

明 細 書

発明の名称： 金属膜を形成する方法、及び金属膜を形成する装置

技術分野

[0001] 本開示は、金属膜を形成する方法、及び金属膜を形成する装置に関する。

背景技術

[0002] 半導体デバイスの製造工程においては、基板である半導体ウエハ（以下、「ウエハ」という）の表面に形成されたトレンチやビアホールなどの凹部に、金属膜例えばチタン膜を形成する処理が行われる場合がある。

特許文献1には、純粋なチタン膜を形成するために、四塩化チタンの単分子層に原子状の低圧の水素を接触させる手法が提案されている。水素原子は四塩化チタンの単分子層中の塩化物と反応し、塩化水素を形成して排気されるため、チタンの単分子層が形成されることが記載されている。

[0003] 特許文献2には、ハロゲン化原料ガスと反応ガスとを用いてチタン窒化膜を形成する手法が提案されている。ハロゲン化原料ガスを供給する工程と、ハロゲン化原料ガスと反応ガスとの反応を阻害する反応阻害ガスを供給する工程と、反応ガスを供給する工程と、を時分割して所定回数行うことにより、チタン窒化膜の段差被覆性を向上させることが記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開2011-184799号公報

特許文献2：特開2017-69407号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 本開示は、時間の経過とともに成膜速度が低下する特性を有する原料を用いて金属膜を形成するにあたり、成膜速度の低下を抑える技術を提供する。

課題を解決するための手段

[0006] 本開示は、

基板に金属膜を形成する方法において、

前記基板に対し、前記金属膜の原料となるハロゲン化金属を含む成膜ガスを供給すると共に、前記成膜ガスを反応させて前記基板表面に前記金属膜を形成する工程と、

前記金属膜を形成する工程が、時間の経過とともに成膜速度が低下する特性を有する場合に、前記成膜ガスの供給停止後、前記成膜ガスの反応により生成した副生成物と反応するクリーニングガスを供給しながら、前記基板が配置されている雰囲気真空排気する工程と、を含み、

前記真空排気する工程を実施した後、前記金属膜を形成する工程を再度、実施することを特徴とする。

発明の効果

[0007] 本開示によれば、時間の経過とともに成膜速度が低下する特性を有する原料を用いて金属膜を形成するにあたり、成膜速度の低下を抑えることができる。

図面の簡単な説明

[0008] [図1]本開示の金属膜を形成する装置である成膜装置の構成例を示す縦断側面図である。

[図2]金属膜であるチタン膜の成膜の様子を示す模式図である。

[図3]金属膜を形成する方法の第1の実施形態に係るタイムチャートである。

[図4A]成膜工程と、真空排気工程との第1の組み合わせ例である。

[図4B]成膜工程と、真空排気工程との第2の組み合わせ例である。

[図5]金属膜を形成する方法の第2の実施形態に係るタイムチャートである。

[図6]評価試験1の結果を示す特性図である。

[図7]評価試験2の結果を示す第1の表である。

[図8]評価試験3の結果を示す第2の表である。

発明を実施するための形態

[0009] 本開示は、ハロゲン化金属を含む成膜ガスをを用い、CVD (Chemical vapor deposition) 法により金属膜を形成するにあたり、成膜速度の低下を抑え

ることを可能とする手法である。以下、ハロゲン化金属を含む成膜ガスとして、四塩化チタン (TiCl_4) ガスと水素 (H_2) ガスとの混合ガスを用い、金属膜であるチタン (Ti) 膜を成膜する場合を例にして説明する。

本発明者らは、 TiCl_4 ガスを用いた CVD 法による Ti 膜の成膜では、後述する評価試験にも示すように、時間の経過とともに成膜速度が低下する特性を有することを把握している。時間の経過とともに成膜速度が低下する特性とは、形成される金属膜の膜厚と成膜時間とが 1 次関数の対応関係ではなく、時間の経過と共にその傾きが小さくなっていく特性をいう。

[0010] この理由について端的に述べると、 Ti 膜の成膜が進むにつれて、成膜ガスの反応により生成した例えば塩素 (Cl) を含む副生成物が増加し、 Ti 膜の成膜反応の進行を阻害するためと推察している。

そこで、本開示では、前記副生成物と反応するクリーニングガスを供給しながら、ウエハが配置されている雰囲気を実真空排気する工程を実施することにより、 Ti 膜の成膜速度の低下を抑えている。以下、図 1 を参照しながら、本開示の金属膜を形成する装置である成膜装置 1 の構成例について説明する。

[0011] <成膜装置>

以下、本開示の成膜装置 1 の構成例について、図 1 を参照しながら説明する。図 1 は、本例の成膜装置 1 の縦断側面図である。この成膜装置 1 は、ウエハ W の表面に成膜ガスである TiCl_4 ガス及び H_2 ガスと、アルゴン (Ar) ガスと、を連続的に供給し、プラズマ CVD 法により Ti 膜 6 を成膜する装置として構成されている。

[0012] 成膜装置 1 は、塩素に対する耐食性を備え、接地された金属製の略円筒状の処理容器 10 を備えている。処理容器 10 の底面の中央部には下方に向けて突出する例えば円筒状の排気室 11 が形成され、排気室 11 の側面には、排気路 12 が接続されている。排気路 12 には、例えばバタフライバルブからなる圧力調整バルブを含む排気部 13 が接続され、予め設定された真空圧力まで処理容器 10 内を実真空排気できるように構成されている。

