

令和 6 年 6 月 24 日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究(A)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21H04553

研究課題名（和文）界面欠陥の電子状態計算法の確立とSiC-MOS界面の物理解明

研究課題名（英文）Elucidation of SiC-MOS interfaces by developing electronic structure calculation methods

研究代表者

松下 雄一郎 (Matsushita, Yu-ichiro)

東京工業大学・科学技術創成研究院・特任准教授

研究者番号：90762336

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 32,500,000円

研究成果の概要（和文）：SiC-MOSデバイスは、次世代パワーデバイスとして大きな注目を集める一方、SiC/SiO₂界面には多くの課題が山積している。界面近傍における高密度な欠陥が存在していることが原因である。理論と実験の共同研究により、原子レベルでの界面欠陥の特定と、その対処法、さらには界面処理の物理を解明することが重要である。本研究課題では、(i)界面欠陥の高精度な電子状態解析法の確立、(ii)SiCの伝導帯下端の特殊性が界面において異常な局在化を誘起し界面欠陥として働き、さらには有効質量近似の破綻を引き起こしていること、(iii)窒素界面処理が移動度を改善するメカニズムを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

SiC-MOSデバイスは、次世代パワーデバイスとして大きな注目を集める一方、そのMOS界面には多くの課題が山積している。原子レベルでの界面欠陥の特定と、そのデバイス特性との相関関係を解明することは学術的にも産業界的にも重要な課題である。本研究で得られた、界面欠陥の高精度な電子状態の解析法や、さらには有効質量近似の破綻を引き起こしているメカニズムを明らかにした点は、極めて普遍性が高く、SiCに限った話ではない。本研究課題では半導体物理学の深化を促すことができ、学術的にも社会的にも十分に意義深い成果を得ることができた。

研究成果の概要（英文）：SiC-MOS devices are attracting significant attention as next-generation power devices. However, there are many challenges associated with the SiC/SiO₂ interface. The presence of high-density defects near the interface is the cause of these challenges. Joint theoretical and experimental research to identify interface defects at the atomic level, their countermeasures, and to elucidate the physics of interface treatment is important. This research project has revealed: (i) the establishment of a high-precision electronic state analysis method for interface defects, (ii) the peculiarities of the conduction band edge of SiC induce abnormal localization at the interface, acting as interface defects, and further cause the breakdown of the effective mass approximation, (iii) the mechanism by which nitrogen interface treatment improves mobility.

研究分野：計算物理

キーワード：SiC 界面欠陥 SiC-MOS 量子コンピュータ 虚時間発展法

1. 研究開始当初の背景

SiC-MOS デバイスは、Si に代わる次世代パワーデバイスとして大きな注目を集める一方、SiC/SiO₂ 界面には多くの課題が山積している。界面近傍における高密度な欠陥が存在し、電子や正孔の移動度に影響を及ぼしていることが知られている。特に、その移動度の面方位依存性も大きな謎であり、無極性面である(1-100)面や(11-20)面は、極性面である(0001)Si面と比べて界面特性が良い。未だにその明確な理由は明らかになっていない。さらには、課題代表者らによって、SiCの伝導帯下端の電子状態は従来考えられてきたような原子軌道由来の電子状態ではなく、空間を浮遊した("float"した)状態であることが報告されたが、このSiCの伝導帯下端のキャラクターの特殊性と電子移動度キラーとの関係も不明確なままである。もう1つ重要なこととして、SiC-MOS界面では窒化界面処理を行うことにより、電子移動度が改善されることが知られているが、その微視的メカニズムも明らかにされていない。原子レベルでの界面欠陥の特定と、その対処法、さらには窒化界面処理との関係を明らかにすることが求められている。

原子レベルでの構造とデバイス特性との相関を理解する上では、実験値を必要としない、密度汎関数理論に立脚した理論計算が有効である。本研究においても、密度汎関数理論に基づいた計算により、界面欠陥構造とそのデバイス特性との相関関係を明らかにする。その際に、大きな問題となってくるのが、高い信頼性を有する界面欠陥の電子状態の解析方法の確立である。通常、欠陥を第一原理的に計算しようとする際には、計算コストの観点から100原子程度の計算セルの中に欠陥を導入し計算を実行するスーパーセル法という方法を用いるのが一般的である。しかし、100原子程度の小さなシステム上で欠陥計算を実施するため、信頼できる計算結果を得るためには、システムサイズに対する有限サイズ補正を行なう必要が出てくる。バルク結晶中の点欠陥に関しては既に高精度な有限サイズ補正法が確立されているが、界面欠陥に対しては高信頼性のある有限サイズ補正法が未だ確立していなかった。

