

(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
2022年3月31日(31.03.2022)



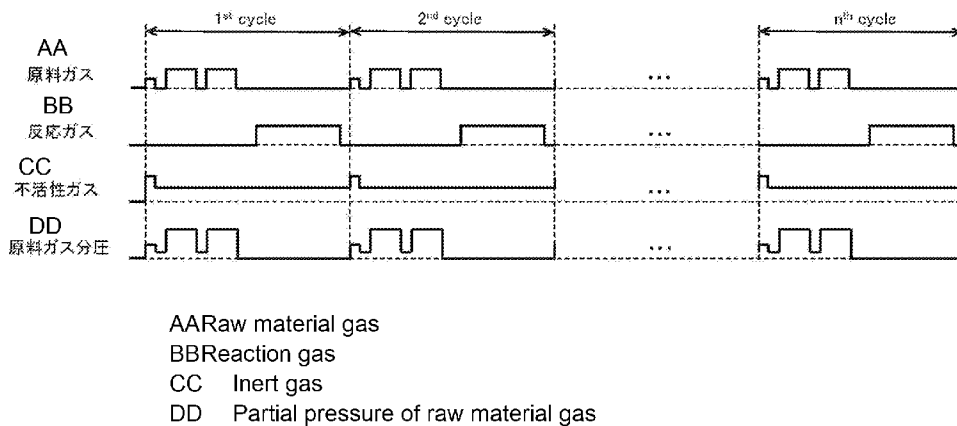
(10) 国際公開番号
WO 2022/064600 A1

- (51) 国際特許分類:
H01L 21/31 (2006.01) C23C 16/455 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2020/036041
- (22) 国際出願日: 2020年9月24日(24.09.2020)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (71) 出願人:株式会社 KOKUSAI ELECTRIC (KOKUSAI ELECTRIC CORPORATION) [JP/JP]; 〒1010045 東京都千代田区神田鍛冶町三丁目4番地 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 花島 建夫 (HANASHIMA Takeo); 〒9392393 富山県富山市八尾町保内二丁目1番地 株式会社 KOKUSAI ELECTRIC
- R I C 内 Toyama (JP). 石橋 清久 (ISHIBASHI Kiyohisa); 〒9392393 富山県富山市八尾町保内二丁目1番地 株式会社 KOKUSAI ELECTRIC 内 Toyama (JP).
- (74) 代理人: 福岡 昌浩, 外 (FUKUOKA Masahiro et al.); 〒1020072 東京都千代田区飯田橋四丁目6番1号 21 東和ビル3階 Tokyo (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, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY,

(54) Title: PRODUCTION METHOD FOR SEMICONDUCTOR DEVICE, SUBSTRATE TREATMENT DEVICE, AND PROGRAM

(54) 発明の名称: 半導体装置の製造方法、基板処理装置、およびプログラム

[図4]



(57) Abstract: The present invention includes a step for forming a film on a substrate by performing a cycle of performing (a) a step for supplying a raw material gas to the substrate having a recess on the surface and (b) a step for non-simultaneously supplying a reaction gas to the substrate a predetermined number of times, wherein in (a), the raw material gas is divided and supplied to the substrate a plurality of times, and a processing condition when first supplying the raw material gas is such that autolysis of the raw material gas can be reduced compared to a processing condition when supplying the



WO 2022/064600 A1

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, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL,
ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG,
US, UZ, VC, VN, WS, 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, ST, 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, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類 :

- 一 国際調査報告 (条約第21条(3))

raw material gas a second time and subsequently.

(57) 要約 : (a) 表面に凹部が設けられた基板に対して原料ガスを供給する工程と、(b) 基板に対して反応ガスを供給する工程と、を非同時に行うサイクルを所定回数行うことで、基板上に膜を形成する工程を有し、(a) では、基板に対して原料ガスを複数回に分割して供給し、最初に原料ガスを供給する際における処理条件を、2回目以降に原料ガスを供給する際における処理条件よりも、原料ガスの自己分解を抑制可能な処理条件とする。

明 細 書

発明の名称：

半導体装置の製造方法、基板処理装置、およびプログラム

技術分野

[0001] 本開示は、半導体装置の製造方法、基板処理装置、およびプログラムに関する。

背景技術

[0002] 半導体装置の製造工程の一工程として、基板に対して原料ガスや反応ガスを供給し、基板上に膜を形成する基板処理工程が行われる場合がある（例えば特許文献1参照）。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開2014-208883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、基板上に形成される膜の成膜レートを低下させることなく、段差被覆性（ステップカバレッジ）を向上させることを目的とする。

課題を解決するための手段

[0005] 本開示の一態様によれば、

（a）表面に凹部が設けられた基板に対して原料ガスを供給する工程と、

（b）前記基板に対して反応ガスを供給する工程と、

を非同時に行うサイクルを所定回数行うことで、前記基板上に膜を形成する工程を有し、

（a）では、前記基板に対して前記原料ガスを複数回に分割して供給し、最初に前記原料ガスを供給する際における処理条件を、2回目以降に前記原料ガスを供給する際における処理条件よりも、前記原料ガスの自己分解を抑

制可能な処理条件とする技術が提供される。

発明の効果

[0006] 本開示によれば、基板上に形成される膜の成膜レートを低下させることなく、ステップカバレッジを向上させることが可能な技術を提供することが可能となる。

図面の簡単な説明

[0007] [図1]図1は、本開示の一態様で好適に用いられる基板処理装置の縦型処理炉の概略構成図であり、処理炉202部分を縦断面図で示す図である。

[図2]図2は、本開示の一態様で好適に用いられる基板処理装置の縦型処理炉の概略構成図であり、処理炉202部分を図1のA-A線断面図で示す図である。

[図3]図3は、本開示の一態様で好適に用いられる基板処理装置のコントローラ121の概略構成図であり、コントローラ121の制御系をブロック図で示す図である。

[図4]図4は、本開示の一態様における成膜シーケンスを示すフロー図であり、原料ガス、反応ガス、および不活性ガスの供給タイミングと原料ガス分圧の推移を示す図である。

[図5]図5(a)は、本開示の一態様における成膜シーケンスのステップAの初期段階において、凹部内に初期層が形成された後のウエハ200の表面における断面部分拡大図である。図5(b)は、本開示の一態様における成膜シーケンスのステップAにおいて、凹部内に第1層が形成された後のウエハ200の表面における断面部分拡大図である。

発明を実施するための形態

[0008] <本開示の一態様>

以下、本開示の一態様について、主に、図1～図4を参照しながら説明する。なお、以下の説明において用いられる図面は、いずれも模式的なものであり、図面上の各要素の寸法の関係、各要素の比率等は、現実のものとは必ずしも一致していない。また、複数の図面の相互間においても、各要素の寸

法の関係、各要素の比率等は必ずしも一致していない。

[0009] (1) 基板処理装置の構成

図1に示すように、処理炉202は温度調整器(加熱部)としてのヒータ207を有する。ヒータ207は円筒形状であり、保持板に支持されることにより垂直に据え付けられている。ヒータ207は、ガスを熱で活性化(励起)させる活性化機構(励起部)としても機能する。

[0010] ヒータ207の内側には、ヒータ207と同心円状に反応管203が配設されている。反応管203は、例えば石英(SiO_2)または炭化シリコン(SiC)等の耐熱性材料により構成され、上端が閉塞し下端が開口した円筒形状に形成されている。反応管203の下方には、反応管203と同心円状に、マニホールド209が配設されている。マニホールド209は、例えばステンレス鋼(SUS)等の金属材料により構成され、上端および下端が開口した円筒形状に形成されている。マニホールド209の上端部は、反応管203の下端部に係合しており、反応管203を支持するように構成されている。マニホールド209と反応管203との間には、シール部材としてのリング220aが設けられている。反応管203はヒータ207と同様に垂直に据え付けられている。主に、反応管203とマニホールド209とにより処理容器(反応容器)が構成される。処理容器の筒中空部には処理室201が形成される。処理室201は、基板としてのウエハ200を収容可能に構成されている。この処理室201内でウエハ200に対する処理が行われる。

[0011] 処理室201内には、第1~第3供給部としてのノズル249a~249cが、マニホールド209の側壁を貫通するようにそれぞれ設けられている。ノズル249a~249cを、それぞれ第1~第3ノズルとも称する。ノズル249a~249cは、例えば石英またはSiC等の耐熱性材料により構成されている。ノズル249a~249cには、ガス供給管232a~232cがそれぞれ接続されている。ノズル249a~249cはそれぞれ異なるノズルであり、ノズル249b, 249cのそれぞれは、ノズル249

aに隣接して設けられている。

[0012] ガス供給管232a~232cには、ガス流の上流側から順に、流量制御器（流量制御部）であるマスフローコントローラ（MFC）241a~241cおよび開閉弁であるバルブ243a~243cがそれぞれ設けられている。ガス供給管232aのバルブ243aよりも下流側には、ガス供給管232dが接続されている。ガス供給管232bのバルブ243bよりも下流側には、ガス供給管232eが接続されている。ガス供給管232d, 232eには、ガス流の上流側から順に、MFC241d, 241eおよびバルブ243d, 243eがそれぞれ設けられている。ガス供給管232a~232eは、例えばSUS等の金属材料により構成されている。

[0013] 図2に示すように、ノズル249a~249cは、反応管203の内壁とウエハ200との間における平面視において円環状の空間に、反応管203の内壁の下部より上部に沿って、ウエハ200の配列方向上方に向かって立ち上がるようにそれぞれ設けられている。すなわち、ノズル249a~249cは、ウエハ200が配列されるウエハ配列領域の側方の、ウエハ配列領域を水平に取り囲む領域に、ウエハ配列領域に沿うようにそれぞれ設けられている。平面視において、ノズル249aは、処理室201内に搬入されるウエハ200の中心を挟んで後述する排気口231aと一直線上に対向するように配置されている。ノズル249b, 249cは、ノズル249aと排気口231aの中心とを通る直線Lを、反応管203の内壁（ウエハ200の外周部）に沿って両側から挟み込むように配置されている。直線Lは、ノズル249aとウエハ200の中心とを通る直線でもある。すなわち、ノズル249cは、直線Lを挟んでノズル249bと反対側に設けられているということもできる。ノズル249b, 249cは、直線Lを対称軸として線対称に配置されている。ノズル249a~249cの側面には、ガスを供給するガス供給孔250a~250cがそれぞれ設けられている。ガス供給孔250a~250cは、それぞれが、平面視において排気口231aと対向（対面）するように開口しており、ウエハ200に向けてガスを供給するこ

