

薄膜 Si 太陽電池のプラズマ CVD プロセスにおける ラジカル種の影響に関する量子化学計算

Quantum Chemical Calculations on Effect of Radical Species on PECVD Process for Thin-Film Silicon Solar Cells

東北大院工, °桑原 卓哉, 伊藤 寿, 石川 岳志, 樋口 祐次, 尾澤 伸樹,
久保 百司

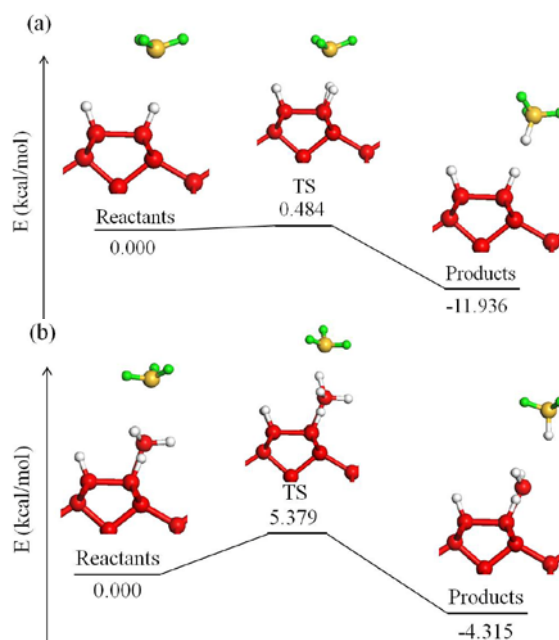
Tohoku Univ., °Takuya Kuwahara, Hiroshi Ito, Takeshi Ishikawa, Yuji Higuchi, Nobuki Ozawa,
Momoji Kubo

E-mail: takuya.kuwahara@rift.mech.tohoku.ac.jp

薄膜 Si 太陽電池の成膜プロセスとして、大面積化かつ高速で緻密な膜が成膜可能であることからプラズマ CVD 法が広く用いられる。プラズマ CVD 法では、原料である SiH_4 がグロー放電により分解し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。しかし、表面反応の詳細及び欠陥生成因子に関しては解明されていない。よって、プロセス技術確立に向けて、原子レベルでの CVD 成長機構の解明が必須である。そこで本研究では、原子レベルで薄膜 Si のプラズマ CVD 成長機構を解明することを目的として、Tight-Binding 量子分子動力学法に基づく結晶成長シミュレータ[1]及び密度汎関数理論(DFT)を用いて CVD シミュレーションを行った。

まず、Tight-Binding 量子分子動力学法を用いて SiH_3 と SiH_2 ラジカルによる CVD シミュレーションを行った。具体的には、 $\text{Si}(001):\text{H}$ 表面に 2ps の間隔でそれぞれ 80 ラジカルを連続的に照射した。その結果、 SiH_2 ラジカルは、Si ポリマーが生成し表面の凹凸を増大させたのに対し、 SiH_3 ラジカル照射では、Si-Si ボンドを多数形成しエネルギー的に安定な膜が生成した。そこで、 SiH_3 ラジカルが安定な膜形成に寄与する理由を解明するために膜成長において重要となる水素引き抜き反応の活性化エネルギーの DFT 計算を行った。図 1(a)に、表面の Si-H サイトからの SiH_3 ラジカルによる水素引き抜き反応の活性化エネルギーと遷移状態を示す。

図 1(a)より、活性化エネルギーが非常に小さいことから、実験環境下ではほぼノーバリアで反応が起こると考えられる。一方、図 1(b)に示す SiH_3 からの水素の引き抜き反応には、Si-H サイトに比べ大きなエネルギーが必要である。故に、Si-H サイトと比較して SiH_3 サイトからの水素の引き抜き反応速度は遅く、2 次元成長が起こると考えられる。したがって、 SiH_3 ラジカルが layer-by-layer の成長に適しており、表面の平坦化に大きな役割を果たすことが分かった。



*Spin-unrestricted GGA-PW91/DNP/ECP

Fig. 1 Energy profiles of H-abstraction reactions by a SiH_3 radical (a) on a Si-H site and (b) on an adsorbed Si-H₃ site.

参考文献

[1] T. Kuwahara, H. Ito, Y. Higuchi, N. Ozawa, M. Kubo, *J. Phys. Chem. C*, **116**, 12525-12531 (2012).