

Wege zur Industrialisierung von c-Si/Perowskit-Tandemsolarzellen

Der mit Abstand größte Anteil der aktuell produzierten und installierten Photovoltaik(PV)-Module basiert auf kristallinem Silizium (c-Si). Die kontinuierliche Verbesserung des Wirkungsgrades der verwendeten c-Si-Solarzellen hat maßgeblich dazu beigetragen, dass die Preise dieser PV-Module in den letzten 5 Jahren von ca. 0,60 EUR/Wp auf derzeit ca. 0,25 EUR/Wp („Standard-Module“) bis 0,35 EUR/Wp („Hocheffizienz-Module“) gesunken sind.

Die weitere kontinuierliche Weiterentwicklung der bestehenden Technologien sowie die Einführung neuer c-Si-Solarzellen-Generationen wird ohne Frage in den nächsten Jahren zu weiteren Wirkungsgradsteigerungen führen. Gleichzeitig wurde im Artikel „Stapelsolarzellen mit Perowskiten – Die neuen Stars der Photovoltaik“ (► S. 42) dargelegt, dass das obere Limit dieser Entwicklung bereits abzusehen ist: bei spätestens 29% Wirkungsgrad werden „reine“ c-Si-Solarzellen ihr Maximum erreicht haben.

Ein Weg zu noch höheren Wirkungsgraden wurde in dem Artikel ebenfalls aufgezeigt: die Kombination von c-Si-Solarzellen mit Solarzellen auf Basis von Perowskiten. Im Labormaßstab haben diese Stapel- oder auch Tandemsolarzellen inzwischen gezeigt, dass sie tatsächlich höhere Wirkungsgrade erreichen als reine c-Si-Solarzellen.

Nun stellt sich die Frage, wie man diese Technologie im industriellen Maßstab fertigen kann und ob sich der dafür notwendige Entwicklungsaufwand auch lohnt.

Weltweiter Wettbewerb – weltweite Chancen

Dazu sei darauf hingewiesen, dass im Jahr 2018 weltweit etwa ca. 140 Mrd. EUR investiert wurden, um insgesamt ca. 100 GW PV-Leistung zu installieren [1]. Damit wurde etwa fünfmal so viel Leistung installiert wie im Jahr 2010 und etwa doppelt so viel wie im Jahr 2014. PV ist also ein globaler Wachstumsmarkt. Zudem ist Strom aus PV-Systemen inzwischen an vielen Orten der Welt günstiger als Strom aus allen anderen Quellen. Diese Tatsache, in Kombination mit den weltweiten, europäischen und auch deutschen Zielen bezüglich der Reduzierung von CO₂-Emissionen, garantiert, dass dieses Wachstum sowohl mittel- als auch langfristig anhalten wird.

Installierte PV-Leistung beruht auf produzierten PV-Modulen. Aktuell wird der Großteil der c-Si-PV-Module in Asien und insbesondere in China gefertigt [1]. Gleiches gilt für c-Si-Solarzellen. Die für die Produktion von PV-Modulen und Solarzellen nötigen Maschinen und Anlagen stammen sowohl aus Europa als auch aus Asien, wobei es leider einen klaren Trend zu sinkenden europäischen Marktanteilen gibt.

Dies steht im Gegensatz dazu, dass die europäische und vor allem auch die deutsche Forschung weiterhin Spitzenergebnisse erzielt. So hält das Fraunhofer ISE derzeit sowohl den Weltrekord für multikristalline (22,3%) als auch für beidseitig kontaktierte (25,8%) Siliziumsolarzellen. Das ISFH hat zudem mit 26,1%