材料計算を飛躍的に発展させる可能性として、量子コンピュータの利活用が近年大きな注目を集めている。一方で、量子コンピュータを活用することにより、どのような材料計算がどの程度加速するのかがいまだに明らかになっていない課題である。量子コンピュータの利活用により、本研究課題も大きく発展させられる可能性があり、量子コンピュータの利活用の可能性の探索も本課題の重要な課題である。

2. 研究の目的

上記の背景のもと、本研究課題では次のように目的を設定した。(i)界面欠陥に対する高精度な有限サイズ補正法の確立。(ii)界面欠陥の候補構造の特定と、そのデバイスへの影響。(iii)窒素界面処理法の微視的メカニズムの提案と更なるデバイス特性改善法の提案。(iv)量子コンピュータにおける材料計算アルゴリズムの開発とその優位性の検証。

3. 研究の方法

上記の4つの目的に対して、それぞれ次のように研究の方法を設定した。

(i)界面欠陥に対する高精度な有限サイズ補正法の確立。界面欠陥に対する高精度な有限サイズ補正法を確立すべく、SiC-MOS界面上で欠陥構造の同定が行われている炭素ダングリングボンド(P_{bc}センタ)に注目する。SiCのバンドギャップを定量的に再現するHSE(Heyd-Scuseria-Ernzerhof)近似を用いて電子状態の評価を行う。有限サイズ補正としては、欠陥の帯電状態を変えながら、バルク中の点欠陥に対する有限サイズ補正を拡張させた方法と、コーン・シャム準位で評価する方法の2つを試し、比較を行う。また、それら信頼性の比較対象の基準としては、EDMR(Electrically detected-magnetic-resonance spectroscopy)による最新の実験結果と比較する。

(ii)界面欠陥の候補構造の特定と、そのデバイスへの影響。ゲート電界がかかったSiC-MOS界面を密度汎関数理論に則り計算を実施する。その際に、伝導帯下端の電子状態が極性面、無極性面でどのように変わってくるかを、伝導帯下端の波動関数の特殊性を考慮し、比較検討を実施する。さらには、半導体物理において通常用いられる有効質量近似と得られた計算結果を比較し、従来の半導体物理とSiC-MOSとの定性的な違いも考察する。

(iii)窒素界面処理法の微視的メカニズムの提案と更なるデバイス特性改善法の提案。SiC-MOS界面構造に窒素を導入し、そこにゲート電界がかかった際の振る舞いの様子を観察する。さらには、実験よりも界面近傍に高ドーピングに窒素を置換した際に、どのように伝導帯下端の波動関数が振る舞うかを議論し、更なるデバイス改善の可能性を議論する。

(iv)量子コンピュータにおける材料計算アルゴリズムの開発とその優位性の検証。量子コンピュータのアルゴリズムとして、古典コンピュータでも知られている基底状態計算を行うアルゴリズムの“虚時間発展法”に注目する。量子コンピュータ上で虚時間発展法を実行するアルゴリズム、さらにはその数学的な考察を行い量子優位性(古典計算機よりも速いアルゴリズムであることを指す)の可能性に関して考察を行う。次に、虚時間発展法を用いた構造探索計算の可能性を議論する。

4. 研究成果

上記4つの研究方法に対して、それぞれ下記の成果を得ることができた。

(i) 界面欠陥に対する高精度な有限サイズ補正法の確立。

表面欠陥に対する電子状態計算を実施する際、大きな課題は、表面欠陥に対する高い信頼性の有する電子状態計算手法の選択である。どの計算手法を用いると、どの程度の精度で計算精度が得られるかに関して、特にSiC表面において緻密に検討がこれまでなされていなかった。特にSiC表面では、その母物質の持つイオン性から、表面極性が計算精度を劣化させる要因となることが知られている。本研究ではまず、SiC表面欠陥に対する電子状態計算手法の選択と、精度の確認を実施した。SiCにおいて、実験的に同定されている欠陥の1つに P_{bc} センタ(炭素アトムダングリングボンド)が存在する。 P_{bc} センタに対して、高精度な電子状態近似(HSE近似)を用いて、欠陥の帯電状態を変えながらコーン・シャム準位で評価したところ、図1のようになった。計算の結果、価電子帯上端(VBM)から1.2 eV上に(0/-)準位が存在することがわかった。一方で、EDMRによる最新の実験結果においても、VBMから1.2 eV上に(0/-)準位が位置していることが確認され、HSE近似と欠陥の帯電状態を変えながらコーン・シャム準位で評価する方法の組み合わせにより、表面欠陥に対して定量的にも高い精度で電子状態計算が可能であることを確認した。この評価方法の一般性がどの程度あるかは今後更なる検証が必要であるが、表面・界面における高精度な電子状態の解析方法の1つを提示することができた。

