

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年6月4日現在

機関番号：82110

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2017～2018

課題番号：17H07355

研究課題名(和文) はじき出し閾値エネルギーの影響因子解明による太陽電池の放射線劣化予測精度の向上

研究課題名(英文) Improvement of radiation degradation prediction accuracy of solar cell by elucidation of influence factor of displacement threshold energy

研究代表者

奥野 泰希 (Okuno, Yasuki)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力科学研究所 原子力基礎工学研究センター・博士研究員

研究者番号：00805400

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,300,000円

研究成果の概要(和文)：宇宙用太陽電池の放射線劣化予測モデル精度の向上のため、InP系太陽電池のはじき出し閾値エネルギー(E_d)の変化について実験およびシミュレーションにより解明を行った。InP系太陽電池におけるPの E_d 値は、従来考えられていた9 eVでは説明ができず、本研究および先行研究の成果において、InPで7.7 eV、InGaPで4eV、AlInGaPで3.6 eVであることが明らかになった。また、第一原理計算によってPの凝集エネルギーを算出したところ、InP系太陽電池中のPの凝集エネルギーの変化が E_d に影響を及ぼしていないことが示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

人工衛星に用いられる宇宙用太陽電池は、宇宙環境中の放射線で劣化するため、劣化予測モデルの向上が重要である。宇宙用太陽電池として有力なInP系太陽電池において、劣化予測モデルの向上に必要なパラメータであるはじき出し閾値エネルギーの解明を行った。その結果、InP、InGaPおよびAlInGaPと3種類のInP太陽電池の中のPのはじき出し閾値エネルギーは、それぞれ、異なる値を示すことが明らかになった。また、この解明されたはじき出し閾値エネルギーの値を用いた劣化予測を使用することによって、高い精度の宇宙太陽電池劣化予測が可能となる。

研究成果の概要(英文)：In order to improve the radiation degradation prediction model accuracy of the solar cell for space, we clarified the changing mechanism of the displacement threshold energy (E_d) of the InP-type solar cell by experiments and simulations. In the InP-type solar cell, the E_d value of P do not agree with 9 eV considered conventionally, and it was suggested as 7.7 eV for InP, 4 eV for InGaP, and 3.6 eV for AlInGaP in this research and the previous research. Moreover, when the cohesive energy of P was calculated by the first principle calculation, it was suggested that the change of the cohesive energy of P in the InP solar cell does not affect E_d .

研究分野：放射線照射材料工学

キーワード：照射損傷 太陽電池 宇宙用電源 劣化予測 第一原理計算 化合物半導体 はじき出し閾値エネルギー
— 低エネルギー電子線

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

人工衛星の太陽電池は、宇宙線によって劣化するため、劣化予測が行われてきた。照射損傷モデルを用いた太陽電池の劣化予測では InGaP 太陽電池は、60 keV 電子線照射によって損傷が起きないと考えられてきた。しかし、実験的には劣化し、この劣化予測の差異は、これまでほとんど変化しないと考えられてきたはじき出し閾値エネルギー(E_d)が InGaP の P において従来考えられている値よりも低いことが原因であることを申請者は解明した。しかし、 E_d が変化したメカニズムは、現在の放射線損傷の理論では明らかではない。本研究では E_d の影響因子を実験的に解明する。また E_d はほとんどの照射損傷の理論に使用されているため、 E_d の影響因子の解明およびその値の計算モデルの構築は、放射線環境下における低コストかつ高精度な太陽電池の劣化予測だけでなく、様々な照射損傷モデルへの貢献が期待される。そのため、 E_d の影響因子を考慮した照射損傷の理論的な計算モデルを構築する。

2. 研究の目的

人工衛星の電力確保には現在太陽電池が用いられているが、宇宙空間では宇宙線の影響によって太陽電池の発電効率が徐々に低下していくため、人工衛星の運用において太陽電池の劣化予測は重要である。特に地球周回軌道上の場合、衛星は高線量率のヴァン・アレン帯を通過することになるため、太陽電池の劣化は大きな問題である。太陽電池の劣化予測が行われており、現在、米国 Naval Research Logistics が開発した DDD 法が使用されている。この手法は、照射損傷モデルの理論的な計算を基に損傷量を予測し、その損傷量から太陽電池の劣化を予測する手法である。

