

(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 3 月 14 日(14.03.2013)



(10) 国際公開番号

WO 2013/035232 A1

- (51) 国際特許分類:
H01L 21/205 (2006.01) C23C 16/455 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/004559
- (22) 国際出願日: 2012 年 7 月 17 日(17.07.2012)
- (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 2011-194285 2011 年 9 月 6 日(06.09.2011) 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).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 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). 平田 薫(HIRATA, Kaoru) [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

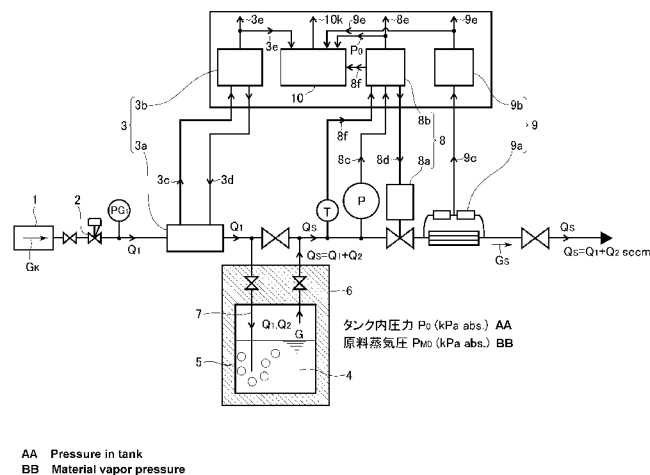
- (HIDAKA, Atsushi) [JP/JP]; 〒5500012 大阪府大阪市西区立売堀 2 丁目 3 番 2 号株式会社フジキン内 Osaka (JP). 西野 功二(NISHINO, Kouji) [JP/JP]; 〒5500012 大阪府大阪市西区立売堀 2 丁目 3 番 2 号株式会社フジキン内 Osaka (JP). 池田 信一(IKEDA, Nobukazu) [JP/JP]; 〒5500012 大阪府大阪市西区立売堀 2 丁目 3 番 2 号株式会社フジキン内 Osaka (JP). 中村 剛(NAKAMURA, Takeshi) [JP/JP]; 〒5500012 大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, 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, 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,

[続葉有]

(54) Title: MATERIAL VAPORIZATION SUPPLY DEVICE EQUIPPED WITH MATERIAL CONCENTRATION DETECTION MECHANISM

(54) 発明の名称: 原料濃度検出機構を備えた原料気化供給装置

[図1]



(57) Abstract: The purpose of the present invention is to accurately adjust the material concentration in gas mixture of carrier gas and material gas while making it possible to stably supply the gas mixture to a process chamber under highly accurate flow control, to simply and accurately detect the material gas vapor concentration in the gas mixture without using an expensive concentration meter and so forth, and to display the concentration in real time. The present invention provides a material vaporization supply device in which carrier gas (G_K) is supplied to a source tank (5) through a mass flow controller (3) and the carrier gas (G_K) is discharged from the source tank (5) while a gas mixture (G_S) of saturated vapor (G) of a material (4) generated by keeping the source tank (5) at a constant temperature with a thermostatic section and said carrier gas (G_K) is supplied to a process chamber. An automatic pressure control device (8) is provided at an outflow passage for the gas mixture (G_S) flowing from said source tank (5) while a mass flow meter (9) is provided on the downstream side of the automatic pressure control device (8). The opening and closing of a control valve (8a) of said automatic pressure control device (8) is controlled so as to keep an internal pressure (P_o) in the source tank (5) at a prescribed value. Detection values including the flow volume (Q_1) of the carrier gas (G_K) through said mass

[続葉有]

WO 2013/035232 A1



SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

- (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).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

flow controller (3), said tank internal pressure (P_o) and the flow volume (Q_s) of the gas mixture (G_s) through said mass flow meter (9) are input into a material concentration computation unit (10). The material concentration computation unit (10) calculates a material flow volume (Q_2) as $Q_2 = Q_s \times P_{MO}/P_o$ (where P_{MO} is the saturated vapor pressure of a material vapor (G) at source tank temperature $t^\circ\text{C}$). A material gas vapor concentration (K) in the gas mixture (G_s) supplied to said process chamber is calculated as $K = Q_2/Q_s$ using the material flow volume (Q_2) and displayed.

(57) 要約: 本発明は、キャリアガスと原料ガスとの混合ガス内の原料濃度を正確に調整しつつ、しかも高精度な流量制御の下でプロセスチャンバへ安定供給できるようにすると共に、混合ガス内の原料ガス蒸気濃度を高価な濃度計等を使用することなしに簡単に高精度で検出し、リアルタイムで表示できるようにする。本発明は、マスフローコントローラ 3 を通してキャリアガス G_K をソースタンク 5 内へ供給し、ソースタンク 5 内よりキャリアガス G_K を放出すると共に、ソースタンク 5 を恒温部により一定温度に保持して発生せしめた原料 4 の飽和蒸気 G と前記キャリアガス G_K との混合ガス G_s をプロセスチャンバへ供給するようにした原料気化供給装置において、前記ソースタンク 5 からの混合ガス G_s の流出通路に自動圧力調整装置 8 を設けると共にその下流側にマスフローメータ 9 を設け、前記自動圧力調整装置 8 のコントロールバルブ 8 a を開閉制御することによりソースタンク 5 の内部圧力 P_o を所定値に制御し、前記マスフローコントローラ 3 によるキャリアガス G_K の流量 Q_1 と前記タンク内圧 P_o と前記マスフローメータ 9 の混合ガス G_s の流量 Q_s の各検出値を原料濃度演算部 10 へ入力し、当該原料濃度演算部 10 に於いて原料の流量 Q_2 を $Q_2 = Q_s \times P_{MO}/P_o$ として演算し (但し、 P_{MO} はソースタンク内の温度 $t^\circ\text{C}$ に於ける原料蒸気 G の飽和蒸気圧)、当該原料流量 Q_2 を用いて前記プロセスチャンバへ供給する混合ガス G_s の原料ガス蒸気濃度 K を $K = Q_2/Q_s$ として演算、表示する。

明 細 書

発明の名称：原料濃度検出機構を備えた原料気化供給装置

技術分野

[0001] 本発明は、所謂有機金属気相成長方法（以下、MOCVD法と呼ぶ）による半導体製造装置用の原料気化供給装置の改良に関するものであり、プロセスチャンバへ供給する原料混合ガス内の原料濃度を高精度で迅速に制御することができると共に、原料ガス濃度をリアルタイムで表示できるようにした原料濃度検出機構を備えた原料気化供給装置に関するものである。

背景技術

[0002] 従前からこの種の半導体製造装置用原料気化供給装置としては、所謂バブリング方式を利用した原料気化供給装置が多く利用されているが、このバブリング方式の原料気化供給に於いては、原料気化供給装置の大幅な小型化、原料供給量の増大、キャリアガスと原料ガスとの混合比の迅速且つ高精度な制御及びチャンバへ供給する混合ガス内の原料ガス濃度を直接に表示すること等の実現が、強く要請されている。

[0003] そのため、このバブリング型原料気化供給装置に付いては各種の研究開発が進められており、例えば、プロセスチャンバへ供給する混合ガスの供給流量や混合ガス内の原料ガス濃度の制御の技術分野に於いては、特開平7-118862号や特許第4605790号等が公開されている。

[0004] 図6は前記特開平7-118862号に係る反応ガス制御方法の構成説明図を示すものであり、図6に於いて31は密閉タンク、32は加熱ヒータ、33はマスフローコントローラ、34は吹込みパイプ、35は取出しパイプ、36はマスフローメータ、 L_0 は液体原料（TEOS）、 G_K はキャリアガス（ N_2 ）、 G_m は混合ガス（ $G + G_K$ ）、 G は原料ガス、 Q_1 はキャリアガス流量、 Q_2 は原料ガス流量、 Q_s は混合ガス流量、37は流量設定回路、38aは濃度算出回路、38bは濃度設定回路、38cは電流制御回路、 Q_{s0} は設定流量、 K_{s0} は設定濃度である。

[0005] 本件発明は、液体原料 L_0 の温度制御により原料ガス G の発生流量 Q_2 を調整し、混合ガス G_m 内の原料ガス G の濃度を一定に保持せんとするのであるが、具体的には、マスフローメータ36からの混合ガス流量 Q_s 及びマスフローコントローラ33からのキャリアガス流量 Q_1 から原料ガスの発生流量 Q_2 を演算する。

また、この演算した Q_2 （原料ガスの発生流量）から、 Q_2/Q_s を求めることにより、混合ガス G_m 内の原料ガス濃度 K_s が演算される。

[0006] この演算した原料ガス濃度 K_s を濃度設定回路38bへ入力し、設定濃度 K_{s0} と対比して、両者の差分（ $K_{s0}-K_s$ ）を電流制御回路38cへフィードバックして $K_{s0}>K_s$ の場合にはヒータ32の温度を上昇させて原料ガス G の発生流量 Q_2 を増し、また、 $K_{s0}<K_s$ の場合にはヒータ温度を下降させて、発生流量 Q_2 を低下させる。

