

RF スパッタリング法による多結晶 BaSi₂ 薄膜の形成Formation of polycrystalline BaSi₂ thin-films by RF sputtering¹筑波大学院 数理物質科学研究科, ²東ソー株式会社°横山晟也¹, 召田雅実², 倉持豪人², 都甲薫¹, 末益崇¹Univ. Tsukuba¹, Tosoh Corporation²°S. Yokoyama¹, M. Mesuda², H. Kuramochi², K. Toko¹, T. Suemasu¹E-mail: suemasu@bk.tsukuba.ac.jp

【背景】 我々は新規太陽電池材料として、BaSi₂ に注目している。BaSi₂ は太陽電池の理想的な禁制帯幅に近い 1.3 eV の値を有し、また、光吸収係数が CIGS 系並みに大きく、1.5 eV 以上の光子に対して $3 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$ よりも大きいいため薄膜化も期待できる[1,2]。BaSi₂ 薄膜の報告例は MBE 法を用いたものが多数となっているが、太陽電池としての実用化には、より工業生産に適した手法での作製が必要になる。我々は、量産化を視野に入れた製膜方法としてスパッタリング法に注目している。スパッタリング法は、成膜速度の大きさ及び大面積化が可能という点で優れている。これまでの研究で、RF スパッタリング法により BaSi₂ 膜の形成および分光感度の取得に成功しているが[3,4]、実験を進める中で、ターゲットとスパッタ膜中の Ba/Si 比が堆積条件により大きく異なることが分かってきた。本研究では、スパッタ膜中の Ba/Si 比がどの条件で制御できるのかを明らかにし、その後、BaSi₂ ターゲットを用いて BaSi₂ 薄膜の形成を行った。

【実験】

BaSi₂ ターゲットを用いて RF スパッタ装置で、RF Power:100 W とし、スパッタ時の Ar 圧力を 0.1~3 Pa の間で変化させ、室温、または基板温度 600 °C の条件下でスパッタ法により、厚さ約 500nm 堆積した。室温により堆積を行った試料に関しては、EDS 及び RBS 分析を用いて膜内の組成比の評価を行った。また、基板温度 600 °C で堆積を行った試料に関しては、ラマン分光法を用いて結晶性の評価を行った。

【結果・考察】

図 1 に圧力を変えて堆積した膜の Si/Ba 比を示す。スパッタ時の Ar 圧力が 0.1 Pa で作製した試料は BaSi₂ ターゲットの組成比に比べ、Si 過多になっていることが分かる。一方、スパッタ時の Ar 圧力を高くするにつれ、膜の組成比がターゲットの組成比に近づいた。このターゲットとの組成比のずれは二つの要因から起きていると考えられる。第一に、Ba のスパッタ率が Si に比べ非常に小さいためと考えられる。第二にプロセスガスの Ar に対する Ba と Si の質量差に起因する散乱の影響が考えられる。スパッタされた粒子の平均自由行程は圧力と反比例する。また、Ba 原子と Si 原子の質量数は Ar 原子に比べ、それぞれ約 3.5 倍、0.7 倍である。このため Ar 圧力の増加に伴い、Ar に比べ軽い Si が衝突による散乱の影響を大きく受け、膜内の組成比が変化したと考えられる。図 2 に基板温度 600 °C でスパッタ時の Ar 圧力を 0.1Pa または 1Pa で作製した試料のラマンスペクトルを示す。0.1 Pa で作製した試料では、結晶 Si 由来のピークが観測され、BaSi₂ は形成されなかった。一方、圧力を 1 Pa で作製した試料では、BaSi₂ ユニットセル内の Si 四面体構造に由来するピークが観測されたため、BaSi₂ が形成されたといえる。

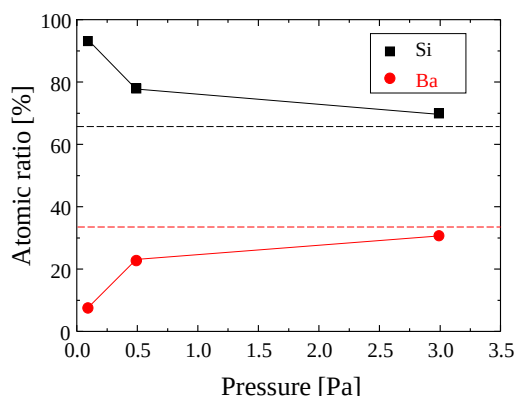
1) K. Morita *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **45** (2006) L390.2) K. Toh *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **50** (2011) 0068001.3) T. Yoneyama *et al.*, TSF **534** (2013) 116.4) N. A. A. Latiff *et al.*, Phy. Status Solidi (c) **10**, 1759 (2013).

図 1 堆積時の基板温度を室温とし、Ar 圧力を変えて作製した試料の Si/Ba 比。点線はターゲットの組成を示す。

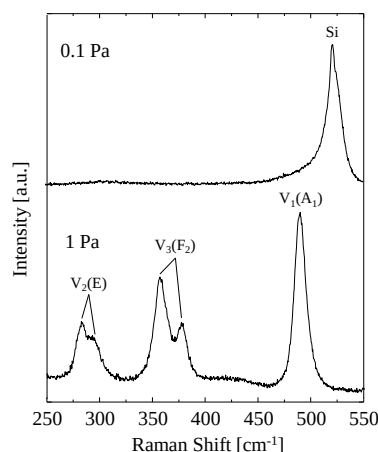


図 2 堆積時の圧力を 0.1Pa または 1Pa とし、基板温度 600°C で作製した試料のラマンスペクトル。1Pa の試料で BaSi₂ が形成された。