

令和元年6月1日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2016～2018

課題番号：16H03856

研究課題名（和文）発光イメージングによる欠陥特性の定量

研究課題名（英文）Quantification of electrical properties of defects in semiconductor crystals from a luminescence image

研究代表者

沓掛 健太郎（Kutsukake, Kentaro）

国立研究開発法人理化学研究所・革新知能統合研究センター・研究員

研究者番号：00463795

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 12,900,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では半導体結晶の発光イメージから結晶内部に含まれる欠陥の物性を定量する手法の開発に取り組みました。本研究で得られたBaSi<sub>2</sub>やSiCの高品質結晶を測定試料に用いて検討を進め、半導体や結晶欠陥の物理に基づきながらキャリアシミュレーションや画像処理、機械学習などの計算手法を活用することで、従来法に比べて、より高精度、高感度、高速・高効率な定量法を得ることができました。得られた定量法や測定のための基礎技術・基礎知見は、積極的に実用を進めていく予定です。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究のポイントは画像として得られる発光イメージから、欠陥物性の情報をいかに抽出するかです。本研究では、半導体や欠陥の物理に基づくシミュレーション、欠陥のもつ画像特徴を検出する画像処理、大量データから有用な法則を導く機械学習を活用することで、欠陥に関する情報を高速・正確に抽出する方法を開発しました。この方法は、半導体結晶の発光イメージに限らず、多くの計測画像に適用できる技術要素を持つため、今後さまざまな応用展開を進める予定です。

研究成果の概要（英文）：We worked in research and development of a method to quantify electrical properties of defects in semiconductor crystals from a luminescence image. High quality crystals of BaSi<sub>2</sub> and SiC obtained in this research were used as measurement samples for the development. We obtained an accurate, high sensitivity, high speed, and high efficiency quantification method by combining computational methods such as carrier simulation, image processing and machine learning with fundamental physics of semiconductor and crystal defects. We work toward practical use of the obtained methods, techniques and knowledge.

研究分野：結晶工学

キーワード：発光イメージ 結晶工学 半導体結晶 結晶欠陥 機械学習 結晶評価 欠陥物性 定量化

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

半導体結晶中の結晶欠陥（粒界、積層欠陥、転位、析出物など）は、一般的には、デバイスの特性を低下させ、有害である。特性低下の多くは、欠陥が形成するバンドギャップ内準位を介したキャリア再結合に起因する。キャリア再結合速度は、単位時間・単位欠陥表面あたりでキャリアが再結合する割合であり、欠陥の有害度を直接、定量的に示す値として、重要な有用である。

キャリア再結合速度の定量は、キャリア寿命などのマクロな特性値を測定領域内の欠陥密度で割ることで平均値は得られる。しかし、高度化が進む現代のデバイスでは、個々の欠陥の局所的な特性の評価が求められる。それらは、電子線誘起電流法(EBIC)などの微視的な電気評価のデータから、解析的に求められる(Donolato, JAP 84(1998)2656)が、定量性や感度に課題がある。

そこで我々は、顕微発光イメージングを用いる方法を提案し、Si 結晶中の粒界と転位それぞれのキャリア再結合速度を定量的に求める手法を研究してきた。発光イメージングは、視野よりも広い範囲に均一に光もしくは電流注入で過剰キャリアを発生させ、そのキャリアによる発光(PL/EL)の分布をカメラで撮影する方法である(図1)。定常状態での測定、均一なキャリア注入など、高感度・定量測定に適した特徴を持つ。しかし、これまで発光イメージングは、電氣的に活性な欠陥のマクロな分布をビジュアルに取得する方法として多く用いられてきているが、同法を用いた局所的な欠陥物性の定量評価は、我々の知る限り、Si 結晶中の粒界についての Sio らの報告(JAP 116(2014)244905.)のみである。本研究では、有限要素シミュレーション、画像処理、機械学習などの計算機を活用した手法を導入することで、感度・定量精度の向上、効率的な測定、欠陥に関する情報抽出を目指した。また、この方法を Si 結晶以外の BaSi<sub>2</sub>(Si よりもキャリア拡散長が短い)と SiC(Si よりもワイドバンドギャップ)に応用展開し、材料の違いを超えた背景物理を明確にし、評価法を確立することを目指した。