また、マスフローメータ36からの混合ガス流量 Q_s は流量設定回路37において設定混合ガス流量 Q_{s0} と比較され、両者の差分が0となるようにマスフローコントローラの流量 Q_1 が調整される。

[0007] しかし、上記図6に示した原料ガス濃度調整方法は、液体原料 L_0 の加熱によって原料ガス発生流量 Q_2 を増加（又は、液体原料 L_0 の温度低下によって原料ガス発生流量 Q_2 を減少）させるものであるため、濃度調整の応答性が極めて低く、特に、原料ガス濃度を低下させる場合にはその応答性が極端に低いと云う難点がある。

[0008] また、マスフローメータ（熱式流量計）36は、混合ガス G_m の混合ガス種や混合比が変わると流量測定値が大きく変動するため、図6の方法にあっては、混合ガス G_m のガス種が変わった場合やガス種が同一であっても混合比（原料ガス濃度）が大きく変化した場合には、流量 Q_s の測定精度が著しく低下するという問題がある。

[0009] 更に、液体原料 L_0 の加熱温度が変化すると密閉タンク31内の圧力が上昇し、必然的にマスフローメータ36の一次側圧力も変動する。その結果、マスフローメータ36の流量計測値に誤差を生ずることになり、流量制御精度

や原料ガス濃度の制御精度が低下するという問題がある。

[0010] 一方、図7は前記特許第4605790号に係る原料ガス供給装置の構成図であり、所定の原料ガス濃度の混合ガスを高い応答性をもって高精度で流量制御しつつプロセスチャンバへ供給出来るようにしたものである。

[0011] 図7において、21は密閉タンク、22は恒温装置、23はマスフローコントローラ、24は吹込みパイプ、25は取出しパイプ、26は密閉タンク用自動圧力調整器、26aは演算制御部、26bは制御弁、 L_o は液体原料、 G_k はキャリアガス、 Q_1 はキャリアガス流量、 G は原料ガス、 G_m は混合ガス($G + G_k$)、 Q_s は混合ガス流量である。

[0012] 当該原料ガス供給装置に於いては、先ず恒温装置22によって、密閉タンク21や密閉タンク用自動圧力調整器26の本体部及び配管ラインLが所定の温度に加熱され、これによって密閉タンク21の内部空間は原料の飽和蒸気(原料ガス)Gにより充満される。

また、マスフローコントローラ23により流量制御された流量 Q_1 のキャリアガス G_k が密閉タンク21の底部より放出され、このキャリアガス G_k と前記原料の飽和蒸気Gとの混合ガス G_m が、自動圧力調整装置26の制御弁26bを通して外部(プロセスチャンバ)へ供給されて行く。

[0013] 上記混合ガス G_m の流量 Q_s は、自動圧力調整器26によって密閉タンク21内の混合ガス圧力を制御することにより調整されており、自動圧力調整器26の演算制御部26aに於いて、設定流量 Q_{s0} と圧力計 P_o 及び温度計 T_o の計測値から演算した演算流量 Q_s とを比較し、両者の差分($Q_{s0} - Q_s$)が零になるように制御弁26bを開閉制御することにより、混合ガス G_m の供給流量 Q_s を設定流量 Q_{s0} に制御するものである。

[0014] 上記図7の原料ガス供給装置は、密閉タンクの内圧を調整することにより、液体原料 L_o の加熱温度に対応して定まる一定原料ガス濃度の混合ガス G_m を、高精度、高応答性の下に流量制御しつつ供給することができ、予め定められた一定の原料ガス濃度の混合ガスの流量制御に於いては、優れた効用を奏するものである。

[0015] しかし、当該原料ガス供給装置では、混合ガス G_m の流量 Q_s を高精度、高応答性でもって計測することが出来るものの、混合ガス G_m の原料ガス濃度を、高精度で計測し且つこれを表示することが出来ないと云う基本的な難点がある。勿論、密閉タンク21の加熱温度及びキャリアガス G_k の流量並びに原料液体 L_o の液面高さ等が判ると、混合ガス G_m 内の原料ガス濃度 K_s はある程度予測可能であるが、プロセスチャンバへ供給する混合ガス G_m 内の原料ガス濃度を連続して自動的に、しかも複雑且つ高価な濃度計等を用いることなくより安価に、経済的に計測、表示できるようにした技術は、未だ未開発の状態にある。

先行技術文献

特許文献

[0016] 特許文献1：特開平1－118862号公報

特許文献2：特許第4605790号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0017] 本願発明は特開平1－118862号や特許第4605790号の原料気化供給装置に於ける上述の如き問題、即ち、前者に於いては、（イ）液体原料 L_o の加熱又は冷却によって原料ガス発生流量 Q を増加（又は減少）させて混合ガス G_m 内の原料ガス濃度 K_s を調整するものであるため、原料ガス濃度の制御の応答性が相対的に低いうえ、これを高めるためには高価な附帯設備が必要となり、原料ガス供給装置の製造コストの高騰や大型化を招くこと、（ロ）混合ガス G_m の混合ガス種や混合比が変化すると、マスフローメータの流量測定値が大きく変動し、混合ガス流量 Q_s の計測精度の低下や原料濃度 K_s の演算精度が大幅に低下すること、（ハ）加熱温度の変化による密閉タンク31内の圧力変動により、マスフローメータ35の測定精度が低下し、流量 Q_s の計測値や原料濃度 K_s の演算精度が低下すること等の問題を、また、後者に於いては、（イ）混合ガス G_m 内の原料ガス濃度を高精度で計測し、これ

をリアルタイムで表示することが出来ないこと等の問題を、夫々解決することを発明の主目的とするものであり、プロセスチャンバへ供給するキャリアガス G_K と原料ガス G との混合ガス G_m 内の原料ガス濃度 K_S を連続して自動的に計測、表示することができ、しかも複雑高価な濃度計測装置等を用いることなく簡単な構成の安価な装置を用いることにより、極めて経済的に混合ガス G_m 内の原料ガスの濃度制御及び濃度表示を行えるようにした、原料濃度検出機構を備えた原料気化供給装置を提供するものである。

課題を解決するための手段

[0018] 請求項1の発明は、マスフローコントローラ3を通してキャリアガス G_K をソースタンク5内へ供給し、ソースタンク5内よりキャリアガス G_K を放出すると共に、ソースタンク5を恒温部6により一定温度に保持して発生せしめた原料4の飽和蒸気 G と前記キャリアガス G_K との混合ガス G_S をプロセスチャンバへ供給するようにした原料気化供給装置において、前記ソースタンク5からの混合ガス G_S の流出通路に自動圧力調整装置8およびマスフローメータ9を設け、前記自動圧力調整装置8のコントロールバルブ8aを開閉制御することによりソースタンク5の内部圧力 P_o を所定値に制御し、前記マスフローコントローラ3によるキャリアガス G_K の流量 Q_1 と前記タンク内圧 P_o と前記マスフローメータ9の混合ガス G_S の流量 Q_s の各検出値を原料濃度演算部10へ入力し、当該原料濃度演算部10に於いて原料の流量 Q_2 を $Q_2 = Q_s \times P_{Mo} / P_o$ として演算し（但し、 P_{Mo} はソースタンク内の温度 t ℃に於ける原料蒸気 G の飽和蒸気圧）、当該原料流量 Q_2 を用いて前記プロセスチャンバへ供給する混合ガス G_S の原料濃度 K を $K = Q_2 / Q_s$ として演算、表示する構成としたものである。

[0019] 請求項2の発明は、請求項1の発明において、原料濃度演算部10にソースタンク5内の原料の飽和蒸気圧データの記憶装置を設けると共に、自動圧力制御装置8からソースタンク5の内圧 P_o 及び温度 t の検出信号を原料濃度演算部10へ入力する構成としたものである。

[0020] 請求項3の発明は、マスフローコントローラ3を通してキャリアガス G_K を

ソースタンク 5 内へ供給し、ソースタンク 5 内よりキャリアガス G_K を放出すると共に、ソースタンク 5 を恒温部 6 により一定温度に保持して発生せしめた原料 4 の飽和蒸気 G と前記キャリアガス G_K との混合ガス G_S をプロセスチャンバへ供給するようにした原料気化供給装置において、前記ソースタンク 5 からの混合ガス G_S の流出通路に自動圧力調整装置 8 およびマスフローメータ 9 を設け、前記自動圧力調整装置 8 のコントロールバルブ 8 a を開閉制御することによりソースタンク 5 の内部圧力 P_0 を所定値に制御し、前記マスフローコントローラ 3 によるキャリアガス G_K の流量 Q_1 と前記タンク内圧 P_0 と前記マスフローメータ 9 の混合ガス G_S の流量 Q_S の各検出値を原料濃度演算部 10 へ入力し、当該原料濃度演算部 10 に於いて原料流量 Q_2 を $Q_2 = CF \times Q_S - Q_1$ (但し、 CF は混合ガス Q_2 のコンバージョンファクター) として求め、当該原料流量 Q_2 を用いてプロセスチャンバへ供給する混合ガス G_S の原料濃度 K を $K = Q_2 / (Q_1 + Q_2)$ として演算、表示する構成としたものである。

