

平成 22 年 4 月 12 日現在

研究種目：基盤研究（B）  
 研究期間：2007～2009  
 課題番号：19360012  
 研究課題名（和文） 動的電場・磁場を用いた新規結晶育成方法の創製  
 研究課題名（英文） Development of new method of crystal growth using dynamic electromagnetic force

## 研究代表者

柿本 浩一 (KOICHI KAKIMOTO)  
 九州大学・応用力学研究所・教授  
 研究者番号：90291509

研究成果の概要（和文）：動的電場・磁場を用いた新規結晶育成方法を提案し、この方法を実験的に実証した。特に、SiC 単結晶成長に関して、液相成長と昇華法について新規な結晶成長法を提案した。昇華法に関しては、炉内圧力を制御することにより、結晶成長速度を増加させることが可能であることを明らかにした。液相成長法に関しては、高周波電磁場の周波数を変化させることにより、液相へ印加される電磁力の大きさを明らかにした。

研究成果の概要（英文）：We developed new methods of crystal growth of silicon and SiC by using external electro-magnetic fields. The study focused on the crystal growth methods of liquid phase epitaxy and sublimation method. We clarified how gas pressure in a furnace during crystal growth in a furnace for sublimation growth affects growth velocity of SiC. Furthermore, we studied the effects on frequency on flow of the solution in liquid phase epitaxy method.

## 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	9,700,000	2,910,000	12,610,000
2008年度	2,500,000	750,000	3,250,000
2009年度	2,500,000	750,000	3,250,000
年度			
年度			
総計	14,700,000	4,410,000	19,110,000

研究分野：結晶成長、結晶工学、数値解析  
 科研費の分科・細目：4901  
 キーワード：電磁場、結晶成長、Si、SiC

## 1. 研究開始当初の背景

現代情報化社会の根幹をなす LSI 技術は、常にこれに先行してきたシリコン(Si)結晶技術に支えられて進展を続けてきた。しかし、さらなる高性能・高集積化を求めたナノスケール LSI の時代、特に 450nm という結晶の大口径化を迎え、Si 結晶材料

側にも飛躍的な進展が強く望まれるいくつかの科学技術的挑戦課題が提起されている。具体的には、(1)点欠陥およびナノスケールの空洞欠陥の高歩留まり抑制技術、(2)点欠陥分布の決定要因となる固液界面近傍の温度分布精密制御技術、(3)超高集積デバイスに要求される超高均一不

純物分布、特に酸素濃度均分布を可能にする融液攪拌技術、等々である。

さらに、最近重要となってきたエネルギー問題に関しては、自動車用パワーデバイスの基板の高品質化が重要となってきた。

## 2. 研究の目的

本研究では、これら各種欠陥発生や不純物分布等に対しては、空孔と格子間原子等の流束制御を可能にする固液界面形状精密制御や、不純物を固液界面にローレンツ力等の外場により強制的に輸送することを可能にする方法、すなわち「動的電場・磁場を用いた対流高精度制御半導体結晶成長法」を新たに提案した。

本研究の目的は、過去 30 年以上にわたって、LSI 用 Si 結晶育成法の常識として踏襲されてきた、「結晶と坩堝の回転数の組み合わせによる結晶成長条件の最適化」の発想を大きく転換し、(1)動的電場や磁場、あるいは両方の場を同時に用いて強制的に融液攪拌を行い、混合を促進する。また、(2)強制的な融液の攪拌により、従来では達成できなかった固液界面形状の形成が可能となり、点欠陥の流束制御を実現する。(3)点欠陥の流束の制御によりナノスケールの空洞欠陥形成を抑制する。(4)強制的な融液の攪拌により不純物の不均一分布問題を解消する。

