

〈一般研究課題〉 高効率大面積III-V/Si多接合太陽電池実現に向けた  
GaAsPNサブセルの実証試験

助成研究者 豊橋技術科学大学 山根 啓輔



## 高効率大面積III-V/Si多接合太陽電池実現に向けた GaAsPNサブセルの実証試験

山根 啓輔  
(豊橋技術科学大学)

### Fabrication of GaAsPN sub-cells for efficient/large-area III-V/Si Multijunction solar cell

Keisuke YAMANE  
(Toyohashi University of Technology)

#### Abstract :

This work presents a GaAsPN materials for efficient/cost-effective solar cells. The GaAsPN quaternary alloys attracts academic interests as well as engineering view points because they has wide-tunable bandgap range under the Si-lattice-match conditions. So far compositional control of GaAsPN alloys was achieved and GaAsPN pn junction was fabricated by GaP/Si heteroepitaxy. Based on this result, we fabricated test elements of GaAsPN solar cells and obtained photovoltaic characteristics under AM.5G conditions. In addition, we develops simulation model of GaAsPN pn-junction using its physical parameter including absorption coefficient and impurity concentrations that was separately measured with a single GaAsPN layer.

#### 1. はじめに

本研究では、高効率・低コストフレキシブル太陽電池を最終構想として、新規化合物半導体であるガリウムヒ素リン窒素(GaAsPN)結晶を用いた太陽電池を開発する。GaAsPNは組成の調整により、シリコン基板(人類が有する唯一無二の大面積単結晶)に格子間隔をそろえた状態(無欠陥状態)で結晶成長できるため、工学的にも学術的にも興味深い材料である。これまで、GaP/Siヘテロ成長技術とGaAsPNの組成制御技術を駆使してGaAsPNのpn接合特性を得ることに成功している。本研究課題では、これをスタート地点として、GaAsPN太陽電池テスト素子を作製し、標準太陽光を

用いて発電特性を取得する。並行して、太陽電池シミュレータ上でGaAsPNの物性値を組み込んだ計算モデルを作製し、計算結果と実験結果を併せて検討することにより、高効率化指針を得ることを目的とした。本研究は将来的に、高効率発電・コスト・面積を高次元でバランスさせた新たな太陽電池を実現させるものと期待している。

## 2. 試料および実験方法

作製した試料構造を図1に示す。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。

実際の結晶成長には、独自開発したGaAsPN専用の分子線エピタキシー装置を用いた。基板には[110]方向に4°微傾斜したSb添加n-type Si (001)基板を用いた。その後、基板を成長室に搬送し、1000°Cにて保護酸化膜除去のためのサーマルクリーニングを5分間行った。このとき、P<sub>2</sub>分子線源の温度は400°C以下とし、成長室内の圧力を10<sup>-7</sup> Pa台に維持した。成長温度450°Cまで下げた後、P<sub>2</sub>分子線源の加熱することでP<sub>2</sub>分子線を照射し、P初期層を形成した。その後、15 nmのGaP層を基板温度450°CにおいてMEE成長した。Ga分子線およびP<sub>2</sub>分子線供給量は、それぞれ一原子層(1 N<sub>s</sub>)および二原子層(2 N<sub>s</sub>)とした。MEE成長時のGa分子線圧力およびP<sub>2</sub>分子線圧力はそれぞれ、6.56×10<sup>-6</sup> Paおよび1.30×10<sup>-5</sup> Paとした。次にGaP/Si基板上へ*p-i-n*接合太陽電池構造を成長した。*p*型ドーパントにはMg原料を用い、*p*-GaAsPN/undoped GaAsPN構造を成長した。またGaAsPN層の成長では、成長温度550°C、V/III比4.4、RF power 490 W、N<sub>2</sub>流量0.3 sccmとし、AsおよびN組成の設計値はそれぞれ19%および6%とした。これは、Siに格子整合し、バンドギャップ1.6 eVに相当する組成である[1]。

