

(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 17 日(17.10.2013)



(10) 国際公開番号

WO 2013/154014 A1

- (51) 国際特許分類:
B01F 15/02 (2006.01) F17C 7/00 (2006.01)
B01F 3/02 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2013/060284
- (22) 国際出願日: 2013 年 4 月 4 日(04.04.2013)
- (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 2012-091508 2012 年 4 月 13 日(13.04.2012) JP
- (71) 出願人: 岩谷産業株式会社(IWATANI CORPORATION) [JP/JP]; 〒5410053 大阪府大阪市中央区本町 3 丁目 6 番 4 号 Osaka (JP). セントラル硝子株式会社 (CENTRAL GLASS COMPANY, LIMITED) [JP/JP]; 〒7550001 山口県宇部市大字沖宇部 5 2 5 3 番地 Yamaguchi (JP).
- (72) 発明者: 小池 国彦(KOIKE Kunihiro); 〒5240041 滋賀県守山市勝部 4 丁目 5 番 1 号 岩谷産業株式会社内 Shiga (JP). 吉野 裕(YOSHINO Yu); 〒5240041 滋賀県守山市勝部 4 丁目 5 番 1 号 岩谷産業株式会社内 Shiga (JP). 牧平 尚久(MAKI-

HIRA Naohisa); 〒1058458 東京都港区西新橋 3 丁目 2 1 番 8 号 岩谷産業株式会社内 Tokyo (JP). 妹尾 武彦(SENNO Takehiko); 〒5410053 大阪府大阪市中央区本町 3 丁目 6 番 4 号 岩谷産業株式会社 Osaka (JP). 相田 敏広(AIDA Toshihiro); 〒1058458 東京都港区西新橋 3 丁目 2 1 番 8 号 岩谷産業株式会社内 Tokyo (JP). 枇榔 智也(BIRO Tomoya); 〒1058458 東京都港区西新橋 3 丁目 2 1 番 8 号 岩谷産業株式会社内 Tokyo (JP). 市丸 広志(Ichimarū Hiroshi); 〒7550001 山口県宇部市大字沖宇部 5 2 7 2 番地 4 セントラルエンジニアリング株式会社内 Yamaguchi (JP). 田井 中正弘(Tainaka Masahiro); 〒7550001 山口県宇部市大字沖宇部 5 2 7 2 番地 4 セントラルエンジニアリング株式会社内 Yamaguchi (JP).

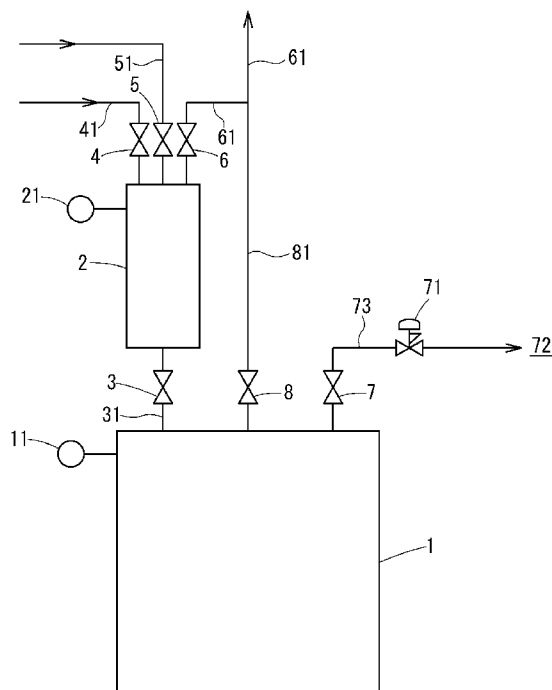
(74) 代理人: 杉本 勝徳(SUGIMOTO Katsunori); 〒5430051 大阪府大阪市天王寺区四天王寺 1 丁目 1 3 番 9 号 Osaka (JP).

(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: SUPPLY METHOD AND SUPPLY DEVICE FOR MIXED GAS

(54) 発明の名称: 混合気体の供給方法及び供給装置



(57) Abstract: The present invention pertains to a supply method and a supply device for a high-pressure mixed gas that is obtained by mixing a low-vapor-pressure first gas serving as an active gas with a high-vapor-pressure second gas, and is configured so as to reduce disposal of the first gas. The supply device is used to supply mixed gas in the high-pressure state to a point of use (72) thereof from the inside of a mixing container (1) and is configured such that a replenishment container (2) is connected by a replenishment pipeline (31) that has a replenishment valve (3) to the mixing container (1) when the pressure inside the mixing container (1) has dropped to a predetermined value due to the supplying of the mixed gas to the point of use (72), a predetermined amount of the first gas is loaded into the replenishment container (2) that has been brought to a vacuum state, and the mixing container (1) is replenished with the mixed gas in the high-pressure state by pushing the first gas in the replenishment container (2) out with the second gas by simultaneously opening the replenishment valve (3) with the loading of the second gas into the replenishment container (2), which has been filled with the first gas. This replenishes the high-pressure mixing container (1) with the low-vapor-pressure first gas while reducing the amount of first gas which is disposed of.

(57) 要約:

[続葉有]



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, 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.

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))

活性気体としての低蒸気圧の第一気体と高蒸気圧の第二気体とを混合した高圧混合気体の供給方法及び供給装置に係り、前記第一気体の廃棄の低減を図るようにした。混合容器 1 内から、高圧状態の混合気体を使用ポイント 7 2 に供給するとともに、前記使用ポイント 7 2 への供給により前記混合容器 1 内の圧力が設定値に低下した際に、補充容器 2 を補充用弁 3 を介設した補充用管路 3 1 により前記混合容器 1 に接続し、真空状態とした前記補充容器 2 内に所定量の第一気体を充填し、前記第一気体を充填した前記補充容器 2 内に前記第二気体を充填しながら同時に前記補充用弁 3 を開いて、前記補充容器 2 内の前記第一気体を前記第二気体で押し出すことにより、前記混合容器 1 内に前記混合気体を高圧状態で補充するようにして、前記第一気体の廃棄量を低減しながら、低蒸気圧の第一気体を高圧の前記混合容器 1 内に補充するようにしたのである。

明 細 書

発明の名称：混合気体の供給方法及び供給装置

技術分野

[0001] 本発明は、半導体製造、液晶製造、MEMS製造、太陽電池製造等において、成膜やエッチング等の表面加工工程及びクリーニング工程に使用される、低蒸気圧の気体と高蒸気圧の気体とを混合した高圧状態の混合気体の供給方法及び供給装置に関する技術である。

背景技術

[0002] 従来、半導体、液晶、MEMS、太陽電池等の製造過程では、成膜工程及び珪素、タングステン、アルミニウム等を除去するためのエッチング工程、クリーニング工程に、活性気体としてのフッ化水素（HF）、三フッ化塩素（ ClF_3 ）、三塩化ホウ素（ BCl_3 ）等の低蒸気圧の気体と、希釈気体としてのアルゴン（Ar）、ヘリウム（He）、窒素（ N_2 ）等の高蒸気圧の気体とを混合した混合気体が用いられ、製造装置内を真空ポンプで排気し減圧状態にした後に前記混合気体を導入してプラズマエッチングを行うものが知られている（例えば、特許文献1参照）。

また、従来、低蒸気圧の気体と高蒸気圧の気体を混合するために昇圧ポンプ、圧縮機等を使用するものが知られている（例えば、特許文献2参照）。

[0003] さらに、従来、活性気体としての低蒸気圧の気体と、希釈気体としての高蒸気圧の気体とを混合した高圧状態の混合気体を混合容器に充填し、この混合容器から混合気体を高圧状態で使用ポイントに供給し、使用ポイントにおいて高圧状態の混合気体を断熱膨張させながら噴出させて反応性クラスタを生成し、半導体等の表面を加工するものが知られている（例えば、特許文献3）。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特許第3989286号公報

特許文献2：特表2008-543563号公報

特許文献3：WO2010/021265号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 特許文献1に記載の従来の技術は、混合気体が減圧状態であり、使用ポイントにおいて高圧状態の混合気体を供給することができないという課題がある。

また、特許文献2に記載の従来の技術は、昇圧ポンプ、圧縮機等の運転による混合気体への不純物の混入や、外部への混合気体の洩れが生じ易いという課題がある。

[0006] さらに、特許文献3に記載の従来の技術は、混合容器内の混合気体を使用ポイントに供給することにより、混合容器内の圧力が使用ポイントで要求される圧力まで低下した際に、混合容器内に混合気体のうちの低蒸気圧の活性気体を補充するためには、混合容器内の残っている混合気体を真空ポンプにより廃棄した後に、低蒸気圧の活性気体を充填し、次に高蒸気圧の希釈気体を充填して混合容器内の混合気体の圧力を高圧状態に戻さなければならず、残留する混合気体を廃棄することが必要であり、混合気体の廃棄の無駄が生ずるという課題がある。

