

次世代タンデム太陽電池

GaInNAsSb で理想構造を実現 格子整合系 4 接合タンデム太陽電池

単一の半導体太陽電池の変換効率としては、薄膜 GaAs セルの 28.8%、Si 単結晶セルの 25.0%が報告されている^[1]。しかしながら、幅広いエネルギー分布を持つ太陽光をエネルギー変換する場合には熱損失と透過損失のトレードオフの関係により、理論的な最大変換効率は 30%程度に制限されてしまう。したがって、大幅な高効率化を実現するためには複数のエネルギー帯に分離して、熱損失と透過損失を最小化させつつエネルギー変換する工夫が必要となる。

太陽電池の高効率化のための最も成功している有効な手法として、図 1 に示すようにバンドギャップの異なる太陽電池を積層させた多接合型太陽電池（タンデム太陽電池）、および光学レンズなどの集光系によって得られる高密度の太陽エネルギーを利用して発電する集光型太陽電池が挙げられる。タンデム太陽電池は光の入射側からワイドギャップ→ナローギャップとなるように複数の太陽電池を積層することにより、上のサブセルで吸収されない透過光を下部のセルで吸収することができる。また、サブセル間は直列に接続されているため、タンデム太陽電池全体の電流は各サブセルから取り出される電流の内の最小値に律速され、電圧は各サブセルの電圧の和となる。地上用集光型太陽電池生産の主流である GaInP/GaInAs/Ge 格子整合系 3 接合タンデムセルでは非集光で 32%、集光下では 40%の変換効率が達成されている。この構造においては、太陽光スペクトルとの整合が不十分であり、図 2(a)に示すように、トップセル、およ

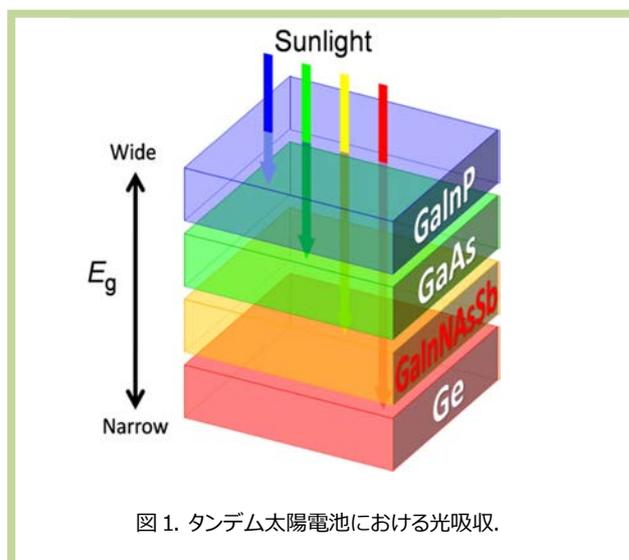


図 1. タンデム太陽電池における光吸収。

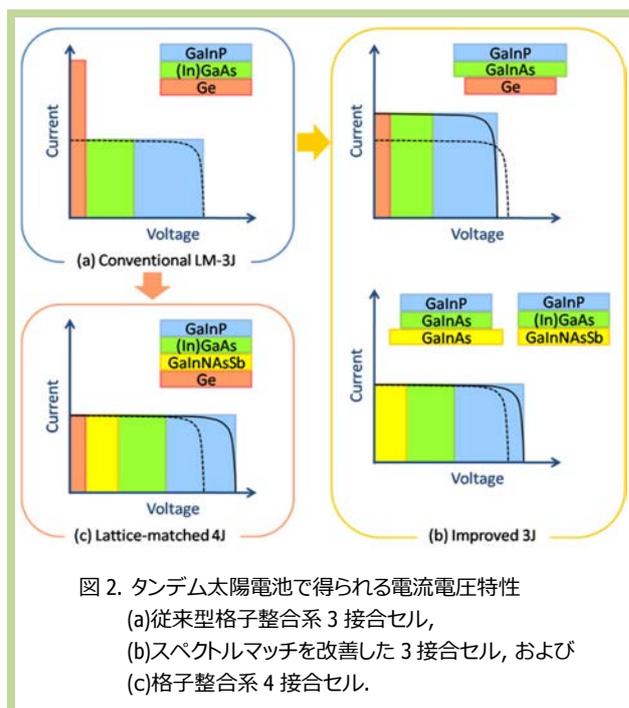


図 2. タンデム太陽電池で得られる電流電圧特性
(a)従来型格子整合系 3 接合セル、
(b)スペクトルマッチを改善した 3 接合セル、および
(c)格子整合系 4 接合セル。

びミドルセルでの電流生成量と比べて、ボトムセルである Ge 層において電流が過剰に生成されており、その過剰分の電流は使用されず損失となっている。このスペクトルのミスマッチを改善するため、これまでに様々な構造デザインが提案されてきた。近年では、格子不整合系の製膜技術の進展に伴い図 2(b)に示すような 3 接合セルが高品質に作製されており、特に図 2(b)下の構成において、非集光で 37.9%、集光下では 44.4%が報告されている。3 接合タンデム構造で高効率を実現されている一方、さらなる効率の向上のためには接合数の増加が必須となる。

