

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 27 年 5 月 21 日現在

機関番号：13901

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25600084

研究課題名(和文) シリコン融液表面の放射冷却による薄板状結晶成長とガスフロートへの挑戦

研究課題名(英文) Challenge to a new growth technique to fabricate crystalline Si sheet on the melt by the aid of radiative cooling

研究代表者

宇佐美 徳隆 (Usami, Noritaka)

名古屋大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：20262107

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、太陽電池用シリコン基板のコスト低減のため、融液から直接薄板状結晶を成長させる手法を提案した。従来手法では大型インゴットを切断、スライスすることにより薄板状基板を作製しているが、このスライス工程で切削屑により歩留まりが50%となっていた。本研究は、放射冷却を制御することにより融液表面で薄板状結晶を成長させることを目的とした。その結果、融液上面に設置した冷却プレートの位置の変化により、過冷却度を5倍変化できることを計算により示した。また、結晶成長の結果より基板と同じ方位の薄板結晶が得られることが分かった。したがって、本手法を用いることで高品質な薄板結晶を成長できることが示唆された。

研究成果の概要(英文)： We proposed a new growth method to obtain thin crystalline sheets from Si melt to reduce the manufacturing cost. By the conventional method, Si wafers are fabricated by slicing a large scale ingot. During this process, the half of crystalline ingot is wasted due to kerf loss. In this study we attempted to directly grow thin crystals on the Si melt by the aid of radiative cooling. In our designed furnace, a cooling plate is set above the Si melt to control the degree of radiative cooling. At first, we calculate temperature distributions and investigate effect of the cooling plate position on the surface temperature of the Si melt. As a result, the supercooling of the Si melt surface can be changed as large as 5 by shifting the plate position. In addition, we confirmed that the thin crystal can be successfully grown from a Si substrate in an originally designed furnace. Therefore, our proposed growth method is promising to directly obtain high quality crystalline sheet from Si melt.

研究分野：材料工学

キーワード：太陽電池 結晶シリコン 結晶成長

## 1. 研究開始当初の背景

太陽電池は環境・エネルギー問題の対応策として、技術開発と事業化が世界中で加速度的に展開されている。太陽電池の普及、拡大のためには、製造コスト低減が不可欠である。太陽電池材料の主力はシリコンバルク結晶であり、単結晶と多結晶に大別される。中でもシリコン多結晶が現在のところ最も多く使用されている。

その製法は、大量のシリコン原料を電気炉で熔融し、その後一方向凝固させることで大型の多結晶インゴットを得る。このインゴットを所定の寸法のブロックに切り出し、ワイヤーソーで所定の厚みにスライスして基板を得る。この方法ではスライス工程において、製品とほぼ同量の切削屑が発生することが製造コスト低減の大きな妨げとなっている。したがって、数百 $\mu\text{m}$ の板状の Si 結晶を融液から直接製造することが可能となれば歩留まりは約 2 倍に向上することが期待される。

本研究では、熔融ガラスを水蒸気上に安定保持して板ガラスを製造する技術に習って、シリコン融液においてこの技術を応用した新規のシリコン薄板製造技術の開発を試みた。

## 2. 研究の目的

本研究では、シリコン融液の表面を上部空間から放射冷却を行うことで、熱のマネジメントを行い、融液表面に薄板上の結晶を成長させる基礎検討を行う。具体的な方策として、シリコン融液直上に冷却プレートを設置しこのプレートから放射冷却により結晶を成長させる。そしてこのプレートの位置をコントロールすることで微細な熱のマネジメントを実施する。実験では、まず始めに炉内の温度分布計算を行い、冷却プレートの位置と過冷却度との関係を調査した。そして、実際に種結晶を用いシリコン結晶を成長させた。

本研究で提案する手法で太陽電池用のシリコン基板を作製し、切削屑をゼロにすることで、基板のコストを約半分にすることが可能である。

## 3. 研究の方法

### ・結晶成長炉の概略

実験に使用した装置の概略図を図 1 に示

す。炉の中心にシリコン原料を充填した石英ルツボを配置し、側面から種結晶を出入れする構造である。また、融液直上には内部を冷却水により内部を冷やした冷却プレートを備え、このプレートを上下することで過冷却度のコントロールが可能である。石英ルツボの下にカーボン製の抵抗加熱型ヒーターがあり、上部ほど低温となる温度勾配としている。

