

## ベイズ最適化を援用した シリコン量子ドット積層構造の欠陥低減

### Reduction of defects in silicon quantum dot multilayers using Bayesian optimization

○(M1)熊谷風雅<sup>1</sup>, 宮川晋輔<sup>1</sup>, 後藤和泰<sup>1</sup>, 沓掛健太郎<sup>2</sup>, 加藤慎也<sup>3</sup>,

宇佐美徳隆<sup>1</sup>, 黒川康良<sup>1</sup>(1. 名大院工, 2. 理研 AIP, 3. 名工大院工)

○F. Kumagai<sup>1</sup>, S. Miyagawa<sup>1</sup>, K. Gotoh<sup>1</sup>, K. Kutsukake<sup>2</sup>, S. Kato<sup>3</sup>,

N. Usami<sup>1</sup>, Y. Kurokawa<sup>1</sup> (1. Nagoya Univ., 2. AIP, RIKEN, 3. Nagoya Tech.)

E-mail: kumagai.fuga@b.mbox.nagoya-u.ac.jp

【導入】 Society5.0 の実現に欠かせないセンサ用小型自立電源の候補の一つとして、薄膜シリコン系タンデム太陽電池が研究されている。シリコン量子ドット(Si-QD)は量子サイズ効果によりバンドギャップ制御が可能であり、これを用いることで環境光に対応した吸収スペクトルを有する発電層の作製が可能となる。しかし、Si-QD 表面に存在するダングリングボンド(未結合手)はキャリアの再結合中心となるため、これを低減する必要がある。そこで本研究ではシリコン量子ドット積層構造(Si-QDML)を作製し、Si-QDML の高品質化のため水素プラズマ処理(HPT)による水素導入で欠陥密度の低減を試みた。HPT は設定できる制御パラメータが多く網羅的な実験は困難なため、制御パラメータの最適化手法にベイズ最適化(BO)を援用し、確率的な予測に基づき最適化を行った。

【実験方法】石英基板上にプラズマ援用化学気相成長法で  $\text{SiO}_x\text{:H}/\text{SiO}_y\text{:H}$  薄膜( $x < y$ )を 40 サイクル積層した。SiO<sub>y</sub>:H 層(バリア層)の厚さは 2 nm、SiO<sub>x</sub>:H(Si-rich 層)の厚さは 5 nm とした。製膜後フォーミングガス雰囲気中で 30 分間、900 °Cにて熱処理した。この際に Si-rich 層内部に Si-QD が形成された。熱処理後、水素導入のため HPT を行った。HPT 後の試料に対し、分光エリプソメトリ、Raman 散乱分光測定、電子スピン共鳴 (ESR) 測定により膜厚、水素結合状態、欠陥密度の評価を行った。BO による最適化のための初期データとして、ランダムな条件での HPT により 10 サンプル作製した。最適化の目的関数には、効率的な水素導入が欠陥低減に有効という仮説のもと、ESR より簡便な Raman 測定から得られる Si-H 結合と Si-Si 結合の Raman スペクトル強度比

( $\text{Int.}[H]/\text{Int.}[c-Si]$ )を採用した。得られたデータを追加し、次の実験条件を算出し、実験と計算を逐次的に行うことで効率的な水素導入が可能な実験条件を探索した。

【結果と考察】透過型電子顕微鏡による断面測定から、今回の試料は Si-rich 層に直径 5 nm 程度の Si-QD が複数形成されていることがわかった。Raman 散乱測定から HPT 前の試料には水素がほとんど存在しておらず、ESR の結果より、欠陥密度は  $9.4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  であった。図 1(a)に Raman スペクトル強度比に対し BO を行った結果を示す。BO 前と比較すると、少ない実験回数で HPT の 6 つの制御パラメータを最適化し Raman スペクトル強度比をより増加することに成功した。図 1(b)に Raman スペクトル強度比に対する欠陥密度の測定結果を示す。最も水素導入がされたと考えられるスペクトル強度比の高い試料の欠陥密度は  $6.3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  であり、大幅に欠陥密度を低減することができた。Raman 測定から  $2000 \text{ cm}^{-1}$  程度に見られるモノヒドリド由来の強度が、欠陥密度の減少に伴い増加していることから、主に Si-OD 表面の欠陥が水素により終端されている可能性を示唆している。

【謝辞】本研究の一部は、科研費 (No. 20K05075) の助成を受けたものである。

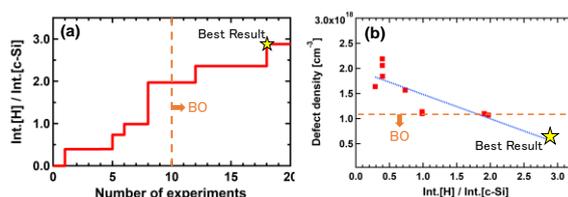


Fig. 1. (a) Transition of  $\text{Int.}[H]/\text{Int.}[c-Si]$  as a function of number of experiments. (b) Relationship between  $\text{Int.}[H]/\text{Int.}[c-Si]$  and defect density in Si-QDMLs.