先行研究において、申請者は、低エネルギー電子線による照射試験を行い、照射損傷モデルでは欠陥が生成されず太陽電池が劣化しないと考えられていた 60 keV 電子線の照射によって InGaP 太陽電池が劣化することを発見した。この予測と実際の劣化が異なる要因として、照射損傷の基本的な物理量であるはじき出し閾値エネルギー(E_d)が InGaP 太陽電池の P において従来考えられてきた値の 9 eV ではなく、4 eV であることを発見し、60 keV 電子線による InGaP 太陽電池の劣化予測精度を向上させた。 E_d は結晶中の原子が放射線粒子との衝突により欠陥になるために必要なエネルギーであり、結晶性によって少し変化することが、実験的に解明されてきている。しかし、照射損傷モデルでは、 E_d はこれまで E_d は化学形にほとんど依存せず、元素に依存すると考えられてきたため、一定の値として扱われており、InGaP 中の P の様に E_d が半分以下に小さくなるという結果は、放射線損傷の理論において想定されていない。

ヴァン・アレン帯は、主に低エネルギー電子および陽子が存在しているため、今後、太陽電池のフレキシブル化が検討されていることから、遮蔽材の薄化によってこれまで遮蔽されていた低エネルギー放射線粒子の影響が大きくなる。また高エネルギー粒子線の場合、原子に付与するエネルギーが E_d に対して十分大きいため、照射損傷量の E_d 依存性は低い。しかし、低エネルギーの粒子線照射の場合、原子に付与するエネルギーは、 E_d に近くなるため、照射損傷量の E_d 依存性は大きくなる。そのため、低エネルギー粒子線による宇宙太陽電池の劣化予測においては E_d の正確な導出が重要である。しかし、今後新しい太陽電池が開発された場合、 E_d を実験的に見積もることは、照射試験の増加に繋がり、DDD 法における劣化予測のコスト増加になる。そのため本研究の最終到達点としては、明らかにした E_d の材料依存性から理論的に E_d を見積もる手法を構築し、その見積もった E_d を DDD 法に適用することによって低コストかつ高精度な劣化予測を実現させる。

3. 研究の方法

本研究では、宇宙太陽電池として有用である高い放射線耐性を有する InP 系太陽電池の E_d の材料依存性を実験的および第一原理計算により解明することを試みた。

(1) 低エネルギー電子線照射試験

大阪府立大学放射線研究センターにあるコッククロフトウォルトン型(CW)電子線加速器システムは、試料への照射へ用いられた。実験時における本加速器システムの概要図を図1に示す。コッククロフトウォルトン加速器によって作られた電子線は、偏向電磁石によって90度に曲げられた後、試料室へ運ばれる。コイルは、電流電圧発生装置または、高周波電圧発生装置に接続されている。前者は、縦方向への調節および電子線の集束レンズの役割を持っており、後者は、電子線の走査の役割を持っている。蛍光板を用いた観測では、走査された電子線が電子線が試料台へ均一に照射されていることが確認されている。

結晶中に電子線を照射した場合、はじき出しによる一次欠陥が生成される。その後、熱などによる欠陥の移動によって二次欠陥などが生成される。この二次欠陥による影響は、温度および照射から計測までの時間が大きく関わ

