

《様式B》

研究テーマ 「高効率大面積 III-V 族太陽電池に向けた GaAsPN 混晶の電気伝導メカニズムの解明」

研究責任者 所属機関名 国立大学法人豊橋技術科学大学

官職又は役職 助教

氏名 山根啓輔 メールアドレス yamane@ee.tut.ac.jp

共同研究者 所属機関名 該当なし

官職又は役職 該当なし

氏名 該当なし

(令和2年度募集) 第32回 助成研究 完了報告書

上記様式記載後

1. 実施内容および成果ならびに今後予想される効果の概要 (1, 000字程度)

※産業技術として実用化の可能性や特許出願 (予定も含む) の有無についてもご記載ください。

本研究では、ガリウムヒ素リン窒素 (GaAsPN) 結晶を用いた太陽電池の効率向上に関わる要素を明らかにするため、結晶欠陥が素子の電気的特性に与える影響を調査した。具体的には、太陽電池セルの作製を行い、その特性を元として、GaAsPN 太陽電池のシミュレーション解析モデルを構築した。

まず、解析モデルの作製にあたって、新たにGaAsPN太陽電池のデバイス作製から取り組んだ。基板にはシリコン(Si)単結晶を用いた。結晶成長には、RF(Radio-Frequency)分子線エピタキシー装置を用い、pn接合型の太陽電池を作製した。次に、電気的特性のシミュレーションに関しては、SCAPS softwareを用い、先行研究および予備検討で明らかにしたGaAsPN結晶の物性値を用いた。これに、実際の試料構造情報を適用し、標準太陽光照射時の光電流電圧特性をシミュレーションした。

結果として、開放端電圧 0.95V, 短絡電流 4.89 mA/cm², 曲線因子 0.63, 電力変換効率3.0%の太陽電池特性が確認された。また、欠陥密度 $N_t=8.8\times 10^{16}$ cm⁻², p-GaAsPNのアクセプター濃度 $N_A=3.2\times 10^{16}$ cm⁻², 放射再結合係数 $B=9.4\times 10^{-9}$ cm³/sとすることで、実験値とシミュレーション値が良好な一致を示した。この結果を元として、高効率化に向けて、GaAsPN結晶の欠陥密度およびGaAsPNとSi層の間に挿入するGaPバッファ層のキャリア濃度が大きな影響を与えることをシミュレーション実験から

明らかにした。

結論として、太陽電池応用に必要とされるバンドギャップ 1.7 eV 付近の GaAsPN 結晶を用いて、デバイスを実証できた点は特筆すべき点である。2 接合太陽電池では、1.7 eV、3 接合太陽電池では、1.5 eV が求められるのに対し、現状 1.85 eV 以下のバンドギャップを持つ GaAsPN の太陽電池の報告例は存在しない。今回の助成を受け、未踏領域のバンドギャップエネルギーでデバイスを実証することができた。また、現実的な最適化範囲において、高効率化指針を示し、GaAsPN 単接合セルで効率 13%まで引き上げられる見込みが得られた。これと、既存のシリコン系の太陽電池と組み合わせることにより、30%を超える高効率太陽電池の実現が可能である。

2. 実施内容および成果の説明 (A 4 で、5 ページ以内)

本稿では紙面の都合上、最終目的となる Si 基板上 GaAsPN 太陽電池の作製および、シミュレーション解析について述べる。

まず、解析モデルの作製にあたって、新たに対象となる GaAsPN/Si 太陽電池のデバイス作製から行った。結晶成長には、RF(Radio-Frequency)分子線エピタキシー装置を用いた。試料構造は図 1 にしめすような p⁺-GaAsPN (100 nm) / p⁻-GaAsPN (700 nm) / i-GaAsPN (200 nm) / i-GaP 緩衝層 (30 nm) / n-Si 基板構造とした。

