

「太陽光を利用した独創的クリーンエネルギー生成技術の創出」  
平成22年度採択研究代表者

H24 年度 実績報告
----------------

重川 直輝

大阪市立大学工学研究科・教授

シリコン基板上窒化物等異種材料タンデム太陽電池の研究開発

## §1. 研究実施体制

### (1)「大阪市立大学」グループ

① 研究代表者: 重川 直輝 (大阪市立大学工学研究科、教授)

② 研究項目

・ハイブリッドタンデムセル作製プロセス検討

### (2)「NTT」グループ

① 主たる共同研究者: 渡邊 則之 (NTT フォトニクス研究所、主任研究員)

② 研究項目

・ハイブリッドタンデムセル結晶成長検討

### (3)「福井大学」グループ

① 主たる共同研究者: 山本 あき勇 (福井大学工学研究科、特命教授)

② 研究項目

・モノリシックタンデムセル結晶成長検討

## § 2. 研究実施内容

(文中に番号がある場合は(3-1)に対応する)

### 【A. ハイブリッドタンデムセル作製プロセス検討(大阪市大グループ)】

(研究の狙い) 半導体デバイス技術と太陽電池技術を融合し発電効率の向上を目指す。具体的には表面活性化接合(SAB)技術のサブセル間接続への適用により、ハイブリッドタンデムセル構成技術を構築し、高効率シリコン上3(多)接合タンデムセル実現可能性を明確化する。

(研究の進捗・成果・今後の見通し)

① 基礎データ蓄積を目指して Si、GaAs、InGaP、SiC からなる接合を作製し I-V 特性、C-V 特性測定により接合界面の電気特性を評価した。各接合のバンドラインナップを構成し、Si/GaAs がタイプ II のヘテロ接合となること(GaAs の伝導帯が Si の伝導帯の高エネルギー側に位置すること)を明らかにした(図 A-1)。<sup>3)</sup>

② ハイブリッドタンデムセルにおけるサブセル間接続手法の予備検討として、高濃度不純物を含む種々の半導体層から pn 接合を形成し接合界面抵抗を評価した。使用した材料の組み合わせは Si/Si、Si/GaAs、Si/InGaP である。p<sup>+</sup>-GaAs/n<sup>+</sup>-Si 接合界面が最も低い抵抗値を示すこと(本検討の範囲で 0.13 Ωcm<sup>2</sup>)が分かった。AM1.5G、One Sun の条件下では上記界面抵抗による効率の低下は 0.01%以下であり無視可能と推定される。

### 【A. ハイブリッドタンデムセル結晶成長(NTT グループ)】

(研究の狙い)シリコン上ハイブリッドタンデムセル実現に向け、窒化物系および P 系半導体のトップセルへの適用を目指した結晶成長技術の確立を目指す。

(研究の進捗・成果) B-1) 窒化物系半導体:

①InGaN/GaN MQW 構造が太陽電池特性に及ぼす影響について引き続き検討した。

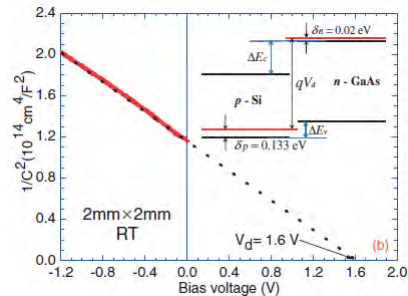


図 A-1. SAB 法により作製した p-Si/n-GaAs の C-V 特性及びそのバンドラインナップ。

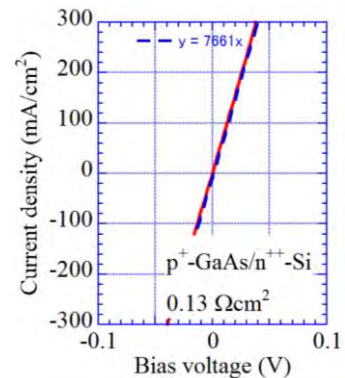


図 A-2. SAB 法により作製した p<sup>+</sup>-GaAs/n<sup>+</sup>-Si の I-V 特性。

ペア数の異なる MQW 構造を有する太陽電池を太陽電池特性の MQW ペア数依存性を作製して調べた。検討した範囲ではペア数の増大により短絡電流値が増大した(図B-1)。その傾向は光励起キャリアの拡散過程で説明可能であり、その発光寿命とは直接相関がないことが明らかとなった。

②GaN/AlGaIn/GaN 接合の電流-電圧特性に微分負性抵抗を観測した(図B-2)。窒化物半導体固有の分極効果を活用することにより、高濃度ドーピングを用いずにトンネル接合を形成可能であることを示唆する。