- [0013] 処理容器 10 の側面には、図示しない真空搬送室との間でウエハ W の搬入出を行うための搬入出口 14 が形成され、この搬入出口 14 はゲートバルブ 15 により開閉自在に構成されている。さらに、処理容器 10 を構成する壁部内には、処理容器 10 内の温度を調節するためのヒータ 16 が埋設されている。
- [0014] 処理容器 10 内にはウエハ W を略水平に保持するための載置台 2 が設けられている。載置台 2 は、排気室 11 の底部から伸びる支持部 21 によって支持されており、載置台 2 及び支持部 21 は導電性部材により構成されている。載置台 2 には加熱部であるヒータ 20 が埋設され、ウエハ W を設定温度に加熱することができる。本例では、ウエハ W の加熱温度は、350℃～800℃の範囲内の例えば 450℃に設定されている。
- [0015] 載置台 2 には、整合器 22 を介して、イオン引き込み用の高周波電力を供給する高周波電源 23 が接続されている。さらに、載置台 2 には、載置台 2 上のウエハ W を保持して昇降させるための図示しない昇降ピンが設けられている。昇降ピンの昇降により載置台 2 と外部の図示しない搬送機構との間でウエハ W の受け渡しを行うことができる。なお、載置台 2 はイオン引き込み用の高周波電力を供給しない構成とすることもできる。
- [0016] 処理容器 10 の天井面には、ウエハ W に向けて処理ガスを供給するための扁平な円盤状のシャワーヘッド 3 が絶縁部材 17 を介して処理容器 10 に取り付けられている。
- シャワーヘッド 3 の内部には、ガスを拡散させるための拡散室 31 が形成され、シャワーヘッド 3 の底面には、ウエハ W に向けてガスを吐出する多数の吐出孔 32 が分散して設けられている。さらに、例えばシャワーヘッド 3 の上面にはヒータ 36 が埋設されている。
- [0017] 上述のシャワーヘッド 3 には、整合器 33 を介して、プラズマ形成用の高周波電力を供給する高周波電源 34 が接続されている。この高周波電源 34 はプラズマ形成部をなすものである。このように本開示の成膜装置 1 は、上部電極をなすシャワーヘッド 3 と、下部電極をなす載置台 2 とにより平行平

板型のプラズマ処理装置を構成している。これらシャワーヘッド3と載置台2との間の空間にウエハWを載置し、 TiCl_4 ガス、 H_2 ガスやArガスなどを供給して高周波電力を印加することにより、これらのガスが電離してプラズマが形成される。

高周波電源34は、450KHz、2MHz、13.56MHz、27MHz、40MHz、60MHz、100MHzまたは2.45GHzのいずれの周波数の高周波電力を供給するように構成してもよい。また、高周波電源34からは、0Wより大きく、2000W以下の範囲内の高周波電力が供給される。

[0018] また、シャワーヘッド3の拡散室31には、ガス供給路40の下流側端部が接続されている。このガス供給路40の上流側には、成膜ガスの原料ガスである TiCl_4 ガス及び反応ガスである H_2 ガスの供給流路41、42、プラズマ発生用に添加されるArガスの供給流路43、クリーニングガスである NH_3 ガスの供給流路44が合流している。

[0019] TiCl_4 ガスの供給流路41の上流側端部には、 TiCl_4 ガス供給源410が接続され、上流側から順に流量調節部M41、バルブV41が介設されている。また、 H_2 ガスの供給流路42の上流側端部には、 H_2 ガス供給源420が接続され、上流側から順に流量調節部M42、バルブV42が介設されている。さらに、Arガスの供給流路43の上流側端部には、Arガス供給源430が接続され、上流側から順に流量調節部M43、バルブV43が介設されている。さらにまた、 NH_3 ガスの供給流路44の上流側端部には、 NH_3 ガス供給源440が接続され、上流側から順に流量調節部M44、バルブV44が介設されている。

[0020] この例における成膜ガス供給部は、 TiCl_4 ガスの供給流路41、 TiCl_4 ガス供給源410、 H_2 ガスの供給流路42、 H_2 ガス供給源420及びガス供給路40を備えて構成される。また、クリーニングガス供給部は、 NH_3 ガスの供給流路44、 NH_3 ガス供給源440及びガス供給路40を備えて構成される。

[0021] 上述の構成を備えた成膜装置 1 は、図 1 に示すように制御部 100 を備えている。制御部 100 は、プログラムを記憶した記憶部、メモリ、CPU を含むコンピュータにより構成される。プログラムは、制御部 100 から成膜装置 1 の各部に向けて制御信号を出力し、各ガスの給断や高周波電力の供給制を行うことにより、Ti 膜 6 を形成する処理を実行するように命令（ステップ）が組まれている。プログラムは、コンピュータの記憶部、例えばフレキシブルディスク、コンパクトディスク、ハードディスク、MO（光磁気ディスク）、不揮発性メモリなどに格納され、この記憶部から読み出されて制御部 100 にインストールされる。

[0022] <Ti 膜を形成する方法の第 1 の実施形態>

以上に説明した成膜装置 1 にて実施される Ti 膜を形成する方法の第 1 の実施形態について、図 2 に示すように、ウエハの表面に形成された凹部 50 内に、Ti 膜 6 を形成する場合を例にして説明する。この例では、ウエハ W を構成するシリコン部材 51 を覆うケイ素酸化物の膜（SiO 膜 52）に対して凹部 50 が形成されている。従って、凹部 50 の底面にはシリコン部材 51、その側壁面には SiO 膜 52 が夫々露出した状態となっている。なお、SiO 膜の代わりに、シリコン部材 51 をケイ素窒化膜（SiN 膜）にて覆い、凹部 50 の側壁面を SiN 膜により形成してもよい。

[0023] また、図 3 は、上述の成膜装置 1 を用いて実施される Ti 膜 6 の形成処理に関わるタイムチャートの例である。このタイムチャートには、処理容器 10 への成膜ガス（TiCl₄ ガス、H₂ ガス）と、NH₃ ガスの給断タイミング、及び高周波電源 34 からの高周波電力（図 3 中には「プラズマ電源」と記載）の印加タイミングを模式的に示している。

各ガスの給断制御、高周波電力の印加タイミング制御は、制御部 100 により制御され、図 3 に示すタイムチャートが実行される。即ち、制御部 100 は、バルブ V41、V42、V43、V44 の開閉制御を行い、各ガスの給断を実行すると共に、各流量調節部 M41、M42、M43、M44 の流量設定を行う。

[0024] 図3のタイムチャートも参照しながら、Ti膜6の形成処理について説明する。

この処理では、初めに、ゲートバルブ15を開き、不図示の真空搬送室内に設けられた搬送機構により、搬入出口14を介してウエハWを処理容器10内に搬入する。搬入されたウエハWは、不図示の昇降ピンを介して搬送機構から載置台2に受け渡され、当該載置台2の上面に載置される。次いで、処理容器10内から搬送機構を退避させ、ゲートバルブ15を閉じたら、排気部13により処理容器10内の真空排気を実施し、処理容器10内を予め設定された圧力に調節する。また、ヒータ20によりウエハWを既述の450℃に加熱する。

