

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 9 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26630107

研究課題名(和文) 超高効率を有する薄膜多重量子井戸太陽電池の研究開発

研究課題名(英文) Development of the very high efficiency thin-film multiple quantum well 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) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：人工的にバンドギャップを制御した多重量子井戸(MQW)を挿入したGaAs単接合太陽電池に対して、結晶成長基板を分離することで薄膜化セルを形成する手法を確立した。さらに、MQWセルの裏面にグレーディングと高効率反射層からなる構造を形成し、光閉じ込め効果を増強することで物理的厚さの5倍以上の有効光学厚みが得られることが示された。さらに、MQW太陽電池に対して、エレクトロルミネッセンス評価を定量的に実施することによって、デバイス内部における擬フェルミ準位の状態を推定した。この結果から、光励起されたキャリアがMQW層において優先的に発光再結合し、GaAsバルク構造より発光効率が高くなることが示された。

研究成果の概要(英文)：In this research, we tried to fabricate the thin-film GaAs single junction solar cell with multiple quantum wells inserted in i-region of p-i-n structure. The fabrication process of the thin-film MQW solar cell was developed by transferring epitaxially grown PV active layer to the support substrate by selective wet etching with the InGaP etch-stop layer. Additional grating pattern and high-reflective mirror on the rear surface of thin-film MQW solar cell enhanced the light trapping effect, resulted in over 5 times larger effective optical path length than the physical thickness. Optical characterization of the thin-film MQW solar cell was also attempted to analyze the quasi-Fermi level splitting. Owing to the quantitative electroluminescence (EL) measurement, the internal radiative efficiency can be estimated to the thin-film MQW solar cell. This result indicated that the MQW increased a probability of radiative recombination inside the cell than the bulk GaAs cell.

研究分野：半導体工学

キーワード：半導体 III-V族化合物 太陽電池 量子井戸 定量光学評価 MOCVD エピタキシャル成長

### 1. 研究開始当初の背景

III-V 族化合物半導体を用いた太陽電池について、薄膜化単接合 GaAs セルの高効率性が注目されつつあり、さらに、薄膜化工程については、エピタキシャルリフトオフ法 (ELO) を用いた厚さ数  $\mu\text{m}$  の太陽電池層を成長基盤から剥離することで基板の再利用が可能であり、低コスト化へ向けた指針が示されつつある。一方で、多重量子井戸 (MQW) を含む単接合 GaAs 太陽電池には、バンドギャップ値に対する解放電圧が相対的に高い値を示すことから、GaAs バルク材料のみからなる系よりも高効率となる可能性が示唆されている。しかし、この MQW セルにおける解放電圧の優位性はその原因が明らかではなく、詳細な調査が必要である。

### 2. 研究の目的

上記の理由から、超高効率単接合セルの候補として、薄膜化 MQW 単接合セルの試作および、評価を実施し、高効率化の指針を得ることを目的とする。また、MQW セルにおいて解放電圧が相対的に高い値を示す物理的原因を解明することを目的とする。

### 3. 研究の方法

(1) InGaAs 井戸層および GaAsP 障壁層からなる MQW を GaAs p-i-n 構造の i 層中に導入した MQW 単接合セルは有機金属気相成長法を用いて GaAs 単結晶基板上にエピタキシャル成長することで形成する。この際、通常とは逆方向に層構造を形成し、支持層となる Si 基板上に反転して接着する。この状態から、GaAs エピタキシャル成長基板を除去するために、あらかじめ層構造中に InGaP からなる選択エッチング耐性層を導入することでアンモニア溶液中におけるエッチングによって GaAs 基板を溶解する。この結果、薄膜化 MQW セル層のみを Si 基板上に形成する。また、異なる薄膜化工程として、InGaP の代わりに AlAs からなる選択エッチングリリース層を導入することでフッ化水素酸溶液中において AlAs 層のみを溶解し、GaAs 基板と MQW セルを乖離させる ELO 法の工程を検討する。

