# 明　細　書

## 発明の名称 ：

# 基板処理方法、半導体装置の製造方法、基板処理装置およびプログラム

## 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、基板処理装置およびプログラムに適用して有効な技術である。

## 背景技術

[0002]　近年のＬＳＩ製造工程におけるデバイス形状の微細化や複雑化に伴い、より微細な加工技術が求められている（例えば、特許文献１および特許文献２参照）。

## 先行技術文献

## 特許文献

[0003] 特許文献1：特開２０１７－６９４０７号公報

特許文献2：特開２０１３－１９７３０７号公報

## 発明の概要

## 発明が解決しようとする課題

[0004]　本開示は、成膜において段差被覆性や埋め込み特性を向上させる技術を提供する。

[0005]　その他の課題と新規な特徴は、本明細書の記述および添付図面から明らかになるであろう。

## 課題を解決するための手段

[0006]　本開示のうち代表的な実施の形態によれば、

(a1)基板に対して第１改質ガスを供給して、前記基板の少なくとも一部を改質する工程と、

(a2)前記基板に対して第１元素を含む第１処理ガスを供給して、前記第１改質ガスにより改質されていない領域に優先的に第１元素を吸着させる工程

と、

(b1)前記基板に対して前記第１改質ガスと分解温度が異なる第２改質ガスを供給して、前記基板の少なくとも一部を改質する工程と、

(b2)前記基板に対して第２元素を含む第２処理ガスを前記基板に供給して、前記第２改質ガスにより改質されていない領域に優先的に前記第２元素を吸着させる工程と、

を有する、技術が提供される。

## 発明の効果

[0007] 本開示は、成膜において段差被覆性や埋め込み特性を向上できる。

## 図面の簡単な説明

[0008] [図1]図１は、実施形態に係る基板処理装置の縦断面図である。

[図2]図２は、図１の基板処理装置が有するコントローラの構成を示すブロック図である。

[図3]図３は、実施形態に係る第１の基板処理方法を示す図である。

[図4]図４は、実施形態に係る第２の基板処理方法を示す図である。

[図5]図５は、第２の基板処理方法に用いられるガス供給管系の構成を示す図である。

[図6]図６は、第１改質ガスを用いた場合の成膜を説明する図である。

[図7]図７（ａ）は、第１改質ガスの吸着箇所を示す図である。図７（ｂ）は、第２改質ガスの吸着箇所を示す図である。

[図8]図８（ａ）は、第１成膜ステップにおける第１改質ガスの吸着箇所を示す図である。図８（ｂ）は、第１成膜ステップにおいて形成される膜を示す図である。図８（ｃ）は、第２成膜ステップにおける第２改質ガスの吸着箇所を示す図である。図８（ｄ）は、第２成膜ステップにおいて形成される膜を示す図である。

## 発明を実施するための形態

[0009] 以下、実施形態について、図面を用いて説明する。ただし、以下の説明において、同一構成要素には同一符号を付し繰り返しの説明を省略することが

ある。なお、図面は説明をより明確にするため、実際の態様に比べ、模式的に表される場合があるが、あくまで一例であって、本開示の解釈を限定するものではない。また、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場合がある。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場合がある。

[0010] （１）基板処理装置の構成

図１は、本開示に係る基板処理装置の縦型処理炉の概略構成図であり、処理炉部分を縦断面図である。図１に示すように、処理炉２０２は加熱機構（温度調整部）としてのヒータ２０７を有する。ヒータ２０７は円筒形状であり、保持板に支持されることにより垂直に据え付けられている。ヒータ２０７は、ガスを熱で活性化（励起）させる活性化機構（励起部）としても機能する。

[0011] ヒータ２０７の内側には、ヒータ２０７と同心円状に反応管２０３が配設されている。反応管２０３は、例えば石英（$SiO_2$）または炭化シリコン（ＳｉＣ）等の耐熱性材料により構成され、上端が閉塞し下端が開口した円筒形状に形成されている。反応管２０３の下方には、反応管２０３と同心円状に、マニホールド２０９が配設されている。マニホールド２０９は、例えばステンレス（ＳＵＳ）等の金属材料により構成され、上端および下端が開口した円筒形状に形成されている。マニホールド２０９の上端部は、反応管２０３の下端部に係合しており、反応管２０３を支持するように構成されている。マニホールド２０９と反応管２０３との間には、シール部材としてのＯリング２２０ａが設けられている。反応管２０３はヒータ２０７と同様に垂直に据え付けられている。主に、反応管２０３とマニホールド２０９とにより処理容器（反応容器）が構成される。処理容器の筒中空部には処理室２０１が形成される。処理室２０１は、基板としてのウエハ２００を収容可能に構成されている。この処理室２０１内でウエハ２００に対する処理が行われ

る。

[0012] 処理室２０１内には、第１～第５供給部としてのノズル２４９ａ～２４９ｅが、マニホールド２０９の側壁を貫通するようにそれぞれ設けられている。図１には、ノズル２４９ａ～２４９ｃの３本のノズルが描かれており、ノズル２４９ｄ～２４９ｅの２本は、図面が複雑となるので、その図示が省略されている。ノズル２４９ａ～２４９ｅを第１～第５ノズルとも称する。ノズル２４９ａ～２４９ｅは、例えば石英またはＳｉＣ等の耐熱性材料により構成されている。ノズル２４９ａ～２４９ｅには、ガス供給管２３２ａ～２３２ｅがそれぞれ接続されている。ノズル２４９ａ～２４９ｅはそれぞれ異なるノズルである。

[0013] ガス供給管２３２ａ～２３２ｅには、ガス流の上流側から順に、流量制御器（流量制御部）であるマスフローコントローラ（ＭＦＣ）２４１ａ～２４１ｅおよび開閉弁であるバルブ２４３ａ～２４３ｅがそれぞれ設けられている。ガス供給管２３２ａ～２３２ｅのバルブ２４３ａ～２４３ｅよりも下流側には、ガス供給管２３２ｆ～２３２ｊがそれぞれ接続されている。ガス供給管ガス供給管２３２ｆ～２３２ｊには、ガス流の上流側から順に、ＭＦＣ２４１ｆ～２４１ｊおよびバルブ２４３ｆ～２４３ｊがそれぞれ設けられている。ガス供給管２３２ａ～２３２ｊは、例えば、ＳＵＳ等の金属材料により構成されている。

[0014] ノズル２４９ａ～２４９ｅは、反応管２０３の内壁とウエハ２００との間における平面視において円環状の空間に、反応管２０３の内壁の下部より上部に沿って、ウエハ２００の配列方向上方に向かって立ち上がるようにそれぞれ設けられている。すなわち、ノズル２４９ａ～２４９ｅは、ウエハ２００が配列されるウエハ配列領域の側方の、ウエハ配列領域を水平に取り囲む領域に、ウエハ配列領域に沿うようにそれぞれ設けられている。例えば、平面視において、ノズル２４９ｃは、処理室２０１内に搬入されるウエハ２００の中心を挟んで後述する排気口２３１ａと一直線上に対向するように配置されている。ノズル２４９ａ，２４９ｂとノズル２４９ｄ，２４９ｅは、ノ

ズル２４９ｃと排気口２３１ａの中心とを通る直線を、反応管２０３の内壁（ウエハ２００の外周部）に沿って両側から挟み込むように配置されている。直線は、ノズル２４９ｃとウエハ２００の中心とを通る直線でもある。すなわち、ノズル２４９ｃは、直線Ｌを挟んでノズル２４９ａと反対側に設けられているということもできる。ノズル２４９ａ，２４９ｂとノズル２４９ｄ，２４９ｅは、直線を対称軸として線対称に配置されている。ノズル２４９ａ～２４９ｅの側面には、ガスを供給するガス供給孔２５０ａ～２５０ｄがそれぞれ設けられている。ガス供給孔２５０ａ～２５０ｄは、それぞれが、平面視において排気口２３１ａと対向（対面）するように開口しており、ウエハ２００に向けてガスを供給することが可能となっている。ガス供給孔２５０ａ～２５０ｄは、反応管２０３の下部から上部にわたって複数設けられている。

[0015] ガス供給管２３２ａからは、第１元素を含む第１処理ガス（第１原料ガス）として、例えば、第１元素としてのシリコン（Ｓｉ）を含むＳｉ含有ガスを用いることができる。Ｓｉ含有ガスとして、例えば、主元素としてのＳｉを含むシランガスが、ＭＦＣ２４１ａ、バルブ２４３ａ、ノズル２４９ａを介して処理室２０１内へ供給される。

[0016] ガス供給管２３２ｂからは、第１改質ガス（第１成膜阻害ガス、第１インヒビター）として、例えば、第１の元素としてのＳｉとハロゲン元素とを含むガス、すなわち、ハロシランガスが、ＭＦＣ２４１ｂ、バルブ２４３ｂ、ノズル２４９ｂを介して処理室２０１内へ供給される。

[0017] ガス供給管２３２ｃからは、第２元素を含む第２処理ガス（第２原料ガス）として、例えば、第２元素としてのＳｉを含むシランガスが、ＭＦＣ２４１ｃ、バルブ２４３ｃ、ノズル２４９ｃを介して処理室２０１内へ供給される。

[0018] ガス供給管２３２ｄからは、第２改質ガス（第２成膜阻害ガス、第２インヒビター）として、例えば、第２の元素としてのＳｉとハロゲン元素とを含むガス、すなわち、ハロシランガスが、ＭＦＣ２４１ｄ、バルブ２４３ｄ、

ノズル２４９ｄを介して処理室２０１内へ供給される。

[0019] ガス供給管２３２ｅからは、反応ガスが、ＭＦＣ２４１ｅ、バルブ２４３ｅ、ノズル２４９ｅを介して処理室２０１内へ供給される。

[0020] ガス供給管２３２ｆ～２３２ｊからは、不活性ガスとして、例えば、窒素（$N_2$）ガスが、それぞれＭＦＣ２４１ｆ～２４１ｊ、バルブ２４３ｆ～２４３ｊ、ノズル２４９ａ～２４９ｅを介して処理室２０１内へ供給される。不活性ガスは、パージガス、キャリアガス、希釈ガス等として作用する。

