特集 材料組織形成における計算材料科学の最前線

機械学習を活用した SiC 高品質結晶成長条件のデザイン

原田俊太[*,1),**] 林 宏益[2),**] 角岡洋介[2),**] 朱 燦[*,2)]
鳴海大翔[***] 沓掛健太朗[****] 宇治原 徹[*,3),**,*****]

1. はじめに

パワーデバイスは，電力変換に用いられる半導体デバイスであり，省エネルギーの観点から，その高効率化が求められている．炭化ケイ素(SiC)は，シリコン(Si)をはるかに上回るパワーデバイス特性を有し，次世代のパワー半導体材料として期待されている[(1)]．SiC パワーデバイスは，すでにエアコンなどの家電製品や，鉄道車両用インバータに使用され，次世代新幹線 N700S の駆動システムにも採用されており，社会実装が進められている．SiC は同一の組成で多様な積層構造をとる結晶多形を呈する物質であり，3C, 4H, 6H, 15R などの多形を有す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 3.27 eV と大きく，移動度も比較的高いため，SiC パワーデバイスの研究開発は，4H-SiC を中心として進められている．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(CVD)によりエピタキシャル膜を成長したものが用いられる．昇華法では，原料となる SiC 粉末を2000℃以上の高温において昇華させ，種結晶上に成長させる[(3)]．この方法により，6 インチのウエハが製造され市販されており，R&D では 8 インチが実証されている．昇華法 SiC 結晶の品質は着実に向上しているが[(4)]，無転位が前提である Si ウエハと比較すると，結晶品質が良いとは決して言えない．昇華法 SiC ウエハには，貫通らせん転位(Threading screw dislocation: TSD)，貫通刃状転位(Threading edge dislocation: TED)，基底面転位(Basal plane dislocation: BPD)がそれぞれ，10^2–10^4 cm^{-2}, 10^3–10^5 cm^{-2}, 10^2–10^4 cm^{-2} 程度存在する[(3)]．基板中の欠陥はエピタキシャル膜に伝播し，デバイス劣化や，信頼性の低下をもたらすことが知られており，転位密度の低い高品質の SiC ウエハが求められている[(5)(6)]．

これに対して，SiC 溶液法は，高品質の結晶成長を実現する方法の一つとして注目を集めている[(7)]．バルク結晶成長に関しては，Top-seeded solution growth(TSSG)法の研究が行われており，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)-(11)]．溶液法は，熱力学的平衡状態に近いプロセスであるため，高品質化が期待されており，これまでの研究において，溶液成長過程においてマイクロパイプと呼ばれる中空状の欠陥が閉塞することや[(12)]，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)]．我々は，これまでの研究において，溶液成長過程における転位の伝播挙動を，放射光を用いた X 線トポグラフィ法などにより詳細に調べてきた[(13)-(22)]．その中で，SiC 溶液成長過程において，マクロステップが沿面成長をすると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転位に変換することを見出している[(14)(18)]．また，欠陥変換を用いることにより高品質の結晶成長に成功している[(23)-(25)]．現在，我々は溶液法による高品質化技術を 3 インチ，4 インチ，さらには 6 インチ，8

* 名古屋大学未来材料・システム研究所；1)講師 2)特任助教 3)教授(〒464-8601 名古屋市千種区不老町)
** 名古屋大学大学院工学研究科；1)講師 2)大学院生(†現在ローム株式会社) 3)教授
*** 名古屋大学ベンチャービジネスラボラトリ；博士研究員(††現在京都大学大学院工学研究科；助教)
**** 理化学研究所革新知能統合研究センター；研究員
***** 産業総合研究所 窒化物先進デバイスオープンイノベーションラボラトリ；副ラボ長
Design of High-quality SiC Solution Growth Condition Assisted by Machine Learning; Shunta Harada*,**, Hung-Yi Lin**, Yosuke Tsunooka**, Can Zhu*, Taka Narumi***, Kentaro Kutsukake**** and Toru Ujihara*,**,*****(*Institute of Materials and Systems for Sustainability, Nagoya University, Nagoya. **Department of Materials Process Engineering, Nagoya University, Nagoya.(†Now at ROHM Co., Ltd., Kyoto.) ***Venture Business Laboratory, Nagoya University, Nagoya.(††Now at Department of Materials Science and Engineering, Kyoto University, Kyoto.) ****Center for Artificial Intelligence Project, RIKEN, Tokyo. *****GaN Advanced Device Open Innovation Laboratory, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, Nagoya.)
Keywords: *silicon carbide, solution growth, machine learning neural network, mathematical optimization, dislocation, power device*
2019年12月 3 日受理[doi:10.2320/materia.59.145]

インチの結晶成長に応用するために，欠陥変換による高品質化と両立する大型結晶成長技術の研究と，結晶成長条件最適化の研究を行っている．本論では，溶液法による高品質結晶成長の大型化の課題と，機械学習および数理最適化を活用した結晶成長の最適化方法について解説する．

2.　結晶成長条件の最適化

結晶成長に限らず，製造プロセスの最適化は極めてタフな作業である．プロセスの最適化の中には，プロセス中の温度や濃度といった値だけではなく，それらの時間変化，さらには用いる部材の形状や材質，試料の前処理なども含まれ，研究開発のリードタイムを律速している．結晶成長プロセスにおいては，状態図などの熱力学データや，高品質化のメカニズムが明らかになったからと言って，直ちに良質な結晶が得られるとは限らない．例えば，チョクラルスキー(Cz)法においてネッキングを行うことにより無転位の結晶が得られることを，1959年に Dash は報告しているが[26]，現在，集積回路製造プロセスの主流である 300 mm のウエハサイズを実現するまでに，実に40年近くの時間を要している[27]．この間，段階的に大型化が進み，その都度多くの時間と労力が費やされてきた．

