

令和元年6月11日現在

機関番号：14301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2018

課題番号：15K17472

研究課題名(和文) 薄膜Si太陽電池の光吸収増大のためのフォトニックナノ構造の最適化

研究課題名(英文) Optimization of Photonic Nanostructure for Enhancement of Optical Absorption in Thin Film Si Solar Cells

研究代表者

田中 良典(Tanaka, Yoshinori)

京都大学・工学研究科・講師

研究者番号：20534522

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、薄膜Si太陽電池にフォトニック結晶を導入することで、光起電力層であるSi層への光吸収量を増大させ、光電変換効率を向上させることを目指した。本科学研究費助成事業では、微結晶Si太陽電池(厚さ数百nm～数 μm)および薄膜単結晶Si太陽電池(厚さ数十 μm)を研究対象とし、光吸収を増大させるためのフォトニック結晶構造の設計を進めることを目指した。その結果、厚さ2 μm の微結晶Si太陽電池において、31.8 mA/cm²の短絡電流密度が、厚さ20 μm の単結晶Si太陽電池において、37.6mA/cm²の短絡電流密度が期待できることを数値解析により明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

太陽光発電は、エネルギー・環境問題の解決、持続可能な社会の実現という観点から非常に大きな注目を集めている発電方式であり、さらなる普及、低コスト化の実現のためには光電変換効率の向上が求められている。本研究は、太陽電池により多くの光を吸収させることで、変換効率の向上を実現しようとするものであり、学術面はもちろん、社会的にも意義のある研究であるといえる。

研究成果の概要(英文)：In this research, by introducing a photonic crystal to a thin film Si solar cell, we aimed to enhance the optical absorption into the Si layer and to improve the photoelectric conversion efficiency of solar cell. This grant-in-aid research project focuses on microcrystalline Si solar cells (thickness: several hundred nm to several μm) and thin film single crystal Si solar cells (thickness: several tens of μm), and on the design of a photonic crystal for optical absorption enhancement. As a result, we found by numerical analysis that a short-circuit current density of 31.8 mA / cm² can be expected in a 2 μm -thick microcrystalline Si solar cell, and a short-circuit current density of 37.6 mA / cm² can be expected in a 20 μm -thick single crystal Si solar cell.

研究分野：光量子工学

キーワード：フォトニック結晶 太陽電池 電磁界解析 感度解析

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年、特に震災以降、再生可能エネルギーへの注目が集まっている。中でも太陽電池は、家庭の屋根に設置するような小型のものから、メガソーラーのような大型のものまで、様々な形態のものを比較的容易に設置可能であるなど汎用性が高く、将来の再生可能エネルギーの有力な候補の1つである。現在使われている太陽電池は、大半がSi太陽電池であり、その中でもSiインゴットから100~200 μm 程度のSi層を切り出すことにより作製される、結晶Si系の太陽電池が広く用いられている。ここで、将来、さらに太陽電池が普及してくると、結晶Si系太陽電池の原料である、ソーラーグレードSiの供給が課題となると考えられる。このような点を考えると、プラズマCVD(化学気相成長)法を用いて、厚さ数百nm~数 μm 程度の非常に薄いSi層を堆積するという方法で作製される、薄膜Si系(アモルファスSiや微結晶Si)太陽電池への展開が、Siの有効利用の観点から、重要であると考えられる。

しかし、薄膜Si系太陽電池の課題として、変換効率が結晶Si系太陽電池の半分程度と小さいことが挙げられる。原因の1つとして、Siは間接遷移型の半導体であるため、電子バンドギャップ近傍の広い波長帯域(600~1000nm)において、光吸収係数が小さいため、薄膜では光吸収が十分ではなく、この結果短絡電流密度が小さいことが挙げられる。したがってこの帯域の光吸収を増加させるための光マネジメント技術の開発が求められている。