[0021] 請求項 4 の発明は、請求項 3 の発明において、混合ガス Q_S のコンバージョンファクター CF を、

$1 / CF = C / CF_A + (1 - C) / CF_B$ (但し、 CF_A はキャリアガス G_K のコンバージョンファクター、 CF_B は原料ガス G のコンバージョンファクター、 C はキャリアガスの容積比率 ($Q_1 / (Q_1 + Q_2)$) である) とするようにしたものである。

[0022] 請求項 5 の発明、請求項 1 又は請求項 3 の発明において、原料濃度検出部 10 とマスフローコントローラ 3 の流量演算制御部 3 b と自動制御装置の圧力演算制御部 8 b とマスフローメータ 9 の流量演算制御部 9 b とを一体的に集合化する構成としたものである。

[0023] 請求項 6 の発明は、請求項 3 の発明において、原料濃度演算部 10 にソースタンク内の原料ガス G のコンバージョンファクター及びキャリアガス G_K のコンバージョンファクターの各データの記憶装置を設けるようにしたものである。

[0024] 請求項 7 の発明は、請求項 1 から請求項 6 の何れかの発明において、自動圧力調整装置 8 の下流側にマスフローメータ 9 を設けるようにしたものである。

[0025] 請求項 8 の発明は、請求項 1 から請求項 6 の何れかの発明において、自動圧力調整装置 8 の上流側にマスフローメータ 9 を設けるようにしたものである。

[0026] 請求項 9 の発明は、請求項 1 から請求項 6 の何れかの発明において、自動圧力調整装置 8 を、温度検出器 T、圧力検出器 P、圧力検出器 P より下流側に設けたコントロールバルブ 8 a、圧力演算部 8 b を備えた圧力調整装置としたものである。

[0027] 請求項 10 の発明は、圧力検出器 P とコントロールバルブ 8 a との間にマスフローメータ 9 を設けるようにしたものである。

[0028] 本発明に於いては、原料気化供給装置に於いて、マスフローコントローラ 3 からのキャリアガス G_K の供給流量 Q_1 、マスフローメータ 9 からの混合ガス G_S の供給流量 Q_S 及びソースタンク内自動圧力調整装置 8 からのタンク内圧等を原料濃度演算部 10 へ入力し、当該原料濃度演算部 10 に於いて、一定圧力でチャンバへ混合ガス G_S を供給し乍ら供給する混合ガス G_S 内の原料ガス濃度 K をリアルタイムで演算表示する構成としているため、より安定した原料濃度 K の混合ガス G_S を供給することができると共に、混合ガス G_S 内の原料濃度 K をデジタル表示することができ、高品質の安定したプロセス処理を行うことが可能となる。

[0029] また、原料濃度演算部 10 を単に付加するだけでよいため、従前の所謂高価なガス濃度計を用いる場合に比較して、安価に且つ確実に混合ガス G_S 内の原料ガス濃度 K を検出、表示することができる。

図面の簡単な説明

[0030] [図1]本発明の第 1 実施形態に係る原料濃度検出機構を備えた原料気化供給装置の構成を示す系統図である。

[図2]原料ガス流量 Q_2 と混合ガス流量 Q_S とキャリアガス流量 Q_1 とソースタ

ンク圧力 P_o 及びソースタンク温度 t との関係を調査した試験装置の説明図である。

[図3]図2の試験装置を用いて測定したタンク内圧 P_o と混合ガス流量 Q_s 及び原料ガス流量 Q_2 とタンク温度 t の関係を示すものであり、(a)は混合ガス流量 Q_s の変化状態、(b)は原料ガス流量 Q_2 の変化状態を示すものである。

[図4]キャリアガス流量 Q_1 を一定とした場合の測定値(混合ガス流量 Q_s －キャリアガス流量 Q_1)と式(2)により計算した原料ガス流量 Q_2 の関係を示す線図である。

[図5]原料ガス供給系の簡略図である。

[図6]従前のバブリング方式の原料気化供給装置の一例を示す説明図である。
(特開平1－118862号公報)。

[図7]従前のバブリング方式による原料気化供給装置の他の例を示す説明図である(特許第4605790号公報)。

発明を実施するための形態

[0031] 以下、図面に基づいて本発明の各実施形態を説明する。

図1は本発明の第1実施形態に係る原料濃度検出機構を備えた原料気化供給装置の構成を示す系統図である。

[0032] 図1に於いて、1はキャリアガス供給源、2は減圧装置、3は熱式質量流量制御装置(マスフローコントローラ)、4は原料(有機金属化合物(MO材料)等)、5はソースタンク、6は恒温部、7は導入管、8はソースタンク内の自動圧力調整装置、9はマスフローメータ、10は原料濃度演算部、 Q_1 は A_r 等のキャリアガス流量、 Q_2 は原料飽和蒸気の流量(原料ガス流量)、 Q_s はキャリアガス流量 Q_1 と原料蒸気流量 Q_2 との混合ガス流量、 P は混合ガス G_s の圧力検出器、 T は混合ガス G_s の温度検出器、3aはマスフローコントローラのセンサ部、8aはピエゾ素子駆動型のコントロールバルブ、9aはマスフローメータのセンサ部であり、9bはその演算制御部である。前記マスフローコントローラ3はセンサ部3aと流量演算制御部3bとから

、また、前記ソースタンクの自動圧力調整器 8 はコントロールバルブ 8 a と圧力演算制御部 8 b と圧力検出器 P と温度検出器 T とから夫々形成されている。

[0033] 尚、キャリアガス G_K としては一般的に N_2 が用いられるが、 N_2 に限られることはなく、 H_2 、 Ar 等様々なガスが用いられる。また、原料としては有機金属化合物（MO 材料）が用いられるが、有機金属材料に限られることはなく、ソースタンク内において所定の飽和蒸気圧を得ることが可能な液体材料又は固体材料であれば良い。

[0034] 尚、上記マスフローコントローラ 3 は、公知のものであるから、ここではその詳細な説明は省略する。同様にソースタンクの自動圧力調整装置 8 も特許 4 6 0 5 7 9 0 号等に於いて公知のものであるから、ここではその詳細な説明は省略する。

[0035] また、図 1 に於いて、 G_K はキャリアガス、 G は原料蒸気（原料ガス）、 G_s は混合ガス、 P_o はソースタンク内圧（kPa abs.）、 P_{MO} はソースタンク内の原料蒸気圧（kPa abs.）、3 e は流量表示信号、8 d はコントロールバルブ制御信号、8 c は圧力検出信号、8 f は温度検出信号、8 e は圧力表示信号、9 c は混合ガス流量検出信号、9 e は混合ガス流量表示信号であり、前記キャリアガス G_K の流量 Q_1 の表示信号 3 e とマスフローメータ 9 の混合ガス G_s の流量 Q_s の表示信号 9 e が、原料濃度演算部 10 へ入力されここで混合ガス G_s 内の原料ガス濃度 K が演算され、表示される。尚、10_K は原料濃度表示信号である。

[0036] 尚、図 1 の実施形態では、マスフローコントローラ 3 の流量演算制御部 3 b、自動圧力調整装置 8 の圧力演算制御 8 b、マスフローメータ 9 の流量演算制御部 9 b 及び原料濃度演算部 10 を夫々一体として一つの基板に形成するようにしているが、各制御部 3 b、8 b、9 b 及び原料濃度演算部 10 を個別に設けるようにしても良いことは勿論である。

[0037] 次に、上記原料気化供給装置の作動について説明する。

当該原料の気化供給装置では、先ずソースタンク 5 内へ供給するキャリア

ガス G_K の圧力 P_{G_1} が減圧装置2により所定圧力値に設定されると共に、その供給流量 Q_1 が熱式質量流量制御装置（マスフローコントローラ）3により所定値に設定される。

また、恒温部6の作動により、ソースタンク5や自動圧力調整装置9の演算制御部8b等を除いた部分が一定温度に保持される。

[0038] このように、キャリアガス G_K の供給量 Q_1 が熱式質量流量制御装置3により設定値に、また、ソースタンク5の温度が設定値に、更にソースタンク5の内部圧力 P_0 が自動圧力調整装置8により設定値に夫々保持されることにより、コントロール弁8aを通して定混合比で一定流量の混合ガス G_S が、マスフローメータ9へ流入し、ここで混合ガス G_S の流量 Q_S が高精度で測定される。