結晶成長条件を最適化する従来の方法では，結晶成長の基礎的な知見，経験則やノウハウなど，研究者の知識を基に，結晶成長条件を決定し，得られた結晶を観察し，その結果を次の成長条件の決定に反映する，という事を繰り返す(**図 1** (a))．この場合，いかに優れた研究者であっても，ある程度繰り返し実験を行う必要があり，装置やサイズが変わった時にしばしばこれまでの知見を活かすことができず，結晶成長条件の最適化をやり直す必要がある．これに対して，最近では結晶成長条件の設計に，伝熱，流体，電磁気など複数の物理現象を組み合わせて考慮するマルチフィジックスシミュレーションが用いられる[28][29]．この場合，研究者の知識をもとに，結晶成長において好ましい温度分布や濃度分布などを想定し，そのような状況をシミュレーション上で実現する成長条件を探索し，実験を行い得られた結晶の観察結果をフィードバックする，という事を繰り返す(図 1(b))．この場合，シミュレーションにより，成長条件をある程度絞り込むことができるため従来よりも少ない実験回数で最適な条件が得られる場合が多い．一方で，1 回のシミュレーションに 1–10 時間程度を要し，条件を探索するのに逐次シミュレーションを行うため，多くの時間が必要となる．また，成長条件のパラメータは一般的に複数あり，多次元のパラメータ空間において真の最適条件を探索することはほぼ不可能である．そこで，我々は機械学習を用いたシミュレーション結果の高速予測と，数理最適化を用いた成長条件の設計に取り組んでいる．この場合，結晶成長において好ましい状況を目的関数により定義することで定量化し，数理最適化のアルゴリズムにより，目的関数が最小となる成長条件パラメータの組合せを取得し，結晶成長実験を行い，その結果を目的関数の定義に反映する，という事を繰り返すことになる(図 1(c))．この場合には，一度機械学習モデルを構築すればシミュレーション結果を 1 sec 以下で得られるため，全パラメータ空間の中から最適な条件を探索することが可能となる．また，装置やサイズが変わっても同様の目的関数をベースとして用いることができるため，効率的に成長条件を最適化することができる．

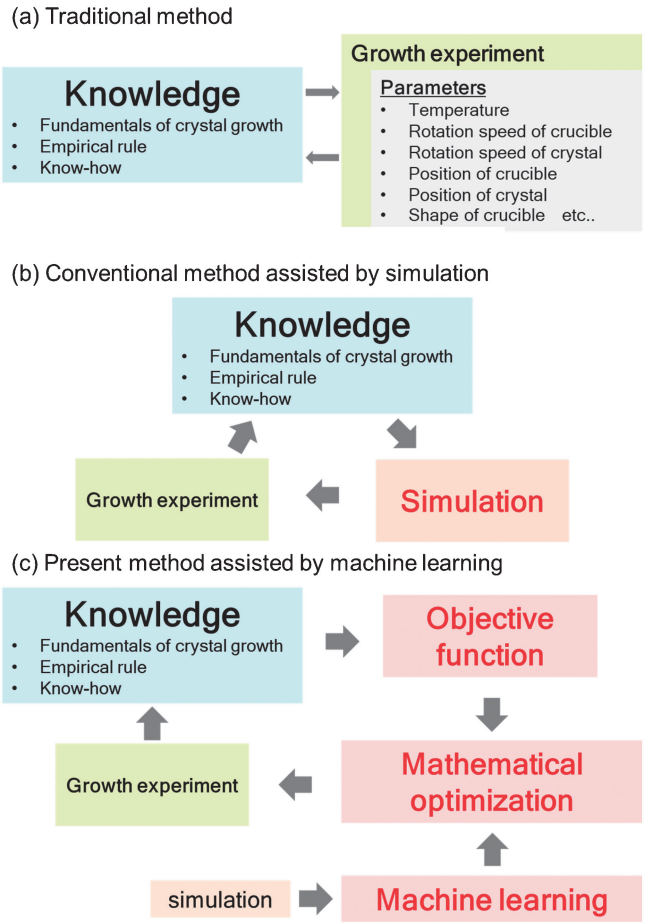

図 1　結晶成長パラメータの決定法．(a) 従来法，(b) シミュレーションを援用した最近の方法，(c) 本研究で用いる機械学習と数理最適化を活用した方法．（オンラインカラー）

3.　高品質 SiC 溶液成長

図 2 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[30]．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[31]．バイポーラ型の

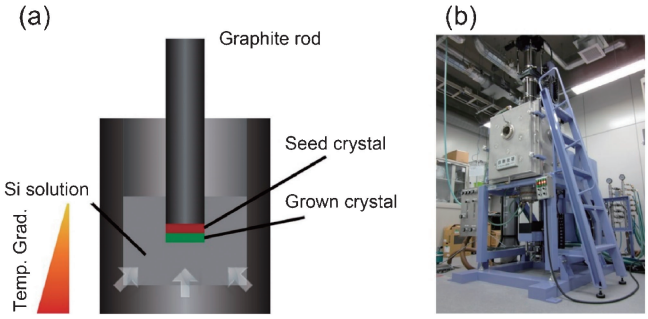

図 2　(a) SiC 溶液成長の模式図と (b) SiC 溶液成長炉の外観写真[30]．（オンラインカラー）

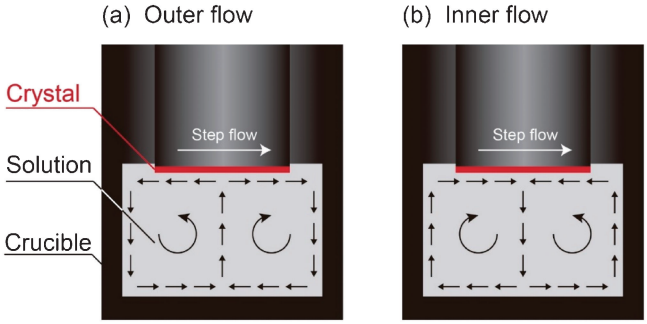

図 3　一方向のステップフロー成長において (a) 外向流と (b) 内向流で溶液成長を行う場合の模式図．（オンラインカラー）

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，結晶成長雰囲気に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[32]．

