

令和 4 年 5 月 2 日現在

機関番号：25301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K05294

研究課題名(和文)原子レベルの欠陥制御に資する計算手法の開発とパワーデバイス用半導体への適用

研究課題名(英文)Development of calculation technique for defect control in semiconductors for power device application

研究代表者

末岡 浩治 (Sueoka, Koji)

岡山県立大学・情報工学部・教授

研究者番号：30364095

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の成果として、(1)IGBT用低酸素MCZ-Si結晶について、Nドープにより原子空孔(V)の拡散が抑制され、ボイド欠陥の形成が抑制されること、および、HドープによりHは主として格子間Si(I)と結合し、転位クラスターの形成をより抑制することを明らかにした。(2)SiパワーMOSFET用超高濃度Pドープn型Si結晶において、格子間Pの形成やそれに伴う積層欠陥の形成過程を明らかにした。(3)GaN結晶について、V(Ga)-I(Ga)ペアよりもV(N)-I(N)ペアの方が安定であることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、我々が開発した“箱庭法”をSi、SiC、GaNなどのパワーデバイス用半導体における原子レベルでの欠陥挙動の解明と制御に適用したが、このようなシミュレーションは報告がなく、学術的に高い意義がある。また、研究成果は産業界において、パワーデバイス用半導体結晶の品質改善や製品の開発加速に寄与するといった社会的意義も持つ。

研究成果の概要(英文)：The main findings of this simulation study are (1) the void defect formation is suppressed by the interaction of nitrogen (N) and vacancy (V), and the dislocation formation is suppressed by the interaction of hydrogen (H) and self-interstitial (I) in IGBT MCZ-Si crystal, (2) the mechanism of formation of interstitial phosphorus (Pi) and stacking faults (SFs) in power MOS-FET Si crystal is clarified, and (3) V(N)-I(N) pair is more stable than V(Ga)-I(Ga) pair in GaN crystal.

研究分野：応用物理学

キーワード：パワーデバイス 欠陥制御 計算手法

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

パワーデバイスは、家電、コンピュータ、自動車、鉄道、産業用ロボットなどあらゆる機器に幅広く使われており、順調な市場成長が見込まれている。現在、パワーデバイスの大部分は Si を用いて製造されている。IGBT はバイポーラデバイスとしての大容量性と電圧駆動型として的高速動作を兼ね備えたデバイスであり、現状大容量パワーデバイスの主役となっている。Si パワー-MOSFET は電圧駆動型で動作周波数が高く、電源回路用に広く用いられている。パワーデバイス用半導体として Si より優れた物性値を有する SiC、GaN パワー半導体が試作されているが、Si パワーデバイスは、さらなる性能向上と低価格化を目指している。

パワーデバイスの性能向上において、用いられる半導体結晶の高品位化は重要な課題の 1 つである。半導体結晶においては、微量の点欠陥（原子空孔 V と自己格子間原子 I ）や不純物、これらを含む複合体などがその物性を変化させるため、原子レベルかつ ppm オーダーの超高精度な欠陥制御が求められている。この欠陥制御は LSI 用 Si 単結晶が最も進んでいる。本研究代表者はこれまで、主に計算機シミュレーションの立場から LSI 用 Si 単結晶の高品位化に携わり、大口径 CZ-Si 結晶育成において、(1)熱応力が点欠陥に与える影響の解明（科研費基盤研究 C (H25~H27) 課題番号 25390069）、(2)ドーパントと酸素が点欠陥に与える影響の解明（科研費基盤研究 C (H28~H30) 課題番号 16K04950）などに一定の成果を挙げてきた。本申請研究に関係する特筆すべき成果として、第一原理計算の結果を統計力学的に扱うことにより、実現する原子配置と材料物性値の算出手法を開発したことが挙げられる。この開発した計算手法を“箱庭法”と命名した。

