集積型 a-Si 太陽電池のレーザパターニング*

木 山 精 一** 松 岡 継 文*** 広 野 豊***
中 野 昭 一*** 大 隅 正 人** 桑 野 幸 徳***

Laser Patterning of Integrated-type a-Si Solar Cell Submodules

Seiichi KIYAMA, Tsugufumi MATSUOKA, Yutaka HIRONO, Shoichi NAKANO
Masato OSUMI and Yukinori KUWANO

Laser patterning technique of multi-layer thin film structures was developed as a new fabrication process for the integrated-type amorphous silicon (a-Si) solar cells. It was found that the total output power for an a-Si solar cell submodule using the laser patterning method was 20% higher than that obtained by a conventional patterning method. In laser patterning, optical and three-dimensional thermal analysis of multi-layer structures was performed to determine the selective scribing conditions for each layer of an a-Si solar cell. It was found that each layer of the integrated-type a-Si solar cells can be selectively scribed by a Q-switched YAG laser.

Key words: amorphous silicon, solar cell, laser processing, transparent conductive oxide, metal electrode, multi-layer thin film

1. 結 言

最近の電子部品は、超小型化ならびに高集積化が急速に進展しており、それに要する微細加工技術としてレーザ加工がここ数年注目を浴びている。筆者らもレーザ加工の新技術の一つとしてYAGレーザによる集積型アモルファスシリコン (a-Si) 太陽電池¹⁾²⁾の新しいパターン形成方法を提唱し、開発した³⁾⁴⁾。

集積型構造とは、a-Siが持つ薄膜でかつ導電率が低いという特徴を生かし、1枚の基板の上にセルをカスケード状に接続した構造である。従来、このパターン形成はメタルマスク法かフォトリソ法によって行われてきたが、プロセスの複雑さをはじめとして数多くの問題があった。

これに対し筆者らは、従来では困難とされていた熱的レーザ加工法による薄膜間の選択的な除去加工を、理論解析⁵⁾⁶⁾に立脚した各因子の最適化により可能にし、Qスイッチ付きNd:YAGレーザを用いてa-Si

太陽電池の各層を順次選択的にパターニングする新しい形成法の開発を行ったので報告する。

2. 集積型 a-Si 太陽電池の構造及び新しい形成方法

a-Si太陽電池の一般的な基本構造は、ガラス基板に透明電極 (Transparent Conductive Oxide, 膜厚 0.2~0.5 μm 程度)、シラン (SiH_4) のグロー放電によって形成したa-Si膜 (膜厚 0.5 μm 程度)、金属膜からなる裏面電極 (膜厚 0.2~1 μm 程度)を積層した構造である。これを基に実用的な太陽電池構造として開発した集積型 a-Si 太陽電池¹⁾の構造を図1に示

Fig. 1 Construction of the integrated-type a-Si solar cell

* 原稿受付 平成2年1月30日。精密工学会昭和62年度関西地方定期学術講演会 (昭和62年7月15日) および the 6th ICPE (昭和62年11月11日) にて発表
1990年度 (第10回) 精密工学会技術賞受賞業績
表題: 集積型 a-Si 太陽電池のレーザパターニング技術の開発

受賞者: 木山精一, 広野豊, 細川弘, 松岡継文, 大隅正人
正 会 員 三洋電機(株) (守口市京阪本通り2-18)

*** 三洋電機(株)

Fig. 2 Laser patterning for the integrated-type a-Si solar cell submodule and their cross sections
(a) scribing for TCO, (b) scribing for a-Si, (c) scribing for metal

すが、透明電極の抵抗による電力損失を減少させることができ、1枚の基板上で高い電圧を取り出せるため、主として電力用に用いられている。集積型太陽電池の従来から採用されている形成法は、メタルマスク法あるいはフォトマスク法であったが、これらのパターニング法には、次のような問題があった。

- (1) 多くの形成プロセスを必要とする。(12工程以上)
- (2) 基板寸法や形状に対して制約がある。(平板で30 cm×30 cmが最大)
- (3) 基板内の太陽電池の有効面積が小さい。
- (4) フォトマスク法はウェットプロセスであり、a-Si膜中にピンホールが発生しやすいため、出力特性の低下を招きやすい。
- (5) 連続一貫生産及び自動化生産が困難である。

そこで、これらの点を解決するため、筆者らはマスクを用いないドライプロセスでしかも高精度のパターニングが可能なレーザパターニング法を新たに提唱した³⁾⁴⁾。本方法は図2に示すようにa-Si太陽電池の各構成膜をハイパワーレーザによって、順次選択的にパターニングする方法である。

