

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 29 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23760303

研究課題名(和文) 低コスト超高効率化合物半導体/シリコンハイブリッドタンデム太陽電池の開発

研究課題名(英文) Development of low-cost, ultrahigh-efficiency compound semiconductor/silicon hybrid tandem solar cells

研究代表者

田辺 克明 (Tanabe, Katsuaki)

東京大学・ナノ量子情報エレクトロニクス研究機構・特任准教授

研究者番号：60548650

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円、(間接経費) 900,000円

研究成果の概要(和文)：世界初となるオーミックな電気特性を持つGaAs/Si貼り合わせ接合を得ることに成功した。この高光透過性かつ高導電性のヘテロ接合は、今後様々な新規高性能化合物半導体/Siハイブリッド光電子デバイスへの利用が期待される。得られたヘテロ接合を用い、世界初の貼り合わせによる化合物半導体/Siハイブリッド多接合太陽電池となる、AlGaAs/Si二端子二接合太陽電池の作製に成功した。作製した二接合太陽電池は、1 sun (100 mW/cm²) 下において25%という、初期データとして高い発電効率を示し、超高効率格子不整合多接合太陽電池の実現への我々の手法の妥当性が見られる。

研究成果の概要(英文)：We have generated an ohmic GaAs/Si bonded interface for the first time. This optically transparent, electrically conductive heterointerface can be applied for the creation of various novel high-performance compound semiconductor/silicon hybrid optoelectronic devices. By using the GaAs/Si bonding technique, we have successfully fabricated an AlGaAs/Si two-terminal dual-junction solar cell, the first bonded compound semiconductor/silicon hybrid multijunction solar cell. The fabricated dual-junction cell exhibits a high preliminary efficiency of 25% under a 1 sun (100 mW/cm²) illumination, demonstrating the validity of our bonding scheme for the realization of ultrahigh-efficiency lattice-mismatched multijunction solar cells.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学 電子デバイス・電子機器

キーワード：太陽電池 化合物半導体 シリコン ウェハ貼り合わせ

1. 研究開始当初の背景

我々の直面しているエネルギー資源枯渇問題と地球温暖化問題の両方を解決するとして太陽電池への期待は高い。しかし太陽電池の大規模な普及には、現状からの大幅な高効率化と低コスト化が必要である。現在、25%以上の高効率は III-V 族化合物半導体によってのみ達成されており、InGaP/(In)GaAs/Ge 三接合太陽電池で 41.6% (364 倍集光下) という最高効率が得られている (R. R. King et al, 24th EUPVSEC, 2009)。しかしながら Ge 基板のコストが高く、実用化は宇宙用途に限定されている。集光によって太陽電池のサイズを小さくできるが、直射平行光に限定されるため、常時快晴の砂漠等の地域を除き、有効策とはならない。

研究代表者はこれまでに、格子定数の違いより気相蒸着法による形成が困難な低欠陥密度の異種半導体のヘテロ接合をウェハ融着法により作成する技術の検討を進めてきた。その結果、機械的、熱的に安定でかつ高導電性の GaAs/InP および InP/Si 接合を得た。さらに、この技術を利用することで、初めての格子不整合 GaAs/InGaAs 二接合太陽電池 (K. Tanabe et al, Appl. Phys. Lett. 89, 102106, 2006)、Si 基板上的 InGaAs 太陽電池 (J. M. Zahler, K. Tanabe et al, Appl. Phys. Lett. 91, 012108, 2007)、GaAs/Ag/Si 接合による表面プラズモン利用型太陽電池 (K. Tanabe et al, Proc. 33rd IEEE PVSC, 129, 2008) といった多岐に亘る新規太陽電池の作製に成功している。加えて、GaAs/Si ウェハ融着による Si 基板上的 InAs/GaAs 量子ドットレーザの作製にも成功している (K. Tanabe et al, Opt. Express 17, 7036, 2009; K. Tanabe et al, ibid 18, 10604, 2010)。このウェハ融着および薄膜転写技術は、格子整合にとらわれない新規ヘテロ構造光電子デバイスの創成に有効である。