[0025] しかる後、図3に示す時刻T0にて、成膜ガスの供給を開始すると共に、高周波電源34、23からシャワーヘッド3、載置台2に対して夫々高周波電力の印加を開始する。こうして、図3に示す時刻T1まで予め設定した時間（例えば360秒間）、成膜ガスの供給及び高周波電力の印加を行う。時刻T0から時刻T1までの期間が金属膜（Ti膜）を形成する工程（以下「成膜工程」という）である。

[0026] この成膜工程では、成膜ガス（TiCl₄ガスとH₂ガス）とArガスとが、夫々の供給流路41、42、43及びガス供給路40を介してシャワーヘッド3に供給される。これら成膜ガス及びArガスの混合ガスは、ガス供給路40を介してシャワーヘッド3の拡散室31に流れ込み、吐出孔32を通過して処理容器10内に吐出される。そして、高周波電源34、23からシャワーヘッド3、載置台2に夫々高周波電力を供給することにより、これらのガスをプラズマ化する。

[0027] 成膜ガスであるTiCl₄ガス及びH₂ガスは、予め設定された流量にて、時刻T0から時刻T1までの期間、処理容器10内に供給される。また、例えばArガスは、時刻T0から一連の処理の終了時まで常時連続して供給される。Arガスはプラズマ形成用の高周波電力が印加されている期間は、成膜ガスのプラズマの形成を補助する補助ガスとして機能し、前記高周波電力

の印加が停止されている期間はパージガスとして機能する。

[0028] このときの成膜処理条件の一例を挙げると、ウェハW温度：450℃、処理容器内圧力：1.2kPa（9Torr）、 $TiCl_4$ ガス流量：25sccm、 H_2 ガス流量：1000sccm、Arガス流量：2400sccm、高周波電源34からの高周波電力：10kHz、100W、高周波電源23からの高周波電力：10Hz、100Wである。

[0029] 上述の成膜工程においては、反応ガスであるプラズマ化した H_2 により原料ガスである $TiCl_4$ が還元され、反応性の高い $TiCl_2$ イオン、またはラジカルが豊富に形成される。そして、この $TiCl_2$ イオン、またはラジカルが凹部50の底面に吸着してTi膜6が形成される。高周波電力の印加により、凹部50の内部を含む、平行平板（シャワーヘッド3－載置台2）間でプラズマが形成されると共に、載置台2にはイオン引き込み用の高周波電力が供給されている。この作用により、凹部50内の深い位置にある底面にも $TiCl_2$ イオンが供給され、当該領域にTi膜6を形成することができるという。

[0030] ところで、 $TiCl_4$ ガスはチタンをエッチングする作用も持っている。また、シリコン部材51と比較してSiO膜52やSiN膜は、ケイ素と酸素または窒素との結合が強く、その表面に形成されるTi膜6との結合は相対的に弱い。このため、シリコン部材51が露出している凹部50の底面と比較して、SiO膜（SiN膜）52が露出している凹部50の側壁面では $TiCl_4$ ガスによるエッチングが進行しやすい。従って、実際には凹部50の側壁面に対してもTi膜が成膜されるものの、側壁面のTi膜は、底面のTi膜に比べて、膜厚が小さいものとなる。このため、図2には、凹部50の側壁面のTi膜6については図示を省略し、底面に形成されるTi膜6のみを描いている。

[0031] こうして、成膜工程では、 $TiCl_4$ は $TiCl_2$ ラジカルに分解され、Ti膜の成膜が進行していき、当該工程の開始時は順調に $TiCl_2$ ラジカルが生成し、Ti膜が速やかに形成される。

一方、 $TiCl_4$ の分解により、 $TiCl_2$ ラジカルと共に、 Cl を含む副生成物も生成する。ハロゲン化金属が $TiCl_4$ である場合には、副生成物を構成する原子のうち、後述する反応速度の低下に影響するのは Cl であるため、ここでは副生成物を「 Cl 」と表記して説明する。この Cl は Ti 膜の成膜では消費されないため、次第に、処理容器10内の Cl 濃度が高まっていく。ここで、上述のCVD法による成膜処理において、成膜ガスを例えば360秒間連続して供給する場合を考える。このように長時間の成膜を行う場合には、並行して処理容器10内を真空排気していても、成膜ガスを短時間供給してパージするALD (atomic layer deposition) 法による成膜処理と比べて、処理容器10内にて存在する Cl の量が多くなる。

[0032] そして、後述する評価試験1にも示すように、 Ti 膜の成膜工程では、時間の経過とともに次第に Ti 膜の成膜速度が低下し、やがて成膜時間を増やしても膜厚が増加しにくくなる飽和状態となる（後述の図6の参照例1）。この理由については次のように推察している。処理容器10内の Cl 濃度が高くなると、 $TiCl_2$ ラジカルと Cl との反応が進行しやすくなり、 $TiCl_2$ イオン、またはラジカルが $TiCl_3$ ラジカルに変化したり、 $TiCl_4$ に戻ってしまう。ここで $TiCl_3$ ラジカルも成膜種として作用はするが、 $TiCl_2$ ラジカルに比べて蒸気圧が高く、ウエハWへの吸着率が小さい。つまり、一旦ウエハWに衝突しても吸着しにくく、揮発して処理容器10から排出されやすいため、 $TiCl_2$ ラジカルに比べて、成膜への寄与が小さいと考えられる。このように、処理容器10内の Cl 濃度が高くなると、 $TiCl_4$ の分解によって $TiCl_2$ ラジカルが生成しても、その後に意図しない反応が起こり、結果として、成膜に寄与する $TiCl_2$ ラジカルの量が低減すると推察される。この結果、 Ti 膜の膜厚が増加しにくい飽和状態となって、目標膜厚に到達するまでの時間が長くなってしまわないかと考えられる。

[0033] 以上のことから、本開示では、成膜ガスの供給停止後、図3に示す時刻T2から時刻T3までの期間、処理容器10内にクリーニングガスである NH_3 ガスを供給しながら、処理容器10内を真空排気する工程（以下「真空排気

工程」という)を実施している。 NH_3 ガスを供給している期間は例えば3秒である。この真空排気工程では、高周波電力は印可せず、 NH_3 ガスと共にArガスと H_2 ガスも同時に供給する(図3にはクリーニングガスである NH_3 ガスの供給のみを記載してある)。このように H_2 ガスも供給するのは、処理容器10内に残留するClと反応させて塩化水素(HCl)を生成し、処理容器10から排気させるためである。処理容器10内に不安定な状態で存在するClを安定な状態(HCl)に変化させることにより、残存するClがよりパージされやすくなると推察している。なお、時刻T1から時刻T2までの期間は、Arガスの供給と処理容器10内の真空排気が継続して行われ、処理容器10内がパージされている(パージ工程)。但し、プラズマ形成用の高周波電力の印加が停止されている期間、又は真空排気工程が実施されている期間は、Arガスの供給を停止し、パージガスとして、Arガスの代わりに窒素ガス(N_2 ガス)を供給するようにしてもよい。

