JAIST Repository
https://dspace.jaist.ac.jp/

Title	爆発的結晶化による多結晶シリコン形成とその太陽電池応用
Author(s)	大平，圭介
Citation	科学研究費助成事業研究成果報告書：1-5
Issue Date	2019-06-13
Type	Research Paper
Text version	publisher
URL	http://hdl.handle.net/10119/16026
Rights	
Description	基盤研究(B)（一般），研究期間：2015～2017，課題番号：15H04154，研究者番号：40396510，研究分野： 太陽電池

JAIST
JAPAN
ADVANCED INSTITUTE OF
SCIENCE AND TECHNOLOGY

Japan Advanced Institute of Science and Technology

様　式　Ｃ－１９、Ｆ－１９－１、Ｚ－１９　（共通）

科学研究費助成事業　　研究成果報告書

令和　　元 年　　６ 月 １３ 日現在

機関番号：１３３０２
研究種目：基盤研究(B)（一般）
研究期間：2015～2017
課題番号：１５Ｈ０４１５４

研究課題名（和文）爆発的結晶化による多結晶シリコン形成とその太陽電池応用

研究課題名（英文）Formation of polycrystalline silicon by explosive crystallization and its application to solar cells

研究代表者

大平　圭介（Ohdaira, Keisuke）

北陸先端科学技術大学院大学・先端科学技術研究科・教授

研究者番号：４０３９６５１０

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費）　　12,600,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、電子線蒸着非晶質シリコン膜にフラッシュランプアニールを行う際に発現する爆発的結晶化により形成される多結晶シリコン膜を太陽電池に応用するための基盤技術の確立を目指した。非晶質シリコン膜に意図的に厚膜部を設けることにより、爆発的結晶化の起点制御が可能となった。また、凹凸ガラス上への多結晶シリコン膜形成や窒化シリコン膜を挿入した構造の利用可能性を実証し、高効率太陽電池を形成するための指針を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義
太陽光発電が世界の基幹電力となるためには、太陽電池製造のより一層のコスト低減が必要である。本研究で確立した多結晶シリコン薄膜形成法を裏面電極型多結晶シリコン太陽電池に応用することができれば、シリコンウェハを使用しない太陽電池を実現することができ、製造工程の大幅な変革と、それに伴うコスト低減が期待される。

研究成果の概要（英文）：In this study, we aimed to establish a fundamental technology for the solar-cell application of polycrystalline silicon films formed through explosive crystallization taking place during flash lamp annealing of electron-beam-evaporated amorphous silicon films. We have found that the starting points of explosive crystallization can be controlled by intentionally forming thick parts in precursor amorphous silicon films. We have also demonstrated the possibility of forming a polycrystalline silicon film on textured glass substrates and the availability of a structure in which a silicon nitride film was inserted, through which a guideline for the fabrication of high efficiency solar cells has been obtained.

研究分野：太陽電池

キーワード：多結晶シリコン　爆発的結晶化　フラッシュランプアニール　太陽電池

様　式　C－１９、F－１９－１、Z－１９、CK－１９（共通）

１．研究開始当初の背景

研究代表者らはこれまで、ガラス基板上の非晶質 Si(a-Si)に対しフラッシュランプアニール(FLA)を行うことで、膜厚 3 μm 以上の厚膜多結晶 Si(poly-Si)を得る独自の技術を構築している(Ohdaira et al. JAP 2009 等多数)。FLA は、Xe ランプからのパルス光を用いた瞬間熱処理法であり、ガラス、a-Si の熱拡散長が数十 μm となるミリ秒台の加熱時間のため、ガラス基板全体への熱損傷なく、膜厚 μm 台の a-Si の結晶化が可能である。結晶化は、潜熱放出とその拡散により横方向に進行する、爆発的結晶化(explosive crystallization: EC)と呼ばれる機構で起こる。特に、電子線(EB)蒸着により堆積した a-Si を前駆体に用いることで、液相エピタキシー(LPE)が支配的な EC が発現し、横方向に数十 μm 延伸した大粒径結晶粒からなる poly-Si（図 1）が得られる。

