

熱フィラメント法で生成した水素ラジカルによる大気圧下での SiCl_4 の分解 Decomposition of SiCl_4 at atmospheric pressure using hydrogen radical generated by thermal filament method

岡本 裕二^{1,2}、堤 大耀³、石垣 隆正³、Fatima Zohra Dahmani⁴、角谷 正友²

(1. 筑波大、2. 物材機構、3. 法政大、4. USTO-MB.)

Y. Okamoto^{1,2}, D. Tsutsumi³, T. Ishigaki³, F. Z. Dahmani⁴, M. Sumiya²

(1. Tsukuba Univ., 2. NIMS, 3. Hosei Univ., 4. USTO-MB.)

s-okamoto@ims.tsukuba.ac.jp

1. 緒言

近年、シリコン太陽電池の導入量の増加から、その原料である高純度シリコン(Si)の需要が急増している。高純度シリコンは、珪石(SiO_2)をトリクロロシラン(SiHCl_3)にし、高純度化後に水素ガス(H_2)で還元することで製造される(シーメンス法)。しかし、実際はより安定な SiHCl_3 の熱分解が優先的に進む。熱分解反応では、副生成物のテトラクロロシラン(SiCl_4)が生成されるため、Si 収率が約 25%と低いことがシーメンス法の課題である。我々はこれまで、水素ガスの代わりに、より活性な水素ラジカルを還元を用いることで、Si 収率の向上を試みてきた^[1]。現在、シーメンス法は大気圧下で行われていることから、水素ラジカルを応用するには、大気圧以上で生成し、大気圧の反応炉へと輸送するシステムが必要である。本研究では、熱フィラメント法を用いて大気圧以上で水素ラジカルを発生させ、大気圧の反応炉へ輸送し、その濃度の測定を試みた。また、クロロシラン系原料ガスと混合し、還元反応を得ることでシリコンの生成も試みた。

2. 実験方法

直径 ~ 30 cm の箱型水素ラジカル生成炉内に、タングステンフィラメント($\phi = 0.5$ mm)を 4 本直列につなぎ、約 1400°C まで抵抗加熱した。水素ガスを導入し、高温のタングステンの触媒作用により水素ラジカルを生成した。生成炉には直径 6 cm、長さ 60 cm のパイプ型の反応炉を接続した。水素ガス流量および排気コンダクタンスを調節し、生成炉の圧力を大気圧以上まで変化させ、反応炉へと水素ラジカルを輸送した。水素ラジカルの濃度は、反応炉に WO_3 ドープガラスを設置し、水素ラジカルへの暴露後、その変色度合いを UV-Vis により求めることで算出した^[2]。また、反応炉内にクロロシラン系原料ガスを導入し、水素ラジカルと混合した。四重極型質量分析計(Q-mass)を用いて原料ガス分圧の増減を調べることで、シリコン生成反応の有無を判断した。

3. 結果

Figure 1 に水素ガス流量を 4.2 SLM に固定し、排気コンダクタンスを変化させることで、生成炉の圧力を大気圧まで変化させた場合の水素ラジカル濃度を示す。10 kPa で水素ラジカル濃度は $\sim 3.3 \times 10^{12}/\text{cm}^3$ であり、その後圧力の増加に伴い減少傾向が見られた。60 kPa 以降は水素ラジカル濃度に大きな変化はなく、大気圧(101 kPa)において $\sim 2.0 \times 10^{12}/\text{cm}^3$ の水素ラジカルが検出された。

【謝辞】本研究の一部は JST-SATREPS の支援によって行われた。

[1] M. Sumiya et al., J. of Phys. Conf. Series **441**, 012003 (2013).

[2] T. Morimoto et al., Jpn. J. Appl. Phys. **44**, 732-735 (2005)

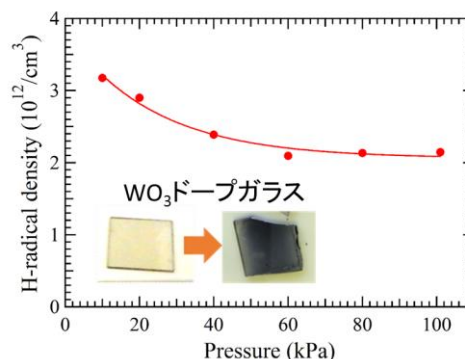


Fig. 1 水素ラジカル濃度の圧力依存性