

(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
2023年4月20日(20.04.2023)



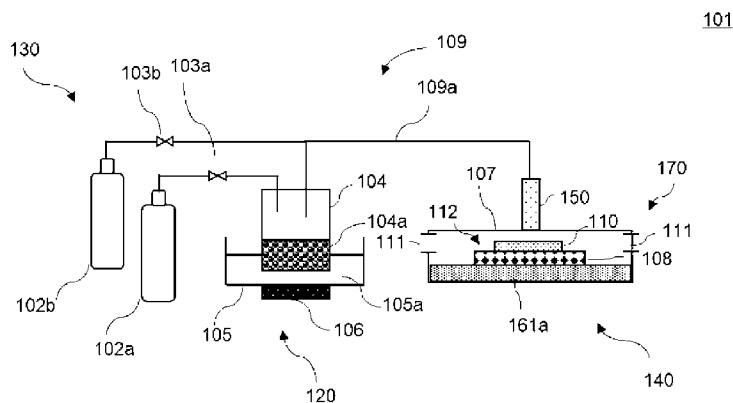
(10) 国際公開番号

WO 2023/062889 A1

- (51) 国際特許分類:
C23C 16/448 (2006.01) H01L 21/365 (2006.01)
C23C 16/40 (2006.01) H01L 21/368 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2022/025998
- (22) 国際出願日: 2022年6月29日(29.06.2022)
- (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 2021-168663 2021年10月14日(14.10.2021) JP
- (71) 出願人: 信越化学工業株式会社 (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1000005 東京都千代田区丸の内一丁目4番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 坂爪 崇寛 (SAKATSUME Takahiro); 〒3790195 群馬県安中市磯部二丁目13
- 番1号 信越化学工業株式会社 精密機能材料研究所内 Gunma (JP).
- (74) 代理人: 好宮 幹夫, 外 (YOSHIMIYA Milkio et al.); 〒1100005 東京都台東区上野7丁目6番11号 第一下谷ビル8F 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, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, 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.

(54) Title: FILM DEPOSITION DEVICE AND MANUFACTURING METHOD

(54) 発明の名称: 成膜装置及び製造方法



(57) Abstract: The present invention is a film deposition device which is provided with an atomization unit for generating a mist by atomizing a raw material solution, a carrier gas supply unit for supplying a carrier gas for carrying the mist generated by the atomization unit, and a film deposition unit for depositing a film by applying a heat treatment to the mist carried by the carrier gas, wherein: the film deposition unit comprises a film deposition chamber, a substrate mounting part disposed inside the film deposition chamber, a nozzle for supplying the mist to the inside of the film deposition chamber, and an exhaust part for exhausting exhaust gas from the inside of the film deposition chamber to the outside; and the difference in height position between a ceiling inner surface of the film deposition chamber and a substrate mounting surface of the substrate mounting part is 0.15 cm to 6.05 cm. Because of this, a film deposition device capable of depositing, by means of a mist CVD method, a film having excellent in-plane uniformity of film thickness is provided.

WO 2023/062889 A1

(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))

(57) 要約 : 本発明は、原料溶液をミスト化してミストを発生させるミスト化部と、前記ミスト化部で発生させた前記ミストを搬送するキャリアガスを供給するキャリアガス供給部と、前記キャリアガスにより搬送された前記ミストを熱処理して成膜を行う成膜部とを備えた成膜装置であって、前記成膜部は、成膜室と、前記成膜室の内部に設けられた基板載置部と、前記成膜室の内部へ前記ミストを供給するノズルと、前記成膜室の内部から外部へ排気ガスを排気する排気部とを備え、前記成膜室の天井の内面と前記基板載置部の基板載置面の高さ位置の差が0.15cm以上6.05cm以下である成膜装置である。これにより、ミストCVD法により膜厚の面内均一性に優れた膜を成膜可能な成膜装置を提供する。

明 細 書

発明の名称：成膜装置及び製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、ミスト状の原料溶液を用いて基板上に成膜を行うための成膜装置及び成膜方法に関する。

背景技術

[0002] 従来、パルスレーザー堆積法 (Pulsed laser deposition: PLD)、分子線エピタキシー法 (Molecular beam epitaxy: MBE)、スパッタリング法等の非平衡状態を実現できる高真空成膜装置が開発されており、これまでの融液法等では作製不可能であった酸化物半導体の作製が可能となってきた。また、霧化されたミスト状の原料を用いて、基板上に結晶成長させるミスト化学気相成長法 (Mist Chemical Vapor Deposition: Mist CVD。以下、「ミストCVD法」ともいう。)が開発され、コランダム構造を有する酸化ガリウム ($\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$) の作製が可能となってきた。 $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ は、バンドギャップの大きな半導体として、高耐圧、低損失及び高耐熱を実現できる次世代のスイッチング素子への応用が期待されている。

[0003] ミストCVD法に関して、特許文献1には、管状炉型のミストCVD装置が記載されている。特許文献2には、ファインチャンネル型のミストCVD装置が記載されている。特許文献3には、リニアソース型のミストCVD装置が記載されている。特許文献4には、管状炉のミストCVD装置が記載されており、特許文献1に記載のミストCVD装置とは、ミスト発生器内にキャリアガスを導入する点で異なっている。特許文献5には、ミスト発生器の上方に基板を設置し、基板を回転させるミストCVD装置が記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開平1-257337号公報

特許文献2：特開2005-307238号公報

特許文献3：特開2012-46772号公報

特許文献4：特許第5397794号公報

特許文献5：国際公開第2020/261355号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] ミストCVD法は、他のCVD法とは異なり比較的低温で成膜を行うことができ、 $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ のコランダム構造のような準安定相の結晶構造も作製可能である。しかしながら、本発明者らは、基板の上方からミストを供給した際に、熱対流やミストを含有するガスと周囲の気体の混合によって、ミストの流れが乱され、成膜される膜の膜厚の面内均一性を維持するのが困難になるという問題を見出した。面内均一性の低い半導体膜は、半導体装置を作製した際の歩留が低下してしまう問題や、研磨工程等による半導体装置の作製工程数が増加する問題がある。

[0006] 特許文献5には、基板を回転させながら、ミスト発生器の上方にある基板にミストを供給し、面内の膜厚分布が良好な半導体膜を形成した例が開示されている。しかし、特許文献5での実施例によると、4インチ（直径約100mm）基板上への成膜では最小膜厚／最大膜厚＝55.0%であり、膜厚の面内均一性に優れた膜とはなっていない。また、本発明者らが特許文献5に基づいて成膜を実施した結果、特許文献5に記載の成膜装置では、中心部が厚く、膜厚の面内均一性の悪い膜しか得られなかった。また、6インチ基板上に成膜を行った際には、さらに膜厚の面内均一性の悪い膜となることを見出した。

[0007] 本発明は、上記問題を解決するためになされたものであり、ミストCVD法により膜厚の面内均一性に優れた膜を成膜可能な成膜装置、及び、成膜方法を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明は、上記目的を達成するためになされたものであり、原料溶液をミ

スト化してミストを発生させるミスト化部と、前記ミスト化部で発生させた前記ミストを搬送するキャリアガスを供給するキャリアガス供給部と、前記キャリアガスにより搬送された前記ミストを熱処理して成膜を行う成膜部とを備えた成膜装置であって、前記成膜部は、成膜室と、前記成膜室の内部に設けられた基板載置部と、前記成膜室の内部へ前記ミストを供給するノズルと、前記成膜室の内部から外部へ排気ガスを排気する排気部とを備え、前記成膜室の天井の内面と前記基板載置部の基板載置面の高さ位置の差が0.15cm以上6.05cm以下である成膜装置を提供する。

[0009] このような成膜装置によれば、膜厚の面内均一性が良好な膜を成膜できるものとなる。成膜室の天井による整流効果と、ノズルからのミストの供給と排気部からの排気ガスの排気とにより発生する対流の相乗効果により、基板上方に基板に沿った（基板表面に平行な）均一なガスの流れが発生し、基板上に均一な膜を生成することができるものとなる。

[0010] このとき、前記成膜室の天井の内面と前記ノズルの開口面が同一平面内にある成膜装置とすることができる。

[0011] これにより、膜厚の面内均一性がより良好な膜を安定して成膜できるものとなる。

[0012] このとき、前記成膜室の天井の内面と前記基板載置部の前記基板載置面とが平行である成膜装置とすることができる。

[0013] これにより、膜厚の面内均一性がより良好な膜を安定して成膜できるものとなる。

[0014] このとき、前記成膜室の天井の内面と前記基板載置部に載置された前記基板の被処理面の高さ位置の差が0.1cm以上6.0cm以下である成膜装置とすることができる。

[0015] これにより、膜厚の面内均一性がより良好な膜を安定して成膜できるものとなる。

[0016] このとき、前記基板の被処理面の面積をA [cm²]、前記成膜室の天井の内面の面積をB [cm²]としたとき、 $B/A \geq 1.0$ である成膜装置とする

ことができる。

[0017] これにより、膜厚の面内均一性がより良好な膜を安定して成膜できるものとなる。

[0018] このとき、前記成膜室の側壁の内面と前記基板載置部の基板載置領域の最短距離が5.0cm以下である成膜装置とすることができる。

[0019] これにより、膜厚の面内均一性がさらに良好な膜をさらに安定して成膜できるものとなる。

[0020] このとき、前記排気部が前記成膜室の相対する一対の方向に設けられているものである成膜装置とすることができる。

[0021] これにより、膜厚の面内均一性がより良好な膜を安定して成膜できるものとなる。

[0022] このとき、前記ノズルの下方で前記基板を移動させる移動機構を更に備えるものである成膜装置とすることができる。

[0023] これにより、大面積で膜厚の面内均一性の良好な膜を成膜できるものとなる。

[0024] このとき、前記原料溶液がガリウムを含むものである成膜装置とすることができる。

[0025] これにより、膜厚の面内均一性が良好な酸化ガリウム膜が成膜できるものとなる。

[0026] このとき、前記原料溶液がハロゲンを含むものである成膜装置とすることができる。

[0027] これにより、膜厚の面内均一性が良好な結晶性酸化物膜が成膜できるものとなる。

[0028] 本発明は、上記目的を達成するためになされたものであり、ミスト化した原料溶液を熱処理して基板上に成膜を行う成膜方法であって、前記原料溶液をミスト化してミストを発生させるミスト発生工程と、前記ミストをキャリアガスにより成膜室に搬送するミスト搬送工程と、前記成膜室内の基板載置部に載置した前記基板上に前記ミストを供給して熱処理し成膜を行う成膜工

程と、を含み、前記成膜室の天井の内面と前記基板載置部の基板載置面の高さ位置の差が0.15cm以上6.05cm以下となるように設定された前記成膜室を用い、前記成膜工程において、前記基板載置部の上方に備えたノズルから、前記成膜室の天井と前記基板の間に前記ミストを供給するとともに、前記成膜室内の前記基板上から排気ガスを前記成膜室の外部へ排気することで、前記基板上に整流された前記ミストを供給しつつ成膜を行う成膜方法を提供する。

[0029] このような成膜方法によれば、膜厚の面内均一性が良好な膜を成膜することができる。成膜室の天井による整流効果と、ノズルからのミストの供給と排気ガスの排気とにより発生する対流の相乗効果により、基板上方に基板に沿った（基板表面に平行な）均一なガスの流れが発生し、基板上に均一な膜を生成することができる。

[0030] このとき、前記成膜室の天井の内面と前記ノズルの開口面が同一平面内となるように設定された前記成膜室を用いる成膜方法とすることができる。

[0031] これにより、膜厚の面内均一性がより良好な膜を安定して成膜することができる。

[0032] このとき、前記成膜室の天井の内面と前記基板載置部の前記基板載置面とが平行となるように設定された前記成膜室を用いる成膜方法とすることができる。

[0033] これにより、膜厚の面内均一性がより良好な膜を安定して成膜することができる。

[0034] このとき、前記成膜室の天井の内面と前記基板載置部に載置された前記基板の被処理面の高さ位置の差が0.1cm以上6.0cm以下となるように設定された前記成膜室を用いる成膜方法とすることができる。

