

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2006年10月19日 (19.10.2006)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2006/109686 A1

(51) 国際特許分類:

H01L 21/312 (2006.01) C07F 7/21 (2006.01)
C07F 7/08 (2006.01) C23C 16/40 (2006.01)
C07F 7/18 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2006/307361

(22) 国際出願日: 2006年4月6日 (06.04.2006)

(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2005-111929 2005年4月8日 (08.04.2005) JP
特願2005-111930 2005年4月8日 (08.04.2005) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 大陽
日酸株式会社 (TAIYO NIPPON SANSO CORPORA-
TION) [JP/JP]; 〒1428558 東京都品川区小山一丁目
3番26号 Tokyo (JP). 独立行政法人物質・材料研
究機構 (NATIONAL INSTITUTE FOR MATERIALS

SCIENCE) [JP/JP]; 〒3050047 茨城県つくば市千現
1丁目2番1号 Ibaraki (JP).

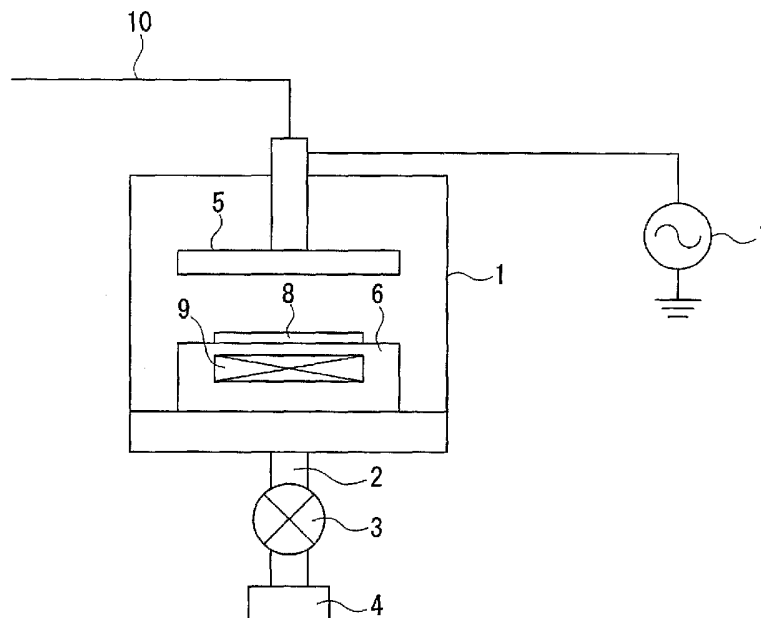
(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 大野 隆央 (OHNO,
Takahisa) [JP/JP]; 〒3050047 茨城県つくば市千現1丁
目2番1号 独立行政法人物質・材料研究機構内
Ibaraki (JP). 田島 暢夫 (TAJIMA, Nobuo) [JP/JP]; 〒
3050047 茨城県つくば市千現1丁目2番1号 独立
行政法人物質・材料研究機構内 Ibaraki (JP). 濱田 智
之 (HAMADA, Tomoyuki) [JP/JP]; 〒2630032 千葉県千
葉市稲毛区稲毛台町25-11 Chiba (JP). 小林 伸好
(KOBAYASHI, Nobuyoshi) [JP/JP]; 〒3058569 茨城県
つくば市小野川16-1 株式会社半導体先端テク
ノロギーズ内 Ibaraki (JP). 米田 克己 (YONEDA, Kat-
sumi) [JP/JP]; 〒3058569 茨城県つくば市小野川16-
1 株式会社半導体先端テクノロギーズ内 Ibaraki (JP).
井上 實 (INOUE, Minoru) [JP/JP]; 〒1428558 東京都

[続葉有]

(54) Title: MATERIAL FOR INSULATING FILM AND PROCESS FOR PRODUCING THE SAME

(54) 発明の名称: 絶縁膜用材料およびその成膜方法



(57) Abstract: This invention provides a material that can provide an insulating film which is useful, for example, for interlayer insulation films in semiconductor devices and has low permittivity and high mechanical strength. The material for an insulating film is a cyclotetrasiloxane, disiloxanemonosilane, monosilane, dihydroxysilane, trisilabenzene, or trisilacyclohexane material. A plasma CVD reaction is preferably carried out in the copresence of an organic compound containing the same functional group as the functional group in the material for an insulating film.

(57) 要約: 本発明は、半導体装置の層間絶縁膜などに有用な誘電率が低く、かつ機械的強度が高い絶縁膜を得ることを目的とする。本発明の絶縁膜用材料としては、シクロテトラシロキサン系のもの、ジシロキサンモノシ

[続葉有]

WO 2006/109686 A1



品川区小山一丁目3番26号大陽日酸株式会社内 Tokyo (JP). 羽坂 智 (HASAKA, Satoshi) [JP/JP]; 〒1428558 東京都品川区小山一丁目3番26号大陽日酸株式会社内 Tokyo (JP). 杉森 由章 (SUGIMORI, Yoshiaki) [JP/JP]; 〒1428558 東京都品川区小山一丁目3番26号大陽日酸株式会社内 Tokyo (JP). 宮澤 和浩 (MIYAZAWA, Kazuhiro) [JP/JP]; 〒1428558 東京都品川区小山一丁目3番26号大陽日酸株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 志賀 正武, 外 (SHIGA, Masatake et al.); 〒1048453 東京都中央区八重洲2丁目3番1号 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, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LC, LK,

LR, LS, LT, LU, LV, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, 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, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

ラン系のもの、モノシラン系のもの、ジヒドロキシシラン系のもの、トリシラベンゼン系のもの、トリシラシクロヘキサン系のものを用いる。プラズマCVD反応時に、絶縁膜用材料中の官能基と同じ官能基を有する有機化合物を共存させることが好ましい。

明 細 書

絶縁膜用材料およびその成膜方法

技術分野

- [0001] この発明は、半導体装置の層間絶縁膜などの絶縁膜を成膜する際に用いられる絶縁膜用材料およびこれを用いた成膜方法ならびに絶縁膜に関する。

背景技術

- [0002] 半導体集積回路装置の高集積化に伴い、配線層が微細化されつつある。しかし、微細な配線層では、配線層における信号遅延の影響が大きくなり高速化を妨げている。この信号遅延は、配線層の抵抗と配線層間容量に比例するため、高速化を実現するためには配線層の低抵抗化と配線層間容量の低減が必須である。
- [0003] このため、最近では配線層をなす材料として、従来のアルミニウムから抵抗率の低い銅を用い、配線層間容量を減らすために、層間絶縁膜を SiO_2 (比誘電率=4.1) から誘電率の低い SiOF (比誘電率=3.7)を用いるようになってきている。しかし、層間絶縁膜に求められる比誘電率の値は次第に小さくなり、近い将来では2.4以下という小さな値のものが求められることが予想される。
- [0004] 配線層を銅から形成する場合には、配線層の形成にはダマシン法と呼ばれる手法が採用されている。ダマシン法とは、予めレジストマスクングにより層間絶縁膜にドライエッチングにより配線溝を形成し、この上に銅を堆積した後、配線溝以外に堆積している銅を化学機械研磨法 (CMP) によって除去して銅からなる配線層を形成する手法である。
- [0005] この化学機械研磨法による操作は、ウエハにスラリとパッドで荷重をかけながら銅を研磨除去するため、層間絶縁膜には上方向と横方向とからの力がかかり、場合によっては層間絶縁膜が破損したり剥離したりする不具合が起こる。
- 層間絶縁膜が、テトラエトキシシランを用い、CVD法で形成した SiO_2 膜である場合には、この膜の強度が高いため、化学機械研磨によって破損することは無い。しかし、誘電率を下げるために SiO_2 膜を多孔質にすると強度が大きく低下して脆くなる。
- [0006] この絶縁膜の強度の指標として、ヤング率を用いるのが一般的であるが、テトラエト