[0034] 処理容器10内に NH_3 ガスを供給すると、処理容器10内に存在するClが NH_3 と反応してHClや NH_4Cl を生成し、これらの反応生成物は処理容器10内の排気に伴い、外部へ排出されていく。処理容器10内には、その雰囲気中にClが存在すると共に、処理容器10の側壁面や載置台2の表面など、処理容器10内に露出している部材にClが付着していると考えられる。このように、処理容器10内に付着しているClについては、パージガスとしてArガスなどの不活性ガスを供給しつつ、真空排気を行うだけでは除去が難しい場合もある。そこで、Clと反応するクリーニングガスとして NH_3 ガスを供給する。これにより、Clと NH_3 との反応生成物が処理容器10の外部に排出されるので、処理容器10内のCl濃度を低下させることができる。この結果、成膜に寄与する TiCl_2 ラジカルの量の減少が抑えられ、 NH_3 ガスを供給しながらの真空排気工程を実施しない場合に比べて、成膜速度の低下を抑えることができる。

[0035] 上記の真空排気工程の処理条件の一例を挙げると、ウエハ温度：450℃、処理容器内圧力：0.4kPa(3Torr)、 NH_3 ガス流量：9000

s c c m、 H_2 ガス流量：4 5 0 0 s c c m、A r ガス流量：2 0 0 0 s c c mである。

こうして、時刻T 3にて NH_3 ガスの供給を停止し、時刻T 4にて2回目の成膜工程を開始するが、時刻T 3から時刻T 4までの期間は、時刻T 1から時刻T 2までの期間と同様に、A r ガスの供給と処理容器10内の真空排気が行われ、パージ工程が実施されている。これにより、処理容器10内に存在する NH_3 や、 HCl 、 NH_4Cl などが外部へ排出される。

[0036] 次いで、時刻T 4から時刻T 5までの期間は、2回目の成膜工程として、成膜ガスの供給と高周波電力の印加が行われ、上述の1回目の成膜工程と同様にTi膜が形成される。続いて、時刻T 5から時刻T 6まではパージ工程、時刻T 6から時刻T 7までの期間は2回目の真空排気工程、時刻T 7から時刻T 8までの期間はパージ工程が、夫々既述の手法にて実施される。この後、時刻T 8にて3回目の成膜工程を開始する。

[0037] 図3に示すタイムチャートには時刻T 8までを描いているが、実際には、成膜工程に次いで真空排気工程を行い、さらに成膜工程を再度実施する工程を一連の処理サイクルとし、この処理サイクルを1回以上の予め設定された回数繰り返すことにより、Ti膜の成膜処理が行われる。処理サイクルの繰り返し回数は、Ti膜の目標膜厚や、成膜工程の処理条件、真空排気工程の処理条件に応じて、適宜設定される。

[0038] この際、例えば成膜工程、及び真空排気工程の各実施時間は、Ti膜の膜厚が予め設定された目標膜厚に到達するまでの成膜工程、及び真空排気工程の合計の実施時間が最も短くなるように設定することができる。既述のように、成膜工程をそのまま継続すると、Ti膜の膜厚が増加しにくくなる飽和状態となって、目標膜厚に到達するまでの時間が長くなる。一方、真空排気工程を実施すると、飽和状態が改善されるが、排気を実施している期間は、成膜を行うことはできない。

[0039] そこで、例えば予備実験により、成膜工程に要する成膜時間と、真空排気工程に要するクリーニング排気時間とを種々変化させてTi膜の形成を行う

。

例えば、図4 Aは、T i 膜の目標膜厚 D_T まで成膜を行うにあたり、最初の成膜工程の後、真空排気工程及び再度の成膜工程を1サイクル実施した場合における、成膜期間中のT i 膜の膜厚の経時変化を模式的に示している。図4 Aに示す例では、最初の成膜工程において、膜厚の増加が飽和状態となるまでの期間（時刻 $T_0 - T_1$ ）、成膜を行っている。しかる後、クリーニングガスを供給しながら真空排気工程を実施し（時刻 $T_2 - T_3$ ）、その後、再度、T i 膜の膜厚が目標膜厚 D_T に達するまでの期間（時刻 $T_4 - T_5$ ）成膜工程を実施した例である。1回目の成膜工程を長時間行くと、処理容器10内に残存するC l 量も増加し、真空排気工程を実施した後の成膜工程において、1回目と同程度まで成膜速度が回復しない場合もある。但し、この例では、成膜が行われない真空排気工程の期間は1回だけである。

[0040] 上述の例と比較して、図4 Bには、最初の成膜工程の後、真空排気工程及び再度の成膜工程を2サイクル実施して目標膜厚 D_T までの成膜を行う場合のT i 膜の膜厚の経時変化を模式的に示している。図4 Bに示す例では、各成膜工程（時刻 $T_0 - T_1$ 、時刻 $T_4 - T_5$ 、時刻 $T_8 - T_9$ ）においては、膜厚の増加が飽和状態に達する前の短時間で成膜を終えている。このため、処理容器10内に残存するC l 量も比較的少なく、真空排気工程（時刻 $T_2 - T_3$ 、時刻 $T_6 - T_7$ ）を実施した後の再度の成膜工程における成膜速度の回復も大きい。しかしながら、この例では、成膜が行われない真空排気工程の期間は2回である。

[0041] 図4 Aと、図4 Bとを比較すると、成膜工程だけに注目すれば、図4 Bの方が、短時間で目標膜厚 D_T までの成膜を実施可能なように見える。しかしながら、既述のように、図4 Aの例では成膜が行われない真空排気工程の期間は1回、図4 Bの例では2回である。そこで、予備実験の評価に当たっては、成膜が行われない真空排気工程の期間を含む全体の時間（図4 Aの場合は、時刻 $T_0 - T_5$ 、図4 Bの場合は時刻 $T_0 - T_9$ ）を比較する。そして、成膜工程及び真空排気工程の合計の実施時間が最も短くなるように、各工程