[0035] これにより、膜厚の面内均一性がより良好な膜を安定して成膜することができる。

[0036] このとき、前記基板の面積をA [cm²]、前記成膜室の天井の内面の面積をB [cm²]としたとき、 $B/A \geq 1.0$ となるように設定された前記成膜

室を用いる成膜方法とすることができる。

[0037] これにより、膜厚の面内均一性がより良好な膜を安定して成膜することができる。

[0038] このとき、前記成膜室の側壁の内面と前記基板載置部の基板載置領域の最短距離が5.0cm以下となるように設定された前記成膜室を用いる成膜方法とすることができる。

[0039] これにより、膜厚の面内均一性がさらに良好な膜をさらに安定して成膜することができる。

[0040] このとき、前記成膜工程において、前記成膜室の相対する一対の方向に排気ガスの排気を行う成膜方法とすることができる。

[0041] これにより、膜厚の面内均一性がより良好な膜を安定して成膜することができる。

[0042] このとき、前記ノズルから供給する前記キャリアガスの流量を Q [L/分]、前記排気ガスの流量を E [L/分]としたとき、 E/Q を5.0以下とする成膜方法とすることができる。

[0043] これにより、膜厚の面内均一性がさらに良好な膜を成膜することができる。

[0044] このとき、前記成膜工程において、前記ノズルの下方で前記基板を移動させる成膜方法とすることができる。

[0045] これにより、大面積で膜厚の面内均一性の良好な膜を成膜することができる。

[0046] このとき、前記原料溶液としてガリウムを含むものを用いる成膜方法とすることができる。

[0047] これにより、膜厚の面内均一性が良好な酸化ガリウム膜を成膜することができる。

[0048] このとき、前記原料溶液としてハロゲンを含むものを用いる成膜方法とすることができる。

[0049] これにより、膜厚の面内均一性が良好な結晶性酸化物膜を成膜することができる。

[0050] このとき、前記基板として、被処理面の面積が50cm²以上のもの、又は、直径が4インチ（100mm）以上のものを用いる成膜方法とすることができる。

[0051] これにより、大面積で膜厚の面内均一性の良好な膜を成膜することができる。

発明の効果

[0052] 以上のように、本発明の成膜装置によれば、ミスト状の原料溶液を用いて、基板上に、膜厚の面内均一性が良好な膜を成膜することが可能なものとなる。また、本発明の成膜方法によれば、ミスト状の原料溶液を用いて、基板上に、膜厚の面内均一性が良好な膜を成膜することが可能となる。

図面の簡単な説明

- [0053] [図1]本発明の成膜装置の一例を示す概略構成図である。
[図2]本発明に係るミスト化部の一例を説明する図である。
[図3]本発明に係る成膜室の一例を説明する図である。
[図4]本発明に係るノズルの一例を説明する図である。
[図5]複数のノズルを備えている場合の一例を説明する図である。
[図6]複数のノズル開口面を備えたノズルの一例を説明する図である。
[図7]本発明に係る成膜室の一例を説明する図である。
[図8]本発明に係る成膜室の一例を説明する図である。
[図9]ノズルの下を往復運動する移動機構の一例を説明する図である。
[図10]ノズルの下を一方向に回転移動する移動機構の一例を説明する図である。
[図11]本発明に係る排気部の一例を説明する図である。
[図12]比較例1で用いた成膜装置の一例を説明する図である。
[図13]比較例2で用いた成膜装置の一例を説明する図である。
[図14]比較例3で用いた成膜装置の一例を説明する図である。
[図15]実施例12で用いた成膜装置の一例を説明する図である。

発明を実施するための形態

[0054] 以下、本発明を詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0055] 上述のように、ミストCVD法において、膜厚の面内均一性が良好な膜を成膜できる成膜装置、及び、成膜方法が求められていた。

[0056] 本発明者らは、上記課題について鋭意検討を重ねた結果、原料溶液をミスト化してミストを発生させるミスト化部と、前記ミスト化部で発生させた前記ミストを搬送するキャリアガスを供給するキャリアガス供給部と、前記キャリアガスにより搬送された前記ミストを熱処理して成膜を行う成膜部とを備えた成膜装置であって、前記成膜部は、成膜室と、前記成膜室の内部に設けられた基板載置部と、前記成膜室の内部へ前記ミストを供給するノズルと、前記成膜室の内部から外部へ排気ガスを排気する排気部とを備え、前記成膜室の天井の内面と前記基板載置部の基板載置面の高さ位置の差が0.15cm以上6.05cm以下である成膜装置により、膜厚の面内均一性が良好な膜を成膜できるものとなることを見出し、本発明を完成した。

[0057] 本発明者らは、また、ミスト化した原料溶液を熱処理して基板上に成膜を行う成膜方法であって、前記原料溶液をミスト化してミストを発生させるミスト発生工程と、前記ミストをキャリアガスにより成膜室に搬送するミスト搬送工程と、前記成膜室内の基板載置部に載置した前記基板上に前記ミストを供給して熱処理し成膜を行う成膜工程と、を含み、前記成膜室の天井の内面と前記基板載置部の基板載置面の高さ位置の差が0.15cm以上6.05cm以下となるように設定された前記成膜室を用い、前記成膜工程において、前記基板載置部の上方に備えたノズルから、前記成膜室の天井と前記基板の間に前記ミストを供給するとともに、前記成膜室内の前記基板上から排気ガスを前記成膜室の外部へ排気することで、前記基板上に整流された前記ミストを供給しつつ成膜を行う成膜方法により、膜厚の面内均一性が良好な膜を成膜することができることを見出し、本発明を完成した。

[0058] 以下、図面を参照して説明する。

[0059] ここで、本発明でいうミストとは、気体中に分散した液体の微粒子の総称

を指し、霧、液滴等と呼ばれるものも含む。

[0060] [成膜装置]

図1に、本発明に係る成膜装置101の一例を示す。成膜装置101は、原料溶液をミスト化してミストを発生させるミスト化部120と、ミストを搬送するキャリアガスを供給するキャリアガス供給部130と、ミストを熱処理して基板上に成膜を行う成膜部140と、ミスト化部120と成膜部140とを接続し、キャリアガスによってミストが搬送される搬送部109と、成膜室107から排気ガスを排気する排気部170とを有する。また、成膜装置101は、成膜装置101の全体又は一部を制御する制御部（図示なし）を備えることによって、その動作が制御されてもよい。

[0061] (ミスト化部)

ミスト化部120では、原料溶液をミスト化してミストを発生させる。ミスト化手段は、原料溶液をミスト化できさえすれば特に限定されず、公知のミスト化手段であってもよいが、超音波振動によるミスト化手段を用いることが好ましい。より安定してミスト化することができるためである。

[0062] このようなミスト化部120の一例を図2に示す。例えば、原料溶液104aが収容されるミスト発生源104と、超音波振動を伝達可能な媒体、例えば水105aが入れられる容器105と、容器105の底面に取り付けられた超音波振動子106を含んでもよい。詳細には、原料溶液104aが収容されている容器からなるミスト発生源104が、水105aが収容されている容器105に、支持体（図示せず）を用いて収納されている。容器105の底部には、超音波振動子106が備え付けられており、超音波振動子106と発振器116とが接続されている。そして、発振器116を作動させると、超音波振動子106が振動し、水105aを介して、ミスト発生源104内に超音波が伝播し、原料溶液104aがミスト化するように構成されている。

[0063] (キャリアガス供給部)

キャリアガス供給部130は、キャリアガス（主キャリアガス）を供給す

るキャリアガス源102aを有し、キャリアガス源102aから送り出される主キャリアガスの流量を調節するための流量調節弁103aを備えていてもよい。また、必要に応じて希釈のためのキャリアガス（希釈用キャリアガス）を供給する希釈用キャリアガス源102bや、希釈用キャリアガス源102bから送り出される希釈用キャリアガスの流量を調節するための流量調節弁103bを備えることもできる。

[0064] キャリアガスの種類は、特に限定されず、成膜物に応じて適宜選択可能である。例えば、酸素、オゾン、窒素やアルゴン等の不活性ガス、又は水素ガスやフォーミングガス等の還元ガスなどが挙げられる。また、キャリアガスの種類は1種類でも、2種類以上であってもよい。例えば、第1のキャリアガスと同じガスをそれ以外のガスで希釈した（例えば10倍に希釈した）希釈ガスなどを、第2のキャリアガスとしてさらに用いてもよく、空気を用いることもできる。また、キャリアガスの供給箇所も1箇所だけでなく、2箇所以上あってもよい。

[0065] （成膜部）

成膜部140は、成膜室107と、成膜室107の内部に設けられた基板載置部112と、成膜室107の内部へミストを供給するノズル150と、成膜室107の内部から外部へ排気ガスを排気する排気部170とを備えている。

[0066] 成膜部140では、ミストを加熱し熱反応を生じさせて、基板110の表面の一部又は全部に成膜を行う。成膜部140は、成膜部140の一部又は全体を囲った成膜室107を備えている。例えば、図1に示すように、成膜部140の全体又は一部を囲い、成膜室107としてもよい。また、成膜室107は完全な囲いの形状でなく、成膜室で生じた排気ガスを排気するための排気口111が備えられており、基板上に供給したミストやキャリアガスを整流しながら排気できる構造となってもよい。

[0067] 成膜部140には、基板110が載置される基板載置部112が備え付けられている。成膜部140には、設置された基板110を加熱するためのホ

ットプレート108を備えることができる。ホットプレート108は、図1に示されるように成膜室107の内部に設けられていてもよいし、成膜室107の外部に設けられていてもよい。

[0068] なお、本発明における成膜室とは、基板を載置する基板載置面に平行な底面を備えた底壁と、基板載置面の法線と交わる面（成膜室の内面）を備えた上壁である天井と、底壁と接する少なくとも1つ以上の側面（内面）を備えた側壁を有するものを指す。この際、天井の内面を基板載置面と平行にし、天井の内面及び底面と直交する側面を有する立方体や直方体、柱状の形状でもよく、天井の内面を曲面にするなどして（すなわちドーム型）、天井と側壁を一体の形態としてもよい。また、これらを組み合わせた構造としてもよいが、対称性の良い構造が膜厚の面内均一性が良くなるため好ましい。本発明に係る成膜室においては、あらかじめ構造を設定して形成した成膜室であってもよいし、成膜室を構成する各要素を可動なものとして、目的に合った形状に設定可能なものとしてもよい。

[0069] また、本発明における天井とは、成膜室107の基板載置面の法線と交わる面（「天井面」ということもある）を備えた上壁のことを指す。

[0070] 成膜室107は、図3のように、排気部170を備え、基板載置面113と成膜室の天井の内面の高さ位置の差 l [cm] が0.15cm以上6.05cm以下であればよいが、0.25cm以上3.05cm以下が好ましい。そのように成膜室を設定、設置することにより、熱処理による成膜処理時に、熱対流による周囲気体の流れでミストの流れが乱されにくくなり、ノズル150から供給されたミストが整流されて基板110上へ供給され、膜厚の面内均一性の優れた膜を成膜することができる。

[0071] すなわち、ノズル150から成膜室107内に供給されたミストが、成膜室107の天井と基板載置部112の基板載置面113及び基板載置面113上の基板110の間を通り、排気部170の方向に流れるような整流となり、ミストの流速、方向の均一化が図れる。

[0072] 成膜室107の天井の内面と基板載置面とは平行であることが好ましい。

さらに、基板載置部 112 に基板を載置したときに、成膜室 107 の天井の内面と基板 110 の被処理面の高さ位置の差 K は 0.1 cm 以上 6.0 cm 以下とすることが好ましく、 0.2 cm 以上 3.0 cm 以下がより好ましい。成膜される膜の膜厚の面内均一性がさらに良好な膜となるためである。