しかしながら、a-Si太陽電池のレーザパターニングを行う場合、従来にない特異な問題として、(1)異種材料の積層(複雑な相互干渉)、(2)薄膜性(周辺への盛上がりや熱影響)、(3)選択性(下層薄膜へのダメージ)等が存在するため、従来のレーザ加工技術にはないレーザ照射条件の精密な制御が必要となる。

そこで、レーザパターニングの最適条件を求めるため、多層薄膜構造へのレーザ照射時の光多重干渉解析及び温度分布解析を行い⁵⁾⁶⁾、計算と実験の対応をはかった。

3. 実験方法

実験には既報のレーザ装置と同じものを用いた⁶⁾。試料はステージコントローラでコンピュータ制御されたXYZステージ上に固定され、レーザ発振部には基本波長1.06 μm のTEM₀₀モードQスイッチ付きNd:YAGレーザを用い、パルス繰返し数 $Q=1\sim 20\text{ kHz}$ 、走査速度 $v=10\sim 200\text{ mm/s}$ でレーザパターニング実験を行った。

実験サンプルは、(1)ガラス基板上に形成されたSnO₂からなる透明電極(Transparent Conductive Oxide)(2000 Å)、(2)SiH₄のグロー放電により形成されたpin a-Si層(3000~8000 Å)、(3)Alの蒸着により形成された裏面電極より成る多層薄膜構造を用いた。

また、温度分布解析の計算に用いた各材料の物性値は温度依存とし、熔融時の潜熱も考慮した⁶⁾。

4. 実験結果及び考察

4.1 透明電極のパターニング

ガラス基板上の膜厚2000 Åの透明電極(TCO)表面に、レーザビームを照射した時の表面温度の時間推移の計算結果を図3に示す。パワー密度 $1.1\times 10^8\text{ W/cm}^2$ 、パルス半値幅90 nsのレーザ照射に対して、約120 ns後にTCO表面は熔融し、その後潜熱により一定時間温度変化がなく、再び融点以上に上昇する。この結果より、 $1.1\times 10^8\text{ W/cm}^2$ 以上のパワー密度によりTCOのレーザ加工が可能であると考えられる。

次に、計算で求めたレーザパワー密度で電気的に良好なTCOのレーザ加工が可能であるかを調べるためTCOのパターニング時のレーザパワー密度と分割部の電気抵抗の関係についての実験結果を図4に示す。これより、TCOパターニングに対する最適なレーザ

Fig. 3 Temperature distribution for TCO (2000 Å) / glass structure

Fig. 4 Relationship between the laser power density for TCO scribing and the electric resistance in the two scribed parts

Fig. 5 Laser patterning line of TCO on glass

パワー密度は $1.0 \sim 5.0 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ であることがわかった。

計算及び実験結果より求めた最適なパワー密度 ($2.0 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$) でパターニングしたときの TCO 表面の光学顕微鏡写真を図 5 に示すが、ガラスにダメージを与えず TCO が除去されていることが確認された。

4.2 a-Si 膜のレーザパターニング

a-Si 膜のパターニングも TCO と同様に下層に熱的損傷を与えず、さらにパターニング周辺の a-Si 膜自体にも熱影響なく選択パターニングする必要がある。

まず、a-Si/TCO (2000 Å)/ガラス構造に関して異なる波長のレーザビームを照射したとき、a-Si 膜厚と a-Si 膜におけるレーザの吸収率の相関を Maxwell の電磁方程式を解くことにより求めた計算結果⁵⁾⁶⁾ を図 6 に示す。

Fig. 6 Absorptivity in a-Si film dependence on a-Si film thickness at laser wavelength

図より、YAG レーザの基本波長である $1.06 \mu\text{m}$ に比較して、その第 2 高調波である波長 $0.53 \mu\text{m}$ を用いた方が a-Si 膜への吸収が大きいので、低いレーザパワーを有効に利用できるため、選択性の向上に有利であることがわかった。さらに、波長 $1.06 \mu\text{m}$ の場合、薄膜の多重干渉効果により、a-Si 薄膜の変動に対して吸収率が大きく変化している。これに対して、波長 $0.53 \mu\text{m}$ の場合には 3000 Å 以上ではほぼ一定の吸収率となり、膜厚の変動にかかわらず、安定したパターニングが可能であることがわかった。

