

令和 2 年 6 月 5 日現在

機関番号：12601
研究種目：若手研究(A)
研究期間：2017～2019
課題番号：17H04979
研究課題名（和文）GaAs薄膜太陽電池の高速剥離を目指した赤外線レーザーリフトオフプロセスの開発

研究課題名（英文）Development of the Infrared Laser Lift-Off Process for Low-Cost GaAs Based Solar Cells

研究代表者
渡辺 健太郎（Watanabe, Kentaroh）

東京大学・先端科学技術研究センター・特任講師

研究者番号：30523815
交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 18,500,000円

研究成果の概要（和文）：化合物半導体からなる太陽電池は高効率が期待できる反面、高コストであることが課題であった。この問題に対して、結晶成長時にGaAs基板上に疑似格子整合するInGaAs/GaAsP体重量子井戸層を介して太陽電池を形成し、この多重量子井戸が選択的に赤外線を吸収する性質を利用して、波長1064nmのレーザー照射によるドライプロセスによって太陽電池層と基板を剥離する赤外線レーザーリフトオフ(IR-LL0)技術を提案し、基礎研究を行った結果、数mmサイズの小規模ながら剥離工程が確認された。

研究成果の学術的意義や社会的意義
本研究によって、GaAsからなる太陽電池がレーザー光を用いたドライプロセスによって剥離加工が可能であることが示された。この結果は宇宙用として用いられる化合物半導体からなる超高効率太陽電池のコスト低減と生産性の向上に寄与することができる。そのため、今後はSi結晶による太陽電池に代わり、地上応用へ向けて高効率多接合太陽電池市場の拡大に資することが期待される。

研究成果の概要（英文）：In order to reduce the cost of III-V compound semiconductor solar cells, which can realize a very high efficiency, the basic study for an infrared laser lift off (IR-LL0) process has been carried out. The strain-balance multiple quantum wells (MQWs) consist of InGaAs well and InGaP barrier can selectively absorb infrared photon corresponding to 1.25 eV of effective bandgap energy. By applying the MQWs as a release layer, an epitaxially grown GaAs photovoltaic (PV) device via MQWs on the GaAs substrate was transferred to the support substrate. The illumination test of pulse laser (1064 nm) on the MQWs layer grown on GaAs indicated the selective ablation of MQW is possible with controlled laser power density. Finally, the PV layer separation and transfer was demonstrated by the IR-LL0 method was demonstrated for mm size of small samples.

研究分野：半導体工学

キーワード：化合物半導体 太陽電池 GaAs 多重量子井戸 エピタキシャルリフトオフ レザーリフトオフ IR-LL0

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

GaAs に代表される化合物半導体は、エピタキシャル成長によって高品質な単結晶の太陽電池構造を構成できること、および格子定数の近い材料を結晶成長によって積層化することが可能であることから、高効率太陽電池を構成する主要な材料である。しかし、コストが高価であり、応用が宇宙用などに限定されているのが実情であった。近年では、太陽電池として機能するエピタキシャル成長層を別の支持基板に移載し、成長に用いた GaAs または Ge 基板を再利用することでコストを低減させる手法が盛んに研究されてきている (E. Yablonovitch, et al., *Appl. Phys. Lett.*, **56**, p.2419, (1990), G. J. Bauhuis et al., *Sol. Eng. Mater. Solar Cell*, **93**, p.p. 1488-1491, (2009) 等)。一般的には、GaAs 基板に対して格子整合成長可能な AlAs (リリース層) を介して太陽電池構造を構成したのち、太陽電池層を支持基板に固定したうえでフッ化水素酸による AlAs の化学的選択エッチングによって基板と太陽電池層を分離する、エピタキシャルリフトオフ (ELO) が用いられる。この方法は、典型的に 10 nm 程度の薄い AlAs リリース層を溶解しながら外部応力の印加によって剥離を進めるため、非常に低速の工程であり、かつ、ウエットプロセスであるために太陽電池層に内在する欠陥を介したピンホールの発生が問題となっている。現在、この問題に対して、いかにして剥離工程を安定かつ高速にしてスループットを向上させ、また、欠陥の発生を抑制して歩留りを向上させるかという点に対して研究開発がなされている状況にあり、未だに大規模な生産体制が確立されていない。

