

明 細 書

発明の名称：

基板処理方法、半導体装置の製造方法、プログラム及び基板処理装置
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、プログラム及び基板処理装置に関する。

背景技術

[0002] 基板処理工程（半導体装置の製造工程）の一工程として、ハロゲン元素を含む原料ガスと、反応ガスと、を基板に供給する処理によって、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2019/058608号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 本開示は、膜中（又は層中）における結晶粒子の配向性を制御す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、
（a）ハロゲン元素を含む原料ガスを基板に供給する工程と、
（b）反応ガスを前記基板に供給する工程と、
によって前記基板上に層を形成するサイクルを所定回数行い、前記基板上に膜を形成する工程を有し、
前記層に含まれる前記ハロゲン元素の量と、前記膜中において所定結晶面に配向する結晶粒子が占める割合と、の所定の関係に基づいて設定される形成条件下で、前記サイクルを行う、技術が提供される。

発明の効果

[0006] 本開示によれば、膜中（又は層中）における結晶粒子の配向性を制御することが可能となる。

図面の簡単な説明

[0007] [図1]図1は、基板処理装置の概略を示す縦断面図である。

[図2]図2は、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3]図3は、基板処理工程におけるガス供給のタイミングを示す図である。

[図4]図4（A）は、層に含まれるハロゲン元素の量が多くなるような条件下で、基板上に形成される膜（又は層）のイメージ図である。図4（B）は、層に含まれるハロゲン元素の量が少なくなるような条件下で、基板上に形成される膜（又は層）のイメージ図である。

[図5]図5は、変形例1におけるガス供給のタイミングを示す図である。

[図6]図6は、変形例2及び3の第1サイクルにおけるガス供給のタイミングを説明するための図である。

[図7]図7は、変形例2のフローを示す図である。

[図8]図8は、変形例3のフローを示す図である。

発明を実施するための形態

[0008] <本開示の一態様>

以下、本開示の一態様について、主に図1～図4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は、加熱手段（加熱機構、加熱系）としてのヒータ207が設けられた処理炉202を備える。ヒータ207の内側には、アウトチューブ203が配設されている。アウトチューブ203の下方には、シール

部材としてのＯリング２２０aと、マニホールド２０９が配設されている。
アウトチューブ２０３の内側には、インナチューブ２０４が配設されている。
主に、アウトチューブ２０３と、インナチューブ２０４と、マニホールド
２０９とにより処理容器（反応容器）が構成されている。インナチューブ２
０４の内側には処理室２０１が形成されている。

[0010] 処理室２０１内には、ノズル４１０、４２０、４３０が設けられている。
ノズル４１０、４２０、４３０には、ガス供給管３１０、３２０、３３０が
、それぞれ接続されている。

[0011] ノズル４１０、４２０、４３０の垂直部は、インナチューブ２０４の径方
向外向きに突出するように形成されている予備室２０１aの内部に設けられ
ている。ノズル４１０、４２０、４３０には、複数のガス供給孔４１０a、
４２０a、４３０aが設けられている。ノズル４１０、４２０、４３０に供
給されたガスは、ガス供給孔４１０a、４２０a、４３０aのそれぞれから
処理室２０１内及び／又はウエハ２００に供給される。

[0012] 処理ガスとしてのハロゲン元素を含む原料ガスは、ガス供給管３１０に設
けられる流量制御器（流量制御部）であるマスフローコントローラ（MFC
）３１２、バルブ３１４、ノズル４１０を順に介して処理室２０１内に供給
される。処理ガスとしての還元ガスは、ガス供給管３２０に設けられるMF
C３２２、バルブ３２４、ノズル４２０を順に介して処理室２０１内に供給
される。処理ガスとしての反応ガスは、ガス供給管３３０に設けられるMF
C３３２、バルブ３３４、ノズル４３０を順に介して処理室２０１内に供給
される。

[0013] ガス供給管５１０、５２０、５３０は、ガス供給管３１０、３２０、３３
０のバルブ３１４、３２４、３３４の下流側に、それぞれ接続されている。
不活性ガスは、ガス供給管５１０、５２０、５３０にそれぞれ設けられるM
FC５１２、５２２、５３２、バルブ５１４、５２４、５３４、ノズル４１
０、４２０、４３０を順に介して処理室２０１内に供給される。

[0014] 主に、ガス供給管３１０、３２０、３３０、MFC３１２、３２２、３３

2、バルブ314、324、334、ノズル410、420、430により処理ガス供給系が構成される。ノズル410、420、430のみを処理ガス供給系と考えてもよい。また、処理ガス供給系は単にガス供給系と称してもよい。主に、ガス供給管310から原料ガスを流す場合、ガス供給管310、MFC312、バルブ314により原料ガス供給系が構成される。ノズル410を原料ガス供給系に含めて考えてもよい。また、主に、ガス供給管320から還元ガスを流す場合、ガス供給管320、MFC322、バルブ324により還元ガス供給系が構成される。ノズル420を還元ガス供給系に含めて考えてもよい。また、主に、ガス供給管330から反応ガスを流す場合、ガス供給管330、MFC332、バルブ334により反応ガス供給系が構成される。ノズル430を反応ガス供給系に含めて考えてもよい。主に、ガス供給管510、520、530、MFC512、522、532、バルブ514、524、534により不活性ガス供給系が構成される。

[0015] 排気孔（排気口）204aは、インナチューブ204の側壁に形成された貫通孔である。処理室201内に供給されたガスは、ウエハ200上を水平方向に流れた後、排気孔204a、インナチューブ204とアウトチューブ203との間に形成された排気路206、排気管231を順に介して、処理炉202外へと排出される。

