

氏名（本籍）	森脇 健一（岡山県）
学位の種類	博士（工学）
学位記番号	乙第79号
学位授与の日付	平成29年3月22日
学位授与の要件	学位規則第4条第2項該当
学位論文題目	フレキシブル CIGS 太陽電池の高性能化に関する研究
論文審査委員	(主査) 教授 脇田 和樹 (副査) 教授 久保 裕史 教授 室 英夫 教授 小田 昭紀 教授 内田 史朗

学位論文の要旨

フレキシブル CIGS 太陽電池の高性能化に関する研究

本研究は、結晶シリコン太陽電池やガラス基板上化合物薄膜太陽電池に比べて、より軽量で設置環境の制約を受けにくいCu(In,Ga)Se₂ (CIGS)フレキシブル太陽電池の高性能化に取り組み、これまで困難だった簡易構造体や曲面の構造物、自動車など移動物体への設置も見据え、太陽電池のより幅広い普及への貢献を目的とする。フレキシブルCIGS太陽電池の研究は長年行われているが、量産化を想定した材料・プロセス開発の取り組みが不十分な為、フレキシブルCIGS太陽電池は普及に至っていない。

すなわち市場に受け入れられる量産に適したフレキシブルCIGS太陽電池を開発するためには、「高効率化」「大面積集積化」「高速・低価格化」の全てを実現する高性能化が最大の課題である。「高効率化」にはCIGS多結晶膜の高品質化及びNa添加技術、「大面積集積化」にはフレキシブル基板上でのパターンニング加工プロセス開発、「高速生産化」にはRtoR高速プロセスの適用がそれぞれ必須である。これらの高性能化プロセス開発においてフレキシブル基板は、低価格材料でありロール形態で供給されることに加えCIGS適性が求められるが、既存で市販されているフレキシブル基板はこれらの要求を満たしていないため、フレキシブル基板開発が鍵となる。

本研究では、上記高性能化に適するフレキシブル基板を新たに開発し、フレキシブルCIGS太陽電池の高性能化要素技術開発を行った。以下、本研究で得られた知見をまとめる。

新規フレキシブル基板開発：CIGS適性検討

量産に適するフレキシブルCIGS太陽電池開発において、最も重要であるフレキシブル基板について、高性能化に適する基板特性を定めた。基板材料が低価格であることに加え、「高効率化」

の実現には、CIGS 成膜に耐えうる高温プロセス耐性と CIGS 膜に特性を低下させる不純物が混入されないこと、「大面積集積化」の実現には、モノリシック集積化が可能な絶縁性と表面平滑性が大面積で確保されていること、「高速生産化」の実現には、ロール形態での供給と絶縁膜の高速形成技術が必須となる。

本研究で新たに開発した金属セラミックス複合基板(AAO基板 : Anodic Aluminum Oxides)は、ロール形態で工業生産され低価格な材質であるAl/SUS金属箔上に、量産実績のある陽極酸化技術を用いて高速に Al_2O_3 絶縁膜を形成している。このAAOフレキシブル基板のCIGS適性を検討し、①高温プロセス耐性②不純物拡散抑制③絶縁性④平滑性⑤高速生産化適性の要求特性をすべて満たせることを実証でき、量産を想定したフレキシブルCIGS太陽電池の高性能化検討に適した基板であると結論づけた。

AAOフレキシブル基板へのNa添加技術開発

AAO フレキシブル基板に対し、「大面積」での制御性が高い Na 添加法として、RF (Radio Frequency) マグネトロンスパッタ法を用いてアルカリ金属含有層 (AC 層 : alkali-metal containing layer) を形成し、CIGS 膜に Na を安定に添加させることに成功した。さらに AC 層の膜厚を制御することで、CIGS 膜中への Na 供給量を精密に制御できることを、電気特性、結晶成長性、深さ方向の元素分析評価により明らかにした。これにより、AC 層の膜厚を最適化することで、ソーダライムガラス (SLG : soda-lime glass) 基板上と同等の CIGS 高品質多結晶膜を形成でき高変換効率を AAO 基板上でも可能とし、「高効率化」を実証した。しかし一方で、AAO 基板では最適 AC 層厚が 300nm と非常に厚く生産適性が低いという課題を見出した。この課題に対し、AC 層に含まれる Na が CIGS 膜中だけでなく AAO 基板側にも拡散していることを明らかにし、AAO 基板と AC 層の間にアルカリブロック層 (AB 層 : alkali-metal block layer) を導入することで基板側への Na 拡散を抑制し、AC 層薄膜化による「高速生産化」を可能として課題解決に至った。