研究代表者は、周期的な屈折率分布を有する光ナノ構造であり、様々な光制御の可能性を有するフォトニック結晶に関して、理論面を中心に研究を進めてきた。フォトニック結晶のもつ興味深い特徴の1つとして、フォトニックバンド構造の特異点(バンド端)において、光の群速度が零になる、すなわち、結晶面内の様々な方向へ伝播する光波が互いに結合し、大面積の共振作用が生じるという点が挙げられる。ここで、図1に示す模式図に示すような、薄膜Si太陽電池構造にフォトニック結晶構造を導入した構造を考える。このとき、入射光がこのバンド端モードに結合することで、入射光とSiとの相互作用時間が長くなることで光吸収量が增大することが考えられる。研究代表者は、本科研費研究開始段階において、バンド端モードへ光を結合させることによる光吸収の増大効果を理論・実験で明らかにするとともに、太陽電池応用に必要な、広帯域にわたる光吸収増大効果を実現するための、多数のバンド端モードの形成に関する理論検討を進めてきた。しかし、本科研費研究開始段階では、光吸収を最大化するためには、どのようなフォトニック結晶構造を用いるのがよいのか、明確にはなっていなかった。また、前述の検討では、基礎実証として、透明導電膜や裏面電極の吸収を無視した検討を行ってきたが、現実的には透明導電膜や裏面電極の吸収も存在し、かつこれらへの吸収は光電変換には寄与しないと考えられる。さらには、実験的にフォトニック結晶太陽電池を作製することを考えたときに、図1に示すような、垂直側壁をもつフォトニック結晶構造上にSi層を堆積した場合に、欠陥等の生成などにより太陽電池の電気特性に影響を及ぼすことも考えられる。

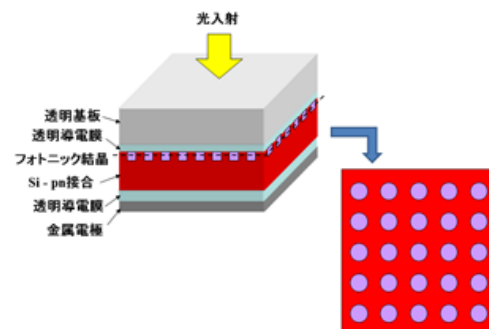


図1: フォトニック結晶を有する薄膜太陽電池構造の模式図

2. 研究の目的

以上のような点を踏まえ、本科研費研究では、まず、数百nm~数 μm 程度の非常に薄い、微結晶Si太陽電池を研究対象とし、光吸収を増大させるための、フォトニック結晶構造の最適化手法の開発と理論実証を目指した研究を行った。その後、本科研費研究を進めていく中で、太陽光発電の潮流が、単結晶Si太陽電池において、その厚さを薄くする(従来の数百 μm から、数十 μm 程度まで薄くする)方向に進んだため、本研究においても、実用的な展開を見据え、薄膜単結晶Si太陽電池へのフォトニック結晶構造の導入とその効果の理論的検証を行うことも目指した。

3. 研究の方法

本研究では、太陽電池への光吸収量の解析手法として、FDTD法(Finite Domain Time Difference Method)やRCWA法(Rigorous Coupled Wave Analysis Method)の電磁界解析(第一原理計算)を用いた数値解析を利用した。また、構造の設計の際には、新たに、感度解析法と呼ばれる、構造の誘電率の微小変化に対する、太陽電池構造への光吸収量の変化を計算する手法を、フォトニック結晶薄膜Si太陽電池の設計に適用した。

4. 研究成果

(1)感度解析法による薄膜微結晶Si太陽電池の構造設計

本研究では、フォトニック結晶構造の最適化を行うために、以下の2ステップで構造設計を行った。まず、第一のステップとして、図2(a)に示す4周期 \times 4周期の超格子を構成するフォトニック結晶ロッドを、構造の4回対称性を考慮して図中の1~6と示す6種類に分類し、これら

の半径をパラメータとして変化させながら、吸収率が高くなる構造を、FDTD法を用いて探索した。半径としては、計算機資源を考慮して $0.0a$, $0.15a$, $0.30a$, $0.45a$ の4種類とし(a :格子定数)、合計 $4^6(=4096)$ パターンについて計算した。また、計算を簡単化するため、中心波長 800 nm 、周波数半値全幅 300 nm のパルスに対する吸収率を計算し、また Si の吸収係数として波長 800 nm の光に対するものを用いた。また、透明導電膜の吸収は無視し、裏面電極については完全導体を用いた。基本格子定数 a としては、 275 nm の場合を想定した。微結晶 Si 層の厚さとしては、ここでは 500 nm の極薄の構造を考えた。探索の結果得られた吸収率が最大の構造を、図 2(b)に示す。