(2) 太陽電池セルの解放電圧に対する定量評価の手法として、光学測定によるセル内部の疑フェルミ準位乖離を見積もる手法が知られている。これは、セル内部における発光再結合と非発光再結合の比率と解放電圧が相関を持つためであり、一般的に発光再結合確率が高いほど解放電圧が向上する。この手法を用いて、MQW を含む GaAs 単接合セルに適用することで、電流を注入した際の再結合発光 (エレクトロルミネッセンス、EL) および、光励起によってキャリアを注入した際の再結合発光 (フォトルミネッセンス、PL) をそれぞれ定量的に評価することでセル内部に生じる疑フェルミ準位の差を見積もる。この結果、セル内部での発光効率および材料が本

質的に有する内部電位の状態を推定することができる。

### 4. 研究成果

(1) 逆方向エピタキシャル成長した MQW セルの Si 基板への転写は、ベンゾジクロロペンおよびポリイミドからなる複合接着層によって安定に形成できることが明らかとなった。これは、太陽電池層の裏面には再表面が Au を主とする電極面を構成するのに対し、支持基板は平坦に研磨された Si 面である。これらについて、それぞれ適した接着層の素材が異なるため、最適な接着層の構造を得ることができた (図 1)。

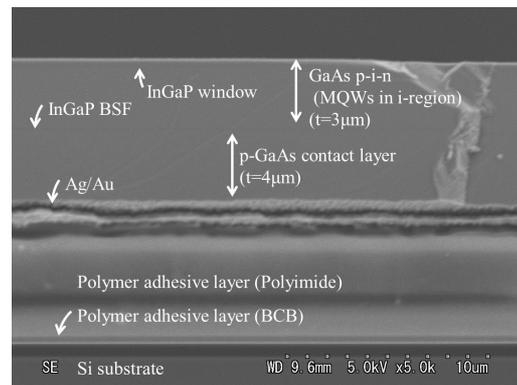


図 1 複合接着層を用いて Si 基板上に転写した MQW 太陽電池セルの断面電子顕微鏡像。

(2) 上記の複合接着層を用いた Si 支持基板への転写と同様の手法を用いて、ELO による GaAs 基板の剥離を試みた結果、基板の剥離するために必要な時間が非常に長時間を要することが明らかとなった。これは、選択エッチングリリース層の厚さが 100 nm 以下であり、この領域での化学エッチングが溶液中の反応律速ではなく、反応部位に対する材料の供給律速となることに起因している。また、この研究の過程において、GaAs を成長基板とするセルの ELO 工程において、材料の供給律速を改善するためには支持基板に柔軟性のある素材を用いて機械的に分離を進めつつ化学反応を促進させる手法が発見された。この報告を考慮すると、ELO 工程を大規模な面積に対して適用するためには Si のような剛性の高い材料ではなく、プラスチックフィルムのような柔軟性に富む基板に転写することが望ましいという結果が得られた。

(3) Si 基板上に転写した薄膜化 MQW セルについて、エピタキシャル層再表面にテクスチャ加工を施すことによって、セル裏面における光散乱を生じる構造を形成する製造工程を確立した (図 2)。この構造を利用することで、セルに入射した光は裏面に生じる散乱の効果によりセル内部で多重反射し、結果と

してセル内部での光閉じ込め効果が得られることが明らかとなった。この効果により、MQW で光吸収する確率を 2 倍程度向上させ、セルの短絡電流密度が  $2 \text{ mA/cm}^2$  増大する結果が得られた。MQW セルを薄膜化することで、セルと比べて非常に厚い GaAs 基板中に生じる自由キャリア吸収に起因するエネルギー損失を低減する特性がセルの性能を向上させる光閉じ込め効果に寄与していることが示された (図 3)。

