第1の隔壁プレートと第2の隔壁プレートとを含み、前記第2の隔壁プレートは、下端から上方へ延びる第2のスリットを有し、該第2のスリットに前記第1の隔壁プレートを挿し込むことによって該第1の隔壁プレートと連結されることが好ましい。

[0013] 前記隔壁プレートは第1の隔壁プレートと第2の隔壁プレートとを含み、前記第1の隔壁プレートは上端から下方へ延びる第1のスリットを有し、前記第2の隔壁プレートは下端から上方へ延びる第2のスリットを有し、前記

第1のスリットの下端に前記第2のスリットを挿し込むことにより、前記第1のプレートと前記第2のプレートとが連結されることが好ましい。

発明の効果

[0014] 本発明に係る気化器によれば、チャンバー内で気化される液体材料を複数の細分化された区画に区分けする隔壁構造体を設けたので、液体材料中の熱分布を均一にし、大きな対流が発生することによる液体材料温度の不均一を防ぐことによって、気化器内の圧力挙動を一定にすることができる。

図面の簡単な説明

[0015] [図1]本発明に係る気化器を含む液体材料気化供給システムの一実施形態を示す概略構成図である。

[図2]本発明に係る気化器の構成要素である隔壁構造体の組立前の隔壁プレートを示す平面図である。

[図3]図2の隔壁プレートを組み合わせた隔壁構造体を斜め上方から見た斜視図である。

[図4]図3の隔壁構造体を底側から見た斜視図である。

[図5]本発明に係る気化器の構成要素である隔壁構造体の他の実施形態を示す斜視図である。

[図6]本発明に係る気化器の構成要素である隔壁構造体の更に他の実施形態を示す斜視図である。

[図7]本発明に係る気化器の構成要素である隔壁構造体の更に他の実施形態を示す斜視図である。

[図8]本発明実施例を用いた液体材料気化供給システムで流量制御した場合の気化器内の圧力と気化器外面の温度の時間変化を示すグラフである。

[図9]比較例の液体材料気化供給システムで流量制御した場合の気化器内の圧力と気化器外面の温度の時間変化を示すグラフである。

[図10]比較例の気化器内の熱対流を概念的に示す説明図である。

発明を実施するための形態

[0016] 本発明を実施するための形態について、以下に図1～図10を参照して説

明する。なお、全図を通し、同様の構成部分には同符号を付した。

[0017] 図1は、気化器1を含む液体材料気化供給システムの一実施形態を示す概略構成図である。図1を参照すれば、液体材料気化供給システムでは、耐圧密閉型の液体材料容器2に溜められた液体材料である有機金属材料MOは、窒素ガス等の不活性圧送用ガスGがバルブ3、レギュレータ4を介し圧送ガス供給管5を通じて液体材料容器2の上部に圧送されることにより、一端が液体材料に水没させられた液体材料搬送管6を通じて液体材料容器2から押し出され、バルブ7を介して気化器1に供給される。気化器1内で所定温度に加熱されることにより液体状態にあった有機金属材料が気化したガスは、加熱温度に応じた所要の蒸気圧を持って圧力調整式流量制御装置8に送られ、そこで流量制御されて反応容器9に供給される。反応容器9は、下流側の真空ポンプ10で減圧されている。なお、図1において破線で囲まれた領域は、加熱されている領域を示す。

[0018] 気化器1は、流入口1a及び流出口1bを備えるチャンバー11と、チャンバー11内を加熱する加熱装置12と、チャンバー11内に配置されチャンバー11内で気化される液体材料を複数の区画に区分けする隔壁構造体13と、を備えている。

[0019] 図示例のチャンバー11は、チャンバー11を通孔14a、15a付き仕切壁14、15によって複数の室11a、11b、11cに仕切られている。液体材料である有機金属材料が供給される第1室11aに隔壁構造体13が収容されており、第1室11aで気化した有機金属ガスは、第2室11b、第3室11cを経ることで、十分に加熱され得る。チャンバー11内の室数は、適宜設定することができ、一室とすることもできる。チャンバー11は、例えばステンレス鋼で形成することができる。

[0020] 加熱装置12は、チャンバー11の前後左右側面、上面及び底面を覆うようにしてヒータープレートを固定することにより構成することができる。ヒータープレートは、例えば、アルミニウムや銅等のプレートにヒータを組み込んだものとすることができる。このような加熱装置12は、特開2009

－ 2 5 2 7 6 0 号に開示された公知の加熱装置を充てることができる。加熱装置 1 2 は、外部からチャンバー 1 1 を加熱するものに限らず、チャンバー 1 1 内に配置することもできる。

