

解説

SiC 溶液成長による高品質化と機械学習の応用

原田俊太^{1,2,*}, 朱 燦¹, 角岡洋介², 沓掛健太郎³, 宇治原徹^{1,2,4}¹名古屋大学未来材料・システム研究所未来エレクトロニクス集積研究センター, 464-8601 愛知県名古屋市千種区不老町²名古屋大学大学院工学研究科物質プロセス工学専攻, 464-8603 愛知県名古屋市千種区不老町³理化学研究所革新知能統合研究センター, 351-0198 埼玉県和光市広沢 2-1⁴産業技術総合研究所窒化物半導体デバイスオープンイノベーションラボラトリ, 464-8601 愛知県名古屋市千種区不老町

High-Quality SiC Solution Growth and Application of Machine Learning

Shunta HARADA^{1,2,*}, Zhu CAN¹, Yosuke TSUNOOKA², Kentaro KUTSUKAKE³, Toru UJIHARA^{1,2,4}¹Center for Integrated Research of Future Electronics, Institute of Materials and Systems for Sustainability, Nagoya University, Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya, Aichi 464-8601²Department of Materials Process Engineering, Graduate School of Engineering, Nagoya University, Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya, Aichi 464-8603³Center for Advanced Intelligence Project, RIKEN, 2-1, Hirosawa, Wako, Saitama 351-0198⁴GaN Advanced Device Open Innovation Laboratory, Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya, Aichi 464-8601

Received May 7, 2019; E-mail: shunta.harada@nagoya-u.jp

In this paper, we introduce defect conversion phenomena in SiC solution process and large-size high-quality crystal growth using the dislocation conversion phenomena. Stabilization of the growth surface is extremely important in upsizing of the high-quality SiC growth. We demonstrated that “switching flow growth” is an effective method to achieve the stabilization of the growth surface. In order to further increase the diameter and length, it is necessary to optimize the crystal growth conditions. We are establishing the new method to search optimal growth condition using machine learning and mathematical optimization.

Key Words: SiC, Top-Seeded Solution Growth, Machine Learning, Dislocation

1. はじめに

SiC は高い絶縁破壊電界強度と熱伝導率、飽和ドリフト速度を有するパワーデバイス材料として優れた特性を示すワイドギャップ半導体であり、Si に代わる次世代のパワーデバイス材料として期待されている[1]。SiC パワーデバイスは、家電製品や電鉄などに使用され、次世代新幹線 N700S にも搭載されることが決まっており、社会実装が進んでいる。SiC は同一の組成で、様々な積層構造をとる結晶多形を示す物質であり、3C, 4H, 6H, 15R などの積層構造をとることが知られている[2]。中でも 4H-SiC はバンドギャップが大きく、移動度も高いため、SiC パワーデバイスの研究開発は、4H-SiC を中心に進められている。SiC パワーデバイスには、昇華法により作製された SiC 単結晶基板上に、化学気相成長により不純物濃度が制御されたエピタキシャル膜を成長させたものを用いるのが一般的である。昇華法では、原料となる SiC 粉末を高温(2000 °C 以上)で昇華させ、低温部に配置した種結晶上で単結晶 SiC を成長させる。昇華法による結晶成長の改善により結晶品質は向上しているが[3]、市販の SiC 結晶中には数多くの転位が含まれており、無転位結晶が実現されている Si などと比べると、結晶品質が良いとは言えない。昇華法により作製された市販の SiC 基板中には貫通らせん転位(Threading screw dislocation : TSD)が $10^2 \sim 10^4 \text{ cm}^{-2}$ 、貫通刃状転位(Threading edge dislocation : TED)が $10^3 \sim 10^5 \text{ cm}^{-2}$ 、基

底面転位(Basal plane dislocation : BPD)が $10^2 \sim 10^4 \text{ cm}^{-2}$ 存在する[4]。基板中の欠陥はエピタキシャル膜に伝播し、デバイスの特性や信頼性に影響を与えることが知られている[5,6]。このため、高品質の SiC 基板が求められている。