また、真空ポンプによる廃棄に時間がかかり、その間、混合気体の使用ポイントへの供給を中断しなければならないという課題もある。

[0007] 本発明は、特許文献1に記載の従来例における使用ポイントで要求される高圧状態の混合気体を供給できないという課題、特許文献2に記載の従来例における昇圧ポンプ、圧縮機等での混合気体への不純物の混入や洩れが生じ易いという課題、及び特許文献3に記載の従来例における混合気体の廃棄の無駄や混合気体の使用ポイントへの供給の中断という課題を一挙に解決しようとするものであり、活性気体としての低蒸気圧の第一気体を充填した補充容器内に希釈気体としての高蒸気圧の第二気体を充填しながら同時に補充弁を開いて、前記補充容器内の前記第一気体を前記第二気体で押し出すこと

により、混合容器内に混合気体を高圧状態で補充する混合気体の供給方法及び供給装置とすることを目的としている。

課題を解決するための手段

[0008] 請求項 1 に係る本発明の混合気体の供給方法は、低蒸気圧の第一気体と高蒸気圧の第二気体とを混合した混合気体を高圧状態で充填した混合容器内から、前記高圧状態の混合気体を使用ポイントに供給するとともに、前記使用ポイントへの供給により前記混合容器内の圧力が設定値に低下した際に、前記混合容器内に前記混合気体を高圧状態で補充するようにした混合気体の供給方法において、

補充容器を補充用弁を介設した補充用管路により前記混合容器に接続し、真空状態とした前記補充容器内に所定量の前記第一気体を充填し、前記第一気体を充填した前記補充容器内に前記第二気体を充填しながら同時に前記補充用弁を開いて、前記補充容器内の前記第一気体を前記第二気体で押し出すことにより、前記混合容器内に前記混合気体を高圧状態で補充するようにしたものである。

[0009] 請求項 2 に係る本発明の混合気体の供給方法は、請求項 1 に係る本発明の構成に加え、前記補充容器の内容積が前記混合容器の内容積の 100 分の 1 以上 5 分の 1 以下であるものである。

[0010] 請求項 3 に係る本発明の混合気体の供給方法は、請求項 1 又は 2 に係る本発明の構成に加え、下記の (1) 式で定義される前記補充容器の内部断面の円相当径が、前記補充容器の内部高さの 100 分の 1 以上 2 分の 1 以下であるものである。

$$S = \pi D^2 / 4 \quad \cdots (1)$$

D : 円相当径 (mm)

S : 補充容器の内部断面積 (mm²)

π : 円周率

[0011] 請求項 4 に係る本発明の混合気体の供給方法は、請求項 1 ~ 3 のいずれかに係る本発明の構成に加え、複数の補充容器を補充用弁を介設した補充用管

路により並列に前記混合容器に接続し、真空状態とした前記補充容器内に所定量の前記第一気体を充填し、前記混合容器から前記高圧状態の混合気体を使用ポイントに供給中に、前記第一気体を充填した一つの前記補充容器内に前記第二気体を充填しながら同時に前記補充用弁を開いて、一つの前記補充容器内の前記第一気体を前記第二気体で押し出すことにより、前記混合容器内に前記混合気体を高圧状態で補充するとともに、連続して前記第一気体を充填した他の前記補充容器内に前記第二気体を充填しながら同時に前記補充用弁を開いて、他の前記補充容器内の前記第一気体を前記第二気体で押し出すことにより、前記混合容器内に前記混合気体を高圧状態で繰返し補充可能としたものである。

[0012] 請求項 5 に係る本発明の混合気体の供給方法は、請求項 1 ～ 4 のいずれかに係る本発明の構成に加え、前記低蒸気圧の第一気体は、沸点が 0℃ 以上 100℃ 以下としたものである。

[0013] 請求項 6 に係る本発明の混合気体の供給方法は、請求項 1 ～ 5 のいずれかに係る本発明の構成に加え、前記高蒸気圧の第二気体は、沸点が -30℃ 以下としたものである。

[0014] 請求項 7 に係る本発明の混合気体の供給方法は、請求項 1 ～ 6 のいずれかに係る本発明の構成に加え、前記混合気体を使用ポイントに供給する圧力が、絶対圧で 0.5 MPa 以上 15 MPa 以下であるものである。

[0015] 請求項 8 に係る本発明の混合気体の供給装置は、沸点が 0℃ 以上 100℃ 以下の低蒸気圧の第一気体と沸点が -30℃ 以下の高蒸気圧の第二気体とを混合した混合気体を高圧状態で充填するとともに絶対圧で 0.5 MPa 以上 15 MPa 以下で使用ポイントに供給するようにした混合容器と、前記混合気体の前記使用ポイントへの供給により前記混合容器内の圧力が設定値に低下した際に、前記混合容器内に前記混合気体を高圧状態で補充する手段とを備えた混合気体の供給装置において、

内容積が前記混合容器の内容積の 100 分の 1 以上 5 分の 1 以下の補充容器を形成し、

下記の（１）式で定義される前記補充容器の内部断面の円相当径が、前記補充容器の内部高さの１００分の１以上２分の１以下であり、

$$S = \pi D^2 / 4 \quad \cdots (1)$$

D：円相当径（mm）

S：補充容器の内部断面積（mm²）

π：円周率

前記補充容器と前記混合容器とを補充用弁を介設した補充用管路により接続し、前記第一気体を収納した第一容器を第一気体用弁を介設した第一気体用管路により前記補充容器に接続し、前記第二気体を収納した第二容器を第二気体用弁を介設した第二気体用管路により前記補充容器に接続し、真空ポンプを排気用弁を介設した排気管路により前記補充容器に接続し、

真空状態とした前記補充容器内に前記補充用弁を開いて所定量の前記第一気体を充填し、

前記混合容器内の圧力を検出する検出手段を形成して、前記高圧状態の混合気体の前記使用ポイントへの供給により前記検出手段で検出した圧力が設定値に低下した際に、前記第一気体を充填した前記補充容器内に前記第二気体用弁を開いて前記第二気体を充填しながら同時に前記補充用弁を開いて、前記補充容器内の前記第一気体を前記第二気体で押し出すことにより、前記混合容器内に前記混合気体を高圧状態で補充するようにしたものである。

発明の効果

[0016] 請求項１に係る本発明の混合気体の供給方法は、真空状態とした補充容器内に所定量の低蒸気圧の第一気体を充填し、前記第一気体を充填した前記補充容器内に高蒸気圧の第二気体を充填しながら同時に補充用弁を開いて、前記補充容器内の前記第一気体を前記第二気体で押し出すことにより、混合容器内に前記混合気体を高圧状態で補充するようにしたから、不純物の混入を防止し、混合容器内の混合気体の廃棄を最小限にし、しかも、混合気体の使用ポイントへの供給を中断することなく連続的に行うこともできるのである。

[0017] 請求項 2 に係る本発明の混合気体の供給方法は、請求項 1 に係る本発明の効果に加え、前記補充容器の内容積が前記混合容器の内容積の 100 分の 1 以上 5 分の 1 以下であるから、混合気体の補充頻度を抑えつつ、補充容器の設置スペースを小さくすることができるのである。

すなわち、その内容量が 100 分の 1 未満であれば、1 回当たりに補充できる容量が少なく、頻繁に補充を繰り返さなければならず、混合気体の供給に対し時間的な制限が掛かるのである。5 分の 1 を超えれば、補充容器の設置スペースが大きくなり装置製作上好ましくなく、さらに第一気体の廃棄量も多くなるのである。

[0018] 請求項 3 に係る本発明の混合気体の供給方法は、請求項 1 又は 2 に係る本発明の効果に加え、前記補充容器の内部断面の円相当径が、前記補充容器の内部高さの 100 分の 1 以上 2 分の 1 以下であるから、補充容器内での第一気体と第二気体との混合を起こりにくくし、補充容器から混合気体を混合容器に補充後に廃棄する補充容器内の混合気体中における前記第一気体の濃度を低下させることができ、第二気体に比べて高価な第一気体の廃棄量を低減することができるのである。

[0019] 請求項 4 に係る本発明の混合気体の供給方法は、請求項 1～3 のいずれかに係る本発明の効果に加え、複数の補充容器を形成して、一つの補充容器内の前記第一気体を前記第二気体で押し出すことにより、混合容器内に混合気体を高圧状態で補充するとともに、連続して他の補充容器内の前記第一気体を前記第二気体で押し出すことにより、前記混合容器内に前記混合気体を高圧状態で繰返し補充可能としたから、使用ポイントにおける混合気体の使用量が多量の場合でも、混合気体の使用ポイントへの供給を中断することなく連続的に行うこともできるのである。