一方、GaN 系材料を主体とした発光ダイオード (LED) は、アルミニウムなどのより高い熱伝導性基板、あるいは電気伝導性基板に転写、移載することで高輝度化、省エネルギー化がもたらされるため、こちらも盛んに研究が進められている (C-F. Chu, et al., *J. Appl. Phys.*, **95**, p. 3916, (2004) 等)。一般的には、エキシマレーザー (波長 248 nm) などの超短波長の光を照射することで LED を異なる基板に固定した後に結晶成長に用いたサファイア基板に照射することでサファイア基板を剥離することができる。この方法は、化学エッチングを用いない、ドライプロセスであり、高速であることが特徴である。この方法は、レーザーリフトオフと呼ばれ、市場応用の進んだ青色 / 白色 LED に対して実用化が進められている。同様の手法が、GaAs や InP 基板を用いる、いわゆる As-P 系と呼ばれる化合物半導体に適用することができれば、太陽電池の剥離を高速化させ、大規模な生産が可能となる可能性がある。

2. 研究の目的

本研究では、GaAs 基板上に InGaAs/InGaP 多重量子井戸 (MQW) を介して GaAs 太陽電池をエピタキシャル成長によって構成し、波長 1064 nm の光照射によってリリース層を選択的に溶解 (アブレーション) することで GaAs 基板と GaAs 太陽電池層を分離する手法を開発することを目的とする (赤外線レーザーリフトオフ、Infrared-Laser Lift Off: IR-LLO)。

レーザー光を用いたリフトオフは、特定の波長に対して、選択的に光を吸収し、その層だけにおいて熱分解が生じるような状況を作ることができれば原理的には可能である。そこで、工業的に広く用いられ、利便性の高い Nd:YAG レーザー (波長 1064 nm) を利用することを考える。この波長の光は GaAs (バンドギャップ 1.42 eV) に対して低エネルギーの光子であるために透過性が高い。また、この波長の光を吸収できる低バンドギャップ材料として、InGaAs/GaAsP 多重量子井戸 (MQW) は、井戸層の $\text{In}_x\text{Ga}_{(1-x)}\text{As}$ における In 比率、障壁層の $\text{InGa}_{(1-y)}\text{P}_y$ における P 比率並びに各層の厚さを制御することで結晶成長中の応力を保証させると GaAs 基板に対して疑似格子整合した成長層が得られる。この MQW は有効バンドギャップを ~ 1.2 eV 程度に調製することが可能であり、波長 1064nm の光を選択的に吸収する、リリース層として働くはずである。

レーザー光を照射した際に生じるアブレーション (溶解、蒸発) は精密な加工法の一つとしてよく知られているが、材料が持つ光吸収係スペクトルの観点から加工の選択性が議論された例が未だに少ない。半導体の場合では、バンドギャップを境に明確に光の透過と吸収が生じる波長が異なるため、高い選択性が得られることが期待される。このような観点から、以下の項目について明らかにすることを本研究の詳細な目的事項とする。

- ・ GaAs と MQW におけるレーザーアブレーションの生じる基礎的条件の評価
- ・ GaAs と MQW の加工選択性の評価
- ・ GaAs 層を剥離するための条件
- ・ MQW をリリース層として、それを介して成長した GaAs 太陽電池層のレーザーリフトオフによる剥離する方法の確立
- ・ レーザーリフトオフのために太陽電池層を転写する支持基板への強固な接着方法の確立

3. 研究の方法

GaAs 基板上に InGaAs/InGaP 多重量子井戸層とそれを介した GaAs 太陽電池構造を有機金属エピタキシャル成長法 (MOVPE) を用いて結晶成長することで試料を形成する。この、MQW 層に対しては、元素組成と厚さの制御により、ある程度のバンドギャップを人工的に調整できる。加工に用いる Nd:YAG レーザーの赤外線波長 1064 nm は、1.16eV に相当するため、この波長に対して有意に吸収をする MQW をリリース層として構成する。

MQW を成長した層、および GaAs 基板のままの表面に対してレーザー光を照射したのち、照射部の表面における加工状態を顕微鏡によって観察する。この際、レーザー光は加工制御に対し

て利便性の高いパルス光とし、集光光学系を用いたパルス光束のエネルギーを推定、照射エネルギーと加工の相関を確認する。MQW では、レーザー光の吸収が優先的に生じるため、アブレーションが起こるために必要なエネルギー閾値が低いと想定される。

