

# 随伴変数法とベイズ最適化による Top-Seeded Solution Growth 法を用いた SiC 結晶成長における断熱材分布最適化

竹原悠人, 岡野泰則

大阪大学大学院 基礎工学研究科

## 1. 諸言

炭化ケイ素(SiC)結晶は幅広いバンドギャップ、高い熱伝導率、低いオン抵抗値などの優れた特性を持つパワー半導体である[1]。SiC 結晶を作製する方法として気化させた SiC から結晶を作製する気相成長法、Si-C 溶液から結晶を作製する溶液成長法がある。Top-Seeded Solution Growth (TSSG)法は溶液成長法の一つで、気相成長法に比べて高品質な結晶を作製することが可能であるため、注目を集めている。TSSG 法では、炭素でできたるつぼ内で、固体のケイ素を加熱し融解させる。融解したケイ素に、るつぼから結晶作製に必要な炭素が供給されることで、Si-C 溶液が形成される。その後、炭素が溶液内の流れによって溶液表面上の低温部に取り付けられた SiC 種結晶に運ばれることで SiC 結晶が成長する (図 1 参照)。以上の過程から結晶が作製されるため、溶液内の流れなどの移動現象の理解と制御が、高品質な結晶作製に必要不可欠である。ところが、実験中は 1500 K 以上の高温環境となること、断熱のために装置を遮蔽すること、さらにケイ素が不透明な液体であることから、移動現象を直接観察することは困難である。以上のような理由から、これまで数値計算を用いた研究が行われてきた。我々は以前に数値解析により、結晶端部において生じる界面張力勾配に由来するマランゴニ対流が、結晶付近で支配的になることを明らかにした。さらにそのマランゴニ対流によって、結晶表面上の過飽和度が不均一になることがわかった[2]。これらを考慮し、マランゴニ対流を抑制しうる制御手法の提案にも取り組んだ。随伴変数法を用いた溶液とるつぼの境界における温度場の最適化では、マランゴニ対流を抑制し、結晶表面における過飽和度の改善に成功した[3]。これにより、溶液部の温度分布を制御することでマランゴニ対流の抑制が可能であることがわかった。

しかしながら、溶液部の温度分布のみを制御する方法は未だ確立されていない。そこで本研究では、これまで断熱のみを目的としてきたるつぼ周辺の単一の断熱材に着目し、複数の断熱材を組み合わせて利用することで、溶液内温度分布の制御を行った。

## 2. 解析手法

図 1(a)に示すように、これまで使用されていた熱伝導率  $k=0.3 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$  の単一の断熱材を 9 つの断熱材により構成することを考え、それらの熱伝導率の最適化を行った。断熱と排熱を行うために溶液部に近い領域 ( $i=5-9$ ) では、熱伝導率を 0.3, 0.6, 3, 6  $\text{W/(m}\cdot\text{K)}$  のうちから選択し、外部の領域 ( $i=1-4$ ) では、断熱を目的として 0.3, 0.6  $\text{W/(m}\cdot\text{K)}$  から選択した。

数値計算はこれまでの先行研究と同様に Integrate Process Model (IPM)[4]を使用した。IPM では、全体の計算を誘導加熱のための電磁場解析、炉内全体の温度場解析、溶液内移動現象解析の 3 段階に分けて行う。熱伝導率の変更による電磁場の影響はないものとして考え、熱伝導率を変更し、炉内全体の温度場解析と溶液内移動現象解析を行った。数値計算によって得られる結晶表面の過