ISFH
Dr. Bianca Lim
b.lim@isfh.de

Prof. Dr. Tobias Wietler
t.wietler@isfh.de

HZB
Prof. Dr. Rutger Schlatmann
rutger.schlatmann@helmholtz-berlin.de

Prof. Dr. Bernd Stannowski
bernd.stannowski@helmholtz-berlin.de

Fraunhofer ISE
Dr. Uli Würfel
uli.wuerfel@ise.fraunhofer.de

FZ Jülich
Dr. Kaining Ding
k.ding@fz-juelich.de

KIT
Dr. Ulrich W. Paetzold
ulrich.paetzold@kit.edu

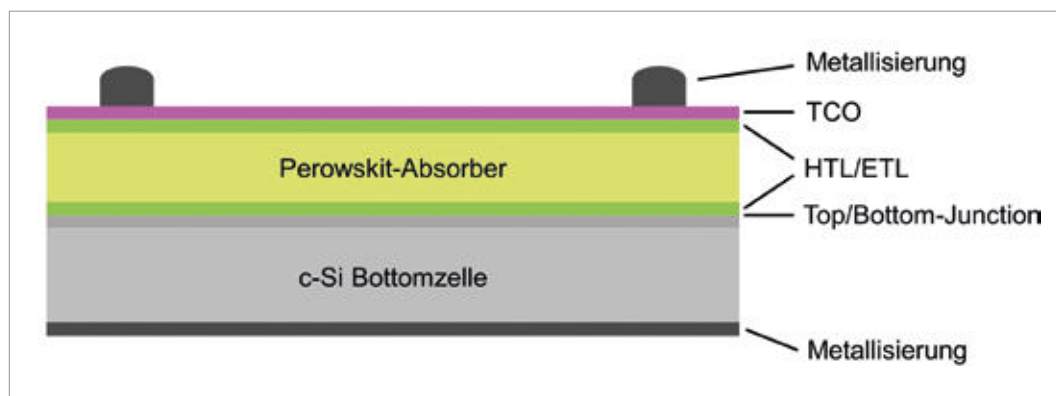
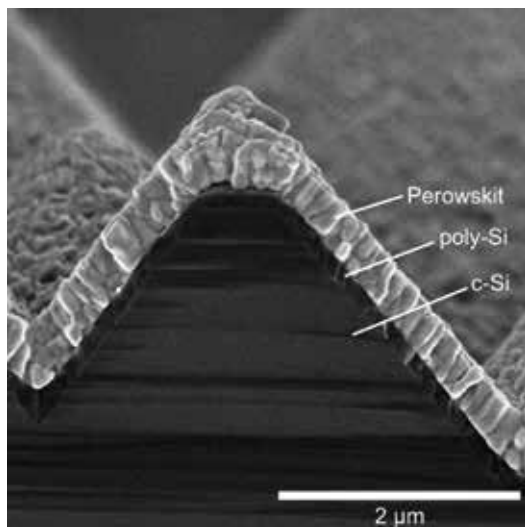


Abbildung 1
Monolithische Tandemsolarzelle:
Schema der wichtigsten Bausteine für diese direkt aufeinander aufbauende Tandemsolarzelle

Abbildung 2

Ko-Verdampfung erzeugt auch auf texturierten Oberflächen geschlossene Schichten; hier Abscheidung einer Perowskit-Schicht auf texturierter Siliziumoberflächen. (Rasterelektronenmikroskop-Aufnahme)



den höchsten Wirkungsgrad auf p-Typ-Silizium erreicht. Diese Spitzenforschung steht bereit, sowohl die Maschinenbauer als auch (potenzielle neue) Zell- und Modulproduzenten dabei zu unterstützen, ihre Marktanteile wieder zu vergrößern bzw. in den PV-Markt einzutreten.

Kostengünstig industriell herstellbare Silizium-Perowskit-Tandemsolarzellen könnten dabei sehr gut den Entwicklungsvorsprung bieten, den es benötigt, um in dem sehr dynamischen Wachstumsmarkt PV Fuß zu fassen.

An den Erfolg von c-Si anknüpfen und darauf aufbauen

Was ist für diese kostengünstige industrielle Produktion notwendig?

► **Abbildung 1** zeigt schematisch die wichtigsten Bausteine für sogenannte monolithische, d.h. direkt aufeinander aufbauende, Tandemsolarzellen: Die Basis bilden eine (sehr gute) c-Si-Solarzelle (Bottomzelle) und eine (ebenfalls sehr gute) Perowskit-basierte Solarzelle (Topzelle). Die Perowskit-Solarzelle besteht dabei aus einem Absorbermaterial (dem Perowskit) sowie einer elektronenleitenden Schicht (ETL) auf der einen und einer löcherleitenden Schicht (HTL) auf der anderen Seite. Die beiden Solarzellen sind mittels einer Junction, d.h. einem Übergang für die Ladungs-



Abbildung 3

Tintenstrahlendruck von Perowskit-Schichten:

Logodruck als Beispiel für die Positionsgenauigkeit.

träger, miteinander verbunden. Auf der Vorderseite der Perowskit-Solarzelle (und auf der Rückseite der c-Si-Solarzelle) befindet sich zudem noch ein Metallkontakt.