の実施時間やサイクル数を決定する。

[0042] こうして、予め設定された回数、処理サイクルを実行し、目標膜厚のTi膜を形成する。次いで、高周波電源34、23からの高周波電力の印加を終了すると共に、成膜ガス及びArガスの供給、ウエハWの加熱を停止する。その後、搬入時とは反対の手順でウエハWを処理容器10から搬出し、次のウエハWの搬入を待つ。

ここでシリコン部材51の露出面（底面）に沿って形成されたTi膜6においては、時間の経過に従ってシリコン部材51側からシリコン原子が拡散し、やがてチタンシリサイド（TiSi）膜となる。

[0043] 以上に説明したように、本開示に係る技術は、原料ガス（TiCl₄ガス）と、反応ガス（H₂ガス）とを同時供給して反応させるCVDにおいて、CVDの処理時間が長くなるにつれて成膜速度が低下する特性を把握し、成膜速度の改善を図ったものである。原料ガスの供給、排気と、反応ガスの供給、排気とを交互に繰り返すALDとは異なり、CVDでは原料ガスと反応ガスを連続して供給している。このため、処理容器10内を真空排気していても、処理時間が長くなるにつれて、原料ガスと反応ガスのとの反応による副生成物の量が多くなるが、従来からこの処理容器10内に残存する副生成物の影響には着目されていなかった。また、既述の先行技術文献1、2においても、処理容器内に残存する物質がTi膜の成長への影響与えることについては記載されていない。

[0044] 本開示は、処理容器10内に残存する副生成物がTi膜の成長を阻害していることを見出し、この副生成物を低減させることで、Ti膜の膜厚の増加の飽和状態を改善したものである。この改善の具体的な手法として、成膜工程の後に、クリーニングガス（NH₃ガス）を供給しながら、処理容器10内を真空排気する工程を実施し、処理容器10内に残存するClを含む副生成物をクリーニングガスと反応させ、除去する手法を採用している。これにより、処理容器10内のClを低減し、反応性の高いTiCl₂ラジカルとClとの反応を抑えることができているのではないかと考えられる。このため、

処理容器10内において、 TiCl_2 ラジカルをTi膜の形成に活用することができ、時間の経過による成膜速度の低下を抑えることができると推定する。

[0045] <Ti膜を形成する方法の第2の実施形態>

続いて、Ti膜を形成する方法の第2の実施形態について、図5のタイムチャートを参照して説明する。この実施形態では、真空排気工程にて、クリーニングガスとして、 NH_3 ガスの代わりにプラズマ化した H_2 ガスを供給している。図5に示す時刻T10から時刻T11までの期間は1回目の成膜工程、時刻T14から時刻T15までの期間には2回目の成膜工程が夫々第1の実施形態と同様に実施される。

[0046] そして、時刻T12から時刻T13までの期間には1回目の真空排気工程、時刻T16から時刻T17までの期間には2回目の真空排気工程が夫々実施される。これら真空排気工程では、 H_2 ガスとArガスとがシャワーヘッド3に供給される一方、高周波電源34からシャワーヘッド3に高周波電力を供給することにより、これらのガスをプラズマ化する。

[0047] プラズマ化した H_2 ガスは、処理容器10内に存在するClと反応して HCl を生成し、この HCl は処理容器10内の排気に伴い、外部へ排出されていく。こうして、この実施形態においても、真空排気工程の実施により処理容器10内のCl濃度が低下する。

当該実施形態の真空排気工程の処理条件の一例を挙げると、ウエハW温度：450℃、処理容器内圧力：0.133kPa（1Torr）、処理時間：30秒、 H_2 ガス流量：4500sccm、Arガス流量：1000sccm、高周波電源34からの高周波電力：10kHz、500Wである。

[0048] なお、この実施形態においても、成膜工程と真空排気工程との間の期間T11-T12、T13-T14、T15-T16、T17-T18には、夫々第1の実施形態と同様にパージ工程を実施している。これにより、処理容器10内がArガスによりパージされ、処理容器10内に存在する H_2 や HCl などが外部へ排出される。

この実施形態によっても、クリーニングガスとしてプラズマ化された H_2 ガスを供給しながら処理容器10内を真空排気しているので、処理容器10内の Cl が低減され、 $TiCl_2$ ラジカルと Cl との反応を抑えることができる。このため、処理容器10内において、成膜速度の低下を抑えることができる。

[0049] 以上において、本開示は、既述のように、成膜工程に次いで真空排気工程を行い、さらに成膜工程を再度実施する工程を一連の処理サイクルとしているが、真空排気工程の前に実施される成膜工程と、真空排気工程の後に実施される成膜工程とにおいて、夫々の処理条件は必ずしも同じ条件に設定する必要はなく、例えば成膜時間を変更するようにしてもよい。

[0050] また、ハロゲン化金属は $TiCl_4$ ガスの例に限定されず、ハロゲン化金属として、五塩化タングステン(WCl_5)や六塩化タングステン(WCl_6)を含む成膜ガスを用いて、タングステン(W)膜を形成する方法にも適用することができる。

さらに、ハロゲン化金属を含む成膜ガスは、原料ガス(例えば $TiCl_4$ ガス)と反応ガス(例えば H_2 ガス)の混合ガスである場合には限定されない。原料ガスを単独で成膜ガスとして用い、熱分解CVDにより金属膜を形成する処理に適用してもよい。

[0051] さらに、クリーニングガスとして、 NH_3 ガス又はプラズマ化した H_2 ガスを供給することは必須の要件ではない。クリーニングガスとしては、 H_2 ガス、シラン(SiH_4)ガス、ジシラン(Si_2H_6)ガス、三フッ化窒素(NF_3)ガスからなるクリーニングガス群から少なくとも1つ選択されたガスを用いることができる。なお、第1の実施形態にて、クリーニングガスとして用いた NH_3 ガスについては、プラズマ化した NH_3 ガスを用いると、ウエハW表面に窒化物が形成されるおそれがあるため、プラズマ化は好ましくないと考えている。

[0052] さらにまた、本開示の手法を用いてTi膜6を形成する対象は、図2に示す凹部50には限定されない。例えば、ウエハWの表面に縦溝が形成され、

さらに当該縦溝の側壁面に対し、ウエハWの厚さ方向に向けて並ぶように複数の横溝が形成される場合がある。これらの横溝を凹部として、当該凹部内にTi膜6の成膜を行ってもよい。また、Ti膜6が形成される部材についてもシリコン部材51に限定されるものではなく、他の金属や金属化合物であってもよい。