[0020] 請求項 5 に係る本発明の混合気体の供給方法は、請求項 1～4 のいずれかに係る本発明の効果に加え、前記低蒸気圧の第一気体は、沸点が 0℃以上であるから、液化することなく気体で補充容器に充填でき、また、沸点が 100℃以下であるから、蒸気圧が得られて補充容器に充填することができるの

である。

[0021] 請求項 6 に係る本発明の混合気体の供給方法は、請求項 1 ～ 5 のいずれかに係る本発明の効果に加え、前記高蒸気圧の第二気体は、沸点が -30°C 以下であるから、使用ポイントにおける混合気体の必要な高圧状態を得ることができるのである。

[0022] 請求項 7 に係る本発明の混合気体の供給方法は、請求項 1 ～ 6 のいずれかに係る本発明の効果に加え、前記混合気体を使用ポイントに供給する圧力が、絶対圧で 0.5 MPa 以上 15 MPa 以下であるから、使用ポイントにおいて高い圧力の混合気体を供給することができるのである。

[0023] 請求項 8 に係る本発明の混合気体の供給装置は、沸点が 0°C 以上 100°C 以下の低蒸気圧の第一気体と沸点が -30°C 以下の高蒸気圧の第二気体とを混合した混合気体を高圧状態で充填するとともに絶対圧で 0.5 MPa 以上 15 MPa 以下で使用ポイントに供給するようにした混合容器と、前記混合気体の前記使用ポイントへの供給により前記混合容器内の圧力が設定値に低下した際に、前記混合容器内に前記混合気体を高圧状態で補充する手段とを備えた混合気体の供給装置において、

内容積が前記混合容器の内容積の 100 分の 1 以上 5 分の 1 以下であって、内部断面の円相当径が内部高さの 100 分の 1 以上 2 分の 1 以下の補充容器を形成し、

前記補充容器の内部断面の円相当径が、前記補充容器の内部高さの 100 分の 1 以上 2 分の 1 以下であり、

前記補充容器と前記混合容器とを補充用弁を介設した補充用管路により接続し、前記第一気体を収納した第一容器を第一気体用弁を介設した第一気体用管路により前記補充容器に接続し、前記第二気体を収納した第二容器を第二気体用弁を介設した第二気体用管路により前記補充容器に接続し、真空ポンプを排気用弁を介設した排気管路により前記補充容器に接続し、

真空状態とした前記補充容器内に前記補充用弁を開いて所定量の前記第一気体を充填し、

前記混合容器内の圧力を検出する検出手段を形成して、前記高圧状態の混合気体の前記使用ポイントへの供給により前記検出手段で検出した圧力が設定値に低下した際に、前記第一気体を充填した前記補充容器内に前記第二気体用弁を開いて前記第二気体を充填しながら同時に前記補充用弁を開いて、前記補充容器内の前記第一気体を前記第二気体で押し出すことにより、前記混合容器内に前記混合気体を高圧状態で補充するようにしたから、請求項 1 ～ 3 及び 5 ～ 7 に係る本発明の混合気体の供給方法による前記効果を備えた装置とすることができるのである。

図面の簡単な説明

[0024] [図1]本発明の第一の実施の形態に係る混合気体の供給方法及び供給装置の概略を示す概略説明図である。

[図2]本発明の第二の実施の形態に係る混合気体の供給方法及び供給装置の概略を示す概略説明図である。

[図3]比較案に係る混合気体の供給方法及び供給装置の概略を示す概略説明図である。

発明を実施するための形態

[0025] 以下、本発明の実施の形態に係る混合気体の供給方法及び供給装置を図 1 及び図 2 に基づいて、図 3 を参照しながら説明する。

第一の実施の形態を示す図 1 において、1 は、混合容器であり、混合容器 1 内に低蒸気圧の第一気体と高蒸気圧の第二気体とを混合した混合気体を高圧状態で充填している。

[0026] 2 は補充容器であり、補充用弁 3 を介設した補充用管路 3 1 により前記補充容器 2 の下部を前記混合容器 1 の上部に接続している。

前記第一気体を収納した第一容器（図示せず）を圧力調整弁（図示せず）及び第一気体用弁 4 を介設した第一気体用管路 4 1 により前記補充容器 2 の上部に接続し、前記第二気体を収納した第二容器（図示せず）を圧力調整弁（図示せず）及び第二気体用弁 5 を介設した第二気体用管路 5 1 により前記補充容器 2 の上部に接続し、真空ポンプ（図示せず）により前記補充容器 2

を真空状態にする第一排気用弁 6 を介設した排気管路 6 1 を前記補充容器 2 の上部に接続している。

- [0027] また、前記混合容器 1 の上部には供給用弁 7 及び圧力調整弁 7 1 を介設した混合気体を使用ポイント 7 2 に供給する供給管路 7 3 と、前記混合容器 1 内の混合気体を前記真空ポンプにより排気する第二排気用弁 8 を介設した排気管路 8 1 とを接続しており、前記排気管路 8 1 の下流側を前記補充容器 2 からの前記排気管路 6 1 と合流させている。

前記供給管路 7 3 にはフーリエ変換式赤外線吸光分析計（図示せず）が接続されており、前記混合容器 1 から供給される前記混合気体における前記第一気体の濃度を測定することができるようにしている。

- [0028] 前記排気管路 6 1 には吸着剤を収納した吸着装置（図示せず）が設けられており、前記補充容器 2 から廃棄される前記混合気体から前記第一気体を捕集してその質量をロードセルにより積算して計測するようにしている。

前記混合容器 1 に前記排気管路 8 1 を接続しているが、前記混合容器 1 内の混合気体の排気を行うのは、混合気体供給装置の稼動直後に行う最初の真空引きの際、あるいは長期間稼働させた後に行なう点検整備の際などであり、通常の稼働中には、前記補充容器 2 内の混合気体の排気を行うのみであり、前記混合容器 1 内の混合気体の排気は行わないのである。

- [0029] なお、1 1 は前記混合容器 1 内の混合気体の圧力を検出する圧力検出器、2 1 は前記補充容器 2 内の圧力を検出する圧力検出器である。

以上のとおり、この実施の形態に係る混合気体の供給装置は、低蒸気圧の第一気体と高蒸気圧の第二気体とを混合した混合気体を高圧状態で充填するとともに使用ポイント 7 2 に供給するようにした前記混合容器 1 と、前記高圧状態の混合気体の前記使用ポイント 7 2 への供給により前記混合容器 1 内の圧力が設定値に低下した際に、前記混合容器 1 内に前記混合気体を高圧状態で補充する手段とを備えた混合気体の供給装置であって、内容積が前記混合容器 1 の内容積よりも小さい補充容器 2 を形成し、前記補充容器 2 と前記混合容器 1 とを補充用弁 3 を介設した補充用管路 3 1 により接続し、前記第

一気体を収納した第一容器を第一気体用弁 4 を介設した第一気体用管路 4 1 により前記補充容器 2 に接続し、前記第二気体を収納した第二容器を第二気体用弁 5 を介設した第二気体用管路 5 1 により前記補充容器 2 に接続し、真空ポンプを第一排気弁 6 を介設した排気管路 6 1 により前記補充容器 2 に接続し、真空状態とした前記補充容器 2 内に前記第一気体用弁 4 を開いて所定量の前記第一気体を充填し、前記混合容器 1 内の圧力を検出する圧力検出器 1 1 を形成して、前記高圧状態の混合気体の前記使用ポイント 7 2 への供給により前記圧力検出器 1 1 で検出した圧力が設定値に低下した際に、前記第一気体を充填した前記補充容器 2 内に前記第二気体用弁 5 を開いて前記第二気体を充填しながら同時に前記補充用弁 3 を開いて、前記補充容器 2 内の前記第一気体を前記第二気体で押し出すことにより、前記混合容器 1 内に前記混合気体を高圧状態で補充するようにしたものである。

[0030] そして、使用ポイント 7 2 への混合気体の供給方法は、前記低蒸気圧の第一気体と前記高蒸気圧の第二気体とを混合した混合気体を高圧状態で充填した前記混合容器 1 内から、前記高圧状態の混合気体を前記使用ポイント 7 2 に供給するとともに、前記使用ポイント 7 2 への供給により前記混合容器 1 内の圧力が設定値に低下した際に、前記混合容器 1 内に前記補充容器 2 により前記混合気体を高圧状態で補充するのである。

前記混合容器 1 内に前記補充容器 2 により前記混合気体を高圧状態で補充する具体的方法は、まず前記補充容器 2 内を前記排気管路 6 1 で接続された真空ポンプにより真空状態とし、前記第一気体用弁 4 を開いて前記第一気体用管路 4 1 から前記第一気体を充填し、前記補充容器 2 内の圧力検出器 2 1 が所定の値に達した後に前記第一気体用弁 4 を閉じるのである。

