

二段階焼結法による $\text{Cu}_2\text{ZnSn}(\text{S},\text{Se})_4$ 薄膜太陽電池の作製 $\text{Cu}_2\text{ZnSn}(\text{S},\text{Se})_4$ Thin-Film Solar Cells Prepared by Two-Step Annealing

○後藤仁憲¹、桑名潤¹、杉本寛太¹、陶山直樹¹、張毅聞²、黒川康良¹、山田明^{1,3}

¹Department of Physical Electronics, Tokyo Institute of Technology, Tokyo, Japan,

² Technical Research Institute, Toppan Printing Co. Ltd., Saitama Japan,

³Photovoltaics Research Center, Tokyo Institute of Technology, Tokyo, Japan

○E-mail: goto.m.ad@m.titech.ac.jp

1. はじめに

$\text{Cu}_2\text{ZnSn}(\text{S},\text{Se})_4$ (CZTSSe)薄膜太陽電池は、In などの希少元素を含まず、低コストで作製できるといった特徴を持つ太陽電池である。また S/Se を変化させることで、バンドギャップを 1.0~1.5 eV に制御することが可能である。

我々はこれまでに、CZTSSe 薄膜太陽電池の作製プロセスの低コスト化を図るため、非真空プロセスであるナノ粒子塗布法による CZTSSe 膜の作製を行ってきた¹⁾。現在塗布膜を Se 雰囲気中で焼結することにより、5.4%の変換効率を達成している²⁾。しかし現状の Se 雰囲気焼結プロセスは制御に課題があった。また S 雰囲気では ZnS が界面に偏析してしまい、短絡電流値を低下させる問題がある。そこで本発表では、焼結方法の検討として、二段階焼結法を用いたので報告する。

2. 実験方法

CZTSSe ナノ粒子は各構成元素のヨウ素化合物とナトリウム化合物を所定の濃度で反応させ合成する¹⁾。従来 1)とは異なり、Cu、Zn、Sn、Se の 4 元素で CZTSSe ナノ粒子を合成している。次にナノ粒子にチオ尿素を添加し、塗布液を作製し、超音波スプレー装置を用いて塗布液を Mo 基板上に塗布する。その後、一段階目に S 雰囲気 300~580 °C で焼結し、二段階目に Se 雰囲気 520 °C~580°C で焼結を行い、CZTSSe 膜を作製した。本研究の太陽電池は、Al/ZnO/CdS/CZTSSe/Mo/SLG 構造を有する。CdS は CBD 法、ZnO は MOCVD 法、楕形 Al 電極は蒸着法を用いて作製した。CZTSSe 膜の形態観察はイオン研磨法で作製した断面を走査型電子顕微鏡の反射電子(BSE : backscattered electron)像、電気特性はソーラーシミュレータを用いて AM 1.5G 下で評価した。

3. 結果と考察

Fig. 1 に Se 雰囲気焼結、S 雰囲気焼結、二段階焼結法により作製した CZTSSe 膜の反射電子像を示す。Se 雰囲気での焼結と比較して、Se 雰囲気焼結の前に S 雰囲気中で焼結を行うことにより、結晶粒の増大と共に膜の緻密性の向上が見られた。また、S 雰囲気での焼結と比較して、S 雰囲気の後に Se 雰囲気中で焼結することにより、CZTSSe 膜の表面における ZnS 偏析の減少が明らかになった。

二段階焼結法による焼結膜と単独の S および Se 雰囲気による焼結膜の成長機構およびその他電気的特性の違いについては当日報告する。

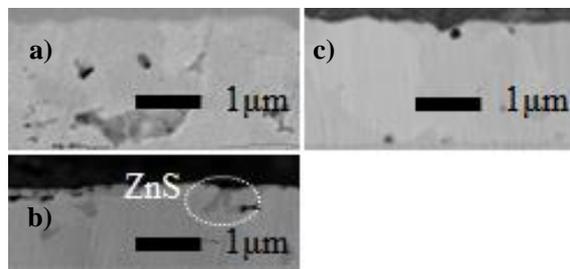


Fig. 1 BSE image CZTSSe layers prepared by a) annealing in Se atmosphere, b) annealing in S atmosphere c) annealing in a two-step process.

4. 謝辞

本研究は、独立行政法人科学技術振興機構(JST)の先端的低炭素化技術開発(ALCA)のプロジェクトであり、支援を受けて行われた。

1) Y. Zhang et al., Appl. Phys. Express 5 (2012) 012301.

2) Y. Zhang et al., submitted to 28th EU PVSEC (2013) 3BV.5.5.