

令和 4 年 6 月 18 日現在

機関番号：13901
研究種目：基盤研究(A)（一般）
研究期間：2018～2020
課題番号：18H03839
研究課題名（和文）結晶成長インフォマティクスの方法論の構築

研究課題名（英文）Method of Crystal Growth Informatics

研究代表者

宇治原 徹 (Ujihara, Toru)

名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

研究者番号：60312641

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 34,000,000円

研究成果の概要（和文）：素材開発は20年以上かかると言われる。その大半がプロセス開発である。本研究の究極的な目的は、機械学習などのインフォマティクス技術を用いてプロセス開発のスピードを圧倒的に向上させることである。我々は溶液成長法を用いて圧倒的に高品質なSiC結晶を実現してきた。次は大口径化である。高品質化においては結晶成長表面に形成されるマクロステップ構造が鍵となる。本研究では、最初にマクロな溶液内流動とマクロステップ構造の関係を反映したマルチフィジクスシミュレーションを構築した。次に、機械学習を組み合わせることで、表面構造を潜在空間で表現する手法を構築した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ここで構築する方法論は、シミュレーションさえできれば、気相成長から溶液成長、バルク成長から薄膜成長まで、応用可能である。また、結晶成長に限るものではない。これらのプロセスにおいて、開発のスピードを遅らせてきた「最適化」、この最も時間を要していたところを一瞬にして突破できるようになる。さらに本研究では、シミュレーションと機械学習の一つである深層学習で、最適解を高速検索するシステムを開発する。結晶成長プロセスへの適用に際して二つの課題があり、一つはデータ不足であり、もう一つは「形状」の特徴量化である。これらを解決している。

研究成果の概要（英文）：Materials development is said to take more than 20 years. The majority of this time is for process development. The ultimate objective of this research is to overwhelmingly increase the speed of process development using informatics technologies such as machine learning. We have achieved overwhelmingly high-quality SiC crystals using the solution-growth method. The next step is to increase the diameter of SiC crystals. The macrostep structure formed on the crystal growth surface is the key to achieve high quality. In this study, we first constructed a multi-physics simulation that reflects the relationship between macroscopic in-solution flow and macrostep structure. Next, by combining machine learning, we constructed a method to represent the surface structure in latent space.

研究分野：半導体結晶成長

キーワード：結晶成長 プロセスインフォマティクス SiC

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

高品質化技術は確立した。次は大口径。

SiCは次世代パワーデバイス用半導体として開発され、さらなる信頼性向上と低コスト化に向けて、大口径・高品質SiC基板結晶が待望されている。現状の市販SiC基板は昇華法で製造されているが、我々はさらなる高品質化が期待される溶液成長法の技術開発を行ってきた。(図1)我々は、結晶成長界面に100 nm程度の高さのマクロステップ構造を形成し、それを前進させることで結晶内部の転位が構造変換し、転位密度が大きく低減することを見出した。そのメカニズムを活用することで、圧倒的な高品質化にも成功している(図2)。

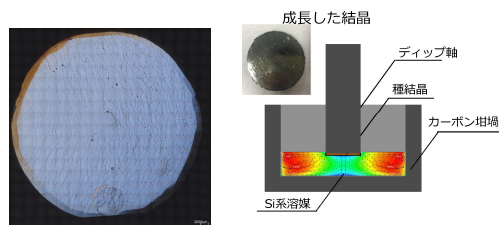


図1: SiC 溶液成長法の概要と成長した2インチ結晶のノマルスキー写真

「最適化」というタフな段階を突破するためのインフォマティクス技術。

結晶成長では、成長環境の気相や液相中の温度・組成・流れ分布が重要となるが、これらは直接制御できないため、しばしばシミュレーションで制御パラメータの最適化を行う。しかし、流体シミュレーションは数時間から数日を要し、これが開発スピードを遅らせている。これを打破するため、我々は機械学習技術を用いて、シミュレーション結果を瞬時に予測する手法を開発した。これにより数時間かかるシミュレーションの結果を0.1秒以下で予測することを可能にした。(図3)

