

(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
2025年1月2日(02.01.2025)



(10) 国際公開番号

WO 2025/004470 A1

(51) 国際特許分類:
H01L 21/31 (2006.01) H01L 21/316 (2006.01)
C23C 16/455 (2006.01) H01L 21/318 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2024/011186

(22) 国際出願日: 2024年3月22日(22.03.2024)

(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 2023-107406 2023年6月29日(29.06.2023) JP

(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:田中 翔太(TANAKA Shota); 〒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). 八田 啓希(HATTA Hiroki); 〒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). 宮西 裕也(MIYANISHI Yuya); 〒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).

(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, CV, 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, MG, MK, MN, MU, 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.

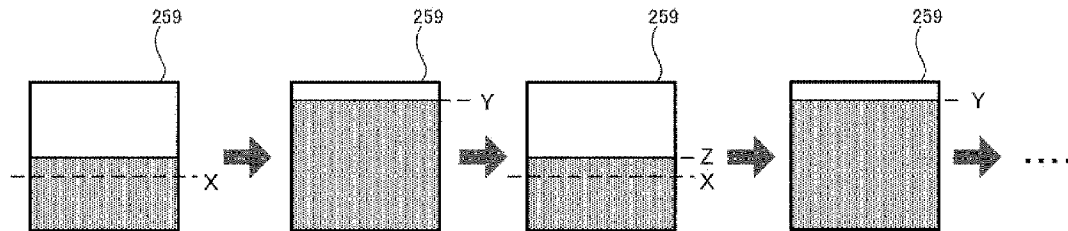
(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, ME, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, 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:

— 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: SUBSTRATE PROCESSING METHOD, METHOD FOR MANUFACTURING SEMICONDUCTOR DEVICE, SUBSTRATE PROCESSING DEVICE, AND PROGRAM

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



(57) Abstract: The purpose of the present invention is to provide a technology capable of improving the step coverage of a film formed on a substrate. The present invention includes a supply step for supplying a processing gas to a substrate from a storage part in which the processing gas is stored. The supply step is carried out such that the amount of gas in the storage part when the supply step has ended is at or above a prescribed amount.

(57) 要約: 基板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な技術を提供する。処理ガスが貯留された貯留部から前記処理ガスを基板に供給する供給工程を有し、前記供給工程では、前記供給工程の終了時点における前記貯留部内のガスの量を所定の量以上とする。



WO 2025/004470 A1

明 細 書

発明の名称：

基板処理方法、半導体装置の製造方法、基板処理装置及びプログラム

技術分野

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

背景技術

[0002] 処理ガスを基板に供給して、表面に凹部が形成された基板上に膜を形成することがある（例えば、特許文献1を参照）。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：国際公開第2022／196339号パンフレット

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。

課題を解決するための手段

[0005] 本開示の一態様によれば、
処理ガスが貯留された貯留部から前記処理ガスを基板に供給する供給工程を有し、
前記供給工程では、前記供給工程の終了時点における前記貯留部内のガスの量を所定の量以上とする、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ステップカバレッジを向上させることが可能となる。

図面の簡単な説明

[0007] [図1]図 1 は、本開示の一実施形態における基板処理装置の概略を示す縦断面図である。

[図2]図 2 (A) は、本開示の一実施形態における第 1 処理ガス供給系を示す図であり、図 2 (B) は、本開示の一実施形態における第 2 処理ガス供給系を示す図であり、図 2 (C) は、本開示の一実施形態における排気系を示す図である。

[図3]図 3 は、本開示の一実施形態における基板処理装置のコントローラの概略構成図であり、コントローラの制御系をブロック図で示す図である。

[図4]図 4 は、本開示の一実施形態における基板処理シーケンスを示す図である。

[図5]図 5 は、図 4 の第 1 処理ガス供給工程の詳細を示すフロー図である。

[図6]図 6 は、図 4 の第 1 処理ガス供給工程におけるタンク内のイメージ図である。

発明を実施するための形態

[0008] 以下、本開示の一態様について、主に図 1 ～図 8 を参照しつつ説明する。
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、図面に示される、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

基板処理装置 10 の構成について、図 1 を用いて説明する。

[0010] 基板処理装置 10 は、反応管格納室 206 b を備え、反応管格納室 206 b 内に、鉛直方向に延びた円筒形状の反応管 210 と、反応管 210 の外周に設置された加熱部（炉体）としてのヒータ 211 と、ガス供給部としてのガス供給構造 212 と、ガス排気部としてのガス排気構造 213 とを備える。ガス供給部には、後述する上流側整流部 214 やノズル 223, 224 を含めてもよい。また、ガス排気部には、後述する下流側整流部 215 を含めてもよい。反応管 210 のうち、基板 S を処理する区画を処理室 201 と呼

ぶ。また、処理室201は、内部に基板Sが配される処理空間と呼ぶこともできる。

[0011] ガス供給構造212は反応管210のガス流れ方向上流に設けられ、ガス供給構造212から反応管210内にガスが供給され、基板Sに対して水平方向からガスが供給される。ガス排気構造213は反応管210のガス流れ方向下流に設けられ、反応管210内のガスはガス排気構造213から排出される。ガス供給構造212と反応管210内とガス排気構造213とは水平方向に連通している。

[0012] 反応管210とガス供給構造212との間の反応管210の上流側には、ガス供給構造212から供給されたガスの流れを整える上流側整流部214が設けられる。また、反応管210とガス排気構造213との間の反応管210の下流側には、反応管210から排出されるガスの流れを整える下流側整流部215が設けられる。反応管210の下端は、マニホールド216で支持される。

[0013] 反応管210、上流側整流部214、下流側整流部215は連続した構造であり、例えば石英やSiC等の材料で形成される。これらはヒータ211から放射される熱を透過する熱透過性部材で構成される。ヒータ211の熱は、基板Sやガスを加熱する。

[0014] ガス供給構造212は、ガス供給管251、ガス供給管261が接続されると共に、各ガス供給管から供給されたガスを分配する分配部225を有する。分配部225の下流側には複数のノズル223、ノズル224が設けられる。ガス供給管251とガス供給管261は、後述するように異なる種類のガスを供給する。ノズル223、ノズル224は上下の関係や横並びの関係で配される。本態様においては、ガス供給管251とガス供給管261をまとめてガス供給管221とも呼ぶ。各ノズルはガス吐出部とも呼ぶ。分配部225は、ガス供給管251からノズル223に、ガス供給管261からノズル224に、それぞれのガスが供給されるよう構成されている。

[0015] 上流側整流部214は、筐体227と区画板226を有する。区画板22

6は水平方向に延伸され、且つ孔の無い連続した構造である。ここでいう水平方向とは、筐体227の側壁方向を示す。区画板226は鉛直方向に複数配される。区画板226は筐体227の側壁に固定され、ガスが区画板226を超えて下方、もしくは上方の隣接領域に移動しないように構成される。

[0016] それぞれの区画板226は、それぞれの基板Sに対応した位置に設けられる。区画板226の間や区画板226と筐体227の間には、ノズル223、ノズル224が設けられる。ノズル223、ノズル224から吐出されたガスは、区画板226によってガス流れが整えられ、基板Sの表面に供給される。すなわち、基板Sからみれば、基板Sの横方向からガスが供給される。

[0017] 下流側整流部215は、基板支持具300に基板Sが支持された状態において、最上位に配された基板Sよりも天井が高くなるよう構成され、基板支持具300の最下位に配された基板Sよりも底部が低くなるよう構成される。

[0018] 下流側整流部215は、筐体231と区画板232を有する。区画板232は水平方向に延伸され、且つ孔の無い連続した構造である。ここでいう水平方向とは、筐体231の側壁方向を示す。更には、区画板232は鉛直方向に複数配される。区画板232は筐体231の側壁に固定され、ガスが区画板232を超えて下方、もしくは上方の隣接領域に移動しないように構成される。

[0019] 区画板232は、それぞれ基板Sに対応した位置であって、それぞれ区画板226に対応した位置に設けられる。対応する区画板226と区画板232は、同等の高さにすることが望ましい。更には、基板Sを処理する際、基板Sの高さと区画板226、区画板232の高さをそろえることが望ましい。これにより、区画板226、基板S上、区画板232にかけて鉛直方向への流れが抑制され、各基板S上のガスの圧力の差が均一になる。従って、各基板Sに対して処理を均一に行うことができる。

[0020] 上述のような位置関係となるように区画板226と区画板232を設ける

ことで、それぞれの基板Sの上流、下流で、鉛直方向において圧力損失を均一にできる。すなわち、図中の矢印のような、区画板226、基板S上、区画板232にかけて鉛直方向への流れが抑制された水平なガス流れを確実に形成できる。従って、各基板Sにおけるガスの圧力の差を減少させることができる。これにより、各基板Sに対して処理を均一に行うことができる。

[0021] ガス排気構造213は下流側整流部215の下流に設けられる。ガス排気構造213は主に筐体241と排気管接続部242とで構成される。筐体231と筐体241は、それぞれの天井部及び底部の高さが連続した構造である。筐体241の下流側であって下側もしくは水平方向には、下流側整流部215を通過したガスを排気する排気孔244が形成されている。ガス排気構造213は、反応管210の横方向に設けられ、基板Sの横方向からガスを排気する横排気構造である。

[0022] 移載室217は、反応管210の下部にマニホールド216を介して設置される。移載室217には、基板搬入口を介して真空搬送ロボットにより基板Sを基板支持具（以下、単にポートと記す場合もある）300に載置（搭載）したり、真空搬送ロボットにより基板Sを基板支持具300から取り出したりすることが行われる。

[0023] 移載室217の内部には、基板支持具300、仕切板支持部310、及び基板支持具300と仕切板支持部310と（これらを合わせて基板保持具と呼ぶ）を上下方向と回転方向に駆動する上下方向駆動機構部400を格納可能である。図1においては、基板支持具300は上下方向駆動機構部400によって上昇され、反応管210内に格納された状態を示す。

[0024] 上下方向駆動機構部400は、基板支持具300と仕切板支持部310とを一緒に回転させる回転駆動機構430と、仕切板支持部310に対して基板支持具300を相対的に上下方向に駆動させるポート上下機構420を備えている。回転駆動機構430とポート上下機構420は、ベースプレート402に側板403で支持されている蓋体としてのベースフランジ401に固定されている。ベースフランジ401の上面には真空シール用のOリング