Sehr gute c-Si-Solarzellen werden bereits heutzutage industriell gefertigt und zwar derzeit auf einer Größe von ca. 160 x 160 mm² und einer Taktung von 1 bis 2 Solarzellen pro Sekunde. Die „neuen“ Materialien, die in der oberen Hälfte der Tandemsolarzelle zum Einsatz kommen, müssen also mit Prozessen aufgebracht werden, die mit diesen Rahmenbedingungen kompatibel sind.

Großflächiges Abscheiden von Perowskit- und Transportschichten

Ko-Verdampfung

Am ISFH wird dazu das Ko-Aufdampfen von Perowskitschichten entwickelt, also das gleichzeitige Verdampfen der einzelnen Perowskitkomponenten wie z.B. Blei(II)iodid (PbI₂) und Methylammoniumiodid (MAI). Durch die Kontrolle der einzelnen Aufdampfraten hat man eine enge Kontrolle über die Schichtzusammensetzung sowie über die Schichtdicke [2,3]. Gleichzeitig ist mit dieser Methode die konforme Beschichtung auf unebenen Oberflächen sehr gut möglich.

So weist die Oberfläche von c-Si-Solarzellen sogenannte zufällige Pyramiden auf, welche die Lichtkopplung in die Solarzelle deutlich verbessern. Laborverfahren wie das Aufschleudern flüssiger Komponenten (Spin-Coating) können auf solchen Oberflächen keine geschlossenen Schichten erzeugen. Dagegen sieht man in dem Rasterelektronenmikroskop-Bild in ► **Abbildung 2**, dass sich die ko-verdampfte Perowskit-Schicht gleichmäßig auf der texturierten Si-Oberfläche abgeschieden hat.

Mittels Aufdampfen lassen sich ebenso die elektronen- und löcherleitenden Transportschichten abscheiden und somit komplette Perowskit-Solarzellen herstellen.

Das KIT hat mit dieser Technik bereits einen Wirkungsgrad von 16,8% gezeigt. Solarzellen, bei denen „nur“ der Absorber verdampft wurde und bei denen daher eine organische Transportschicht verwendet werden konnte, erreichten sogar einen Wirkungsgrad von 18,1% [4].

Aufgedampfte Perowskit-Absorber sind auch ein Forschungsthema am HZB. In Kombination mit Transportschichten aus selbstorganisierten, molekularen Monolagen (self-assembled monolayers, SAM) wur-

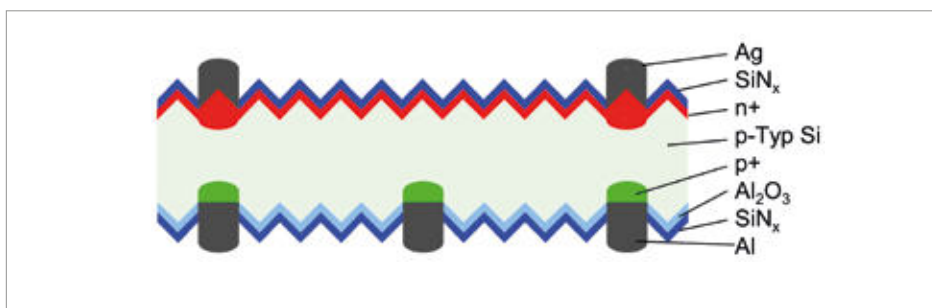


Abbildung 4a

Bifaziale PERC+-Solarzelle:
 Schema einer kristallinen Silizium-Solarzelle der sogenannten „Passivated Emitter and Rear Cell“-Architektur (PERC), welche sich derzeit als marktführende Technologie etabliert.

den dort Wirkungsgrade mit ko-verdampften Perowskit-Absorbern über 19,5% gezeigt [5].