これに対して SiC 溶液法は高品質結晶成長を実現する方法として注目を集めている[7]。特に Top-seeded solution growth (TSSG) 法によるバルク結晶成長に関して多くの研究がなされており、TSSG 法により 2 インチ、3 インチのバルク SiC 結晶成長が報告されている[8-12]。また、溶液成長は平衡状態に近いプロセスであるため、結晶の高品質化が期待されている。これまでの研究で、溶液成長過程において、マイクロパイプが閉塞することや、成長に伴い転位密度が減少することが報告されている[7,13]。

我々のグループでは、これまでに溶液成長過程における欠陥挙動を X 線トポグラフィ法などによって詳細に調べてきた[14-21]。その中で、SiC 溶液成長では、マクロステップとの相互作用により、貫通転位が基底面の欠陥に変換することを見出している[20]。また、このような欠陥変換を用いることで、欠陥密度を大幅に低減できることも明らかとなっている[22-24]。本論文では、溶液成長過程における欠陥変換現象を利用した高品質結晶成長を紹介する。また、高品質化技術を大型の結晶成長に適用するために溶液流れの制御や、機械学習の活用を試みており、それについても紹介する[25,26]。

2. SiC 溶液成長

Fig.1に TSSG 法による SiC 溶液成長の概略図と結晶成長炉の外観写真を示す。TSSG 法による溶液成長では、黒鉛坩堝の中で Si を含む溶媒を溶融し、種結晶を張り付けた黒鉛軸を浸漬させ、結晶成長を行う。高温部分において黒鉛坩堝から炭素が溶媒に溶出し、低温部分に配置した種結晶上に SiC 単結晶を成長させる。坩堝や溶液内などにおける SiC の晶出を抑制するためには、溶液内の温度分布を適切に制御する必要がある。また、表面モフォロジーは、溶液の流れとステップ進展方向の関係によって大きく変化するため、溶液内の流動を制御することも必要となる[27]。溶液内の温度分布や流れの分布を直接観測しながら結晶成長を行うことは困難であるため、伝熱、電磁場、流体などの連成解析 (multi-physics simulation) が用いられる[28,29]。また、パイポラー型の SiC パワーデバイスのオン抵抗を低減するためには、SiC 基板の電気抵抗率を低減することが必要となる。n 型のドーピングには窒素が、p 型のドーピングにはアルミニウムが用いられるが、SiC 溶液成長においては、結晶成長雰囲気窒素ガスを混合することにより窒素ドーピングが、溶媒にアルミニウムを混合することにより、アルミニウムドーピングを行うことが可能である[30]。

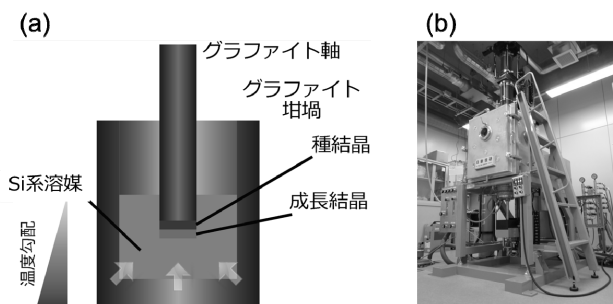


Fig.1 (a) Schematic illustration of SiC solution growth and (b) the picture of our growth furnace.

3. SiC 溶液成長における欠陥の伝播挙動

バルク結晶の実現を目指した SiC 溶液成長においては、結晶成長表面を安定化し長時間の結晶成長を実現するために、C 面で結晶成長を行うことがほとんどである[10]。これは、C 面での結晶成長が Si 面と比較して、平坦な結晶成長面となるためである。また、オフ角を設けた種結晶上においては容易に溶媒の巻き込みが生じるとの報告もあり、種結晶にオフ角を設けない、C 面 on-axis 種結晶上の結晶成長が溶液成長の主流となった。C 面 on-axis 種結晶上の結晶成長においては、これまでの研究から、貫通らせん転位、貫通刃状転位は種結晶から伝播し、基底面欠陥は結晶成長中にほとんど形成しないことが報告されている[7]。

