The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Effective surface passivation of low reflectance Si texture and improvement of black Si solar cells
Author(s)	國枝, 省吾
Citation	大阪大学, 2020, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/76381
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

様式3

論　文　内　容　の　要　旨

氏　名　（　　國枝省吾　　）	
論文題名	Effective surface passivation of low reflectance Si texture and improvement of black Si solar cells (低反射シリコンテクスチャに対する効果的な表面パッシベーション法の開発とブラックシリコン太陽電池の改善)

論文内容の要旨

結晶シリコン太陽電池における主なエネルギー損失要因は、光の反射と、キャリアの再結合であるため、低反射構造を形成した上で、表面に反射防止膜(SiN,SiO_2等)を形成することで、低反射率と高キャリアライフタイムを両立させることが重要となる。しかし、安価なウェハ切断法である固定砥粒法で切削された多結晶シリコンウェハは、表面に残るダメージ層が薄いため、ダメージを起点として進行する酸エッチングでは低反射構造を得ることができない。また、低反射構造の形成のための反応性イオンエッチングや反射防止膜の形成のための化学気相蒸着(CVD)法は高価な真空プロセスである。本研究では、単純ウェットプロセスである化学的転写(Surface Structure Chemical Transfer : SSCT)法によるSi表面の低反射化と、絶縁膜パッシベーションおよび裏面電界パッシベーションによるキャリアライフタイムの向上を組み合わせ、固定砥粒多結晶シリコンの低反射率と高パッシベーション効果を両立させると共に、単純構造の高効率結晶ブラックシリコン太陽電池の創製に成功した。

シリコン基板を15 wt% H_2O_2 + 25 wt% HF 混合溶液中に浸漬し、Pt触媒を取り付けたローラーを4 cm/sの速度で6往復通過させ、15秒間の表面反応によって、ウェハ表面に厚さ~300 nmのナノクリスタルシリコン(nanocrystalline Si : nc-Si)層を形成した。nc-Si層を起点としたウェットエッチングにより、低反射サブミクロンサイズの構造を形成し、プラズマCVD法によりSiN膜を堆積した。形成された構造は、従来の遊離砥粒多結晶シリコンの酸溶液によるエッチングで形成される低反射テクスチャよりも低い反射率と共に、SiN膜による高いパッシベーション性を得ることができた。分光エリプソメトリの測定結果に対するBruggeman有効媒質近似モデルを用いた解析から誘電関数を計算した。その結果、<SiN/低反射サブミクロンSi>構造における低反射率は、ラフネス部分の連続的な屈折率の上昇とSiN膜による反射防止効果によるものであることがわかった。また、コンダクタンス測定から、この<SiN/低反射サブミクロンSi>構造の界面準位密度が~1×10^{11} $cm^{-2}eV^{-1}$ と低く、SiN膜がサブミクロン構造を完全に被覆することによるシリコンダングリングボンドの消滅が、高いライフタイムの原因であることを確認した。

プロセスの更なる単純化を目指し、高価な真空プロセスによる反射防止膜を用いない高効率ブラックシリコン太陽電池の高効率化を行った。SSCT法により表面に極低反射nc-Si層を形成することで、ブラックシリコン基板とした。ブラックシリコン太陽電池の作製における拡散プロセスにおいて、太陽電池表面領域におけるオージェ再結合の抑制、nc-Si層に対するリンケイ酸ガラス(Phosphosilicate glass : PSG)の表面パッシベーションの向上および裏面に対するボロン電界(Boron back-surface field : B-BSF)パッシベーション効果の向上を目指して、機械学習を用いた特性の最適化を行った。拡散プロセスにおいて、リン拡散剤濃度、拡散温度、拡散時間を3つのパラメータとし、潜在的な光起電力であるimplied Vocを最適化するために、ガウス過程法を用いた未知データの予測と、ベイズ最適化法による有望条件の探索を行った。3つのパラメータ空間で全ての実験を網羅するには315通りの実験が想定されたが、このベイズ最適化法を用いることで、13通りの実験で最適化を完了することができた。また、表面再結合電流の評価、シート抵抗による最表面リン濃度の評価、SIMSによるボロンプロファイルの評価から、ベイズ最適化法を用いて得た3つの拡散パラメータの最適条件にて、最表面におけるオージェ再結合の抑制、nc-Si層に対するPSGパッシベーション効果の向上、裏面に対するB-BSFパッシベーション効果の向上の3つを全て満たしていることを確認した。この最適条件のもとで作製した太陽電池は、水素アニール処理によるシリコンダングリングボンドの終端処理を行わないでも、開放起電力620mV、短絡電流密度41.61mAcm^{-2}と高い特性を示した。結果として、真空プロセスによる反射防止膜の形成を用いることなく、単純構造の結晶シリコン太陽電池で変換効率20.2%を達成できた。