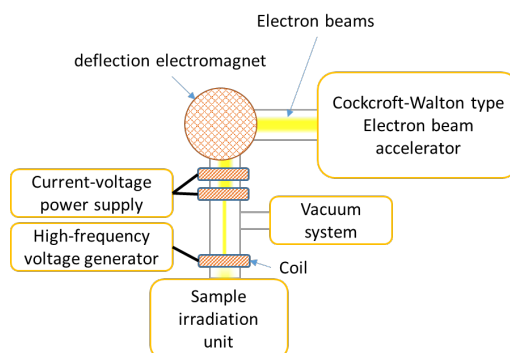


図1: 大阪府立大学コッククロフトウォルトン型電子線加速器の概要図

ている。そのため試料照射部は、宇宙太陽電池の電子線照射試験用に最適化されており、その概略図を図2に示す。試料照射部は真空システムとつながっており、加速器の運転時には $\sim 10^{-5}$ Paになる。試料に照射される電子線のエネルギーは、60 - 600 keV の範囲で調整可能である。側面には窓が2か所設置されており、試料への光学的な測定が可能である。試料横には、銅板(10×5 mm)が設置されており、エレクトロメータに接続されている。このエレクトロメータの数値を解析することにより試料へ照射されたおよその電子線フルエンスは、換算されている。温度制御に関しては、寒剤やヒーターを用いることによって $-196 - 100$ °Cの範囲で調整することが可能である。これらのシステムの構築により、照射直後に試料をシステム内に設置したまま光学的および電気的測定を行うことが可能であるため、二次欠陥の影響をほとんど受けずに、デバイスの評価を行うことが可能である。このようなシステムを持った加速器は世界でもほとんどない。

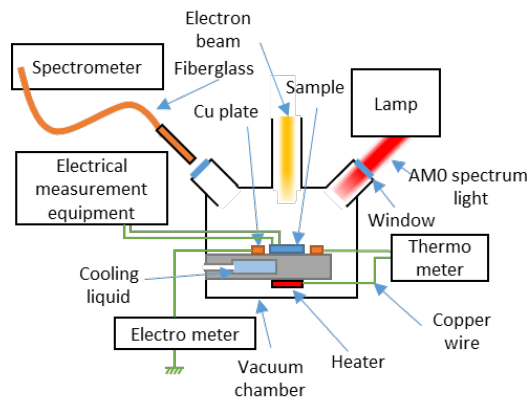


図2：試料照射ユニットの概要図

(2) 電子線エネルギーの選定

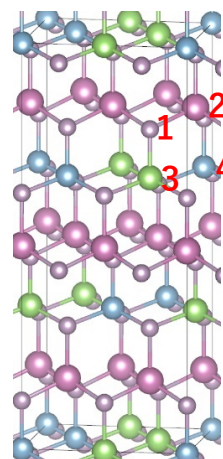
電子線がある物質に照射されるとエネルギーのほとんどは、その物質を構成する原子の電子を励起することに費やされるが、一部は原子核と弾性的に衝突してエネルギーをターゲットである原子核に渡し、その原子をはじき出すことに費やされる。電子線が原子をはじき出す最小のエネルギー E_{min} は、以下のように表される。

$$E_{min} = \frac{\sqrt{4(M_e c^2)^2 + 2M_T c^2 E_d} - 2M_e c^2}{2} \quad (1)$$

ここで、 M_e は電子質量、 M_T はターゲット質量、 C は光速である。InP、InGaP、AlInGaP 太陽電池などの InP 系の場合、それぞれの元素に対する電子線に対する E_d は、In=7eV、P=9eV、Ga=10eV および、Al=20eV であることが知られている。(1)式より P、Al、Ga、および In 原子を電子線がはじき出す最小エネルギーは、それぞれ約 115、205、255、および 290 keV である。そのため、InP 系では、ほとんどはじき出し損傷が起きないと考えられる 100 keV 以下の電子線を照射した際の、太陽電池の劣化挙動について取得する。

(3) 第一原理計算による結合エネルギーの計算

放射線損傷の理論において、 E_d を決定する要因は、結晶の結合エネルギー(EB)およびジャンプエネルギー(EJ)の和であると考えられている。EJ は、結合が切れた後に、原子が安定な格子間原子になる数格子先までジャンプするためのエネルギーであり、照射損傷理論特有の現象であるため計算する手法はほとんどない。しかし、EB は、第一原理計算により相対的に評価することが可能である。そのため、図3に示す計算体系で、OPEN MX の密度汎関数理論を用いた計算によ



| | InP | InGaP | AlInGaP |
|---|-----|-------|---------|
| 1 | P | P | P |
| 2 | In | In | In |
| 3 | In | Ga | Ga |
| 4 | In | Ga | Al |

