

ポリイミド基板上フレキシブルCIGS太陽電池におけるMo裏面電極の歪制御

上川 由紀子¹、増田 泰造²、西永 慈郎¹、石塚 尚吾¹
 1 産業技術総合研究所 省エネルギー研究部門、
 2 トヨタ自動車株式会社

研究背景・目的

【背景】

太陽電池の設置量が増えるにつれて¹、軽量性やフレキシブル性を有する太陽電池の重要性も増してきております²。フレキシブル太陽電池は曲面にも適しております。Cu(In,Ga)Se₂ (CIGS)系の薄膜太陽電池は、フレキシブル・軽量太陽電池としても期待されており²⁻⁴、ポリイミド基板上のCIGS太陽電池では22.2%の効率が達成されています⁵。近年、フレキシブルセラミック基板上のミニモジュールでは、18.6%の効率が達成されています⁶。

【目的】

今回、軽量・フレキシブル性に優れたポリイミドフィルムを基板として利用する際に、考慮すべき歪制御に関して、特にMo裏面電極製膜条件の及ぼす影響について明らかにすることを目的としました。

実験⁷

CIGS層 製膜最高温度：400°C
 製膜方法：多元蒸着法(3段階法※)
 ※In,Ga,Se,照射、Cu,Se照射、In,Ga,Se照射の3段階

Mo層：インライン型DCスパッタ法
 Ar圧力(P_{Ar}): 0.1-1.0 Pa

使用基板：
 ポリイミド(PI)フィルム
 (Upilex® 50S,
 25S, 25SV5の3種類)⁸

膜厚：25もしくは50 μm

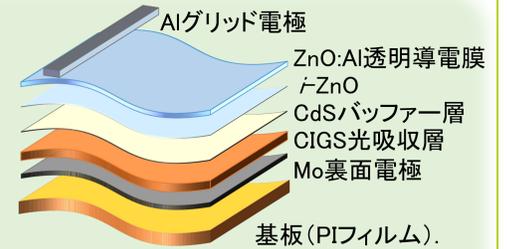


図1. フレキシブルCIGS太陽電池の概略図

結果と考察

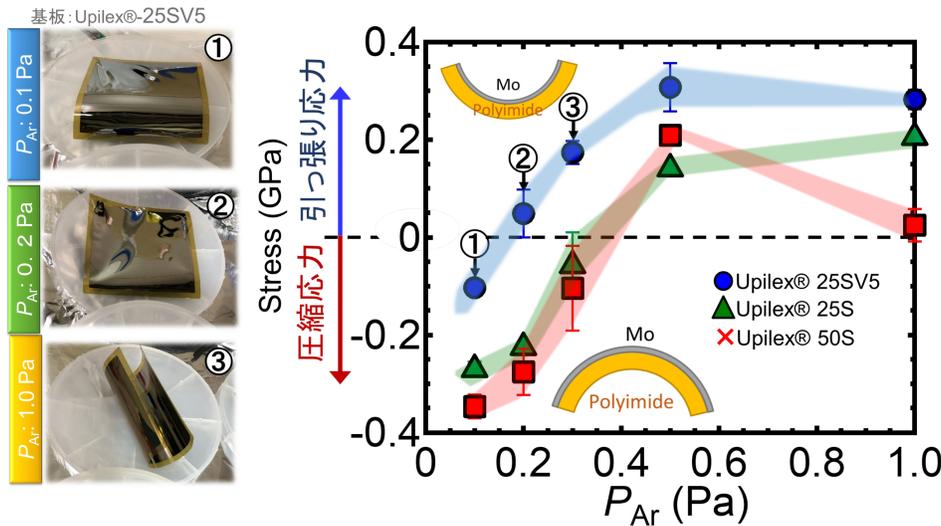


図2. (左)ポリイミドフィルム(Upilex®25SV5)上にMo裏面電極を製膜した後の写真
 (右)Stoneyの方程式により算出したMoにかかる応力

基板にフレキシブル基板を用いる場合には、上部層との間の熱膨張係数差に起因する「熱応力」の他、スパッタ膜の微細構造等に起因する「内部応力」⁹の制御も重要となります。図2(左)にポリイミドフィルム(Upilex®25SV5)上にMo裏面電極を製膜した後の写真を示します。Moのスパッタ製膜時のAr圧力(P_{Ar})を増加させた場合に、上に凸の湾曲から、下に凸の湾曲へと変化しました。

図2(右)にStoneyの方程式¹⁰より算出したMoにかかる応力を示します。SLG基板向け等に用いられる P_{Ar} :0.5Pa~の条件下では、引っ張り応力を示しました。反跳Arのエネルギーが低いため、Moの密度が低いことが(図3)要因と考えられます。一方、 P_{Ar} を0.1Pa程度にまで低下させた場合には、応力は圧縮に転じました。熱歪の影響が重畳されているため、フィルム種類により応力は上下しています。

