

太陽電池用パッシベーション膜の物性評価 Evaluation of passivation layer for solar cells

小椋 厚志^a, 小瀬村 大亮^a, 武井 宗久^a, 立花 福久^a, 永田 晃基^a, 池野 成裕^a,
山口 拓也^a, 船越 正輝^a, 町田 雅武^b, 小金澤 智之^c, 廣沢 一郎^c
Atsushi Ogura^a, Daisuke Kosemura^a, Munehisa Takei^a, Tomihisa Tachibana^a, Kohki Nagata^a,
Norihiro Ikeno^a, Takuya Yamaguchi^a, Masaki Funakoshi^a, Masatake Machida^b,
Tomoyuki Koganezawa^c, Ichirou Hirose^c

^a 明治大学, ^b VG シエンタ株式会社, ^c (財)高輝度光科学研究センター

^a Meiji Univ., ^b VG SCIENTA, ^c JASRI

本課題では、太陽電池パッシベーション膜として注目を浴びている Al_2O_3 膜に関して、パッシベーション性能を左右する固定電荷の起源に迫り、効果的な導入に関する知見を得ることを目的としている。これらを達成するために、成膜条件の異なる Al_2O_3 膜の表面再結合速度および電気特性と化学結合状態の詳細な評価を行い、 $\text{Al}1s$ 、 $\text{O}1s$ の束縛エネルギーの変化を確認した。

キーワード： 太陽電池、パッシベーション、固定電荷

背景と研究目的：

近年地球環境問題に対する盛り上がりから、太陽電池の普及は目覚ましい。今後、低コスト化のために基板の薄型化を進めるにつれて、表面欠陥を抑制するパッシベーション膜の高性能化は変換効率の理論値と実測値とのギャップを埋めるためにますます重要度を増すと考えられる。パッシベーション膜の性能はバルクとの界面における界面準位と膜中の固定電荷密度によって決定される。界面準位制御（＝極小化）の重要性は LSI 等における MOSFET のパッシベーションと同様であるが、固定電荷は少数キャリアを再結合中心である界面から遠ざけることが重要である。したがって p および n 型半導体のそれぞれに対して異なる極性が望まれる。しかしながら、固定電荷密度や界面準位を決定するパラメータの解明にはいまだ至っていない。本研究では、成膜条件の異なる Al_2O_3 膜を用いて、電気特性と化学結合状態の評価から、固定電荷の起源の解明と、その効果的な導入に関する知見を得る。また、界面準位制御の為の SiO_2 膜の成膜条件と界面ラフネスを評価し、最適化された成膜プロセスの知見を得ることを目的とする。

実験：

Al_2O_3 膜用の基板として、膜厚 2nm の酸化膜が成膜されたシリコン基板を用意した。 Al_2O_3 膜の成膜は atomic layer deposition (ALD)法を用い、原料にはオゾン(O_3)とトリメチルアルミニウム($\text{Al}(\text{CH}_3)_3$)を用いた。成膜条件は室温成膜で膜厚 17, 20, 33nm と、基板温度を 350℃、膜厚 30nm とした。硬 X 線光電子分光(HAX-PES)測定により、成膜条件によって膜内の化学結合状態がどのように影響を受けるかを評価し、表面再結合速度および電気特性との関係からパッシベーション性能を左右する固定電荷の起源の解明を行った。表面再結合速度と電気特性から求めた固定電荷密度は室温成膜時において膜

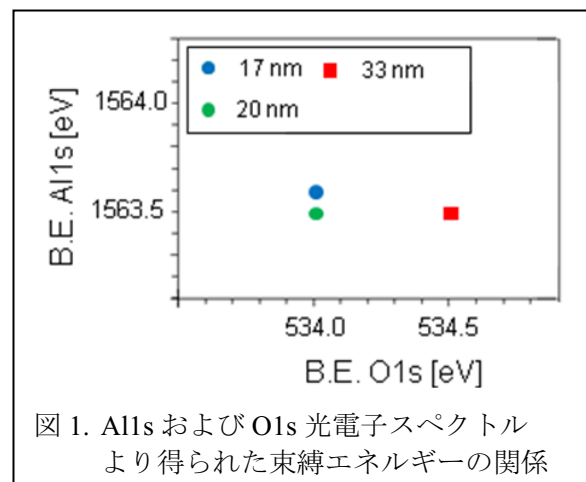


図 1. $\text{Al}1s$ および $\text{O}1s$ 光電子スペクトルより得られた束縛エネルギーの関係

厚が上昇すると負の固定電荷が増大し、表面再結合速度は約半分になっていた。それらの Al1s、O1s の光電子ピークを見てみると O1s だけが大きく変化していた(図 1)。これは、Al₂O₃ 膜が成膜条件によって結合状態が変化している可能性を示しており、また、O の結合状態がパッシベーション性能を左右していると考えられる。

