

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 瀧原 昌輝

本論文は、「“Local Characterization on Solar Cells by Photoassisted Kelvin Probe Force Microscopy” (光ケルビンプローブフォース顕微鏡による太陽電池の局所的物性評価)」と題し、ケルビンプローブフォース顕微鏡 (KFM) を光照射下で動作させることによって実現した光 KFM を用いた新しい評価手法の開拓とそれによる太陽電池材料の局所的評価を行った結果について述べたものであり、全 6 章から成り、英文で書かれている。

第 1 章は「Introduction (はじめに)」であり、本研究の背景を解説している。太陽電池の変換効率向上のためには、それらの材料レベルでの評価が大切であることを指摘し、また、そこから得られた知見を太陽電池の高効率化への取り組みにフィードバックすることの重要性について述べている。特に、多結晶や微結晶材料系の太陽電池を評価するためにはナノ領域における局所的評価が必要であり、その目的には走査プローブ顕微鏡が有効であることを示している。さらに、太陽電池や走査プローブ顕微鏡の原理など、実験によって得られたデータを精査するために必要な基本的事項に言及するとともに、本論文の構成を述べている。

第 2 章は「Photoassisted Kelvin Probe Force Microscopy (光ケルビンプローブフォース顕微鏡)」と題し、一般的な KFM の動作原理を述べた後、本論文で新しい評価手法として提案している光 KFM の概略や新しいポテンシャル決定法、光 KFM で用いるピエゾ抵抗カンチレバーなどについて解説を加えた上で、局所的な光起電力計測系の具体的な構成について述べている。まず、一般的なカンチレバーの変位検出法である光てこ方式では、試料表面への漏れ光の影響で、光起電力測定 of 正確さに懸念が生じることを指摘し、正確な光起電力測定を実現するためには、変位検出に光を必要としないピエゾ抵抗カンチレバーの使用が有効であることを述べている。その上で、同カンチレバーによるポテンシャル測定では、カンチレバー内部のピエゾ抵抗素子部と試料の間の容量性結合による変位電流信号成分が外乱となるために通常のポテンシャル決定法では正しいポテンシャル測定が行えないことを指摘し、この問題点の解決法として、交流である変位検出系の信号の位相成分に着目したフィードバック制御法と、変位電流信号成分の大部分を擬似的な交流電圧信号によって相殺する方法を新たに提案し、それらの方法を導入した光 KFM 実験系の構成と光起電力決定の手順等を示している。

第 3 章は「Development of Novel Methods Using P-KFM and Characterization on Multicrystalline Silicon Solar Cells (光 KFM を用いた新しい評価手法の開拓と多結晶シリコン太陽電池評価)」と題し、光 KFM による光起電力の計測法や少数キャリアの拡散長、ライフタイム、移動度を評価する手法の原理を示し、それらの測定手法を多結晶シリコン太陽電池に適用して得られた結果と考察を述べている。まず、光 KFM による光起電力測定では、太陽電池に照射する光強度の増大に伴って光起電力が増加しつつ飽和する傾向が得られており、本手法による光起電力測定 of 妥当性が確認されている。また、多結晶シリコン太陽電池の結晶粒界で光起電力が低下する結果が得られており、この光起電力の低下は暗状態でのポテンシャル分布から予測される光励起キャリアの再分布の状態によって説明できることを示している。次いで、少数キャリアの拡散長測定では、一般的な手法である SPV 法の原理を光 KFM に適用

できることを示し、さらに SPV 法よりも高空間分解能な測定を実現できることが示されている。また、結晶粒界近傍で拡散長の低下が観測されたことも示されている。一方、少数キャリアのライフタイムは、オン・オフ変調した光を試料に照射した際の時間平均光起電力を測定し、その周波数依存性を元にして光起電力減衰の時定数として、数値的に導出できることを示している。また本手法は、一般的な手法である μ -PCD 法と比べて、十分な空間分解能を持っていること、バルク内再結合ライフタイムと表面再結合ライフタイムの切り分けが可能であると考えられることから測定前のパッシベーション処理が不要であること、を指摘している。実際のライフタイム測定の結果、結晶粒界近傍でライフタイムの低下が観測されることが示されている。このように、結晶粒界近傍で、光起電力、拡散長、ライフタイムといった諸特性が劣化しているという結果は、結晶粒界がキャリアのリークパスや再結合サイトとして働いてしまい、それらが太陽電池素子の特性に悪影響を及ぼしていることを示している。また、拡散長とライフタイムの値から計算的に少数キャリアの移動度を求められることや、異なる結晶粒では、拡散長、ライフタイム、移動度などの諸特性が異っており、結晶粒毎に結晶の品質の差異があることも指摘している。

第 4 章は「Characterization on CuInSe₂ Solar Cells by P-KFM (光 KFM による CuInSe₂ 系太陽電池評価)」と題し、CuInSe₂ 系材料である CuInGaSe₂ (CIGS)と CuInAlSe₂ (CIAS)材料の薄膜と太陽電池構造に対して、光 KFM にてポテンシャル及び光起電力分布測定を行った結果、ならびに走査トンネル分光法 (STS) によってバンドギャップを推定した結果を述べるとともに、それらから総合的に推定された CIGS 薄膜の結晶粒界近傍におけるバンドプロファイルを示し、それと光起電力の空間分布との関連性について議論している。まず、光 KFM でのポテンシャル測定および光起電力測定によって、CIGS や CIAS の薄膜および太陽電池構造では、結晶粒界付近でポテンシャルが低下するとともに光起電力が増大するという、多結晶シリコン太陽電池の結晶粒界とは対照的な振る舞いが見られることを明らかにしている。この結晶粒界近傍でのポテンシャル低下分 (ビルトインポテンシャル) と光起電力分布について CIGS 材料中 Ga 濃度に対する依存性を実験的に調べた結果、Ga 濃度の上昇に伴ってビルトインポテンシャルが小さくなると同時に光起電力分布は均一化することが示されている。一方、結晶粒中央部と粒界近傍にて STS 測定を行い、コンダクタンスがほぼ零となるバイアス電圧幅からバンドギャップ幅を推定した結果、結晶粒界近傍ではバンドギャップ幅が増加することを見出している。先のポテンシャル分布と合わせてバンドプロファイルを描くことにより、結晶粒界付近では、強い内蔵電界によって光キャリアの空間分離効果が増大し、実効的な再結合確率が減少している可能性があることを指摘している。

第 5 章は「Conclusion (結論)」であり、本論文全体の研究成果をまとめて要約するとともにその意義を述べている。

第 6 章は「Future Works (今後の課題)」であり、多結晶シリコン材料でのライフタイム測定と同様の手法により、CIS 系太陽電池におけるキャリア再結合の時定数を測定することの意義などを述べている。

以上これを要するに、本論文は、 piezo 抵抗カンチレバーと新しいポテンシャル決定手法を導入して構築した光 KFM 測定系を利用して、多結晶シリコン太陽電池と CIS 系薄膜太陽電池の結晶粒界近傍におけるポテンシャルや光起電力分布、あるいは、少数キャリアの拡散長、ライフタイム、移動度などの物性パラメータを局所的に計測することによって、両材料系の結晶粒界近傍でのバンドプロファイルを推定するとともに、それらと光起電力特性や光キャリアの振舞いとの関連性を明らかにしたものであり、電子工学上、寄与するところが少なくない。

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。