

2019年度 若手・女性研究者奨励金 レポート

研究課題	化合物薄膜太陽電池の高性能化に関する研究 —相転移を利用した表面及び膜中損失低減技術—
キーワード	①エネルギー、②太陽電池、③化合物半導体

研究者の所属・氏名等

フリガナ 氏名	ニシムラ タカヒト 西村 昂人	所属等	立命館大学 立命館グローバル・ イノベーション研究機構 助教
プロフィール	2013年、東京工業大学電子物理工学専攻の修士課程入学後、化合物薄膜太陽電池に関する結晶成長及びデバイス開発に没頭する。2015年、同大学博士課程に進学し、学振特別研究員を兼任する。2018年に博士号を取得し、立命館大学助教として着任後も、引き続き太陽電池研究に従事している。		

1. 研究の概要

再生可能エネルギー源である太陽光を電気に直接変換する太陽光発電は、エネルギー・資源問題の解決策の一つとして期待されており、その更なる普及に向けた、太陽電池デバイスの高性能化・低コスト化技術の開発が要求される。Cu(In,Ga)Se₂(CIGS)は優れた光吸収特性を有することから、太陽電池の発電層として用いる場合、数 μm まで薄膜化が可能である。フレキシブル基板を用いることで、フレキシブルかつ軽量の太陽電池の作製が可能となり、曲面や低耐荷重の建築物などで設置できることから太陽電池の応用領域拡大が期待される。また、Roll-to-Roll 製造プロセスを導入できるため、高スループット化による大幅な製造コスト削減が見込まれる。本研究では、ユニークな物性で今後の応用展開が期待される CIGS 太陽電池の高性能化に向け、CIGS 薄膜における独自の結晶成長法の開発を目指す。

2. 研究の動機、目的

CIGS 太陽電池の高性能化に向けて、CIGS の前駆体である Cu-Se 系化合物の固相と液相の 2 相共存状態に着目し、「Cu_(2-x)Se 固相を制御することで Cu 欠損層の形成による接合界面損失低減」と、「Cu-Se 液相を制御することで固液界面でのフラックス成長を介した CIGS 結晶品質改善によるバルク内損失低減」を目指す。本稿では、(i)固液 2 相共存状態の形成メカニズム解明に向けた CIGS 成長過程の観察法の確立と、(ii)CIGS 表面における Cu 欠損層形成による界面損失低減効果の検証の成果について報告する。

(i) 固液2相共存状態の形成メカニズム解明に向けたCIGS成長過程の観察法の確立

Cu-Se系化合物は、CuとSeの割合の変化に伴ってCu₂Se固相、Cu_(2-x)Se固相、Cu_(2-x)Se固相とCu-Se液相との2相共存状態など、様々な相状態が存在する。CIGS膜の表面でCu_(2-x)Se固相が形成される段階でSe₂気相を供給することで、Cu_(2-x)Se固相とCu-Se液相との2相分離状態の形成が期待できる。本研究では、CIGS最表面における複雑な組成変動機構を理解するため、ヘリウムガス衝突噴流による急速冷却技術を適用したCIGS成長過程の観察方法を提案する。急速冷却により、自然冷却過程で生じる異相の形成や、元素拡散、液相の凝集を抑制し、成長段階にあるCIGS膜の様相を室温まで保持することが可能となり、成長過程の組成分布を可視化できる。急冷機構付管状炉を自作し、実際にこれを用いてCIGSの成膜を試みた。

(ii) CIGS表面におけるCu欠損層の形成による界面損失低減効果の検証

CIGSにおけるCu元素割合が減少すると価電子帯頂上は低下する。CIGS表面でCu欠損層が形成されれば、価電子帯不連続の形成により電荷分離が可能となり、界面損失の低減が期待できる。CIGSの成長過程において、Cu組成が不足した $\text{Cu}_{(2-x)}\text{Se}$ 固相が表面に形成されると、これを前駆体として、最終的にCu欠損層の形成が予想される。本研究では、Se元素供給による $\text{Cu}_{(2-x)}\text{Se}$ 固相の制御を通じてCIGS表面に均一なCu欠損層を形成し、その効果について議論する。

3. 研究の結果

● 急冷機構付管状炉の作製、及び冷却性能の検証

作製した管状炉には、0~10L/minの範囲でヘリウムガスの流量調整が可能なノズルを導入した。CIGS結晶成長に用いられる基板温度約600°Cから室温まで自然冷却を行うと、約2時間以上の冷却時間を要する一方で、ヘリウムガスの流速10L/minで基板の急速冷却を行ったところ、約1秒で室温まで冷却できることを確認した。これらの結果は、急速冷却技術を適用することで、自然冷却過程で生じる異相の形成や、元素拡散、液相の凝集を抑制し、成長段階にあるCIGS薄膜の様相を室温まで保持することが可能であることを示すものである。



図 1. 自作の急冷機構付管状炉による実験の様子

● Cu欠損層形成による界面損失低減効果の検証

Cu-Se系化合物の化学平衡状態の制御のため、CIGS結晶成長の途中段階で Se_2 気相の供給を試みた。 Se_2 気相を5分間供給した結果、CIGSバルク内の $\text{Cu}/(\text{Ga}+\text{In})$ 比が0.90~0.95であったのに対して、100~150nmの表面領域で $\text{Cu}/(\text{Ga}+\text{In})$ 比が0.3に低下することが明らかとなった。紫外光電子分光法を用いて、CIGSバルク内と表面領域の価電子帯評価を行った結果、CIGS表面領域の価電子帯はバルク内と比較して、約0.15 eV深くなることを見出した。 Se_2 気相の供給無しの場合と、 Se_2 気相の供給を5分間行った場合のCIGS薄膜を用いて太陽電池を作製したところ、 Se_2 気相の供給無しを試料では変換効率が17.8%であったのに対して、 Se_2 気相を5分間供給した試料においては変換効率19.8%を達成した。これは、Se元素供給により均一なCu欠損層がCIGS表面に形成され、太陽電池の構造界面での損失が低減されたことを示すものである。

4. 研究者としてのこれからの展望

社会的課題がグローバル化・複雑化する時代においては、単一の研究領域に止まることなく、分野を横断した融合的研究の推進と新領域の開拓が必要不可欠である。本研究課題で提案した半導体結晶成長法は、他の研究分野から着想を得たものである。今後、本研究で構築した要素技術を更に深化させると共に、分野間の垣根を越えた活発な研究活動を展開することで、多角的観点と広い視野から新規の機能性材料、デバイス技術などのエネルギー技術開発を通じて、持続的社会の構築に貢献したい。

5. 社会に対するメッセージ

本研究で開発した半導体成膜過程における急速冷却技術は、これまで困難であった半導体成長段階の詳細情報の取得や、新たな結晶成長法による物性制御など、エネルギー分野における新材料・デバイス開発に大きく貢献する可能性がある。本研究は、提案者が助教として着任後に着想したものである。本研究支援を通じて、アカデミアでの研究生生活のスタートを切ると共に、本研究助成の若手研究者間での交流を始めとした研究ネットワーク構築の経験を経るなど、様々な視点や考察の仕方を学ぶきっかけとなった。本研究をご支援頂いた関係の方々へ深く感謝したい。