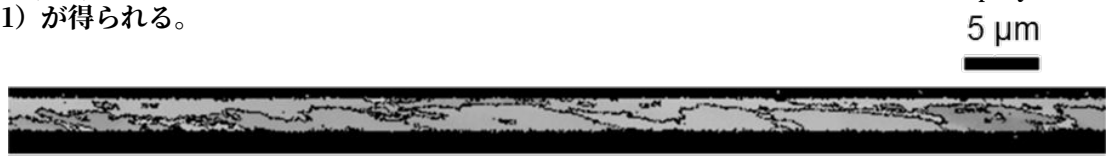

図１　FLA で形成した poly-Si 膜の電子線後方散乱回折像

この poly-Si は、μm 台の厚膜であるため、太陽電池応用が期待される。事後の結晶化で得た poly-Si の太陽電池への利用は、多くの先行研究があるが、レーザーでの溶融結晶化で得た poly-Si を用いた 12%に迫る変換効率の太陽電池が実現されており(Varlamov et al. SOLMAT 2014 等)、600 mV を超える開放電圧(V_{oc})の報告もある。この特性は、微小結晶粒 poly-Si に存在するバンド端近傍の浅いエネルギー準位の影響で頭打ちとなっていた V_{oc} が、大粒径化により解消されたと説明できる。

研究代表者らの、FLA で形成される厚膜 poly-Si は、この高 V_{oc} を実現しうる大粒径結晶粒で形成されている。さらに、EC による結晶化であるため、溶融過程を経た結晶化でありながら、結晶化前のドーパントプロファイルを維持できるという、他手法を凌駕する特長も有している。これらの特徴により、この poly-Si 形成技術が、高効率太陽電池作製に応用できるのではないか、という着想に至った。

２．研究の目的

本研究では、EB 蒸着 a-Si 膜への FLA によって得られる poly-Si を利用した太陽電池を実現することを目的とし、以下を目標とした。

(1) EC の開始機構の明確化とその発現の制御方法の確立
(2) 膜厚の増大と太陽電池構造の決定

３．研究の方法

(1) EC の開始機構の明確化とその発現の制御方法の確立

EC の起点は、FL 光照射中に、a-Si 面内のある箇所が他所よりも高温になることにより形成されるとの仮説のもと、意図的に高温部を形成する試みを行った。具体的には、a-Si 面内の一部に厚膜部を設けた a-Si 試料への FLA を行った。前駆体 a-Si 試料は、まず一部をハードマスクにより隠したガラス基板上に a-Si 膜を堆積し、その後、試料全面に a-Si を堆積することにより、起点制御を試みた。FL 光は、各試料に対し一度のみ照射した。結晶化の有無はラマン分光法により確認した。

(2) 膜厚の増大と太陽電池構造の決定

EB 蒸着で製膜する a-Si の厚さを系統的に変化させた試料に対して FLA を行い、結晶化の様子を観察した。また、EB 蒸着 a-Si 膜の FLA での結晶化において、亀裂発生が太陽電池化への問題となっており、この抑止も試みた。反応性イオンエッチングで表面に凹凸を形成したガラス基板に対して EB 蒸着 a-Si を堆積した試料に FLA を行い、結晶化機構への影響と亀裂抑止の効果を検証した。太陽電池構造については、研究期間中に、変換効率 14%を超える高性能裏面電極型薄膜結晶 Si 太陽電池の報告があり(Trinh et al. SOLMAT 2018)、この構造の適用を念頭に、光入射側の構造の検討を試みた。

４．研究成果

図 2 に、一部に厚膜部を設けた非晶質 Si 膜に対し FLA を行った試料の表面写真を示す。比較のため、厚膜部を設けていない試料に対し FLA を行った結果についても載せている。図中の(1)(3)(6)が厚膜部であり、そこを起点に横方向に EC が進行している箇所（(2)および(5)）が存在していることがわかる。同じ条件で FLA を行った、厚膜部を設けていない試料（(c)、左下）においては、結晶化が確認されない。このことから、厚膜部が結晶化の起点として働いていることがわかる。なお、試料(b)および(d)においては、厚膜部以外からの結晶化開始が確認されるが、厚膜部形成時に使用したハードマスクの遮蔽効果が不十分で、ガラス端部に膜が付着し、

