

通过 CVD 方法形成高质量膜的方法

技术领域

本申请涉及半导体器件制造领域，尤其涉及通过 CVD 方法形成高质量膜的方法。

背景技术

在制造半导体器件时，通常使用浅沟槽隔离结构对元件进行隔离。在半导体基板的隔离区域中，浅沟槽隔离结构包括沟槽或间隙，其中可填充介电材料以防止附近器件结构（例如，晶体管和二极管等）的电耦合。随着技术的发展，半导体器件的尺寸越来越小，但其上需要越来越多的元件（例如，晶体管、电容器和二极管等），这对半导体的制造提出了更高的要求。现有制造技术中存在的一个问题在于难以填充浅沟槽隔离结构的沟槽或间隙而不产生孔洞或缝隙。孔洞或缝隙的存在会对后续半导体器件的制造产生不利影响，例如，导致蚀刻、抛光、退火不均匀等。若半导体器件成品中存在孔洞或缝隙，则会对半导体器件的性能产生不利影响，例如，介电质量、电串扰、电荷泄漏和短路等。

已有一些技术降低孔洞或缝隙的形成，例如，降低介电材料的沉积速度等，但这些方法会降低生产效率和产率。另一种控制孔洞或缝隙的形成的方法是增加所沉积的介电材料的流动性。具有更大流动性的材料有利于快速填充孔洞或缝隙，以避免孔洞或缝隙形成永久缺陷。然而，常用的可流动性膜（例如，旋涂玻璃膜）具有较低的密度且不稳定。

有鉴于此，确有必要提供一种改进的通过 CVD 方法形成可流动性膜的方法，进而形成高质量膜。

发明内容

本申请通过提供一种在基板上沉积膜的方法以试图在至少某种程度上解决至少一种存在于相关领域中的问题。

根据本申请的一个方面，本申请提供了一种在基板上沉积可流动性膜的方法，所述方法包括：

将有机硅前体引入到沉积室中，所述沉积室包含基板；

在远程等离子体中产生至少一种含氮自由基；

将所述含氮自由基引入到所述沉积室中；

使所述含氮自由基和所述有机硅前体反应，以产生聚硅氮烷链，所述聚硅氮烷链沉积在所述基板上并且在所述基板的表面上是可流动的，形成所述可流动性膜。

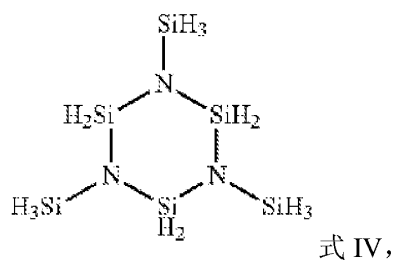
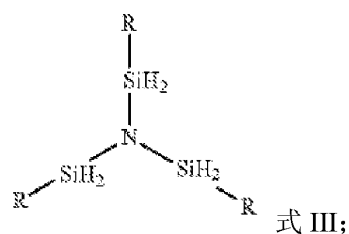
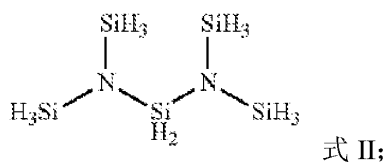
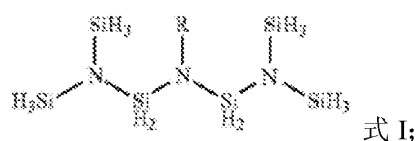
根据本申请的实施例，所述聚硅氮烷链包含 Si-N 键。

根据本申请的实施例，所述有机硅前体与所述含氮自由基反应形成硅氮自由基，所述硅氮自由基聚合形成所述聚硅氮烷链。

根据本申请的实施例，所述聚硅氮烷链具有 $-(\text{Si}-\text{N})_n-$ 重复单元，其中 n 为 2-50。

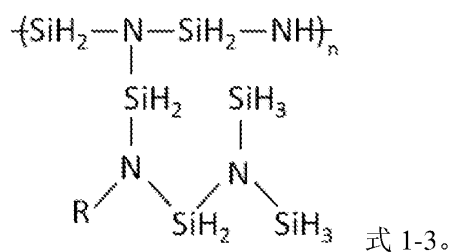
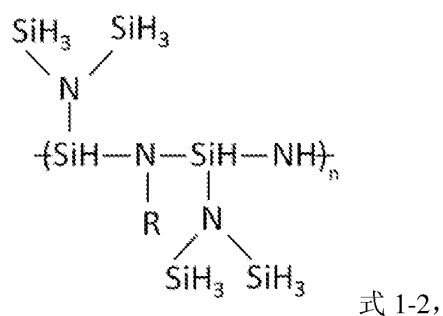
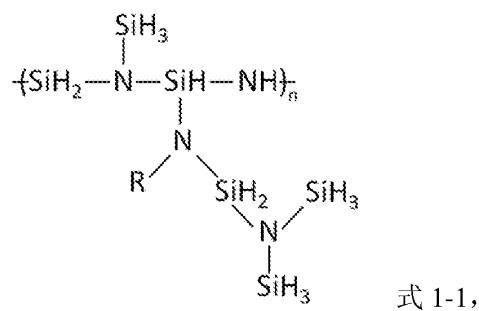
根据本申请的实施例，所述聚硅氮烷链的数均分子量为 40-1000 g/mol。