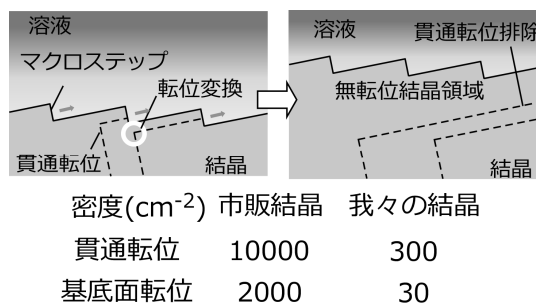


図2: 結晶成長表面近傍の断面図。マクロステップの進展で転位変換が生じ高品質化する。

驚異的である。強調しておく。深層学習は多くの人が活用を始めており、一見、データを入れれば誰もが答えを得られるように錯覚する。それは間違いである。後述するが、この予測モデルの成功は、我々が適切な特徴量を見出すことができたためである。結晶成長の知見のある我々であるからこそ実現できた。

高品質SiC結晶成長にインフォマティクスを活用するための「2つの本質的な問い」

- (1) マクロスケールの成長界面近傍の環境(温度・組成・流れ分布)がナノスケールのステップ構造(「形」)に、どのように影響しているのか?(形を再現するシミュレーションの構築)

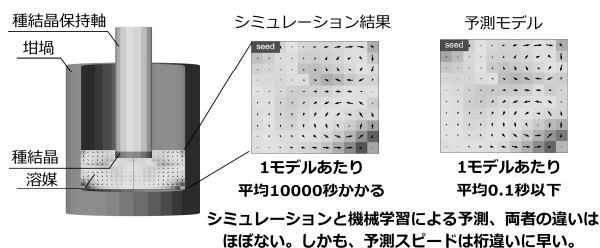


図3: 流体力学計算の予測モデルによる予測例。通常数時間要する計算を0.1秒以下で予測できる。今回は、界面近傍の予測も行う。

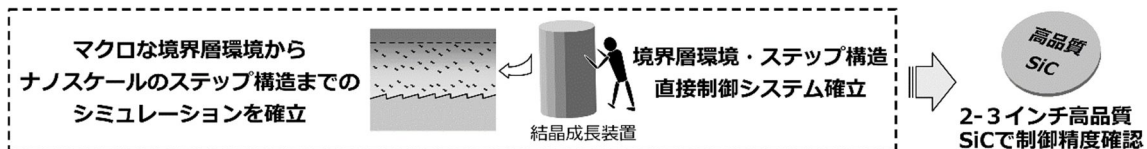
成長界面近傍には境界層が形成されており、内部の温度・組成・流れ分布が、マクロステップ構造に影響することが実験的・定性的にはわかっている。ここで驚くのは、境界層の厚さは100 μ mのスケールなのに対して、ステップ構造はナノスケールと、大きく異なる点である。(図4)本研究では、ナノレベルの変化をモンテカルロシミュレーションで、マクロな境界層の変化を流体力学シミュレーションで扱い、これらを融合させることで、この関係性を解明する。

(2) 理想的な境界層の環境を実現する制御パラメータを逆問題的に見出すことはできるのか？(疑似的な逆問題の解決法の構築)

機械学習の分野では逆問題は大きな課題として残されている。本研究では、予測モデルにより計算結果データベースを構築し、最適条件を「検索する」ことで、解決する。バックグラウンドで検索結果に応じて制御すれば、実質的には環境を直接制御していることに相当する。(図5)

2. 研究の目的

成長界面におけるマクロステップ構造を直接制御するためインフォマティクス技術を確立



3. 研究の方法

ステップ構造の形成については局所的な流体シミュレーションを、局所的な溶液中の組成分布、流れ分布についてはマクロな流体シミュレーションを用いて、結合することで境界層環境とマクロステップ構造との関係を明らかにする。すでに基礎となるシミュレーションモデルは構築済みで、スケールを超えた計算も可能であることを確認している。SiCの溶液成長を具体例として、様々な条件でシミュレーションを行い、最終的には成長システム全体の流体力学計算と融合する。ステップ構造は結晶軸と界面の面方位にも依存する。SiC溶液成長を想定した場合、最終的には、凸形状とすることで結晶の中央から外側へステップが進展させることが高品質化において必須である。成長界面形状は局所的な成長速度分布に依存する。ここでは温度・組成・流れ分布から界面への溶質供給量を求めることで成長速度を算出するモデルを構築する。