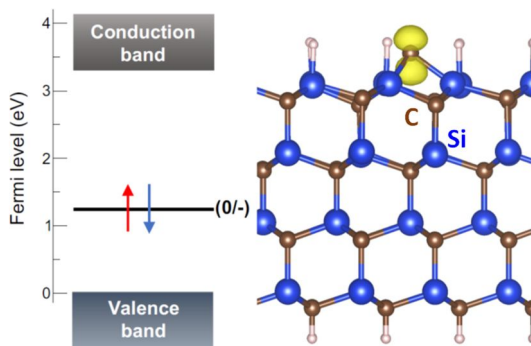


図1 P_{bc} センタに対する電子状態計算の結果。計算によって得られた電子準位(左)とその欠陥波動関数(波動関数の最大振幅の15%の等値面)の様子(右)。

(ii) 界面欠陥の候補構造の特定と、そのデバイスへの影響。ゲート電界下におけるSiC/SiO₂界面の電子状態解析を行った。その結果、界面の構造チャネル構造に大きく影響し、電子状態が強く局在化することがわかった(図2参照)。SiC/SiO₂界面において、無極性では、電子の界面近傍での閉じ込め効果は有効質量近似でよく記述されていることがわかった(図3参照)。一方で、極性面のSi(0001)面における界面近傍での電子状態の影響は極めて強く、有効質量近似が破綻していること、さらには原子層1-2層と極近傍に強く局在していることがわかった。このことはSi面では、電子キャリアが界面欠陥に対して敏感に影響され、大きく散乱される可能性を示唆している。これが、Si面で移動度劣化が大きいという実験と確かに矛盾しないことを確認した。次に、Si面において、有効質量近似が破綻する理由を調べたところ、4H-SiC結晶が持つSi面垂直方向への結晶の長周期性に由来することを明らかにした。半導体テクノロジーがこれまで信じていた有効質量近似が破綻していることが明らかとなり、これは、SiCパワエレだけに限らず、一般の半導体材料に対しても言うことのできる一般性のある、重要な基礎科学の知見を得ることができた。

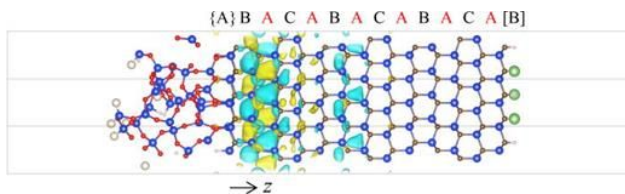


図2 ゲート電界下のSiC-MOS界面に対する伝導帯下端の電子状態計算の結果(最大振幅に対する38%の等値面)。界面から原子数2-3層程度のところに波動関数が強く局在している様子が確認される。

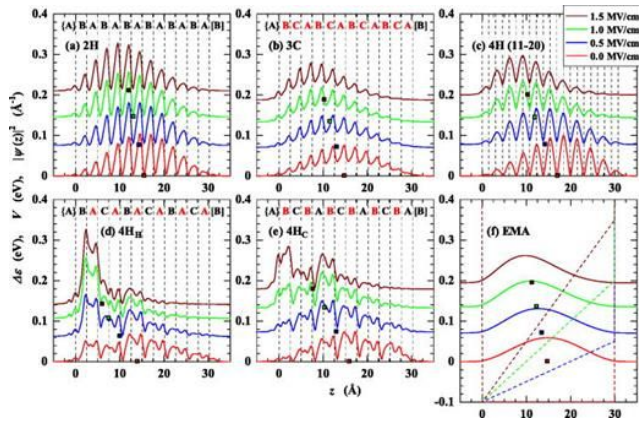


図3 ゲート電界下のSiC-MOS界面に対する伝導帯下端の広がり方の面方位依存性。(a)2H-SiC/SiO₂界面、(b)3C-SiC/SiO₂界面、(c)4H-SiC(11-20)/SiO₂界面、(d)(e)4H-SiC(0001)/SiO₂界面の様子。比較参照として、(f)有効質量近似を示している。横軸は界面からの距離をSiC側に対してplotしており、縦軸には電場印加時の伝導帯下端の準位の上昇分をplotしている。

