

戦略的創造研究推進事業 CREST
研究領域「実験と理論・計算・データ科学を融合し
た材料開発の革新」
研究課題「多結晶材料情報学による一般粒界物性
理論の確立とスマートシリコンインゴットの創製」

研究終了報告書

研究期間 2017年10月～2023年3月

研究代表者：宇佐美 徳隆
(名古屋大学大学院工学研究科、教授)

§ 1 研究実施の概要

(1) 実施概要

本研究は、組織の複雑さと粒界の多様性により、普遍的な高性能化指針が不明確な多結晶材料に関し、「どのような結晶をどのように作ればよいか？」という根源的な問いに解を与える新たな材料開発手法の構築を目指して実施した。構成元素が一つで結晶構造もシンプルな結晶シリコンをモデル材料として、マクロ実験(宇佐美グループ)、機械学習(工藤グループ)、理論計算(横井グループ)、マイクロ実験(大野グループ)を連携させ、多様な多結晶材料の高性能化に展開できる多結晶材料情報学の開拓を進めた。

プロジェクト前半では、太陽電池用多結晶シリコンウェーハに対し、宇佐美グループと工藤グループが連携して、大量の蛍光画像と多次元光学画像を収集し、画像処理や機械学習を駆使することで、多結晶インゴットの組織や転位クラスター分布の3次元可視化、光学画像からの結晶方位分布の予測、多結晶組織の発生関係を記述するネットワーク解析、転位クラスター発生点の特徴抽出、粒界におけるキャリア再結合速度の定量化などの研究基盤を構築した。また、宇佐美グループは国際共同研究支援に採択され、ドイツ・ブラウンホーファー太陽エネルギー研究所と連携し、機能性粒界を利用した擬単結晶インゴット製造技術が、実用サイズウェーハ用ブロックが4個取得可能なG2インゴットに適用できることを実証した。横井グループは、独自に作成した汎用性に優れた人工ニューラルネットワーク原子間ポテンシャル(ANNポテンシャル)を利用した原子構造の予測と実験により、一般粒界の構造と物性の調査を可能とした。大野グループは、マクロ実験で抽出された特徴領域をマルチスケールで構造解析する手法を確立した。

中間評価後のプロジェクト後半では、各グループの連携を強化し、研究基盤を統合することで本チーム独自の研究開発手法を深化させ、多結晶材料情報学の有用性のエビデンスとなる優れた学術研究成果や高品質材料の創出、研究開発手法の他材料への展開、実用化を見据えた産学連携研究の強化を意識して研究を進めた。

蛍光画像からの転位クラスター抽出、多次元光学画像を利用した結晶粒識別と結晶方位予測といった研究基盤を統合することで、実材料から収集したデータに基づく現実的な3次元多結晶モデルの作成を可能とし、さらに、結晶成長シミュレーション、応力解析、電子顕微鏡観察などの先端計測、粒界原子構造の理論計算を連携させることで、複雑な多結晶における転位の発生・増殖メカニズムのようにアプローチが困難であった現象の研究を可能とした。その結果、転位クラスター発生源となる粒界近傍には応力集中が起こっており、等価のすべり系の中で最も大きな応力がかかった主すべり系に沿って転位が発生したことを明らかにし、転位発生を特徴づけるナノ構造を同定することができた。また、種結晶からの一方向成長と固液界面形状制御による粒界構造の自発的変化を活用して構造パラメータを系統的に変化させた独自の非対称粒界に対し、機械学習により高速化したキャリア再結合速度の定量評価を行うことで、粒界構造とキャリア再結合速度の関係を、粒界傾斜角度、相対方位差、非対称角度という3つの構造パラメータにより体系化した。

高品質インゴットの実現に向けては、インゴット成長プロセス時の温度計測、成長したインゴットの評価による固液界面形状推定、インゴット成長プロセスの熱流体解析、転位・応力分布を予測する機械学習モデル、遺伝的アルゴリズムによる多目的最適化を連携させることで、転位密度を低減可能な成長プロセスを効率的に設計可能であることを示した。さらに、実験で高品質化を実証することで、材料創製に対する手法の有用性を明確に示した。本手法は、大型インゴットの量産技術にも適用可能であることを産学連携研究により実証した。