- [0053] 今回開示された実施形態は全ての点で例示であって制限的なものではないと考えられるべきである。上記の実施形態は、添付の請求の範囲及びその主旨を逸脱することなく、様々な形態で省略、置換、変更されてもよい。

実施例

- [0054] (評価実験1)

第1の実施形態及び第2の実施形態に対応させてTi膜6の成膜を行い、凹部50内におけるTi膜6の形成状況を確認した。凹部50の一例を挙げると、幅寸法(直径)Wが40nm、深さ寸法Hが160nmである。

A. 実験条件

前記凹部50が形成されたウエハWに対し、図1を用いて説明した成膜装置1を用い、成膜工程のみを実施した参照例1、クリーニングガスを供給しないパージ工程を挟んで成膜工程を2回実施した比較例1、図3のタイムチャートに基づいて実施した実施例1-1、図5のタイムチャートに基づいて実施した実施例1-2の夫々において、Ti膜6の成膜を行った。夫々の処理条件は以下のように設定した。

- [0055] (参照例1の処理条件)

ウエハ温度：450℃、TiCl₄ガスの供給流量：25sccm、H₂ガスの供給流量：1000sccm、Arガスの供給流量：2400sccm、処理容器10内の圧力：1.2kPa(9Torr)、高周波電源34：10kHz、100W、高周波電源23：印加なし、の条件にて、Ti膜6の成膜工程を行った。この条件にて処理開始から、夫々10秒、30秒、60秒、120秒、360秒、540秒間成膜処理を行い、夫々の場合について形成されたTi膜の膜厚を測定した。

[0056] (比較例 1 の処理条件)

参照例 1 と同様の条件にて処理開始から 360 秒間成膜工程を行った後、成膜ガスの供給及び高周波電源 34 からの高周波電力の印加を停止した。次いで、処理容器 10 内に Ar ガスを 2400 sccm の流量で供給しながら、処理容器 10 内の真空排気を行うパージ工程を 45 秒間実施した。この後、参照例 1 と同様の条件にて再度成膜工程を行い、トータルの処理時間が 540 秒となるタイミングで得られた Ti 膜の膜厚を測定した。このように、比較例 1 は、1 回目の成膜工程の後、パージ工程を行い、次いで 2 回目の成膜工程を実施した例であり、トータルの処理時間とは、1 回目の成膜工程の開始時から 2 回目の成膜工程の終了時まで要した時間である。

[0057] (実施例 1-1 の処理条件)

参照例 1 と同様の条件にて処理開始から 360 秒間成膜工程を実施した後、比較例 1 と同様の条件にてパージ工程を実施した。この後、第 1 の実施形態にて説明した NH₃ ガスを用いた真空排気工程を 3 秒間実施した後、再び参照例 1 と同様の条件にて 2 回目の成膜工程を行い、トータルの処理時間が 540 秒となるタイミングで得られた Ti 膜の膜厚を測定した。

NH₃ ガスを用いた真空排気工程の処理条件は、ウエハ温度：450℃、NH₃ ガスの供給流量：9000 sccm、H₂ ガスの供給流量：4500 sccm、Ar ガスの供給流量：24000 sccm、処理容器 10 内の圧力：400 Pa (3 Torr) に設定した。

[0058] (実施例 1-2 の処理条件)

参照例 1 と同様の条件にて処理開始から 360 秒間成膜工程を実施した後、比較例 1 と同様の条件にてパージ工程を実施した。この後、第 2 の実施形態にて説明したプラズマ化した H₂ ガスを用いた真空排気工程を 30 秒間実施した後、再び参照例 1 と同様の条件にて 2 回目の成膜工程を行い、トータルの処理時間が 540 秒となるタイミングで得られた Ti 膜の膜厚を測定した。

プラズマ化した H₂ ガスを用いた真空排気工程の処理条件は、ウエハ温度：

450℃、H₂ガスの供給流量：4500 sccm、Arガスの供給流量：2400 sccm、処理容器10内の圧力：133 Pa（1 Torr）、高周波電源34：450 kHz、500 Wに設定した。

[0059] B. 実験結果

参照例1、比較例1、実施例1-1、実施例1-2を行ったウエハWの夫々について、凹部50の底面に形成されたTi膜6の膜厚を蛍光X線分析にて測定した。この測定結果を図6に示す。図6中、縦軸はTi膜の膜厚、横軸は成膜時間であり、参照例1は「○」、比較例1は「△」、実施例1-1は「●」、実施例1-2は「■」にて夫々測定結果をプロットした。なお、比較例1、実施例1-1、実施例1-2の測定結果は、トータルの処理時間を成膜時間として捉え、540秒の位置にプロットしている。

[0060] 参照例1は、従来の成膜処理を行ったケースであるが、図6に示す結果から、成膜処理開始後30秒程度までは、0.5オングストローム／秒程度の大きな成膜速度でTi膜は順調に成膜されるものの、次第に成膜速度が低下していき、やがて膜厚が増加しにくくなる飽和状態となることが確認された。具体的には、120秒から360秒までの成膜速度は0.033オングストローム／秒、360秒から540秒までの成膜速度は0.022オングストローム／秒であり、120秒を越えると増膜量が小さくなり、飽和状態となることが認められる。

[0061] また、成膜時間が540秒のTi膜の膜厚について比較すると、参照例1は58オングストローム、比較例1は59オングストローム、実施例1-1は65オングストローム、実施例1-2は63オングストロームであった。このように、参照例1と比較例1の膜厚はほとんど変わりがなく、成膜時間が360秒となった時点でパージ工程を実施したとしても、処理容器10内のC1の低減にはそれほど効果が認められないことが分かった。

[0062] 一方、実施例1-1、実施例1-2の手法で形成したTi膜は、参照例1に比べて、5～7オングストローム分増膜することが認められた。実施例1-1の360秒から540秒までの成膜速度は、実施例1-1では0.05

6 オングストローム／秒、実施例 1－2 では 0.044 オングストローム／秒であり、参照例 1 に比べると、膜厚の増加の飽和状態が改善され、成膜速度の低下が抑制されていると言える。実施例 1－1、1－2 の結果から、本開示に係る技術は、成膜速度の低下を抑えながら Ti 膜 6 を形成する手法として好適な手法であると評価することができる。

[0063] (評価実験 2)

