

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	高効率・広バンドギャップAg(In,Ga)Se ₂ 太陽電池の研究
Title(English)	Study of high efficiency wide-bandgap Ag(In,Ga)Se ₂ solar cells
著者(和文)	梅原猛
Author(English)	Takeshi Umehara
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第10640号, 授与年月日:2017年9月20日, 学位の種別:課程博士, 審査員:山田 明,中川 茂樹,宮島 晋介,間中 孝彰,PHAM NAM HAI,峯元 高志
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10640号, Conferred date:2017/9/20, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	論文要旨
Type(English)	Summary

論文要旨

THESIS SUMMARY

専攻： Department of	電子物理工学	専攻	申請学位（専攻分野）： Academic Degree Requested	博士 Doctor of	（工学）
学生氏名： Student's Name	梅原 猛		指導教員（主）： Academic Supervisor(main)	山田 明	
			指導教員（副）： Academic Supervisor(sub)		

要旨（和文 2000 字程度）

Thesis Summary (approx.2000 Japanese Characters)

太陽光発電は環境・エネルギー問題の解決手段として期待されている一方、その普及を妨げている 1 番の原因が発電コストの高さである。太陽光発電が基幹電源並みの発電コストを達成するためには、異なるバンドギャップの光吸収層から成る太陽電池を積層させた多接合化技術による変換効率向上が不可欠である。バンドギャップが約 1.15 eV で高効率が得られている Cu(In,Ga)Se₂ (CIGS)や Si をボトムセルの光吸収層と仮定すると、トップセルの光吸収層のバンドギャップが約 1.75 eV のときに 35 % 以上の変換効率を得られ基幹電源並みの発電コストを達成できると試算されている。Ag(In,Ga)Se₂ (AIGS)材料は多接合太陽電池におけるトップセルの光吸収層に適したバンドギャップ約 1.75 eV を Ga/(In+Ga)組成比を制御することにより得られることから、トップセルの有力材料候補として期待されている。しかしながら、現状の AIGS 太陽電池の変換効率はトップセルとして用いるにはまだ低く、変換効率向上には開放電圧(V_{oc})及び曲線因子 (FF)の改善が必要である。また、AIGS 材料は研究報告例が少なく、重要な基礎物性値であるキャリア濃度及び電子親和力が評価されていなかった。そこで本論文では、AIGS の物性評価並びに太陽電池の高効率化を研究目的とした。

始めに、カルコパイライト系材料のキャリア濃度評価手法を開発した。これまでこの材料系は、移動度が低く、従来の DC ホール測定法では正確な電気的特性の評価が不可能であった。また、測定には基板が絶縁体であることが求められるが、実際のデバイスに用いられる Mo 裏面電極基板との下地基板の違いが出てしまうことが問題であった。そこで、Mo 裏面電極基板からの単膜引き剥がし技術及び AC ホール測定法の併用による新たな評価手法を開発し、デバイス構造中のカルコパイライト系材料の評価に世界で初めて成功した。その結果、CIGS の正孔濃度が 10^{16} cm^{-3} 台であるのに対し AIGS の正孔濃度は 10^{12} cm^{-3} 台と非常に低く、この低い正孔濃度が浅いアクセプタ性欠陥と深いドナー性欠陥との補償効果に起因することを明らかにした。

次にキャリア濃度の評価結果を基にデバイス解析を行った結果、AIGS 太陽電池の効率制限要因の 1 つである電流密度-電圧(J - V)特性曲線の曲がり角が AIGS の低い正孔濃度に起因していることを明らかにした。 10^{12} cm^{-3} 台と低い正孔濃度では AIGS 全領域が空乏化しており、順方向バイアス印加下で Mo 裏面電極側 AIGS のバンドが屈曲し、それがフォトダイオードと逆方向のダイオードとして作用するため J - V 特性曲線に曲がり角を発生させ、 V_{oc} 及び FF を低減させていることが分かった。また、AIGS の浅いアクセプタ濃度の増加もしくは深いドナー性欠陥の抑制により、正孔濃度を 10^{15} cm^{-3} 台まで増加させることで J - V 特性曲線の曲りを改善することが可能であり、 V_{oc} 並びに FF の大幅な向上が期待され、変換効率 13% が得られることを明らかにした。そこで正孔濃度向上のため AIGS への NaF 添加を行い、AIGS の正孔濃度を $2.2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ から $1.3 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ まで増加させることに成功し、 V_{oc} 並びに FF が大幅に向上し変換効率が 7.1% から 8.8% まで改善した。