4H-SiC の結晶成長は (0001) 面または，(0001) 面から [11-20] 方向に数度傾斜したオフ角種結晶が用いられる場合が多い[3]．SiC は極性を有し，Si と C で終端する (0001) 面が存在し，それぞれ Si 面，C 面と呼ぶ．SiC バルク結晶を目指した SiC 溶液成長においては，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．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りやすいためである[33]．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[7]，種結晶にオフ角を設けない，C 面 (0001) 面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形成されにく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，成長表面にマクロステップが形成することにより貫通転位の基底面欠陥への変換が生じやすい．特に貫通らせん転位は 10 μm 程度の成長で99％以上が基底面の欠陥に変換することが明らかとなっている[14][16]．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ため，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．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[23][24]．これまでに，10 mm 角の結晶成長において，貫通らせん転位密度が 11 cm^{-2}，貫通刃状転位密度が 385 cm^{-2}，基底面転位密度が 28 cm^{-2} である転位密度の極めて低い高品質結晶を得ることに成功している．

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[31]．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．**図 3** 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で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，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，同一方向となってしまう．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て結晶成長を行うスイッチングフロー成長を考案した[34]．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を実証している．

以上のように，オフ角 Si 面種結晶上の成長における欠陥

変換を利用した高品質 SiC 溶液成長においては，溶液の温度，過飽和度，スイッチングフローによる溶液流れなど複数の分布を最適化する必要がある．

4.　機械学習を用いたシミュレーション結果の高速予測

近年，機械学習は様々な学術領域に応用されつつある．材料科学の分野においては，実験・シミュレーションデータと機械学習を組み合わせることにより材料探索を行うマテリアルズインフォマティクスが主流である．本研究では，機械学習の手法の一つであるニューラルネットワークを用いて，成長条件パラメータを入力すると，シミュレーション結果が出力される非線形の回帰式を作製する．詳細は専門書に譲るが[35]，ニューラルネットワークの学習と，最小二乗法は類似の方法であり，機械学習の中の「教師あり学習」に分類される．最小二乗法による線形回帰を機械学習の言葉で記述すると，「複数の入力と出力データの組み合わせ(x_i, y_i)を学習データとして，二乗和誤差が最小となるように$y=ax+b$の重み(係数：(a, b))を決定(学習)することにより，未知の入力xに対して出力yを予測する回帰式を作製する．」となる．ニューラルネットワークは，神経回路と似た構造で線形と非線形の変換を繰り返すことにより表現力の高い関数となっていることが最小二乗法による線形回帰との大きな違いであり，多くの係数を決定する必要があることや，学習データへの過学習(Over fitting)が起こらないように正則化を行う場合があること，二乗和誤差以外の誤差関数を用いる場合があるなど，他にも異なる点が多くあるが，「深い関数を使った最小二乗法である」という説明は，直感的には分かりやすい[36]．

ニューラルネットワークの学習は，Google が開発し，オープンソースで公開している機械学習ソフトウェアライブラリ TensorFlow などを用いて行うことができる[37]．学習データの容量にもよるが，本論文で取り上げるような学習であれば，ノートパソコンの CPU でも十分に実行できる．さらに，機械学習は並列処理が可能であるため，GPU を用いることで計算速度を高めることができる．

機械学習による結晶成長シミュレーション結果の予測モデルの構築は以下のような手順により行う[38]．まず初めに，結晶成長パラメータの範囲を決めてランダムに変化させ，100個程度のシミュレーションを行い，溶液内の流れの分布，温度分布，濃度分布の計算を行う．ここでは一例として，種結晶の回転速度(ω_s)，るつぼの回転速度(ω_c)，るつぼの内径(D_c)，メニスカス高さ(h)，ルツボの高周波コイルに対する相対位置(z_c)を成長条件パラメータとして，**表 1** の範囲でパラメータを変化させる．得られたシミュレーション結果から，位置に対して溶液流れと濃度の値を抽出する．これにより，例えば100個のシミュレーション結果に対して，溶液内において100箇所の値を抽出するとすれば，100×100＝10,000個のデータが得られることになる．機械学習では，一般的にデータ数が多いほど精度が向上するが，学習データを増すためには時間がかかるため，データの特徴をニューラルネットワークの構造に反映することや，感度の低い入力パラメータを入れないようにするなどの工夫を行い，限られたデータで十分な精度を出すことが必要となる．転移学習やデータ拡張などデータサイエンスにおいても少ないデータでも学習が可能となる手法があるが，これらの手法を用いる場合も，そうでない場合にも，データの特徴を把握し，機械学習のアルゴリズムに反映することが極めて重要である．次に，抽出したデータを学習データとしてニューラルネットワークの学習を行う．この時に，**図 4** のように結晶成長パラメータに加えて，溶液の位置(r, z)を入力し，流れ$\boldsymbol{U}=(U_r, U_\theta, U_z)$，温度$T$，過飽和度$\sigma$を出力するニューラルネットワークの構造とする．ニューラルネットワークでは入力するデータを入力層と呼び，層から層へと値を変換していき，データを出力する．最後の層を出力層と呼び，入力層と出力層の間の層を中間層もしくは隠れ層と呼ぶ．隠れ層において変換された値をノードと呼び，隠れ層の数とノードの数によりニューラルネットワークの構造が決められる．各ノードでは前の層の値に重みを付けてバイアスと合わせ，非線形の活性化関数により変換する．例えばn個の入力変数$\boldsymbol{x}=(x_1, x_2, \cdots, x_n)$が$m$個のノードを有する中間層に変換され$\boldsymbol{y}=(y_1, y_2, \cdots, y_m)$となることを数式で表現すると下記の通りである．