キシシランを用いた SiO_2 膜では80GPa程度あったものが、 SiOF 膜になると70GPa、更に SiOC 膜になると12GPaにまで低下する。

最近の有機物原料を用いた多孔質 SiO_2 膜では、4～6GPa程度の強度しかないことが判明し、化学機械研磨ができない状況も現出しており、これが半導体集積回路装置の微細化を阻害する原因となっている。

[0007] 半導体集積回路装置の層間絶縁膜として、誘電率を低減させたものを用いるようにした提案は多数あり、以下のその一部を示す。

特許文献1:特開2002-252228号公報

特許文献2:特開2002-256434号公報

特許文献3:特開2004-200626号公報

特許文献4:特開2004-214161号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

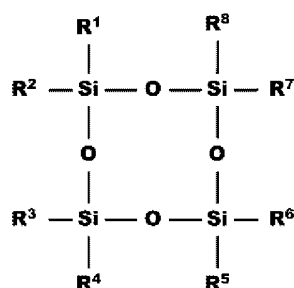
[0008] よって、本発明における課題は、半導体装置の層間絶縁膜などに有用な誘電率が低く、かつ機械的強度が高い絶縁膜を得ることにある。

課題を解決するための手段

[0009] かかる課題を解決するため、本願発明は下記の構成をとる。

(1) 下記化学式(1)で示される有機シラン化合物を含むプラズマCVD用絶縁膜用材料。

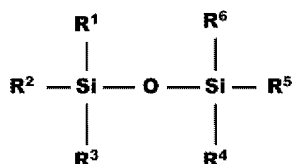
[0010] [化1]



(式中、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^8$ は、 H 、 CH_3 、 C_2H_5 、 C_3H_7 、 $\text{i-C}_3\text{H}_7$ の何れかである；但し、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^8$ は C_2H_5 、又は $\text{i-C}_3\text{H}_7$ を少なくとも1つ以上含む)

[0011] (2) 下記化学式(2)で示される有機シラン化合物を含むプラズマCVD用絶縁膜用材料。

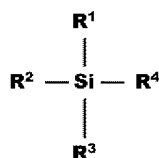
[0012] [化2]



(式中、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^6$ は、 H 、 CH_3 、 C_2H_3 、 C_3H_5 、 $\text{i-C}_3\text{H}_7$ の何れかである；但し、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^6$ は C_2H_3 、又は $\text{i-C}_3\text{H}_7$ を少なくとも1つ以上含む)

[0013] (3) 下記化学式(3)で示される有機シラン化合物を含むプラズマCVD用絶縁膜用材料。

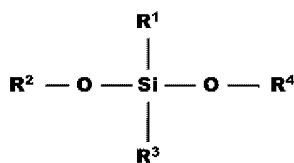
[0014] [化3]



(式中、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^4$ は、 H 、 CH_3 、 C_2H_3 、 C_3H_5 、 $\text{i-C}_3\text{H}_7$ の何れかである；但し、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^4$ は C_2H_3 、又は $\text{i-C}_3\text{H}_7$ を少なくとも1つ以上含む)

[0015] (4) 下記化学式(4)で示される有機シラン化合物を含むプラズマCVD用絶縁膜用材料。

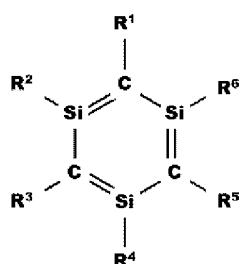
[0016] [化4]



(式中、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^4$ は、 H 、 CH_3 、 C_2H_3 、 C_3H_5 、 $\text{i-C}_3\text{H}_7$ の何れかである；但し、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^4$ は C_2H_3 、又は $\text{i-C}_3\text{H}_7$ を少なくとも1つ以上含む)

[0017] (5) 下記化学式(5)で示される有機シラン化合物を含むプラズマCVD用絶縁膜用材料。

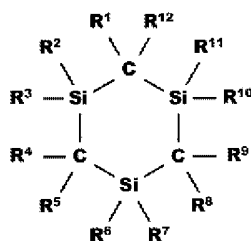
[0018] [化5]



(式中、 $R^1 \sim R^6$ は、 H 、 CH_3 、 C_2H_3 、 C_2H_5 、 C_3H_5 、 C_3H_7 、 C_4H_9 、 $i-C_4H_9$ 、 $s-C_4H_9$ 、 $t-C_4H_9$ 、の何れかである)

[0019] (6) 下記化学式(6)で示される有機シラン化合物を含むプラズマCVD用絶縁膜用材料。

[0020] [化6]



(式中、 $R^1 \sim R^{12}$ は、 H 、 CH_3 、 C_2H_3 、 C_2H_5 、 C_3H_5 、 C_3H_7 、 $i-C_4H_9$ 、 C_4H_9 、 $i-C_4H_9$ 、 $s-C_4H_9$ 、 $t-C_4H_9$ 、の何れかである)

[0021] (7) 上記(1)乃至(6)のいずれか一つに記載の有機シラン化合物中の官能基と同一の官能基を少なくとも1つ以上含むアルコール化合物またはエーテル化合物に、当該有機シラン化合物を含むプラズマCVD用絶縁膜用材料を溶解する工程；
当該溶解物を、プラズマCVD成膜装置に供給する工程；
を含むことを特徴とするプラズマCVD法による成膜方法。

[0022] (8) 上記(1)乃至(6)のいずれか一つに記載の有機シラン化合物中の官能基と同一の官能基を少なくとも1つ以上含む鎖状炭化水素化合物、アルコール化合物またはエーテル化合物を気化して添加ガスとする工程；
当該添加ガスを、当該有機シラン化合物を含むプラズマCVD用絶縁膜用材料からなる成膜ガスに添加する工程；
を含むことを特徴とするプラズマCVD法による成膜方法。

[0023] (9) 上記(1)乃至(6)のいずれか一つに記載の有機シラン化合物中の官能基と同

一の官能基を少なくとも1つ以上含む鎖状炭化水素化合物、アルコール化合物またはエーテル化合物を気化してキャリアガスとする工程；

当該キャリアガスを、当該有機シラン化合物を含むプラズマCVD用絶縁用材料の溶液中に供給する工程；

を含むことを特徴とする成膜方法。

[0024] (10) 上記(7)乃至(9)のいずれか一つに記載の成膜方法を用いて基板上に成膜された絶縁膜。

発明の効果

[0025] 本発明によれば、この材料を利用してプラズマCVD法により成膜された絶縁膜は、誘電率が低く、しかも機械的強度が高く、化学機械研磨法によっても、層間絶縁膜が破損することがなくなる等の効果が得られる。特に、誘電率が2.4以下で、ヤング率が10GPa以上の絶縁膜を得ることができる。