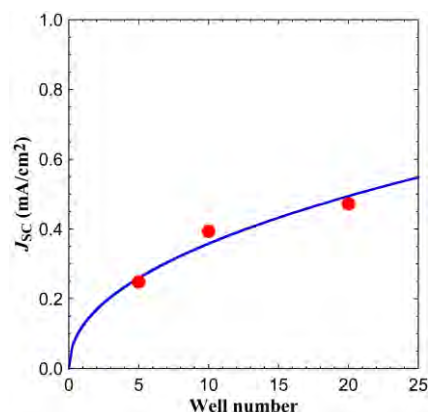
③InGaIn 高品質化の検討を実施した。基板の窒化処理などの最適化、成長条件と InGaIn 結晶品質の相関、などを調べた。

これらの結果を国際会議 1 件、国内学会 3 件にて報告するとともに、特許出願を 1 件行った。

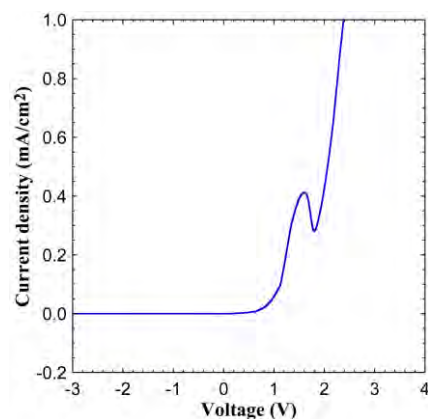
B-2) P 系半導体:Snドープ n 型 InGaP のキャリア濃度の成長速度依存性を調べた(図B-3)。InGaP の成長速度を 1.08  $\mu\text{m}/\text{h}$  から 0.53  $\mu\text{m}/\text{h}$  へと低下させることにより、キャリア濃度は  $3.5\text{E}+17 \text{ cm}^{-3}$  から  $6.0\text{E}+18 \text{ cm}^{-3}$  へと増加した(図B-3)。電子トラップの影響低減によると考えられる。上記結果を国内学会 1 件にて報告した。

(今後の見通し)InGaIn の結晶品質向上、低バンドギャップ化を進め、トップセル用バンドギャップ(2.0eV)を有する高品質 InGaIn の実現を狙う。また、分極効果を利用したトンネル接合実現に向け検討を進める。トップセル用歪 InGaP/InGaP MQW の光励起キャリア引き抜き効率向上を検討し同 MQW 太陽電池における変換効率の向上を目指す。

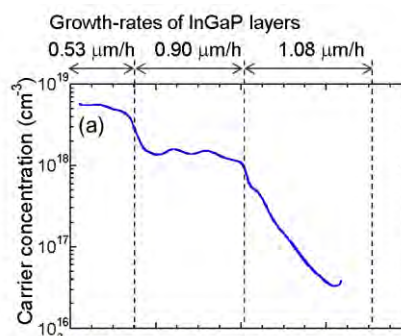
【C.モノリシックタンデムセル結晶成長(福井大グループ)】



図B-1 InGaIn/GaN MQW 太陽電池における短絡電流と井戸数の関係。InGaIn 井戸層の In 組成は 13%、層厚 3~4nm。GaN バリア層厚は 5~6nm。



図B-2 GaN/AlGaIn/GaN 接合を有するダイオードの電流-電圧特性。1.5V 付近で微分負性抵抗特性を示している。



図B-3 Snドープ InGaP で成長速度の変化によるキャリア濃度の変化。

(研究の狙い) 30%以上の変換効率が期待できるInGaN(1.8eV)/Si 2接合モノリシックタンデム太陽電池の実現を目指し、①Si太陽電池上へのInGaNのヘテロエピ成長とその電気的・光学特性の評価を行い、②In組成0.4~0.5のInGaNについて、n、i、p各層のMOCVD成長条件を確立する。  
 (研究の進捗・成果) Bイオン注入により表面にpn接合を形成したn-Si(111)上へのInGaN膜のMOCVD成長を検討し、n-In<sub>0.42</sub>Ga<sub>0.58</sub>N/pn-Siヘテロ構造素子を作製した(図C-1(a))。Si-pn接合からの光電流を観測し(図C-1(b))、分光感度特性においてIn<sub>0.42</sub>Ga<sub>0.58</sub>Nの吸収端1.8eVを確認した(図C-1(c))<sup>4)</sup>。MOCVD法による各種InGaNの成長を検討<sup>5, 7-9)</sup>し、p-i-n接合を実現するための各層の成長条件を表C-Iの通り確立した。

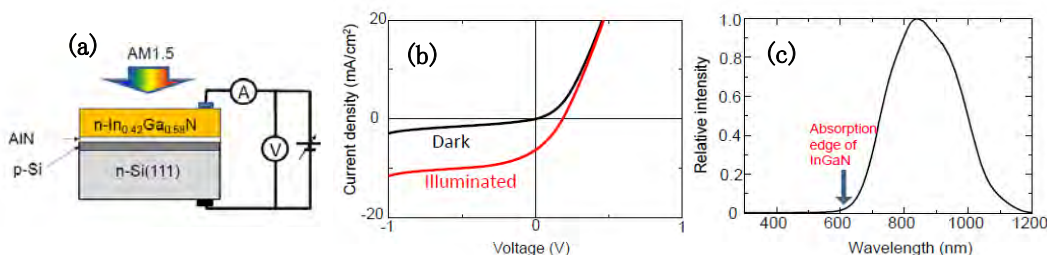


図 C-1. 作製した n-In<sub>0.42</sub>Ga<sub>0.58</sub>N/pn-Si 素子の構造(a)、電流－電圧特性(b)および分光感度特性(c)