CIGS高速成膜の効率低下メカニズムの解明

RtoR高速成膜のためには真空蒸着法で形成されるCIGS膜の成膜速度向上が必須である。より高速成膜化に適したbi-layer法を用いて標準条件から3倍速成膜まで検討し、高速成膜による効率低下メカニズム解明に取り組んだ。高速成膜ではCIGS膜内部での相変化制御が最も重要であり、相変化の評価手法としてRaman分光法が有効な手段であることを見出し、変換効率の低下に最も影響を及ぼしていた異相が In_xSe 相であることを突き止めた。また、高速成膜では、Cu-rich組成からCu-poor組成に遷移する最終過程前に基板からのNa拡散量が不足していたことを明らかにしたことで、「高速」成膜における「高効率」設計指針を導いた。

AAOフレキシブル基板上CIGSモノリシック集積化

これまで困難とされてきた絶縁層付金属系フレキシブル基板上のモノリシック集積化パターンニング (P1・P2・P3の各スクライブ工程) について、AAO フレキシブル基板向け開発を行い、「大面積」かつ「高速」でモノリシック集積型サブモジュールを作製できる技術を開発した。

P1 スクライブでは、レーザー光強度、ビーム形状、フォーカス位置の最適化により AAO フレキシブル基板のダメージなく Mo 膜除去を可能とした。また CIGS 太陽電池の特性低下や不安定性

を引き起こす原因が P1 スクライブ領域におけるエッジ部の高さ（バリ）であることを突き止め、洗浄工程の導入によりバリ除去に成功し課題解決に至った。これにより、AAO フレキシブル基板上においても直接レーザースクライブで Mo 膜をパターンニングできることを示した。

P2・P3 スクライブでは、硬質かつ表面平滑性の高い AAO フレキシブル基板の特性を利用して、SLG 基板上と同様に「高速」メカニカルスクライブを活用した。処理過程でスクライブ荷重を変化させることで、基板ダメージもスリップもなく CIGS 膜のみ除去し良好なパターンニングが形成できるプロセスを確立した。

上述の通り、フレキシブル CIGS 太陽電池の「高効率化」「大面積集積化」「高速生産化」の主要な要素技術を確立し、大面積・集積モジュールで高変換効率を達成し、高性能フレキシブル CIGS 太陽電池が実現可能であることを実証した。

審査結果の要旨

本研究は、結晶シリコン太陽電池やガラス基板上化合物薄膜太陽電池に比べて、より軽量で設置環境の制約を受けにくい Cu(In,Ga)Se₂ (CIGS)フレキシブル太陽電池の高性能化に取り組み、これまで困難だった簡易構造体や曲面の構造物、自動車など移動物体への設置も見据え、太陽電池のより幅広い普及への貢献を目的としており、本研究では、フレキシブル基板を新たに開発し、フレキシブルCIGS 太陽電池の高性能化要素技術開発を行っている。

本研究で得られた知見を以下にまとめる。新規フレキシブル基板開発：CIGS 適性検討 量産に適するフレキシブル CIGS 太陽電池開発において、最も重要であるフレキシブル基板について、高性能化に適する基板特性を定めている。基板材料が低価格であることに加え、「高効率化」の実現には、CIGS 成膜に耐えうる高温プロセス耐性と CIGS 膜に特性を低下させる不純物が混入されないこと、「大面積集積化」の実現には、モノリシック集積化が可能な絶縁性と表面平滑性が大面積で確保されていること、「高速生産化」の実現には、ロール形態での供給と絶縁膜の高速形成技術が必須となる。本研究で新たに開発した金属セラミックス複合基板(AAO 基板：Anodic Aluminum Oxides) は、ロール形態で工業生産され低価格な材質である Al/SUS 金属箔上に、量産実績のある陽極酸化技術を用いて高速に Al₂O₃ 絶縁膜を形成している。この AAO フレキシブル基板の CIGS 適性を検討し、①高温プロセス耐性②不純物拡散抑制③絶縁性④平滑性⑤高速生産化 適性の要求特性をすべて満たせることを実証し、量産を想定したフレキシブル CIGS 太陽電池の高性能化検討に適した基板であると結論づけている。AAOフレキシブル基板への Na 添加技術開発 AAO フレキシブル基板に対し、「大面積」での制御性が高い Na 添加法として、RF (Radio Frequency) マグネトロンスパッタ法を用いてアルカリ金属含有層 (AC 層：alkali-metal containing layer) を形成し、CIGS 膜にNaを安定に添加させることに成功している。さらに AC 層の膜厚を制御することで、CIGS 膜中への Na 供給量を精密に制御できるこ