そして、第二のステップとして、この構造を初期構造として、微小構造変化を与えたときの光吸収量の変化を評価する「感度解析法」を取り入れ、自動的に、詳細に、構造を最適化することを検討した。感度解析法では、フォトニック結晶構造を微小なメッシュに区切り、各部分に誘電率(および吸収係数)の変化を与えた際の、吸収の増減を評価する。これにより、どの部分を構造変化させるべきかの指針が得られる。この手法を、本太陽電池に適用するために、2次元面内構造のメッシュ化を行い、メッシュ状に区切った全ての点における誘電率変化に対する吸収率変化を、FDTD法による解析によって一括して求める手法を確立した。図 3(a)は、ロッド径変化のみによる探索により得られた吸収率の高い4倍周期構造(図 2(b)の構造)に対して、本手法を1回適用した結果の例である。同図において、赤色の部分の誘電率を増加し、青色の部分の誘電率を減少させた場合に、光吸収が増大することが示されている。

(この過程では、実際には取りえない中間の誘電率も許容するとした)、繰り返し吸収の解析を行った結果を図 3(b)に示す。同図には、解析に用いた中心波長 800 nm 、半値幅 $\sim 300\text{ nm}$ の光に対する吸収率の変化を示している。同図より、元の格子点の結合や、新たな格子点の発生などにより、吸収率が増大していき、最終的に構造変化・吸収率が飽和していくことが分かる。

前述の計算により得られた、図 3(b)の 900step に示す構造に対して、Si 層への吸収スペクトルを計算した結果を図 4 に示す(なおここでは透明導電膜や金属の吸収は除いて計算している)。感度解析法を用いずに設計した、従来の構造と比べて、特に $700\sim 900\text{ nm}$ の波長帯域において、より高い吸収ピークが得られていることが分かる。太陽光スペクトルで重みづけした、波長 $500\sim 1000\text{ nm}$ 帯での光吸収率を平均した値は、フォトニック結晶のない構造と比較すると 2倍以上に向上することが分かる。

ここまでの検討では、計算の簡単化のために、透明導電膜や裏面電極の吸収は無視してきたが、現実には透明導電膜や裏面電極の吸収も存在し、かつこれらに吸収された光は太陽電池の電流には寄与しないと考えられる。したがって、より現実的な設計を行うためには、透明導電膜や裏面電極の吸収を含めた計算を行ったうえで、微結晶 Si の吸収を最大化する設計が必要となると考えられ、そのための設計手法の開発を行った。具体的には、透明導電膜および裏面電極の吸収を含めた構造に対して解析を行い、

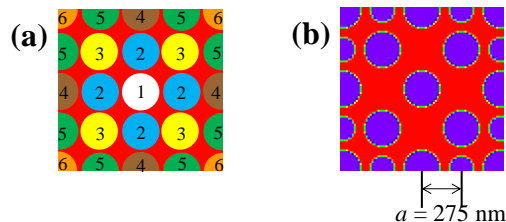


図 2 : (a) 超格子構造におけるフォトニック結晶ロッドの分類。図中の同じ色のロッドが同一の半径となるようにした (b) $4^6=4096$ 通りの探索により得られた吸収率が最大の構造。

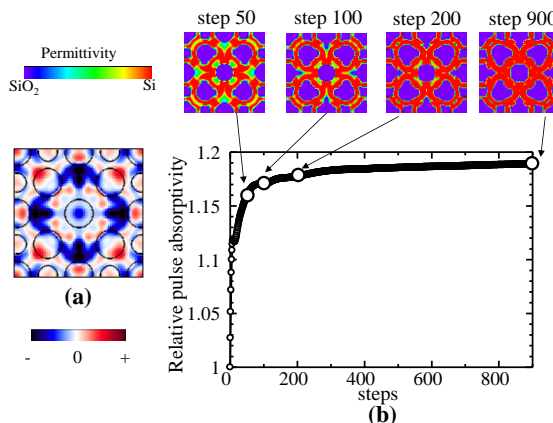


図 3 : (a) 図 2(b)の構造に対して感度解析法を1回適用した結果の例。赤色の部分の誘電率を増加し、青色の部分の誘電率を減少させた場合に、光吸収が増大することが示されている。(b) 感度解析法による構造変化を 900 回繰り返した場合の、光吸収率と構造の変化。