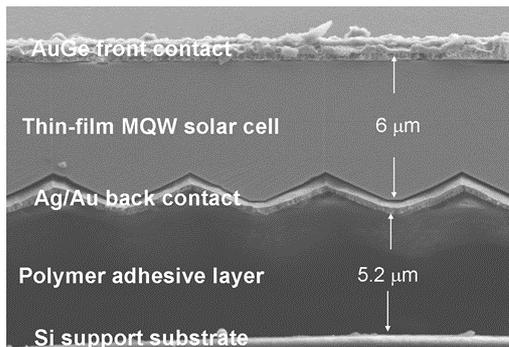


図 2 セル裏面にテクスチャを形成したことで光閉じ込め効果を生じるMQWセルの断面電子顕微鏡像。

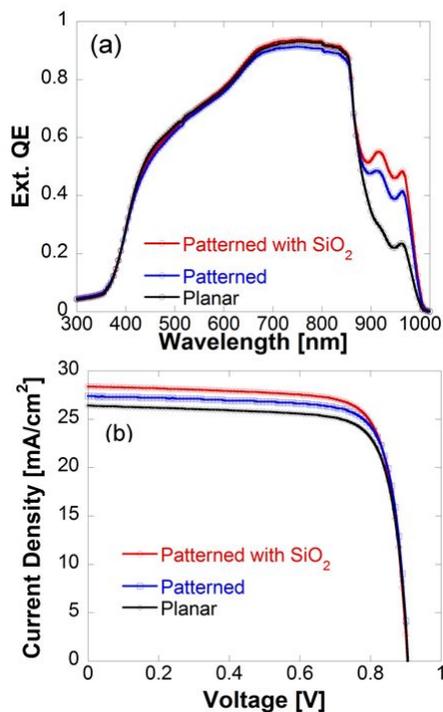


図 3 光閉じ込め効果によって向上したMQWセルの性能を示す外部量子効率スペクトル (a)および、光照射下での電流-電圧特性 (b)。

(4) 定量的光学評価として、注入電流密度が既知である EL 測定を行うことで、MQW セル内

部における発光効率を同定した。従来のバルク GaAs 太陽電池と比較すると、MQW 構造を i 層中に導入したことによって、注入したキャリアが効果的に量子井戸層に閉じ込められることで発光再結合の確率が向上することが示された (図 4)。この結果から、MQW セルにおいて解放電圧に優位性が見られる要因の一つとして、再結合発光が優先的に生じるためであるという理解が得られた。

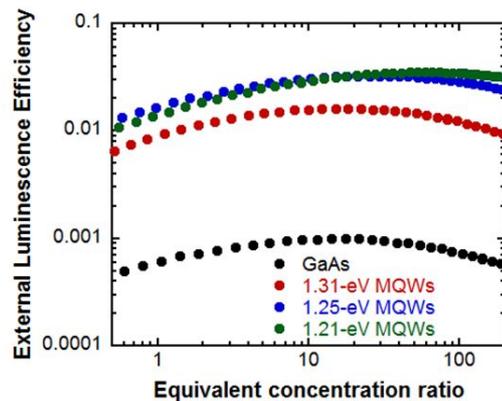


図 4 有効バンドギャップ値を変化させた10層のMQWを導入した太陽電池セルにおける外部発光効率の注入電流密度依存性。

また、最終的にセルの解放電圧を向上させる要因はセル内部における内部発光効率であり、キャリアの発光/非発光確率の比率で示される。この際、より発光比率が高いほど解放電圧の向上が見られる。従来の導電性 GaAs 基板に形成した MQW セルと比較すると、薄膜化 MQW セルでは、GaAs 基板で生じる非発光再結合の成分を低減できるため、本質的に発光効率を向上し、解放電圧の向上に寄与することが示された。

#### < 引用文献 >

- Christopher L. Stender, Jessica Adams, Victor Elarde, Todd Major, Haruki Miyamoto, Mark Osowski, Noren Pan, Rao Tatavarti, Francis Tuminello, Andree Wibowo, Chris Youtsey, Gautham Rangunathan, Proc. in Photovoltaic Specialist Conference (PVSC), 2015, 1-4
- Tomoyuki Inoue, Kentaroh Watanabe, Kasidit Toprasertpong, Hiromasa Fujii, Masakazu Sugiyama, Yoshiaki Nakano, Enhanced Light Trapping in Multiple

