

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号  
特許第7519829号  
(P7519829)

(45)発行日 令和6年7月22日(2024.7.22)

(24)登録日 令和6年7月11日(2024.7.11)

(51)国際特許分類

F I

C 2 3 C 16/448 (2006.01)

C 2 3 C 16/448

請求項の数 15 (全16頁)

(21)出願番号	特願2020-118056(P2020-118056)	(73)特許権者	000219967
(22)出願日	令和2年7月8日(2020.7.8)		東京エレクトロン株式会社
(65)公開番号	特開2021-147700(P2021-147700		東京都港区赤坂五丁目3番1号
	A)	(74)代理人	100107766
(43)公開日	令和3年9月27日(2021.9.27)		弁理士 伊東 忠重
審査請求日	令和5年1月19日(2023.1.19)	(74)代理人	100070150
(31)優先権主張番号	特願2020-46446(P2020-46446)		弁理士 伊東 忠彦
(32)優先日	令和2年3月17日(2020.3.17)	(72)発明者	小森 栄一
(33)優先権主張国・地域又は機関	日本国(JP)		山梨県韮崎市穂坂町三ツ沢650 東京
			エレクトロン テクノロジーソリューシ
			ョンズ株式会社内
		審査官	吉森 晃

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 原料供給システム及び原料供給方法

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

第1の固体原料を溶媒に溶解した溶液又は第1の固体原料を溶媒に分散させた分散系を貯留する第1の貯留部と、

前記第1の貯留部から輸送される前記溶液又は前記分散系を貯留する第2の貯留部と、

前記第1の貯留部に貯留された前記溶液又は前記分散系の量を検知する検知部と、

前記第2の貯留部に貯留された前記溶液又は前記分散系から前記溶媒を除去することにより形成された第2の固体原料を加熱する加熱部と、

を有し、

前記第2の貯留部は、

前記溶液又は前記分散系を貯留する容器と、

前記容器内に設けられ、前記容器内を複数の領域に区画する仕切板と、

前記仕切板を厚さ方向に貫通して設けられる貫通管と、

を含む、

原料供給システム。

【請求項2】

前記第2の貯留部は、前記容器内を排気する排気ポートを含む、

請求項1に記載の原料供給システム。

【請求項3】

前記排気ポートは、前記第2の固体原料が加熱されて昇華した反応性ガスを用いた処理

を行う処理装置に接続される、

請求項 2 に記載の原料供給システム。

【請求項 4】

前記排気ポートは、前記容器内を排気する排気装置に接続される、

請求項 2 又は 3 に記載の原料供給システム。

【請求項 5】

前記第 2 の貯留部は、前記溶液又は前記分散系を噴霧して前記容器内に注入する注入部を含む、

請求項 1 乃至 4 のいずれか一項に記載の原料供給システム。

【請求項 6】

前記第 2 の貯留部は、並列に複数設けられる、

請求項 1 乃至 5 のいずれか一項に記載の原料供給システム。

【請求項 7】

前記検知部は、フロートセンサを含む、

請求項 1 乃至 6 のいずれか一項に記載の原料供給システム。

【請求項 8】

前記第 2 の固体原料が加熱されて昇華した反応性ガスの流量を測定する流量計を有する、

請求項 1 乃至 7 のいずれか一項に記載の原料供給システム。

【請求項 9】

前記第 2 の貯留部の内圧を検出する圧力計を有する、

請求項 1 乃至 8 のいずれか一項に記載の原料供給システム。

【請求項 10】

前記第 1 の貯留部は、前記溶液又は前記分散系が充填された原料供給源に接続される、

請求項 1 乃至 9 のいずれか一項に記載の原料供給システム。

【請求項 11】

前記原料供給源から前記第 1 の貯留部に前記溶液又は前記分散系を輸送するステップと、  
前記原料供給源から前記第 1 の貯留部に前記溶液又は前記分散系を輸送することなく、  
前記第 1 の貯留部から前記第 2 の貯留部に前記溶液又は前記分散系を輸送するステップと、  
前記第 2 の貯留部において前記溶液又は前記分散系から前記溶媒を除去するステップと、  
を実行するよう構成される制御部を有する、

請求項 10 に記載の原料供給システム。

【請求項 12】

前記制御部は、前記溶液又は前記分散系から前記溶媒を除去することにより形成された  
前記第 2 の固体原料を加熱することにより、前記第 2 の固体原料を昇華させて反応性ガス  
を生成するステップを実行するよう構成される、

請求項 11 に記載の原料供給システム。

【請求項 13】

前記分散系は、スラリーである、

請求項 1 に記載の原料供給システム。

【請求項 14】

前記第 2 の貯留部は、前記容器内が多段に形成されている、

請求項 1 乃至 5 のいずれか一項に記載の原料供給システム。

【請求項 15】

第 1 の固体原料を溶媒に溶解した溶液又は第 1 の固体原料を溶媒に分散させた分散系を  
第 1 の貯留部に貯留する工程と、

前記第 1 の貯留部に設定量の前記溶液又は前記分散系が貯留されたか否かを判定する工程と、

前記第 1 の貯留部に前記設定量の前記溶液又は前記分散系が貯留された場合、キャリアガスを用いて前記第 1 の貯留部から第 2 の貯留部に前記溶液又は前記分散系を輸送する工程と、

10

20

30

40

50

前記第 2 の貯留部に貯留された前記溶液又は前記分散系から前記溶媒を除去することにより第 2 の固体原料を形成する工程と、

前記第 2 の固体原料を加熱して昇華させることで反応性ガスを生成する工程と、  
を有し、

前記第 2 の貯留部は、

前記溶液又は前記分散系を貯留する容器と、

前記容器内に設けられ、前記容器内を複数の領域に区画する仕切板と、

前記仕切板を厚さ方向に貫通して設けられる貫通管と、

を含む、

原料供給方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本開示は、原料供給システム及び原料供給方法に関する。

【背景技術】

【0002】

固体原料を溶媒に溶解して処理室内にスプレー噴射した後、処理室内を加熱して溶媒を除去して固体原料を残留させ、続いて、処理室内を加熱して固体原料を昇華し、対応のガスを生成する技術が知られている（例えば、特許文献 1 参照）。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0003】

【文献】特開 2004 - 115831 号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

本開示は、貯留部に貯留された溶液又は分散系の量を管理できる技術を提供する。

【課題を解決するための手段】

【0005】

本開示の一態様による原料供給システムは、第 1 の固体原料を溶媒に溶解した溶液又は第 1 の固体原料を溶媒に分散させた分散系を貯留する第 1 の貯留部と、前記第 1 の貯留部から輸送される前記溶液又は前記分散系を貯留する第 2 の貯留部と、前記第 1 の貯留部に貯留された前記溶液又は前記分散系の量を検知する検知部と、前記第 2 の貯留部に貯留された前記溶液又は前記分散系から前記溶媒を除去することにより形成された第 2 の固体原料を加熱する加熱部と、を有し、前記第 2 の貯留部は、前記溶液又は前記分散系を貯留する容器と、前記容器内に設けられ、前記容器内を複数の領域に区画する仕切板と、前記仕切板を厚さ方向に貫通して設けられる貫通管と、を含む。