図3：InP系化合物の計算体系

Table 1：DFT 計算のシミュレーションセットアップ

- 1, Calculation method: Projector Augmented Wave (PAW)
- 2, Exchange-correlation functional: GGA-PBE
- 3, SCF Convergence: 10^{-6} eV
- 4, Ionic convergence: 0.002 eV/Å
- 5, Energy cutoff: 400 eV
- 6, k-point sampling: Γ centered Monkhorst-Pack
- 7, Unit size: $7 \times 8 \times 3$
- 8, Note that Hartree-Fock or hybrid calculations are not considered in the present calculations.

り、凝集エネルギーとしてPのEBを算出した。第一原理計算は密度汎関数理論 (density functional theory: DFT) を用いて、Table1条件で、計算を行った。

4. 研究成果

(1) AlInGaP 太陽電池の電子線劣化挙動

InP系の太陽電池において、InP中のPのEdが、7.7 eVと算出されており、またInGaP太陽電池において、PのEdが4 eVであることが先行研究の実験より示されてきた。これは、多元系化合物において通常に予測されているPのEdが従来劣化予測に使用されてきた9 eVではなく、低い値であることを意味している。この値の変化が材料依存性のあるものであることをより明らかにするため、InGaPよりも更に元素が多い、AlInGaP太陽電池の劣化挙動についての観察を行った。AlInGaP太陽電池は、JAXA今泉氏より提供して頂いた。図4に60 keV電子線照射時のAlInGaP太陽電池の光電流電圧(LIV)特性を示す。図中のBOLは、照射前の初期特性を示している。また、数字は、電子線フルエンスである。この結果より、電子線フルエンスが、増加すると、AlInGaP太陽電池のLIV特性が劣化していることが明らかになった。AlInGaP太陽電池において60 keV電子線は、通常の放射線によるはじき出し損傷の理論計算では、欠陥を生成しないため、劣化を引き起こさないと考えられている。

60 keV電子線照射時のAlInGaP太陽電池の性能保存率を図5に示す。(a)、(b)、および(c)は、それぞれ、最大電力、開放端電圧、および短絡電流の保存率である。この結果より、太陽電池のそれぞれの特性の劣化は、フルエンスの増加に伴って、劣化していることが明らかになった。また各図に示している点線は、以下のフィッティング式を用いてプロットされた。

$$\frac{A(\phi)}{A_0} = 1 - C \cdot \log\left(\frac{\phi}{\phi_x}\right), \quad (4)$$

ここで A_0 は、太陽電池のパラメータの初期値、および $A(\phi)$ は、照射フルエンス (ϕ) における太陽電池のパラメータ値である。C および ϕ_x は、フィッティング係数であり、Table 2 に示す値で使用された。それぞれのフィッティング係数を元に計算された結果は、実験的に取得された太陽電池の劣化傾向とよく一致している。このフィッティング式は、宇宙太陽電池の劣化によく使用されている半経験的理論式である。

AlInGaP太陽電池の劣化傾向はこのフィッティング式に一致することから、この劣化メカニズムは、従来と同じはじき出しによる欠陥生成による劣化であると考えられる。そのため、この結果は、InGaP太陽電池と同様に、 E_d の低下が、AlInGaP太陽電池でも引き起こされたことを示唆している。

