

窒化物太陽電池の高効率化 Efficiency improvement of a nitride solar cell

澤木宣彦[†], 藤澤知樹[†] (愛知工業大学)
安 亨洙^{††} (韓国海洋大学)
N. Sawaki[†], T. Fujisawa[†], and H.S. Ahn^{††}

Abstract A single junction InGaN solar cell is investigated numerically. It was found that use of internal electric field is effective to overcome the short carrier life time and diffusion length. By the virtue of drift motion of photo-generated carriers induced by the internal built-in field, the collection efficiency in the p-type top layer is improved more than several ten times. As the result, more than one order of magnitude improvement was achieved in the conversion efficiency.

1. 緒言

再生可能エネルギーの中で電気エネルギーへの変換技術として近代文明の隆盛を支えたのは水力発電である。20 世紀後半、世界の電力需要は自然エネルギー採取可能な容量を遙かに超え、石油・石炭などの化石燃料に頼ることとなった。その資源枯渇が議論され初めてすでに半世紀以上になるが、現代では資源枯渇ではなく、二酸化炭素などの地球温暖化ガス放出による地球環境破壊が問題となってきた。太陽電池はシリコンを主体とするセルが実用に供されているが、発電コストが高止まりし、化石燃料や原子力等の発電方式を代替するにはさらなるセルの高効率化あるいは低コスト化が必須である。本研究では太陽光発電のための太陽電池の高性能化を目指し、新規材料である窒化物半導体の可能性を検討している。

本研究では、単一接合 p-InGaN/n-InGaN 太陽電池において、p 形トップ層のエネルギーギャップを徐々に変化させる傾斜組成構造を有する太陽電池の高効率化を計算機シミュレーションによって検討した。p 形トップ層の組成を徐々に変えることにより内部に電界が発生する。その電界による光励起電子の陽極部へのドリフトを促すことで、ダイオードのキャリアの収集効率を高め、よって発電効率を向上させようとするものである。簡単なシミュレーションで 100V/cm 程度の低い電界でも p-n 接合での光電流が 10 倍以上に増幅できることが示され、大幅な効率改善への貢献

が期待できることが示された。

InGaN p-n 接合太陽電池は、混晶を用いているためバンドギャップの調整が容易であることから大きな可能性が期待されてきたが、実デバイスでの効率は予想を遙かに下回る値しか得られていない[1]。その理由は高品質結晶を得ることが難しいことにある[2]。既報の例では、ダイオードの内部量子効率は十分に高いにもかかわらずバンドギャップが大きく太陽光スペクトルのうち活用できる光が青色から紫外線領域に限られている。効率を上げるためには In 組成を増加させバンドギャップを小さくする必要があるが、In 組成の高い InGaN の結晶品質が十分でないというジレンマがある。品質の悪い結晶では光励起キャリアの拡散長が短く、十分な収集効率を得ることが出来ない。この課題解決のため、超格子構造の採用[2]、タンデム構造の採用[3]などが試みられてきたが効率改善には至っていない。いずれの場合も結晶品質の低下が効率を阻害しているとされている。

粗悪な結晶品質に起因するデバイスの効率低下の問題は、50 年以上前にバイポーラトランジスタ開発時に議論された。ドリフトトランジスタではベース領域の不純物ドーピング濃度を徐々に変化させ、フェルミ準位を傾斜させることで内部電界を発生させ、エミッタからの注入キャリアのコレクタ接合への拡散による走行を加速させ用とするものであった[4]。少数キャリアを使う光デバイスにおいても類似の効果によってデバイスの効率向上が期待できる。実際、p-n 接合による光起電力効果が提案された草創期に Wolf がこの原理を提案している[5]。しかし、その後長い

[†] 愛知工業大学 工学部 電気工学科 (豊田市)

^{††} 韓国海洋大学 工科大学 (釜山市)

間、この実証実験を行った研究者はなかった。近年になって実験が行われたが、変換効率の大幅な上昇を確認することは出来なかった[6]。彼らは Si を使ったため、エネルギーギャップの大きな変化を作ることが出来なかった。やや大きなバンドギャップを持つ材料をヘテロ接合として付与したことも効率の低下の原因となっている。

化合物半導体を用いる場合には、シリコンと違って、バンドギャップの変化とキャリアの高効率注入のためのヘテロ構造の作製が容易である。従って、バンドギャップを徐々に変える手法で内部電界を得ることが容易であると期待できる。この考えに立ち、我々は p-InGaN/n-InGaN 単一接合太陽電池を提案する。p-InGaN トップ層の In 組成を調整することで内部電界を得ることとしている。本研究は、この手法による太陽電池効率向上の可能性を数値シミュレーションによって明らかにすることを内容としている。

