

加藤(Prof.N.Kato)動力学理論による消衰効果を取り入れた不完全な単結晶
シリコンウェーファの多波長 SL-X 線イメージングについて

九州大学 シンクロトロン光利用研究センター	近浦吉則
九州工業大学 工学研究科	武富雄一、鈴木芳文
北海道大学 工学研究科	高間俊彦
東京理科大学 総合研究機構・基礎工学研究科	安藤正海

Multi-waves SL imaging to characterize imperfect single-crystal wafers
in the light of Kato dynamical extinction theory

Y. Chikaura¹⁾, Y.Taketomi²⁾, Y.Suzuki²⁾, T.Takama³⁾, M.Ando⁴⁾

1)Research Center for Synchrotron Light Application, Kyushu University

2)School of Engineering, Kyushu Institute of Technology

3)School of Engineering, Hokkaido University

4)RIST, School of Science and Technology, Tokyo University of Science

(要旨)実際に生産されるシリコン素子には、結晶完全性の高い(無転位・出来るだけ点欠陥の無い)結晶が望まれるケースが多いが、それ以外にも素子の結晶構造自体や元素物質人為的添加等により結晶内部には不可避免的に不完全性が存在するケースも少なくない。このような不完全性結晶では一般的に場所的なイレギュラリティを伴う。このような場合の結晶評価は二次消衰によって可視化できる可能性がある。この可視化の目的で、表題の理論((故加藤範夫先生の統計的動力学的回折理論)をベースとした放射光多波長のスペクトルによる二次消衰効果分布を可視化(イメージング)をした。その考え方と実験および成果のアウトラインを紹介したい。 E-mail address: chikaura@rcsla.kyushu-u.ac.jp

(Brief abstract in English)

1. 研究の動機

半導体の中でシリコンの生産量は他の半導体物質と比較して際立って多い。その第一の理由は半導体としての電子物性の有用性と並んで、高純度で‘欠陥’密度の低い大型のバルク単結晶を比較的安価に大量に生産する技術（CZ法、FZ法）が達成されたことにあると考えられる。シリコン素材としての材料技術に関して、純度や線状欠陥（転位）、面状欠陥（積層欠陥など）の低密度化の技術は時代時代の需要に応えられる程度に割合早期から確立された。現在はさらに経済性・生産性向上のために超大口径化、高純度化、格子一様性等の目的の技術向上が報告されている。また、シリコンバルク素材から最終商品または中間商品とするための様々な点欠陥の制御や添加元素物質の制御についても様々な課題が存在している。

いろいろな生産段階のバルク商用単結晶の X 線回折的に評価するには、高完全性ウェーファなどでは超高歪感度の種々の多結晶法（DFI など）やインターフェロメーターなどの評価技術に注目する必要があるが、完全性の低い単結晶では二次消衰効果に注目してもいい、背景の理論は Kato の統計的動力学理論である。

実験では「連続（白色）放射光（multi-wave SL）マイクロビーム」を、大型 SL 施設では全くやることのないような泥臭い方法で形成する。この装置はシステム設計の合理性を研究者がおかれた環境において合理性を追求した結果の産物であると考えられる。以下、システム全体の理解のために、まずこの製作した装置による原子散乱因子 f の測定を述べる。結果として、測定された原子散乱因子が従来の測定値と遜色ないものとかいされるならば、それは「連続（白色）放射光（multi-wave SL）マイクロビーム」の作成そのものの合理性を一定のレベルで実証していると言えよう。

この PC のプログラム以外は同じ装置を使って首記のテーマ「Multi-waves SL imaging to characterize imperfect single-crystal wafers」を行う。その詳細は 3 節の主題である。本研究の放射光実験は全て SPring-8 において行った。

（謝辞）本実験は Spring8 副主幹研究員 梶原堅太郎氏の協力により遂行することができた。

2. 多波長（白色）SL マイクロビームと原子散乱因子の測定

2.1 ねらい

X 線による非破壊イメージング及びトポグラフィにおいて重要となるものが分解能である。本研究室では SPring-8、BL28B2 において直径 $5\mu\text{m}$ のストレートマイクロホールを用いて形成したマイクロビームを用いた局所構造評価を行っている。マイクロビームを使用したエネルギー分散散乱イメージングでは結晶の極微小構造のイメー

ジングが可能である。

一般に、入射 X 線の波動場が結晶中で干渉しペンデルビート現象が起こることが知られている。これは波動場の干渉であるため結晶中の歪場に非常に敏感であることが考えられ、結晶性の評価として用いることができペンデルビートから原子散乱因子の測定が可能である。本研究は散乱トポグラフィによる結晶の高分解能イメージングと、結晶中の波動場の干渉によるエネルギーペンデルビート法の開発を目的とした。