446が設置されている。図1に示すように、上下駆動用モータ410で駆動されてベースフランジ401の上面が移載室217に押し当てられる位置まで上昇させることにより、反応管210の内部を気密に保つことができる。支持具440と基板支持具300に固定された支持部441との間は、真空ベローズ443で接続されている。

[0025] 基板支持部は、少なくとも基板Sを支持する基板支持具300で構成され、反応管210内に格納される。また、基板支持部は、移載室217の内部で図示しない基板搬入口を介して真空搬送ロボットにより基板Sの移し替えを行ったり、移し替えた基板Sを反応管210の内部に搬送して基板Sの表面に薄膜を形成する処理を行ったりする。基板搬入口は、例えば移載室217の側壁に設けられる。なお、基板支持部に、仕切板支持部310を含めて考えても良い。

[0026] 基板支持具300には、複数の基板Sが、鉛直方向（垂直方向）に、所定の間隔で載置されている。ここで、仕切板314は、基板Sの直下に配置され、基板Sの上部と下部のいずれか又は両方に配置される。仕切板314は、各基板Sの空間を遮断する。基板支持具300に載置されている複数の基板Sの所定の間隔は、仕切板支持部310に固定された仕切板314の上下の間隔と同じである。また、仕切板314の直径は、基板Sの直径よりも大きく形成されている。

[0027] なお、ここでは、基板支持具300に5枚の基板Sを支持した例を示すが、これに限るものではない。例えば、基板Sを5～50枚程度、支持可能に基板支持具300を構成しても良い。なお、仕切板314は、セパレータとも呼ぶ。なお、本明細書における「5～50枚」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、「5～50枚」とは「5枚以上50枚以下」を意味する。他の数値範囲についても同様である。

[0028] 続いて図2（A）～図2（C）を用いてガス供給系及び排気系の詳細を説明する。

[0029] 図2（A）に記載のように、ガス供給管251には、上流方向から順に、第1処理ガス源252、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）253、開閉弁であるバルブ275、内部にガスを貯留する貯留部であるタンク259、タンク259内の圧力を測定する圧力測定器（圧力測定部）である圧力センサ301及びバルブ254が設けられている。ここで、圧力センサ301は、タンク259内のガスの量を測定する測定部、又はタンク259内のガスの量が特定の量に到達したことを検知する検知部の一例とみなすことができる。

[0030] 第1処理ガス源252は、処理ガスとしての第1処理ガスを供給するためのガス源である。第1処理ガスは、原料ガスであり、処理ガスの一つである。また、第1処理ガス源252として、気化器等を用いてもよい。主に、ガス供給管251、MFC253、バルブ275、タンク259、圧力センサ301、バルブ254により、第1処理ガス供給系250（原料ガス供給系ともいう）が構成される。第1処理ガス源252を第1処理ガス供給系250に含めてもよい。

[0031] ガス供給管251のうち、圧力センサ301とバルブ254との間には、タンク259内のガスを、処理室201へ供給しないで、処理室201外へ排出するためのガス排気管302が接続されている。ガス排気管302には、バルブ303が設けられている。主に、ガス排気管302、バルブ303により、第1処理ガス排気系（原料ガス排気系ともいう）が構成される。第1処理ガス排気系を第1処理ガス供給系250に含めてもよい。

[0032] ガス供給管251のうち、バルブ275とタンク259との間には、ガス供給管255が接続される。ガス供給管255には、上流方向から順に、不活性ガス源256、MFC257、及びバルブ258が設けられている。不活性ガス源256からは不活性ガスが供給される。主に、ガス供給管255、MFC257、バルブ258により、第1不活性ガス供給系が構成される。不活性ガス源256から供給される不活性ガスは、基板処理工程では、反応管210内に留まったガスをパージするパージガスとして作用する。不活

性ガス源 256 を第 1 不活性ガス供給系に含めてもよい。第 1 不活性ガス供給系を第 1 処理ガス供給系 250 に含めてもよい。

[0033] 図 2 (B) に記載のように、ガス供給管 261 には、上流方向から順に、第 2 処理ガス源 262、MFC 263 及びバルブ 264 が設けられている。第 2 処理ガス源 262 は、処理ガスとしての第 2 処理ガスを供給するためのガス源である。第 2 処理ガスは、原料ガスと反応する反応ガスや改質ガスであり、処理ガスの一つである。主に、ガス供給管 261、MFC 263、バルブ 264 により、第 2 処理ガス供給系 260 (反応ガス供給系ともいう) が構成される。第 2 処理ガス源 262 を第 2 処理ガス供給系 260 に含めてもよい。

[0034] ガス供給管 261 のうち、バルブ 264 の下流側には、ガス供給管 265 が接続される。ガス供給管 265 には、上流方向から順に、不活性ガス源 266、MFC 267、及びバルブ 268 が設けられている。不活性ガス源 266 からは不活性ガスが供給される。主に、ガス供給管 265、MFC 267、バルブ 268 により、第 2 不活性ガス供給系が構成される。不活性ガス源 266 から供給される不活性ガスは、基板処理工程では、反応管 210 内に留まったガスをパージするパージガスとして作用する。不活性ガス源 266 を第 2 不活性ガス供給系に含めてもよい。第 2 不活性ガス供給系を第 2 処理ガス供給系 260 に含めてもよい。

[0035] 続いて図 2 (C) を用いて排気系を説明する。

反応管 210 の雰囲気気を排気する排気系 280 は、反応管 210 と連通する排気管 281 を有し、排気管接続部 242 を介して筐体 241 に接続される。

[0036] 図 2 (C) に記載のように、排気管 281 には、バルブ 282、圧力調整器 (圧力調整部) としての APC (Auto Pressure Controller) バルブ 283 を介して、真空排気装置としての真空ポンプ 284 が接続されており、反応管 210 内の圧力が所定の圧力 (真空度) となるよう真空排気し得るように構成されている。排気管 281、バルブ 282

、A P Cバルブ283をまとめて排気系280と呼ぶ。排気系280は処理室排気系とも呼ぶ。なお、排気系280に真空ポンプ284を含めてもよい。

[0037] 続いて図3を用いて制御部（制御手段）であるコントローラを説明する。基板処理装置10は、基板処理装置10の各部の動作を制御するコントローラ600を有している。

[0038] コントローラ600の概略を図3に示す。コントローラ600は、CPU（Central Processing Unit）601、RAM（Random Access Memory）602、記憶部としての記憶装置603、I/Oポート604を備えたコンピュータとして構成されている。RAM602、記憶装置603、I/Oポート604は、内部バス605を介して、CPU601とデータ交換可能なように構成されている。

[0039] 記憶装置603は、例えばフラッシュメモリ、HDD（Hard Disk Drive）等で構成されている。記憶装置603内には、基板処理装置10の動作を制御する制御プログラムや、基板処理の手順や条件など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。

[0040] なお、プロセスレシピは、後述する基板処理工程における各手順をコントローラ600に実行させ、所定の結果を得ることが出来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、この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。なお、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、プロセス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、その両方を含む場合がある。また、RAM602は、CPU601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。

[0041] I/Oポート604は、上述の上下方向駆動機構部400、ヒータ211、A P Cバルブ283、真空ポンプ284、M F C 253, 257, 263, 267、バルブ254, 258, 264, 268, 275, 282, 30

3、圧力センサ301、回転駆動機構430等に接続されている。

[0042] CPU601は、記憶装置603からの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681からの操作コマンドの入力等に応じて記憶装置603からプロセスレシピを読み出すように構成されている。そして、CPU601は、読み出されたプロセスレシピの内容に沿うように、上下方向駆動機構部400による基板支持具300の昇降動作、ヒータ211による加熱動作、APCバルブ283の開閉動作、真空ポンプ284の起動及び停止、MFC253、257、263、267による各種ガスの流量調整動作、バルブ254、258、264、268、275、282、303の開閉動作、圧力センサ301によるタンク259内の圧力測定動作、回転駆動機構430による基板支持具300の回転及び回転速度調節動作等を制御するように構成されている。MFC253、257、263、267、バルブ254、258、264、268、275、282、303、APCバルブ283及び真空ポンプ284は、処理室201内へのガスの供給及び排気を制御することが可能なように構成されるガス制御部として用いることができる。

[0043] コントローラ600は、上述のプログラムを格納した外部記憶装置（例えば、ハードディスク等の磁気ディスク、DVD等の光ディスク、MOなどの光磁気ディスク、USBメモリ等の半導体メモリ）682を用いてコンピュータにプログラムをインストールすること等により、本態様に係るコントローラ600を構成することができる。なお、コンピュータにプログラムを供給するための手段は、外部記憶装置682を介して供給する場合に限らない。例えば、インターネットや専用回線等の通信手段を用い、外部記憶装置682を介さずにプログラムを供給するようにしても良い。なお、記憶装置603や外部記憶装置682は、プログラムを記録したコンピュータ読み取り可能な記録媒体として構成される。以下、これらを総称して、単に記録媒体ともいう。なお、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603単体のみを含む場合、外部記憶装置682単体のみを含む場

合、または、その両方を含む場合がある。

[0044] (2) 基板処理工程

次に、半導体装置（デバイス）の製造工程の一工程として、上述した構成の基板処理装置 10 を用いて基板 S 上に薄膜を形成する工程について、図 4 ～図 8 を用いて説明する。なお、以下の説明において、基板処理装置 10 を構成する各部の動作はコントローラ 600 により制御される。

[0045] ここでは、第 1 処理ガスと第 2 処理ガスを用いて、基板 S の、トレンチやホール等の凹部に膜を形成する成膜処理について説明する。

[0046] 本明細書において用いる「基板」という用語は、基板そのものを意味する場合や、基板とその表面上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。本明細書において用いる「基板の表面」という言葉は、基板そのものの表面を意味する場合や、基板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「基板上に所定の層を形成する」と記載した場合は、基板そのものの表面上に所定の層を直接形成することを意味する場合や、基板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「ウエハ」という言葉を用いた場合も、「基板」という言葉を用いた場合と同義である。

[0047] (基板搬入工程 S1)

複数の基板 S が移載室 217 にて基板支持具 300 に装填（ウエハチャージ）される。そして、基板 S を支持した基板支持具 300 が、上下方向駆動機構部 400 により上昇され基板 S が反応管 210 内に搬入（ボートロード）され、反応管 210 の下端は、リング 446 を介してベースフランジ 401 により封止される。このとき、基板 S の表面が区画板 226、区画板 232 の高さとしろうよう、位置決めされる。

