

令和元年6月4日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H03859

研究課題名(和文) マルチレベルフィジックスによる超高予測精度結晶成長シミュレータの実現

研究課題名(英文) Development of simulator of crystal growth based on multi-physics

研究代表者

柿本 浩一 (KAKIMOTO, KOICHI)

九州大学・応用力学研究所・教授

研究者番号：90291509

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,200,000円

研究成果の概要(和文)：本提案の表面エネルギー解析手法と不純物濃度制御型高周波加熱装置を用いて、化学量論的組成の制御可能なSiC結晶育成方法を確立した。本提案で開発した昇華法原料濃度分布解析手法を用いて化学量論的組成比が1に近い結晶、すなわちSi:Cの原子数比が1に近い結晶の育成に必要な炉内温度分布、特に原料を充てんするつぼと種結晶の周囲の温度分布を解析により求めた。さらに不純物濃度制御が可能となった。ここで確立した結晶育成方法を用いてSiC結晶を育成し、強力X線トポグラフ装置等を用いて化学量論的組成に敏感な格子定数を測定し、本提案の有効性を確認し、結晶の化学量論的組成が1に近い結晶育成が可能であることを確認した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本提案の表面エネルギー解析手法と不純物濃度制御型高周波加熱装置を用いて、化学量論的組成の制御可能なSiC結晶育成方法を確立した結果、結晶前面にわたって4H-SiCの単結晶を育成する条件の構築に成功した。これにより、社会的に要請がある均一特性の4H-SiC単結晶育成が可能となってきた。さらに、転位密度の低減方法に関しては、本提案で開発した昇華法原料濃度分布解析手法を用いてSiC結晶を育成した後の転位密度と応力分布を予測した。その結果、社会的要請が大きい転位密度の低減に有効な育成方法を提案した。

研究成果の概要(英文)：A total pressure-controlled physical vapor transport growth method that stabilizes SiC polytype is proposed. The supersaturation of carbon during SiC growth changed as a function of the growth time due to changes in the temperature difference between the surfaces of the source and the grown crystal. Therefore, modification of the pressure as a function of growth time allowed for constant supersaturation during growth. The supersaturation was calculated based on classical thermodynamic nucleation theory using data for heat and species of Si<sub>2</sub>C and SiC<sub>2</sub> transfer in a furnace obtained from a global model. The 4H-SiC prepared using this pressure-controlled method was more stable than that of 4H-SiC formed using the conventional constant-pressure method.

研究分野：結晶成長

キーワード：結晶成長 シミュレーション マルチフィジックス

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

エネルギー問題は、安心・安全な社会を継続する上で喫緊の重要な課題の一つである。炭化珪素(SiC)高機能半導体結晶は、高効率電力変換素子を通して、電力送配電、電気自動車の電力変換効率向上に資する重要な役割を担っている。しかし、社会が要求しているさらなる高効率・省エネ化に向けた電気自動車やハイブリッドカー等の実現に鑑み、我々は高い電力変換効率を持つ電子デバイスを早急に実現しなければならない。このような観点から、SiC 単結晶にも飛躍的な特性の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。この進展の実現のためには、単に結晶の物理的な形状、すなわち結晶直径等を議論するのみではなく、今まで経験のみにより行われてきた化学量論的組成、結晶多形、そして結晶欠陥の制御を、原子レベルと連続体レベルを連携したマルチレベルフィジックスを用いて科学的根拠に基づいた制御が非常に重要となってきた。従来、このような研究は、Yu. M. Tairov, V. F. Tsvetkov, Progr. Cryst. Growth Charact., 7 (1983) 111.のみが一部行っており、過去 40 年間にわたってこのような基礎的な解析は行われてこなかったのが現状である。