さて、パワーデバイス用 Si 結晶の高品位化に関して、原子レベルの欠陥が関与する次のような課題がある。まず IGBT において検討されている低酸素 MCZ Si 結晶について、大電流通電によるライフタイムの変動が問題となっている。この要因として格子間 C や析出酸化物が関与しているが、そのメカニズムには不明な点が多い。また、Si 結晶に含まれる Grown-in 欠陥（ V の凝集体であるボイド欠陥）もゲート酸化膜の絶縁性を劣化させる。従って、C や O の挙動を制御するのみならず、点欠陥の制御も要求されている。次に、Si パワー-MOSFET で用いる超高濃度（ $\sim 10^{20}/\text{cm}^3$ ）P ドープ n 型 Si 結晶において、ボイド欠陥が消滅するとともに積層欠陥が形成し、この積層欠陥がエピタキシャル層の結晶性低下をもたらす。超高濃度 P ドープにより点欠陥濃度が変化していることや、積層欠陥上に過剰な P が凝集することから格子間 P 原子の存在が予想されているが、ボイド欠陥の消滅や積層欠陥の形成メカニズムは不明である。

また、最近では SiC や GaN などの材料を用いた次世代パワーデバイスに注目が集まっている。これらの材料を次世代パワーデバイスとして実用化するために、さらに実用後も高品位化を図るためには、Si と同様に原子レベルの欠陥制御が必要となるが、Si と比較して SiC と GaN では原子レベルの欠陥についての理解や制御が遅れている。

2. 研究の目的

本研究では、第一原理計算と統計力学を併用した“箱庭法”を用い、その結果を結晶成長の連続体シミュレーションに組み込むことで、形成しうる欠陥種と濃度を予測可能な計算手法へと発展させるとともに、これを適用して Si、GaN などパワーデバイス用半導体の高品位化に貢献することを目指す。まず、パワーデバイス用 Si 結晶について、(1) IGBT 用低酸素 MCZ-Si 結晶として、N と H を同時添加した無欠陥 Si 結晶の可能性を示す、(2) Si パワー-MOSFET 用超高濃度 P ドープ n 型 Si 結晶において、ボイド欠陥が消滅するとともに積層欠陥が形成する機構の解明と抑制技術を提案する、2 つの課題を研究目的とした。

さらに本研究では(3) GaN 結晶について点欠陥の物性に関する基礎データを得ることも目的とした。

3. 研究の方法

パワーデバイス用 Si 結晶の高品位化に関する 2 つの研究は、いずれも CZ-Si 結晶成長に関するものであり、図 1 に示すように、我々のこれまでの研究対象である一般的な CZ-Si 結晶成長において考慮した点欠陥（ V と I ）と O に加え、C、ドーパント（P）、N、H の取り込みと、その後の欠陥反応に関する計算手法を開発するものである。なお、N はボイド欠陥形成を抑制し、H は酸化物析出が抑制される無欠陥領域を拡大することが知られている。これらの知見から、(1)では IGBT におけるライフタイムとゲート酸化膜絶縁性の 2 つの課題を同時に解決するアイデアとして N と H の同時添加を提案し、検証する。また、(2)ではボイド欠陥が消滅するとともに積層欠陥が形成するメカニズムの解明を目指すとともに、それを抑制する手法として添加物の効果についても研究する。

GaN に関する研究では、六方晶構造についても計算可能な箱庭法プログラムを開発する。さらに、データが少ない点欠陥（Ga 空孔、N 空孔、格子間 N、格子間 Ga）の物性に注目し、形成エネルギーを算出する。