これが起点として働いたためと推察される。すなわち、これらの結果も、厚膜部形成による起点制御の一例と言える。

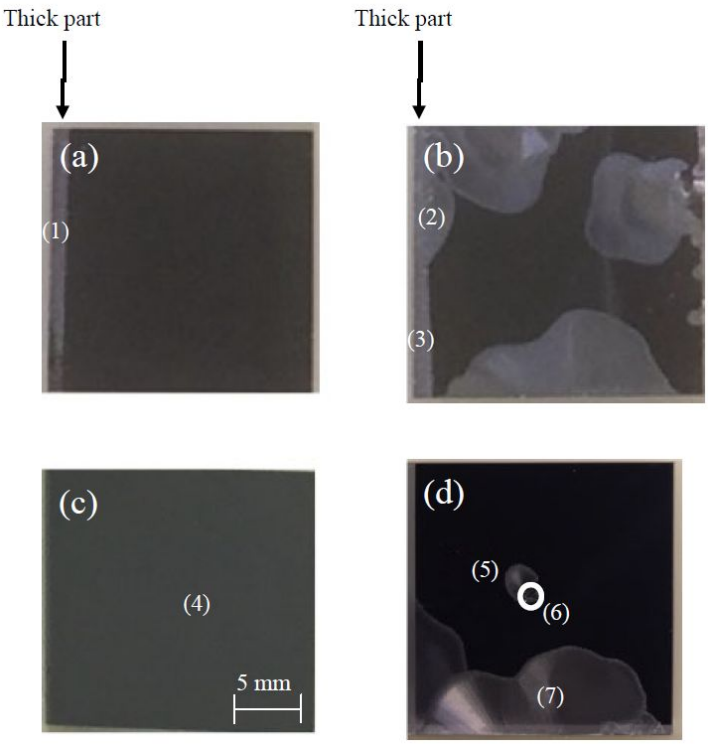

図2 一部に厚膜部を設けた非晶質Si膜に対しFLAを行った試料の表面写真

表1に、a-Si/ガラス構造、窒化Si(SiN_x)/a-Siガラス構造、ガラス/SiN_x/a-Si構造に対しFLAを行った際に結晶化に要したパルス強度と、反射率スペクトルから計算した反射損失を差し引いたパルス強度を示す。結晶化に要するパルス強度は構造ごとに異なるが、反射率を勘案した実照射強度で比較すると、同等の強度で結晶化が行われることが明らかとなった。このことから、反射防止構造を取り入れることで、結晶化に要するエネルギーの低減が図れることを見出した。また、SiN_x膜をガラス/Si間に挿入においても、膜剥がれなどは存在せず、太陽電池に利用可能であることが明らかとなった。裏面電極型太陽電池を作製した際、このSiN_x膜は反射防止膜として機能するため、高電流化への寄与が期待される。

表1 各種積層構造に対しFLAを行った際に結晶化に要したパルス強度、および、反射率スペクトルから計算した反射損失を差し引いたパルス強度

	Fluence needed for crystallization	Calculated incident energy
glass/SiN_x/a-Si	11.94	9.55
glass/a-Si	14.46	9.62
a-Si/glass	17.38	9.47
SiN_x/a-Si/glass	12.29	9.16

図3に、平坦および凹凸ガラス基板上にEB蒸着a-Siを堆積した試料にFLAを行ったものの表面光学顕微鏡像を示す。平坦基板においては、poly-Si膜に亀裂が確認できるが、凹凸基板上では、亀裂発生が抑制されているのが確認される。また、凹凸の程度を最適化することで、結晶化機構を変化させずに凹凸の抑制が可能であることも確認した。また、凹凸ガラスの利用は、ガラス側から入射した太陽光の閉じ込め効果を増大し、高電流化への貢献も期待される。

以上の結果から、FLAで形成した多結晶Si膜を用いた裏面電極型薄膜結晶Si太陽電池の高性能化に向け、凹凸ガラスとSiN_x膜の利用による、低光反射の可能性を実証し、また、亀裂抑止の基盤技術も確立した。今後は、他研究機関との連携も深めながら、実際の太陽電池化を進める。なお、厚膜化についても検討を行ったが、結晶化の機構が変化してしまい、大粒径化が困難であることを見出したため、5 μm以下の膜厚のpoly-Si膜で、光閉じ込め効果を最大化する方針で研究を継続する。