根据本申请的实施例，所述有机硅前体具有式 I、式 II、式 III 和式 IV 中的至少一种：

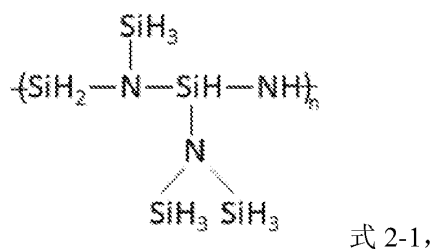


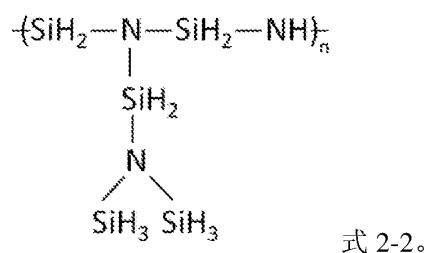
其中 R 各自独立地选自氢、卤素、直链 C₁-C₁₀ 烷基、支链 C₃-C₁₀ 烷基、直链或支链 C₃-C₁₂ 烯基、直链或支链 C₃-C₁₂ 炔基、C₄-C₁₀ 环烷基或 C₆-C₁₀ 芳基。

根据本申请的实施例，当所述有机硅前体具有式 I 时，所述聚硅氮烷链具有式 1-1、式 1-2 和式 1-3 中的至少一种：

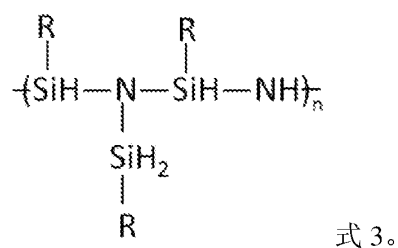


根据本申请的实施例，当所述有机硅前体具有式 II 时，所述聚硅氮烷链具有式 2-1 和式 2-2 中的至少一种：

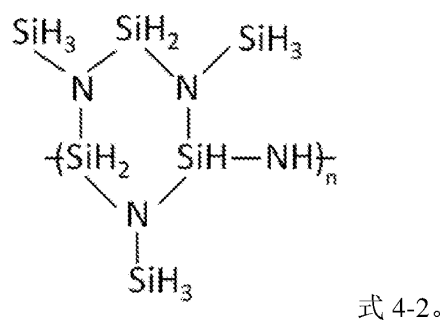
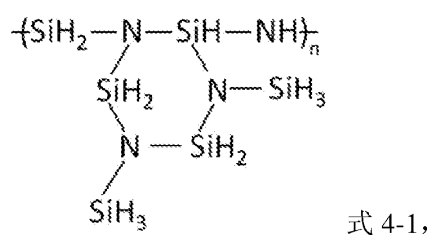




根据本申请的实施例，当所述有机硅前体具有式 III 时，所述聚硅氮烷链具有式 3：



根据本申请的实施例，当所述有机硅前体具有式 IV 时，所述聚硅氮烷链具有式 4-1 和式 4-2 中的至少一种：



根据本申请的实施例，所述方法进一步包括在所述远程等离子体中暴露氮，以产生所述含氮自由基。

根据本申请的实施例，所述含氮自由基具有化学式 NH_x ， x 为 0、1 或 2。

根据本申请的另一个方面，本申请提供了一种在基板上形成膜的方法，所述方法包括：

将有机硅前体引入到沉积室中，所述沉积室包含基板；

在远程等离子体中产生至少一种含氮自由基；

将所述含氮自由基引入到所述沉积室中；

使所述含氮自由基和所述有机硅前体反应，以产生聚硅氮烷链，所述聚硅氮烷链沉积在所述基板上并且在所述基板的表面上是可流动的，形成所述可流动性膜；

使所述可流动性膜固化；以及

使固化的所述可流动性膜退火，形成所述膜，所述膜包含多个 Si-O-Si 键。

根据本申请的实施例，所述可流动性膜由根据本申请所述的方法形成。

根据本申请的实施例，使所述可流动性膜固化包括以下中的至少一种：

(a) 使所述可流动性膜暴露于臭氧和水中；和

(b) 使所述可流动性膜暴露于臭氧和紫外线中。

根据本申请的实施例，使所述可流动性膜固化包括在 150°C 至 450°C 的温度下且在 400 托至 800 托的压力下，使所述可流动性膜暴露于臭氧和水中。

根据本申请的实施例，使所述可流动性膜固化包括使所述可流动性膜在小于 100°C 的温度下且在 400 托至 800 托的压力下暴露于臭氧中并随后在小于 150 托的压力下暴露于紫外线中。