他材料への展開については、超伝導材料、酸化物、シリサイド半導体、化合物半導体など多様な材料に対し、多結晶組織のネットワーク解析、ANNポテンシャルによる原子構造計算、製造プロセス設計などの研究基盤を適用した共同研究を進展させた。

今後は、研究期間全体を通して開拓してきた多結晶材料情報学を社会還元できるように、優れた研究成果を持続的に創出し、広く発信していくように努める。多様な多結晶材料に対して高性能化や材料プロセス開発の効率化を実現し、新たな社会的・経済的価値の創出を目指す。

(2) 顕著な成果

<優れた基礎研究としての成果>

1. 蛍光画像からの転位クラスター抽出、多次元反射画像を利用した結晶粒識別と結晶方位予測といった本研究で開発した研究基盤を統合することで、実材料から収集したデータに基づく現実的な3次元多結晶モデルの作成を可能とした。さらに、結晶成長シミュレーション、応力解析、電子顕微鏡観察などの先端計測、粒界構造の理論計算を連携させることで、複雑な多結晶における転位の発生・増殖メカニズムのようにアプローチが困難であった現象の研究を可能とした。
2. シリコン中の複雑な粒界に適用できる ANN ポテンシャルを世界に先駆けて作成し、大規模かつ高シグマ値である粒界の原子構造を高速・高精度に予測できることを示した。また、マクロな光学画像から抽出した特徴領域の構造を、原子レベルで実験的に評価する手法を構築した。両者の連携により一般粒界の原子構造と物性を調べることが可能となった。本手法は、他材料に適用可能な汎用性の高い材料研究手法といえる。
3. 多結晶材料中の非対称粒界に着目し、種結晶の設計と一方向成長過程での粒界構造の自発的变化を活用することで、粒界構造を記述するシグマ値、非対称性、ねじれ成分の3つの構造パラメータを幅広く変化させた独自の結晶を作製した。さらに、機械学習モデルを利用した特性評価を組み合わせることで、非対称粒界の構造と粒界の電気的特性との関係を解明した。

<科学技術イノベーションに大きく寄与する成果>

1. 白色照明の入射方向を変化させて収集した多結晶の多次元反射画像を利用して、個々の結晶粒の輝度変化パターンから結晶粒方位を予測する機械学習モデルを作成した。この手法により、数千個程度の結晶粒を含む多結晶ウェーハの光学画像から結晶粒方位分布を簡単に予測できることを示した。本手法は、X線や電子線を用いることなく、大気中で簡便な計測が可能であり、さまざまな多結晶材料への応用や計測装置開発への展開が期待できる。
2. 結晶成長実験から収集する温度や固液界面形状などのマルチデータを活用した結晶成長シミュレーションモデルの精緻化、結晶成長の制御パラメータから成長後の転位密度や応力分布を予測する代理モデル作成、遺伝的アルゴリズムによる多目的最適化を組み合わせることで、高品質な結晶を製造可能なプロセスを効率的に設計できる手法を構築した。本手法は、シミュレーションが可能な多様な製造プロセスに適用できる汎用性の高い手法といえる。
3. 転位クラスター発生点の幾何学的特徴についての知見をベースに、高機能粒界により転位をインゴットの切りしろ部分に局在させて高密度に発生させることで、製品となる部分の転位を低減させる新たな擬単結晶インゴット成長法を考案し、企業と連携して実用サイズインゴット成長への適用を試みた。その結果、インゴットの高品質化に成功し、量産技術へ展開可能な技術であることを実証した。

<代表的な論文>

1. Yusuke Hayama, Tetsuya Matsumoto, Tetsuro Muramatsu, Kentaro Kutsukake, Hiroaki Kudo, and Noritaka Usami, "3D visualization and analysis of dislocation clusters in multicrystalline silicon ingot by approach of data science", *Solar Energy Materials and Solar Cells* **189**, 239-244 (2019).