[0021] 隔壁構造体 1 3 は、図 2～図 4 に示すように、複数枚の隔壁プレート 1 6～1 9 を直交状に連結することにより、上下開放の格子状アセンブリに形成することができる。隔壁プレート 1 6, 1 7 は、上端から下方に延びる第 1 のスリット 1 6 a、1 7 a が形成されている。隔壁プレート 1 8, 1 9 は、下端から上方に延びる第 2 のスリット 1 8 a、1 9 a が形成されている。第 1 のスリット 1 6 a、1 7 a に隔壁プレート 1 8, 1 9 が挿し込まれ、第 2 のスリット 1 8 a、1 9 a に隔壁プレート 1 6, 1 7 が挿し込まれて、隔壁プレート 1 6, 1 7 と隔壁プレート 1 8, 1 9 とが直交状に連結されている。第 2 のスリット 1 8 a、1 9 a は第 1 のスリット 1 6 a、1 7 a の下端に挿し込まれ、第 1 のスリット 1 6 a、1 7 a は第 2 のスリット 1 8 a、1 9 a の上端に挿し込まれる。隔壁プレート 1 6～1 9 を連結して隔壁構造体 1 3 を形成することにより隔壁構造体 1 3 を低コストで製造することができ、第 1 及び第 2 のスリット 1 6 a～1 9 a を嵌め合わせるだけで容易に組み立てることができる。なお、隔壁プレートは必ずしも直交状に連結した正方格子状である必要は無く、一定の包囲された区画が形成されるのであれば、隔壁プレート同士を連結する際に鋭角又は鈍角の角度を持たせても良い。

[0022] 隔壁構造体 1 3 の下部には、隔壁構造体 1 3 で分けられた各区画の液流通を許容する液流通部 2 0 が形成される。液流通部 2 0 は、図示例のように、隔壁構造体 1 3 の下端に形成された切り欠き部によって構成することができる。液流通部は、隔壁構造体に形成した通孔（図示せず。）とすることもできる。或いは、隔壁構造体 1 3 の下部にスペーサ（図示せず。）を介在させるかチャンバー 1 1 の内壁に凸部（図示せず。）を形成する等して隔壁構造体 1 3 の底面とチャンバー 1 1 の内底面との間に形成した間隙によって液流通部を構成することもできる。液流通部 2 0 を通じて液体が各隔壁で仕切られた各区画内の液体材料を相互に流通することにより、各区画内の液面が

同じになる。

[0023] 上記のような隔壁構造体 13 は、チャンバー 11 に溜まった液体材料を複数の小区画に区分けする。このような格子状隔壁構造体 13 をチャンバー 11 に収容することによって、区分けされた区画毎に収まっている液体材料の容積が小さくなり、均熱し易く、また、液体材料が隔壁構造体（チャンバー内面からの伝熱により加熱部として作用する。）に接触する表面積も大きくなる。その結果、区画毎に収まった液体材料の均熱性が高まり、大きな対流の発生による温度の不均衡の発生を抑制する効果を生じると考えられる。斯かる効果によって、後に明らかになるように、気化器 1 内のガス圧力は常に安定な挙動が得られる。

[0024] 圧力調整式流量制御装置 8 は、図 1 に示すようにオリフィス 30、圧力センサ 31、制御弁 32、制御回路（図示せず）等を備える従来公知のもので、高温対応のものを充てることができる。圧力調整式流量制御装置（圧力式流量制御装置とも言う。）の流量制御の原理は、「オリフィスの上流側圧力が下流圧力の 2 倍以上あるとき、オリフィスを流れ出るガスが音速となり、その流量は上流圧力にのみ依存する。」ことを利用している。従って、オリフィスの上流側圧力 P_1 と下流側圧力 P_2 との関係が $P_1 > 2 P_2$ の場合、オリフィスを流れ出る流量は下記式 1 のように表され、オリフィス断面積及びオリフィス上流側圧力 P_1 に比例して増加する。半導体プロセスは減圧下で行われることから、多くの場合、 $P_1 > 2 P_2$ の条件（臨界膨張条件）は満たされる。従って、オリフィス上流側圧力 P_1 を検出し、制御弁にてオリフィス上流側圧力を制御することによって流量を制御することができる。

[0025] [数1]

$$Q = \frac{SP_1}{\sqrt{T}} \cdot C \quad \dots (1)$$

[0026] $P_1 < 2 P_2$ の場合は、下流側の圧力を無視できなくなり、オリフィスを流れ出る流量は下記式（2）によって表され、これに基づいた流量制御がなされる。

[0027] [数2]

$$Q = S \cdot C \sqrt{\frac{P_2(P_1 - P_2)}{T}} \quad \dots (2)$$

[0028] 式(1)、(2)において、 Q ：標準状態に換算したときの体積流量（sccm）、 S ：オリフィス断面積（mm²）、 P_1 ：オリフィス上流側圧力（絶対圧 kPa）、 P_2 ：オリフィス下流側圧力（絶対圧 kPa）、 T ：オリフィス上流のガス温度（K）、 C ：ガス固有係数（分子量、ガス密度、比熱比により決定）である。