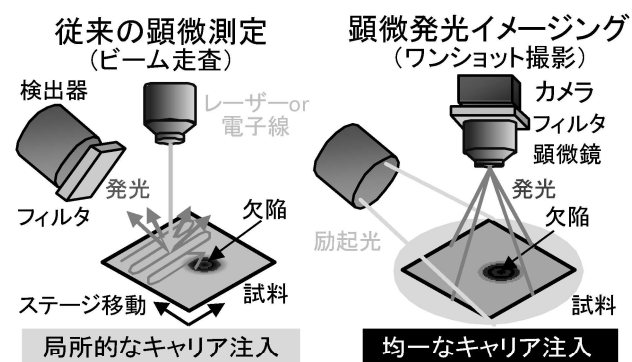


図1 従来の測定と顕微発光イメージング

### 2. 研究の目的

以上の背景のもと本研究の目的は、顕微発光イメージングによる半導体結晶中の粒界および転位のキャリア再結合特性の定量評価法を確立することであり、そのために

- (1) 計算機を活用した高感度、高精度、高効率な欠陥特性の定量法の検討
- (2) BaSi<sub>2</sub>、SiC などの Si 以外の半導体材料に本方法を適用するための基礎知見の獲得を行った。

### 3. 研究の方法

- (1) 計算機を活用した高感度、高精度、高効率な欠陥特性の定量法の検討

画像として取得される発光イメージから、欠陥の物性情報を定量的に求めることは、重要な課題である。本研究では、計算機を活用することで、より高感度、高精度、高効率な欠陥特性の定量を目指した。具体的には、有限要素法によるキャリアシミュレーション、機械学習による効率的な測定と物性推定、画像処理による欠陥情報の抽出を行った。

有限要素法によるキャリアシミュレーションでは、発光イメージ測定時の欠陥周囲のキャリア密度分布を、キャリア拡散方程式をベースに、励起光・電流注入によるキャリア生成、欠陥表面・試料表面・裏面・バルク中でのキャリア再結合を考慮して求めた。特に、先行研究では考慮されていない欠陥配置に関する自由度も取り入れ、より汎用的な計算コードを作成した。さらに、実際の顕微発光イメージング装置の光学系収差を考慮して、キャリア密度分布から欠陥周囲の発光強度プロファイルを求める計算コードを作成した。

機械学習による効率的な測定と物性推定では、機械学習法のひとつであるベイズ最適化を半導体基板の評価に活用し、それまでに取得した物理量の分布に即して、適応的に次の測定条件(測定位置)を決定する方法を考案した。またニューラルネットワークを活用して、上記のシミュレーションで得られた発光強度プロファイルから欠陥物性を直接推定する方法を検討した。

画像処理による欠陥情報の抽出では、発光イメージ中で欠陥領域の持つ特徴(発光強度コントラストやその連続性・形状)を画像処理によって自動検出する方法を考案し、これを大量のイメージに適用することで、欠陥についての統計量や3次元情報を取得した。

- (2) BaSi<sub>2</sub>、SiC などの Si 以外の半導体材料に本方法を適用するための基礎知見の獲得

顕微発光イメージングは、本研究開始時点では Si 結晶のみに対応していた。そこで、本方法を Si 以外の半導体結晶評価へ適用するために必要な基礎知見を獲得することを目指した。具体的には、顕微発光イメージング装置の拡張、BaSi<sub>2</sub>、SiC などの高品質結晶育成と評価検討を行

った。

顕微発光イメージング装置の拡張では、高空間分解評価を可能にするための、顕微光学系の改造を行った。またワイドバンドギャップ材料の評価を可能とするため、短波長光源と短波長光学系の設計・導入を行った。

BaSi<sub>2</sub>、SiC などの高品質結晶育成と評価検討では、発光イメージ測定が可能な高品質結晶（低欠陥密度、長キャリア寿命）を作製し、また発光評価のために必要な表面処理や試料状態を検討した。

