

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～2024年03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)、ミクロ実験(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。

1 年間研究期間を延長し、これまでに構築した先端的な研究基盤の拡張と有機的な統合による独自の研究手法により初めて得られる多結晶材料中の転位クラスター発生に関する知見を、ハイインパクトファクターの学術雑誌に発表した。山本チームや企業などと連携し、開発した各手法を多様な多結晶材料の解析や製造プロセス開発へ展開するとともに、粒界構造と熱物性の関係解明などの新規研究に着手した。また、機能性粒界を活用した擬単結晶シリコンインゴット（スマートシリコンインゴット）から作製するシリコンウェーハを用いて太陽電池を試作し、本手法の有用性のエビデンスを築いた。

(2) 顕著な成果

< 優れた基礎研究としての成果 >

1.

概要:

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.

概要:

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.

概要:

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。

4.

概要:

非対称傾角粒界の形成過程を高温その場 STEM 観察により評価し、準安定構造の発現や、再安定な再構成構造への変化を原子分解能で観測することに成功した。変化の過程および原子コラムの密度を精査した結果、安定な非対称粒界構造が形成される過程で転位が導入される可能性が示された。(1年追加支援時の成果)

< 科学技術イノベーションに大きく寄与する成果 >

1.

概要:

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便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.

概要:

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.

概要:

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。

4.

概要:

擬単結晶インゴットから作製したシリコンウェーハを用いてヘテロ接合型太陽電池を作製し、単結晶シリコン太陽電池と同等の性能が得られることを示した。また、結晶成長プロセスの設計手法の方法論を Mg_2Si 結晶の成長に適用し、クラックフリーの2インチインゴット製造プロセスを短期間で実現した。これら具体例のように、本研究での開発手法がものづくりに貢献できることを実証した。(1年追加支援時の成果)

< 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いことを明らかにした。

4. Kenta Yamakoshi, Yutaka Ohno, Kentaro Kutsukake, Takuto Kojima, Tatsuya Yokoi, Hideto Yoshida, Hiroyuki Tanaka, Xin Liu, Hiroaki Kudo, Noritaka Usami, “Multicrystalline informatics applied to multicrystalline silicon for unraveling the microscopic root cause of dislocation generation”, *Advanced Materials*, 2308599 (2023).

概要:

多結晶材料情報学の研究基盤を統合することで、多結晶シリコンの3次元モデルを作成し、そのモデルを利用した機械学習や応力解析により、転位クラスターの発生領域や不均一な応力分布を明らかにした。さらに、その領域の電子顕微鏡観察と理論計算を連携させることで、粒界がナノスケールの階段状のファセット構造を形成して曲がり、転位が発生するというメカニズムを解明した。(1年追加支援時の成果)

§ 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および太陽電池応用(ドイツフ라운ホーファー研究所と連携: 国際強化、京セラ株式会社と連携)
- ・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およびインゴット成長(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(ドイツフ라운ホーファー研究所と連携: 国際強化)
- ・粒界構造と粒界の熱物性との関係解明(宮崎大学・福山教授の研究グループと連携)

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)
- ・学習可能な記述子の構築

④ 「大野」グループ 1年追加支援時は「宇佐美」グループとして研究に参加

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

・非対称粒界の形成機構とその機能

(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、研究開発当初より京セラ株式会社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滋賀八日市工場の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・ブ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ことを高く評価いただき、中間評価後には、京セラで研究開発に用いている装置、インゴット製造時の制御パラメータや温度履歴、製造したインゴットの特性などのデータやサンプルを提供いただいた。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、G5 サイズの擬単結晶インゴットの量産技術の構築に貢献することができた。本技術のグローバル展開に向けて、サプライチェーンの垂直統合型太陽電池生産拠点構築の動きがあるインドの産業界・学界との連携を進めている。2023 年 3 月には、インド・チェンナイにおいて二国間ワークショップを企画し、Reliance Solar、Adani Solar などの幹部と面会した。さらに、京セラ社を交えて連携構築に向けた話し合いを継続して実施している。

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愛知県および瀬戸市の産学連携コーディネータから複数の地元企業の紹介を受け、ヤマキ電器株式会社と絶縁碍子製造プロセスの高歩留まり化、マルワイ矢野製陶所とセラミックスの品質検査についての共同研究に発展した。また、研究会会員の住友化学株式会社とは、放熱用セラミックスの組織制御についての FS を開始した。東洋アルミニウム株式会社には、アルミニウムペーストを利用した半導体薄膜の成長技術についての共同研究をベースとして、名古屋大学から機関申請した「共創の場形成支援プログラム」に参画いただき、共創分野(本格型)としての採択に繋がった。上記研究会の後継研究会として、2023 年度からは、「デジタルツイン多結晶創成研究会」を設置し、多結晶材料情報学の成果展開に努めた。

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形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、宮崎大学・福山敦彦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リングの大規模計算を実施し、グローバルウェーハズ・ジャパン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

マルチスケール構造評価による粒界機能解析技術を住友金属鉱山材料研究所との共同研究に発展させた。