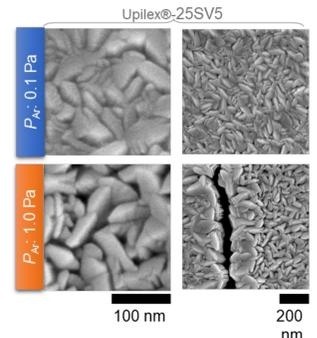


図3. 0.1および1.0Paの P_{Ar} で製膜したMoのSEM観察像

図4に異なる P_{Ar} で作製した太陽電池のFFの直列抵抗(R_s)依存性を示します。引っ張り応力が大きくなると、Mo膜にクラックが形成され(図3)、直列抵抗(R_s)が増加し、太陽電池特性(特にFF)を低下させる要因となります。

図5(左)に変換効率のアルカリ金属供給条件依存性を示します。MoとPIフィルムとの間にASTL(Alkali-silicate glass thin layers¹¹)を導入することで熱拡散にてアルカリ金属の供給を行いました。また、一部試料では、PDT(post deposition treatment¹²)による供給も併用しました。アルカリ金属の添加により変換効率が向上しました。ここで、Mo製膜中の P_{Ar} を変化させた場合には、Moの密度変化に伴い、基板側から供給するアルカリ金属(Na, K)の供給量も変化するため⁷、太陽電池の変換効率も多少変化する(図5中の○と●)ものの、アルカリ添加量の供給量の調整で十分に補完可能と考えられます。

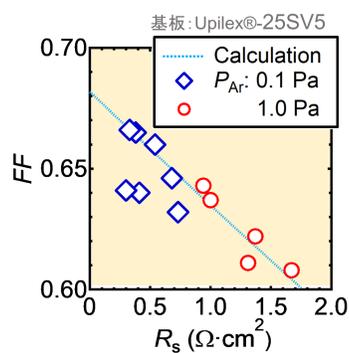


図4. 異なる P_{Ar} で作製した太陽電池のFFの直列抵抗(R_s)依存性

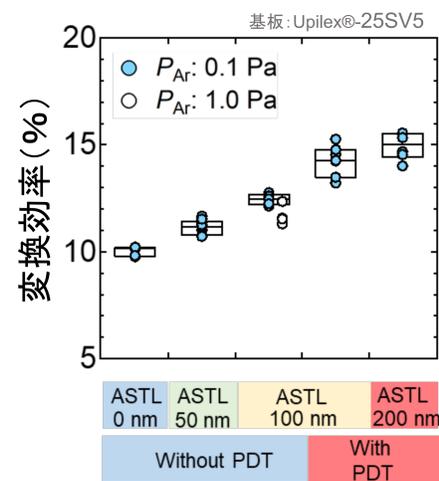


図5. (左)変換効率のアルカリ金属供給条件依存性
 (右)フレキシブルCIGS太陽電池の例

結論

Mo裏面電極をスパッタ法にて製膜する際の P_{Ar} の影響に着目し、歪状態を調べました。 P_{Ar} :0.5Pa~等の条件下では、Mo密度が低く、Mo裏面電極には引っ張り応力が生じました。引っ張り応力下においては、柔軟なポリイミドフィルムを基板に用いた場合には、Mo膜にクラックが生じデバイス特性を低下させることが問題となりました。一方、 P_{Ar} を0.1Pa程度にまで低下させた場合には、応力は圧縮に転じ、クラック発生を抑制することが出来ました。

アルカリ金属添加によりフレキシブルCIGS太陽電池の特性が改善することを確認しました。ここで、Mo製膜中の P_{Ar} を変化させた場合には、Moの密度変化に伴い、基板側から供給するアルカリ金属(Na, K)の供給量も変化するため、変換効率も多少変化するものの、アルカリ添加量の供給量の調整で十分に補完可能と考えられます。

参考文献

- [1] N. M. Haegel *et al.*, Science **356**, 141 (2017).
- [2] J. Ramanujam, *et al.*, Progress in Materials Science **110**, 100619 (2020).
- [3] F. Kessler *et al.*, Solar Energy **77**, 685 (2004).
- [4] T. Masuda, *et al.*, IEEE JPV **8**, 1326 (2018).
- [5] EMPA Press release 2022/10/10.
- [6] S. Ishizuka *et al.*, Phys. Chem. Chem. Phys. **24**, 1262 (2022).
- [7] Y. Kamikawa *et al.*, Solar Energy **241**, 327 (2022).
- [8] Ube corporation HP, https://www.ube.com/upilex/en/upilex_grade.html#01.
- [9] J.A. Thornton, J. Vac. Sci. and Technol. **11**, 666 (1974).
- [10] G.G. Stoney, Proc. Roy. Soc. A. (1909).
- [11] S. Ishizuka *et al.*, Appl. Phys. Lett. **93**, 124105 (2008).
- [12] A. Chirila *et al.*, Nat. Mater. **12**, 1107 (2013).