研究代表者が標準疑似太陽光スペクトル下における多接合太陽電池の限界理論効率 ("Detailed Balance Limit Efficiency", W. Shockley and H. J. Queisser, J. Appl. Phys. 32, 510, 1961) を計算したところ、二接合として最高効率となる 1.7eV と 1.1eV のバンドギャップから成る二接合太陽電池において、上記最高実験効率の三接合太陽電池と同じ 41% (無集光下。1000 倍集光下で 48%) となることが分かった。トンネル接合界面での抵抗による電力のロス、再結合によるキャリアのロス、高濃度ドーピングによる光の自由電子吸収、さらには電流整合の困難を考慮すると、実用上はむしろ二接合型に分があり、最高効率の達成を期待できる。さらに Si を基板とすることによる、低コスト、軽量、高強度、高熱伝導といった利点も有する。この理想的なバンドギャップの二接合太陽電池の材料として、 $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}/\text{Si}$ という組み合わせが考えられる。ところが、(Al)GaAs と Si との 4% の格子不整合のため、従来の気相蒸着法によるヘテロエピタキシャル成長では、上部 AlGaAs

太陽電池に高密度の欠陥が形成されてしまい、所望の性能を得ることができない (M. Umeno et al, Sol. Ener. Mater. Sol. Cell. 50, 203, 1998)。

2. 研究の目的

本研究では、上記の格子不整合の問題の解決策として、AlGaAs 太陽電池を Si 上ではなく格子整合な GaAs 基板上に成長した後に、上記ウェハ融着法を用い Si 太陽電池と接合することで、高性能な AlGaAs/Si 二接合太陽電池を作製する。研究成果により、研究代表者の提案する AlGaAs/Si 二接合太陽電池は発電効率面とコスト面の両方において既存の Si や化合物半導体太陽電池に置き換わるべきものであるという説得力を与える。

3. 研究の方法

まず GaAs と Si のバルク基板を用い、GaAs/Si 直接ウェハ融着の実験的検討を行った。Zn ドープ濃度 $9 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ の p-GaAs (100) 基板、Zn ドープ濃度 $5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ の p⁺-GaAs エピ層、B ドープ濃度 $3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ の p⁺-Si (100) 基板、As ドープ濃度 $3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ の n⁺-Si (100) 基板を用いた。p⁺-GaAs エピ層は有機金属化学的気相成長法 (MOCVD) により p-GaAs 基板上に 200 nm 厚成長した。HF 水溶液による自然酸化膜除去の後、GaAs、Si 両基板の研磨面同士を、(011) 端同士が平行になるように重ね合わせ、大気中で基板に垂直な方向に 0.1 MPa の圧力を与えた状態で 300 - 500 °C 下において 3 時間放置した。このようにして融着した GaAs/Si 界面の電流-電圧 (I-V) 特性の測定を行った。両基板裏面に蒸着した AuGeNi/Au オーミック電極を介して DC 電圧を印加した。

4. 研究成果

図 1 に直接融着した GaAs/Si 試料の I-V 曲線を示す。500 °C にて融着したものを含む全ての p-GaAs/p⁺-Si および p-GaAs/n⁺-Si ペアにおいて、オーミックではない屈曲した I-V 特性が見られた。これに対し、p⁺-GaAs/p⁺-Si および p⁺-GaAs/n⁺-Si ペアについては 300 °C での融着でも直線的でオーミックな I-V 曲線が得られた。この融着界面の電気特性の違いを解明するために、GaAs/Si ヘテロ接合におけるバンド端接続の計算を行った。図 2 (a) に示すように、p 型/p 型接合においては、GaAs 中のドーピング濃度を $9 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ から $5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ に増大させることにより、価電子帯端の障壁が薄くなること分かる。一方、p 型/n 型接合においては、図 2 (b) に示すように、同様の GaAs 中ドーピング濃度の増大によってトンネル接合が形成されていることが分かる。これらの効果により、p⁺-GaAs/p⁺-Si および p⁺-GaAs/n⁺-Si ペアでは導電性が向上しオーミック接合が得られたと考えられる。本検討で作製されたオーミック GaAs/Si へ