そこで、スポット径 $100 \mu\text{m}$ とした波長 $0.53 \mu\text{m}$ のレーザをパルス半値幅 80 ns 、パルス周波数 2 kHz 、走査速度 80 mm/s の条件でパワー密度を変化させて、a-Si 膜に照射した場合の周辺への熱影響を電気的特性の変化により調べた。

まず、図 7 に示すようにギャップ型セルを用いガラス上の 5000 Å の a-Si 膜をスクライブしたときのレーザ照射前後の a-Si の暗導電率 σ_d の変化とレーザパワー密度の関係を測定した。ここで、各レーザパワー密度に対する σ_d は、レーザ照射前の値で規格化されている。 $0.5 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ 以下の低いパワー密度では、 σ_d はパワー密度の増加とともに大幅に大きくなっているが、これはレーザ照射部の a-Si 膜が除去されず結晶化し、低抵抗層を形成するためであると考えられる。さらにパワー密度が増すと σ_d は減少するが、これは a-Si 膜が除去され始め、結晶化領域が減少することによるものとわかった。

一方、 $1.0 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ 以上のパワー密度ではレーザ照射前後の σ_d の変化はほとんどなかった。これは、レーザ照射部の a-Si 膜が完全に除去されており、除去部周辺の a-Si 膜にも熱影響がないためと考えられる。

次に、a-Si 膜と下層の TCO との選択加工特性とセ

Fig. 7 Changes in the dark conductivity of a-Si film as a function of laser power density

Fig. 8 Measurement method for characteristics of a cell with patterned a-Si film by laser beam

ル特性との相関について調べるため、a-Si (5000 Å)/TCO (2000 Å)/ガラス構造に、前述の実験に用いた波長 $0.53 \mu\text{m}$ のレーザービームを同様の照射条件で図 8 (a) に示すようにパワー密度を変化させ TCO 上の a-Si (5000 Å) を加工した後、図 8 (b) のように裏面電極を形成してセル特性の変化を測定した。レーザーパワー密度とセル特性の関係を図 9 に示す。セルの最大出力 P_{max} は、従来方法で形成されたリファレンスセルの出力で規格化してある。低パワーでレーザー加工された (I), (II) の領域では、a-Si が十分に除去されていないため、最大出力は低い。一方、TCO 上の a-Si が良好に選択加工されている (III) の領域ではセル特性はリファレンスセルとほぼ同等の値を示す。これより、 $5.0 \sim 12.0 \times 10^6 \text{ W/cm}^2$ の広い領域にわたり、a-Si 膜と TCO 膜の良好な選択パターニングが可

Fig. 9 Change in the characteristics of the a-Si solar cell as a function of laser power density

Fig. 10 SEM image near the edge of laser patterned a-Si film on TCO

能であり、セルを形成した場合、a-Si に対する熱的な影響が無視しうることを確認した。

図 10 に TCO (5000 Å) 上に形成した a-Si 膜を図 9 (III) 領域の条件にて選択パターニングしたエッジ部の SEM 写真を示す。TCO には損傷がなく、a-Si エッジには盛上がりや飛散物がないことを確認した。

4.3 裏面電極のレーザーパターニング

裏面電極は、高い熱伝導率と反射率を持つ金属膜を用いるため、一般的に選択的なパターニングをすることは困難である。そこで、最適なレーザー照射条件を求めるため Al/a-Si/TCO/ガラスの 4 層構造のレーザーパターニング時の温度分布解析⁵⁾⁶⁾を行った。

図 11 に Al (5000 Å)/a-Si (5000 Å)/TCO (2000 Å)/ガラス基板の積層構造についてレーザー照射中心部

Fig. 11 The calculated spatial temperature distribution for different laser power densities

Fig. 12 SEM image near the edge of laser patterned metal layer

深さ方向の温度分布を示している。図 11 から明らかなように Al と a-Si の温度差はほとんどなく、また、a-Si と Al の融点が比較的近いという理由より、裏面電極パターニングとしては Al と a-Si を同時に TCO 上より除去するのが好ましいといえる。計算結果では、Al と a-Si が溶融し、TCO が溶融しない斜線部に示した温度分布において除去が可能と考えられる。

図 11 の (II) に相当するレーザパワー密度で裏面電極のパターニングを行った時のエッジ部の SEM 写真を図 12 に示す。TCO にはほとんどダメージなく裏面電極及び a-Si がパターニングされており、計算結果の妥当性が明らかになった。