これに対して、オフ角を設けた Si 面種結晶上での溶液成長においては、貫通転位の基底面欠陥への変換が生じやすい[15,16,18]。特に貫通らせん転位は $10 \mu\text{m}$ 程度の成長で 99% 以上が基底面の欠陥に変換することが知られている。Fig.2 に溶液成長前後の X 線トポグラフィ像を示す[18]。大きな点状のコントラストで表される貫通らせん転位 (A) や、小さな点状のコントラストで表される貫通刃状転位 (B) は、溶液成長後には線状の基底面の欠陥に変換している (A', B')。貫通らせん転位に関しては、ほとんどすべてが基底面の欠陥に変換するのに対して、貫通刃状転位の中には、基底面転位への変換が起こらないもの (C) もある。詳細な解析から、貫通

刃状転位の変換率は、バーガースベクトルとステップフロー方向の関係によって決まり、変換率が低いものが存在する。成長結晶の表面モフォロジーと、X 線トポグラフィによる欠陥評価の比較から、貫通転位の基底面転位への変換はマクロステップによって引き起こされることが分かっている[17]。つまり、前述の C 面 on-axis 種結晶上において平坦な結晶成長面で結晶成長を行う場合には、欠陥の変換はほとんど生じない。マクロステップの高さとマクロステップの角度が欠陥変換挙動に大きな影響を与えることが分かっており、C 面の結晶成長においても溶媒に Ti を添加することにより、角度の大きなマクロステップの形成を促進すると、貫通らせん転位が変換することが分かっている[20]。

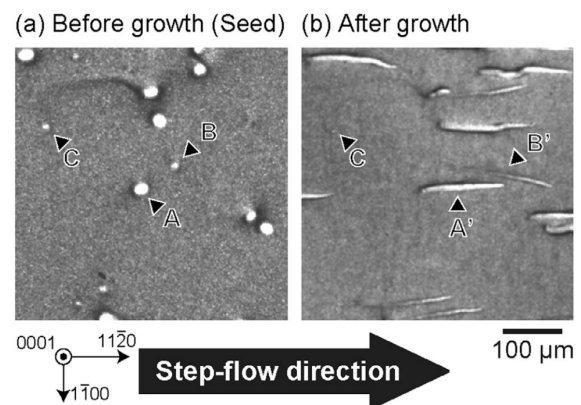


Fig.2 (a) X-ray topography images of (a) the seed crystal and (b) the grown crystal taken at the same position[18].

4. 欠陥変換現象を利用した高品質結晶成長

前節で述べた貫通転位の基底面欠陥への変換現象は、高品質化につながるメカニズムである。オフ角種結晶を用いた SiC 溶液成長では、マクロステップのステップフローにより、貫通転位は基底面の欠陥に変換する。変換した基底面の欠陥は側面に向かって伝播し、成長とともに外部に掃き出される。したがって、成長とともに結晶中の転位密度は減少し、厚膜化により高品質の結晶成長を実現することが可能であると考えられる。実際に、オフ角 Si 面種結晶上での結晶成長において、貫通転位密度が大幅に低減することが示されている[22]。

マクロステップは、欠陥変換により高品質化に寄与する一方で、過剰に発達すると、溶媒の巻き込み (インクルージョン) などのマクロ欠陥を引き起こす。このためバルク成長に高品質化技術を適用するためには、バルク成長に有利な C 面成長と組み合わせることが考えられる。Fig.3 (a) に Si 面と C 面の結晶成長を組み合わせさせた二段成長の模式図を示す[23]。まず、Si 面の結晶成長においてマクロステップにより貫通転位を基底面の欠陥に変換する [Fig.3 (a) (ii)]。得られた結晶の背面を研磨し C 面種結晶を作製し [Fig.3 (a) (iii)]、この上に結晶成長を行う。二段階目の C 面成長ではマクロステップを形成する必要がないため、長時間の成長により厚膜化を行うことが可能である [Fig.3 (a) (iv)] この方法により、 10 mm^2 の結晶成長において、貫通らせん転位密度 11 cm^{-2} 、貫通刃状転位密度 385 cm^{-2} 、基底面転位密度 28 cm^{-2} と、転位密度の極めて低い結晶を得ることに成功している[23]。Ti-Si 溶媒を用いて C 面成長を行うと、マクロステップが形成し、欠陥変換が生じるため、C 面二段階成長によっても高品質化が可能であると考えられる [Fig.3 (b)]。この場合、背面の研磨が不