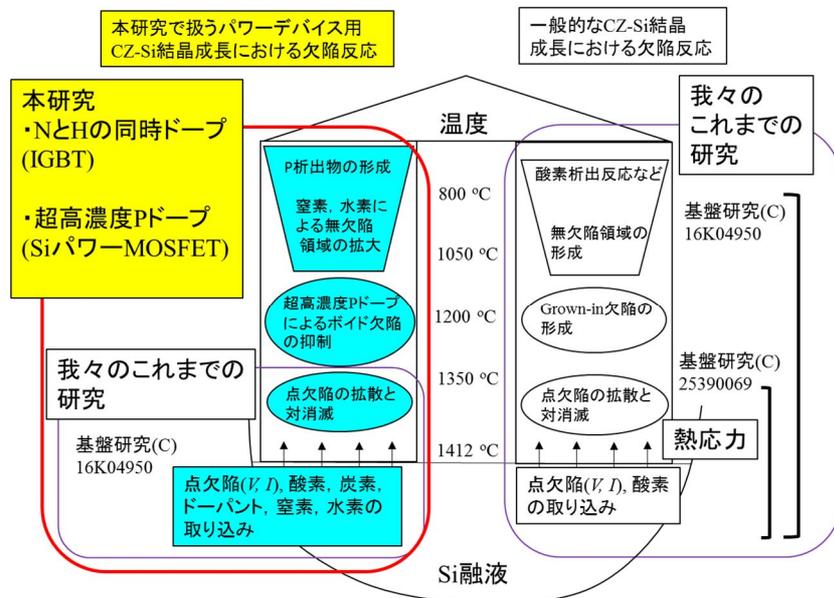


図 1 CZ-Si 結晶成長中の欠陥制御に関する本研究の位置づけ

本研究において、我々が開発した“箱庭法”を用い、その結果を連続体シミュレーションに組み込んだ計算手法へと発展させる研究アプローチそのものに独自性、創造性がある。さらに本手法をパワーデバイス用半導体における原子レベルでの欠陥挙動に関する研究に適用するが、このようなシミュレーションは報告がなく、学術的にも価値が高い成果が得られると考える。また、研究成果は産業界において、結晶の品質改善や製品の開発加速に寄与する意義を持つ。

4. 研究成果

(1) IGBT 用低酸素 MCZ-Si 結晶における N, H 添加が点欠陥濃度に与える影響

箱庭法を用いて算出した Si の融点における V, I の熱平衡濃度の N 濃度依存性を図 2 に示す。さらに、V と I の対消滅を考慮して濃度差 ($C_V^{tot} - C_I^{tot}$) を算出した結果、この濃度差は N 濃度に伴い増加し、その増加分は N 濃度の約 16% となった。この値は実験で確認されている約 10% と近い値であった。

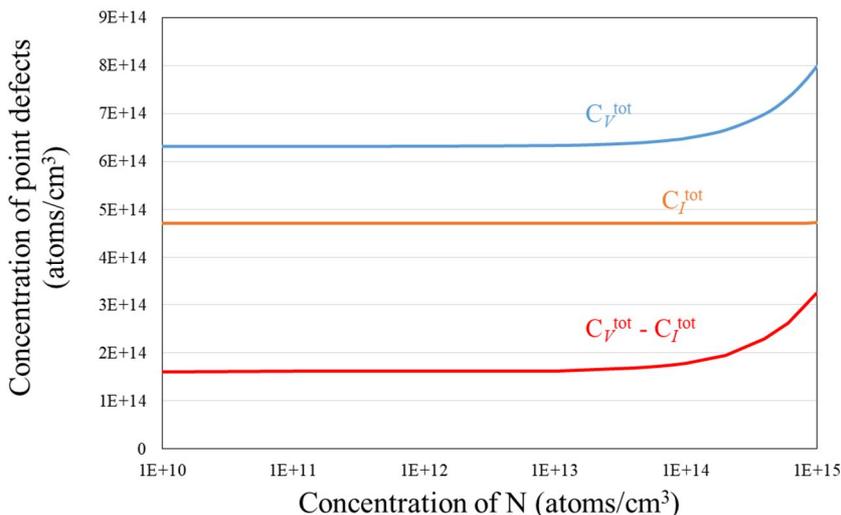


図 2 融点における V, I の熱平衡濃度の N 濃度依存性

次に、計算モデル内における V の拡散経路を全て考慮し、拡散障壁を計算した。その結果から、V は格子間 N が存在するモデル内に侵入すると、速やかに N と結合し安定構造に到達する。さらに、図 3 に示すように結合力の大きさから解離は起こらず、拡散する可能性は極めて低いことがわかった。すなわち、V は N と結合することによって凝集が妨げられ、結果としてボイド欠陥の形成が抑制されるメカニズムを提案した。