とが可能となっている。ガス供給孔250a~250cは、反応管203の下部から上部にわたって複数設けられている。

- [0014] ガス供給管232aからは、原料ガスが、MFC241a、バルブ243a、ノズル249aを介して処理室201内へ供給される。
- [0015] ガス供給管232bからは、反応ガスが、MFC241b、バルブ243b、ノズル249bを介して処理室201内へ供給される。なお、反応ガスは、原料ガスとは分子構造（化学構造）が異なる物質である。
- [0016] ガス供給管232d、232eからは、不活性ガスが、それぞれMFC241d、241e、バルブ243d、243e、ガス供給管232a、232b、ノズル249a、249bを介して処理室201内へ供給される。また、ガス供給管232cからは、不活性ガスが、MFC241c、バルブ243c、ノズル249cを介して処理室201内へ供給される。不活性ガスは、パージガス、キャリアガス、希釈ガス等として作用する。
- [0017] 主に、ガス供給管232a、MFC241a、バルブ243aにより、原料ガス供給系が構成される。主に、ガス供給管232b、MFC241b、バルブ243bにより、反応ガス供給系が構成される。主に、ガス供給管232c~232e、MFC241c~241e、バルブ243c~243eにより、不活性ガス供給系が構成される。
- [0018] なお、原料ガスおよび反応ガスのそれぞれ或いは両方を、成膜ガスとも称し、原料ガス供給系および反応ガス供給系のそれぞれ或いは両方を、成膜ガス供給系とも称する。
- [0019] 上述の各種ガス供給系のうち、いずれか、或いは、全てのガス供給系は、バルブ243a~243eやMFC241a~241e等が集積されてなる集積型ガス供給システム248として構成されていてもよい。集積型ガス供給システム248は、ガス供給管232a~232eのそれぞれに対して接続され、ガス供給管232a~232e内への各種ガスの供給動作、すなわち、バルブ243a~243eの開閉動作やMFC241a~241eによる流量調整動作等が、後述するコントローラ121によって制御されるよう

に構成されている。集積型ガス供給システム248は、一体型、或いは、分割型の集積ユニットとして構成されており、ガス供給管232a~232e等に対して集積ユニット単位で着脱を行うことができ、集積型ガス供給システム248のメンテナンス、交換、増設等を、集積ユニット単位で行うことが可能なように構成されている。

[0020] 反応管203の側壁下方には、処理室201内の雰囲気気を排気する排気口231aが設けられている。図2に示すように、排気口231aは、平面視において、ウエハ200を挟んでノズル249a~249c（ガス供給孔250a~250c）と対向（対面）する位置に設けられている。排気口231aは、反応管203の側壁の下部より上部に沿って、すなわち、ウエハ配列領域に沿って設けられていてもよい。排気口231aには排気管231が接続されている。排気管231は、例えばSUS等の金属材料により構成されている。排気管231には、処理室201内の圧力を検出する圧力検出器（圧力検出部）としての圧力センサ245および圧力調整器（圧力調整部）としてのAPC（Auto Pressure Controller）バルブ244を介して、真空排気装置としての真空ポンプ246が接続されている。APCバルブ244は、真空ポンプ246を作動させた状態で弁を開閉することで、処理室201内の真空排気および真空排気停止を行うことができ、更に、真空ポンプ246を作動させた状態で、圧力センサ245により検出された圧力情報に基づいて弁開度を調節することで、処理室201内の圧力を調整することができるように構成されている。主に、排気管231、APCバルブ244、圧力センサ245により、排気系が構成される。真空ポンプ246を排気系に含めて考えてもよい。

[0021] マニホールド209の下方には、マニホールド209の下端開口を気密に閉塞可能な炉口蓋体としてのシールキャップ219が設けられている。シールキャップ219は、例えばSUS等の金属材料により構成され、円盤状に形成されている。シールキャップ219の上面には、マニホールド209の下端と当接するシール部材としてのリング220bが設けられている。シ

ールキャップ219の下方には、後述するポート217を回転させる回転機構267が設置されている。回転機構267の回転軸255は、例えばSUS等の金属材料により構成され、シールキャップ219を貫通してポート217に接続されている。回転機構267は、ポート217を回転させることでウエハ200を回転させるように構成されている。シールキャップ219は、反応管203の外部に設置された昇降機構としてのポートエレベータ115によって垂直方向に昇降されるように構成されている。ポートエレベータ115は、シールキャップ219を昇降させることで、ウエハ200を処理室201内外に搬入および搬出（搬送）する搬送装置（搬送機構）として構成されている。

[0022] マニホールド209の下方には、シールキャップ219を降下させポート217を処理室201内から搬出した状態で、マニホールド209の下端開口を気密に閉塞可能な炉口蓋体としてのシャッタ219sが設けられている。シャッタ219sは、例えばSUS等の金属材料により構成され、円盤状に形成されている。シャッタ219sの上面には、マニホールド209の下端と当接するシール部材としてのリング220cが設けられている。シャッタ219sの開閉動作（昇降動作や回動動作等）は、シャッタ開閉機構115sにより制御される。

[0023] 基板支持具としてのポート217は、複数枚、例えば25～200枚のウエハ200を、水平姿勢で、かつ、互いに中心を揃えた状態で垂直方向に整列させて多段に支持するように、すなわち、間隔を空けて配列させるように構成されている。ポート217は、例えば石英やSiC等の耐熱性材料により構成される。ポート217の下部には、例えば石英やSiC等の耐熱性材料により構成される断熱板218が多段に支持されている。

[0024] 反応管203内には、温度検出器としての温度センサ263が設置されている。温度センサ263により検出された温度情報に基づきヒータ207への通電具合を調整することで、処理室201内の温度が所望の温度分布となる。温度センサ263は、反応管203の内壁に沿って設けられている。

[0025] 図3に示すように、制御部（制御手段）であるコントローラ121は、CPU (Central Processing Unit) 121a、RAM (Random Access Memory) 121b、記憶装置121c、I/Oポート121dを備えたコンピュータとして構成されている。RAM121b、記憶装置121c、I/Oポート121dは、内部バス121eを介して、CPU121aとデータ交換可能なように構成されている。コントローラ121には、例えばタッチパネル等として構成された入出力装置122が接続されている。

[0026] 記憶装置121cは、例えばフラッシュメモリ、HDD (Hard Disk Drive)、SSD (Solid State Drive) 等で構成されている。記憶装置121c内には、基板処理装置の動作を制御する制御プログラムや、後述する基板処理の手順や条件等が記載されたプロセスレシピ等が、読み出し可能に格納されている。プロセスレシピは、後述する基板処理における各手順をコントローラ121に実行させ、所定の結果を得ることができるように組み合わせられたものであり、プログラムとして機能する。以下、プロセスレシピや制御プログラム等を総称して、単に、プログラムともいう。また、プロセスレシピを、単に、レシピともいう。本明細書においてプログラムという言葉を用いた場合は、レシピ単体のみを含む場合、制御プログラム単体のみを含む場合、または、それらの両方を含む場合がある。RAM121bは、CPU121aによって読み出されたプログラムやデータ等が一時的に保持されるメモリ領域（ワークエリア）として構成されている。

[0027] I/Oポート121dは、上述のMFC241a~241e、バルブ243a~243e、圧力センサ245、APCバルブ244、真空ポンプ246、温度センサ263、ヒータ207、回転機構267、ボートエレベータ115、シャッタ開閉機構115s等に接続されている。

[0028] CPU121aは、記憶装置121cから制御プログラムを読み出して実行すると共に、入出力装置122からの操作コマンドの入力等に応じて記憶

装置 1 2 1 c からレシピを読み出すことが可能なように構成されている。CPU 1 2 1 a は、読み出したレシピの内容に沿うように、MFC 2 4 1 a ~ 2 4 1 e による各種ガスの流量調整動作、バルブ 2 4 3 a ~ 2 4 3 e の開閉動作、APCバルブ 2 4 4 の開閉動作および圧力センサ 2 4 5 に基づく APCバルブ 2 4 4 による圧力調整動作、真空ポンプ 2 4 6 の起動および停止、温度センサ 2 6 3 に基づくヒータ 2 0 7 の温度調整動作、回転機構 2 6 7 によるポート 2 1 7 の回転および回転速度調節動作、ポートエレベータ 1 1 5 によるポート 2 1 7 の昇降動作、シャッタ開閉機構 1 1 5 s によるシャッタ 2 1 9 s の開閉動作等を制御することが可能なように構成されている。

[0029] コントローラ 1 2 1 は、外部記憶装置 1 2 3 に格納された上述のプログラムを、コンピュータにインストールすることにより構成することができる。外部記憶装置 1 2 3 は、例えば、HDD等の磁気ディスク、CD等の光ディスク、MO等の光磁気ディスク、USBメモリやSSD等の半導体メモリ等を含む。記憶装置 1 2 1 c や外部記憶装置 1 2 3 は、コンピュータ読み取り可能な記録媒体として構成されている。以下、これらを総称して、単に、記録媒体ともいう。本明細書において記録媒体という言葉を用いた場合は、記憶装置 1 2 1 c 単体のみを含む場合、外部記憶装置 1 2 3 単体のみを含む場合、または、それらの両方を含む場合がある。なお、コンピュータへのプログラムの提供は、外部記憶装置 1 2 3 を用いず、インターネットや専用回線等の通信手段を用いて行ってもよい。

[0030] (2) 基板処理工程

上述の基板処理装置を用い、半導体装置の製造工程の一工程として、基板としてのウエハ 2 0 0 に対し処理を行うシーケンス例、すなわち、ウエハ 2 0 0 上に膜を形成する成膜シーケンス例について、主に、図 4 を用いて説明する。なお、本態様では、ウエハ 2 0 0 として、その表面にトレンチやホール等の凹部が設けられたシリコン基板（シリコンウエハ）を用いる例について説明する。以下の説明において、基板処理装置を構成する各部の動作はコントローラ 1 2 1 により制御される。

- [0031] 本態様における成膜シーケンスでは、
表面に凹部が設けられたウエハ200に対して原料ガスを供給するステップAと、
ウエハ200に対して反応ガスを供給するステップBと、
を非同時に行うサイクルを所定回数（n回、nは1以上の整数）行うことで、ウエハ200上に膜を形成する。
- [0032] なお、本態様における成膜シーケンスでは、
ステップAにおいて、ウエハ200に対して原料ガスを複数回（m回、mは2以上の整数）に分割して供給し、最初に原料ガスを供給する際における処理条件を、2回目以降に原料ガスを供給する際における処理条件よりも、原料ガスの自己分解を抑制可能な処理条件とする。なお、図4は、一例として、ステップAにおいて、ウエハ200に対して原料ガスを3回に分割して断続的に供給する場合（m=3とする場合）を示している。
- [0033] 本明細書では、上述の成膜シーケンスを、便宜上、以下のように示すこともある。以下の変形例や他の態様の説明においても、同様の表記を用いる。
- [0034] (原料ガス×m→反応ガス)×n
- [0035] なお、図4に示すように、ステップAと、ステップBと、を交互にn回（nは1以上の整数）行う際、それらの間に処理室201内をパージするステップを挟むようにすることが好ましい。また、図4に示すように、原料ガスをm回（mは1以上の整数）に分割して間欠供給する際も、それらの間に処理室201内をパージするステップを挟むようにすることが好ましい。この場合の成膜シーケンスは、以下のように示すことができる。
- [0036] [(原料ガス→パージ)×m→反応ガス→パージ]×n
- [0037] なお、図4では、本態様における成膜シーケンスの一例として、原料ガス、反応ガス、および不活性ガスのそれぞれのガスの供給タイミングの一例と、それに伴う原料ガス分圧の推移の一例を示している。
- [0038] 本明細書において「ウエハ」という言葉を用いた場合は、ウエハそのものを意味する場合や、ウエハとその表面に形成された所定の層や膜との積層体