Si 基板の有機洗浄、重金属除去洗浄を行い、塩酸+過酸化水素混合液により保護酸化膜を形成した。Si 基板を超高真空チャンバーに搬送し、900°Cで 5 min のサーマルクリーニングを行った。その後、超高真空状態を維持して 450°Cまで下げ、GaP 緩衝層を 30 nm 成長した。GaP 層の成長には変調マイグレーション促進エピタキシー法を用いた。その後、p-GaAsPN 層を 900 nm 成長させた。窒素組成 5%の GaAsPN 層の成長条件は、成長温度 550°C、P/Ga 比 5.0、P/As 比 4.0、RF 電力 400 W、N₂ 流量 0.1 sccm とした。なお、原料には金属 Ga、金属 As、赤燐、および高純度窒素ガスを用いて、それぞれ、エフュージョンセル (Ga)、バルブドクラッカーセル (As, P)、RF ラジカルセルを用いて供給した。

また、同図に光吸収層となる GaAsPN 層の物性値をまとめたものを示す。これらは、先行研究および予備検討で明らかにした値である。これらの値を用いて、SCAPSsoftwareを用いて、標準太陽光照射時の光電流電圧特性をシミュレーションした。

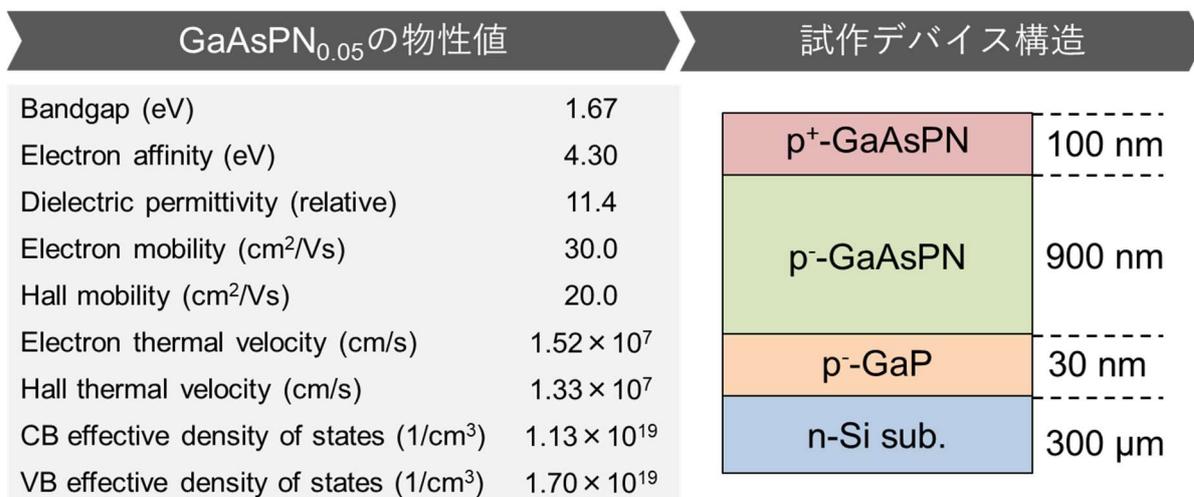


図1 GaAsPN太陽電池のシミュレーションパラメータと試料構造

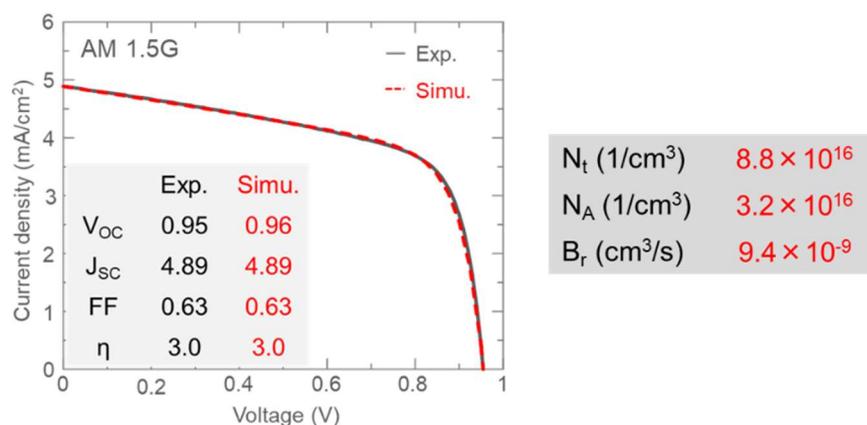


図2 GaAsPN太陽電池の電流電圧特性とシミュレーション結果

図2にAM1.5Gの条件にて測定した電流・電圧特性を示す。開放端電圧 0.95V, 短絡電流 4.89 mA/cm², 曲線因子 0.63, 電力変換効率 3.0%の太陽電池特性が確認された。また、ここでは、示していないが、暗状態においても、逆方向飽和電流 10⁻¹² A/cm², 理想因子 1.5 程度の良好な整流特性が確認されている。同図赤線にて電流電圧特性のシミュレーション結果を示す。