4.4 レーザパターニングによる集積型 a-Si 太陽電池サブモジュールの出力特性評価

TCO, a-Si 膜, 裏面電極をそれぞれ計算⁵⁾⁶⁾と実験により求めた最適条件でレーザパターニングすること

Fig. 13 Laser patterned integrated-type a-Si solar cell submodule

Fig. 14 Illuminated I-V characteristics of the integrated-type a-Si solar cell fabricated by a laser patterning method and a metal-mask method

により、10 cm 角 (14 セル) 集積型 a-Si 太陽電池サブモジュールの作製を行い、従来のパターニング法と比較した。レーザパターニング法による太陽電池の接続部の光学顕微鏡写真を図 13 に示すが、下層にダメージなく選択パターニングが可能なが分かった。

また、各パターニング法による出力特性 (10 cm 角, AM-1 (100 mW/cm²) 照射時) を図 14 に示すが、レーザパターニングによる集積型 a-Si 太陽電池サブモジュールは、開放電圧 $V_{oc} = 12.0$ V, 短絡電流 $I_{sc} = 103$ mA, 曲線因子 F. F. = 0.634, 変換効率 $\eta = 8.70\%$, 最大出力 $P_{max} = 784$ mW の出力特性を得ており、同じ反応条件で従来のメタルマスク法を用いて作製したサブモジュールの特性と比較して、最大出力で約 20% 向上しており、レーザパターニングの有用性を確認することができた。

さらに、a-Si 膜質を向上させるとともにレーザパターニング法を用いて、出力特性の向上をはかることにより、10 cm 角 a-Si 太陽電池として世界最高の変

換効率である 10.2% (AM-1.5 (100 mW/cm²)) を実現した⁷⁾。

また、本レーザパターニング法の開発により複雑な曲面形状を有する太陽電池瓦や大面積モジュールのパターニングが可能となった。さらに、ドライプロセスとしてのパターニングが可能となるため今後太陽電池以外の薄膜デバイスにも応用が可能と考えられる。

5. 結 言

集積型 a-Si 太陽電池の新しい形成方法としてレーザパターニング技術の開発を行い、以下の結論を得た。

- (1) 異種の高層薄膜材料で構成されるデバイスに対して、レーザにより選択的加工を行うためには多層薄膜へのレーザ照射時の光多重干渉及び温度分布解析が有用であることを確認した。
- (2) Q スイッチ YAG レーザにより a-Si 太陽電池の構成材料である TCO, a-Si, 裏面電極に対して膜厚 1 μm 以下の各薄膜層間の選択的除去加工を可能にすることにより、新たに集積型太陽電池のレーザパターニング法を提唱した。
- (3) レーザパターニング法を用いて、10 cm 角集積型 a-Si 太陽電池サブモジュールを形成することにより、従来方式に比べて最大出力で 20% 高い特性が得られた。

謝 辞

本研究は工業技術院サンシャイン計画の一環として NEDO から委託され行われたもので、関係各位に感謝します。また、本研究を進めるにあたり、ご指導、ご助言をいただきました大阪大学工学部精密工学科森勇蔵教授に深く感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) Y. Kuwano et al.: Amorphous Silicon Integrated Cell Modules (I), 1st Photovoltaic Sci. & Engg. Conf. in Japan, (1979) 55.
- 2) Y. Kuwano: High Quality a-Si Films and Superlattice p-Layer a-Si Solar Cells, Mater. Res. Soc. 1986 Spring Meeting, (1986).
- 3) S. Nakano et al.: New Manufacturing Processes for a-Si Solar Cell Modules, Proc. 5th E. C. Photovoltaic Solar Energy Conf., Greece, 1983, D. Reidel Publishing Company, Dordrecht/Boston/Lancaster, (1984) 712.
- 4) 木山精一ほか: レーザパターニング方式による集積型 a-Si 太陽電池, 昭和 58 年秋季応物学会予稿集 (1983) 26 a-o-10.
- 5) S. Kiyama et al.: Laser Patterning of Multilayer Structures in Integrated-type a-Si Solar Cells, Proc. 6th Int. Conf. Prod. Engg. Osaka, (1987) 715.
- 6) 木山精一ほか: 多層薄膜構造へのレーザ照射時の温度分布解析, 1989 年度精密工学会秋季大会学術講演会講演論文集 (1989) 437; 精密工学会誌, **56**, 8 (1990) 1500.
- 7) T. Matsuyama et al.: Preparation of High-quality Poly-Si and μc-Si Films by the SPC Method, MRS Fall Meeting, Boston, Massachusetts, (1989).