[0048] (圧力・温度調整工程 S2)

反応管 210 内が所望の圧力となるように、真空ポンプ 284 によって真空排気される（圧力調整）。また、処理室 201 内が所望の温度となるように、ヒータ 211 によって加熱される（温度調整）。また、回転駆動機構 4

30による基板Sの回転が開始される。これらの各種動作は、少なくとも基板Sに対する処理が完了するまでの間は、継続して行われる。

[0049] (膜処理工程S4)

続いて、次の第1処理ガス供給工程S41、パージガス供給工程S42、第2処理ガス供給工程S43及びパージガス供給工程S44が所定回数(n回、nは1又は2以上の整数)実施されることで膜処理工程S4が行われる。

[0050] [第1処理ガス供給工程S41]

続いて、内部に基板Sが配される処理室201に対して、第1処理ガスをフラッシュ供給する。ここで、フラッシュ供給とは、短時間で大流量のガスを反応管210内に供給することをいう。

[0051] 次の貯留工程S411と供給工程S412とが所定回数(p回、pは1又は2以上の整数)実施されることで第1処理ガス供給工程S41が行われる。図7は、第1処理ガス供給工程S41の詳細を示すフロー図であり、図8は、第1処理ガス供給工程S41を説明するためのイメージ図である。図8では、タンク259内の灰色の四角形の高さによって、タンク259内に貯留されている第1処理ガスの量を模式的に表している。また、図8は、左側から順に、貯留工程S411の開始時、貯留工程S411の終了時及び供給工程S411の開始時、供給工程S411の終了時及び貯留工程S411の開始時、貯留工程S411の終了時及び供給工程S411の開始時、において、タンク259内に貯留されている第1処理ガスの量を示している。以下、図8に示されているように、第1処理ガス供給工程S41の開始時に、タンク259内に所定の量X以上の第1処理ガスが貯留されている場合を例にして説明する。

[0052] <貯留工程S411>

本ステップでは、バルブ254、258、303、264、268が閉じられた状態でバルブ275が開かれ、所定時間が経過した時点でバルブ275が閉じられる。このとき、MFC253で流量調整された第1処理ガスが

、所定の量 $\times$ 以上に第1処理ガスが貯留されたタンク259内に充填され、所定時間が経過した時点でバルブ275が閉じられる。

[0053] このとき、タンク259内の第1処理ガスの残量に応じて、タンク259に供給される第1処理ガスの流量及び／又はタンク259に第1処理ガスの供給を継続する時間が制御される。つまり、第1処理ガス供給工程S41の各サイクルにおいて本ステップにおけるタンク259内に貯留させる第1処理ガスの量を変化させることができる。タンク259に供給される第1処理ガスの流量（以下、貯留流量とする）及び／又はタンク259への第1処理ガスの供給を継続する時間（以下、貯留時間とする）を変化させることで、本ステップにおいてタンク259に貯留される第1処理ガスの量を調整することができる。これにより、後述する供給工程S412終了時におけるタンク259内の第1処理ガスの残量がサイクル間でばらつく場合にも、供給工程S412開始時においてタンク259内に貯留される第1処理ガスの量をサイクル間で一定に保つことができる。

[0054] なお、本ステップにおいて、貯留流量又は貯留時間のうちいずれか一方を複数のサイクル間で一定にし、他方を複数のサイクルのうち少なくとも1回変化させるようにしてもよい。すなわち、供給工程S412終了時におけるタンク259内の第1処理ガスの残量に応じて、MFC253により貯留流量を制御するようにしてもよいし、バルブ275の開閉によって貯留時間を制御するようにしてもよいし、MFC253による貯留流量の制御とバルブ275の開閉による貯留時間の制御の両方を制御してもよい。貯留流量を複数のサイクル間で一定にし、貯留時間を複数のサイクルのうち少なくとも1回変化させることで、タンク259内が高い圧力になる場合においてもタンク259内に貯留される第1処理ガスの量を制御しやすくなる。貯留時間を複数のサイクル間で一定にし、貯留流量を複数のサイクルのうち少なくとも1回変化させることで、貯留時間の変化に伴うロット間の処理のばらつきを低減できる。

[0055] <供給工程S412>

タンク 259 内に貯留された第 1 処理ガスが、基板 S にフラッシュ供給される。すなわち、バルブ 258, 275, 303, 264, 268 が閉じられた状態でバルブ 254 が開かれ、所定時間が経過した時点で、バルブ 254 が閉じられる。このとき、タンク 259 内に貯留された高圧の第 1 処理ガスが、一気にガス供給管 251 を介して、基板 S に供給される。第 1 処理ガスは、ガス供給構造 212 から、上流側整流部 214 を介して、反応管 210 内に短時間で大量に供給された後、曝露されて、基板 S 上の空間、下流側整流部 215、ガス排気構造 213、排気管 281 を介して排気される。このときバルブ 282 と APC バルブ 283 は開放された状態である。

[0056] このとき、本ステップの終了時点（バルブ 254 が閉じられた時点）におけるタンク 259 内に残留する第 1 処理ガスの量が、所定の量 X 以上になるよう行われる。言い換えれば、本ステップでは、タンク 259 内の第 1 処理ガスの量が、所定の量 X 以上の目標量 Z となった時点でバルブ 254 が閉じられる。所定の量 X は、供給工程 S412 の開始時においてタンク 259 内に貯留されている第 1 処理ガスの量（所定量 Y）の 0.1～99% の任意の値に設定され得る。

[0057] ここで、所定の量 X を所定量 Y の 10～90% にした場合、ステップカバレッジと成膜レートとを好ましい値に制御しやすくなる。10% より小さい場合、低い流速の第 1 処理ガスが基板 S に供給されることで、ステップカバレッジが低下する場合がある。また、後述されるような、第 1 処理ガスが断熱膨張に近い仮定を経ることに伴う第 1 処理ガスの温度の低下が大きくなり、成膜レートが低下する場合がある。90% を超える場合、基板 S に供給される第 1 処理ガスの量が少なくなることで、成膜レートが低下する場合がある。ここで、所定の量 X を所定量 Y の 20～85% にすると、さらにステップカバレッジと成膜レートとを好ましい値に制御しやすくなるため、好ましい。また、所定の量 X を所定量 Y の 30～80% にすると、ステップカバレッジと成膜レートとを非常に制御しやすくなるため、さらに好ましい。

[0058] これにより、所望の条件で基板 S に第 1 処理ガスをフラッシュ供給するこ

とができる。具体的には、例えば処理室201内における流速、滞在時間、分解率、分圧のうち少なくとも1つ以上を所望の範囲内となるように、第1処理ガスをフラッシュ供給することができる。言い換えれば、本ステップの終了時点において、タンク259内に所定の量X以上の第1処理ガスが残留するようにすることにより、本ステップにおいて、例えば第1処理ガスの流速が所定の流速以上になるようにすることができ、処理室201内における第1処理ガスの滞在時間を短くすることができる。

[0059] ここで、本ステップの終了時点においてタンク259内に残留させる所定の量Xは、本ステップにおいて基板Sが存在する空間内である処理室201の第1処理ガスの分解率が所定の分解率以下になるように設定される。基板Sに供給される第1処理ガスの分解率が所定の分解率よりも高くなると、ステップカバレッジが低下しやすくなることがある。基板Sに供給される第1処理ガスの分解率が、所定の分解率より高くなることを抑制することにより、ステップカバレッジを向上させることができる。

[0060] つまり、所定の量Xは、本ステップにおける処理室201の第1処理ガスの流速が所定の流速以上になるように設定される。これにより、基板Sに供給される第1処理ガスの分解率を、所定の分解率よりも高くなることを抑制できる。これにより、ステップカバレッジを改善することができる。

[0061] また、第1処理ガスを供給する際に、第1処理ガスの基板表面への吸着を阻害する塩化水素(HCl)等の反応副生成物が生成される場合がある。このため、基板S表面の吸着サイトの少なくとも一部は、第1処理ガスに含まれる元素が吸着されるが、HCl等の反応副生成物は、基板S上の吸着サイトに吸着され、第1処理ガスに含まれる元素の吸着を阻害する。本ステップでは、処理室201の第1処理ガスの流速が所定の流速以上になるように設定して、第1処理ガスをフラッシュ供給することにより、供給開始から短時間で、第1処理ガスが基板Sに対して大量に供給されるため、反応副生成物の基板S上への吸着サイトを減少させ、第1処理ガスに含まれる元素の吸着量を増加させることができる。これにより、成膜レートを向上させつつ、ス

テップカバレッジ性能を向上させることができる。

[0062] ここで、第1処理ガスの流速とは、処理室201内に供給された第1処理ガスが単位時間あたりに移動する距離の指標となる数のことをいう。また、処理室201内において、第1処理ガスが単位時間あたりに移動する距離の指標となる数としてもよい。また、処理空間内において、ガスが指標単位時間あたりに移動する距離の指標となる数としてもよい。また、第1処理ガスの流速として、基板S上における第1処理ガスの平均流速としてもよい。その他、第1処理ガスの流速として、例えば、ノズル223等のガス供給部から処理室201内に第1処理ガスが吐出されてから、排気孔244に到達するまでの平均流速など、ある箇所（あるいは領域）から別の箇所（あるいは領域）に到達するまでの間における平均流速を用いても良い。また、処理空間内における第1処理ガスの平均流速を用いてもよい。また、処理室201内における第1処理ガスの平均流速を用いてもよい。また、基板S上、または処理空間内、処理室201内の、ある一点における第1処理ガスの流速を用いてもよい。

[0063] また、処理室201の第1処理ガスの流速が所定の流速以上になるように設定することにより、処理室201内の第1処理ガスの滞在時間が所定の滞在時間以下となる。すなわち、所定の量Xは、本ステップにおいて基板Sが存在する空間内の第1処理ガスの滞在時間が所定の滞在時間以下になるように設定されるようにしてもよい。これにより、基板Sに供給される第1処理ガスの分解率が、所定の分解率よりも高くなることを抑制できる。