欠陥密度 $N_t = 8.8 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$, p-GaAsPN のアクセプター濃度 $N_A = 3.2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$, 放射再結合係数 $B = 9.4 \times 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$ とすることで、実験値とシミュレーション値が良好な一致を示した。

次に、図2のシミュレーション結果を元として、GaAsPN層の膜厚と欠陥密度がセルの変換効率に与える影響を調べた結果を図3に示す。いずれの場合も膜厚に対して、セルの変換効率はピークを持ち、欠陥密度が上昇することでピークとなる膜厚は大きくなる。図2で示した通り、現在の欠陥密度の推定値が $8.8 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ であり、これを $1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ まで

減らすことができれば、膜厚 700 nm でピーク変換効率を得ることができる。

さらに、この結果をもとに、GaP バッファ層のキャリア濃度を n 型に調整して、バンドアライメントの最適化を図った場合のシミュレーション結果を図 4 に示す。最大で変換効率 13% が得られる見込みとなった。

以上の結果から、現時点のデバイスの欠陥密度を推定することができ、この値が、効率に大きな影響を与えていることが明らかになった。想定される欠陥の原因としては、希薄窒化物に特有とされる窒素原子に起因した点欠陥と考えられる。具体的には、一つの V 族サイトに二つの窒素原子が入った N-N 対などが議論されている。現在、このような点欠陥の性質を解明するため、第一原理計算を用いた形成エネルギーの解析を行っている。

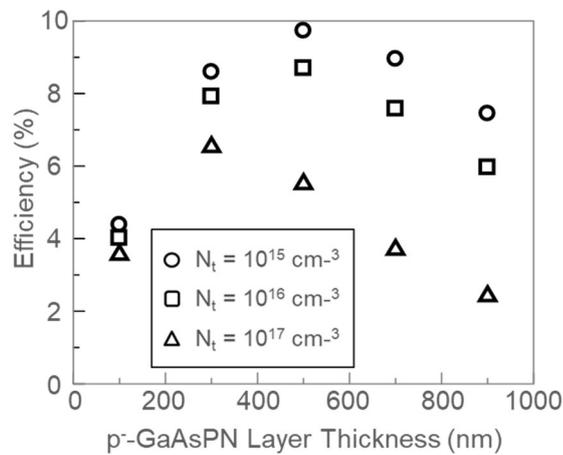


図3 GaAsPNの膜厚と欠陥密度が効率に及ぼす影響

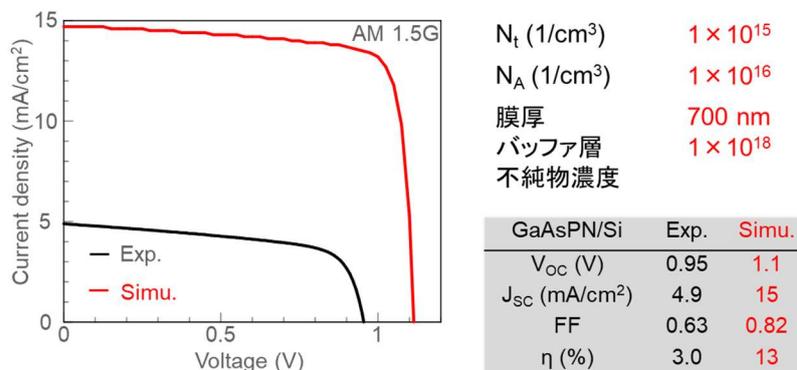
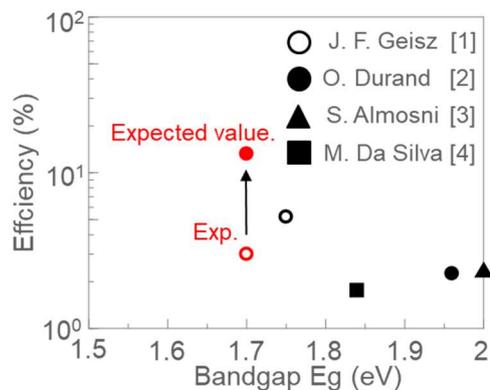