また、我々はこれまでに、数百通りのシミュレーションデータを用いて機械学習を行うことで、流体力学シミュレーション結果を高速に予測する手法を確立してきた。本研究ではさらに第一項目の知見を用いて、成長界面の構造をダイレクトに予測するモデルの構築を行う。構築した予測モデルは制御パラメータから温度・流れ・組成分布を予測できるが、その逆はできない。ここでは、目的とする温度・組成・流れ分布を実現する制御パラメータを逆算的に求めるための最適

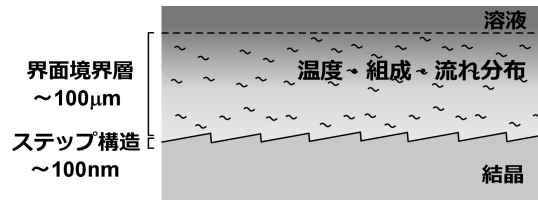


図4: 界面境界層内部の温度・組成・流れ分布がステップ構造を決める。しかし、そこにはスケールのギャップがある。

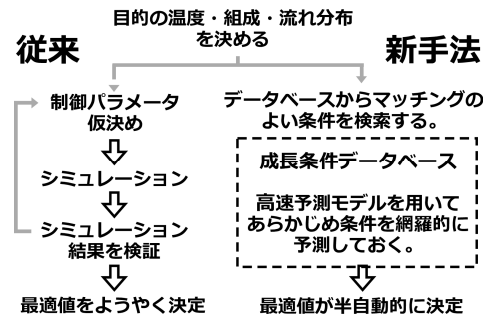


図5: 本手法では、最適条件を大量の予測結果データベースから検索して制御パラメータを決める。

条件検索システムを構築する。具体的には予測モデルで様々な制御パラメータの組み合わせについて網羅的に計算し、データベース化、そのなかから、もっとも目的の分布に合致したものを検索する。

表面構造の設定は表面をグリッドに区切り、それぞれのグリッドにおいてステップ構造および成長速度を決める。そのグリッドすべてでなるべく最適になる制御パラメータを検索システムを用いて決定し、結晶成長を行う。成長後、実際の結晶も設定時のグリッドに合わせて、それぞれの領域の表面構造を評価する。具体的にはコンフォーカル顕微鏡、レーザー顕微鏡、AFMなどで評価する。また膜厚から成長速度を求める。これらを設定値と比較することで、制御精度を確認する。当然、設定値と実験値が一致しない。この差異についても、実験データを用いて繰り返し機械学習による予測モデルを更新することで、予測精度を向上させる。この方法では、一回の実験でグリッド数だけのデータが取得できるため、少ない実験でも多くのデータを入手できる。最終的に、2-3インチで所望の品質を得られる条件を再現する。

4. 研究成果

オフアキス SiC 結晶の溶液成長において、成長界面における望ましくないステップ形態、すなわち過度のステップバンチングは、バルク結晶の品質に強く影響し、介在物や2次元核生成などの欠陥の原因となる可能性がある。先行研究では、フロー方向が局所的なステップの挙動に与える影響について検討したが、大規模結晶の実用的な成長には、結晶表面全体において滑らかで均一なステップ分布を維持するための制御パラメータとグローバルなステップモルフォロジーとの関係を理解することが極めて重要である。本研究では、マクロな制御パラメータ(成長温度、結晶回転速度、るつぼ回転速度など)と結晶表面全体のステップ形状の動的な変化を直接結びつけることができるシミュレーション手法を初めて提案する。この手法は、成長システム全体の温度、流れ、質量濃度場をシミュレーションするグローバル2次元数値流体力学(CFD)モデル、結晶表面付近の境界層における炭素輸送を明らかにするローカル3次元CFDモデル、ローカル炭素輸送と結合したマクロステップの動きを記述する運動論モデルの3つの部分から構成される。

図6は、成長温度2173K、結晶回転数100rpm、るつぼ回転数0rpmの条件下で、2インチSiC結晶上のステップモルフォロジーをシミュレーションした例である。半径方向および回転方向の溶液流の影響により、ステップのバンチングが起こり、右上の領域に蓄積され、不均一なステップ分布となり、実験結果とよく一致している。この数値モデルを用いて、成長温度、結晶回転速度、るつぼ回転速度などの制御パラメータがステップ形状に与える影響を調査した。さらに、結晶とるつぼの両方を周期的に回転させる複雑な制御パターンを提案した。このパターンは、結晶表面全体に適度なバンチングレベルを持つ均一なステップ形状を示した。

