

論文の内容の要旨及び論文審査の結果の要旨の公表

学位規則第 8 条に基づき、論文の内容の要旨及び論文審査の結果の要旨を公表する。

○氏名	寺地 誠喜 (てらじ せいき)
○学位の種類	博士 (工学)
○授与番号	甲 第 1315 号
○授与年月日	2019 年 3 月 31 日
○学位授与の要件	本学学位規程第 18 条第 1 項 学位規則第 4 条第 1 項
○学位論文の題名	フレキシブル Cu(In,Ga)Se ₂ 太陽電池の接合界面に関する研究
○審査委員 (主査)	峯元 高志 (立命館大学理工学部教授) 荒木 努 (立命館大学理工学部教授) 田口 耕造 (立命館大学理工学部教授)

<論文の内容の要旨>

本学位論文は、フレキシブル化が可能な Cu(In, Ga)Se₂(CIGS)多結晶薄膜太陽電池の pn 接合界面の分析と高品質化に関するものであり、7 章から構成されている。第 1 章では日本における太陽光発電システムの導入状況、フレキシブル CIGS 太陽電池が拓く新たな応用分野について述べられている。第 2 章では、CIGS の基礎物性と CIGS 太陽電池の基本構造について述べられている。第 3 章では、本太陽電池の各構成層の成膜法、CIGS の詳細な成長条件が述べられている。第 4 章では、環境負荷を低減するために、バッファ層に従来用いられてきた化学析出法堆積の CdS ではなく、Cd フリーの ZnO 系バッファ層を同堆積法で作製した CIGS 太陽電池の特性が述べられている。第 5 章では、同太陽電池の光照射による発電特性の変化とそのメカニズムが述べられている。第 6 章では、発電の安定化と高効率化を目指して従来の化学析出法ではなく真空プロセスであるスパッタ法で作製した ZnO 系バッファ層を用いた CIGS 太陽電池の特性が述べられている。第 7 章で、本論文のまとめと今後の高効率化の課題が述べられている。

従来の CIGS 薄膜太陽電池には基板に剛直なガラスを用いているため可撓性が無い。太陽電池の応用分野拡大と生産性向上のために、ロール to ロールプロセスで作製するフレキシブルな高効率 CIGS 太陽電池の実現が切望されている。本論文では、高効率な本太陽電池を実現するための課題について検討し、CIGS 表面の酸化の抑制、および、バッファ層の OH 基と吸着水分量の低減が、高品質かつ安定な pn 接合界面の実現に必要であることを明らかにした。これらを実現するために、ZnO 系バッファ層を有する CIGS 太陽電池のロール to ロール真空一貫成膜プロセスを提案した。

<論文審査の結果の要旨>

本論文では、太陽電池の応用拡大と生産性の向上を目指したフレキシブル CIGS 太陽電池に焦点を当てている。従来の CIGS 太陽電池には剛直なガラス基板が用いられているために可撓性が無い。ガラス基板を可撓性のある基板、例えばステンレス箔等、に置き換えて、ロール to ロールプロセスでフレキシブルな高効率 CIGS 太陽電池が実現できれば、曲面屋根、建物の壁面、自動車のルーフへの設置といった新たな応用先が拓ける。しかし、作製プロセスに左右される CIGS の表面状態やバッファ層の組成が太陽電池の心臓部である pn 接合界面に与える影響は明らかになっていなかった。そこで、本研究では、高効率な同太陽電池を実現するための pn 接合界面の形成について検討を行った。

はじめに、ステンレス基板上に CIGS 膜を形成し、その上に、従来の化学析出法堆積の CdS に代えて、Cd フリーの ZnO 系バッファ層である Zn(O,S,OH)を同手法で形成した太陽電池を作製した。同太陽電池の効率は、太陽電池作製直後は 8%であったが 2 時間の光照射によって 14.8%まで向上した。しかし、同太陽電池を暗室放置すると変換効率は 8 時間以内に半減し、24 時間では初期値まで低下し、実用上、安定性に問題があることが分かった。この原因は、光照射前は高抵抗であった Zn(O,S,OH)が、光照射によって低抵抗化された結果、太陽電池の直列抵抗が改善されたためであることが分かった。また、Zn(O,S,OH)の高抵抗化と OH 基・吸着水分量に正の相関があることが明らかとなり、コスト増の要因となる高い水蒸気バリア性を有する封止が必要であることが明らかとなった。次に成膜時に OH 基を生じない真空プロセスであるスパッタ法に着目した。ZnO 系バッファ層として、(Zn,Mg)O をスパッタ法で成膜した場合には、膜中に OH 基がほとんど存在しないことを確認した。また、光照射時の抵抗低下が非常に速く、常温常湿環境下では水分吸着による抵抗の上昇がないことを確認した。バッファ層の堆積に化学析出法を用いた場合にはウェットエッチングによる CIGS 表面の酸化物除去が期待できたが、スパッタ法ではこの効果が得られないため、大気下における CIGS 表面の酸化について検討を行った。その結果、表面酸化度と効率に負の相関があることが明らかとなった。表面酸素濃度は大気下において 3 時間で約 10%増大すること、特に In、Ga、Se の酸化が顕著であることが分かった。また、スパッタプロセスにおいて、プラズマ中の酸素により CIGS 表面が酸化されること、バッファ層自身も高抵抗化するため効率が低下することも分かった。上記の結果を元に、CIGS の表面酸化を抑制し、かつ高磁場カソードを用いてスパッタ時のプラズマダメージを抑制しながら(Zn,Mg)O バッファ層を形成することで、CdS をバッファ層に用いた場合と同等の変換効率 (CdS : 11.5%、(Zn,Mg)O : 11.1%、効率比((Zn,Mg)O/CdS) = 97% ; ガラス基板) を実現した。理想的には CIGS 膜の表面酸化を無くすことが必要であり、CIGS を成膜後、真空を破ることなく連続的にバッファ層を形成するロール to ロール真空一貫成膜プロセスを提案した。

以上の論文審査と公聴会での口頭試問結果を踏まえ、審査委員会は本論文が本研究科の博士学位論文審査基準を満たしており、博士学位を授与するに相応しい水準に達しているという判断で一致した。

<試験または学力確認の結果の要旨>

本論文の公聴会は、2019年2月5日（火）16時00分～17時00分ウエストウイング4階電子システム系会議室において行われた。公聴会では、学位申請者による論文要旨の説明の後、審査委員は学位申請者寺地誠喜に対する口頭試問を行った。各審査委員および公聴会参加者より、CIGSの成長、CIGSの電子物性、CIGS太陽電池の作製法の詳細、光安定性のメカニズム、更なる高効率化の可能性などの質問がなされたが、いずれの質問に対しても学位申請者の回答は適切なものであった。学位申請者は、論文内容および公聴会での質疑応答を通して、学位申請者が十分な学識を有し、博士学位に相応しい学力を有していると確認した。

以上の諸点を総合し、学位申請者に対し、本学学位規程第18条第1項に基づいて、「博士（工学 立命館大学）」の学位を授与することが適当であると判断する。