2.2 実験の背景

動力学的回折理論より吸収を考慮した対称ラウエケースにおける積分強度式 J_{hkl} は

$$J_{hkl} = KI_0(E) |F'_{hkl}| (R_{hkl,n} + |\cos 2\theta_B| R_{hkl,p}) / 2 \sin \theta_B \cdot \cdot \cdot \cdot (1)$$

$$R_{hkl,n,p} = \frac{\pi}{2} \exp\left(\frac{-\mu(E)t}{\cos \theta_B}\right) \left[\int_0^{2A_{n,p}} J_0(x) dx + J_0(2i|k|A_{n,p}) - 1 \right] \cdot \cdot \cdot \cdot (2)$$

$$A_{n,p} = \frac{e^2}{mc^2} \frac{\lambda t}{\cos \theta_B} |F'_{hkl}| e^{-M} \frac{C_{n,p}}{V} \cdot \cdot \cdot \cdot (3)$$

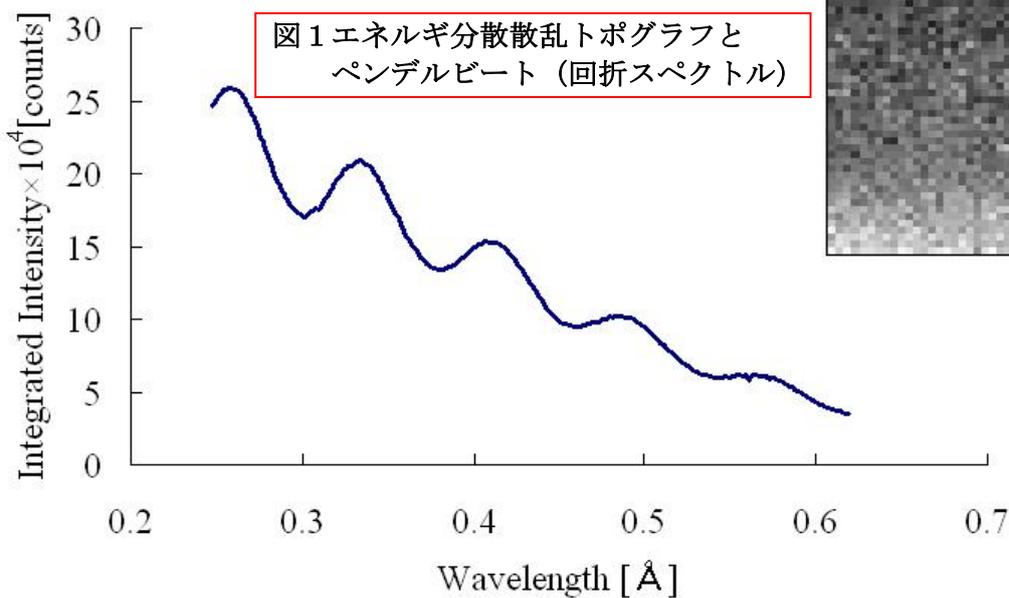
で与えられる。それぞれの因子は以下の通り。 K : 実験条件に依存する定数、 θ_B : ブラッグ角、 t : 試料の厚さ、 $\mu(E)$: 線吸収係数、 E : 光子エネルギー、 λ : 波長、 J_0 : ゼロ次ベッセル関数、 e^2/mc^2 : 古典電子半径、 V : 単位胞の体積、 $c_{n,p}$: 偏光因子 ($c_n=1$ 、 $c_p=|\cos 2\theta|$)、 $F_{hkl} = F'_{hkl} + iF''_{hkl} = \sum_j (f_{hkl}^0 + f' + if'') \exp 2\pi i \vec{H}_{hkl} \cdot \vec{r}_j$ 、 $|k| = |F''_{hkl}/F'_{hkl}|$ 、 e^{-M} : 温度因子、 $t/\cos \theta_B$: 試料の実効厚さ、である。

Waller 積分項 $\int_0^{2A_{n,p}} J_0(x) dx$ は、その積分上限値である式(3)が変化することで振動的な変化を示し、結果としてペンデルビートを与える。ここでは試料厚さ t を一定とし $\lambda/\cos \theta_B$ を変化させることによってエネルギーペンデルビートを測定する[1]。

これは白色線源を用いるため高次数の回折が同時に起こるため複数の波長を分別しなければならず、エネルギー分散型の測定システムが最適となる。これは散乱トポグラフィの測定システムによく適合し、一度試料を設置すると散乱トポグラフからペンデルビート測定へと円滑に移項することができる。実験は SPring-8 の BL28B2 で行い、試料は完全結晶のシリコンウエーファと銅拡散したものの、 $5\mu\text{m}\phi$ のマイクロビーム、検出器として半導体検出器(SSD)を用いた。