[0073] 成膜部 140 には、図 3 に示すように、基板載置部 112 の上方に、成膜室 107 内の基板 110 へミストを供給するためのノズル 150 が備え付けられている。なお、本発明におけるノズル 150 は、成膜室 107 内にミストを供給するための部材を指す。例えば、後述する搬送部 109 の供給管 109a を成膜室 107 に繋ぐなどして、供給管 109a をノズルとして用いても良い。

[0074] ノズル 150 の一例を図 4 に示す。ノズル 150 は、搬送部 109 とノズル 150 とを接続する接続部 151 と、ミストを噴出するためのノズル開口面（単に、開口面とも言うこともある）152 とを備える。

[0075] ノズルの个数及び開口面の个数は、1 つ以上であれば特に限定されない。図 5 に示すように複数のノズルを備えていてもよく（ノズル 150 a）、図 6 に示すように、開口面が複数あってもよい（ノズル 150 b）。

[0076] ノズル開口面 152 を含む平面と、基板 110 を含む平面の成す角度は、特に限定されない。特定の方向にミストが流れやすくなるように傾斜させたノズル開口面を備えたノズルを設けてもよいが、図 3 のように、基板載置部 112 の基板 110 が載置される基板載置面 113 とノズル開口面が平行になるように設けられるのが好ましい。より簡便な構造で、膜厚の面内均一性がより良い膜を成膜できるためである。

[0077] 成膜部 140 には、後述するような範囲で、ノズルの開口面 152 と基板 110 の被処理面の高さ位置の差 H [cm] を適宜調整できるような位置調整機構（図示せず）が備え付けられていてもよい。

[0078] 成膜室 107 の天井には、ノズル 150 からミストを供給するための穴が開いており（すなわちドーナツ型）、あるいは、成膜室 107 を複数の部材を組み合わせて作る構造とし成膜室 107 の天井に穴を形成できる構造とな

っており、この穴にノズルが挿入されている。複数の部材を組み合わせて作る構造とすると、ノズル開口面の面積に応じて成膜室107の天井の穴のサイズや、上記の差H、差I、差K [cm] や、後述する成膜室107の側壁の内面と基板載置領域114の最短距離J [cm] を適宜調整できるため好ましい。

[0079] ノズル開口面の高さ位置は、図3, 8のように成膜室107の天井と同じ高さ位置であってもよく、図7のように、成膜室107の天井より低い位置であってもよいが、図3, 8に示すように、成膜室の天井の内面とノズルの開口面152が同一平面内にあることが好ましい。ノズル開口面が成膜室107の天井と同じ高さの場合、天井による整流効果がより効果的に発揮され、膜厚の面内均一性がより安定して向上するためである。なお、この場合、図3, 8に示すように $H=K$ となる。

[0080] また、ノズル150を複数の部材より組み立てる構造とし、部材のサイズ調整により、ノズルの開口面の面積 S [cm²] を適宜調整できる構造としてもよい。

[0081] また、このとき、ノズル開口面152の面積 S は0.1以上400cm²以下がよい。ノズル開口面152と基板110の被処理面の間の高さ位置の差 H は0.1cm以上6.0cm以下がよく、より好ましくは、0.2以上3.0以下である。成膜される膜が、膜厚の面内均一性がさらに良好な膜となるためである。

[0082] ノズル開口面152の面積を S [cm²]、基板の被処理面の面積を A [cm²]としたとき、 $S/A \leq 0.3$ が好ましく、より好ましくは $0.004 \leq S/A \leq 0.15$ である。 $S/A \leq 0.3$ であることで、膜厚の面内均一性がより良い膜となる。また、このとき、基板の面積 A は10cm²以上であることが好ましく、50cm²以上がより好ましく、また、直径が4インチ(100mm)以上のものが好ましく、上限は特に限定されない。基板の面積が大きいほど、一度の成膜で大面積な膜が得られるため大量の半導体装置の製造に向いている。

[0083] また、ノズル150には、ノズル150の外表面の温度やノズル150内表面の温度を調整できる温度調整機構（図示せず）が備え付けられていてもよい。内外表面の温度が高すぎると、ミストの蒸発が促進されるために、基板上のノズル開口面から離れた位置での膜厚が増加し、温度が低すぎると、ミストの蒸発が遅くなり、ノズル開口面に近い箇所での膜厚が低下する。40～120℃程度で制御することが好ましい。上記Hの調整により、ホットプレート108との距離が変化するため、ノズル150の温度が変化する。このため、ホットプレート108とは別の温度調整機構を備えることが好ましい。温度調整機構は、ノズル150周囲に配管を設けるなどで、液体や気体の熱媒体を用いて熱交換を行うものであってもよいし、ペルチェ（Peltier）効果を応用したものであってもよいし、リボンヒーター等による加熱でもよい。熱媒体としては公知の熱媒体が広く使用でき、例えば水、グリコール類、アルコール類、シリコンオイル類といった液体や、空気、窒素、ヘリウム、あるいはフルオロカーボン類といった気体の熱媒体が好適に用いられる。

[0084] ノズル開口面152の形状は、特に限定されない。多角形、円形、楕円等が考えられるが、好ましくは四角形であり、より好ましくは長方形である。ノズル開口面152の形状が長方形のとき、ノズル開口面152の長軸長さをL [cm]、基板のノズル長軸方向の最大長さをR [cm]としたとき、 $L/R \geq 1$ がよい。 $L/R \geq 1$ であれば、膜厚の面内均一性の良い膜を、大面積基板へ成膜できるためである。L/Rの上限は特に限定されないが、L/Rが大きいほど、基板に供給されないミストが増えるため、3以下とするのが好ましい。

[0085] また、成膜室107の天井の内面と基板110の成す角、成膜室107の天井の内面とノズル開口面152の成す角は特に限定されないが、いずれも平行とするのが好ましい。より簡便な構造で、膜厚の面内均一性がより良い膜を成膜できるためである。

[0086] 成膜室107の天井の形状は、四面体、半円形、円形、楕円が考えられる

が、四角形又は円形にするのが好ましい。対称性がよく、成膜される膜が膜厚の面内均一性が良好なものとなるためである。

[0087] 成膜室107の天井の一部又は全体が、ミストが特定の方向に流出しやすくなるように湾曲していてもよく、折れ曲がっていてもよいが、図3のように、基板載置部112と平行に設置されるのが好ましい。より具体的には、基板載置部112の基板110が載置される基板載置面113と、成膜室107の天井の内面とが平行になるように成膜室107が設置されているのが好ましい。成膜される膜が膜厚の面内均一性が良好なものとなるためである。

[0088] 成膜室107の材質は特に限定されない。ポリサルフォン、ポリエーテルサルフォン、ポリフェニレンサルファイド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリイミド、ポリエーテルイミド、フッ素樹脂、鉄やアルミニウム、ステンレス鋼、金等の金属、石英、ガラス、窒化ホウ素が考えられる。熱処理時の変形により、膜厚の面内均一性が悪くなるため、鉄やアルミニウム、ステンレス鋼、金等の金属、石英、窒化ホウ素などを用いることが好ましい。

[0089] 成膜室107には、成膜室の壁面の温度を調整できる温度調整機構（図示せず）が備え付けられていてもよい。壁面の温度が高すぎると、ミストの蒸発が促進されるために、基板上のノズル開口面から離れた位置での膜厚が低下し、温度が低すぎると、ミストの蒸発が遅くなり、基板上のノズル開口面から近い位置での膜厚が低下する。40～120℃程度で制御することが好ましい。

[0090] 基板載置部112は図8のように成膜室107の中央に設けられていなくともよく、成膜室107の天井以外の内面と基板載置領域114の距離は、基板載置部112の前後左右等に設けられる各側壁の内面（側面）に対して異なっていてもよい。ここで、成膜室107の側壁の内面と、基板載置部112の基板載置領域114の最短距離をJ [cm] とする。

[0091] 上記最短距離J [cm]（図3, 7, 8参照）は特に限定されないが、5cm以下とすることが好ましく、0cm（すなわち接している）でもよいが

、0.5cm以上4cm以下とすることがより好ましい。Jがこのような範囲であれば、ミストが側方に拡散することを有効に抑制できるために、安定して基板110の端部にミストが供給され、膜厚の面内均一性が低下することを抑制でき、かつ、Jが小さい場合の、成膜室107の壁面による摩擦による、基板端部で供給されるミストの減少を安定して抑制できるため膜厚の低下を抑制できる。

[0092] なお、本発明における側壁の内面とは、成膜室107の基板載置部112の基板載置面と平行な底面と接する面のことをいう。

[0093] 成膜室107の天井の内面の面積（ノズル開口面152を含めた総面積）をB [cm²]、基板の被処理面の面積をA [cm²]としたとき、 $B/A \geq 1.0$ がよく、3.0以上とすることが好ましく、5.0以上とすることがより好ましい。基板近傍で、熱対流によりミストの流れが乱されにくくなるためである。また、Bは100以上が良い。これらのような数値範囲であれば、膜厚の面内均一性がさらに優れた膜が成膜される。また、 B/A やBの上限は特に限定されない。上記数値よりも大きければ、成膜室107の天井による整流効果が発揮されるためである。しかし、 B/A を100以下とするのが好ましい。装置が必要以上に大型になるのを抑制するためである。

[0094] 成膜室107には、天井の内面や側壁の内面の温度を調整できる温度調整機構（図示せず）が備え付けられていてもよい。表面の温度が高すぎると、ミストの蒸発が促進されるために、基板上のノズル開口面から離れた位置での膜厚が増加し、温度が低すぎると、ミストの蒸発が遅くなり、ノズル開口面に近い箇所での膜厚が低下する。40～120℃程度で制御することが好ましい。温度調整機構は、液体や気体の熱媒体を用いて熱交換を行うものであってもよいし、ペルチエ（Peltier）効果を応用したものであってもよいし、リボンヒーター等による加熱でもよい。熱媒体としては公知の熱媒体が広く使用でき、例えば水、グリコール類、アルコール類、シリコンオイル類といった液体や、空気、窒素、ヘリウム、あるいはフルオロカーボン類といった気体の熱媒体が好適に用いられる。

- [0095] 成膜部140には、図1に示すようにノズル150の下方で、基板110を移動させる移動ステージ161aのような移動機構を備えることができる。基板を移動させる方向は、特に限定されない。
- [0096] 移動機構を備えた成膜室107内を基板載置部の上方から見た図を、図9及び図10に示す。図9の移動機構160aに示すような、基板110及びホットプレート108が載置された移動ステージ161aを備え、基板110及びホットプレート108が、ノズル150の下を往復して移動する方法がある。また、図10の移動機構160bに示すような、基板110及びホットプレート108が載置された移動ステージ161bにより、基板110及びホットプレート108が、ノズル150の下を回転移動する方法がある。また、このとき基板を自転させる機構を備え、基板を自転させても良い。
- [0097] また、図10の様に成膜部140に複数の基板110・ノズル150を載置してもよいし、図9の成膜部140に複数の基板を設置するなどしてもよい。このような構造であれば、膜厚の面内均一性を保ちながら一度に多くの基板に成膜できるため、より一層、大量の製造に向いている。
- [0098] また、基板の移動機構160を設ける際には、基板を移動させる速度や、移動範囲は特に限定されないが、1つの基板がノズルの下を通過する回数が、1分あたり0.1回以上がよく、0.5回以上が好ましく、1回以上がより好ましい。回数が0.1回以上とすることで、局所的なミストの蒸発に伴う上昇気流による、供給ガスへの影響が大きく、天板による整流効果が発揮されにくくなるのを防止できることで、膜厚の均一性の低下をより確実に防ぐことができる。また、回数の上限は特に限定されないが、回数が増加すると慣性力により基板の固定が不安定になるため、120回以下が良く、60回以下が好ましい。
- [0099] より具体的には、図13のような移動機構の場合、基板を移動する幅D [mm] に対し、基板の移動速度を v [mm/分] として、 v/D [/分] は0.1以上がよく、0.5以上120以下が好ましく、1~60がより好ましい。Dは特に限定されず、例えば基板の直径 [mm] 以上（基板の直径が