[0039] 更に、ソースタンク5や自動圧力調整装置8のコントロール弁8a等が一定温度に保持されているため、ソースタンク5内の原料飽和蒸気 G の圧力 P_M が安定し、自動圧力調整装置8によってソースタンク5の内圧 P_0 を設定値に制御することにより、混合ガス G_S 内の原料ガス G の濃度 K を安定させながら、後述するように原料濃度演算部10において混合ガス G_S 内の原料ガス濃度 K を測定、表示することができる。

[0040] 而して、上記図1に示した原料気化供給装置に於いて、ソースタンク内圧 P_0 (kPa abs.)、原料蒸気圧 P_{M0} 、キャリアガス G_K の流量 Q_1 (sccm)、チャンバへ供給する混合ガス G_S の流量 Q_2 (sccm)、原料蒸気 G の流量 Q_2 (sccm) とすると、チャンバへの混合ガス G_S の供給流量 Q_S は、 $Q_S = Q_1 + Q_2$ (sccm) となる。

[0041] 即ち、原料の流量 Q_2 はソースタンク内の原料蒸気圧 P_{M0} に、また、混合ガス G_S の供給流量 $Q_S = Q_1 + Q_2$ はソースタンク内の内圧 P_0 に比例するため、下記の関係が成立する。原料の流量 Q_2 : 混合ガス供給流量 Q_S = 原料蒸気圧 P_{M0} : ソースタンク内圧 P_0 。

即ち、

[数1]

$$Q_2 \times P_O = Q_S \times P_{MO} \cdots (1)$$

(1) 式より、原料の流量 Q_2 は、

[数2]

$$Q_2 = Q_S \times P_{MO} / P_O \cdots (2)$$

となる。

[0042] 上記(2)式からも明らかなように、原料の流量 Q_2 は混合ガス流量 Q_S 、ソースタンクの圧力 P_O 、原料の蒸気圧(分圧) P_{MO} により決まり、またソースタンクの内圧 P_O はソースタンク内の温度 t により決まることとなる。

[0043] 換言すれば、混合ガス G_S 内の原料濃度 K は、キャリアガス流量 Q_1 、ソースタンクの内圧 P_O 、ソースタンク内の温度 t 等をパラメータとして決まることになる。

[0044] 尚、図1に於いては、自動圧力調整装置8の下流側にマスフローメータ9を設けているが、両者の位置を入れ換えしてマスフローメータ9の下流側に自動圧力調整装置8を設けるようにしても良い。また、圧力検出器Pとコントロールバルブ8aとの間にマスフローメータ9を設けるようにしても良い。

[0045] 図1のように自動圧力調整装置8をマスフローメータ9の上流側に設けた場合には、自動圧力調整装置8の制御圧とソースタンク内圧とが一致するため、タンク内圧を正確に制御することができるが、マスフローメータ9の供給圧が2次側(プロセスチャンバ側)の影響を受けると云う問題がある。

[0046] これに対して、マスフローメータ9を自動圧力調整装置8の上流側に設けた場合には、マスフローメータ9が自動圧力調整装置8の圧力制御範囲内に属することになり、マスフローメータ9への供給圧が安定して高精度な流量測定が可能となるものの、マスフローメータ9に圧力損失が生ずるため、自動圧力調整装置8の制御圧とソースタンク内圧との間に差異が生じることになる。

[0047] また、圧力検出器Pとコントロールバルブ8aとの間にマスフローメータ9が設けた場合には、自動圧力調整装置8の制御圧とソースタンク内圧とが一致し、且つマスフローメータ9が自動圧力調整装置8の圧力制御範囲内に属することになり、マスフローメータ9への供給圧が安定して高精度な流量測定が可能となるが、マスフローメータ9により、圧力検出器Pとコントロールバルブ8aとの間に圧力損失が生ずるため、圧力制御の応答性に影響を与えるという問題がある。

[0048] 図2は、上記(1)式及び(2)式の関係の成立を確認するために行った実験装置の説明図であり、原料4としてアセトン（蒸気圧曲線がTMGaに近い）、恒温部6としてウォーターバス、キャリアガスG_KとしてN₂を使用し、タンク温度tをパラメータ（-10℃、0℃、10℃、20℃）として、タンク内圧力P₀と混合ガスG_Sの流量Q_Sとの関係を調整した。

[0049] 図3は、図2の試験装置により実施したテストの結果を示すものであり、また、下記の表1は、前記式(2)を用いて原料アセトンとした場合の原料ガス流量Q₂を演算した結果である。

[表1]

原料アセトン キャリアガスN₂（50sccm）

恒温水槽温度(℃)		タンク圧力 P0 (kPa abs) 及び原料流量 Q (sccm)						
設定	測定	120	150	180	210	240	27	300
20	19.4	12.43	9.56	7.70	6.44	5.59	4.92	4.36
10	9.8	7.34	5.68	4.67	3.94	3.42	3.02	2.69
0	-0.5	4.12	3.25	2.67	2.27	1.99	1.77	1.57
-10	-11.0	2.21	1.74	1.44	1.23	1.08	0.96	0.86

[0050] 表2は、原料としたアセトンの蒸気圧と、一般的なMO材料であるTMGaの蒸気圧との比較を示すものであり、両者の蒸気圧は極く近似しているため、アセトンを用いた前記表1の計算値はTMGaを原料としたものを表すことができる。

[0051]

[表2]

アセトン蒸気圧

	kPa	Torr
-10	5.39	40.4
0	9.36	70.2
10	15.53	116.5
20	24.74	185.6
30	38.03	285.3
40	56.64	424.9
50	81.98	615.1

TMGa蒸気圧

	kPa	Torr
-10	5.20	39.0
0	8.97	67.3
10	14.91	111.8
20	23.92	179.4
30	37.21	279.1
40	56.26	422.0
50	82.93	622.0

[0052] 図4は、図2のテスト装置に於いて、キャリアガス流量 (Q_1) を一定とし、タンク温度 t ($-10^{\circ}\text{C} \sim 20^{\circ}\text{C}$) をパラメータとしてマスフローメータで測定した混合ガス G_s の N_2 換算検出流量 Q_s' とキャリアガス流量 Q_1 との差 $Q_s' - Q_1$ (即ち、 N_2 換算の原料ガス流量 $Q_2' = Q_s' - Q_1$) と、前記式 (2) により計算したアセトン流量 (Q_2 sccm) との関係を図示したものであり、(a) はキャリアガス流量 $Q_1 = 50$ sccm の場合、(b) は $Q_1 = 100$ sccm の場合、(c) は $Q_1 = 10$ sccm の場合を示すものである。

[0053] 図4の (a) ~ (c) から明らかなように、マスフローメータによる測定値 (混合ガス流量 $Q_s' -$ キャリアガス流量 Q_1) と計算したアセトン流量 Q_2 との間には正比例関係が認められる。その結果、キャリアガス流量 Q_1 をマスフローコントローラ3により、また、マスフローメータ9により混合ガス流量 Q_s を夫々測定し、 $Q_s - Q_1$ を求めることにより、原料ガス流量 Q_2 を算出することが可能となる。

[0054] 次に、原料ガス流量 Q_2 並びに混合ガス G_s 内の原料ガス G の濃度 K の算定について説明する。

いま、原料ガス供給系を図5のように表現すると、濃度 K に相当する流量 Q_2 の原料ガス G と流量 Q_1 のキャリアガス $G_K (N_2)$ (即ち、 $Q_2 + Q_1$ sccm) をマスフローメータ9へ供給した際の混合ガス G_s の検出流量 (N_2 換算) を Q_s' (sccm) とすると、原料ガス流量 Q_2 及び混合ガス内の原料ガス濃度 K は下式より求められる。

[0055] [数3]

$$\text{原料ガス流量 } Q_2 (\text{sccm}) = \text{混合ガスの C.F.} \times \frac{\text{検出流量 (N}_2\text{換算)}}{Q_{s'} (\text{sccm})} - \text{キャリアガス流量 } Q_1 (\text{sccm}) \quad \dots (3)$$

[数4]

$$\text{原料ガス濃度 } K = \frac{\text{原料ガス流量 } Q_2 (\text{sccm})}{\text{キャリアガス流量 } Q_1 (\text{sccm}) + \text{原料ガス流量 } Q_2 (\text{sccm})} \quad \dots (4)$$

[0056] 上記式 (3) に於ける C F は、熱式質量流量計に於ける所謂混合ガス G_s のコンバージョンファクターであり、下記の式 (5) により求められる。

[数5]

$$1 / C F = C / C F_A + (1 - C) / C F_B \quad \dots (5)$$

但し、式 (5) に於いて C F_A はガス A のコンバージョンファクター、C F_B はガス B のコンバージョンファクター、C はガス A の容積比率 (濃度)、(1 - C) はガス B の容積比率 (濃度) である (流量計測 A t o Z、日本計量機器工業連合会編、工業技術社発光 (176 ~ 178 頁))。

