CZ 法によるシリコン単結晶成長過程の熱応力解析*

宮崎 則幸^{*1}, 内田 仁^{*2}, 宗像 健^{*1}
藤岡 和正^{*3}, 杉野 雄史^{*4}Thermal Stress Analysis of Silicon Single Crystal during
Czochralski GrowthNoriyuki MIYAZAKI, Hitoshi UCHIDA, Tsuyoshi MUNAKATA,
Kazumasa FUJIOKA and Yuji SUGINO

Thermal stress analyses of a silicon bulk single crystal with 6 or 8 inches in diameter are performed in the case of [001] and [111] pulling directions by using a three-dimensional finite element program developed for calculating thermal stress in a bulk single crystal during Czochralski growth. Elastic anisotropy and temperature dependence of material properties are taken into account in this program. The temperature distribution and shape of a silicon bulk crystal which are required for the thermal stress analysis are obtained from a computer program for a transient heat conduction analysis. The stress components obtained from the thermal stress analysis are converted into the parameters related with dislocation density. The time variations of these parameters are shown in this paper. The relationship between these parameters and the shape of the crystal-melt interface is discussed.

Key Words: Computational Mechanics, Thermal Stress, Finite Element Method, Single Crystal, Czochralski Growth, Dislocation

1. 緒言

チョクラルスキー (Czochralski, CZ) 法による単結晶育成過程で生じる転位は、電子デバイスなどの性能に悪影響を及ぼす。この転位の生成には、育成過程で生じる熱応力が大きな影響をもたらすことが知られている。

CZ 法によるバルク単結晶育成過程の熱応力解析を行った例は多い⁽¹⁾⁻⁽⁸⁾。しかし、単結晶体の非定常伝熱解析プログラムと組み合わせて、工業的に実用規模の寸法の単結晶体の長時間にわたる単結晶育成過程に単結晶体に生じる熱応力の経時変化を求めた例は見当たらない。

宮崎らは、これまで弾性係数の異方性および各材料定数の温度依存性を考慮した有限要素法による単結晶体の熱応力解析プログラムを開発してきた⁽⁹⁾⁻⁽¹¹⁾。一方、中山らは、融液、ヒータ、放射シールドと単結晶体間の熱放射を考慮するとともに、有限要素を自動生成しながら、CZ 法による単結晶育成過程をシミュレートする単結晶体の非定常伝熱解析プログラムを開発してい

る⁽¹²⁾⁽¹³⁾。

本論文では、上記の 2 つの解析プログラムを用いて、直径が 6 インチおよび 8 インチといった工業規模のシリコン単結晶の長時間にわたる育成過程の熱応力解析の結果を示す。なお、熱応力の解析結果は適当な転位密度評価パラメータに変換し、転位生成について考察するとともに、今後の研究課題についても言及する。

2. 解析方法

2.1 異方性の取り扱い 立方結晶の場合の任意の引き上げ方向に対する弾性係数マトリックスの各成分は、直交座標系を結晶の基本単位格子と一致するようにした場合に定義される弾性係数にテンソル変換をすることにより求められている⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾。このような弾性係数マトリックスを用いることにより、単結晶体の弾性係数の異方性が考慮される。

2.2 転位密度評価パラメータ Jordan ら⁽¹⁴⁾は、単結晶体の転位密度はすべり系に生じるすべりひずみに比例すると仮定している。シリコンのような面心立方格子単結晶では {111} $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ の計 12 個のすべり系が存在することから、彼らは、下記に示す転位密度評価パラメータ σ_{ex} および σ_{tot} を提案した。

$$\sigma_{ex} = \sum_{i=1}^{12} |\sigma_i^e| \quad (1)$$

* 原稿受付 平成 4 年 1 月 8 日。

^{*1} 正員、九州大学工学部 (〒812 福岡市東区箱崎 6-10-1)。^{*2} 学生員、九州大学大学院。^{*3} 正員、(株)日立製作所 機械研究所 (〒300 土浦市神立町 502)。^{*4} (株)日立製作所 甲府工場 (〒400-01 山梨県中巨摩郡竜王町 西八幡)。

$$\sigma_{tot} = \sum_{i=1}^{12} |\sigma_{RSi}| \quad (2)$$

ここで,

$$\sigma_i^e = \begin{cases} |\sigma_{RSi}| - \sigma_{CRS} & , |\sigma_{RSi}| > \sigma_{CRS} \text{ のとき} \\ 0 & , |\sigma_{RSi}| \leq \sigma_{CRS} \text{ のとき} \end{cases}$$