[0021] 主に、ガス供給管２３２ａ、ＭＦＣ２４１ａ、バルブ２４３ａにより、第１処理ガス（第１原料ガス）供給系が構成される。主に、ガス供給管２３２ｂ、ＭＦＣ２４１ｂ、バルブ２４３ｂにより、第１改質ガス供給系が構成される。主に、ガス供給管２３２ｃ、ＭＦＣ２４１ｃ、バルブ２４３ｃにより、第２処理ガス（第２原料ガス）供給系が構成される。主に、ガス供給管２３２ｄ、ＭＦＣ２４１ｄ、バルブ２４３ｄにより、第２改質ガス供給系が構成される。主に、ガス供給管２３２ｅ、ＭＦＣ２４１ｅ、バルブ２４３ｅにより、反応ガス供給系が構成される。主に、ガス供給管２３２ｆ～２３２ｊ、ＭＦＣ２４１ｆ～２４１ｊ、バルブ２４３ｆ～２４３ｊにより、不活性ガス供給系が構成される。

[0022] 上述の各種供給系のうち、いずれか、或いは、全ての供給系は、バルブ２４３ａ～２４３ｊやＭＦＣ２４１ａ～２４１ｊ等が集積されてなる集積型供給システム２４８として構成されていてもよい。集積型供給システム２４８は、ガス供給管２３２ａ～２３２ｊのそれぞれに対して接続され、ガス供給管２３２ａ～２３２ｊ内への各種ガスの供給動作、すなわち、バルブ２４３ａ～２４３ｊの開閉動作やＭＦＣ２４１ａ～２４１ｊによる流量調整動作等が、後述するコントローラ１２１によって制御されるように構成されている。集積型供給システム２４８は、一体型、或いは、分割型の集積ユニットとして構成されており、ガス供給管２３２ａ～２３２ｊ等に対して集積ユニット単位で着脱を行うことができ、集積型供給システム２４８のメンテナンス、交換、増設等を、集積ユニット単位で行うことが可能なように構成されて

いる。

[0023] 反応管２０３の側壁下方には、処理室２０１内の雰囲気を排気する排気口２３１ａが設けられている。排気口２３１ａは、ウエハ２００を挟んでノズル２４９ａ～２４９ｅ（ガス供給孔２５０ａ～２５０ｅ）と対向（対面）する位置に設けられている。排気口２３１ａは、反応管２０３の側壁の下部より上部に沿って、すなわち、ウエハ配列領域に沿って設けられていてもよい。排気口２３１ａには排気管２３１が接続されている。排気管２３１には、処理室２０１内の圧力を検出する圧力検出器（圧力検出部）としての圧力センサ２４５および圧力調整器（圧力調整部）としてのＡＰＣ（Ａｕｔｏ Ｐｒｅｓｓｕｒｅ Ｃｏｎｔｒｏｌｌｅｒ）バルブ２４４を介して、真空排気装置としての真空ポンプ２４６が接続されている。ＡＰＣバルブ２４４は、真空ポンプ２４６を作動させた状態で弁を開閉することで、処理室２０１内の真空排気および真空排気停止を行うことができ、更に、真空ポンプ２４６を作動させた状態で、圧力センサ２４５により検出された圧力情報に基づいて弁開度を調節することで、処理室２０１内の圧力を調整することができるように構成されている。主に、排気管２３１、ＡＰＣバルブ２４４、圧力センサ２４５により、排気系が構成される。真空ポンプ２４６を排気系に含めて考えてもよい。

[0024] マニホールド２０９の下方には、マニホールド２０９の下端開口を気密に閉塞可能な炉口蓋体としてのシールキャップ２１９が設けられている。シールキャップ２１９は、例えばＳＵＳ等の金属材料により構成され、円盤状に形成されている。シールキャップ２１９の上面には、マニホールド２０９の下端と当接するシール部材としてのＯリング２２０ｂが設けられている。シールキャップ２１９の下方には、後述するボート２１７を回転させる回転機構２６７が設置されている。回転機構２６７の回転軸２５５は、シールキャップ２１９を貫通してボート２１７に接続されている。回転機構２６７は、ボート２１７を回転させることでウエハ２００を回転させるように構成されている。シールキャップ２１９は、反応管２０３の外部に設置された昇降機

構としてのボートエレベータ１１５によって垂直方向に昇降されるように構成されている。ボートエレベータ１１５は、シールキャップ２１９を昇降させることで、ウエハ２００を処理室２０１内外に搬入および搬出（搬送）する搬送装置（搬送機構）として構成されている。マニホールド２０９の下方には、シールキャップ２１９を降下させボート２１７を処理室２０１内から搬出した状態で、マニホールド２０９の下端開口を気密に閉塞可能な炉口蓋体としてのシャッタ２１９ｓが設けられている。シャッタ２１９ｓは、例えばＳＵＳ等の金属材料により構成され、円盤状に形成されている。シャッタ２１９ｓの上面には、マニホールド２０９の下端と当接するシール部材としてのＯリング２２０ｃが設けられている。シャッタ２１９ｓの開閉動作（昇降動作や回動動作等）は、シャッタ開閉機構１１５ｓにより制御される。

[0025] 基板支持具としてのボート２１７は、複数枚、例えば２５～２００枚のウエハ２００を、水平姿勢で、かつ、互いに中心を揃えた状態で垂直方向に整列させて多段に支持するように、すなわち、間隔を空けて配列させるように構成されている。ボート２１７は、例えば石英やＳｉＣ等の耐熱性材料により構成される。ボート２１７の下部には、例えば石英やＳｉＣ等の耐熱性材料により構成される断熱板２１８が多段に支持されている。

[0026] なお、本明細書における「２５～２００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、「２５～２００枚」とは「２５枚以上２００枚以下」を意味する。他の数値範囲についても同様である。

[0027] 反応管２０３内には、温度検出器としての温度センサ２６３が設置されている。温度センサ２６３により検出された温度情報に基づきヒータ２０７への通電具合を調整することで、処理室２０１内の温度が所望の温度分布となる。温度センサ２６３は、反応管２０３の内壁に沿って設けられている。

[0028] 図２に示すように、制御部（制御手段）であるコントローラ１２１は、ＣＰＵ（Ｃｅｎｔｒａｌ　Ｐｒｏｃｅｓｓｉｎｇ　Ｕｎｉｔ）１２１ａ、ＲＡＭ（Ｒａｎｄｏｍ　Ａｃｃｅｓｓ　Ｍｅｍｏｒｙ）１２１ｂ、記憶装置１２

１ｃ、Ｉ／Ｏポート１２１ｄを備えたコンピュータとして構成されている。ＲＡＭ１２１ｂ、記憶装置１２１ｃ、Ｉ／Ｏポート１２１ｄは、内部バス１２１ｅを介して、ＣＰＵ１２１ａとデータ交換可能なように構成されている。コントローラ１２１には、例えばタッチパネル等として構成された入出力装置１２２が接続されている。

[0029] 記憶装置１２１ｃ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１２１ｃ内には、基板処理装置の動作を制御する制御プログラムや、後述する基板処理の手順や条件等が記載されたプロセスレシピ等が、読み出し可能に格納されている。プロセスレシピは、後述する基板処理における各手順をコントローラ１２１に実行させ、所定の結果を得ることができるように組み合わされたものであり、プログラムとして機能する。以下、プロセスレシピや制御プログラム等を総称して、単に、プログラムともいう。また、プロセスレシピを、単に、レシピともいう。本明細書においてプログラムという言葉を用いた場合は、レシピ単体のみを含む場合、制御プログラム単体のみを含む場合、または、それらの両方を含む場合がある。ＲＡＭ１２１ｂは、ＣＰＵ１２１ａによって読み出されたプログラムやデータ等が一時的に保持されるメモリ領域（ワークエリア）として構成されている。

[0030] Ｉ／Ｏポート１２１ｄは、上述のＭＦＣ２４１ａ～２４１ｊ、バルブ２４３ａ～２４３ｊ、圧力センサ２４５、ＡＰＣバルブ２４４、真空ポンプ２４６、温度センサ２６３、ヒータ２０７、回転機構２６７、ボートエレベータ１１５、シャッタ開閉機構１１５ｓ等に接続されている。

[0031] ＣＰＵ１２１ａは、記憶装置１２１ｃから制御プログラムを読み出して実行すると共に、入出力装置１２２からの操作コマンドの入力等に応じて記憶装置１２１ｃからレシピを読み出すように構成されている。ＣＰＵ１２１ａは、読み出したレシピの内容に沿うように、ＭＦＣ２４１ａ～２４１ｊによる各種ガスの流量調整動作、バルブ２４３ａ～２４３ｊの開閉動作、ＡＰＣバルブ２４４の開閉動作および圧力センサ２４５に基づくＡＰＣバルブ２４

４による圧力調整動作、真空ポンプ２４６の起動および停止、温度センサ２６３に基づくヒータ２０７の温度調整動作、回転機構２６７によるボート２１７の回転および回転速度調節動作、ボートエレベータ１１５によるボート２１７の昇降動作、シャッタ開閉機構１１５ｓによるシャッタ２１９ｓの開閉動作等を制御するように構成されている。

[0032] コントローラ１２１は、外部記憶装置１２３に格納された上述のプログラムを、コンピュータにインストールすることにより構成することができる。外部記憶装置１２３は、例えば、ＨＤＤ等の磁気ディスク、ＣＤ等の光ディスク、ＭＯ等の光磁気ディスク、ＵＳＢメモリ等の半導体メモリ等を含む。記憶装置１２１ｃや外部記憶装置１２３は、コンピュータ読み取り可能な記録媒体として構成されている。以下、これらを総称して、単に、記録媒体ともいう。本明細書において記録媒体という言葉を用いた場合は、記憶装置１２１ｃ単体のみを含む場合、外部記憶装置１２３単体のみを含む場合、または、それらの両方を含む場合がある。なお、コンピュータへのプログラムの提供は、外部記憶装置１２３を用いず、インターネットや専用回線等の通信手段を用いて行ってもよい。