表C-I . MOCVD法による n、i、p- InGaN層の成長

n型層、p型層については、それぞれ、Si、Mgのドーピング条件を確立した。このようにInGaN/Si 2接合タンデム太陽電池作製のための要素技術を確立した。これらの検討を通じて、国際会議発表7件のほか、窒化物半導体太陽電池に関する解説論文2編を発表した。

層	検討事項・成長条件	得られた特性
i	ノンドープ	n型 $10^{15} \sim 10^{17} \text{ cm}^{-3}$
n	モノメチルシランを用いたSiドーピング	電子濃度 $\sim 1 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ を達成
p	Cp <sub>2</sub> Mgを用いたMgドーピング	ホール濃度 $\sim 1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ を達成

(今後の見通し) p-i-n InGaN/pn-Si 構造の2接合タンデムセルを作製し、高性能化を図る。

### §3. 成果発表等

#### (3-1) 原著論文発表

##### ●論文詳細情報

1. T. Inushima, D. K. Maude, H. Lu, W. J. Schaff, T. Iizuka, S. Kimura, A. Yamamoto, K. Fukui, “Superconducting properties of InN with low carrier density near the Mott transition”, *J. Phys. Soc. Jpn.*, Vol. 81, No.4, 044704, 2012 (DOI: 10.1143/JPSJ.81.044704).
2. Noriyuki Watanabe, Haruki Yokoyama, Naoteru Shigekawa, Ken-ichi Sugita and Akio Yamamoto, “Barrier thickness dependence of photovoltaic characteristics of InGaN/GaN Multiple Quantum Well Solar Cells”, *Jpn. J. Appl. Phys.* vol.51, No. 10, issue 2, pp.10ND10-1~10ND10-5, 2012. (DOI:10.1143/JJAP.51.10ND10)
3. Jianbo Liang, Tatsuya Miyazaki, Masashi Morimoto, Shota Nishida, Noriyuki Watanabe, and Naoteru Shigekawa, "Electrical Properties of p-Si/n-GaAs Heterojunctions by Using Surface Activated Bonding", *Appl. Phys. Express* vol. 6, No. 1 pp. 021801-1—021801-3 2013. (DOI: 10.7567/APEX.6.021801)
4. A. Yamamoto, D. Hironaga, A. Mihara, Y. Muramatsu, K. Sugita, A. G. Bhuiyan, A. Hashimoto, N. Shigekawa, and N. Watanabe, “MOVPE growth of  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  ( $x\sim 0.5$ ) on Si(111) substrates with a pn junction on the surface”, *Physica Status Solidi C*. Vol. 10, No.3, pp.437-440, 2013 (DOI: 10.1002/pssc.201200649)
5. Md. Rafiqul Islam, Md. Rejvi Kaysir, Md. Jahirul Islam, A. Hashimoto, A. Yamamoto, “MOVPE Growth of  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  ( $x\sim 0.4$ ) and Fabrication of Homo-junction Solar Cells”, *J. Mater. Sci. Technol.*, Vol. 29, No.2, pp.128-136, 2013. (DOI: 10.1016/j.jmst. 2012. 12.005)
6. Noriyuki Watanabe, Haruki Yokoyama, and Naoteru Shigekawa, “Observation of Negative Differential Resistance in a GaN/AlGaIn/GaN: Possible Tunneling Junction Using Polarization”, *Jpn. J. Appl. Phys.* (accepted)
7. A. Yamamoto, A. Mihara, Y.D. Zheng, and N. Shigekawa, “A comparative study on MOVPE InGaIn with intermediate In compositions grown on GaN/sapphire template and AlN/Si(111) substrate”, *Jpn. J. Appl. Phys.* (accepted).
8. A. Yamamoto, K. Sugita, A. G. Bhuiyan, A. Hashimoto, and N. Narita, “MOVPE growth of InGaIn and InAlN for multi-junction tandem solar cells”, *Materials for Renewable and Sustainable Energy* (accepted).
9. A. Yamamoto, A. Mihara, K. Sugita, V. Yu Davydov, N. Shigekawa, “MOVPE-grown n- $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  ( $x\sim 0.5$ )/p-Si(111) template as a novel substrate”, *Proceedings of Photonics West 2013*, 2-7 February 2013, San Francisco, USA, Paper No. 8641-22.

**(3-2) 知財出願**

- ①平成24年度特許出願件数(国内 1件)
- ②CREST 研究期間累積件数(国内 5件)