[0031] 次に、前記第二気体用弁 5 を開き前記第一気体を充填した補充容器 2 内に前記第二気体用管路 5 1 から前記第二気体を圧力調整弁により所定の圧力で充填しながら、同時に前記補充用弁 3 を開いて、前記補充容器 2 内の前記第一気体を前記第二気体で押し出すことにより、前記混合容器 1 内に前記混合気体を高圧状態で補充するのである。

なお、前記補充用弁 3 の前記開弁は、前記第二気体用弁 5 の開弁と同じタイミングで行なっても良いし、前記混合容器 1 から前記補充容器 2 への混合気体の逆流を防ぐため、前記第二気体用弁 5 の開弁より少しタイミングを遅らせて前記補充容器 2 の昇圧を行なうようにしても良いのである。

[0032] 次に、前記補充容器 2 について各種の形状仕様及び充填仕様により、前記低蒸気圧の第一気体の使用ポイント 7 2 への供給量、前記補充容器 2 からの廃棄量などを、本出願人らのこれまでの経験により算出した算出値として以下に示す。

まず、活性気体としての前記低蒸気圧の第一気体は、フッ化水素 (HF)、三フッ化塩素 (ClF_3)、三塩化ホウ素 (BCl_3) 等のハロゲン気体又はハロゲン化物気体であり、沸点が 0°C 以上 100°C 以下のものとするのである。

[0033] 前記第一気体は沸点が 0°C 以上であれば液化せずに前記補充容器 2 に充填でき、 100°C 以下であれば前記補充容器 2 への充填に必要な蒸気圧が得られるからである。

希釈気体としての前記高蒸気圧の第二気体は、アルゴン (Ar)、ヘリウム (He)、窒素 (N_2) 等の不活性気体及び酸素 (O_2)、アンモニア (NH_3)、塩素 (Cl_2) 等であり、沸点が -30°C 以下のものとするのである。

[0034] 前記第二気体は沸点が -30°C 以下であれば前記使用ポイント 7 2 における前記混合気体の必要な高圧状態を得ることができるからである。

そして、本発明の以下の実施案 1 ～実施案 8 及び以下の比較例においては、前記第一気体としてフッ化水素 (HF) 及び前記第二気体としてアルゴン (Ar) を用い、前記混合気体のフッ化水素の濃度を 10% とし、前記混合容器 1 内の前記混合気体の充填後の圧力を 1050 kPa (絶対圧、以下圧力は絶対圧表示とする) とし、前記使用ポイント 7 2 での前記混合気体の要求される圧力から、前記混合容器 1 内の圧力を 900 kPa 以上に保持することを条件としている。

[0035] 前記補充容器 2 の形状仕様及び充填仕様の作用及び機能の確認のために、前記使用ポイント 7 2 への供給により前記混合容器 1 内の圧力が設定値である 900 kPa、1035 kPa、950 kPa 又は 1000 kPa に低下した際に、前記混合容器 1 内に前記混合気体を補充するように条件を設定している。

ただし、比較例においては前記混合容器 1 内の圧力を 900 kPa 以上に保持すれば良いから前記設定値を 900 kPa として実施案 1～実施案 8 と比較検討した。

[0036] 前記混合容器 1 及び前記補充容器 2 に接続された前記圧力検出器 1 1、2 1 は、いずれも 0 kPa 以上 1100 kPa 以下の圧力を計測できるようにしている。

実施案 1～実施案 8 及び比較例における前記混合容器 1 は、材質をステンレススチールとしており、その内容積を 38 L としている。

[0037] また、実施案 1～実施案 8 における前記補充容器 2 は、前記混合容器 1 と同様に、材質をステンレススチールとしており、その形状が円筒状である。

実施案 1～実施案 8 における前記補充容器 2 の形状仕様、前記補充容器 2 の充填仕様及び前記混合容器 2 の圧力は、表 1 に示すとおりである。

[0038]

[表1]

	補充容器形状仕様			補充容器充填仕様		混合容器圧力		HF使用 体積 1気圧換 算[L]	HF使用 量[g]	HF廃棄 量[g]	HF 使用率 [%]	HF 廃棄率 [%]	比較例と のHF使 用率比[%]	比較例と のHF廃 棄率比[%]	比較例と のHF廃棄 量比 [%]
	径 [mm]	高さ [mm]	容積 [L]	HF充填圧 [kPa]	HF充填 量[g]	充填前 [kPa]	使用圧力 差[kPa]								
実施案1	108.3	434	4.0	157	5.53	900	150	5.63	5.02	0.508	90.8	9.2	636	10.7	1.7
実施案2	50	200	0.39	157	0.54	1035	15	0.56	0.502	0.041	92.5	7.5	647	8.8	—
実施案3	137	548	8.1	93	6.62	900	150	5.63	5.02	1.60	75.9	24.1	531	28.1	5.3
実施案4	136	275	4.0	172	6.06	900	150	5.63	5.02	1.03	83.0	17.0	581	19.9	3.4
実施案5	37.1	3700	4.0	150	5.29	900	150	5.63	5.02	0.264	95.0	5.0	665	5.8	0.88
実施案6	108.3	434	4.0	105	3.70	950	100	3.75	3.35	0.351	90.5	9.5	634	11.1	—
実施案7	108.3	434	4.0	52	1.83	1000	50	1.88	1.67	0.158	91.4	8.6	640	10.0	—
実施案8	37.1	3700	4.0	150	5.29	900	150	5.63	5.02	0.264	95.0	5.0	665	5.8	0.88
比較例	—	—	[38]	[105]	[35.2]	900 (排気前)	150	5.63	5.02	30.14	14.3	85.7	—	—	—

[0039] すなわち、実施案 1 における前記補充容器 2 の内容積は前記混合容器 1 の内容積の 9.5 分の 1 である 4 L であり、円筒状である前記補充容器 2 の内部の高さが 434 mm、その内部断面の径が高さの 4 分の 1 弱である 108.3 mm である。

この実施案 1 における前記補充容器 2 に充填される HF の充填圧が 157 kPa であり、その充填量が 5.53 g であり、前記混合容器 1 の前記補充容器 2 からの充填前の混合気体の圧力が 900 kPa であるから、前記混合容器 1 から前記使用ポイント 72 への混合気体の供給による使用圧力差は 150 kPa である。

[0040] 実施案 2 における前記補充容器 2 の内容積は前記混合容器 1 の内容積の約 100 分の 1 である 0.39 L であり、円筒状である前記補充容器 2 の内部の高さが 200 mm、その内部断面の径が高さの 4 分の 1 である 50 mm であり、この実施案 2 では前記補充容器 2 の内容積が小さいため、前記混合容器 1 の圧力が 900 kPa に低下する前の 1035 kPa において前記補充容器 2 からの補充を行うようにした場合であり、前記混合容器 1 から混合気体を使用ポイント 72 へ供給中に、すなわち前記混合容器 1 からの混合気体の使用ポイント 72 への供給を中断させることなく連続的に補充による昇圧をおこなうのである。

この実施案 2 における前記補充容器 2 に充填される HF の充填圧が 157 kPa であり、その充填量が 0.54 g であり、前記混合容器 1 の前記補充容器 2 からの充填前の混合気体の圧力が 1035 kPa であるから、前記混合容器 1 から前記使用ポイント 72 への混合気体の供給による使用圧力差は 15 kPa である。

[0041] 実施案 3 における前記補充容器 2 の内容積は前記混合容器 1 の内容積の約 5 分の 1 である 8.1 L であり、円筒状である前記補充容器 2 の内部の高さが 548 mm、その内部断面の径が高さの 4 分の 1 である 137 mm である。

この実施案 3 における前記補充容器 2 に充填される HF の充填圧が 93 k

Paであり、その充填量が6.62gであり、前記混合容器1の前記補充容器2からの充填前の混合気体の圧力が実施案1と同様に900kPaであるから、前記混合容器1から前記使用ポイント72への混合気体の供給による使用圧力差は150kPaである。

[0042] 実施案4における前記補充容器2の内容積は、実施案1と同様に前記混合容器1の内容積の9.5分の1である4Lであり、円筒状である前記補充容器2の内部の高さが275mm、その内部断面の径が高さの約2分の1である136mmである。

この実施案4における前記補充容器2に充填されるHFの充填圧が172kPaであり、その充填量が6.06gであり、前記混合容器1の前記補充容器2からの充填前の混合気体の圧力が実施案1と同様に900kPaであるから、前記混合容器1から前記使用ポイント72への混合気体の供給による使用圧力差は150kPaである。