根据本申请的实施例，使固化的所述可流动性膜退火包括在 1050°C 的温度下，在氮气的气氛中执行所述退火。

根据本申请的实施例，使固化的所述可流动性膜退火包括在 200°C 至 600°C 的温度下，在蒸汽的气氛中执行所述退火。

根据本申请的实施例，所述蒸汽包括水蒸气和酸性蒸汽中的至少一种。

根据本申请的实施例，所述方法包括在所述水蒸气的气氛中执行所述退火，形成所述 Si-O-Si 键的至少第一部分。

根据本申请的实施例，所述方法包括在所述酸性蒸气的气氛中执行所述退火，形成所述 Si-O-Si 键的至少第二部分。

根据本申请的实施例，所述酸性蒸汽包括氢氯酸或醋酸。

根据本申请的实施例，所述膜为氧化硅膜。

根据本申请的实施例，所述膜的密度大于所述可流动性膜的密度。

本申请的方法通过 CVD 工艺可产生聚硅氮烷链，其在基板的表面上是可流

动的，形成可流动性膜。该可流动性膜可快速填充孔洞或缝隙，避免孔洞或缝隙形成永久缺陷。经固化和退火工艺，可流动性膜可形成高质量膜。

本申请的额外层面及优点将部分地在后续说明中描述、显示、或是经由本申请实施例的实施而阐释。

附图说明

在下文中将简要地说明为了描述本申请实施例或现有技术所必要的附图以便于描述本申请的实施例。显而易见地，下文描述中的附图仅只是本申请中的部分实施例。对本领域技术人员而言，在不需要创造性劳动的前提下，依然可以根据这些附图中所例示的结构来获得其他实施例的附图。

图 1 展示了根据本申请实施例的在基板上沉积膜的方法的一种简化流程图。

图 2 展示了根据本申请实施例的在基板上沉积膜的方法的另一种简化流程图。

图 3 展示了根据本申请实施例的由三甲硅烷基胺（TSA）前体和在远程等离子体中分解氨产生的含氮自由基形成聚硅氮烷链的化学反应机理。

图 4 展示了根据本申请实施例的在基板上沉积氧化硅膜的方法的反应流程图。

具体实施方式

本申请的实施例将会被详细的描述在下文中。本申请的实施例不应该被解释为对本申请的限制。

在具体实施方式及权利要求书中，由术语“中的至少一种”连接的项目的列表可意味着所列项目的任何组合。例如，如果列出项目 A 及 B，那么短语“A 及 B 中的至少一种”意味着仅 A；仅 B；或 A 及 B。在另一实例中，如果列出项目 A、B 及 C，那么短语“A、B 及 C 中的至少一种”意味着仅 A；或仅 B；仅 C；A 及 B (排除 C)；A 及 C (排除 B)；B 及 C (排除 A)；或 A、B 及 C 的全部。项目 A 可包含单个元件或多个元件。项目 B 可包含单个元件或多个元件。项目 C 可包含单个元件或多个元件。

术语“烷基”预期是具有 1 至 10 个碳原子的直链饱和烃结构。“烷基”还预期是具有 3 至 10 个碳原子的支链或环状烃结构。当指定具有具体碳数的烷基时，预期涵盖具有该碳数的所有几何异构体；因此，例如，“丁基”意思是包括正丁基、仲丁基、异丁基、叔丁基和环丁基；“丙基”包括正丙基、异丙基和环

丙基。烷基实例包括，但不限于甲基、乙基、正丙基、异丙基、环丙基、正丁基、异丁基、仲丁基、叔丁基、环丁基、正戊基、异戊基、新戊基、环戊基、甲基环戊基、乙基环戊基、正己基、异己基、环己基、正庚基、辛基、环丙基、环丁基、降冰片基等。

术语“烯基”是指可为直链或具支链且具有至少一个且通常 1 个、2 个或 3 个碳碳双键的单价不饱和烃基团。除非另有定义，否则所述烯基通常含有 3 个到 12 个碳原子且包括（例如）-C₂₋₄ 烯基、-C₂₋₆ 烯基及 -C₂₋₁₀ 烯基。代表性烯基包括（例如）乙烯基、正丙烯基、异丙烯基、正-丁-2-烯基、丁-3-烯基、正-己-3-烯基等。

术语“炔基”是指可为直链或具支链且具有至少一个且通常具有 1 个、2 个或 3 个碳碳三键的单价不饱和烃基团。除非另有定义，否则所述炔基通常含有 3 个到 12 个碳原子且包括（例如）-C₂₋₄ 炔基、-C₃₋₆ 炔基及 -C₃₋₁₀ 炔基。代表性炔基包括（例如）乙炔基、丙-2-炔基（正-丙炔基）、正-丁-2-炔基、正-己-3-炔基等。

术语“环烷基”是指只由碳和氢原子组成的非芳香族单环或多环烃基，其可包括稠合或桥联环系统，可具有 3 到 15 个碳原子，优选具有 4 到 10 个碳原子，并且其饱和或不饱和。单环基团包括例如环丙基、环丁基、环戊基、环己基、环庚基、环辛基等。多环基团包括例如金刚烷(adamantine)、降莰烷、十氢萘基、7,7-二甲基-双环[2.2.1]庚基等。