を意味する場合がある。本明細書において「ウエハの表面」という言葉を用いた場合は、ウエハそのものの表面を意味する場合や、ウエハ上に形成された所定の層等の表面を意味する場合がある。本明細書において「ウエハ上に所定の層を形成する」と記載した場合は、ウエハそのものの表面に所定の層を直接形成することを意味する場合や、ウエハ上に形成されている層等の上に所定の層を形成することを意味する場合がある。本明細書において「基板」という言葉を用いた場合も、「ウエハ」という言葉を用いた場合と同義である。

[0039] (ウエハチャージおよびポートロード)

複数枚のウエハ200がポート217に装填(ウエハチャージ)された後、シャッタ開閉機構115sによりシャッタ219sが移動させられて、マニホールド209の下端開口が開放される(シャッタオープン)。その後、図1に示すように、複数枚のウエハ200を支持したポート217は、ポートエレベータ115によって持ち上げられて処理室201内へ搬入(ポートロード)される。この状態で、シールキャップ219は、リング220bを介してマニホールド209の下端をシールした状態となる。

[0040] (圧力調整および温度調整)

ポートロードが終了した後、処理室201内、すなわち、ウエハ200が存在する空間が所望の圧力(真空度)となるように、真空ポンプ246によって真空排気(減圧排気)される。この際、処理室201内の圧力は圧力センサ245で測定され、この測定された圧力情報に基づきAPCバルブ244がフィードバック制御される(圧力調整)。また、処理室201内のウエハ200が所望の処理温度となるように、ヒータ207によって加熱される。この際、処理室201内が所望の温度分布となるように、温度センサ263が検出した温度情報に基づきヒータ207への通電具合がフィードバック制御される(温度調整)。また、回転機構267によるウエハ200の回転を開始する。処理室201内の排気、ウエハ200の加熱および回転は、いずれも、少なくともウエハ200に対する処理が終了するまでの間は継続し

て行われる。

[0041] (成膜処理)

その後、以下のステップA, Bを順次実行する。

[0042] [ステップA]

本ステップでは、処理室201内のウエハ200に対して原料ガスを複数回に分割して供給する。具体的には、ウエハ200に対して原料ガスを供給するステップa1と、ウエハ200が存在する空間である処理室201内をパージするステップa2と、を交互に複数回(m回、mは2以上の整数)繰り返す。

[0043] ステップa1においては、バルブ243aを開き、ガス供給管232a内へ原料ガスを流す。原料ガスは、MFC241aにより流量調整され、ノズル249aを介して処理室201内へ供給され、排気口231aより排気される。このとき、ウエハ200に対して原料ガスが供給される(原料ガス供給)。このとき、バルブ243c~243eを開き、ノズル249a~249cのそれぞれを介して処理室201内へ不活性ガスを供給する。なお、以下に示すいくつかの方法においては、処理室201内への不活性ガスの供給を不実施とするようにしてもよい。

[0044] ステップa2においては、バルブ243aを閉じ、処理室201内への原料ガスの供給を停止する。そして、処理室201内を真空排気し、処理室201内に残留するガス等を処理室201内から排除する。このとき、バルブ243c~243eを開き、処理室201内へパージガスとして不活性ガスを供給し、排気口231aより排気して、処理室201内を不活性ガスでパージする(パージ)。

[0045] 原料ガスとして、例えば、後述するクロロシランガスを用いる場合、後述する処理条件下でステップa1, a2を交互に所定回数繰り返し、ウエハ200に対してクロロシランガスを複数回に分割して供給することにより、下地としてのウエハ200の最表面上に、第1層として、所定の厚さの塩素(Cl)を含むシリコン(Si)含有層が形成される。Clを含むSi含有層

は、ウエハ200の最表面への、クロロシランガスの分子の物理吸着や化学吸着、クロロシランガスの一部が分解した物質の分子の物理吸着や化学吸着、クロロシランガスの熱分解によるSiの堆積等により形成される。Clを含むSi含有層は、クロロシランガスの分子やクロロシランガスの一部が分解した物質の分子の吸着層（物理吸着層や化学吸着層）であってもよく、Clを含むSiの堆積層であってもよい。ウエハ200の最表面に上述の化学吸着層や上述の堆積層が形成される場合、ウエハ200の最表面には、クロロシランガスに含まれるSiが吸着することとなる。本明細書では、Clを含むSi含有層を、単に、Si含有層とも称する。

[0046] 原料ガスとしては、例えば、ウエハ200上に形成される膜を構成する主元素としてのSiを含むシラン系ガスを用いることができる。シラン系ガスとしては、例えば、Siおよびハロゲンを含むガス、すなわち、ハロシランガスを用いることができる。ハロゲンには、塩素（Cl）、フッ素（F）、臭素（Br）、ヨウ素（I）等が含まれる。ハロシランガスとしては、例えば、SiおよびClを含むクロロシランガスを用いることができる。

[0047] 原料ガスとしては、例えば、モノクロロシラン（ SiH_3Cl 、略称：MCS）ガス、ジクロロシラン（ SiH_2Cl_2 、略称：DCS）ガス、トリクロロシラン（ SiHCl_3 、略称：TCS）ガス、テトラクロロシラン（ SiCl_4 、略称：STC）ガス、ヘキサクロロジシランガス（ Si_2Cl_6 、略称：HCDS）ガス、オクタクロロトリシラン（ Si_3Cl_8 、略称：OCTS）ガス等のクロロシランガスを用いることができる。原料ガスとしては、これらのうち1以上を用いることができる。

[0048] 原料ガスとしては、クロロシランガスの他、例えば、テトラフルオロシラン（ SiF_4 ）ガス、ジフルオロシラン（ SiH_2F_2 ）ガス等のフルオロシランガスや、テトラブロモシラン（ SiBr_4 ）ガス、ジブロモシラン（ SiH_2Br_2 ）ガス等のブロモシランガスや、テトラヨードシラン（ SiI_4 ）ガス、ジヨードシラン（ SiH_2I_2 ）ガス等のヨードシランガスを用いることもできる。原料ガスとしては、これらのうち1以上を用いることができる。

[0049] 原料ガスとしては、これらの他、例えば、Siおよびアミノ基を含むガス、すなわち、アミノシランガスを用いることもできる。アミノ基とは、アンモニア、第一級アミン又は第二級アミンから水素(H)を除去した1価の官能基のことであり、 $-NH_2$ 、 $-NHR$ 、 $-NR_2$ のように表すことができる。なお、Rはアルキル基を示し、 $-NR_2$ の2つのRは、同一であってもよいし、異なってもよい。

[0050] 原料ガスとしては、例えば、テトラキス(ジメチルアミノ)シラン(Si[N(CH₃)₂]₄、略称:4DMAS)ガス、トリス(ジメチルアミノ)シラン(Si[N(CH₃)₂]₃H、略称:3DMAS)ガス、ビス(ジエチルアミノ)シラン(Si[N(C₂H₅)₂]₂H₂、略称:BDEAS)ガス、ビス(ターシャリーブチルアミノ)シラン(SiH₂[NH(C₄H₉)]₂、略称:BTBAS)ガス、(ジイソプロピルアミノ)シラン(SiH₃[N(C₃H₇)₂]、略称:DIPAS)ガス等のアミノシランガスを用いることもできる。原料ガスとしては、これらのうち1以上を用いることができる。

[0051] 不活性ガスとしては、例えば、窒素(N₂)ガスや、アルゴン(Ar)ガス、ヘリウム(He)ガス、ネオン(Ne)ガス、キセノン(Xe)ガス等の希ガスを用いることができる。不活性ガスとしては、これらのうち1以上を用いることができる。この点は、後述する各ステップにおいても同様である。

[0052] [ステップB]

ステップAが終了した後、処理室201内のウエハ200、すなわち、ウエハ200上に形成された第1層としてのSi含有層に対して反応ガスを供給する。

[0053] 具体的には、バルブ243bを開き、ガス供給管232b内へ反応ガスを流す。反応ガスは、MFC241bにより流量調整され、ノズル249bを介して処理室201内へ供給され、排気口231aより排気される。このとき、ウエハ200に対して反応ガスが供給される(反応ガス供給)。このとき、バルブ243c~243eを開き、ノズル249a~249cのそれぞれ

れを介して処理室201内へ不活性ガスを供給する。なお、以下に示すいくつかの方法においては、処理室201内への不活性ガスの供給を不実施とするようにしてもよい。

[0054] 反応ガスとして、例えば、後述する窒化ガスを用いる場合、後述する処理条件下でウエハ200に対して窒化ガスを供給することにより、ウエハ200上に形成されたSi含有層の少なくとも一部が窒化（改質）される。結果として、下地としてのウエハ200の最表面上に、第2層として、Si含有層が窒化されてなる層、すなわち、SiおよびNを含む層として、シリコン窒化層（SiN層）が形成される。SiN層を形成する際、Si含有層に含まれていたCl等の不純物は、窒化ガスによるSi含有層の改質反応の過程において、少なくともClを含むガス状物質を構成し、処理室201内から排出される。これにより、SiN層は、ステップAで形成されたSi含有層に比べて、Cl等の不純物が少ない層となる。

[0055] 第2層としてのSiN層が形成された後、バルブ243bを閉じ、処理室201内への窒化ガスの供給を停止する。そして、ステップAにおけるパージと同様の処理手順により、処理室201内に残留するガス等を処理室201内から排除する（パージ）。

[0056] 反応ガスとしては、例えば、窒化ガス（窒化剤）である窒素（N）及び水素（H）含有ガスを用いることができる。N及びH含有ガスは、N含有ガスでもあり、H含有ガスでもある。N及びH含有ガスは、N-H結合を有することが好ましい。

[0057] 反応ガスとしては、例えば、アンモニア（ NH_3 ）ガス、ジアゼン（ N_2H_2 ）ガス、ヒドラジン（ N_2H_4 ）ガス、 N_3H_8 ガス等の窒化水素系ガスを用いることができる。反応ガスとしては、これらのうち1以上を用いることができる。

[0058] 反応ガスとしては、これらの他、例えば、窒素（N）、炭素（C）及び水素（H）含有ガスを用いることもできる。N、C及びH含有ガスとしては、例えば、アミン系ガスや有機ヒドラジン系ガスを用いることができる。N、

C及びH含有ガスは、N含有ガスでもあり、C含有ガスでもあり、H含有ガスでもあり、N及びC含有ガスでもある。

[0059] 反応ガスとしては、例えば、モノエチルアミン ($C_2H_5NH_2$ 、略称：MEA) ガス、ジエチルアミン ($(C_2H_5)_2NH$ 、略称：DEA) ガス、トリエチルアミン ($(C_2H_5)_3N$ 、略称：TEA) ガス等のエチルアミン系ガスや、モノメチルアミン (CH_3NH_2 、略称：MMA) ガス、ジメチルアミン ($(CH_3)_2NH$ 、略称：DMA) ガス、トリメチルアミン ($(CH_3)_3N$ 、略称：TMA) ガス等のメチルアミン系ガスや、モノメチルヒドラジン ($(CH_3)HN_2H_2$ 、略称：MMH) ガス、ジメチルヒドラジン ($(CH_3)_2N_2H_2$ 、略称：DMH) ガス、トリメチルヒドラジン ($(CH_3)_2N_2(CH_3)H$ 、略称：TMH) ガス等の有機ヒドラジン系ガス等を用いることができる。反応ガスとしては、これらのうち1以上を用いることができる。