[0026] また、従来、プラズマCVD法により成膜された絶縁膜にあつては、減圧下で絶縁膜用材料分子がプラズマによってラジカルに分解された後に基板上に成膜される。このため、生成した有機ラジカルが絶縁膜中に取り込まれずに成膜され、所望の性能が得られないものがあつた。

[0027] 本発明の成膜方法によれば、絶縁膜用材料中の官能基と同じ官能基を有する有機化合物を絶縁膜用材料と一緒にプラズマCVD成膜装置の反応チャンバーに送り込み、反応下に共存させることで、反応時に絶縁膜用材料と有機化合物とから同一の有機ラジカルが生成することになる。

[0028] このため、CVDチャンバー内での当該有機ラジカルの分圧が高くなり、絶縁膜用材料から発生した有機ラジカルが絶縁膜中に取り込まれなくなることを防ぎ、あるいはより多くの有機ラジカルを絶縁膜中に導入することにより所望の性能の絶縁膜を得ることができる。

図面の簡単な説明

[0029] [図1]本発明で用いられるプラズマ成膜装置の例を示す概略構成図である。

符号の説明

[0030] 1・・・チャンバー、2・・・排気管、3・・・開閉弁、4・・・排気ポンプ、5・・・上部電極、6

・・・下部電極、7・・・高周波電源、8・・・基板、9・・・ヒーター、10・・・ガス供給配管
発明を実施するための最良の形態

[0031] 以下、本発明を詳しく説明する。

初めに、本発明の絶縁膜用材料について説明する。

本発明のプラズマCVD用絶縁膜用材料のうち、シクロテトラシロキサン系のものは、分子中に水素、メチル基、ビニル基、プロペニル基、アリル基、イソプロピル基のいずれかを有し、かつビニル基、プロペニル基、アリル基、イソプロピル基を1つ以上必ず有するシクロテトラシロキサンであって、上記化学式(1)で表される化合物である。

[0032] 具体的な化合物としては、1,3,5,7-テトラビニルシクロシロキサン、1,3,5,7-テトラプロペニルシクロシロキサン、1,3,5,7-テトラアリルシクロシロキサン、1,3,5,7-テトライソプロピルシクロシロキサン、1,3,5,7-テトラメチル-2,4,6,8-テトラビニルシクロシロキサン、1,3,5,7-テトラメチル-2,4,6,8-テトラプロペニルシクロシロキサン、1,3,5,7-テトラメチル-2,4,6,8-テトラアリルシクロシロキサン、1,3,5,7-テトラメチル-2,4,6,8-テトライソプロピルシクロシロキサン、1,3,5,7-テトラビニル-2,4,6,8-テトラプロペニルシクロシロキサン、1,3,5,7-テトラビニル-2,4,6,8-テトラアリルシクロシロキサン、1,3,5,7-テトラビニル-2,4,6,8-テトライソプロピルシクロシロキサン、1,3,5,7-テトラプロペニル-2,4,6,8-テトラアリルシクロシロキサン、1,3,5,7-テトラプロペニル-2,4,6,8-テトライソプロピルシクロシロキサン、1,3,5,7-テトラアリル-2,4,6,8-テトライソプロピルシクロシロキサン、1,2,3,4,5,6,7,8-オクタビニルシクロシロキサン、1,2,3,4,5,6,7,8-オクタプロペニルシクロシロキサン、1,2,3,4,5,6,7,8-オクタアリルシクロシロキサン、1,2,3,4,5,6,7,8-オクタイソプロピルシクロシロキサンなどがある。

[0033] また、ジシロキサン系のプラズマCVD用絶縁膜用材料としては分子中に水素、メチル基、ビニル基、プロペニル基、アリル基、イソプロピル基のいずれかを有し、かつビニル基プロペニル基、アリル基、イソプロピル基を1つ以上必ず有するジシロキサンであって、上記化学式(2)で表されるものである。

[0034] 具体的な化合物としては、1,2,3-トリビニルジシロキサン、1,2,3-トリプロペニルジシロキサン、1,2,3-トリアリルジシロキサン、1,2,3-トリイソプロピルジシロキサン、1,2,3-トリメチル-4,5,6-トリビニルジシロキサン、1,2,3-トリメチル-4,5,6-トリプロペニルジシロ

キサン、1,2,3-トリメチル-4,5,6-トリアリルジシロキサン、1,2,3-トリメチル-4,5,6-トリイソプロピルジシロキサン、1,2,3-トリビニル-4,5,6-トリプロペニルジシロキサン、1,2,3-トリビニル-4,5,6-トリアリルジシロキサン、1,2,3-トリビニル-4,5,6-トリイソプロピルジシロキサン、1,2,3-トリプロペニル-4,5,6-トリイソプロピルジシロキサン、1,2,3-トリプロペニル-4,5,6-トリイソプロピルジシロキサン、1,2,3-トリアリル-4,5,6-トリイソプロピルジシロキサン、1,2,3,4,5,6-ヘキサビニルジシロキサン、1,2,3,4,5,6-ヘキサプロペニルジシロキサン、1,2,3,4,5,6-ヘキサアリルジシロキサン、1,2,3,4,5,6-ヘキサイソプロピルジシロキサンなどが挙げられる。

[0035] モノシラン系のプラズマCVD用絶縁膜用材料としては分子中に水素、メチル基、ビニル基、プロペニル基、アリル基、イソプロピル基のいずれかを有し、かつビニル基プロペニル基、アリル基、イソプロピル基を1つ以上必ず有するモノシランであって、上記化学式(3)で表されるものである。

[0036] 具体的な化合物としては、トリビニルシラン、トリプロペニルシラン、トリアリルシラン、トリイソプロピルシラン、メチルトリビニルシラン、メチルトリプロペニルシラン、メチルアリルシラン、メチルトリイソプロピルシラン、テトラビニルシラン、テトラプロペニルシラン、テトラアリルシラン、テトライソプロピルシランなどが挙げられる。

[0037] また、ジヒドロキシシラン系のプラズマCVD用絶縁膜用材料としては絶縁膜用材料としては分子中に水素、メチル基、ビニル基、プロペニル基、アリル基、イソプロピル基のいずれかを有し、かつビニル基プロペニル基、アリル基、イソプロピル基を1つ以上必ず有するジヒドロキシシランであって、上記化学式(4)で表されるものである。

[0038] 具体的な化合物としては、ジビニルジヒドロキシシラン、ジプロペニルジヒドロキシシラン、ジアリルジヒドロキシシラン、ジイソプロピルジヒドロキシシラン、ジビニロキシシラン、ジプロペニロキシシラン、ジアリロキシシラン、ジイソプロピロキシシラン、ジビニルジメトキシシラン、ジプロペニルジメトキシシラン、ジアリルジメトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシラン、ジビニルジエトキシシラン、ジプロペニルジエトキシシラン、ジビニルジビニロキシシラン、ジビニルジプロペニロキシシラン、ジビニルジアリロキシシラン、ジビニルジイソプロペニロキシシラン、ジプロペニルジビニロキシシラン、ジプロペニルジプロペニロキシシラン、ジプロペニルジアリロキシシラン、ジプロペニルジイソ