σ_{RSi} は各すべり系における分解せん断応力であり, 熱応力解析結果を用いて, 応力成分の座標変換により求められる. また, σ_{CRS} は臨界分解せん断応力 (Critical Resolved Shear Stress) であり, この値を分解せん断応力が越えるとすべりが発生すると仮定している. この超過分に転位の発生量が比例すると仮定するので, 各すべり系における分解せん断応力の臨界分解せん断応力からの超過分の合計を表す σ_{ex} は, 各すべり系において独立に転位が発生すると考えたとき, 転位の発生量の合計を反映すると考えることができる. したがって, σ_{ex} が 0 であれば, 転位は発生しないと考えられる. また, σ_{tot} については, 単純に, すべり系に働く分解せん断応力を合計したものであり, 単結晶中に生じている熱応力の大きさの程度を表す量である. このように, σ_{tot} は厳密な意味で転位評価パラメータではないが, 本論文では便宜上転位密度評価パラメータと呼ぶこととする.

さらに, 本論文では下式により定義される無次元パラメータ $\sigma_{mex}^{(15)}$ を用いた.

$$\sigma_{mex} = \frac{\sigma_{tot}}{12\sigma_{CRS}} \quad (3)$$

これは, 各すべり系の分解せん断応力の平均値が臨界分解せん断応力の何倍であるかを示す. すなわち, 転位が発生しない場合には, この値は 1 以下であることが予想される.

2.3 解析手順 解析は, 以下の手順で行われた. まず, 非定常軸対称伝熱解析プログラム⁽¹²⁾⁽¹³⁾を用いて単結晶引き上げ過程の単結晶の形状および温度分布が決定された. ここで, シリコン単結晶においては, 熱伝導度は等方的であると考えられ, 伝熱解析において異方性の効果が無視できるため軸対称伝熱解析を行った. 次に, その結果を用いて, 弾性係数の異方性と材料定数の温度依存性を考慮した三次元熱応力解析⁽⁹⁾⁻⁽¹¹⁾を行った. 最後に, 熱応力解析の結果を用いて式 (1)-(3) に示す転位密度評価パラメータを求めた.

3. 解析結果および考察

解析モデルとしたのは, 実際に使われている CZ 法引き上げ装置である. 結晶は直径 6 インチおよび 8 インチのシリコン単結晶で, この装置では通常, 無転位結

(a) 半径方向成長終了時 (t=104min) (b) 定常成長期 (t=607min)

図 1 要素分割図 (6 インチ単結晶)

晶が得られている. また, 引き上げ方向は, [001] および [111] の 2 つの場合を考えた. 図 1 に熱応力解析に用いた要素分割の例を, 6 インチ結晶について, (a) 半径方向成長終了時 (t=104min), (b) 定常成長期 (t=607min), の 2 つの場合について示す. 熱応力解析に用いた単結晶の材料定数は, 弾性係数⁽¹⁶⁾ C_{11}, C_{12}, C_{44} (dyn/cm²), 線膨張係数⁽¹⁷⁾ α (K⁻¹), および臨界分解せん断応力⁽¹⁸⁾ σ_{CRS} (dyn/cm²) である. これらの値を以下に示す. なお, 1 MPa = 10⁷ dyn/cm² である.

$$\left. \begin{aligned} C_{11} &= 1.6564 \times 10^{12} \exp(-9.4 \times 10^{-5}(T - 298.15)) \\ C_{12} &= 0.6394 \times 10^{12} \exp(-9.8 \times 10^{-5}(T - 298.15)) \\ C_{44} &= 0.7951 \times 10^{12} \exp(-8.3 \times 10^{-5}(T - 298.15)) \end{aligned} \right\} (4)$$

$$\alpha = 3.725 \times 10^{-6} (1 - \exp(-5.88 \times 10^{-3}(T - 124.0))) + 5.84 \times 10^{-10} T \quad (5)$$

$$\sigma_{CRS} = \exp \left(10.55 + \frac{1.0147 \times 10^4}{T} \right) \quad (6)$$

ここで, T は絶対温度である. また, 上式を作成するのに用いられた実験データの温度測定範囲を以下に示す.

$$\begin{aligned} C_{ij} &: 300 - 1000 \text{ (K)} \\ \alpha &: 300 - 1500 \text{ (K)} \\ \sigma_{CRS} &: 300 - 1288 \text{ (K)} \end{aligned}$$

シリコンの融点 1685 K に比べて, かなり低い範囲でしか, 材料定数値が求められていないのが現状である. 上記の範囲外には, 式 (4)-(6) を外挿して値を求めた.