[0016] 排気管231には、上流側から順に、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、APC（Auto Pressure Controller）バルブ243、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243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内の真空排気及び真空排気停止を行うことができる。更に、真空ポンプ246を作動させた状態で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。主に、排気孔204a、排気路206、排気管231、APCバルブ243及び圧力センサ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。

- [0017] マニホールド209の下方には、シール部材としてのリング220bと、マニホールド209の下端開口を閉塞可能なシールキャップ219と、が設けられている。シールキャップ219には、回転軸255を回転させることで、ポート217及びウエハ200を回転させるように構成される回転機構267が設けられている。昇降機構としてのポートエレベータ115は、シールキャップ219を昇降させることで、ポート217を処理室201内外に搬入及び搬出することが可能なように構成されている。
- [0018] 基板支持具としてのポート217は、複数枚、例えば25～200枚のウエハ200を、水平姿勢で支持する。ポート217の下部には、断熱筒218が設けられている。なお、本開示における「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。
- [0019] インナチューブ204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への通電量を調整することで、処理室201内の温度が所望の温度分布となるように構成されている。
- [0020] 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121c, 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。
- [0021] 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、後述する基板処理方法又は半導体

装置の製造方法の手順や条件などが記載されたプロセスレシピなどが、読み出し可能に格納されている。プロセスレシピは、後述する半導体装置の製造方法における各工程（各ステップ）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、制御プログラム等を総称して、単に、プログラムともいう。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、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、プロセスレシピ及び制御プログラムの組み合わせを含む場合がある。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。

[0022] Ｉ／Ｏポート１２１ｄは、上述のＭＦＣ３１２、３２２、３３２、５１２、５２２、５３２、バルブ３１４、３２４、３３４、５１４、５２４、５３４、圧力センサ２４５、ＡＰＣバルブ２４３、真空ポンプ２４６、ヒータ２０７、温度センサ２６３、回転機構２６７、ボートエレベータ１１５等に接続されている。

[0023] 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からレシピ等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、ＭＦＣ３１２、３２２、３３２、５１２、５２２、５３２による各種ガスの流量調整動作、バルブ３１４、３２４、３３４、５１４、５２４、５３４の開閉動作、ＡＰＣバルブ２４３の開閉動作及びＡＰＣバルブ２４３による圧力センサ２４５に基づく圧力調整動作、温度センサ２６３に基づくヒータ２０７の温度調整動作、真空ポンプ２４６の起動及び停止、回転機構２６７によるボート２１７の回転及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、ボート２１７へのウエハ２００の収容動作等を制御するように構成されている。

[0024] コントローラ 121 は、外部記憶装置（例えば、磁気テープ、フレキシブルディスクやハードディスク等の磁気ディスク、CDやDVD等の光ディスク、MO等の光磁気ディスク、USBメモリやメモリカード等の半導体メモリ）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。記憶装置 121c や外部記憶装置 123 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、その両方を含む場合がある。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。

[0025] (2) 基板処理工程（成膜工程）

半導体装置（デバイス）の製造工程の一工程として、ウエハ 200 上に、所定の膜を形成する工程の一例について、図 3 を用いて説明する。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。

[0026] 本明細書では、図 3 に示す基板処理工程を、便宜上、以下のように示すこともある。以下の変形例の説明においても、同様の表記を用いる。

[0027] (原料ガス→原料ガス+還元ガス→還元ガス→ガス除去→反応ガス→ガス除去) × n ⇒ 所定の膜

[0028] 本明細書において用いる「ウエハ」という用語は、ウエハそのものを意味する場合や、ウエハ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「ウエハの表面」という言葉は、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。

[0029] (ウエハ搬入)

複数枚のウエハ200がボート217に装填される。その後、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内に搬入される。図1に示されるように、シールキャップ219はアウタチューブ203の下端開口を閉塞した状態となる。

[0030] (圧力調整および温度調整)

処理室201内が所望の圧力(真空度)となるように真空ポンプ246によって真空排気される(排気動作)。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243がフィードバック制御される(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207によって加熱される。また、回転機構267によるボート217およびウエハ200の回転(回転動作)を開始する。排気動作及び回転動作は、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。

[0031] (原料ガス供給、ステップS11)

バルブ314、514を開き、ガス供給管310内にハロゲン元素を含む原料ガスを、510内に不活性ガスを、それぞれ流す。原料ガスと不活性ガスは、ノズル410のガス供給孔410aから処理室201内及びウエハ200に供給され、排気管231から排気される。このとき、ノズル420、430内への原料ガスの侵入を防止するために、バルブ524、534を開き、ガス供給管520、530内に不活性ガスを流す。

[0032] 本ステップにて原料ガスを供給する際における処理条件としては、

処理温度：300～600℃、好ましくは400～560℃、さらに好ましくは450～530℃

処理圧力：1～3990Pa

原料ガス供給流量：0.1～2.0slm

不活性ガス供給流量（各ノズル）：0.1～20slm

が例示される。なお、処理速度向上の観点からは、特に処理温度を、いずれのステップにおいても実質的に同じ温度とすることが好ましい。

[0033] なお、本開示における処理温度とはウェハ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。

[0034] 原料ガスの供給により、ウェハ200（表面の下地膜）上に所定元素とハロゲン元素を含む層Aが形成される。なお、以下の説明では「層A」という用語に加えて「改質層」という用語が用いられる。本開示における「層」という用語は、層Aと改質層との総称として用いられてもよく、層Aと改質層とのうち一方として用いられてもよい。

