

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第7部門第2区分

【発行日】令和3年1月14日(2021.1.14)

【公表番号】特表2020-507199(P2020-507199A)

【公表日】令和2年3月5日(2020.3.5)

【年通号数】公開・登録公報2020-009

【出願番号】特願2019-528626(P2019-528626)

【国際特許分類】

H 01 L 21/316 (2006.01)

C 23 C 16/42 (2006.01)

H 01 L 21/318 (2006.01)

C 07 F 7/10 (2006.01)

【F I】

H 01 L 21/316 X

C 23 C 16/42

H 01 L 21/318 B

C 07 F 7/10 W

C 07 F 7/10 F

C 07 F 7/10 J

【手続補正書】

【提出日】令和2年11月24日(2020.11.24)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

(a) [(SiR₃)₂N SiH₂]_m-NH₂-_m-C-N(ここで、m=1又は2である)、

(b) [(SiR₃)₂N SiH₂]₃N、及び

(c) (SiR'₃)₂N-SiH₂-N(SiR'₃)₂

(式中、

- 各Rは、H、式-NR¹R²を有するジアルキルアミノ基、又はアミジナートから独立して選択され、

- 各R'は、全てのR'がHではないことを条件として、H、式-NR¹R²を有するジアルキルアミノ基、又はアミジナートから独立して選択され、及び

- R¹及びR²は、R¹及びR²が同時にHに等しいことはできず、且つR¹がHである場合、R²がC₂-C₁₂ヒドロカルビル基であることを条件として、H又はC₁-C₁₂ヒドロカルビル基から独立して選択され、及びNR¹R²は、一緒にN含有ヘテロ環配位子を形成し得る)

からなる群から選択される前駆体を含むケイ素含有膜形成組成物。

【請求項2】

前記前駆体は、(SiH₃)₂N-SiH₂-N(SiH₃)(SiH₂NR¹R²)、[(SiH₃)₂N SiH₂]-NH-C-N、又は[(SiH₃)₂N SiH₂]₂N-C-Nである、請求項1に記載のケイ素含有膜形成組成物。

【請求項3】

前記前駆体は、[(SiH₃)₂N SiH₂]₃Nである、請求項1に記載のケイ素含

有膜形成組成物。

【請求項 4】

前記前駆体は、 $(\text{SiH}_3)_2\text{N-SiH}_2-\text{N}(\text{SiH}_3)(\text{SiH}_2\text{NM}\text{e}_2)$ 、 $(\text{SiH}_3)_2\text{N-SiH}_2-\text{N}(\text{SiH}_3)(\text{SiH}_2\text{NEt}_2)$ 、 $(\text{SiH}_3)_2\text{N-SiH}_2-\text{N}(\text{SiH}_3)(\text{SiH}_2\text{NETM}\text{e})$ 、 $(\text{SiH}_3)_2\text{N-SiH}_2-\text{N}(\text{SiH}_3)(\text{SiH}_2\text{NiPr}_2)$ 、 $(\text{SiH}_3)_2\text{N-SiH}_2-\text{N}(\text{SiH}_3)(\text{SiH}_2\text{NtBu}_2)$ 、 $(\text{SiH}_3)_2\text{N-SiH}_2-\text{N}(\text{SiH}_3)(\text{SiH}_2\text{NnB}\text{u}_2)$ 、 $(\text{SiH}_3)_2\text{N-SiH}_2-\text{N}(\text{SiH}_3)(\text{SiH}_2\text{NsecBu}_2)$ 、又は $(\text{SiH}_3)_2\text{N-SiH}_2-\text{N}(\text{SiH}_3)(\text{SiH}_2\text{NHtBu})$ である、請求項1に記載のケイ素含有膜形成組成物。

【請求項 5】

化学気相成長法によって基板上にケイ素含有膜を堆積する方法であって、請求項1～4のいずれか一項に記載のSi含有膜形成組成物を含む蒸気を、基板が入っている反応器内に導入すること、

化学気相成長法を使用して、前記前駆体の少なくとも一部を前記基板上に堆積して前記基板上にケイ素含有膜を形成すること

を含む方法。

【請求項 6】

前記化学気相成長法は、原子層堆積法又はプラズマ支援原子層堆積法である、請求項5に記載の方法。

【請求項 7】

前記ケイ素含有膜は、ケイ素酸化物膜である、請求項5又は6に記載の方法。

【請求項 8】

前記ケイ素含有膜は、ケイ素窒化物膜である、請求項5又は6に記載の方法。

【請求項 9】

前記基板は、シリコンウェハである、請求項5又は6に記載の方法。

【請求項 10】

前記基板は、ガラスである、請求項5又は6に記載の方法。

【請求項 11】

前記基板は、有機材料である、請求項5又は6に記載の方法。

【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0013

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0013】

ケイ素含有膜形成組成物が開示される。ケイ素含有膜形成組成物は、

(a) $[(\text{SiR}_3)_2\text{NSiH}_2]_n-\text{NL}_3-n$ (ここで、 $n=2$ 又は 3 である)

、

(b) $(\text{SiH}_3)_2\text{NSiH}_2-\text{O}-\text{SiH}_2\text{N}(\text{SiH}_3)_2$ 、

(c) $(\text{SiR}'_3)_2\text{N-SiH}_2-\text{N}(\text{SiR}'_3)_2$ 、及び

(d) $[(\text{SiR}_3)_2\text{NSiH}_2]_m-\text{NH}_2-m-\text{C}-\text{N}$ (ここで、 $m=1$ 又は 2 である)