解析の結果得られた, 6 インチ単結晶の場合の温度 $T, \sigma_{ex}, \sigma_{tot}$ の縦断面内での分布を各時間について図 2(a)(b)(c) に示す. 同様な結果を 8 インチ単結晶の場合について図 3(a)(b)(c) に示す. なお, $\sigma_{ex}, \sigma_{tot}$ については, その最大値の生ずるおおよその位置を矢印によって示した. 明らかに, $\sigma_{ex}, \sigma_{tot}$ の最大値は界面近くで発生しているが, 半径方向については中心部に発生する場合と外周部に発生する場合のふた通りがあり, 結晶

図2 温度 T , σ_{ex} , σ_{tot} の縦断面内での分布 (6インチ単結晶の場合)

図3 温度 T , σ_{ex} , σ_{tot} の縦断面内での分布 (8 インチ単結晶の場合)

図4 界面形状 dh の時間変化

の成長とともに最大値の発生場所も変化を見せている。このことは、単結晶体と融液間の界面形状に関連していると考え、界面形状の時間的変化と、各種転位密度評価パラメータとの関係を検討した。

界面形状を特徴づける量として、単結晶体最下部と単結晶体のくぼみまでの高さの差 dh をとる。なお、 dh の値は、界面形状が下に凸のときは負（単結晶最外周部から中心部最下部までの高さの差）、上に凸のときは正（図中、左上の概念図）となる。また、界面形状は伝熱解析により得られたものである。すなわち、シリコンの融点（1685 K）の等高線が界面となる。界面形状 dh の時間変化を6インチおよび8インチ単結晶の場合について、それぞれ図4(a),(b)に示す。いずれも2時間前後で値が大きく変動しているが、これは単結晶の半径方向への成長が終了した時期と一致する。いずれの場合も、その後、くぼみの大きさは深くなり続ける（variable region）が、およそ7時間ではば一定値を示すようになり、定常成長（constant region）を続ける。6,8インチ単結晶ともに定常期の dh の大きさは約1cmであるが、くぼみの部分の半径が大きいので、相対的には6インチ単結晶の場合の方が8インチ単結晶の場合よりもくぼみの程度は大きい。すなわち、6インチ単結晶の方が大きく湾曲している。

次に、各種転位密度評価パラメータの最大値の時間変化を示す。すなわち、図5に $\sigma_{ex}, \sigma_{tot}$ 、図6に σ_{max} を、6インチ単結晶の場合と8インチ単結晶の場合について

(a) 6インチ単結晶, [001] 引き上げ

(b) 6インチ単結晶, [111] 引き上げ

(c) 8インチ単結晶, [001] 引き上げ

(d) 8インチ単結晶, [111] 引き上げ

図5 $\sigma_{ex}, \sigma_{tot}$ の最大値の時間変化

図 6 σ_{mes} の最大値の時間変化 図 7 $\sigma_{mes}, \sigma_{tot}$ の最大値の発生場所の時間変化

それぞれ示す。明らかに、これらの値の変化と図4に示した界面形状の変化との間には相関が見られる。すなわち、6インチ、8インチ単結晶ともに、半径方向への成長期には、かなり高い値を示し、その変動もはげしいが、界面が平坦になったときには最小値を示す。これは、界面部分が融点(1685K)の温度等高線を表すため、界面形状が平坦なほど、この近傍での半径方向温度勾配が緩やかとなり、その結果として熱応力も小さくなることによる。半径方向への成長が終了した後は、くぼみの成長とともに値が大きくなり、定常期には、値の変化があまり見られなくなるが、この傾向は6インチ単結晶で顕著であり、8インチ単結晶ではあまり大きく表れない。これは、8インチ単結晶の方が界面のくぼみの程度が緩やかであるためと考えられる。引き上げ方向による違いは、主に、最大値の大きさに表れており、引き上げ方向[111]の場合、[001]に較べて約6-7割程度の値である。しかし、その時間的変化の傾向には差がほとんど見られない。

