

CZ シリコン結晶 Dash-necking 部分の転位の三次元分布 Three dimensional dislocation distribution in the Dash-necking part of a CZ-silicon crystal

飯田 敏^a, 梶原 堅太郎^b, 川戸 清爾^c, 奥原 亮^a, 野間野 主知^a
Satoshi Iida^a, Kentaro Kajiwara^b, Seiji Kawado^c, Ryo Okuhara^a, Kazutomo Nomano^a

^a富山大学理学部, ^b(財)高輝度光科学研究センター, ^c九州シンクロtron光研究センター
^aUniv. Toyama, ^bJASRI, ^cSaga-LS

CZ 法育成シリコン単結晶における無転位化機構を放射光 X 線トポグラフィで調査した。種結晶と成長結晶ネッキング部分に存在する転位の三次元立体分布を非破壊観察した。種結晶がシリコン融液に接したときに発生した転位は成長結晶に引き継がれる。無転位化する直前の成長結晶中の転位は、結晶表面で終端することなく、成長方向に凸な半ループ形状をして成長結晶内部に止まっていることが確認できた。一方、元々無転位であった種結晶側に伝播した転位は結晶表面に達して終わっていた。

キーワード： シリコン結晶, 格子欠陥, X 線トポグラフィ

背景と研究目的：

シリコン半導体デバイスの高集積化、高性能化はデバイスの基盤となるシリコンウェハの大口径化とともに進展してきた。シリコン単結晶の大口径化はチョクラルスキー法（回転引き上げ法、以下では CZ 法）結晶成長中の Dash-necking と呼ばれる育成結晶の細径化による無転位化技術により実現されてきた[1, 2]。シリコン結晶の大口径化にともない育成される結晶の重量も大きくなり、その重量は細径部分で保持できる機械的強度の限界に来ている。細径化によらない無転位化技術の開発が強く望まれている。

川戸らはトモグラフィ的要素を加えたトポグラフィによる三次元観察で、ダッシュネッキング過程におけるシリコン結晶中の転位の消滅の様子を調査し、従来説とは異なる新しい知見を得た（図 1. 参照）。観察結果によると、転位消滅の最終段階においては、転位は結晶の外周部に達することなく、結晶内部でハーフループとして終端している[3, 4]。川戸らの結果はネッキング過程における転位消滅の機構の見直しを迫るものである。ネッキング過程における転位消滅の真の機構を明らかにするために、育成結晶および種結晶における転位の三次元分布の形態を観察した。

実験：

実験は SPring-8, BL19B2 で実施した。転位の観察、評価には単色 X 線を利用した断面トポグラフィの積層による三次元化 X 線トポグラフィを用いた（原理を図 2 に示す）[5-8]。上下幅 50 ミクロン、横幅 6mm 程度に整形されたシート状の 35keV に単色化された X 線を試料結晶に入射させた。試料は CZ 法で育成された[001]引き上げ、直胴部径 2 インチのシリコン結晶である。これまで、トモグラフィ的要素を加えたトポグラフィ[3, 4]や逐次走査白色 X 線断面トポグラフィ[8]、高エネルギー X 線トポグラフィ[9]などで観察評価してきた試料と同じものである。その外形写真を図 3

