

平成 19 年 2 月 28 日

氏名 中村 誠吾



## 21世紀COEプログラム

拠点：大学院工学系研究科  
応用化学専攻、化学システム工学専攻、  
化学生命工学専攻、マテリアル工学専攻

“化学を基盤とするヒューマンマテリアル創成”

平成18年度リサーチ・アシスタント報告書

ふりがな 氏名	なかむら せいご	生年月日
	中村 誠吾	
所属機関名	東京大学大学院工学系研究科化学システム工学専攻	
所在地	東京都文京区本郷 7-3-1 東京大学工学部 5号館 604号	
申請時点での 学年	博士課程 3年	
研究題目	シリコン CVD プロセスにおける製膜前駆体に関する研究	
指導教員の所属・氏名	東京大学大学院工学系研究科化学システム工学専攻 越 光男 教授	

## I 研究の成果 (1000字程度)

(図表も含めて分かりやすく記入のこと)

## &lt;研究背景及び研究目的&gt;

半導体製造プロセス、太陽電池製造プロセスにおけるシリコン薄膜生成において、広く Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition (PE-CVD) が用いられている。しかしシリコン化合物の反応に関しては不明な点が多く、その製膜機構に関して十分な理解がなされていない。Catalytic CVD (Cat-CVD) というシリコン薄膜生成機構に関して、レーザーイオン化質量分析、量子化学計算及び化学反応シミュレーションなどを用いて検討を行った結果、これまで考えられてきた  $\text{SiH}_3$  の他に、 $\text{Si}_2\text{H}_2$ 、 $\text{H}_2\text{SiSiH}_2$  が重要な製膜前駆体となっている可能性が示唆された。これら  $\text{Si}_2\text{H}_2$ 、 $\text{H}_2\text{SiSiH}_2$  に関する実験的研究は少ないが、それは分光学的検出方法が確立されていないことが原因である。既往の分光学的検出のほとんどは Ar matrix などを用いた極低温域で行われており、シリコン CVD の温度域での報告はほとんどなされていない。本研究では  $\text{Si}_2\text{H}_2$  の気相、室温での分光学的検出方法の確立を目的とした。低温 Ar matrix 中の実験で報告された 410 nm 付近の UV 吸収をターゲットとして<sup>1</sup>、高感度の測定技術である Cavity Ring Down 吸収分光法を用いて、 $\text{Si}_2\text{H}_2$  吸収スペクトルの探索を行った。

## &lt;実験結果及び考察&gt;

$\text{Si}_2\text{H}_2$  の製法として、 $\text{Si}_2\text{H}_6$  の ArF (193 nm) 光分解、及び  $\text{SiBr}_4/\text{SiH}_4$  の光分解を用いた。前者の生成物は質量スペクトルが観測されており、 $\text{Si}_2\text{H}_2$  が主生成物となることがわかっている<sup>2</sup>。後者は  $\text{SiBr}_4$  の光分解で Si が生成することが報告されており、 $\text{Si}+\text{SiH}_4$  の生成物として  $\text{Si}_2\text{H}_2$  が生成することが量子化学計算によって予想されている<sup>3</sup>。どちらの系でも 394-435 nm の範囲でブロードな連続吸収が観測されその形状が一致した。 $\text{Si}_2\text{H}_6$  の ArF (193 nm) 光分解においては、 $\text{H}_2$ 、NO の添加を行いその反応性は既往の研究で報告されている  $\text{Si}_2\text{H}_2$  の反応性と一致した。また、 $\text{SiH}_4$  をフィラメント上で触媒分解した系 (Cat-CVD) でも同様の吸収が観測された。さらに量子化学計算の結果からも吸収物質は  $\text{Si}_2\text{H}_2$  である可能性が高い。以上、速度論的な考察も踏まえて、この吸収が  $\text{Si}_2\text{H}_2$  によるものと結論した。 $\text{Si}_2\text{H}_2$  はシリコン化合物の反応過程において重要である可能性が高く、分光学的手法の確立の持つ意味は大きい。詳細については、投稿論文に示す予定である<sup>4</sup>。

[1] G. Maier, H. P. Reisenauer, J. Glatthaar, Chem. Eur. J., 8 (2002) 4383.

[2] N. Tada, K. Tonokura, K. Matsumoto, M. Koshi, A. Miyoshi, H. Matsui, J. Phys. Chem. A, 103 (1999) 322.

[3] M. Koi, K. Tonokura, A. Tezaki, M. Koshi, J. Phys. Chem. A 107 (2003) 4838.

[4] 投稿準備中

氏 名 中村 誠吾

II (1) 学術雑誌等に発表した論文A (掲載を決定されたものを含む.)

共著の場合、申請者の役割を記載すること。

(著者、題名、掲載誌名、年月、巻号、頁を記入)

“Reaction mechanism of silicon Cat-CVD”

S. Nakamura, K. Matsumoto, A. Susa, M. Koshi,

J. Non-Cryst. Solids, June , 2006, Vol. 352, 919.

氏 名 中村 誠吾

II (2) 学会において申請者が口頭発表もしくはポスター発表した論文  
(共同研究者 (全員の氏名)、題名、発表した学会名、場所、年月を記載)

「シリコン CVD プロセス中間体の紫外-可視吸収スペクトル」  
中村 誠吾, 須佐 秋生, 越 光男  
第 22 回化学反応討論会, 岡崎, 6 月, 2006.

「シリコン CVD プロセス中間体の紫外-可視吸収スペクトル」  
中村 誠吾, 須佐 秋生, 越 光男  
第 3 回 Cat-CVD 研究会, 長岡, 6 月, 2006.

"UV-visible absorption spectra of silicon CVD intermediates",  
S. Nakamura, A. Susa, M. Koshi,  
4th International Conference on Hot-Wire CVD (Cat-CVD) Process,  
Takayama, Japan, October, 2006.

"UV-visible absorption spectra of silicon CVD intermediates"  
S. Nakamura, M. Koshi  
4th COE International Symposium,  
Tokyo, Japan, Nov. 10-11, 2006.