#### 4. 研究成果

図2に、本研究で構築した結晶粒界周囲の発光イメージから粒界でのキャリア再結合速度を定量する手順を示す。発光イメージから粒界に垂直方向の発光強度プロファイルを取得し、粒界から十分遠方の値で規格化する。実験で得られたプロファイルと、有限要素シミュレーションによって得られたプロファイルと比較することで、粒界でのキャリア再結合速度が定量的に求められる。このとき、シミュレーションではそれぞれの結晶粒内のキャリア寿命をパラメータとしているため、発光イメージの単純な強度コントラストに左右されることなく、粒界でのキャリア再結合速度を定量的に求めることができる。図3に、試料表面に対する角度が 30° と 90° で配置する粒界についての発光強度プロファイルのシミュレーション結果を示す。30° と 90° 配置の粒界では、粒界近傍のプロファイル形状が大きく異なり、粒界の傾き角度がプロファイル形状に大きな影響を与えていることがわかる。先行研究の解析では、粒界の配置はすべて 90° と近似され、配置角度はパラメータとされていなかったが、本研究では配置角度をパラメータとすることで、より正確な再結合速度の定量を可能とした。さらに、発光イメージと高精度で位置合わせした試料表裏面の顕微鏡像から、各粒界の傾き角度を求める方法を考案し、粒界の配置角度を既知のパラメータとすることで、さらに高精度に再結合速度を定量することを可能とした。

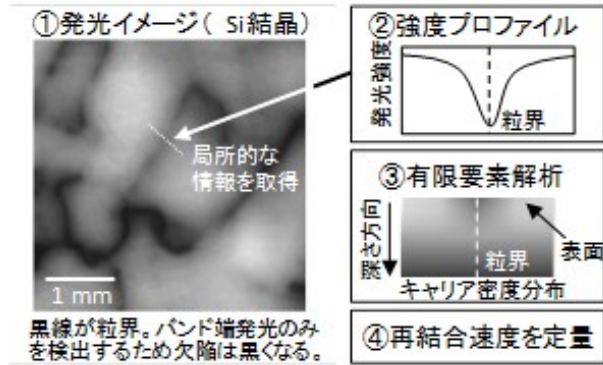


図2 発光イメージからキャリア再結合を定量する手順

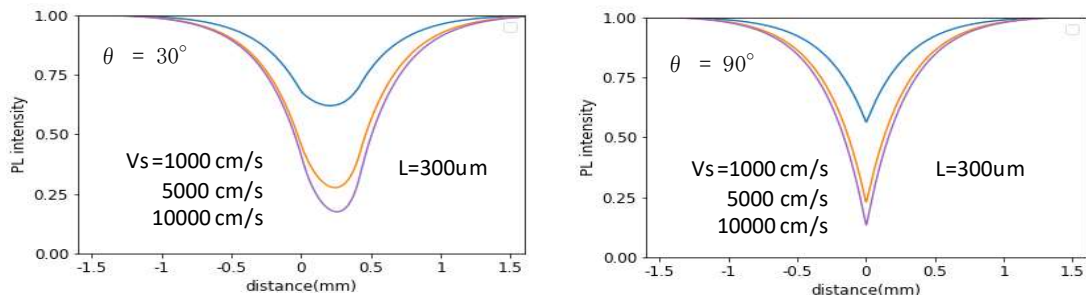


図3 試料表面に対する角度が 30° と 90° の粒界の発光強度プロファイルのシミュレーション結果。各線はそれぞれのキャリア再結合速度の場合に対応する。

さて実際にキャリア再結合速度を定量するためには、実験で得られたプロファイルに最も一致するプロファイルを出力する再結合速度とキャリア寿命の組を求める必要があり、そのためには繰り返しシミュレーションを行わなければならない。しかし、1回のシミュレーションには数時間かかるため、トータルでは非常に長い時間がかかってしまう。そこで本研究では機械学習を活用して、発光イメージの強度プロファイルから直接キャリア再結合速度を推定する方法を検討し、ニューラルネットワークを用いる方法を得た。図4に、学習に用いていないテストデータに対する、ニューラルネットワークによるキャリア再結合速度の推定値とシミュレーションによる真値の対応を示す。再結合速度を  $10^4$  cm/sec とした求めた際の  $x$  の誤差として+

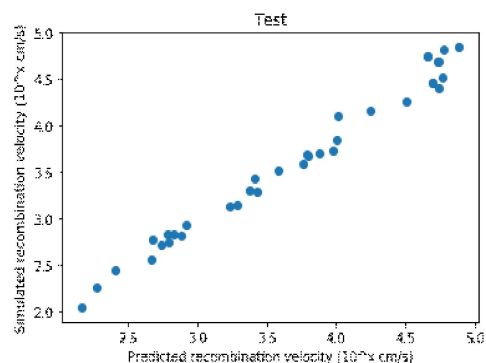


図4 キャリア再結合速度のニューラルネットワークによる予測とシミュレーション結果

-0.15 が得られ、この値は欠陥物性評価としては十分な精度である。このニューラルネットワークによる推定に必要な時間は1秒以下であり、シミュレーションのみで再結合速度を求めた場合に比較して10000倍以上計算時間が短縮された。