二結晶法で無転位と称する割合完全性の高い結晶は散乱トポグラフにおいても欠陥像は見られない。その試料表面の6点で測定されるエネルギースペクトルは一致することからも格子完全性が高く且つ一様な結晶であることが確認される。このスペクトルはエネルギーを横軸としたペンデル振動(ペンデルビート)である。測定された無転位結晶からのスペクトルは、回折理論式(1)~(3)のシミュレーションと対照することで、**振動位置の差異は0.1%以下**であることを確かめられる。

図1は、無転位のシリコンウエーファ(0.5X0.5mm)のエネルギー分散散乱トポグラフ(ビーム径 $5\mu\text{m}$ 、ref. (220))である。ラング法や



式(3)には構造因子 $|F|$ が含まれているので、ペンデルビートの極大/極小のエネルギー（または波長 λ ）を代入して因子 $|F|$ を求め、次に原子散乱因子 f を求めることができる。Spring-8のける実験とシミュレーション計算の結果、

〈この節の結論〉 $f_{220} = 8.548 \mp 0.03$

の値が求められた。過去、その他の方法で求められたシリコン220の f 値は我々の実験結果とほぼ一致している。

ここで提案している測定法は、測定に用いるX線信号は、直径 $5\mu\text{m}$ の完全性から選んだ微小部からの信号であるので、測定をバルク結晶を用いる他の測定法にない有利な特徴を持っている。

はじめにエネルギー分散散乱トポグラフによって試料の結晶性を観察し、ペンデルビート測定位

3. 加藤 (Prof.N.Kato) 統計的動力学理論による不完全な単結晶シリコンウェーファ二次消衰効果の可視化(イメージング)

3.1 消衰効果とリアル・クリスタル

デバイスはインゴット as-grown の完全性を維持しているわけではなく、その後の商品化に向けた後処理（熱や元素添加等）のために、一次消衰が顕著となる動力的コントラストの発生よりも、格子歪の増大により二次消衰が無視できない(ケースによっては主たる)回折現象となる。

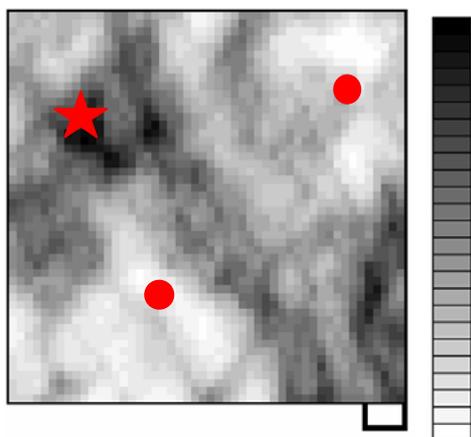


図2 歪の多い単結晶の内部構造
(エネルギー分散散乱トポグラフ)

例えば、銅をフォープしたウェーファのエネルギー分散散乱トポグラフは図2のようになっている。二結晶法で見られるほぼ似たCu析出が発生している。この結晶では、中央下方の赤丸印の領域は白いコントラスト(X線強度の弱い)になっていて、回折スペクトルは図1に近いパターンになり、結晶性がよいことが分かる。

置の決定を行った。ペンデルビートの測定は(220)回折時の回折角度の位置に試料とSSDを $\theta_B - 2\theta_B$ 配置に設定し回折エネルギーを変えながら連続して回折スペクトルを測定した。それぞれの(220)回折ピークの積分強度を波長軸にプロットしエネルギーペンデルビートを得ている。

[1] T.Takama, M.Iwasaki & S.Sato, Acta Cryst., A36,1980,1025-1030

一方、左上部に赤い星印で指定した付近の領域は黒いコントラスト(強度増大)となっている。その位置のスペクトルには図1のようなペンデルビートはほとんど見られない。すなわち結晶性は低下している。これは回折学的には二次消衰が減少することによると解釈する。古典(C.G.Darwin)的には結晶内の微小モザイク相互の傾きが小さくなると表面付近で回折してしまい、内部のモザイク片に達しなくなり、有効回折体積が小さくなり、結果として積分回折強度が減少がおこるものと考えられる(二次消衰)。逆に歪が大きく、モザイク間の傾きが大きくなるとモザイク片から出るX線間のコヒーレンスが減少し干渉せず、トータルとしてX線の強度の和が増加することになる。

以上を少々まとめると、完全性の高い結晶を除く多くの実在の単結晶では、内部に二次消衰効果が分布しているということである。これの可視化を行ったときに、そのイメージは「一次消衰に関わる完全性の高い単結晶に対する動力学理論では解釈することは出来ない」ということである。