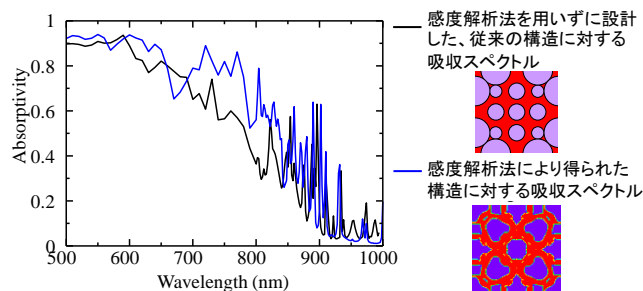


図 4 : FDTD 法により計算した吸収スペクトル。感度解析法を用いずに設計した構造と比較して、光吸収の増大効果が確認出来る。

$$F = \int \left(\int_{\text{Silayer}} \frac{ac}{n} \frac{1}{2} \epsilon E^2 dV \right) dt$$

で表される微結晶 Si 層への光吸収量を最大化するような計算を行った。(ただし、 E は電界、 ϵ は誘電率、 n は材料の屈折率、 c は真空中の光速、 α は材料の光吸収係数である)。ここでは、図5に示すような解析モデルに対して計算を行った。前述の計算と同様、材料のパラメータは波長 800 nm の光に対するものを用いた。この際、前述の計算とは異なり TCO 層の光吸収を取り込んだ。また、本計算においては、裏面の銀の光吸収の影響についても、表面インピーダンス法を用いることで取り込んだ。設計においては、前述の計算と同様、中心波長 800 nm、半値幅~300 nm のパルスに対して吸収率の計算を行った。このパルスに対する、微結晶 Si 層への光吸収量の変化を図6に示す(同図では初期構造に対する吸収率で規格化している)。次に、微結晶 Si、透明導電膜、裏面電極の波長分散を取り込み、光吸収スペクトルを計算し、Si 層で吸収された光が全て電子正孔対生成に寄与すると仮定した際に得られる、理論短絡電流密度(J_s)を計算すると、厚さ 600 nm の $\mu\text{c-Si}$ の太陽電池において、初期構造の 19.8 mA/cm² に対し、25.2 mA/cm² となり、電流密度が 1.3 倍増大していることが判明した。

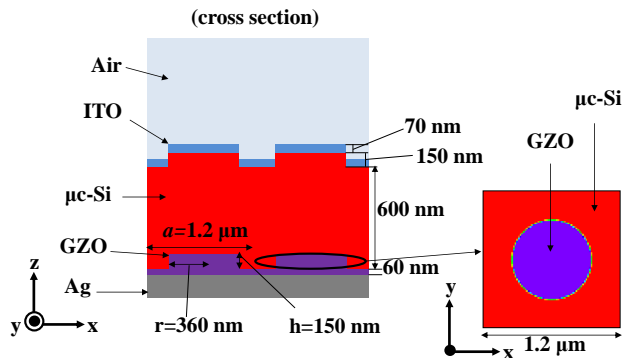


図5: TCOの吸収も加味した解析における計算モデル。

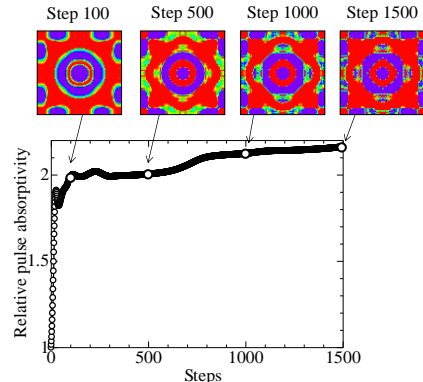


図6: 感度解析法により得られた構造と光吸収量の変化。

以上の検討により、光吸収の大きいフォトニック結晶を設計するための手法として、感度解析法が有効であることが明らかになった。

(2) 立体形状フォトニック結晶構造をもつ薄膜微結晶 Si 太陽電池の構造設計

(1)で述べた検討においては、フォトニック結晶構造として厚さ方向に対して均一な構造を仮定してきたが、実際に微結晶 Si を製膜することを考えると、欠陥等が Si 中に形成されるため、良好な電気的特性が得られないことが懸念される。そこで、次に、側面を緩やかな形状としたフォトニック結晶構造をもつ微結晶 Si 太陽電池を設計することを目指した。具体的には、感度解析法を用い、(1)で述べた検討で考えた誘電率ではなく、各設計点におけるフォトニック結晶構造の高さをパラメータとして、光吸収を最大化させることを考えた。