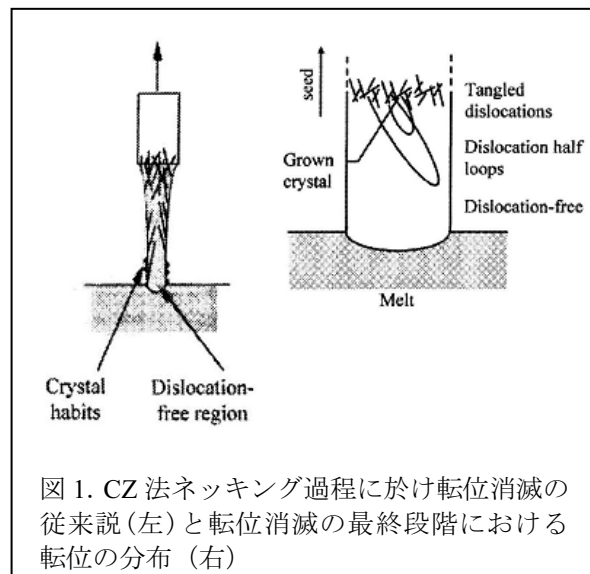
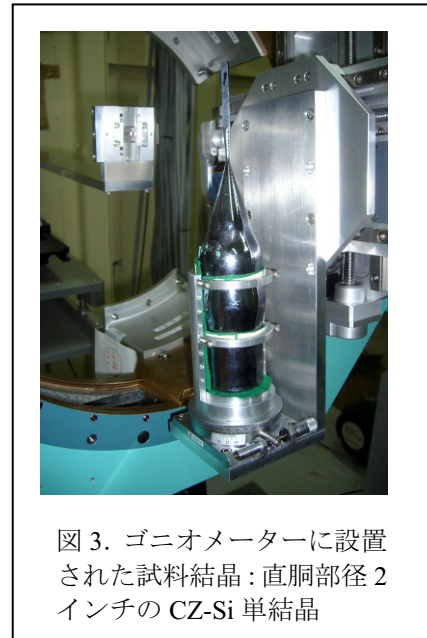
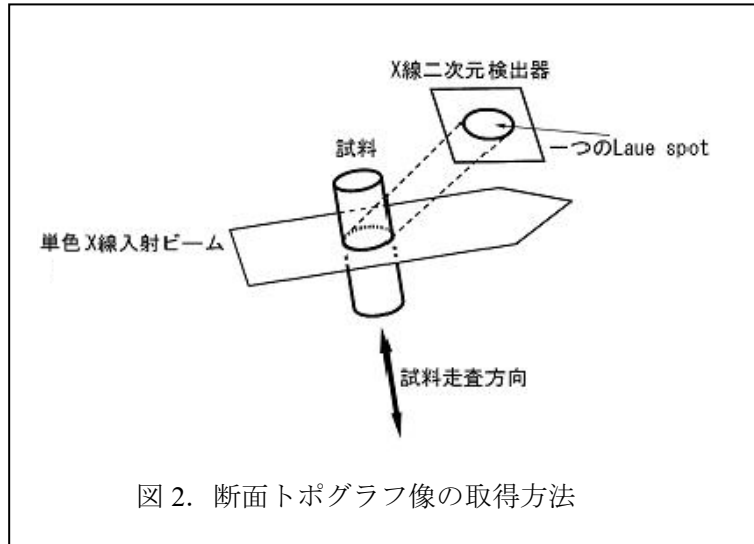


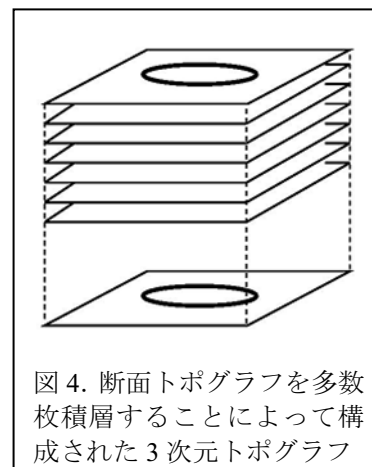
図 1. CZ 法ネッキング過程に於ける転位消滅の従来説(左)と転位消滅の最終段階における転位の分布(右)

に示す。上方，四角柱状の種結晶につづき，ネッキング部，肩部，直胴部が見える。004 ブラッグ反射中に現れる断面トポグラフ像の高分解能観察には X 線二次元検出器（可視光変換型 X 線 CCD カメラ）を用いた。試料結晶を結晶成長方向に段階的に逐次走査し，その都度断面トポグラフ像を取得した。このようにして得られた多数の試料断面トポグラフ像を積層することによって X 線回折トポグラフの三次元像を得た（図 4 参照）。



結果および考察：

図 5 に種結晶および育成結晶のいくつかの場所で撮影された 004 反射の断面トポグラフを示す。実験で得られるトポグラフは X 線入射方向に扁平であるが，横方向に 1/4 に圧縮して，トポグラフの縦横比がほぼ結晶の断面に近くなるように加工して示した。図 5(a)-(d)は育成結晶部，(e)は育成結晶と種結晶の境界付近，(f)と(g)は種結晶部に対応する。トポグラフ中で黒いところ（X 線強度の強いところ）は結晶中で格子が歪んでいる領域に対応する。トポグラフ中の黒点は転位線と入射 X 線との交点に対応する。トポグラフ(a)と(g)には転位が存在しないことが分かる。比較的転位密度の低い領域（図 5 中の(b)や(f)）では個別の転位の位置が決まるが，転位密度の高い領域（図 5 中の(d)や(e)）では転位の個別識別が不十分であることが分かる。図 5 中の(c)や(d)を見ると試料結晶の外形はほぼ円形であるにもかかわらず，転位密度の高い歪みの大きな領域は四角形に分布していることが分かる。これは種結晶の外形が四角形であり，種結晶の外周部から多くの転位が発生し，それらが成長結晶へと引き継がれたことを表しているものと思われる。



