

審査の結果の要旨

氏 名 陳 豊文 (Chen LiWen)

本論文は「メゾプラズマ CVD によるパターン基板上 Si 高速エピタキシャル成長に関する研究」と題して、メゾプラズマ CVD のナノクラスター支援エピタキシャル成長機構を、分子動力学を用いてクラスター生成とその基板衝突ダイナミクスの観点から明らかにすると共に、当該成膜法によるパターンマスク基板上への単結晶薄膜成長の実現と、その横方向オーバー成長のメカニズムを議論したものである。

単結晶 Si は太陽電池の理想的な光活性層であり、必要厚みの単結晶 Si 膜のみを低コスト異種基板に転写させた薄膜単結晶太陽電池に期待が寄せられている。この次世代太陽電池の実現には、高速エピタキシャル成長技術開発のみならず、何らかのリフトオフプロセス開発が必要であり、本研究では SiO₂ パターンマスクを施した Si 基板上への横方向エピタキシャルオーバー成長(以下 LEO と略す)が検討されている。ごく最近、メゾプラズマ CVD が高速エピタキシャル成長技術として期待され、その成膜機構はプラズマガスの急速凝縮時に形成する粗に結合した 2~3nm 程度の Si ナノクラスターが成膜前駆体として組織形成過程に重要な役割を果たすことが実験的に示唆されてきた。しかし、その詳細な成膜メカニズムや当該手法の LEO 技術への展開可能性は、未だ明らかに確にされていない。以上を背景として、本論文では、クラスターの生成・衝突挙動の観点からナノクラスター支援エピタキシャル成長機構を明確化すると共に、当該成膜法による LEO 成長を実証し、これを可能とする機構と技術的要件について議論している。本論文は以下の 5 章から成る。

第 1 章は序論であり、太陽電池グレード Si の各種製造法の特徴と課題、並びに単結晶薄膜 Si 太陽電池開発に向けた技術要件をまとめ、メゾプラズマ CVD の位置づけを明確にすると共に、クラスター支援高速エピタキシャル成長の基本成膜機構を詳説することで、本研究の目的を明確にしている。

第 2 章では、高温 Si 蒸気の凝縮に伴うナノクラスター形成とそれに続く基板表面での衝突に伴う相互作用を、分子動力学法を用いて詳細に検討している。具体的には、冷却過程の融点前後の温度領域にて凝縮を開始し、Si 原子が緩く結合した液体様構造を呈する球状のナノクラスターが生成することを確認すると共に、当該ナノクラスターが、サイズ依存のない粗な原子構造を特徴とすることを導出している。また、これらナノクラスターの Si 基板衝突時に、クラスター自体が扁平すると共に変形クラスターの基板表面から 2~3nm の領域内にある構成原子が基板と同一の結晶格子位置に瞬時に自発

的に再配列することを確認し、2~3nm 程度のサイズと粗に結合した原子構造に起因する瞬時的原子再配列挙動が高速エピタキシャル成長を可能とする基本機構であると説明している。さらに、水素を含有した混合気相の冷却時には、前述 Si クラスタと類似の液体様構造で H 原子を内包した水素終端 Si:H クラスタが形成することを示し、特に重要な点として、これら Si:H クラスタの衝突扁平・原子再配列挙動が、H を含まないクラスタよりも低温度で生じることを示している。また、その原因として Si 原子よりも高いポテンシャルエネルギー状態にある H 原子が扁平と同時にクラスタ表面へ移動することで、Si 原子の移動が有利となる粗なクラスタ構造となり、原子再配列が促進されるとして水素添加効果を論じている。

第 3 章では、メゾプラズマ CVD により、SiO₂ パターンマスクを施した Si ウエハ基板上へ堆積を行い、堆積速度約 100nm/s で膜厚 5μm の単結晶 Si 膜を基板全面に堆積できることを実証した。また断面 TEM 観察等よりマスクの無い Si ウエハ領域からの LEO (横方向エピタキシャルオーバー成長)であること確認すると共に、LEO 速度が上方への堆積速度に対して少なくとも 1 桁以上速いこと、更に SiO₂ マスク厚みの減少によって更に 1 桁程度高速化する傾向を実験的に示している。

第 4 章では、前章で実験的に確認された SiO₂ 膜厚に依存する超高速 LEO 成長の基本的な機構について、プラズマに晒される基板表面の負電荷密度及び負に帯電した Si クラスタの相互作用に起因して生じる Si 原子の SiO₂ 上表面拡散の観点より論を展開している。即ち、負に帯電した Si ナノクラスタが負に帯電した SiO₂ 膜へ衝突する場合には、Si クラスタの Si 上でのエピタキシャル成長モードとは異なり、Si 原子への分解機構が支配的に成ると推定し、SiO₂ 膜上での原子状 Si の表面拡散と滞在寿命を考慮した横方向エピ成長モデルを構築している。その結果として、観察された高速 LEO 成長が基本的に本機構で説明され得ること、表面負電荷密度が増加する環境下では Si の特性表面拡散距離が 1 桁程度長くなりうることを示している。

第 5 章は総括であり、ナノクラスタを成膜前駆体とする高速エピタキシャル成長機構の特徴と、高速横方向エピタキシャルオーバー成長の基本メカニズムをまとめ、将来の単結晶 Si 薄膜太陽電池プロセスへの応用に際する技術要件をまとめている。

以上を要すると、本研究は、ナノクラスタ支援高速エピタキシャル成長機構をクラスタダイナミクスの観点から詳細に解明すると共に、SiO₂ マスク基板上の高速横方向エピタキシャルオーバー成長を実現し、その基本メカニズムプラズマ材料科学の観点から論じているものであり、材料工学分野に対する貢献は極めて大きい。よって本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認められる。