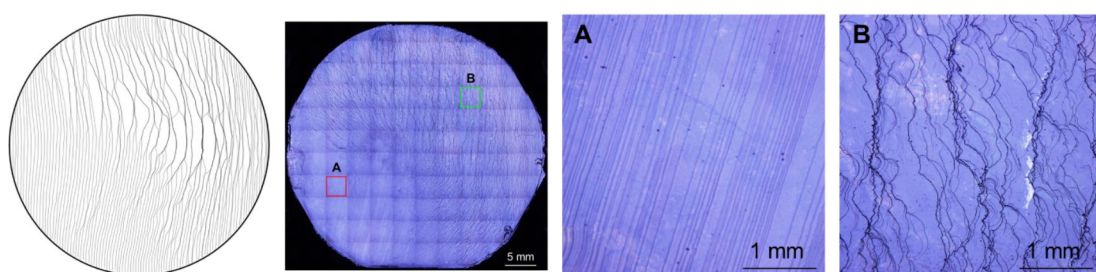


図6: シミュレーションによるステップモルフォロジーの形態と実験結果の比較。

溶液法では、結晶表面のステップ構造は溶液流れによって制御可能であることが知られてお

り、これまで、二種類の異なる溶液流れを相補的に作用させることで、結晶全面でのステップ構造制御が行われてきた。この制御は結晶全面の大局的な溶液流れの評価に基づき行われてきたが、結晶表面のステップ構造はそれぞれの位置における溶液流れ、温度、過飽和度等から決定されるため、局所的な評価とそれらの結晶全面でのバランスも考慮した評価に基づく新たなステップ構造制御手法の開発が必要である。またステップ構造制御にあたり、複雑な形状を持つステップ構造の定量的な評価指標の構築も求められている。本研究では、ステップ構造を潜在空間と呼ばれる特徴を抽出した空間で表現し、結晶全面のステップ構造を潜在空間上における点群の分布として捉えることで、結晶全面のステップ構造を制御する手法を開発した。

境界層における熱流体解析を用いたステップ構造変化のシミュレーションを用いて、様々な溶液流れに対するステップ構造変化のシミュレーションを行った。そして、得られたステップ構造に対する定量的な評価指標を構築した。評価指標に関して、ステップ構造は、進展方向、湾曲、間隔等の多くの評価指標が存在するため、単一の数式からその構造の評価を行うのは困難である。そのため、変分オートエンコーダ(VAE)を用いてステップ構造の特徴を二次元の潜在空間に圧縮して表現し、得られた潜在空間上で評価を行った。さまざまな溶液流れのシーケンスを与えたステップ構造に対し、構築した指標を元に評価を行った。

シミュレーションで得られたステップ構造を小さな正方形に分割した例を図7 (a)に、VAEによって得られた二次元の潜在空間を(b)に示す。黒点はVAEの学習に用いた各ステップ構造が対応する点であり、A-Dの注釈を付した赤点は(a)のそれぞれのステップ構造に対応する。潜在空間上ではステップ構造は連続的に変化するため、図中のB点を理想ステップ構造として定めて、潜在空間上におけるB点とのユークリッド距離を指標とすることで、各ステップ構造に対する定量評価を行うことができた。図8(b)に(a)の各ステップ構造を148個に分割した構造が潜在空間上でとる点群を示す。また、青点はFig. 1における理想的なステップ構造(Fig. 1(b)におけるB点)に対応する。Aの均質なステップ構造の場合は、潜在空間上では青点付近に分布し、Bの不均質なステップ構造では青点から離れて広く分布した。以上から、ステップ構造評価を、潜在空間上での点群分布として捉えることができた。

以上の結果から、ステップ構造を潜在空間上での点群の分布として捉え、その分布が理想点に近づくことを指標とすれば、さまざまな溶液流れのシーケンスの影響を定量的に評価することができ、結晶全面のステップ構造を適切に制御するシーケンスを求めることができるという。

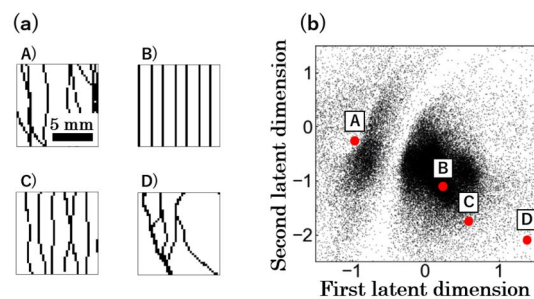


図7: (a) Examples of step structures and (b) latent space of VAE.

