

DISS. ETH No. 18194

Investigation and Development of CIGS Solar Cells on Flexible Substrates and with Alternative Electrical Back Contacts

A dissertation submitted to
ETH ZURICH

for the degree of
DOCTOR OF SCIENCES

presented by
David Julien Louis Brémaud

Dipl. Phys. ETH Zurich
born 28 November 1977
citizen of Feusisberg SZ, Switzerland

Accepted on the recommendation of
Prof. Dr. L. J. Gauckler, examiner
Prof. Dr. D. Lincot, co-examiner
Prof. Dr. A. N. Tiwari, co-examiner

Zurich, 2009

Summary

Photovoltaic is a very promising field amount various renewable energies. But solar cells can only establish themselves durable on the market, if they are also economically profitable. R&D is not only focusing on enhancing the conversion efficiency and the stability of the solar cells, but is also trying to find processes and technologies to reduce the costs. Flexible Cu(In,Ga)Se₂ (CIGS) solar cells are therefore very attractive because of their high conversion efficiencies, their low cost potential and the many application possibilities. The focus of the thesis was to apply innovation for development of next generation CIGS solar cells based on flexible foils and also novel devices for better utilization of solar spectrum to yield higher efficiency and performance stability.

In the first part of this work the development of CIGS solar cells on flexible substrates like polyimide and aluminum foils is described. The biggest challenge was to develop a deposition process for CIGS layers of suitable structural and opto-electronic properties at lower substrate temperature due to the thermo-physical properties of layers and substrates. Additionally, a new method for controlled incorporation of an optimum amount of Na in CIGS was implemented for high-efficiency cells since there is no diffusion of Na from polyimides or metal foils unlike from the usual soda lime glass substrates. On polyimide a record conversion efficiency of 14.1% has been achieved, which is the highest efficiency ever reported for any kind of solar cell grown on polymer. For the first time CIGS solar cells have been successfully grown on aluminum substrates and the influence of aluminum substrates on different process steps and layers of the cell has been investigated.

The second part of the thesis deals with the research and development of alternative electrical back contacts. The application of alternative materials than the commonly used Mo can not only bring advantages like enhancement of the long term performance stability, better thermal expansion match, or reduction of

Summary

material and processing costs, but can also offer multifunctionality, e.g. mirror or diffusion barrier properties. Transparent conducting back contacts also are a requirement for the development of multijunction (tandem) solar cells, in order to get better solar spectrum utilization.

CIGS solar cells on metal nitride and ITO based contacts have been grown and investigated. To facilitate a quasi-ohmic electrical contact a very thin MoSe₂ interface layer has been applied between the back contact and the CIGS layer in order to obtain carrier transport through tunneling. Similar efficiencies than on Mo back contacts could be achieved. The results suggest that the determining part is not the back contact material by itself, but the interface between back contact and absorber.

The concept of multijunction solar cells is demonstrated by the combination of CIGS with dye sensitized solar cells to tandem cells. Not only the proof of concept could be achieved, but also a record efficiency of 15.1%, which is the highest efficiency for dye sensitized solar cells including tandem devices.

Zusammenfassung

Die Photovoltaik ist einer der erfolgsversprechenden Bereiche der erneuerbare Energie. Solarzellen können sich dauerhaft auf den Markt nur dann etablieren, wenn sie sich auch wirtschaftlich rentabel sind. Eine Zielsetzung aktueller Forschung und Entwicklung ist es daher, neben der Verbesserung von Effizienz und Stabilität, die Herstellkosten von Solarzellen zu senken. Flexible Cu(In,Ga)Se₂ (CIGS) Solarzellen sind deshalb sehr attraktiv, da sie einen hohen Wirkungsgrad aufweisen und ein grosses Potential besteht, sie kostengünstiger herstellen zu können. Darüber hinaus sind sie potentiell in vielen Bereichen einsetzbar.