[0033] （２）基板処理工程

（２－１）第１の基板処理方法

図３は、実施形態に係る第１の基板処理方法を示す図である。半導体装置（デバイス）の製造方法の一工程として、ウエハ２００上に、例えば、第１元素を含む膜（第１の膜、第１の層）と、第２元素を含む膜（第２の膜、第２の層）と、を形成する基板処理方法の工程の一例について、図３を用いて説明する。この例では、ウエハ２００の表面に形成された凹部の内部に第１元素を含む膜と第２元素を含む膜とを形成する工程であり、上述した基板処理装置１０の処理炉２０２を用いて実行される。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１２１により制御される。

[0034] 本実施形態による基板処理工程（半導体装置の製造工程）は、例えば、

(a1)基板（ウエハ２００）に対して第１改質ガス（第１成膜阻害ガス、第１インヒビター）を供給して、前記基板の少なくとも一部を改質する工程と、

(a2)前記基板に対して第１元素を含む第１処理ガス（第１原料ガス）を供給して、前記第１改質ガスにより改質されていない領域に優先的に第１元素を吸着させる工程と、

(b1)前記基板に対して前記第１改質ガスと分解温度が異なる第２改質ガス（第２成膜阻害ガス、第２インヒビター）を供給して、前記基板の少なくとも一部を改質する工程と、

(b2)前記基板に対して第２元素を含む第２処理ガス（第２原料ガス）を前記基板に供給して、前記第２改質ガスにより改質されていない領域に優先的に前記第２元素を吸着させる工程と、

を有する。

[0035] 本明細書において「ウエハ」という言葉を用いた場合は、「ウエハそのもの」を意味する場合や、「ウエハとその表面に形成された所定の層や膜等との積層体」を意味する場合がある。本明細書において「ウエハの表面」という言葉を用いた場合は、「ウエハそのものの表面」を意味する場合や、「ウエハ上に形成された所定の層や膜等の表面」を意味する場合がある。本明細書において「ウエハ上に所定の層を形成する」と記載した場合は、ウエハそのものの表面上に所定の層を直接形成することを意味する場合や、ウエハ上に形成されている層等の上に所定の層を形成することを意味する場合がある。本明細書において「基板」という言葉を用いた場合も、「ウエハ」という言葉を用いた場合と同義である。

[0036] 本明細書における処理温度とは、ウエハ２００の温度または処理室２０１内の温度のことを意味し、処理圧力とは処理室２０１内の圧力のことを意味する。また、処理時間とは、その処理を継続する時間を意味する。これらは、以下の説明においても同様である。

[0037] （基板搬入工程）

基板搬入工程では、（ウエハチャージおよびボートロード）と（圧力調整および温度調整）が実施される。

[0038] （ウエハチャージおよびボートロード）

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

[0039] （圧力調整および温度調整）

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

[0040] （第１成膜ステップ：Ｓ１）

次に、第１成膜ステップＳ１が行われる。第１成膜ステップＳ１では、以下のステップ（工程）が実行される。

[0041] （ステップa1）

このステップでは、処理室２０１内のウエハ２００に対して第１改質ガスを供給して、前ウエハ２００の少なくとも一部を改質する。

[0042] 具体的には、バルブ２４３ｂを開き、ガス供給管２３２ｂ内へ第１改質ガスを流す。第１改質ガスは、ＭＦＣ２４１ｂにより流量調整され、ノズル２４９ｂを介して処理室２０１内へ供給され、排気口２３１ａより排気される。このとき、ウエハ２００に対して第１改質ガスが供給される（第１改質ガス供給ステップ）。また、このとき、バルブ２４３ｆ，２４３ｈ、２４３ｉ、２４３ｊを開き、ノズル２４９ａ，２４９ｃ，２４９ｄ，２４９ｅのそれぞれを介して処理室２０１内へＮ２ガスを供給する。

[0043] （パージステップｓｐ１）

その後、バルブ２４３ｂを閉じ、処理室２０１内への第１改質ガスの供給を停止する。そして、処理室２０１内を真空排気し、処理室２０１内に残留するガス等を処理室２０１内から排除する。このとき、バルブ２４３ｆ～２４３ｊを開き、ノズル２４９ａ～２４９ｅを介して処理室２０１内へ$N_2$ガスを供給する。ノズル２４９ａ～２４９ｅより供給される$N_2$ガスは、パージガスとして作用し、これにより、処理室２０１内がパージされる。

[0044] （ステップa2）

ステップa1が終了した後、処理室２０１内のウエハ２００の表面に対して第１処理ガス（第１原料ガス）を供給する。ウエハ２００表面のうち、ステップa1において第１改質ガスが吸着した箇所では第１処理ガスの吸着が阻害される。つまり、このステップでは、ウエハ２００に対して第１元素を含む第１処理ガスを供給して、第１改質ガスにより改質されていないウエハ２００の領域に優先的に第１元素を吸着させる。

[0045] 具体的には、バルブ２４３ａを開き、ガス供給管２３２ａ内へ第１処理ガスを流す。第１処理ガスは、ＭＦＣ２４１ａにより流量調整され、ノズル２４９ａを介して処理室２０１内へ供給され、排気口２３１ａより排気される。このとき、ウエハ２００に対して第１処理ガスが供給される（第１処理ガス供給ステップ）。また、このとき、バルブ２４３ｇ～２４３ｉを開き、ノズル２４９ｂ～２４９ｄのそれぞれを介して処理室２０１内へ$N_2$ガスを供給する。

[0046] （パージステップｓｐ２）

ウエハ２００の表面に核が形成された後、バルブ２４３ａを閉じ、処理室２０１内への第１処理ガスの供給を停止する。そして、パージステップｓｐ１と同様の処理手順により、処理室２０１内に残留するガス等を処理室２０１内から排除する。

[0047] ［所定回数実施工程ｓｃ１］

上述したステップa1，a2を交互に、すなわち、同期させることなく非同時に行うサイクルを所定回数（ｎ１回、ｎ１は１以上の整数）行うことにより、ウエハ２００上に、第１元素を含む膜を形成することができる。

[0048] 第１成膜ステップでは、以下に示す処理温度および処理時間（第１改質ガス、第１処理ガス供給時間）のうち少なくともいずれかを制御することで、ウエハ２００上に形成される第１元素を含む膜の厚さを制御することが可能である。また、第１成膜ステップでは、上述のサイクルの実施回数（サイクル数）を制御することで、ウエハ２００上に形成される第１元素を含む膜の厚さを制御することも可能である。

[0049] ステップa1における処理条件としては、

第１改質ガス供給流量：１０～１０００ｓｃｃｍ

第１改質ガス供給時間：０．５～１０分

$N_2$ガス供給流量（ガス供給管毎）：１０～１００００ｓｃｃｍ

処理温度（第１温度）：３５０～４２０℃

処理圧力：１００～１０００Ｐａ

が例示される。

[0050] ステップa2における処理条件としては、

第１処理ガス供給流量：１０～１０００ｓｃｃｍ

第１処理ガス供給時間：０．５～１０分

が例示される。他の処理条件は、ステップa1における処理条件と同様な処理条件とする。

[0051] （昇温ステップｓｔ１：温度調整ステップ）

ウエハ２００上に第１元素を含む膜が形成された後、処理室２０１内の温度、すなわち、ウエハ２００の温度を、上述の第１温度よりも高い第２温度へ変更させるように、ヒータ２０７の出力を調整する。本ステップを行う際、バルブ２４３ｆ～２４３ｊを開き、ノズル２４９ａ～２４９ｅを介して処理室２０１内へ$N_2$ガスを供給し、排気口２３１ａより排気して、処理室２０１内をパージする。ウエハ２００の温度が第２温度に到達して安定した後、後述する第２成膜ステップを開始する。

[0052] （第２成膜ステップ：Ｓ２）

次に、第２成膜ステップＳ２が行われる。第２成膜ステップＳ２では、以下のステップ（工程）が実行される。

[0053] （ステップb1）

このステップでは、処理室２０１内のウエハ２００、すなわち、ウエハ２００上に形成された第１元素を含む膜の表面に対して、第１改質ガスと分解温度が異なる第２改質ガスを供給して、基板の少なくとも一部を改質する。ここでは、第１改質ガスの分解温度が第２改質ガスよりも低い場合を例に説明をする。

[0054] 具体的には、バルブ２４３ｄを開き、ガス供給管２３２ｄ内へ第２改質ガスを流す。第２改質ガスは、ＭＦＣ２４１ｄにより流量調整され、ノズル２４９ｄを介して処理室２０１内へ供給され、排気口２３１ａより排気される。このとき、ウエハ２００に対して第２改質ガスが供給される（第２改質ガス供給ステップ）。また、このとき、バルブ２４３ｆ，２４３ｇ、２４３ｈ、２４３ｊを開き、ノズル２４９ａ，２４９ｂ，２４９ｃ，２４９ｅのそれぞれを介して処理室２０１内へ$N_2$ガスを供給する。

[0055] （パージステップｓｐ３）

その後、バルブ２４３ｂを閉じ、処理室２０１内への第２改質ガスの供給を停止する。そして、処理室２０１内を真空排気し、処理室２０１内に残留するガス等を処理室２０１内から排除する。このとき、バルブ２４３ｆ～２４３ｊを開き、ノズル２４９ａ～２４９ｅを介して処理室２０１内へ$N_2$ガス

