

令和 2 年 5 月 22 日現在

機関番号：13901

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2018～2019

課題番号：18H05951・19K21110

研究課題名(和文)シリコンナノドットを用いた新規導電性保護膜の開発

研究課題名(英文)Development of conductive passivation layer using silicon nanocrystals

研究代表者

後藤 和泰 (Gotoh, Kazuhiro)

名古屋大学・工学研究科・助教

研究者番号：40821690

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、酸化シリコン中のシリコンナノ結晶をキャリア輸送経路とした新規導電性保護膜の開発を目指して実施された。試料は、シリコンリッチのアモルファス酸化シリコンを酸素リッチのアモルファス酸化シリコンで挟み込む順番でシリコン基板上に3層構造を製膜し、熱処理を行うことにより酸化シリコン中にシリコンのナノ結晶を形成した。

酸素リッチのアモルファス酸化シリコンを採用することにより、酸化シリコン中にシリコンのナノ結晶が形成し、保護性能を示すことを確認した。さらに、酸化シリコン中のシリコンナノ結晶が電気伝導を担っていることを示唆し、保護性能と電気伝導を両立する導電性保護膜の開発が期待できる結果が得られた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

シリコンは、現在の社会を成り立たせる材料の一つである。シリコン表面に対する良好な保護性能を示す保護膜は、通常絶縁性の材料であり電気伝導との両立が困難である。本研究では、良好な保護特性と電気伝導性を両立する導電性保護膜の開発を志向した。その結果、シリコン酸化膜中のナノ結晶シリコンの比率が大きくなるほど、保護性能が低下する一方、電気伝導が向上する結果を得た。このことは、保護性能と電気伝導を制御することが可能となることを意味している。開発した導電性保護膜は、太陽電池への応用だけでなく、シリコン基板と様々な材料との接合材として利用するなどの展開が可能であり、高い社会的意義が期待できる成果が得られた。

研究成果の概要(英文)：In this study, we aim to develop silicon-nanocrystals-embedded silicon oxide passivating layers. The silicon oxide passivating layers including silicon nanocrystals are prepared on crystalline silicon (c-Si) substrates by sandwiching silicon-rich amorphous silicon oxide (a-SiO_x) in between oxygen-rich silicon oxide (a-SiO_y) and subsequent annealing. The a-SiO_y layer can suppress epitaxial growth of the a-SiO_x layers and thus higher passivation performance is obtained in comparison with the passivating layers without the a-SiO_y. Furthermore, the electrical conductivity increases with annealing temperature. The Si nanocrystals in the silicon oxide passivating layer increase with annealing temperature. These results suggest that the silicon nanocrystals work as a carrier path, indicating the silicon oxide exhibiting good passivation performance and conductivity is successfully fabricated.

研究分野：光電子工学

キーワード：ナノ構造 保護膜 電子材料 シリコン

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年、1~2 nm 厚の極薄の酸化シリコンを保護膜として用いた結晶シリコン太陽電池において、25.7%の高い変換効率が達成された[1]。シリコン酸化膜は通常絶縁性を示すのにも関わらず、キャリアが外部回路に効率的に収集できることが注目を浴びている。この極薄シリコン酸化膜のキャリア輸送機構として、ピンホールモデルが提案された[2]。ピンホールモデルでは、シリコン酸化膜中に存在するピンホールがキャリアの輸送経路とされており、極薄シリコン酸化膜を用いた太陽電池のキャリアの収集を良く説明する。そのため、ピンホールのサイズや面密度がキャリアの輸送を決定づける重要な因子と考えられる。しかしながら、従来のピンホールの形成方法は熱処理条件のみに依存しているため、ピンホールの構造を変化させることで基板への不純物拡散など他の因子が変化してしまう。これは、キャリア輸送機構の完全な解明の障害となっており、制御性の良いキャリア輸送経路の形成方法が求められている。新たなキャリア輸送経路の形成手法の開発により、極薄シリコン酸化膜を用いた太陽電池のキャリア輸送機構の解明に資するだけでなく、新たな導電性保護膜の開発に貢献できると考えている。

2. 研究の目的

本研究の目的は、シリコンナノ結晶をシリコン酸化膜中のキャリア輸送経路とした新規キャリア輸送法の確立とシリコン酸化膜のキャリア輸送機構の解明である。本研究では、これまで着目されなかったシリコン酸化膜中のキャリア輸送経路の制御に着目し、その手法としてシリコンナノ結晶を絶縁膜中のキャリア輸送経路として利用することを志向した。シリコンナノ結晶をキャリアの輸送経路として活用する手法を確立することができれば、導電性を有した新規保護膜の開発への基盤とすることが可能となり、シリコン酸化膜を保護膜として用いている様々なデバイスへの応用も期待できる。