4インチであれば100以上)が良く、上限は特に限定されない。大きくすれば1つのノズルあたりに大量の基板上に成膜することができる。しかし、1つの基板あたりの成膜速度が低下するため、1000mm以下として1つのノズルあたりの成膜する基板の枚数を限定するのが生産性に一層優れ、好ましい。vは特に限定されない。10mm/分以上30000mm/分がよく、30mm/分以上12000mm/分が好ましく、60mm/分以上6000mm/分以下がより好ましい。図14のような、回転型の移動機構の場合、0.1rpm以上がよく、0.5~120rpmが好ましく、1~60rpmがより好ましい。

[0100] (排気部)

成膜室107には、基板110上にキャリアガスと共に供給されたミストが成膜に用いられ、その後のガス(「排気ガス」ともいい、成膜に用いられなかったミスト、成膜時に生じたガス、キャリアガス等を含む)が基板110の外部へ流れるように整流するための排気部170が備え付けられており、該排気部170を通して成膜室107から排気ガスが排気される。

[0101] 排気部170は、基板110上から排気ガスを基板110の外部へ排気できる構成であれば、その形状、構成は特に限定されない。例えば、図1のように、成膜室107において基板110の側方に排気口111を設け、強制排気を行ってもよい。ノズル150から成膜室107の天井と基板110の間に供給されたキャリアガス等が基板110の外部へ流れるような構成が特に好ましい。なお、ここでいう基板110の外部とは、基板表面が、表面の法線方向に成す空間を除いた領域を指す。

[0102] 排気部170としては、上記のように成膜室107に設けられた排気口111そのものとすることができるし、あるいは、排気口111にさらに強制排気のための手段を加えたものとすることもできる。そのような排気部170の一例を図11に示す。例えば、成膜室107の外部に設けられた排気ユニット172によって、成膜室107内の気体が、成膜室107の側面に設けられた排気口111から排気ダクト171を通じ、強制排気されている。

排気ユニット 172 には、排気流量を調節するための排気流量調節弁 173 が備え付けられており、排気流量を調整できるようになっている。

[0103] 前述したような高さ位置に設けられる成膜室 107 の天井による整流効果と、ノズル 150 からのミストの供給と排気部 170 からの排気ガスの排気とにより発生する対流の相乗効果により、基板 110 上方に基板 110 の表面に平行で均一なガスの流れが発生し、基板 110 上に均一な膜を生成することが可能となる。

[0104] 排気口 111 の形状は、円形、矩形など、特に限定されないが、ガスが流れる方向の直交方向に対称な構造が良い。対称性がよく、膜厚の面内均一性が良好なものとなるためである。

[0105] 排気部 170 は、図 8 のように 1 箇所にも設けられてもよく、図 1, 3, 7 のように 2 箇所以上に設けられてもよいが、2 箇所以上設ける場合には、排気部が成膜室の相対する一対の方向に設けられているものであることが好ましく、さらに、ノズル開口面の中心に対し、対称位置となるように設けるのがより好ましい。膜厚の面内均一性が良好な膜が成膜できるためである。

[0106] 排気部 170 には、排気部内での固体の析出を抑制するために、その一部又は全体の温度を制御する温度制御機構（図示せず）を備えていてもよい。このような温度制御機構により、排気部 170 中での固体の析出が抑制され、より排気流量の制御がしやすくなる。

[0107] 温度調整機構は、排気ダクト 171 の周囲に配管を設けるなどして液体や気体の熱媒体を用いて熱交換を行うものであってもよいし、ペルチェ（Peltier）効果を応用したものであってもよいし、リボンヒーター等による加熱でもよい。熱媒体としては公知の熱媒体が広く使用でき、例えば水、グリコール類、アルコール類、シリコンオイル類といった液体や、空気、窒素、ヘリウム、あるいはフルオロカーボン類といった気体の熱媒体が好適に用いられる。

[0108] また、排気部 170 を構成する部材の材質は特に限定されず、ポリサルフォン、ポリエーテルサルフォン、ポリフェニレンサルファイド、ポリエーテ

ルエーテルケトン、ポリイミド、ポリエーテルイミド、フッ素樹脂、鉄やアルミニウム、ステンレス鋼、金等の金属、石英、窒化ホウ素などが挙げられる。窒化ホウ素製とすることが好ましい。未反応原料との意図しない反応による錆び付きや固体の析出により、排気ガスの流れが不均一化するのを抑制できるためである。

[0109] 前述したように、成膜室107が移動機構160a, bを備える場合には、移動機構160a, b上に排気口111を設けるなどして、排気口111（排気部170）を移動させてもよい。

[0110] （搬送部）

搬送部109は、ミスト化部120と成膜部140とを接続する。搬送部109を介して、ミスト化部120のミスト発生源104から成膜部140のノズル150へと、キャリアガスによってミストが搬送される。搬送部109は、例えば、供給管109aとすることができる。供給管109aとしては、例えば石英管や樹脂製のチューブなどを使用することができる。

[0111] （原料溶液）

原料溶液104aは、ミスト化が可能な材料を含んでいれば特に限定されず、無機材料であっても、有機材料であってもよい。原料溶液には、金属又は金属化合物の溶液（水溶液等）が好適に用いられ、ガリウム、鉄、インジウム、アルミニウム、バナジウム、チタン、クロム、ロジウム、ニッケル及びコバルトから選ばれる1種又は2種以上の金属を含むものを使用できる。特に、原料溶液がガリウムを含むものであれば、膜厚の面内均一性が良好な酸化ガリウム膜が成膜できる。

[0112] 原料溶液は、上記金属溶液をミスト化できるものであれば特に限定されないが、原料溶液として、金属を錯体又は塩の形態で、有機溶媒又は水に溶解又は分散させたものを好適に用いることができる。錯体の形態としては、例えば、アセチルアセトナート錯体、カルボニル錯体、アンミン錯体、ヒドリド錯体などが挙げられる。塩の形態としては、例えば、塩化金属塩、臭化金属塩、ヨウ化金属塩などが挙げられる。また、上記金属を、臭化水素酸、塩

酸、ヨウ化水素酸等に溶解したのも塩の水溶液として用いることができる。溶質濃度は $0.01 \sim 1 \text{ mol/L}$ が好ましい。

[0113] また、原料溶液には、ハロゲンを含むもの（例えばハロゲン化水素酸）や酸化剤等の添加剤を混合してもよい。ハロゲン化水素酸としては、例えば、臭化水素酸、塩酸、ヨウ化水素酸などが挙げられるが、なかでも、臭化水素酸又はヨウ化水素酸が好ましい。酸化剤としては、例えば、過酸化水素（ H_2O_2 ）、過酸化ナトリウム（ Na_2O_2 ）、過酸化バリウム（ BaO_2 ）、過酸化ベンゾイル（ $\text{C}_6\text{H}_5\text{CO}$ ） $_2\text{O}_2$ 等の過酸化物、次亜塩素酸（ HClO ）、過塩素酸、硝酸、オゾン水、過酢酸やニトロベンゼン等の有機過酸化物などが挙げられる。特に、原料溶液がハロゲンを含むものであれば、膜厚の面内均一性が良好な結晶性酸化物膜が成膜できる。

[0114] さらに、原料溶液には、ドーパントが含まれていてもよい。ドーパントは特に限定されない。例えば、スズ、ゲルマニウム、ケイ素、チタン、ジルコニウム、バナジウム又はニオブ等のn型ドーパント、又は、銅、銀、スズ、イリジウム、ロジウム等のp型ドーパントなどが挙げられる。ドーパントの濃度は、例えば、約 $1.0 \times 10^{-9} \sim 1.0 \text{ mol/L}$ であってもよく、約 $1.0 \times 10^{-7} \text{ mol/L}$ 以下の低濃度にしても、約 0.01 mol/L 以上の高濃度としてもよい。

[0115] （基板）

基板110は、成膜可能であり膜を支持できるものであれば特に限定されない。基板110の材料も、特に限定されず、公知の基板を用いることができ、有機化合物であってもよいし、無機化合物であってもよい。例えば、ポリサルフォン、ポリエーテルサルフォン、ポリフェニレンサルファイド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリイミド、ポリエーテルイミド、フッ素樹脂、鉄やアルミニウム、ステンレス鋼、金等の金属、石英、ガラス、炭酸カルシウム、酸化ガリウム、酸化亜鉛等があげられる。これらに加え、シリコン、サファイアやニオブ酸リチウム、タンタル酸リチウム、 SiC 、 GaN 、酸化鉄、酸化クロムなどの単結晶基板が挙げられ、本発明においては以上の

ような単結晶基板が望ましい。これらにより、より良質な結晶性酸化物膜を得ることができる。特に、サファイア基板、タンタル酸リチウム基板、ニオブ酸リチウム基板は比較的安価であり、工業的に有利である。基板の厚さは、特に限定されないが、好ましくは、 $10\sim 2000\mu\text{m}$ であり、より好ましくは $50\sim 800\mu\text{m}$ である。

[0116] 成膜は基板上に直接行ってもよいし、基板上に形成された中間層の上に積層させてもよい。中間層は特に限定されず、例えば、アルミニウム、チタン、バナジウム、クロム、鉄、ガリウム、ロジウム、インジウム、イリジウムのいずれかを含む酸化物を主成分とすることができる。より具体的には、 Al_2O_3 、 Ti_2O_3 、 V_2O_3 、 Cr_2O_3 、 Fe_2O_3 、 Ga_2O_3 、 Rh_2O_3 、 In_2O_3 、 Ir_2O_3 であり、また上記の金属元素から選ばれる2元素をA、Bとした場合に $(\text{A}_x\text{B}_{1-x})_2\text{O}_3$ ($0 < x < 1$) で表される2元系の金属酸化物や、あるいは、上記の金属元素から選ばれる3元素をA、B、Cとした場合に $(\text{A}_x\text{B}_y\text{C}_{1-x-y})_2\text{O}_3$ ($0 < x < 1$ 、 $0 < y < 1$) で表される3元系の金属酸化物とすることができる。

[0117] また、基板110は、例えば、成膜される面の面積が 10cm^2 以上、より好ましくは 50cm^2 以上のもの、又は、直径が4インチ (100mm) 以上のものとすることができ、膜厚の面内均一性の良好な膜を大面積に成膜できるため好ましい。基板の面積や直径の上限は特に限定されないが、例えば面積 750cm^2 、又は、直径 300mm とすることができる。

[0118] [成膜方法]

次に、以下、図1を参照しながら、本発明に係る成膜方法の一例を説明する。まず、原料溶液104aをミスト化部120のミスト発生源104内に収容し、結晶性基板などの基板110をホットプレート108上に載置し、ホットプレート108を作動させる。

[0119] 次に、流量調節弁103a、103bを開いてキャリアガス源102aから主キャリアガス、希釈用キャリアガス源102bから希釈用キャリアガスを成膜室107内に供給し、成膜室107の雰囲気キャリアガスで十分に

置換するとともに、主キャリアガスの流量と希釈用キャリアガスの流量をそれぞれ調節して制御する。

[0120] ミスト発生工程では、超音波振動子106を振動させ、その振動を、水105aを通じて原料溶液104aに伝播させることによって、原料溶液104aをミスト化させてミストを生成する。

[0121] 次に、ミストをキャリアガスにより搬送するミスト搬送工程では、ミストがキャリアガスによってミスト化部120から搬送部109を経て成膜部140へ搬送され、成膜室107内に導入される。