個々の断面トポグラフでは転位線のつながり方は分からないので，断面トポグラフを積層することによって三次元トポグラフを得た。成長結晶のネッキング部分の三次元トポグラフから画像処理によって再構成した投影トポグラフの例を図 6 に示す。図 6 中 0° のトポグラフは X 線出射方向へ投影したもので，広いビームを用いたときの通常の投影トポグラフに対応し，トモグラフィ的要素を加えたトポグラフィで得られた結果をよく再現している。図 6 中 0° のトポグラフの上端の断面が図 5(b)に，下端の断面が図 5(a)に，それぞれ対応する。転位消滅の最終段階にある転位の多くは結晶表面に達することなく，半ループ状の形態を示し結晶内部で止まっている。図 6 中 90° のトポグラフは結晶成長軸方向へ投影したもので，通常の投影トポグラフでは吸収が大きすぎて撮影できないものである。このトポグラフを見て明らかのように，半ループ状の転位は結晶の外周部に近いところに多く存在することが分かった。このことはトモグラフィ的要素を加えたトポグラフを見ていただけではなかなか気づけなかったことである。図 6 中 60° と 120° のトポ

グラフは結晶成長軸から X 線出射方向へ、それぞれ 60° と 120° 傾けた方向への投影トポグラフである。これらの $\{111\}$ 面に近い方向から見て直線状に見える転位が多いということは、多くの転位が $\{111\}$ 面上に乗っているということを表している。

