

論文内容の要旨

博士論文題目 Polycrystalline Silicon Thin Films with Improved Crystallographic and Electronic Properties for Photovoltaic Applications
(太陽電池素子応用を目指した高品質薄膜多結晶シリコンに関する研究)

氏名 大鐘 章義

(論文内容の要旨)

薄膜多結晶シリコンは低コストかつ安定な高効率を実現する次世代太陽電池材料として期待されている。しかし、膜中には結晶粒界に代表される結晶欠陥が多数存在し、それらはキャリアの再結合箇所となるため太陽電池特性を悪化させる要因となっている。そこで本論文では、安価な異種基板であるアルミナ基板上に作製する薄膜多結晶シリコン内の結晶欠陥を低減させ、そのことによる太陽電池特性の改善を目的とした。結晶欠陥低減法として、①原料ガス間欠供給法による結晶粒の大粒径化と②高圧水蒸気熱処理法による欠陥不活性処理を、また太陽電池作製における低温 p-n 接合形成法として③レーザードーピング法を採用し、本論文にて技術開発と物性・機能解析を進めた。

薄膜多結晶シリコン (厚さ $10\ \mu\text{m}$ 程度) の作製には、高速堆積手法であり、比較的良好的な結晶品質が期待できる常圧熱化学的気相堆積法 (堆積温度: 1100°C 程度) を用いた。結晶欠陥低減法を用いない場合、得られる膜の結晶粒径は高効率を実現するのに必要な値 (膜厚と同程度以上) よりも小さな $2\text{-}3\ \mu\text{m}$ 程度であり、太陽電池特性を決定する物理因子 $L_g/2S_{GB}$ (L_g : 結晶粒径、 S_{GB} : 結晶粒界における再結合速度) も $1.4 \times 10^{-9}\ \text{s}$ 以下の小さな値であることが分かった。また、アルミナ基板上堆積の場合、シリコンとアルミナ基板の熱膨張係数の違いに起因した大きな圧縮応力と多数の結晶欠陥が内包されることを確認した。これに対し、原料ガス間欠供給法を導入することにより、核生成密度を制御し、堆積プロセス中において直接的に結晶粒径を $20\ \mu\text{m}$ 程度の範囲まで大粒径化することに成功した。大粒径化と高圧水蒸気熱処理の欠陥終端効果 (Si-O ボンディング形成) によって薄膜多結晶シリコンの結晶特性・電気的特性が改善され、 $L_g/2S_{GB} \geq 1.25 \times 10^{-8}\ \text{s}$ と、一桁程度の向上を確認した。

これらを基に、交互嵌合型構造 (Interdigitated type) の薄膜多結晶シリコン太陽電池をアルミナ基板上に試作した。開放端電圧は大粒径化によって $50\ \text{mV}$ 、高圧水蒸気熱処理によって $20\ \text{mV}$ 程度の改善がなされ、上述の結晶欠陥低減法が有益なものであることが示された。レーザードーピング法を用いて、薄膜多結晶シリコン太陽電池を実現し、当初の目標を達成した。併せて、高圧水蒸気熱処理法とレーザードーピング法のバルク単・多結晶シリコン太陽電池作製プロセスに有用であることを実証した。

(論文審査結果の要旨)

薄膜多結晶シリコンは低コストかつ安定な高効率を実現する次世代太陽電池材料として期待されている。しかし、膜中には結晶粒界に代表される結晶欠陥が多数存在し、それらはキャリアの再結合箇所となるため太陽電池特性を悪化させる要因となっている。そこで本論文では、安価な異種基板であるアルミナ基板上に作製する薄膜多結晶シリコン内の結晶欠陥を低減させ、そのことによる太陽電池特性の改善を目的とした。結晶欠陥低減法として、①原料ガス間欠供給法による結晶粒の大粒径化と②高圧水蒸気熱処理法による欠陥不活性処理を、また太陽電池作製における低温 p-n 接合形成法として③レーザードーピング法を採用し、本論文中にて技術開発と物性・機能解析を進めた。

薄膜多結晶シリコン（厚さ 10 μm 程度）の作製には、高速堆積手法であり、比較的良好な結晶品質が期待できる常圧熱化学的気相堆積法（堆積温度：1100 $^{\circ}\text{C}$ 程度）を用いた。結晶欠陥低減法を用いない場合、得られる膜の結晶粒径は高効率を実現するのに必要な値（膜厚と同程度以上）よりも小さな 2-3 μm 程度であり、太陽電池特性を決定する物理因子 $L_g/2S_{GB}$ (L_g : 結晶粒径、 S_{GB} : 結晶粒界における再結合速度) も $1.4 \times 10^9 \text{ s}$ 以下の小さな値であることが分かった。また、アルミナ基板上堆積の場合、シリコンとアルミナ基板の熱膨張係数の違いに起因した大きな圧縮応力と多数の結晶欠陥が内包されることを確認した。これに対し、原料ガス間欠供給法を導入することにより、核生成密度を制御し、堆積プロセス中において直接的に結晶粒径を 20 μm 程度の範囲まで大粒径化することに成功した。大粒径化と高圧水蒸気熱処理の欠陥終端効果 (Si-O ボンディング形成) によって薄膜多結晶シリコンの結晶特性・電気的特性が改善され、 $L_g/2S_{GB} \geq 1.25 \times 10^8 \text{ s}$ と、一桁程度の向上を確認した。

これらを基に、交互嵌合型構造 (Interdigitated type) の薄膜多結晶シリコン太陽電池をアルミナ基板上に試作した。開放端電圧は大粒径化によって 50 mV、高圧水蒸気熱処理によって 20 mV 程度の改善がなされ、上述の結晶欠陥低減法が有益なものであることが示された。レーザードーピング法を用いて、薄膜多結晶シリコン太陽電池を実現し、当初の目標を達成した。併せて、高圧水蒸気熱処理法とレーザードーピング法のバルク単・多結晶シリコン太陽電池作製プロセスに有用であることを実証した。

以上のように、本論文では、異種基板上の薄膜多結晶系シリコンの結晶欠陥の低減法の有用性が明らかにされ、また、それを用いて薄膜太陽電池を実現したことは、学術的に新しい知見を見出している。したがって、審査委員一同は、本論文が博士 (工学) の学位論文として価値あるものと認定した。