$$y_i = A\left(\sum_{k=1}^{n} w_{k,i}x_k + b_i\right) \quad (i=1, 2, \cdots m) \qquad (1)$$

ここで，$A(x)$は活性化関数，$\boldsymbol{W}=\begin{pmatrix} w_{1,1} & \cdots & w_{n,1} \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ w_{1,m} & \cdots & w_{n,m} \end{pmatrix}$は，重み行

表 1　学習データとして用いるシミュレーションの成長条件パラメータの範囲．

Parameters	Symbol	Lower limit	Upper limit
Seed rotation (rpm)	ω_s	0	50
Crucible rotation (rpm)	ω_c	-50	50
Crucible diameter (mm)	D_c	96	125
Meniscus height (mm)	h	0	5
Position of crucible (mm)	z_c	100	180

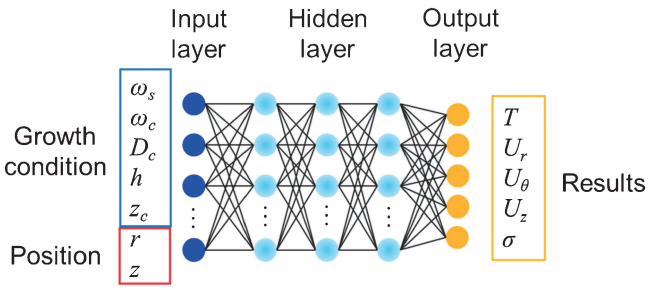

図 4　SiC 溶液成長シミュレーションの予測を行うニューラルネットワークの構造．(オンラインカラー)

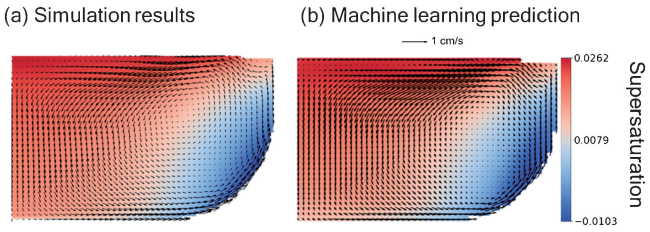

図5　(a) 学習に用いていないシミュレーション結果と(b) ニューラルネットワークによる過飽和度と流速分布の予測.

列，$\boldsymbol{b}=(b_1, b_2, \cdots, b_n)$は，バイアスパラメータである．活性化関数には，ロジスティックシグモイド関数や正規化線形関数(ReLU)などが解析の対象に合わせて用いられる．(1)式のような変換を複数回繰り返したものがニューラルネットワークであり，複数の中間層を有するニューラルネットワークを用いたものを深層学習(ディープラーニング)と呼ぶ．ここでは，隠れ層を3層として，各層のノード数を128個とし，活性化関数にはシグモイド関数を用いた．ニューラルネットワークの学習では，二乗和誤差のような誤差関数が最小となるように重み行列$\boldsymbol{W}$とバイアスパラメータ$\boldsymbol{b}$を最適化する．最後に，学習させたニューラルネットワークの精度を，学習には使用していないデータにより検証する．

一度精度の良い学習済みのニューラルネットワークを構築すれば，ニューラルネットワーク自体の計算コストは低いため，直ちに計算結果を出力することができる．本研究の場合，成長条件パラメータと位置を入力すると，温度，過飽和度，溶液流れが出力される．したがって，すべての位置に対して成長条件パラメータを入力することにより，温度，過飽和度，溶液流れの分布が得られ，シミュレーション結果を高速で予測することができる．**図5**に学習には用いていないシミュレーションの結果と，ニューラルネットワークによる予測結果を比較したものを示す．過飽和度の分布はほぼ一致しており，溶液の流れの分布も流れの強さに違いがある部分はあるものの，大まかな傾向をつかむことができている．シミュレーションが約10^4 secかかるのに対して，ニューラルネットワークによる予測は10^{-1} sec以下であり，10^5倍以上高速でシミュレーション結果を得ることができている．

5.　結晶成長条件の最適化

高速でシミュレーション結果を出力することができると，結晶成長において好ましい条件を目的関数により定量化すれば数理最適化の手法を用いて結晶成長条件を設計することができる．結晶成長の駆動力である種結晶直下の過飽和度σを一様にある値σ_1に設定したい場合，例えば，次式のように目的関数を設定する．

$$f(\boldsymbol{x})=\sum_{i}^{N}(\sigma(\boldsymbol{r}_i, \boldsymbol{x})-\sigma_1)^2 \qquad (2)$$