[0057] 今、図 5 に於いて、キャリアガス G_K (N₂) の C F_A を 1、原料ガス G の C F_B を α とすると、原料ガス濃度は Q₂ / (Q₁ + Q₂)、キャリアガス濃度は Q₁ / (Q₁ + Q₂) となり、混合ガス Q₂ の C F は、(5) 式より

[数6]

$$\frac{1}{C F} = \frac{1}{1} \times \frac{Q_1}{Q_1 + Q_2} + \frac{1}{\alpha} \cdot \frac{Q_2}{Q_1 + Q_2} = \frac{\alpha Q_1 + Q_2}{\alpha (Q_1 + Q_2)}$$

となり、

[数7]

$$C F = \frac{\alpha (Q_1 + Q_2)}{\alpha Q_1 + Q_2}$$

となる。

従って、マスフローメータ 9 で検出された混合ガス G_s の N₂ 換算検出流量 Q_{s'} は、

[数8]

$$Q_s' = \frac{Q_1 + Q_2}{CF} = (Q_1 + Q_2) \times (\alpha Q_1 + Q_2) / \alpha (Q_1 + Q_2) = (\alpha Q_1 + Q_2) / \alpha = Q_1 + \frac{Q_2}{\alpha}$$

となる。

これにより、原料ガスGの流量 Q_2 は $Q_2 = \alpha (Q_s' - Q_1)$ として求められる。但し、ここで α は上記原料ガスGのコンバージョンファクターである。

[0058] 下記の表3は、前記(5)式で求めたコンバージョンファクターCFを用いて計算した原料ガス流量 Q_2 と、前記(1)及び(2)式を用いて演算した原料ガス流量 Q_2 との対比をした結果を示すものであり、(1)・(2)式で算出した値と、(5)式で算出した値とは、よく合致するものであることが判る。

尚、表1では原料ガスGとしてアセトン、キャリアガス G_K として N_2 を流量 $Q_1 = 500 \text{ sccm}$ で供給し、温度 t をパラメータにして計算をしており、(1)・(2)式の圧力比から求めた原料ガス流量 Q_2 と(5)式のコンバージョンファクターCFより求めた原料ガス流量 Q_2 は近似した流量値となっている。

[0059] [表3]

アセトンの CF:0.341、恒温水槽 20℃設定、N2 流量 50sccm

RT	℃	24.0	24.0	23.9	23.9	24.0	24.1	23.9
タンク温度	℃	19.2	19.4	19.3	19.3	19.4	19.5	19.4
アセトン蒸気圧	kPaabs	23.9	24.0	24.0	23.9	24.1	24.1	24.0
N2 流量	sccm	50.1	50.1	50.1	50.1	50.1	50.1	50.1
タンク内圧力	kPaabs	120	150	180	210	240	270	300
濃度	%	19.9%	16.0%	13.3%	11.4%	10.0%	8.39%	8.0%
混合ガスGsの 検出流量(N ₂ 換 算): Q _s '	AVE	sccm	88.4	79.6	73.9	70.2	67.6	63.8
	MAX	sccm	89.1	80.2	74.7	70.7	68.2	64.4
	MIN	sccm	87.8	78.9	73.2	69.6	67.1	63.3
原料ガス流量(N ₂ 換算): Q ₂ '	sccm	38.3	29.5	23.8	20.1	17.5	15.3	13.7
計算アセトン流量(2式)	sccm	12.43	9.56	7.70	6.44	5.59	4.92	4.32
混合ガスCF	—	0.869	0.894	0.912	0.925	0.934	0.941	0.947
計量アセトン流量(5式)	sccm	13.08	10.05	8.13	6.86	5.98	5.23	4.68

[0060] 下記の表4、表5、表6は、圧力比(式(1)・(2))を用いて求めたアセトン流量と、コンバージョンファクターCF(式5)を用いて求めたア

セトン流量の対比を示すものであり、キャリアガス G_K としての N_2 流量 Q_1 を変えた場合を夫々示している。

[0061] [表4]

100sccm 20°C

タンク内圧力 P_o	kPaabs	120	150	180	210	240	270	300
分圧アセトン流量	sccm	24.99	19.06	15.46	13.00	11.19	9.83	8.76
CF アセトン流量	sccm	25.91	19.83	16.06	13.60	11.63	10.22	9.10

100sccm 10°C

タンク内圧力 P_o	kPaabs	120	150	180	210	240	270	300
分圧アセトン流量	sccm	14.46	11.34	9.30	7.87	6.80	6.03	5.37
CF アセトン流量	sccm	14.99	11.67	9.55	8.08	6.98	6.18	5.55

100sccm 0°C

タンク内圧力 P_o	kPaabs	120	150	180	210	240	270	300
分圧アセトン流量	sccm	8.30	6.61	5.38	4.62	4.01	3.59	3.21
CF アセトン流量	sccm	8.42	6.64	5.48	4.64	4.02	3.59	3.25

100sccm -10°C

タンク内圧力 P_o	kPaabs	120	150	180	210	240	270	300
分圧アセトン流量	sccm	4.36	3.46	2.84	2.43	2.12	1.88	1.70
CF アセトン流量	sccm	4.37	3.43	2.80	2.42	2.06	1.87	1.67

[0062] [表5]

 N_2 流量 : 50sccm

50sccm 20°C

タンク内圧力 P_o	kPaabs	120	150	180	210	240	270	300
分圧アセトン流量	sccm	12.43	9.56	7.70	6.44	5.59	4.92	4.36
CF アセトン流量	sccm	13.08	10.05	8.13	6.86	5.98	5.23	4.68

50sccm 10°C

タンク内圧力 P_o	kPaabs	120	150	180	210	240	270	300
分圧アセトン流量	sccm	7.34	5.68	4.67	3.94	3.42	3.02	2.69
CF アセトン流量	sccm	7.69	6.01	4.93	4.18	3.64	3.24	2.88

50sccm 0°C

タンク内圧力 P_o	kPaabs	120	150	180	210	240	270	300
分圧アセトン流量	sccm	4.12	3.25	2.67	2.27	1.99	1.77	1.57
CF アセトン流量	sccm	4.39	3.43	2.83	2.42	2.12	1.86	1.69

50sccm -10°C

タンク内圧力 P_o	kPaabs	120	150	180	210	240	270	300
分圧アセトン流量	sccm	2.21	1.74	1.44	1.23	1.08	0.96	0.86
CF アセトン流量	sccm	2.35	1.91	1.53	1.33	1.17	1.08	0.94

[0063] [表6]

N₂ 流量 : 10sccm

10sccm 20°C

タンク内圧力 Po	kPaabs	120	150	180	210	240	270	300
分圧アセトン流量	sccm	2.53	1.93	1.56	1.30	1.13	0.99	0.88
CF アセトン流量	sccm	2.84	2.21	1.80	1.53	1.35	1.18	1.05

10sccm 10°C

タンク内圧力 Po	kPaabs	120	150	180	210	240	270	300
分圧アセトン流量	sccm	1.48	1.16	0.94	0.80	0.69	0.61	0.54
CF アセトン流量	sccm	1.68	1.34	1.11	0.96	0.86	0.76	0.70

10sccm 0°C

タンク内圧力 Po	kPaabs	120	150	180	210	240	270	300
分圧アセトン流量	sccm	0.83	0.65	0.54	0.48	0.40	0.35	0.32
CF アセトン流量	sccm	0.93	0.73	0.60	0.54	0.46	0.42	0.38

10sccm -10°C

タンク内圧力 Po	kPaabs	120	150	180	210	240	270	300
分圧アセトン流量	sccm	0.45	0.35	0.29	0.25	0.22	0.19	0.17
CF アセトン流量	sccm	0.55	0.50	0.50	0.41	0.34	0.30	0.30

[0064] 上記の説明からも明らかなように、式（１）、（２）をベースにした分圧法により原料ガス蒸気流量 Q_2 及び原料ガス蒸気濃度 K を求める場合には、図 1 に示したマスフローコントローラ 3 からの流量計測値 Q_1 、自動圧力調整装置 8 からのタンク内圧力 P_o の計測値及びマスフローメータ 9 からの流量測定値 Q_s' の他に原料材料の蒸気圧曲線（温度 t と蒸気圧 P_{Mo} の関係）を必要とすることは勿論であり、図 1 の原料濃度演算部 10 に原料 4 の温度 t と蒸気 P_{Mo} の曲線を予め記憶させて置く必要があることは勿論である。

[0065] また、式（５）の CF 法を用いて原料ガス流量 Q_2 及び原料ガス蒸気濃度 K を求める場合に於いても、予め各種原料ガス各種混合ガス G_s に対するコンバージョンファクター CF をテーブル化しておくのが望ましい。