次に成膜温度が室温と 350°C の試料を比較する。図 2 に 2 つの試料の Al1s 光電子スペクトルより得られたピークの結果を示す。2 つのピークに大きな差が見られることが分かる。O1s に関しても同様に 350°C で成膜した試料は低エネルギー側にピークが現れていた。これらのことから、成膜温度によって Al₂O₃ 膜内の化学結合状態は大きく変化していることが考えられる。

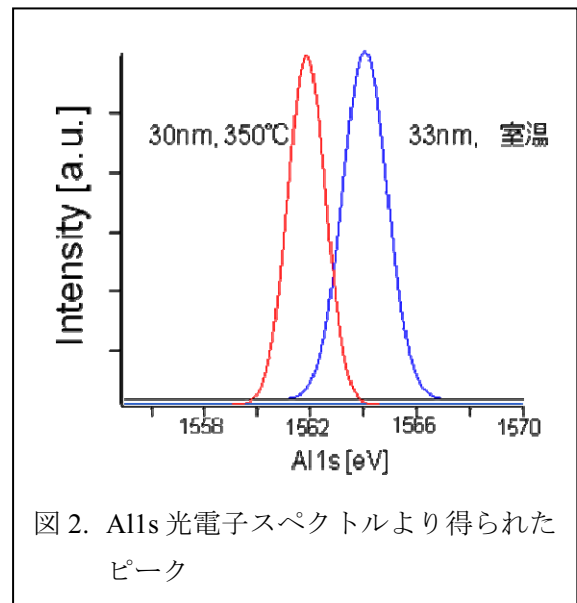


図 2. Al1s 光電子スペクトルより得られたピーク

次に酸化膜の成膜条件と界面ラフネスの評価を X 線反射率法で行った。試料は熱酸化プロセスとプラズマ酸化プロセスによって成膜された SiO₂ 基板を用意した。プラズマ酸化は成膜時の圧力を 133、470、667Pa とした。図 3 に各試料間の界面ラフネスおよび酸化膜レートの関係を示す。棒グラフが酸化膜レートを示し、プロットが界面ラフネスの結果を示している。プラズマ酸化プロセスの結果から成膜時の圧力を変化させることで酸化膜のレートは減少し、界面ラフネスは上昇していることが分かる。また、プラズマ酸化は比較的多く用いられている熱酸化プロセスよりも界面ラフネスを大幅に抑制することが可能となることがわかる。

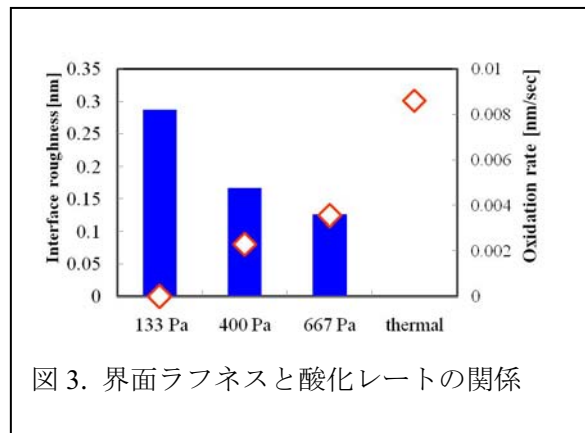


図 3. 界面ラフネスと酸化レートの関係

結果および考察：

本測定によって、ALD 法によって成膜された Al₂O₃ 膜の化学結合状態が成膜条件によって大きく変化することが確かめられた。Al1s の束縛エネルギーは膜厚を変化させることでは大きく変化しないが、基板温度を上昇させると低エネルギー側に移っていた。また、O1s の束縛エネルギーは膜厚、成膜温度共に変化が見られていた。これらのことから、Al₂O₃ 膜の成膜条件は酸素の結合状態に大きく寄与しており、また、酸素の結合状態がパッシベーション性能の優劣に影響を与える一因であると考えられる。また、熱酸化及びプラズマ酸化プロセスによって成膜された SiO₂ 膜の界面ラフネスが成膜条件によって大きく変化することが確認された。界面ラフネスによって界面準位が変化することは容易に想像できるため、より最適な酸化膜作製プロセスを用いることが、高効率太陽電池作製に繋がると考えられる。

今後の課題：

本課題では比較的膜厚の厚い試料を用いて評価を行い、異なる成膜条件による膜内の化学結合状態を明らかにした。しかしながら、成膜条件によって化学結合状態が変化している要因についてはまだ知見が不十分である。また、膜厚による差を考慮すると、膜内で結合状態が変化していることが考えられる。よって、統計的なデータをさらに得ることで、膜内での結合状態の変化、成膜温度による結合状態の変化をより詳細に行う必要がある。