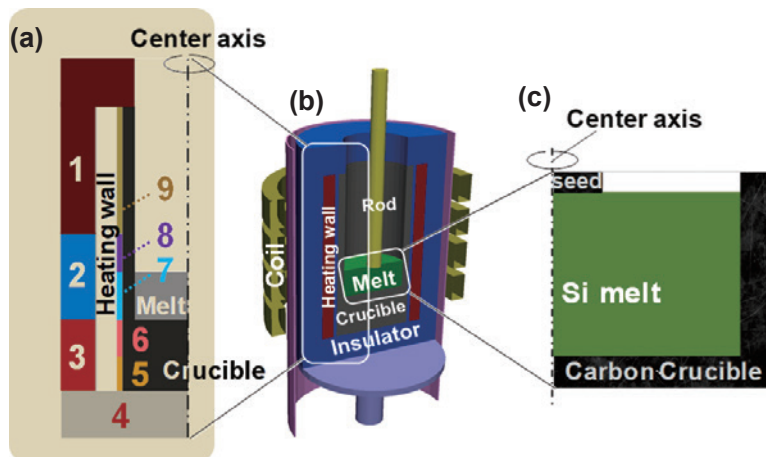
飽和度から結晶成長速度  $v_g$  を以下の式を用いて算出した

$$v_g = -(DM/\rho)\mathbf{n} \cdot \nabla C|_{\text{seed}}$$

ただし、 $D$  は拡散係数、 $M$  は SiC 結晶のモル質量、 $\rho$  は SiC の密度、 $C$  は炭素濃度である。以上により求めた結晶成長速度分布から周方向に対する平均値  $M$  と標準偏差  $\sigma$  から以下のように目的関数  $f$  を定義した。

$$\begin{aligned} f &= \frac{M - M_0}{M_0} + \frac{\sigma_0 - \sigma}{\sigma_0} \\ &= \frac{M}{M_0} - \frac{\sigma}{\sigma_0} \\ &= M^* - \sigma^* \end{aligned}$$

ただし、 $M_0, \sigma_0$  はそれぞれ、従来の断熱材配置における結晶成長速度の平均値と標準偏差である。目的関数は結晶成長速度の平均値と標準偏差の改善率の和として定義され、これを最大化することで均一で、かつ高い結晶成長速度を達成する断熱材の熱伝導率配置を求めた。最適化にはベイズ最適化を使用した。



第 1 図: 異なる熱伝導率を持つ 9 つの断熱材配置図(a)、TSSG 法に用いられる実験装置の模式図(b)、溶液部分の拡大図(c)

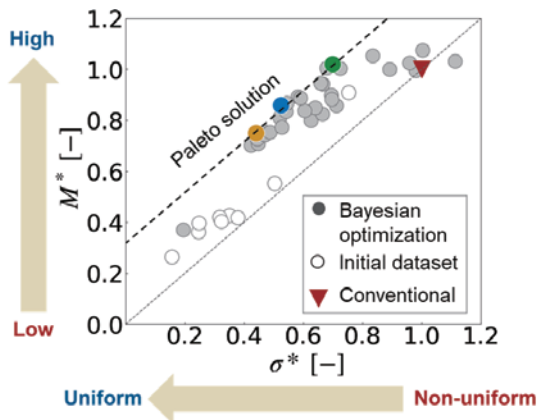
### 3. 結果と考察

図 2 に最適化の結果を示す。図上で左上の領域が均一で高い結晶成長速度であることを意味する。現在得られている最適状態 (青点) では、縦軸に示された結晶成長速度の大きさ ( $M^*$ ) を保ちながら、横軸に示された均一度 ( $\sigma^*$ ) の改善に成功していることがわかる。さらに、図 2 に色付きの丸点で示されたパレート解上の 3 点と逆三角で示された初期状態における結晶成長速度を図 3 に示す。パレート解上の各点において、結晶成長速度の均一度が改善されていることがわかる。

さらに各点における断熱材配置と温度分布を図 4 に、そして溶液表面上における温度分布、温度勾配を図 5 に示す。図 4 から、均一な結晶成長速度が得られた熱伝導率の組み合わせ(a, b, c)においては、断熱性能の高い (低い熱伝導率を持つ) 断熱材が溶液付近に配置され、断熱性能の低い (高い熱伝導率を持つ) 断熱材が溶液から離れたるつぼ上部に配置されていることがわかる。

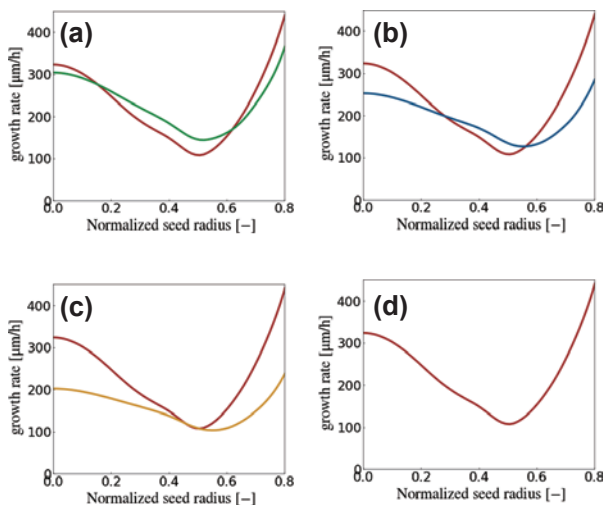
これにより、加熱壁 (Heating wall) から溶液部に伝わる熱量が減少し、るつぼ上部から排熱されるという熱の移動が生じていることがわかる。その結果、図 5 に示すように溶液表面上における温度差と温度勾配が減少し、温度勾配由来のマランゴニ対流が抑制され、結晶成長速度が改善されたと考えられる。