[0029] 上記実施形態では平面視において正方格子状の隔壁構造体を例示したが、隔壁構造体は、チャンバー11内に收容された液体材料を、更に複数の囲まれた領域に收容することにより、收容範囲を（好ましくは均等に）細分化できる構造であればよく、図5（a）～（b）に示すように隔壁による区画形状を種々採用し得るメッシュ状、或いは図6に示す正六角形の区画に仕切るハニカム状に形成することもできる。また、隔壁をパイプ状部材で形成することもでき、例えば図7に示すようにパイプ状部材21を複数本束ねて溶接する等して連結一体化した隔壁構造体とすることもできる。

実施例 1

[0030] 以下、実施例及び比較例を挙げて、本発明を更に具体的に説明する。但し、本発明は、下記実施例によって、限定されるものではない。

[0031] 実施例

実施例では、図1に示した液体材料気化供給システムと同様のシステムを用い、気化器内に図2～4に示した形状の格子状隔壁構造体を收容した。格子状隔壁構造体は、0.5mm厚のステンレス板で形成し、格子間隔（格子一区画の一辺の長さ）を3.6mm、高さ寸法を2.5cm、液流通部を構成する切り欠き凹部の高さ寸法を1mmとした。液体材料としてTMGa（トリメチルガリウム）を用いた。圧送用ガス（窒素ガス）の圧力は絶対圧200kPaに設定した。気化器内の温度が75℃になるように加熱装置を制御

した。圧力調整式流量制御装置の下流側圧力は1.8 Torrに設定され、圧力調整式流量制御装置により流量を56 sccmに制御した。気化器内の液体のTMGaが減少して気化器内の圧力が設定閾値圧力110 kPa（絶対圧）になると、液体材料容器内のTMGaを5秒間、気化器に圧送するように制御した。気化器内の圧力（ P_0 ）と気化器第1室の外側下面温度の時間変化をモニターした結果を図8のグラフに示す。

[0032] 比較例

比較例は、格子状隔壁構造体を備えない以外は上記の実施例と同じ条件とした。比較例の気化器内の圧力と気化室（第1室）の外側下面温度の時間変化を図9のグラフに示す。

[0033] 図9のグラフから分かるように、比較例では、気化器内の圧力は上昇しながら極大値に達した後、時間の経過に伴って徐々に低下する傾向を示しており、約170 kPa～165 kPaの範囲で変動し、一定の値で安定しない。そして、極大値を迎えた後の気化器内圧力の挙動も気化器に液体TMGaを供給する毎に異なっている。すなわち、気化器内圧力は、極大値を迎えた後、そのまま徐々に圧力を低下させるか、一端極大値と同じ圧力で数分間保持するかのと二通りの挙動を示している。これは、気化器に供給された液体材料に熱勾配が存在することによって液中に気化室内全体にわたる大きな対流（図10の矢印参照）が起こり、蒸気圧にバラツキを生じることによって、気化器内圧力の挙動に影響を与えていると考えられる。

[0034] 一方、本発明の上記実施例では、図8のグラフから分かるように、気化器内の圧力は173～174 kPa（絶対圧）で安定しており、気化器に液体のTMGaが何度供給されても殆ど同じ挙動を示している。これは、隔壁構造体によって液体収容領域が細分化された結果、液体材料中の温度勾配を小さくし、大きな対流が発生することによる液体材料温度の不均一を防ぐことによって、気化器内の圧力挙動を一定にしていると考えられる。

[0035] また、図8のグラフと図9のグラフとを比較すると、実施例は気化器外面の温度がほぼ安定しているが、比較例では気化器内の温度に顕著な変動が生

じていることが分かる。比較例のように気化器の温度が不安定な場合、温度低下に伴う蒸気圧の低下が発生し、目的の蒸気圧が得られなくなり、蒸気圧の低下が圧力調整式流量制御装置の制御圧力を下回ると、正常な流量制御が不可能となる。それに対し、実施例のように気化器の温度を安定化することによって、上記のような欠点を完全に排除することが出来る。

[0036] 上記の実施例と比較例の結果から、隔壁構造体を気化器内に収容することによって、液体の有機金属材料中の熱分布を均一にし、対流の発生を防ぐことができていると考えられる。従って、気化器内に隔壁構造体を収容することによって、気化器内圧力の安定した挙動を得ることができることが確認された。