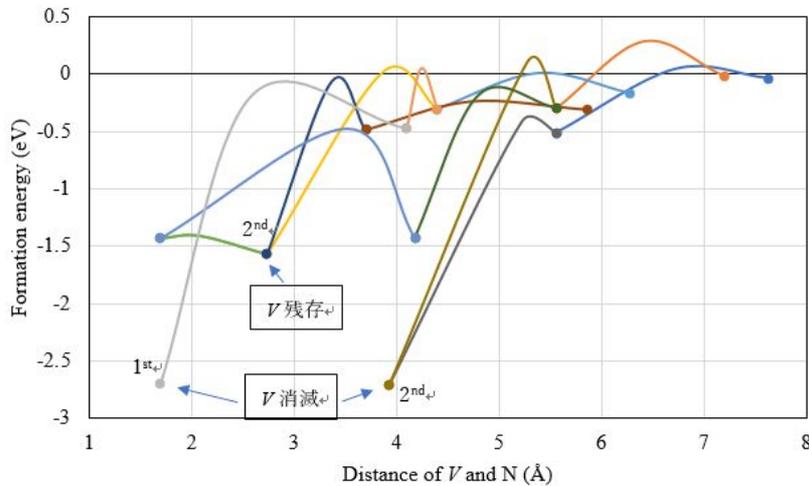


図3 N 周囲の経路 (8th→5th→2nd→1st)のVの拡散障壁

箱庭法を用いて算出したSiの融点におけるV, Iの熱平衡濃度のH濃度依存性を図4に示す。さらに, VとIの対消滅を考慮して濃度差 ($C_V^{tot} - C_I^{tot}$) を算出した結果, この濃度差はH濃度に伴い増加し, その増加分はH濃度の約1.2%となった。この値は実験で確認されている約0.8%と近い値であった。

次に, VH複合体とIH複合体の形成エネルギーを計算した結果, IH₂複合体が非常に安定であることがわかった。そこで, 形成したIH₂複合体の安定性について, 拡散障壁と乖離エネルギーの観点で計算した結果を図5に示す。これより, IH₂複合体は単独のI, Hよりも拡散しにくく, 他のIH複合体よりも乖離しにくいことがわかる。従って, I型欠陥を形成しにくいことから, H添加により完全性の高いSi結晶の実現可能性が示唆された。

図5 I, H, IH_n (n = 1~4)の拡散障壁と解離エネルギー

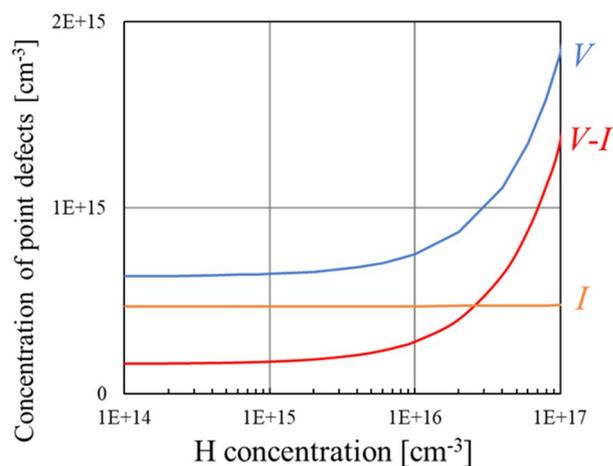
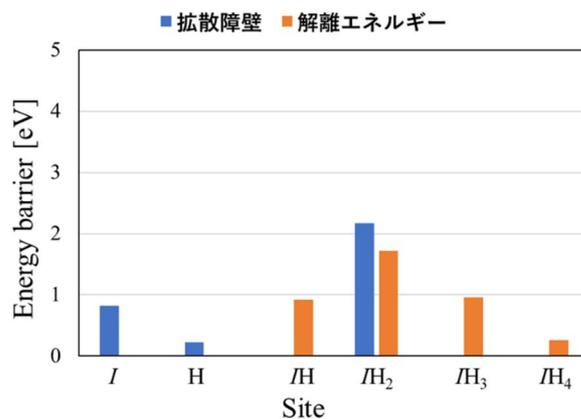