[0064] 基板S上に形成された凹部（または、溝部、トレンチ、ホール）内に膜を形成する場合、ガスの反応性が高いほど、凹部の開口側への吸着しやすさが高くなり、凹部の深部側には吸着しづらくなる。そのため、分解することにより反応性が高い物質が生成するようなガスを、第1処理ガスとして凹部への成膜を行う場合、上述した第1処理ガスの滞在時間を所定の滞在時間以下となるように設定する、または／及び、第1処理ガスの流速を所定の流速以上になるように設定することにより、第1処理ガスの分解率が低くなり、ス

テップカバレッジを改善し、向上させることができる。

[0065] ここで、第1処理ガスの滞在時間とは、処理室201内に供給された第1処理ガスが、処理室201から排気されるまでの時間の指標となる数のことをいう。また、処理空間内に到達したガスが、処理空間外に離脱するまでの時間の指標となる数としてもよい。また、第1処理ガスの滞在時間を、基板S上に到達した第1処理ガスが、基板S上から離脱するまでの時間としてもよい。その他、第1処理ガスの滞在時間として、例えば、処理空間内に到達した第1処理ガスが、処理空間から脱出するまでの時間としても良い。また、ノズル223等のガス供給部から第1処理ガスが吐出されてから、排気孔244に到達するまでの時間を用いても良い。また、第1処理ガスの供給開始から供給終了までの時間であって、例えば、タンク259の下流側のバルブ254を開としてからバルブ254を閉とするまでの時間等、基板処理装置10の所定の構成要素が、所定の操作を開始もしくは終了した時刻から、所定の操作を開始もしくは終了した時刻までの時間を用いても良い。

[0066] また、所定の量Xは、本ステップにおいて基板Sが存在する空間内の第1処理ガスの分圧が所定の分圧以上になるように設定されるようにしてもよい。これにより、凹部の深部側にも第1処理ガスが到達しやすくなるため、ステップカバレッジを改善することができる。さらに、単位時間、単位面積当たりの基板S表面への第1処理ガスの衝突確率が高くなる。これにより、単位時間当たりに基板Sの表面に形成される膜厚である成膜レートを向上させることができる。

[0067] また、所定の量Xは、本ステップにおいてタンク259内の温度（例えば、タンク259自体の温度、もしくはタンク259内の第1処理ガスの温度）が所定の温度以上になるように設定されてもよい。これにより、成膜レートを向上させることができる。

[0068] タンク259内に充填されている第1処理ガスをタンク259から処理室201に供給すると、タンク259内の第1処理ガスが短時間で膨張することになる。このとき、タンク259内の第1処理ガスは断熱膨張に近い過程

を経ているため、タンク 259 から放出された第 1 処理ガスの温度が低下し、これに伴ってタンク 259、基板 S 及び処理室 201 内の温度も低下する。また、これらの温度低下によって、基板と、第 1 処理ガス及び／又は第 2 処理ガスと、の反応が進みにくくなる（第 1 処理ガス及び／又は第 2 処理ガスの反応性が低下する）ため、成膜レートが低下することがある。

[0069] 本ステップにおいてタンク 259 の温度、もしくはタンク 259 内の第 1 処理ガスの温度が所定の温度以上になるように、所定の量 X を設定する場合を考える。この場合、第 1 処理ガスの温度の低下を小さくして、第 1 処理ガス及び／又は第 2 処理ガスの反応性の低下を抑制することができる。よって、成膜レートを向上させることができる。

[0070] また、所定の量 X が、本ステップにおいてタンク 259 内に存在する第 1 処理ガスが液化又は固化しないように設定されるようにしてもよい。これにより、パーティクルの発生を抑制できる。

[0071] タンク 259 内に充填されている第 1 処理ガスをタンク 259 から処理室 201 に供給すると、第 1 処理ガスは断熱膨張に近い過程を経て基板 S に供給されることにより、第 1 処理ガスやタンク 259 の温度が低下する。また、これと同時に、タンク 259 内の圧力も低下する。これらにより、タンク 259 内が、第 1 処理ガスが液化又は固化するような温度及び圧力になる場合がある。そして、第 1 処理ガスが液化又は固化したものはパーティクル発生の原因となり得る。

[0072] 本ステップにおいてタンク 259 内に存在する第 1 処理ガスが液化又は固化しないように、所定の量 X を設定する場合、第 1 処理ガスの断熱膨張に伴う温度低下を小さくすることができる。このため、第 1 処理ガスの液化又は固化を発生しにくくすることができる。よって、パーティクルの発生を抑制できる。

[0073] すなわち、供給工程 S412 の開示時点から終了時点までの間にタンク 259 内の第 1 処理ガスが液化又は固化しないように、供給工程 S412 終了時点におけるタンク 259 内の第 1 処理ガスの量を設定することができる。

これにより、例えば、圧力及び／又は温度の低下によって液化又は固化しやすい原料ガスをフラッシュ供給する場合であっても、タンク 259 内で原料ガスが液化又は固化してパーティクルとなることを抑制することができる。言い換えると、本開示の技術は、常温常圧において液体又は固体の物質を気化させて得られる処理ガスをフラッシュ供給する場合においても、好適に適用することができる。

[0074] なお、本ステップにおいて、バルブ 258 が開かれ、ガス供給管 255 を介してガス供給管 251 内に、不活性ガスが供給されるようにしてもよい。また、ガス供給管 261 内への第 1 処理ガスの侵入を防止するために、バルブ 268、264 が開かれ、ガス供給管 261 内に不活性ガスが供給されるようにしてもよい。

[0075] <所定回数実施 S413>

上述した貯留工程 S411 と供給工程 S412 とを行うサイクルを所定回数（ p 回、 p は 1 又は 2 以上の整数）行う。これにより、所望の厚さの第 1 層を形成することができる。

[0076] また、フラッシュ供給において、タンク 259 内に貯留されている第 1 処理ガスは、断熱膨張に近い過程で膨張しつつ処理室 201 に供給されている。このため、フラッシュ供給を行うことで第 1 処理ガスの温度とタンク 259 を含む第 1 処理ガス供給系 250 の温度とは低下する。ここで、本開示の技術は、フラッシュ供給終了時におけるタンク 259 内の第 1 処理ガスの量によってタンク 259 内の圧力低下の大きさを制御することができる。従って、本開示の技術は、フラッシュ供給に伴う第 1 処理ガスの断熱膨張によるタンク 259 内温度の低下の大きさを制御することができる。

[0077] なお、タンク 259 内の第 1 処理ガスの量は、タンク 259 内の圧力によって制御するようにしてもよい。すなわち、圧力センサ 301 により測定される、タンク 259 内の圧力によりタンク 259 内の第 1 処理ガスの量を制御するようにしてもよい。ここでタンク 259 内の圧力の制御をタンク 259 内の第 1 処理ガスの量の制御とみなすことができる。従って、供給工程 S

４１２は、測定部（例えば圧力センサ３０１）によって、タンク２５９内のガスの量が所定の量以上であることが検知された後に終了されている、とみなすことができる。

[0078] つまり、供給工程Ｓ４１２の終了時点におけるタンク２５９内の圧力が所定の圧力以上になるように供給工程Ｓ４１２が行われるようにしてもよい。この場合であっても、基板Ｓに供給される第１処理ガスの分解率が、所定の分解率より高くなることを抑制することができる。ここで、所定の圧力は、供給工程Ｓ４１２の開始時におけるタンク２５９内の圧力の０．１～９９％の任意の値に設定され得る。

[0079] ここで、所定の圧力を、供給工程Ｓ４１２の終了時点におけるタンク２５９内の圧力の１０～９０％にした場合、ステップカバレッジと成膜レートとを好ましい値に制御しやすくなる。１０％より小さい場合、低い流速の第１処理ガスが基板Ｓに供給されることで、ステップカバレッジが低下する場合がある。また、後述されるような、第１処理ガスが断熱膨張に近い仮定を経ることに伴う第１処理ガスの温度の低下が大きくなり、成膜レートが低下する場合がある。９０％を超える場合、基板Ｓに供給される第１処理ガスの量が少なくなることで、成膜レートが低下する場合がある。ここで、所定の圧力を、供給工程Ｓ４１２の終了時点におけるタンク２５９内の圧力の２０～８５％にすると、さらにステップカバレッジと成膜レートとを好ましい値に制御しやすくなるため、好ましい。また、所定の圧力を、供給工程Ｓ４１２の終了時点におけるタンク２５９内の圧力の３０～８０％にすると、ステップカバレッジと成膜レートとを非常に制御しやすくなるため、さらに好ましい。

[0080] [ページガス供給工程Ｓ４２]

本ステップでは、内部に基板Ｓが配される処理室２０１に対して、ページガスが供給される。すなわち、基板Ｓ上に第１層が形成された後、バルブ２７５，３０３，２６４が閉じられた状態でバルブ２５４，２５８，２６８が開かれて、ガス供給管２５５，２６５を介してガス供給管２５１，２６１内

に、パージガスとしての不活性ガスが供給されると共に、排気管 281 のバルブ 282、APCバルブ 283 は開かれたままとして、真空ポンプ 284 により処理室 201 内が真空排気され、処理室 201 内がパージされる。

[0081] [第2処理ガス供給工程 S43]

本ステップでは、バルブ 254, 258, 275, 303, 268 が閉じられた状態でバルブ 264 が開かれ、所定時間が経過した時点でバルブ 264 が閉じられる。このとき、MFC 263 により流量調整された第2処理ガスが、ガス供給管 261 を介して、基板 S に供給される。第2処理ガスは、ガス供給構造 212 から、上流側整流部 214 を介して、反応管 210 内に供給された後、曝露されて、基板 S 上の空間、下流側整流部 215、ガス排気構造 213、排気管 281 を介して排気される。このときバルブ 282 と APCバルブ 283 は開放された状態である。ここでは、バルブ 268 を開き、ガス供給管 265 を介してガス供給管 261 内に不活性ガスを流してもよい。また、ガス供給管 251 内への第2処理ガスの侵入を防止するために、バルブ 258, 254 を開き、ガス供給管 251 内に不活性ガスを流してもよい。これにより、基板 S 上の第1層を第2層に改質することができる。

[0082] [パージガス供給工程 S44]

本ステップでは、内部に基板 S が配される処理室 201 に対して、上述したパージガス供給工程 S42 と同様の処理手順によりパージガスが供給される。すなわち、基板 S 上の第1層が第2層へと改質された後、バルブ 275, 303, 264 が閉じられた状態でバルブ 254, 258, 268 が開かれて、ガス供給管 255、265 を介してガス供給管 251、261 内に、パージガスとしての不活性ガスが供給されると共に、排気管 281 のバルブ 282、APCバルブ 283 は開かれたままとして、真空ポンプ 284 により処理室 201 内が真空排気され、処理室 201 内がパージされる。

