

量子分子動力学法による薄膜 Si 太陽電池の CVD シミュレーション

○桑原 卓哉、伊藤 寿、樋口 祐次、尾澤 伸樹、久保 百司

東北大学大学院工学研究科(〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-11-703)

【緒言】

薄膜 Si 太陽電池の成膜プロセスとして、大面積・高速成膜が可能であることから、プラズマ CVD プロセスが広く用いられる。プラズマ中では、原料ガスである SiH_4 分子の分解により、反応性が高い SiH_x ($x=0\sim 3$) ラジカルが生成する。そのラジカルが表面で化学反応を起こすことにより膜成長が起こる。中でも、 SiH_3 ラジカルが最も膜成長への寄与が大きいことが知られている。ここで、プラズマ CVD プロセスを用いて成膜された薄膜 Si では、原子レベルで平坦な膜が形成可能である。しかし、CVD プロセスにおける表面反応及び layer-by-layer 成長メカニズムに関しては解明されていない。よって、高効率太陽電池の開発に向けて、原子レベルで表面反応及び表面平坦化メカニズムを解明することが必須である。そこで本研究では、原子レベルで薄膜 Si の CVD プロセスにおける layer-by-layer 成長メカニズムを解明することを目的として、Tight-Binding 量子分子動力学法を用いた CVD シミュレーションを行った。

【方法】

CVD シミュレーションには、Tight-Binding 量子分子動力学法に基づく結晶成長シミュレータを用いた[1]。分子動力学計算における、時間刻みは 0.01 fs、基板温度は 500 K とした。また、0.1 eV のエネルギーで SiH_3 ラジカルを基板表面に 2.0 ps の間隔で連続的に照射することにより、CVD シミュレーションを行った。

【結果】

CVD シミュレーションにおいて、まず水素被覆サイトに到達した SiH_3 ラジカルが水素引き抜き反応を起こし、ダングリングボンド(DB)が表面に生成した。その後、次の SiH_3 ラジカルがその DB に吸着した。これより、 SiH_3 ラジカルによる成長では、水素引き抜き反応によるダングリングボンドの生成と吸着が繰り返されることにより膜成長が進行することが分かった[2]。さらに、表面に吸着した Si-H_3 サイトにおいて、水素引き抜き反応が起こり、DB が生成した。これにより、DB を有する Si-H_2 サイトが生成した(図 1a)。次に、隣接する 1 原子層下の Si-H サイトから、1 原子層上に位置する Si-H_2 サイトへ、表面 H の拡散が起こった(図 1b)。この H の拡散によって、DB は 1 原子層上から下へと、H とは逆に移動した。よって、 Si-H_3 サイトは還元され、代わりに 1 原子層下に DB を有する Si サイトが生成した。その後、H の拡散により 1 原子層下に生成した DB に次の SiH_3 ラジカルが到達すると、吸着反応が起きた(図 1c, d)。ここで、H の表面拡散によって、吸着サイトが 1 原子層上から下に生成したことで、次に表面に到達した SiH_3 ラジカルが 1 原子層下へ吸着可能となった。つまり、縦方向への吸着が抑制され、横方向への成長が促進された。以上より、表面 H の上層から下層への拡散が、3 次元成長を抑制し、layer-by-layer 成長を促進することにより、原子レベルで平坦な表面が形成されることが明らかになった。

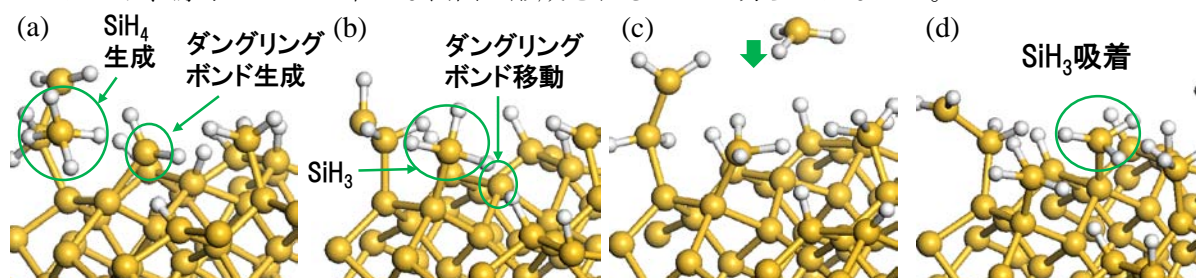


図 1. CVD シミュレーションにおける水素の表面拡散及び表面吸着に関するスナップショット

【参考文献】

- [1] T. Kuwahara *et al.*, *J. Phys. Chem. C* **116**, 12525-12531 (2012).
 [2] T. Kuwahara *et al.*, *J. Phys. Chem. C* **117**, 15602-15614 (2013).