図4 V, Iの熱平衡濃度のH濃度依存性



(2) パワー-MOSFET用超高濃度Pドーブ n 型 Si 結晶におけるボイド欠陥消滅と積層欠陥の形成過程

図6に計算に用いたSiモデルの一部を示す。格子間P (Pi) は結晶格子を構成するSi原子と[110]ダンベル構造を作って安定化する。

形成エネルギーの計算結果を用いて箱庭法を適用した結果, 添加したP濃度が $1 \times 10^{20}/\text{cc}$ のとき, 固液界面から取り込まれる格子間Pi濃度は約 $1 \times 10^{17}/\text{cc}$ となった。さらに箱庭法を用いて置換Ps, 格子間PiおよびP₄V複合体の熱平衡濃度を算出した結果を表1に示す。これより, 添加したP濃度が $1 \times 10^{20}/\text{cc}$ のとき, 格子間Piは1100°C付近で過飽和となることがわかる。従って, この格子間Piは未飽和の置換Psとなった方が安定であり, この反応において格子間Si (I) を放出すると考えられる。

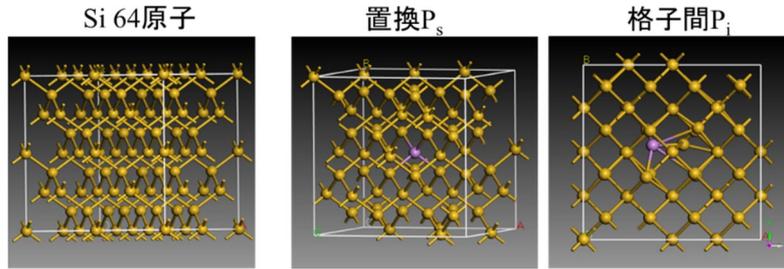


図6 計算に用いた Si モデルの一部 (完全結晶, 置換 P (P_s), 格子間 P (P_i))

表1 置換 P_s , 格子間 P_i および P_4V 複合体の熱平衡濃度

温度 T ($^{\circ}\text{C}$)	熱平衡濃度 (/cc)		
	P_s	P_i	P_4V ($P_s = 1\text{e}20/\text{cc}$ の時)
1250	8.55E+20	2.73E+17	6.88E+16
1150	6.90E+20	1.22E+17	1.06E+17
1050	5.40E+20	4.80E+16	1.75E+17
950	4.05E+20	1.63E+16	3.13E+17
850	2.89E+20	4.54E+15	6.20E+17
750	1.93E+20	9.89E+14	1.40E+18
650	1.18E+20	1.55E+14	3.80E+18
550	6.41E+19	1.54E+13	1.31E+19

放出された I の濃度は P_i の濃度 (約 $1 \times 10^{17}/\text{c}$) と同程度となるが, この濃度はボイドを形成する V 濃度よりも 2 桁程度高い。従って, 超高濃度 P ドープ n 型 Si 結晶ではこの反応により I の方が優勢となり, 過飽和の I が凝集して積層欠陥を形成すると考えられる。

このメカニズムに従うと I と反応性の高い不純物の添加が高品位化に寄与すると考えられる。

(3) GaN 結晶における点欠陥の物性に関する基礎データ

図7に計算に用いた GaN モデルを示す。モデルは Ga と N がそれぞれ 36 原子で構成された稠密六方格子となっている。予備計算の結果, カットオフエネルギーを 340 eV, k 点サンプリングを $2 \times 2 \times 2$ とした。

本計算では GaN 結晶のイオン結合性を考慮して, 欠陥 (Ga 空孔, N 空孔, 格子間 N, 格子間 Ga) の形成エネルギーに注目し, Ga 空孔-格子間 Ga ペアと N 空孔-格子間 N ペアの形成エネルギーを算出した。

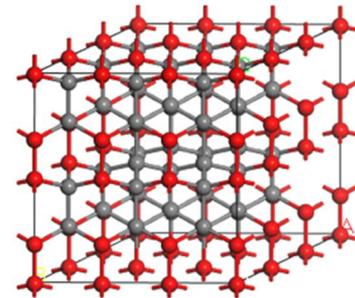


図7 計算に用いた 72 原子 GaN モデル (赤色: N, 灰色: Ga)