テロ接合は、電氣的・光學的兩方の結合を可能にし、次世代の高性能 III-V/Si ハイブリッド光電子素子の開発に有効である。

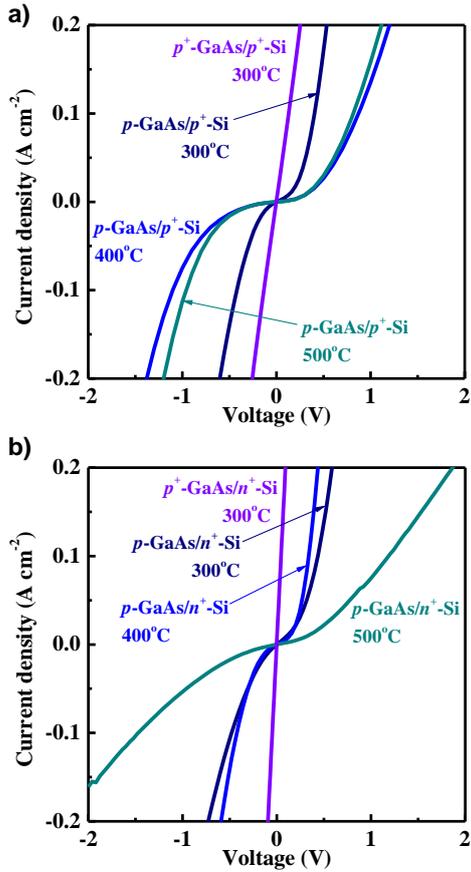


図1 直接融着した (a) p -GaAs/ p -Si および (b) p -GaAs/ n -Si 試料のヘテロ界面の I - V 特性. 電圧は GaAs 基板側からの印加を正值としている.

作製した p^+ -GaAs/ p^+ -Si 試料の接合界面の断面透過型電子顕微鏡 (TEM) 像を図 3 (a) に示す. GaAs/Si 融着界面に 2 nm 厚程度の非晶質層が見られる. この層厚はトンネル電流によりオーミックな界面電気特性を与えるに十分な薄さであり、たとえ酸化物であったとしても電圧印加によるブレークダウンにより導電性となり得る (*E. Rosenbaum and L. F. Register, IEEE Trans. Electron. Dev. 44, 317, 1997; E. Miranda et al, Appl. Phys. Lett. 73, 490, 1998*). また、本格子像から数ミクロン域の低倍率像に至るまで、格子不整合系のヘテロエピタキシャル成長に見られるような貫通転位は全く観測されなかった. 図 3 (b)-(d) に示す GaAs/Si 接合界面近傍の電子線回折像からは、接合界面直近の GaAs、Si それぞれの領域が、もとのバルク基板と同じ単結晶に保たれていることが分かる. これらの TEM 観察結果から、我々の融着法は、GaAs、Si 両材料に結晶の劣化のない理想的なヘテロ接合形成技術であることが示された.

得られた p^+ -GaAs/ n^+ -Si 接合を用い、AlGaAs/Si 二接合太陽電池を作製した. AlGaAs セルは通常の太陽電池と上下逆向き

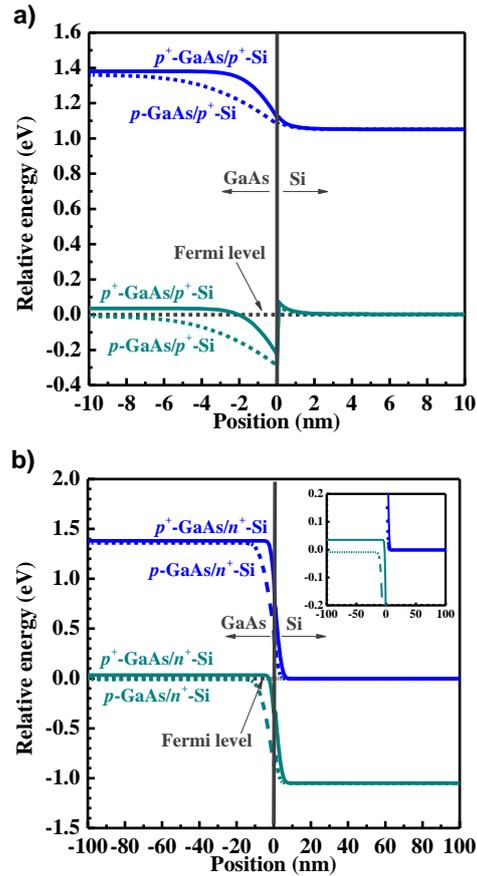


図2 (a) p -GaAs/ p -Si および (b) p -GaAs/ n -Si ヘテロ接合界面における伝導帯端および価電子帯端接続の計算結果.