本研究は、結晶成長における Si イングロットやウエハ内におけるナノスケールでの空洞欠陥の除去、LSI 製造における Si ウエハ中の不純物分布の超高均一化を可能にする「動的電場・磁場を用いた対流高精度制御半導体結晶成長法」の実現を目指している。本研究グループでは、すでに図 1 に示したように、静的電場・磁場を印加した結晶成長方法の解析を推進してきており、本研究の遂行により以下のような研究成果が創出されるものであり、強力な研究体制のもとで、早急に研究推進を図る必要がある。本研究課題では、動的電場・磁場を融液に印加し、融液内のローレンツ力分布を所望の形状に制御することにより、既成の結晶成長法では実現不可能であった融液対流を実現する。その結果、固液界面形状を精密に制御することが可能となり、温度分布で決定される点欠陥の流束制御が可能となる。さらに酸素濃度制御も同時に可能となる。

このために、点欠陥の空洞欠陥の除去が可能となり、ナノスケールの欠陥形成問題にも確実な解決策を与え、大形結晶製造、特に 300mm から 450mm 直径の結晶製造における空洞欠陥形成抑制により、歩留まりを大幅に向上させることができる。すなわち、

空洞欠陥形成の抑制は緊急課題となっているが、決定的な解決策は示されていない現状では、本研究の成果は LSI 技術の将来に多大なインパクトを与えることが可能である。

本研究課題では、動的電場・磁場印加における磁場分布形状を任意に変化させることにより、局所的に融液にローレンツ力を作用させることが可能となる。その結果、所望の位置での融液対流を促進することにより、固液界面における不純物の分布の均一化に多大な効果を示すなど、将来の LSI の素子構造やプロセス技術の自由度を大幅に広げることが可能となる。

さらに、自動車用半導体の SiC に関しては、昇華法のコイルの密度を空間的に変化させることにより、原料加熱方法を最適化することにより、高品質の SiC 結晶の育成を可能にする。

## 3. 研究の方法

本研究では、シリコン融液に動的電磁場を印加することにより、融液内にローレンツ力を発生させ、これにより融液内の攪拌を促進させることが目的である。このために、図 1 に示すような炭素製ヒータに三相交流を印加することにより、目的を達成する準備を行った。図 1 には、ヒータ、シードホルダー、るつぼ、シリコン融液を示した。計算では、高周波の周波数が 1Hz, 50Hz, 1MHz の 3 つの場合について解析を行った。

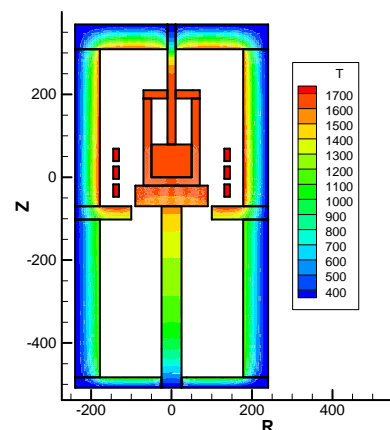


図 1 動的電磁場による融液攪拌可能な SiC 結晶育成炉の構成図。

計算方法について次に示す。まず、るつぼ内に充填したシリコン融液の温度が、融円になるようにヒータ電力を設定する。次に、ヒータに投入された電力と同等の高周

波電力を図1に示すヒータに設定し、この環境での電場分布を非定常で解析した。これをもとに融液攪拌の元動力となるローレンツ力の解析を行った。

#### 4. 研究成果

シリコン融液内の温度と流速分布を図2に示す。この分布は、図1のヒータに電力を与えることにより、シリコン融液の温度が融点以上になるように設定した場合の分布図である。融液の流速が、約1cm/sのオーダーであることが分かる。また、種結晶の温度が融液の他の部分よりも低いことから、実際にSiC結晶が成長できる環境であることが確認できた。