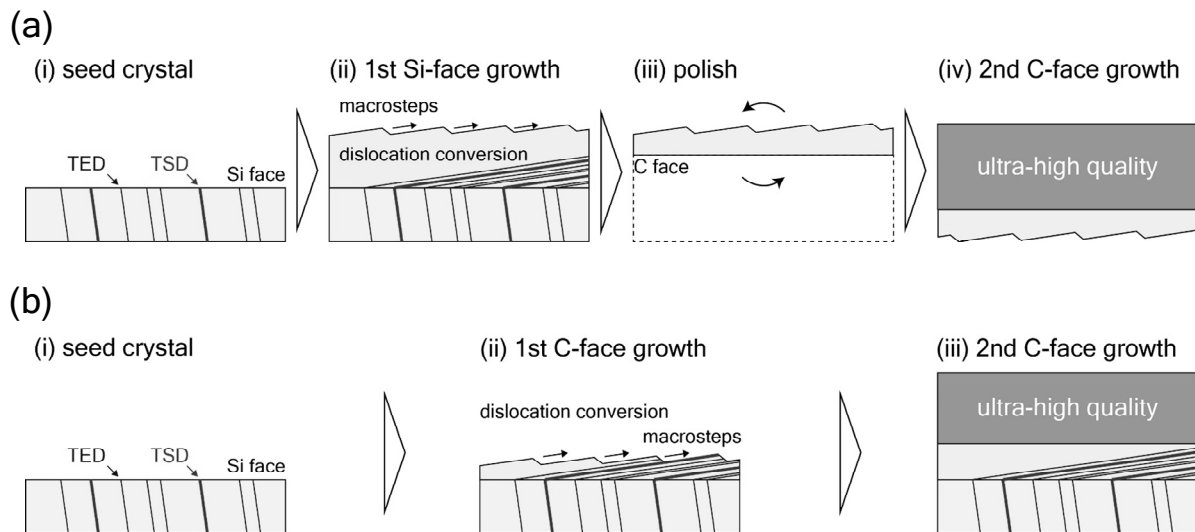


Fig.3 (a) Schematic illustration of two-step solution growth using the Si face and the C face and (b) using only C face for high-quality solution growth.

要となるため、プロセスの簡略化が可能となる。C 面溶液法二段階成長によって、貫通せん転位が皆無である高品質の結晶成長が実現されている[20]。また、二段階目の成長に昇華法を組み合わせることによっても、高品質化が可能であることが報告されている。

5. SiC 溶液成長における欠陥の伝播挙動

5.1 溶液流れの制御による成長表面の安定化

前節で述べたように、Si 面での結晶成長はマクロステップによる欠陥変換により高品質化が可能である一方、マクロステップの過剰な発達を抑制しなければ、バルク成長は困難である。溶液成長ではステップの進展方向と、溶液流れの方向によって、マクロステップの高さが変化することが知られている[27]。溶液の流れとステップの進展方向が同一の場合にはマクロステップの発達が促進されるのに対して、溶液の流れとステップの進展が逆方向の場合にはマクロステップの発達が抑制されることが明らかとなっている。このため、オフ角を設けた種結晶を用いて大口径の結晶成長を軸対称の環境下で行う場合、ステップフローの上流または下流において溶液の流れがステップフローと同一となる領域が生じてしまい、結晶全面においてマクロステップの発達を抑制することが困難となる。Fig.4 に、外向きの流れと内向きの流れで、オフ角を設けた種結晶上において一方向のステップフローで結晶成長を行う場合の模式図を示す。溶液の流れが外向き(外向流)の場合、ステップフローの上流部分においては溶液の流れとステップフローの方向は逆向きになるため、マクロステップの発達が抑制されるが、下流部分では同一方向となり、マクロステップの発達が促進されると考えられる。一方、溶液の流れが内向き(内向流)の場合には、先ほどとは逆に、下流部分においてはステップフローと溶液流れの方向が逆向きとなるが、上流部分では、同一方向になってしまう。実際に、外向流で結晶成長を行うと、ステップフロー下流部分においてマクロステップが発達し溶媒の巻き込み(インクルージョン)が発生することが明らかとなっている。