[0122] そして成膜工程では、基板載置部112（基板110が載置されたホットプレート108）の上方に備えたノズル150から、成膜室107の天井と基板110の間にミストの供給を行う。そして、成膜室107の天井及び排気部170（排気口111等）からの排気により整流されて基板110上に供給され、成膜室107内でホットプレート108の熱により熱処理され熱反応して、基板110上に成膜される。

[0123] 本発明に係る成膜方法においては、上述の成膜装置で説明したように設定、特に、成膜室の天井の内面と基板載置部の基板載置面の高さ位置の差が0.15cm以上6.05cm以下となるように設定された成膜室を備えた成膜装置を用いることで、膜厚の面内均一性が良好な膜を成膜することができる。成膜室の天井による整流効果と、ノズルからのミストの供給と排気ガスの排気とにより発生する対流の相乗効果により、基板上方に基板に沿った（基板表面に平行な）均一なガスの流れが発生し、基板上に均一な膜を生成することができるためである。

[0124] 成膜部140内でのミストの熱反応は、加熱によりミストが反応すればよく、反応条件等も特に限定されない。原料や成膜物に応じて適宜設定することができる。例えば、加熱温度は120～600℃の範囲であり、好ましくは200℃～600℃の範囲であり、より好ましくは300℃～550℃の範囲とすることができる。加熱温度をT [℃]、ノズル開口面152の面積をS [cm²]、キャリアガスの流量をQ [L/分]としたとき、ST/Qは

40以上が好ましく、より好ましくは100以上2000以下である。ST/Q \geq 40では、膜厚の面内均一性がより良い膜となる。

[0125] 熱反応は、真空下、非酸素雰囲気下、還元ガス雰囲気下、空気雰囲気下及び酸素雰囲気下のいずれの雰囲気下で行われてもよく、成膜物に応じて適宜設定すればよい。また、反応圧力は、大気圧下、加圧下又は減圧下のいずれの条件下で行われてもよいが、大気圧下の成膜であれば、装置構成が簡略化できるので好ましい。

[0126] キャリアガスの流量は特に限定されない。例えば、直径4インチ(10cm)の基板の上に成膜する場合には、1~80L/分とすることが好ましく、4~40L/分とすることがより好ましい。なお、このキャリアガスの流量Qは、20℃における測定値とし、その他の温度で測定した場合や異なる種類の流量(質量流量等)を測定した場合には、気体の状態方程式を用いて20℃における体積流量に換算することができる。

[0127] 排気の流量は特に限定されないが、好ましくは、ノズル150から供給されるキャリアガスの流量をQ[L/分]、排気部170から排気される排気量をE[L/分]としたとき、E/Qは5.0以下とすることが好ましく、0.5以上3.0以下がより好ましい。膜厚の面内均一性が良好な膜となるためである。また、このとき、排気部170から排気されるEは20℃において排気口111で流量計を用いて測定する、又は、風速計を用いて測定した線速と、排気口111の開口面の面積の積によって算出することができる。その他の温度で風速を測定した、又は、その他の方法、温度で流量を測定した場合には、気体の状態方程式を用いて20℃における体積流量に換算することができる。

[0128] ノズル開口面152の面積をS[cm²]、キャリアガスの流量をQ[L/分]、ノズル開口面152と基板110の被処理面の間の高さ位置の差(例えば、ノズル開口面152と基板110の表面との距離の中で最長となる距離)をH[cm]としたとき、SH/Qは0.015以上がよく、好ましくは、0.1以上20以下である。SH/Q \geq 0.015では、膜厚の面内均

一性がより良い膜となる。

[0129] また、このときノズル開口面152における基板と直交する方向のガスの速度は、0.01以上8.0m/s以下がよく、好ましくは0.1以上2.0m/s以下である。なお、ノズル開口面152における基板と直交する方向のガスの速度は、キャリアガスの流量を Q [L/分]をノズル開口面152の面積を S [cm²]で割り、単位換算することで算出する。

[0130] なお、移動機構160で基板110をノズル150の下方で移動させつつ成膜すると、大面積の膜を形成する際に有効であるし、また、膜厚分布がより一層面内均一で優れた膜を成膜するのに有効である。

[0131] このような成膜方法により、従来法に比べ、膜厚の基板面内均一性が良好な膜を成膜することが可能である。

[0132] 本発明においては、成膜後、アニール処理を行ってもよい。アニール処理の温度は、特に限定されないが、600℃以下が好ましく、550℃以下がより好ましい。膜の結晶性を損なわないためである。アニール処理の処理時間は、特に限定されないが、10秒～10時間とするのが好ましく、10秒～1時間とするのがより好ましい。

[0133] 本発明に係る成膜方法により成膜して得られる半導体膜などの結晶性酸化物膜は、膜厚の面内均一性に優れた大面積な膜である。

実施例

[0134] 以下、実施例を挙げて本発明について具体的に説明するが、これは本発明を限定するものではない。

[0135] (実施例1)

本実施例では、図1に示すような成膜装置を用いた。成膜室107の天井と同一平面内になるようにノズル開口面152が固定されている。天井の面積を B [cm²]としたとき、 $B=600$ であり、基板載置部112の基板載置面113 (ホットプレート108の上面)と成膜室の天井との高さ位置の差 l を $l=2.05$ cmとした。

[0136] ヨウ化ガリウムを水に加え、60℃で60分攪拌して溶解させ、0.1m

○ 1 / L の水溶液を調製し、これを原料溶液 104 a とした。上述のようにして得た原料溶液 104 a を、ミスト発生源 104 内に収容した。このときの溶液の温度は 25 °C であった。

[0137] 次に、基板 110 として 4 インチ（直径 100 mm）の c 面サファイア基板を、成膜室 107 内でホットプレート 108 に載置し、ホットプレート 108 を作動させて温度を 500 °C に昇温した。

[0138] 続いて、流量調節弁 103 a、103 b を開いてキャリアガス源 102 a（主キャリアガス）、希釈用キャリアガス供給源 102 b（希釈用キャリアガス）からキャリアガスとして窒素ガスを成膜室 107 内に供給し、成膜室 107 の雰囲気をこれらのキャリアガスで十分に置換するとともに、主キャリアガスの流量を 12 L / 分に、希釈用キャリアガスの流量を 12 L / 分にそれぞれ調節した。

[0139] 続いて、図 11 のような排気部 170 を用い、排気口 111 における排気量 E [L / 分] が 24 となるように排気流量調整弁 173 を調整した。このとき、 $E / Q = 1.0$ であった。

[0140] 次に、超音波振動子 106 を 2.4 MHz で振動させ、その振動を、水 105 a を通じて原料溶液 104 a に伝播させることによって、原料溶液 104 a をミスト化してミストを生成した。

[0141] このミストを、キャリアガスによって供給管 109 a、ノズル 150 を経て、基板 110 に供給した。ノズル 150 としては、ノズル開口面 152 が長方形形状のノズルを用い、ノズル開口面 152 の面積を S [cm²]、キャリアガスの流量を Q [L / 分]、ノズル開口面 152 と基板 110 との高さ位置の差（ノズル開口面 152 内の点と基板 110 の表面との距離の中で最長となる距離）を H [cm] としたとき、 $SH / Q = 0.5$ になるように調整した。このとき、 $S = 6.0$ [cm²]、 $H = 2.0$ [cm]、 $Q = 24$ [L / 分] である。

[0142] そして、大気圧下、500 °C の条件で、排気口 111 から排気ガスを排気しつつ、成膜室 107 内でミストを熱反応させて、基板 110 上にコランダ

ム構造を有する酸化ガリウム ($\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$) の薄膜を形成した。成膜時間は300分とした。

[0143] 熱処理温度を T [$^{\circ}\text{C}$] としたとき、 $ST/Q=125$ 、基板の面積を A [cm^2] としたとき、 $S/A=0.076$ 、ノズル開口面152の長軸長さを L [cm]、基板のノズル長軸方向の最大長さ R [cm] としたとき、 $L/R=1.2$ であった。このとき、 $T=500$ [$^{\circ}\text{C}$]、 $A=78.5$ [cm^2]、 $L=12$ [cm]、 $R=10$ [cm] である。また、 $B/A=7.6$ である。

[0144] 図13のような移動ステージ161aにより、基板及びホットプレートを15 [$\text{cm}/\text{分}$] の速度で、1分間に一度ノズルの下を通過するように往復移動させた。

[0145] (比較例1)

図12のような成膜室107を設けていない成膜装置を用いたこと、成膜時間を60分としたこと以外は、実施例1と同様に行った。

[0146] (比較例2)

図13のような成膜室107を設けた成膜装置を用い、基板載置部112の基板載置面113 (ホットプレート108の上面) と成膜室107の天井との高さ位置の差 l を $l=15.05\text{cm}$ としたこと以外は、実施例1と同様に成膜を行った。

[0147] (比較例3)

図14のような成膜室107に排気部170を設けていない成膜装置を用いたこと以外は、実施例1と同様に成膜を行った。

[0148] (実施例2)

ノズル開口面152の面積 S を 2.4 [cm^2]、ノズル開口面152と基板110との高さ位置の差 H [cm] を 6.0 [cm]、成膜室107の天井と基板載置部112の基板載置面113との高さ位置の差 l を 6.05 [cm]、キャリアガスの流量 Q を 48 [$\text{L}/\text{分}$] に変更し、 $SH/Q=0.3$ 、 $ST/Q=25$ 、 $S/A=0.031$ 、 $E/Q=0.5$ としたこと、成

膜時間を30分としたこと以外は、実施例1と同様に成膜を行った。

[0149] (実施例3)

ノズル開口面152の面積 S を12 [cm²]、ノズル開口面152と基板110との高さ位置の差 H [cm]を0.1 [cm]、成膜室107の天井と基板載置部112の基板載置面113との高さ位置の差 l を0.15 [cm]、キャリアガスの流量 Q を12 [L/分]、排気量 E を12 [L/分]に変更し、 $SH/Q=0.1$ 、 $ST/Q=500$ 、 $S/A=0.15$ としたこと、成膜時間を30分としたこと以外は、実施例1と同様に成膜を行った。

[0150] (実施例4)

基板載置領域114と成膜室107の側壁の内面との最短距離 J [cm]を15 [cm]、成膜室107の天井の面積 B [cm²]を1600 [cm²]に変更し、 $B/A=20.4$ としたこと、成膜時間を150分としたこと以外は実施例1と同様に成膜を行った。

[0151] (実施例5)

基板載置領域114と成膜室107の側壁の内面との最短距離 J [cm]を5.0 [cm]、成膜室107の天井の面積 B [cm²]を800 [cm²]に変更し、 $B/A=10.2$ としたこと、成膜時間を240分としたこと以外は実施例1と同様に成膜を行った。

[0152] (実施例6)

基板載置領域114と成膜室107の側壁の内面との最短距離 J [cm]を0 [cm]、成膜室107の天井の面積 B [cm²]を400 [cm²]に変更し、 $B/A=5.1$ としたこと、成膜時間を180分としたこと以外は実施例1と同様に成膜を行った。

[0153] (実施例7)

排気量 E を120 [L/分]に変更し、 $E/Q=5.0$ としたこと、成膜時間を360分としたこと以外は、実施例1と同様に成膜を行った。

[0154] (実施例8)

排気量Eを360 [L/分]に変更し、 $E/Q=15.0$ としたこと、成膜時間を60分としたこと以外は、実施例1と同様に成膜を行った。

[0155] (実施例9)

基板110として6インチ(直径150mm)のc面サファイア基板を用いたこと、キャリアガスの流量Qを36 [L/分]、排気量Eを36 [L/分]、ノズル開口面152の長軸長さL [cm]を18 [cm]、ノズル開口面152の面積 $S=9.0$ [cm²]、基板110の面積 $A=176.7$ [cm²]とし、 $S/A=0.051$ 、 $B/A=3.4$ としたこと、成膜時間を180分としたこと以外は、実施例1と同様に成膜を行った。

[0156] (実施例10)