[0060] [所定回数実施]

上述のステップA、Bを非同時に、すなわち、同期させることなく行うサイクルを所定回数 (n回、nは1以上の整数) 行うことにより、ウエハ200の表面上に、膜として、例えば、シリコン窒化膜 (SiN膜) を形成することができる。上述のサイクルは、複数回繰り返すことが好ましい。すなわち、1サイクルあたりに形成されるSiN層の厚さを所望の膜厚よりも薄くし、SiN層を積層することで形成されるSiN膜の厚さが所望の厚さになるまで、上述のサイクルを複数回繰り返すことが好ましい。なお、反応ガスとして、N、C及びH含有ガスを用いる場合、第2層として、例えば、シリコン炭窒化層 (SiCN層) を形成することもでき、上述のサイクルを所定回数行うことで、ウエハ200の表面上に、膜として、例えば、シリコン炭窒化膜 (SiCN膜) を形成することもできる。

[0061] なお、上述のように、本態様では、ステップAにおいて原料ガスを複数回 (m回、mは2以上の整数) に分割して供給することが好ましい。この際、すなわち、ステップAにおいて原料ガスを複数回に分割して間欠的にパルス供給する際、最初に原料ガスを供給する際における処理条件を、2回目以降

に原料ガスを供給する際における処理条件よりも、原料ガスの自己分解（気相分解）を抑制可能な処理条件とすることが好ましい。

[0062] 例えば、ステップAでは、原料ガスを複数回に分割して供給し、その際、最初に原料ガスを供給する際における処理条件を、2回目以降に原料ガスを供給する際における処理条件よりも、原料ガスの中間体の生成を抑制可能な処理条件とすることが好ましい。

[0063] また例えば、ステップAでは、原料ガスを複数回に分割して供給し、その際、最初に原料ガスを供給する際における処理条件を、原料ガスの自己分解を抑制可能な処理条件とし、2回目以降に原料ガスを供給する際における処理条件を、原料ガスが自己分解する処理条件とすることが好ましい。

[0064] また例えば、ステップAでは、原料ガスを複数回に分割して供給し、その際、最初に原料ガスを供給する際における処理条件を、原料ガスの中間体の生成を抑制可能な処理条件とし、2回目以降に原料ガスを供給する際における処理条件を、原料ガスの中間体が生成される処理条件とすることが好ましい。

[0065] また例えば、ステップAでは、原料ガスを複数回に分割して供給し、その際、最初に原料ガスを供給する際における原料ガスの供給継続時間を、2回目以降に原料ガスを供給する際における原料ガスの供給継続時間よりも、短くすることが好ましい。

[0066] また例えば、ステップAでは、原料ガスを複数回に分割して供給し、その際、最初に原料ガスを供給する際における原料ガスの供給流量を、2回目以降に原料ガスを供給する際における原料ガスの供給流量よりも、小さくすることが好ましい。

[0067] また例えば、ステップAでは、原料ガスを複数回に分割して供給し、その際、ウエハ200に対して原料ガスを供給する際にキャリアガスとして不活性ガスを供給し、最初に原料ガスを供給する際におけるキャリアガスの供給流量を、2回目以降に原料ガスを供給する際におけるキャリアガスの供給流量よりも、大きくすることが好ましい。

- [0068] また例えば、ステップAでは、原料ガスを複数回に分割して供給し、その際、最初に原料ガスを供給する際における原料ガスの分圧を、2回目以降に原料ガスを供給する際における原料ガスの分圧よりも、低くすることが好ましい。
- [0069] また例えば、ステップAでは、原料ガスを複数回に分割して供給し、その際、最初に原料ガスを供給する際におけるウエハ200が存在する空間の圧力、すなわち、処理室201内の圧力を、2回目以降に原料ガスを供給する際における処理室201内の圧力よりも、低くすることが好ましい。
- [0070] なお、ステップAでは、原料ガスを複数回に分割して供給し、その際、最初に原料ガスを供給する際における処理室201内の圧力を、2回目以降に原料ガスを供給する際における処理室201内の圧力以上の圧力とすることもできる。ただし、この場合、最初に原料ガスを供給する際に処理室201内へ供給する不活性ガスの供給流量を、2回目以降に原料ガスを供給する際に処理室201内へ供給する不活性ガスの供給流量よりも大きくすることで、最初に原料ガスを供給する際における原料ガスの分圧を、2回目以降に原料ガスを供給する際における原料ガスの分圧よりも低くすることが好ましい。
- [0071] これらのように、ステップAにおいて原料ガスを複数回（ m 回、 m は2以上の整数）に分割して供給し、その際、最初に原料ガスを供給する際における処理条件を、2回目以降に原料ガスを供給する際における処理条件よりも、原料ガスの自己分解を抑制可能な処理条件とすることにより、ステップAの初期段階、すなわち、原料ガス供給初期において、原料ガスの自己分解を抑制しつつ、原料ガスに含まれる原子または分子を、ウエハ200の表面に設けられた凹部内の全域にわたり均一に吸着させることが可能となる。すなわち、原料ガス供給初期に、凹部内の最表面における初期吸着サイトの全域にわたり、均一に、原料ガスに含まれる原子または分子を吸着させることが可能となる。これにより、図5（a）に示すように、凹部内の最表面に、初期層として、凹部内の全域にわたり均一な厚さを有するSi含有層、すなわ

ち、高いステップカバレッジを有するS i含有層を形成することが可能となる。この層は、連続層となることもあり、不連続層となることもある。いずれの場合においても、高いステップカバレッジを有する層となる。

[0072] このように、凹部内の最表面と接する領域に、初期層として、均一性に優れ、高いステップカバレッジを有するS i含有層を形成することにより、その後処理条件を変更した場合であっても、その後形成されるS i含有層は、初期層における高い均一性と、高いステップカバレッジを引き継ぐ傾向があり、引き続き、高い均一性と高いステップカバレッジを有する層となる。

[0073] また、ステップAにおいて原料ガスを複数回（m回、mは2以上の整数）に分割して供給し、その際、2回目以降に原料ガスを供給する際における処理条件を、最初に原料ガスを供給する際における処理条件よりも、原料ガスの自己分解を許容する処理条件とすることにより、2回目以降に原料ガスを供給する際に、原料ガスの自己分解の抑制割合を緩和させつつ、例えば、原料ガスの自己分解を許容しつつ、原料ガスに含まれる原子または分子を、凹部内の全域にわたり効率的に吸着させることが可能となる。すなわち、初期層が形成された凹部内の表面上に、比較的高い形成レートでS i含有層を形成することが可能となる。このとき形成されるS i含有層は、初期層として高いステップカバレッジを有するS i含有層を形成した後であるため、初期層の特性や状態を引き継ぐ傾向があり、引き続き、高いステップカバレッジを有することとなる。

[0074] これらにより、S i含有層の形成レートを低下させることなく、図5（b）に示すように、ウエハ200の表面に設けられた凹部内の全域にわたり均一でコンフォーマルな第1層（S i含有層）を形成することが可能となる。結果として、ウエハ200上に形成される膜の成膜レートを低下させることなく、ステップカバレッジを向上させることが可能となり、ウエハ200の表面に設けられた凹部内の全域にわたり均一でコンフォーマルな膜を形成することが可能となる。

- [0075] なお、理由については後述するが、ステップAにおいて原料ガスを複数回（ m 回、 m は2以上の整数）に分割して供給する際、 $m \geq 2$ の場合に、最初に（1回目に）原料ガスを供給するステップa1の後に行う処理室201内をパージするステップa2の時間を、最後に（ m 回目に）原料ガスを供給するステップa1の後に行う処理室201内をパージするステップa2の時間よりも短くすることが好ましい。
- [0076] また、ステップAにおいて原料ガスを複数回（ m 回、 m は2以上の整数）に分割して供給する際、 $m \geq 3$ の場合に、2回目に原料ガスを供給するステップa1の後に行う処理室201内をパージするステップa2の時間を、最後に（ m 回目に）原料ガスを供給するステップa1の後に行う処理室201内をパージするステップa2の時間よりも短くすることが好ましい。なお、この場合、1回目～ $m-1$ 回目のそれぞれにおける、原料ガスを供給するステップa1の後に行う処理室201内をパージするステップa2の時間を、最後に（ m 回目に）原料ガスを供給するステップa1の後に行う処理室201内をパージするステップa2の時間よりも短くすることが好ましい。
- [0077] また、ステップAにおいて原料ガスを複数回（ m 回、 m は2以上の整数）に分割して供給する際、最後に（ m 回目に）原料ガスを供給するステップa1の後に行う処理室201内をパージするステップa2の時間を、複数回行うステップa2の各時間のうち、最も長くすることが好ましい。
- [0078] 以下に、原料ガスとして、例えば、クロロシランガスを用い、反応ガスとして、例えば、N及びH含有ガスを用いる場合の上述の各ステップにおける処理条件を例示する。なお、本明細書における「1～100Pa」のような数値範囲の表記は、下限値および上限値がその範囲に含まれることを意味する。よって、例えば、「1～100Pa」とは「1Pa以上100Pa以下」を意味する。他の数値範囲についても同様である。また、本明細書における処理温度とはウエハ200の温度のことを意味し、処理圧力とは処理室201内の圧力のことを意味する。また、ガス供給流量：0sccmとは、そのガスを供給しないケースを意味する。これらは、以下の説明においても同

様である。

- [0079] ステップAにおいて1回目にステップa1を行う際の処理条件としては、
- クロロシランガス供給流量：1～500 s c c m、好ましくは1～200 s c c m
 - クロロシランガス供給継続時間：1～20秒、好ましくは1～10秒
 - 不活性ガス供給流量：500～30000 s c c m、好ましくは1000～20000 s c c m
 - 処理温度：250～800℃、好ましくは600～700℃
 - 処理圧力：1～2666 Pa、好ましくは1～1333 Pa、より好ましくは1～100 Pa
 - クロロシランガス分圧：0.00003～1333 Pa、好ましくは0.00005～222 Pa、より好ましくは0.00005～17 Pa
- が例示される。

- [0080] ステップAにおいて2回目以降にステップa1を行う際の処理条件としては、
- クロロシランガス供給流量：1～2000 s c c m、好ましくは10～1000 s c c m
 - クロロシランガス供給継続時間：5～40秒、好ましくは10～30秒
 - 不活性ガス供給流量：0～20000 s c c m、好ましくは500～10000 s c c m
 - 処理圧力：1～2666 Pa、好ましくは67～1333 Pa
 - クロロシランガス分圧：0.00005～2666 Pa、好ましくは0.06～889 Pa
- が例示される。他の処理条件は、ステップAにおいて1回目のステップa1を行う際の処理条件と同様な処理条件とすることができる。