术语“芳基”意指具有单环（例如，苯基）或稠合环的单价芳香族烃。稠合环系统包括那些完全不饱和的环系统（例如，萘）以及那些部分不饱和的环系统（例如，1,2,3,4-四氢萘）。除非另有定义，否则所述芳基通常含有 6 个到 10 个碳环原子且包括（例如）-C₆₋₁₀ 芳基。代表性芳基包括（例如）苯基、甲基苯基、丙基苯基、异丙基苯基、苯甲基和萘-1-基、萘-2-基等等。

本申请提供了一种在基板上沉积可流动性膜的方法，所述方法包括：

将有机硅前体引入到沉积室中，所述沉积室包含基板；

在远程等离子体中产生至少一种含氮自由基；

将所述含氮自由基引入到所述沉积室中；

使所述含氮自由基和所述有机硅前体反应，以产生聚硅氮烷链，所述聚硅氮烷链沉积在所述基板上并且在所述基板的表面上是可流动的，形成所述可流动性膜。

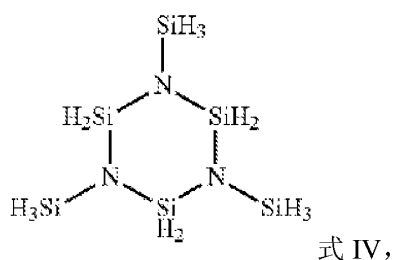
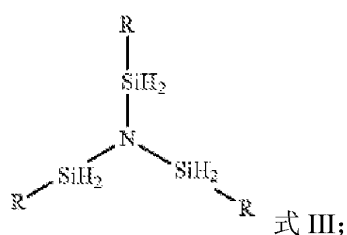
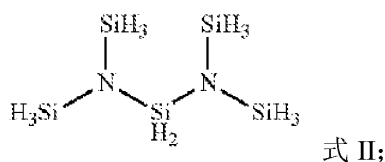
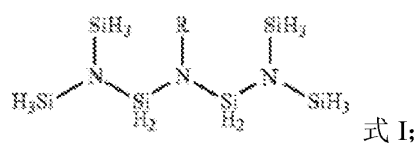
在一些实施例中，所述聚硅氮烷链包含 Si-N 键。

在一些实施例中，所述有机硅前体与所述含氮自由基反应形成硅氮自由基，所述硅氮自由基聚合形成所述聚硅氮烷链。所述含氮自由基可作为聚合链引发剂与有机硅前体产生反应，形成硅氮小分子自由基，所述硅氮小分子自由基不断与含氮自由基反应，实现链的聚合增长，最终形成聚硅氮烷链。

在一些实施例中，所述聚硅氮烷链具有 -(Si-N)_n 重复单元，其中 n 为 2-50。在一些实施例中，n 为 5-40。在一些实施例中，n 为 10-30。在一些实施例中，n 为 10-20。

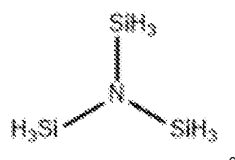
在一些实施例中，所述聚硅氮烷链的数均分子量为 40-1000 g/mol。在一些实施例中，所述聚硅氮烷链的数均分子量为 50-800 g/mol。在一些实施例中，所述聚硅氮烷链的数均分子量为 100-500 g/mol。在一些实施例中，所述聚硅氮烷链的数均分子量为 200-400 g/mol。

在一些实施例中，所述有机硅前体具有式 I、式 II、式 III 和式 IV 中的至少一种：



其中 R 各自独立地选自氢、卤素、直链 C₁-C₁₀ 烷基、支链 C₃-C₁₀ 烷基、直链或支链 C₃-C₁₂ 烯基、直链或支链 C₃-C₁₂ 炔基、C₄-C₁₀ 环烷基或 C₆-C₁₀ 芳基。

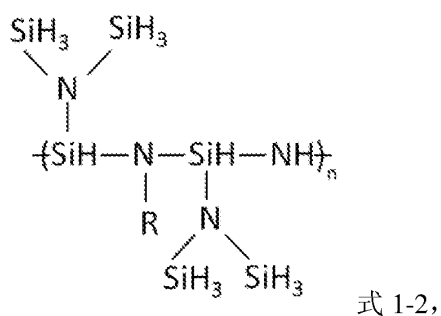
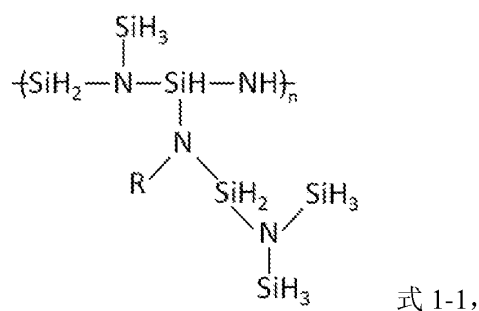
在一些实施例中，所述有机硅前体为三甲硅烷基胺（TSA）：

