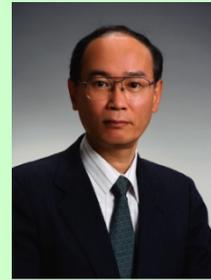


融液中に浮遊させたSi結晶の成長メカニズムの研究と 高品質Si多結晶の成長技術開発

Investigation of crystal growth mechanisms of Si crystals floating on Si melt and development of crystal growth technique to realize high-quality Si multicrystals

中嶋 一雄 (NAKAJIMA KAZUO)

京都大学・大学院エネルギー科学研究科・客員教授



研究の概要 本研究では、申請者らが初めて開発したSi高温融液からSi結晶が成長する過程のその場観察装置を活用して、結晶成長過程の動的条件下で結晶組織や欠陥が形成されていくメカニズムの解明を行う。この知見に基づき、Si融液中の均一核生成を特徴とした浮遊キャスト成長法を基本型として、Si単結晶に匹敵する高品質Siバルク多結晶の成長技術を開発し、20%の変換効率を達成できる高効率太陽電池用の高品質・高均質Si多結晶を実現する。

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物性・結晶工学

キーワード：結晶成長

1. 研究開始当初の背景

地球温暖化が予想以上に急速に進み始め、持続可能な自然エネルギーである太陽電池の位置づけが急速に大きくなった。太陽電池を代替エネルギー源として大きく普及させるには、エネルギー価格を低減できる画期的な技術開発が必要であり、最も実績のあるSi結晶を中心にした新しい発想に基づく、高品質・高均質なSi結晶を実現できる独創的な成長技術の研究が不可欠である。

2. 研究の目的

本研究では、結晶成長という動的条件下でSi多結晶の粒界、転位、粒方位が変化し形成していく未知の過程を詳細に理解し、結晶成長メカニズムの理解に基づき革新的な高品質・高均質Si結晶の成長技術を開発する。

この革新的技術として申請者らが考案したSi融液中の均一核生成を特徴とした浮遊キャスト成長法を基本型として、Si単結晶に匹敵する高品質Siバルク多結晶の成長技術を開発する。

これにより、20%の変換効率を達成できる高効率太陽電池用の高品質・高均質Si多結晶を実現する。

3. 研究の方法

(1) Si結晶が融液から成長する過程の「その場観察」や複合種結晶を利用したモデル結晶を用いた成長実験などの独自手法により、融液上部における核形成に影響する要因の定量的理解、結晶組織や欠陥の形成メカニズム、

浮遊状態でSi結晶を成長させる制御因子の解明を行う。

(2) 浮遊キャスト成長技術の開発と高品質・高均質Siバルク多結晶の作製を行う。

(3) Si多結晶ウェハーを太陽電池メーカに提供し、太陽電池を作製して特性評価を行う。

4. これまでの成果

(1) 結晶成長過程の動的条件下で結晶組織や欠陥が形成されていくメカニズムの解明

【融液上部における核形成に影響する要因の定量的理解】

浮遊キャスト成長法を用いて高品質Si多結晶を得るためには、結晶成長の初期に融液上部において核形成の位置、密度を精密制御し、デンドライト結晶の配列や成長方向を再現性よく制御することが要求される。このためには、Si融液成長に固有の固液界面において形成されるファセットの成長メカニズムをよく理解し、デンドライト結晶の成長メカニズムとの関連を知る必要がある。

本研究では、「その場観察」装置を用いた研究により、成長速度がある臨界値を越えた

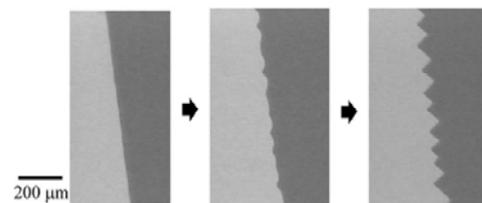


図1 固液界面の揺らぎが成長してファセットが形成される様子

場合に、平坦な形状の固液界面から波状の揺らぎが発生し、揺らぎが成長してファセットが形成されることを見出した(図1)。さらに数値解析により、固液界面近傍の融液中の負の温度勾配が、その要因であることを明らかにした。また、デンドライト結晶の成長に関して、平行双晶を作る溝部と谷部が交互に核形成に寄与して優先成長を繰り返し、デンドライト結晶の先端に三角形の角を形成し、デンドライト状に成長していくことを見出した。これらは、50年を得てSi結晶成長の教科書を書き換える新たな発見である。

