

Si(111)基板上 BaSi₂ エピタキシャル膜の双晶粒界に対する第一原理計算 First-principle calculations about twin boundaries in BaSi₂ epitaxial film on Si(111)

¹筑波大院 数理 ²産総研電池技術 ³JST-CREST

°馬場 正和¹, 香山 正憲², 都甲 薫¹, 末益 崇^{1,3}

¹Univ. Tsukuba, ²AIST, ³JST-CREST,

°M. Baba¹, M. Kohyama², K. Toko¹, and T. Suemasu^{1,3}

E-mail:bk200711114@s.bk.tsukuba.ac.jp

【背景・目的】

BaSi₂はSi(111)基板上に a 軸配向成長し、互いに 120° の面内回転関係を持つ3回対称のドメインを形成する[1]。また、バンドギャップ1.3 eV, 光吸収係数が $3 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$ (@ 1.5 eV の光子)の特徴から薄膜太陽電池材料への応用が期待できる[2]。BaSi₂のドメイン粒径は200 nm程度と小さく、膜中に、(011)面に平行な結晶面により構成される多くのドメイン粒界(DB)が含まれることが明らかとされている[3]。しかしながら、少数キャリア拡散長は9.4 μm と粒径に比べて大きく、粒界において少数キャリアがトラップされていないことが考えられる[3]。本研究では、第一原理計算を用いた理論的視点からDBの構造、少数キャリアに対する特性を検討した。

【実験】

界面エネルギー計算にはPAW法とGGAを含む、Vienna Ab initio Simulation Package (VASP)を用いた[4-6]。BaSi₂の双晶粒界には、界面を挟んで向き合うSi四面体同士の位置関係を考えると、微小な界面方向への変化を除き、図1のように大きく4つのパターンが考えられる。ここで、A1, A2, B1, B2はそれぞれSi四面体を示している。BaSi₂中のSi^(I)原子座標と、Si^(II), Si^(III)で構成される二等辺三角形に対する位置によって、図2のように4つに分類できる。本研究では図1の4つのモデルについて、界面エネルギーを算出し、エネルギーの大きさから最安定構造を検討した。 k 点メッシュ密度は $6 \times 4 \times 2$ を用い、基底ベクトルに関するカットオフエネルギーは360 eVとした[7]。結晶構造描画にはVESTAを使用した[8]。

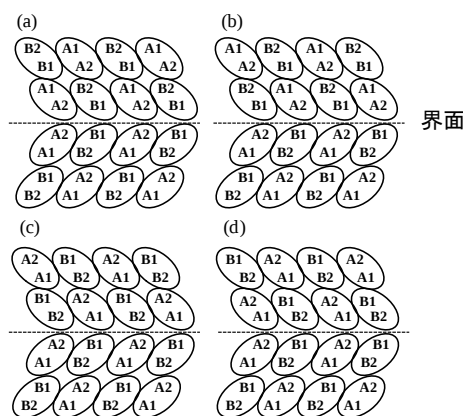


図1 界面近傍でのSi四面体配列

【結果】

図1の界面構造について界面エネルギーを算出したところ、図1(c)の界面構造において最小の界面エネルギー95 mJ/m²が得られた。図1の4つのSi四面体配列に着目すると、図1(c)の構造は粒界面を挟んでSi四面体の配列がバルク結晶内と同様の配列となっている。そのため、Si四面体の位置関係が界面の安定性を支配していると考えられる。図3に示す、平面TEMにより観察された双晶粒界と、 a 軸から見た際の構造緩和後の界面モデルのBa原子配列は一貫性がとれており、BaSi₂の双晶粒界は図3(b)の界面構造であると考えられる。この図3(b)の界面モデルにおいて、粒界近傍とバルク結晶内部の各原子における局所状態密度に顕著な変化は見られなかった。そのため、BaSi₂の双晶粒界は少数キャリアトラップとして働かないことが考えられる。

[1] Y. Inomata, T. Nakamura, T. Suemasu, and F. Hasegawa,

Japanese Journal of Applied Physics **43** No. 4A (2004) L478.

[2] K. Toh, T. Saito, and T. Suemasu, Japanese Journal of Applied Physics **50** (2011) 068001.

[3] M. Baba, K. Toh, K. Toko, N. Saito, N. Yoshizawa, K. Jiptner, T. Sekiguchi, K. O. Hara, N. Usami, and T. Suemasu, Journal of Crystal Growth **348** (2012) 75.

[4] G. Kresse, and D. Joubert, Physical Review B **59** (1999) 1758.

[5] P. E. Blöchl, Physical Review B **50** (1994) 17953.

[6] J. P. Perdew, and Y. Wang, Physical Review B **45** (1992) 13244.

[7] H. J. Monkhorst and J. D. Pack, Physical Review B **13** (1976) 5188.

[8] K. Momma, and F. Izumi, Journal of Applied Crystallography **44** (2011) 1272.

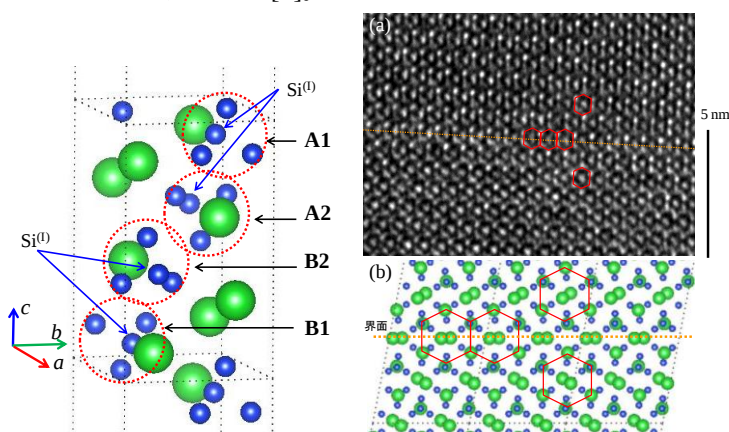


図2 BaSi₂中でのSi四面体の分類

図3 (a) a 軸方向からみたBaSi₂双晶粒界のTEM像, (b) 図1(c)の界面モデル

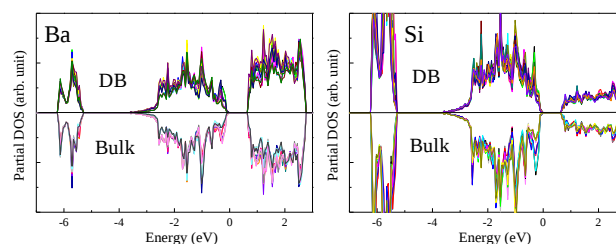


図4 BaSi₂界面モデルにおける粒界近傍、バルク結晶内部でのBa, Siの局所状態密度