符号の説明

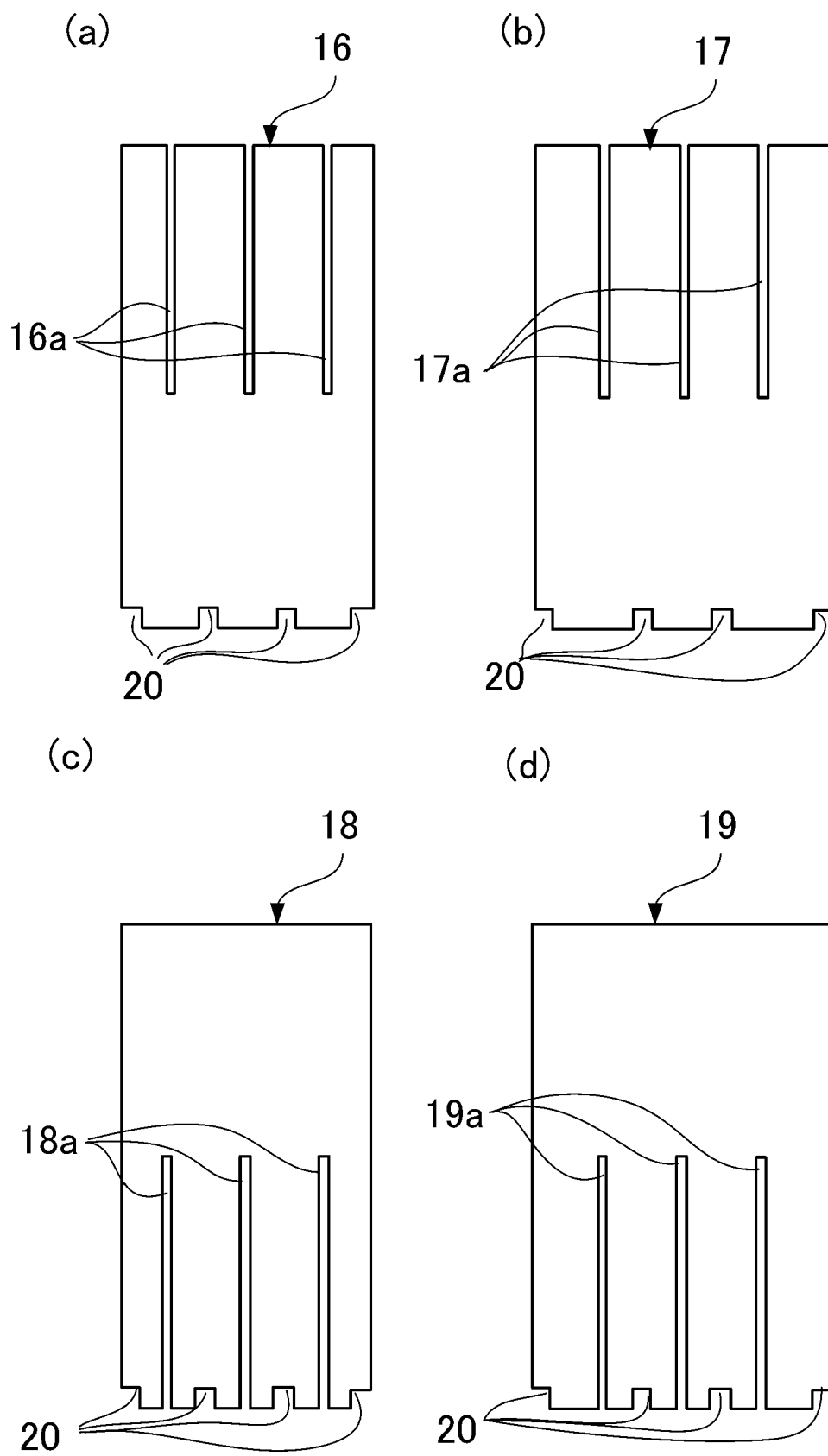
- [0037] 1 気化器
13 隔壁構造体
16, 17, 18, 19 隔壁プレート
16a, 17a 第1のスリット
18a, 19a 第2のスリット
20 液流通部