また画像処理による欠陥情報の抽出の成果例を図5に示す。この例では、GaN結晶の多光子励起PLイメージから転位に起因するコントラストのみを画像処理によって抽出し、さらに深さ方向の連続イメージから同一の転位を追跡しながら、各深さ位置での各転位の位置を求めた。得られた各転位の3次元情報は、結晶成長方向からの傾きなど、転位線の形状に関する詳細な情報を持っており、このような情報を多数の欠陥から抽出することで、統計的な見地からの研究が可能となる。また、直線近似からのずれの量を求めることで、らせん状のヘリカル転位の構造情報を定量的に求めることも可能となる。このような解析は、従来の1枚1枚のイメージを手動で解析する方法では処理しきれず、画像処理を活用した自動解析によってはじめて得られるものである。

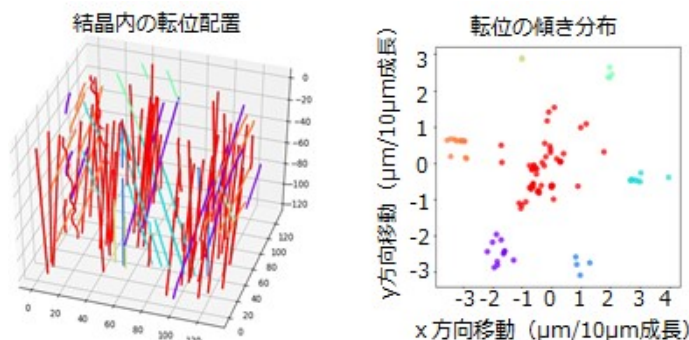


図5 GaN結晶中の転位配置と転位の傾き分布

本研究では、Si結晶以外の半導体結晶への顕微発光イメージングの応用展開を目指して、BaSi<sub>2</sub>およびSiCの高品質結晶の育成と評価を行った。BaSi<sub>2</sub>では真空蒸着法で作製した薄膜からの発光を観測するために、薄膜中の欠陥の低減を行った。特に、薄膜の組成分布解析により判明した基板界面近傍の酸化を、蒸着前の原料溶解により検出限界未満まで低減できることを明らかにした。また、深さ方向組成分析と堆積組成の熱力学理論予測により、BaSi<sub>2</sub>成膜メカニズムを詳細に解明した。さらに本研究によって新規導入した真空蒸着装置の堆積速度制御機構を用いることで、堆積組成の精密制御が可能となった。SiCの結晶成長では、厚さ150~300 μmの様々な表面モフォロジーを有するSiC結晶を成長した。得られた結晶は、ラマン分光法により大部分が4H-SiCであることを確認した。いずれの結晶も、本研究での発光イメージングの測定試料に供され、上述の各種定量法の開発に生かされた。

また本研究の成果を受けて、発光イメージング装置の開発企業とワイドバンドギャップ半導体の評価についての共同研究が開始された。この共同研究も含めて今後、本研究で得られた定量法や測定のための基礎技術・基礎知見は、積極的に実用を進めていく。

以上のように、本研究では発光イメージから半導体結晶の欠陥物性を定量する手法の開発に取り組み、半導体結晶の欠陥物性やキャリア物性に基づいて、キャリアシミュレーションや機械学習などの手法を活用することで、より正確、より高感度、より高速・高効率な定量法を得ることができた。本研究での手法は、発光イメージに限られることなく、様々な計測イメージから目的とする情報を正確に抽出する方法へと広がるものである。本研究で得られた知見を積極的に活用し、計測科学の発展に寄与したい。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 11 件)