[0035] 原料ガスとしては、所定元素とハロゲン元素を含むガスを用いることができる。所定元素としては、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）等のうち1つ以上を用いることができる。ハロゲン元素としては、フッ素（F）、塩素（Cl）等のうち1つ以上を用いることができる。原料ガスとして、プラズマ等によって活性化させたガスを用いてもよい。

[0036] 所定元素とハロゲン元素を含むガスとしては、例えば、六塩化タングステン（ WCl_6 ）、六フッ化タングステン（ WF_6 ）、四塩化チタン（ $TiCl_4$ ）、四フッ化チタン（ TiF_4 ）、五塩化モリブデン（ $MoCl_5$ ）、五フッ化モリブデン（ 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 ）、三塩化ルテニウム（ $RuCl_3$ ）、三フッ化ルテニウム（ RuF_3 ）、

四塩化ハフニウム (HfCl_4)、四フッ化ハフニウム (HfF_4)、四塩化ジルコニウム (ZrCl_4)、四フッ化ジルコニウム (ZrF_4)、三塩化アルミニウム (AlCl_3)、三フッ化アルミニウム (AlF_3)、ジクロロシラン (SiH_2Cl_2)、1, 2-ジクロロジシラン ($\text{Si}_2\text{H}_4\text{Cl}_2$)、1, 1, 1-トリクロロジシラン ($\text{Si}_2\text{H}_3\text{Cl}_3$)、1, 1, 2-トリクロロジシラン ($\text{Si}_2\text{H}_3\text{Cl}_3$)、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。原料ガスとしては、これらのうち1つ以上を用いることができる。

[0037] 不活性ガスとしては、例えば窒素 (N_2) ガスの他、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。不活性ガスとしては、以下の説明においても同様である。

[0038] (原料ガスと還元ガスの同時供給、ステップS12)

原料ガスの供給開始から所定時間経過後であって、例えば0.01～5秒後に、バルブ324、524を開き、ガス供給管320内に還元ガスを、ガス供給管520内に不活性ガスを、それぞれ流す。還元ガスと不活性ガスは、ノズル420のガス供給孔420aから処理室201内に供給され、排気管231から排気される。ここで、処理室201内への原料ガスの供給は、ステップS11から継続して行われている。すなわち、原料ガスの供給と少なくとも一部同時に還元ガスの供給を行う。言い換えると、ウエハ200に対して原料ガスと還元ガスが同時に供給される。このとき、ノズル430内への原料ガスと還元ガスの侵入を防止するために、バルブ534を開き、ガス供給管530内に不活性ガスを流す。

[0039] 還元ガスの供給により、層中に含まれるハロゲン元素の少なくとも一部を除去することができる。また、ウエハ200上に吸着する前のハロゲン元素を含む副生成物を還元し、処理室201から除去することができる。したが

って、層に含まれるハロゲン元素の量を制御することができる。さらに、ウエハ200上に吸着した副生成物による層の形成の阻害を抑制でき、成膜レートを向上させることができる。

[0040] また、原料ガスと還元ガスの同時供給により、ハロゲン元素を含む副生成物がウエハ200に吸着する量をさらに少なくすることができる。そのため、成膜レートをさらに向上させることができる。

[0041] 本ステップにて原料ガスと還元ガスを供給する際における処理条件としては、

処理圧力：130～3990 Pa

還元ガス供給流量：0.1～5 slm

不活性ガス供給流量（各ノズル）：0.01～20 slm

が例示される。他の処理条件は、原料ガスを供給する際における処理条件と同様とすることができる。本ステップは、例えば0～10秒間行われる。

[0042] 還元ガスとして、膜の主構成元素を含まないガスを用いることができる。この場合、原料ガスと還元ガスとの反応や、反応ガスと還元ガスとの反応が起こりにくい。このため、原料ガスや反応ガスが処理室201から十分に除去される前に還元ガスの供給を開始することができる。よって、処理時間の増加を抑制することができる。

[0043] 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 ）ガス、トリメチルアルミニウム（ $(CH_3)_3Al$ ）ガス、ホスフィン（ PH_3 ）ガス、等のうち1つ以上を用いることができる。

[0044] （還元ガス供給、ステップS13）

原料ガスの供給を開始してから、例えば0.01～10秒後であり、還元ガスの供給の終了よりも前に、ガス供給管310のバルブ314を閉じて、原料ガスの供給を停止する。このとき、ウエハ200に対して還元ガスが供

給される。このとき、ノズル410、430内への還元ガスの侵入を防止するために、バルブ514、534を開き、ガス供給管510、530内に不活性ガスを流す。

[0045] 原料ガスの供給を停止した後の還元ガスの供給により、層中に含まれるハロゲン元素をさらに除去することができる。したがって、層に含まれるハロゲン元素の量を制御することができる。さらに、ウエハ200上に吸着した副生成物による層の形成の阻害を抑制でき、成膜レートを向上させることができる。

[0046] (残留ガス除去、ステップS14)

還元ガスの供給を開始してから、例えば0.01～10秒後であり、原料ガスの供給の終了よりも後に、バルブ324を閉じて、還元ガスの供給を停止する。このとき排気管231のAPCバルブ243は開いたままとして、真空ポンプ246により処理室201内を真空排気する。これにより、ウエハ200が存在する空間内のガス除去を行う。このときバルブ514、524、534は開いたままとして、不活性ガスの処理室201内への供給を維持してもよい。不活性ガスはパージガスとして作用し、処理室201内からのガス除去を効率的に行うことができる。

[0047] (反応ガス供給、ステップS15)