[0043] 実施案5における前記補充容器2の内容積は、実施案1と同様に前記混合容器1の内容積の9.5分の1である4Lであり、円筒状である前記補充容器2の内部の高さが3700mm、その内部断面の径が高さの約100分の1である37.1mmである。

この実施案5における前記補充容器2に充填されるHFの充填圧が150kPaであり、その充填量が5.29gであり、前記混合容器1の前記補充容器2からの充填前の混合気体の圧力が実施案1と同様に900kPaであるから、前記混合容器1から前記使用ポイント72への混合気体の供給による使用圧力差は150kPaである。

[0044] 実施案6における前記補充容器2の形状仕様（内容積、内部高さ及び内部断面の径）は、実施案1と同様であるが、前記混合容器1から混合気体を使用ポイント72へ供給中に、すなわち前記混合容器1の圧力が900kPaに低下する前の950kPaにおいて前記補充容器2からの補充を行うようにした場合であり、前記混合容器1からの混合気体の使用ポイント72への供給を中断させることなく連続的に補充による昇圧をおこなうのである。

この実施案 6 における前記補充容器 2 に充填される H F の充填圧が 1 0 5 k P a であり、その充填量が 3 . 7 0 g であり、前記混合容器 1 の前記補充容器 2 からの充填前の混合気体の圧力が上記のとおり 9 5 0 k P a であるから、前記混合容器 1 から前記使用ポイント 7 2 への混合気体の供給による使用圧力差は 1 0 0 k P a である。

[0045] 実施案 7 における前記補充容器 2 の形状仕様（内容積、内部高さ及び内部断面の径）は、実施案 1 と同様であるが、前記混合容器 1 から混合気体を使用ポイント 7 2 へ供給中に、すなわち前記混合容器 1 の圧力が 9 0 0 k P a に低下する前の 1 0 0 0 k P a において前記補充容器 2 からの補充を行うようにした場合であり、前記混合容器 1 からの混合気体の前記使用ポイント 7 2 への供給を中断させることなく連続的に補充による昇圧をおこなうのである。

この実施案 7 における前記補充容器 2 に充填される H F の充填圧が 5 2 k P a であり、その充填量が 1 . 8 3 g であり、前記混合容器 1 の前記補充容器 2 からの充填前の混合気体の圧力が上記のとおり 1 0 0 0 k P a であるから、前記混合容器 1 から前記使用ポイント 7 2 への混合気体の供給による使用圧力差は 5 0 k P a である。

[0046] 実施案 8 は、本発明の第二の実施の形態に係る図 2 に示すもので、第一の実施の形態に係る図 1 における前記補充容器 2 を、2 基の補充容器 2 a、2 b としたものであり、図 2 に補充容器を 2 基としたことに伴う構成について、図 1 における符号にサフィクス a と b とを付している。

実施案 8 において、2 基の補充容器を形成したのは、補充容器に低蒸気圧の第一気体を充填するには、その前に真空ポンプで真空状態にする必要があり、真空状態にする時間がかかるから、補充容器が 1 基では、使用ポイントにおける混合気体の供給量が多い場合に連続供給に支障がでるおそれがあり、2 基の補充容器とすることにより、一基の補充容器内の前記第一気体を前記第二気体で押し出すことにより、混合容器内に混合気体を高圧状態で補充するとともに、連続して他の一基の補充容器内の前記第一気体を前記第二気

体で押し出すことにより、前記混合容器内に前記混合気体を高圧状態で繰返し補充可能として、使用ポイントにおける混合気体の使用量が多量の場合でも、混合気体の使用ポイントへの供給を中断することなく連続的に行うこともできるのである

[0047] そして、実施案 8 における 2 基の補充容器 2 a、2 b の形状仕様（内容積、内部高さ及び内部断面の径）及び内容積は、実施案 5 の前記補充容器 2 と同様に前記混合容器 1 の内容積の 9.5 分の 1 である 4 L であり、円筒状である補充容器 2 の内部の高さが 3700 mm、その内部断面の径が高さの約 100 分の 1 である 37.1 mm であり、2 基とも同じである。

この実施案 8 における前記補充容器 2 a、2 b に充填される HF の充填圧が 150 kPa であり、その充填量が 5.29 g であり、前記混合容器 1 の前記補充容器 2 からの充填前の混合気体の圧力が実施案 1、5 などと同様に 900 kPa であるから、前記混合容器 1 から前記使用ポイント 72 への混合気体の供給による使用圧力差は 150 kPa であり、2 基とも同じである。

[0048] また、比較例は、図 3 に示すように、本発明の第一及び第二の実施形態の特徴である、前記補充容器 2、2 a、2 b を備えておらず、混合容器 1 に混合気体を充填する際には、まず、混合容器 1 を真空状態にして HF を充填し、次に、Ar で所定圧の混合気体とするのである。

すなわち、比較例は、実施案 1～実施案 8 と同様に、前記第一気体として HF 及び前記第二気体として Ar を用い、前記混合気体の HF の濃度を 10% とし、前記混合容器 1 内の前記混合気体の充填後の圧力を 1050 kPa とし、前記混合容器 1 内の圧力を 900 kPa 以上に保持する場合であって、前記使用ポイント 72 への供給により前記混合容器 1 内の圧力が設定値である 900 kPa に低下した際に、供給を中断し、前記混合容器 1 内の前記混合気体を真空ポンプにより排気して、真空状態とした前記混合容器 1 内に HF を 105 kPa で充填し、次に Ar を充填して混合気体の圧力を 1050 kPa にして、前記混合容器 1 への再充填を行うのである。

[0049] このように、比較例は混合容器 1 内の混合気体の大部分（約 86%）が残っているにもかかわらず、使用ポイント 72 における混合気体の要求圧力が高い場合に、その要求圧力までしか前記混合容器 1 内の混合気体を使用ポイント 72 に供給することができないのである。

さらに、前記混合容器 1 内の混合気体を昇圧するためには HF 及び Ar を再充填しなければならないが、低蒸気圧の HF を充填する前には前記混合容器 1 に残っている混合気体を廃棄せざるを得ないのである。

[0050] 表 1 に示す比較例においては、補充容器を使用していないが、便宜上、補充容器形状仕様の容積の欄に混合容器の容積を括弧を付して記載し、補充容器充填仕様の HF 充填圧及び HF 充填量の欄に混合容器の HF 充填圧及び HF 充填量を括弧を付して記載している。

次に、実施案 1 ～実施案 8 による混合気体の使用ポイント 72 への供給における HF の使用と廃棄とについて、比較例に対する優位性を表 1 に基づいて、説明する。

[0051] 実施案 1 ～実施案 8 は、まず、比較例と同じく混合容器 1 に混合気体を充填する操作を行なうのである。

そして、混合容器 1 内の混合気体を使用ポイント 72 に圧力調整弁 71 により 900 kPa 弱の圧力で供給し、混合容器 1 内の圧力を圧力検出器 11 で検出して検出圧力が設定値である 900 kPa、1035 kPa、950 kPa 又は 1000 kPa に低下した際に、補充容器 2、2a、2b を補充用弁 3、3a、3b を介設した補充用管路 31、31a、31b により前記混合容器 1 に接続し、真空状態とした前記補充容器 1 内に表 1 にそれぞれ記載の所定の圧力に達するまで HF を充填し、HF を充填した前記補充容器 2、2a、2b 内に、圧力調整弁により 1050 kPa よりも若干（10～30 kPa）高い圧力に調整した Ar を充填しながら同時に前記補充用弁 3、3a、3b を開いて、前記補充容器 2、2a、2b 内の HF を Ar で押し出すことにより、前記混合容器 1 内に前記混合気体を高圧状態で補充し、圧力検出器 11 で検出した検出圧力が 1050 kPa に到達すると前記補充用弁 3

、 3 a、 3 b を閉じて混合気体の補充を終了するのである。

[0052] なお、前記補充容器 2、 2 a、 2 b により前記混合容器 1 内に前記混合気体を高圧状態で補充する際には、実施案 1、実施案 3～実施案 5 及び実施案 8 では、前記混合容器 1 内の圧力が 9 0 0 k P a に低下するまで混合気体を使用ポイント 7 2 に供給したため、前記供給用弁 7 を閉じて、補充するようにしたものであり、実施案 2、実施案 6 及び実施案 7 については、前記混合容器 1 内の圧力が 9 0 0 k P a に低下していないから、混合気体の使用ポイント 7 2 への供給を継続しながら、補充するようにしているが、前記供給用弁 7 を閉じて、補充するようにしても良いのである。

補充を終了した前記補充容器 2、 2 a、 2 b は、次の補充に備えて、真空ポンプにより前記補充容器 2、 2 a、 2 b 内に残った気体を廃棄するのであるが、前記補充容器 2、 2 a、 2 b 内には殆どの H F が A r により前記混合容器 1 に押し出され、若干の H F が A r に混合して H F の濃度の低い混合気体が前記補充容器 2、 2 a、 2 b 内に残っており、これを廃棄することになるのである。