MQW リリース層を介して GaAs 基板上に GaAs 太陽電池層を形成し、同様のレーザー光を用いたアブレーションによって、選択的溶解が生じる条件について検討を行う。

GaAs 太陽電池層は、典型的に厚さが数 μm であるため、この層のみでは物理的強度を保つことができないと想定される。これをデバイスとして利用するためには、ある程度の強度を持つ支持基板に転写、移載する工程が必要となるため、このプロセスを確立する方法を検討する。コストの低減という観点から、支持基板は再利用を目指す GaAs 基板よりも安価な素材であることが望ましい。本研究では、軽量性と塑性変形に有利なポリイミド、固体基板として安定に利用できる Si、透明性の高い基材としてガラスを候補とする。

エピタキシャル成長によって形成した太陽電池層の固定法とリフトオフ工程への適用は技術的に確立していない部分が多い。これは、従来の化学エッチングを用いた ELO のプロセススループットが充分ではなく、実用化の途上にあるためである。本研究では、レーザーリフトオフ工程に対して十分な強度を持つ支持基板への固定方法について、金属を接着層とした場合と半導体直接接合を用いた場合について検討を進める。

4. 研究成果

(1) IR-LLO による GaAs 太陽電池の剥離加工技術開発

太陽電池として機能するエピタキシャル成長層の成長基板からの剥離、及び GaAs 成長基板の再利用を目的として、赤外線レーザーリフトオフ(Infrared laser lift-off; IR-LLO)工程の提案と基礎実証を開始した。選択的に赤外線を吸収するリリース層の候補として、有機金属気相成長法によって GaAs 基板上に約 1.2eV の実効バンドギャップ値を有する InGaAs/GaAsP 多重量子井戸(MQW)層の成長を試み、フォトルミネッセンスによって発光波長のピークが 1050nm まで延伸していることが確認された。

層間剥離のための局所加熱用として、発光波長 1030 nm 及び 1064 nm のパルスレーザーを導入し、基礎光学系を構築した。試作したリリース層(MQ 層)に対するパルスレーザーの照射によってアブレーションが生じることが確認された。未成長の GaAs 基板に対してレーザー光の照射加工の試験を実施したところ、導電性基板に対しては自由キャリア吸収によって波長 1000 nm を超えるレーザー光の吸収が見られるため、出力を増大させることで GaAs 表面においてもアブレーションを生じることが確認された。

GaAs 基板上に成長した InGaAs/GaAsP 多重量子井戸層(MQW)は各層に生じる歪応力を補償しつつ成長を進めるために GaAs よりも低い実効バンドギャップを持った層を高品質に形成することができる。本研究において、加工用レーザーとして広く普及している波長 1064 nm の YAG:Nd レーザーを用いて IR-LLO による太陽電池デバイス層の分離を行うため、GaAs 疑似デバイス層と MQW 加工層からなる層構造を MOCVD 法を用いてエピタキシャル成長した試料に対してレーザー光照射によるアブレーションを行ったところ、GaAs 層を維持したまま MQW 層のみの溶解が可能であることが示された。

(2) IR-LLO による InP 系デバイスの加工技術開発

GaAs 基板上に成長した場合と同様に、InP 基板(バンドギャップ 1.3 eV)上に成長した InGaAs 層はバンドギャップ値が 0.7eV であり、この層を選択的吸収層として用いた場合、波長 1064nm の赤外線に対する選択的吸収比率が大きくなることから、IR-LLO 加工によるデバイス層の分離がより有効に形成されることが期待される。InP 基板上に格子整合した InGaAs 層の形成を MOCVD 法を用いて行い、レーザー光照射によるアブレーション過程を観察したところ、InP 層を維持したまま InGaAs 層の溶解が生じることが確認された。

(3) 太陽電池デバイス層移載工程の開発

デバイス固定、移載工程の共通技術として、従来のウェットエッチングを用いた場合のエピタキシャルリフトオフ(ELO)工程による太陽電池の開発を実施した。この際、Au-Au 合金化接合法によって 170 の高温印加状態において 0.5 時間、1 GPa の圧力印加を行うことで Au 層同士の強固な固着が認められた。この固定法によって、層間剥離を促進させるためにポリイミド製のフレキシブル基板上に GaAs 単接合太陽電池を転写し、AlAs をリリース層として 10%の HF 溶液中で剥離作業を行ったところ、10 mm 角程度のデバイスサイズに対して剥離が完了するまで 2 時間程度を要することが明らかとなった。また、p-i-n 構造を持つ GaAs 単接合太陽電池に対して、i 層中に MQW 層を導入した場合、エピタキシャル成長層に内包される応力は剥離時間に大きな影響を与えないことが示された。(図 1)