次に、バルブ334、534を開き、ガス供給管330内に反応ガスを、ガス供給管530内に不活性ガスを、それぞれ流す。反応ガスと不活性ガスは、ノズル430のガス供給孔430aから処理室201内に供給され、排気管231から排気される。このときウエハ200に対して、反応ガスが供給される。このとき、ノズル410、420内への反応ガスの侵入を防止するために、バルブ514、524を開き、ガス供給管510、520内に不活性ガスを流す。反応ガスは、ウエハ200上の層Aの少なくとも一部と反応して、改質層を形成する。言い換えると、反応ガスは、ウエハ200上の層Aの少なくとも一部を改質して、改質層を形成する。

[0048] 本ステップにて反応ガスを供給する際における処理条件としては、

処理圧力：1～3990 Pa

反応ガス供給流量：0.1～30 slm

反応ガス供給時間：0.01～30 秒

不活性ガス供給流量（各ノズル）：0.1～30 slm

が例示される。他の処理条件は、原料ガスを供給する際における処理条件と同様とすることができる。

[0049] 反応ガスとしては、例えば、上述した還元ガス、酸素（O）を含む酸化ガス、窒素（N）を含む窒化ガス、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つ以上を用いることができる。反応ガスとして、プラズマ等によって活性化させたガスを用いてもよい。例えば、反応ガスを還元ガスとした場合、上述の所定元素の単体によって主に構成される膜をウエハ200上に形成することができる。また、例えば、反応ガスとして酸化ガス、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つを用いた場合、上述の所定元素を含む、酸化膜、窒化膜、硫化膜、セレン化膜、テルル化膜のうちいずれかをウエハ200上に形成することができる。

[0050] 酸化ガスとしては、例えば、酸素（O₂）、オゾン（O₃）、水蒸気（H₂O）、H₂及びO₂の混合ガス、過酸化水素（H₂O₂）、亜酸化窒素（N₂O）、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（NH₃）ガス、ジアゼン（N₂H₂）ガス、ヒドラジン（N₂H₄）ガス、N₃H₈ガス等の窒化水素系ガスのうち1つ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（H₂S）、ジスルファン（H₂S₂）、ジアンモニウムスルフィド（（NH₄）₂S）、ジメチルスルフィド（（CH₃）₂S）等を含むガスのうち1つ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（H₂Se）、ジセラン（H₂Se₂）、ジメチルセレン（（CH₃）₂Se）等を含むガスのうち1つ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（H₂Te）、ジテラン（H₂Te₂）、ジメチルセレン（（CH₃）₂Te）等を含むガスのうち1つ以

上を用いることができる。

[0051] (残留ガス除去、ステップS 1 6)

反応ガスの供給を開始してから、例えば0. 0 1～6 0秒後に、バルブ3 3 4 を閉じて、反応ガスの供給を停止する。そして、上述したステップS 1 4 と同様の処理手順により、ウエハ2 0 0 が存在する空間内のガス除去を行う。

[0052] (所定回数実施、ステップS 1 7)

上記したステップS 1 1～ステップS 1 6によってウエハ2 0 0上に層を形成するサイクルを所定回数(n回、nは1又は2以上の整数)行うことにより、ウエハ2 0 0上に、所定の厚さの膜を形成する。膜として、例えば主に窒化チタン(T i N)により構成される膜であるT i N膜が形成される。ここで、NAND型フラッシュメモリのコントロールゲートには例えばタングステン(W)膜が用いられており、W膜と絶縁膜との間にバリア膜としてT i N膜を形成することがある。このT i N膜は、W膜と絶縁膜の密着性を高める役割をする。

[0053] 一般的に、膜を形成する際の温度が高くなるほど、膜中の全ての結晶粒子に対する所定の結晶面に配向する結晶粒子の割合は増加しやすい。例えば、T i N膜を形成する際の温度が高いほど、所定結晶面(例えばT i N膜の場合には、T i Nの結晶格子における{1 1 1}面)に配向する結晶粒子が占める割合が高くなる。ここで、「所定結晶面(例えば{1 1 1}面)に配向する結晶粒子が占める割合が高い」とは、「所定結晶面への配向性が高い」ということもできる。また、「所定結晶面に配向する結晶粒子」とは、「ウエハ2 0 0の表面に垂直な方向に所定結晶面を向けて成長する結晶粒子」である。

[0054] ここで、所定元素としてのT iとハロゲン元素としてのC lを有する原料ガスと、窒化ガスである反応ガスと、を用いてウエハ2 0 0上にT i N層及びT i N膜を形成する例について考える。このような場合、原料ガスの分子構造中のT i－C l結合や、ハロゲン化物等の副生成物(例えばH C l)が

層に吸着することで生成するN-CI結合等が、TiN層中に残存することがある。図4（A）は、TiN層に含まれるCIの量が多くなるような条件下で、ウェハ200上にTiN膜（又はTiN層）を形成する際のイメージ図である。図4（B）は、TiN層に含まれるCIの量が少なくなるような条件で、ウェハ200上にTiN膜（又はTiN層）を形成する際のイメージ図である。

[0055] 図4（B）に示されるように、TiN層に含まれるハロゲン元素の量が少ないと、原子の配列が乱れたTiN結晶粒子が少なくなる。これにより、TiNの結晶粒子が整列しやすくなるため、{111}面の配向性が高くなりやすい。{111}面の配向性が高いTiN膜は、TiN結晶粒子間にすき間が形成されやすい。このため、大気中の酸素や水分、他の工程で使用される様々な処理液や処理ガス等がこのすき間に入り込むことにより、TiN膜の酸化や膜質の劣化につながる場合がある。