ここで，$\boldsymbol{r}_i$は種結晶直下の位置ベクトルである．過飽和度σは，位置と成長条件パラメータを並べたベクトル$\boldsymbol{x}$の関数となっており，目的関数は，成長条件パラメータベクトル$\boldsymbol{x}$の関数である．全ての位置において過飽和度がσ_1となるときに，目的関数は0で最も小さくなり，成長条件パラメータベクトル空間において$f(\boldsymbol{x})$が最小となる点が，「種結晶直下の過飽和度σを一様にある値σ_1である」という条件を最もよく満たすことになる．ニューラルネットワークによる結晶成長シミュレーションの高速予測を用いれば，成長条件パラメータ$\boldsymbol{x}$を入力すると，目的関数$f(\boldsymbol{x})$を直ちに計算することができる．このため，勾配法や遺伝的アルゴリズムといった繰り返しの数値計算を行う数理最適化の手法により，$f(\boldsymbol{x})$が最小値をとる$\boldsymbol{x}$を求めることができる．

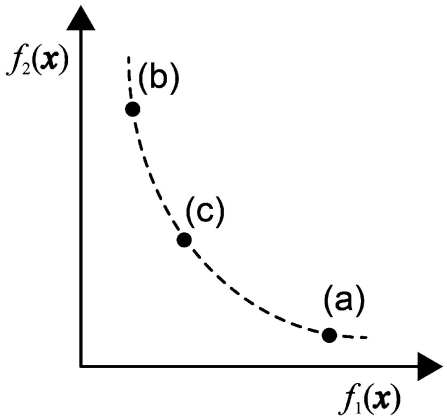

図6　多目的最適化におけるパレート最適解(破線).

結晶成長条件を最適化する際には，トレードオフの関係にある複数の目的を同時に満たす条件を探索する必要がある場合が多い．このような場合には多目的最適化を用いる．例えば，トレードオフの関係にある二つの目的関数$f_1(\boldsymbol{x}), f_2(\boldsymbol{x})$がある場合に，これらが同時に最適化される解(パレート最適解)は，一つではなく，**図6**のようなパレートフロントと呼ばれる曲線状の最適解の集合となる．図6において，(a)の最適解は目的関数$f_1(\boldsymbol{x})$の値の寄与が大きく，(b)の最適解は目的関数$f_2(\boldsymbol{x})$の値の寄与が大きい．(c)の最適解は目的関数$f_1(\boldsymbol{x})$，$f_2(\boldsymbol{x})$両方がバランスよく最適化された値となる．実際には，パレート最適解を確認し，その中からバランスよく条件を満たしている成長条件を選択している．この際に，パレート最適解を実現する成長条件パラメータの組み合わせを，k-平均法や混合ガウスモデルなどクラスター分類の手法を用いて，分類することなども行っている．

最適化の計算にはニューラルネットワークの予測を用いているため，最適条件の候補となった成長条件パラメータで改めてシミュレーションを行い，確認を行う．この時に，精度が不十分であると，シミュレーションでは最適とならない場合がある．このような場合には確認のために行ったシミュレーション結果を学習データに追加し，改めて最適化を行うことで，パレート解近傍のニューラルネットワークの精度が上昇し，最適化の精度も上昇する．

ここで説明した方法では，機械学習により成長条件が自動的に決まるのではなく，目的関数の設定と，パレート最適解からの成長条件の選択は，研究者によって行われる．つまり，これら二つにこれまでの実験結果や結晶成長の基礎的知見を反映させられるかが，重要となる．

6. 結晶成長条件の最適化の実際

実際に結晶成長条件を最適化するためには，ある程度結晶成長実験を行い，どのような目的関数を設定するかを決める必要がある．ここでは，4章で示した機械学習モデルを用いて結晶成長条件の最適化を試みた一連の結果を例として示す．

まず初めに，目的関数を設定するためにこれまでの結晶成長実験の知見も踏まえながら，3回の実験を行った(**図7**)#1の実験条件では，シミュレーション上の過飽和度は正の値であったが，種結晶全面が溶解し成長していなかった．これは，シミュレーションで用いている溶液物性が実際とは異なっているためだと考えられる．これに対しては，正しい溶液物性を与えることと，シミュレーションにおける過飽和度の絶対値は正確ではないが相対的な傾向が正しいと考えて条件を決定する，二つのアプローチが考えられる．本研究では後者の方法で最適化を進めるが，我々は，実験を再現する溶液物性パラメータをニューラルネットワークのモデルを用いて推定することも行っている[39]．#1の実験結果を受けて，次の実験では，結晶成長位置を変化させることにより，過飽和度を増加させることにした．#2の実験条件で得られた結晶の外周部分は溶解し，中央付近はわずかに成長をしていた．このことから，さらに過飽和度を増加させることが必要であると考え，次の実験ではさらに結晶成長位置を変化させた．同時にるつぼの強度を上げるためにルツボ内径を小さくし，攪拌による溶質輸送を増加させるために上軸の回転速度を増加させた．その結果(実験条件#3)，結晶全面が成長したものの，成長表面に多結晶SiC(Heterocrystal)が付着した．以上3つの実験結果と，成長表面モフォロジーをスイッチングフローにより安定化させることを念頭に置き，**表2**のように目的関数を設定した．目的関数$f_1(\boldsymbol{x})$は，結晶全面が成長し，多結晶の成長が起こらないように，結晶成長位置近傍の過飽和度が1%から2%となるようにするものである．目的関数$f_2(\boldsymbol{x})$は結晶成長位置近傍の過飽和度の分布を均一にして，成長膜厚を均一にするためのものである．また，同じ目的のために，温度の均一性に関する目的関数$f_3(\boldsymbol{x})$も加えた．$f_4(\boldsymbol{x})$と$f_5(\boldsymbol{x})$は，スイッチングフローに関するものであり，結晶成長位置近傍の溶液の流れが内向きまたは外向きで動径方向0.02 cm/sec以上，溶液流れの絶対値が0.02 cm/secとなるように目的関数を定義した．最後に，ルツボ壁での多結晶SiCの形成を抑制するために，溶液内の温度差が10℃以下となるように目的関数$f_6(\boldsymbol{x})$を設定した．ここで，ReLUおよびsoftplusは，下記のような関数である．