請求の範囲

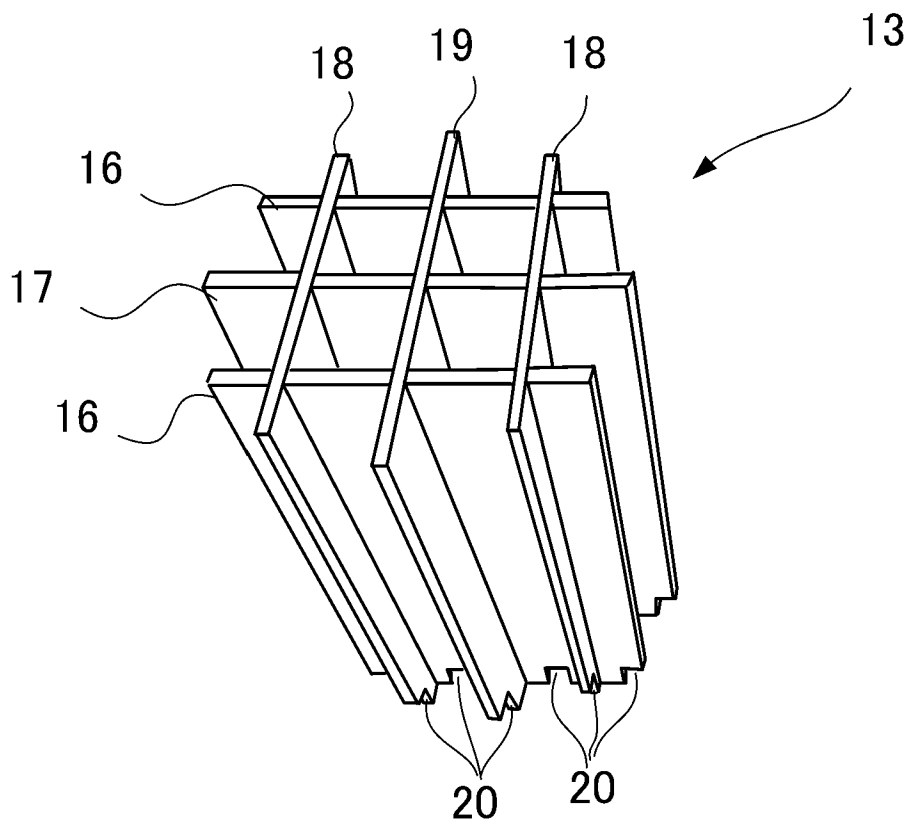
- [請求項1] 流入口及び流出口を備えるチャンバーと、
該チャンバー内に収容される液体材料を加熱する加熱装置と、
該チャンバー内に収容される液体材料を複数の区画に区分けする隔壁構造体と、
前記隔壁構造体で区分けされた各区画間の液流通を許容する液流通部と、を備え、
前記隔壁構造体は、格子状、ハニカム状、メッシュ状、又は、パイプ状の隔壁を有することを特徴とする気化器。
- [請求項2] 前記液流通部は、前記隔壁構造体の下端に形成された切り欠き部であることを特徴とする請求項1に記載の気化器。
- [請求項3] 前記隔壁構造体は、複数枚の隔壁プレートを交差状に連結することにより形成されることを特徴とする請求項1に記載の気化器。
- [請求項4] 前記隔壁プレートは第1の隔壁プレートと第2の隔壁プレートとを含み、前記第1の隔壁プレートは、上端から下方へ延びる第1のスリットを有し、該第1のスリットに前記第2の隔壁プレートを挿し込むことによって該第2の隔壁プレートと連結されることを特徴とする請求項3に記載の気化器。
- [請求項5] 前記隔壁プレートは第1の隔壁プレートと第2の隔壁プレートとを含み、前記第2の隔壁プレートは、下端から上方へ延びる第2のスリットを有し、該第2のスリットに前記第1の隔壁プレートを挿し込むことによって該第1の隔壁プレートと連結されることを特徴とする請求項3に記載の気化器。
- [請求項6] 前記隔壁プレートは第1の隔壁プレートと第2の隔壁プレートとを含み、前記第1の隔壁プレートは上端から下方へ延びる第1のスリットを有し、前記第2の隔壁プレートは下端から上方へ延びる第2のスリットを有し、前記第1のスリットの下端に前記第2のスリットを挿し込むことにより、前記第1のプレートと前記第2のプレートとが連結

されることを特徴とする請求項 3 に記載の気化器。

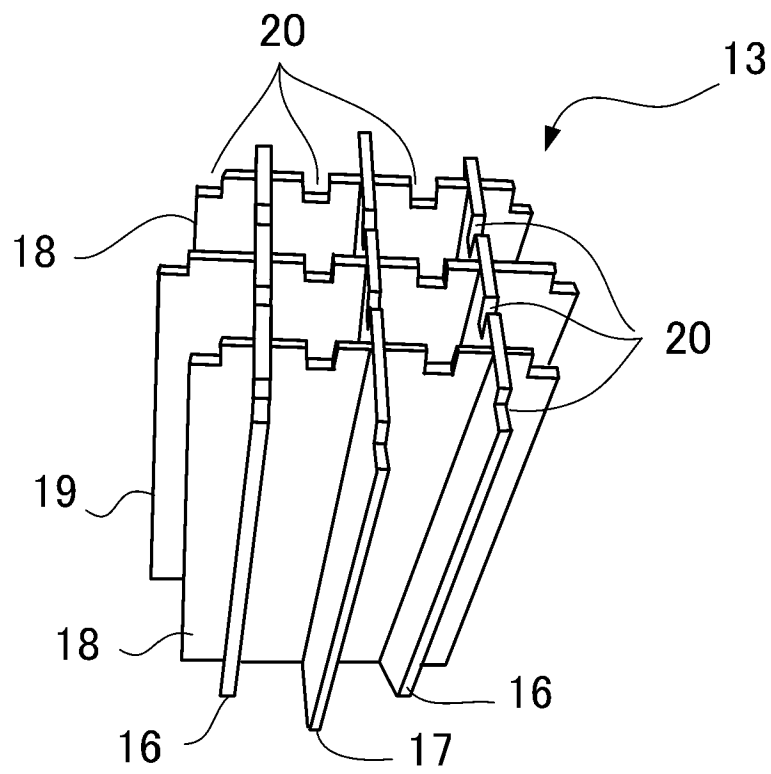
[図2]