[0056] これに対して、図4（A）に示されるように、TiN層に含まれるハロゲン元素の量が多いと、原子の配列が乱れたTiN結晶粒子が増加する。これにより、所定の結晶面以外に配向する結晶粒子の割合が増加するため、{111}面の配向性が低くなる。このため、TiN膜の酸化や膜質の劣化につながる物質がTiN結晶粒子間に入り込みにくくなり、膜質が改善される。

[0057] すなわち、層に含まれるハロゲン元素の量の増加に伴って、膜中の所定結晶面の配向性が低下する、という関係が成り立つ。つまり、層に含まれるハロゲン元素の量と、膜中において所定結晶面に配向する結晶粒子が占める割合（膜中における所定結晶面の配向性）と、は所定の関係を有する、と言える。さらに、所定の関係に基づいて設定される層を形成する際の条件（以下、「形成条件」とする）の下で上記サイクルを行うことで、膜中（又は層中）における所定結晶面の配向性を制御することができる、と言える。

[0058] 次に、層に含まれるハロゲン元素の量を制御するような形成条件の設定例について説明する。また、上述の基板処理工程と異なる形成条件（以下、「従来条件」とする）を用いて膜を形成する場合と比較して、層に含まれるハ

ロゲン元素の量を多くするような形成条件の設定例についても、併せて説明する。

[0059] 例えば、上記サイクル中における原料ガスの曝露量、還元ガスの曝露量、及び反応ガスの曝露量のうち少なくとも1つを制御して、上記サイクルを行う。これにより、層に含まれるハロゲン元素の量を制御することができる。

[0060] 具体的には、原料ガスの曝露量を従来条件よりも多くすることにより、層に含まれるハロゲン元素の量を従来条件よりも多くすることができる。また、従来条件と比較して、ステップS 1 1 及び／又はS 1 2において原料ガスの供給時間を長くする、原料ガスの分圧を高くする、原料ガス供給時の処理圧力を高くする、原料ガスのモル分率を大きくする、原料ガスの供給流量を多くする、原料ガスと同時に供給する不活性ガスの流量を少なくする、等のうち少なくとも1つによって、原料ガスの曝露量を従来条件よりも多くすることができる。

[0061] ここで、「原料ガスの曝露量」は、例えば、「原料ガスを供給する工程での、ウエハ200が存在する空間内の原料ガスの分圧を、原料ガスの供給の開始から終了までの時間（以下、「原料ガスの供給時間」とする）によって積分した値」として計算される。また、「原料ガスの分圧」は、例えば「ウエハ200が存在する空間内における、原料ガスのモル分率及び処理圧力の積を時間積分した値」として計算される。以下、他のガスにおいても同様である。

[0062] また、還元ガスの曝露量を従来条件よりも少なくすることにより、層に含まれるハロゲン元素の量を従来条件よりも多くすることができる。また、従来条件と比較して、ステップS 1 2 及び／又はS 1 3において還元ガスの供給時間を短くする、還元ガスの分圧を低くする、還元ガス供給時の処理圧力を低くする、還元ガスのモル分率を小さくする、還元ガスの供給流量を少なくする、原料ガスと同時に供給する不活性ガスの供給流量を少なくする、等のうち少なくとも1つにより、還元ガスの曝露量を従来条件よりも少なくすることができる。

- [0063] また、反応ガスの曝露量を従来条件よりも少なくすることにより、層に含まれるハロゲン元素の量を従来条件よりも多くすることができる。また、従来条件と比較して、ステップS 1 5において反応ガスの供給時間を短くする、反応ガスの分圧を低くする、反応ガス供給時の処理圧力を低くする、反応ガスのモル分率を小さくする、反応ガスの供給流量を少なくする、反応ガスと同時に供給する不活性ガスの流量を多くする、等のうち少なくとも1つを制御することにより、反応ガスの曝露量を従来条件よりも少なくすることができる。
- [0064] また、上述したステップS 1 2の長さ、すなわち、原料ガス供給と還元ガス供給が同時に行われる期間の長さ（以下、同時供給時間とする）を制御して、上記サイクルを行うようにしてもよい。これにより、層に含まれるハロゲン元素の量を制御することができる。例えば、原料ガス供給と還元ガス供給の同時供給時間を従来条件よりも短くすると、層に含まれるハロゲン元素の量を従来条件よりも多くすることができる。
- [0065] また、上述したステップS 1 4とS 1 6のうち一方又は両方における残留ガス除去の条件を制御して、上記サイクルを行うようにしてもよい。これにより、層に含まれるハロゲン元素の量を制御することができる。具体的には、残留ガス除去を行う時間、残留ガス除去における処理圧力、残留ガス除去におけるパージガスの供給流量、のうち少なくとも1つを、残留ガス除去の条件として制御するようにしてもよい。これにより、層に含まれるハロゲン元素の量を制御することができる。
- [0066] 具体的には、残留ガス除去を行う時間を従来条件よりも短くすることにより、層に含まれるハロゲン元素の量を従来条件よりも多くすることができる。また、残留ガス除去における処理圧力を従来条件よりも高くすることにより、層に含まれるハロゲン元素の量を従来条件よりも多くすることができる。また、残留ガス除去におけるパージガスの供給流量を従来条件よりも少なくすることにより、層に含まれるハロゲン元素の量を従来条件よりも多くすることができる。