基板110として6インチ(直径150mm)のc面サファイア基板を用いたこと、成膜室107の天井の面積B [cm²]を176.7 [cm²]、キャリアガスの流量Qを36 [L/分]、排気量Eを36 [L/分]、ノズル開口面152の長軸長さL [cm]を18 [cm]、ノズル開口面152の面積 $S=9.0$ [cm²]、基板110の面積 $A=176.7$ [cm²]とし、 $S/A=0.051$ 、 $B/A=1.0$ としたこと、成膜時間を60分としたこと、基板を移動させなかったこと以外は、実施例1と同様に成膜を行った。

[0157] (実施例11)

アルミニウムアセチルアセトナート錯体を塩酸溶液に溶解させ、0.1 mol/Lの溶液を調製し、原料溶液として用いたこと、図13の成膜装置を用い、成膜室107の天井と基板載置部112の基板載置面との高さ位置の差Iを3.05 [cm]、成膜温度T [°C]を550 [°C]に変更し、 $ST/Q=137.5$ としたこと、成膜時間を60分としたこと以外は、実施例1と同様に成膜を行った。

[0158] (実施例12)

硝酸加里ウムを水に溶解させ、0.1 mol/Lの溶液を調製し、原料溶液として用いたこと、図8のような成膜室を備えた図15のような成膜装置

を用いたこと、基板を移動させなかったこと、成膜時間を60分としたこと以外は実施例1と同様に成膜を行った。

[0159] (膜厚分布測定)

基板110上に形成した薄膜について、測定箇所を基板110上の面内の81点として、段差計を用いて膜厚を測定した。また、それぞれの値から平均膜厚を算出し表1に示した。さらに、(膜厚分布[±%]) = (最大膜厚 - 最小膜厚) / (平均膜厚) / 2 × 100として算出した膜厚分布を表1に示した。また、平均膜厚を成膜時間で割った値を成膜速度として表1に示した。

[0160] [表1]

	原料	B/A [-]	E/Q [-]	H [cm]	I [cm]	J [cm]	基板移動	膜厚 [μm]	製膜速度 [μm/h]	分布 [±%]
実施例1	Ga ₃	7.6	1.0	2.0	2.05	2.5	往復	6.51	1.3	3.1
比較例1	Ga ₃	7.6	1.0	2.0	-	2.5	往復	0.64	0.6	34.1
比較例2	Ga ₃	7.6	1.0	2.0	15.05	2.5	往復	0.75	0.8	21.7
比較例3	Ga ₃	7.6	0.0	2.0	2.05	2.5	往復	0.91	0.9	15.4
実施例2	Ga ₃	7.6	0.5	6.0	6.05	2.5	往復	0.57	1.1	8.7
実施例3	Ga ₃	7.6	1.0	0.1	0.15	2.5	往復	1.15	2.3	4.2
実施例4	Ga ₃	20.4	1.0	2.0	2.05	15	往復	2.55	1.0	7.1
実施例5	Ga ₃	10.2	1.0	2.0	2.05	5.0	往復	5.14	1.3	4.9
実施例6	Ga ₃	5.1	1.0	2.0	2.05	0	往復	3.40	1.1	4.6
実施例7	Ga ₃	7.6	5.0	2.0	2.05	2.5	往復	7.54	1.3	4.3
実施例8	Ga ₃	7.6	15.0	2.0	2.05	2.5	往復	1.12	1.1	6.1
実施例9	Ga ₃	3.4	1.0	2.0	2.05	2.5	往復	4.00	1.3	3.8
実施例10	Ga ₃	1.0	1.0	2.0	2.05	2.5	なし	1.50	1.5	7.5
実施例11	Al(acac) ₃	7.6	1.0	2.0	3.05	2.5	往復	1.04	1.0	7.1
実施例12	Ga(NO ₃) ₃	7.6	1.0	2.0	2.05	2.5	なし	1.20	1.2	8.2

[0161] 実施例1～12と比較例1～3の比較により、ミスト化部、キャリアガス供給部、成膜部、排気部とを備え、成膜部内に設置された、基板を載置する基板載置部の上方に該基板上へミストを供給するノズルと、基板載置部を内包する成膜室と、を備え、成膜室の天井の内面と基板載置部の高さ位置の差を0.15cm以上6.05cm以下となるように成膜室を設定して設置した成膜装置を用いることで、膜厚の面内均一性が優れたものが得られることが分かった。

[0162] また、特許文献5と本発明に係る成膜装置、成膜方法とでは、基板の設置方式や、ミストを整流する機構の有無が異なっていることが影響して、特許文献5に記載の4インチ以上の基板へ成膜した例では、膜厚の面内均一性が良好な膜が得られなかったと推定される。

[0163] なお、本発明は、上記実施形態に限定されるものではない。上記実施形態は例示であり、本発明の特許請求の範囲に記載された技術的思想と実質的に同一な構成を有し、同様な作用効果を奏するものは、いかなるものであっても本発明の技術的範囲に包含される。

請求の範囲

- [請求項1] 原料溶液をミスト化してミストを発生させるミスト化部と、
前記ミスト化部で発生させた前記ミストを搬送するキャリアガスを供給するキャリアガス供給部と、
前記キャリアガスにより搬送された前記ミストを熱処理して成膜を行う成膜部とを備えた成膜装置であって、
前記成膜部は、
成膜室と、
前記成膜室の内部に設けられた基板載置部と、
前記成膜室の内部へ前記ミストを供給するノズルと、
前記成膜室の内部から外部へ排気ガスを排気する排気部とを備え、
前記成膜室の天井の内面と前記基板載置部の基板載置面の高さ位置の差が0.15cm以上6.05cm以下であることを特徴とする成膜装置。
- [請求項2] 前記成膜室の天井の内面と前記ノズルの開口面が同一平面内にあることを特徴とする請求項1に記載の成膜装置。
- [請求項3] 前記成膜室の天井の内面と前記基板載置部の前記基板載置面とが平行であることを特徴とする請求項1又は2に記載の成膜装置。
- [請求項4] 前記成膜室の天井の内面と前記基板載置部に載置された前記基板の被処理面の高さ位置の差が0.1cm以上6.0cm以下であることを特徴とする請求項1から請求項3のいずれか一項に記載の成膜装置。
- [請求項5] 前記基板の被処理面の面積をA [cm²]、前記成膜室の天井の内面の面積をB [cm²]としたとき、 $B/A \geq 1.0$ であることを特徴とする請求項1から請求項4のいずれか一項に記載の成膜装置。
- [請求項6] 前記成膜室の側壁の内面と前記基板載置部の基板載置領域の最短距離が5.0cm以下であることを特徴とする請求項1から請求項5のいずれか一項に記載の成膜装置。

- [請求項7] 前記排気部が前記成膜室の相対する一対の方向に設けられているものであることを特徴とする請求項1から請求項6のいずれか一項に記載の成膜装置。
- [請求項8] 前記ノズルの下方で前記基板を移動させる移動機構を更に備えるものであることを特徴とする請求項1から請求項7のいずれか一項に記載の成膜装置。
- [請求項9] 前記原料溶液がガリウムを含むものであることを特徴とする請求項1から請求項8のいずれか一項に記載の成膜装置。
- [請求項10] 前記原料溶液がハロゲンを含むものであることを特徴とする請求項1から請求項9のいずれか一項に記載の成膜装置。
- [請求項11] ミスト化した原料溶液を熱処理して基板上に成膜を行う成膜方法であって、
前記原料溶液をミスト化してミストを発生させるミスト発生工程と、
前記ミストをキャリアガスにより成膜室に搬送するミスト搬送工程と、
前記成膜室内の基板載置部に載置した前記基板上に前記ミストを供給して熱処理し成膜を行う成膜工程と、
を含み、
前記成膜室の天井の内面と前記基板載置部の基板載置面の高さ位置の差が0.15cm以上6.05cm以下となるように設定された前記成膜室を用い、
前記成膜工程において、前記基板載置部の上方に備えたノズルから、前記成膜室の天井と前記基板の間に前記ミストを供給するとともに、前記成膜室内の前記基板上から排気ガスを前記成膜室の外部へ排気することで、前記基板上に整流された前記ミストを供給しつつ成膜を行うことを特徴とする成膜方法。
- [請求項12] 前記成膜室の天井の内面と前記ノズルの開口面が同一平面内となる

ように設定された前記成膜室を用いることを特徴とする請求項 1 1 に記載の成膜方法。

[請求項13] 前記成膜室の天井の内面と前記基板載置部の前記基板載置面とが平行となるように設定された前記成膜室を用いることを特徴とする請求項 1 1 又は 1 2 に記載の成膜方法。

[請求項14] 前記成膜室の天井の内面と前記基板載置部に載置された前記基板の被処理面の高さ位置の差が 0. 1 c m 以上 6. 0 c m 以下となるように設定された前記成膜室を用いることを特徴とする請求項 1 1 から請求項 1 3 のいずれか一項に記載の成膜方法。

[請求項15] 前記基板の面積を A [c m²]、前記成膜室の天井の内面の面積を B [c m²] としたとき、 $B/A \geq 1. 0$ となるように設定された前記成膜室を用いることを特徴とする請求項 1 1 から請求項 1 4 のいずれか一項に記載の成膜方法。

[請求項16] 前記成膜室の側壁の内面と前記基板載置部の基板載置領域の最短距離が 5. 0 c m 以下となるように設定された前記成膜室を用いることを特徴とする請求項 1 1 から請求項 1 5 のいずれか一項に記載の成膜方法。

[請求項17] 前記成膜工程において、前記成膜室の相対する一対の方向に排気ガスの排気を行うことを特徴とする請求項 1 1 から請求項 1 6 のいずれか一項に記載の成膜方法。

[請求項18] 前記ノズルから供給する前記キャリアガスの流量を Q [L/分]、前記排気ガスの流量を E [L/分] としたとき、 E/Q を 5. 0 以下とすることを特徴とする請求項 1 1 から請求項 1 7 のいずれか一項に記載の成膜方法。

[請求項19] 前記成膜工程において、前記ノズルの下方で前記基板を移動させることを特徴とする請求項 1 1 から請求項 1 8 のいずれか一項に記載の成膜方法。

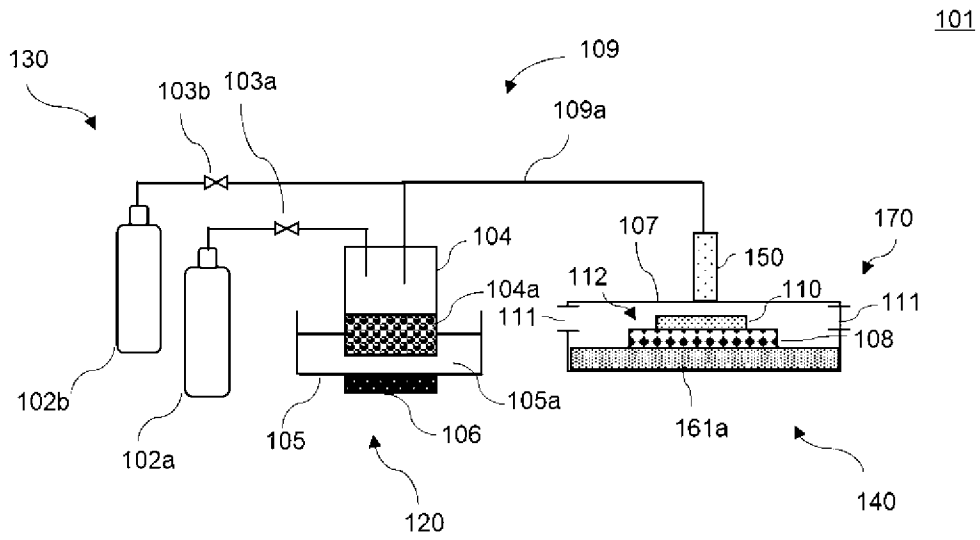
[請求項20] 前記原料溶液としてガリウムを含むものを用いることを特徴とする

請求項 1 1 から請求項 1 9 のいずれか一項に記載の成膜方法。

[請求項21] 前記原料溶液としてハロゲンを含むものを用いることを特徴とする
請求項 1 1 から請求項 2 0 のいずれか一項に記載の成膜方法。

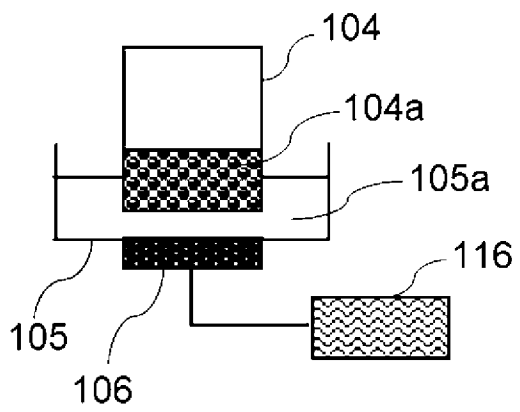
[請求項22] 前記基板として、被処理面の面積が 50 cm^2 以上のもの、又は、
直径が4インチ（ 100 mm ）以上のものを用いることを特徴とする
請求項 1 1 から請求項 2 1 のいずれか一項に記載の成膜方法。