Tintenstrahldruck

Eine weitere Methode zur großflächigen Abscheidung von Perowskit-Schichten ist der Tintenstrahldruck (Inkjet), der ebenfalls am KIT entwickelt wird. Hier werden die einzelnen Bestandteile des Perowskiten mittels des bekannten Tintenstrahlverfahrens auf die Oberfläche aufgebracht. Im Vergleich zum Aufdampfen wird dabei weniger Ausgangsmaterial benötigt, denn die Abscheidung verläuft gezielt und positionsgenau. Selbst die Erzeugung von Mustern ist mit diesem Verfahren möglich, wie beispielsweise in ► *Abbildung 3* gezeigt. Perowskit-Solarzellen mit tintenstrahldruckgedruckten Absorbern haben bereits Wirkungsgrade von 18,5% erzielt [6,7].

Dieser Schichtstapel besitzt eine hohe Temperaturstabilität und ist daher kompatibel mit den sogenannten Feuerprozessen der marktführenden c-Si-Solarzellen. Dieses „Feuern“ geschieht in Durchlauföfen bei Temperaturen oberhalb von 750°C und dient zur Ausbildung des Kontaktes zwischen den mittels Siebdruck aufgetragenen metallhaltigen Pasten und dem Silizium.

Damit eröffnet sich eine aus derzeitiger Marktsicht besonders attraktive Variante für c-Si-Perowskit-Tandemsolarzellen: das Upgrade der sogenannten Passivated Emitter and Rear Cell (PERC)-Technologie. Diese hält seit einigen Jahren immer mehr Einzug in die Massenproduktion und stellt selbst ein Upgrade zur bis dato dominanten Zellarchitektur mit ganzflächigem Aluminium-Rückkontakt dar. Einige Hersteller berichten von Wirkungsgraden um die 22,5% in Produktionslinien.

Direktes Upgrade für marktführende c-Si-Technologie denkbar

Das ISFH konzentriert sich im Bereich der Junction zwischen Top- und Bottomsolarzelle auf sogenannte Tunneljunctions auf Basis von polykristallinem Silizium. Die Tunneljunction besteht aus einer hochdotierten p-Typ-Poly-Si-Schicht, welche in direktem Kontakt mit einer hochdotierten n-Typ-Poly-Si-Schicht steht. Hinzu kommt eine sehr dünne Oxidschicht zwischen diesem poly-Si-Stapel und dem kristallinen Silizium der Bottomzelle [8].

Der schematische Aufbau einer bifazialen PERC+-Solarzelle ist in ► *Abbildung 4a* gezeigt. Die Basis bildet kristallines p-Typ-Silizium. Auf der Vorderseite befindet sich eine dünne Schicht kristallines, hochdotiertes n-Typ-Silizium sowie eine ebenfalls sehr dünne Schicht Siliziumnitrid. Die Rückseite ist mit einem Stapel aus Aluminiumoxid und Siliziumnitrid (Al₂O₃/SiN_x) beschichtet. Die Metallkontakte sind sowohl auf der Vorder- als auch auf der Rückseite nur lokal vorhanden, so dass die Solarzelle Licht von beiden Seiten einsammeln kann (Bifazialität).