- [0067] 例えば、X線回折（XRD：X-ray Diffraction）測定によって、所定結晶面によるX線回折の強度と、他の1つ以上の結晶面によるX線回折の強度と、の比較によって、膜の配向性を評価できる。なお、X線回折ではない手法によって膜の配向性を評価してもよい。
- [0068] 例えば、層に含まれるハロゲン元素の量が互いに異なる2つ以上の形成条件を用いて形成された2つ以上の膜について、それぞれの配向性を評価してもよい。これにより、層に含まれるハロゲン元素の量と、膜中における所定結晶面の配向性と、の所定の関係を導出することができる。
- [0069] TiN膜を形成する際、処理温度が300℃未満の場合、処理ガス（原料ガスや反応ガス、還元ガス）の反応性が低いために層の形成が進行しにくくなる。処理温度が600℃より大きい場合、処理ガスの熱分解が進みやすくなるため、ウェハ200上に形成された凹部（トレンチやホール）内に厚さが均一なTiN膜を形成しにくくなる。従って、処理温度を300～600℃とすることで、TiN層の形成を進行させやすくしつつ、厚さが均一なTiN膜を形成しやすくなることができる。
- [0070] また、処理温度を400℃以上とすることで、処理ガスの反応性がさらに高くなるため、TiN膜の電気特性を向上させることができる。処理温度が560℃以下の場合、処理ガスの熱分解がさらに進みにくくなるため、凹部内に厚さが均一なTiN膜をさらに形成しやすくなる。従って、TiN膜を形成する際には、処理温度を400～560℃とすることが好ましい。
- [0071] また、処理温度を450℃以上とすることで、処理ガスの反応性がさらに高くなるため、TiN膜の電気特性をさらに向上させることができる。加えて、処理温度を450℃以上とした場合、TiN膜の{111}面の配向性が高まることによる膜質の低下が起こりやすくなる。このような場合であっても本開示の技術を用いることでTiN膜の{111}面の配向性を低下させることができる。処理温度が530℃以下の場合、処理ガスの熱分解がさらに進みにくくなるため、凹部内に厚さが均一なTiN膜をさらに形成しやすくなる。従って、TiN膜を形成する際には、処理温度を450～530

℃とすることがさらに好ましい。

[0072] (アフターパージおよび大気圧復帰)

ガス供給管510, 520, 530のそれぞれから不活性ガスを処理室201内へ供給し、排気管231から排気する。その後、処理室201内の雰囲気の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。

[0073] (ウエハ搬出)

ボートエレベータ115によりシールキャップ219が下降されて、ボート217に支持されたウエハ200が処理室201の外部に搬出される。その後、ウエハ200は、ボート217より取り出される。

[0074] なお、上述の基板処理工程において、ステップS12(原料ガスと還元ガスの同時供給)とステップS13(還元ガス供給)とを省略してもよい。具体的には、図7に示すように、ステップS11、ステップ14～ステップS16によってウエハ200上に層を形成するサイクルを所定回数行うようにしてもよい。この場合においても、上述された効果のうち少なくとも一部を得ることができる。

[0075] (3) 変形例

本態様における基板処理工程は、図3に示す態様に限定されず、以下に示す変形例のように変更することができる。

[0076] (変形例1)

本変形例は、図5に示されるように、原料ガスの供給終了と同時に、還元ガスの供給を開始する点のみ、上述した基板処理工程と異なる。本変形例の基板処理工程を、以下のように示すこともできる。

[0077] (原料ガス→還元ガス→ガス除去→反応ガス→ガス除去) × n ⇒ 所定の膜

[0078] 本変形例においても、層に含まれるハロゲン元素の量を制御することができ、上述した態様と同様の効果が得られる。また、本変形例においては、上述の形態よりもさらに処理時間を短くして、スループットを向上させることができる。なお、原料ガスの供給終了と、還元ガスの供給開始と、の間にガ

ス除去を行う場合にも、同様の効果を得ることができる。

[0079] (変形例2)

本変形例では、図7に示すように、層に含まれるハロゲン元素の量が多くなる形成条件により第1の層を形成した後に、層に含まれるハロゲン元素の量が少なくなる形成条件により第2の層を形成することにより、ウエハ200上に膜を形成する工程を行う。つまり、膜の形成において、形成条件を少なくとも1回変更して、層に含まれるハロゲン元素の量を変化させる。

[0080] 具体的には、図6に示されるように、原料ガス供給と、残留ガス除去と、反応ガス供給と、残留ガス除去と、を有するサイクル（以下、「第1サイクル」とする）を所定回数（m回、mは1又は2以上の整数）行う工程を行うことで第1の層を形成する。その後に、図3に示されている基板処理工程（以下、「第2サイクル」とする）を行うことで第2の層を形成する。なお、第1サイクルのようなシーケンスにおいても、上述された効果のうち少なくとも一部を得ることができる。

[0081] ここで、第1サイクルは第2サイクルにおける還元ガスの供給工程が無いため、第1の層に含まれるハロゲン元素の量は第2の層よりも多くなる。すなわち、本変形例では、ウエハ200上にハロゲン元素の含有量の多い第1の層を形成した後に、ハロゲン元素の含有量の少ない第2の層を形成して、所定の膜を形成する。本変形例の基板処理工程を、以下のように示すこともできる。

[0082] (原料ガス→ガス除去→反応ガス→ガス除去) × m

→ (原料ガス→原料ガス+還元ガス→還元ガス→ガス除去→反応ガス→ガス除去) × n

⇒所定の膜（第2の層／第1の層）

[0083] 本変形例において、第1の層を形成する際における処理手順や処理条件は、例えば、図3に示す基板処理工程における原料ガス供給と、ガス除去と、反応ガス供給と、ガス除去と、それぞれ同様とすることができる。