[0053] H F を廃棄する程度を本出願人らの豊富な経験に基づいて算出した結果が表 1 に示す数値である。

すなわち、混合容器に補充容器から混合気体を補充する際に、混合容器から使用ポイントへ供給された H F の量が分かっており、補充容器の形状及び容積から、補充容器内の H F を A r で押し出すときに H F が A r に混合する程度を算出して、補充終了時の補充容器内の H F の量と使用ポイントに供給された H F の量との合計を、真空状態にした補充容器内に充填するのである。

[0054] そして、混合気体を使用ポイントに長期間供給すると、混合容器内の混合気体の H F 濃度が設定値から外れてくることが予測されるため、定期的に、混合気体を使用ポイントに供給する供給管路に接続したフーリエ変換式赤外線吸光分析計により H F 濃度を測定して、測定値と設置値との差を補正する方向に、補充容器内に充填する H F の量を増減するのである。

表 1 において、それぞれの数値は下記のとおりである。

$$\text{HF 使用率}[\%] = 100 * \text{HF 使用量}[\text{g}] / (\text{HF 使用量}[\text{g}] + \text{HF 廃棄量}[\text{g}])$$
$$\text{HF 廃棄率}[\%] = 100 * \text{HF 廃棄量}[\text{g}] / (\text{HF 使用量}[\text{g}] + \text{HF 廃棄量}[\text{g}])$$
$$\text{比較例との HF 使用率比}[\%] = 100 * \text{実施案 HF 使用率}[\%] / \text{比較例 HF 使用率}[\%]$$
$$\text{比較例との HF 廃棄率比}[\%] = 100 * \text{実施案 HF 廃棄率}[\%] / \text{比較例 HF 廃棄率}[\%]$$
$$\text{比較例との HF 廃棄量比}[\%] = 100 * \text{実施案 HF 廃棄量}[\text{g}] / \text{比較例 HF 廃棄量}[\text{g}]$$

[0055] 実施案 1 ～実施案 8 は、いずれも HF 使用率、HF 廃棄率において、比較例のそれらに比し、優位性があることが確認できた。

特に、補充容器の容積を同じ 4 L とし、その形状を実施案 1、実施案 4 及び実施案 5 のように変えることもでき、このことは使用ポイントにおける要求に応じ、補充容器により混合気体を混合容器に補充する際に、補充容器内で低蒸気圧の第一気体が高蒸気圧の第二気体に混合する量を最小限とする形状を選定できることを示している。

[0056] また、補充容器の内容積、形状を変えたり、補充容器による混合容器への補充を、混合容器の圧力が使用下限である設定値に低下する前に行ったりしても、HF 使用率、HF 廃棄率において、比較例のそれらに比し、優位性を保持できることが確認できた。

これらの実施案から、補充容器の内容積は混合容器の内容積の 100 分の 1 以上 5 分の 1 以下であっても比較例に対して優位性を保持できることが確認できた。

[0057] すなわち、その内容量が 100 分の 1 未満であれば、1 回当たりに補充できる容量が少なく、頻繁に補充を繰り返さなければならず、混合気体の供給に対し時間的な制限が掛かるのである。5 分の 1 を超えれば、補充容器の設

置スペースが大きくなり装置製作上好ましくなく、さらに第一気体の廃棄量も多くなるのである。

また、補充容器の内部断面の径が内部高さの100分の1以上2分の1以下であっても比較例に対して優位性を保持できることが確認できた。

[0058] 補充容器の形状としては、実施案1、実施案4及び実施案5から分かるように、内径が大きく、高さが小さいとHFとArとの混合が起こり易くなり、HF廃棄量が多くなり、内径が小さく、高さが大きいとHFとArとの混合が起こりにくくなり、HF廃棄量は少なくなるのである。

ただし、補充容器の内径が小さく、高さが大きいと補充容器から混合容器への補充時間が長くなるため、その補充中に使用ポイントに混合気体の供給を継続する場合、混合気体の補充量が混合気体の供給量を上回るように設定するのである。

[0059] また、補充容器の容量を大きくすると、HF廃棄量が増える上に、補充及び真空引きに時間がかかるから、使用ポイントへの混合気体の供給を継続する場合、第二の実施の形態及び実施案8のように補充容器を2基又はそれ以上の複数基にするのである。

以上の第一及び第二の実施の形態では、補充容器として円筒形状としたが、筒状の内部断面が楕円状、多角形状でもよく、その場合、下記の(1)式で定義される前記補充容器の内部断面の円相当径を、前記補充容器の内部高さの100分の1以上2分の1以下とするのである。

$$S = \pi D^2 / 4 \quad \cdots (1)$$

D : 円相当径 (mm)

S : 補充容器の内部断面積 (mm²)

π : 円周率

[0060] 以上の第一及び第二の実施の形態では、前記混合気体を使用ポイントに供給する圧力を絶対圧で900kPaとしたが、0.5MPa程度以上であれば廃棄量低減の効果が大きくなるので、供給圧は絶対圧で0.5MPa以上15MPa以下であれば良いのである。

以上の第一及び第二の実施の形態では、低蒸気圧の第一気体（H F）及び高蒸気圧の第二気体（A r）の補充容器への充填量を補充容器の圧力を検出する圧力検出器 2 1、2 1 a、2 1 b の検出圧力によっており、また、補充容器から混合容器への補充開始及び補充終了のタイミングを混合容器の圧力を検出する圧力検出器 1 1 の検出圧力によっていたが、圧力計側値に替えて圧力と相関関係にある、積算流量あるいは重量の計測値を用いることもできるのである。

産業上の利用可能性

[0061] 本発明は、以上の第一及び第二の実施の形態並びに実施案 1 ～実施案 8 に限定されるものではなく、混合気体の需要量、廃棄量、混合容器容量、補充時間等を勘案し、本発明の要旨を逸脱しない範囲で様々な構成をとり得るのである。

本発明は、半導体製造、液晶製造、MEMS 製造、太陽電池製造等において、成膜やエッチング等の表面加工工程及びクリーニング工程に使用される、活性気体としての低蒸気圧の気体と高蒸気圧の気体とを混合した高圧状態の混合気体の供給方法及び供給装置として有用である。

符号の説明

- [0062] 1 混合容器
2、2 a、2 b 補充容器
3、3 a、3 b 補充用弁
3 1、3 1 a、3 1 b 補充用管路
4、4 a、4 b 第一気体用弁
4 1、4 1 a、4 1 b 第一気体用管路
5、5 a、5 b 第二気体用弁
5 1、5 1 a、5 1 b 第二気体用管路
7 供給用弁
7 2 使用ポイント

請求の範囲

[請求項1] 低蒸気圧の第一気体と高蒸気圧の第二気体とを混合した混合気体を高圧状態で充填した混合容器内から、前記高圧状態の混合気体を使用ポイントに供給するとともに、前記使用ポイントへの供給により前記混合容器内の圧力が設定値に低下した際に、前記混合容器内に前記混合気体を高圧状態で補充するようにした混合気体の供給方法において、

補充容器を補充用弁を介設した補充用管路により前記混合容器に接続し、真空状態とした前記補充容器内に所定量の前記第一気体を充填し、前記第一気体を充填した前記補充容器内に前記第二気体を充填しながら同時に前記補充用弁を開いて、前記補充容器内の前記第一気体を前記第二気体で押し出すことにより、前記混合容器内に前記混合気体を高圧状態で補充することを特徴とする混合気体の供給方法。

[請求項2] 前記補充容器の内容積が前記混合容器の内容積の100分の1以上5分の1以下であることを特徴とする請求項1に記載の混合気体の供給方法。

[請求項3] 下記の(1)式で定義される前記補充容器の内部断面の円相当径が、前記補充容器の内部高さの100分の1以上2分の1以下であることを特徴とする請求項1又は2に記載の混合気体の供給方法。

$$S = \pi D^2 / 4 \quad \cdots (1)$$

D : 円相当径 (mm)

S : 補充容器の内部断面積 (mm²)

π : 円周率

[請求項4] 複数の補充容器を補充用弁を介設した補充用管路により並列に前記混合容器に接続し、真空状態とした前記補充容器内に所定量の前記第一気体を充填し、前記混合容器から前記高圧状態の混合気体を使用ポイントに供給中に、前記第一気体を充填した一つの前記補充容器内に前記第二気体を充填しながら同時に前記補充用弁を開いて、一つの前