これらの結果から、側面からの溶液部に対する熱の輸送量を制御することで、マランゴニ対流を抑制するための温度分布が得られることがわかった。



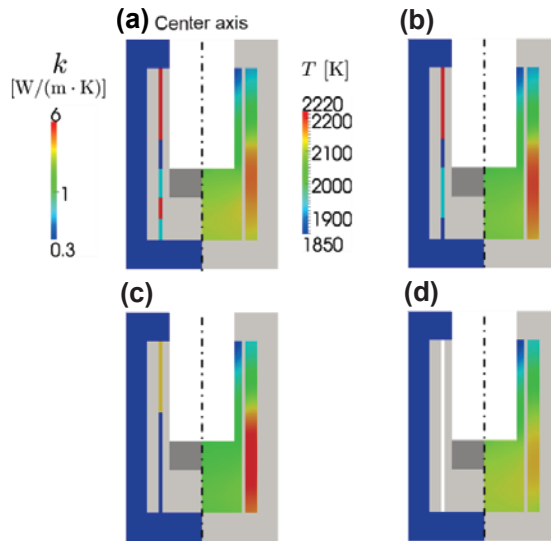
第 2 図: ベイズ最適化により提案されたパラメータにおける結晶成長速度の平均値と標準偏差

(a) において左にある点ほど低い標準偏差、つまり均一な成長速度であることを意味し、上にある点ほど高い平均値、つまり大きな成長速度であることを意味する。灰色、白色の丸点はそれぞれ、ベイズ最適化により提案されたパラメータと初期データセットにおける計算結果を示し、赤色の逆三角形は従来の単一の断熱材配置における計算結果を示す。ベイズ最適化のための初期データセットはランダムにパラメータを変更して生成した。



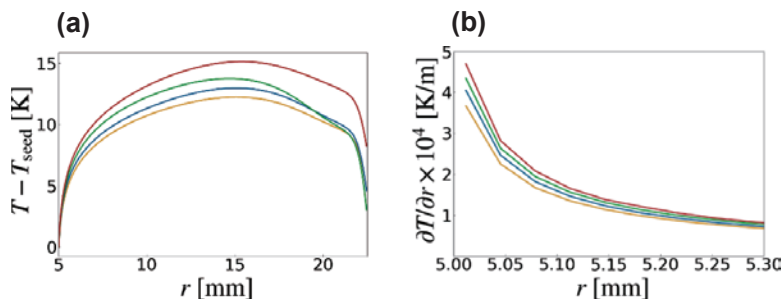
第 3 図: 図 2 において色付きの丸点で示された点における結晶成長速度。

(a) は緑点、(b)は青点、(c)は黄点、(d)は従来の断熱材を使用した際の結晶成長速度を示す。(a), (b), (c)における結晶成長速度の均一度は従来のものと比較してそれぞれ、+38%, +48%, +58%改善された。



第4図: 第2図の緑(a), 青(b), 黄(c)点と従来(d)の断熱材配置。

左側に断熱材の熱伝導率、右側に温度分布を示した。熱伝導率に対しては違いを強調するために、対数スケールのカラーバーを使用した。



第5図: 自由界面における温度分布(a)と自由界面上の結晶付近における温度勾配(b) 線の色は図2の点の色に相当する。

#### 4. 結言

炭化ケイ素結晶成長のための TSSG 法において、ペイズ最適化により選択された熱伝導率の異なる複数の断熱材を用いることで、結晶成長速度の大きさを保ちながら、均一度の改善に成功した。改善に成功した断熱材の組み合わせにおける温度分布から、溶液側面からの熱の輸送量の制御が高品質な結晶作製に必要であることがわかった。

## 引用文献

- [1] Q. Xun *et al.*, *Renew. Sust. Energ. Rev.* **70** (2017), 1336-1342.
- [2] T. Yamamoto *et al.*, *J. Cryst. Growth*, **470** (2017) 75-88.
- [3] T. Horiuchi *et al.*, *J. Cryst. Growth*, **517** (2019) 59-63.
- [4] P. M. Gresho, J. J. Derby, *J. Cryst. Growth*, **85** (1987) 40-48.