3. 研究の方法

(1) シリコン酸化膜中のシリコンナノ結晶の作製と構造特性制御

プラズマ援用化学堆積 (PECVD) 法を用いてシリコンナノドットの作製を行った。簡潔な作製方法を図 1 に示す。まず、酸素が豊富な水素化アモルファスシリコンオキシド ($a\text{-SiO}_x\text{:H}$) をシリコン基板に堆積、次にシリコンが豊富な $a\text{-SiO}_y\text{:H}$ を堆積した後、再度酸素が豊富な $a\text{-SiO}_x\text{:H}$ をシリコン基板に堆積した試料を準備する。次いで、3 層構造上に $n^+\text{-a-Si:H}$ を堆積した。作製した試料に対して熱処理を行うことで $a\text{-SiO}_y\text{:H}$ 中にシリコンナノドットが形成される。

この時、熱処理条件を変化させることで、シリコンナノドットのサイズなどマクロな構造特性を制御した。構造評価には、透過型電子顕微鏡 (TEM) を用いて観察を行った。また、分光エリブソメトリー (SE) を用いて作製した薄膜の誘電関数の変化からシリコン酸化膜内の結晶シリコン成分の比率 (EMA) を求めることで結晶化率を調査した。

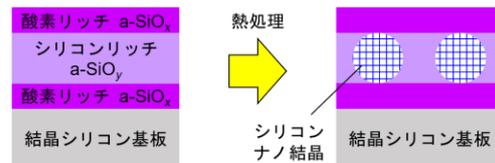


図 1 シリコンナノ結晶をシリコン酸化膜中に形成するプロセス

(2) シリコン酸化膜中のシリコンナノ結晶の保護特性と電気的性能の調査

シリコンナノ結晶の構造特性を変化させた試料に対して、保護性能と電気的特性を評価した。本研究では、太陽電池特性に重要な保護性能と電気的特性をそれぞれ実効キャリア寿命と接触抵抗を主に評価対象とした。実効キャリア寿命 (τ_{eff}) と接触抵抗 (ρ_c) は、それぞれ疑定常状態光伝導度測定[3]と Cox-Strack 法[4]を用いて電流・電圧特性により調べた。

4. 研究成果

図 2 は、SE から求めた EMA の熱処理温度依存性である。図 1 の下層の $a\text{-SiO}_x\text{:H}$ 層の膜厚を 1, 2, 4 nm と変化させた。EMA は熱処理温度の上昇に伴い、増大している。EMA は、作製したシリコン酸化膜中の結晶シリコンの比率を示している。そのため、熱処理温度の上昇により、結晶シリコン成分が増大していることを意味している。

図 3 は、(a)熱処理前と温度が(b) 750 °C と(c) 950 °C で熱処理した際の断面の TEM 像である。下層の $a\text{-SiO}_x\text{:H}$ は、1 nm である。熱処理前には、格子縞は確認されなかったため、アモルファスであることが分かる。750 °C で熱処理することにより、格子縞が確認された。さらに、シリコンのナノ結晶が $a\text{-SiO}_y\text{:H}$ 内にも観察され、アモルファス構造のシリコン酸化膜中にナノ結晶シ

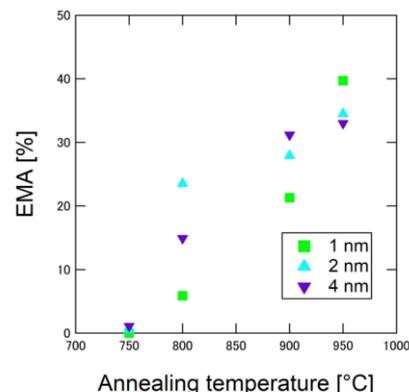


図 2 EMA の熱処理温度依存性

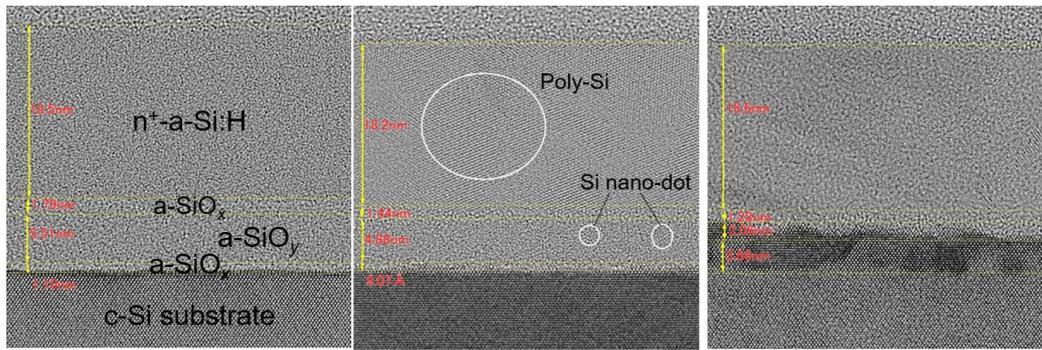


図3 (a)熱処理前と温度が(b) 750 °C と(c) 950 °C で熱処理した際の断面の透過電子顕微鏡像

リコンを有した狙った構造に近いものが作製できた。さらに温度を上げて 950 °C で熱処理を行うと、下層の a-SiO_x:H 層が結晶シリコンの結晶性を引き継いで結晶化してゆくエピタキシャル成長が起きていることが分かった。これらの熱処理による結晶シリコン成分の増加は、図 1 の EMA の傾向とも矛盾しない。