[0066] 尚、前述した原料ガス蒸気流量 Q_2 や原料ガス蒸気濃度 K の演算並びに表示等は、全て図 1 の原料濃度演算部 10 で CPU 等を用いて行われることは勿論である。

又、原料ガス蒸気濃度 K そのもの上昇又は下降がタンク圧力 P_o 及び又はタンク温度 t の制御により可能なことは勿論である。

産業上の利用可能性

[0067] 本発明は、MOCVD法やCVD法に用いる原料気化供給装置としてだけでなく、半導体や化学品製造装置等において、加圧貯留源からプロセスチャンバへ気体を供給する構成の全ての気体供給装置に適用することができる。

符号の説明

[0068] 1はキャリアガス供給源
2は減圧装置
3は質量流量制御装置
3aはマスフローコントローラのセンサ部
3bはマスフローコントローラの流量演算制御部
3eは流量表示信号
4は原料（有機金属化合物等のMO材料）
5はソースタンク（容器）
6は恒温部
7は導入管
8はソースタンク内の自動圧力調整装置
8aはコントロールバルブ
8bは圧力演算制御部
8cは圧力検出信号
8dはコントロールバルブ制御信号
8eは圧力表示信号
8fは温度検出信号
9はマスフローメータ
9aはマスフローメータのセンサ部
9bはマスフローメータの演算制御部
9cは混合ガス流量検出信号
9eは混合ガス流量の表示信号
10は原料濃度演算部

$1\ O_K$ は濃度検出信号

$C\ F$ は混合ガスのコンバージョンファクター

$C\ F_A$ はガス A のコンバージョンファクター

$C\ F_B$ はガス B のコンバージョンファクター

C はガス A の容積比率

G_K はキャリアガス

G は原料ガス

G_S は混合ガス

P_0 はソースタンク内圧

$P\ M_0$ はソースタンク内の原料蒸気分圧力

Q_1 はキャリアガス流量

Q_S は混合ガス流量

Q_S' はマスフローメータの検出流量 (N_2 換算)

Q_2 は原料ガス流量

Q_2' は原料ガス流量 (N_2 換算)

K は原料ガス蒸気濃度

P は圧力計

T は温度計

t はタンク温度 (原料温度)

請求の範囲

[請求項1]

マスフローコントローラ3を通してキャリアガス G_K をソースタンク5内へ供給し、ソースタンク5内よりキャリアガス G_K を放出すると共に、ソースタンク5を恒温部6により一定温度に保持して発生せしめた原料4の飽和蒸気 G と前記キャリアガス G_K との混合ガス G_S をプロセスチャンバへ供給するようにした原料気化供給装置において、前記ソースタンク5からの混合ガス G_S の流出通路に自動圧力調整装置8およびマスフローメータ9を設け、前記自動圧力調整装置8のコントロールバルブ8aを開閉制御することによりソースタンク5の内部圧力 P_o を所定値に制御し、前記マスフローコントローラ3によるキャリアガス G_K の流量 Q_1 と前記タンク内圧 P_o と前記マスフローメータ9の混合ガス G_S の流量 Q_s の各検出値を原料濃度演算部10へ入力し、当該原料濃度演算部10に於いて原料流量 Q_2 を $Q_2 = Q_s \times P_{Mo} / P_o$ として演算し（但し、 P_{Mo} はソースタンク内の温度 t ℃に於ける原料ガス G の飽和蒸気圧）、当該原料流量 Q_2 を用いて前記プロセスチャンバへ供給する混合ガス G_S の原料濃度 K を $K = Q_2 / Q_s$ として演算、表示する構成としたことを特徴とする原料濃度検出機構を備えた原料気化供給装置。

[請求項2]

原料濃度演算部10にソースタンク5内の原料の飽和蒸気圧データの記憶装置を設けると共に、自動圧力制御装置8からソースタンク5の内圧 P_o 及び温度 t の検出信号を原料濃度演算部10へ入力する構成とした請求項1に記載の原料濃度検出機構を備えた原料気化供給装置。

[請求項3]

マスフローコントローラ3を通してキャリアガス G_K をソースタンク5内へ供給し、ソースタンク5内よりキャリアガス G_K を放出すると共に、ソースタンク5を恒温部6により一定温度に保持して発生せしめた原料4の飽和蒸気 G と前記キャリアガス G_K との混合ガス G_S をプロセスチャンバへ供給するようにした原料気化供給装置において

、前記ソースタンク 5 からの混合ガス G_s の流出通路に自動圧力調整装置 8 およびマスフローメータ 9 を設け、前記自動圧力調整装置 8 のコントロールバルブ 8 a を開閉制御することによりソースタンク 5 の内部圧力 P_o を所定値に制御し、前記マスフローコントローラ 3 によるキャリアガス G_k の流量 Q_1 と前記タンク内圧 P_o と前記マスフローメータ 9 の混合ガス G_s の流量 Q_s の検出値とを原料濃度演算部 10 へ入力し、当該原料濃度演算部 10 に於いて原料流量 Q_2 を $Q_2 = CF \times Q_s' - Q_1$ (但し、 CF は混合ガス Q_s のコンバージョンファクター) として求め、当該原料流量 Q_2 を用いてプロセスチャンバへ供給する混合ガス G_s の原料濃度 K を $K = Q_2 / (Q_1 + Q_2)$ として演算、表示する構成としたことを特徴とする原料濃度検出機構を備えた原料気化供給装置。

[請求項4] 混合ガス Q_2 のコンバージョンファクター CF を、
 $1 / CF = C / CF_A + (1 - C) / CF_B$ (但し、 CF_A はキャリアガス G_k のコンバージョンファクター、 CF_B は原料ガス G のコンバージョンファクター、 C はキャリアガスの容積比率 ($Q_1 / (Q_1 + Q_2)$) である) とするようにした請求項 3 に記載の原料濃度検出機構を備えた原料気化供給装置。

[請求項5] 原料濃度検出部 10 とマスフローコントローラ 3 の流量演算制御部 3 b と自動制御装置の圧力演算制御部 8 b とマスフローメータ 9 の流量演算制御部 9 b とを一体的に集合化する構成とした請求項 1 又は請求項 3 に記載の原料濃度検出機構を備えた原料気化供給装置。

[請求項6] 原料濃度演算部 10 にソースタンク内の原料ガス G のコンバージョンファクター及びキャリアガス G_k のコンバージョンファクターの各データの記憶装置を設けるようにした請求項 3 に記載の原料濃度検出機構を備えた原料気化供給装置。

[請求項7] 自動圧力調整装置 8 の下流側にマスフローメータ 9 を設けるようにした請求項 1 から請求項 6 の何れかに記載の原料濃度検出機構を備え

た原料気化供給装置。

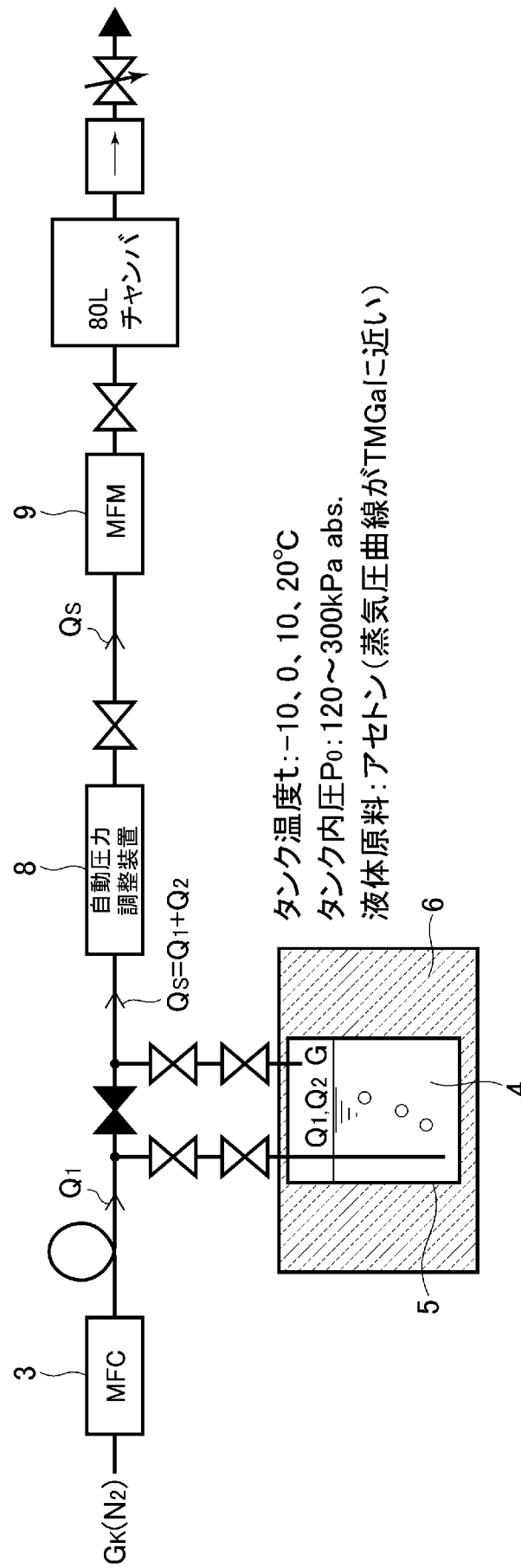
[請求項8] 自動圧力調整装置 8 の上流側にマスフローメータ 9 を設けるようにした請求項 1 から請求項 6 の何れかに記載の原料濃度検出機構を備えた原料気化供給装置。