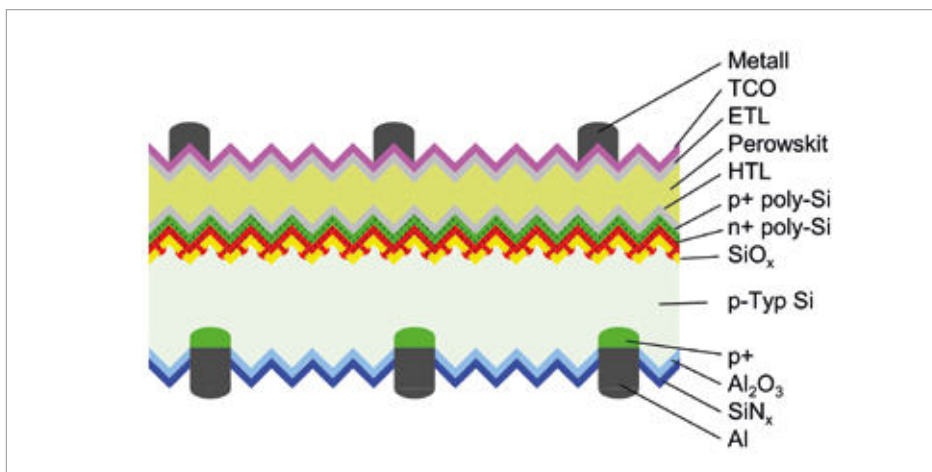


Abbildung 4b

Schema einer Tandemsolarzelle,
 welche dieselbe Rückseite besitzt wie die in *Abbildung 4a* gezeigte PERC-Solarzelle. Die Verbindung zwischen Si-Bottomzelle und Perowskit-Topzelle besteht aus zwei dünnen, hochdotierten polykristallinen Silizium-Schichten.

Ersetzt man nun das hochdotierte n-Typ-Gebiet sowie die SiN_x-Schicht an der Vorderseite der PERC-Solarzelle durch die oben beschriebene Tunneljunction, so übernimmt die Kombination aus sehr dünnem Siliziumoxid und hochdotiertem n-Typ-Poly-Si dessen Funktion – und reduziert zudem die Rekombinationsverluste an dieser Oberfläche. Die Perowskit-Topzelle kann dann direkt auf die hochdotierte p-Typ-Poly-Si-Schicht aufgebracht werden (► *Abbildung 4b*).

Dieser Ansatz wird von ISFH, HZB, dem Institut für Physik und Astronomie der Universität Potsdam zusammen mit den Firmen OxfordPV, RENA und Wavelabs im Rahmen des BMWi-geförderten Projektes Perowskit/POLO/PERC-Tandemsolarzelle (P3T) verfolgt.

Die Vorreiter: Silizium-Heterojunction-Bottomzellen

Silizium-Heterojunction (HJT)-Solarzellen zeichnen sich durch sehr hohe Wirkungsgrade (> 25%) aus und sind seit Jahren ein „Premium-Produkt“ im c-Si-Markt. Sie sind sehr gut mit Perowskit-Topzellen kombinierbar, da an der Vorderseite nur leichte Modifikationen durchgeführt werden müssen, um einen guten Übergang von Top- zu Bottomzelle zu ermöglichen.

In einer Kooperation zwischen HZB, der Universität Oxford sowie OxfordPV wurde mit diesem Ansatz im Juni 2018 ein Wirkungsgrad von 25,2% gezeigt [9]. Mittlerweile hat OxfordPV den Wirkungsgrad auf 28,0% (1 cm²) erhöht und hält damit den Weltrekord für diese Technologie [10]. Tandemsolarzellen, die komplett am HZB hergestellt werden, erreichen über 26% Wirkungsgrad [11].

Diese rasante Entwicklung zeigt das große Potenzial der Tandemtechnologie. HZB, Fraunhofer ISE und TU Berlin arbeiten nun zusammen mit von Ardenne und OxfordPV daran, diese HJT-Perowskit-Tandemsolarzellen auf die für c-Si-Solarzellen übliche Größe von 6-Zoll-Wafern hochzuskalieren und damit einen Wirkungsgrad von 26% zu erreichen (BMW-gefördertes Projekt ProTandem).

Im Rahmen dieser Zusammenarbeit soll außerdem die Serienfertigung von c-Si-Perowskit-Tandemsolarzellen demonstriert werden. Dafür wird derzeit in Brandenburg a. d. Havel eine 250 MW-Fertigungslinie von OxfordPV aufgebaut, welche auf einer Silizium-HJT-Linie von Meyer Burger beruht. Die Kommerzialisierung ist für das Jahr 2020 geplant.