記補充容器内の前記第一気体を前記第二気体で押し出すことにより、前記混合容器内に前記混合気体を高圧状態で補充するとともに、連続して前記第一気体を充填した他の前記補充容器内に前記第二気体を充填しながら同時に前記補充用弁を開いて、他の前記補充容器内の前記第一気体を前記第二気体で押し出すことにより、前記混合容器内に前記混合気体を高圧状態で繰返し補充可能としたことを特徴とする請求項 1 ～ 3 のいずれかに記載の混合気体の供給方法。

[請求項5] 前記低蒸気圧の第一気体は、沸点が 0℃ 以上 100℃ 以下である請求項 1 ～ 4 のいずれかに記載の混合気体の供給方法。

[請求項6] 前記高蒸気圧の第二気体は、沸点が -30℃ 以下である請求項 1 ～ 5 のいずれかに記載の混合気体の供給方法。

[請求項7] 前記混合気体を使用ポイントに供給する圧力が、絶対圧で 0.5 MPa 以上 15 MPa 以下であることを特徴とする請求項 1 ～ 6 のいずれかに記載の混合気体の供給方法。

[請求項8] 沸点が 0℃ 以上 100℃ 以下の低蒸気圧の第一気体と沸点が -30℃ 以下の高蒸気圧の第二気体とを混合した混合気体を高圧状態で充填するとともに絶対圧で 0.5 MPa 以上 15 MPa 以下で使用ポイントに供給するようにした混合容器と、前記混合気体の前記使用ポイントへの供給により前記混合容器内の圧力が設定値に低下した際に、前記混合容器内に前記混合気体を高圧状態で補充する手段とを備えた混合気体の供給装置において、

内容積が前記混合容器の内容積の 100 分の 1 以上 5 分の 1 以下の補充容器を形成し、 下記の (1) 式で定義される前記補充容器の内部断面の円相当径が、前記補充容器の内部高さの 100 分の 1 以上 2 分の 1 以下であり、

$$S = \pi D^2 / 4 \quad \cdots (1)$$

D : 円相当径 (mm)

S : 補充容器の内部断面積 (mm²)

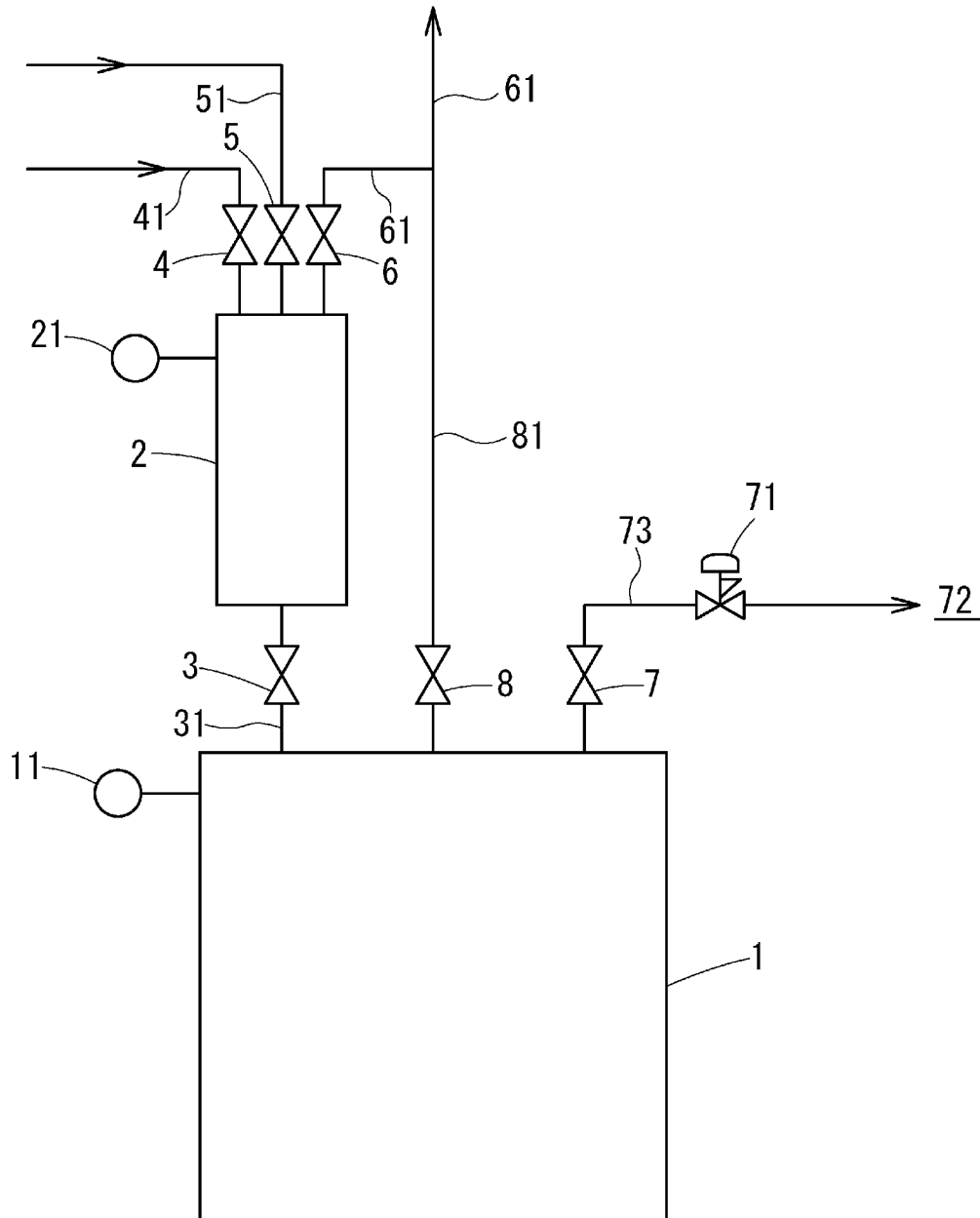
π : 円周率

前記補充容器と前記混合容器とを補充用弁を介設した補充用管路により接続し、前記第一気体を収納した第一容器を第一気体用弁を介設した第一気体用管路により前記補充容器に接続し、前記第二気体を収納した第二容器を第二気体用弁を介設した第二気体用管路により前記補充容器に接続し、真空ポンプを排気用弁を介設した排気管路により前記補充容器に接続し、

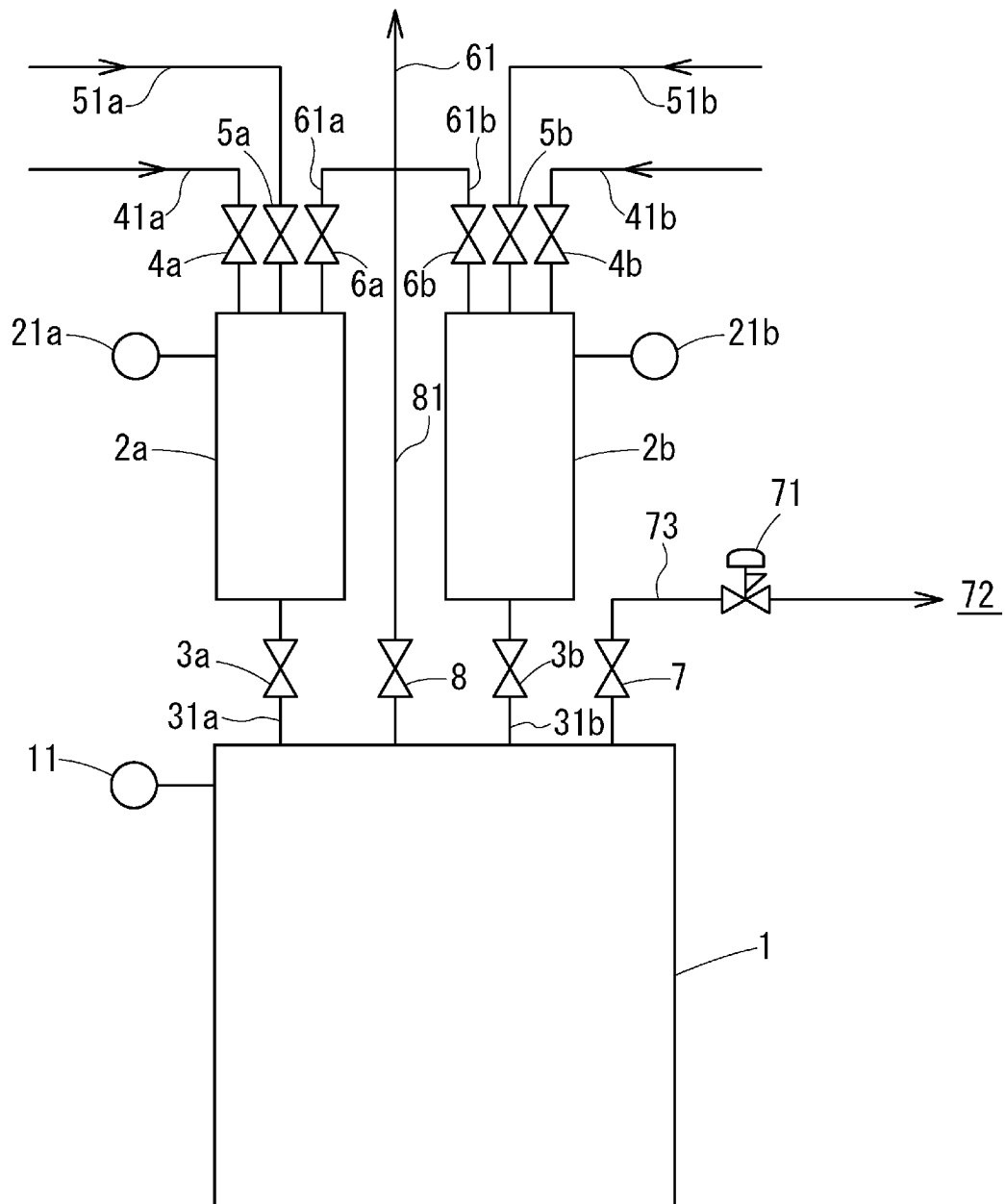
真空状態とした前記補充容器内に前記第一気体用弁を開いて所定量の前記第一気体を充填し、