結晶全面において、マクロステップの過剰な発達を抑制するために、我々は異なる溶液流れを組み合わせることで結晶成長を行うスイッチングフロー成長を考案した。スイッチングフロ

ー成長では、内向流と外向流の条件を交互に切り替えて結晶成長を行う。ルツボやホットウォールの厚さなどにも依存するが、高周波誘導電流による電磁攪拌により内向流が、結晶の回転による強制対流により外向流が形成しやすい。シミュレーションにより内向流と外向流をそれぞれ実現する結晶成長条件を決定し、二つの条件を切り替える。これまでにスイッチングフロー成長により、結晶全面においてマクロステップの過剰な発達を抑制することに成功しており、バルク成長には不利であると考えられてきた Si 面オフ角種結晶上の成長において、3 inch で最大約 1 mm の厚さを得ることができている。さらなる大口径化・長尺化にはスイッチングフロー成長の最適化が必要である。これに対して我々は、次節で述べるように機械学習を用いた結晶成長条件の最適化に取り組んでいる。

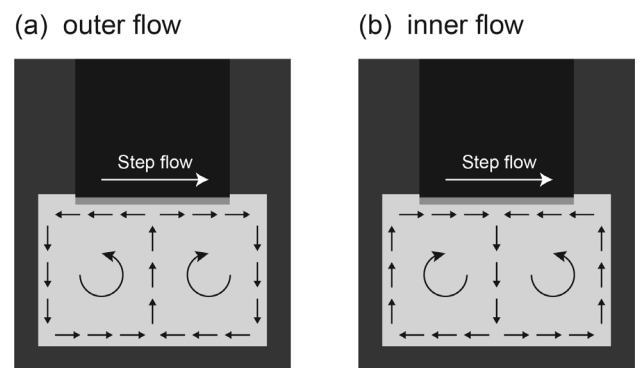


Fig.4 Schematic illustration of the solution growth with one directional step flow under (a) the outer flow and (b) the inner flow condition.

5.2 機械学習を利用したシミュレーションの高速化

SiC 溶液成長では、坩堝や溶液内での晶出を抑制し、マクロステップの発達を抑制し成長速度を増加させる必要があり、温度や過飽和度、さらにはスイッチングフロー成長における溶液流れの分布を最適化する必要がある。このために、坩堝や軸、断熱材など炉内の部材の形状や配置などを変化させ、

シミュレーションを行い、望ましい分布が得られる成長条件を探索することになる。炉内の黒鉛部材や断熱材の幾何学的な形状をある程度固定したとしても、10個以上のパラメータを変化させることになり、最適化のためには極めて多くのシミュレーションを実施する必要がある。1つのシミュレーションに要する時間を1時間程度として、仮に10個のパラメータをそれぞれ5個ずつ網羅的に計算するとすれば、計算時間は $3.6 \times 10^3 \times 5^{10} = 3.5 \times 10^{10}$ s(= ~1100年)となり、膨大な計算時間が必要となる。そこで我々は、シミュレーション時間を短縮するために、ニューラルネットワークを用いた機械学習に着目した。ニューラルネットワークを用いた機械学習では、予め準備した入力と出力の組み合わせを学習することにより、入力から出力を予測するモデルを構築する。精度の高い予測モデルが構築されれば、極めて少ない計算量で入力から出力を予測することができる。これを結晶成長のシミュレーションに適用すると、成長条件を入力すると、瞬時にシミュレーション結果の予測値が得られることになり、計算時間の大幅な短縮が期待できる[25]。

ニューラルネットワークにより、シミュレーション結果を高速予測するモデルを構築する手順は下記の通りである(Fig.5)。まず100~1000個程度のシミュレーションを異なる成長条件(パラメータ)で計算し学習データを作成する。次に、Tensorflowを用いて機械学習を行う[31]。この時に、成長条件を決めるパラメータと溶液内の位置座標を入力値とし、出力を温度や炭素濃度、溶液の流れなどとする。このように入力と出力の組み合わせると、学習データ数は(シミュレーションの数) × (溶液内の座標の数)となり、予測精度が高いニューラルネットワークの構築が可能となる。構築されたニューラルネットワークを用いて、シミュレーション結果の予測を行うために必要な計算時間は、 3.0×10^{-4} s程度であり、先ほど述べたように、10個のパラメータをそれぞれ5個ずつ網羅的に計算したとしても、約1時間で計算が終了する。実にシミュレーションの 10^7 倍の計算速度で結果が得られることになる。