[0083] [所定回数実施 S45]

上述した第1処理ガス供給工程 S41 と、パージガス供給工程 S42 と、第2処理ガス供給工程 S43 と、パージガス供給工程 S43 とを行うサイク

ルを所定回数（ n 回、 n は1又は2以上の整数）行う。これにより、凹部を有する基板S上に、第1処理ガス由来の元素と、第2処理ガス由来の元素と、を含む所定の厚さの膜が形成される。このようにして、凹部を有する基板S上に、ステップカバレッジ性能が改善され、成膜レートが向上された膜を形成することができる。

[0084] （大気圧復帰工程S5）

基板S上の膜処理が終了した後、不活性ガスが処理室201内へ供給され排気管281から排気される。不活性ガスはパージガスとして作用し、これにより、処理室201内が不活性ガスでパージされ、処理室201内に残留するガスや反応副生成物が処理室201から除去される。その後、処理室201内の雰囲気 gas が不活性ガスに置換され、処理室201内の圧力が常圧に復帰される（大気圧復帰）。

[0085] （基板搬出工程S6）

上下方向駆動機構部400によりベースフランジ401が下降され、反応管210の下端が開口される。そして、処理済みの基板Sが、基板支持具300に支持された状態で移載室217に搬出（ボートアンロード）される。処理済みの基板Sは、移載室217にて基板支持具300より取出される（ウエハディスチャージ）。

[0086] （3）事前評価工程

次に、上述した基板処理工程を行う前に行う事前評価工程について説明する。

[0087] 事前評価工程では、第1処理ガス供給工程S41の供給工程S412の開始時点からタンク259内の第1処理ガスの量が所定の量Xになる時点までの時間を、所定の方法を用いて取得する。そして、上述した基板処理工程では本工程により取得されたデータを用いる。所定の方法として、例えば、事前に行われる基板処理や実験におけるデータの取得、及びそれらのデータを基にした予測や、数値流体力学（CFD：Computational Fluid Dynamics）による解析を含む数値計算、機械学習（Ma

chine Learning) やディープラーニング等が用いられる。

[0088] そして、圧力センサ301により測定されたタンク259内の圧力によって、現在のタンク259内の第1処理ガスの量を把握する。供給工程S412は、供給工程S412の開始時点から事前評価工程により取得された時間が経過するより前の時点、又は事前評価工程により取得された時間が経過した時点で終了するようにバルブ275、MFC253等を制御する。これにより、タンク259内の第1処理ガスの量が所定の量X以上であることを圧力センサ301等により計測した時点でフラッシュ供給を終了する、といった制御を行う必要がなくなる。すなわち、コントローラ600による制御を簡略化することができる。

[0089] なお、上記ではガス流れの形成において水平と表現したが、全体的に水平方向にガスの主流が形成されればよく、複数の基板の均一処理に影響しない範囲であれば、垂直方向に拡散したガス流れであってもよい。また、上記では同程度、同等、等しい等の表現があるが、これらは実質同じものを含むこととは言うまでもない。

[0090] (他の実施形態)

以上に、本態様の実施形態を具体的に説明したが、それ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。

[0091] 上述した態様では、第1処理ガスとして原料ガスを用い、第2処理ガスとして反応ガスを用いる場合を用いて説明したが、これに限らず、第1処理ガスとして反応ガスを用い、第2処理ガスとして原料ガスを用いてもよい。また、第2処理ガス供給工程の後に第1処理ガス供給工程が行われるようにするサイクルを、所定回数行うようにしてもよい。すなわち、原料ガスをフラッシュ供給した後に反応ガスを供給してもよく、原料ガスを供給した後に反応ガスをフラッシュ供給してもよい。さらに、原料ガス及び反応ガスの両方をフラッシュ供給するようにしてもよい。すなわち、原料ガスをフラッシュ供給した後に、反応ガスをフラッシュ供給してもよい。これらの場合においても上述した効果が得られる。

- [0092] 原料ガスとしては、例えば、タングステン (W)、チタン (Ti)、モリブデン (Mo)、タンタル (Ta)、コバルト (Co)、イットリウム (Y)、ルテニウム (Ru)、ハフニウム (Hf)、ジルコニウム (Zr)、アルミニウム (Al)、シリコン (Si) 等の所定元素を含む所定元素含有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。原料ガスとして、これらのガスをプラズマ等によって励起させたガスを用いてもよい。
- [0093] 所定元素含有ガスとしては、例えば、所定元素とハロゲン元素を含むハロゲン系所定元素含有ガスを用いることができる。ハロゲン系所定元素含有ガスとしては、例えば、ヘキサクロロタングステン (WCl_6)、ヘキサフルオロタングステン (WF_6)、チタニウムテトラクロライド ($TiCl_4$)、チタニウムテトラフルオライド (TiF_4)、モリブデンペンタクロライド ($MoCl_5$)、モリブデンペンタフルオライド (MoF_5)、二塩化二酸化モリブデン (MoO_2Cl_2)、四塩化酸化モリブデン ($MoOCl_4$)、五塩化タンタル ($TaCl_5$)、五フッ化タンタル (TaF_5)、二フッ化コバルト (CoF_2)、二塩化コバルト ($CoCl_2$)、三フッ化イットリウム (YF_3)、三塩化イットリウム (YCl_3)、ルテニウムトリクロライド ($RuCl_3$)、ルテニウムトリフルオライド (RuF_3)、ハフニウムテトラクロライド ($HfCl_4$)、ハフニウムテトラフルオライド (HfF_4)、ジルコニウムテトラクロライド ($ZrCl_4$)、ジルコニウムテトラフルオライド (ZrF_4)、アルミニウムトリクロライド ($AlCl_3$)、アルミニウムトリフルオライド (AlF_3)、ジクロロシラン (SiH_2Cl_2)、1, 2-ジクロロジシラン ($Si_2H_4Cl_2$)、1, 1, 1-トリクロロジシラン ($Si_2H_3Cl_3$)、1, 1, 2-トリクロロジシラン ($Si_2H_3Cl_3$)、ペンタクロロジシラン (Si_2HCl_5)、ヘキサクロロジシラン (Si_2Cl_6)、テトラフルオロシラン (SiF_4) 等を含むガスを用いることができる。また、所定元素含有ガスとしては、例えば、モノシラン (SiH_4)、ジシラン (Si_2H_6)、トリシラン (Si_3H_8)、テトラシラン (Si_4H_{10}) 等を含むガスを用

いることができる。所定元素含有ガスとしては、これらのうち1以上を用いることができる。

[0094] また、所定元素含有ガスとしては、例えば、所定元素と有機リガンドを有する有機系所定元素含有ガスを用いることができる。有機系所定元素含有ガスとしては、例えば、ヘキサジメチルアミノジタングステン ($W_2 [N(CH_3)_2]_6$)、ビスターシャリブチルイミドビスジメチルアミドタングステン ($(t-C_4H_9NH)_2W = (Nt-C_4H_9)_2$)、テトラキスエチルメチルアミノチタニウム ($Ti [N(C_2H_5)(CH_3)]_4$)、ビスエチルシクロペンタジエニルルテニウム ($Ru(EtCp)_2$)、ビスシクロペンタジエニルルテニウム ($Ru(Cp)_2$)、テトラキスエチルメチルアミノハフニウム ($Hf [N(Me)Et]_4$)、テトラキスジエチルアミノハフニウム ($Hf [N(Et)_2]_4$)、テトラキスジメチルアミノハフニウム ($Hf [N(Me)_2]_4$)、トリスジメチルアミノシクロペンタジエニルハフニウム ($(Cp)Hf [N(Me)_2]_3$)、テトラキスエチルメチルアミノジルコニウム ($Zr [N(Me)Cp]_4$)、テトラキスジエチルアミノジルコニウム ($Zr [N(Et)_2]_4$)、テトラキスジメチルアミノジルコニウム ($Zr [N(Me)_2]_4$)、トリスジメチルアミノシクロペンタジエニルジルコニウム ($(Cp)Zr [N(Me)_2]_3$)、トリメチルアルミニウム ($Al(CH_3)_3$)、トリスジメチルアミノシラン ($Si [N(CH_3)_2]_3H$) 等を含むガスを用いることができる。所定元素含有ガスとしては、これらのうち1以上を用いることができる。

[0095] 反応ガスとしては、例えば、還元ガス、酸化ガス、窒化ガス、硫化ガス、セレン化ガス、テルル化ガス等を含む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。反応ガスとして、これらのガスをプラズマ等によって励起させたガスを用いてもよい。例えば、第1処理ガス及び第2処理ガスのうち一方を所定元素含有ガスとして、もう一方を還元ガスとした場合、単体の所定元素から構成される膜を基板S上に形成することができる。また、例えば、第1処理ガス及び第2処理ガスのう

ち一方を所定元素含有ガスとして、もう一方を酸化ガス、窒化ガス、硫化ガス、セレン化ガス、テルル化ガスのうちいずれか1つとした場合、所定元素の酸化膜、所定元素の窒化膜、所定元素の硫化膜、所定元素のセレン化膜、所定元素のテルル化膜をウエハ上に形成することができる。

[0096] 還元ガスとしては、例えば、水素 (H_2) ガス、重水素 (D_2) ガス、ボラン (BH_3) ガス、ジボラン (B_2H_6) ガス、一酸化炭素 (CO) ガス、アンモニア (NH_3) ガス、モノシラン (SiH_4) ガス、ジシラン (Si_2H_6) ガス、トリシラン (Si_3H_8) ガス、モノゲルマン (GeH_4) ガス、ジゲルマン (Ge_2H_6) 等を含むガスのうち1以上を用いることができる。また、反応ガスとしては、例えば、酸素 (O) 含有ガスの酸化ガスを用いることができる。酸化ガスとしては、例えば、酸素 (O_2)、オゾン (O_3)、水蒸気 (H_2O)、 H_2 及び O_2 の混合ガス、過酸化水素 (H_2O_2)、亜酸化窒素 (N_2O)、等を含むガスのうち1以上を用いることができる。窒化ガスとしては、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のうち1以上を用いることができる。硫化ガスとしては、例えば、スルファン (H_2S)、ジスルファン (H_2S_2)、ジアンモニウムスルフィド ($(NH_4)_2S$)、ジメチルスルフィド ($(CH_3)_2S$) 等を含むガスを用いることができる。硫化ガスとしては、これらのうち1以上を用いることができる。セレン化ガスとしては、例えば、セラン (H_2Se)、ジセラン (H_2Se_2)、ジメチルセレン ($(CH_3)_2Se$) 等を含むガスを用いることができる。セレン化ガスとしては、これらのうち1以上を用いることができる。テルル化ガスとしては、例えば、テラン (H_2Te)、ジテラン (H_2Te_2)、ジメチルセレン ($(CH_3)_2Te$) 等を含むガスを用いることができる。テルル化ガスとしては、これらのうち1以上を用いることができる。

