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

Title	湿式化学成長した超極薄AlドープSiOxにより形成されたAl誘起酸化物反転層を有する新規Si系太陽電池
Author(s)	中島, 寛記
Citation	
Issue Date	2024-03
Type	Thesis or Dissertation
Text version	ETD
URL	http://hdl.handle.net/10119/19072
Rights	
Description	Supervisor: 大平 圭介, 先端科学技術研究科, 博士

JAIST
JAPAN
ADVANCED INSTITUTE OF
SCIENCE AND TECHNOLOGY

Japan Advanced Institute of Science and Technology

氏名	中島寛記	
学位の種類	博士（マテリアルサイエンス）	
学位記番号	博材第 577 号	
学位授与年月日	令和 6 年 3 月 22 日	
論文題目	Novel Si-based Solar Cells with an Al-induced Charged Oxide Inversion Layer Formed by a Wet Chemically Grown Ultrathin Al-doped SiOx	
論文審査委員	大平圭介	北陸先端科学技術大学院大学　教授
	水田博	同　教授
	鈴木寿一	同　教授
	赤堀誠志	同　准教授
	齋均	産業技術総合研究所　再生可能エネルギー研究センター　上級主任研究員

論文の内容の要旨

Carrier-selective passivating contacts would realize excellent surface passivation for crystalline Si (c-Si) solar cells with a high conductivity without direct metal electrode contacts, causing a deterioration of the interface properties. Hence, it would be a breakthrough technology to access a practical limit of solar cell performance.

This thesis addresses using a simple process to realize low-cost and high-efficiency c-Si solar cells with a simple device structure of carrier-selective passivating contacts whose emitter is induced by external electrostatic charges.

The main major contribution of this work is developing a novel surface passivation method using a simple wet chemical process, which does not require vacuum, high temperature, or hydrogen treatment processes, which are essential processes in industrial c-Si solar cells. The process is just immersing Si wafers into a hot aluminum nitrate ($Al(NO_3)_3$) aqueous solution to form an ultrathin Al-doped SiO_x layer possessing hole selectivity. On a planar n-type c-Si surface, the maximum effective surface recombination velocity ($S_{eff,\,max}$) reached as low as 16 cm s^{-1}. The analyzed saturation current density (J_0) of 65 fA cm^{-2} and contact resistivity (ρ_c) of 20 mΩ cm^2, the hole selectivity (S_{10}) value could be estimated to be 13.3 which is competitive to other selective contacts created using vacuum and high-temperature process. Since the process eliminates the complexity of solar cell fabrication processes with an excellent carrier-selective passivating contact property, this study suggests that a wet chemical process using an aqueous solution of $Al(NO_3)_3$ can be an industrial solar cell fabrication process. In addition, the mechanism of the hole-selective passivating contact property was revealed. The field-effect passivation is mainly attributed to the surface passivation.

The second contribution of this work is a demonstration of the device operation of a novel device structure with an inversion layer induced by the negative fixed charges existing in ultrathin Al-doped SiO_x. This result implies that the charge-induced inversion layer acts as a p^+ emitter formed by a simple wet chemical process. Hence, using a surface charge-induced emitter, this type of solar cell realizes high-throughput, low-cost p^+ emitter formation by a simple wet chemical process. This novel solar cell was named an Al-induced charged oxide inversion layer (Al-COIL) solar cell. The conversion efficiency (η) of >10% was achieved for the device fabricated on a pyramidal textured Si substrate. In particular, an excellent FF of 0.794 was realized using a fine Ag grid electrode on the emitter side. The reduction due to a high emitter sheet resistance could be mitigated by improving carrier collection through a fine Ag grid electrode covering a relatively larger emitter surface area. However, still low J_{sc} and V_{oc} were confirmed. PC1D simulation implies that the reductions might originate from carrier recombination at the emitter surface due to the large number of interface states and the increased minority carrier (electron) density by the diminished fixed charge density (Q_f) less than -1×10^{11} cm^{-2}.

The third contribution of this work is a discovery that surface passivation, and the sheet resistance of ultrathin Al-doped SiO_x/Si improve by the light illumination, which is the variable for addressing the origin of the hole-selective

passivating contact property. The significant increment of these properties implies that the excited electron trapping in the Al-induced acceptor states existing in the Al-doped SiO_x layer forms negatively charged AlO_4^- structures and enhances field effect passivation induced by the fixed charges.

Lastly, achieving an excellent surface passivation quality on a pyramidal textured c-Si surface was crucial. The lower $S_{eff,\,max}$ was confirmed as low as 13.3 cm s^{-1}, corresponding to iV_{oc} of 682 mV and J_0 of 59 fA cm^{-2}, respectively. The light-trapping enhancement and slight space charge region compression compensate for the relatively enormous amount of interface state density due to the surface area increment on the textured Si surface, reducing surface recombination velocity and increasing solar cell performance. Hence, this study provides insight into the novel surface passivation mechanism on a practical surface structure for the c-Si solar cell. It requires a suitable surface structure design with a nano-scale size for increasing a hole-selective passivating contact by effectively exploiting electron trapping and space charge region compression.

Keywords: c-Si solar cells, carrier-selective passivating contacts, electrostatic charges, ultrathin Al-doped SiO_x, wet chemical oxidation

論文審査の結果の要旨

太陽光発電の普及拡大に向け、太陽電池セルの製造プロセスのさらなる技術革新が急務である。特に、低コスト化が進む結晶シリコン太陽電池セルにおいては、量産工程で利用可能な、低コストかつ簡便な手法であることが必須である。本研究は、簡便な湿式法による Al ドープ SiO_x 膜形成技術と、膜中の固定電荷によるバンド曲がりが生み出す p 型反転層を用いた太陽電池セルの開発に取り組んだものである。

Al ドープ SiO_x 膜の形成は、$Al(NO_3)_3$ 水溶液にシリコン基板を浸漬する処理により行った。X 線光電子分光法や赤外分光法を駆使した系統的な検討により、形成される層が AlO_y と SiO_x の二層構造となることを明らかにした。表面再結合の程度の指標となる少数キャリア寿命や implied 開放電圧などの調査により、水溶液濃度や処理温度の最適化を行った処理条件で形成した Al ドープ SiO_x 膜が、熱酸化や原子層堆積の組み合わせで膜形成を行う先行研究と同等のパッシベーション性能を有することを実証した。コンタクト抵抗についても、太陽電池応用のためには十分に小さい値が得られており、ホール伝導性と電子の再結合抑止能力を併せ持つ、ホール選択コンタクトとして高い性能が得られていることを確認した。

この Al ドープ SiO_x 膜は、膜中の Al 誘起アクセプター準位に電子がトラップして負に帯電する。この結果、Si のバンドが大きく上方向に曲がり、p 型反転層が形成される。このことを、容量-電圧測定や、光照射によるキャリア寿命の変化から実験的に確認した。さらに、形成される p 型反転層をエミッタ層に利用したデバイスの発電動作を確認した。加えて、表面の凹凸状態（ピラミッドテクスチャ）の影響についての調査も行い、ピラミッドテクスチャを有するシリコンを用いることで、反射率低減による電流の向上のみならず、電圧についても高められることを実証した。さらなる高性能化の指針として、電極部周辺のエミッタ部での再結合抑制が必要であることを、デバイスシミュレーションを用いて示した。

以上、本博士論文は、結晶シリコン太陽電池の低コスト化に大きく寄与しうる、応用物理学上画期的な成果を示しており、その背後にある物理についても、深く吟味されていることから、学術的にも貢献するところが大きい。よって、博士（マテリアルサイエンス）の学位論文として、十分価値のあるものと認めた。