

Samenvatting

Op het moment dat deze samenvatting is geschreven, juli 2022, is het meest recente datapunt voor de CO₂-concentratie op Mauna Loa 420,99 ppm. Ik ben geboren in april 1994, met 361,36 ppm. Om de klimaatcrisis te bestrijden, is het stoppen van de snelle stijging van de broeikasgasconcentratie in onze atmosfeer één van de grootste uitdagingen van deze eeuw, daarom moet het dit decennium nog op het schema worden gezet. We hebben het geluk dat we de mogelijkheden hebben om de werktuigen te maken om daar te komen. Het veranderen van de manieren waarop wij energie opwekken — weg van vervuilende fossiele brandstoffen en richting duurzame en hernieuwbare energiebronnen zoals wind, water en zon — zal aanzienlijk bijdragen aan het beperken van de opwarming van de aarde. Elektriciteitsopwekking uit zonlicht, fotovoltaïsche energie (PV), ligt op schema om een deel van de last te dragen en deze groei kan profiteren van verdere innovaties op het gebied van efficiënte stroomconversie, technologische veelzijdigheid (flexibel, buigzaam, duurzaam, etc.) en kostenreductie.

In dit proefschrift komen deze aspecten aan de orde voor verschillende technologieën. We ontwerpen nieuwe fotovoltaïsche architecturen voor een reeks gevestigde (Si, III-V-materialen) en nieuwe (PbS-quantum dots, Zn₃P₂, perovskieten) absorberende materialen. Lichtmanagementconcepten worden gebruikt om de absorptie van licht voor fotovoltaïsche apparaten, zonnecellen, te evalueren en te verbeteren. De verbeteringen zijn gebaseerd op structuren van nano- en micrometer dimensie aan de voorkant, het midden of de achterkant van de zonnecellen en hebben als primair doel de absorptie in de absorberende laag te verbeteren. Bovendien wordt ook rekening gehouden met de ruimtelijke verdeling van het geabsorbeerde licht, om niet alleen een succesvolle opwekking van ladingsdragers uit fotonen te garanderen, maar ook het succesvol extraheren van de ladingsdragers. We demonstreren veel van deze ontwerpen experimenteel, evalueren hun elektronische prestaties en gebruiken commercieel relevante schaalbare processen om de toepassingsrelevantie van onze ontwerpen te maximaliseren.

Het proefschrift begint met een uiteenzetting van de dreigende gevolgen van de stijging van de broeikasgasconcentratie in onze atmosfeer (Hoofdstuk 1). De opwarming van de aarde wordt gezien als een ernstig gevaar en de grootste uitdaging van deze eeuw. Dit is onder meer een belangrijke motivatie en rechtvaardiging om over te stappen op energieopwekking uit hernieuwbare bronnen. De basisprincipes van fotovoltaïsche energieconversie worden besproken, evenals de thermodynamische limiet, als een fysieke grens. Speciale aandacht wordt besteed aan de trends in de toename van de cefficiëntie voor verschillende halfgeleiders door de jaren heen, en hun duidelijke voordelen voor PV-toepassingen worden gepresenteerd.

De eerste technologie waar we naar kijken zijn dunne-film PbS quantum dots (kwantumdeeltjes, QD) zonnecellen, gemaakt vanuit oplossing (Hoofdstuk 2). Hiervoor introduceren we een bulk heterojunctie zonnecelontwerp dat optisch resonant is. De cel is

ontworpen als een vierkant rooster van PbS QD-cilinders met een hoogte van 330 nm, een diameter van 320 nm en een roosterafstand van 500 nm, ingebed in ZnO. De afmetingen van de QD-cilinder zijn zo gekozen dat ze optische resonanties ondersteunen, waardoor de absorptie per volume-eenheid met 20% wordt verbeterd in vergelijking met een vlakke referentie. Elektronische simulaties voorspellen een winst in kortsluitstroomdichtheid (J_{sc}) van 3,2 mA/cm² en een efficiëntiewinst van 0,4% - absoluut. In het experiment gebruiken we eerst substraat-conforme afdruk lithografie (SCIL) om patroonvorming van ZnO-solgel aan te tonen en de verwachte optische trends in de gefabriceerde cellen te vinden. Ook laten we een verhoogde externe kwantumefficiëntie (EQE) zien, die leidt tot een J_{sc} -verhoging van 0,74 mA/cm². Ten slotte benadrukt dit hoofdstuk het belang om het generatieprofiel van ladingsdragers te beschouwen als de grootheid die het optische en elektronische ontwerp van zonnecellen verbindt.

