

(様式第9 別紙2：公開版)

養成技術者の研究・研修成果等

1. 養成技術者氏名： 磯前 誠一

2. 養成カリキュラム名： 球状シリコンの高速製造技術開発

3. 養成カリキュラムの達成状況

滴下実験において溶融温度の低温化、ノズル下温度勾配による過冷却制御を検討すると同時に、落下塔内の不活性ガス雰囲気強化、さらに不活性ガスによる軽元素不純物ガスの積極的排気を行って、着実にシリコン球の高品質化を図ることができた。本年度は高品質化を最優先に進めたことにより、高速化は未検討となったが、全体としてカリキュラムは、ほぼ予定どおり達成できたものと考えている。

坩堝材に関しても、ノズル先端形状について改良検討を加え、滴下安定性を向上させることができた。下期に坩堝材の材料を変更したことで新たな問題が発生したが、これについてはシリコン球の品質・形状と関係するので、16年度も引き続いて検討を行う。

4. 成果

4.1 研究の背景と目的

現在、普及しているパルクシリコン系太陽電池は高品質で信頼性に優れるが、ユビキタス電源としてさらなる普及を図るには、コストが高く、形状対応性等に多くの問題がある。球状シリコン太陽電池は、1991年にTexas Instruments社より、その基本的な考えが発表されていたが、本格的には実用化されなかった。しかし、最近、低コスト化、軽量化ならびにフレキシブル性、形状対応性の観点から球状シリコン太陽電池は、注目を浴びるようになり、ユビキタス電源として活用できる可能性も考えられている。本太陽電池の実用化、大量普及には、基本となる高品質な球状シリコン結晶の高速製造化技術の開発が最も重要となる。

4.2 研究の概要

変換効率10%以上の高品質シリコン球(1mm径)の取得を目標に、

不活性ガスの積極的利用による滴下球の性状改善、ならびに軽元素不純物の低減

新規導入した滴下実験炉(2号炉)での過冷却制御

を中心に実験・開発を進めた。以上の2項目の他に溶融温度の低温化検討も併せて行った結果、単セルで最高変換効率10.8%を達成することができた。

また、上記滴下プロセスの条件検討に加えて、滴下安定性の観点から、坩堝材、ノズル形状などの最適化検討も行い、坩堝のコスト低減を図った。

4.3 高品質シリコン結晶球製造技術の開発

4-3-1 滴下装置

図1に滴下装置の概略を示す。シリコンを溶融した坩堝内に、不活性ガスを加圧供給することにより、底部のノズルから溶融シリコンを落下塔内に吐出して落下させる。溶融シリコンは、塔内を

落下中に、その表面張力により球状となり、固化（結晶化）する。球状シリコンの粒径は滴下速度に強く依存し、結晶性は滴下速度に加えてガス雰囲気、坩堝高さ、熔融温度等の滴下プロセス条件に依存する。

4-3-2 粒径分布

図2に、粒径分布のノズル径、ノズル長L、滴下圧力の依存性を調べた結果(熔融温度 1500)を示す。この坩堝材の場合、0.9 ~ 1.1mm 径のシリコン粒を得るには、ノズル径 0.3 mm、ノズル長 9 mm、滴下圧 30 kPa の条件が最適であることが分かる。本条件下での上記サイズ粒の製造速度は 300 個/秒である。