結晶成長後は、標準的な半導体プレーナープロセスに準拠して、メサ構造を形成し、電極パターンを形成して太陽電池を作製した。作製した太陽電池の外観を図2に示す。

GaAsPN <sub>0.05</sub> の物性値		試作デバイス構造	
Bandgap (eV)	1.67	p <sup>+</sup> -GaAsPN	100 nm
Electron affinity (eV)	4.30	p <sup>-</sup> -GaAsPN	900 nm
Dielectric permittivity (relative)	11.4	p <sup>-</sup> -GaP	30 nm
Electron mobility (cm <sup>2</sup> /Vs)	30.0	n-Si sub.	300 μm
Hall mobility (cm <sup>2</sup> /Vs)	20.0		
Electron thermal velocity (cm/s)	1.52 × 10 <sup>7</sup>		
Hall thermal velocity (cm/s)	1.33 × 10 <sup>7</sup>		
CB effective density of states (1/cm <sup>3</sup> )	1.13 × 10 <sup>19</sup>		
VB effective density of states (1/cm <sup>3</sup> )	1.70 × 10 <sup>19</sup>		

図1 GaAsPN太陽電池テスト素子の構造と物性値

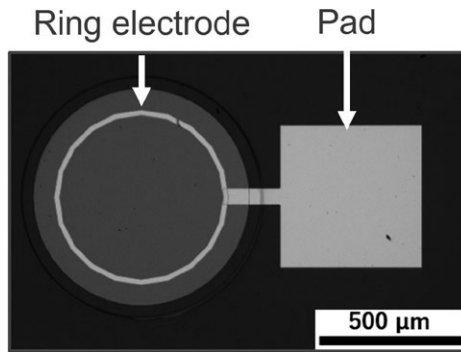


図2 GaAsPN太陽電池テスト素子の外観

### 3. 実験結果

#### 3.1 GaAsPN太陽電池の評価

図3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 0.95 V, 短絡電流 4.89 mA/cm<sup>2</sup>, 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<sup>-12</sup> A/cm<sup>2</sup>, 理想因子1.5程度の良い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[2]。欠陥密度 $N_t = 8.8 \times 10^{16}$  cm<sup>-2</sup>, p-GaAsPNのアクセプター濃度 $N_A = 3.2 \times 10^{16}$  cm<sup>-2</sup>, 放射再結合係数 $B = 9.4 \times 10^{-9}$  cm<sup>3</sup>/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。

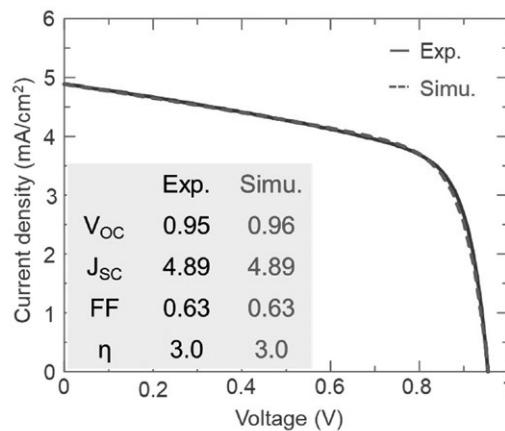


図3 GaAsPN太陽電池テスト素子の発電特性

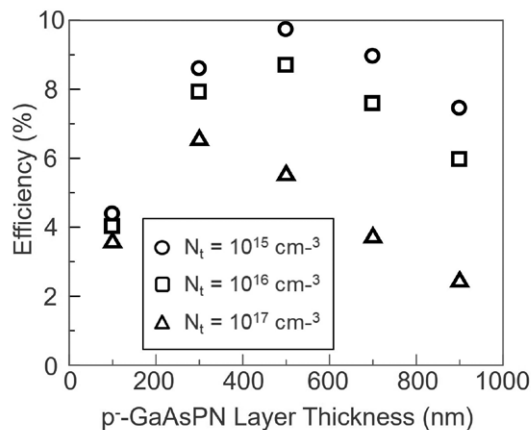


図4 GaAsPNの膜厚と欠陥密度が変換効率に与える影響

次に、図3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4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[3]や格子間窒素[4]などがGaAsN系結晶に関する報告から類推される。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。