- ① [Hara Kosuke O.](#), Arimoto Keisuke, Yamanaka Junji, Nakagawa Kiyokazu, “Fabrication of SnS/BaSi<sub>2</sub> heterojunction by thermal evaporation for solar cell applications”, Japanese Journal of Applied Physics 58 (2019) SBBF01-1-5, DOI: 10.7567/1347-4065/aaf69a, 査読あり
- ② [Hara Kosuke O.](#), Arimoto Keisuke, Yamanaka Junji, Nakagawa Kiyokazu, “Diffusion process in BaSi<sub>2</sub> film formation by thermal evaporation and its relation to electrical Properties”, Journal of Materials Research 33 (2018) 2297-2305, DOI: 10.1557/jmr.2018.181, 査読あり
- ③ Suzuki Koki, Hyun Koang Yong, [Taishi Toshinori](#), “Effect of the Growth Conditions on the Crystal Quality in Solution Growth of SiC Using Cr Solvent without Molten Si”, Materials Science Forum 925 (2018) 35-38, 10.4028/www.scientific.net/MSF.924.35, 査読あり
- ④ [Taishi Toshinori](#), Takahashi Masaru, Tsuchimoto Naomichi, Suzuki Koki, Hyun Koang Yong, “Solution Growth of SiC from the Crucible Bottom with Dipping under Unsaturation State of Carbon in Solvent”, Materials Science Forum 924 (2018) 51-54, DOI: 10.4028/www.scientific.net/MSF.924.51, 査読あり
- ⑤ Naomichi Tsuchimoto, Shingo Ehara, [Toshinori Taishi](#), “Numerical simulation of

- carbon concentration in top-seeded solution growth of SiC”, The 8th Forum on Science and Technology of Silicon Material 8 (2018) 372-376, <http://www.ec.okayama-u.ac.jp/~dm/siforum/English/home.html>, 査読なし
- ⑥ Koki Suzuki, Toshinori Taishi, “Solution growth of SiC without molten Si using concave ceramic SiC feed”, The 8th Forum on Science and Technology of Silicon Material 8 (2018) 377-381, <http://www.ec.okayama-u.ac.jp/~dm/siforum/English/home.html>, 査読なし
- ⑦ Kentaro Kutsukake, Yusuke Hayama, Tetsuya Matsumoto, Hiroaki Kudo, Tatsuya Yokoi, Yutaka Ohno, and Noritaka Usami, “Generation and propagation of defects in multicrystalline silicon for solar cells”, The 8th Forum on Science and Technology of Silicon Material 8 (2018) 152-153, <http://www.ec.okayama-u.ac.jp/~dm/siforum/English/home.html>, 査読なし
- ⑧ Kosuke O. Hara, Keisuke Arimoto, Junji Yamanaka, Kiyokazu Nakagawa, “Suppression of Near-interface Oxidation in Thermally-evaporated BaSi<sub>2</sub> Films and Its Effects on Preferred Orientation and the Rectification Behavior of n-BaSi<sub>2</sub>/p+-Si Diodes”, MRS Advances 3 (2018) 1387-1392, DOI: <https://doi.org/10.1557/adv.2018.31>, 査読あり
- ⑨ Kosuke O. Hara, Chiaya Yamamoto, Junji Yamanaka, Keisuke Arimoto, Kiyokazu Nakagawa, and Noritaka Usami, “BaSi<sub>2</sub> formation mechanism in thermally evaporated films and its application to reducing oxygen impurity concentration”, Japanese Journal of Applied Physics 57 (2018) 04FS01-1-5, DOI: <https://doi.org/10.7567/JJAP.57.04FS01>, 査読あり
- ⑩ Kosuke O. Hara, Cham Thi Trinh, Yasuyoshi Kurokawa, Keisuke Arimoto, Junji Yamanaka, Kiyokazu Nakagawa, Noritaka Usami, “Fabrication of BaSi<sub>2</sub> thin films capped with amorphous Si using a single evaporation source”, Thin Solid Films 636 (2018) 546-551, DOI: <https://doi.org/10.1016/j.tsf.2017.06.055>, 査読あり
- ⑪ Kosuke O. Hara, Cham Thi Trinh, Yasuyoshi Kurokawa, Keisuke Arimoto, Junji Yamanaka, Kiyokazu Nakagawa, and Noritaka Usami, “Post-annealing effects on the surface structure and carrier lifetime of evaporated BaSi<sub>2</sub> films”, Japanese Journal of Applied Physics 56 (2017) 04CS07-1-5, DOI: [10.7567/JJAP.56.04CS07](https://doi.org/10.7567/JJAP.56.04CS07), 査読あり

[学会発表] (計 37 件)