さらに、AIGS 太陽電池の更なる効率制限要因を明確にするため、正・逆光電子分光法測定を用いて CdS (バッファ層)/AIGS 界面のバンド接続を評価した。その結果、CdS/AIGS の伝導帯不連続量は約 -0.4 eV であり、負の不連続バンド構造により CdS/AIGS 界面にて再結合が発生し、これが V_{oc} 低下の一要因であることを明らかにした。また、デバイス解析によりバッファ層/AIGS 界面の伝導帯不連続量だけでなく、バッファ層/透明導電膜界面の伝導帯不連続量をも制御する必要があり、バッファ層/透明導電膜界面の伝導帯不連続量が +0.4 eV 以上では順方向バイアス時の電子の流れを阻害するために FF が大きく低減してしまうことを明らかにした。そこで、それぞれの界面の伝導帯不連続量を制御することができる新たなバッファ層として CdS/ZnS(O,OH)ハイブリッドバッファ層の導入を提案した。実際にハイブリッドバッファ層を導入したバンドギャップ約 1.75 eV の AIGS 太陽電池を作製した結果、9.7% と世界トップレベルの変換効率を実現することに成功した。

以上より、AIGS 材料のキャリア濃度及び電子親和力を評価し、その物性値を用いてデバイス解析を行うことで AIGS 太陽電池の 2 つの効率制限要因を解明し、それぞれの解決策を提案及びその実施を行うことで変換効率の向上を実現した。

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note：Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).

論文要旨

THESIS SUMMARY

専攻 : Department of	電子物理工学	専攻	申請学位 (専攻分野) : Academic Degree Requested	博士 Doctor of	(工学)
学生氏名 : Student's Name	梅原 猛		指導教員 (主) : Academic Supervisor(main)	山田 明	
			指導教員 (副) : Academic Supervisor(sub)		

要旨 (英文 300 語程度)

Thesis Summary (approx.300 English Words)

Ag(In,Ga)Se₂ (AIGS) is one of the promising candidates for the top-cell absorber in the tandem structure since its bandgap can be tuned by varying the Ga/(In+Ga) ratio. However, the study of AIGS solar cells is far from complete, and the conversion efficiency of AIGS solar cells is still lower than that required for the top cell. Therefore, the causes of the low performance were investigated by experimental measurements and device simulations.

The roll-over shape that appears in the current density-voltage (*J-V*) curve is one of causes of the low performance in AIGS solar cells. By combining AC Hall measurement and the peel-off process, it was found that the AIGS layer showed a relatively low hole concentration of $2.2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$. In that case, under an applied forward bias, theoretical simulation revealed that the band bending near the back contact of the AIGS layer forms an intrinsic semiconductor, leading to the formation of an inverted diode in series with the main junction photodiode. Therefore, the roll-over shape is attributed to the low hole concentration in the AIGS layer. To solve this issue, the addition of NaF by the postdeposition treatment of the AIGS layer was performed. As a result, the hole concentration of the AIGS layer increased by a factor of ten, significantly improving its conversion efficiency from 7.1 to 8.8%.

To further improve the conversion efficiency, it is necessary to reduce recombination at the CdS (buffer layer)/AIGS interface by controlling the conduction band offset (CBO) at the CdS/AIGS interface. By in situ photoemission spectroscopy and inverse photoemission spectroscopy, the CBO at the CdS/AIGS interface was estimated to be about -0.4 eV, suggesting the presence of interface recombination. Additionally, a theoretical simulation revealed that control of the CBO at both the buffer layer/AIGS and buffer layer/ZnO interfaces is necessary. Therefore, the introduction of a CdS/ZnS(O,OH) hybrid buffer layer is proposed, which can lower both CBOs. As a result, a high efficiency of 9.7% was successfully obtained in AIGS solar cells with a bandgap of approximately 1.75 eV.

備考 : 論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note : Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意 : 論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).