[図1]

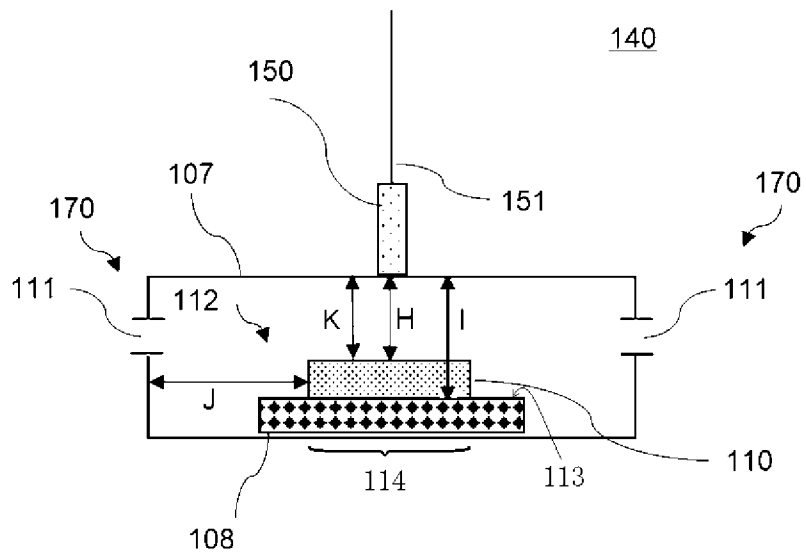


[図2]

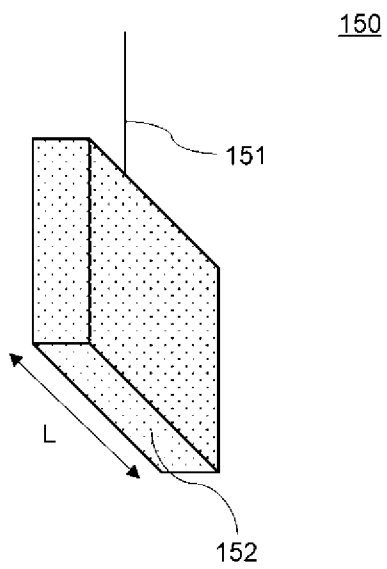
120



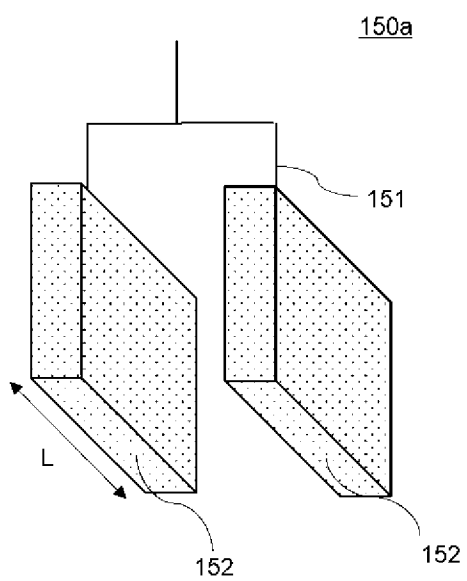
[図3]



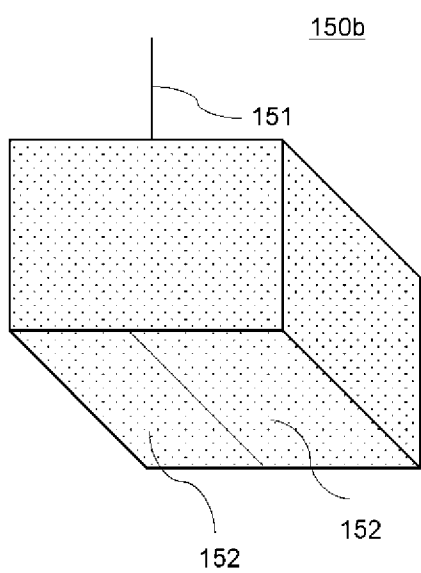
[図4]



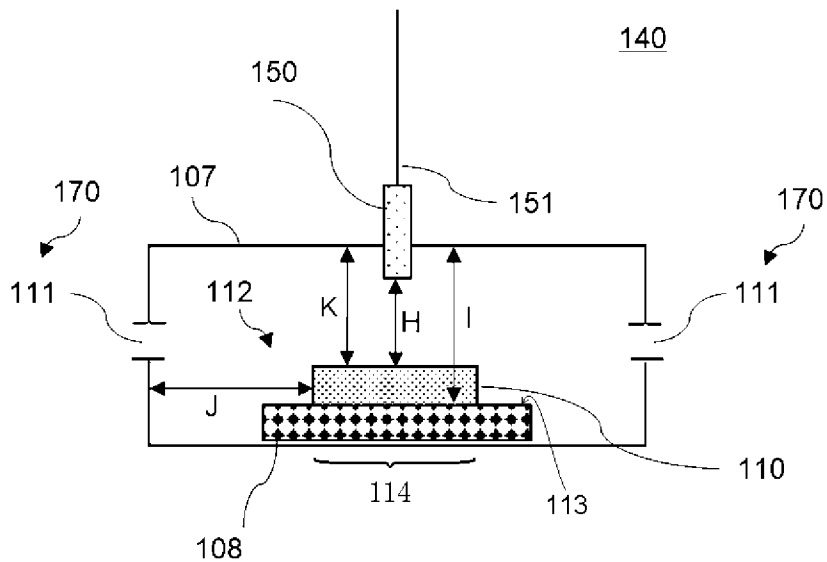
[図5]



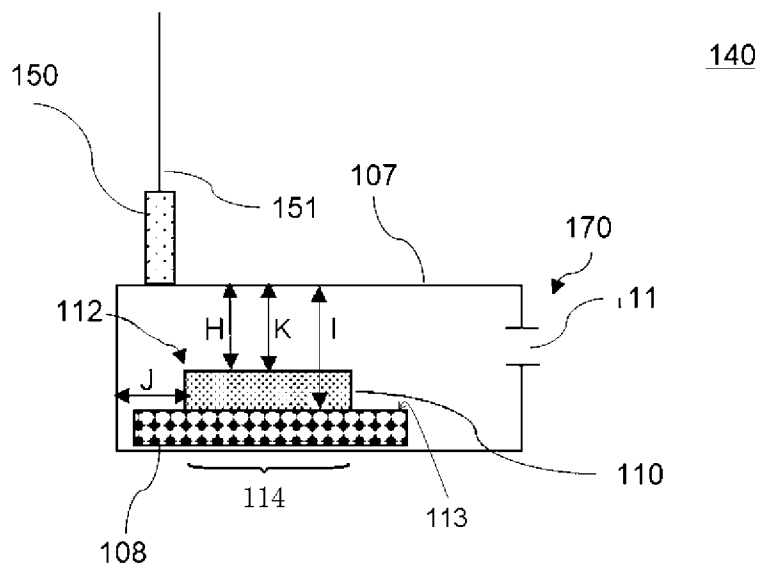
[図6]



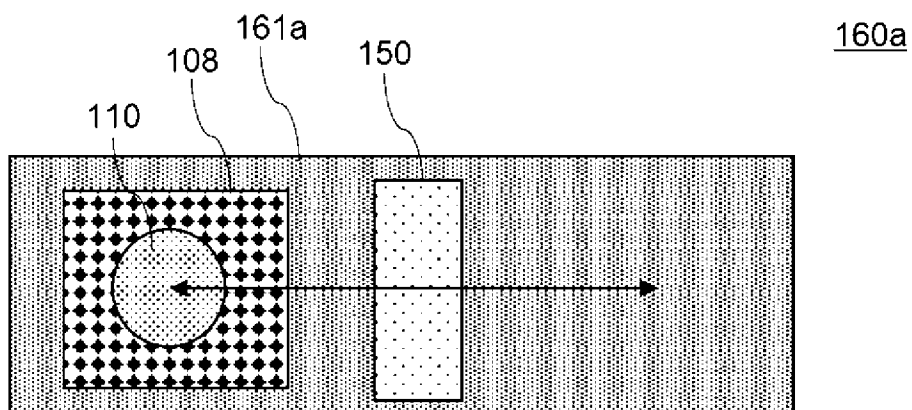
[図7]



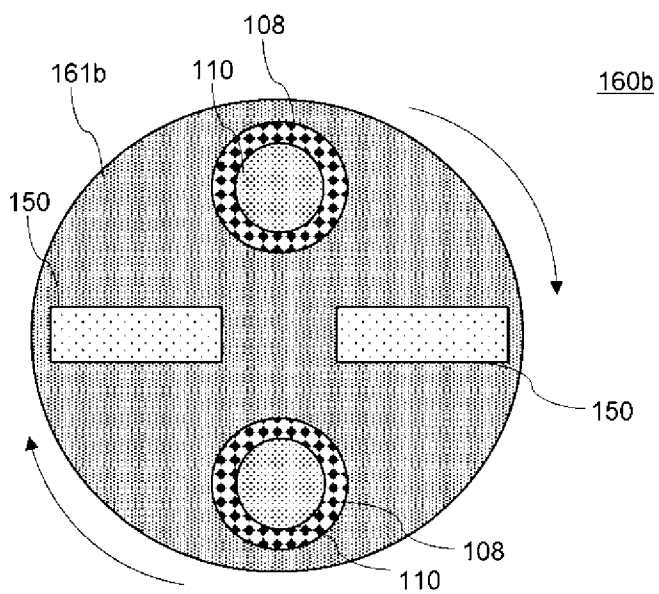
[図8]



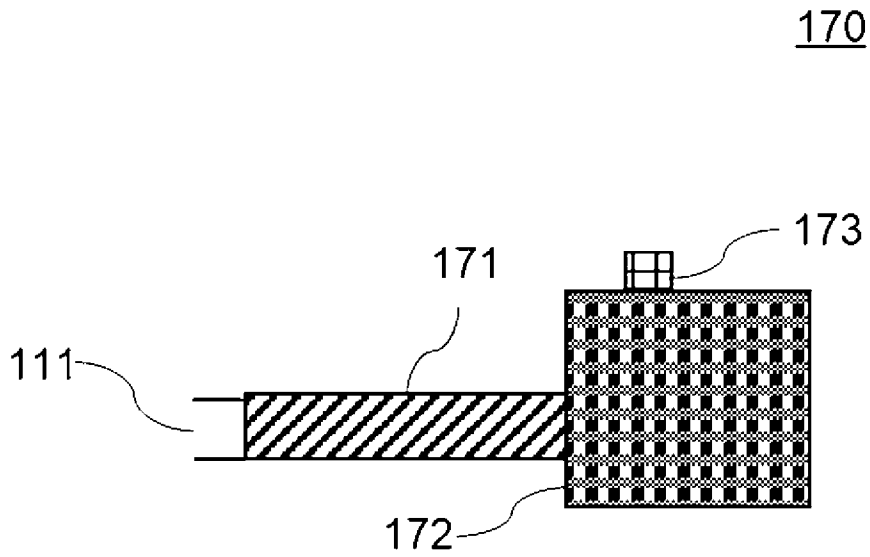
[図9]