[図3]

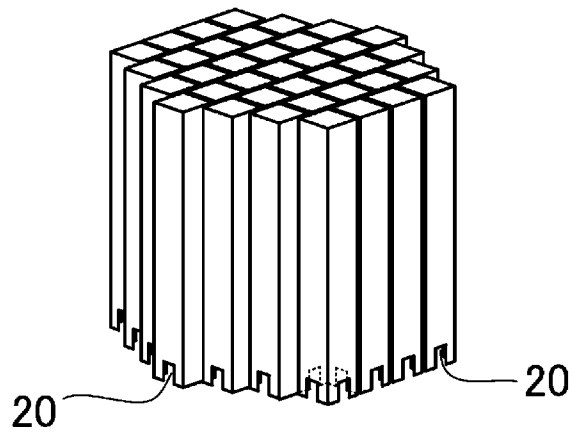


[図4]

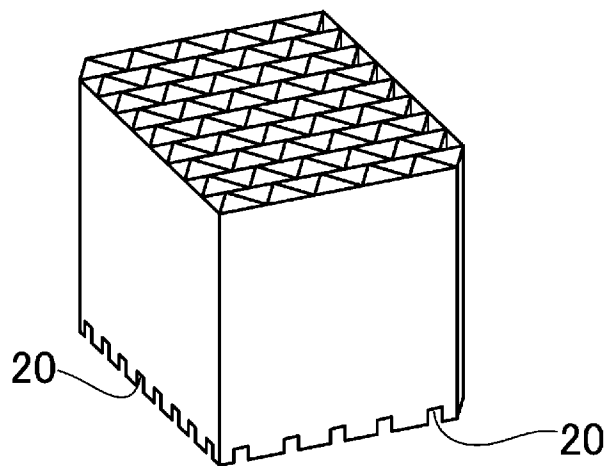


[図5]

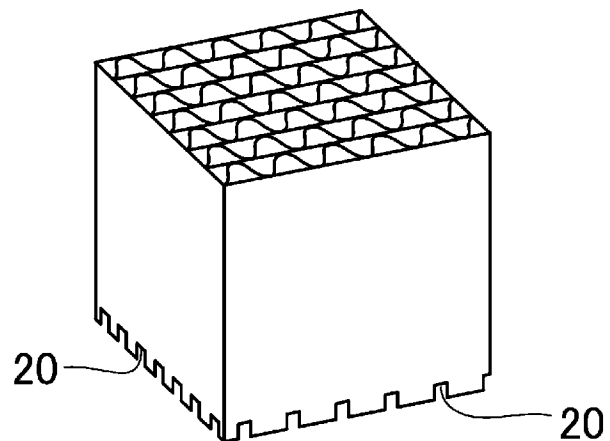
(a)



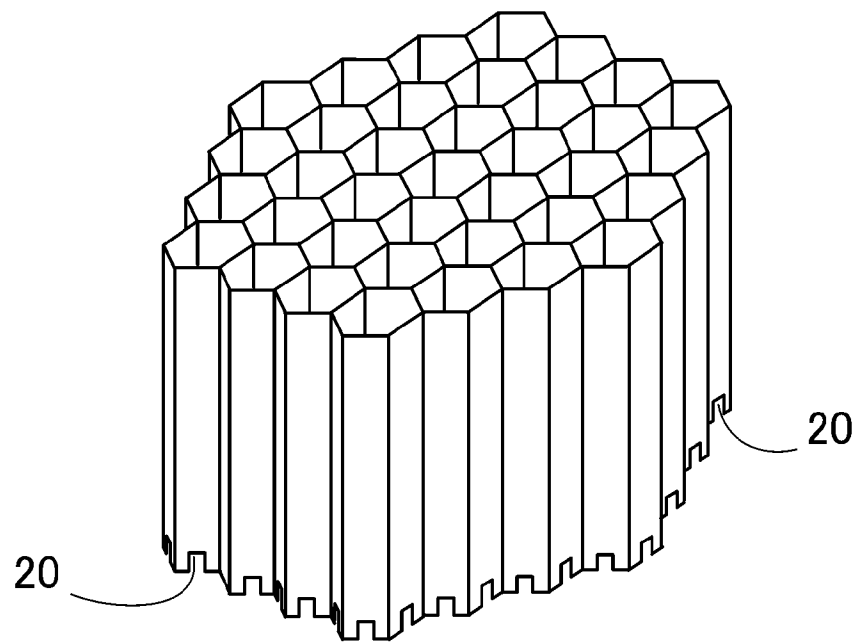
(b)



