太陽電池の発電力向上に向けた透明酸化物導電膜の作製

[研究代表者] 一野祐亮(工学部電気学科) [共同研究者] 森 竜雄、清家善之(工学部電気学科)

研究成果の概要

瀬戸物など身の回りにありふれている酸化物は電気絶縁体であるものがほとんどである。しかし、酸化物の作製方 法を工夫することで、絶縁体だけでなく半導体にも金属にも、また超伝導体にもなる。そこで、我々はパルスレーザ 一蒸着 (PLD) 法を用いて酸化物薄膜を作製することで、酸化物に電気的機能性を付与する検討を行っている。

2021 年度は透明酸化物導電体(Transparent Conducting Oxide, TCO)膜に着目した。再生可能エネルギーである太陽電池の発電効率を上げることは非常に重要である。最大発電力は発電モジュールの内部抵抗に反比例する。つまり、内部抵抗が低いほど最大発電力は向上する。太陽電池の場合、内部抵抗を構成する各要素の内、透明導電膜の抵抗率がもっとも高く、影響が大きい。そこで、シャープ株式会社の液晶ディスプレイに用いられて話題となった透明酸化物半 導体 IGZO (In-Ga-Zn-O)に着目し、低抵抗率透明導電膜の作製を目的とした。

IGZO 膜の作製には3 倍高調波 Nd:YAG レーザーによる PLD 法を用いた。InGaO₃+ZnO 焼結体をターゲットとして、 薄膜作製時のレーザーエネルギーが IGZO 膜の抵抗率に与える影響について検討した。成膜条件は、酸素圧力1 mTorr、 基板温度を室温とし、レーザーエネルギーを 30~130 mJ の間で変化させた。その結果、レーザーエネルギーが高くな るほど抵抗率が低下して、130 mJ では約 11 mΩcm を示した。太陽電池の透明導電膜としてよく用いられている ITO (In ドープ酸化スズ)は、1 mΩcm 以下の抵抗率であるため、さらなる作製条件の最適化が必要である。また波長-透過率特 性の測定結果から、一部の可視光に対して 80%の透過率を示したものの、全体的 50-70%程度であり、光学特性に関し ても成膜条件のさらなる最適化が必要である。

研究分野:機能性酸化物薄膜工学 キーワード:超伝導、透明導電膜

1. 研究開始当初の背景

2021 年度は透明酸化物導電薄膜(Transparent Conducting Oxide, TCO)に着目した。再生可能エネルギ ーである太陽電池の発電効率を上げることは非常に重 要である。最大発電力 *P*_{max} は発電モジュールの内部抵 抗*r*_sと太陽電池による起電力 *V*を用いて、

 $P_{max} = \frac{V^2}{4r_s}$ (1)

 と表される。つまり、 r_s が低いほど P_{max} は向上する。図

 1のように、太陽電池の場合、内部抵抗を構成する要素

 は、金属電極抵抗、接触抵抗、配線抵抗、そして TCO

 の抵抗である。この内、TCOの抵抗率がもっとも高い。

 そこで、シャープ株式会社の液晶ディスプレイに用いら

れて話題となった透明酸化物半導体 IGZO (In-Ga-Zn-O) に着目した。IGZO 膜はアモルファス状態でも高い電荷 移動度を示すため、低い抵抗率、かつ可視光透過特性に 優れた透明電極の実現が期待できる。



図1 太陽電池の等価回路と内部抵抗成分。

2. 研究の目的

IGZOのキャリアは主に電子であり、アモルファス薄 膜にすることで生じる酸素欠損がキャリアを供給して いる。また、余剰金属元素からもキャリアが供給される。 図2にIGZOのバンド構造と種々の欠陥によって生じる エネルギー準位を示す。



図2IGZOのバンド構造と欠陥によるエネルギー準位。

我々は、パルスレーザー蒸着 (PLD) 法を用いて酸化 物薄膜の作製を行ってきた。PLD 法をはじめ、薄膜作 製方法の多くは高真空中で薄膜を作製するため多くの 酸素欠損が自然に含まれる。しかし、予備実験の結果か ら IGZO 膜は酸素欠損が多すぎると絶縁体となり、かつ 可視光を透過しない黒色膜になることがわかった。そこ で、今回は比較的高い酸素圧力1mTorrの雰囲気下でレ ーザーエネルギーが電気特性、光学特性に与える影響を 明らかにすることを目的とした。

3. 研究の方法

アモルファス IGZO 膜は、3 倍高調波 Nd:YAG パルス レーザーを用いた PLD 法によって作製した。基板には 石英基板を用いて室温で、酸素圧力 1 mTorr の下、レー ザーエネルギーを 20~310 mJ まで変えて成膜した。ま た、成膜時間 30 分であり、膜厚は 80~360 nm と、レ ーザーエネルギーの上昇に伴って厚くなった。

IGZO 膜の電気抵抗は直流四端子法を用いて評価し、 光学特性は 300~900 nm の光に対する透過率測定で評 価した。

4. 研究成果

図3に作成したアモルファス IGZO 膜の光学顕微鏡像

を示す。いずれも下地が透けて見え、可視光に対してほ ぼ透明であることがわかった。レーザーエネルギーに対 して抵抗率をプロットすると図4のように、レーザーエ ネルギーが増加するほど抵抗率が低下していることが わかった。



図3 レーザーエネルギーに対するアモルファス IGZO 膜 の光学顕微鏡像。各画像左上の数値は、レーザーエネルギ ーと抵抗率である。



図 4 レーザーエネルギーに対するアモルファス IGZO 膜 の電気抵抗率。

本研究では、酸素雰囲気中に置かれた IGZO 焼結体タ ーゲットに 355 nm の紫外線レーザーを照射している。 そのため、レーザーエネルギーが高くなるほど雰囲気中 の酸素が一部活性化され酸化力の高い活性酸素原子が 生成[5]された結果、IGZO 膜中の過剰な酸素欠損を補っ た結果、抵抗率が低下した可能性がある。また、IGZO ターゲットの中にも酸素は含まれているため、レーザー エネルギーの増加に伴ってターゲット由来の活性酸素 も増加していることも考えられる。以上から、薄膜作製 時の酸素圧力だけでなくレーザーエネルギーも IGZO 膜の電気特性に大きな影響を与えることが明らかにな った。

図5にこれらのIGZO膜の可視光透過率を示す。



図5アモルファス IGZO 膜の可視光透過率。

現在、透明導電膜としてよく使われているスズ添加酸化 インジウム(ITO)の可視光透過率は約80%程度である ため、80%を目標値としている。図から、80 mJ で成膜 した試料において一部の波長に対して80%に達してい るが、全体的には50-70%と透過率が低い結果となった。

参考文献

J. L. Lyons ら, Phys. Rev. Appl. 2 (2014) 064005
 W. H. Han ら, Phys. Rev. Appl. 6 (2016) 044011
 Junjun Jia ら, Phys. Rev. Appl. 9 (2018) 014018
 Kyle T. Vogt ら, Phys. Rev. Res. 2 (2020) 033358
 M. Mukaida ら, Jpn. J. Appl. Phys. 32 (1993) 4521

謝辞

本研究は、令和3年度愛知工業大学「教育・研究特別助 成」を受けて実施した。