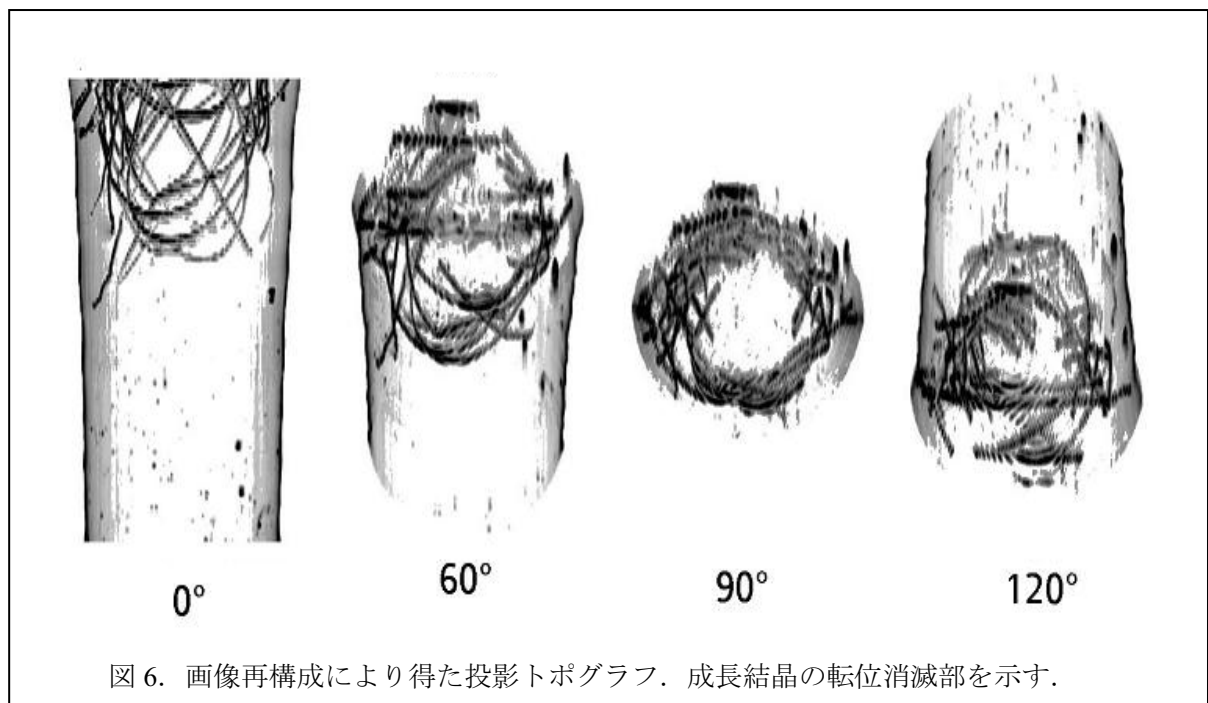
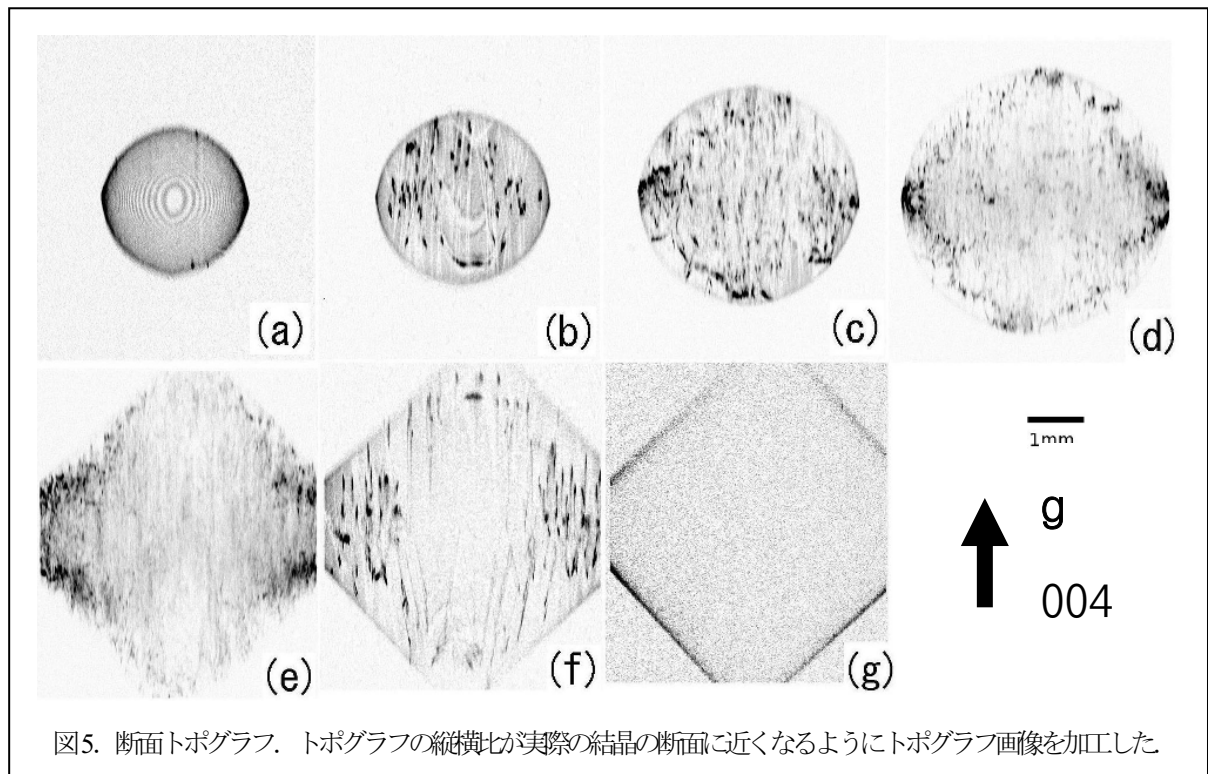


図7に種結晶側の低転位密度部の投影トポグラフを示す。上側2枚は X 線出射方向へ投影したもので、下側2枚は結晶成長軸方向へ投影したものである。右側2枚は無転位領域近傍を、左側2枚は無転位領域に近接する有転位領域である。図7左上のトポグラフの下端の断面が図5(f)に、右上のトポグラフの上端の断面が図5(g)に、それぞれ対応する。種結晶側の低転位密度領域でも

転位は結晶の外周部に多く分布していることが見て取れる。転位の形態は成長結晶部と異なり、結晶の表面で終端していて、半ループ状にはなっていない。元々無転位であった種結晶に、種結晶がシリコン融液に接触したときの熱応力により種結晶-融液界面近傍で発生した転位が伝播したものである。

CZ法結晶成長のネッキング過程における転位消滅の従来説は次のようなものである[2]。種結晶-融液界面近傍で発生した転位は成長結晶に引き継がれるが、成長界面で終端している。それらの転位は成長方向に凸な形状の成長界面に垂直に伸びていくため、成長結晶の細径化とともに結晶の外へ抜ける。我々の観察結果では、転位消滅の最終段階では、転位は成長方向に凸の半ループ状で、結晶の外には抜けず、結晶の内部に止まっている