とを、電気特性、結晶成長性、深さ方向の元素分析評価により明らかにしている。これにより、AC層の膜厚を最適化することで、ソーダライムガラス（SLG：soda-lime glass）基板上と同等の CIGS 高品質多結晶膜を形成でき高変換効率を AAO 基板上でも可能とし、「高効率化」を実証している。しかし一方で、AAO 基板では最適 AC 層厚が 300nm と非常に厚く生産適性が低いという課題を見出しており、この課題に対し、AC 層に含まれる Na が CIGS 膜中だけでなく AAO 基板側にも拡散していることを明らかにし、AAO 基板と AC 層の間にアルカリブロック層（AB 層：alkali-metal block layer）を導入することで基板側への Na 拡散を抑制し、AC 層薄膜化による「高速生産化」を可能として課題解決に至っている。CIGS 高速成膜の効率低下メカニズムの解明 RtoR 高速成膜のためには真空蒸着法で形成される CIGS 膜の成膜速度向上が必須であり、より高速成膜化に適した bi-layer 法を用いて標準条件から 3 倍速成膜まで検討し、高速成膜による効率低下メカニズム解明に取り組んでいる。高速成膜では CIGS 膜内部での相変化制御が最も重要であり、相変化の評価手法として Raman 分光法が有効な手段であることを見出し、変換効率の低下に最も影響を及ぼしていた異相が In_xSe 相であることを突き止めている。また、高速成膜では、Cu-rich 組成から Cu-poor 組成に遷移する最終過程前に基板からの Na 拡散量が不足していたことを明らかにしたことで、「高速」成膜における「高効率」設計指針を導いている。AAO フレキシブル基板上 CIGS モノリシック集積化これまで困難とされてきた絶縁層付金属系フレキシブル基板上のモノリシック集積化パターニング（P1・P2・P3 の各スクライブ工程）について、AAO フレキシブル基板向け開発を行い、「大面積」かつ「高速」でモノリシック集積型サブモジュールを作製できる技術を開発している。P1 スクライブでは、レーザー光強度、ビーム形状、フォーカス位置の最適化により AAO フレキシブル基板のダメージなく Mo 膜除去を可能としている。また CIGS 太陽電池の特性低下や不安定性を引き起こす原因が P1 スクライブ領域におけるエッジ部の高さ（バリ）であることを突き止め、洗浄工程の導入によりバリ除去に成功し課題解決に至っている。これにより、AAO フレキシブル基板上においても直接レーザースクライブで Mo 膜をパターニングできることを示している。P2・P3 スクライブでは、硬質かつ表面平滑性の高い AAO フレキシブル基板の特性を利用して、SLG 基板上と同様に「高速」メカニカルスクライブを活用している。処理過程でスクライブ荷重を変化させることで、基板ダメージもスリップもなく CIGS 膜のみ除去し良好なパターニングが形成できるプロセスを確立している。上述の通り、フレキシブル CIGS 太陽電池の「高効率化」「大面積集積化」「高速生産化」の主要な要素技術を確立し、大面積・集積モジュールで高変換効率を達成し、高性能フレキシブル CIGS 太陽電池が実現可能であることを実証している。

本論文はフレキシブル基板を新たに開発し、そしてフレキシブル CIGS 太陽電池の高性能化要素技術の開発を行い、その結果重要な知見を得たものとして価値あるものであることを認める。

したがって、学位申請者森脇健一は博士（工学）の学位を取得する資格があると認める。