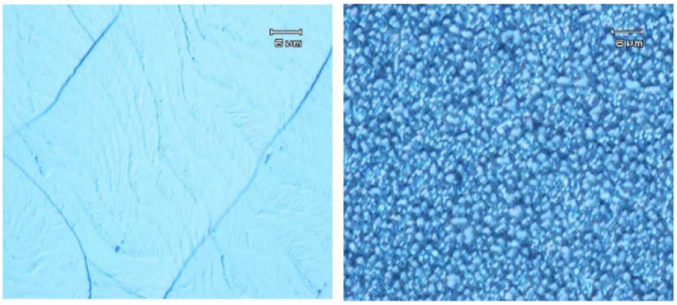

図3 凹凸形成を行っていないガラス（左）および行ったガラス（右）上に EB 蒸着 a-Si 膜を堆積し FLA を行った試料の表面光学顕微鏡像

５．主な発表論文等

〔雑誌論文〕（計 5 件）

1. K. Kurata and K. Ohdaira "Crystallization of electron-beam evaporated a-Si films on textured glass substrates by flash lamp annealing" Jpn. J. Appl. Phys. 58, SBBF10-1-5 (2019) 査読有
2. D. Sato and K. Ohdaira "Effect of starting point formation on the crystallization of amorphous silicon films by flash lamp annealing" Jpn. J. Appl. Phys. 57, 04FS05-1-5 (2018) 査読有
3. Y. Sonoda and K. Ohdaira "Effect of anti-reflection coating on the crystallization of amorphous silicon films by flash lamp annealing" Jpn. J. Appl. Phys. 56, 04CS10-1-4 (2017) 査読有
4. T. Nozawa and K. Ohdaira "Improved quality of flash-lamp-crystallized polycrystalline silicon films by using low defect density Cat-CVD a-Si films" Int. J. Mater. Res. 108, 827-831 (2017) 査読有
5. K. Ohdaira "The control of the film stress of Cat-CVD a-Si films and its impact on explosive crystallization induced by flash lamp annealing" Thin Solid Films 575, 21-24 (2015) 査読有

〔学会発表〕（計 26 件）

1. 倉田 啓佑、大平 圭介 "表面粗さを変化させたテクスチャガラス基板が電子線蒸着非晶質 Si 膜の FLA での結晶化機構に与える影響"第 66 回応用物理学会春季学術講演会、2019 年 3 月
2. 倉田 啓佑、大平 圭介 "テクスチャガラス基板が電子線蒸着非晶質 Si 膜の FLA での結晶化機構に与える影響" 第 79 回応用物理学会秋季学術講演会、2018 年 9 月
3. K. Kurata and K. Ohdaira "Crystallization of electron-beam evaporated a-Si films on textured glass substrates by flash lamp annealing" 2018 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM 2018), 2018 年 9 月
4. 倉田 啓佑、大平 圭介 "テクスチャガラス基板上に堆積した EB 蒸着非晶質 Si 膜の FLA による結晶化"日本学術振興会第 175 委員会 第 15 回「次世代の太陽光発電システム」シンポジウム、2018 年 7 月
5. 大平 圭介 "フラッシュランプアニールによる太陽電池用多結晶シリコン膜形成"第 4 回有機・無機エレクトロニクスシンポジウム、2018 年 6 月
6. 倉田 啓佑、大平 圭介 "テクスチャガラス基板上 EB 蒸着非晶質 Si 膜の FLA での結晶化における製膜時の基板温度の影響" 第 65 回応用物理学会春季学術講演会、2018 年 3 月
7. 佐藤 大暉、大平 圭介 "フラッシュランプアニールによる a-Si 膜の結晶化に対する起点部の膜厚の影響" 第 65 回応用物理学会春季学術講演会、2018 年 3 月
8. 倉田 啓佑、大平 圭介 "テクスチャガラス基板上での電子線蒸着非晶質 Si 膜の FLA による結晶化"平成 29 年度応用物理学会北陸・信越支部学術講演会、2017 年 12 月
9. D. Sato and K. Ohdaira "Ignition control of the explosive crystallization of amorphous silicon films by flash lamp annealing" 27th International Photovoltaic Science and Engineering Conference, 2017 年 11 月
10. D. Sato and K. Ohdaira "Effect of starting point formation on the crystallization of amorphous silicon films by flash lamp annealing" 2017 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM 2017), 2017 年 9 月
11. 佐藤 大暉、大平 圭介 "フラッシュランプアニールによる a-Si 膜の結晶化に対する基板端部への起点作製の効果" 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会、2017 年 9 月