PbS QD zonnecellen hebben een verstelbare bandgap, zijn dun en ze zijn te verwerken in oplossing, waardoor ze interessante kandidaten zijn voor geprinte zonnecellen, evenals cellen voor het oogsten van licht binnenshuis. Vooruitgangen in PbS QD zonnecellen hebben vaak ook positieve implicaties voor het ontwerp van op deze halfgeleider gebaseerde licht-emitterende diodes (LED).

Een geconcentreerd fotonvoltaïsch systeem (CPV) is een hoogrenderende technologie die afhankelijk is van de concentratie van zonlicht op relatief kleine zonnecellen, en de concentratiefactor veroorzaakt een logaritmische toename van de nullastspanning (V_{oc}), wat efficiëntere cellen mogelijk maakt. Bovendien maakt het gebruik van veel kleinere cellen (factor 100-1000) het mogelijk om dure III-V-technologieën in overweging te nemen, zoals op GaAs gebaseerde zonnecellen. CPV vereist echter om een groot oppervlakte aan de voorkant te bedekken met metaal om de hoge gegenereerde stroom te verzamelen, wat aanzienlijke reflectieverliezen veroorzaakt. In Hoofdstuk 3 introduceren we transparante contacten van een glasachtig polymeer, door gebruik te maken van optische breking in V-vormige groeven. We brengen de laag aan op een Si-zonnecel en demonstreren een hoge optische transparantie (95,2%). Voor een frontale metaaldekking van 25% verhogen de transparante contacten de J_{sc} van 29,95 mA/cm² naar 39,12 mA/cm². Ten slotte wordt een CPV-ontwerp gepresenteerd dat een "effectieve schaduw" van 1,8% mogelijk maakt bij een concentratie van 1000 zonnen, waarvoor we een efficiëntiewinst van 4,8%-absoluut voorspellen, volgens de thermodynamische limiet.

CPV zonnecellen zijn de meest efficiënte PV-technologie ooit, met een maximale energieconversie-efficiëntie van 47,1%. Bovendien zijn ze zeer geschikt om te combineren met geconcentreerde thermische zonne-installaties in gebieden met een hoge instraling op aarde. Deze architecturen zijn in staat om gelijktijdig elektriciteit en warmte op te wekken.

Silicium-PV is momenteel de commercieel meest relevante technologie, vanwege de lage eindgebruikerskosten en de hoge module-efficiëntie (boven de 20%). Tegelijkertijd worden dunne-film PV-toepassingen steeds belangrijker. De volwassenheid van Si-technologie zou het een interessante concurrent voor die markt maken, maar absorptie in dunne kristallijne Si-wafers wordt beperkt door slechte absorptie van licht rond de bandgap (1000-1200 nm). Hoofdstuk 4 introduceert een fabricagebenadering voor twee optische ontwerpen die inkoppeling en light trapping (lichtopsluiting) in Si-

halfgeleiders met vlakke oppervlakken kunnen verbeteren om dit probleem te verminderen. Voor inkoppeling demonstreren we een vierkant rooster van SiN_x-nanocilinders (117 nm hoogte, 190 nm diameter, 460 nm roosterafstand) dat fungeert als een breedband antireflectie laag. Het ontwerp levert momenteel een gemeten J_{sc} op van 36,9 mA/cm², met het potentieel om tot 39 mA/cm² te bereiken op een 100 μm Si-wafer. Dergelijke ontwerpen kunnen ook worden gebruikt op dünnere wafers om zeer efficiënte flexibele zonnecellen te maken. Ten slotte demonstreren we experimenteel een hyperuniforme Si-nanostructuur op het oppervlak van een Si-zonnecel, die licht efficiënt kan vangen in een dunne Si-cel, en onderzoeken we elektronische passiveringsvereisten voor deze geometrie.

Dünne kristallijne Si-wafers kunnen worden toegepast in voertuigen, in gebouwen en in draagbare en opvouwbaar elektronica, en kunnen een verdere kostenverlaging mogelijk maken door het gebruik van een dünnere absorberende laag.