プロピロキシシラン、ジアリルジビニロキシシラン、ジアリルジプロペニロキシシラン、ジアリルジアロキシシラン、ジアリルジイソプロピロキシシラン、ジイソプロピルジビジロキシシラン、ジイソプロピルジプロペニロキシシラン、ジイソプロピルジアロキシシラン、ジイソプロピルジイソプロキシシランなどが挙げられる。

[0039] 本発明のプラズマCVD用絶縁膜用材料のうち、トリシラベンゼン系のものは、分子中に水素又は、メチル基、エチル基、ビニル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、セカンダリーブチル基、若しくはターシャリーブチル基のアルキル基を有するものであって、上記化学式(5)で表される化合物である。

[0040] 具体的な化合物としては、1,3,5-トリシラベンゼン、1,3,5-トリメチル-1,3,5-トリシラベンゼン、2,4,6-トリメチル-1,3,5-トリシラベンゼン、1,2,3,4,5,6-ヘキサメチル-1,3,5-トリシラベンゼン、1,3,5-トリビニル-1,3,5-トリシラベンゼン、2,4,6-トリビニル-1,3,5-トリシラベンゼン、1,2,3,4,5,6-ヘキサビニル-1,3,5-トリシラベンゼン、1,3,5-トリイソプロピル-1,3,5-トリシラベンゼン、2,4,6-トリイソプロピル-1,3,5-トリシラベンゼン、1,2,3,4,5,6-ヘキサイソプロピル-1,3,5-トリシラベンゼンなどが挙げられる。

[0041] また、トリシラシクロヘキサン系のプラズマCVD用絶縁膜用材料としては、分子中に水素又は、メチル基、エチル基、ビニル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、セカンダリーブチル基、若しくはターシャリーブチル基のアルキル基を有するものであって、上記化学式(6)で表されるものである。

[0042] 具体的な化合物としては、1,3,5-トリシラシクロヘキサン、1,1,3,3,5,5-ヘキサメチル-1,3,5-トリシラシクロヘキサン、2,2,4,4,6,6-ヘキサメチル-1,3,5-トリシラシクロヘキサン、1,1,2,2,3,3,4,4,5,5,6,6-ドデカメチル-1,3,5-トリシラシクロヘキサン、1,1,3,3,5,5-ヘキサビニル-1,3,5-トリシラシクロヘキサン、2,2,4,4,6,6-ヘキサビニル-1,3,5-トリシラシクロヘキサン、1,1,2,2,3,3,4,4,5,5,6,6-ドデカビニル-1,3,5-トリシラシクロヘキサン、1,1,3,3,5,5-ヘキサイソプロピル-1,3,5-トリシラシクロヘキサン、2,2,4,4,6,6-ヘキサイソプロピル-1,3,5-トリシラシクロヘキサン、1,1,2,2,3,3,4,4,5,5,6,6-ドデカイソプロピル-1,3,5-トリシラベンゼンなどが挙げられる。

[0043] 次に、本発明の成膜の方法について説明する。

本発明の第1の成膜方法は、上述の絶縁膜用材料を用いプラズマCVDにより成膜

を行う際、絶縁膜用材料中の官能基と同一の官能基を含むアルコール化合物またはエーテル化合物に上記絶縁膜用材料を溶解してプラズマCVD成膜装置に供給するものである。

- [0044] ここで、「絶縁膜用材料中の官能基と同一の官能基を含むアルコール化合物またはエーテル化合物」とは、例えば絶縁膜用材料をなす化合物にメチル基とエチル基とビニル基が含まれる場合、当該「メチル基とエチル基とビニル基」とがそれぞれ単独で1個以上含まれる化合物、これら3種の官能基のうち、いずれか2種以上をそれぞれ1個以上含む化合物、これら3種の官能基をすべてそれぞれ1個以上含む化合物の何れかである。すなわち、両者に共通する官能基が1個以上あればよい。

この選択基準は、以下の第2および第3の成膜方法においても同様である。

- [0045] この際の溶液中の絶縁膜用材料の濃度は、1～25重量%とされる。成膜装置への供給は、例えばアルゴンなどの不活性ガスをこの溶液にバブリングして気化するか、ヘリウムなどの不活性ガスで材料容器に圧力を加え気化器まで供給し、供給した溶液を気化器にて気化しこれを成膜装置に反応チャンバーに送り込むことができる。

この例では、絶縁膜用材料が蒸気圧が低い、あるいは常温で固体であるものに対して好適である。

- [0046] 本願発明の第1の成膜方法において用いるアルコール化合物の例としては、メチルアルコール、エチルアルコール、プロピルアルコール、プロペニルアルコール、アリルアルコール、イソプロピルアルコール、セカンダリーブチルアルコール、ターシャリーブチルアルコールなどが挙げられる。

同様にエーテル化合物の例としては、ジメチルエーテル、メチルエチルエーテル、メチルビニルエーテル、メチルプロピルエーテル、メチルプロペニルエーテル、メチルアリルエーテル、メチルイソプロピルエーテル、ジエチルエーテル、エチルビニルエーテル、エチルプロピルエーテル、エチルプロペニルエーテル、エチルアリルエーテル、エチルイソプロピルエーテル、ジビニルエーテル、ビニルプロピルエーテル、ビニルプロペニルエーテル、ビニルアリルエーテル、ビニルイソプロピルエーテル、ジプロピルエーテル、プロピルプロペニルエーテル、プロピルアリルエーテル、プロピルイソプロピルエーテル、ジプロペニルエーテル、プロペニルアリルエーテル、プロペニル

イソプロピルエーテル、ジアリルエーテル、アリルイソプロピルエーテル、ジイソプロピルエーテルなどが挙げられる。

- [0047] 第2の成膜方法は、上述の絶縁膜用材料を用いプラズマCVDにより成膜を行う際、絶縁膜用材料中の官能基と同一の官能基を含む鎖状炭化水素化合物、アルコール化合物またはエーテル化合物をガス状で絶縁膜用材料とともにプラズマCVD成膜装置の反応チャンバーに送り込むものである。

この際の絶縁膜用材料に対するこれら化合物の添加量は、体積比で絶縁膜用材料1に対して0.01～0.1とされる。

- [0048] 本発明の第2の成膜方法において用いる鎖状炭化水素化合物の例としては、メタン、エタン、エチレン、プロパン、プロペン、ブタン、ブテン、イソブタンなどが挙げられる。

本発明の第2の成膜方法において用いるアルコール化合物の例としてはメチルアルコール、エチルアルコール、プロピルアルコール、プロペニルアルコール、アリルアルコール、イソプロピルアルコール、セカンダリーブチルアルコール、ターシャリーブチルアルコールなどが挙げられる。

- [0049] 本発明の第2の成膜方法において用いるエーテル化合物の例としては、ジメチルエーテル、メチルエチルエーテル、メチルビニルエーテル、メチルプロピルエーテル、メチルプロペニルエーテル、メチルアリルエーテル、メチルイソプロピルエーテル、ジエチルエーテル、エチルビニルエーテル、エチルプロピルエーテル、エチルプロペニルエーテル、エチルアリルエーテル、エチルイソプロピルエーテル、ジビニルエーテル、ビニルプロピルエーテル、ビニルプロペニルエーテル、ビニルアリルエーテル、ビニルイソプロピルエーテル、ジプロピルエーテル、プロピルプロペニルエーテル、プロピルアリルエーテル、プロピルイソプロピルエーテル、ジプロペニルエーテル、プロペニルアリルエーテル、プロペニルイソプロピルエーテル、ジアリルエーテル、アリルイソプロピルエーテル、ジイソプロピルエーテルなどが挙げられる。