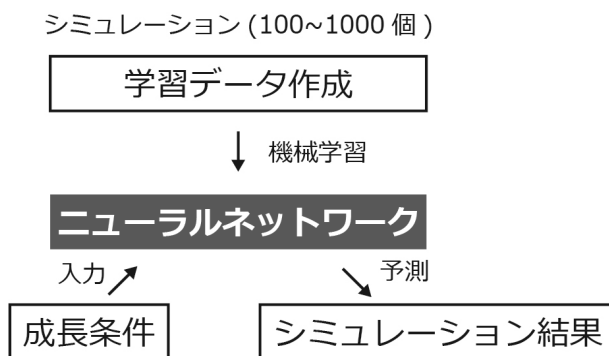


Fig.5 The procedure of the construction of prediction model for multiphysics simulation using machine learning.

このように高速のシミュレーションが可能となると、成長条件に対して、温度、炭素濃度、溶液流れを網羅的に計算することが可能となり、逆に、結晶成長に望ましい温度や炭素濃度、溶液流れの分布となる成長条件を探索することが可能となる。最近の研究においては、遺伝的アルゴリズムを用いて、溶液流れと過飽和度の分布など複数の条件を満たすパレート最適条件の探索と、実際の結晶成長への適用に取り組んでおり、SiC結晶成長の大口径化・長尺化を目指している。

6. まとめ

本論文では、SiC溶液過程における欠陥変換現象と、これを利用した大型高品質結晶成長を紹介した。高品質化技術の大型化においては、成長表面の安定化が極めて重要であり、スイッチングフロー成長が有効な解決方法であることを実証している。更なる大口径化・長尺化に向けては、結晶成長条件の最適化が必要となるが、機械学習と数理最適化を用いた成長条件探索法を確立しつつある。これらにより、高品質SiC溶液成長結晶の大型化を実現することにより、デバイスの信頼性・歩留まり向上が期待される。