【成長過程における結晶組織や欠陥の形成メカニズムの解明および浮遊状態でSi結晶を成長させる制御因子の解明】

複数の単結晶を組み合わせた複合種結晶を用いたモデル成長実験を行い、結晶内の転位の空間分布を測定し、①転位がランダム粒界から発生する、②成長過程に転位が増殖する、③結晶粒界を構成する片方の結晶粒にのみ転位が偏在するという、多結晶に固有な転位発生の挙動を明瞭に観測できた(図2)。転位が発生する結晶粒は、粒界近傍のすべり面にはたらくせん断応力が相対的に大きい結晶粒であることが、実験と応力解析により判明した。この結果は、成長初期に粒界近傍のせん断応力が小さくなるように多結晶組織を制御すれば、結晶成長過程における転位の発生を抑制できることを示す。このような「Si多結晶の組織制御による転位発生の抑制」という概念は、これまで誰も考案しなかった新たな指導原理であり学術的にも応用的にもインパクトが大きい。

また上部からの観察による核形成過程の精密制御により、ルツボとの接触を極力抑えて結晶を浮遊させて成長できる条件を取得した。この技術はルツボからの不純物汚染や歪み低減が実現できる画期的な技術となる。

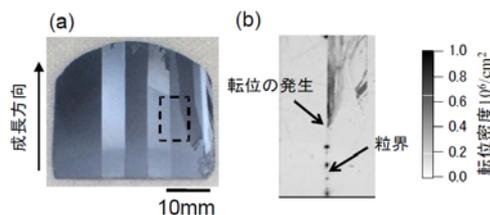


図2 (a)複合種結晶を利用したモデル結晶の断面写真と (b)粒界から転位発生を明瞭に示す転位分布

(2) 浮遊キャスト成長技術の開発と高品質・高均質Siバルク多結晶の作製

浮遊キャスト成長の初期段階において、複数のデンドライト結晶を平行に発現させることにより整合性のよい粒界を形成した。このような組織制御により転位密度を大幅に低減でき、我々が提唱した「多結晶の組織制御による転位発生の抑制」というコンセプト

を実証した。

また、種結晶として単結晶を用い、さらに過冷却度を制御してデンドライト結晶を発現させて、巨大な結晶粒を有するインゴットを作製できた。しかもそのインゴットから得たウェハーの面方位を、デンドライトの優先成長面である{110}と{112}以外の任意の面に調整できることが分かった。

(3) 高効率太陽電池の実現

浮遊キャスト成長法により作製したSiバルク多結晶から切り出したSi多結晶ウェハーを太陽電池メーカーに提供し、太陽電池特性を評価した。種結晶とデンドライト結晶の併用により多結晶組織を制御したウェハーと、デンドライト結晶をランダムに配向させたウェハーを比較した。多結晶組織の制御により、短絡電流密度と開放電圧がともに大幅に向上し、変換効率は17.7%となった。これは参照試料の14.8%と比較して飛躍的に大きく、浮遊キャスト成長法の有用性を示している。

5. 今後の計画

浮遊キャスト成長法の制御性を高め、結晶粒方位、粒界性格、粒サイズ、歪み分布、転位密度などが制御され、不純物が低減された高品質・高均質Si多結晶インゴットを作製する。このウェハーの太陽電池特性評価をメーカーに依頼し、変換効率20%の太陽電池の実現を目指す。これより、浮遊キャスト成長法の実用化に必要な課題を抽出する。

6. これまでの発表論文等

- (1) I. Takahashi, N. Usami, K. Kutsukake, G. Stokkan, K. Morishita, and K. Nakajima "Generation mechanism of dislocations during directional solidification of multicrystalline silicon using artificially designed seed" J. Cryst. Growth 312, 897-901 (2010).
 - (2) N. Usami, R. Yokoyama, I. Takahashi, K. Kutsukake, K. Fujiwara, and K. Nakajima "Relationship between grain boundary structures in Si multicrystals and generation of dislocations during crystal growth" J. Appl. Phys. 107, 013511(2010).
 - (3) M. Tokairin, K. Fujiwara, K. Kutsukake, N. Usami, and K. Nakajima "Formation mechanism of the faceted interface: in-situ observation of the Si (100) crystal-melt interface during crystallization" Phys. Rev. B. 80, 174108 (2009).
 - (4) K. Kutsukake, N. Usami, T. Ohtaniuchi, K. Fujiwara, and K. Nakajima "Quantitative analysis of sub-grain boundaries in Si multicrystals and their impact on electrical properties and solar cell performance" J. Appl. Phys. 105, 044909 (2009).
 - (5) K. Fujiwara, K. Maeda, N. Usami, K. Nakajima "Growth mechanism of Si-faceted dendrites" Phys. Rev. Lett. 101, 055503 (2008).
- ホームページ等
<http://www.xtalphys.imr.tohoku.ac.jp>