[請求項9] 自動圧力調整装置 8 が、温度検出器 T、圧力検出器 P、圧力検出器 P より下流側に設けられたコントロールバルブ 8 a、圧力演算部 8 b を備えた圧力調整装置である、請求項 1 から請求項 6 の何れかに記載の原料濃度検出機構を備えた原料気化供給装置。

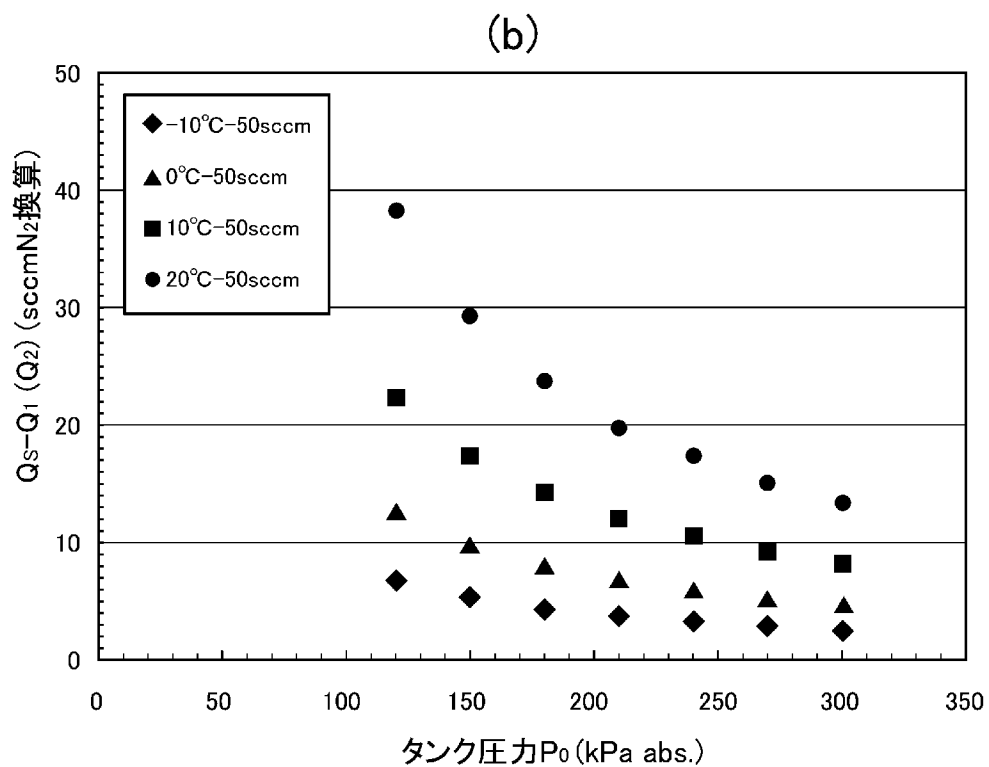
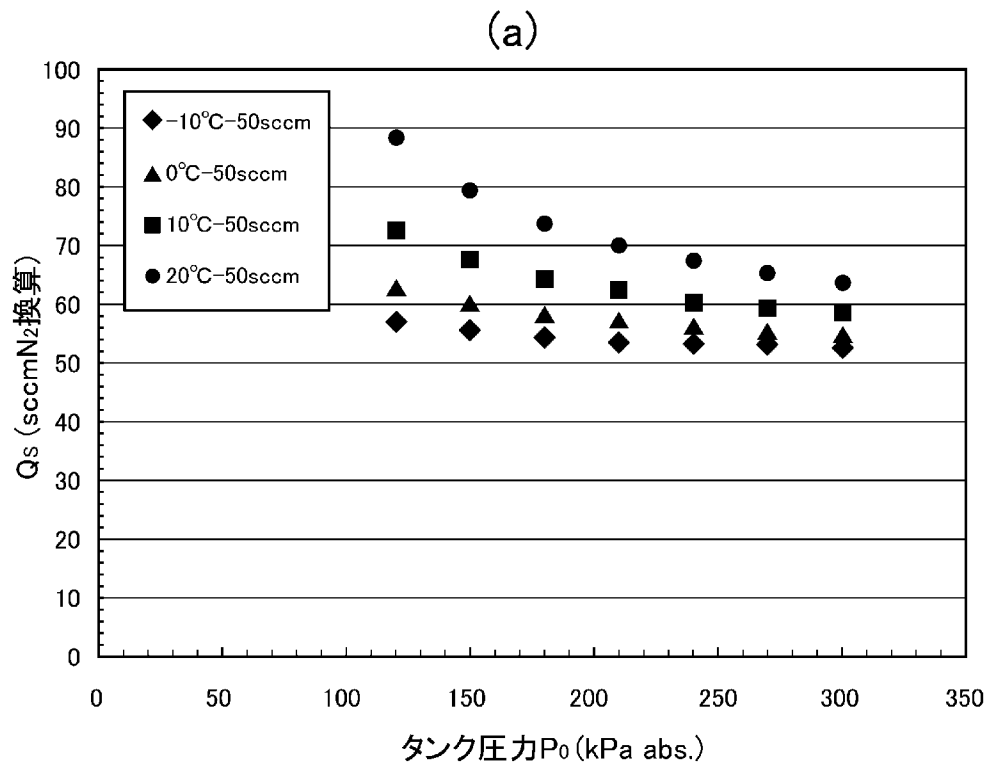
[請求項10] 圧力検出器 P とコントロールバルブ 8 a との間にマスフローメータ 9 を設けるようにした請求項 9 に記載の原料濃度検出機構を備えた原料気化供給装置。

[illegible]

[図2]



[図3]

タンク内圧 P_0 と混合ガス流量 Q_s (キャリアガス N_2 流量 $Q_1=50\text{sccm}$) (原料 アセトン)

[図4]

