

## 審査の結果の要旨

論文提出者氏名 喜多 浩之

太陽光エネルギーは、クリーンで無尽蔵であることから自然エネルギーとして最も注目されているが、その有効な利用のためには低コスト且つ高効率な太陽電池を大量生産して広く普及させることが必要であり、そのような太陽電池の材料として有望なのが多結晶薄膜 Si である。大幅な低コスト化が望まれており、その一方で高品質な多結晶薄膜が必要であり、これらを両立する製造法の開発が不可欠である。低融点金属と Si の溶液から Si 結晶を成長させる溶解析出法は、低温でありながら液相成長法であるので高品質な薄膜を低コストに製造する可能性のある手法である。しかし従来の溶解析出法では高価な結晶 Si を基板とし、製膜速度も小さい。工業化のためには低コスト材料を基板に用いた高速製造プロセスとすることが重要である。本論文は、「金属-シリコン溶液を用いた太陽電池用多結晶シリコンの新規製造プロセス」と題し、温度勾配を利用した溶解析出法によって、高品質な薄膜を低コストに製造する新しいプロセスを提案し、その実現可能性を検討したものであり、全部で7章からなる。

第1章では、太陽電池用多結晶 Si 薄膜の重要性と要求される特性を整理し、新たな製造プロセスの必要性について述べるとともに、本論文で提案する新しい製造プロセスの特徴を説明している。溶解析出法の工業化のためには低コスト材料を基板とした高速な連続製膜を行うことが重要であり、そのためには、温度勾配下で製造するプロセスが相応しいことを述べている。

第2章では、Si 以外の材料を基板とした温度勾配下での溶解析出法の実験の結果から、本製造プロセスの実施上の問題点を把握し、本論文で説明すべき論点を整理している。これらの検討から Si 以外の材料の基板上で低い過飽和度で Si を成長させるための方策と、その Si 結晶が金属-Si 溶液中で成長する機構を把握すること、の2点が重要であることを明らかにした。

第3章では、本製造プロセスの溶媒金属として Cu が最も優れた溶媒であることを示した。また、成長した薄膜への Cu 混入による影響の定量化と、その対策の検討を行っている。Si 中に異なる濃度で Cu が混入したときのキャリア寿命の変化から太陽電池性能への影響を明確化し、次にゲッターリングと呼ばれる不純物除去法の適用によりキャリア寿命が向上することを確認し、Cu の混入による太陽電池性能への影響を抑制することが可能であることを示した。

第4章では製膜実験と計算による製膜のシミュレーションの比較によって、本論文の製造プロセスにおける薄膜成長機構を解明し、高速な連続製造法の可能性を示している。温度勾配下におかれた溶液が冷却されるときに結晶成長速度は、温度分布によって生じる濃度分布を考慮し、固液界面において過飽和度をゼロとする境界条件での溶液中の Si の拡散によって支配されていることを示した。また、このモデルの計算結果から、高速な連続製造プロセスが実現できる可能性を示した。

第5章では、本論文の製造プロセスへの低コスト基板の使用可能性を検討するために、Si 以外の材料を基板とする成長方法について具体的に2つの方策を示している。第一は種結晶を制御

よく緻密に配置する方法であり、Si が部分的に露出した Si 酸化膜上で、Cu-Si 溶液から Si の連続膜を製膜可能であることを示した。第二は基板と Si の化学的親和性を高める方法であり、Al による SiO<sub>2</sub> の還元反応を利用して、Al を添加した Cu-Si 溶液から SiO<sub>2</sub> 基板上に Si の連続膜が成長することを示した。

第 6 章では前章までの検討結果に基づいて製造プロセスを具体化し、その設計に基づいて薄膜製造コストおよび薄膜製造エネルギーの評価を行っている。従来のキャスト基板製造法を適用した場合に比べて製造コストを 20 分の 1 に、製造エネルギーを 10 分の 1 に低減することが推定され、本論文の製造プロセスの優位性を示した。

第 7 章は、研究成果のまとめである。

以上、本論文は金属-Si 溶液を用いたシリコン薄膜製造法について結晶成長機構を解明するとともに、太陽電池用の Si 薄膜の新規製造プロセスとして応用可能であることを明らかにしたものであり、化学システム工学の発展に大いに寄与するものである。よって本論文は博士(工学)の学位請求論文として合格と認められる。