【発明の効果】

【0006】

本開示によれば、貯留部に貯留された溶液又は分散系の量を管理できる。

【図面の簡単な説明】

【0007】

【図 1】第 1 の実施形態の原料供給システムを示す図

【図 2】第 1 の実施形態の原料供給システムの動作を説明するための図（1）

【図 3】第 1 の実施形態の原料供給システムの動作を説明するための図（2）

【図 4】第 1 の実施形態の原料供給システムの動作を説明するための図（3）

【図 5】第 1 の実施形態の原料供給システムの動作を説明するための図（4）

【図 6】第 2 の実施形態の原料供給システムを示す図

【図 7】第 3 の実施形態の原料供給システムを示す図

【発明を実施するための形態】

## 【 0 0 0 8 】

以下、添付の図面を参照しながら、本開示の限定的でない例示の実施形態について説明する。添付の全図面中、同一又は対応する部材又は部品については、同一又は対応する参照符号を付し、重複する説明を省略する。

## 【 0 0 0 9 】

〔 第 1 の実施形態 〕

（ 原料供給システム ）

図 1 を参照し、第 1 の実施形態の原料供給システムについて説明する。図 1 は、第 1 の実施形態の原料供給システムを示す図である。

## 【 0 0 1 0 】

原料供給システム 1 は、第 1 の固体原料を溶媒に溶解した溶液（以下単に「溶液」ともいう。）から溶媒を除去することで形成される第 2 の固体原料を昇華させて反応性ガスを生成し、生成した反応性ガスを用いて処理装置で成膜を行うシステムである。

## 【 0 0 1 1 】

第 1 の固体原料は、特に限定されないが、例えばストロンチウム（ S r ）、モリブデン（ M o ）、ルテニウム（ R u ）、ジルコニウム（ Z r ）、ハフニウム（ H f ）、タングステン（ W ）、アルミニウム（ A l ）等の金属元素を含有する有機金属錯体、タングステン（ W ）、アルミニウム（ A l ）等の金属元素を含有する塩化物であってよい。溶媒は、第 1 の固体原料を溶解又は分散して溶液を生成できればよく、例えばヘキサンであってよい。

## 【 0 0 1 2 】

原料供給システム 1 は、原料供給源 1 0 、バッファ装置 2 0 、原料供給装置 3 0 、 4 0 、処理装置 5 0 及び制御装置 9 0 を備える。

## 【 0 0 1 3 】

原料供給源 1 0 は、溶液 M 1 をバッファ装置 2 0 に供給する。本実施形態において、原料供給源 1 0 は、タンク 1 1 及びフロートセンサ 1 2 を含む。タンク 1 1 には、溶液 M 1 が充填されている。フロートセンサ 1 2 は、タンク 1 1 内に充填された溶液 M 1 の量を検知する。

## 【 0 0 1 4 】

原料供給源 1 0 には、タンク 1 1 の上方から配管 L 1 の一端が挿入されている。配管 L 1 の他端はキャリアガスの供給源 G 1 と接続されており、供給源 G 1 から配管 L 1 を介してタンク 1 1 内にキャリアガスが供給される。キャリアガスは、特に限定されないが、例えば窒素（ N 2 ）、アルゴン（ A r ）等の不活性ガスであってよい。配管 L 1 には、バルブ V 1 が介設されている。バルブ V 1 を開くと供給源 G 1 から原料供給源 1 0 へキャリアガスが供給され、バルブ V 1 を閉じると供給源 G 1 から原料供給源 1 0 へのキャリアガスの供給が遮断される。また、配管 L 1 には、配管 L 1 を流れるキャリアガスの流量を制御する流量制御器（図示せず）や追加のバルブ等が介設されていてもよい。

## 【 0 0 1 5 】

また、原料供給源 1 0 には、タンク 1 1 の上方から配管 L 2 の一端が挿入されている。配管 L 2 の他端はバッファ装置 2 0 と接続されている。供給源 G 1 からタンク 1 1 内にキャリアガスが供給されると、タンク 1 1 内が加圧され、タンク 1 1 内の溶液 M 1 が配管 L 2 を介してバッファ装置 2 0 に供給される。配管 L 2 には、原料供給源 1 0 の側から順にバルブ V 2 a 、 V 2 b が介設されている。バルブ V 2 a 、 V 2 b を開くと原料供給源 1 0 からバッファ装置 2 0 へ溶液 M 1 が供給され、バルブ V 2 a 、 V 2 b を閉じると原料供給源 1 0 からバッファ装置 2 0 への溶液 M 1 の供給が遮断される。また、配管 L 2 には、配管 L 2 を流れる溶液 M 1 の流量を制御する流量制御器（図示せず）や追加のバルブ等が介設されていてもよい。

## 【 0 0 1 6 】

また、配管 L 2 のバルブ V 2 b よりもバッファ装置 2 0 の側には、配管 L 3 の一端が接続されている。配管 L 3 の他端はキャリアガスの供給源 G 3 と接続されており、供給源 G 3 から配管 L 3 、 L 2 を介してバッファ装置 2 0 にキャリアガスが供給される。キャリア

10

20

30

40

50

ガスは、特に限定されないが、例えば $N_2$ 、 $Ar$ 等の不活性ガスであってよい。配管 $L_3$ には、バルブ $V_3$ が介設されている。バルブ $V_3$ を開くと供給源 $G_3$ からバッファ装置 $20$ へキャリアガスが供給され、バルブ $V_3$ を閉じると供給源 $G_3$ からバッファ装置 $20$ へのキャリアガスの供給が遮断される。また、配管 $L_3$ には、配管 $L_3$ を流れるキャリアガスの流量を制御する流量制御器（図示せず）や追加のバルブ等が介設されていてもよい。

#### 【0017】

バッファ装置 $20$ は、原料供給源 $10$ から輸送される溶液 $M_1$ を貯留する。本実施形態において、バッファ装置 $20$ は、容器 $21$ 及びフロートセンサ $22$ を含む。ただし、バッファ装置 $20$ は、容器 $21$ を加熱するヒータ等の加熱部（図示せず）を更に含んでいてもよい。容器 $21$ は、原料供給源 $10$ から輸送される溶液 $M_1$ を一時的に貯留する。フロートセンサ $22$ は、容器 $21$ 内に貯留された溶液 $M_1$ の量を検知する。ただし、フロートセンサ $22$ に代えて、ロードセル式や温度検知式等の別のレベルセンサを設けることにより容器 $21$ 内に貯留された溶液 $M_1$ の量を検知するようにしてもよい。

10

#### 【0018】

バッファ装置 $20$ は、配管 $L_4$ 、 $L_5$ を介して原料供給装置 $30$ と接続されており、配管 $L_4$ 、 $L_5$ を介して原料供給装置 $30$ に溶液 $M_1$ を供給する。配管 $L_4$ 、 $L_5$ には、夫々バルブ $V_4$ 、 $V_5$ が介設されている。バルブ $V_4$ 、 $V_5$ を開くとバッファ装置 $20$ から原料供給装置 $30$ へ溶液 $M_1$ が供給され、バルブ $V_4$ 、 $V_5$ を閉じるとバッファ装置 $20$ から原料供給装置 $30$ への溶液 $M_1$ の供給が遮断される。また、配管 $L_5$ には、配管 $L_5$ を流れる溶液 $M_1$ の流量を制御する流量制御器（図示せず）や追加のバルブ等が介設されていてもよい。

20

#### 【0019】

また、バッファ装置 $20$ は、配管 $L_4$ 、 $L_6$ を介して原料供給装置 $40$ と接続されており、配管 $L_4$ 、 $L_6$ を介して原料供給装置 $40$ に溶液 $M_1$ を供給する。配管 $L_6$ には、バルブ $V_6$ が介設されている。バルブ $V_4$ 、 $V_6$ を開くとバッファ装置 $20$ から原料供給装置 $40$ へ溶液 $M_1$ が供給され、バルブ $V_4$ 、 $V_6$ を閉じるとバッファ装置 $20$ から原料供給装置 $40$ への溶液 $M_1$ の供給が遮断される。また、配管 $L_6$ には、配管 $L_6$ を流れる溶液 $M_1$ の流量を制御する流量制御器（図示せず）や追加のバルブ等が介設されていてもよい。