ここでは微結晶 Si 層の厚さは 2 μm のものと考え、図7上図の step 0 に示すようなフォトニック結晶構造を初期値とした。そして、感度解析法を用いて、中心波長 900 nm、半値幅~100 nm のパルスに対する光吸収率をパラメータとして設計を進めた。フォトニック結晶構造の各設計点の高さをパラメータとして、100 ステップにわたり最適化したところ、図7

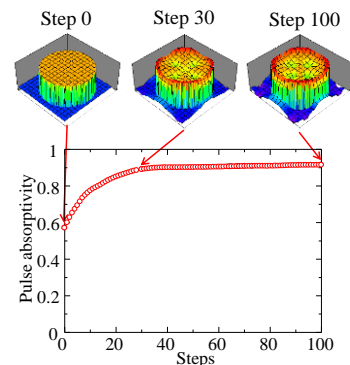


図7: 設計点における高さをパラメータとして感度解析法を適用した結果。

の下図のように、順次、光吸収率が順次増大している様子が見て取れる。次に、得られた構造に対し、微結晶 Si、透明導電膜、裏面電極の波長分散を取り込み、光吸収スペクトルを計算した。計算結果を図8に示す。微結晶 Si 層への光吸収が増大していることがわかる。スペクトルから計算できる短絡電流は、29.1 mA/cm² から 31.8 mA/cm² に増大しており、本設計法の有用性を示しているといえる。

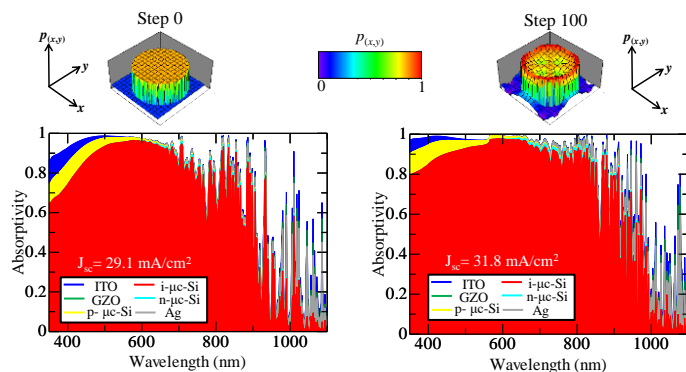


図8: 材料の波長分散を取り込んだ光吸収スペクトルの計算結果。

(3) 薄膜単結晶 Si 太陽電池へのフォトニック結晶構造の導入

以上(1)(2)で述べたように、厚さ数百 nm~数 μm の薄膜微結晶 Si 太陽電池に対する検討を

進めてきたが、本科研費研究期間中に、太陽光発電の潮流が、単結晶 Si 太陽電池において、その厚さを薄くする（従来の数百 μm から、数十 μm 程度まで薄くする）方向に進んできた。そこで、本研究において、新たな展開として、実用的な展開を見据え、薄膜単結晶 Si 太陽電池へのフォトニック結晶構造の導入とその効果の理論的検証を進めた。

検討した計算モデルは、図 9 に示すような、バックコンタクト型の太陽電池とし、表側にフォトニック結晶構造を導入することとした。また、フォトニック結晶構造として、三角格子・円錐型の構造とすることを検討した。円錐深さ・格子定数をパラメータとして検討を行ったところ、格子定数 800nm、空孔深さ 800nm の構造において、 $37.6\text{mA}/\text{cm}^2$ の電流密度が得られることが判明した。本結果は、フォトニック結晶構造による光吸収の増大効果が、単結晶 Si 太陽電池においても有効であることを示す結果であるといえる。