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（　國　枝　省　吾　）		
論文審査担当者	（職）	氏　名
	主 査　教授	小林　光
	副 査　教授	谷口正輝
	副 査　教授	岡田美智雄

論文審査の結果の要旨

結晶シリコン太陽電池における主なエネルギー損失要因は、光の反射とキャリアの再結合である。安価な切断法である固定砥粒法で製造される多結晶シリコンウェーハは、表面に残るダメージ層が薄いため、ダメージを起点として進行する酸エッチングでは低反射構造を得ることができない。本論文の研究では、単純ウェットプロセスである化学的転写(Surface Structure Chemical Transfer：SSCT)法によるシリコン表面の低反射化と、絶縁膜パッシベーションおよび裏面電界パッシベーションによるキャリアライフタイムの向上を組み合わせ、固定砥粒法で製造された多結晶シリコンの低反射率と高パッシベーション効果を両立させると共に、単純構造の高効率結晶ブラックシリコン太陽電池の創製に成功した。

SSCT 法では、H_2O_2＋HF 水溶液に浸漬したシリコンウェーハに白金触媒体を接触させるだけで、瞬時に表面化学反応が起こり、シリコンナノクリスタル層（nc-Si）が形成されることによって、極低反射率が得られる。また、従来の HF＋HNO_3水溶液を用いる酸エッチングによって低反射化できない固定砥粒法で製造される多結晶シリコンウェーハも容易に低反射化できる。本研究では、固定砥粒法で製造される多結晶シリコンウェーハに SSCT 処理を施し、それを起点としてウェットエッチングによってサブミクロン構造を形成して、低反射化した。そのサブミクロン構造上に、シリコンナイトライド（SiN）膜を堆積した場合、高価な遊離砥粒法で製造される多結晶シリコンの酸エッチングで形成される低反射構造よりも低い反射率と共に、SiN 膜による高いパッシベーション性を得ることに成功した。分光エリプソメトリの測定結果に対する Bruggeman 有効媒質近似モデルを用いた解析から、<SiN/低反射サブミクロン Si>構造の低反射率は、ラフネス部分の連続的な屈折率の上昇と SiN 膜による反射防止効果によるものであることがわかった。また、コンダクタンス測定から、<SiN/低反射サブミクロン Si>構造の界面準位密度が~1×10^{11} $cm^{-2}eV^{-1}$ と低く、これが高いライフタイムの原因であることを確認した。

SSCT 法により表面に nc-Si 層を形成することで、極低反射率を持つブラックシリコン基板とした。このブラックシリコン太陽電池における拡散プロセスにおいて、太陽電池表面領域でのオージェ再結合の抑制、nc-Si 層に対するリンケイ酸ガラス(PSG)の表面パッシベーションの向上および裏面に対するボロン電界(B-BSF)パッシベーション効果の向上を目的として、機械学習を用いて太陽電池の作製条件の最適化を行った。拡散プロセスにおいて、リン拡散剤濃度、拡散温度、拡散時間を 3 つのパラメータとし、ガウス過程法を用いた未知データの予測と、ベイズ最適化法による有望条件の探索を行った結果、13 通りの実験で最適化を完了することができた。この最適条件のもとで作製した太陽電池で、開放起電力 620mV、短絡電流密度 41.61$mAcm^{-2}$、変換効率 20.2%を達成すると共に、高効率の原因を解明した。よって、本論文は博士（理学）の学位論文として十分価値あるものと認める。