(2) AlInGaP 太陽電池のはじき出し閾値エネルギーの推定

宇宙太陽電池の劣化予測手法である DDD 法は、非イオン化エネルギー損失(NIEL)を算出することにより劣化予測することが可能である。

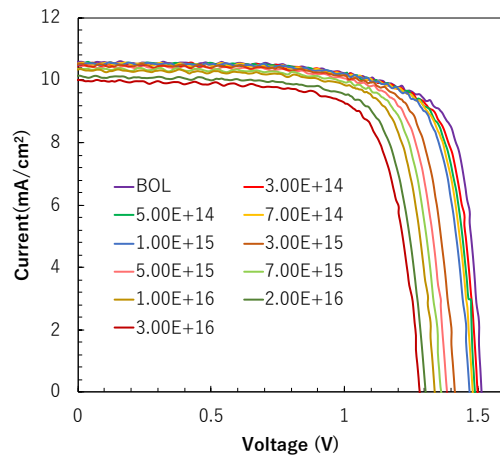


図4：60 keV電子線によるAlInGaP太陽電池の変化

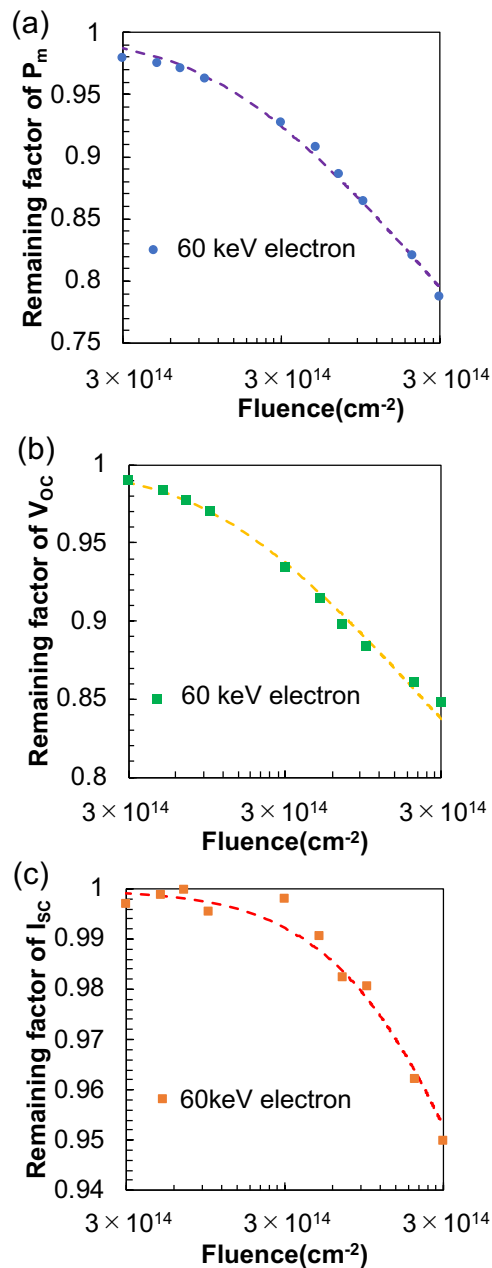


図5：60 keV電子線照射時のAlInGaP太陽電池の特性保存率

InGaP 太陽電池の先行研究において、正確な E_a は、低エネルギー電子線照射による太陽電池の劣化をより正確にフィッティングすることができることが報告されている。そのため、本章では、いくつかの低いエネルギーの電子線を AlInGaP 太陽電池の劣化挙動を DDD 法によりフィッティングすることにより、AlInGaP 中のおよその E_d 値を見積もった結果を報告する。

NIEL は、放射線と原子の相互作用による欠陥生成の計算式である。原子変位の衝突確率を表す微分断面積は、 $(d\sigma(\theta, E)/d\Omega)$ で表される。放射線から原子へ与えられる平均の運動エネルギーは、 $(T(\theta, E))$ で与えられる。これらの、関数を用いて NIEL は、以下の式によって計算することが可能である。

$$E_{NIEL} = \frac{N_A}{A} \int_{\theta_{min}}^{\pi} L[T(\theta, E)] T(\theta, E) \frac{d\sigma(\theta, E)}{d\Omega} d\Omega, \quad (1)$$