今回解析を行ったシリコン単結晶育成条件では通常、無転位結晶が得られている。このようなことから σ_{ex} と σ_{tot} の値はそれぞれ0および1以下になることが期待されたが、解析の結果は、この予想とは一致していない。この不一致の原因の一つとして、解析に使用した材料定数が解析条件よりも低い温度で測定されたものを外挿して使用しているために、融点近くで評価パラメータがかなり過大な値となったことが考えられる。

最後に、 σ_{ex} 、 σ_{tot} の最大値の発生場所の時間変化を図7に(a)(b)6インチ単結晶と、(c)(d)8インチ単結晶の場合についてそれぞれ示す。これらの図では、最大値の発生位置をradiusとheightの2つの組み合わせで表示している。すなわち、radiusは最大値発生場所の結晶中心からの距離(cm)を表し、heightは最大値発生場所の界面からの高さ(cm)を表している。いずれの場合も、半径方向への成長期には、単結晶外周部の界面近傍で最大値が発生している。その後の傾向は、6インチ単結晶と8インチ単結晶とでは違っている。6インチ単結晶の場合、 σ_{tot} は界面形状の変動期には外周部の界面からやや離れたところで最大値が発生し、定常期には中心部界面近傍で発生する。 σ_{ex} は σ_{tot} とほぼ同じ傾向を示すが、引き上げ方向が[001]の場合には、すぐに中心部界面近傍で最大値となる。一方、8インチ単結晶の場合、 σ_{tot} は外周部の界面からやや離れたところで最大値が発生する。 σ_{ex} は6インチ単結晶の時と同じ様に、引き上げ方向が[001]の場合だけ中心部界面近傍で最大値が発生する。

4. 結言

CZ法によるシリコン単結晶育成過程の熱応力解析を行い、それを各評価パラメータと界面形状に着目して整理した。これより、界面のくぼみの深さと各評価パラメータの間に明らかに相関が見られることが確認された。また、各評価パラメータの最大値の発生場所と引き上げ方向との間にも相関があることが確認された。

ただし、解析に使用した材料定数が今回の温度条件よりもかなり低い条件で測定されたものを外挿して使用しているために、各評価パラメータがかなり過大な値になっている可能性がある。解析を行った条件下でのシリコンの結晶成長においては、実際には無転位結晶が得られており、解析結果と現実とのギャップを埋めるには融点近傍での物性値が実測されるか分子動力学などを用いて理論的に推算されることが望まれる。

それらの問題が解決されれば、先に述べた引き上げ方向と各パラメータの最大値との関係から、シリコン以外の無転位結晶を得ることが難しい結晶について、各パラメータの値が最も小さくなる引き上げ方向で引き上げを行い、その後に、希望の結晶面を持つウェハー等に加工するといった手法を確立できるのではないかと考えられる。

なお、本研究は文部省科学研究費の援助を受けた。記して感謝する。

文 献

- (1) Jordan, A. S., ほか2名, The Bell System Technical J., 59(1980), 593.
- (2) Duseaux, M., J. Crystal Growth, 61(1983), 576.
- (3) Kobayashi, N. and Iwaki, T., J. Crystal Growth, 73(1985), 96.
- (4) Szabo, G., J. Crystal Growth, 73(1985), 131.
- (5) Lambropoulos, J. C. and Delametter, C. N., J. Crystal Growth, 92(1988), 390.
- (6) Schvezov, C. E., ほか2名, J. Crystal Growth, 92(1988), 479.
- (7) Motakef, S., J. Crystal Growth, 96(1989), 201.
- (8) Dupret, F., ほか2名, J. Crystal Growth, 97(1989), 162.
- (9) Miyazaki, N., ほか2名, J. Crystal Growth, 106(1990), 149.
- (10) 宮崎, ほか4名, 機論, 57-536, A(1991), 858.
- (11) Miyazaki, N., ほか4名, J. Crystal Growth, 113(1991), 227.
- (12) Nakayama, W. and Masaki, H., Heat Transfer-1986, Hemisphere, Vol.4(1986), 1755.
- (13) 藤岡, 中山, 機論, No.910-84(1991).
- (14) Jordan, A. S., ほか3名, J. Appl. Phys., 52(1981), 3331.
- (15) 大矢, 機論, No.910-17, A(1991), 312.
- (16) INSPEC, Properties of Silicon, EMIS Datareviews Series, No.4(1988), 14.
- (17) Okada, Y., Tokumaru, Y., J. Appl. Phys., 56(1984), 314.
- (18) Jordan, A. S., ほか2名, J. Crystal Growth, 76(1986), 243.