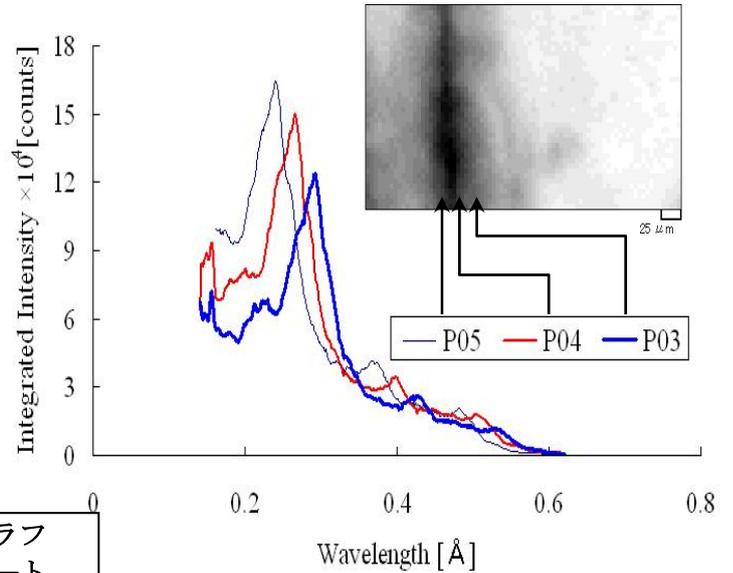
幸いなことに、消衰効果を一次、二次と区別することなく統一的に扱う理論がKatoらにより構築されているので、次の節ではその成果を引用させていただく。

[2] N.Kato, Acta Cryst., A36,1980,770-778

3.2 結晶性の低いリアルクリスタル単結晶シリコンウェーファの歪分布の可視化と統計的動力学理論（加藤理論）による画像の意味解釈

3.1 散乱トポグラフィによる観察事例

図3は結晶性に分布が存在するシリコン単結晶のエネルギー分散散乱トポグラフィ ($\delta = 5 \mu\text{m}$) と3か所 (P03、P04、P05) の回折スペクトル (エネルギーペンデルビート) の測定結果である。スペクトルの傾向は、欠陥の中心からその周囲に向かっていくにつれて徐々に外形が長波長側に移動していき、ことである。完全性の高い結晶で見られるスペクトル (図1) と全く様相がことになっていることがわかる。これこそが二次消衰効果が強くでることによる回折スペクトルである。

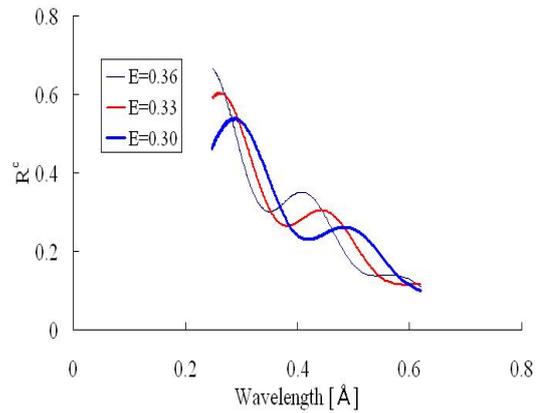


(右上) 図3 エネルギー分散散乱トポグラフィと回折スペクトルペンデルビート

3.2 Kato 理論による解析

試料の結晶性が低いいため、結晶中に局所変異が統計的に分布していると仮定して展開された消衰に関する内容を含む統計的動力学回折理論を適用することができる (N. Kato)。

加藤理論では、その時の積分反射強度のコヒーレント成分の理論式は以下の式で与えられている。



二次消衰効果のシミュレーション

$$R^c = EW[2E(T/\Lambda)] \times \exp\{-2(1-E^2)(\tau/\Lambda)(T/\Lambda)\} \cdot \dots \cdot (4)$$

$W[2E(T/\Lambda)]$ は Waller 積分項であり、 E 、 τ は結晶の完全性を表すパラメーターである。

式(4)のパラメーター E を変えて実測値とフィッティングした結果、二次消衰によるエネルギーペンデルビートの傾向と一致した。これは欠陥中心部ではモザイクのずれは大きい、欠陥周辺ではモザイクのずれが少なくなり回折強度は減少する。この二次消衰による強度の変化が散乱トポグラフィによっても観察され、エネルギーペンデルビートの変化と対応した。

ギーペンデルビート現象を確認した。欠陥近傍の高分解能エネルギーペンデルビート法により、結晶性の低い素子ウェーファの消衰効果構造評価を行うことができた。

【統計的動力学理論（加藤理論）関係の参考文献】
 (講演者のエネルギー分散散乱トポグラフィ関係の論文は省略)

[1] T.Takama, M.Iwasaki & S.Sato, Acta Cryst., A36,1980,1025-1030
 [2] N.Kato, Acta Cryst., A36,1980,770-778

4. 総括

直径 $5\mu\text{m}$ のシンクロトロン白色マイクロビームを用いて、動力学的回折理論に基づいたエネルギー