#### 【0020】

30

原料供給装置 $30$ は、バッファ装置 $20$ から輸送される溶液 $M_1$ を貯留する。本実施形態において、原料供給装置 $30$ は、容器 $31$ 、加熱部 $32$ 及び圧力計 $33$ を含む。容器 $31$ は、バッファ装置 $20$ から輸送される溶液 $M_1$ を貯留する。加熱部 $32$ は、溶液 $M_1$ から溶媒を除去することにより形成された固体原料（以下「第2の固体原料 $M_2$ 」という。）を加熱することにより、第2の固体原料 $M_2$ を昇華させて反応性ガスを生成する。加熱部 $32$ は、例えば容器 $31$ の底部及び外周を覆うように配置されたヒータであってよい。加熱部 $32$ は、第2の固体原料を昇華させて反応性ガスを生成できる温度に容器 $31$ 内を加熱できるように構成される。圧力計 $33$ は、容器 $31$ の内圧を検出する。検出された容器 $31$ の内圧は制御装置 $90$ に送信され、制御装置 $90$ は該内圧に基づいて各種のバルブの開閉を制御する。例えば、制御装置 $90$ は、該内圧が所定の圧力よりも高くなった場合に、バルブ $V_5$ を閉じることにより、容器 $31$ に過剰な溶液 $M_1$ が供給されないようにする。

40

#### 【0021】

原料供給装置 $30$ には、容器 $31$ の上方から配管 $L_8$ の一端が挿入されている。配管 $L_8$ の他端は配管 $L_7$ を介してキャリアガスの供給源 $G_7$ と接続されており、供給源 $G_7$ から配管 $L_7$ 、 $L_8$ を介して容器 $31$ 内にキャリアガスが供給される。キャリアガスは、特に限定されないが、例えば $N_2$ 、 $Ar$ 等の不活性ガスであってよい。配管 $L_8$ には、供給源 $G_7$ の側から順にバルブ $V_{8a}$ 、 $V_{8b}$ が介設されている。バルブ $V_{8a}$ 、 $V_{8b}$ を開くと供給源 $G_7$ から原料供給装置 $30$ へキャリアガスが供給され、バルブ $V_{8a}$ 、 $V_{8b}$ を閉じると供給源 $G_7$ から原料供給装置 $30$ へのキャリアガスの供給が遮断される。配管

50

L 7 には、配管 L 7 を流れるキャリアガスの流量を制御する流量制御器 F 7 が介設されている。本実施形態において、流量制御器 F 7 は、マスフローコントローラ ( M F C ) である。

【 0 0 2 2 】

原料供給装置 3 0 は、配管 L 1 0 , L 1 2 を介して処理装置 5 0 と接続されており、配管 L 1 0 , L 1 2 を介して処理装置 5 0 に反応性ガスを供給する。配管 L 1 0 には、原料供給装置 3 0 の側から順にバルブ V 1 0 a ~ V 1 0 c が介設されている。バルブ V 1 0 a ~ V 1 0 c を開くと原料供給装置 3 0 から処理装置 5 0 へ反応性ガスが供給され、バルブ V 1 0 a ~ V 1 0 c を閉じると原料供給装置 3 0 から処理装置 5 0 への反応性ガスの供給が遮断される。

10

【 0 0 2 3 】

配管 L 1 0 のバルブ V 1 0 a とバルブ V 1 0 b との間には、配管 L 1 3 の一端が接続されている。配管 L 1 3 の他端は、配管 L 8 のバルブ V 8 a とバルブ V 8 b との間に接続されている。配管 L 1 3 は、配管 L 8 と配管 L 1 0 とを原料供給装置 3 0 を介さずに接続するバイパス配管として機能する。配管 L 1 3 には、バルブ V 1 3 が介設されている。バルブ V 1 3 を開くと配管 L 8 と配管 L 1 0 とが連通し、バルブ V 1 3 を閉じると配管 L 8 と配管 L 1 0 との連通が遮断される。

【 0 0 2 4 】

配管 L 1 0 のバルブ V 1 0 b とバルブ V 1 0 c との間には、配管 L 1 4 の一端が接続されている。配管 L 1 4 の他端は、例えば真空ポンプ等の排気装置 ( 図示せず ) に接続されている。配管 L 1 4 には、バルブ V 1 4 が介設されている。バルブ V 1 0 a , V 1 0 b が開いた状態でバルブ V 1 4 を開くと、容器 3 1 内が排気され、容器 3 1 内に貯留された溶液 M 1 から溶媒を除去できる。バルブ V 1 4 を閉じると、容器 3 1 内に貯留された溶液 M 1 からの溶媒の除去を停止できる。

20

【 0 0 2 5 】

原料供給装置 4 0 は、バッファ装置 2 0 から輸送される溶液 M 1 を貯留する。原料供給装置 4 0 は、原料供給装置 3 0 と並列に設けられている。本実施形態において、原料供給装置 4 0 は、容器 4 1 、加熱部 4 2 及び圧力計 4 3 を含む。容器 4 1 は、バッファ装置 2 0 から輸送される溶液 M 1 を貯留する。加熱部 4 2 は、溶液 M 1 から溶媒を除去することにより形成された第 2 の固体原料 M 2 を加熱することにより、第 2 の固体原料 M 2 を昇華させて反応性ガスを生成する。加熱部 4 2 は、例えば容器 4 1 の底部及び外周を覆うように配置されたヒータであってよい。加熱部 4 2 は、第 2 の固体原料 M 2 を昇華させて反応性ガスを生成できる温度に容器 4 1 内を加熱できるように構成される。圧力計 4 3 は、容器 4 1 の内圧を検出する。検出された容器 4 1 の内圧は制御装置 9 0 に送信され、制御装置 9 0 は該内圧に基づいて各種のバルブの開閉を制御する。例えば、制御装置 9 0 は、該内圧が所定の圧力よりも高くなった場合に、バルブ V 6 を閉じることにより、容器 4 1 に過剰な溶液 M 1 が供給されないようにする。

30

【 0 0 2 6 】

原料供給装置 4 0 には、容器 4 1 の上方から配管 L 9 の一端が挿入されている。配管 L 9 の他端は配管 L 7 を介してキャリアガスの供給源 G 7 と接続されており、供給源 G 7 から配管 L 7 , L 9 を介して容器 4 1 内にキャリアガスが供給される。キャリアガスは、特に限定されないが、例えば N<sub>2</sub>、Ar 等の不活性ガスであってよい。配管 L 9 には、供給源 G 7 の側から順にバルブ V 9 a , V 9 b が介設されている。バルブ V 9 a , V 9 b を開くと供給源 G 7 から原料供給装置 4 0 へキャリアガスが供給され、バルブ V 9 a , V 9 b を閉じると供給源 G 7 から原料供給装置 4 0 へのキャリアガスの供給が遮断される。

40

【 0 0 2 7 】

原料供給装置 4 0 は、配管 L 1 1 , L 1 2 を介して処理装置 5 0 と接続されており、配管 L 1 1 , L 1 2 を介して処理装置 5 0 に反応性ガスを供給する。配管 L 1 1 には、バルブ V 1 1 a ~ V 1 1 c が介設されている。バルブ V 1 1 a ~ V 1 1 c を開くと原料供給装置 4 0 から処理装置 5 0 へ反応性ガスが供給され、バルブ V 1 1 a ~ V 1 1 c を閉じると

