氏　　名	海汐寛史
学　位　の　種　類	博　士　（　工　学　）
学　位　記　番　号	博　甲　第　　8477　　号
学位授与年月日	平成　30年　3月　23日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
審　査　研　究　科	数理物質科学研究科
学　位　論　文　題　目	ラインレーザーを用いたガラス基板上の液相結晶化シリコン薄膜の形成と評価：太陽電池応用へ向けた検討

主　　査	筑波大学　教授	博士（工学）	佐々木正洋
副　　査	筑波大学　准教授	博士（理学）	櫻井岳暁
副　　査	筑波大学　教授（連係大学院）	理学博士	関口隆史
副　　査	産業技術総合研究所太陽光発電研究センター 研究センター長	博士(工学)	松原浩司

論　文　の　要　旨

現在、シリコン単結晶太陽電池モジュールの製造コストの約 1/3 はウェーハ製造コストで占められており、低コスト化に向けウェーハの薄型化が求められている。しかし、ウェーハの薄型化には切削屑の増加や割れやすいという難しさがあり、有効な解決策が見つかっていない。一方、アモルファスシリコン薄膜は試料温度を千数百℃に加熱・冷却することで、溶融・固化し結晶化する液相結晶化現象(Liquid-Phase-Crystallization : LPC)が起こる。本論文はこの性質に着目したもので、高強度レーザー光を加熱源として、LPC を利用し、ガラス基板上に直接高品質のシリコン結晶を形成する極薄シリコン結晶系太陽電池の開発が議論されている。この中で、基礎的な結晶成長、電子物性評価から太陽電池の作製までの研究がまとめられている。

本論文では、先ず、シリコン薄膜 LPC プロセスの最適化について述べられている。加熱源として、長さ 12 mm、幅 0.075 mm, 波長 804 nm の continuous wave (CW) ダイオードレーザーを用いた。ガラス基板にシリコンとの熱膨張係数差が小さいボロシリケートガラス基板を選定し、また SiN_x（膜厚 10 nm）/SiO_x（膜厚 100 nm）/SiO_xN_y（膜厚 80 nm）中間層を基板とシリコン薄膜の間に挿入すると、欠陥の導入が抑えられる。この中間層にはそれぞれ、剥離防止、不純物拡散防止、LPC シリコン界面パッシベーションの役割があることを明らかにしている。さらに、LPC 前に施すアモルファスシリコン膜の脱水素アニールには膜からピンホールを取り除く効果があり、LPC プロセス中の基板温度を 600 ℃で固定すると、レーザー光による急激な温度変化が緩和され試料の割れが防げることを明らかにしている。以上に述べられた成膜にかかる複数の因子を制御することにより、欠陥生成を抑え、太陽電池にも適用可能な高品質 LPC シリコン結晶薄膜の成膜が実現した。

続いて、不純物導入量を変化させた LPC シリコン結晶薄膜の電子物性（多数キャリア移動度、少数キ

ャリア寿命）を評価した結果が述べられている。ドープしないシリコン層の上に一定の不純物濃度の P (n 型) 及びB (p 型) ドープ層を形成した後、LPC により不純物濃度が一様な試料を作製した。不純物濃度ははじめに形成したドープ層の厚さで制御した。ここで、得られた試料に対し、結晶粒径、多数キャリア密度、同移動度、少数キャリア寿命、セル電流電圧特性、内部量子効率を評価した。不純物濃度を 10^{16} cm^2 オーダーまで下げるとキャリア移動度が向上し、n 型シリコンで 800 cm^2/Vs, p 型シリコンで 220 cm^2/Vs の値が示されている。このキャリア移動度は他の薄膜結晶化手法に比べ圧倒的に高い値であり、LPC 法の有効性が示されている。なお、不純物濃度が 10^{15} cm^2 まで低くなると、p 型シリコン、n 型シリコンいずれの場合にも、キャリア移動度が下がる。これに対し、少数キャリア寿命計測では、不純物濃度が下がっても一様にキャリア寿命が延びている。この多数キャリア移動度と少数キャリア寿命の傾向の違いを、結晶粒界でのエネルギー障壁生成により説明した。同様に、LPC シリコン結晶成長のレーザー光のスキャン速度依存性についても物性評価を行っている。ここでは、照射時の温度上昇が一定になるようにレーザー強度を制御している。これによって、低いスキャン速度が薄膜結晶の大粒径化ならびに電子物性の向上に有効であるが、あまりスキャン速度を下げすぎるとガラス基板に気泡が生じることも確認している。

以上の物性評価結果を参考に LPC を利用した薄膜太陽電池を作製した結果、世界最高水準の開放起電圧 580 mV と大きな値を示すのに成功している。本論文では、成膜パラメータを個別に理解し、これを物性評価と組み合わせることで、これまで不明瞭であった LPC 法によるシリコン薄膜結晶成長と太陽電池応用の有効性を明確化することに成功している。

審　査　の　要　旨

〔批評〕

薄膜からのレーザー結晶化による薄型結晶シリコン薄膜太陽電池の開発は有望であるが，複数の成膜因子の組み合わせから条件を設定するため大変複雑である。本論文は、各成膜要素を細分化して調べ、薄膜形成プロセスを最適化するための指針を明らかにした。また、LPC法により形成したシリコン結晶薄膜の膜形態と電子物性、太陽電池特性の相関を明らかにすることに成功した。これらの成果は基礎物性の理解だけでなく、産業応用まで幅広い開発指針を提供するものである。今後の太陽電池開発に広く貢献するものであり、この点が高く評価できる。

〔最終試験結果〕

平成 30 年 2 月 9 日、数理物質科学研究科学位論文審査委員会において審査委員の全員出席のもと、著者に論文について説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって、合格と判定された。

〔結論〕

上記の論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士（工学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。