### 2. 研究の目的

エネルギー問題の解決策の一つであるパワー半導体材料は、その機能の更なる向上が喫緊の課題である。パワー半導体材料の一つである炭化珪素(SiC)高機能半導体結晶は、化学量論的組成や結晶多形、結晶欠陥の制御が必要であり、これらは早急に解決されるべき問題である。本提案では、過去 40 年にわたって解決できなかった化学量論的組成制御、結晶多形制御および結晶欠陥制御を、結晶表面エネルギーを変化させることにより制御可能な新規結晶成長法の提案と実証を行う。具体的には、結晶が成長する結晶表面の表面エネルギーを、不純物添加や結晶極性により制御する過飽和度制御成長法をマルチレベルフィジックスシミュレーションにより提案し、さらに従来全く議論されていなかった電気的特性を決定する化学量論的組成の制御を可能にすることが目的である。これにより、SiC 結晶中の化学量論的組成、結晶多形、そして結晶欠陥の制御が可能になり、従来使用されてきたシリコンに代わるパワーデバイス用半導体用結晶となりえる新規 SiC 結晶育成方法を提案しこれを実証する。

### 3. 研究の方法

本申請課題の目的を達成するために、柿本(研究代表者)、中野、西澤が共同してそれぞれの専門を活かした研究を行った。また、柿本は結晶成長実験(中野担当)、化学量論的組成等解析(西澤担当)と結晶育成炉内の総合解析(柿本担当)の橋渡しを行い、全体を統括あいた。特に、結晶成長実験と化学量論的組成解析、そして結晶多形制御の研究テーマとは極めて関連が大きいために、結晶成長実験により得られた結晶多形のデータを数値解析と共有することが必須である。このために、実験データのデータベースを構築し、これに解析グループが容易にアクセスできるシステムの構築も行い、実験と解析の研究者間の意思の疎通を図った。

本提案では、40 年来不可能であった SiC 単結晶育成炉内の化学種の濃度分布を定量的に解析することが可能となり、さらにはこのデータから結晶成長の過飽和度を算出することができる方法を提案した。同時に、育成結晶表面の表面エネルギーを第一原理計算により定量的に議論することにより、いかなる結晶多形が成長表面で安定に核生成するかを、2 次元核生成理論を用いて定量的に求めることが可能となった。すなわち、SiC 単結晶の多形である 4H, 15R, 6H, 3C のいずれの結晶多形が優先的に成長するかが定量的に予測でき、これを実験により実証することが可能となった。

結晶欠陥に関しては、従来なされていなかった結晶内の 3 次元転位分布解析が可能になってきているために、本提案では、結晶欠陥低減の結晶成長方法及び冷却方法の提案と実験的実証を行った。

実験に関しては、現在九州大学に設置してある昇華法結晶育成装置を用いて結晶多形の安定性等の実験を行い、上記の解析結果と定量的に比較検討することが可能となった。これにより、マルチレベルフィジックスシミュレーションを用いて最適結晶育成条件である「化学量論的組成、結晶多形および結晶欠陥の制御可能な新規結晶成長法」を提案あいた。この成長装置の開発、実験は、柿本、中野が担当し、結晶育成炉内における Si, Si<sub>2</sub>C, SiC<sub>2</sub>濃度の解析法の開発は、西澤、柿本が担当した。

### 4. 研究成果

本報告では、SiC の昇華法における結晶多形制御の解析例を示す。図 1 に炉内圧力 1.5Torr, 10Torr のときの核形成エネルギー差をそれぞれ示す。この時の基板は、6H-SiC, C 面と設定した。この図から、結晶成長に伴う成長温度増加があっても 4H, 6H の核形成エネルギーの大小関係は変化せず、安定な結晶多形が成長温度の増加によって変わらないことが分かった。また、核形成エネルギー差の成長圧力依存性は非常に大きく、炉内圧力が低い場合では核形成エネルギー差が非常に小さくなり、混在確率が高くなることが予想できた。

図 2 は、核形成エネルギー差と過飽和度の成長圧力依存性を示している。このグラフから、成長炉内の圧力上昇とともに過飽和度が小さくなることで、核形成エネルギー差が大きくなり混在確率が小さくなることがわかった。また、核形成エネルギーや過飽和度の成長圧力依存性は、成長温度依存性と比べて非常に大きな効果を示しており、多形安定性の制御には重要な操