50

原料供給装置 40 から処理装置 50 への反応性ガスの供給が遮断される。

【0028】

配管 L11 のバルブ V11a とバルブ V11b との間には、配管 L15 の一端が接続されている。配管 L15 の他端は、配管 L9 のバルブ V9a とバルブ V9b との間に接続されている。配管 L15 は、配管 L9 と配管 L11 とを原料供給装置 40 を介さずに接続するバイパス配管として機能する。配管 L15 には、バルブ V15 が介設されている。バルブ V15 を開くと配管 L9 と配管 L11 とが連通し、バルブ V15 を閉じると配管 L9 と配管 L11 との連通が遮断される。

【0029】

配管 L11 のバルブ V11b とバルブ V11c との間には、配管 L16 の一端が接続されている。配管 L16 の他端は、例えば真空ポンプ等の排気装置（図示せず）に接続されている。配管 L16 には、バルブ V16 が介設されている。バルブ V11a, V11b が開いた状態でバルブ V16 を開くと、容器 41 内が排気され、容器 41 内に貯留された溶液 M1 から溶媒を除去できる。バルブ V16 を閉じると、容器 41 内に貯留された溶液 M1 からの溶媒の除去を停止できる。

10

【0030】

処理装置 50 は、配管 L10, L12 を介して原料供給装置 30 と接続されており、処理装置 50 には原料供給装置 30 において第 2 の固体原料 M2 を加熱して昇華させることで生成される反応性ガスが供給される。また、処理装置 50 は、配管 L11, L12 を介して原料供給装置 40 と接続されており、処理装置 50 には原料供給装置 40 において第 2 の固体原料 M2 を加熱して昇華させることで生成される反応性ガスが供給される。

20

【0031】

処理装置 50 は、原料供給装置 30, 40 から供給される反応性ガスを用いて半導体ウエハ等の基板に対し、成膜処理等の各種の処理を実行する。本実施形態において、処理装置 50 は、処理容器 51、流量計 52 及びバルブ V12 を含む。処理容器 51 は、1 又は複数の基板を収容する。本実施形態において、流量計 52 はマスフローメータ（MFM）である。流量計 52 は、配管 L12 に介設されており、配管 L12 を流れる反応性ガスの流量を測定する。バルブ V12 は、配管 L12 に介設されている。バルブ V13 を開くと原料供給装置 30, 40 から処理容器 51 へ反応性ガスが供給され、バルブ V13 を閉じると原料供給装置 30, 40 から処理容器 51 への反応性ガスの供給が遮断される。

30

【0032】

制御装置 90 は、原料供給システム 1 の各部を制御する。例えば、制御装置 90 は、原料供給源 10、バッファ装置 20、原料供給装置 30, 40、処理装置 50 等の動作を制御する。また、制御装置 90 は、各種のバルブの開閉を制御する。制御装置 90 は、例えばコンピュータであってよい。

【0033】

（原料供給システムの動作）

図 2～5 を参照し、原料供給システム 1 の動作（原料供給方法）の一例について説明する。原料供給システム 1 では、制御装置 90 が各種のバルブの開閉を制御することで、並列に設けられた 2 つの原料供給装置 30, 40 のうち的一方で処理装置 50 への反応性ガスの供給を行い、他方で固体原料の充填を行う。以下、原料供給システム 1 の動作の一例について具体的に説明する。

40

【0034】

まず、図 2 及び図 3 を参照し、原料供給装置 30 で処理装置 50 への反応性ガスの供給を行い、原料供給装置 40 で固体原料の充填を行う場合について説明する。図 2 及び図 3 は、原料供給システム 1 の動作を説明するための図である。図 2 及び図 3 では、キャリアガス、溶液 M1 及び反応性ガスが流れている配管を太い実線で示し、キャリアガス、溶液 M1 及び反応性ガスが流れていない配管を細い実線で示す。また、図 2 及び図 3 では、バルブが開いた状態を白抜きの記号で示し、バルブが閉じた状態を黒塗りの記号で示す。なお、原料供給システム 1 は、初期状態において、図 1 に示されるように、全てのバルブが

50

閉じられているものとし、原料供給装置 30 には第 2 の固体原料 M2 が貯留されているものとして説明する。

【0035】

制御装置 90 は、原料供給装置 30 の加熱部 32 を制御して、容器 31 内の第 2 の固体原料 M2 を加熱して昇華させることで反応性ガスを生成する。また、制御装置 90 は、バルブ V8a, V8b, V10a ~ V10c, V12 を開く。これにより、供給源 G7 から配管 L7, L8 を介して原料供給装置 30 の容器 31 内にキャリアガスが注入され、キャリアガスと共に容器 31 内で生成された反応性ガスが配管 L10, L12 を介して処理装置 50 に供給される。

【0036】

また、制御装置 90 は、図 2 に示されるように、バルブ V1, V2a, V2b を開く。これにより、供給源 G1 から原料供給源 10 にキャリアガスが供給され、原料供給源 10 から配管 L2 を介してバッファ装置 20 に溶液 M1 が輸送され、バッファ装置 20 の容器 21 内に溶液 M1 が貯留される。このとき、バルブ V4 が閉じられているので、容器 21 内に貯留される溶液 M1 が原料供給装置 30, 40 に輸送されることはない。

【0037】

続いて、制御装置 90 は、フロートセンサ 22 の検出値に基づいて、容器 21 内に所定量の溶液 M1 が貯留されたか否かを判定する。所定量は、例えば原料供給装置 40 の容器 41 内に貯留可能な量に設定される。容器 21 内に所定量の溶液 M1 が貯留されたと判定すると、制御装置 90 は、図 3 に示されるように、バルブ V1, V2a, V2b を閉じ、バルブ V3, V4, V6 を開く。これにより、供給源 G3 から配管 L3 を介してバッファ装置 20 にキャリアガスが供給され、バッファ装置 20 から配管 L4, L6 を介して原料供給装置 40 に溶液 M1 が輸送される。これにより、原料供給装置 40 の容器 41 内に所定量の溶液 M1 が貯留される。また、制御装置 90 は、図 3 に示されるように、バルブ V11a, V11b, V16 を開く。これにより、原料供給装置 40 の容器 41 内が排気装置により排気されるので、容器 41 内の溶液 M1 から溶媒が除去され、容器 41 内に第 2 の固体原料 M2 が形成される。なお、容器 41 内の溶液 M1 から溶媒を除去する際には、制御装置 90 は、加熱部 42 を制御して、容器 41 内の溶液 M1 を所定の温度に加熱することが好ましい。これにより、溶媒の除去が促進される。所定の温度は、例えば第 2 の固体原料 M2 を昇華させて反応性ガスを生成するときの温度よりも低く設定される。なお、図 3 には、容器 41 内の溶液 M1 から溶媒が除去される前の状態を示している。

【0038】

次に、図 4 及び図 5 を参照し、原料供給装置 40 で処理装置 50 への反応性ガスの供給を行い、原料供給装置 30 で固体原料の充填を行う場合について説明する。図 4 及び図 5 は、原料供給システム 1 の動作を説明するための図である。図 4 及び図 5 では、キャリアガス、溶液 M1 及び反応性ガスが流れている配管を太い実線で示し、キャリアガス、溶液 M1 及び反応性ガスが流れていない配管を細い実線で示す。また、図 4 及び図 5 では、バルブが開いた状態を白抜きの記号で示し、バルブが閉じた状態を黒塗りの記号で示す。なお、原料供給システム 1 は、初期状態において、図 1 に示されるように、全てのバルブが閉じられているものとする。また、図 4 に示されるように、原料供給装置 40 には第 2 の固体原料 M2 が貯留されているものとして説明する。