- [0050] 本発明の第3の成膜方法は、上述の絶縁膜用材料を用いプラズマCVDにより成膜を行う際、絶縁膜用材料とともにこの絶縁膜用材料と同一の官能基を含む鎖状炭化水素化合物、アルコール化合物またはエーテル化合物をキャリアガスとしてプラズマ

CVD成膜装置に供給するものである。

[0051] この成膜方法においては、鎖状炭化水素化合物、アルコール化合物またはエーテル化合物をガス化し、これを絶縁膜用材料溶液中にバブリングし、これをプラズマCVD成膜装置の反応チャンバーに送り込む。

[0052] この成膜方法において用いることができる鎖状炭化水素化合物の例としては、メタン、エタン、エチレン、プロパン、プロペン、ブタン、ブテン、イソブタンなどが挙げられる。

同様にアルコール化合物の例としてはメチルアルコール、エチルアルコール、プロピルアルコール、プロペニルアルコール、アリルアルコール、イソプロピルアルコール、セカンダリーブチルアルコール、ターシャリーブチルアルコールなどが挙げられる。

[0053] 同様にエーテル化合物の例としては、ジメチルエーテル、メチルエチルエーテル、メチルビニルエーテル、メチルプロピルエーテル、メチルプロペニルエーテル、メチルアリルエーテル、メチルイソプロピルエーテル、ジエチルエーテル、エチルビニルエーテル、エチルプロピルエーテル、エチルプロペニルエーテル、エチルアリルエーテル、エチルイソプロピルエーテル、ジビニルエーテル、ビニルプロピルエーテル、ビニルプロペニルエーテル、ビニルアリルエーテル、ビニルイソプロピルエーテル、ジプロピルエーテル、プロピルプロペニルエーテル、プロピルアリルエーテル、プロピルイソプロピルエーテル、ジプロペニルエーテル、プロペニルアリルエーテル、プロペニルイソプロピルエーテル、ジアリルエーテル、アリルイソプロピルエーテル、ジイソプロピルエーテルなどが挙げられる。

[0054] 本発明の成膜方法においては、周知のプラズマCVD法を用いることができ、例えば、図1に示すような平行平板型のプラズマ成膜装置などを使用することができる。

[0055] 図1に示したプラズマ成膜装置は、減圧可能なチャンバー1を備え、このチャンバー1は、排気管2、開閉弁3を介して排気ポンプ4に接続されている。また、チャンバー1には、図示しない圧力計が備えられ、チャンバー1内の圧力が測定できるようになっている。チャンバー1内には、相対向する一対の平板状の上部電極5と下部電極6とが設けられている。上部電極5は、高周波電源7に接続され、上部電極5に高周波電流が印加されるようになっている。

[0056] 下部電極6は、基板8を載置する載置台を兼ねており、その内部にはヒーター9が内蔵され、基板8を加熱できるようになっている。

また、上部電極5には、ガス供給配管10が接続されている。このガス供給配管10には、図示しない成膜用ガス供給源が接続され、この成膜用ガス供給装置からの成膜用のガスが供給され、このガスは上部電極5内に形成された複数の貫通孔を通して、下部電極6に向けて拡散しつつ流れ出るようになっている。

[0057] また、上記成膜用ガス供給源には、上述の絶縁膜用材料を気化する気化装置と、その流量を調整する流量調整弁を備えるとともに、ヘリウム、アルゴンなどの不活性ガスを供給する不活性ガス供給装置、水蒸気、酸素などの酸素含有ガスを供給する供給装置および前述の添加用ガスを供給する供給装置が設けられており、これらのガスもガス供給配管10を流れて、上部電極5からチャンバー1内に流れ出るようになっている。

[0058] プラズマ成膜装置のチャンバー1内の下部電極6上に基板8を置き、成膜用ガス供給源から上記絶縁膜用材料からなるガス、不活性ガス、酸素含有ガスをチャンバー1内に送り込む。高周波電源7から高周波電流を上部電極5に印加して、チャンバー1内にプラズマを発生させる。これにより、基板8上に上記ガスから気相化学反応により生成した絶縁膜が形成される。

[0059] 前記(1)ないし(6)の材料を用い、図1に示したプラズマCVD成膜装置で成膜を行う際の条件は、例えば絶縁膜用材料供給量50～100cc/min、不活性ガス供給量50～100cc/min、酸素含有ガス供給量0～50cc/min、圧力1～10torr、RFパワー500W、基板温度200～400℃とすることができる。

[0060] 前記(7)に示した方法で、図1に示したプラズマCVD成膜装置を使って成膜する際の条件の例としては、絶縁材料を濃度5～25%に溶解した混合物の供給量(ガス化後)200～400CC/min、不活性ガス供給量50～100cc/min、酸素含有ガス供給量0～50cc/min、圧力1～10torr、RFパワー500W、基板温度200～400℃とすることができる。

[0061] 前記(8)に示した方法で、図1に示したプラズマCVD成膜装置を使って成膜する条件の例としては、絶縁膜用材料供給量50～100cc/min、添加ガス供給量1～5cc/min

、不活性ガス供給量50～100cc/min、酸素含有ガス供給量0～50cc/min、圧力1～10 torr、RFパワー500W、基板温度200～400℃とすることができる。

[0062] 前記(9)に示した方法で、図1に示したプラズマCVD成膜装置を使ってでの成膜を行う際の条件の例としては、バブリングしたキャリアガスの供給量100～500cc/min、不活性ガス供給量50～100cc/min、酸素含有ガス供給量0～50cc/min、圧力1～10torr、RFパワー500W、基板温度200～400℃とすることができる。

[0063] このときに使用する絶縁膜用材料は、材料中に含まれる金属成分が合計100ppb未満であり、酸素、窒素成分はそれぞれ10ppm未満のものである。

絶縁膜用材料中の金属成分は、成膜された膜のリーク特性を悪化させるため少ないほうがよい。また、酸素は成膜時にSiと結合し膜内に取り込まれ膜の特性を変化させてしまうため少ないほうが良い。また、窒素は成膜後ArFレジストを行う際にアミンを生成するなどの悪影響があるため少ないほうが良い。

[0064] このようにして本発明の方法で成膜された絶縁膜は、誘電率が2.5以下で、ヤング率が8GPa以上、成膜条件によっては10GPa程度となって、機械的強度が高いものとなった。

このため、この絶縁膜は、化学機械研磨によって破損したり、基板から剥離するようなことがない。

[0065] 以下、具体例を示す。

(比較例)

図1に示したプラズマ成膜装置を使用し、テトラエトキシシランを用いてSiO₂からなる絶縁膜を形成した。成膜条件は、以下の通りである。

テトラエトキシシラン流量 : 100cc/min

酸素流量 : 50cc/min

RFパワー : 500W

チャンバー圧力 : 5.0torr

基板温度 : 370℃

厚さ : 200nm

得られた絶縁膜の誘電率は4.1であった。

実施例 1

[0066] 図1に示したプラズマ成膜装置を使用し、1,3,5,7-テトラメチル-2,4,6,8-テトラビニルシクロシロキサンを用いた成膜条件は下記のとおりである。