(iii) 窒素界面処理法の微視的メカニズムの提案と更なるデバイス特性改善法の提案。界面窒素がゲート電圧作る界面近傍の閉じ込めポテンシャルを緩和させる作用を持つことを明らかにした(図4参照)。さらには、界面近傍での窒素を高濃度にドーピングすることにより、閉じ込めポテンシャルが緩やかになり、サブバンドが相対的に伝導帯下端に近づき、電子状態密度の増加を誘起する事を見出した(図5参照)。同時に、界面での窒素高ドーピング層が存在すると、伝導帯下端の波動関数を界面近傍から引き離す作用を持っていることを明らかにし、電子キャリアの移動度向上につながることを明らかにした。このことは、界面窒素が電子キャリアの界面構造に対する敏感性を鈍らせる、つまり移動度向上につながることを提案した。

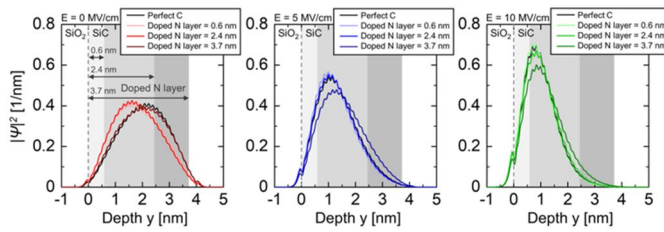


図4 ゲート電界下における界面に窒素がドーピングされた場合のSiC-MOS界面に対する伝導帯下端の広がり方の比較。(左)ゲート電界 0 MV/cm, (中央) 5MV/cm, (右) 10MV/cmを表す。横軸は界面を原点とし、界面からの距離をSiC側に対してplotしており、縦軸には伝導帯下端の振幅をplotしている。

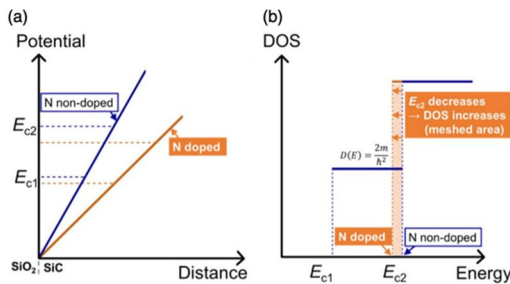


図5 (左) ゲート電界下における界面に窒素がドーピングされた場合とされていない場合とのSiCに印加されるゲート電界強度の比較を表した模式図。(右) ゲート電界印加による、伝導帯下端近傍の状態密度(DOS)変化の様子を表す。横軸は伝導帯下端をE_{c1}とし、サブバンドを作る状態密度が界面窒素の有無でどのように変わるかを表した模式図。

(iv) 量子コンピュータにおける材料計算アルゴリズムの開発とその優位性の検証。更なる高精度かつ大規模な電子状態計算を実施するため、量子コンピュータのアルゴリズムの開発を行った。量子コンピュータ上で実行される虚時間発展法を開発した。その際、虚時間発展演算子が非ユニタリ演算子であり、ユニタリゲート操作と測定しか実行することのできない量子コンピュータにとっては非自明な演算である。本研究では、補助ビットを導入しヒルベルト空間を拡張することにより、確率的に虚時間発展演算を実行するアルゴリズム、確率的虚時間発展法を開発した(図6参照)。また、量子コンピュータ上において量子優位性(古典コンピュータよりも高速に問題を解く性能)の数学的な証明を行うことに成功した。最悪の場合でも、古典コンピュータに比べて二乗加速することを明らかにした。

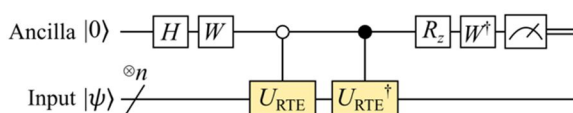


図6 確率的虚時間発展法を表す量子回路。Hゲート操作はアダマールゲートを、R_zはz回転ゲート操作を、U_{RTE}は実時間発展ゲート操作を表す。

次に、確率的虚時間発展法を用いて原子構造最適化を実行した。量子コンピュータでは、従来の構造最適化法とは異なり、あらゆる構造可能性を量子重ね合わせとしてビット上にエンコードし、そこに確率的虚時間発展法を実行することにより最安定な構造を求めることができる新しい構造最適化を提案した（図7参照）。