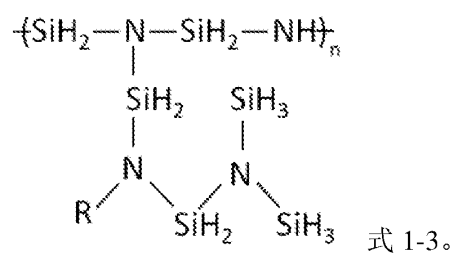


在一些实施例中，所述方法进一步包括在所述远程等离子体中暴露氨，以产生所述含氮自由基。用于将氨分解成含氮自由基的等离子体条件包括：使用 3kW 至 15kW 范围内的 RF 功率以在从 1 托（Torr）至 10 托范围内的室压下、在室温至约 200°C 范围内的温度室温度下产生等离子体。

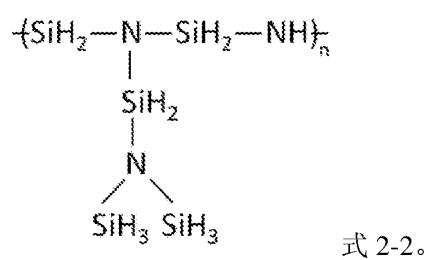
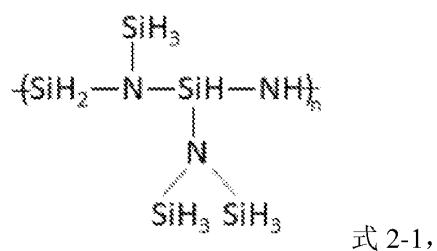
在一些实施例中，所述含氮自由基具有化学式 NH_x，x 为 0、1 或 2。在远程等离子体系统中分解氨可产生含氮自由基，包括诸如 N、NH 或 NH₂。

在一些实施例中，当所述有机硅前体具有式 I 时，所述聚硅氮烷链具有式 1-1、式 1-2 和式 1-3 中的至少一种：

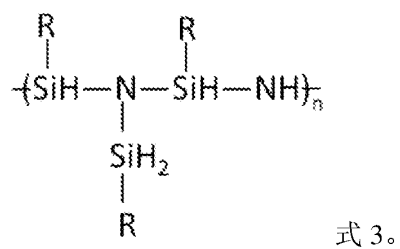




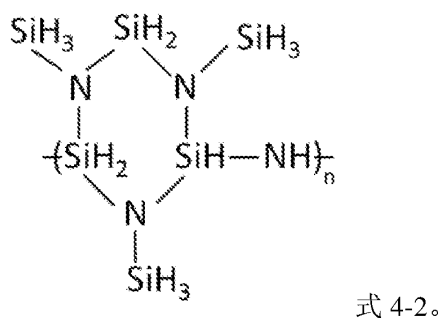
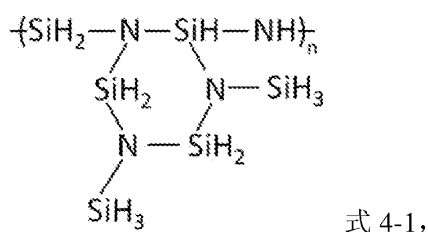
在一些实施例中，当所述有机硅前体具有式 II 时，所述聚硅氮烷链具有式 2-1 和式 2-2 中的至少一种：



在一些实施例中，当所述有机硅前体具有式 III 时，所述聚硅氮烷链具有式 3：



在一些实施例中，当所述有机硅前体具有式 IV 时，所述聚硅氮烷链具有式 4-1 和式 4-2 中的至少一种：



本申请采用了化学气相沉积（CVD）方法，使有机硅前体与在远程等离子体中产生至少一种含氮自由基（例如，-N、-NH、-NH₂）反应，产生聚硅氮烷链，其包含 Si-N 键。聚硅氮烷链具有 -(Si-N)- 重复单元，其主链中不含碳原子和氧原子，这有助于提高所形成的膜在基板上的流动性，从而可迅速地、有效地填充基板上的沟槽或间隙。

有机硅前体和含氮自由基引入到沉积室的顺序不受限制。图 1 展示了根据本申请实施例的在基板上沉积膜的方法的一种简化流程图，其中在沉积室中提供基板之后，首先将有机硅前体引入到沉积室中，然后将在远程等离子体中产生至少一种含氮自由基引入到沉积室中，两者发生反应以产生聚硅氮烷链，形成可流动性膜。

图 2 展示了根据本申请实施例的在基板上沉积膜的方法的另一种简化流程图，其中在沉积室中提供基板之后，首先将在远程等离子体中产生至少一种含氮自由基引入到沉积室中，然后将有机硅前体引入到沉积室中，两者发生反应以产生聚硅氮烷链，形成可流动性膜。

图 3 展示了根据本申请实施例的由三甲硅烷基胺（TSA）前体和远程等离子体中分解氨产生的含氮自由基形成聚硅氮烷链的化学反应步骤。如图所示，TSA 与氨分解产生的 N、NH 和 NH₂ 自由基在沉积室中相遇后，形成硅氮（-Si-N-）自由基，其发生聚合反应，生成聚硅氮烷链，形成可流动性膜。其它类型的含硅前体可根据类似的机理与含氮自由基反应生成聚硅氮烷链。