を供給する。ノズル２４９ａ～２４９ｃより供給されるＮ$_2$ガスは、パージガスとして作用し、これにより、処理室２０１内がパージされる。

[0056] （ステップｂ2）

ステップｂ1が終了した後、処理室２０１内のウエハ２００の表面に対して第２処理ガス（第２原料ガス）を供給する。ウエハ２００表面のうち、ステップa1において第２改質ガスが吸着した箇所では第２処理ガスの吸着が阻害される。つまり、このステップでは、ウエハ２００に対して第２元素を含む第２処理ガス）を供給して、第２改質ガスにより改質されていないウエハ２００の領域に優先的に第２元素を吸着させる。

[0057] 具体的には、バルブ２４３ｃを開き、ガス供給管２３２ｃ内へ第２処理ガスガスを流す。第２処理ガスは、ＭＦＣ２４１ｃにより流量調整され、ノズル２４９ｃを介して処理室２０１内へ供給され、排気口２３１ａより排気される。このとき、ウエハ２００に対して第２処理ガスが供給される（第２処理ガス供給ステップ）。また、このとき、バルブ２４３ｇ～２４３ｉを開き、ノズル２４９ｂ～２４９ｄのそれぞれを介して処理室２０１内へＮ$_2$ガスを供給する。

[0058] （パージステップｓｐ４）

ウエハ２００の表面に第２元素を含む膜が形成された後、バルブ２４３ｃを閉じ、処理室２０１内への第２処理ガスガスの供給を停止する。そして、パージステップｓｐ３と同様の処理手順により、処理室２０１内に残留するガス等を処理室２０１内から排除する。

[0059] ［所定回数実施工程ｓｃ２］

上述したステップb1，b2を交互に、すなわち、同期させることなく非同時に行うサイクルを所定回数（ｎ２回、ｎ２は１以上の整数）行うことにより、ウエハ２００上に、第１元素を含む膜上に所望の膜厚の第２元素を含む膜を形成することができる。

[0060] 第２成膜ステップＳ２における処理条件としては、

第２改質ガス供給流量：１０～５０００ｓｃｃｍ

第２改質ガス供給時間：１～３００分

第２処理ガス供給流量：１０～５０００ｓｃｃｍ

第２処理ガス供給時間：１～３００分

$N_2$ガス供給流量（ガス供給管毎）：１０～２００００ｓｃｃｍ

処理温度（第２温度）：４５０～５５０℃

処理圧力：３０～４００Ｐａ

が例示される。

[0061] （基板搬出工程）

基板搬出工程では、以下のステップが実行される。

[0062] （アフターパージおよび大気圧復帰）

ウエハ２００上に形成された第２元素を含む膜の成膜が完了した後、ノズル２４９ａ～２４９ｅのそれぞれからパージガスとしての$N_2$ガスを処理室２０１内へ供給し、排気口２３１ａより排気する。これにより、処理室２０１内がパージされ、処理室２０１内に残留するガスや反応副生成物が処理室２０１内から除去される（アフターパージ）。その後、処理室２０１内の雰囲気が不活性ガスに置換され（不活性ガス置換）、処理室２０１内の圧力が常圧に復帰される（大気圧復帰）。

[0063] （ボートアンロードおよびウエハディスチャージ）

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

[0064] 段差被覆性の良い膜を得る手法の一つを、図６（ａ）～（ｃ）を用いて説明する。図６では、基板２００の表面に凹部であるトレンチ（溝）３００が

形成されており、トレンチ３００の内部に、第１処理ガス（第１元素）を吸着させる例を示している。図６（ａ）に示すような基板表面に第１改質ガスを供給すると、トレンチ上部（凹部の入り口付近）３０１の方がトレンチ３００の下部（凹部の深部）３０２よりガスとの衝突回数が多くなる。このことから、トレンチ上部３０１に優先的に第１改質ガスを吸着させる（もしくは反応させる）ことができる。基板２００の表面対して、第１改質ガスを供給した後に第１処理ガスを供給した場合、トレンチ上部３０１においては、第１改質ガスが吸着しているため、第１処理ガス（第１元素）の吸着が阻害され、トレンチ下部３０２では吸着する(図６（ｂ）)。つまり、第１成膜ステップでは、ウエハ２００に対して第１元素を含む第１処理ガスを供給して、第１改質ガスにより改質されていないトレンチ下部３０２に優先的に第１元素を吸着させる。これによって、トレンチ上部３０１は、第１元素の吸着量が少ないため、成膜される膜厚の増加を抑制され、トレンチ下部３０２は、第１元素が十分に吸着しているため、膜厚の増加を促すことができる（図６（ｃ））。従って、より良い段差被覆性を持つ第１元素を含む膜３０３を得る事が出来る。

[0065] 第１の基板処理方法で示した例において、第１改質ガスの分解温度は、第２改質ガスの分解温度と異なり、第１改質ガスは第２改質ガスよりも分解温度が低い。このことは、第１改質ガスは第２改質ガスよりも分解しやすい、または、反応性が高い、と言い換えることができる。このような場合における、トレンチ３００内の第１改質ガスの吸着箇所を図７（ａ）に、トレンチ３００内の第２改質ガスの吸着箇所を図７（ｂ）に、それぞれ示す。ガスがトレンチ下部３０２に吸着するには、トレンチ上部３０１からトレンチ３００の内部に侵入し、分解せずにトレンチ下部３０２まで到達する必要がある。これに対して、トレンチ上部３０１はトレンチ下部３０２よりもガスが到達しやすいため、トレンチ上部３０１における分解温度によるガスの吸着のしやすさは、トレンチ下部３０２ほど大きく変化しない。

[0066] 従って、第１改質ガスは第２改質ガスよりもトレンチ下部３０２を改質し

づらい、または、第１の改質ガスはトレンチ上部３０１に優先的に吸着する（もしくは反応する）、と言える。また、第２改質ガスは、第１改質ガスがトレンチ３００内を改質する領域よりもトレンチ下部３０２の側を改質する、といえる。また、第２の改質ガスは、第１の改質ガスがトレンチ３００の内を改質する領域よりもトレンチ下部３０２の側を改質することができる、と言える。

[0067] 例えば、上記の説明のように第１成膜ステップと第２成膜ステップを行う場合、第１改質ガスは、トレンチ上部３０１を優先的に改質する（図８（ａ））。これにより、トレンチ上部３０１では第１元素の吸着が阻害され、トレンチ下部３０２では第１元素の吸着を阻害させないように、第１元素を含む膜３０３ａを形成することができる（図８（ｂ））。その後、第２改質ガスは、第１改質ガスよりもトレンチ下部３０２側に広い領域を改質する（図８（ｃ））。これにより、トレンチ上部３０１での膜厚の増加を抑制しつつ、トレンチ３００内の全体に渡って、膜３０３ａよりも均一な膜厚の、第２元素を含む膜３０３ｂを形成することができる（図８（ｄ））。このことから、トレンチ３００の全体に渡って、段差被覆性良く、均一に成膜を行うことができる。

また、上記の説明のように第１成膜ステップと第２成膜ステップとで温度を異ならせることで、第１改質ガスと第２改質ガスの分解のしやすさが変化する。これにより、トレンチ３００内において、第１改質ガスと第２改質ガスが改質する領域をそれぞれ変化させることができるため、第１元素と第２元素の吸着箇所を制御することができる。また、第１成膜ステップと第２成膜ステップとで温度を異ならせることで、第１処理ガスまたは第２処理ガスの分解の起こりやすさを制御することができる。例えば、第２成膜ステップでの温度を第１成膜ステップでの温度よりも高くすることで、第２処理ガスを分解しやすくし、トレンチ上部３０１に形成される第２元素を含む膜の厚さを増加させることができる。

[0068] また、第１処理ガス（第１原料ガス）を、第２処理ガス（第２原料ガス）

よりも分解温度が低くなるようにしてもよい。この場合、第１処理ガスは、第２処理ガスと比較して分解しやすいため、ガスが到達しにくいトレンチ下部３０２にも、高いレートで膜を形成させることができる。また、第２処理ガスは、第１処理ガスと比較して分解しにくいため、トレンチ上部３０１とトレンチ下部３０２とで分解量の差が小さくなり、均一な膜厚の膜を形成させやすい。従って、トレンチ３００の全体に渡って、段差被覆性良く、均一に成膜を行うことができる。

[0069] なお、トレンチ上部３０１はガスが到達し易い箇所、トレンチ下部３０２はガスが到達しにくい箇所、トレンチ下部３０２とそれぞれ言い換えることができる。この場合、第１改質ガスは、ガスが到達しにくい場所に吸着しにくいため、ガスが到達し易い箇所を主に改質する。そのため、ステップa2において、第１処理ガスは、ガスが到達しにくい箇所に第１の元素を吸着させつつ、ガスが到達し易い箇所への第１元素の吸着を阻害できることができる。その後、ガスが到達しにくい箇所にも吸着しやすい第２改質ガスを用いることで、ステップb2において、膜を段差被覆性良く第２元素を含む膜を形成できる。

[0070] 第１の基板処理方法では、第１成膜ステップの後に第２成膜ステップを行うことで、第１元素を含む膜の上に第２元素を含む膜を形成する例について説明した。本開示の方法はこれに限られず、例えば、第１成膜ステップと第２成膜ステップとを含むサイクルを、所定回数行うことで、第１元素を含む膜と、第２元素を含む膜と、を積層させた膜を形成する場合においても、好適に用いられる。

[0071] （２－２）第２の基板処理方法

図４は、実施形態に係る第２の基板処理方法を示す図である。図５は、第２の基板処理方法に用いられるガス供給管系の構成を示す図である。

[0072] 図４に示す第２の基板処理方法では、第１成膜ステップ、第２成膜ステップ、および、第３成膜ステップとから構成されている。図４の第３成膜ステップは、図３の第２成膜ステップに対応している。図３の第１成膜ステップ