[0084] 本変形例において、第1の層は第2の層よりもハロゲン元素が多く含まれ

るため、所定結晶面に配向する結晶粒子の割合は第1の層の方が低くなる。そして、第2の層の少なくとも一部は、結晶成長した第1の層中の結晶粒子を含むことになるため、第2の層の配向性は第1の層の配向性と同様になりやすい。そのため、第1サイクルと比較して、層に含まれるハロゲン元素が少なくなる条件下で第2サイクルを行っているにも関わらず、所定結晶面の配向性が低い膜を形成することができる。つまり、本変形例では、膜全体に含まれるハロゲン元素の量を減少させることができる。よって膜の電気特性を改善させることができる。さらに、第2サイクルにおいて、原料ガスや反応ガスの吸着の阻害要因となる層中のハロゲン元素の量が減少する。これにより、第2サイクル及び膜の形成全体における成膜レートを向上させることができる。

[0085] なお、第2サイクルとして、図6に示されるサイクルを行うようにしてもよい。また、第1サイクルとして、図3に示されるサイクルを行うようにしてもよい。これらの場合、第1サイクル及び第2サイクルにおける形成条件のうち少なくとも1つを互いに異ならせることで、第1層と第2層とにそれぞれ含まれるハロゲン元素の量を異ならせることができる。これらの変形例の基板処理工程を、それぞれ以下のように示すこともできる。

[0086] (原料ガス→ガス除去→反応ガス→ガス除去) × m
→ (原料ガス→ガス除去→反応ガス→ガス除去) × n
⇒所定の膜(第2の層/第1の層)

[0087] (原料ガス→原料ガス+還元ガス→還元ガス→ガス除去→反応ガス→ガス除去) × m
→ (原料ガス→原料ガス+還元ガス→還元ガス→ガス除去→反応ガス→ガス除去) × n
⇒所定の膜(第2の層/第1の層)

[0088] なお、ウェハ200上にハロゲン元素の含有量の少ない層を形成した後に、ハロゲン元素の含有量の多い層を形成することで、所定の膜を形成してもよい。本変形例においても、上述した効果のうち少なくとも一部が得られる

。また、膜の形成において、形成条件を2回以上変更してもよく、形成条件をサイクル毎に連続して変更してもよい。この場合であっても、上述した効果のうち少なくとも一部が得られる。

[0089] また、例えば、第1サイクルを行う回数 m 、第2サイクルを行う回数 n 、 m に対する n の比の値 n/m 、及び、 n に対する m の比の値 m/n 、のうち少なくとも1つによって、形成される膜の配向性を制御してもよい。このような場合であっても、上述した効果のうち少なくとも一部が得られる。なお、 m 、 n 、 n/m 及び m/n のうち少なくとも1つを、上述の形成条件に含めてもよい。

[0090] 例えば、従来条件と比較して、 m を増加させ、 n を減少させる（すなわち、 n/m を減少させる、 m/n を増加させる）場合、層に含まれるハロゲン元素の量を従来条件よりも多くすることができる。そのため、従来条件よりも所定結晶面の配向性が低い膜を形成することができる。

[0091] （変形例3）

本変形例では、上述した変形例2における m 、 n 、 n/m 及び m/n を、膜の形成中に少なくとも1回変更させる。本変形例における基板処理のフローを図8に示す。本変形例では、第1サイクルを m 回行う工程と、第2サイクルを n 回行う工程と、を行う。これにより、ウエハ200上に第3の層を形成する。その後、第1サイクルを m' 回行う工程と、第2サイクルを n' 回行う工程と、を行うことにより第3の層の上に第4の層を形成する。以下、 $m > m'$ であり、 $n < n'$ である場合を例に説明する。本変形例の基板処理工程を、以下のように示すこともできる。

[0092] （原料ガス→ガス除去→反応ガス→ガス除去）× m

→（原料ガス→原料ガス+還元ガス→還元ガス→ガス除去→反応ガス→ガス除去）× n

→（原料ガス→ガス除去→反応ガス→ガス除去）× m'

→（原料ガス→原料ガス+還元ガス→還元ガス→ガス除去→反応ガス→ガス除去）× n'

⇒所定の膜（第４の層／第３の層）

[0093] 第３の層を形成する工程では、第４の層を形成する工程よりも、第１サイクルの回数が多く、第２サイクルの回数が少ない。このため、第３の層に含まれるハロゲン元素の量が、第４の層に含まれるハロゲン元素の量よりも多くなる。言い換えると、ウエハ２００上にハロゲン元素の含有量の多い第３の層を形成した後に、ハロゲン元素の含有量の少ない第４の層を形成することで、所定の膜を形成している。

[0094] この場合、変形例２で述べたように、第４の層の少なくとも一部は結晶成長した第３の層中の結晶粒子を含むことになるため、第４の層の配向性は第３の層の配向性と同様になりやすい。従って、本変形例においても、変形例２と同様の効果を得ることができる。

[0095] なお、第３層の形成又は第４層の形成において第１サイクルを行わなくてもよく、第３層の形成又は第４層の形成において第２サイクルを行わなくてもよい。すなわち、 m 又は m' のうち一方は０であってもよく、 n 又は n' のうち一方は０であってもよい。

[0096] （４）他の態様

上記態様及び変形例では、還元ガスとして、膜の主構成元素を含まないガスを用いる場合を例にして説明した。しかし、本開示の技術は、これに限定されるものではない。還元ガスとして、例えば膜の主構成元素を含み、反応ガスと分子構造が異なるガスを用いてもよい。例えば、反応ガスが窒化ガスである場合には、還元ガスとして、上述の窒化ガスのうち反応ガスと分子構造が異なる窒化ガスを用いてもよい。

[0097] また、上記態様及び変形例では、一度に複数枚のウエハ２００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枚または数枚のウエハ２００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。