可在以下处理条件下进行 CVD 方法：前体流速被设置为 100-1000 sccm；将沉积室保持在约 1m 托至约 600 托范围内的压力下；室温被控制在约 0℃至约 400℃之间。

本申请还提供了一种在基板上形成膜的方法，所述方法包括：

将有机硅前体引入到沉积室中，所述沉积室包含基板；

在远程等离子体中产生至少一种含氮自由基；

将所述含氮自由基引入到所述沉积室中；

使所述含氮自由基和所述有机硅前体反应，以产生聚硅氮烷链，所述聚硅氮烷链沉积在所述基板上并且在所述基板的表面上是可流动的，形成所述可流动性膜；

使所述可流动性膜固化；以及

使固化的所述可流动性膜退火，形成所述膜，所述膜包含多个 Si-O-Si 键。

图 4 展示了根据本申请实施例的在基板上沉积氧化硅膜的方法的反应流程图，其中步骤 401 展示了聚硅氮烷链的形成过程，所形成的聚硅氮烷链具有高度流动性；步骤 402 展示了固化过程，经此过程，聚硅氮烷链中的 N 原子被 O 原子替代，增加了膜的稳定性，形成结构稳定的、不可流动的膜；步骤 403 展示了退火过程，经此过程，膜中的 H 原子被去除，形成氧化硅膜。本申请的方法可获得高质量膜，包括，但不限于，氧化硅膜、氮化硅膜、氧氮化硅膜、掺碳的氮化硅膜或掺碳的氧化硅膜等，因此可广泛应用于制造各种半导体器件。

在一些实施例中，所述可流动性膜由根据本申请所述的方法形成。

在一些实施例中，使所述可流动性膜固化包括以下中的至少一种：

(a) 使所述可流动性膜暴露于臭氧和水中；和

(b) 使所述可流动性膜暴露于臭氧和紫外线中。

在一些实施例中，使所述可流动性膜固化包括在 150℃至 450℃的温度下且在 400 托至 800 托的压力下，使所述可流动性膜暴露于臭氧和水中。

在一些实施例中，使所述可流动性膜固化包括在 150℃的温度下且在 600 托的压力下，使所述可流动性膜暴露于臭氧和水中。

在一些实施例中，使所述可流动性膜固化包括使所述可流动性膜在小于 100℃的温度下且在 400 托至 800 托的压力下暴露于臭氧中并随后在小于 150 托的压力下暴露于紫外线中。在一些实施例中，使所述可流动性膜固化包括使所

述可流动性膜在 25°C 至 100°C 的温度下且在 600 托的压力下暴露于臭氧中并随后在 50 托-150 托的压力下暴露于紫外线中。

在一些实施例中，使固化的所述可流动性膜退火包括在 1050°C 的温度下，在氮气的气氛中执行所述退火。

在一些实施例中，使固化的所述可流动性膜退火包括在 200°C 至 600°C 的温度下，在蒸汽的气氛中执行所述退火。

在一些实施例中，所述蒸汽包括水蒸气和酸性蒸汽中的至少一种。

在一些实施例中，所述方法包括在所述水蒸气的气氛中执行所述退火，形成所述 Si-O-Si 键的至少第一部分。

在一些实施例中，所述方法包括在所述酸性蒸气的气氛中执行所述退火，形成所述 Si-O-Si 键的至少第二部分。

经两次退火后，可基本上完全去除经固化的可流动性膜中的 H，进一步改善膜的质量。

在一些实施例中，所述酸性蒸汽包括氢氯酸或醋酸。

在一些实施例中，所述膜为氧化硅膜。

在一些实施例中，所述膜的密度大于所述可流动性膜的密度。

下面仅以氧化硅膜为例并且结合具体的实施例说明其形成方法。本领域的技术人员将理解，本申请中描述的方法和膜仅是实例，其他任何合适的方法和膜均可适用。

实施例

首先，在沉积室中提供基板，将三甲硅烷基胺（TSA）引入到沉积室中。然后，使用远程等离子体源，使用 3kW 至 15kW 范围内的 RF 功率以在从 1 托(Torr)至 10 托范围内的室压下、在室温至约 200°C 范围内的温度室温度下产生等离子体，在等离子体中分解氨，产生 H、NH 和 NH₂ 自由基，并将这些自由基引入到沉积室中。在沉积室中，TSA 与自由基发生聚合反应，在气相环境中产生聚硅氮烷链，并在基板上冷凝成薄膜。薄膜在基板的表面上是可流动的，形成可流动性膜。随后，将可流动性膜暴露于臭氧和紫外线中使其固化。接着，在 20°C 至 900°C 范围内的温度下进行退火，得到氧化硅膜。