$$ReLU(x) = \max(0, x) \tag{3}$$

$$softplus(x) = \log(1 + e^x) \tag{4}$$

目的関数を減らすために，多目的最適化は，下記に示すように，過飽和度に関する目的関数$F_1(\boldsymbol{x})$，温度に関する目的関数$F_2(\boldsymbol{x})$，溶液流れに関する$F_3(\boldsymbol{x})$に対して行った．

$$F_1(\boldsymbol{x}) = f_1(\boldsymbol{x}) + f_2(\boldsymbol{x}) \tag{5}$$

$$F_2(\boldsymbol{x}) = f_3(\boldsymbol{x}) + f_6(\boldsymbol{x}) \tag{6}$$

$$F_3(\boldsymbol{x}) = f_4(\boldsymbol{x}) + f_5(\boldsymbol{x}) \tag{7}$$

4章で示したニューラルネットワークを用いて多目的最適化を行った結果を**表3**に示す．ここでは，実験上の制約から

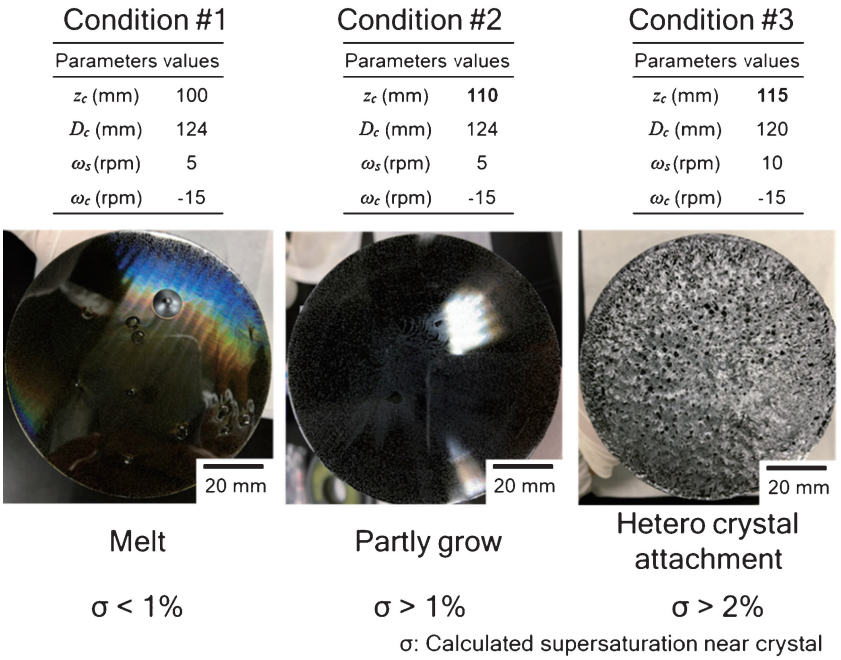

図7　各条件で成長を行った結晶の外観．(オンラインカラー)

表２　設定した目的関数．

Objective	Function
Suppression of hetero crystal and growth	$f_1(\boldsymbol{x}) = \sum_i^N ReLU(\sigma(\boldsymbol{r}_i, \boldsymbol{x}) - 0.02) - ReLU(\sigma(\boldsymbol{r}_i, \boldsymbol{x}) - 0.01)$
Homogenous growth thickness	$f_2(\boldsymbol{x}) = \mathrm{softplus}\left(\max_{\boldsymbol{r}_i}(\sigma(\boldsymbol{r}_i, \boldsymbol{x})) - \min_{\boldsymbol{r}_i}(\sigma(\boldsymbol{r}_i, \boldsymbol{x}))\right)$ $f_3(\boldsymbol{x}) = \mathrm{softplus}\left(\max_{\boldsymbol{r}_i}(T(\boldsymbol{r}_i, \boldsymbol{x})) - \min_{\boldsymbol{r}_i}(T(\boldsymbol{r}_i, \boldsymbol{x}))\right)$
Switching flow	$f_4(\boldsymbol{x}) = \sum_i^N ReLU(U_r(\boldsymbol{r}_i, \boldsymbol{x}) - 0.02)\ for\ outer\ flow$ $f_4(\boldsymbol{x}) = \sum_i^N ReLU(0.02 - U_r(\boldsymbol{r}_i, \boldsymbol{x}))\ for\ inner\ flow$ $f_5(\boldsymbol{x}) = \sum_i^N (\lvert \boldsymbol{U}(\boldsymbol{r}_i, \boldsymbol{x}) \rvert - 0.02)^2$
Suppression of polycrystal on crucible	$f_6(\boldsymbol{T}) = \mathrm{softplus}\left(\max_{\boldsymbol{r}_j}(T(\boldsymbol{r}_j, \boldsymbol{x})) - \min_{\boldsymbol{r}_j}(T(\boldsymbol{r}_j, \boldsymbol{x})) - 10.0\right)$

σ: supersaturation, T: temperature (K), $\boldsymbol{U} = (U_r, U_\theta, U_z)$: solution flow (m/sec),
$\boldsymbol{r}_i$: positions near the crystal, $\boldsymbol{r}_j$: positions on crucible