概要:

実用多結晶シリコンウェーハの蛍光画像に画像処理を適用することで、多結晶組織と欠陥分

布を可視化し、さらに 2 次元画像の積層により多結晶シリコンインゴット中の組織と転位クラスターの 3 次元分布を可視化する技術を開発した。本手法を用いることで、転位クラスターの発生・伝搬・消滅過程が可視化され、複雑な多結晶組織から転位クラスターの発生点などの特徴領域を網羅的に抽出することが可能となった。

2. Tatsuya Yokoi, Yusuke Noda, Atsutomo Nakamura, Katsuyuki Matsunaga, “Neural-network interatomic potential for grain boundary structures and their energetics in silicon”, *Phys. Rev. Materials* **4**, 014605 (2020).

概要:

シリコン粒界の原子構造とエネルギー的安定性を高精度・高速で予測する手法を確立するため、DFT 計算データを学習させた ANN ポテンシャルを構築した。そして学習後の ANN ポテンシャルは、学習データに含まれない粒界に対しても高精度を維持することを示した。さらに、それを分子シミュレーションと統合した。その結果、通常の DFT 計算より数桁高速で粒界の計算が可能となった。

3. Yusuke Fukuda, Kentaro Kutsukake, Takuto Kojima, Yutaka Ohno, and Noritaka Usami, “Study on electrical activity of grain boundaries in silicon through systematic control of structural parameters and characterization using a pretrained machine learning model”, *J. Appl. Phys.* **132**, 025102 (2022).

概要:

シリコン粒界の粒界構造を人工種結晶と成長過程における自発的变化を組み合わせることで 3 つの構造パラメータを系統的に変化させた独自の非対称粒界を作製するとともに、顕微蛍光画像から機械学習モデルにより粒界におけるキャリア再結合速度を定量評価した。その結果、対称傾角粒界からの傾き成分のずれと比較して、ねじれ成分の導入がキャリア再結合速度を増加させる効果が大きいことを明らかにした。

§ 2 研究実施体制

(1) 研究チームの体制について

① 「宇佐美」グループ

研究代表者: 宇佐美 徳隆 (名古屋大学 大学院工学研究科 教授)

研究項目

- ・多結晶シリコンの組織・欠陥の 3 次元再構築と応力解析(全グループで連携)
- ・機械学習を活用した粒界の電気的特性の高速評価
- ・粒界構造と粒界の電気的特性との関係解明(大野グループと連携)
- ・結晶成長シミュレーションの代理モデル作成と高品質擬結晶製造プロセス設計(ドイツブラウンホーファー研究所と連携: 国際強化、民間企業と連携)
- ・他材料への展開: 多結晶 Mg_2Si 組織の 3 次元再構築による粒界成長挙動の解析(茨城大学・鶴殿教授の研究グループと連携)
- ・機械学習による熱電対位置の最適化
- ・重み付きボロノイ図を用いた核形成サイトの解析(工藤グループと連携)
- ・析出物を利用した 3 次元固液界面形状の可視化(ドイツブラウンホーファー研究所と連携: 国際強化)

② 「工藤」グループ

主たる共同研究者: 工藤 博章 (名古屋大学 大学院情報学研究科 准教授)

研究項目

- ・機械学習による転位クラスター領域の特定と発生の推定(宇佐美グループと連携)
- ・機械学習による結晶方位分布の推定(宇佐美グループと連携)
- ・多結晶組織の発生関係を解析する手法の開発(宇佐美グループと連携)
- ・多結晶組織のネットワーク解析の高度化
- ・多結晶組織のネットワーク解析の拡張(研究加速若手 工藤グループ小島、山本チームと連携)
- ・多結晶組織のインゴットスケール解析(宇佐美グループと連携)

③ 「横井」グループ

主たる共同研究者: 横井 達矢 (名古屋大学 大学院工学研究科 講師)