- [0081] ステップAにおいて1回目～m-1回目にステップa2を行う際の処理条件としては、
- 不活性ガス供給流量：1000～20000 s c c m

不活性ガス供給継続時間：1～20秒、好ましくは1～10秒

が例示される。他の処理条件は、ステップAにおいて1回目のステップa1を行う際の処理条件と同様な処理条件とすることができる。

[0082] ステップAにおいて最後（m回目）にステップa2を行う際の処理条件としては、

不活性ガス供給流量：1000～30000 s c c m

不活性ガス供給継続時間：5～60秒、好ましくは10～30秒

が例示される。他の処理条件は、ステップAにおいて1回目のステップa1を行う際の処理条件と同様な処理条件とすることができる。

[0083] なお、ステップAにおいて最後（m回目）にステップa2を行う際は、処理室201内への不活性ガスの供給と、処理室201内への不活性ガスの供給を停止した状態での処理室201内の排気と、を複数回繰り返すようにしてもよい。すなわち、ステップAにおいて最後（m回目）にステップa2を行う際は、サイクルパーズを行うようにしてもよい。

[0084] ステップBにおける処理条件としては、

N及びH含有ガス供給流量：1～20000 s c c m、好ましくは1000～10000 s c c m

N及びH含有ガス供給継続時間：1～120秒、好ましくは1～60秒

不活性ガス供給流量：0～20000 s c c m、好ましくは500～10000 s c c m

処理圧力：1～4000 Pa、好ましくは1～3000 Pa

が例示される。他の処理条件は、ステップAにおいて1回目のステップa1を行う際の処理条件と同様とすることができる。

[0085] （アフターパーズおよび大気圧復帰）

ウエハ200上への所望の厚さの膜の形成が完了した後、ノズル249a～249cのそれぞれから、パーズガスとしての不活性ガスを処理室201内へ供給し、排気口231aより排気する。これにより、処理室201内がパーズされ、処理室201内に残留するガスや反応副生成物等が処理室20

1内から除去される（アフターパージ）。その後、処理室201内の雰囲気の不活性ガスに置換され（不活性ガス置換）、処理室201内の圧力が常圧に復帰される（大気圧復帰）。

[0086]（ポートアンロードおよびウエハディスチャージ）

その後、ポートエレベータ115によりシールキャップ219が下降され、マニホールド209の下端が開口される。そして、処理済のウエハ200が、ポート217に支持された状態でマニホールド209の下端から反応管203の外部に搬出（ポートアンロード）される。ポートアンロードの後は、シャッタ219sが移動させられ、マニホールド209の下端開口がリング220cを介してシャッタ219sによりシールされる（シャッタクローズ）。処理済のウエハ200は、反応管203の外部に搬出された後、ポート217より取り出される（ウエハディスチャージ）。

[0087]（3）本態様による効果

本態様によれば、以下に示す1つ又は複数の効果が得られる。

[0088]（a）ステップAでは、原料ガスを複数回に分割して供給し、その際、最初に原料ガスを供給する際における処理条件を、2回目以降に原料ガスを供給する際における処理条件よりも、原料ガスの自己分解を抑制可能な処理条件とすることにより、原料ガス供給初期において、原料ガスの自己分解を抑制しつつ、原料ガスに含まれる原子または分子を、凹部内の全域にわたり均一に吸着させることが可能となる。その後は、それまでよりも原料ガスの自己分解の抑制度合を緩和させつつ、例えば、原料ガスの自己分解を許容しつつ、原料ガスに含まれる原子または分子を凹部内の全域にわたり効率的に吸着させることが可能となる。これらの結果、ウエハ200上に形成される膜の成膜レートを低下させることなく、ステップカバレッジを向上させることが可能となる。また、ウエハ200上に形成される膜のウエハ面内膜厚均一性を向上させ、例えば、凹部内の上部側面、中部側面、下部側面、底部間において、膜の厚さのばらつきを小さくすることが可能となる。

[0089]（b）ステップAでは、原料ガスを複数回に分割して供給し、その際、最初

に原料ガスを供給する際における処理条件を、2回目以降に原料ガスを供給する際における処理条件よりも、原料ガスの中間体の生成を抑制可能な処理条件とすることにより、原料ガス供給初期において、原料ガスの中間体の生成を抑制しつつ、原料ガスに含まれる原子または分子を凹部内の全域にわたり均一に吸着させることが可能となる。その後は、それまでよりも原料ガスの中間体生成の抑制度合を緩和させつつ、例えば、原料ガスの中間体の生成を許容しつつ、原料ガスに含まれる原子または分子を凹部内の全域にわたり効率的に吸着させることが可能となる。これらの結果、ウエハ200上に形成される膜の成膜レートを低下させることなく、ステップカバレッジを向上させることが可能となる。また、ウエハ200上に形成される膜のウエハ面内厚均一性を向上させることが可能となる。

[0090] (c) ステップAでは、原料ガスを複数回に分割して供給し、その際、最初に原料ガスを供給する際における処理条件を、原料ガスの自己分解を抑制可能な処理条件とし、2回目以降に原料ガスを供給する際における処理条件を、原料ガスが自己分解する処理条件とすることにより、原料ガス供給初期において、原料ガスの中間体の生成を抑制しつつ、原料ガスに含まれる原子または分子を凹部内の全域にわたり均一に吸着させることが可能となる。その後は、原料ガスを自己分解させつつ、原料ガスに含まれる原子または分子を凹部内の全域にわたり効率的に吸着させることが可能となる。これらの結果、ウエハ200上に形成される膜の成膜レートを低下させることなく、ステップカバレッジを向上させることが可能となる。また、ウエハ200上に形成される膜のウエハ面内厚均一性を向上させることが可能となる。なお、この方法によれば、2回目以降に原料ガスを供給する際における原料ガスに含まれる原子または分子の凹部内への吸着効率を高めることができ、成膜レートをより高めることが可能となる。

[0091] (d) ステップAでは、原料ガスを複数回に分割して供給し、その際、最初に原料ガスを供給する際における処理条件を、原料ガスの中間体の生成を抑制可能な処理条件とし、2回目以降に原料ガスを供給する際における処理条

件を、原料ガスの中間体が生成される処理条件とすることにより、原料ガス供給初期において、原料ガスの中間体の生成を抑制しつつ、原料ガスに含まれる原子または分子を凹部内の全域にわたり均一に吸着させることが可能となる。その後は、原料ガスの中間体を生成させつつ、原料ガスに含まれる原子または分子を凹部内の全域にわたり効率的に吸着させることが可能となる。これらの結果、ウエハ200上に形成される膜の成膜レートを低下させることなく、ステップカバレッジを向上させることが可能となる。また、ウエハ200上に形成される膜のウエハ面内膜厚均一性を向上させることが可能となる。なお、この方法によれば、2回目以降に原料ガスを供給する際における原料ガスに含まれる原子または分子の凹部内への吸着効率を高めることができ、成膜レートをより高めることが可能となる。

[0092] (e) ステップAでは、原料ガスを複数回に分割して供給し、その際、最初に原料ガスを供給する際における原料ガスの供給継続時間を、2回目以降に原料ガスを供給する際における原料ガスの供給継続時間よりも、短くすることにより、原料ガス供給初期において、原料ガスの自己分解を抑制することが可能となる。その後は、原料ガスの自己分解の抑制度合を緩和させつつ、原料ガスに含まれる原子または分子を凹部に吸着させる時間を相対的に長くすることが可能となる。これらの結果、ウエハ200上に形成される膜の成膜レートを低下させることなく、ステップカバレッジを向上させることが可能となる。また、ウエハ200上に形成される膜のウエハ面内膜厚均一性を向上させることが可能となる。

[0093] (f) ステップAでは、原料ガスを複数回に分割して供給し、その際、最初に原料ガスを供給する際における原料ガスの供給流量を、2回目以降に原料ガスを供給する際における原料ガスの供給流量よりも、小さくすることにより、原料ガス供給初期において、原料ガスの自己分解を抑制することが可能となる。その後は、原料ガスの自己分解の抑制度合を緩和させつつ、原料ガスに含まれる原子または分子を凹部に吸着させる際の原料ガスの供給流量を相対的に大きくすることが可能となる。これらの結果、ウエハ200上に

形成される膜の成膜レートを低下させることなく、ステップカバレッジを向上させることが可能となる。また、また、ウエハ200上に形成される膜のウエハ面内膜厚均一性を向上させることが可能となる。

[0094] (g) ステップAでは、原料ガスを複数回に分割して供給し、その際、ウエハ200に対して原料ガスを供給する際にキャリアガスとして不活性ガスを供給し、最初に原料ガスを供給する際におけるキャリアガスの供給流量を、2回目以降に原料ガスを供給する際におけるキャリアガスの供給流量よりも、大きくすることにより、原料ガス供給初期において、原料ガスの自己分解を抑制することが可能となる。その後は、原料ガスの自己分解の抑制度合を緩和させつつ、原料ガスに含まれる原子または分子を凹部内に吸着させる際のキャリアガスの供給流量を相対的に小さくすることにより、原料ガスに含まれる原子または分子を凹部内の全域にわたり効率的に吸着させることが可能となる。これらの結果、ウエハ200上に形成される膜の成膜レートを低下させることなく、ステップカバレッジを向上させることが可能となる。また、ウエハ200上に形成される膜のウエハ面内膜厚均一性を向上させることが可能となる。

[0095] (h) ステップAでは、原料ガスを複数回に分割して供給し、その際、最初に原料ガスを供給する際における原料ガスの分圧を、2回目以降に原料ガスを供給する際における原料ガスの分圧よりも、低くすることにより、原料ガス供給初期において、原料ガスの自己分解を抑制することが可能となる。その後は、原料ガスの自己分解の抑制度合を緩和させつつ、原料ガスに含まれる原子または分子を凹部内に吸着させる際の原料ガスの分圧を相対的に大きくすることにより、原料ガスに含まれる原子または分子を凹部内の全域にわたり効率的に吸着させることが可能となる。これらの結果、ウエハ200上に形成される膜の成膜レートを低下させることなく、ステップカバレッジを向上させることが可能となる。また、また、ウエハ200上に形成される膜のウエハ面内膜厚均一性を向上させることが可能となる。

[0096] (i) ステップAでは、原料ガスを複数回に分割して供給し、その際、最初

に原料ガスを供給する際におけるウエハ200が存在する空間の圧力（処理室201内の圧力）を、2回目以降に原料ガスを供給する際における処理室201内の圧力よりも、低くすることにより、原料ガス供給初期において、原料ガスの自己分解を抑制することが可能となる。その後は、原料ガスの自己分解の抑制割合を緩和させつつ、原料ガスに含まれる原子または分子を凹部内に吸着させる際の処理室201内の圧力を相対的に大きくすることにより、原料ガスに含まれる原子または分子を凹部内の全域にわたり効率的に吸着させることが可能となる。これらの結果、ウエハ200上に形成される膜の成膜レートを低下させることなく、ステップカバレッジを向上させることが可能となる。また、ウエハ200上に形成される膜のウエハ面内厚均一性を向上させることが可能となる。

[0097] なお、ステップAでは、原料ガスを複数回に分割して供給し、その際、最初に原料ガスを供給する際における処理室201内の圧力を、2回目以降に原料ガスを供給する際における処理室201内の圧力以上の圧力とすることもできる。この場合、最初に原料ガスを供給する際に処理室201内へ供給する不活性ガスの供給流量を、2回目以降に原料ガスを供給する際に処理室201内へ供給する不活性ガスの供給流量よりも大きくすることで、最初に原料ガスを供給する際における原料ガスの分圧を、2回目以降に原料ガスを供給する際における原料ガスの分圧よりも低くすることができ、上述の効果と同様の効果を得ることが可能となる。