絶縁膜用材料流量 : 100cc/min

酸素流量 : 5cc/min

ヘリウム流量 : 100cc/min

圧力 : 5torr

RFパワー : 500W

基板温度 : 350℃

厚さ : 200nm

このようにして得られた絶縁膜の誘電率は2.4、ヤング率は10GPaであった。

実施例 2

[0067] 図1に示したプラズマ成膜装置を使用し、1,3,5,7-テトラメチル-2,4,6,8-テトライソプロピルシクロシロキサンをイソプロピルアルコールに溶解した場合の成膜条件は下記のとおりである。

絶縁膜用材料の濃度 : 5%

溶解した混合物の供給量(ガス化後) : 400cc/min

酸素流量 : 5cc/min

ヘリウム流量 : 100cc/min

圧力 : 5torr

RFパワー : 500W

基板温度 : 350℃

厚さ : 200nm

このようにして得られた絶縁膜の誘電率は2.3、ヤング率は9GPaであった。

実施例 3

[0068] 図1に示したプラズマ成膜装置を使用しジイソプロピルジビニロキシシランをビニルイソプロピルエーテルに溶解した場合の成膜条件は下記のとおりである。

絶縁膜用材料の濃度 : 5%

溶解した混合物の供給量(ガス化後):400cc/min

酸素流量 :5cc/min

ヘリウム流量 :100cc/min

圧力 :5torr

RFパワー :500W

基板温度 :350°C

厚さ :200nm

このようにして得られた絶縁膜の誘電率は2.3、ヤング率は9GPaであった。

実施例 4

[0069] 図1に示したプラズマ成膜装置を使用し1,2,3-トリメチル-4,5,6-トリビニルジシロキサンにエチレンをガス状で添加した場合の成膜条件は下記のとおりである。

絶縁膜用材料流量 :50cc/min

添加ガス流量 :5cc/min

酸素流量 :5cc/min

ヘリウム流量 :50cc/min

圧力 :5torr

RFパワー :500W

基板温度 :350°C

厚さ :200nm

このようにして得られた絶縁膜の誘電率は2.2、ヤング率は8GPaであった。

実施例 5

[0070] 図1に示したプラズマ成膜装置を使用し、テトライソプロピルシランにイソプロパノールをガス状で添加した場合のプラズマ成膜装置を使用した成膜条件は下記のとおりである。

絶縁膜用材料流量 :50cc/min

添加ガス流量 :5cc/min

酸素流量 :5cc/min

ヘリウム流量 :50cc/min

圧力 : 5torr
RFパワー : 500W
基板温度 : 350℃
厚さ : 200nm

このようにして得られた絶縁膜の誘電率は2.2、ヤング率は8GPaであった。

実施例 6

[0071] 図1に示したプラズマ成膜装置を使用し、1,2,3-トリメチル-4,5,6-トリイソプロピルジシロキサンにビニルイソプロピルエーテルをガス状で添加した場合の成膜条件は下記の通りである。

絶縁膜用材料流量 : 50cc/min
添加ガス流量 : 5cc/min
酸素流量 : 5cc/min
ヘリウム流量 : 50cc/min
圧力 : 5torr
RFパワー : 500W
基板温度 : 350℃
厚さ : 200nm

このようにして得られた絶縁膜の誘電率は2.2、ヤング率は8GPaであった。

実施例 7

[0072] 図1に示したプラズマ成膜装置を使用し、1,2,3-トリメチル-4,5,6-トリビニルジシロキサンにキャリアガスとしてエチレンを添加した場合の成膜条件は下記の通りである。
キャリアガスでバブリングした絶縁膜用材料流量: 500cc/min

酸素流量 : 5cc/min
圧力 : 10torr
RFパワー : 500W
基板温度 : 350℃
厚さ : 200nm

このようにして得られた膜の誘電率は2.3、ヤング率は9GPaであった。

実施例 8

- [0073] 図1に示したプラズマ成膜装置を使用し、テトライソプロピルシランにキャリアガスとしてイソプロパノールを添加した場合の成膜条件は下記のとおりである。

キャリアガスでバブリングした絶縁膜用材料流量:500cc/min

酸素流量 :5cc/min

圧力 :10torr

RFパワー :500W

基板温度 :350℃

厚さ :200nm

このようにして得られた絶縁膜の誘電率は2.3、ヤング率は9GPaであった。

実施例 9

- [0074] 図1に示したプラズマ成膜装置を使用し、1,3,5-トリシラベンゼンを用いた成膜条件は下記のとおりである。

絶縁膜用材料流量 :100cc/min

酸素流量 :5cc/min

ヘリウム流量 :100cc/min

圧力 :5torr

RFパワー :500W

基板温度 :350℃

このようにして得られた絶縁膜の誘電率は2.4、ヤング率は10GPaであった。

実施例 10

- [0075] 図1に示したプラズマ成膜装置を使用し、1,2,3,4,5,6-ヘクトプロピル-1,3,5-トリシラベンゼンをイソプロピルアルコールに溶解した場合の成膜条件は下記のとおりである。

絶縁膜用材料の濃度 :5%

溶解した混合物の供給量(ガス化後):400cc/min

酸素流量 :5cc/min

ヘリウム流量 :100cc/min

圧力 : 5torr
RFパワー : 500W
基板温度 : 350°C

このようにして得られた絶縁膜の誘電率は2.3、ヤング率は9GPaであった。

実施例 11

[0076] 図1に示したプラズマ成膜装置を使用し1,2,3,4,5,6-ヘクトビニル-1,3,5-トリシラベンゼンをビニルイソプロピルエーテルに溶解した場合の成膜条件は下記のとおりである。

絶縁膜用材料の濃度 : 5%

溶解した混合物の供給量(ガス化後) : 400cc/min

酸素流量 : 5cc/min
ヘリウム流量 : 100cc/min

圧力 : 5torr
RFパワー : 500W
基板温度 : 350°C

このようにして得られた絶縁膜の誘電率は2.3、ヤング率は9GPaであった。

実施例 12

[0077] 図1に示したプラズマ成膜装置を使用し1,1,3,3,5,5-ヘキサビニル-1,3,5-トリシラシクロヘキサンにエチレンをガス状で添加した場合の成膜条件は下記のとおりである。

絶縁膜用材料流量 : 5cc/min
添加ガス流量 : 5cc/min
酸素流量 : 50cc/min
ヘリウム流量 : 50cc/min

圧力 : 5torr
RFパワー : 500W
基板温度 : 350°C

このようにして得られた絶縁膜の誘電率は2.2、ヤング率は8GPaであった。

実施例 13

- [0078] 図1に示したプラズマ成膜装置を使用し、1,2,3,4,5,6-ヘクトプロピル-1,3,5-トリシラベンゼンにイソプロパノールをガス状で添加した場合のプラズマ成膜装置を使用した成膜条件は下記のとおりである。

絶縁膜用材料流量 :50cc/min

添加ガス流量 :5cc/min

酸素流量 :5cc/min

ヘリウム流量 :50cc/min

圧力 :5torr

RFパワー :500W

基板温度 :350℃

このようにして得られた絶縁膜の誘電率は2.2、ヤング率は8GPaであった。

実施例 14

- [0079] 図1に示したプラズマ成膜装置を使用し、1,1,3,3,5,5-ヘキサイソプロピル-1,3,5-トリシラクロヘキサンにビニルイソプロピルエーテルを添加した場合の成膜条件は下記のとおりである。