ここで、 N_A はアボガドロ数、 A は原子量、および θ_{min} 放射線と原子の衝突角度である。また、 $(L[T(\theta, E)])$ は、Lindhard partition factor である。この式を用いて AlInGaP 各元素の、NIEL を計算した結果を図 6 に示す。この結果より、200 keV 以下は、P のはじき出しの影響が、支配的であると考えられる。そのため、60 keV の電子線照射試験に加えて、80、100、140、および 180 keV の電子線照射試験を実施した。低エネルギー電子線照射時の AlInGaP 太陽電池の最大電力の保存率に関して取得した実験結果を図 7 に示す。AlInGaP 太陽電池は、低エネルギー電子線照射のフルエンスの増加に伴って、劣化量が増加していることが明らかになった。また、80-180keV の電子線照射の結果において、AlInGaP の劣化傾向はほとんど同じであり、60 keV 電子線と比較すると、劣化量が多いことが明らかになった。NIEL では、図 6 のように、ある電子線エネルギーより急激に NIEL が立ち上がり、その後、一定のエネルギーへ漸近する傾向が見られる。このことから、80 keV の電子線エネルギーまでには、NIEL が立ち上がり、欠陥生成量が均一化したことが考えられる。図 8 に E_a を 4 - 9 eV に変更した P の NIEL を示す。この結果、 E_a 値を減少させると、NIEL の立ち上がる電子線のエネルギーが低エネルギーへシフトすることがわかる。そのため、AlInGaP 太陽電池においても P の NIEL が、従来よりも低くなっている可能性が考えられる。

DDD 法において、太陽電池に蓄積される変位損傷量をエネルギーとして表す E_{DDD} は、以下の式で表される。

$$E_{DDD} = \phi \times E_{NIEL} \quad (6)$$

この計算式を用いて、低エネルギー電子線照射時の各エネルギーの劣化量と DDD 値の値を比較した結果を図 9 に示す。

Tabel 2 : 60 keV 電子線照射時の AlInGaP 太陽電池劣化フィッティング係数

| Parameter | P_m | V_{oc} | I_{sc} |
|-----------|----------------------|----------------------|----------------------|
| C | 0.066 | 0.05 | 0.043 |
| Φ_i | 1.4×10^{15} | 1.2×10^{15} | 1.5×10^{16} |