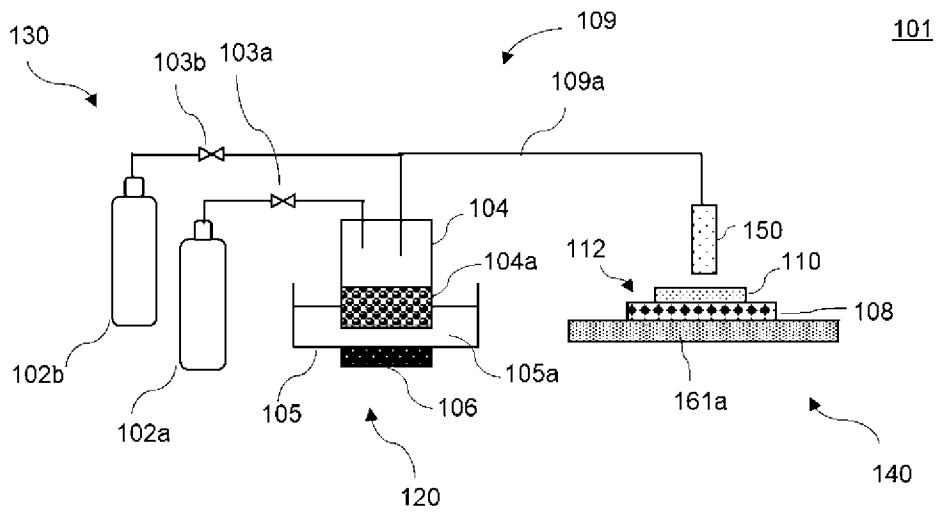
[図10]



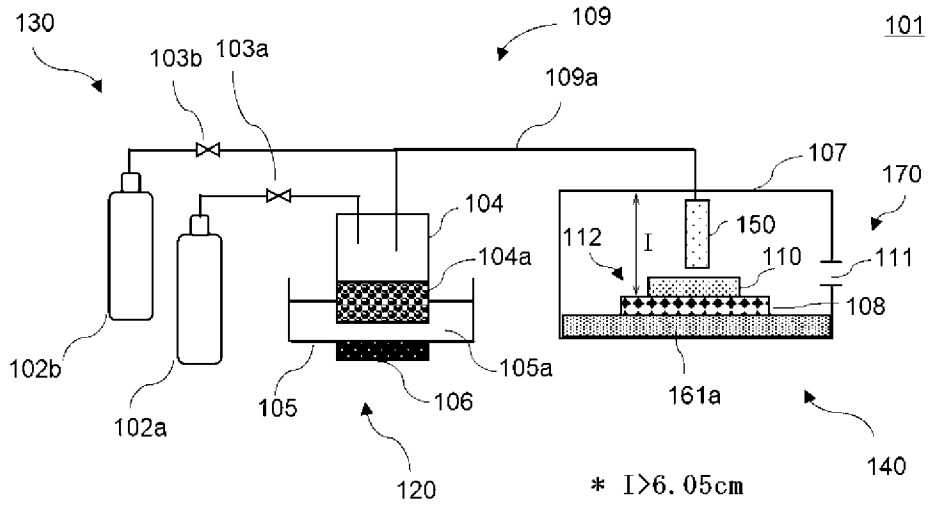
[図11]



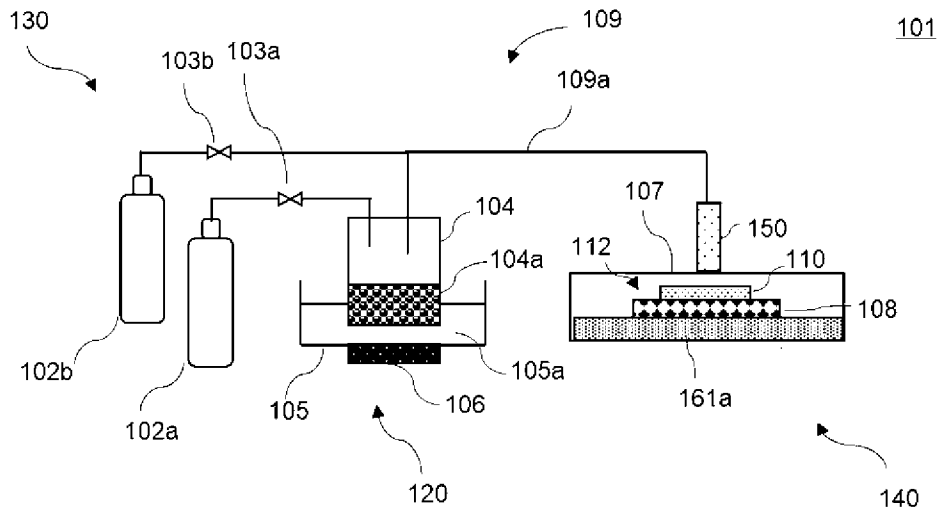
[図12]



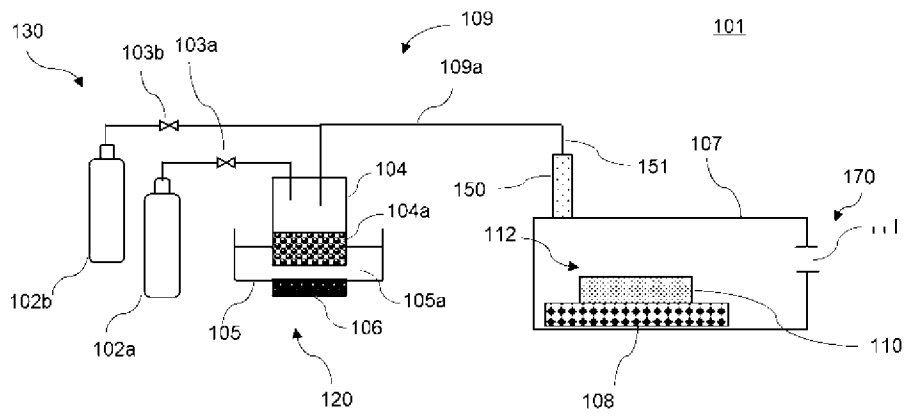
[図13]



[図14]



[図15]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/025998

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
<i>C23C 16/448</i> (2006.01)i; <i>C23C 16/40</i> (2006.01)i; <i>H01L 21/365</i> (2006.01)i; <i>H01L 21/368</i> (2006.01)i FI: C23C16/448; H01L21/365; H01L21/368; C23C16/40		
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) C23C16/448; C23C16/40; H01L21/365; H01L21/368		
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 1971-2022 Registered utility model specifications of Japan 1996-2022 Published registered utility model applications of Japan 1994-2022		
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.
Y A	JP 2020-098846 A (SHINETSU CHEMICAL CO) 25 June 2020 (2020-06-25) paragraphs [0021]-[0070], fig. 1, 3-5	1-5, 7-15, 17-22 6, 16
Y A	JP 6925548 B1 (SHINETSU CHEMICAL CO) 25 August 2021 (2021-08-25) paragraphs [0044]-[0046], [0068], fig. 3	1-5, 7-15, 17-22 6, 16
Y A	JP 11-111706 A (EBARA CORP) 23 April 1999 (1999-04-23) paragraph [0019], fig. 1	1-5, 7-15, 17-22 6, 16
Y A	JP 2014-063973 A (KUMAMOTO UNIV) 10 April 2014 (2014-04-10) paragraph [0058], fig. 2	1-5, 7-15, 17-22 6, 16
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
<p>* Special categories of cited documents:</p> <p>“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date</p> <p>“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)</p> <p>“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“&” document member of the same patent family</p>		
Date of the actual completion of the international search 22 August 2022		Date of mailing of the international search report 06 September 2022
Name and mailing address of the ISA/JP Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan		Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/025998

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2017-020076 A (TOSHIBA MITSUBISHI-ELECTRIC IND SYSTEM CORP) 26 January 2017 (2017-01-26)	1-5, 7-15, 17-22
A	paragraphs [0019], [0049]-[0050], fig. 1	6, 16

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2022/025998

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP	2020-098846	A	25 June 2020	EP 3901995 A1 paragraphs [0021]-[0069], fig. 1, 3-5	
				WO 2020/129625 A1	
				CN 113196458 A	
				KR 10-2021-0101232 A	
				TW 202035771 A	
				JP 2021-192439 A	
<hr/>					
JP	6925548	B1	25 August 2021	JP 2022-16263 A	
				JP 2022-16426 A	
				JP 2022-16427 A	
				JP 2022-16428 A	
				WO 2022/009524 A1	
<hr/>					
JP	11-111706	A	23 April 1999	US 6195504 B1 specification, column 18, line 48 to column 19, line 61, fig. 24	
				US 6269221 B1	
				US 6282368 B1	
				EP 849375 A2	
				TW 565626 B	
				KR 10-0507961 B1	
				JP 11-87327 A	
<hr/>					
JP	2014-063973	A	10 April 2014	(Family: none)	
<hr/>					
JP	2017-020076	A	26 January 2017	(Family: none)	
<hr/>					

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C23C 16/448(2006.01)i; C23C 16/40(2006.01)i; H01L 21/365(2006.01)i; H01L 21/368(2006.01)i FI: C23C16/448; H01L21/365; H01L21/368; C23C16/40		
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）） C23C16/448; C23C16/40; H01L21/365; H01L21/368 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 1971-2022年 日本国実用新案登録公報 1996-2022年 日本国登録実用新案公報 1994-2022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
Y A	JP 2020-098846 A (信越化学工業株式会社) 25.06.2020 (2020-06-25) [0021]-[0070], 図1, 図3-図5	1-5, 7-15, 17-22 6, 16
Y A	JP 6925548 B1 (信越化学工業株式会社) 25.08.2021 (2021-08-25) [0044]-[0046], [0068], 図3	1-5, 7-15, 17-22 6, 16
Y A	JP 11-111706 A (株式会社荏原製作所) 23.04.1999 (1999-04-23) [0019], 図1	1-5, 7-15, 17-22 6, 16
Y A	JP 2014-063973 A (国立大学法人 熊本大学) 10.04.2014 (2014-04-10) [0058], 図2	1-5, 7-15, 17-22 6, 16
<input checked="" 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 22.08.2022	国際調査報告の発送日 06.09.2022	
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） ▲高▼橋 真由 4G 4490 電話番号 03-3581-1101 内線 3416	

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
Y	JP 2017-020076 A (東芝三菱電機産業システム株式会社) 26.01.2017 (2017 - 01 - 26)	1-5, 7-15, 17-22
A	[0019], [0049]-[0050], 図1	6, 16

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/JP2022/025998

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2020-098846 A	25.06.2020	EP 3901995 A1 [0021]-[0069], 図1, 図3-図5 WO 2020/129625 A1 CN 113196458 A KR 10-2021-0101232 A TW 202035771 A JP 2021-192439 A	
JP 6925548 B1	25.08.2021	JP 2022-16263 A JP 2022-16426 A JP 2022-16427 A JP 2022-16428 A WO 2022/009524 A1	
JP 11-111706 A	23.04.1999	US 6195504 B1 明細書第18欄第48行-第19欄 第61行, 図24 US 6269221 B1 US 6282368 B1 EP 849375 A2 TW 565626 B KR 10-0507961 B1 JP 11-87327 A	
JP 2014-063973 A	10.04.2014	(ファミリーなし)	
JP 2017-020076 A	26.01.2017	(ファミリーなし)	