表３　多目的最適化により提案された結晶成長条件（#4）と，それまでに行った結晶成長条件（#1–3）．

	Experimental conditions			
	#1	#2	#3	**#4**
ω_{seed} [rpm]	5	5	10	**6.2 & 8.5***
$\omega_{\mathrm{crucible}}$ [rpm]	-15	-15	-15	**-1 & -13.5***
h_{meniscus} [mm]	2	2	2	**2**
D_{crucible} [mm]	124	124	120	**120**
z_{crucible} [mm]	100	110	115	**101**

*Conditions for switching flow

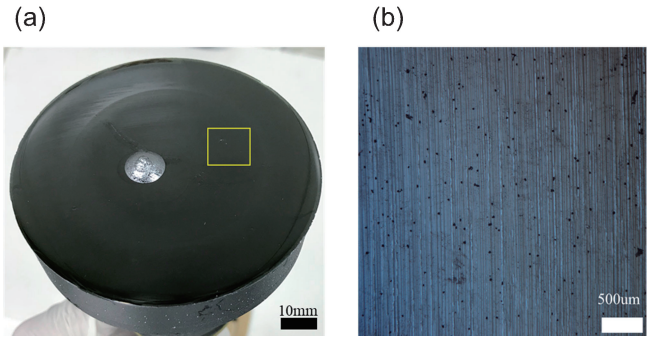

図８　機械学習と数理最適化により設計した条件で成長した結晶の（a）外観写真と（b）光学顕微鏡像．外観写真において表面に付着しているのは溶媒が凝固したものであり，酸処理により取り除くことができる．（オンラインカラー）

メニスカス高さとルツボ内径は固定して，結晶成長条件の探索を行っている．また，パレート最適解の中から分布を確認して最終的には実験条件 #4 を選択した．実験者が経験的に条件を決める場合に，#2 と #3 の間に最適な解があると考えるが，機械学習を利用した最適化では，ルツボ位置は結晶全面が溶解した #1 とほぼ同じ位置であるが，結晶とルツボの回転が全く異なる組み合わせとなっている．また，パレート最適解の中には，これらとは全く異なる成長条件のものも含まれていた．このことから，結晶成長条件のように多次元空間で多峰的な関数に対して最適化を行う場合には従来方法では限界があり，成長条件パラメータ空間から候補を提案する本手法の有用性がうかがえる．#4 の実験条件で成長した結晶の外観写真と成長表面モフォロジーを図８に示す．成長結晶の外周部の一部は解けているものの，成長表面は平坦であり，多結晶の付着などは完全に抑制されている．以上のように，本手法により成長条件の効率的な探索が可能であることが分かる．

我々は，機械学習による条件設計を用いながら，転位変換と厚膜化を両立する結晶成長を実現しつつあり，これまでに 3 インチ n 型および p 型の高品質 SiC 結晶成長において，約 5 mm の厚膜成長に成功している．本手法により結晶成長条件パラメータの設計を効率的に行うことで，高品質 SiC 溶液成長大型化のリードタイムは確実に短縮されており，更なる大口径化・厚膜化の研究開発にも威力を発揮することが期待される．

7.　お　わ　り　に

本論文では，機械学習を活用した高品質 SiC 溶液成長条件の設計方法とその効果を示した．本手法は SiC 溶液成長

だけではなく，シミュレーションを援用して成長条件を決定している，様々な結晶成長に直ちに応用することができる．また，結晶成長プロセスのみではなく，他のプロセスや構造最適化にも応用することが可能である．本手法では誤差の少ないデータを多く生成することが可能であるため，シミュレーション結果を学習データとして用いているが，大量のデータを取得できる場合には実験結果や計測結果を学習データに用いることもできる．実験において大量のデータ取得ができない場合には，ガウス過程回帰のような別の機械学習手法を用いることもできる．

機械学習は，結晶成長に限らずあらゆる製造プロセスを効率的に最適化する上で極めて有用な方法であると考えられる．これを実現するには，本手法でも見たように，プロセスの特徴や知見を，例えば「目的関数の設定」というような形で機械学習アルゴリズムに搭載することが重要である．即ち，当然のことではあるが，各々が必要とするプロセス最適化の機械学習アルゴリズムは，各々で構築する必要がある，という事である．人工知能，機械学習が自動的にやるわけではない．