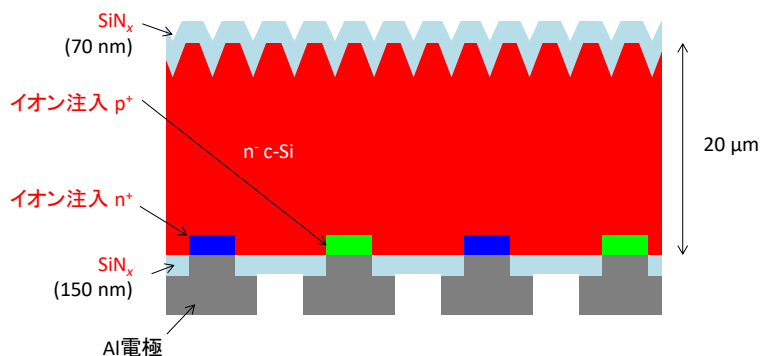


図 9：フォトニック結晶構造を導入した単結晶 Si 太陽電池構造の模式図。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕（計 6 件）

- ① K. Ishizaki, M. De Zoysa, Y. Tanaka, S. Jeon, S. Noda: "Progress in thin-film silicon solar cells based on photonic-crystal structures", Japanese Journal of Applied Physics, vol. 57, pp. 60101 (2018).
DOI: 10.7567/JJAP.57.060101
- ② K. Ishizaki, A. Motohira, M. De Zoysa, Y. Tanaka, T. Umeda, and S. Noda: "Microcrystalline-Silicon Solar Cells With Photonic Crystals on the Top Surface", IEEE Journal of Photovoltaics, vol. 7, pp. 950-956 (2017).
DOI: 10.1109/JPHOTOV.2017.2695524
- ③ M. De Zoysa, K. Ishizaki, Y. Tanaka, H. Sai, and S. Noda "Enhanced efficiency of ultrathin 500 nm) film microcrystalline silicon photonic crystal solar cells", Applied Physics Express, vol 10, pp. 012302 (2017).
DOI:10.7567/APEX.10.012302
- ④ Y. Kawamoto, Y. Tanaka, K. Ishizaki, M. De Zoysa, T. Asano, and S. Noda, "Structural design of photonic crystal thin film silicon solar cells by sensitivity analysis: Inclusion of electrode absorption", Optics Express, vol. 23, pp. A896 A902 (2015),
DOI:10.1364/OE23.00A896
- ⑤ K. Ishizaki, M. De Zoysa, Y. Tanaka, T. Umeda, Y. Kawamoto, and S. Noda, "Improved efficiency of ultra thin μc Si solar cells with photonic crystal structures", Optics Express, vol. 23, pp. A1040 A1050 (2015).
DOI:10.1364/OE.23.0A1040
- ⑥ Y. Tanaka, K. Ishizaki, M. De Zoysa, T. Umeda, Y. Kawamoto, S. Fujita and S. Noda, "Photonic crystal microcrystalline silicon solar cells", Progress in Photovoltaics: Research and Applications, vol. 23, pp. 1475 1483 (2015).
DOI:10.1002/pip.2577

〔学会発表〕（計 14 件）

- ① 野田進, 石崎賢司, De Zoysa Menaka, 田中良典, "フォトニック結晶を活用した新しい光マネジメント技術", 2017 年秋季 第 78 回 応用物理学会秋季学術講演会, 福岡国際会議場, 福岡市, 2017 年 9 月 6 日.
- ② 長谷川創, 石崎賢司, 田中良典, 野田進: "フォトニック結晶を導入した薄型単結晶シリコン太陽電池における光吸収の解析", 2017 年秋季 第 78 回 応用物理学会秋季学術講演会, 福岡国際会議場, 福岡市, 2017 年 9 月 6 日.
- ③ 石崎賢司, 田昇愚, 長谷川創, 田中良典, De Zoysa Menaka, 野田進, "フォトニック結晶をフォトニック結晶を導入した薄膜単結晶シリコン太陽電池の検討(IV)", 2017 年第 64 回応用物理学会春期学術講演会, パシフィコ横浜, 神奈川県, 2017 年 3 月 16 日.
- ④ 元平暉人, 石崎賢司, 田中良典, De Zoysa Menaka, 長谷川創, 野田進, "表面にフォトニック結晶構造を有する μc Si 太陽電池の光電変換効率の向上", 2017 年 第 64 回応用物理学会春期学術講演会, パシフィコ横浜, 神奈川県, 2017 年 3 月 16 日.