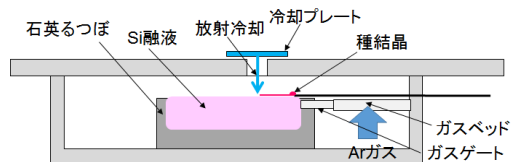


図 1：装置概略図

### ・炉内温度分布計算

本研究で用いた温度分布計算はコンセンレーション・ヒート・アンド・モーメンタム・リミテッド社の 3 次元熱流体解析ソフトウェア PHOENICS を用いて行った。図 2 に計算に用いた固体モデルを示す。ホットゾーン内部は図 1 をモデル化し、下部に円筒状のヒーターを 8 本、上部に冷却プレートを配している。そしてこれらを覆うように断熱材を設置し、その外側に SUS 製のチャンバーがある。また、冷却プレートと融液の間には厚さ 20 mm の断熱材があり、直接的には接しない構造となっている。境界条件としては、チャンバーを 20 $^{\circ}\text{C}$ 、ヒーター温度を 1480 $^{\circ}\text{C}$ 、冷却プレートを 50 $^{\circ}\text{C}$  に固定した。

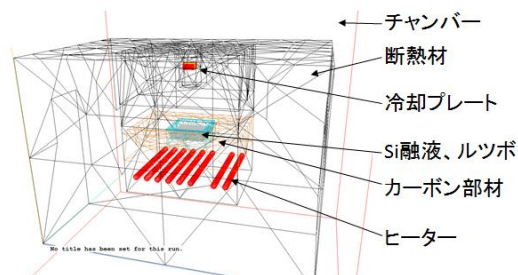


図 2：計算モデル

融液上面での過冷却度を変えるため、冷却プレートの位置を融液面から 70 mm～100 mm の範囲で動かした。

#### 4. 研究成果

##### ・温度分布計算結果

まず始めに本研究で使用した炉の炉内温度分布計算を行った。その結果を図 3 に示す。図中で示す温度範囲は 1390 °C～1450 °C であり、この範囲以外の領域は表示されていない。図より、ヒーターから発生した熱はほぼ真上に流れていることが分かる。しかしながら、冷却プレート下の温度は狙い通り周辺部より冷やされており、融液内部では下に凸の温度分布となっていることが計算結果より示された。したがって、種結晶を融液表面に接触させることで種結晶からエピタキシャル成長した結晶が冷却プレートからの放射冷却により結晶成長を促すことが示唆される。

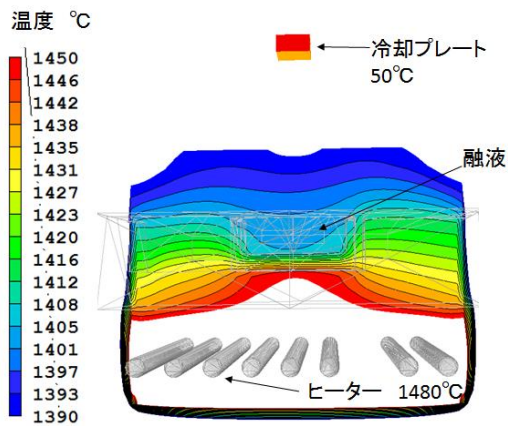


図 3：計算結果の一例

次に融液成長で最も重要なパラメータである過冷却度を制御するために、上部冷却プレートの位置を融液上面からの距離 70～100 mm の範囲で変化させた。その結果を図 4 に示す。冷却プレートの位置が 100 mm～80 mm では温度分布に大きな影響が出ていないが、70 mm では温度の低下が大きいことが分かる。これらの計算結果で、ルツボ中心の融液上面の位置での温度は 100 mm～80 mm までは 1404 °C と変化がほぼ見られ

なかったのに対し、70 mm では 1399 °C となった。したがって、80 mm～70 mm の間で位置を変えることで過冷却度を 5 °C の範囲で制御することが可能である。