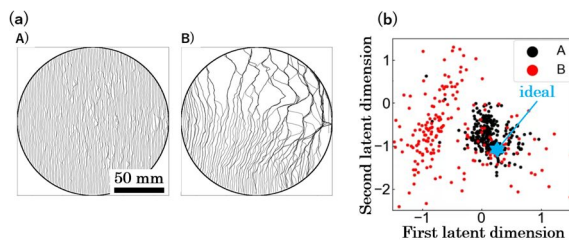


図8: (a) Step structures on whole surface and (b) distribution of step structures in latent space.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 6件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Liu Xinbo, Zhu Can, Harada Shunta, Tagawa Miho, Ujihara Toru	4. 巻 21
2. 論文標題 Application of C-face dislocation conversion to 2 inch SiC crystal growth on an off-axis seed crystal	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 CrystEngComm	6. 最初と最後の頁 7260 ~ 7265
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C9CE01338E	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 Wang L., Horiuchi T., Sekimoto A., Okano Y., Ujihara T., Dost S.	4. 巻 520
2. 論文標題 Three-dimensional numerical analysis of Marangoni convection occurring during the growth process of SiC by the RF-TSSG method	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Crystal Growth	6. 最初と最後の頁 72 ~ 81
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jcrysgro.2019.05.017	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 該当する
1. 著者名 Wang L., Horiuchi T., Sekimoto A., Okano Y., Ujihara T., Dost S.	4. 巻 520
2. 論文標題 Three-dimensional numerical analysis of Marangoni convection occurring during the growth process of SiC by the RF-TSSG method	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Crystal Growth	6. 最初と最後の頁 72 ~ 81
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jcrysgro.2019.05.017	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 該当する
1. 著者名 Horiuchi Takashi, Wang Lei, Sekimoto Atsushi, Okano Yasunori, Ujihara Toru, Dost Sadik	4. 巻 517
2. 論文標題 Adjoint-based sensitivity analysis for the optimal crucible temperature profile in the RF-Heating TSSG-SiC crystal growth process	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Crystal Growth	6. 最初と最後の頁 59 ~ 63
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jcrysgro.2019.04.001	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 該当する

1. 著者名 Horiuchi Takashi, Wang Lei, Sekimoto Atsushi, Okano Yasunori, Yamamoto Takuya, Ujihara Toru, Dost Sadik	4. 巻 54
2. 論文標題 The Effect of Crucible Rotation and Crucible Size in Top-Seeded Solution Growth of Single-Crystal Silicon Carbide	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Crystal Research and Technology	6. 最初と最後の頁 1900014 ~ 1900014
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/crat.201900014	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 該当する

1. 著者名 Wang L., Horiuchi T., Sekimoto A., Okano Y., Ujihara T., Dost S.	4. 巻 520
2. 論文標題 Three-dimensional numerical analysis of Marangoni convection occurring during the growth process of SiC by the RF-TSSG method	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Crystal Growth	6. 最初と最後の頁 72 ~ 81
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jcrysgro.2019.05.017	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 該当する

1. 著者名 Horiuchi Takashi, Wang Lei, Sekimoto Atsushi, Okano Yasunori, Ujihara Toru, Dost Sadik	4. 巻 517
2. 論文標題 Adjoint-based sensitivity analysis for the optimal crucible temperature profile in the RF-Heating TSSG-SiC crystal growth process	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Crystal Growth	6. 最初と最後の頁 59 ~ 63
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jcrysgro.2019.04.001	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 該当する

〔学会発表〕 計10件 (うち招待講演 7件 / うち国際学会 10件)