[0097] 不活性ガスとしては、例えば、ヘリウム (He)、アルゴン (Ar)、ネオン (Ne) ガス、キセノン (Xe) ガス等の希ガスや、窒素 (N_2) 等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。

[0098] また、上述した態様では、1つのタンク259を用いて第1処理ガスをフラッシュ供給する場合を用いて説明したが、本態様がこれに限定されることはない。すなわち、複数のタンクを用いて第1処理ガスを基板Sにフラッシュ供給するようにしてもよい。複数のタンクを用いることにより、一方のタンクへの第1処理ガスの貯留を行っている間に、他方のタンクから第1処理ガスのフラッシュ供給を行うことができる。本態様においても、上述の態様と同様の効果が得られる。また、本態様においては、さらにスループットを向上させることができる。また、複数のタンクから少なくとも一部同時に第1処理ガスを基板Sにフラッシュ供給するようにしてもよい。本態様においても、上述の態様と同様の効果が得られる。また、本態様においては、さらに処理室201内における第1処理ガスの流速を大きくし易くすることができる。これにより、ステップカバレッジを改善し易くなる。

[0099] また、2つ以上のタンク259を用いて第1処理ガスをフラッシュ供給する場合に、2つ以上のタンク259からの基板Sへの第1処理ガスのフラッシュ供給が、少なくとも一部同時に行われるようにするようによい。本態様においても、上述の態様と同様の効果が得られる。また、本態様においては、さらにタンク1つ当たりから供給される第1処理ガスの量を少なくすることができる。これにより、所定の量Xを多く設定した場合であっても、十分な量の第1処理ガスを供給し易くなる。したがって、ステップカバレッジをさらに改善し易くなる。

[0100] また、上述した第1処理ガス供給系250において、タンク259を備えた場合を用いて説明したが、本態様がこれに限定されることはない。すなわち、第2処理ガス供給系260において、タンクを備え、第2処理ガスを、フラッシュ供給するようにしてもよい。また、第1処理ガス供給系250と第2処理ガス供給系260のそれぞれにおいて、タンクを備え、第1処理ガスと第2処理ガスを、それぞれフラッシュ供給するようにしてもよい。本態様においても、上述の態様と同様の効果が得られる。

[0101] また、上述の態様では、供給工程 S 4 1 2 の終了時点（バルブ 2 5 4 が閉じられた時点）におけるタンク 2 5 9 内に残留する第 1 処理ガスの量が、所定の量 X 以上になるよう行われる。しかし、本開示はこれに限定されない。例えば、供給工程 S 4 1 2 の終了時点（バルブ 2 5 4 が閉じられた時点）におけるタンク 2 5 9 内に残留する第 1 処理ガスを含むガスの量が、所定の量 X 以上になるよう行われてもよい。ここで、第 1 処理ガスを含むガスとして、例えば、第 1 処理ガスと、第 1 処理ガスとは異なるガス（例えば、不活性ガスとしての N 2 ガス）と、が混合された、第 1 処理ガス含有ガスを用いることができる。また、例えば、供給工程 S 4 1 2 の終了時点（バルブ 2 5 4 が閉じられた時点）におけるタンク 2 5 9 内に残留する第 1 処理ガスとは異なるガスの量が、所定の量 X 以上になるよう行われてもよい。これらの態様においても、上述の態様と同様の効果が得られる。

[0102] また、上述の態様では、基板処理装置が行う成膜処理において、基板 S 上に第 1 処理ガスと第 2 処理ガスとを用いて膜を形成する場合を例に挙げたが、本態様がこれに限定されることはない。すなわち、膜処理工程に用いる処理ガスとして他の種類のガスを用いて他の種類の薄膜を形成しても構わない。さらには、3 種類以上の処理ガスを用いる場合であっても、本態様を適用することが可能である。

[0103] また、上述の態様では、膜処理工程として成膜処理を例に挙げたが、本態様がこれに限定されることはない。すなわち、本態様は、上述の態様で例に挙げた成膜処理以外の成膜処理にも適用できる。

[0104] また、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、好適に適用することができる。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、好適に適用することができる。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。

[0105] 上述の態様や変形例は、適宜組み合わせて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の処理手順、処理条件と同様とすることができる。

符号の説明

[0106] S 基板
259 タンク（貯留部）

請求の範囲

- [請求項1] 処理ガスが貯留された貯留部から前記処理ガスを基板に供給する供給工程を有し、
前記供給工程では、前記供給工程の終了時点における前記貯留部内のガスの量を所定の量以上とする、
基板処理方法。
- [請求項2] 前記供給工程では、前記供給工程の終了時点における前記貯留部内の前記処理ガスを含むガスの量を所定の量以上とする、請求項1に記載の基板処理方法。
- [請求項3] 前記所定の量は、前記供給工程において前記基板が存在する空間内の前記処理ガスの分解率が所定の分解率以下になるように設定される、請求項1に記載の基板処理方法。
- [請求項4] 前記所定の量は、前記供給工程において前記基板が存在する空間内の前記処理ガスの流速が所定の流速以上になるように設定される、請求項1に記載の基板処理方法。
- [請求項5] 前記所定の量は、前記供給工程において前記基板が存在する空間内の前記処理ガスの滞在時間が所定の滞在時間以下になるように設定される、請求項1に記載の基板処理方法。
- [請求項6] 前記所定の量は、前記供給工程において前記基板が存在する空間内の前記処理ガスの分圧が所定の分圧以上になるように設定される、請求項1に記載の基板処理方法。
- [請求項7] 前記所定の量は、前記供給工程において前記貯留部の温度が所定の温度以上になるように設定される、請求項1に記載の基板処理方法。
- [請求項8] 前記所定の量は、前記供給工程において前記貯留部に存在する前記処理ガスが液化又は固化しないように設定される、請求項1に記載の基板処理方法。
- [請求項9] 前記供給工程では、複数の前記貯留部から前記処理ガスを前記基板に供給する、請求項1に記載の基板処理方法。

- [請求項10] 前記供給工程において、2つ以上の前記貯留部からの前記基板への前記処理ガスの供給が、少なくとも一部同時に行われる、請求項9に記載の基板処理方法。
- [請求項11] 前記貯留部内の前記処理ガスの量を前記貯留部内の圧力によって制御する、請求項1に記載の基板処理方法。
- [請求項12] 前記供給工程は、前記貯留部内のガスの量が前記所定の量以上であることが検知された後に終了される、請求項1に記載の基板処理方法。
- [請求項13] 前記供給工程の開始時点から前記貯留部内の前記処理ガスの量が所定の量になる時点までの時間を所定の方法を用いて把握する事前評価工程、をさらに有し、
前記供給工程は、前記供給工程の開始時点から前記時間が経過するより前の時点、又は前記時間が経過した時点で終了される、
請求項1に記載の基板処理方法。
- [請求項14] 前記処理ガスを前記貯留部に貯留する貯留工程をさらに有し、
前記貯留工程と前記供給工程とを行うサイクルを所定回数行う、
請求項1から13のいずれか1項に記載の基板処理方法。
- [請求項15] 前記貯留工程では、前記貯留部内の前記処理ガスの量に応じて、前記貯留部に供給される前記処理ガスの流量及び／又は前記貯留部に前記処理ガスの供給を継続する時間を、複数の前記サイクルのうち少なくとも1回変化させる、請求項14に記載の基板処理方法。
- [請求項16] 前記貯留工程では、前記貯留部に供給される前記処理ガスの流量を複数の前記サイクル間で一定にし、前記貯留部に前記処理ガスの供給を継続する時間を複数の前記サイクルのうち少なくとも1回変化させる、請求項15に記載の基板処理方法。
- [請求項17] 前記貯留工程では、前記貯留部に前記処理ガスの供給を継続する時間を複数の前記サイクル間で一定にし、前記貯留部に供給される前記処理ガスの流量を複数の前記サイクルのうち少なくとも1回変化させ