2. シミュレーションの方法とモデル

2.1 モデルとパラメータ

p-n 接合のモデルを図 1 に示す。最も汎用の p-n 接合太陽電池を想定し、n 形基板上に p 形層を設けることにより p-InGaN/n-InGaN 接合を作製するものとする。この場合、太陽電池の特性は主として p 形トップ層内に励起される少数キャリアである電子の振る舞いで決定される。間接遷移形半導体である Si の場合は光吸収係数が小さいため n 形下部層における正孔の振る舞いが効率に関与することはあるが、直接遷移形半導体である化合物半導体の場合は吸収係数が大きく、入射光のほとんどは表面近傍で吸収され内部まで進入しないからである。InGaN 太陽電池では、その結晶品質が必ずしも十分でないためキャリアの拡散長が短く、トップ層で励起された電子が接合部分まで到達する前に再結合過程により死滅することが効率向上の障害になっている。本節ではこの事情を改善するためのモデルをたて

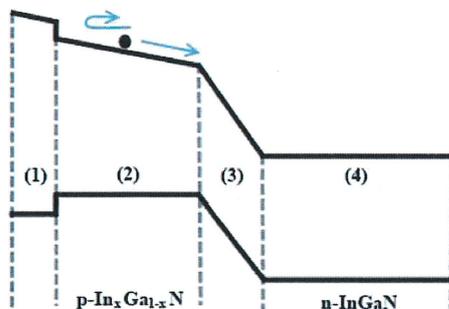


図 1 モデルデバイスの構造

る。InGaN 混晶の材料パラメータは現状は確立されていない部分が多いので表 1 に示す文献値を採用することとした[7]。パラメータの任意性によりここで得られる結果には若干の蓋然性が残るが、内部電界を導入することによる効果という点に着目すれば信頼性ある結果が得られると予想される。InGa_{1-x}N 混晶の光吸収係数は下式で近似する[7]。

$$\alpha(\mu\text{m}^{-1}) = 7.91(\varepsilon - \varepsilon_g)^4 - 14.9(\varepsilon - \varepsilon_g)^3 + 5.32(\varepsilon - \varepsilon_g)^2 + 9.61(\varepsilon - \varepsilon_g) + 1.98$$

ここに、 ε は入射フォトンエネルギーで ε_g は混晶のバンドギャップエネルギーである。後者は下式で与えられものとする。

$$\varepsilon_g(\text{eV}) = 0.7x + 3.40(1-x) + 2.0x(1-x)$$

ここで、InN と GaN の室温におけるバンドギャップを、それぞれ、0.7eV と 3.40eV としている。

吸収係数が大きく最表面でのキャリアの振るまいが性能を決定することから、トップ層でのキャリア拡散長と表面再結合速度の値が太陽電池としての効率を左右すると予想される。InGaN 表面における表面再結合速度は測定例がないため、本シミュレーションでは、ワイドギャップ層を付加しない場合には、電子、正孔ともに 10^6cm/s を仮定した。一方、図 1 に示すように表面再結合の影響を避けるために最表面にワイドギャップキャップ層を設ける場合には表面再結合が起こらない(速度がゼロ)であると仮定した。

モデルデバイスの各種パラメータの値は表 1 に示した。シリコン基板上に In 組成 $x=0.55$ の n 形 InGaN を下部層とし、その上に傾斜組成 p 形 InGaN を設ける。組成 $x=0.55$ は Shockley-Queisser のモデルによる単一 p-n 接合による太陽光セルで最も大きな効率が得られるバンドギャップの値を想定したものである。p 形トップ層の膜厚としては 1 ミクロンを基準とした。

表 1. シミュレーションに用いる材料パラメータ

	p-InGaN	n-InGaN
Thickness(μm)	1	2
Doping density (cm^{-3})	$5 \cdot 10^{17}$	$5 \cdot 10^{18}$
Minority carrier mobility (cm^2/Vs)	300	50
SRH life time (s)	$1 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-5}$
Recombination coefficient (cm^3/s)	$7.5 \cdot 10^{-10}$	$7.5 \cdot 10^{-10}$
Surface recombination velocity (cm/s)	$1 \cdot 10^6$	$1 \cdot 10^6$

最初に、太陽光がモデルデバイスに入射したとき、進入すべき光強度の分布を計算した結果を図2に示す。ここでは、入射光の波長依存性を明らかにするため複数の波長に対する結果を示したが、光強度はp形トップ層内に限られ、n形下部層では無視できるほど小さいことが見て取れる。このことは、InGaN太陽電池の高効率化にはp形トップ層の設計が重要であることを示している。