が、図４では、第１成膜ステップと第２成膜ステップとへ分けられていると見なすこともできる。

[0073] 図４において、第１成膜ステップと第２成膜ステップとは同じ第１処理温度で実施され、第３成膜ステップは第１処理温度より高い第２処理温度で実施される。

[0074] ガス供給管系では、図５に示すように、図１のガス供給管系と比較して、ガス供給管ガス供給管２３２ｍ、ＭＦＣ２４１ｍ、バルブ２４３ｍ、ガス供給管２３２ｎ、ＭＦＣ２４１ｎ、バルブ２４３ｎ、ノズル２４９ｆ、ガス供給孔２５０ｆが追加されている。

[0075] 以下、図４を用いて第２の基板処理方法を説明するが、図３と同一の部分は説明を省略する。

[0076] （第１成膜ステップ：Ｓ１）

第１成膜ステップＳ１では、以下のステップ（工程）が実行される。

[0077] （ステップa1）

このステップでは、処理室２０１内のウエハ２００に対して第１改質ガスを供給して、前ウエハ２００の少なくとも一部を改質する。

[0078] 具体的には、バルブ２４３ｂを開き、ガス供給管２３２ｂ内へ第１改質ガスを流す。第１改質ガスは、ＭＦＣ２４１ｂにより流量調整され、ノズル２４９ｂを介して処理室２０１内へ供給され、排気口２３１ａより排気される。このとき、ウエハ２００に対して第１改質ガスが供給される（第１改質ガス供給ステップ）。また、このとき、バルブ２４３ｆ，２４３ｈ、２４３ｉ、２４３ｊ、２４３ｎを開き、ノズル２４９ａ，２４９ｃ，２４９ｄ，２４９ｅ、２４９ｆのそれぞれを介して処理室２０１内へ$N_2$ガスを供給する。

[0079] （パージステップｓｐ１）

その後、バルブ２４３ｂを閉じ、処理室２０１内への第１改質ガスの供給を停止する。そして、処理室２０１内を真空排気し、処理室２０１内に残留するガス等を処理室２０１内から排除する。このとき、バルブ２４３ｆ～２４３ｎを開き、ノズル２４９ａ～２４９ｆを介して処理室２０１内へ$N_2$ガス

を供給する。ノズル２４９ａ～２４９ｆより供給されるＮ$_2$ガスは、パージガスとして作用し、これにより、処理室２０１内がパージされる。

[0080] （ステップa2）

ステップa1が終了した後、処理室２０１内のウエハ２００の表面に対して第１処理ガスを供給する。ウエハ２００表面のうち、ステップa1において第１改質ガスが吸着した箇所では第１処理ガスの吸着が阻害される。つまり、このステップでは、ウエハ２００に対して第１元素を含む第１処理ガスを供給して、第１改質ガスにより改質されていないウエハ２００の領域に優先的に第１元素を吸着させる。

[0081] 具体的には、バルブ２４３ａを開き、ガス供給管２３２ａ内へ第１処理ガスを流す。第１処理ガスは、ＭＦＣ２４１ａにより流量調整され、ノズル２４９ａを介して処理室２０１内へ供給され、排気口２３１ａより排気される。このとき、ウエハ２００に対して第１処理ガスが供給される（第１処理ガス供給ステップ）。また、このとき、バルブ２４３ｇ～２４３ｉ、２４３ｎを開き、ノズル２４９ｂ～２４９ｄ、２４９ｆのそれぞれを介して処理室２０１内へＮ２ガスを供給する。

[0082] （パージステップｓｐ２）

凹部３００の下部３０２に核が形成された後、バルブ２４３ａを閉じ、処理室２０１内への第１処理ガスの供給を停止する。そして、パージステップｓｐ１と同様の処理手順により、処理室２０１内に残留するガス等を処理室２０１内から排除する。

[0083] ［所定回数実施工程ｓｃ１］

上述したステップa1，a2を交互に、すなわち、同期させることなく非同時に行うサイクルを所定回数（ｎ１回、ｎ１は１以上の整数）行うことにより、第１元素を含む膜を形成することができる。

[0084] 第１成膜ステップでは、以下に示す処理温度および処理時間（第１改質ガス供給時間、第１処理ガス供給時間）のうち少なくともいずれかを制御することで、ウエハ２００上に形成される第１元素を含む膜の厚さを制御するこ

とが可能である。また、第１成膜ステップでは、上述のサイクルの実施回数（サイクル数）を制御することで、ウエハ２００上に形成される第１元素を含む膜の厚さを制御することも可能である。

[0085] ステップa1における処理条件としては、

第１改質ガス供給流量：１０～１０００ｓｃｃｍ

第１改質ガス供給時間：０．５～１０分

$N_2$ガス供給流量（ガス供給管毎）：１０～１００００ｓｃｃｍ

処理温度（第１温度）：３５０～４２０℃

処理圧力：１００～１０００Ｐａ

が例示される。

[0086] ステップa2における処理条件としては、

第１処理ガス供給流量：１０～１０００ｓｃｃｍ

第１処理ガス供給時間：０．５～１０分

が例示される。他の処理条件は、ステップa1における処理条件と同様な処理条件とする。

[0087] （第２成膜ステップ：Ｓ２）

第１成膜ステップＳ１の後に、第２成膜ステップＳ２が実行される。第２成膜ステップＳ２では、以下のステップ（工程）が実行される。

[0088] （ステップｂ1）

このステップでは、処理室２０１内のウエハ２００に対して第２改質ガスを供給して、前ウエハ２００の少なくとも一部を改質する。

[0089] 具体的には、バルブ２４３ｄを開き、ガス供給管２３２ｄ内へ第２改質ガスを流す。第２改質ガスは、ＭＦＣ２４１ｄにより流量調整され、ノズル２４９ｄを介して処理室２０１内へ供給され、排気口２３１ａより排気される。このとき、ウエハ２００に対して第２改質ガスが供給される（第２改質ガス供給ステップ）。また、このとき、バルブ２４３ｆ，２４３ｇ、２４３ｈ、２４３ｊ、２４３ｎを開き、ノズル２４９ａ，２４９ｂ、２４９ｃ，２４９ｅ，２４９ｆのそれぞれを介して処理室２０１内へ$N_2$ガスを供給する。

[0090] （パージステップｓｐ３）

その後、バルブ２４３ｄを閉じ、処理室２０１内への第２改質ガスの供給を停止する。そして、処理室２０１内を真空排気し、処理室２０１内に残留するガス等を処理室２０１内から排除する。このとき、バルブ２４３ｆ～２４３ｎを開き、ノズル２４９ａ～２４９ｆを介して処理室２０１内へ$N_2$ガスを供給する。ノズル２４９ａ～２４９ｆより供給される$N_2$ガスは、パージガスとして作用し、これにより、処理室２０１内がパージされる。

[0091] （ステップb2）

ステップb1が終了した後、処理室２０１内のウエハ２００の表面に対して第２処理ガス（第２原料ガス）を供給する。ウエハ２００表面のうち、ステップｂ１において第２改質ガスが吸着した箇所では第２処理ガスの吸着が阻害される。つまり、このステップでは、ウエハ２００に対して第２元素を含む第２処理ガスを供給して、第２改質ガスにより改質されていないウエハ２００の領域に優先的に第２元素を吸着させる。

[0092] 具体的には、バルブ２４３ａを開き、ガス供給管２３２ａ内へ第２処理ガスを流す。第２処理ガスは、ＭＦＣ２４１ａにより流量調整され、ノズル２４９ａを介して処理室２０１内へ供給され、排気口２３１ａより排気される。このとき、ウエハ２００に対して第１処理ガスが供給される（第２処理ガス供給ステップ）。また、このとき、バルブ２４３ｇ～２４３ｉ、２４３ｎを開き、ノズル２４９ｂ～２４９ｄ、２４９ｆのそれぞれを介して処理室２０１内へ$N_2$ガスを供給する。

[0093] （パージステップｓｐ４）

ウエハ２００の表面に第２元素を含む膜が形成された後、バルブ２４３ａを閉じ、処理室２０１内への第２処理ガスの供給を停止する。そして、パージステップｓｐ３と同様の処理手順により、処理室２０１内に残留するガス等を処理室２０１内から排除する。

[0094] ［所定回数実施工程ｓｃ２］

上述したステップb1，b2を交互に、すなわち、同期させることなく非同時

に行うサイクルを所定回数（ｎ２回、ｎ２は１以上の整数）行うことにより、第１元素を含む膜上に、第２元素を含む膜を形成することができる。

[0095] 第２成膜ステップでは、以下に示す処理温度および処理時間（第２改質ガス供給時間、第２処理ガス供給時間）のうち少なくともいずれかを制御することで、ウエハ２００上に形成される第２元素を含む膜の厚さを制御することが可能である。また、第２成膜ステップでは、上述のサイクルの実施回数（サイクル数）を制御することで、ウエハ２００上に形成される第２元素を含む膜の厚さを制御することも可能である。

[0096] ステップb1における処理条件としては、

第２改質ガス供給流量：１０～１０００ｓｃｃｍ

第２改質ガス供給時間：０．５～１０分

$N_2$ガス供給流量（ガス供給管毎）：１０～１００００ｓｃｃｍ

処理温度（第１温度）：３５０～４２０℃

処理圧力：１００～１０００Ｐａ

が例示される。

[0097] ステップb2における処理条件としては、

第２処理ガス供給流量：１０～１０００ｓｃｃｍ

第２処理ガス供給時間：０．５～１０分

が例示される。他の処理条件は、ステップb1における処理条件と同様な処理条件とする。

[0098] （昇温ステップｓｔ１：温度調整ステップ）

ウエハ２００上に第２元素を含む膜が形成された後、処理室２０１内の温度、すなわち、ウエハ２００の温度を、上述の第１温度（３５０～４２０℃）よりも高い第２温度へ変更させるように、ヒータ２０７の出力を調整する。本ステップを行う際、バルブ２４３ｆ～２４３ｊ、２４３ｎを開き、ノズル２４９ａ～２４９ｆを介して処理室２０１内へ$N_2$ガスを供給し、排気口２３１ａより排気して、処理室２０１内をパージする。ウエハ２００の温度が第２温度に到達して安定した後、後述するステップを開始する。ここで、第