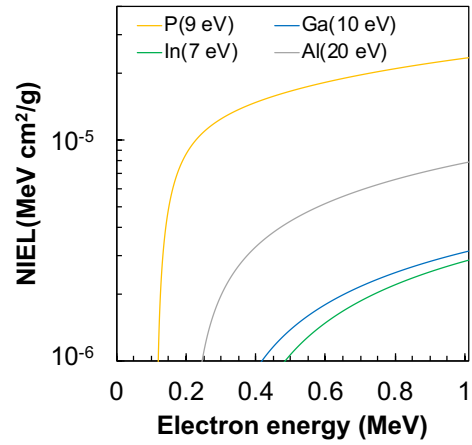


図 6 : AlInGaP 太陽電池の各元素における NIEL の計算結果

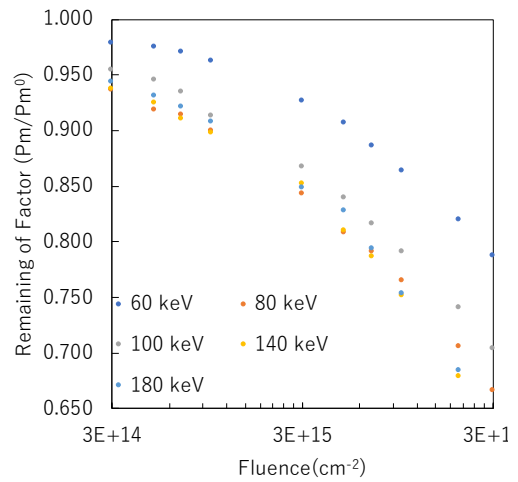


図 7 : AlInGaP 太陽電池の庭園ルギー電子線照射時の劣化挙動

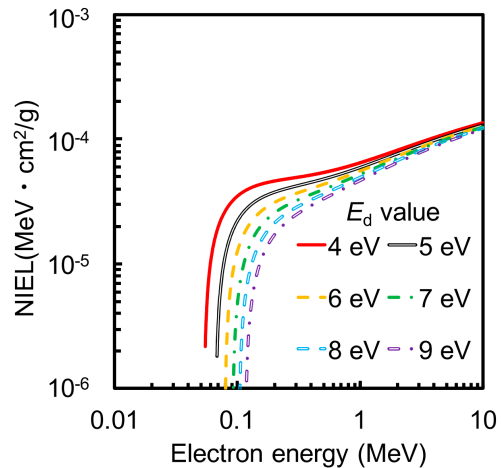


図 8 : P の NIEL の E_a 値依存性

このDDD値は、AlInGaPの構成元素の中で、PのみのEdを3.6 eVに変更したNIEL値を用いて計算した結果である。これは、PのEd値を0.1eVごとにを変えて計算し、最小二乗法により、すべて電子線エネルギーにおける劣化傾向が最も近づいた値をプロットした結果である。この結果より、60 - 180 keVの電子線照射によるAlInGaPの劣化傾向は、PのEd値が3.6 eVときに、計算されたDDD値が同じ時に、すべての劣化量が、よく一致していることがわかる。そのため、AlInGaP太陽電池のPのEd値は、従来考えられている9 eVより低く、約3.6 eVであることが示唆された。上記の結果より、InP系のPのはじき出し閾値エネルギーは、Table 3に示すような値であることが明らかになった。

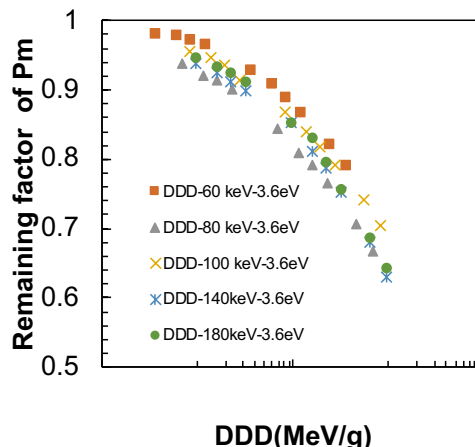


図9：PのEd値3.6eVで計算したNIELによるDDD値とAlInGaP太陽電池の最大電力劣化傾向の比較

(3) 第一原理計算によるInP系化合物半導体の凝集エネルギーの解明

放射線損傷の理論において、Edを決定する要因は、結晶の結合エネルギー(E_b)およびジャンプエネルギー(E_j)の和であると考えられている。Edは、結合が切れた後に、原子が安定な格子間原子になる数格子先までジャンプするためのエネルギーであり、照射損傷理論特有の現象であるため計算する手法はほとんどない。しかし、Edは、第一原理計算により相対的に評価することが可能である。計算結果より、InP、InGaPおよび、AlInGaPのリンのEdは、3、3および、5 eVであった。バンド構造を再現するHartree-Fock法やハイブリッド汎関数法を使用していないため、値を相対的に比較すると、AlInGaPが1.8倍ほど他に比べてEdが高いことが明らかである。しかし、AlInGaPのEdが最も低いため、Edの変化がEdへ与える影響は、この結果より小さいと考えられる。そのため、このInP系発見されたEdの材料依存性は、Edの影響が重要であると示唆された。

Table 3：InP系におけるPのEd値

| Material | Ed-P atom |
|----------|-----------|
| NIEL-P | 9.0 eV |
| InP | 7.8 eV |
| InGaP | 4.0 eV |
| AlInGaP | 3.6 eV |

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 0件)

[学会発表] (計 2件)

(1) 「InP系化合物半導体中のPのはじき出し閾値エネルギーの材料依存性 (oral)

奥野泰希, 今泉充, 秋吉優史, 第79回応用物理学会秋季学術講演会、名古屋 2018. 3.

(2) “Degradation mechanisms of InGaP solar cells by irradiation with less than 100 keV electrons” Yasuki Okuno, Shuichi Okuda, Masafumi Akiyoshi, Takashi Oka, Shirou Kawakita, Mitsuru Imaizumi, Hiroaki Kusawake, Kan-Hua Lee, and Masafumi Yamaguchi, 43th, PVSC, Portland (USA), 2016. 6.

6. 研究組織

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：今泉充 (JAXA)

ローマ字氏名：(Imaizumi, Mitsuru)

研究協力者氏名：秋吉優史 (OPU)

ローマ字氏名：(Akiyoshi, Masafumi)