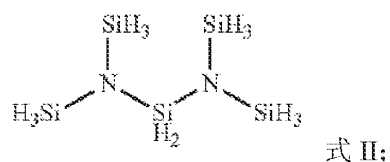
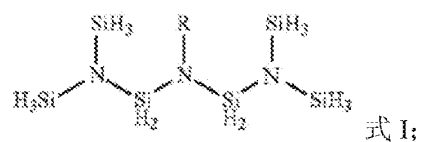
整个说明书中对“实施例”、“部分实施例”、“一个实施例”、“另一实施例”、“举例”、“具体举例”或“部分举例”的引用，其所代表的意思是在本

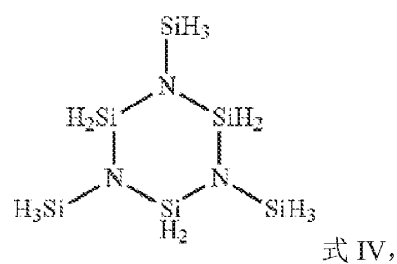
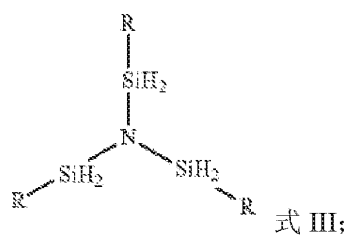
申请中的至少一个实施例或举例包含了该实施例或举例中所描述的特定特征、结构、材料或特性。因此，在整个说明书中的各处所出现的描述，例如：“在一些实施例中”、“在实施例中”、“在一个实施例中”、“在另一个举例中”，“在一个举例中”、“在特定举例中”或“举例”，其不必然是引用本申请中的相同的实施例或示例。此外，本文中的特定特征、结构、材料或特性可以以任何合适的方式在一个或多个实施例或举例中结合。

尽管已经演示和描述了说明性实施例，本领域技术人员应该理解上述实施例不能被解释为对本申请的限制，并且可以在不脱离本申请的精神、原理及范围的情况下对实施例进行改变，替代和修改。

权 利 要 求 书

- 1、一种在基板上沉积可流动性膜的方法，所述方法包括：
 - 将有机硅前体引入到沉积室中，所述沉积室包含基板；
 - 在远程等离子体中产生至少一种含氮自由基；
 - 将所述含氮自由基引入到所述沉积室中；
 - 使所述含氮自由基和所述有机硅前体反应，以产生聚硅氮烷链，所述聚硅氮烷链沉积在所述基板上并且在所述基板的表面上是可流动的，形成所述可流动性膜。
- 2、根据权利要求 1 所述的方法，其中所述聚硅氮烷链包含 Si-N 键。
- 3、根据权利要求 1 所述的方法，其中所述有机硅前体与所述含氮自由基反应形成硅氮自由基，所述硅氮自由基聚合形成所述聚硅氮烷链。
- 4、根据权利要求 1 所述的方法，其中所述聚硅氮烷链具有 -(Si-N)_n 重复单元，其中 n 为 2-50。
- 5、根据权利要求 1 所述的方法，其中所述聚硅氮烷链的数均分子量为 40-1000 g/mol。
- 6、根据权利要求 1 所述的方法，其中所述有机硅前体具有式 I、式 II、式 III 和式 IV 中的至少一种：

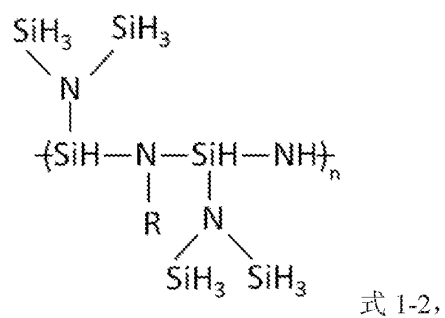
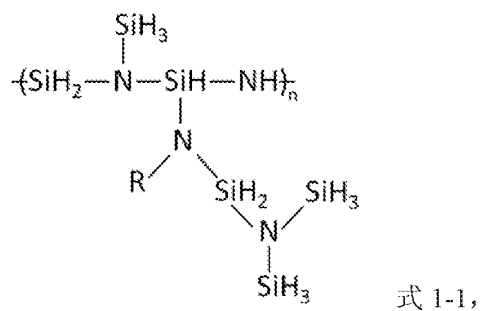


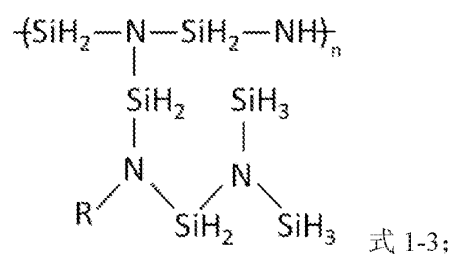


其中 R 各自独立地选自氢、卤素、直链 C₁-C₁₀ 烷基、支链 C₃-C₁₀ 烷基、直链或支链 C₃-C₁₂ 烯基、直链或支链 C₃-C₁₂ 炔基、C₄-C₁₀ 环烷基或 C₆-C₁₀ 芳基。