・シリコン粒界の ANN ポテンシャル

・学習後の ANN ポテンシャルによる分子シミュレーション

・シリコンおよびゲルマニウムの ANN ポテンシャルによる粒界構造の探索

・他物質の粒界への展開(研究加速若手)

・シリコンにおける点欠陥クラスターへの展開(岡山県立大学・末岡教授の研究グループと連携)

④ 「大野」グループ

主たる共同研究者: 大野 裕 (東北大学 金属材料研究所 学術研究員)

研究項目

- ・転位クラスター発生源となる粒界の構造特性と発生機構の解明(全グループと連携)
- ・転位クラスター発生源となる非対称粒界の形成機構の解明(横井グループ、宇佐美グループ、山本チーム波多グループと連携)
- ・電氣的に活性な粒界の構造特性と不純物集積能機構の解明(横井グループ、宇佐美グループと連携)
- ・他材料への展開: チョクラルスキー成長タンタル酸リチウムインゴットにおける多結晶化発生過程の解明

(2) 国内外の研究者や産業界等との連携によるネットワーク形成の状況について

本研究は、研究開発当初より民間企業と協力関係の下で実施した。データ収集に用いる多結晶ウェーハの提供を受け、ウェーハの表面処理は製造ラインを利用して実施していただいた。2018 年度に、国際共同研究支援に採択され、ドイツ・フラウンホーファー太陽エネルギー研究所において、実用サイズウェーハ用ブロックが 4 個取得可能な G2 インゴットで擬単結晶インゴット製造を実証した。中間評価後には、民間企業と具体的な課題を共有することで実効的な産学連携研究を加速することができ、量産技術の構築に貢献することができた。

本研究で開発した多様な研究基盤はシリコンに限らず他材料に展開可能であると考えられる。2021 年 4 月には、愛知県の科学技術交流財団の支援を受け「多結晶材料情報学応用技術研究会」を設置し、9 社の企業会員に対し、定期的に研究シーズ紹介を行っている。その場を起点として複数の企業との共同研究に発展した。

国内の研究者との連携について、宇佐美チームと親和性の高い超伝導材料の研究を進めている山本チームとは、2021 年より合同研究会を 3 度にわたり開催しており、これらの議論をベースに領域内共同研究を提案し、超伝導材料の組織解析(小島研究員×嶋田グループ)や、非対称粒界形成の原子レベルその場観察(大野グループ×波多グループ)に取り組んでいる。茨城大学・鶴殿教授のグループとは、 Mg_2Si の多結晶化メカニズム解明や、高品質インゴットの大型化に共同で取り組んでいる。

宇佐美グループは、シリコンをベースとする材料研究において多くの国内ネットワークを保有しており、CREST で構築した機械学習の手法の適用やプロセスインフォマティクスへの展開についても検討を進めている。具体的には、東北大学流体科学研究所・徳増崇教授、東北大学金属材料研究所・秋山英二教授、産業技術総合研究所・松井卓矢氏、筑波大学・末益崇教授、茨城大学・大山研司教授、東京大学生産技術研究所・福谷克之教授、東京大学・一杉太郎教授、山梨大学・原康佑准教授、豊田工業大学・大下祥雄教授、大阪大学・ダムリンマルワン特任教授と共同研究を行っている。工藤グループでは、大同大学の竹内義則教授と情報処理について連携を行っている。横井グループは岡山県立大学・末岡浩治教授の研究グループと、ANN 原子間ポテンシャルを利用したシリコン結晶中の金属不純物ゲッターリングの大規模計算を実施し、民間企業も交えた共同研究を行っている。また東京大学・幾原雄一教授とはセラミックス粒界の原子構造について、大阪大学・吉矢真人教授とは、機械学習による結晶粒界の熱物性予測について連携を行っている。大野グループでは、大阪市立大学・重川直輝教授の研究グループと連携して常温直接接合を応用した固相エピタキシー法による非対称大傾角粒界を形成し、この取り組みを山本チームの九大・波多グループとの共同研究に発展させた。また、本研究で開発したマルチスケール構造評価による粒界機能解析技術を民間企業との共同研究に発展させた。