【0039】

制御装置 90 は、原料供給装置 40 の加熱部 42 を制御して、容器 41 内の第 2 の固体原料 M2 を加熱して昇華させることで反応性ガスを生成する。また、制御装置 90 は、バルブ V9a, V9b, V11a ~ V11c, V12 を開く。これにより、供給源 G7 から配管 L7, L9 を介して原料供給装置 40 の容器 41 内にキャリアガスが注入され、キャリアガスと共に容器 41 内で生成された反応性ガスが配管 L11, L12 を介して処理装置 50 に供給される。

【0040】

また、制御装置 90 は、図 4 に示されるように、バルブ V1, V2a, V2b を開く。



これにより、供給源 G 1 から原料供給源 1 0 にキャリアガスが供給され、原料供給源 1 0 から配管 L 2 を介してバッファ装置 2 0 に溶液 M 1 が輸送され、バッファ装置 2 0 の容器 2 1 内に溶液 M 1 が貯留される。このとき、バルブ V 4 が閉じられているので、容器 2 1 内に貯留される溶液 M 1 が原料供給装置 3 0 , 4 0 に輸送されることはない。

#### 【 0 0 4 1 】

続いて、制御装置 9 0 は、フロートセンサ 2 2 の検出値に基づいて、容器 2 1 内に所定量の溶液 M 1 が貯留されたか否かを判定する。所定量は、例えば原料供給装置 3 0 の容器 3 1 内に貯留可能な量に設定される。容器 2 1 内に所定量の溶液 M 1 が貯留されたと判定すると、制御装置 9 0 は、図 5 に示されるように、バルブ V 1 , V 2 a , V 2 b を閉じ、バルブ V 3 , V 4 , V 5 を開く。これにより、供給源 G 3 から配管 L 3 を介してバッファ装置 2 0 にキャリアガスが供給され、バッファ装置 2 0 から配管 L 4 , L 5 を介して原料供給装置 3 0 に溶液 M 1 が輸送される。これにより、原料供給装置 3 0 の容器 3 1 内に所定量の溶液 M 1 が貯留される。また、制御装置 9 0 は、図 5 に示されるように、バルブ V 1 0 a , V 1 0 b , V 1 4 を開く。これにより、原料供給装置 3 0 の容器 3 1 内が排気装置により排気されるので、容器 3 1 内の溶液 M 1 から溶媒が除去され、容器 3 1 内に第 2 の固体原料 M 2 が形成される。なお、容器 3 1 内の溶液 M 1 から溶媒を除去する際には、制御装置 9 0 は、加熱部 3 2 を制御して、容器 3 1 内の溶液 M 1 を所定の温度に加熱することが好ましい。これにより、溶媒の除去が促進される。所定の温度は、例えば第 2 の固体原料を昇華させて反応性ガスを生成するときの温度よりも低く設定される。なお、図 5 には、容器 4 1 内の溶液 M 1 から溶媒が除去される前の状態を示している。

#### 【 0 0 4 2 】

以上に説明したように、原料供給システム 1 によれば、制御装置 9 0 がバルブの開閉を制御することで、2 つの原料供給装置 3 0 , 4 0 のうち的一方で処理装置 5 0 への反応性ガスの供給を行い、他方で固体原料の充填を行う。これにより、原料供給装置 3 0 , 4 0 への原料の自動補充が可能となり、処理装置 5 0 の連続運転能力を向上させ、処理装置 5 0 の稼働率を向上させることができる。

#### 【 0 0 4 3 】

また、原料供給システム 1 によれば、原料供給源 1 0 と原料供給装置 3 0 , 4 0 との間に、フロートセンサ 2 2 を含むバッファ装置 2 0 が設けられている。これにより、原料供給源 1 0 から輸送される溶液 M 1 をバッファ装置 2 0 内で液量を管理し、管理された液量の溶液 M 1 を原料供給装置 3 0 , 4 0 に輸送できる。そのため、原料供給装置 3 0 , 4 0 にフロートセンサを設けなくても原料供給装置 3 0 , 4 0 に貯留される溶液 M 1 の液量を管理できる。その結果、フロートセンサの耐熱温度、ヒートサイクル耐久性、作動信頼性等、レベルセンサによる使用制限を受けることなく、原料供給装置 3 0 , 4 0 において溶液 M 1 を加熱して昇華させることができる。すなわち、原料供給装置 3 0 , 4 0 において、溶液 M 1 を加熱する温度等についての使用可能範囲を拡大できる。

#### 【 0 0 4 4 】

##### 〔 第 2 の実施形態 〕

図 6 を参照し、第 2 の実施形態の原料供給システムについて説明する。図 6 は、第 2 の実施形態の原料供給システムを示す図である。

#### 【 0 0 4 5 】

原料供給システム 1 A は、原料供給装置 3 0 A , 4 0 A の各々が、バッファ装置 2 0 から輸送される溶液 M 1 を噴霧して容器 3 1 , 4 1 内に注入する原料注入部 3 4 , 4 4 を含む点で、第 1 の実施形態の原料供給システム 1 と異なる。なお、その他の構成については、第 1 の実施形態の原料供給システム 1 と同様であるので、以下、異なる構成を中心に説明する。

#### 【 0 0 4 6 】

原料供給装置 3 0 A は、バッファ装置 2 0 から輸送される溶液 M 1 を貯留する。本実施形態において、原料供給装置 3 0 A は、容器 3 1 、加熱部 3 2 、圧力計 3 3 及び原料注入部 3 4 を含む。容器 3 1 は、バッファ装置 2 0 から輸送される溶液 M 1 を貯留する。加熱

部 3 2 は、溶液 M 1 から溶媒を除去することにより形成された第 2 の固体原料 M 2 を加熱することにより、第 2 の固体原料 M 2 を昇華させて反応性ガスを生成する。加熱部 3 2 は、例えば容器 3 1 の底部及び外周を覆うように配置されたヒータであってよい。加熱部 3 2 は、第 2 の固体原料 M 2 を昇華させて反応性ガスを生成できる温度に容器 3 1 内を加熱できるように構成される。圧力計 3 3 は、容器 3 1 の内圧を検出する。検出された容器 3 1 の内圧は制御装置 9 0 に送信され、制御装置 9 0 は該内圧に基づいて各種のバルブの開閉を制御する。例えば、制御装置 9 0 は、該内圧が所定の圧力よりも高くなった場合に、バルブ V 5 を閉じることにより、容器 3 1 に過剰な溶液 M 1 が供給されないようにする。

【 0 0 4 7 】

原料注入部 3 4 は、バッファ装置 2 0 から配管 L 4 , L 5 を介して輸送される溶液 M 1 を噴霧して容器 3 1 内に注入する。原料注入部 3 4 は、溶液 M 1 を噴霧することにより、溶液 M 1 が容器 3 1 の底部等に到達する前に溶媒を気化させ、第 2 の固体原料 M 2 として堆積させる。原料注入部 3 4 は、例えば噴霧ノズルであってよい。