(図6参照)。CZシリコン単結晶育成過程における転位挙動の観察はこれまでも行われてきたが、それは結晶を薄く薄片化して、エッチングやX線トポグラフィ観察するものであった。転位観察の従来手法では、転位密度の減少は分かるが、個別の転位のつながり、消滅過程の追跡が出来なかった。そのせいで、正しくない転位消滅機構の提案につながったものと思われる。今回の我々の観察では種結晶および成長結晶のネック部分を薄く切断することなく、成長させたときのままその結晶中の転位分布を三次元的に観察評価した。この点が従来の評価方法と大きく異なる点である。

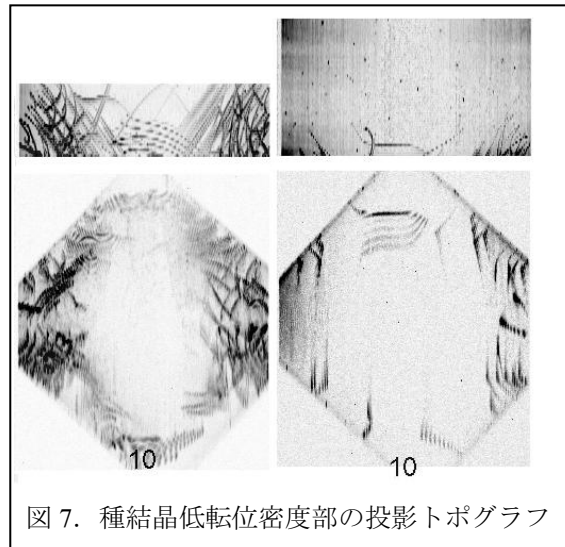


図7. 種結晶低転位密度部の投影トポグラフィ

今後の課題：

転位密度の高い領域における転位の三次元分布は未だ明瞭に把握できていない。高転位密度領域における転位密度減少の機構解明には、三次元化X線トポグラフィの空間分解能の向上が必要である。ブラッグピークのすそで撮影するなどの運動学的イメージング手法の検討が考えられる。CZ法はシリコン結晶以外の多くの単結晶成長にも用いられるので、本手法をいろいろなCZ法育成単結晶評価に適用していくことも重要であろうと思われる。CZ法と並んで重要なシリコン単結晶育成法に帯域融解法(FZ法)がある。FZ法によっても無転位シリコン単結晶が得られているが、その無転位化機構も再検討されるべきであろう。X線トポグラフィによるCZ法やFZ法単結晶成長のその場観察も真剣に検討されるべきであろう。

参考文献：

- [1] Growth of Silicon Crystals Free from Dislocations, W. C. Dash, J. Appl. Phys. 30 (1959) 495.
- [2] メルト成長のダイナミクス, 宮澤信太郎編集, 共立出版株式会社, p.153, 2002年.
- [3] Three-dimensional structure of dislocations in silicon determined by synchrotron white x-ray topography combined with a topo-tomographic technique, S. Kawado, T. Taishi, S. Iida, Y. Suzuki, Y. Chikaura and K. Kajiwara: J. Phys. D: Appl. Phys. 38 (2005) A17-A22.
- [4] Dislocation Elimination in Czochralski Silicon Crystal Grown Revealed by X-ray Topography Combined with Topo-Tomographic Technique, S. Kawado, S. Iida, K. Kajiwara, Y. Suzuki and Y. Chikaura. Proceedings of SRI2006, AIP Conference Proceedings vol. 879, pp.1545-1549.
- [5] X-ray step scanning topography, A. L. Andersen and L. Gerward, phys. stat. sol. (a) 23, 537 (1974).
- [6] Application of ABAC-combined x-ray step-scanning section topography for characterization of lattice imperfections in silicon, S. Kawado and J. Aoyama, Appl. Phys. Lett. 34, 428 (1979).
- [7] Three-dimensional visualization of the inner structure of single crystals by step-scanning white X-ray section topography, T. Mukaide, K. Kajiwara, T. Noma, and K. Takada, J. Synchrotron Radiat. 13, 484 (2006).
- [8] Features of dislocation images reconstructed from step-scanned white X-ray section topographs K. Kajiwara, S. Kawado, S. Iida, Y. Suzuki and Y. Chikaura, phys. stat. sol. (a) 204, (2007) 2682-2687.
- [9] Construction of topography stations at SPring-8 and first observations, Y. Chikaura, S. Iida, S. Kawado, K. Mizuno, S. Kimura, J. Matsui, M. Umeno, T. Ozaki, T. Shimura, Y. Suzuki, K. Izumi, K. Kawasaki, K. Kajiwara, and T. Ishikawa, J. Phys. D, Appl. Phys. 34, A158 (2001).