前記混合容器内の圧力を検出する検出手段を形成して、前記高圧状態の混合気体の前記使用ポイントへの供給により前記検出手段で検出した圧力が設定値に低下した際に、前記第一気体を充填した前記補充容器内に前記第二気体用弁を開いて前記第二気体を充填しながら同時に前記補充用弁を開いて、前記補充容器内の前記第一気体を前記第二気体で押し出すことにより、前記混合容器内に前記混合気体を高圧状態で補充することを特徴とする混合気体の供給装置。

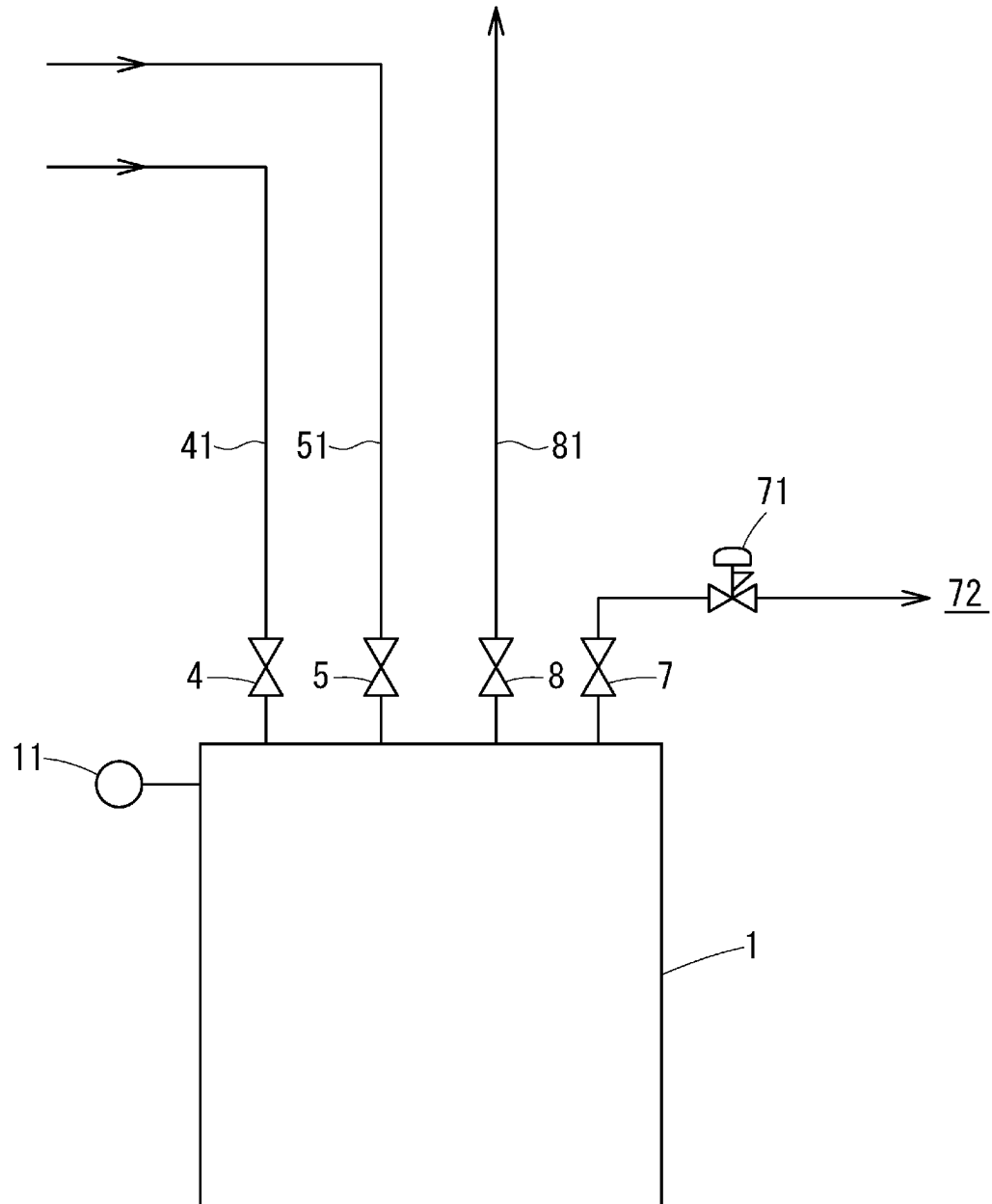
[図1]



[図2]



[図3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/060284

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B01F15/02(2006.01)i, B01F3/02(2006.01)i, F17C7/00(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)

B01F15/02, B01F3/02, F17C7/00

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.
A	JP 2002-511133 A (Air Liquide Japan, Ltd.), 09 April 2002 (09.04.2002), entire text; all drawings & WO 1998/048215 A1 & AU 7079598 A	1-8
A	JP 2009-97573 A (Air Liquide Japan, Ltd.), 07 May 2009 (07.05.2009), entire text; all drawings & WO 2009/066139 A2	1-8
A	JP 2009-108925 A (Air Liquide Japan, Ltd.), 21 May 2009 (21.05.2009), entire text; all drawings & WO 2009/057065 A1	1-8



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
01 July, 2013 (01.07.13)Date of mailing of the international search report
09 July, 2013 (09.07.13)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/060284

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 2009-197274 A (Iwatani & Co., Ltd.), 03 September 2009 (03.09.2009), entire text; all drawings (Family: none)	1-8
A	JP 8-312898 A (L'Air Liquide, Societe Anonyme pour L'Etude et L'Exploitation des Procedes Georges Claude), 26 November 1996 (26.11.1996), entire text; all drawings & US 5676736 A & EP 727557 A1 & DE 69608716 D & DE 69608716 T & FR 2730790 A & CA 2169600 A & DK 727557 T & CA 2169600 A1	1-8
A	JP 2009-94401 A (Hitachi Kokusai Electric Inc.), 30 April 2009 (30.04.2009), entire text; all drawings (Family: none)	1-8

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. B01F15/02(2006.01)i, B01F3/02(2006.01)i, F17C7/00(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. B01F15/02, B01F3/02, F17C7/00

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
A	JP 2002-511133 A（日本エア・リキード株式会社）2002.04.09, 全文、全図 & WO 1998/048215 A1 & AU 7079598 A	1-8
A	JP 2009-97573 A（日本エア・リキード株式会社）2009.05.07, 全文、全図 & WO 2009/066139 A2	1-8
A	JP 2009-108925 A（日本エア・リキード株式会社）2009.05.21, 全文、全図 & WO 2009/057065 A1	1-8

☒ 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

0 1 . 0 7 . 2 0 1 3

国際調査報告の発送日

0 9 . 0 7 . 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）

柿沼 善一

3 M

3 5 3 0

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

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 2009-197274 A (岩谷産業株式会社) 2009. 09. 03, 全文、全図 (ファミリーなし)	1-8
A	JP 8-312898 A (レール・リキード・ソシエテ・アノニム・プール・レテュード・エ・レクスプロワタシオン・デ・プロセデ・ジョルジュ・クロード) 1996. 11. 26, 全文、全図 & US 5676736 A & EP 727557 A1 & DE 69608716 D & DE 69608716 T & FR 2730790 A & CA 2169600 A & DK 727557 T & CA 2169600 A1	1-8
A	JP 2009-94401 A (株式会社日立国際電気) 2009. 04. 30, 全文、全図 (ファミリーなし)	1-8