文　　献

(1) T. Kimoto: Jpn. J. Appl. Phys., **54**(2015), 040103.
(2) H. Jagodzinski: Acta Crystallogr., **7**(1954), 300.
(3) T. Kimoto: Prog. Cryst. Growth Charact. Mater., **62**(2016), 329–351.
(4) 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. Raghothamachar and G. Choi: J. Cryst. Growth, **352**(2012), 39–42.
(5) T. Kimoto, A. Iijima, H. Tsuchida, T. Miyazawa, T. Tawara, A. Otsuki, T. Kato and Y. Yonezawa: in 2017 IEEE Int. Reliab. Phys. Symp. (IEEE, 2017), 2A–1.1–2A–1.7.
(6) T. Watanabe, S. Hino, T. Iwamatsu, S. Tomohisa and S. Yamakawa: IEEE Trans. Device Mater. Reliab., **17**(2017), 163–169.
(7) K. Kamei, K. Kusunoki, N. Yashiro, N. Okada, T. Tanaka and A. Yauchi: J. Cryst. Growth, **311**(2009), 855–858.
(8) M. Kado, H. Daikoku, H. Sakamoto, H. Suzuki, T. Bessho, N. Yashiro, K. Kusunoki, N. Okada, K. Moriguchi and K. Kamei: Mater. Sci. Forum, **740–742**(2013), 73–76.
(9) K. Kusunoki, N. Okada, K. Kamei, K. Moriguchi, H. Daikoku, M. Kado, H. Sakamoto, T. Bessho and T. Ujihara: J. Cryst. Growth, **395**(2014), 68–73.
(10) H. Daikoku, M. Kado, A. Seki, K. Sato, T. Bessho, K. Kusunoki, H. Kaidou, Y. Kishida, K. Moriguchi and K. Kamei: Cryst. Growth Des., **16**(2016), 1256–1260.
(11) T. Mitani, N. Komatsu, T. Takahashi, T. Kato, S. Harada, T. Ujihara, Y. Matsumoto, K. Kurashige and H. Okumura: J. Cryst. Growth, **423**(2015), 45–49.
(12) R. Yakimova and E. Janzén: Diam. Relat. Mater., **9**(2000), 432–438.
(13) T. Ujihara, S. Kozawa, K. Seki, Alexander, Y. Yamamoto and S. Harada: Mater. Sci. Forum, **717–720**(2012), 351–354.
(14) Y. Yamamoto, S. Harada, K. Seki, A. Horio, T. Mitsuhashi and T. Ujihara: Appl. Phys. Express, **5**(2012), 115501.
(15) Y. Yamamoto, S. Harada, K. Seki, A. Horio, T. Mitsuhashi and T. Ujihara: Mater. Sci. Forum, **740–742**(2013), 15–18.
(16) S. Harada, Y. Yamamoto, K. Seki, A. Horio, T. Mitsuhashi, M. Tagawa and T. Ujihara: APL Mater., **1**(2013), 022109.
(17) S. Harada, Y. Yamamoto, K. Seki and T. Ujihara: Mater. Sci. Forum, **740–742**(2013), 189–192.
(18) S. Harada, Y. Yamamoto, K. Seki, A. Horio, M. Tagawa and T. Ujihara: Acta Mater., **81**(2014), 284–290.
(19) S. Harada, Y. Yamamoto, S. Xiao, D. Koike, T. Mutoh, K. Murayama, K. Aoyagi, T. Sakai, M. Tagawa and T. Ujihara: Mater. Sci. Forum, **821–823**(2015), 3–8.
(20) S. Xiao, S. Harada, K. Murayama and T. Ujihara: Cryst. Growth Des., **16**(2016), 5136–5140.
(21) S. Xiao, S. Harada, K. Murayama, M. Tagawa and T. Ujihara: Cryst. Growth Des., **16**(2016), 6436–6439.
(22) X. Liu, C. Zhu, S. Harada, M. Tagawa and T. Ujihara: CrystEngComm, (2019), accepted.
(23) Y. Yamamoto, S. Harada, K. Seki, A. Horio, T. Mitsuhashi, D. Koike, M. Tagawa and T. Ujihara: Appl. Phys. Express, **7**(2014), 065501.
(24) K. Murayama, T. Hori, S. Harada, S. Xiao, M. Tagawa and T. Ujihara: J. Cryst. Growth, **468**(2017), 874–878.
(25) K. Murayama, S. Harada, F. Fujie, X. B. Liu, R. Murai, C. Zhu, K. Hanada, M. Tagawa and T. Ujihara: Mater. Sci. Forum, **924**(2018), 60–63.
(26) W.C. Dash: J. Appl. Phys., **30**(1959), 459–474.
(27) G. Fisher, M. R. Seacrist and R. W. Standley: Proc. IEEE, **100**(2012), 1454–1474.
(28) Y. Mukaiyama, M. Iizuka, A. Vorob'ev and V. Kalaev: J. Cryst. Growth, **475**(2017), 178–185.
(29) T. Umezaki, D. Koike, S. Harada and T. Ujihara: Jpn. J. Appl. Phys., **55**(2016), 125601.
(30) S. Harada, C. Zhu, Y. Tsunooka, K. Kutsukake and T. Ujihara: J. Flux Growth (in Japanese), **14**(2019), 13–17.
(31) C. Zhu, S. Harada, K. Seki, H. Zhang, H. Niinomi, M. Tagawa and T. Ujihara: Cryst. Growth Des., **13**(2013), 3691–3696.
(32) K. Kusunoki, K. Kamei, K. Seki, S. Harada and T. Ujihara: J. Cryst. Growth, **392**(2014),.
(33) N. Komatsu, T. Mitani, Y. Hayashi, T. Kato, S. Harada, T. Ujihara and H. Okumura: J. Cryst. Growth, **458**(2017),37–43.
(34) T. Endo, C. Zhu, S. Harada, H. Koizumi, M. Tagawa and T. Ujihara: in Book of Abstract of European Conference on Silicon Carbide and Related Materials (2018).
(35) ビショップC.M.：パターン認識と機械学習，丸善出版(2012).
(36) Twitter@ymatsuo: (2019), https://twitter.com/ymatsuo/status/1098115962061041664
(37) TensorFlow: https://www.tensorflow.org
(38) Y. Tsunooka, N. Kokubo, G. Hatasa, S. Harada, M. Tagawa and T. Ujihara: CrystEngComm, **20**(2018), 6546–6550.
(39) 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: in Book of Abstract of 19th Internatioanl Conference on Crystal Growth and Epitaxy (2019)

原田俊太

★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★
2008年4月–2011年3月　日本学術振興会特別研究員(DC1)
2011年3月　京都大学大学院工学研究科博士後期課程修了
2011年4月–2017年3月　名古屋大学大学院工学研究科助教
2017年4月–　現職
2018年10月–　科学技術振興機構さきがけ研究員
専門分野：欠陥制御工学
◎京都大学在籍時に乾晴行教授の指導のもと，結晶欠陥の研究の魅力を知って以来，シリサイド半導体，ワイドギャップ半導体，酸化物をはじめとする結晶材料の欠陥制御による特性向上，新奇機能発現の研究に従事している．
★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★