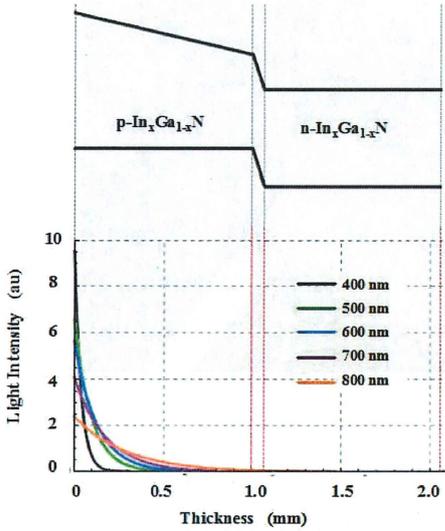


図2 デバイス内の光強度分布

2.2 計算の方法

光励起キャリアの伝導は次の方程式で表される[4]。

$$D_n d^2 n / dx^2 + \mu_n E dn / dx + \alpha P (1-R) \exp[-\alpha x] - (n-n_0) / \tau_n = 0,$$

ここに、 n_0 は熱平衡下の電子密度、 D_n 、 μ_n 、 τ_n はそれぞれ電子の拡散定数、移動度、寿命である。

境界条件として、

$$\begin{aligned} D_n \frac{dn}{dx} &= S_n(n-n_0), & \text{at } x=0 \text{ (surface),} \\ n-n_0 &= 0, & \text{at } x=x_j \text{ (junction edge),} \end{aligned}$$

を仮定する。太陽光強度スペクトル P は ASTM データベースから AM1.5 を採用した。また、簡単のため表面での反射係数 R はゼロとした。

光電流は、 $J_n(x) = q \mu_n n E + q D_n dn/dx$ で与えられる。数値計算は Mathematica を使った。

3. 計算結果と討論

3.1 ワイドギャップ窓層の働き

図3に表面にワイドギャップ層を設けた場合の光励起キャリアの濃度分布を示す。波長によって若干異なるが、キャリアはそのほとんどがp形トップ層内に分布し、下部のn形層では3桁ほど小さいことが分かる。類似の計算を表面にワイドギャップ層を設けない場合にも行ったところ、キャリア密度は最表面側で急激に減少し、与えられた表面再結合速度では最大キャリア密度が一桁減少することが分かった。この結果、最表面に窓層と呼ばれているワイドギャップ層を設けることが化合物半導体太陽電池でも極めて有効であると結論できる。

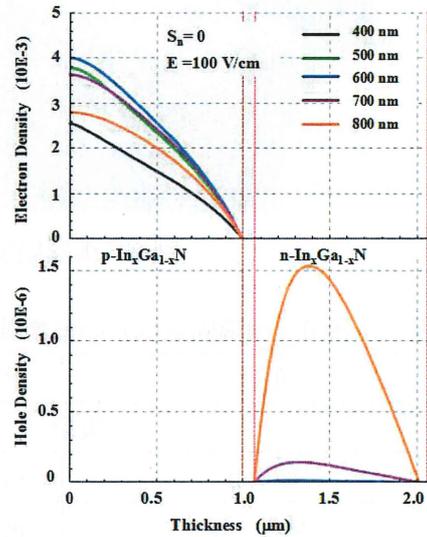


図3 デバイス内の光励起キャリア分布

3.2 光電流の内部電界効果

光電流は接合面でのキャリア分布の傾き(微分)で与えられることから、最表面近くで生成されたキャリアを接合面に引き寄せることが効果的で、内部電界の効果を検証した。In組成としてはn形層との境界で $x=0.55$ とし、1ミクロン離れた最表面では $x=0.56$ とした。この差異はエネルギーギャップの変化 25meV を生じさせる。バンドオフセットの比として 43% を仮定すると、伝導帯に 10meV のエネルギー差が生じ、結果として 100V/cm の内部電界が得られる。In組成の変化を 0.55 から 0.45 に変化させた場合には内部電界は 1000V/cm にも達することになり、電子伝導に大きな変化が期待できる。

前項で記した式を使って、電界による光電流の変化を計算した結果を図4に示した。太陽光強度は AM1.5 としている。電界強度としては 100V/cm までの低電界を想定しているが、この範囲でも表面窓層を設けると電界ゼロでも光電流は 2.2 倍に、電界 100V/cm では 8 倍以上に増加すること

が見て取れる。InGaN では光によるキャリア励起が最表面近傍に限定される上にキャリア寿命が短いために、接合に到達できるキャリアの割合が激減し、このことが光電流の減少に繋がっていることが明らかになった。