る、請求項 15 に記載の基板処理方法。

[請求項18] 処理ガスが貯留された貯留部から前記処理ガスを基板に供給する供給工程を有し、

前記供給工程では、前記供給工程の終了時点における前記貯留部内のガスの量を所定の量以上とする、

半導体装置の製造方法。

[請求項19] 内部に基板が配される処理室と、

内部に処理ガスを貯留する貯留部と、

前記貯留部内から前記基板への前記処理ガスの供給を制御可能に構成されるガス制御部と、

前記貯留部から前記処理ガスを基板に供給する供給処理を有し、

前記供給処理の終了時点における前記貯留部内のガスの量を所定の量以上とする処理、

が行われるように、前記ガス制御部を制御可能に構成される制御部と、

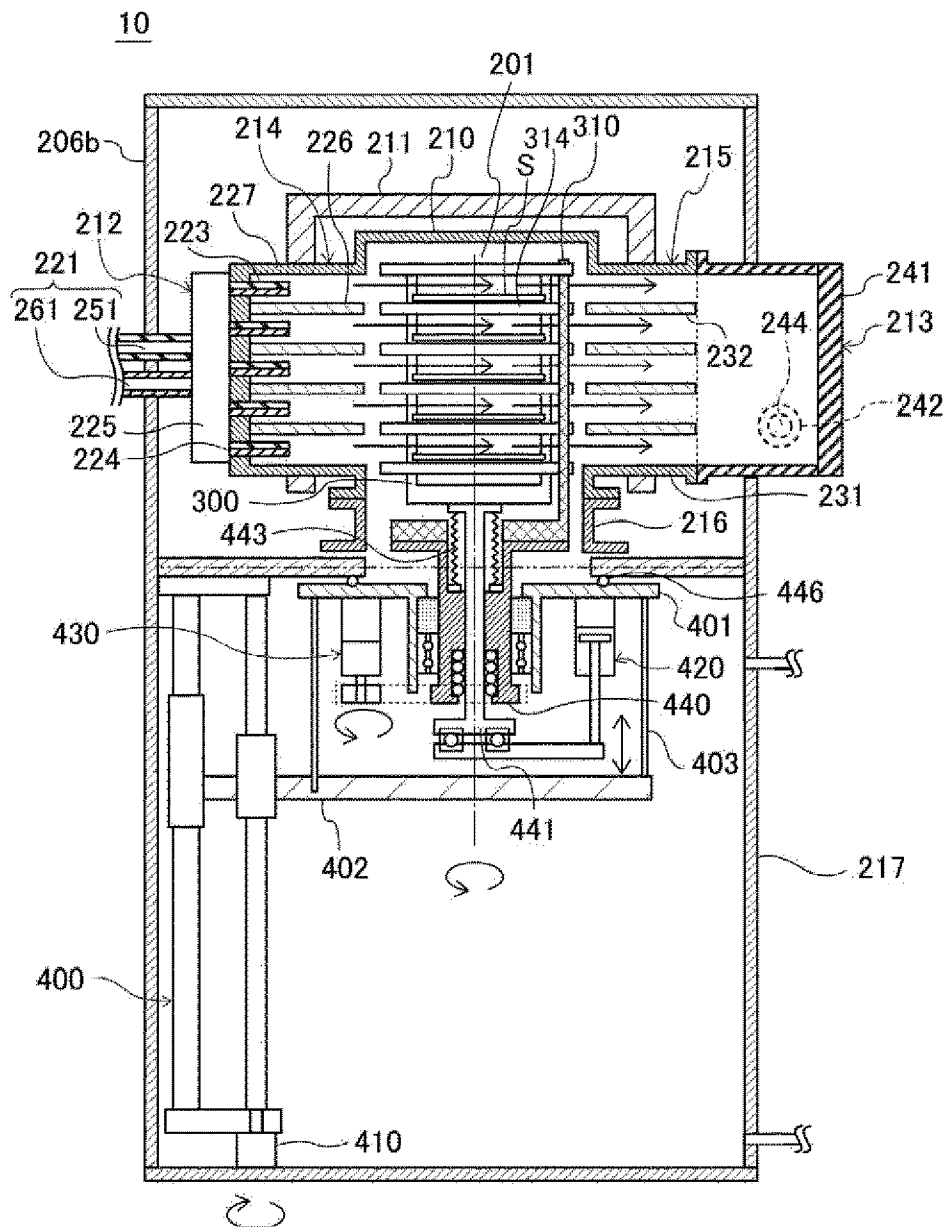
を有する基板処理装置。

[請求項20] 処理ガスが貯留された貯留部から前記処理ガスを基板に供給する供給手順を有し、

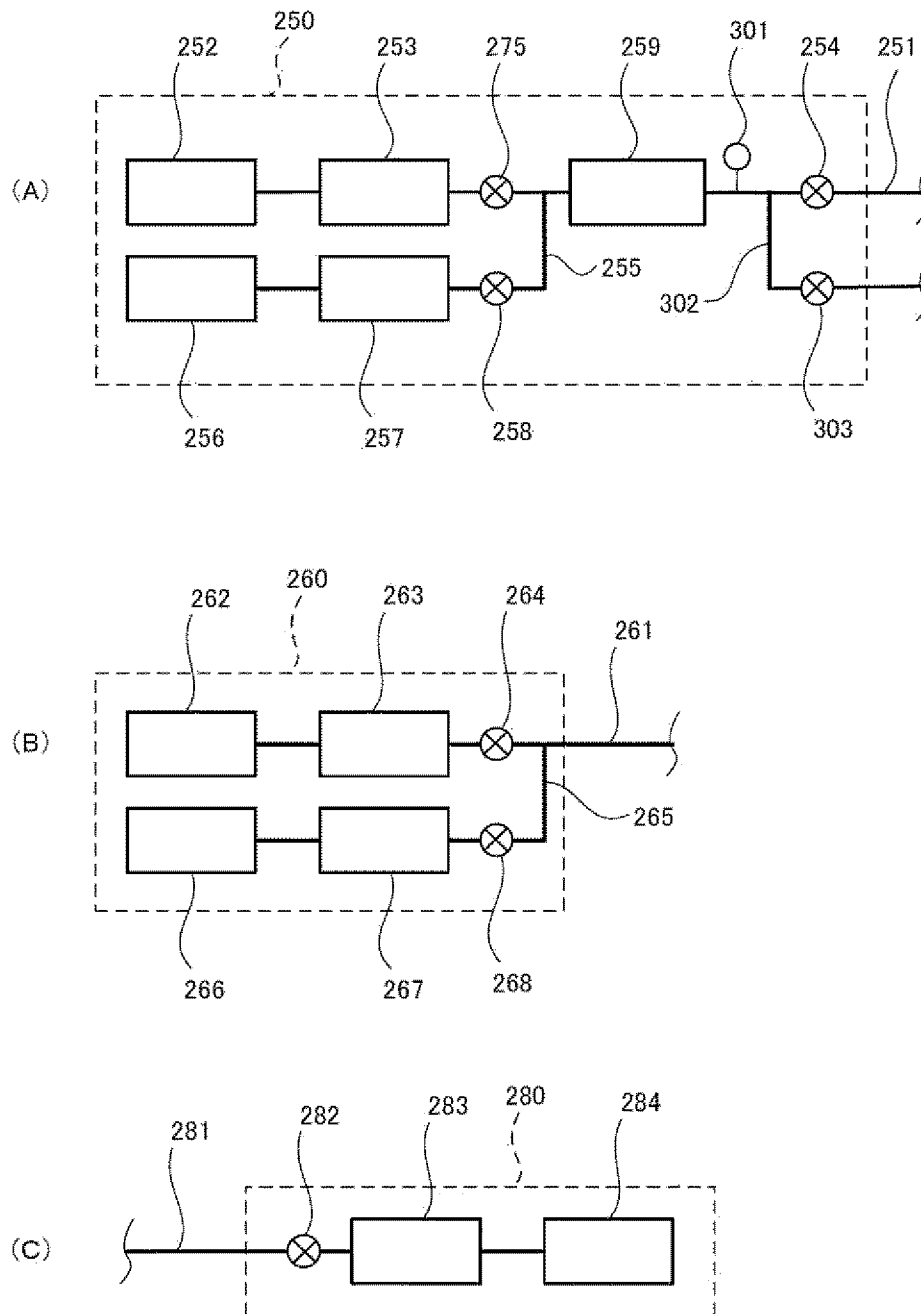
前記供給手順では、前記供給手順の終了時点における前記貯留部内のガスの量を所定の量以上とする手順を、

コンピュータによって基板処理装置に実行させるプログラム。

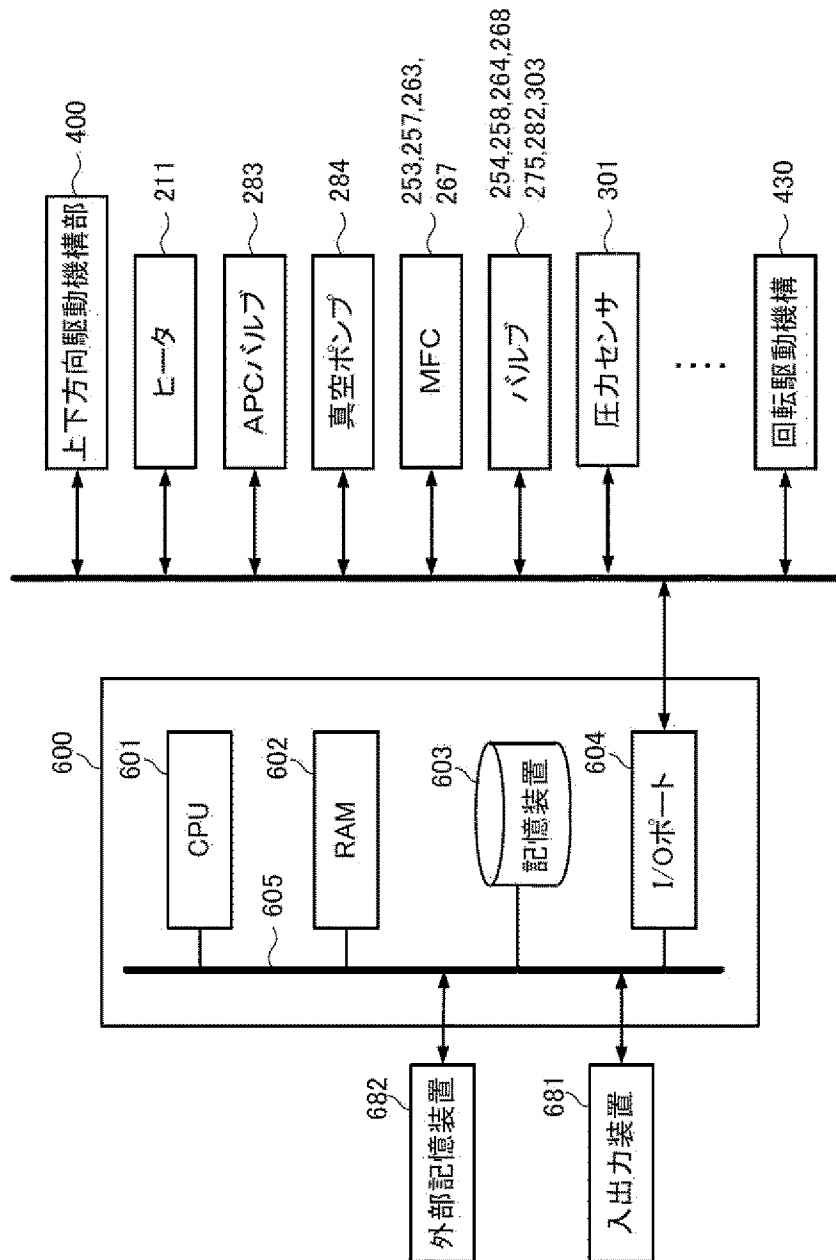
[図1]



