

硬 X 線光電子分光法および X 線回折法を用いた太陽電池用 a-Si  
および AlOx パッシベーション膜の構造的・化学的評価  
Structural and Chemical Evaluation of a-Si and AlOx Passivation Films for  
Solar Cells using HAXPES and XRD.

山口 拓也<sup>a</sup>, 永田 晃基<sup>a</sup>, 小椋 厚志<sup>a</sup>  
Takuya Yamaguchi<sup>a</sup>, Kohki Nagata<sup>a</sup>, Atsushi Ogura<sup>a</sup>

<sup>a</sup> 明治大学  
<sup>a</sup> Meiji Univ.

アモルファス Si(a-Si)またはアルミナ(AlOx)により表面パッシベーションを施した p 型 Si における結晶構造および化学結合状態の評価を X 線回折法および硬 X 線光電子分光法を用いて行った。a-Si の結晶構造および電子状態は 170°C から 210°C の成膜温度では非晶質構造を示した。また、さらに高温成膜の条件では、a-Si が結晶様の構造を示した。これらの結果は少数キャリアライフタイムの結果と良い相関を得た。

キーワード： 硬 X 線光電子分光法、X 線回折法、a-Si、パッシベーション膜

#### 背景と研究目的：

結晶 Si 系太陽電池は環境に低負荷なエネルギー供給源であり、発電コストの低減のために基板の薄型化が進められている。しかし、基板薄型化により特性に対する表面の影響が大きくなり、表面パッシベーション膜の高性能化が求められている。パッシベーション膜の高性能化には大きく分けて二種類ある。一つは欠陥や未結合手に起因する界面準位密度(Dit)の低減、もう一つは膜中固定電荷などによる電界効果でバンド変調を利用したキャリア再結合の抑制である。アモルファス Si(a-Si)およびアルミナ(AlOx)薄膜は共に優れたパッシベーション特性を示すが、それぞれの特性を大きく律しているのは a-Si が Dit の低減効果に対して AlOx では固定電荷による電界効果が支配的であると考えられる。そこで、物性評価により実験的に膜構造や化学結合状態の変化と、その結果生じるバンド構造の変調を明らかにするため、本研究では、太陽電池用パッシベーション膜として用いられている a-Si および AlOx 薄膜の評価を行った。

#### 実験：

我々は BL46XU において、X 線回折法では 10keV の X 線源を用い、0.175°の入射角度で測定範囲は 20°~40°程度とした。また、硬 X 線光電子分光法の測定条件は 8keV の X 線源を用いて 80, 55, 30, 15°の光電子脱出角度にて Si1s, Al1s および O1s と価電子帯スペクトルを観測した。エネルギー分解能およびエネルギー校正に関しては、Au の光電子スペクトルを用いた。

#### 結果及び考察：

パッシベーション膜中の結晶構造評価を In-plane XRD 法により実施した。結晶性はあまり高くなく、パッシベーション膜と基板の含有元素が異なるため配向を持つ可能性も低いため、測定範囲は 20°~40°程度とした。図 1 に本測定より得られた回折強度ピークプロファイルをもとに a-Si の堆積温度毎に示した。また、配向性の検討を行うために、異なる 2 つの方位についてスキャンを行った。170°C に重ねて表示した、縦線グラフは一般的な Si 結晶粉末より得られる回折ピーク強度の計算値である。測定値と計算値の比較から明らかのように、170~210°C の領域では非晶質様の構造を反映してピーク幅は広いが、おおむね Si 結晶のピーク位置は保持されているのが分かる。また、方位を変えても強度変化は見られるものの、111 回折点は常に観測されていることから、ごくわずかな配向性しかないことが分かる。一方で、250°C になると回折線の本数が減り、方位ごと

の差が顕著となっている。1つの方位に対して回折条件を満たす回折点が減少しているのは、非晶質のランダムな配向性から結晶質の規則的な配向に変化したことを示唆している。

また、HAXPES 測定を行い、化学結合状態や特に界面における相転移、結晶構造に起因する中間状態量の変化を評価した。8keVのX線源を用いて80, 55, 30, 15°の光電子脱出角度にてSi1s, Si2pおよびO1sと価電子帯スペクトルを観測した。図2に回折実験で最も差の現れた210, 250°Cのa-Siより得られた価電子帯スペクトルを示す。210°Cでは、比較的にブロードなピークが観測された。一方で、250°Cの条件では、9eV程度の領域に鋭いピークが観測されており、結晶質Siに近い電子構造を取っていることが判明した。また、フェルミエネルギー近傍での挙動にも差異が確認された。これらの結果から、非晶質Siの膜中の原子構造および電子構造は堆積温度によって大きく影響を受けて変化し、250°C付近では結晶質Siに非常に近い挙動を示すことが明らかになった。先行して行われたライフタイム測定では、成膜温度が高いほど、良好なパッシベーション性能を得られるが、250°C付近では急激に性能の低下が生じることが明らかになっており、これらの結果とも良い相関が得られている。