図8に $V(\text{Ga}) - I(\text{Ga})$ ペアと $V(\text{N}) - I(\text{N})$ ペアの計算結果を示す。これより, $V(\text{Ga}) - I(\text{Ga})$ ペアよりも $V(\text{N}) - I(\text{N})$ ペアの方が安定なことがわかる。

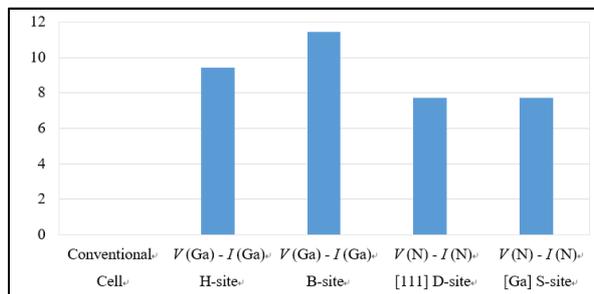


図8 Ga 空孔-格子間 Ga ペアと N 空孔-格子間 N ペアの形成エネルギー

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計10件（うち査読付論文 10件 / うち国際共著 3件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Kamiyama Eiji, Sueoka Koji	4. 巻 9
2. 論文標題 Prediction of O Aggregation in Straight Line at High Temperature in Si Crystals: Thermal Donors Attaching to an Oxide Precipitate Surface	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ECS Journal of Solid State Science and Technology	6. 最初と最後の頁 054003 ~ 054003
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1149/2162-8777/ab951c	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 Kusunoki Takuya, Sueoka Koji, Sugimura Wataru, Hourai Masataka	4. 巻 555
2. 論文標題 Theoretical study of hydrogen impact on concentration of intrinsic point defects during Czochralski Si crystal growth	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Crystal Growth	6. 最初と最後の頁 125971 ~ 125971
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jcrysgro.2020.125971	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 Sueoka Koji, Mukaiyama Yuji, Maeda Susumu, Iizuka Masaya, Mamedov Vasif M.	4. 巻 8
2. 論文標題 Computer Simulation of Concentration Distribution of Intrinsic Point Defect Valid for All Pulling Conditions in Large-Diameter Czochralski Si Crystal Growth	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ECS Journal of Solid State Science and Technology	6. 最初と最後の頁 P228 ~ P238
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1149/2.0011904jss	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 Sueoka Koji, Fukuda Hiroaki	4. 巻 520
2. 論文標題 Theoretical study on Frenkel pair formation and recombination in single crystal silicon	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Crystal Growth	6. 最初と最後の頁 1 ~ 10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jcrysgro.2019.05.014	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 Nonoda Noriyuki, Sueoka Koji	4. 巻 8
2. 論文標題 Density Functional Theory Study on Stability of Fe, Cu, and Ni Atoms Near (001) Surface of Si Wafer	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ECS Journal of Solid State Science and Technology	6. 最初と最後の頁 P573 ~ P579
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1149/2.0111910jss	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 Tanahashi Katsuto, Tachibana Tomihisa, Sueoka Koji, Moriya Masaaki, Kida Yasuhiro, Ustunomiya Satoshi, Shirasawa Katsuhiko, Takato Hidetaka	4. 巻 8
2. 論文標題 Effect of Oxygen Precipitation in Silicon Wafer on Electrical Characteristics of Fully Ion-Implanted n-Type PERT Solar Cells	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ECS Journal of Solid State Science and Technology	6. 最初と最後の頁 P596 ~ P601
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1149/2.0191910jss	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 Mukaiyama Yuji, Sueoka Koji, Maeda Susumu, Iizuka Masaya, Mamedov Vasif M.	4. 巻 532
2. 論文標題 Unsteady numerical simulations considering effects of thermal stress and heavy doping on the behavior of intrinsic point defects in large-diameter Si crystal growing by Czochralski method	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Crystal Growth	6. 最初と最後の頁 125433 ~ 125433
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jcrysgr.2019.125433	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 Mukaiyama Yuji, Sueoka Koji, Maeda Susumu, Iizuka Masaya, Mamedov Vasif M.	4. 巻 531
2. 論文標題 Numerical analysis of effect of thermal stress depending on pulling rate on behavior of intrinsic point defects in large-diameter Si crystal grown by Czochralski method	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Crystal Growth	6. 最初と最後の頁 125334 ~ 125334
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jcrysgr.2019.125334	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 Taniguchi Motoharu, Sueoka Koji, Hourai Masataka	4. 巻 571
2. 論文標題 Density functional theory study on concentration of intrinsic point defects in growing N-doped Czochralski Si crystal	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Crystal Growth	6. 最初と最後の頁 126249 ~ 126249
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jcrysgro.2021.126249	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 Iwashiro Hiroya, Sueoka Koji, Torigoe Kazuhisa, Ono Toshiaki	4. 巻 572
2. 論文標題 Theoretical study of stress impact on formation enthalpy and thermal equilibrium concentration of impurities and dopants in Si single crystal	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Crystal Growth	6. 最初と最後の頁 126284 ~ 126284
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jcrysgro.2021.126284	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9件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 9件)

