

タンデム太陽電池用低コスト Al 添加 ZnO 膜の成膜条件の検討 Investigation of Low Cost Al-doped ZnO Film Deposition Conditions for Tandem Solar Cells

○西原 達平¹、Lee Hyunju^{1,2}、大下 祥雄³、小椋 厚志^{1,2}
明治大¹、明大再生可能エネルギーインスティテュート²、豊田工大³
T. Nishihara¹, L. Hyunju^{1,2}, Y. Ohshita³, and A. Ogura^{1,2}
(1. Meiji Univ., 2. Meiji Renewable Energy Institute, 3. Toyota Tech Inst.)

E-mail: tappei@meiji.ac.jp

【背景と目的】高効率化が期待されるペロブスカイト/結晶 Si タンデム太陽電池のボトムセルにヘテロ接合を用いた構造を検討している[1]。本構造では透明導電膜(TCO)は、トップの受光面側、トップとボトムセルの接合界面、ボトムセル裏面の 3 か所に使用される。従来の TCO には発電に寄与する波長領域(300-1200 nm)全域での高透過率かつ $10^{-4} \Omega\text{cm}$ 程度の低抵抗率が要求されていた。しかし、タンデム太陽電池に用いられる TCO は、上述した使用箇所により TCO に要求される性能や制約が異なる。特に、接合界面やボトムセル裏面で使用される TCO は 900-1200 nm の波長領域での高透過率が要求される。これは、300-900 nm の光はトップ層で吸収され、発電に寄与するためである。加えて、これまで In_2O_3 を中心とした TCO が主流であったが、近年 In の使用量が 10 倍以上になり、高騰化している[2]。そこで、In フリーで安価かつ比較的長波長領域で高透過率を有する ZnO に Al をドーピングした AZO を検討した。低ドーピング濃度の AZO では、900-1000 nm 領域で高透過率を有することが報告されており、期待されている材料である[3]。本実験においては、膜厚、酸素流量の最適化を行った。

【実験】n 型結晶 Si(100)基板、glass 基板上に、芝浦社製 RF スパッタリング装置(i-Miller)を用いて、2 wt% の Al をドーピングした ZnO (以下、AZO)を RF パワー 100 W、Ar 流量 30 sccm とし、成膜時間並びに O_2 流量を変化させ、室温にて成膜した。その後、200°C、30 分、大気雰囲気中にて熱処理を行った。評価項目として、分光エリプソメトリー(SE)による光学特性、Hall 効果測定による電気特性、X 線光電子分光法(XPS)による組成比並びに化学結合状態、X 線回折法(XRD)により結晶品質の評価を行った。

【結果】Figure 1 に SE で求めた波長 1100 nm における透過率と XPS の O 1s 光電子スペクトルから算出した Al-O/Zn-O 結合の割合の酸素流量依存性を示す。Al-O/Zn-O 結合比は、ZnO の結晶構造中に Al 原子が置換した割合を示す。

O_2/Ar 流量比の増加に伴い、透過率の向上並びに Al-O/Zn-O 結合比の減少が確認された。これは、AZO の導電率に寄与するキャリアが酸素空孔に由来するため、成膜時の酸素流量の増加に伴い、酸素空孔が補填されたためである。TCO における長波長領域での透過率の減少の主な要因はフリーキャリア吸収(FCA)であるため、Al 原子の置換量が減少することで、FCA の減少に繋がった。しかし、 O_2/Ar 流量比 0.5 以上の熱処理前の場合、O 1s 光電子スペクトルより格子間 Al-O 結合が確認され、 O_2/Ar 流量比の増加に伴い増加した。 O_2/Ar 流量比が 0.5 以上の領域における熱処理による Al-O/Zn-O 比の減少は、局所的な AlO_x の析出等が考えられる。また、熱処理による透過率の向上も小さいため、 O_2/Ar 流量比は 0.5 程度で十分である。

従来の単接合太陽電池における最適値と異なる値であるため、タンデム太陽電池に用いる TCO の成膜条件を再検討する必要がある。

【謝辞】本研究の一部は NEDO の助成を受けて行われた。関係者各位に感謝申し上げます。

- [1] A. Al-Shouri et al., *Science* **370**, 1300 (2020).
[2] T. Minami, *Thin Solid Films* **516**, 1314 (2008).
[3] R. Ramos et al., *Mater. Research* **24**, e20210052 (2021).

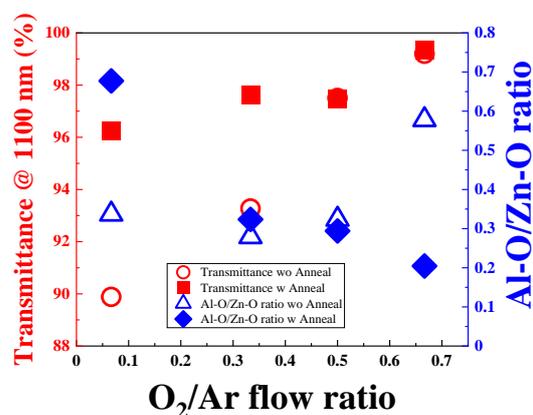


Fig. 1 Dependence of AZO film transmittance at 1100 nm and Al-O/Zn-O ratio on O_2/Ar flow rate.