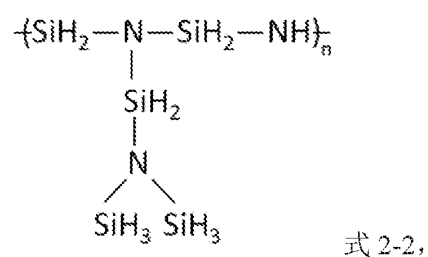
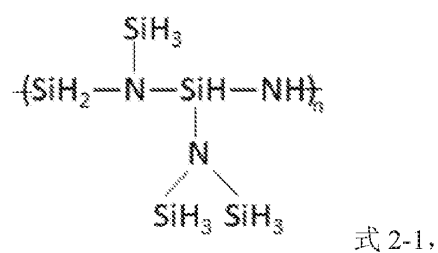
7、根据权利要求 6 所述的方法，其中：

(i) 当所述有机硅前体具有式 I 时，所述聚硅氮烷链具有式 1-1、式 1-2 和式 1-3 中的至少一种：

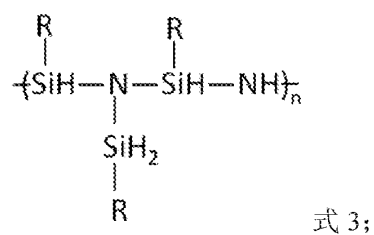




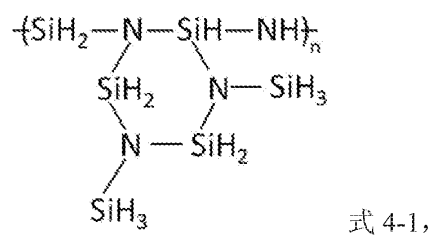
(ii) 当所述有机硅前体具有式 II 时, 所述聚硅氮烷链具有式 2-1 和式 2-2 中的至少一种:

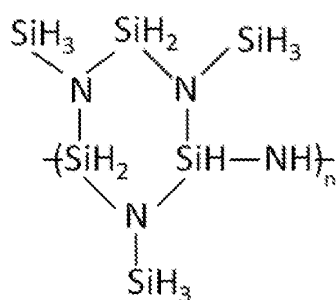


(iii) 当所述有机硅前体具有式 III 时, 所述聚硅氮烷链具有式 3:



(iv) 当所述有机硅前体具有式 IV 时, 所述聚硅氮烷链具有式 4-1 和式 4-2 中的至少一种:





式 4-2。

8、根据权利要求 1 所述的方法，其中所述方法进一步包括在所述远程等离子体中暴露氮，以产生所述含氮自由基。

9、根据权利要求 1 所述的方法，其中所述含氮自由基具有化学式 NH_x ， x 为 0、1 或 2。

10、一种在基板上形成膜的方法，所述方法包括：

将有机硅前体引入到沉积室中，所述沉积室包含基板；

在远程等离子体中产生至少一种含氮自由基；

将所述含氮自由基引入到所述沉积室中；

使所述含氮自由基和所述有机硅前体反应，以产生聚硅氮烷链，所述聚硅氮烷链沉积在所述基板上并且在所述基板的表面上是可流动的，形成所述可流动性膜；

使所述可流动性膜固化；以及

使固化的所述可流动性膜退火，形成所述膜，所述膜包含多个 Si-O-Si 键。

11、根据权利要求 10 所述的方法，其中所述可流动性膜由根据权利要求 1-9 中任一项所述的方法形成。

12、根据权利要求 10 所述的方法，其中使所述可流动性膜固化包括以下中的至少一种：

(a) 使所述可流动性膜暴露于臭氧和水中；和

(b) 使所述可流动性膜暴露于臭氧和紫外线中。

13、根据权利要求 12 所述的方法，其中使所述可流动性膜固化包括在 150°C 至 450°C 的温度下且在 400 托至 800 托的压力下，使所述可流动性膜暴露于臭氧和水中。

14、根据权利要求 12 所述的方法，其中使所述可流动性膜固化包括使所述可流动性膜在小于 100°C 的温度下且在 400 托至 800 托的压力下暴露于臭氧中并随后在小于 150 托的压力下暴露于紫外线中。

15、根据权利要求 10 所述的方法，其中使固化的所述可流动性膜退火包括在 1050°C 的温度下，在氮气的气氛中执行所述退火。

16、根据权利要求 10 所述的方法，其中使固化的所述可流动性膜退火包括在 200°C 至 600°C 的温度下，在蒸汽的气氛中执行所述退火。

17、根据权利要求 16 所述的方法，其中所述蒸汽包括水蒸气和酸性蒸汽中的至少一种。

18、根据权利要求 17 所述的方法，其中所述方法包括在所述水蒸气的气氛中执行所述退火，形成所述 Si-O-Si 键的至少第一部分。

19、根据权利要求 18 所述的方法，其中所述方法包括在所述酸性蒸气的气氛中执行所述退火，形成所述 Si-O-Si 键的至少第二部分。

20、根据权利要求 17 所述的方法，其中所述酸性蒸汽包括氢氯酸或醋酸。

21、根据权利要求 10 所述的方法，其中所述膜为氧化硅膜。

22、根据权利要求 10 所述的方法，其中所述膜的密度大于所述可流动性膜的密度。