12. 佐藤 大暉、大平 圭介 "フラッシュランプアニールによる a-Si 薄膜の結晶化における起点作製の効果" 日本学術振興会第 175 委員会 第 14 回「次世代の太陽光発電システム」シンポジウム、2017 年 7 月
13. 佐藤 大暉、大平 圭介 "フラッシュランプアニールによる Cat-CVD a-Si 膜の結晶化への起点作製の効果" 第 14 回 Cat-CVD 研究会、2017 年 7 月
14. 佐藤 大暉、大平 圭介 "フラッシュランプアニールによる a-Si 膜の結晶化における起点制御の検討" 第 64 回応用物理学会春季学術講演会、2017 年 3 月
15. 園田 裕生、大平 圭介 "FLA での poly-Si 形成における SiNx 反射防止膜および照射方向の結晶構造への影響" 第 64 回応用物理学会春季学術講演会、2017 年 3 月
16. Y. Sonoda and K. Ohdaira "Effect of anti-reflection coating on the crystallization of amorphous silicon films by flash lamp annealing" 2016 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2016) 2016 年 9 月
17. 園田 裕生、大平 圭介 "FLA での a-Si の結晶化における SiNx 反射防止膜とパルス光入射方向の影響" 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会、2016 年 9 月
18. Takaki Nozawa and Keisuke Ohdaira "Improved quality of flash-lamp-crystallized polycrystalline silicon films by using low defect density Cat-CVD a-Si films" 9th International Confenrence on Hot Wire (Cat) and Initiated Chemical Vapor Deposition, 2016 年 9 月
19. 園田 裕生、大平 圭介 "フラッシュランプアニールでの a-Si の結晶化における Cat-CVD で作製した SiNx 膜の反射防止効果" 第 13 回 Cat-CVD 研究会、2016 年 7 月
20. 園田 裕生、大平 圭介 "フラッシュランプアニールでの a-Si の結晶化における反射防止膜の効果" 日本学術振興会第 175 委員会 第 13 回「次世代の太陽光発電システム」シンポジウム、2016 年 5 月
21. 園田 裕生、大平 圭介 "FLA での a-Si の結晶化における反射防止膜利用によるパルス光エネルギー低減" 第 63 回応用物理学会春季学術講演会、2016 年 3 月
22. 野澤 尚樹、大平 圭介 "前駆体 a-Si の膜質制御による FLA-poly-Si 膜の欠陥密度低減" 第 63 回応用物理学会春季学術講演会、2016 年 3 月
23. 野澤 尚樹、大平 圭介 "FLA-poly-Si 膜におよぼす前駆体 a-Si 品質の影響" 平成 27 年度応用物理学会北陸・信越支部学術講演会、2015 年 12 月
24. 野澤 尚樹、大平 圭介 "フラッシュランプアニールにより形成した poly-Si 膜の品質への前駆体 a-Si 膜の影響" 第 76 回応用物理学会秋季学術講演会、2015 年 9 月
25. 西野 俊佑、野澤 尚樹、山口 世力、宮田 全展、大平 圭介、小矢野 幹夫 "フラッシュランプアニールにより形成した多結晶シリコン膜の熱伝導率測定" 第 76 回応用物理学会秋季学術講演会、2015 年 9 月
26. 野澤 尚樹、大平 圭介 "FLA により形成した poly-Si 膜への a-Si 膜による表面パッシベーション" 日本学術振興会第 175 委員会 第 12 回「次世代の太陽光発電システム」シンポジウム、2015 年 5 月

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。