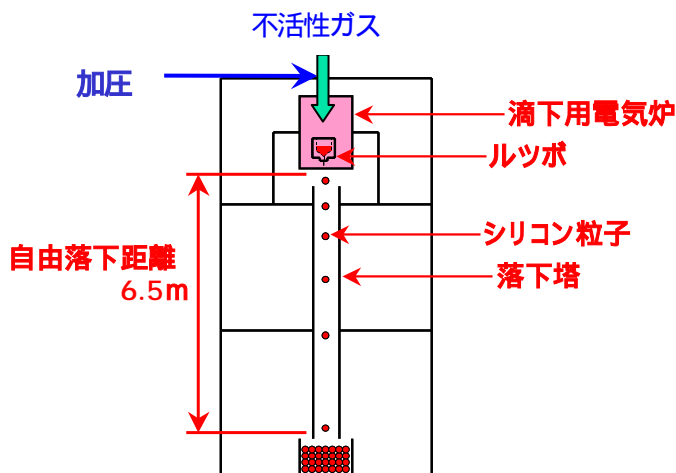


図1.球状シリコン滴下装置の概略

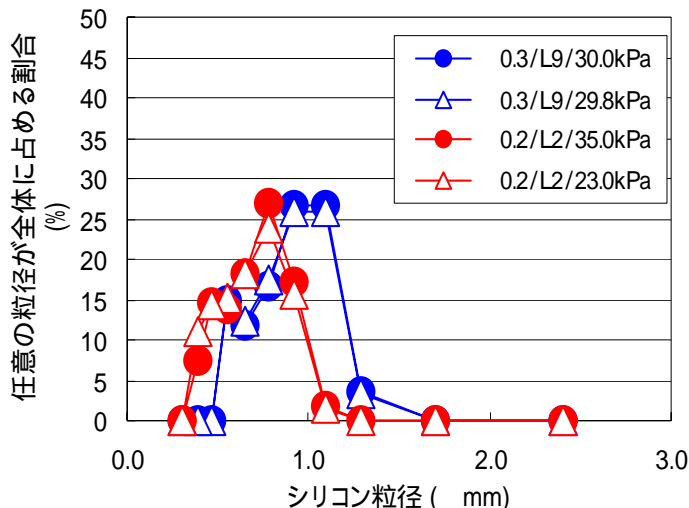
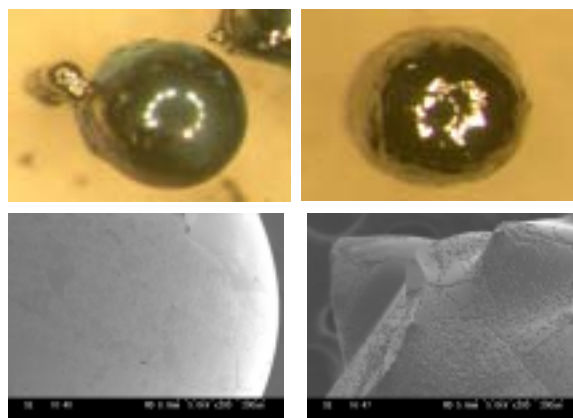


図2.粒径分布のノズル径長(,L)、滴下圧依存性

4-3-3 シリコン球の性状

新規導入炉での不活性ガス雰囲気滴下により、従来よりも結晶性・外観形状ともに良好なシリコン粒子を得ることができるようになり、その機械的強度も向上した。図3に得られたシリコン粒子の外観形状を示す。図の上側が光学写真、下側がSEM写真(×125)である。これまでのティアドロップ(TD)形状と比較して、光沢表面が角張り、ゴツゴツしているのが特徴で、数~10個のグレインで形成されている多結晶球である(以後、G球と略記)。球内部の結晶性を比較するた



(a) TD球 (b) G球
図3 シリコン粒外観形状の比較

め、表面を 50 μm エッチングしてライフタイムの計測を行った結果、G球（平均値 0.42 μs ）のほうがTD球（平均値 0.18 μs ）よりも高いことが判明し、G球で結晶性が向上していることが確認できた。

4-3-4 過冷却制御と軽元素不純物の低減

上記G球の高品質化を図るには、滴下プロセスでの冷却制御と不純物低減の2項目の検討が重要である。

球の冷却条件を熔融帯域での坩堝高さ位置（ノズル下での温度勾配）を変えることにより検討した。図4にノズル下での不活性ガスの温度分布と坩堝高さ位置 z との関係の一例を示す。 $z=0$ がヒーターの中心で、 \pm 符号はそれぞれ中心より上下に坩堝