【 0 0 4 8 】

原料供給装置 4 0 A は、バッファ装置 2 0 から輸送される溶液 M 1 を貯留する。本実施形態において、原料供給装置 4 0 A は、容器 4 1、加熱部 4 2、圧力計 4 3 及び原料注入部 4 4 を含む。

【 0 0 4 9 】

容器 4 1、加熱部 4 2、圧力計 4 3 及び原料注入部 4 4 は、原料供給装置 3 0 A における容器 3 1、加熱部 3 2、圧力計 3 3 及び原料注入部 3 4 と同様の構成であってよい。

【 0 0 5 0 】

以上に説明したように、原料供給システム 1 A によれば、原料供給システム 1 と同様、制御装置 9 0 がバルブの開閉を制御することで、2 つの原料供給装置 3 0 A , 4 0 A のうちの一方で処理装置 5 0 への反応性ガスの供給を行い、他方で固体原料の充填を行う。これにより、原料供給装置 3 0 A , 4 0 A への原料の自動補充が可能となり、処理装置 5 0 の連続運転能力を向上させ、処理装置 5 0 の稼働率を向上させることができる。

【 0 0 5 1 】

また、原料供給システム 1 A によれば、原料注入部 3 4 , 4 4 から容器 3 1 , 4 1 内に溶液 M 1 を噴霧して注入することにより、溶液 M 1 が容器 3 1 , 4 1 の底部等に到達する前に溶媒を気化させ、第 2 の固体原料 M 2 として堆積させる。このように原料供給システム 1 A では、容器 3 1、4 1 内に注入された溶液 M 1 を容器 3 1 , 4 1 の底部等に固体として堆積させて貯留するので、一定の体積当たりに貯留可能な固体原料の量を増やすことができる。

【 0 0 5 2 】

また、原料供給システム 1 A では、固体原料を溶媒に溶解した溶液 M 1 を噴霧して溶媒を気化させ、第 2 の固体原料 M 2 として容器 3 1 , 4 1 の底部等に一度堆積させた後、第 2 の固体原料 M 2 を昇華させて処理装置 5 0 に供給する。これにより、流量制御の簡易化や、大流量化等の制御が容易になる。

【 0 0 5 3 】

また、原料供給システム 1 A によれば、原料供給システム 1 と同様、原料供給源 1 0 と原料供給装置 3 0 A , 4 0 A との間に、フロートセンサ 2 2 を含むバッファ装置 2 0 が設けられている。これにより、原料供給源 1 0 から輸送される溶液 M 1 をバッファ装置 2 0 内で液量を管理し、管理された液量の溶液 M 1 を原料供給装置 3 0 A , 4 0 A に輸送し、原料注入部 3 4 , 4 4 から容器 3 1 , 4 1 内に噴霧できる。そのため、容器 3 1 , 4 1 内に噴霧されることで溶媒が気化されて堆積する第 2 の固体原料 M 2 の貯蔵量を管理できる。

【 0 0 5 4 】

〔 第 3 の実施形態 〕

図 7 を参照し、第 3 の実施形態の原料供給システムについて説明する。図 7 は、第 3 の実施形態の原料供給システムを示す図である。

【 0 0 5 5 】

10

20

30

40

50

原料供給システム 1 B は、容器 3 1 , 4 1 内の各々が多段に形成されている点で、第 1 の実施形態の原料供給システム 1 と異なる。なお、その他の構成については、第 1 の実施形態の原料供給システム 1 と同様であるので、以下、異なる構成を中心に説明する。

【 0 0 5 6 】

原料供給装置 3 0 B は、パuffa 装置 2 0 から輸送される溶液 M 1 を貯留する。本実施形態において、原料供給装置 3 0 B は、容器 3 1、加熱部 3 2、圧力計 3 3、仕切板 3 5 , 3 6 及び貫通管 3 7 , 3 8 を含む。

【 0 0 5 7 】

容器 3 1、加熱部 3 2 及び圧力計 3 3 は、第 1 の実施形態の原料供給装置 3 0 と同じであってよい。

【 0 0 5 8 】

仕切板 3 5 は、容器 3 1 内に設けられ、容器 3 1 内を上下に 2 つの領域に区画する。仕切板 3 5 は、溶液、固体原料及び反応性ガスを透過しない材料、例えばステンレスやニッケル合金により形成されている。

【 0 0 5 9 】

仕切板 3 6 は、容器 3 1 内における仕切板 3 5 の下方に設けられ、容器 3 1 内の仕切板 3 5 の下方の領域を上下に 2 つの領域に区画する。仕切板 3 6 は、例えば仕切板 3 5 と同じ材料により形成されている。

【 0 0 6 0 】

貫通管 3 7 は、仕切板 3 5 を厚さ方向（上下方向）に貫通して設けられており、貫通管 3 7 を介して溶液及び反応性ガスが仕切板 3 5 を通過する。貫通管 3 7 の仕切板 3 5 の上面から上方に延びる高さは、必要な原料の量を確保できる程度の高さである。貫通管 3 7 は、仕切板 3 5 の面内において 1 つ以上（図示の例では 2 つ）設けられている。

【 0 0 6 1 】

貫通管 3 8 は、仕切板 3 6 を厚さ方向（上下方向）に貫通して設けられており、貫通管 3 8 を介して溶液及び反応性ガスが仕切板 3 6 を通過する。貫通管 3 8 の仕切板 3 6 の上面から上方に延びる高さは、必要な原料の量を確保できる程度の高さである。貫通管 3 8 は、仕切板 3 6 の面内において 1 つ以上（図示の例では 1 つ）設けられている。

【 0 0 6 2 】

このように、容器 3 1 内に仕切板 3 5 , 3 6 が設けられていることにより、パuffa 装置 2 0 から容器 3 1 内に輸送される溶液は、仕切板 3 5 上、仕切板 3 6 上及び容器 3 1 の底面上に貯留される。そのため、容器 3 1 内で貯留される溶液の単位体積あたりの表面積である比表面積が大きくなるため、溶液から溶媒を除去する時間を短縮できる。また、溶液から溶媒を除去することにより形成された固体原料を昇華させて生成される反応性ガスの量を増やすことができる。

【 0 0 6 3 】

原料供給装置 4 0 B は、パuffa 装置 2 0 から輸送される溶液 M 1 を貯留する。本実施形態において、原料供給装置 4 0 B は、容器 4 1、加熱部 4 2、圧力計 4 3、仕切板 4 5 , 4 6 及び貫通管 4 7 , 4 8 を含む。

【 0 0 6 4 】

容器 4 1、加熱部 4 2、圧力計 4 3、仕切板 4 5 , 4 6 及び貫通管 4 7 , 4 8 は、原料供給装置 3 0 B における容器 3 1、加熱部 3 2、圧力計 3 3、仕切板 3 5 , 3 6 及び貫通管 3 7 , 3 8 と同様の構成であってよい。

【 0 0 6 5 】

このように、容器 4 1 内に仕切板 4 5 , 4 6 が設けられていることにより、パuffa 装置 2 0 から容器 4 1 内に輸送される溶液は、仕切板 4 5 上、仕切板 4 6 上及び容器 4 1 の底面上に貯留される。そのため、容器 4 1 内で貯留される溶液の単位体積あたりの表面積である比表面積が大きくなるため、溶液から溶媒を除去する時間を短縮できる。また、溶液から溶媒を除去することにより形成された固体原料を昇華させて生成される反応性ガスの量を増やすことができる。