作パラメータとなると言える。

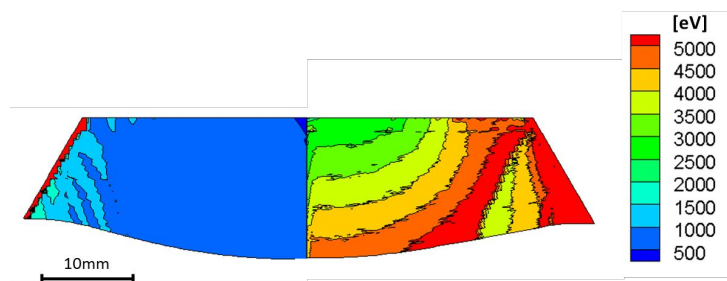


図1 核形成エネルギー差

(基板：6H-SiC C面，成長温度：2400K，炉内圧力：1.5Torr(左)，10Torr(右))

この結果についての考察を次に示す。温度依存性において、育成結晶全体では成長温度2300Kのエネルギー差の方が小さいが、基板中央付近においては成長温度2500Kのエネルギー差の方が小さくなる要因を考察する。結晶の半径方向の温度分布に対する基板中心との温度差と、成長温度増加による平衡モル分率の変化を考慮することにより、次のことが言える。成長温度が高くなると基板中心と縁との温度差が大きくなる。さらに、それぞれの成長温度において、基板中心と縁との温度差が平衡モル分率に与える影響を見てみると、成長温度2500Kの方が基板中心と縁との平衡モル分率の差が大きくなっていることから、基板中心と縁で過飽和度の差が大きくなり、温度が高いほど基板中心での多形毎の核形成エネルギー差が相対的に小さくなりやすくなったと解析できる。

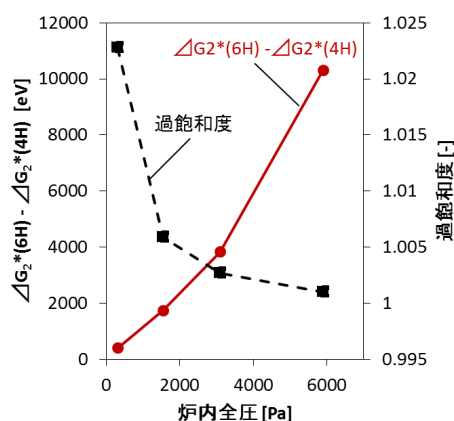


図2 核形成エネルギー差の成長温度依存性

(基板：6H-SiC C面，成長温度：2400K)

## 5. 主な発表論文等

### [雑誌論文](計3件)

B. Gallien, M. Albaric, T. Duffar, K. Kakimoto, M. M'Hamdi, Study on the usage of a commercial software (Comsol-Multiphysics®) for dislocation multiplication model, Journal of Crystal Growth, 査読有, Volume 457, 2017, Pages 60-64

<http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgr.2016.05.027>

S Nakano, B Gao, K Kakimoto, Numerical analysis of dislocation density and residual stress in a GaN single crystal during the cooling process, Journal of Crystal Growth, 査読有, 468, 2017, 839-844 <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgr.2017.01.034>

S. Araki, B. Gao, S. Nishizawa, S. Nakano, and K. Kakimoto, Total pressure-controlled PVT SiC growth for polytype stability during using 2D nucleation theory., Cryst. Res. Technol., 査読有, 51, No. 5, 2016, 344-348

DOI 10.1002/crat.201500344

### [学会発表](計2件)

S. Nakano, B. Gao, K. Kakimoto, Numerical analysis of dislocation density and residual stress in a GaN single crystal during the cooling process, The 18th International Conference on Crystal Growth and Epitaxy, 2016

Koichi Kakimoto, Satoshi Nakano, Yoshihiro Kangawa, Crystal growth of AlN: from atomic scale to macro scale, E-MRS 2016 Fall Meeting. 2016

### [図書](計0件)

### [産業財産権]

出願状況(計0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年：  
国内外の別：

取得状況（計 0 件）

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年：  
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

<https://www.riam.kyushu-u.ac.jp/nano/>

## 6 . 研究組織

### (1)研究分担者

研究分担者氏名：西澤 伸一

ローマ字氏名：Nishizawa shin-ichi

所属研究機関名：九州大学

部局名：応用力学研究所

職名：教授

研究者番号（8桁）：40267414

### (1)研究分担者

研究分担者氏名：中野 智

ローマ字氏名：Nakano satoshi

所属研究機関名：九州大学

部局名：応用力学研究所

職名：技術専門職員

研究者番号（8桁）：80423557

### (2)研究協力者

研究協力者氏名：

ローマ字氏名：

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。