1. 発表者名 T. Ujihara
2. 発表標題 Machine learning for SiC crystal growth (modeling, optimization and visualization)
3. 学会等名 International Symposium & School on Crystal Growth Fundamentals (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1 . 発表者名 TAKAMA UNNO, CAN ZHU, SHUNTA HARADA, HARUHIKO KOIZUMI, MIHO TAGAWA, TORU UJIHARA
2 . 発表標題 Threading Screw Dislocations Conversion and Suppression of Inclusions in 3-inch 4° off-axis C-face 4H-SiC Solution Growth with Pure Si
3 . 学会等名 ICSCRM2019 (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 Can Zhu, Shunta Harada, Miho Tagawa, Toru Ujihara
2 . 発表標題 The control of conduction type in high quality bulk solution growth of SiC
3 . 学会等名 ICSCRM2019 (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 Can Zhu, Tomoki Endo, Takama Unno, Haruhiko Koizumi, Shunta Harada, Miho Tagawa, Toru Ujihara
2 . 発表標題 Application of high-quality SiC solution growth to large size crystal
3 . 学会等名 ICSCRM2019 (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 T. Ujihara, Y. Tsunooka, H. Lin, C. Zhu, T. Narumi, K. Kutsukake, S. Harada, M. Tagawa
2 . 発表標題 PREDICTION MODEL OF COMPUTATIONAL FLUID DYNAMICS BASED ON NEURAL NETWORK CONSTRUCTED BY MACHINE LEARNING AND PROCESS OPTIMIZATION OF SiC SOLUTION GROWTH
3 . 学会等名 ICCGE-19 (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 T. Ujihara
2 . 発表標題 Application of Machine Learning for High Quality SiC Crystal Growth
3 . 学会等名 the 5th International Conference on Advanced Electromaterials (ICAE 2019) (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 Can Zhu, Shunta Harada, Miho Tagawa, Toru Ujihara
2 . 発表標題 The control of conduction type in high quality bulk solution growth of SiC
3 . 学会等名 the International Conference on Silicon Carbide and Related Materials 2019 (ICSCRM2019) (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 TAKAMA UNNO, CAN ZHU, SHUNTA HARADA, HARUHIKO KOIZUMI, MIHO TAGAWA, TORU UJIHARA
2 . 発表標題 Threading Screw Dislocations Conversion and Suppression of Inclusions in 3-inch 4° off-axis C-face 4H-SiC Solution Growth with Pure Si
3 . 学会等名 the International Conference on Silicon Carbide and Related Materials 2019 (ICSCRM2019) (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 K. Ando, H. Lin, Y. Tsunooka, T. Narumi, C. Zhu, K. Kutsukake, S. Harada, K. Matsui, I. Takeuchi, Y. Koyama, Y. Kawajiri, M. Tagawa, T. Ujihara
2 . 発表標題 ESTIMATION OF HIGH-TEMPERATURE PHYSICAL PROPERTIES BY MACHINE LEARNING TOWARD ACCURATE NUMERICAL MODELING OF CRYSTAL GROWTH
3 . 学会等名 the 19th International Conference on Crystal Growth and Epitaxy (ICCGE-19) (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Ujihara, Y. Tsunooka, H. Lin, C. Zhu, T. Narumi, K. Kutsukake, S. Harada, M. Tagawa
2. 発表標題 PREDICTION MODEL OF COMPUTATIONAL FLUID DYNAMICS BASED ON NEURAL NETWORK CONSTRUCTED BY MACHINE LEARNING AND PROCESS OPTIMIZATION OF SIC SOLUTION GROWTH
3. 学会等名 the 19th International Conference on Crystal Growth and Epitaxy (ICCGE-19) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 結晶成長条件の決定方法	発明者 朱燦, 遠藤友樹, 原田俊太, 宇治原徹	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、2018-161654	出願年 2018年	国内・外国の別 国内

〔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	佐藤 正英 (Sato Masahide) (20306533)	金沢大学・総合メディア基盤センター・教授 (13301)	
研究分担者	原田 俊太 (Harada Shunta) (30612460)	名古屋大学・未来材料・システム研究所・講師 (13901)	
研究分担者	岡野 泰則 (Okano Yasunori) (90204007)	大阪大学・基礎工学研究科・教授 (14401)	

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
---------	---------