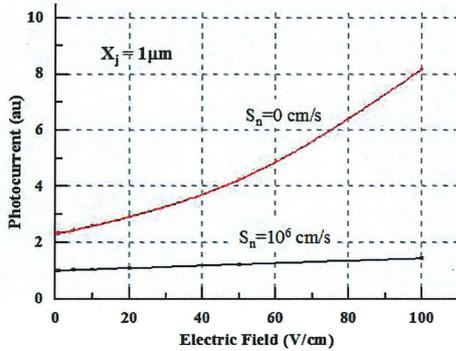


図 4 光電流への内部電界効果

3.3 p 形トップ層の厚さ依存性

前項で p 形トップ層におけるキャリアの振るまい制御がセルの効率を左右することが分かったことから、本項ではその最適厚さの設計基準を検討した。

図 5 に p 形トップ層の厚さの関数として光電流の変化を電界を変えて計算した結果を示した。議論を容易にするため入射光の波長が 500nm の場合を示している。電界が小さいとき、厚さの増加につれて光電流は増加し、最大値を経てやがて減少する。最初の増加は p 形層で十分なキャリア生成が行われるためには一定以上の厚さが必要であることを示しており、後半の減少は厚さが厚くなるとキャリアが接合に到達できないことを反映している。①電界を印加すると前半の増加がさらに強調され、後半の減少がなくなること、②高電界では光電流はある程度の電界があると電界によらない一定値になることが分かる。この飽和現象は、p 形トップ層で励起された全てのキャリアが電界により加速され接合面に到達し、光電流として取り出されたことを意味している。図で飽和点は 0.5 ミクロン程度であるが、これはキャリア拡散長の値 1.43 ミクロンの約 1/3 である。異なる波長で類似の計算を行った結果、p 形層の厚さをキャリア拡散長の 1/3 程度にすれば最大の効率を得られることが分かった。図 5 で示されるように、1000V/cm の内部電界で光電流は電界ゼロの場合の 60 倍以上になることが分かり、電界効果によって短いキャリア寿命による障害を取り除くことが可能であること結論できる。

4. 結言

p-InGaN/n-InGaN 単一接合太陽電池の光電流を数値シミュレーションにより検討した。直接遷移形半導体に特有の

短い光吸収係数と InGaN の短い寿命をカバーするために、

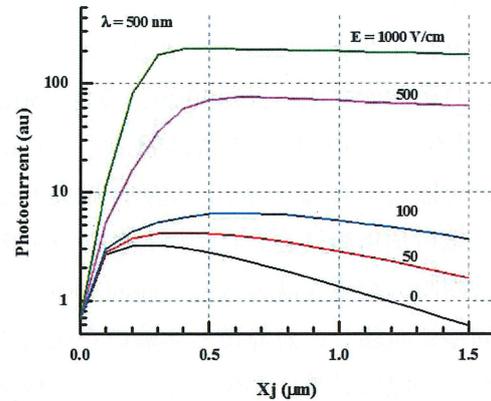


図 5 異なる p 形層厚さに対する光電流

傾斜組成層を導入することで内部電界を誘起させ持つてキャリアのドリフトを促し、光電流の増加が得られることを明らかにした。

p 形層の In 組成を僅かに 10%変化させるだけで内部電界として 1000V/cm が得られ、光電流は 60 倍以上にも達することが明らかになった。

この研究は、名古屋大学天野浩氏、ミュンヘン工科大学 Peter Vogl 氏、テキサス工科大学 H.X.Jiang 氏ならびに J.G.Lin 氏との討論によって想起されたものでここに記して感謝します。本研究は文部科学省私立大学戦略的研究基盤形成支援事業(S1001033)および科学研究費補助金(24656019)の支援を受けて行われた。

参考文献

- [1] Pantha, B.N., Lin, J.Y., and Jiang, H.X., Proc. SPIE 7608, 76081I-1-11 (2010).
- [2] Kuwahara, Y., Fujii, T., Sugiyama, T., Iida, D., Isobe, Y., Fujiyama, Y., Morita, Y., Iwaya, M., Takeuchi, T., Kamiyama, S., Akasaki, I., and Amano, H., Appl. Phys. Express 4, 021001 (3pp) (2011).
- [3] Kusakabe, K., Ishitani, Y., and Yoshikawa, A., Proc. APWS, Toba, 219-220 (2011)
- [4] Moll, J.L., and Ross, I.M., Proc. IRE 44, 72-78 (1956).
- [5] Wolf, M., Proc. IRE, 48, 1246-1263 (1960).
- [6] Fujioka, H., Oshima, M., Hu, C., Sumiya, M., Matsuki, N., and Koinuma, H., J. Non-Cryst. Solids 227/230, 287-1290 (1998).
- [7] Hsu, H., and Walukiewicz, W., J. Appl. Phys. 104, 024507(7pp) (2008).