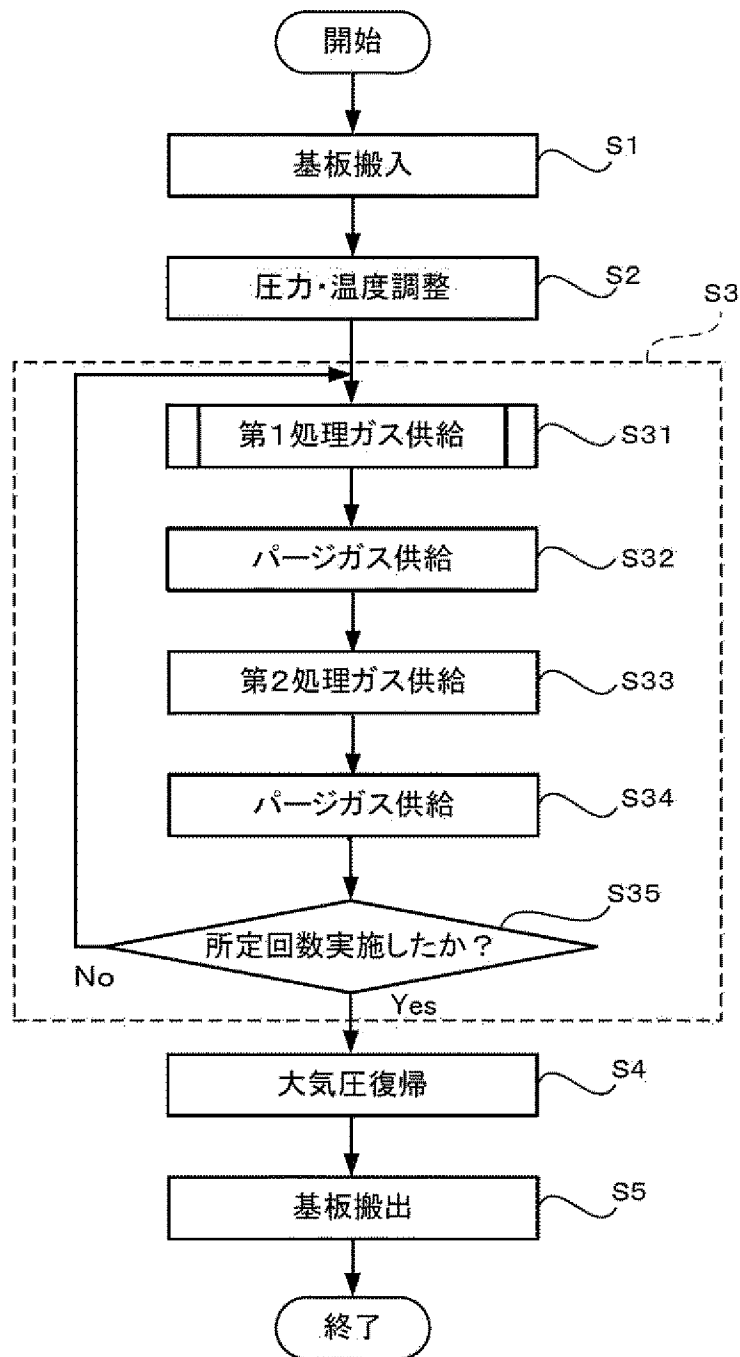
[図2]



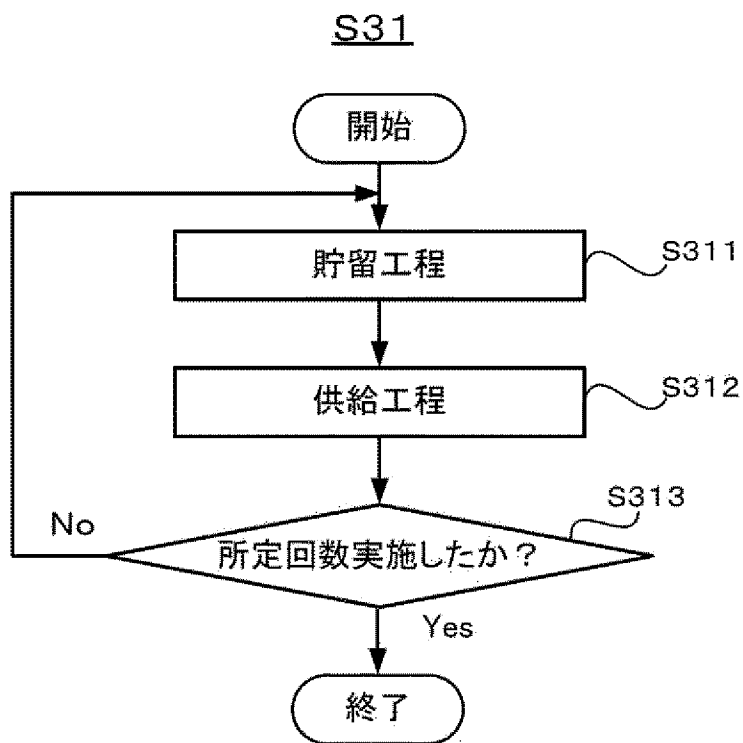
[図3]



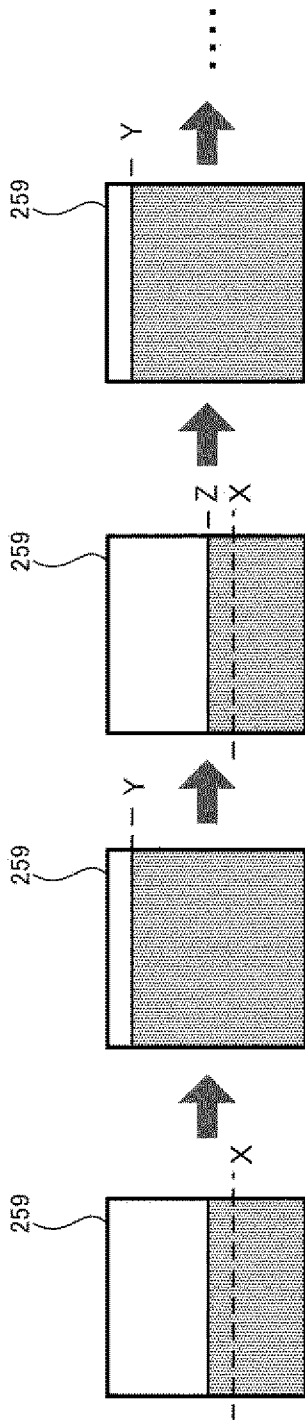
[図4]



[図5]



[図6]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2024/011186

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**H01L 21/31**(2006.01)i; **C23C 16/455**(2006.01)i; **H01L 21/316**(2006.01)i; **H01L 21/318**(2006.01)i

FI: H01L21/31 B; C23C16/455; H01L21/316 X; H01L21/318 B

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)

H01L21/31; C23C16/455; H01L21/316; H01L21/318

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 1971-2024
Registered utility model specifications of Japan 1996-2024
Published registered utility model applications of Japan 1994-2024

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	JP 2022-085236 A (KOKUSAI ELECTRIC CORP.) 08 June 2022 (2022-06-08) claims, paragraphs [0075]-[0096], fig. 1-5	1-20
X	JP 2014-198872 A (TOKYO ELECTRON LIMITED) 23 October 2014 (2014-10-23) paragraphs [0014]-[0065], fig. 1-10	1-20
A	WO 2022/196339 A1 (KOKUSAI ELECTRIC CORP.) 22 September 2022 (2022-09-22)	1-20
A	JP 2022-076382 A (TOKYO ELECTRON LIMITED) 19 May 2022 (2022-05-19)	1-20

☐ 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
“D” document cited by the applicant in the international application
“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

13 May 2024

Date of mailing of the international search report

28 May 2024

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
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2024/011186

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP	2022-085236	A	08 June 2022	US 2022/0170154 A1 claims, paragraphs [0099]- [0120], fig. 1-5 CN 114561630 A KR 10-2022-0074787 A TW 202231911 A	
JP	2014-198872	A	23 October 2014	US 2014/0295083 A1 paragraphs [0023]-[0077], fig. 1-10 CN 104073780 A KR 10-2014-0118784 A TW 201506191 A	
WO	2022/196339	A1	22 September 2022	US 2023/0411145 A1 CN 116762159 A KR 10-2023-0157318 A TW 202246571 A	
JP	2022-076382	A	19 May 2022	US 2022/0148890 A1 CN 114464551 A	

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; H01L 21/316(2006.01)i; H01L 21/318(2006.01)i
FI: H01L21/31 B; C23C16/455; H01L21/316 X; H01L21/318 B

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; H01L21/316; H01L21/318

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 - 2024年

日本国実用新案登録公報

1996 - 2024年

日本国登録実用新案公報

1994 - 2024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
X	JP 2022-085236 A（株式会社KOKUSAI ELECTRIC） 08.06.2022 （2022 - 06 - 08） 特許請求の範囲, 段落[0075]-[0096], 第1-5図	1-20
X	JP 2014-198872 A（東京エレクトロン株式会社） 23.10.2014（2014 - 10 - 23） 段落[0014]-[0065], 第1-10図	1-20
A	WO 2022/196339 A1（株式会社KOKUSAI ELECTRIC） 22.09.2022 （2022 - 09 - 22）	1-20
A	JP 2022-076382 A（東京エレクトロン株式会社） 19.05.2022（2022 - 05 - 19）	1-20

☐ 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、一般的技术水準を示すもの

“D” 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献

“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

13. 05. 2024

国際調査報告の発送日

28. 05. 2024

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）

桑原 清 50 9375

電話番号 03-3581-1101 内線 3514

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/JP2024/011186

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
JP	2022-085236	A	08.06.2022	US	2022/0170154	A1	
				特許請求の範囲, 段落			
				[0099]-[0120], 第1-5図			
				CN	114561630	A	
				KR	10-2022-0074787	A	
				TW	202231911	A	

JP	2014-198872	A	23.10.2014	US	2014/0295083	A1	
				段落[0023]-[0077], 第1-10			
				図			
				CN	104073780	A	
				KR	10-2014-0118784	A	
				TW	201506191	A	

WO	2022/196339	A1	22.09.2022	US	2023/0411145	A1	
				CN	116762159	A	
				KR	10-2023-0157318	A	
				TW	202246571	A	

JP	2022-076382	A	19.05.2022	US	2022/0148890	A1	
				CN	114464551	A	