- ① Kentaro Kutsukake, “Generation and propagation of dislocations in multicrystalline silicon for solar cells”, International Symposium on Modeling of Crystal Growth Processes and Devices, 2019, 招待講演, 国際学会
- ② 太子敏則、鈴木皓己、土本直道, “SiC 溶液成長における溶質の溶解・輸送・成長”, 日本金属学会 2019 年春期 (第 164 回) 講演大会, 2019, 招待講演
- ③ 太子敏則、干川圭吾, “SiC および機能性バルク単結晶の育成～融液成長からの SiC 溶液成長のアプローチ～”, 日本学術振興会第 161 委員会第 103 回研究会, 2018, 招待講演
- ④ 沓掛健太郎, “物理計測の適応的マッピング”, 日本金属学会東海支部、日本鉄鋼協会東海支部学術討論会, 2018, 招待講演
- ⑤ 沓掛健太郎、宇佐美徳隆、工藤博章、松本哲也、横井達矢, “データ科学を活用した材料創製・材料評価に向けて”, 日本金属学会 2018 春季学術講演会, 2018, 招待講演
- ⑥ 沓掛健太郎, “PV 研究におけるデータサイエンス活用に向けて”, JSAP 若手チャプター太陽光エネルギー変換機能材料・デバイス開発研究会 第 1 回研究会, 2018, 招待講演
- ⑦ Kentaro Kutsukake, “Adaptive mapping for quick material evaluation”, The 19th KIM-JIM Symposium, 2018, 招待講演, 国際学会
- ⑧ 沓掛健太郎, “結晶評価へのデータ科学活用”, 応用物理学会東海支部 基礎セミナー「結晶成長：原理と成長法、及び、歪・欠陥の評価技術の最前線」, 2018, 招待講演
- ⑨ Hara, K. O., Arimoto, K., Yamanaka, J., and Nakagawa, K., “Composition control of semiconducting BaSi<sub>2</sub> films fabricated by thermal evaporation”, Collaborative Conference on Materials Research (CCMR) 2018, 2018, 招待講演, 国際学会
- ⑩ 原康祐、瀧澤周平、有元圭介、山中淳二、中川清和, “高速熱蒸着による BaSi<sub>2</sub> 薄膜作製技術の進展”, 第 32 回シリサイド系半導体研究会, 2018, 招待講演
- ⑪ Kosuke O. Hara, Chiaya Yamamoto, Junji Yamanaka, Keisuke Arimoto, Kiyokazu Nakagawa, Noritaka Usami, “Simple Thermal Evaporation Route to Single-Phase and Highly-Oriented BaSi<sub>2</sub> Thin Films”, 2017 MRS Fall Meetings & Exhibit, 2017, 招待講演, 国際学会
- ⑫ 太子敏則, “TSSG 法による SiC 溶液成長における溶媒中の炭素の溶解・輸送解析と結晶品質に与える影響”, 第 12 回日本フラックス成長研究発表会, 2017, 招待講演
- ⑬ 沓掛健太郎, “データ科学を駆使した適応的マッピング測定”, 日本学術振興会第 145 委員会第 156 回研究会, 2017, 招待講演
- ⑭ Kentaro Kutsukake, Yutaka Ohno, Momoko Deura, and Ichiro Yonenaga, “Grain boundaries in silicon crystals: Crystallographic interaction and dislocation generation during

crystal growth”, The 18th International Conference on Crystal Growth and Epitaxy, 2016, 国際学会, 招待講演

- ⑮ 沓掛健太郎, “太陽電池用シリコンのキャスト成長における欠陥制御”, 学振 175 委員会 第 6 回次世代シリコン太陽電池分科会研究会, 2016, 招待講演  
他 国際会議 7 件、国内会議 15 件

〔図書〕 (計 1 件)

- ① Kentaro Kutsukake, Chap. “Growth of Crystalline Silicon for Solar Cells: Mono-Like Method, in Handbook of Photovoltaic Silicon, pp.1-20, Springer, 2018

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 1 件)

名称：マッピング方法および測定装置  
発明者：沓掛健太郎、菊池亮太、下山幸治  
権利者：同上  
種類：特許  
番号：特願 2017-032950  
出願年：2017  
国内外の別： 国内

## 6. 研究組織

### (1) 研究分担者

研究分担者氏名：原康祐

ローマ字氏名：Kosuke Hara

所属研究機関名：山梨大学

部局名：大学院総合研究部

職名：特任助教

研究者番号 (8 桁)：40714134

研究分担者氏名：太子敏則

ローマ字氏名：Toshinori Taishi

所属研究機関名：信州大学

部局名：学術研究院工学系

職名：准教授

研究者番号 (8 桁)：90397307

### (2) 研究協力者

研究協力者氏名：谷川 智之

ローマ字氏名：Tomoyuki Tanikawa

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。