絶縁膜用材料流量 :50cc/min

添加ガス流量 :5cc/min

酸素流量 :5cc/min

ヘリウム流量 :50cc/min

圧力 :5torr

RFパワー :500W

基板温度 :350℃

このようにして得られた絶縁膜の誘電率は2.2、ヤング率は8GPaであった。

実施例 15

- [0080] 図1に示したプラズマ成膜装置を使用し、2,4,6-トリビニル-1,3,5-トリシラベンゼンにキャリアガスとしてエチレンを添加した場合の成膜条件は下記のとおりである。

キャリアガスでバブリングした絶縁膜用材料流量:500cc/min

酸素流量 :5cc/min

圧力 : 10torr
RFパワー : 500W
基板温度 : 350°C

このようにして得られた絶縁膜の誘電率は2.3、ヤング率は9GPaであった。

実施例 16

- [0081] 図1に示したプラズマ成膜装置を使用し、2,2,4,4,6,6-ヘキサイソプロピル-1,3,5-トリシラシクロヘキサンにキャリアガスとしてイソプロパノールを添加した場合の成膜条件は下記のとおりである。

キャリアガスでバブリングした絶縁膜用材料流量: 500cc/min

酸素流量 : 5cc/min
圧力 : 10torr
RFパワー : 500W
基板温度 : 350°C

このようにして得られた絶縁膜の誘電率は2.3、ヤング率は9GPaであった。

実施例 17

- [0082] 図1に示したプラズマ成膜装置を使用し、2,4,6-トリイソプロピル-1,3,5-トリシラベンゼンにキャリアガスとしてイソプロパノールを添加した場合の成膜条件は下記のとおりである。

キャリアガスでバブリングした絶縁膜用材料流量: 500cc/min

酸素流量 : 5cc/min
圧力 : 10torr
RFパワー : 500W
基板温度 : 350°C

このようにして得られた絶縁膜の誘電率は2.3、ヤング率は9GPaであった。

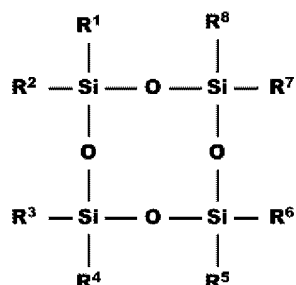
産業上の利用可能性

- [0083] 本発明によれば、プラズマCVD法により成膜された絶縁膜は、誘電率が低く、しかも機械的強度が高く、化学機械研磨法によっても、層間絶縁膜が破損することがない。また誘電率が2.4以下で、ヤング率が10GPa以上の絶縁膜を得ることができる。

請求の範囲

[1] 下記化学式(1):

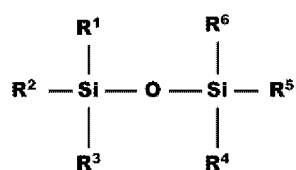
[化7]



(式中、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^8$ は、 H 、 CH_3 、 C_2H_3 、 C_3H_5 、 $\text{i-C}_3\text{H}_7$ の何れかである;但し、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^8$ は C_2H_3 、又は $\text{i-C}_3\text{H}_7$ を少なくとも1つ以上含む)
で示されるプラズマCVD用絶縁膜用材料。

[2] 下記化学式(2):

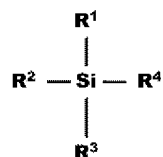
[化8]



(式中、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^6$ は、 H 、 CH_3 、 C_2H_3 、 C_3H_5 、 $\text{i-C}_3\text{H}_7$ の何れかである;但し、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^6$ は C_2H_3 、又は $\text{i-C}_3\text{H}_7$ を少なくとも1つ以上含む)
で示されるプラズマCVD用絶縁膜用材料。

[3] 下記化学式(3):

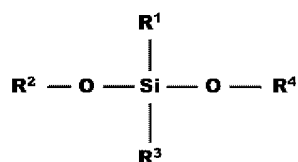
[化9]



(式中、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^4$ は、 H 、 CH_3 、 C_2H_3 、 C_3H_5 、 $\text{i-C}_3\text{H}_7$ の何れかである;但し、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^4$ は C_2H_3 、又は $\text{i-C}_3\text{H}_7$ を少なくとも1つ以上含む)
で示されるプラズマCVD用絶縁膜用材料。

[4] 下記化学式(4):

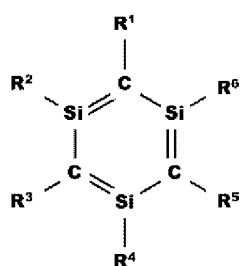
[化10]



(式中、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^4$ は、 H 、 CH_3 、 C_2H_3 、 C_3H_5 、 $\text{i-C}_3\text{H}_7$ の何れかである;但し、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^4$ は C_2H_3 、又は $\text{i-C}_3\text{H}_7$ を少なくとも1つ以上含む)
で示されるプラズマCVD用絶縁膜用材料。

[5] 下記化学式(5):

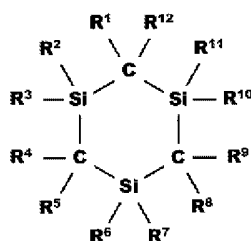
[化11]



(式中、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^6$ は、 H 、 CH_3 、 C_2H_3 、 C_2H_5 、 C_3H_5 、 C_3H_7 、 C_4H_9 、 $\text{i-C}_4\text{H}_9$ 、 $\text{s-C}_4\text{H}_9$ 、 $\text{t-C}_4\text{H}_9$ 、の何れかである)
で示されるプラズマCVD用絶縁膜用材料。

[6] 下記化学式(6):

[化12]



(式中、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^{12}$ は、 H 、 CH_3 、 C_2H_3 、 C_3H_5 、 C_3H_7 、 $\text{i-C}_3\text{H}_7$ 、 C_4H_9 、 $\text{i-C}_4\text{H}_9$ 、 $\text{s-C}_4\text{H}_9$ 、 $\text{t-C}_4\text{H}_9$ 、の何れかである)
で示されるプラズマCVD用絶縁膜用材料。

