

論文内容の要旨

博士論文題目

(英文) Development of Polycrystalline Silicon Thin Film Solar Cells

Fabricated by Atmospheric Pressure Chemical Vapor Deposition

(常圧熱化学的気相堆積法により作製した多結晶 Si 薄膜太陽電池の開発)

氏名 山崎 努

多結晶シリコン(Si)薄膜太陽電池はガラスやセラミックなどの安価な異種基板に直接堆積できることから、使用原料の飛躍的低減、安定した変換効率の実現、安価な基板の利用による低コスト化が期待できる。高温プロセスによる多結晶 Si 薄膜の堆積では、早い堆積速度で薄膜を得ることができるが、今まで異種基板上に直接堆積した多結晶 Si 薄膜太陽電池では高い変換効率は達成されていない。そこで、本論文では、常圧熱化学的気相堆積法(APCVD)により作製した高効率多結晶 Si 薄膜太陽電池の開発を目的とした。

まず、二次元デバイスシミュレータを用いた多結晶 Si 薄膜太陽電池の動作解析を行った。結晶粒界に沿って形成される垂直 p-n 接合を考慮に入れた柱状結晶構造をモデル化した。高効率化を実現するためには、結晶粒界における界面再結合速度 $S_{GB} < 10^3 \text{ cm/s}$ かつ結晶粒径 $L_g > 10 \mu\text{m}$ 、が必要であるとともに、垂直 p-n 接合深さが特性に大きな影響を及ぼすことが分かった。垂直 p-n 接合は、光生成キャリア収集には有効であるが、p-n 接合面積の増加による飽和電流密度の増加のためにダイオード特性が低下することがわかった。

APCVD により基板温度 1050°C で堆積した多結晶 Si 薄膜を用いて太陽電池を作製し、その p-n 接合プロファイルと太陽電池特性との関係を調べた。p-n 接合は、高温での磷(P)拡散(800~925°C)による形成に加えて、プラズマ CVD による n 形微結晶 Si の低温堆積(200°C)による形成を試みた。p-n 接合プロファイルは、高分解能の電子線起電流法により観察した。高温 P 拡散により p-n 接合形成した場合に、結晶粒界に沿って P が優先的に拡散し基板垂直方向に p-n 接合が形成される。結晶粒界に沿ったキャリア収集のために短絡光電流密度(J_{sc})の改善には有効であるが、結晶粒界の欠陥を介した再結合電流のために開放端電圧(V_{oc})が著しく低下する。一方、低温堆積により p-n 接合を形成した場合、結晶粒界を介した再結合電流を抑制することができ、大きな V_{oc} が得られた。

原料ガスの間欠供給により結晶核の生成密度を制御し、大粒径多結晶を得た。結晶核密度を $10^5 \sim 10^7 \text{ cm}^{-2}$ の範囲で制御ができ、膜厚 12 μm に対して結晶粒径を 3~30 μm の範囲で制御することに成功した。水素ラジカル照射による結晶粒界の不活性化処理を施したこと、結晶粒界の影響が非常に小さくできることが示された。結晶粒径の増大にしたがって V_{oc} が大きく改善された。結果として、 $J_{sc}=14.7 \text{ mA/cm}^2$ 、 $V_{oc}=0.41 \text{ V}$ の太陽電池特性を得ることができ、この手法により堆積した大粒径多結晶 Si 薄膜は太陽電池の高効率化に適していることを示した。

(論文審査結果の要旨)

多結晶シリコン(Si)薄膜太陽電池はガラスやセラミックなどの安価な異種基板に直接堆積できることから、使用原料の飛躍的低減、安定した変換効率の実現、低コスト化が期待できる。高温プロセスによる多結晶 Si 薄膜の堆積では、早い堆積速度で薄膜を得ることができる。本論文では、常圧熱化学的気相堆積法(APCVD)により作製した高効率多結晶 Si 薄膜太陽電池の開発を目的とした。

二次元デバイスシミュレータを用い多結晶 Si 薄膜太陽電池の動作解析を行った。結晶粒界に沿って形成される垂直 p-n 接合を考慮に入れた柱状結晶構造をモデル化した。高効率化を実現するためには、結晶粒界における界面再結合速度 $S_{GB} < 10^3 \text{ cm/s}$ かつ結晶粒径 $L_g > 10 \mu\text{m}$ 、が必要であるとともに、垂直 p-n 接合深さが特性に大きな影響を及ぼすことが分かった。垂直 p-n 接合は、光生成キャリア収集には有効であるが、p-n 接合面積の増加による飽和電流密度の増加のためにダイオード特性が低下する。

APCVD により基板温度 1050°Cで堆積した多結晶 Si 薄膜を用いて太陽電池を作製し、その p-n 接合プロファイルと太陽電池特性との関係を調べた。高温リン P 拡散により p-n 接合形成した場合に、結晶粒界に沿って P が優先的に拡散し基板垂直方向に p-n 接合が形成される。結晶粒界に沿ったキャリア収集のために短絡光电流密度(J_{sc})の改善には有効であるが、結晶粒界の欠陥を介した再結合電流のために開放端電圧(V_{oc})が著しく低下する。一方、n 型微結晶 Si 堆積により低温で p-n 接合を形成した場合、結晶粒界を介した再結合電流を抑制することができ、大きな V_{oc} が得られた。

原料ガスの間欠供給により結晶核の生成密度を制御し、大粒径多結晶を得た。結晶核密度を $10^5 \sim 10^7 \text{ cm}^{-2}$ の範囲で制御ができ、膜厚 $12 \mu\text{m}$ に対して結晶粒径を $3 \sim 30 \mu\text{m}$ の範囲で制御することに成功した。水素ラジカル照射による結晶粒界の不活性化処理を施したところ、結晶粒界の影響が非常に小さくできることが示された。 $J_{sc}=14.7 \text{ mA/cm}^2$ 、 $V_{oc}=0.41 \text{ V}$ の太陽電池特性を得ることができ、この手法により堆積した大粒径多結晶 Si 薄膜は太陽電池の高効率化に適していることを示した。

以上のように、本論文は、多結晶シリコン太陽電池の開発に向け、結晶成長過程の解明、素子作製プロセスアセスメントなどに新しい知見が得られた。論文内容は学術的に価値が高いのみならず、その成果は工学的にも応用可能であり、大変有益である。よって、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め、審査結果を合格とした。