第 1 の実施形態に対応させて、評価試験 1 とは異なる条件で Ti 膜 6 の成膜を行い、凹部 50 内における Ti 膜 6 の形成状況を確認した。

A. 実験条件

評価試験 1 と同様に、成膜工程のみを実施した参照例 2、クリーニングガスを供給しないパージ工程を挟んで成膜工程を 2 回実施した比較例 2、図 3 のタイムチャートに基づいて実施した実施例 2－1 の夫々において、夫々 Ti 膜 6 の成膜を行った。ウエハ W に形成された凹部 50 の形状は評価試験 1 と同様であり、夫々の処理条件は以下のように設定した。

[0064] (参照例 2 の処理条件)

ウエハ温度：450℃、TiCl₄ガスの供給流量：25 sccm、H₂ガスの供給流量：1000 sccm、Arガスの供給流量：2400 sccm、処理容器 10 内の圧力：1.2 kPa (9 Torr)、高周波電源 34：100 kHz、100 W、高周波電源 23：印加なし、の条件にて、Ti 膜 6 の成膜処理を行った。この条件にて 360 秒間成膜処理を行い、形成された Ti 膜の膜厚を測定した。

[0065] (比較例 2 の処理条件)

参照例 2 と同様の条件にて処理開始から 360 秒間、1 回目の成膜工程を実施した後、次いで、処理容器 10 内に Ar ガスを 2400 sccm の流量で供給しながら、真空排気を行うパージ工程を 45 秒間実施した。その後、参照例 2 と同様の条件にて 2 回目の成膜工程を行い、トータルの処理時間が 540 秒となるタイミングで得られた Ti 膜の膜厚を測定した。

[0066] (実施例 2－1 の処理条件)

参照例 2 と同様の条件にて処理開始から 360 秒間、成膜工程を行った後、比較例 2 と同様の条件にてパージ工程を実施した。この後、 NH_3 ガスを用いた真空排気工程を 3 秒間実施した後、再び参照例 2 と同様の条件にて 2 回目の成膜工程を行い、トータルの処理時間が 540 秒となるタイミングで得られた Ti 膜の膜厚を測定した。

真空排気工程の処理条件は、ウエハ温度：450℃、 NH_3 ガスの供給流量：9000 sccm、 H_2 ガスの供給流量：4500 sccm、Ar ガスの供給流量：2000 sccm、処理容器 10 内の圧力：0.4 kPa (3 Torr) に設定した。

[0067] B. 実験結果

参照例 2、比較例 2、実施例 2-1 のウエハ W について、凹部 50 の形成領域を TEM (Transmission Electron Microscope) を用いて拡大・撮影し、凹部 50 の底面に形成された Ti 膜の膜厚を測定した。その結果を図 7 に第 1 の表として示す。

図 7 に示すように、評価試験 1 とは異なる成膜条件にて形成された Ti 膜についても、 NH_3 ガスによる真空排気工程を実施した実施例 2-1 は、パージ工程のみを行った比較例 2 に比べて Ti 膜の膜厚が大きく、Ti 膜の成膜速度の低下を抑制できることが確認された。

[0068] (評価実験 3)

第 2 の実施形態に対応させて、評価試験 1 とは異なる条件で Ti 膜 6 の成膜を行い、凹部 50 内における Ti 膜 6 の形成状況を確認した。

A. 実験条件

評価試験 1 と同様に、図 5 のタイムチャートに基づいて Ti 膜 6 の成膜を行った。ウエハ W に形成された凹部 50 の形状は評価試験 1 と同様であり、処理条件は以下のように設定した。

[0069] (実施例 3-1 の処理条件)

評価試験 1 の参照例 1 と同様の条件にて処理開始から 120 秒間、成膜工程を実施した後、成膜ガスの供給及び高周波電源 34、23 からの高周波電

力の印加を停止した。次いで、処理容器10内にArガスを2400 sccmの流量で供給しながら、真空排気を行うパージ工程を45秒間実施した。この後、第2の実施形態の真空排気工程を30秒間実施した後、再び参照例1と同様の条件にて120秒間、2回目の成膜工程を行い、得られたTi膜の膜厚を測定した。実施例3-1では、成膜工程を2回繰り返して実施している。

真空排気工程の処理条件は、ウエハ温度：450℃、H₂ガスの供給流量：4500 sccm、Arガスの供給流量：1000 sccm、処理容器10内の圧力：0.13 kPa (1 Torr)、処理時間：30秒、高周波電源34：450 kHz、500Wに設定した。

[0070] (実施例3-2の処理条件)

実施例3-1と同様に成膜工程→パージ工程→真空排気工程→成膜工程を行い、この処理サイクルにて成膜工程を4回繰り返し、得られたTi膜の膜厚を測定した。各成膜工程の処理時間を60秒に設定した以外については、実施例3-1と同様の条件でTi膜の成膜を行った。

[0071] (実施例3-3の処理条件)

実施例3-1と同様に成膜工程→パージ工程→真空排気工程→成膜工程を行い、この処理サイクルにて成膜工程を8回繰り返し、得られたTi膜の膜厚を測定した。各成膜工程の処理時間を30秒に設定した以外については、実施例3-1と同様の条件でTi膜の成膜を行った。

[0072] (実施例3-4の処理条件)

実施例3-3と同様に成膜工程を8回繰り返し、得られたTi膜の膜厚を測定した。このときの処理条件は、以下のように設定した。

ウエハ温度：450℃、H₂ガスの供給流量：4500 sccm、Arガスの供給流量：2000 sccm、処理容器10内の圧力：0.13 kPa (1 Torr)、処理時間：30秒、高周波電源34：450 kHz、500Wに設定した。

[0073] B. 実験結果

実施例 3-1、3-2、3-3、3-4 のウエハ W について、TEM を用いて凹部 50 の形成領域を拡大・撮影し、凹部 50 の底部に形成された Ti 膜の膜厚を測定した。その結果を図 8 に第 2 の表として示す。サイクル数とは、成膜工程の回数である。

この結果に示すように、評価試験 1 とは異なる成膜条件にて形成された Ti 膜についても、プラズマ化された H₂ ガスによる真空排気工程を実施することにより Ti 膜が増膜し、成膜工程の回数が増えるにつれて増膜量が大きくなることが確認された。

[0074] また、実施例 3-3、3-4 を比較すると、サイクル数（成膜工程の回数）が同じであっても、Ar ガスの供給流量を増加することによって、さらに Ti 膜の膜厚が増大することが認められた。従って、真空排気工程の処理条件の最適化を図ることによって、Ti 膜の成膜速度の低下を抑えて、より Ti 膜 6 を増膜できるものと理解される。