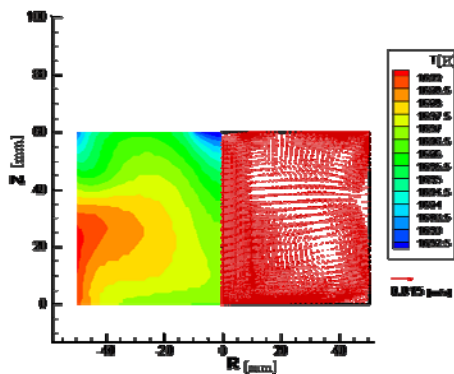
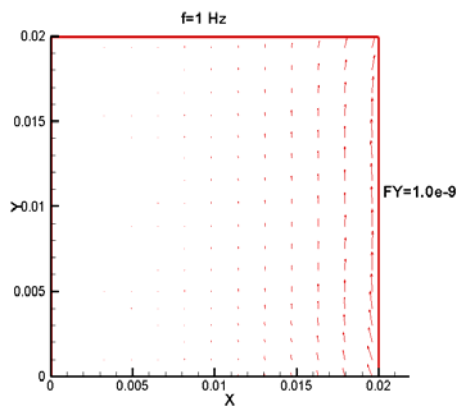
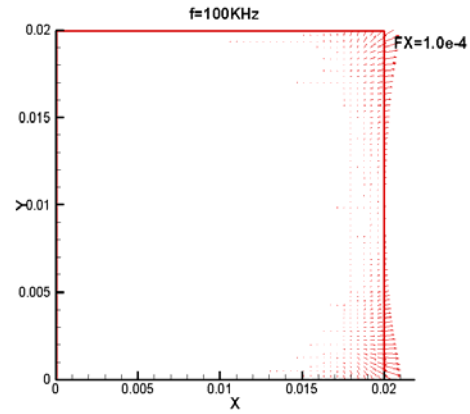


図2 動的電磁場による融液攪拌可能なSiC結晶育成炉の温度、流速分布。

次に、図1に示したヒータに高周波の周波数が1Hz, 50Hz, 1MHzの3つの場合について解析を行った結果を図3に示す。図3(a)と(b)は、高周波の周波数が50Hz, 1MHzのそれぞれローレンツ力と電流の分布を示す。



(a)



(b)

図3 周波数が50Hz(a), 100KHz(b)の場合のローレンツ力分布。

この図からわかるように、周波数が50Hzの場合は、1MHzの場合に比べて電磁場分布が不均一で、電流ベクトルも融液内部まで浸透していることが分かる。すなわち、50Hzの場合のほう、1MHzの場合と比較して融液の駆動力は融液全体に分布しており、駆動力が大きいことが明らかである。以上の結果から、動的静電場を使用することにより融液攪拌の効果が大きく、結果として溶液成長法によるSiCの成長速度の向上が実現できることを示した。

次に、SiCの昇華法に関する結果について述べる。図4は、昇華法によるSiC結晶炉の構成図を示した。図中には高周波電力印加用ヒータ、原料、種結晶が確認できる。

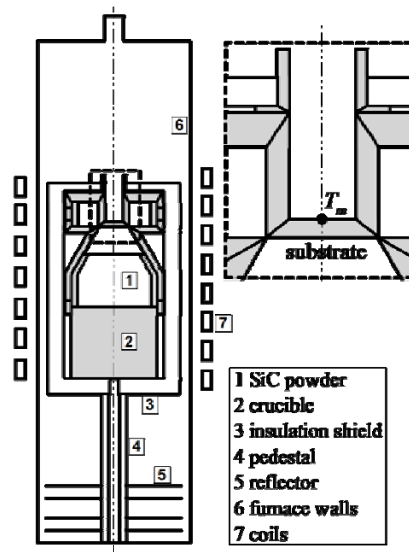


図4 昇華法によるSiC育成炉の構成図

本研究では、昇華法によるSiC育成炉の解析を、炉内のアルゴン圧力が結晶成長速度に与える影響、さらにはガス中と結晶中のシリコンと炭素の比率を解析することが可能となった。図5には、昇華法によるSiC育成炉内の温度分布を示す。この結果から、温度が一番高い場所は原料の底部であることが分かる。さらに、結晶成長の駆動力となる種結晶と原料との間の温度差は約15度程度であることも分かった。