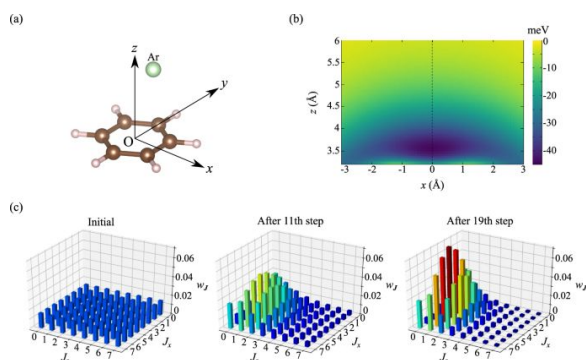


図7 確率的虚時間発展法を用いて原子構造最適化を行った結果。(a)実証に用いたターゲット物質：ベンゼン環上の孤立アルゴン原子。(b)アルゴン原子位置を変えた際のエネルギー曲面。(c)各原子配置に対応する確率振幅と、確率的虚時間発展法を適用した際のその推移。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Tran Hung Ba, Matsushita Yu-ichiro	4. 巻 32
2. 論文標題 Dzyaloshinskii-Moriya interactions in Nd ₂ Fe ₁₄ B as the origin of spin reorientation and the rotating magnetocaloric effect	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Applied Materials Today	6. 最初と最後の頁 101825 ~ 101825
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.apmt.2023.101825	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Suzuki Tetta, Yamazaki Yuichi, Taniguchi Takashi, Watanabe Kenji, Nishiya Yusuke, Matsushita Yu-ichiro, Harii Kazuya, Masuyama Yuta, Hijikata Yasuto, Ohshima Takeshi	4. 巻 16
2. 論文標題 Spin property improvement of boron vacancy defect in hexagonal boron nitride by thermal treatment	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 032006 ~ 032006
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1882-0786/acc442	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Nanataki Fugo, Shiraishi Kenji, Iwata Jun-ichi, Matsushita Yu-ichiro, Oshiyama Atsushi	4. 巻 106
2. 論文標題 Atomic and electronic structures of nitrogen vacancies in silicon nitride: Emergence of floating gap states	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 155201/1-8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.106.155201	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Kosugi Taichi, Nishiya Yusuke, Nishi Hirofumi, Matsushita Yu-ichiro	4. 巻 4
2. 論文標題 Imaginary-time evolution using forward and backward real-time evolution with a single ancilla: First-quantized eigensolver algorithm for quantum chemistry	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 033121/1-13
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevResearch.4.033121	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Tran Hung Ba, Momida Hiroyoshi, Matsushita Yu-ichiro, Shirai Koun, Oguchi Tamio	4. 巻 231
2. 論文標題 Insight into anisotropic magnetocaloric effect of Cr13	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Acta Materialia	6. 最初と最後の頁 117851 ~ 117851
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.actamat.2022.117851	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Tran Hung Ba, Momida Hiroyoshi, Matsushita Yu-ichiro, Sato Kazunori, Makino Yukihiro, Shirai Koun, Oguchi Tamio	4. 巻 105
2. 論文標題 Effect of magnetocrystalline anisotropy on magnetocaloric properties of an AlFe2B2 compound	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 134402/1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.105.134402	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計0件

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計2件

産業財産権の名称 計算、および計算機アルゴリズム	発明者 小杉太一、西紘史、 松下雄一郎	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、2021-189039	出願年 2021年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 計算、および計算機アルゴリズム	発明者 小杉太一、西紘史、 松下雄一郎	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、PCT/JP2022/034322	出願年 2021年	国内・外国の別 外国

〔取得〕 計0件

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	藤ノ木 享英 (梅田享英) (Umeda Takahide) (10361354)	筑波大学・数理物質系・准教授 (12102)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	大島 武 (Ohshima Takeshi) (50354949)	国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・高崎量子応用研究所 量子機能創製研究センター・センター長 (82502)	
研究分担者	吉岡 裕典 (Yoshioka Hironori) (60712528)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・エネルギー・環境領域・主任研究員 (82626)	
研究分担者	土方 泰斗 (Hijikata Yasuto) (70322021)	埼玉大学・理工学研究科・准教授 (12401)	
研究分担者	押山 淳 (Oshiyama Atsushi) (80143361)	名古屋大学・未来材料・システム研究所・特任教授 (13901)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関