[0098] 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。

[0099] 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

[0100] 200 ウエハ（基板）

請求の範囲

- [請求項1] (a) ハロゲン元素を含む原料ガスを基板に供給する工程と、
 (b) 反応ガスを前記基板に供給する工程と、
 によって前記基板上に層を形成するサイクルを所定回数行い、前記
 基板上に膜を形成する工程を有し、
 前記層に含まれる前記ハロゲン元素の量と、前記膜中において所定
 結晶面に配向する結晶粒子が占める割合と、の所定の関係に基づいて
 設定される形成条件下で、前記サイクルを行う、
 基板処理方法。
- [請求項2] 前記膜の形成において、前記形成条件を少なくとも1回変更して、
 前記層に含まれる前記ハロゲン元素の量を変化させる、請求項1に記載
 の基板処理方法。
- [請求項3] 前記変更の後に形成される前記層に含まれる前記ハロゲン元素の量
 を、前記変更の前に形成される前記層に含まれる前記ハロゲン元素の
 量よりも少なくする、請求項2に記載の基板処理方法。
- [請求項4] 前記サイクルは、第1サイクルと第2サイクルとを含み、
 前記第2サイクルにおいて形成される前記層に含まれるハロゲン元
 素の量が前記第1サイクルにおいて形成される前記層に含まれるハロ
 ゲン元素の量と異なるように、前記第2サイクルの前記形成条件を設
 定し、
 前記第1サイクルを行う回数 m 、前記第2サイクルを行う回数 n 、
 前記 m に対する前記 n の比の値 n/m 、及び、前記 n に対する前記 m
 の比の値 m/n のうち少なくとも1つによって前記割合を制御する、
 請求項2に記載の基板処理方法。
- [請求項5] 前記 m 、前記 n 、前記 n/m 、及び、前記 m/n のうち少なくとも
 1つを、前記膜の形成において少なくとも1回変更する、請求項4に
 記載の基板処理方法。
- [請求項6] 前記形成条件は、(a)における前記原料ガスの曝露量及び(b)

における前記反応ガスの曝露量のうち一方又は両方を含む、請求項 1～5 のいずれか 1 項に記載の基板処理方法。

- [請求項7] 前記膜の形成は、
(c) 還元ガスを前記基板に供給する工程、
をさらに有する、
請求項 1～5 のいずれか 1 項に記載の基板処理方法。
- [請求項8] 前記還元ガスは、前記膜の主構成元素を含まない、請求項 7 に記載の基板処理方法。
- [請求項9] (a) と少なくとも一部同時に (c) を行う、請求項 8 に記載の基板処理方法。
- [請求項10] 前記形成条件は、(a) 及び (c) が同時に行われる期間の長さを含む、請求項 9 に記載の基板処理方法。
- [請求項11] (a) の終了と同時に (c) を開始する、請求項 8 に記載の基板処理方法。
- [請求項12] 前記形成条件は、(a) における前記原料ガスの曝露量、(b) における前記反応ガスの曝露量、及び、(c) における前記還元ガスの曝露量、のうち少なくとも 1 つを含む、請求項 7 に記載の基板処理方法。
- [請求項13] 前記膜の形成は、
(d) 前記基板が存在する空間内のガス除去を行う工程、
をさらに有し、
前記形成条件は前記ガス除去の条件を含む、
請求項 1～5 のいずれか 1 項に記載の基板処理方法。
- [請求項14] 前記ガス除去の条件は、前記ガス除去を行う時間、前記ガス除去中における前記空間内の圧力、前記ガス除去中におけるパージガスの供給流量、のうち少なくとも 1 つを含む、請求項 13 に記載の基板処理方法。
- [請求項15] 前記還元ガスは、前記膜の主構成元素を含み、前記反応ガスと分子

構造が異なるガスである、請求項 7 に記載の基板処理方法。

- [請求項16] 前記膜は窒化チタン膜である、
請求項 1 ～ 5 のいずれか 1 項に記載の基板処理方法。
- [請求項17] 前記所定結晶面は、窒化チタンの結晶格子における { 1 1 1 } 面である、請求項 1 6 に記載の基板処理方法。
- [請求項18] (a) ハロゲン元素を含む原料ガスを基板に供給する工程と、
(b) 反応ガスを前記基板に供給する工程と、
によって前記基板上に層を形成するサイクルを所定回数行い、前記基板上に膜を形成する工程を有し、
前記層に含まれる前記ハロゲン元素の量と、前記膜中において所定結晶面に配向する結晶粒子が占める割合と、の所定の関係に基づいて設定される形成条件下で、前記サイクルを行う、
半導体装置の製造方法。
- [請求項19] (a) ハロゲン元素を含む原料ガスを基板に供給する手順と、
(b) 反応ガスを前記基板に供給する手順と、
によって前記基板上に層を形成するサイクルを所定回数行い、前記基板上に膜を形成する手順を有し、
前記層に含まれる前記ハロゲン元素の量と、前記膜中において所定結晶面に配向する結晶粒子が占める割合と、の所定の関係に基づいて設定される形成条件下で、前記サイクルを行う手順、
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。
- [請求項20] ハロゲン元素を含む原料ガスと、反応ガスと、を基板に供給するガス供給系と、
(a) 前記原料ガスを前記基板に供給する処理と、
(b) 前記反応ガスを前記基板に供給する処理と、
によって前記基板上に層を形成するサイクルを所定回数行い、前記基板上に膜を形成する処理を有し、
前記層に含まれる前記ハロゲン元素の量と、前記膜中において所

定結晶面に配向する結晶粒子が占める割合と、の所定の関係に基づいて設定される形成条件下で、前記サイクルを行う処理、
が行われるように、前記ガス供給系を制御することが可能なように構成される制御部と、
を有する基板処理装置。