References

- 1) T. Kimoto, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **2015**, 54, 040103.
- 2) H. Jagodzinski, *Acta Crystallogr.*, **1954**, 7, 300.
- 3) S. G. Müller, E. K. Sanchez, D. M. Hansen, R. D. Drachev, G. Chung, B. Thomas, J. Zhang, M. J. Loboda, M. Dudley, H. Wang, F. Wu, S. Byrappa, B. Raghathamachar, G. Choi, *J. Cryst. Growth*, **2012**, 352, 39.
- 4) T. Kimoto, *Prog. Cryst. Growth Charact. Mater.*, **2016**, 62, 329.
- 5) T. Kimoto, A. Iijima, H. Tsuchida, T. Miyazawa, T. Tawara, A. Otsuki, T. Kato, Y. Yonezawa, "Understanding and reduction of degradation phenomena in SiC powerdevices", *2017 IEEE Int. Rel. Phys. Symp.*, **2017**, pp.2A-1.1-2A-1.7.
- 6) T. Watanabe, S. Hino, T. Iwamatsu, S. Tomohisa, S. Yamakawa, *IEEE Trans. Device Mater. Reliab.*, **2017**, 17, 163.
- 7) K. Kamei, K. Kusunoki, N. Yashiro, N. Okada, T. Tanaka, A. Yauchi, *J. Cryst. Growth*, **2009**, 311, 855.
- 8) M. Kado, H. Daikoku, H. Sakamoto, H. Suzuki, T. Bessho, N. Yashiro, K. Kusunoki, N. Okada, K. Moriguchi, K. Kamei, *Mater. Sci. Forum*, **2013**, 740-742, 73.
- 9) K. Kusunoki, N. Okada, K. Kamei, K. Moriguchi, H. Daikoku, M. Kado, H. Sakamoto, T. Bessho, T. Ujihara, *J. Cryst. Growth*, **2014**, 395, 68.
- 10) H. Daikoku, M. Kado, A. Seki, K. Sato, T. Bessho, K. Kusunoki, H. Kaidou, Y. Kishida, K. Moriguchi, K. Kamei, *Cryst. Growth Des.*, **2016**, 16, 1256.
- 11) K. Seki, K. Kusunoki, Y. Kishida, H. Kaido, K. Moriguchi, M. Kado, H. Daikoku, T. Shirai, M. Akita, A. Seki, H. Saito, S. Harada, T. Ujihara, *Mater. Sci. Forum*, **2018**, 924, 39.
- 12) T. Mitani, N. Komatsu, T. Takahashi, T. Kato, S. Harada, T. Ujihara, Y. Matsumoto, K. Kurashige, H. Okumura, *J. Cryst. Growth*, **2015**, 423, 45.
- 13) R. Yakimova, E. Janzén, *Diam. Relat. Mater.*, **2000**, 9, 432.
- 14) T. Ujihara, S. Kozawa, K. Seki, Alexander, Y. Yamamoto, S. Harada, *Mater. Sci. Forum*, **2012**, 717-720, 351.
- 15) Y. Yamamoto, S. Harada, K. Seki, A. Horio, T. Mitsuhashi, T. Ujihara, *Appl. Phys. Express*, **2012**, 5, 115501.
- 16) Y. Yamamoto, S. Harada, K. Seki, A. Horio, T. Mitsuhashi, T. Ujihara, *Mater. Sci. Forum*, **2013**, 740-742, 15.
- 17) S. Harada, Y. Yamamoto, K. Seki, A. Horio, T. Mitsuhashi, M. Tagawa, T. Ujihara, *APL Mater.*, **2013**, 1, 022109.
- 18) S. Harada, Y. Yamamoto, K. Seki, A. Horio, M. Tagawa, T. Ujihara, *Acta Mater.*, **2014**, 81, 284.
- 19) S. Harada, Y. Yamamoto, S. Xiao, M. Tagawa, T. Ujihara, *Mater. Sci. Forum*, **2014**, 778-780, 67.
- 20) S. Xiao, S. Harada, K. Murayama, M. Tagawa, T. Ujihara, *Cryst. Growth Des.*, **2016**, 16, 6436.
- 21) S. Harada, Y. Yamamoto, S. Xiao, D. Koike, T. Mutoh, K. Murayama, K. Aoyagi, T. Sakai, M. Tagawa, T. Ujihara, *Mater. Sci. Forum*, **2015**, 821-823, 3.
- 22) Y. Yamamoto, S. Harada, K. Seki, A. Horio, T. Mitsuhashi, D. Koike, M. Tagawa, T. Ujihara, *Appl. Phys. Express*, **2014**, 7, 065501.

- 23) K. Murayama, T. Hori, S. Harada, S. Xiao, M. Tagawa, T. Ujihara, *J. Cryst. Growth*, **2017**, 468, 874.
- 24) K. Murayama, S. Harada, F. Fujie, X. B. Liu, R. Murai, C. Zhu, K. Hanada, M. Tagawa, T. Ujihara, *Mater. Sci. Forum*, **2018**, 924, 60.
- 25) Y. Tsunooka, N. Kokubo, G. Hatasa, S. Harada, M. Tagawa, T. Ujihara, *CrystEngComm*, **2018**, 20, 6546.
- 26) T. Ujihara, Y. Tsunooka, G. Hatasa, K. Kutsukake, A. Ishiguro, K. Murayama, T. Narumi, S. Harada, M. Tagawa, *Vac. Surf. Sci.*, **2019**, 62, 136 [in Japanese].
- 27) C. Zhu, S. Harada, K. Seki, H. Zhang, H. Niinomi, M. Tagawa, T. Ujihara, *Cryst. Growth Des.*, **2013**, 13, 3691.
- 28) Y. Mukaiyama, M. Iizuka, A. Vorob'ev, V. Kalaev, *J. Cryst. Growth*, **2017**, 475, 178.
- 29) T. Umezaki, D. Koike, S. Harada, T. Ujihara, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **2016**, 55, 125601.
- 30) K. Kusunoki, K. Kamei, K. Seki, S. Harada, T. Ujihara, *J. Cryst. Growth*, **2014**, 392, 60.
- 31) <https://www.tensorflow.org/>