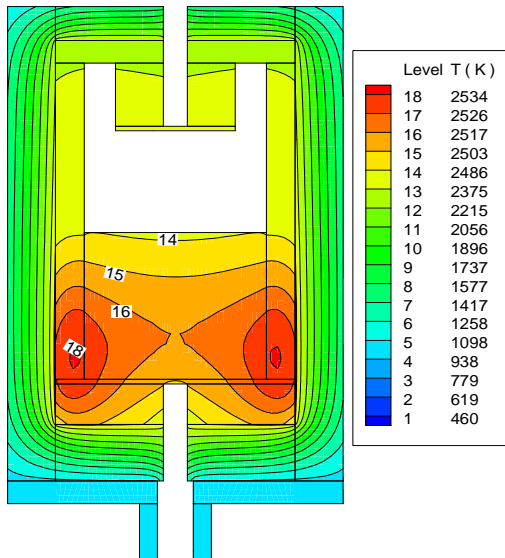


図5 図4 昇華法によるSiC育成炉内の温度分布

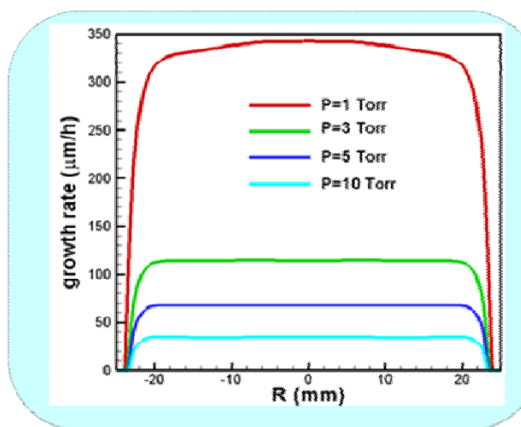


図5 SiC結晶成長速度の圧力依存性

本研究では、結晶成長速度を計算することが可能となっており、図6に示すように炉内のアルゴン圧力が減少すると成長速度は指数関数的に増加することが分かった。さらに、温度分布をもとに、結晶中に蓄積する応力を解析することが可能となり、種結晶近傍にお

いて応力集中が発生することが明らかとなった。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 30 件)

- ① Bing Gao, Satoshi Nakano, and Koichi Kakimoto, “Numerical Analysis of Impurity Transport in a Unidirectional Solidification Furnace for Multicrystalline Silicon”, 日本結晶成長学会誌, Vol. 36, 査読有
- ② Koichi Kakimoto, Hitoshi Matsuo, Syo Hisamatsu, Birava Ganesh, Gao Bing, X. J. Chen, Lijun Liu, Hiroaki Miyazawa, Yoshihiro Kangawa, “Numerical Analysis of mc-Si Crystal Growth”, Solid State Phenomena, Vols. 156-158 No.4, (2010) 193-198. 査読有
- ③ Koichi Kakimoto, Lijun Liu, “Analysis of local segregation of impurities at a silicon melt-crystal interface during crystal growth in transverse magnetic field-applied Czochralski method”, Journal of Crystal Growth, Vol.311, (2009) 2313-2316. 査読有
- ④ Lijun Liu, Hiroaki Miyazawa, Satoshi Nakano, Xin Liu, Zaoyang Li, and Koichi Kakimoto, “Modeling and simulation of Si crystal growth from melt”, Physica status solidi, C6, No.3, (2009) 645-652. 査読有
- ⑤ X. J. Chen, S. Nakano, L. J. Liu, K. Kakimoto, “Study on thermal stress in a silicon ingot during a unidirectional solidification process”, Journal of Crystal Growth, Vol.310, (2008) 4330-4335. 査読有
- ⑥ X. J. Chen, L.J. Liu, H. Tezuka, Y. Usuki, K. Kakimoto, “Optimization of the design of a crucible for a SiC sublimation growth system using a global model”, Journal of Crystal Growth, Vol. 310, (2008) 1810-1814. 査読有
- ⑦ K. Kakimoto, L. Liu, H. Miyazawa, S. Nakano, D. Kashiwagi, X. J. Chen, and Y. Kangawa, “ Numerical investigation of crystal growth process of bulk Si and nitrides - a review, Cryst. Res. Technol., Vol.42, No. 12, (2007) 1185-1189. 査読有
- ⑧ X. J. Chen, L.J. Liu, H Tezuka, Y. Usuki, and K. Kakimoto, “Numerical investigation of induction heating and heat transfer in a SiC growth system”, Cryst. Res. Technol., Vol.42, No. 10, (2007) 971-975. 査読有
- ⑨ Koichi KAKIMOTO, Takao TSUKADA, Nobuyuki IMAISHI, “Numerical Analyses

of Czochralski Furnace for Single Crystal Growth”, Journal of the Heat Society of Japan, Vol.46, No.196, (2007) 49-57. 査読有