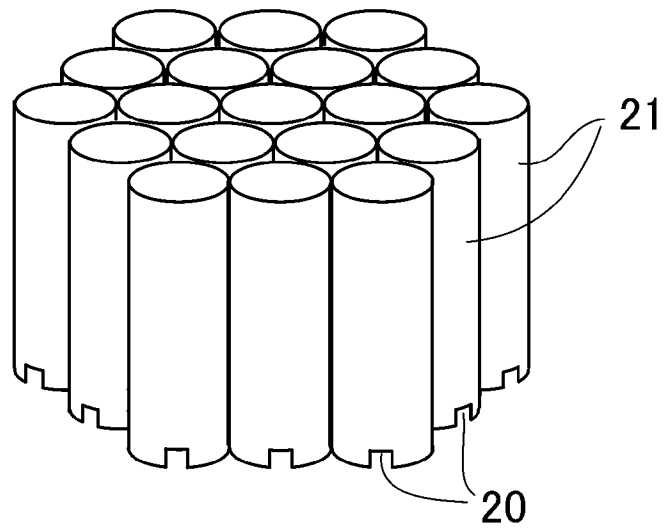
(c)



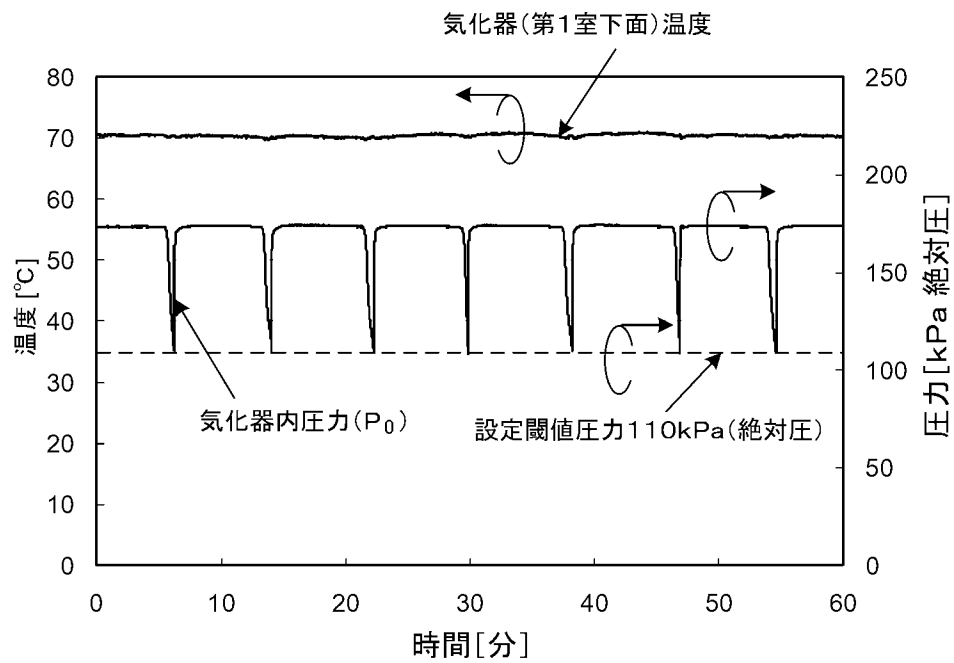
[図6]



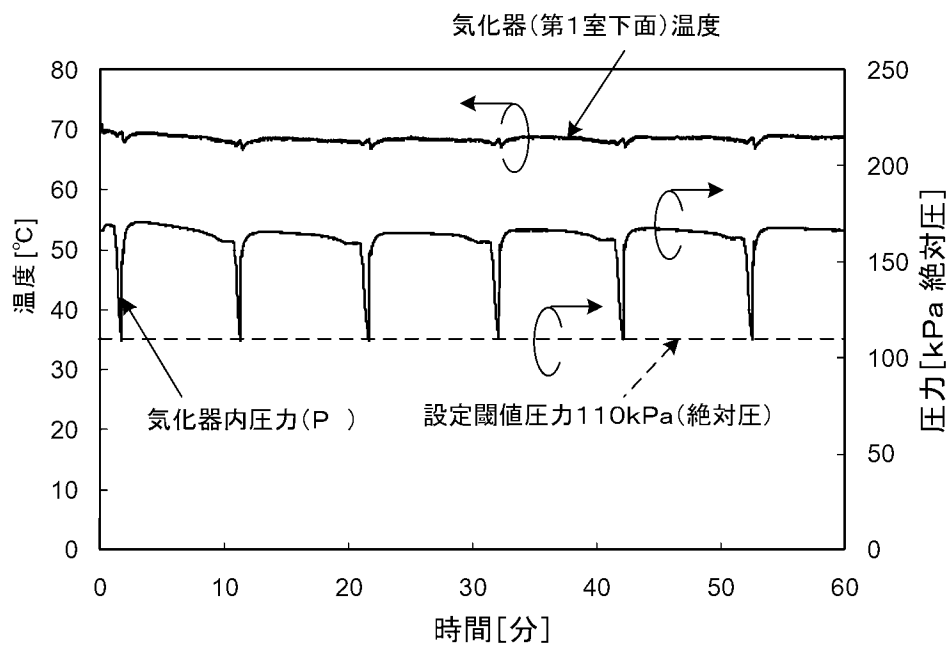
[図7]