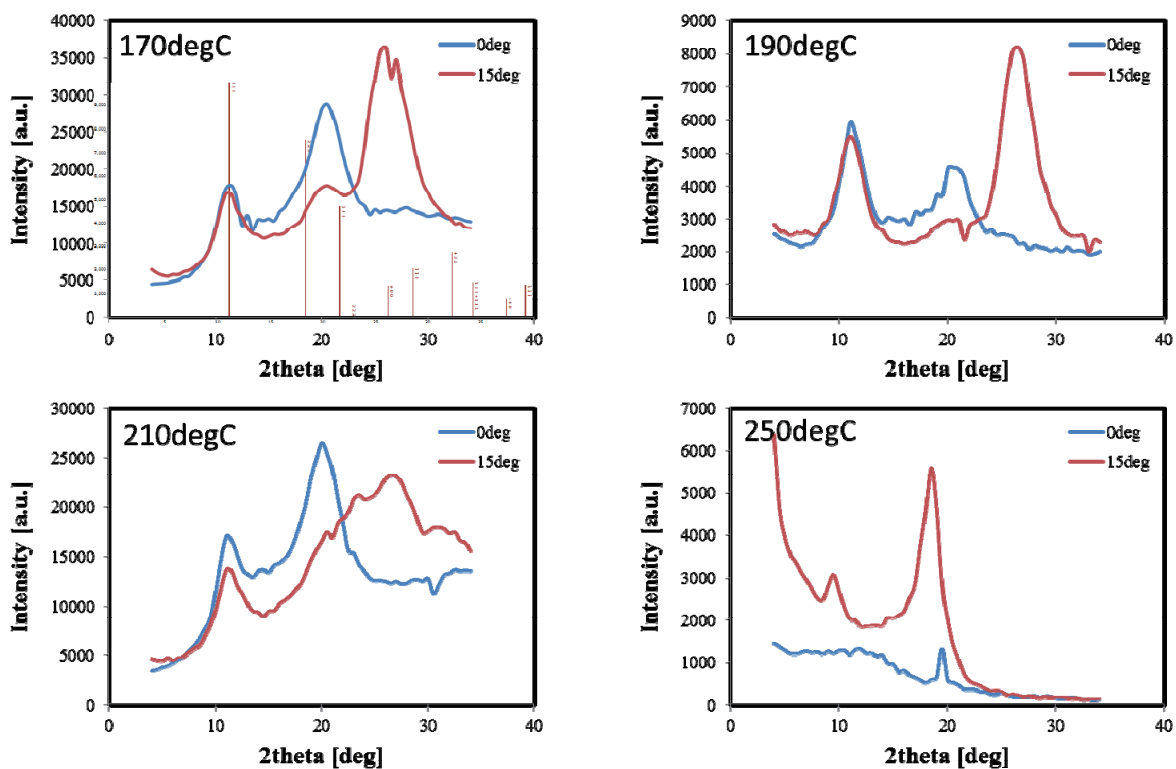


図1. GIXD 測定により得られた(a)熱酸化および(b)プラズマ酸化膜における回折強度プロファイル

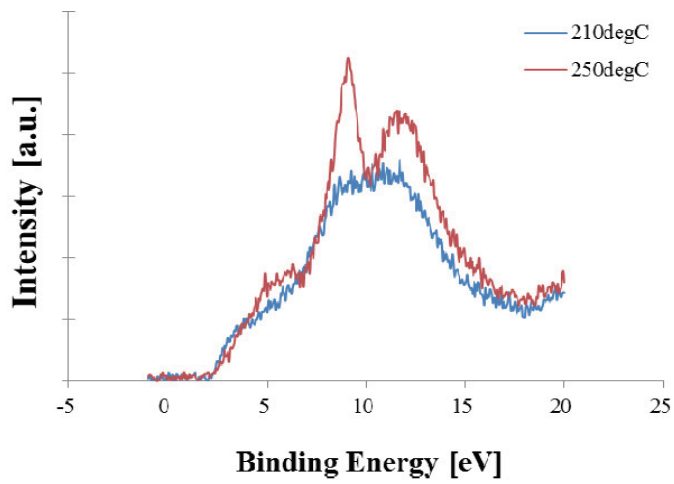


図2. 価電子帯スペクトルの温度依存性

**今後の課題：**

太陽電池用パッシベーション膜の特性には膜中の物理的・電子的構造が非常に大きく影響を与えており、その制御がより高性能なパッシベーション膜の成膜に不可欠であることが示された。