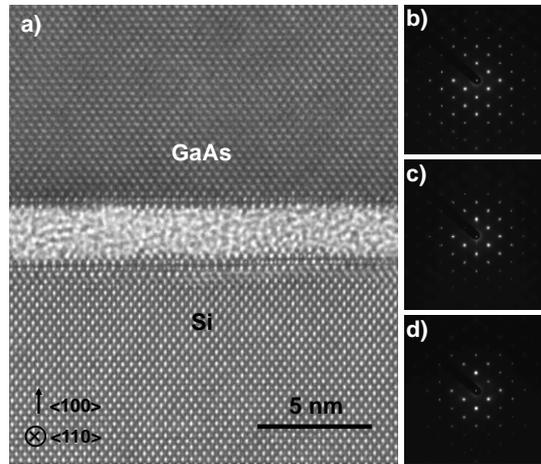


図3 直接融着した p^+ -GaAs/ p^+ -Si ヘテロ接合界面の (a) 断面 TEM 像および (b) 界面から 80 nm 上、(c) 界面、(d) 80 nm 下を中心とする半径 70 nm の範囲の電子線回折像. (b)、(c)、(d) はそれぞれ GaAs $\langle 110 \rangle$ 、GaAs $\langle 110 \rangle$ と Si $\langle 110 \rangle$ の混合、Si $\langle 110 \rangle$ に対応している.

に成長し、Si セルと融着した後に、GaAs 基板を選択的に溶解した. 図 4 に作製した二接合太陽電池の断面模式図および走査型電子顕微鏡 (SEM) 像を示す. AlGaAs、Si 太陽電池ともに n -on- p 構造であり、 p^+ -GaAs/ n^+ -Si 接合は、両単接合太陽電池を

電氣的に接続するとともに、ドープ極性を反転させるトンネル接合としての役割を果たしている。作製した二接合太陽電池の 1 sun (100 mW/cm²) 照射下での光 I - V 特性を図 4 (b) (挿入図) に示す。出力特性は、短絡電流密度 $J_{sc} = 27.9$ mA/cm²、開放電圧 $V_{oc} = 1.55$ V、フィルファクター $FF = 0.58$ 、発電効率 $\eta = 25.2\%$ であった。