〔学会発表〕 (計 63 件)

- ① Koichi KAKIMOTO, Bulk crystal growth from the melt: experimental and numerical approaches, ROMANIAN CONFERENCE ON ADVANCED MATERIALS, ROCAM 2009, 8.25 2009, BRASOV, ROMANIA
- ② Koichi Kakimoto, Numerical investigation of heat and mass transfer during a unidirectional solidification process in crystalline silicon for solar cells, IWMCG-6, 8.11 2009, LAKE GENEVA, WISCONSIN, USA
- ③ Lijun Liu, Prediction of Melt-Crystal Interface Shape and Melt Convection in a Large-scale CZ-Si Growth System Using RANS and LES Methods in Global Simulation, ISTC/CSTIC 2009, 3.19-20 2009, Shanghai, China
- ④ Koichi Kakimoto, Time Dependent and/or 3D Investigation of Carbon, Nitrogen, and Dislocation Distributions in a Silicon Crystal During Solidification Process, 18<sup>th</sup> Workshop on Crystalline Silicon Solar Cells & Modules: Materials and Processes, August 3 – 6 2008, Vail, Colorado,
- ⑤ Koichi KAKIMOTO, Modeling of crystal growth for solar cell, ICNPAA 2008: Mathematical Problems in Engineering, Aerospace and Sciences, June 27 2008, Faculty of Engineering of the University of Genoa, Italy
- ⑥ K. Kakimoto, Simulation of Si casting, IWCGT-4, May 18-25 2008, Beatenberg above Interlaken, Switzerland
- ⑦ Koichi Kakimoto, Numerical and experimental investigation of impurity distribution polycrystals for solar cells, 2nd International Workshop on Science and Technology of Crystalline Si Solar Cells (CSSC), 12.9-12 2007, Xiamen Univ., China
- ⑧ Lijun Liu, Carbon concentration and SiC particle precipitation in a directional solidification of multi-crystalline silicon, 2nd International Workshop on Science and Technology of Crystalline Si Solar Cells (CSSC), 12.9-12 2007, Xiamen Univ., China
- ⑨ K. Kakimoto, Global Modeling of a Directional Solidification Process for Multi-Crystalline Silicon, 22nd European

Photovoltaic Solar Energy Conference and Exhibition, 3-7 September 2007, FIERA MILANO / Rho in Milan, Italy

- ⑩ Lijun Liu, Carbon concentration and particle precipitation during a directional solidification of multi-crystalline silicon, 15th International Conference on Crystal Growth, 12-17 August 2007, Salt Lake City, USA

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.riam.kyushu-u.ac.jp/taiharou>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

柿本 浩一 (KOICHI KAKIMORO)  
九州大学・応用力学研究所・教授  
研究者番号：90291509

### (2) 研究分担者

寒川 義裕 (YOSHIHIRO KANGAWA)  
九州大学・応用力学研究所・准教授  
研究者番号：90327320

劉 立軍 (LIJUN LIU)  
九州大学・応用力学研究所・研究員  
研究者番号：00380535

中野 智 (YOSHIHIRO KANGAWA)  
九州大学・応用力学研究所・技術職員  
研究者番号：80423557

宇田 聡 (SATOSHI UDA)  
東北大学・金属材料研究所・教授  
研究者番号：90361170

黄 新明 (HUANG XINMING)  
東北大学・金属材料研究所・准教授  
研究者番号：80375104

### (3) 連携研究者

( )

研究者番号：