

太陽光を利用した独創的クリーンエネルギー生成技術の創出  
平成 21 年度採択研究代表者

H25 年度 実績報告
----------------

安武 潔

大阪大学 工学研究科  
教授

大気圧プラズマ科学に基づく新たな Si 材料創成プロセスの開発

## §1. 研究実施体制

(1) 「安武」グループ (研究機関別)

① 研究代表者: 安武 潔 (大阪大学 工学研究科、教授)

② 研究項目

- ・金属級 Si を原料とする高効率  $\text{SiH}_4$  製造プロセスの開発
- ・高純度 Si 材料創成プロセスの開発
- ・高圧カプラズマの基礎物性解明
- ・表面反応過程の解析

## §2. 研究実施の概要

本研究は、高能率・低環境負荷の新しい  $\text{SiH}_4$  製造法として、高圧力プラズマ中で生成した高密度  $\text{H}$  ラジカルを用い、廉価な  $\text{MG-Si}$  原料から直接  $\text{SiH}_4$  を生成する技術を開発することを目的とする。特に、 $\text{Si}$  の高純度化と製造プロセスの低コスト化を実現するために重要と考えられる  $\text{SiH}_4$  生成速度の向上、形成した  $\text{Si}$  の純度評価、高圧力プラズマ物性、および  $\text{H}$  による  $\text{Si}$  エッチング機構の解明を中心として、以下の研究項目を実施した。

### 1) 高効率 $\text{SiH}_4$ 製造プロセスの開発

本年度は、 $\text{SiH}_4$  生成を大幅に高効率化、高速化するため、これまでの基礎研究結果に基づいた新しいマイクロ波プラズマソース(2種類)の開発および立ち上げを行った。1つ目は、装置コストを抑えて  $\text{SiH}_4$  生成の高効率化が可能なマルチプラズマ発生装置である。これは、1つのマイクロ波源からの同じ投入電力で  $\text{SiH}_4$  生成速度を複数倍に高速化することが可能なマルチアンテナ型プラズマソースである。現在、アンテナ3本によるプラズマの同時生成が可能となっており、さらなるマルチ化を目指している。2つ目は、 $\text{SiH}_4$  生成の高速化、および  $\text{SiH}_4$  収率と電力効率の向上が可能な狭ギャップ型プラズマランチャーであり、設計した狭ギャップ内での安定なプラズマ生成を確認した。

### 2) 高純度 $\text{Si}$ 材料創成プロセスの開発

本方法により純度98%の  $\text{MG-Si}$  原料から生成した  $\text{SiH}_4$  ガスを用い、熱CVDにより形成した  $\text{Si}$  中の不純物濃度は、 $\text{SOG-Si}$  に比べて桁違いに低いことを実証している。現在、さらに高いデバイスグレードの純度を目指している。本年度は、ライフタイム測定や太陽電池セル試作による評価を実施するため、十分なサイズを有する高純度  $\text{Si}$  結晶の安定形成が可能な高能率  $\text{SiH}_4$  生成システムと高純度プラズマ化学輸送システムを完成させた。また、 $\text{B}$ ,  $\text{P}$  不純物に関しては、これまで、熱分解フィルタによる  $\text{B}$  除去技術を確立しているが、本年度はゼオライトフィルタによる  $\text{P}$  除去技術を確立し、そのシステムを実装するための設計と運用条件の確立を行った。

### 3) 高圧力プラズマの基礎物性解明

本年度は、アクチノメトリに加えて、 $\text{H}$  ラジカル密度を定量するためカロリメトリを適用し、両者の結果を比較した。その結果、 $\text{H}$  密度は投入電力密度およびプラズマ中でのガス滞在時間の増加にともなって増加すること、 $\text{H}$  のエッチング寄与率は数%であること、2つの方法で求められた  $\text{H}$  密度のプラズマ条件依存性は一致することが明らかになった。

### 4) 表面反応過程の解析

本年度は、これまでの実験および理論解析結果に基づいて、 $\text{Si}$  表面直下の高密度  $\text{H}$  層を考慮に入れたエッチングモデルを構築し、 $\text{H}$  による  $\text{Si}$  エッチング過程のシミュレーションを行った。その結果、新しく構築したモデルにより  $\text{H}$  のエッチング寄与率の実験結果を説明できる見通しが得られた。

今後、本方法によりデバイスグレードの高純度  $\text{Si}$  結晶を形成し、ライフタイム測定および太陽電池試作評価により実証する。また、 $\text{SiH}_4$  製造の低コスト化に関しては、新型プラズマ発生源を用いて高速  $\text{Si}$  エッチングを実現することにより、材料コストを除いた  $\text{SiH}_4$  単価として1000円/kgの可能性を検討する。

### §3. 成果発表等

#### (3-1) 原著論文発表

##### 論文詳細情報(国際)

1. Takahiro Yamada, Hiromasa Ohmi, Hiroaki Kakiuchi and Kiyoshi Yasutake, “Effect of H<sub>2</sub> Flow Rate on High-Rate Etching of Si by Narrow-Gap Microwave Hydrogen Plasma”, *Plasma Chemistry and Plasma Processing* 33 (2013) 797-806 (DOI: 10.1007/s11090-013-9461-9)
2. Hiroaki Kakiuchi, Hiromasa Ohmi and Kiyoshi Yasutake, “Atmospheric-Pressure Low-Temperature Plasma Processes for Thin Film Deposition”, *J. Vac. Sci. Technol. A* 32 (2014) 030801-1-16 (DOI: 10.1116/1.4828369).

#### (3-2) 知財出願

- ① 平成 25 年度特許出願件数 (国内 1 件)
- ② CREST 研究期間累積件数(国内 1 件)