図 4 は、 τ_{eff} の熱処理温度依存性である。 τ_{eff} は熱処理温度の上昇とともに減少している。これは、a-SiO_x:H 層が結晶化していくに伴い、a-SiO_x:H 層と c-Si 基板界面での欠陥が生成され、光生成したキャリアが失活しやすくなったためと考えられる。ナノ結晶が形成されている 750 °C で熱処理した試料に対しては、約 620 μs の τ_{eff} が得られており、良好な保護膜としての機能を有している。

図 5 は、 ρ_c の熱処理依存性である。熱処理温度の上昇とともに ρ_c は減少している。これは、a-SiO_x:H 層内のナノ結晶の比率が増大したことに加え、下層の a-SiO_x:H 層が結晶化していくことにより、キャリアの輸送経路が増大して電流が流れやすくなったことによるものと考えられる。ナノ結晶が形成されている 750 °C で熱処理した試料では ρ_c が約 25 $\text{m}\Omega\cdot\text{cm}^2$ であり、単層の水素化アモルファスシリコンよりは極めて低い接触抵抗率が得られた。

以上から、本研究によりシリコン酸化膜中にシリコンのナノ結晶を形成することができた。さらに、その膜は保護膜としての機能を有しており、かつ導電性を有していた。本助成により、ナノ結晶をキャリア輸送経路とする導電性保護膜の実現へ向けた足掛かりができた。

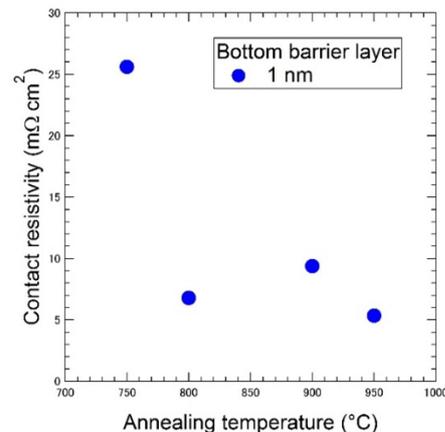
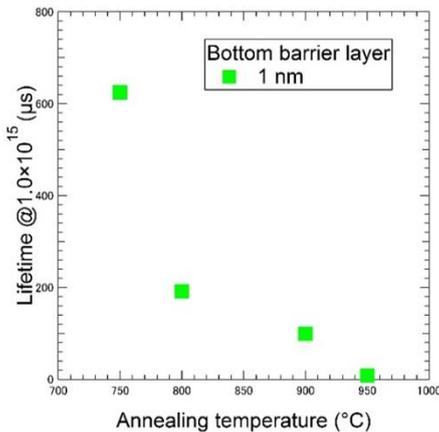


図4 実効キャリアライフタイムの熱処理依存性

図5 接触抵抗率の熱処理依存性

〈引用文献〉

[1] Richter et al., Sol. Energy Mater. Sol. Cells, 173 (2017) 96-105.
 [2] Peibst et al., Sol. Energy Mater. Sol. Cells, 173 (2017) 96-105.
 [3] R. Sinton and A. Cuevas, Appl. Phys. Lett. 69, 2510 (1996).
 [4] R. Cox, H. Strack, Solid-State Electron. 10, (1967) 1213-1218.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Ryohei Tsubata, Kazuhiro Gotoh, Yasuyoshi Kurokawa, Noritaka Usami
2. 発表標題 Fabrication of silicon-nanocrystals-embedded silicon oxide passivating contacts
3. 学会等名 47th IEEE Photovoltaic Specialists Conference (PVSC 47) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Ryohei Tsubata, Yuta Nakagawa, Kazuhiro Gotoh, Yasuyoshi Kurokawa, Noritaka Usami
2. 発表標題 Explorative Studies of Novel Structures as Carrier Selective Contacts
3. 学会等名 Japan-Korea PV joint Student Seminar (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 導電性保護膜および太陽電池	発明者 後藤和泰、津幡亮平、宇佐美徳隆	権利者 国立大学法人 名古屋大学
産業財産権の種類、番号 特許、C20190432	出願年 2020年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----