(4) 直接接合を用いたデバイス層移載工程の開発

GaAs 太陽電池層を、表面活性化直接接合法(SAB)を用いて Si 基板に接合させたのち、リリース層を選択的除去することで GaAs 基板の剥離と太陽電池の試作を行った。エピタキシャル成長によって GaAs 基板上に形成した GaAs 太陽電池を SAB 法によって直接 Si

支持基板に貼り付けたのち、AlAs リリース層とした場合で化学エッチング によって剥離が可能であることが示された。この際、リジッドな Si ウエハを支持基板としているが、HF 溶液中における化学エッチングの際に、応力のない場合では 0.5 mm 程度でエッチングの進行が停滞するのに対し、Si ウエハに外部応力による湾曲を加えることでエッチングが促進され、剥離加工が高速化されることが示された。剥離速度は 2 mm/h 程度であり、10 mm サイズの試料の形成が可能であった。また、多重量子井戸をリリース層とした場合に、レーザー光によるドライプロセスでの剥離加工の試験を行い、1 mm 程度のサイズの試料でデバイス層の剥離が確認された。Si 支持基板に転写された GaAs 太陽電池層は、電極の形成後に疑似太陽光照射下での評価試験を実施し、太陽電池としての機能が維持されることが示された(図 2)。

この SAB を用いた固定法の場合、接着層における光学的損失を抑制でき、かつ接合界面にトンネル接合を形成することで電気伝導度を維持することが可能であるため、多接合太陽電池の積層に利用することで太陽電池のさらなる高効率化が期待できる。れいとして、InP 基板上に成長した InGaAs 太陽電池と GaAs 基板上に成長した GaAs 太陽電池を SAB によって積層し、2 接合太陽電池の試作を行ったところ、出力された解放電圧がそれぞれの単接合太陽電池の和にほぼ等しくなり、多接合太陽電池としての動作が確認された(図 3)。

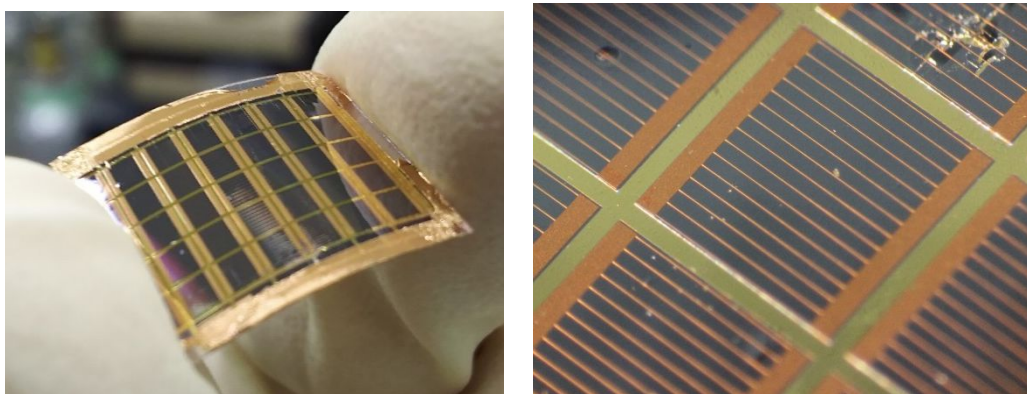


図 1. MQW を挿入した GaAs 太陽電池を Au-Au 合金化によってポリイミド基板に固定し、ELO によってデバイス層移載を行った例。フレキシブルな薄膜ポリイミドに薄膜 GaAs デバイス層が形成されることで軽量高効率な太陽電池が構成可能になっている。