Een veelbelovend pad om de energieconversie-efficiëntie van op Si gebaseerde PV te verbeteren, is door de toevoeging van een tweede halfgeleider bovenop, waardoor een tandem-zonnecel ontstaat. De efficiëntielimiet voor een dergelijke cel is 45,1% voor een perovskiet-topcel met een bandgap van 1,73 eV, wat aanzienlijk groter is dan de limiet voor een Si-cel alleen (32%). We passen (Hoofdstuk 5) het formalisme voor de thermodynamische limiet aan om realistische efficiëntielimieten te voorspellen, door het optische grensvlak tussen Si en perovskiet aan te passen. We optimaliseren de golflengte-selectieve lichtreflectie, zodat de energie van de binnenkomende fotonen efficiënter kan worden gewonnen. De berekeningen voorspellen dat een golflengte-selectieve Lambertiaanse lichtvanglaag een efficiëntiewinst van 2,7% kan opleveren voor een 500 nm dikke perovskietlaag met een bandkloof die dicht bij het optimum ligt (1,77 eV). Met toenemende bandgap wordt dit effect sterker en kan efficiëntiewinsten tot 6% absoluut opleveren.

Perovskiet/Si tandem-zonnecellen hebben onlangs een laboratoriumefficiëntie van 31,3% behaald en worden al op de markt gebracht. De hoge spanningen die dergelijke tandemcellen mogelijk maken zijn ook interessant voor elektrolysetoepassingen zoals zonneenergie-naar-waterstofconversie, waarbij stroom van de zonnecel het splitsen van water vergemakkelijkt.

Zn₃P₂ is een absorberend materiaal met lange diffusielengtes en sterke absorptie, maar heeft tot voor kort zeer weinig aandacht gekregen in PV. Nieuwe ontwikkelingen, die zorgen voor zeer zuivere Zn₃P₂-kristallen en verwijdering van de halfgeleider van het groeisubstraat, bieden nu nieuwe ontwerp mogelijkheden voor de celarchitectuur. We stellen (Hoofdstuk 6) een dünn-film Zn₃P₂-TiO₂ heterojunctie zonnecelontwerp voor dat bestaat uit een celstapel van Au (achtercontact) – Zn₃P₂ (p-type halfgeleider) – TiO₂ (n-type halfgeleider) – ITO (voorcontact). Het ontwerp is afgeleid van elektronische drift-diffusiesimulaties en voorspelt een energieconversie-efficiëntie van 20% voor 2 μm dik Zn₃P₂. Een verbeterde lichtinkoppeling zou de efficiëntie verder kunnen verhogen.

Zn₃P₂ bestaat uit materialen die overvloedig aanwezig zijn in de aardkorst en dus de potentie hebben om op grote schaal relevant te worden voor PV vanwege lagere materiaalextractiekosten, naast de goede opto-elektronische eigenschappen.

Om lichtmanagementconcepten op industriële schaal interessant te maken, is het belangrijk dat er passende nanofabricageprocessen worden gevonden. Substraat con-

forme afdruk lithografie (SCIL) is zo'n proces en wordt in veel hoofdstukken van dit proefschrift gebruikt. In Hoofdstuk 7 bespreken we verdere nanofabricagebenaderingen voor PV op basis van SCIL. Op basis van de ervaring uit de vorige hoofdstukken onderscheiden we drie mogelijke benaderingen. Naast indirecte benaderingen waar SCIL wordt gebruikt om etsmaskers te maken voor verdere lithografiestappen, benadrukken wij directe afdrukken als een eenvoudige eenstapsbenadering, die kan worden toegepast met behulp van speciale solgels.

SCIL is al gecommercialiseerd voor een op cassettes gebaseerde waferpatroonbenadering en roll-to-roll zachte-afdruk patronen bestaan ook commercieel. Deze nieuwe inzichten kunnen dus snel op grote schaal worden toegepast.

Conceptueel integreert dit proefschrift de optimalisatie van lichtbeheer en ladingdragerbeheer door zorgvuldig de driedimensionale opwekking van ladingsdragers en extractie te optimaliseren. We benadrukken het belang van ruimtelijke controle van absorptie voor de elektronische prestaties van zonnecellen. We onderzoeken hoe absorptieverhogende nanostructuren de elektronische integriteit van zonnecellen beïnvloeden voor een breed scala aan gevestigde en nieuwe fotonische technologieën. De inzichten die in dit proefschrift zijn verkregen kunnen leiden tot zonnecellen met dunne absorberende lagen, hogere efficiënties en kunnen het gebruik van nieuwe halfgeleider materialen en celontwerpen introduceren.