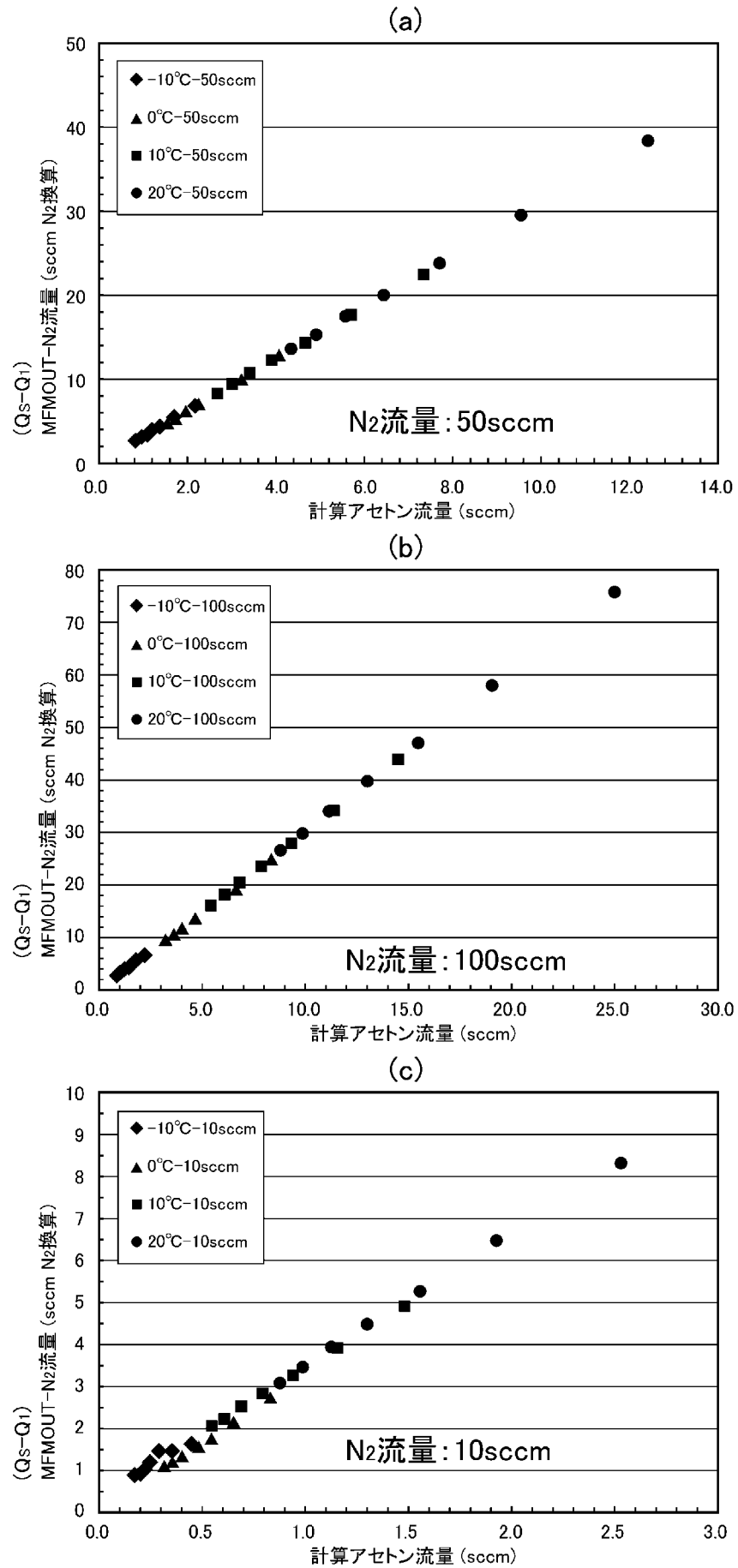
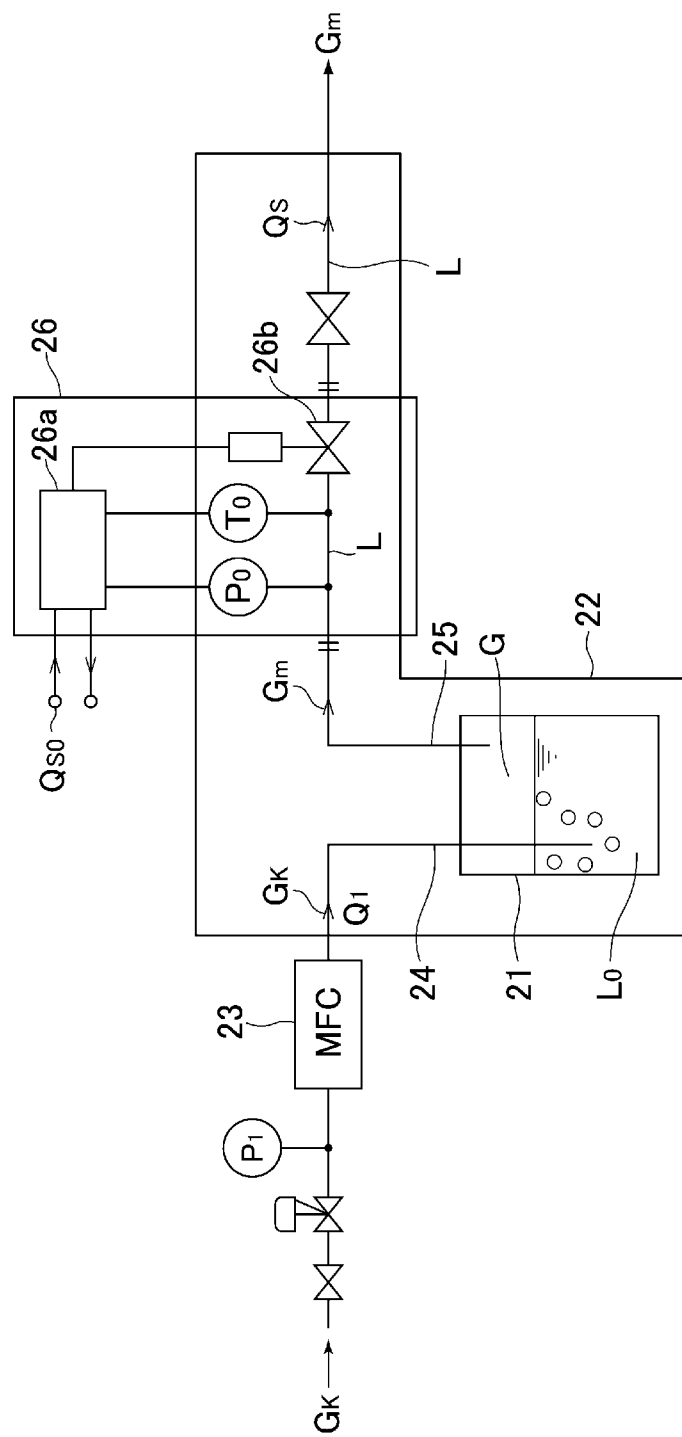


Figure 1 is a schematic diagram of a plasma processing apparatus. The system includes a gas supply section (33) providing $G_k(N_2)$ to an MFC (34), which outputs Q_1 to a reactor (31). The reactor (31) contains a substrate L_0 (TEOS) and a gas inlet G_k+G . The reactor is connected to an MFM (36) which outputs Q_s to a gas outlet (35). The MFM (36) is connected to a control system (37) which includes a flow rate setting circuit (37a), a current control circuit (38c), a concentration setting circuit (38b), and a concentration calculation circuit (38a). The control system also receives feedback from the reactor (32) and the MFM (36). The overall gain is defined as $K_s = \frac{Q_s - Q_1}{Q_s} = \frac{Q_2}{Q_s}$.



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/004559

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01L21/205(2006.01) i, C23C16/455(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, C23C16/455

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.
A	JP 2004-256864 A (Kabushiki Kaisha Benesoru), 16 September 2004 (16.09.2004), paragraphs [0010] to [0025]; fig. 1 to 2 (Family: none)	1-10
A	JP 2004-091917 A (Tokyo Electron Ltd.), 25 March 2004 (25.03.2004), paragraphs [0027] to [0104]; fig. 2 to 6, 8 to 13 & US 2004/0007180 A1 & TW 261291 B & KR 10-2004-0005702 A	1-10
A	JP 2003-286573 A (Horiba, Ltd.), 10 October 2003 (10.10.2003), paragraphs [0032] to [0065]; fig. 2 (Family: none)	1-10

☒ 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
06 August, 2012 (06.08.12)Date of mailing of the international search report
14 August, 2012 (14.08.12)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/004559

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 2009-076807 A (Fujikin Inc.), 09 April 2009 (09.04.2009), paragraphs [0023] to [0036]; fig. 1 to 3 & US 2010/0192854 A1 & WO 2009/040973 A1 & KR 10-2010-0032910 A & CN 101809712 A & TW 200933704 A	1-10
A	JP 2001-258184 A (Fuji Xerox Co., Ltd.), 21 September 2001 (21.09.2001), paragraphs [0015] to [0069] (Family: none)	3, 4, 6
A	JP 2007-250803 A (Hitachi Kokusai Electric Inc.), 27 September 2007 (27.09.2007), paragraphs [0014] to [0032]; fig. 2 (Family: none)	3, 4, 6
A	JP 06-104155 A (MC Electronics Kabushiki Kaisha), 15 April 1994 (15.04.1994), paragraphs [0008] to [0051]; fig. 1 to 2 (Family: none)	3, 4, 6

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, C23C16/455 (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, C23C16/455

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	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2012年
日本国実用新案登録公報	1996-2012年
日本国登録実用新案公報	1994-2012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 2004-256864 A (株式会社ベネソル) 2004.09.16, 段落【0010】 - 【0025】, 図 1-2 (ファミリーなし)	1-10
A	JP 2004-091917 A (東京エレクトロン株式会社) 2004.03.25, 段落【0027】 - 【0104】, 図 2-6, 8-13 & US 2004/0007180 A1 & TW 261291 B & KR 10-2004-0005702 A	1-10

☒ 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	の日の後に公表された文献
「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	「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
「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	「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
「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)	「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
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」同一パテントファミリー文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	

国際調査を完了した日
06.08.2012

国際調査報告の発送日
14.08.2012

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 100-8915
 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)	4 R	3760
宮本 靖史		
電話番号 03-3581-1101 内線 3471		

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 2003-286573 A (株式会社堀場製作所) 2003. 10. 10, 段落【0032】－【0065】, 図 2 (ファミリーなし)	1-10
A	JP 2009-076807 A (株式会社フジキン) 2009. 04. 09, 段落【0023】－【0036】, 図 1-3 & US 2010/0192854 A1 & WO 2009/040973 A1 & KR 10-2010-0032910 A & CN 101809712 A & TW 200933704 A	1-10
A	JP 2001-258184 A (富士ゼロックス株式会社) 2001. 09. 21, 段落【0015】－【0069】 (ファミリーなし)	3, 4, 6
A	JP 2007-250803 A (株式会社日立国際電気) 2007. 09. 27, 段落【0014】－【0032】, 図 2 (ファミリーなし)	3, 4, 6
A	JP 06-104155 A (エム・シー・エレクトロニクス株式会社) 1994. 04. 15, 段落【0008】－【0051】, 図 1-2 (ファミリーなし)	3, 4, 6