(式中、

- 各Rは、H、式-NR¹R²を有するジアルキルアミノ基、又はアミジナートから独立して選択され、

- 各R'は、全てのR'がHではないことを条件として、H、式-NR¹R²を有するジアルキルアミノ基、又はアミジナートから独立して選択され、

- R¹及びR²は、R¹及びR²が同時にHに等しいことはできず、且つR¹がHである場合、R²がC₂-C_{1,2}ヒドロカルビル基であることを条件として、H又はC₁-

C₁₋₂ ヒドロカルビル基から独立して選択され、及び N R¹ R² は、一緒に N 含有ヘテロ環配位子を形成し得、及び

- L は、H 又は C₁ - C₆ ヒドロカルビル基から選択される)
からなる群から選択される前駆体を含む。

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0024

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0024】

本明細書において、R = R' の場合の略語「N^R, R', R, , - a m d」又はN^R R,
' - a m d は、アミジナート配位子 [R - N - C(R, ,) = N - R'] を指し、式中の
R、R'、及びR'、は、H 又は定義されたアルキル基 (Me、Et、nPr、iPr、
nBu、iBu、sBu、又はtBu 等) である。R = R' の場合の略語「N^R, R'
- f m d」又はN^R - f m d は、ホルムアミジナート配位子 [R - N - C(H) = N - R]
] を指し、式中のR 及びR' は、Me、Et、nPr、iPr、nBu、iBu、sBu
、又はtBu などの定義されたアルキル基である。アミジナート群において選択された配
位子は、まとめて「AMD」と略される。

【手続補正4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0037

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0037】

群2

(3) 以下の反応 :



に従う、(SiH₃)₂NSiH₂ - X (式中、X は、Cl、Br、I、SCN、NC
O、又はNR¹R² 基から選択され、NR¹R² は、上で定義した通りである) と、H₂
O である反応物との反応から、

- 反応は、好ましくは、限定するものではないが、C₃ - C₂₋₄ 炭化水素溶媒、トル
エン、ベンゼン、ジエチルエーテル、アセトニトリル、又はTHF など、無水又は非プロ
トン性の溶媒又は溶媒混合物中で行われる。

- 反応全体を通してシラン部位が絶えず過剰に維持されるように、H₂O は、シラン
含有組成物内にゆっくり添加される。

- 反応は、-40 ~ 100 の温度、好ましくは -20 ~ 室温で行われる。

- 任意選択的に、水は、キャリアガス中の蒸気として表面下に添加される。

- 任意選択的に、添加される水は、極性非プロトン性溶媒中に典型的には 1 % ~ 50
%、より好ましくは 5 % ~ 30 % で希釀される。

- 任意選択的に且つ好ましくは、X がハロゲンである場合、反応混合物は、ハライド
捕捉剤 (限定するものではないが、ピリジン、トリアルキルアミン等) を、モル濃度基準
で HX の見込まれる放出量よりも多い量で含む。ハライド捕捉剤は、溶媒として使用され
得る。反応混合物は、その後、最終生成物の分離前に形成された HX - 捕捉剤塩を除去す
るために濾過され得る。

- 任意選択的に、群(2)の化合物は、半導体グレードの前駆体に典型的な > 98 %
、より好ましくは > 99 %、更に好ましくは > 99.5 % の分析値に達するように真空蒸
留によって精製される。

- 任意選択的に、群(2)の生成物は、例えば、生成物を活性炭、乾燥した Ambre
ryst樹脂、又は他のそのようなイオン交換樹脂などの固体吸着剤に曝露することに

より、溶解している塩の含有量を減らすために更に処理され得る。

- 任意選択的に、生成物は、半導体産業において使用される典型的な製品の仕様に達するように濾過され得る。

【手続補正5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0039

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0039】

$\text{SiH}_2[\text{N}(\text{SiH}_3)_2]_2 + n\text{HNR}^1\text{R}^2 \rightarrow \text{SiH}_2[\text{N}(\text{SiH}_3)_x(\text{NR}^1\text{R}^2)_x][\text{SiH}_3-y(\text{NR}^1\text{R}^2)_y] + (x+y)\text{H}_2$ （ここで、 $x = 0 \sim 3$ であり、 $y = 1 \sim 3$ である）

- 反応は、無溶媒又は非プロトン性溶媒中（限定するものではないが、C₃ - C₂₄炭化水素溶媒、トルエン、ベンゼン、ジエチルエーテル、アセトニトリル、又はTHF等）で行われる。

- 反応は、室温～150、好ましくは30～60の温度で行われる。

- 任意選択的に、触媒は、反応混合物から濾過され、残りの液体組成物の成分は、蒸留によって分離される。

- 任意選択的に、反応混合物は、限定するものではないが、三級アミン又は配位化合物（XNR₄（X = F、Cl、Br、I；R = アルキル）、R-CN、R₂S若しくはPR₃等）から選択される触媒を失活させるための試薬で処理される。

- 任意選択的に、群(3)の化合物は、半導体グレードの前駆体に典型的な > 98%、より好ましくは > 99%、更に好ましくは > 99.5% の分析値に達するように蒸留によって精製される。

- 任意選択的に、生成物は、半導体産業において使用される典型的な製品の仕様に達するように濾過され得る。

- 反応物である(SiR₃)₂N SiH₂-Xは、同時継続出願である米国特許出願公開第2018/0072571号明細書に開示の通り、より具体的にはトリシリアルミンをNH₃反応物又は熱なしで触媒(B(C₆F₅)₃、BPh₃、PdCl₂、Co₂(CO)₈、又はゼオライトY(H)、Si:Al等)と混合することによって合成することができる。