２温度は、たとえば、４５０～５５０℃の温度範囲である。

[0099] （第３成膜ステップ：Ｓ３）

次に、第３成膜ステップＳ３が行われる。第３成膜ステップＳ３では、以下のステップ（工程）が実行される。

[0100] （ステップc1）

このステップでは、処理室２０１内のウエハ２００、すなわち、ウエハ２００上に形成された第２元素を含む膜の表面に対して第１の改質ガスおよび２の改質ガスと分解温度が異なる第３改質ガスを供給して、基板の少なくとも一部を改質する。

[0101] 具体的には、バルブ２４３ｃを開き、ガス供給管２３２ｃ内へ第３改質ガスを流す。第３改質ガスは、ＭＦＣ２４１ｃにより流量調整され、ノズル２４９ｃを介して処理室２０１内へ供給され、排気口２３１ａより排気される。このとき、ウエハ２００に対して第３改質ガスが供給される（第２改質ガス供給ステップ）。また、このとき、バルブ２４３ｆ，２４３ｇ、２４３ｉ、２４３ｊ、２４３ｎを開き、ノズル２４９ａ，２４９ｂ，２４９ｄ，２４９ｅ、２４９ｆのそれぞれを介して処理室２０１内へ$N_2$ガスを供給する。

[0102] （パージステップｓｐ５）

その後、バルブ２４３ｃを閉じ、処理室２０１内へのＳＴＳガスの供給を停止する。そして、処理室２０１内を真空排気し、処理室２０１内に残留するガス等を処理室２０１内から排除する。このとき、バルブ２４３ｆ～２４３ｊ、２４３ｎを開き、ノズル２４９ａ～２４９ｆを介して処理室２０１内へ$N_2$ガスを供給する。ノズル２４９ａ～２４９ｆより供給されるＮ２ガスは、パージガスとして作用し、これにより、処理室２０１内がパージされる。

[0103] （ステップc2）

ステップc1が終了した後、処理室２０１内のウエハ２００の表面に対して第３処理ガス（第３原料ガス）を供給する。ここで、ウエハ２００表面のうち、ステップc1において第３改質ガスが吸着した箇所では第３処理ガスの吸着が阻害される。つまり、このステップでは、ウエハ２００に対して第３元

素を含む第３処理ガスを供給して、第３改質ガスにより改質されていないウエハ２００の領域に優先的に第３元素を吸着させる。

[0104] 具体的には、バルブ２４３ｍを開き、ガス供給管２３２ｍ内へ第３処理ガスを流す。第３処理ガスは、ＭＦＣ２４１ｍにより流量調整され、ノズル２４９ｆを介して処理室２０１内へ供給され、排気口２３１ａより排気される。このとき、ウエハ２００に対して第３処理ガスが供給される（第３処理ガス供給ステップ）。また、このとき、バルブ２４３ｇ～２４３ｉを開き、ノズル２４９ｂ～２４９ｄのそれぞれを介して処理室２０１内へ$N_2$ガスを供給する。

[0105] （パージステップｓｐ６）

ウエハ２００の表面に第３元素を含む膜（第３の膜、第３の層）が形成された後、バルブ２４３ｍを閉じ、処理室２０１内への第３処理ガスの供給を停止する。そして、パージステップｓｐ５と同様の処理手順により、処理室２０１内に残留するガス等を処理室２０１内から排除する。

[0106] ［所定回数実施工程ｓｃ３］

上述したステップc1，c2を交互に、すなわち、同期させることなく非同時に行うサイクルを所定回数（ｎ３回、ｎ３は１以上の整数）行うことにより、第２元素を含む膜上に、所望の膜厚の第３元素を含む膜を形成することができる。

[0107] 第３成膜ステップＳ３における処理条件としては、

第３改質ガス供給流量：１０～５０００ｓｃｃｍ

第３改質ガス供給時間：１～３００分

第３処理ガス供給流量：１０～５０００ｓｃｃｍ

第３処理ガス供給時間：１～３００分

$N_2$ガス供給流量（ガス供給管毎）：１０～２００００ｓｃｃｍ

処理温度（第２温度）：４５０～５５０℃

処理圧力：３０～４００Ｐａ

が例示される。

[0108] 第２の基板処理方法は、第１の基板処理方法と同様の効果に加えて、以下のような効果が得られる。

[0109] 第１成膜ステップと第２成膜ステップとは、同一の温度で行われている。また、第１の改質ガスの分解温度は、第２の改質ガスの分解温度より低い。このことから、第１成膜ステップと第２成膜ステップの間に処理室２０１内の温度変化を行うことなく、第１改質ガスと第２改質ガスが改質する箇所、すなわち第１の元素が優先的に吸着する領域と第２の元素が優先的に吸着する領域とを異ならせることができる。

[0110] 第３成膜ステップでは、第１成膜ステップ及び第２成膜ステップよりも高い温度において、第１成膜ステップと第２成膜ステップとによって段差被覆性の良く形成された膜の上に、第３元素を含む膜を形成している。従って、第３成膜ステップでは、第１成膜ステップ及び第２成膜ステップよりも高い成膜レートで、段差被覆性良く第３元素を含む膜を形成することができる。

[0111] 第１成膜ステップと第２成膜ステップとにおいて、第１の処理ガスの分解温度は第２の処理ガスと同じである、としてもよい。また、第１の処理ガスと第２の処理ガスとを同じガスとしてもよい。以上から、同じ分解温度の処理ガスを用いた成膜において、温度条件を変化させずに第１の元素（第２の元素）が主に吸着する箇所を制御した成膜が可能となる。これを用いて、第１成膜ステップ及び第２成膜ステップにおいて形成される膜における、凹部３００の深部３０２から入口付近３０１の膜厚の均一さを向上させることができる。

[0112] 第２の基板処理方法では、第１成膜ステップの後に第２成膜ステップを行い、その後に第３成膜ステップを行うことでＳｉ膜を形成する例について説明した。本開示の方法はこれに限られず、例えば、第１成膜ステップと第２成膜ステップとを含むサイクルを所定回数行った後に、第３成膜ステップを行ってもよい。

[0113] 本開示は、上記実施の形態に限定されるものではなく、種々変更可能であることはいうまでもない。

[0114] 上述の実施形態において、第１改質ガス及び第２改質ガス、第３改質ガスとして、例えば、ハロゲン元素である、第１ハロゲン元素及び第２ハロゲン元素、第３ハロゲン元素を含むガスを用いることができる。ハロゲン元素には、塩素（Ｃｌ）、フッ素（Ｆ）、臭素（Ｂｒ）、ヨウ素（Ｉ）等が含まれる。また、第１改質ガス及び第２改質ガス、第３改質ガスとして、第１元素及び第２元素、第３元素と、第１ハロゲン元素及び第２ハロゲン元素、第３ハロゲン元素と、をそれぞれ含むガスを用いてもよい。ここで、ハロゲン元素はガスの吸着を阻害する効果を持ち、膜中に不純物として残存しにくいため、膜の電気特性を悪化させづらい。

[0115] ハロゲン元素含有ガスとしては、例えば、Ｓｉとハロゲン元素を含むハロシランガスを用いることができる。ハロシランガスとしては、例えば、ＳｉおよびＣｌを含むクロロシランガスを用いることができ、例えば、ジクロロシラン（$SiH_2Cl_2$、略称：ＤＣＳ）ガス、トリクロロシラン（$SiHCl_3$）ガス、テトラクロロシラン（$SiCl_4$、略称：ＴＣＳ）、ペンタクロロジシラン（$Si_2H_1Cl_5$、略称：ＰＣＤＳ）、ヘキサクロロジシラン（$Si_2Cl_6$、略称：ＨＣＤＳ）ガス、などが含まれる。また、ハロゲン元素含有ガスとして、例えば、ハロゲン化水素ガスを用いることができ、例えば、フッ化水素（ＨＦ）ガス、塩化水素（ＨＣｌ）ガス、臭化水素（ＨＢｒ）ガス、ヨウ化水素（ＨＩ）ガスなどが含まれる。すなわち、これらのガスの中から、分解温度の大小関係が上述の実施形態で説明したような関係となるように、第１改質ガス及び第２改質ガス、第３改質ガスを適宜選択して用いてもよい。

[0116] 上述の実施形態において、第１元素及び第２元素、第３元素をＳｉとした場合、第１処理ガス及び第２処理ガス、第３処理ガスとしては、Ｓｉを含むガスであるＳｉ含有ガスを用いることができる。Ｓｉ含有ガスとしては、例えば、Ｓｉを主元素とするシランガスを用いることができる。シランガスとしては、モノシラン（$SiH_4$、略称：ＭＳ）ガス、ジシランガス（$Si_2H_6$、略称：ＤＳ）、トリシラン（$Si_3H_8$、略称：ＴＳ）ガスなどが含まれる

。また、シランガスとして、ハロシランガスを用いることもできる。

[0117] 第１の基板処理方法において、第２元素を含む膜を、第１元素を含む膜をシード層（シード膜）として形成してもよい。これにより、第１元素を含む膜として密度の高い結晶核を形成し、これを成長の核として、アモルファス、エピタキシャルもしくはポリ状態の第２元素を含む膜を成長させることができる。同様に、第２の基板処理方法において、第２元素を含む膜を、第１元素を含む膜をシード層として形成してもよい。また、第３元素を含む膜を、第２元素を含む膜をシード層として形成してもよい。また、第３元素を含む膜を、第１元素と第２元素とで構成される膜をシード層として形成してもよい。