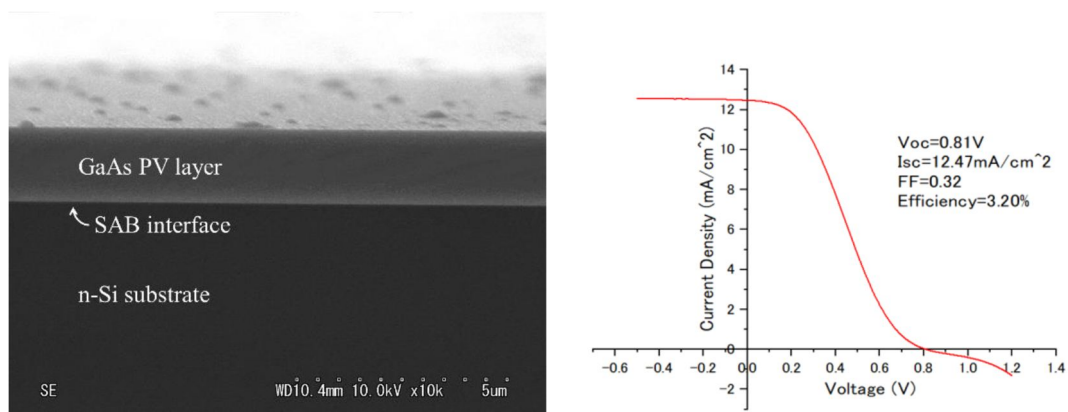


図 2. SAB 法を用いて GaAs 太陽電池層を Si 基板に固定し、ELO によってデバイス層移載を行った例。GaAs 太陽電池層が Si 基板上に積層されたデバイスの断面(左)および、光照射下で電流と電圧の出力が発生し、電流-電圧特性(右)が確認された。

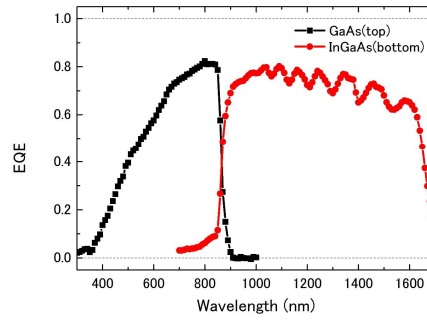
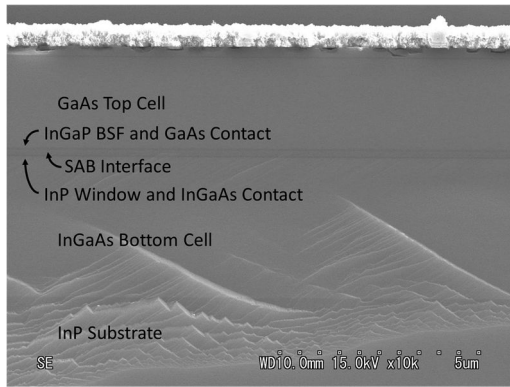


図 3. SAB 法を用いて InP 上に成長した InGaAs 太陽電池と GaAs 上に成長した GaAs 太陽電池を積層し、2 接合太陽電池としての動作が認められた例。SAB によって積層形成された 2 接合太陽電池の断面電子顕微鏡写真(左)、および、光照射時の波長感度特性(右)。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Kentaroh Watanabe, Tatsuya Nakata, Naoya Miyashita, Hassanet Sodabanlu, Maxime Giteau, Yoshiaki Nakano, Yoshitaka Okada, Masakazu Sugiyama
2. 発表標題 Light absorption enhancement in thin-film multiple quantum wells solar cells fabricated by epitaxial lift-off technique
3. 学会等名 7th WORLD CONFERENCE ON PHOTOVOLTAIC ENERGY CONVERSION (WCPEC-7) JUNE 10-15, 2018 WAIKOLOA, HAWAII (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 渡辺 健太郎, 福谷 貴史, ソダーバンル ハッサネット, 中野 義昭, 杉山 正和
2. 発表標題 表面活性化接合によるGaAs//InGaAs 2接合太陽電池の開発
3. 学会等名 応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 中田 達也, 渡辺 健太郎, 宮下 直也, ソダーバンル ハッサネット, 岡田 至崇, 中野 義昭, 杉山 正和
2. 発表標題 エピタキシャルリフトオフによる薄膜多重量子井戸太陽電池の開発
3. 学会等名 第65回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Tatsuya Nakata, Kentaroh Watanabe, Naoya Miyashita, Hassanet Sodabanlu, Yoshiaki Nakano, Yoshitaka Okada, Masakazu Sugiyama
2. 発表標題 THIN-FILM MULTIPLE QUANTUM WELLS SOLAR CELLS FABRICATED BY EPITAXIAL LIFT OFF PROCESS
3. 学会等名 27th International Photovoltaic Science and Engineering Conference (国際学会)
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----