[0098] (j) ステップAでは、ステップa1とステップa2とを交互に複数回繰り返すことにより、原料ガス供給途中で中間体が生じた場合であっても、中間体を効率よく除去しつつ、原料ガスに含まれる原子または分子を凹部内に吸着させることが可能となる。すなわち、過剰な中間体の生成に起因する成膜阻害を抑制することが可能となる。この結果、ウエハ200上に形成される膜の成膜レートを低下させることなく、ステップカバレッジを向上させることが可能となる。また、ウエハ200上に形成される膜のウエハ面内厚均一性を向上させることが可能となる。

[0099] (k) 以上述べた通り、本態様によれば、ウエハ200上に形成される膜のステップカバレッジを向上させることが可能となる。例えば、本態様によれば、少なくとも70%のステップカバレッジを得ることができる。また、例えば、本態様における上述のいずれかの方法によれば、80%以上のステップカバレッジを得ることもできる。また、例えば、本態様における上述のいずれかの方法によれば、85%以上のステップカバレッジを得ることもできる。更に、例えば、本態様における上述のいずれかの方法によれば、90%以上のステップカバレッジを得ることもできる。

[0100] (l) ステップAでは、原料ガスを複数回(m回、mは2以上の整数)に分割して供給し、その際、最初(1回目)に行うステップa2の時間を、最後(m回目)に行うステップa2の時間よりも短くすることにより、トータルでのパージ時間を短縮させ、成膜レートの低下を抑制することが可能となる。

[0101] (m) ステップAでは、原料ガスを複数回(m回、mは2以上の整数)に分割して供給し、その際、 $m \geq 3$ の場合に、2回目に行うステップa2の時間を、最後(m回目)に行うステップa2の時間よりも短くすることにより、トータルでのパージ時間を短縮させ、成膜レートの低下を抑制することが可能となる。この場合、1回目~ $m-1$ 回目のそれぞれにおいて行うステップa2の時間を、最後(m回目)に行うステップa2の時間よりも短くすることもでき、これにより、トータルでのパージ時間を短縮させ、成膜レートの低下を抑制することが可能となる。

[0102] (n) ステップAでは、原料ガスを複数回(m回、mは2以上の整数)に分割して供給し、その際、複数回行うステップa2のうち、最後(m回目)に行うステップa2の時間を、最も長くすることにより、トータルでのパージ時間を短縮させ、成膜レートの低下を抑制することが可能となる。また、ステップAにおいて、複数回行うステップa1のうち、最後(m回目)に行うステップa1が終了した後の、処理室201内における原料ガスの残留を充分に抑制することが可能となる。その結果、その後にステップBを行う際に

において、処理室201内での原料ガスと反応ガスとの混合を回避し、パーティクルの発生を抑制することが可能となる。これにより、ウエハ200上に形成される膜の膜質を向上させることが可能となる。

[0103] なお、ステップAにおいて、原料ガスを複数回（ m 回、 m は2以上の整数）に分割して供給する際に、最後（ m 回目）に行うステップa2の終了直後に、処理室201内へ反応ガスが供給される。そのため、処理室201内に残留した原料ガスと、処理室201内へ供給された反応ガスと、の混合によるパーティクルの発生を避けるために、最後（ m 回目）に行うステップa2は充分に行う必要がある。これに対して、1回目～ $m-1$ 回目のそれぞれにおいて行うステップa2の終了直後には、処理室201内へ原料ガスが供給される。そのため、処理室201内に残留した原料ガスと、処理室201内へ供給された原料ガスと、が混合する可能性はあるが、たとえ、それらが混合した場合であっても、それらは同じ物質同士であることから、パーティクルが発生することはない。それゆえ、1回目～ $m-1$ 回目のそれぞれにおいて行うステップa2では、最後（ m 回目）に行うステップa2よりも、パージ時間を短縮させることが可能となる。

[0104] (o) 上述の効果は、上述の各種原料ガス、上述の反応ガス、上述の各種不活性ガスを用いる場合にも、同様に得ることができる。ただし、上述の効果は、原料ガスとしてハロシランガスを用いる場合に、顕著に得られることになる。また、上述の効果は、原料ガスとしてクロロシランガスを用いる場合に、特に顕著に得られることになる。

[0105] <本開示の他の態様>

以上、本開示の態様を具体的に説明した。しかしながら、本開示は上述の態様に限定されるものではなく、その要旨を逸脱しない範囲で種々変更可能である。

[0106] 例えば、反応ガスとしては、上述のN及びH含有ガスや、N、C及びH含有ガスの他、例えば、エチレン（ C_2H_4 ）ガス、アセチレン（ C_2H_2 ）ガス、プロピレン（ C_3H_6 ）ガス等の炭素（C）含有ガスや、ジボラン（ B_2H_6

) ガス、トリクロロボラン (BCl_3) ガス等の硼素 (B) 含有ガスや、酸素 (O_2) ガス、オゾン (O_3) ガス、プラズマ励起された O_2 ガス (O_2^*)、 O_2 ガス+水素 (H_2) ガス、水蒸気 (H_2O ガス)、過酸化水素 (H_2O_2) ガス、亜酸化窒素 (N_2O) ガス、一酸化窒素 (NO) ガス、二酸化窒素 (NO_2) ガス、一酸化炭素 (CO) ガス、二酸化炭素 (CO_2) ガス等の酸素 (O) 含有ガス等を用いることができる。なお、本明細書において「 O_2 ガス+ H_2 ガス」というような2つのガスの併記記載は、 H_2 ガスと O_2 ガスとの混合ガスを意味している。混合ガスを供給する場合は、2つのガスを供給管内で混合 (プリミックス) させた後、処理室 201 内へ供給するようにしてもよいし、2つのガスを異なる供給管より別々に処理室 201 内へ供給し、処理室 201 内で混合 (ポストミックス) させるようにしてもよい。反応ガスとしては、これらのうち1以上を用いることができる。なお、これらは、それぞれ、分子構造 (化学構造) が異なるガスであり、後述する第1反応ガスや第2反応ガスや第3反応ガスとして用いることができる。

[0107] そして、以下に示す成膜シーケンスにより、基板上に、 SiN 膜や SiCN 膜の他、シリコン酸窒化膜 (SiON 膜)、シリコン酸炭化膜 (SiOC 膜)、シリコン酸炭窒化膜 (SiOCN 膜)、シリコン硼炭窒化膜 (SiBCN 膜)、シリコン硼窒化膜 (SiBN 膜)、シリコン酸化膜 (SiO 膜) 等の Si を含む膜を形成する場合にも、本開示を適用することができる。原料ガス、反応ガスを供給する際の処理手順、処理条件は、例えば、上述の態様の各ステップにおけるそれらと同様とすることができる。これらの場合においても、上述の態様と同様の効果が得られる。

[0108] [(原料ガス→パージ) × m → 反応ガス→パージ] × n

[(原料ガス→パージ) × m → 第1反応ガス→パージ→第2反応ガス→パージ] × n

[(原料ガス→パージ) × m → 第1反応ガス→パージ→第2反応ガス→パージ→第3反応ガス→パージ] × n

[0109] また例えば、原料ガスとして、アルミニウム (Al)、チタン (Ti)、

ハフニウム（Hf）、ジルコニウム（Zr）、タンタル（Ta）、モリブデン（Mo）、タングステン（W）等の金属元素を含む原料ガスを用い、上述の成膜シーケンスにより、基板上に、アルミニウム窒化膜（AlN膜）、チタン窒化膜（TiN膜）、ハフニウム窒化膜（HfN膜）、ジルコニウム窒化膜（ZrN膜）、タンタル窒化膜（Ta₂N膜）、モリブデン窒化膜（MoN）、タングステン窒化膜（WN）、アルミニウム酸化膜（Al₂O₃膜）、チタン酸化膜（TiO₂膜）、ハフニウム酸化膜（HfO₂膜）、ジルコニウム酸化膜（ZrO₂膜）、タンタル酸化膜（Ta₂O₅膜）、モリブデン酸化膜（MoO₃膜）、タングステン酸化膜（WO₃膜）、チタン酸窒化膜（TiON膜）、チタンアルミニウム炭窒化膜（TiAlCN膜）、チタンアルミニウム炭化膜（TiAlC膜）、チタン炭窒化膜（TiCN膜）等の金属元素を含む膜を形成する場合にも、本開示を適用することができる。なお、これらの原料ガスは、それぞれ、分子構造（化学構造）が異なるガスであり、上述の原料ガスとして作用するほか、上述の第1反応ガスや第2反応ガスや第3反応ガスとして作用する場合もある。原料ガス、反応ガスを供給する際の処理手順、処理条件は、例えば、上述の態様の各ステップにおけるそれらと同様とすることができる。これらの場合においても、上述の態様と同様の効果が得られる。

[0110] 各処理に用いられるレシピは、処理内容に応じて個別に用意し、電気通信回線や外部記憶装置123を介して記憶装置121c内に格納しておくことが好ましい。そして、各処理を開始する際、CPU121aが、記憶装置121c内に格納された複数のレシピの中から、処理内容に応じて適正なレシピを適宜選択することが好ましい。これにより、1台の基板処理装置で様々な膜種、組成比、膜質、膜厚の膜を、再現性よく形成することができるようになる。また、オペレータの負担を低減でき、操作ミス回避しつつ、各処理を迅速に開始できるようになる。

[0111] 上述のレシピは、新たに作成する場合に限らず、例えば、基板処理装置に既にインストールされていた既存のレシピを変更することで用意してもよい。

。レシピを変更する場合は、変更後のレシピを、電気通信回線や当該レシピを記録した記録媒体を介して、基板処理装置にインストールしてもよい。また、既存の基板処理装置が備える入出力装置122を操作し、基板処理装置に既にインストールされていた既存のレシピを直接変更してもよい。

[0112] 上述の態様では、一度に複数枚の基板を処理するバッチ式の基板処理装置を用いて膜を形成する例について説明した。本開示は上述の態様に限定されず、例えば、一度に1枚または数枚の基板を処理する枚葉式の基板処理装置を用いて膜を形成する場合にも、好適に適用できる。また、上述の態様では、ホットウォール型の処理炉を有する基板処理装置を用いて膜を形成する例について説明した。本開示は上述の態様に限定されず、コールドウォール型の処理炉を有する基板処理装置を用いて膜を形成する場合にも、好適に適用できる。

[0113] これらの基板処理装置を用いる場合においても、上述の態様や変形例における処理手順、処理条件と同様な処理手順、処理条件にて各処理を行うことができ、上述の態様や変形例と同様の効果が得られる。

[0114] 上述の態様や変形例は、適宜組み合わせる用いることができる。このときの処理手順、処理条件は、例えば、上述の態様や変形例における処理手順、処理条件と同様とすることができる。

実施例

[0115] 実施例として、上述の基板処理装置を用い、図4に示す成膜シーケンスにより、表面に凹部が設けられたウエハ上に、膜として、SiN膜を形成し、第1評価サンプルを作製した。第1評価サンプル作製の際は、原料ガスとしてHCDSガスをを用い、反応ガスとしてNH₃ガスをを用いた。処理条件は、上述の態様に記載の処理条件範囲内の所定の条件とした。