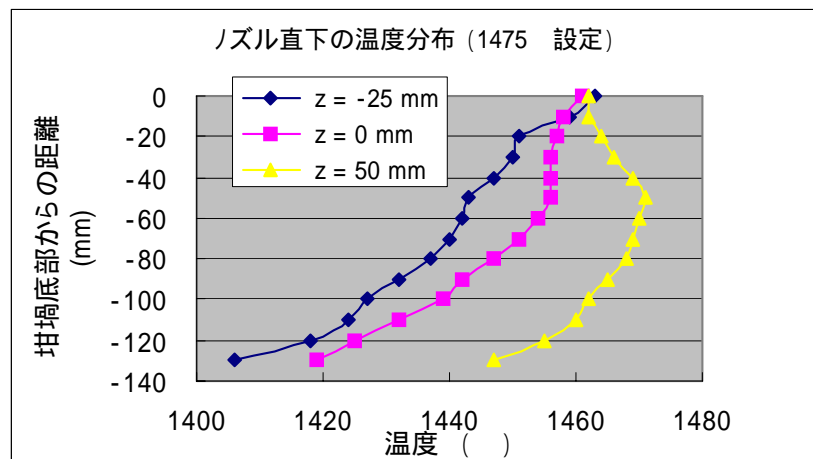


図4 ノズル下温度分布の坩堝高さ位置依存性

の位置があることを意味し、位置 z により温度分布が数十 $^{\circ}\text{C}$ 以上変化することが分かる。電池出力特性は坩堝高さが + 位置（とく $z > 50$ ）のときのほうが良好で、- 位置と比較して平均変換効率 Eff で 1.2% の向上が図られた。

坩堝内で発生する軽元素不純物ガス（ SiO , CO ）の強制排気を行うため、坩堝内に不活性ガスを導入・排気できる2重パイプ構造を採用し、変換効率と不活性ガス流量との関係を調べた（図5参照）。不活性ガス流量の増加により、変換効率が向上したことが分かる。

4-3-5 まとめと今後の課題

今後の課題としては、まだ 1.0 μs 以上のライフタイムを持つG球の数が少ないので、バルク結晶性の向上を図ること、また、同一滴下ロットでの球品質のバラツキが大きいので、バラツキの要因解明とその改善対策（滴下プロセス条件と設備での）が急務となる。

さらに、滴下安定性の観点から、ノズル径長等のさらなる検討も行うと同時に、滴下速度の調整を行い、高品質G球の取得率の大幅向上を図ることも必要となる。

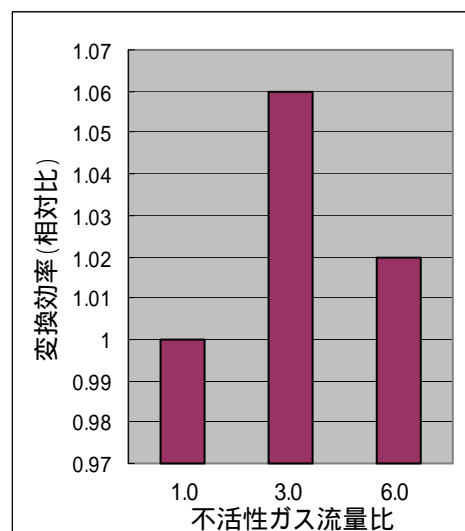


図5 変換効率と不活性ガス流量

5. 成果の対外的発表等

(1) 論文発表(論文掲載済、または査読済を対象。コピーを添付。)

なし

(2) 口頭発表(発表済を対象。予稿集のコピーを添付。)

「太陽電池用球状Siの結晶性」千津井、加藤、磯前、室園、山口

第64回応用物理学会学術講演会(平成15年9月)

「球状Si結晶成長」葛岡、千津井、磯前、山口

第53回理論応用力学講演会(平成16年1月)

(3) 特許等(出願番号を記載)

なし