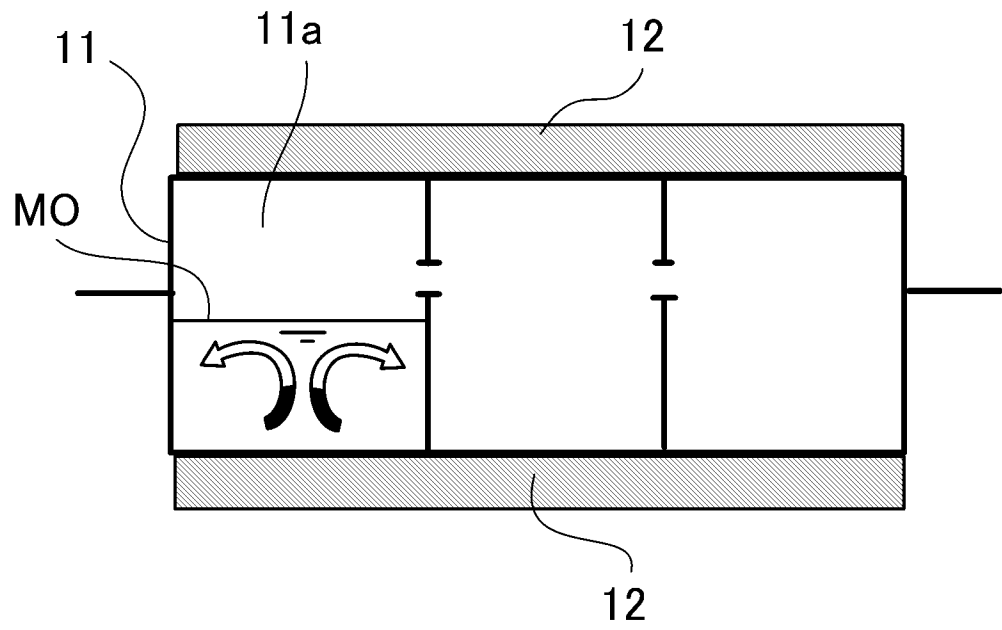
[図8]



[図9]



[図10]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/004702

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01L21/205(2006.01) i, C23C16/448(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)

H01L21/205, C23C16/448

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	1996-2012
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2012	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2012

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	JP 63-303825 A (Nippon Tylan Kabushiki Kaisha), 12 December 1988 (12.12.1988), entire text; fig. 1 (Family: none)	1-6
A	JP 2010-180429 A (Fujikin Inc.), 19 August 2010 (19.08.2010), entire text; all drawings (Family: none)	1-6
A	JP 02-129370 A (Toshiba Corp.), 17 May 1990 (17.05.1990), entire text; all drawings (Family: none)	1-6

☒ 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
15 August, 2012 (15.08.12)

Date of mailing of the international search report
28 August, 2012 (28.08.12)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/004702

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2003-273026 A (Estic Corp.), 26 September 2003 (26.09.2003), entire text; all drawings & US 2003/0217697 A1	1-6

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/004702

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:

Document 1) JP 63-303825 A (Nippon Tylan Kabushiki Kaisha), 12 December 1988 (12.12.1988), entire text; fig. 1 (Family: none)

The search revealed that the matter common to the inventions of claims 1-6 is not novel, since the invention of claim 1 is disclosed in the document 1.

As a result, said common matter is not a special technical feature within the meaning of PCT Rule 13.2, second sentence, since the matter does not make a contribution over the prior art.

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. H01L21/205 (2006.01) i, C23C16/448 (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. H01L21/205, C23C16/448

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 2 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 2 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 2 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	JP 63-303825 A（日本タイラン株式会社）1988. 12. 12, 全文、第1図（ファミリーなし）	1-6
A	JP 2010-180429 A（株式会社フジキン）2010. 08. 19, 全文、全図（ファミリーなし）	1-6
A	JP 02-129370 A（株式会社東芝）1990. 05. 17, 全文、全図（ファミリーなし）	1-6

☒ 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 5 . 0 8 . 2 0 1 2

国際調査報告の発送日

2 8 . 0 8 . 2 0 1 2

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）

大塚 徹

4 R

3 9 4 9

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 7 1

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
A	JP 2003-273026 A (株式会社エステック) 2003. 09. 26, 全文、全図 & US 2003/0217697 A1	1-6

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の国際調査機関は認めた。

文献1) JP 63-303825 A（日本タイラン株式会社）1988.12.12，全文、第1図（ファミリーなし）

調査の結果、請求項1に係る発明は、文献1に開示されているから、請求項1－6に係る発明における共通事項は新規でないことが明らかになった。

結果として、前記共通事項は先行技術の域を出ないから、P C T 規則13.2の第2文の意味において、前記共通事項は特別な技術的特徴ではない。

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ため、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ため、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。