図4 欠陥密度およびアクセプター不純物濃度改善後の電気的特性のシミュレーション結果



- [1] Geisz, J. F., J. M. Olson, D. J. Friedman, In Proc. 31st IEEE Photovoltaic Spec. Conf., pp. 695–698.(2005).
 [2] O.Durand et al.,Energy Harvest. Syst.,(2014),pp.147-156.
 [3] S.Almosni et al.,Solar Energy Materials & Solar Cells,147,(2016),pp.53-60.
 [4] M.Da Silva et al., Proc. SPIE. 9358. 93580H, (2015).

図5 本研究と先行研究の位置づけ. 太陽電池応用に求められる1.7eV付近の実験データ取得に成功.

また、太陽電池応用に必要とされるバンドギャップ1.7 eV付近のGaAsPN結晶を用いて、デバイスを実証できた点は特筆すべき点である。図5に先行研究にて開発されたGaAsPN太陽電池のバンドギャップと変換効率の報告値を示す。2接合太陽電池では、1.7 eV, 3接合太陽電池では、1.5 eV が求められるのに対し、現状1.85 eV以下のバンドギャップを持つGaAsPNの太陽電池の報告例は存在しない。今回の助成を受け、未踏領域のバンドギャップエネルギーでデバイスを実証することができた。また、現実的な最適化範囲において、高効率化指針を示し、GaAsPN単接合セルで効率13%まで引き上げられる見込みが得られた。これと、既存のシリコン系の太陽電池と組み合わせることにより、30%を超える高効率太陽電池の実現が可能である。

プロジェクト期間内に発表した成果 (申請日から採択日までの期間に発表した関連発表も含む)

論文

1. Jose Alberto Piedra Lorenzana, Kesuke Yamane, Akihito Hori and Akihiro Wakahara: Japanese Journal of Applied Physics 60 (2021) 045502-1.

知的財産権

1. **山根啓輔** (単願) 出願日 2017/2/24, 特願 2017-033467 「希薄窒化物犠牲層を用いた化合物半導体薄膜の製造方法」 (審査請求中@2021.3.31 現在)
ただし、本プロジェクト採択前に申請したため、届け出は割愛いたします。

講演発表

1. 江湖俊仁, 山根啓輔, 新井智也, 濱本大輝, 若原昭浩, III-V/Si タンデム型太陽電池の実現に向けた GaAsPN サブセルの設計, 第 30 回日本 MRS 年次大会, G-O9-001, 12.9-12.11, 2020, Zoom, オンライン開催, 口頭発表.
2. 堀礼人, 山根啓輔, Jose A.Piedra-Lorenzana, 若原昭浩, 高効率 III-V/Si 多接合太陽電池実現に向けた Type II InP/GaAsPN 量子ドットの設計, 第 3 回結晶工学 xISYSE 合同研究会, P-16, 12.23, 2020, Zoom, オンライン開催, 口頭発表、ポスター発表.
3. 新井智也、山根啓輔、江湖俊仁、濱本大輝、若原昭浩, Si 基板上格子整合系 GaAsPN 太陽電池の作製(2), 第 68 回応用物理学会春季学術講演会, 18a-Z24-1, 3.18, 2021, zoom, オンライン開催, 口頭発表.