[0116] 比較例として、上述の基板処理装置を用い、HCDSガスを供給するステップと、NH₃ガスを供給するステップと、を非同時に行うサイクルを複数回行うことにより、表面に凹部が設けられたウエハ上に、膜として、SiN膜を形成し、第2評価サンプルを作製した。第2評価サンプル作製の際は、H

CDSガスを供給するステップにおいては、1サイクルあたりのHCDSガス供給継続時間を、実施例における1サイクルあたりのHCDSガス供給継続時間の合計時間と同じ時間とした。他の処理条件は、上述の実施例のHCDSガスを複数回供給するステップにおいて、2回目にHCDSガスを供給するステップにおける処理条件と同様とした。NH₃ガスを供給するステップにおける処理条件を含め、他の処理条件は、実施例における処理条件と同様とした。

[0117] そして、実施例の第1評価サンプルの凹部内におけるSiN膜のステップカバレッジ、および、比較例の第2評価サンプルの凹部内におけるSiN膜のステップカバレッジをそれぞれ測定した。その結果、比較例の第2評価サンプルにおけるSiN膜のステップカバレッジは90%未満であったのに対し、実施例の第1評価サンプルにおけるSiN膜のステップカバレッジは90%以上であり、比較例の第2評価サンプルにおけるSiN膜のステップカバレッジを上回ることを確認することができた。

符号の説明

[0118] 200 ウエハ（基板）

請求の範囲

- [請求項1] (a) 表面に凹部が設けられた基板に対して原料ガスを供給する工程と、
(b) 前記基板に対して反応ガスを供給する工程と、
を非同時に行うサイクルを所定回数行うことで、前記基板上に膜を形成する工程を有し、
(a) では、前記基板に対して前記原料ガスを複数回に分割して供給し、最初に前記原料ガスを供給する際における処理条件を、2回目以降に前記原料ガスを供給する際における処理条件よりも、前記原料ガスの自己分解を抑制可能な処理条件とする半導体装置の製造方法。
- [請求項2] (a) では、最初に前記原料ガスを供給する際における処理条件を、2回目以降に前記原料ガスを供給する際における処理条件よりも、前記原料ガスの中間体の生成を抑制可能な処理条件とする請求項1に記載の半導体装置の製造方法。
- [請求項3] (a) では、最初に前記原料ガスを供給する際における処理条件を、前記原料ガスの自己分解を抑制可能な処理条件とし、2回目以降に前記原料ガスを供給する際における処理条件を、前記原料ガスが自己分解する処理条件とする請求項1に記載の半導体装置の製造方法。
- [請求項4] (a) では、最初に前記原料ガスを供給する際における処理条件を、前記原料ガスの中間体の生成を抑制可能な処理条件とし、2回目以降に前記原料ガスを供給する際における処理条件を、前記原料ガスの中間体が生成される処理条件とする請求項1に記載の半導体装置の製造方法。
- [請求項5] (a) では、最初に前記原料ガスを供給する際における前記原料ガスの供給継続時間を、2回目以降に前記原料ガスを供給する際における前記原料ガスの供給継続時間よりも、短くする請求項1に記載の半導体装置の製造方法。
- [請求項6] (a) では、最初に前記原料ガスを供給する際における前記原料ガ

スの供給流量を、2回目以降に前記原料ガスを供給する際における前記原料ガスの供給流量よりも、小さくする請求項1に記載の半導体装置の製造方法。

[請求項7] (a)では、更に、キャリアガスを供給し、最初に前記原料ガスを供給する際における前記キャリアガスの供給流量を、2回目以降に前記原料ガスを供給する際における前記キャリアガスの供給流量よりも、大きくする請求項1に記載の半導体装置の製造方法。

[請求項8] (a)では、最初に前記原料ガスを供給する際における前記原料ガスの分圧を、2回目以降に前記原料ガスを供給する際における前記原料ガスの分圧よりも、低くする請求項1に記載の半導体装置の製造方法。

[請求項9] (a)では、最初に前記原料ガスを供給する際における前記基板が存在する空間の圧力を、2回目以降に前記原料ガスを供給する際における前記基板が存在する空間の圧力よりも、低くする請求項1に記載の半導体装置の製造方法。

[請求項10] (a)では、前記基板に対して前記原料ガスを供給する工程と、前記基板が存在する空間をパージする工程と、を交互に複数回繰り返す請求項1に記載の半導体装置の製造方法。

[請求項11] (a)では、最初に前記原料ガスを供給する工程の後に行う前記基板が存在する空間をパージする工程の時間を、最後に前記原料ガスを供給する工程の後に行う前記基板が存在する空間をパージする工程の時間よりも短くする請求項10に記載の半導体装置の製造方法。

[請求項12] (a)では、2回目に前記原料ガスを供給する工程の後に行う前記基板が存在する空間をパージする工程の時間を、最後に前記原料ガスを供給する工程の後に行う前記基板が存在する空間をパージする工程の時間よりも短くする請求項11に記載の半導体装置の製造方法。

[請求項13] (a)では、前記基板が存在する空間をパージする工程のうち、最後に前記原料ガスを供給する工程の後に行う前記基板が存在する空間

をパージする工程の時間を、最も長くする請求項 10 に記載の半導体装置の製造方法。

[請求項14] 前記原料ガスは、ハロシランガスを含む請求項 1 に記載の半導体装置の製造方法。

[請求項15] 前記原料ガスは、クロロシランガスを含む請求項 1 に記載の半導体装置の製造方法。

[請求項16] 前記基板上に膜を形成する工程では、80%以上のステップカバレッジが得られるように (a) と (b) とを非同時に行うサイクルを所定回数行う請求項 1 に記載の半導体装置の製造方法。

[請求項17] 前記基板上に膜を形成する工程では、85%以上のステップカバレッジが得られるように (a) と (b) とを非同時に行うサイクルを所定回数行う請求項 1 に記載の半導体装置の製造方法。

[請求項18] 前記基板上に膜を形成する工程では、90%以上のステップカバレッジが得られるように (a) と (b) とを非同時に行うサイクルを所定回数行う請求項 1 に記載の半導体装置の製造方法。

[請求項19] 基板が処理される処理室と、
前記処理室内の基板に対して原料ガスを供給する原料ガス供給系と、
、
前記処理室内の基板に対して反応ガスを供給する反応ガス供給系と、
、
前記処理室内の基板を加熱するヒータと、
前記処理室内において、(a) 表面に凹部が設けられた基板に対して前記原料ガスを供給する処理と、(b) 前記基板に対して反応ガスを供給する処理と、を非同時に行うサイクルを所定回数行うことで、前記基板上に膜を形成する処理を行わせ、(a) では、前記基板に対して前記原料ガスを複数回に分割して供給し、最初に前記原料ガスを供給する際における処理条件を、2回目以降に前記原料ガスを供給する際における処理条件よりも、前記原料ガスの自己分解を抑制可能な

処理条件とするように、前記原料ガス供給系、前記反応ガス供給系、および前記ヒータを制御することが可能なよう構成される制御部と、を有する基板処理装置。

[請求項20]

基板処理装置の処理室内において、

(a) 表面に凹部が設けられた基板に対して原料ガスを供給する手順と、

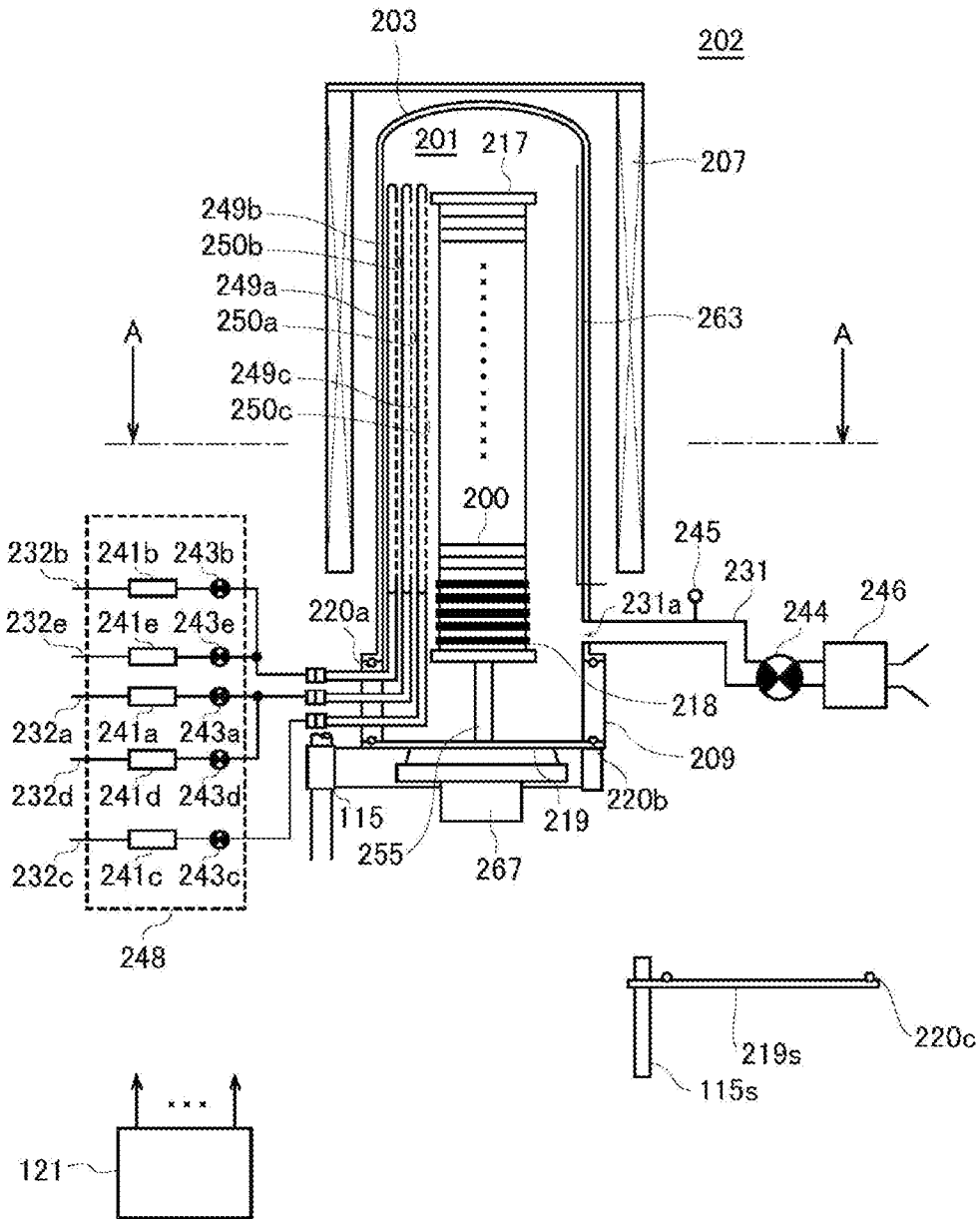
(b) 前記基板に対して反応ガスを供給する手順と、
を非同時に行うサイクルを所定回数行うことで、前記基板上に膜を形成する手順と、

(a) において、前記基板に対して前記原料ガスを複数回に分割して供給し、最初に前記原料ガスを供給する際における処理条件を、2回目以降に前記原料ガスを供給する際における処理条件よりも、前記原料ガスの自己分解を抑制可能な処理条件とする手順と、