1. 発表者名 Motoharu Taniguchi, Koji Sueoka, Masataka Hourai
2. 発表標題 First principles analysis on intrinsic point defect behavior in growing CZ-Si crystal
3. 学会等名 EMRS 2020 Spring meeting (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Takuya Kusunoki, Koji Sueoka, Wataru Sugimura, Masataka Hourai
2. 発表標題 First principles analysis of H impact on intrinsic point defect behavior in growing CZ-Si crystal
3. 学会等名 EMRS 2020 Spring meeting (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Motoharu Taniguchi, Koji Sueoka, Masataka Hourai
2. 発表標題 First Principles Analysis on Intrinsic Point Defect Behavior during N Doped CZ-Si Crystal Growth
3. 学会等名 The 8th Asian Conference on Crystal Growth and Crystal Technology (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Hiroya Iwashiro, Koji Sueoka, Kazuhisa Torigoe, Toshiaki Ono
2. 発表標題 Theoretical Study of Stress Impact on Formation Enthalpy and Thermal Equilibrium Concentration of Metal Atoms in Si Single Crystal
3. 学会等名 The 8th Asian Conference on Crystal Growth and Crystal Technology (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Koji Sueoka
2. 発表標題 Computer simulation of intrinsic point defect distribution valid for all pulling conditions in large-diameter Czochralski Si crystal growth
3. 学会等名 18th Conference of Gettering and Defect Engineering in Semiconductor Technology (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Nonoda Noriyuki, Sueoka Koji
2. 発表標題 Density functional theory study on stability and diffusion barrier of metal atoms near the Si (001) surface
3. 学会等名 18th Conference of Gettering and Defect Engineering in Semiconductor Technology (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Daiki Tsuchiya, Koji Sueoka, Hidekazu Yamamoto
2. 発表標題 Influence of Carbon and Oxygen Impurities on Bulk Lifetime-Control Defects in Silicon Crystals for Power Device Application
3. 学会等名 18th Conference of Gettering and Defect Engineering in Semiconductor Technology (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Motoharu Taniguchi, Koji Sueoka, Masataka Hourai
2. 発表標題 First principles analysis on intrinsic point defect behavior in growing CZ-Si crystal
3. 学会等名 EMRS 2020 Spring meeting (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Takuya Kusunoki, Koji Sueoka, Wataru Sugimura, Masataka Hourai
2. 発表標題 First principles analysis of H impact on intrinsic point defect behavior in growing CZ-Si crystal
3. 学会等名 EMRS 2020 Spring meeting (国際学会)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔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	山本 秀和	千葉工業大学・工学部・教授	
	(Yamamoto Hidekazu)		
	(00581141)	(32503)	

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	中塚 理 (Nakatsuka Osamu) (20334998)	名古屋大学・工学研究科・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		
ロシア連邦	STR Group-Soft Impact LTD.		