Quantum Wells by Thin-Film Structure and Backside Grooves with Dielectric Interface, IEEE. J. Photovoltaics, vol. 5, 2015, 697-703

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 3件)

Kentaroh Watanabe, Tomoyuki Inoue, Hassanet Sodabanlu, Masakazu Sugiyama, Yoshiaki Nakano, Thin-film solar cells with InGaAs/GaAsP multiple quantum wells and rear surface etched with light trapping micro-hole array, Jpn. J. Appl. Phys., 査読有, vol. 54, 2015, 08KA13-1-5  
DOI:10.7567/JJAP.54.08KA13

Tomoyuki Inoue, Kentaroh Watanabe, Kasidit Toprasertpong, Hiromasa Fujii, Masakazu Sugiyama, Yoshiaki Nakano, Enhanced Light Trapping in Multiple Quantum Wells by Thin-Film Structure and Backside Grooves with Dielectric Interface, IEEE. J. Photovoltaics, 査読有, vol. 5, 2015, 697-703  
DOI:10.1109/JPHOTOV.2015.2392941

B. Behaghel R. Tamaki, N. Vandamme, K. Watanabe, C. Dupuis, N. Bardou, H. Sodabanlu, A. Cattoni, Y. Okada, M. Sugiyama, S. Collin, and J.-F. Guillemoles, "Absorption enhancement through Fabry-Pérot resonant modes in a 430 nm thick InGaAs/GaAsP multiple quantum wells solar cell", Appl. Phys. Lett., 査読有, vol 106, 2015, 081107  
DOI: 10.1063/1.4913469

〔学会発表〕(計 4件)

Kentaroh Watanabe, Tomoyuki Inoue, Kasidit Toprasertpong, Amaury Delamarre, Hassanet Sodabanlu, Jean-François Guillemoles, Masakazu Sugiyama, Yoshiaki Nakano, Optical Analysis of the Photon Recycling Effect in InGaAs/GaAsP Multiple Quantum Well Solar Cell with Light Trapping Structure, 43rd IEEE Photovoltaics Specialists Conference, 2016年6月5-10日, Portland, OR, USA

Kentaroh Watanabe, Tomoyuki Inoue, Hassanet Sodabanlu, Masakazu Sugiyama, Yoshiaki Nakano, Thin-film solar cells with InGaAs/GaAsP multiple quantum wells and rear surface etched with light trapping micro-hole array, Jpn. J. Appl.

Phys., 査読有, vol. 54, 2015, 08KA13-1-5  
DOI:10.7567/JJAP.54.08KA13

Tomoyuki Inoue, Kasidit Toprasertpong, Amaury Delamarre, Kentaroh Watanabe, Myriam Paire, Laurent Lombez, Jean-François Guillemoles, Masakazu Sugiyama, Yoshiaki Nakano, Quasi-Fermi level splitting evaluation based on electroluminescence analysis in multiple quantum-well solar cells for investigating cell performance under concentrated light, SPIE Photonics West, 2016年2月13-18日, San Francisco, CA, USA

Kentaroh Watanabe, Tomoyuki Inoue, Masakazu Sugiyama, Yoshiaki Nakano, Self-Organized Texture of GaAs by Wet Etching for Light Trapping in MQWs Solar Cells, 31st European Photovoltaic Solar Energy Conference and Exhibition, 2015年9月30日-2015年10月4日, Hamburg, Germany

Amaury Delamarre, Laurent Lombez, Kentaroh Watanabe, Masakazu Sugiyama, Jean-François Guillemoles, Spatial Carrier Collection Efficiency Imaging by Luminescence, 25th International Photovoltaics Science and Engineering Conference, 2015年11月15-20日, Busan, Korea

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕  
出願状況(計 0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

取得状況(計 0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

〔その他〕  
ホームページ等

<http://www.ee.t.u-tokyo.ac.jp/~nakano/lab/index.html>

## 6 . 研究組織

(1)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： 3 0 5 2 3 8 1 5