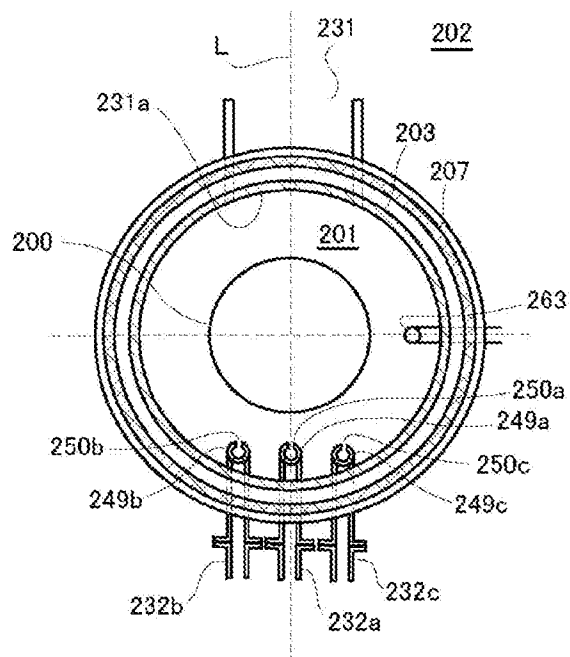
をコンピュータによって前記基板処理装置に実行させるプログラム

。

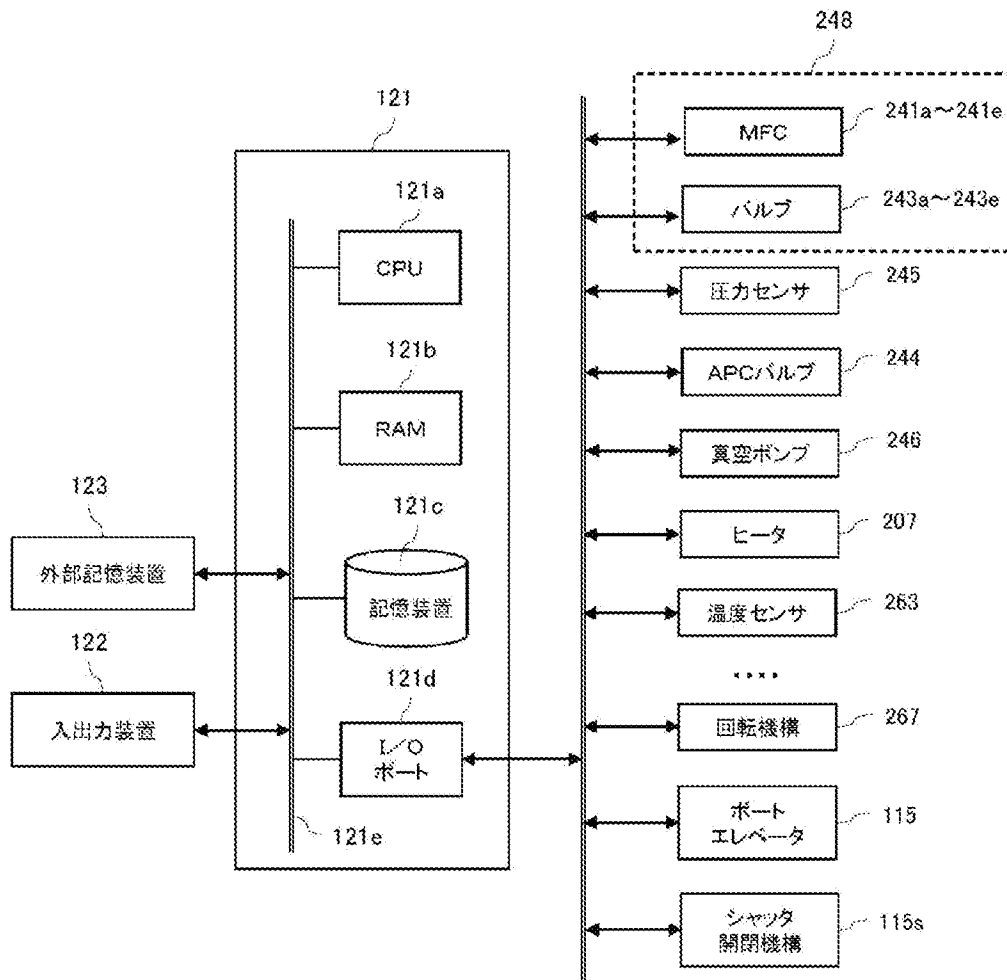
[図1]



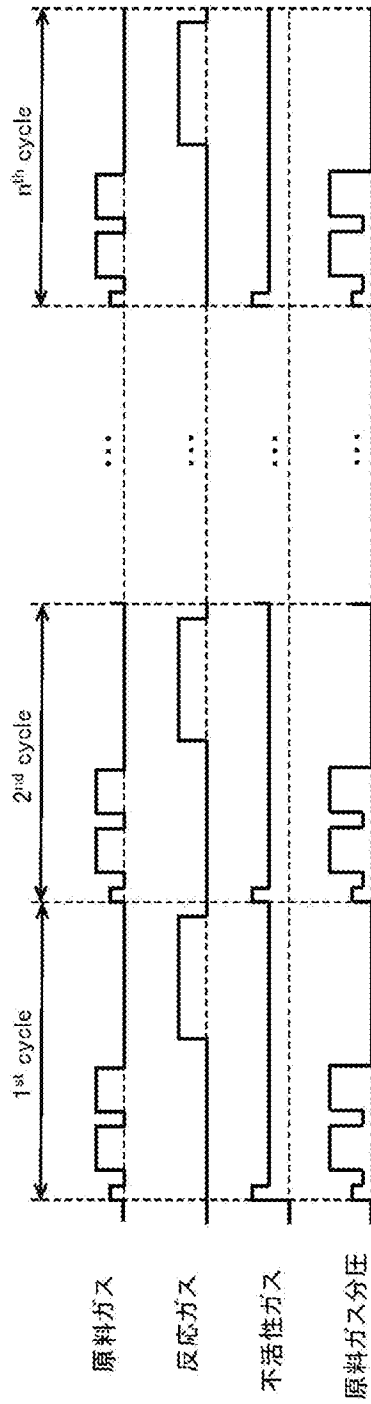
[図2]



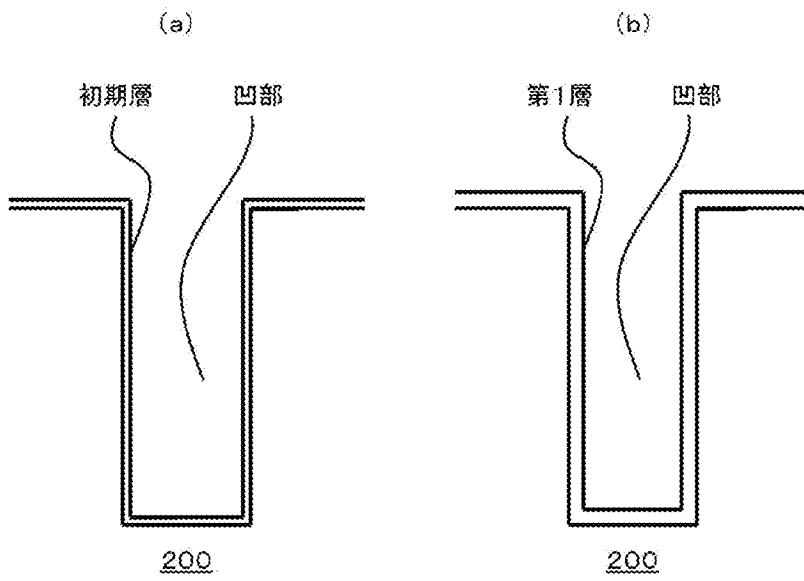
[図3]



[図4]



[図5]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/036041

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl. H01L21/31 (2006.01) i, C23C16/455 (2006.01) i
 FI: H01L21/31 B, C23C16/455

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)

Int. Cl. H01L21/31, C23C16/455

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996
 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2020
 Registered utility model specifications of Japan 1996-2020
 Published registered utility model applications of Japan 1994-2020

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 2010-90413 A (TOKYO ELECTRON LTD.) 22 April 2010 (2010-04-22), paragraphs [0023], [0028]-[0034], [0042]-[0058], fig. 1-3	1-20
A	JP 2014-168070 A (HITACHI KOKUSAI ELECTRIC INC.) 11 September 2014 (2014-09-11), paragraphs [0011]-[0014], [0020]-[0024], [0039]-[0041], [0072]-[0076], [0098]-[0101], fig. 1, 2, 4, 6, 10	1-20
A	JP 2014-208883 A (HITACHI KOKUSAI ELECTRIC INC.) 06 November 2014 (2014-11-06), paragraphs [0012]-[0022], [0041]-[0058], fig. 1, 2, 4, 5	1-20

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	“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
“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	“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
“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date	“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
“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)	“&” document member of the same patent family
“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	

Date of the actual completion of the international search 15.11.2020	Date of mailing of the international search report 01.12.2020
---	--

Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Authorized officer Telephone No.
--	---

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2020/036041

Patent Documents referred to in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 2010-90413 A	22.04.2010	US 2010/0136260 A1 paragraphs [0029], [0034]-[0039], [0048]-[0067], fig. 1-3 KR 10-2010-0038274 A CN 101713067 A	
JP 2014-168070 A	11.09.2014	US 2014/0051261 A1 paragraphs [0037]- [0040], [0046]- [0050], [0065]- [0069], [0107]- [0115], [0145]- [0150], fig. 1, 2, 4, 6, 10 KR 10-2013-0057491 A	
JP 2014-208883 A	06.11.2014	US 2017/0047227 A1 paragraphs [0036]- [0046], [0065]- [0082], fig. 1, 2, 4, 5	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） H01L 21/31(2006.01)i; C23C 16/455(2006.01)i FI: H01L21/31 B; C23C16/455		
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（IPC）） H01L21/31; 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 - 2020年 日本国実用新案登録公報 1996 - 2020年 日本国登録実用新案公報 1994 - 2020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 2010-90413 A（東京エレクトロン株式会社）22.04.2010（2010 - 04 - 22） 段落[0023], [0028]-[0034], [0042]-[0058], 図1-3	1-20
A	JP 2014-168070 A（株式会社日立国際電気）11.09.2014（2014 - 09 - 11） 段落[0011]-[0014], [0020]-[0024], [0039]-[0041], [0072]-[0076], [0098]- [0101], 図1-2, 4, 6, 10	1-20
A	JP 2014-208883 A（株式会社日立国際電気）06.11.2014（2014 - 11 - 06） 段落[0012]-[0022], [0041]-[0058], 図1-2, 4-5	1-20
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> 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、一般的な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抵触するものではなく、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 18.11.2020	国際調査報告の発送日 01.12.2020	
名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員（特許庁審査官） 加藤 芳健 50 6312 電話番号 03-3581-1101 内線 3559	

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2020/036041

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
JP	2010-90413	A	22.04.2010	US	2010/0136260	A1	段落[0029],[0034]-[0039], [0048]-[0067], 図1-3 KR 10-2010-0038274 A CN 101713067 A
JP	2014-168070	A	11.09.2014	US	2014/0051261	A1	
JP	2014-208883	A	06.11.2014	US	2017/0047227	A1	