### 3.2 点欠陥解明に向けた取り組み

3.1節に示した結果から窒素起因点欠陥が効率低下の要因として挙げられた。そこで、窒素起因点欠陥を消滅させる新たな方法として、放射線を用いた結晶性改善手法を検討した。具体的には、結晶成長した試料に陽子線または電子線を照射し、結晶内の結合状態を変化させた後、熱処理を施す。これにより、内部の点欠陥の消滅を促進させようとするものであり、これは、我々が最近新たに提案した手法である[5]。今回は、陽子線及び電子線の加速電圧(照射量)はそれぞれ380 keV ( $1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ ) および300 keV ( $1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ )とし、室温にて照射した結果を示す。

図5に陽子線及び電子線照射したGaAsPN太陽電池の特性を示す。従来のGaAs系材料等窒素を含まない混晶では、放射線照射により、効率が低下するのに対し、GaAsPN混晶では、陽子線および電子線照射により、変換効率が向上することが確認された。本結果は、窒素起因点欠陥として推定されるN-N対やN-P対を効果的に消滅させるための手法として極めて重要な発見と考えており、今後詳細な検討を進めていく予定である。

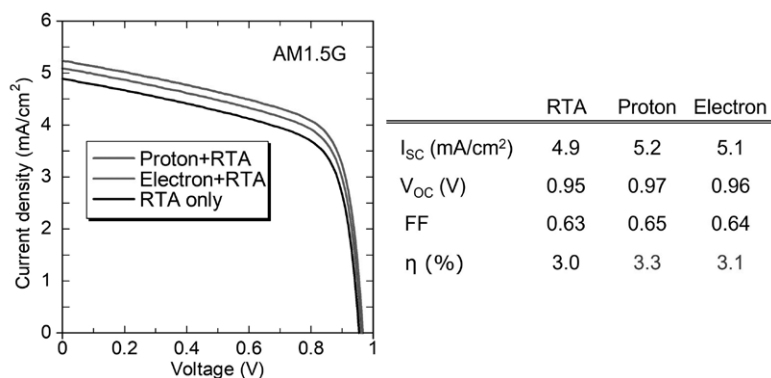


図5 陽子線及び電子線照射したGaAsPN太陽電池の特性

## 参考文献

- [1] K. Yamane, M. Goto, K. Takahashi, K. Sato, H. Sekiguchi, H. Okada, A. Wakahara, “Growth of lattice-matched GaAsPN p-i-n junction on Si substrate for monolithic III-V/Si tandem solar cells” *Applied Physics Express* 10 (2017) 075504.
- [2] 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.
- [3] K. Laaksonen, H.-P. Komsa, T. T. Rantala, R. M. Nieminen, *J. Phys. Condens. Matter* “Nitrogen interstitial defects in GaAs” 20, 235231 (2008).
- [4] Y. Jin, R. M. Jock, H. Cheng, Y. He, A. M. Mintarov, Y. Wang, C. Kurdak, J. L. Merz, R. S. Goldman, “Influence of N interstitials on the electronic properties of GaAsN alloys” *Appl. Phys. Lett.* 95, 062109 (2009).
- [5] 濱本大輝, 山根啓輔, 新井智也, 二村綾, 住田 泰史, 今泉充, 大島武, 若原昭浩, 陽子線・電子線照射によるGaAsPN太陽電池の発電効率向上, 第68回応用物理学会春季学術講演会, 17a-Z35-2, 3.16-3.19, 2021, zoom, オンライン開催, 口頭発表