[0075] 評価試験 1 の実施例 1-2 ではトータルの成膜時間が 540 秒に設定され、Ti 膜の膜厚が 63 オングストロームであった。一方、評価試験 3 では、トータルの成膜時間が 240 秒に設定され、Ti 膜の膜厚は、サイクル数が 4 回以上であると 73 オングストローム以上であることが確認されている。

[0076] 評価試験 1 と、評価試験 3 とは、成膜工程、真空排気工程の処理条件が異なるため、単純には比較できない。但し、図 6 に示す Ti 膜の成膜速度の傾向から、成膜処理開始後 60 秒までは、成膜速度が大きいことが認められている。従って、成膜処理から例えば 60 秒までの比較的速いタイミングで成膜工程を停止して真空排気工程を実施し、成膜工程の回数を増やすことによって、トータルの処理時間が同じであっても、Ti 膜の膜厚を増大でき、Ti 膜を形成する手法として好適であると言える。

[0077] この結果は、見方を変えれば、成膜工程の処理条件の設定によって、Ti 膜の膜厚が目標膜厚に到達するためのトータルの処理時間を最短とすることができるということである。従って、例えば目標膜厚を形成するにあたっての単位時間当たりの成膜速度が最大となるように、成膜工程の実施時間を特

定すると共に、クリーニング排気時間を特定する。これにより、これら成膜時間とクリーニング排気時間との合計処理時間を最も短くなるように設定することができ、スループットの向上を図ることができることが理解される。

[0078] 但し、金属膜や、成膜ガスの種類、ウエハWに形成された凹部50の形状や、凹部50の底面、側壁面の膜の材質、目標膜厚などに応じて、成膜工程、真空排気工程、パージ工程の夫々の適切な処理条件が異なる。従って、夫々の場合に合わせて、成膜工程や真空排気工程の実施時間や、繰り返し回数が適宜設定されることが好ましい。

符号の説明

[0079] W	ウエハ
1	成膜装置
10	処理容器
13	排気部
2	載置台
410	TiCl ₄ ガス供給源
440	NH ₃ ガス供給源
6	Ti膜
100	制御部

請求の範囲

- [請求項1] 基板に金属膜を形成する方法において、
- 前記基板に対し、前記金属膜の原料となるハロゲン化金属を含む成膜ガスを供給すると共に、前記成膜ガスを反応させて前記基板表面に前記金属膜を形成する工程と、
- 前記金属膜を形成する工程が、時間の経過とともに成膜速度が低下する特性を有する場合に、前記成膜ガスの供給停止後、前記成膜ガスの反応により生成した副生成物と反応するクリーニングガスを供給しながら、前記基板が配置されている雰囲気を実真空排気する工程と、を含み、
- 前記真空排気する工程を実施した後、前記金属膜を形成する工程を再度、実施する、方法。
- [請求項2] 前記真空排気する工程と、その後の前記金属膜を形成する工程とのサイクルを複数回繰り返す、請求項1に記載の方法。
- [請求項3] 前記ハロゲン化金属は、 $TiCl_4$ であり、前記成膜ガスは、 $TiCl_4$ ガスと H_2 ガスとの混合ガスであり、前記金属膜を形成する工程では、前記成膜ガスをプラズマ化して前記金属膜の形成が行われる、請求項1に記載の方法。
- [請求項4] 前記副生成物は Cl を含み、前記クリーニングガスは、 NH_3 ガス、プラズマ化した H_2 ガス、 H_2 ガス、 SiH_4 ガス、 Si_2H_6 ガス、 NF_3 ガスからなるクリーニングガス群から少なくとも1つ選択されたものである、請求項3に記載の方法。
- [請求項5] 前記金属膜を形成する工程、及び前記真空排気する工程の各実施時間は、前記金属膜の膜厚が予め設定された目標膜厚に到達するまでの前記金属膜を形成する工程、及び前記真空排気する工程の合計の実施時間が最も短くなるように設定される、請求項1に記載の方法。
- [請求項6] 基板に金属膜を形成する装置であって、
- 前記基板が載置される載置台を備えた処理容器と、

前記金属膜の原料となるハロゲン化金属を含む成膜ガスを前記処理容器に供給するための成膜ガス供給部と、

前記成膜ガスの反応により生成した副生成物と反応するクリーニングガスを前記処理容器に供給するためのクリーニングガス供給部と、

前記処理容器内の真空排気を行う排気部と、

制御部と、を備え、

前記制御部は、前記処理容器に対し前記成膜ガスを供給すると共に、前記成膜ガスを反応させて前記載置台に載置された前記基板の表面に前記金属膜を形成するステップと、前記金属膜を形成するステップが、時間の経過とともに成膜速度が低下する特性を有する場合に、前記成膜ガスの供給停止後、前記クリーニングガスを前記処理容器に供給しながら、前記処理容器内を真空排気するステップとを実行し、前記排気するステップを実行した後、前記金属膜を形成するステップを再度、実行する制御信号を出力するように構成された、装置。

[請求項7] 前記制御部は、前記真空排気するステップと、その後の前記金属膜を形成するステップとのサイクルを複数回繰り返すための制御信号を出力するように構成された、請求項6に記載の装置。

[請求項8] 前記成膜ガスをプラズマ化するプラズマ形成部を備え、
前記ハロゲン化金属は、 $TiCl_4$ であり、前記成膜ガスは、 $TiCl_4$ ガスと H_2 ガスとの混合ガスであり、前記金属膜を形成するステップでは、前記成膜ガスをプラズマ化して前記金属膜の形成が行われる、請求項6に記載の装置。

[請求項9] 前記副生成物は Cl を含み、前記クリーニングガスは、 NH_3 ガスまたはプラズマ化した H_2 ガス、 H_2 ガス、 SiH_4 ガス、 Si_2H_6 ガス、 NF_3 ガスからなるクリーニングガス群から少なくとも1つ選択されたものである、請求項8に記載の装置。

[請求項10] 前記金属膜を形成するステップ、及び前記真空排気するステップの各実施時間は、前記金属膜の膜厚が予め設定された目標膜厚に到達す

るまでの前記金属膜を形成するステップ、及び前記真空排気するステップの合計の実施時間が最も短くなるように設定される、請求項 6 に記載の装置。