Quellen

- [1] A. Jäger-Waldau, *PV Status Report 2018*, EUR 29463 EN, Publications Office of the European Union, Luxembourg, 2018, ISBN 978-92-79-97465-6, doi:10.2760/826496, JRC113626
- [2] S. J. Wolter, V. Steckenreiter, M. C. Tatarzyn, T. Wietler, R. Niepelt, and S. Kajari-Schröder, *Determination and influence evaluation of the acoustic impedance ratio for thermal co-evaporation*, Applied Physics Letters 113, 013301 (2018)
- [3] R. Niepelt, S. J. Wolter, M. Tatarzyn, M. Diederich, V. Steckenreiter, T. Wietler, R. Peibst, and S. Kajari-Schröder, *Application of Experimentally Determined Acoustic Impedance Ratio for Homogeneous Co-Evaporation of Perovskite Absorbers*, 2018 IEEE 7th World Conference on Photovoltaic Energy Conversion (WCPEC), Waikoloa Village, HI, 0508-0511 (2018)
- [4] T. Abzieher, J. A. Schwenzer, S. Moghadamzadeh, F. Sutterlüti, I. M. Hossain, M. Pfau, E. Lotter, M. Hetterich, B. S. Richards, U. Lemmer, M. Powalla, and U. W. Paetzold, *Efficient All-Evaporated pin-Perovskite Solar Cells: A Promising Approach Toward Industrial Large-Scale Fabrication*, IEEE Journal of Photovoltaics 9, 1249 (2019)
- [5] A. Al-Ashouri, A. Magomedov, M. Roß, M. Jošt, M. Talaikis, G. Chistiakova, T. Bertram, J. A. Márquez, E. Köhnen, E. Kasparavicius, S. Levenco, L. Gil-Escrig, C. J. Hages, R. Schlatmann, B. Rech, T. Malinauskas, T. Unold, C. A. Kaufmann, L. Korte, G. Niaura, V. Getautis, and S. Albrecht, *Conformal monolayer contacts with lossless interfaces for perovskite single junction and monolithic tandem solar cells*, Energy & Environmental Science 12, 3356-3369 (2019)
- [6] F. Mathies, H. Eggers, B. S. Richards, G. Hernandez-Sosa, U. Lemmer, and U. W. Paetzold, *Inkjet-Printed Triple Cation Perovskite Solar Cells*, ACS Applied Energy Materials 1 (5), 1834-1839 (2018)
- [7] T. Abzieher, S. Moghadamzadeh, F. Schackmar, H. Eggers, F. Sutterlüti, A. Farooq, D. Kojda, K. Habicht, R. Schmager, A. Mertens, R. Azmi, L. Klohr, J. A. Schwenzer, M. Hetterich, U. Lemmer, B. S. Richards, M. Powalla and U. W. Paetzold, *Electron-Beam-Evaporated Nickel Oxide Hole Transport Layers for Perovskite-Based Photovoltaics*, Advanced Energy Materials 9, 1802995 (2019)
- [8] R. Peibst, M. Rienäcker, B. Min, C. Klamt, R. Niepelt, T. Wietler, T. Dullweber, E. Sauter, J. Hübner, M. Oestreich, and R. Brendel, *From PERC to Tandem: POLO- and p+/n+ Poly-Si Tunneling Junction as Interface Between Bottom and Top Cell*, IEEE Journal of Photovoltaics 9 (1), 49-54, (2019)
- [9] L. Mazzarella, Y.-H. Lin, S. Kirner, A. B. Morales-Vilches, L. Korte, S. Albrecht, E. Crossland, B. Stannowski, C. Case, H. J. Snaith, and R. Schlatmann, *Infrared Light Management Using a Nanocrystalline Silicon Oxide Interlayer in Monolithic Perovskite/Silicon Heterojunction Tandem Solar Cells with Efficiency above 25%*, Advanced Energy Materials 9 (14), 1803241 (2019)
- [10] NREL Best Research-Cell Efficiency Chart, Version 20191106, <https://www.nrel.gov/pv/assets/pdfs/best-research-cell-efficiencies.20191106.pdf>
- [11] E. Köhnen, M. Jošt, A. B. Morales-Vilches, P. Tockhorn, A. Al-Ashouri, B. Macco, L. Kegemann, L. Korte, B. Rech, R. Schlatmann, B. Stannowski, and S. Albrecht, *Highly efficient monolithic perovskite silicon tandem solar cells: analyzing the influence of current mismatch on device performance*, Sustainable Energy Fuels 3, 1995-2005 (2019)