

量子分子動力学法を用いた $a\text{-Si}_{1-x}\text{C}_x\text{:H}$ の プラズマ CVD 成長機構に関する研究

Study of Growth Mechanism of $a\text{-Si}_{1-x}\text{C}_x\text{:H}$ during Plasma-Enhanced Chemical Vapor Deposition using Quantum Chemical Molecular Dynamics Method

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

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

$a\text{-Si}_{1-x}\text{C}_x\text{:H}$ は, 約 1.4~2.2 eV のバンドギャップを持つワイドバンドギャップ半導体であり, 薄膜 Si 太陽電池への応用が期待されている. 一方で, $a\text{-Si}_{1-x}\text{C}_x\text{:H}$ は C 原子濃度及び結合状態によって光学的特性が変わることから, 原子レベルでの膜構造の制御・高品質化が求められている. しかし, sp^2 及び sp^3 結合をもつ C 原子を含むため, sp^3 結合のみで構成される $a\text{-Si:H}$ の成長機構[1]に比べ, 結合形態及び成長機構は複雑であることから, その成長機構は解明されていない. そこで, $a\text{-Si}_{1-x}\text{C}_x\text{:H}$ の CVD 成長機構を解明することを目的として, 我々が開発した self-consistent charge density-functional tight-binding (SCC-DFTB) 分子動力学プログラムを用いた CVD シミュレーションを行った. SCC-DFTB 法[2]は, 従来の TB 法に比べ長距離クーロン項を含んでおり, 電荷に対して自己無撞着に解くことから, 電荷移動の大きいイオン性結晶の高精度な計算が可能である.

CVD 成長シミュレーションを行うために, SiH_3 及び CH_3 ラジカルを一定割合で $\text{Si}(001)\text{:H}$ 表面に 2.0 ps の間隔で連続的に照射した. Fig. 1 に $\text{CH}_3/(\text{CH}_3+\text{SiH}_3) = 0.5$ 及び 0.8 における 40 ラジカル照射後のスナップショットを示す. $\text{CH}_3/(\text{CH}_3+\text{SiH}_3) = 0.5$ のとき, Si 原子が C 原子より多く吸着し, Si-rich な第一層目が形成された(Fig. 1a). 一方, $\text{CH}_3/(\text{CH}_3+\text{SiH}_3) = 0.8$ のとき, C 原子が Si 原子より多く吸着し, C 原子を多く含む第一層目が形成された(Fig. 1b). また, CH_3 -rich な成長では, 第一層に吸着した C 原子が基板内へ侵入し, 入れ替わるように基板一層目の Si 原子は成長層に押上げられた. これは, 基板が炭化されたことを示しており, 実験結果と一致している[3]. 次に, Fig. 2 に CH_3 濃度と成長層の結合割合の相関を示す. Fig. 2 より, CH_3 濃度の増加とともに, Si-Si 結合が減少し, Si-C 結合が増加していることがわかる. 一方で, C-C 結合は, CH_3 -rich な成長においても顕著な増加は見られなかった. これは, 表面吸着後の C 原子が基板内に侵入することによって優先的に Si-C 結合を作り, sp^3 結合ネットワークを形成するためであると考えられる. 結果及び考察の詳細は当日発表する.

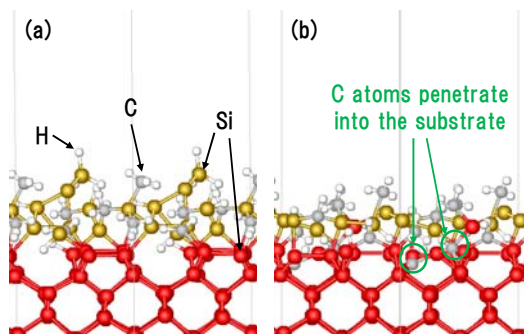


Fig. 1 Snapshot of $a\text{-Si}_{1-x}\text{C}_x\text{:H}$ growth simulations with $\text{CH}_3/(\text{CH}_3+\text{SiH}_3)$ ratios of (a) 0.5 and (b) 0.8.

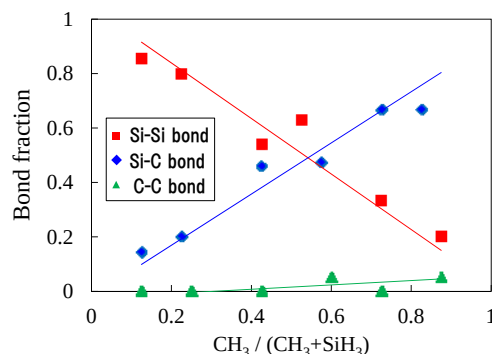


Fig. 2 Bond fraction in $a\text{-Si}_{1-x}\text{C}_x\text{:H}$ thin films.

【参考文献】 [1] T. Kuwahara *et al.*, *J. Phys. Chem. C* **117**, (2013) 15602. [2] M. Elstner *et al.*, *Phys. Rev. B* **58**, (1998) 7260. [3] C. C. Cheng *et al.*, *Thin Solid Films* **225**, (1993) 196.