[0118] 上述の実施形態では、第１元素として、例えば、第１４族元素であるＳｉ、ゲルマニウム（Ｇｅ）や、第１３族元素であるアルミニウム（Ａｌ）、ガリウム（Ｇａ）、インジウム（Ｉｎ）を、第１元素としてもよい。また、例えば、遷移金属元素を第１元素としてもよい。遷移金属元素としては、例えば、第４族元素であるチタン（Ｔｉ）、ジルコニウム（Ｚｒ）、Ｈｆ（ハフニウム）や、第５族元素であるニオブ（Ｎｂ）、タンタル（Ｔａ）、第６族元素であるモリブデン（Ｍｏ）、タングステン（Ｗ）、第７族元素であるマンガン（Ｍｎ）、第８族元素であるルテニウム（Ｒｕ）、第９族元素であるコバルト（Ｃｏ）、第１０族元素であるニッケル（Ｎｉ）などを、第１元素としてもよい。また、第１元素と同様に、これらの元素を第２元素や第３元素としてもよい。

[0119] 第１の基板処理方法では、第１元素と第２元素を異なる元素としてもよい。また、第２の基板処理方法では、第１元素と第２元素と第３元素のうち、1つ以上を異なる元素としてもよい。

[0120] 高次のハロシランガスは、低次のハロシランガスよりも分解温度が低い。例えば、ハロシランガスにおいて、ＨＣＤＳガスはＴＣＳガスよりも分解温度が低い。すなわち、第１改質ガスと第２改質ガスとがハロシランガスである場合、第１改質ガスを第２改質ガスよりも高次のハロシランガスとするこ

とで、第１改質ガスの分解温度を第２改質ガスよりも低くすることができる。なお、第１改質ガスと第２改質ガスが、Ｓｉ以外の元素を主元素とするガスである場合にも、同様の関係が成り立つ。すなわち、第１改質ガスと第２改質ガスとが同じ元素を主元素とするガスである場合、第１改質ガスは第２改質ガスよりも高次のガスとすることで、第１改質ガスの分解温度を第２改質ガスよりも低くすることができる。

[0121] また、同様の関係がシランガスについても成り立つ。例えば、ＤＳガスはＭＳガスよりも分解温度が低く、ＴＳガスはＤＳガスよりも分解温度が低い。すなわち、第１処理ガスと第２処理ガスとがシランガスである場合、第１処理ガスを第２処理ガスよりも高次のシランガスとすることで、第１処理ガスの分解温度を第２処理ガスよりも低くすることができる。また、第１処理ガスと第２処理ガスが、Ｓｉ以外の元素を主元素とするガスである場合にも、同様の関係が成り立つ。すなわち、第１処理ガスと第２処理ガスとが同じ元素を主元素とするガスである場合、第１処理ガスは第２処理ガスよりも高次のガスとすることで、第１処理ガスの分解温度を第２処理ガスよりも低くすることができる。

[0122] 次数が等しい２種のハロシランガスにおいて、分子の対称性が低いほど、分解温度は低くなる場合がある。例えば、ＰＣＤＳガスはＨＣＤＳガスよりも分解温度が低く、ＴＣＳガスはＤＣＳガスよりも分解温度が低い。すなわち、第１改質ガスと第２改質ガスとが次数が等しいハロシランガスの場合、第１改質ガスを第２改質ガスよりも分子の対称性が低いハロシランガスとすることで、第１改質ガスの分解温度を第２改質ガスよりも低くすることができる場合がある。なお、第１改質ガスと第２改質ガスが、Ｓｉ以外の元素を主元素とする、次数が等しいガスである場合にも、同様の関係が成り立つ場合がある。すなわち、第１改質ガスと第２改質ガスとが同じ元素を主元素とする、次数が等しいガスである場合、第１改質ガスは第２改質ガスよりも分子の対称性が低いガスとすることで、第１改質ガスの分解温度を第２改質ガスよりも低くすることができる場合がある。

[0123] また、同様の関係が、第１処理ガス（第１原料ガス）と第２処理ガス（第２原料ガス）についても成り立つ場合がある。例えば、ＤＣＳガスはＭＳガスよりも分解温度が低い。すなわち、第１処理ガスと第２処理ガスとが次数が等しいシランガスである場合、第１処理ガスを第２処理ガスよりも分子の対称性を低くすることで、第１処理ガスの分解温度を第２処理ガスよりも低くすることができる場合がある。また、第１処理ガスと第２処理ガスが、Ｓｉ以外の元素を主元素とするガスである場合にも、同様の関係が成り立つ場合がある。すなわち、第１処理ガスと第２処理ガスとが同じ元素を主元素とする、次数が等しいガスである場合、第１処理ガスは第２処理ガスよりも分子の対称性が低いガスとすることで、第１処理ガスの分解温度を第２処理ガスよりも低くすることができる場合がある。

[0124] また、上述の第１改質ガスと第２改質ガスにおける分子構造と分解温度の関係は、第１改質ガスを第３改質ガスに置き換えた場合と、第２改質ガスを第３改質ガスに置き換えた場合と、であっても同様に成り立つ。また、上述の第１処理ガス（第１原料ガス）と第２処理ガス（第１原料ガス）における分子構造と分解温度の関係は、第１処理ガス（第１原料ガス）を第３処理ガス（第３原料ガス）に置き換えた場合と、第２処理ガス（第２原料ガス）を第３処理ガス（第３原料ガス）に置き換えた場合と、であっても同様に成り立つ。

[0125] 上述の実施形態（第１の基板処理方法または第２の基板処理方法）において、第１成膜ステップでは、ステップa1とステップa2を交互に行うサイクルを所定回数行う例について説明した。本開示の方法はこれに限られず、例えば、上述の実施形態において、ある回数以降のサイクルにおいて、ステップa1における第１改質ガスやステップa2における第１処理ガス（第１原料ガス）の供給条件を変化させることや、ステップa1を実施しないサイクルを設けることができる。同様に、上述の実施形態において、例えば、ある回数以降のサイクルにおいて、ステップb1おける第２改質ガスやステップb2における第２処理ガス（第２原料ガス）の供給条件を変化させることや、ステップb1を実

施しないサイクルを設けることができる。同様に、上述の実施形態において、第３成膜ステップでは、例えば、ある回数以降のサイクルにおいて、ステップc1おける第３改質ガスやステップc2における第３処理ガス（第３原料ガス）の供給条件を変化させることや、ステップc1を実施しないサイクルを設けることができる。

[0126] 上述の実施形態では、不活性ガスとしてN2ガスを用いる例について説明したが、これに限らず、アルゴン（Ａｒ）ガス、ヘリウム（Ｈｅ）ガス、ネオン（Ｎｅ）ガス、キセノン（Ｘｅ）ガス等の希ガスを用いてもよい。

[0127] 上述の実施形態では、第１成膜ステップの(ａ２)において、第１処理ガスとして第１原料ガスを処理室２０１（ウエハ２００）に供給する例について説明したが、本開示の技術はこれに限定されない。第１処理ガスとして、例えば、第１原料ガスとしてシランガスを、第１反応ガスとして、例えば、酸素含有ガスや窒素含有ガスを処理室２０１に供給してもよい。具体的には、シランガスを処理室２０１に供給した後、バルブ２４３ｅを開き、ガス供給管２３２ｅ内へ酸素含有ガスまたは窒素含有ガスを第１反応ガスとして処理室２０１に供給してもよい（第１の反応ガス供給ステップ）。その場合、第１成膜ステップでは、酸化シリコン（ＳｉＯ$_2$）膜や窒化シリコン（ＳｉＮ）膜が形成されることになる。また、この時、第１原料ガスと第１反応ガスとを順に所定回数、処理室２０１に供給してもよい。

[0128] 同様に、第２処理ガスとして、第２原料ガスと第２反応ガスとを処理室２０１に供給してもよいし、第２処理ガスとして、第２原料ガスと第２反応ガスとを順に所定回数、処理室２０１に供給してもよい。また、同様に、第３処理ガスとして、第３原料ガスと第３反応ガスとを処理室２０１に供給してもよいし、第３処理ガスとして、第３原料ガスと第３反応ガスとを順に所定回数、処理室２０１に供給してもよい。第２処理ガスまたは第３処理ガスとしては、例えば、酸素含有ガスや窒素含有ガスを用いてもよい。

[0129] 酸素含有ガスとしては、例えば、酸素（Ｏ$_2$）ガス、亜酸化窒素（Ｎ$_2$Ｏ）ガス、一酸化窒素（ＮＯ）ガス、二酸化窒素（ＮＯ$_2$）ガス、オゾン（Ｏ$_3$）

ガス、水蒸気（$H_2O$ガス）、一酸化炭素（ＣＯ）ガス、二酸化炭素（$CO_2$）ガス等を、$O_2$ガス＋ 水素（$H_2$）ガス、$O_3$ガス＋$H_2$ガス、$H_2O$ガス＋$H_2$ガス等用いることができる。なお、本明細書において「$O_3$ガス＋$H_2$ガス」のような２つのガスの併記記載は、$O_3$ガスと$H_2$ガスとの混合ガスを意味している。また、窒素含有ガスとしては、例えば、アンモニア（$NH_3$）ガス、ヒドラジン（$N_2H_4$）ガス、ジアゼン（$N_2H_2$）ガス、$N_3H_8$ガス等の、Ｎ－Ｈ結合を含む窒素含有ガス（Ｎ及びＨ含有ガス）や、$N_2$ガスを用いることができる。