[7] 請求項1乃至6のいずれか一項に記載の有機シラン化合物中の官能基と同一の官

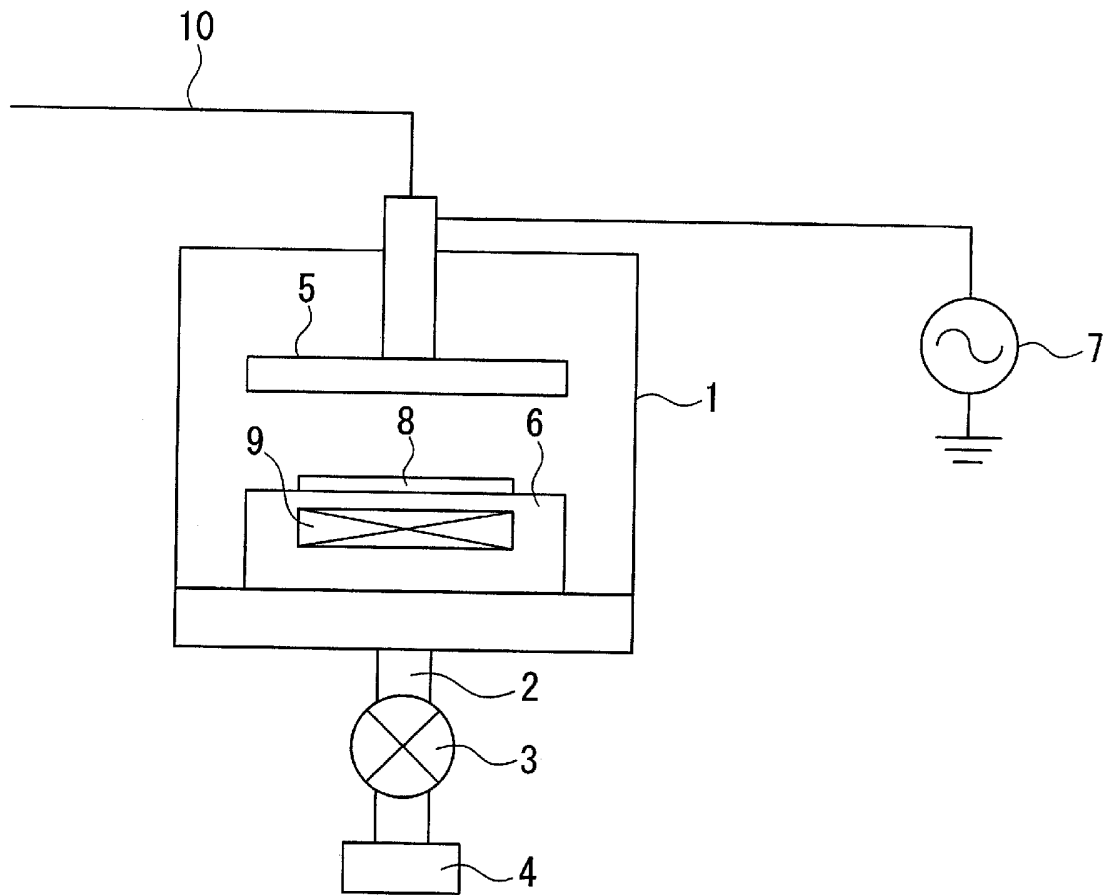
能基を少なくとも1つ以上含むアルコール化合物またはエーテル化合物に、当該有機シラン化合物を含むプラズマCVD用絶縁膜用材料を溶解する工程；
当該溶解物を、プラズマCVD成膜装置に供給する工程；
を含むことを特徴とするプラズマCVD法による成膜方法。

- [8] 請求項1乃至6のいずれか一項に記載の有機シラン化合物中の官能基と同一の官能基を少なくとも1つ以上含む鎖状炭化水素化合物、アルコール化合物またはエーテル化合物を気化して添加ガスとする工程；
当該添加ガスを、当該有機シラン化合物を含むプラズマCVD用絶縁膜用材料からなる成膜ガスに添加する工程；
を含むことを特徴とするプラズマCVD法による成膜方法。

- [9] 請求項1乃至6のいずれか一項に記載の有機シラン化合物中の官能基と同一の官能基を少なくとも1つ以上含む鎖状炭化水素化合物、アルコール化合物またはエーテル化合物を気化してキャリアガスとする工程；
当該キャリアガスを、当該有機シラン化合物を含むプラズマCVD用絶縁膜用材料の溶液中に供給する工程；
を含むことを特徴とする成膜方法。

- [10] 請求項7乃至9のいずれか一項に記載の成膜方法を用いて基板上に成膜された絶縁膜。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/307361

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER H01L21/312 (2006.01), C07F7/08 (2006.01), C07F7/18 (2006.01), C07F7/21 (2006.01), C23C16/40 (2006.01) 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) H01L21/312, C07F7/08, C07F7/18, C07F7/21, C23C16/40, H01L21/205 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 1996-2006 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2006 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2006 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.
X A	JP 2005-051192 A (Tosoh Corp.), 24 February, 2005 (24.02.05), Claims 6, 10; Par. No. [0031], (A), (L); Par. Nos. [0033], [0035], [0037], [0044], [0063] & EP 1566835 A1 & US 2003/0180550 A1	1, 4, 7, 10 5, 9
X	JP 2004-047873 A (NEC Corp.), 12 February, 2004 (12.02.04), Claim 5; Par. Nos. [0052], [0056], [0064] & US 2005/0267253 A1	1, 2
X	WO 2003/095702 A2 (APPLIED MATERIALS, INC.), 20 November, 2003 (20.11.03), Par. Nos. [0020], [0022], [0026], [0080] to [0116] & JP 2005-524983 A	3, 4, 8
☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 04 July, 2006 (04.07.06)		Date of mailing of the international search report 11 July, 2006 (11.07.06)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer
Facsimile No.		Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/307361

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 10-284486 A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 23 October, 1998 (23.10.98), Claims 1 to 6 & EP 0826791 A2 & US 5989998 A	3, 4
X	JP 2001-298023 A (APPLIED MATERIALS, INC.), 26 October, 2001 (26.10.01), Claims 1, 8, 10, 16, 18 & US 6541367 B1	6

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） Int.Cl. H01L21/312(2006.01), C07F7/08(2006.01), C07F7/18(2006.01), C07F7/21(2006.01), C23C16/40(2006.01)											
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）） Int.Cl. H01L21/312, C07F7/08, C07F7/18, C07F7/21, C23C16/40, H01L21/205											
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 <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2006年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2006年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2006年</td> </tr> </table>				日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2006年	日本国実用新案登録公報	1996-2006年	日本国登録実用新案公報	1994-2006年
日本国実用新案公報	1922-1996年										
日本国公開実用新案公報	1971-2006年										
日本国実用新案登録公報	1996-2006年										
日本国登録実用新案公報	1994-2006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 請求の範囲の番号									
X A	JP 2005-051192 A（東ソー株式会社）2005.02.24, 請求項 6, 10、段落【0031】の(A), (L)、段落【0033】、【0035】、【0037】、【0044】、【0063】 & EP 1566835 A1 & US 2003/0180550 A1	1, 4, 7, 10 5, 9									
X	JP 2004-047873 A（日本電気株式会社）2004.02.12, 請求項 5、段落【0052】、【0056】、【0064】 & US 2005/0267253 A1	1, 2									
☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。 ☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。											
* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」同一パテントファミリー文献											
国際調査を完了した日 04.07.2006		国際調査報告の発送日 11.07.2006									
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ISA/JP） 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） 池渕 立	4E 8831								
		電話番号 03-3581-1101 内線 3425									

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 請求の範囲の番号
X	WO 2003/095702 A2 (APPLIED MATERIALS, INC.) 2003. 11. 20, [0020], [0022], [0026], [0080]-[0116] & JP 2005-524983 A	3, 4, 8
X	JP 10-284486 A (松下電器産業株式会社) 1998. 10. 23, 請求項 1-6 & EP 0826791 A2 & US 5989998 A	3, 4
X	JP 2001-298023 A (アプ ^o ライト ^o マテリアルズ ^o インコーポレイテッド ^o) 2001. 10. 26, 請求項 1, 8, 10, 16, 18 & US 6541367 B1	6