10

20

30

40

50

## 【 0 0 6 6 】

以上に説明したように、原料供給システム 1 B によれば、原料供給システム 1 と同様、制御装置 9 0 がバルブの開閉を制御することで、2 つの原料供給装置 3 0 B , 4 0 B のうち的一方で処理装置 5 0 への反応性ガスの供給を行い、他方で固体原料の充填を行う。これにより、原料供給装置 3 0 B , 4 0 B への原料の自動補充が可能となり、処理装置 5 0 の連続運転能力を向上させ、処理装置 5 0 の稼働率を向上させることができる。

## 【 0 0 6 7 】

また、原料供給システム 1 B によれば、原料供給システム 1 と同様、原料供給源 1 0 と原料供給装置 3 0 B , 4 0 B との間に、フロートセンサ 2 2 を含むバッファ装置 2 0 が設けられている。これにより、原料供給源 1 0 から輸送される溶液 M 1 をバッファ装置 2 0 内で液量を管理し、管理された液量の溶液 M 1 を原料供給装置 3 0 B , 4 0 B に輸送できる。そのため、原料供給装置 3 0 B , 4 0 B にフロートセンサを設けなくても原料供給装置 3 0 B , 4 0 B に貯留される溶液 M 1 の液量を管理できる。その結果、フロートセンサの耐熱温度、ヒートサイクル耐久性、作動信頼性等、レベルセンサによる使用制限を受けることなく、原料供給装置 3 0 B , 4 0 B において溶液 M 1 を加熱して昇華させることができる。すなわち、原料供給装置 3 0 B , 4 0 B において、溶液 M 1 を加熱する温度等についての使用可能範囲を拡大できる。

## 【 0 0 6 8 】

また、原料供給システム 1 B によれば、容器 3 1 , 4 1 内の各々が多段に形成されている。これにより、バッファ装置 2 0 から容器 3 1 , 4 1 内に輸送される溶液は、仕切板 3 5 , 4 5 上、仕切板 3 6 , 4 6 上及び容器 3 1 , 4 1 の底面上に貯留される。そのため、容器 3 1 , 4 1 内で貯留される溶液の単位体積あたりの表面積である比表面積が大きくなるため、溶液から溶媒を除去する時間を短縮できる。また、溶液から溶媒を除去することにより形成された固体原料を昇華させて生成される反応性ガスの量を増やすことができる。

## 【 0 0 6 9 】

なお、第 3 の実施形態では、第 1 の実施形態の原料供給システム 1 の容器 3 1 , 4 1 内の各々が多段に形成されている場合を説明したが、本開示は、これに限定されない。例えば、第 2 の実施形態の原料供給システム 1 A の容器 3 1 , 4 1 内の各々が多段に形成されていてもよい。

## 【 0 0 7 0 】

なお、上記の実施形態において、バッファ装置 2 0 は第 1 の貯留部の一例であり、原料供給装置 3 0 , 3 0 A , 3 0 B , 4 0 , 4 0 A , 4 0 B は第 2 の貯留部の一例であり、フロートセンサ 2 2 は検知部の一例である。また、配管 L 1 0 , L 1 1 は排気ポートの一例であり、原料注入部 3 4 , 4 4 は注入部の一例である。制御装置 9 0 は制御部の一例である。

## 【 0 0 7 1 】

今回開示された実施形態はすべての点で例示であって制限的なものではないと考えられるべきである。上記の実施形態は、添付の請求の範囲及びその趣旨を逸脱することなく、様々な形態で省略、置換、変更されてもよい。

## 【 0 0 7 2 】

上記の実施形態において、溶液 M 1 から溶媒を除去することで形成される第 2 の固体原料 M 2 を昇華させて反応性ガスを生成し、生成した反応性ガスを用いて処理装置 5 0 で成膜を行うシステムを説明したが、本開示はこれに限定されない。例えば、溶液 M 1 に代えて、第 1 の固体原料を溶媒に分散させたスラリー (slurry)、第 1 の固体原料を溶媒に分散させたゾル (sol) 等の分散系 (dispersion) を用いることもできる。例えば、ゾルを用いることにより、溶液 M 1 やスラリーを用いるよりも高濃度なプリカーサを充填できる。なお、スラリーは、懸濁液 (suspension) とも称される。また、ゾルは、コロイド溶液 (colloidal solution) とも称される。

## 【 符号の説明 】

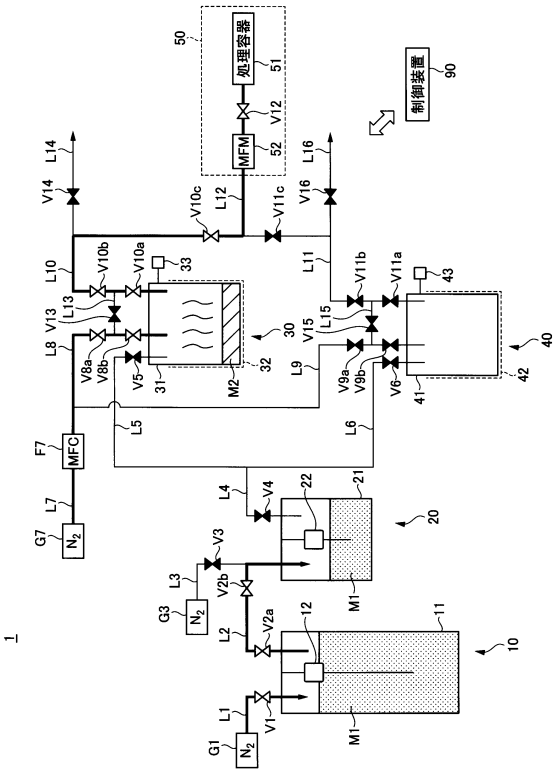
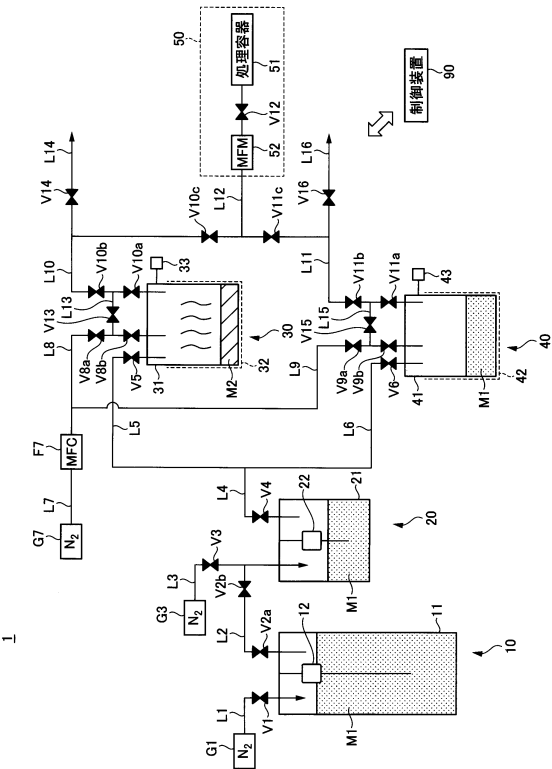
## 【 0 0 7 3 】

- 1, 1A, 1B 原料供給システム
- 20 バッファ装置
- 22 フロートセンサ
- 30, 30A, 30B, 40, 40A, 40B 原料供給装置
- 32, 42 加熱部