[0130] 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。

[0131] 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。

[0132] 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

[0133] １０：基板処理装置

２４８：集積型供給システム

１２１：制御部（コントローラ）

# 請求の範囲

[請求項1] (a1)基板に対して第１改質ガスを供給して、前記基板の少なくとも一部を改質する工程と、

(a2)前記基板に対して第１元素を含む第１処理ガスを供給して、前記第１改質ガスにより改質されていない領域に優先的に第１元素を吸着させる工程と、

(b1)前記基板に対して前記第１改質ガスと分解温度が異なる第２改質ガスを供給して、前記基板の少なくとも一部を改質する工程と、

(b2)前記基板に対して第２元素を含む第２処理ガスを前記基板に供給して、前記第２改質ガスにより改質されていない領域に優先的に前記第２元素を吸着させる工程と、

を有する基板処理方法。

[請求項2] 前記基板は凹部を有する、請求項１に記載の基板処理方法。

[請求項3] (a2)では、前記第１処理ガスとしての前記第１元素を含む第１原料ガスと第１反応ガスとを供給する、請求項１に記載の基板処理方法。

[請求項4] (a2)では、前記第１原料ガスと前記第１反応ガスとを順に所定回数供給する請求項３に記載の基板処理方法。

[請求項5] (b2)では、前記第２処理ガスとしての前記第２元素を含む第２原料ガスと、第２反応ガスと、を供給する、請求項１に記載の基板処理方法。

[請求項6] (b2)では、前記第２原料ガスと前記第２反応ガスとを順に所定回数供給する請求項５に記載の基板処理方法。

[請求項7] (a2)では、前記第１処理ガスとしての前記第１元素を含む第１原料ガスと第１反応ガスとを供給し、

(b2)では、前記第２処理ガスとしての前記第２元素を含む第２原料ガスと、第２反応ガスと、を供給する、請求項１に記載の基板処理方法。

[請求項8] (a2)では、前記第１原料ガスと前記第１反応ガスとを順に所定回数

供給し、

(b2)では、前記第２原料ガスと前記第２反応ガスとを順に所定回数供給する、請求項７に記載の基板処理方法。

[請求項9] 前記第１処理ガスの分解温度は前記第２処理ガスと同じである、請求項１に記載の基板処理方法。

[請求項10] (a1)と(a2)は、(b1)と(b2)と同じ温度で行われる、請求項9に記載の基板処理方法。

[請求項11] (a1)と(a2)と(b1)と(b2)とを所定回数行った後に、

(c)前記基板に対して、第３元素を含み、前記第１処理ガス及び前記第２処理ガスよりも分解温度が高い第３処理ガスを供給して、前記基板に第３元素を吸着させる工程と、をさらに有し、

(c)は、(a1)と(a2)と(b1)と(b2)とよりも高い温度で行われる、請求項１０に記載の基板処理方法。

[請求項12] (a1)と(a2)と(b1)と(b2)とを所定回数行った後に、

(c1)前記基板に対して、前記第１改質ガスと前記第２改質ガスよりも分解温度が高い第３改質ガスを供給して、前記基板の表面の少なくとも一部を改質する工程と、(c2)前記基板に対して、第３元素を含み、前記第１処理ガスと前記第２処理ガスよりも分解温度が高い第３処理ガスを供給して、前記基板に第３元素を吸着させる工程と、をさらに有し、

(c1)と(c2)は、(a1)と(a2)と(b1)と(b2)とよりも高い温度で行われる、請求項１０に記載の基板処理方法。

[請求項13] (b1)と(b2)は、(a1)と(a2)を所定回数行った後に所定回数行われ、

前記第１改質ガスは前記第２改質ガスよりも分解温度が低い、

請求項１に記載の基板処理方法。

[請求項14] (a1)と(a2)は、(b1)と(b2)よりも低い温度で行われる、請求項１３に記載の基板処理方法。

[請求項15] 前記第１処理ガスは、前記第２処理ガスよりも分解温度が低い、請

求項１１に記載の基板処理方法。

[請求項16] (a1)と(a2)は、(b1)と(b2)よりも低い温度で行われる、請求項１５に記載の基板処理方法。

[請求項17] (a1)と(a2)を当該順に所定回数行う、請求項１３に記載の基板処理方法。

[請求項18] (b1)と(b2)を当該順に所定回数行う、請求項１３に記載の基板処理方法。

[請求項19] (b1)と(b2)は、(a1)と(a2)を所定回数行った後に所定回数行われ、

前記第１改質ガスは前記第２改質ガスよりも分解温度が低く、

前記第２改質ガスは、前記第１改質ガスが前記凹部内を改質する領域よりも前記凹部の深部側を改質する、請求項２に記載の基板処理方法。

[請求項20] (a1)と(a2)は(b1)と(b2)よりも低い温度で行われる、請求項１９に記載の基板処理方法。

[請求項21] 前記第１処理ガスは、前記第２処理ガスよりも分解温度が低い、請求項１９に記載の基板処理方法。

[請求項22] (a1)と(a2)は(b1)と(b2)よりも低い温度で行われる、請求項２１に記載の基板処理方法。

[請求項23] (a1)と(a2)を当該順に所定回数行う、請求項１９に記載の基板処理方法。

[請求項24] (b1)と(b2)を当該順に所定回数行う、請求項１９に記載の基板処理方法。

[請求項25] 前記第１改質ガスは第１ハロゲン元素を含み、前記第２改質ガスは第２ハロゲン元素を含む、請求項１～２４のいずれか一項に記載の基板処理方法。

[請求項26] 前記第１改質ガスは前記第１元素を含み、前記第２改質ガスは前記第２元素を含む、請求項１～２４のいずれか一項に記載の基板処理方法。

[請求項27] 前記第１改質ガスは第１ハロゲン元素と前記第１元素とを含み、前記第２改質ガスは第２ハロゲン元素と前記第２元素とを含む、請求項１～２４のいずれか一項に記載の基板処理方法。

[請求項28] 前記第１改質ガスと前記第２改質ガスとが、同じ元素を主元素とするガスであり、

前記第１改質ガスは、前記第２改質ガスよりも高次のガスである、

請求項１３～２４のいずれか一項に記載の基板処理方法。

[請求項29] 前記第１改質ガスと前記第２改質ガスとが、次数が等しいガスであり、

前記第１改質ガスは、前記第２改質ガスより分子の対称性が低いガスである、

請求項２８に記載の基板処理方法。

[請求項30] 前記第１処理ガスと前記第２処理ガスとが、同じ元素を主元素とするガスであり、

前記第１処理ガスは、前記第２処理ガスよりも高次のガスである、

請求項１５、１６、２１、２３のいずれか一項に記載の基板処理方法。

[請求項31] 前記第１処理ガスと前記第２処理ガスとが、次数が等しいガスであり、

前記第１処理ガスは、前記第２処理ガスより分子の対称性が低いガスである、

請求項３０に記載の基板処理方法。

[請求項32] 前記第１原料ガスと前記第２原料ガスとが、同じ元素を主元素とするガスであり、

前記第１原料ガスは、前記第２原料ガスよりも高次のガスである、請求項７または８に記載の基板処理方法。

[請求項33] 前記第１原料ガスと前記第２原料ガスとが、次数が等しいガスであり、

前記第１原料ガスは、前記第２原料ガスより分子の対称性が低いガスである、

請求項３２に記載の基板処理方法。

[請求項34] (b2)では、(a2)において前記基板に吸着した前記第１の元素を含む第１の層をシード層として前記第２の元素を含む第２の層が形成される、請求項１～２４のいずれか一項に記載の基板処理方法。

[請求項35] 前記の元素は第１の１４族元素であり、前記第２の元素は第２の１４族元素である、請求項３１に記載の基板処理方法。

[請求項36] 前記第１の１４族元素と前記第２の１４族元素はシリコンである、請求項３２に記載の基板処理方法。

[請求項37] (a1)基板に対して第１改質ガスを供給して、前記基板の少なくとも一部を改質する工程と、

(a2)前記基板に対して第１元素を含む第１処理ガスを供給して、前記第１改質ガスにより改質されていない領域に優先的に前記第１元素を吸着させる工程と、

(b1)前記基板に対して前記第１改質ガスと分解温度が異なる第２改質ガスを供給して、前記基板の少なくとも一部を改質する工程と、

(b2)前記基板に対して第２元素を含む第２処理ガスを前記基板に供給して、前記第２改質ガスにより改質されていない領域に優先的に前記第２元素を吸着させる工程と、

を有する半導体装置の製造方法。

[請求項38] 基板が処理される処理室と、

前記処理室内の前記基板に対して第１改質ガスを供給する第１改質ガス供給系と、

前記処理室内の前記基板に対して第１元素を含む第１処理ガスを供給する第１処理ガス供給系と、

前記処理室内の前記基板に対して前記第１改質ガスと分解温度が異なる第２改質ガスを供給する第２改質ガス供給系と、

前記処理室内の前記基板に対して第２元素を含む第２処理ガスを供給する第２処理ガス供給系と、

前記処理室内において、(a1)前記基板に対して前記第１改質ガスを供給して、前記基板の少なくとも一部を改質する処理と、(a2)前記基板に対して前記第１処理ガスを供給して、前記第１改質ガスにより改質されていない領域に優先的に前記第１元素を吸着させる処理と、(b1)前記基板に対して前記第１改質ガスと分解温度が異なる第２改質ガスを供給して、前記基板の少なくとも一部を改質する処理と、(b2)前記基板に対して前記第２処理ガスを前記基板に供給して、前記第２改質ガスにより改質されていない領域に優先的に前記第２元素を吸着させる処理と、を実行させるように、前記第１改質ガス供給系と前記第１処理ガス供給系と前記第２改質ガス供給系と前記第２処理ガス供給系と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39] (a1)基板に対して第１改質ガスを供給して、前記基板の表面の少なくとも一部を改質する手順と、

(a2)前記基板に対して第１元素を含む第１処理ガスを供給して、前記第１改質ガスにより改質されていない領域に優先的に第１元素を吸着させる手順と、

(b1)前記基板に対して前記第１改質ガスと分解温度が異なる第２改質ガスを供給して、前記基板の表面の少なくとも一部を改質する手順と、

(b2)前記基板に対して第２元素を含む第２処理ガスを前記基板に供給して、前記第２改質ガスにより改質されていない領域に優先的に前記第２元素を吸着させる手順と、

を有する方法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。