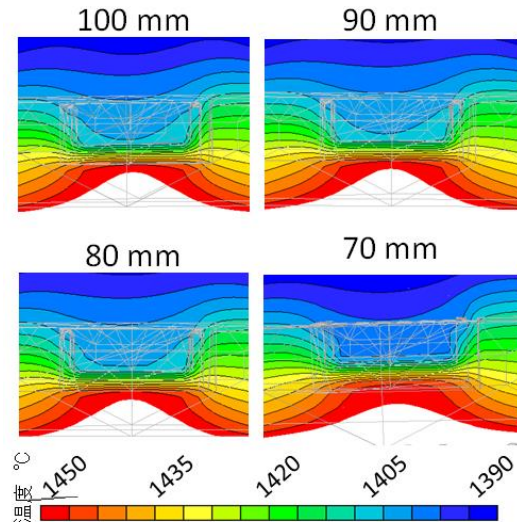


図 4：冷却プレートの位置と温度分布

過冷却度をコントロールすることは、結晶成長速度に直接的に寄与するため、結晶品質に対して非常に大きな影響を与える。本研究では、融液表面に薄く均一な膜をエピタキシャル成長させる必要があり、比較的大きな過冷却度が必要と考える。しかし、過冷却度を大きくしすぎると、エピタキシャル成長界面でΣ3 粒界が発生しデンドライト成長を起こすことが知られている。このデンドライト成長が起こると結晶の方位や結晶の外形が大きく変化してしまうので、デンドライト成長を起こさない程度に出来るだけ過冷却度を大きくする成長が望まれる。今回の計算結果をこのような結晶成長の制御に生かすことで、より高品質な結晶作製が可能である。

##### ・結晶成長結果

最後に本装置を用い、実際にシリコン基板から結晶をエピタキシャル成長させた結果の写真を図 5(a) に示す。写真の下部が種結晶を示し、約 3 mm 程度の結晶が成長している。この結晶を方位解析した結果を図 5(b) に示す。この図では結晶方位を色で表しており、図 5(b) では成長方向の方位を示す。{100} 基板から {100} 面の結晶がエピタ

キシャル成長していることが分かる。したがって、本手法を用いることで基板と同じ方位の薄板結晶の作製が出来ることを示した。



図 5 : Si 基板からエピタキシャル成長させた(a)サンプルの写真と(b)方位解析画像結果

## 5. まとめ

本研究では、シリコン融液から直接薄板結晶を成長させる手法を試みた。炉内温度分布の計算より、融液上面に冷却プレートを設置することで放射冷却が効果的に起こることが分かった。また、冷却プレートの位置を変えることで融液上面の温度を 5 °C の範囲で制御できることを示した。次に、薄板成長の結果より、用いたシリコン基板の方位を受け継ぎ結晶がエピタキシャル成長していることを示した。これらの結果は本研究で提案する手法で、成長速度を制御しながら高品質な薄板結晶を作製できることを示している。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[学会発表] (計 4 件)

[1] Noritaka Usami, “Multiscale Si Based Materials for Photovoltaic Applications”, Eleventh International Conference on

Flow Dynamics, Sendai Japan, 2014/10/8-10, 招待講演

[2] 平松巧也、高橋勲、宇佐美德隆、「Si バルク多結晶の結晶組織制御に向けた炉内温度分布計算」、第 75 回応用物理学会秋季学術講演会、北海道大学、2014 年 9 月 17-20 日

[3] Takuya Hiramatsu, Isao Takahashi, Satoru Matsushima, Noritaka Usami, “Calculation of temperature distribution for controlling growth of dendrite crystals to decrease dislocation density in a multicrystalline Silicon ingot”, The 7<sup>th</sup> forum on the Science and Technology of Silicon Materials, Hamamatsu Japan, 2014/10/19-22

[4] Takuya Hiramatsu, Isao Takahashi, Noritaka Usami, “How can we control adjacent dendrite crystals in parallel direction to realize high-quality multicrystalline Si ingot for solar cells?”, The 6<sup>th</sup> World Conference on Photovoltaic Energy Conversion, Kyoto Japan, 2014/11/23-27

[その他]

ホームページ等

<http://www.numse.nagoya-u.ac.jp/photronics/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

宇佐美 徳隆 (USAMI NORITAKA)

名古屋大学・工学研究科・教授

研究者番号：2026107