【図面】

【図 1】

【図 2】



10

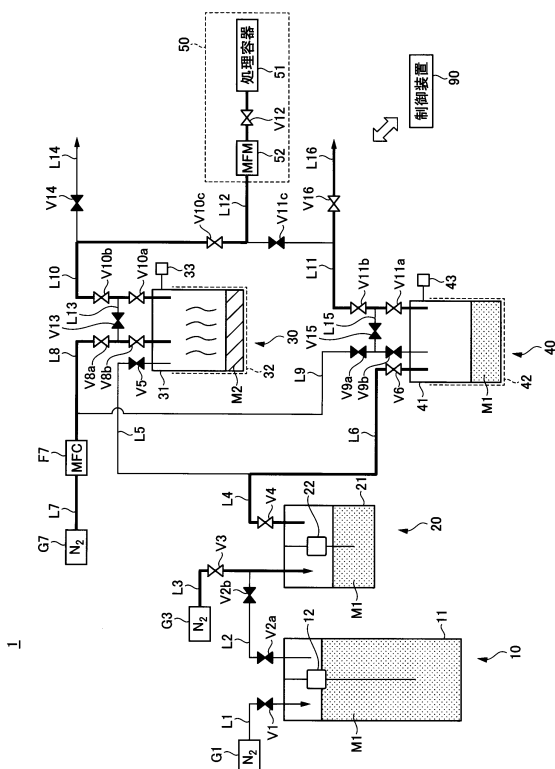
20

30

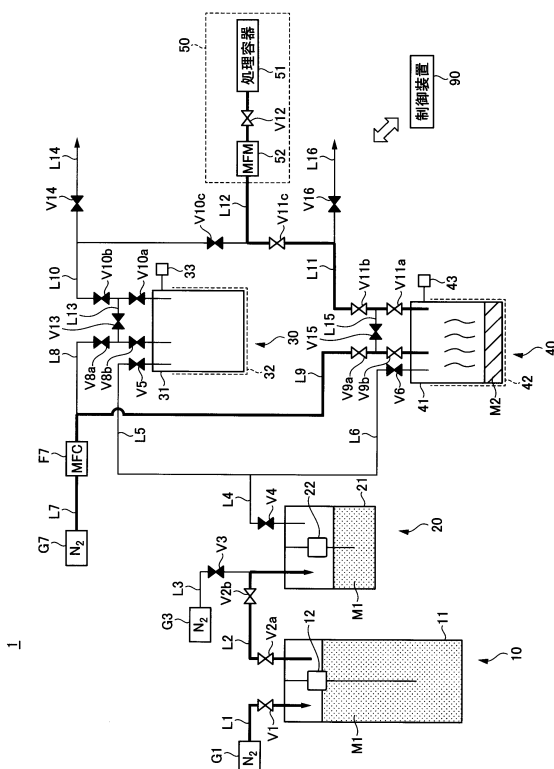
40

50

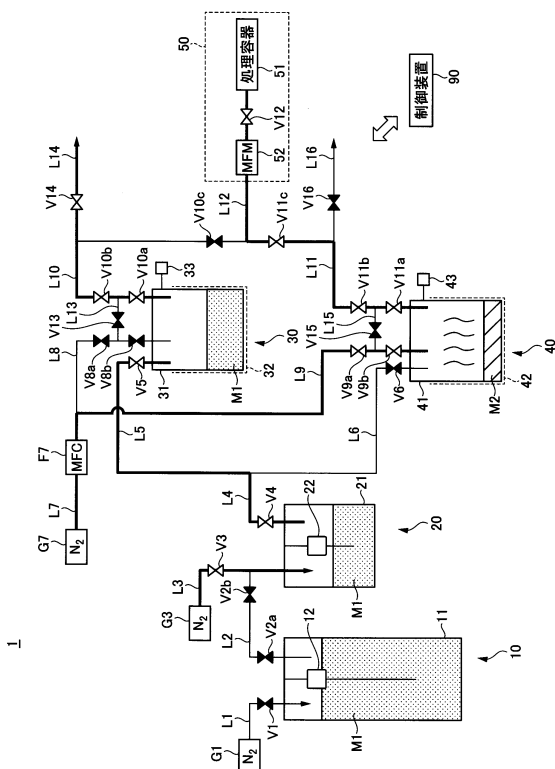
【 図 3 】



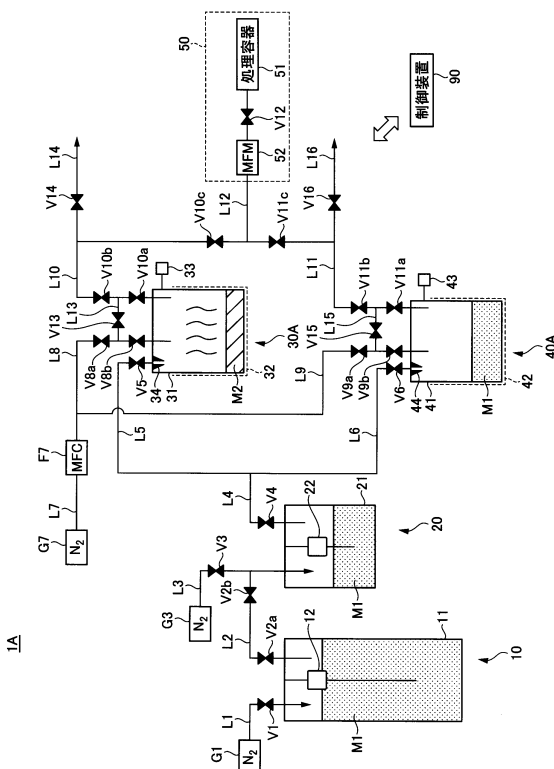
【圖 4】



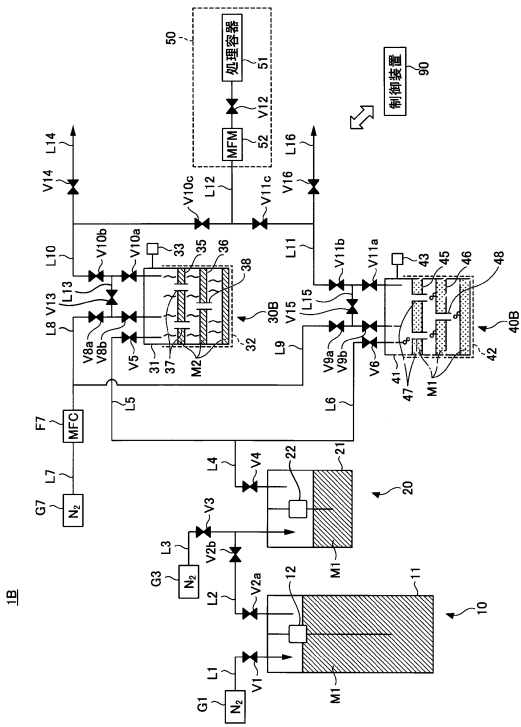
【圖 5】



【 図 6 】



【図 7】



10

20

30

40

50

---

フロントページの続き

- (56)参考文献 特開 2 0 0 4 - 1 1 5 8 3 1 ( J P , A )  
特開 2 0 0 4 - 1 1 1 7 8 7 ( J P , A )  
特開 2 0 0 5 - 2 5 6 1 0 7 ( J P , A )  
特開 2 0 1 6 - 1 9 1 1 4 0 ( J P , A )  
特開 2 0 0 5 - 2 1 7 0 8 9 ( J P , A )  
特開 2 0 1 5 - 1 1 0 8 3 7 ( J P , A )  
特表 2 0 0 8 - 5 2 2 0 2 9 ( J P , A )  
特開 2 0 0 7 - 3 1 4 8 6 3 ( J P , A )
- (58)調査した分野 (Int.Cl. , D B 名)  
C 2 3 C 1 6 / 4 4 8