- ⑤ 田昇愚, 石崎賢司, 田中良典, 野田進: "フォトニック結晶を導入した超薄膜単結晶シリコン太陽電池の検討 (III)", 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, 14p-P14-2, 朱鷺メッセ, 新潟市, 2016 年 9 月 14 日.
- ⑥ 石崎賢司, 元平暉人, 田中良典, 長谷川創, 野田進: "表面にフォトニック結晶構造を有する $\mu\text{c-Si}$ 太陽電池 ー変換効率向上に向けた膜構造・フォトニック結晶構造の検討ー", 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, 15p-B4-9, 朱鷺メッセ, 新潟市, 2016 年 9 月 15 日.
- ⑦ 藤田奨也, 石崎賢司, 田中良典, De Zoysa Menaka, 川本洋輔, 元平暉人, 長谷川創, 野田進: "フォトニック結晶を導入した超薄膜単結晶シリコン太陽電池の検討", 2016 年第 63 回応用物理学会春期学術講演会, 東京工業大学, 東京都, 2016 年 3 月 20 日.
- ⑧ 長谷川創, 石崎賢司, 田中良典, 元平暉人, 川本洋輔, De Zoysa Menaka, 藤田奨也, 野田進, "表面にフォトニック結晶を形成した $\mu\text{c-Si}$ 太陽電池の理論解析-非対称形状導入の検討-", 2016 年第 63 回応用物理学会春期学術講演会, 東京工業大学, 東京都, 2016 年 3 月 22 日.
- ⑨ 元平暉人, 石崎賢司, 田中良典, De Zoysa Menaka, 長谷川創, 野田進, "表面にフォトニック結晶構造を有する $\mu\text{c-Si}$ 太陽電池", 2016 年第 63 回応用物理学会春期学術講演会, 東京工業大学, 東京都, 2016 年 3 月 22 日.
- ⑩ K. Ishizaki, Y. Tanaka, D. Z. Menaka, and S. Noda, "Photonic-Crystal Thin-Film-Silicon Solar Cells", The Energy, Materials, and Nanotechnology (EMN) Photovoltaics Meeting 2016, Jan. 20 (2016).
- ⑪ 藤田奨也, 石崎賢司, 田中良典, De Zoysa Menaka, 川本洋輔, 元平暉人, 野田進: "超薄膜単結晶シリコン太陽電池の作製法の検討", 2015 年第 76 回応用物理学会秋期学術講演会, 名古屋国際会議場, 名古屋市, 2015 年 9 月 15 日.
- ⑫ 川本洋輔, 田中良典, 石崎賢司, De Zoysa Menaka, 野田進, "表面にフォトニック結晶を形成した $\mu\text{c-Si}$ 太陽電池の理論解析(II) -感度解析法による構造最適化検討-", 2015 年第 76 回応用物理学会秋期学術講演会, 名古屋国際会議場, 名古屋市, 2015 年 9 月 16 日.
- ⑬ 石崎賢司, 田中良典, De Zoysa Menaka, 元平暉人, 野田進, "表面にフォトニック結晶を形成した $\mu\text{c-Si}$ 太陽電池 ー表面層へのフォトニック結晶導入効果の実験評価 ー", 2015 年第 76 回応用物理学会秋期学術講演会, 名古屋国際会議場, 名古屋市, 2015 年 9 月 14 日.
- ⑭ 田中良典, 川本洋輔, 石崎賢司, De Zoysa Menaka, 野田進, "表面にフォトニック結晶を形成した $\mu\text{c-Si}$ 太陽電池の理論解析 ーフォトニック結晶構造の詳細検討と寄生吸収の抑制ー", 2015 年第 76 回応用物理学会秋期学術講演会, 名古屋国際会議場, 名古屋市, 2015 年 9 月 14 日.

6. 研究組織

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：石崎 賢司

ローマ字氏名：Kenji Ishizaki

研究協力者氏名：De Zoysa Menaka

ローマ字氏名：De Zoysa Menaka

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。