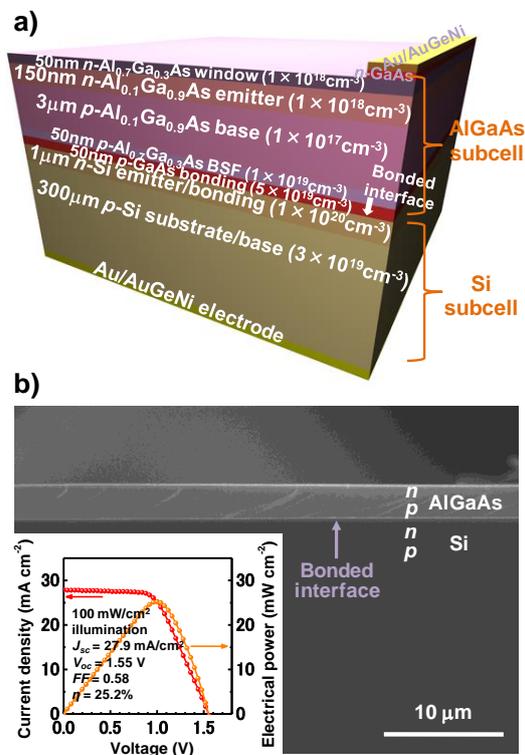


図4 作製したAlGaAs/Si二接合太陽電池の (a) 断面模式図、(b) 断面SEM像および(挿入図)光 I - V 特性。

これまでに III-V 族化合物半導体のみから成るウェハ融着を用いた多接合太陽電池の作製は二件の報告例 (K. Tanabe et al, *Appl. Phys. Lett.* 89, 102106, 2006; D. C. Law et al, *Proc. 34th IEEE PVSC*, 2237, 2009) があるが、Si 太陽電池を含むものとしては本研究が初めてである。既存の III-V 族化合物半導体のみによる多接合太陽電池に対し、Si 基板をベースとしているため、高効率であるのみならず、軽量、低コスト、低公害性、高い熱および機械的安定性、高熱伝導性といった数多くの利点を有する。また本実証実験は、ウェハ融着により、格子整合にとらわれずに自由に理想的なバンドギャップの半導体の組み合わせによる多接合太陽電池の作製が可能であることを示している。例えば、超高効率 InGaN/AlGaAs/Si/Ge 四接合太陽電池などへも拡張可能である。本研究で作製した二接合太陽電池は、広波長域高感度光検出器 (製品例 (一体型ではないもの) として、THORLABS Dual-Band Si/InGaAs Detector DSD2, <http://www.thorlabs.hk/thorProduct.cfm?partNumber=DSD2>) としても使用可能であり、また、AlGaAs 太陽電池を InGaAs 等の低バンドギ

ャップ半導体に置き換えることで、光集積回路における Si 導波路と直結したエバネッセントハイブリッド光検出器としての応用も可能である。このように、本研究で開発したウェハ融着による GaAs/Si 低抵抗接合の形成技術は、太陽電池応用に止まらず、今後様々な III-V/Si ハイブリッド光電子デバイスへの利用が期待される。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 2 件)

- ① K. Tanabe, K. Watanabe and Y. Arakawa, “Flexible thin-film InAs/GaAs quantum dot solar cells”, *Applied Physics Letters* 100 (19), 192102, 2012 (査読有)
- ② K. Tanabe, K. Watanabe and Y. Arakawa, “III-V/Si hybrid photonic devices by direct fusion bonding”, *Scientific Reports* 2, 349, 2012 (査読有)

[学会発表] (計 6 件)

- ① K. Tanabe and Y. Arakawa, “III-V/Si hybrid quantum dot lasers and multijunction solar cells by direct fusion bonding”, *41st International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS)*, Tu-A3-3, Montpellier, France, 2014 年 5 月 13 日 (Invited)
- ② K. Tanabe and Y. Arakawa, “Development of high-performance, versatile quantum dot solar cells”, *2014 KIST-IMCM International Symposium for Spectrum Conversion Technology and Applications*, IL01, Seoul, South Korea, 2014 年 5 月 8 日 (Invited)
- ③ K. Tanabe and Y. Arakawa, “Towards quantum dot solar cell industrialization: High efficiency cells and flexible thin film cells”, *Energy Materials Nanotechnology (EMN) Fall Meeting*, C25, Orlando, USA, 2013 年 12 月 10 日 (Invited)
- ④ K. Tanabe and Y. Arakawa, “III-V solar cells with quantum dots and wafer bonding”, *Global Photovoltaic Conference 2013/8th Aseanian Conference on Dye-Sensitized and Organic Solar Cells (DSC-OPV8)*, GAS-I-2, Busan, South Korea, 2013 年 11 月 25 日 (Invited)
- ⑤ K. Tanabe, K. Watanabe and Y. Arakawa, “Thin-film InAs/GaAs quantum dot solar cells layer-transferred onto Si substrates and flexible plastic films”, *38th IEEE Photovoltaic Specialists Conference (PVSC)*, 37, Austin, USA, 2012 年 6 月 4 日
- ⑥ 田辺克明, 渡邊克之, 荒川泰彦, “フレキシブル薄膜 InAs/GaAs 量子ドット太陽電池”, 第 59 回応用物理学関係連合講演会, 18a-C1-9, 東京, 2012 年 3 月 18 日

〔図書〕（計1件）

- ① 荒川泰彦, 野澤朋宏, 田辺克明, “量子ドット太陽電池研究の展開”, *応用物理*, 7月号, 585-588, 応用物理学会, 2012 (Invited)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

田辺 克明 (TANABE, Katsuaki)

東京大学・ナノ量子情報エレクトロニクス

研究機構・特任准教授

研究者番号：60548650