Der Hauptfokus dieser Arbeit war, die nächste Generation von CIGS-Solarzellen auf biegsamen und leichten Folien zu entwickeln und vor allem neue elektrische Rückkontakte zu finden und zu charakterisieren, um eine noch optimalere Ausnützung des Sonnenspektrum zu erreichen und die Stabilität der Solarzelle weiter zu verbessern.

Der erste Teil dieser Dissertation fasst den Entwicklungsstand von ultraleichten CIGS-Dünnschicht-Solarzellen auf den flexiblen Substrate Polymer- und Aluminiumfolien zusammen. Bedingt durch die niedrigere Temperaturbeständigkeit der Polymerfolien und die unterschiedlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten der Schichten war das erste Ziel den Herstellungsprozess für flexible Substraten anzupassen. Die grösste Herausforderung lag dabei in der Entwicklung eines Tieftemperaturprozess für die Abscheidung einer CIGS-Schicht mit spezifischen Ga/In Zusammensetzungsprofilen, definierten chemischen Stöchiometrien und speziellen Gefügen. Ausserdem wurde eine neue Methode implementiert, um einen kontrollierten Einbau von Natrium ins CIGS zu gewährleisten. Dies ist bei Polymer basierten Zellen notwendig, da bei Polymersubstraten das notwendige Natrium für die CIGS Schicht, das sonst wie üblich aus dem Glassubstrat in die Schicht diffundiert, nicht vorhanden ist. Mit

diesen auf Polyimid abgeschiedene Dünnschicht-CIGS-Solarzellen wurde ein Rekord-Wirkungsgrad von 14.1% erreicht, welcher der höchste Wirkungsgrad ist, der jemals von einer auf Polymer gewachsene Solarzelle erreicht wurde. Zum ersten Mal wurden CIGS-Solarzellen auch erfolgreich auf Aluminium-Substraten abgeschieden. Hier konnte der Einfluss des Aluminiums auf die verschiedenen Prozesse und Schichten untersucht werden.

Im zweiten Teil dieser Arbeit wird die Forschung und Entwicklung der Molybdän ersetzenden elektrischen Rückkontakte beschrieben. Neue Materialien können hier nicht nur höhere Langzeitstabilität, bessere Wirkungsgrade und reduzierte Herstellungskosten erwarten lassen, sondern auch noch Mehrzweckfunktionen erfüllen, wie z.B. als Diffusionsbarriere wirken oder reflektierende Eigenschaften aufweisen. Durch die Verwendung von transparenten leitenden Oxide als Rückkontakte eröffnet sich auch die Möglichkeit, Tandem- und Multikontakt-Zellen zu entwickeln, die das Sonnenspektrum effizienter ausnutzen können. CIGS Solarzellen auf Metall-Nitrid und Indium dotiertem Zinnoxid (ITO) basierenden Kontakte wurden hergestellt und untersucht. Um die Bildung eines Quasi-Ohmischen Kontaktes zu ermöglichen, wurde eine dünne MoSe_2 - Schicht zwischen dem Rückkontakt und der CIGS Schicht eingefügt, um so einen Ladungsträgertransport durch Tunneln zu erleichtern. So konnten ähnliche Wirkungsgrade wie auf Mo Rückkontakte erreicht werden. Die Resultate der Charakterisierung legen nahe, dass nicht der Rückkontakt selbst entscheidend ist, sondern der Übergangsbereich zwischen Rückkontakt und Absorber.

Im letzten Teil der Arbeit wird die Kombination einer CIGS Zelle mit einer TiO_2 basierten Farbstoff-Solarzelle vorgestellt. Das Konzept einer solchen Multikontakt-Zelle wurde demonstriert, indem CIGS mit TiO_2 - Solarzellen zu Tandemzellen kombiniert wurden. Dabei konnte nicht nur die Machbarkeit dieser Kombination dargelegt werden, sondern auch bereits ein Rekordwirkungsgrad für TiO_2 haltige Solarzellen von 15.1% erreicht werden.