多接合化へのアプローチとして、我々は第 3 セル (黄色の層) に GaInNAs(Sb)を用いた格子整合系 4 接合タンデム太陽電池の開発を進めている (図 2(c))。この構造では、従来型の 3 接合構造において過剰となっている Ge セルでの電流生成を 1.0eV の第 3 セルに分担させることによってスペクトルマッチを向上させ、電圧を増加させることが可能となる。GaInNAs は、母材料の GaAs に N 原子を添加することで格子定数を縮小しながらバンドギャップを減少させる GaNAs と、In 添加により格子定数を拡大させつつバンドギャップを減少させる GaInAs との化合物である。この GaInNAs を用いることで、図 3 に青で示す広い領域をカバーすることができる。この領域は、従来の III-V 化合物半導体で用いられる Al, Ga, In, P, As, Sb の組み合わせでは実現することは不可能であり、GaNAs 混晶の発見による寄与が大きい。さらに、In と N の添加量を適切に制御することにより Ge と格子整合させつつ 1.0eV のバンドギャップを得ることができる。

GaInNAs の製膜方法として、我々は分子線エピタキシー (MBE) 法を採用し高品質化の研究を進めている。窒素 (N_2) は化学的に安定な物質であるため、GaAs や GaInAs 材料にパーセントオーダーで N 原子を添加するためには活性な窒素源が必要となる。一般に、MBE 法では窒素ガスを高エネルギーのプラズマ状態にして結晶成長表面に供給している。結晶成長表面で単独の N 原子同士が凝集しやすいため、結

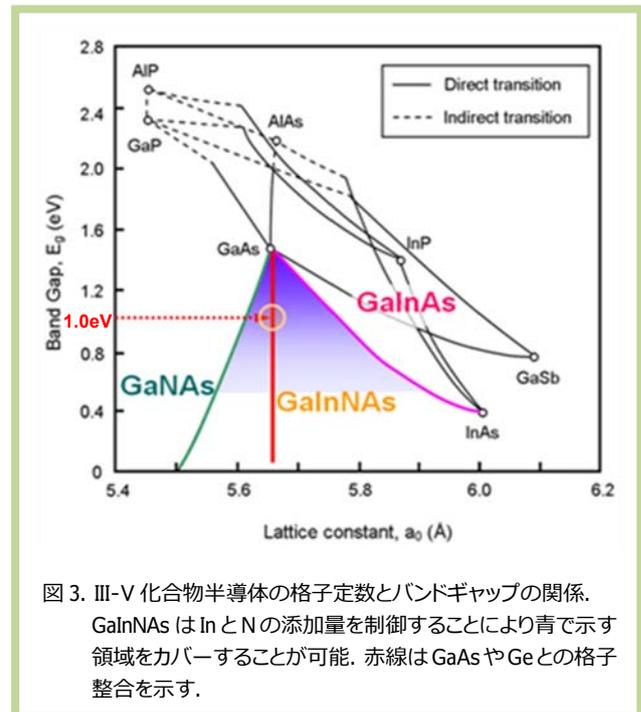


図 3. III-V 化合物半導体の格子定数とバンドギャップの関係。GaInNAs は In と N の添加量を制御することにより青で示す領域をカバーすることが可能。赤線は GaAs や Ge との格子整合を示す。

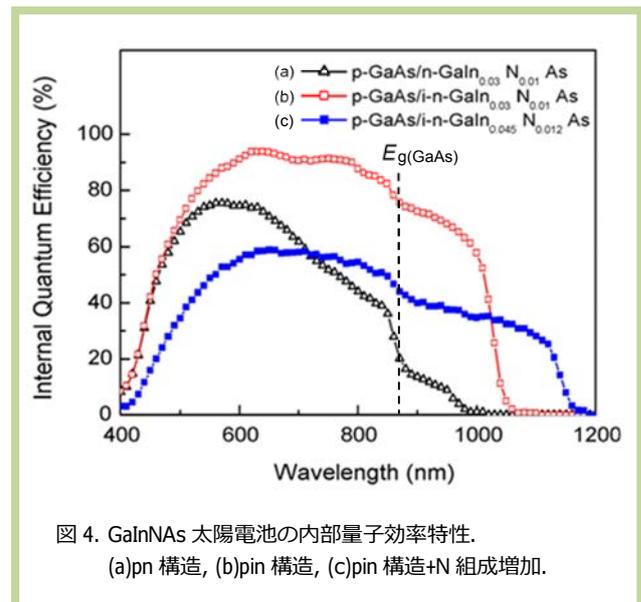


図 4. GaInNAs 太陽電池の内部量子効率特性。(a)pn 構造, (b)pin 構造, (c)pin 構造+N 組成増加。

晶中に添加される際に空間的に不均一な N 原子分布が生成されることが多い。このように N 原子が結晶中に不均一に取り込まれることによって、結晶欠陥や、伝導帯のポテンシャル揺らぎが生じ、GaInNAs 結晶の電気的特性や、光学的特性が劣化してしまう。したがって、太陽電池等へのデバイス応用のためには、N 原子の結晶中への導入を制御し、均一化させることが重要となる。

図 4 には GaInNAs 太陽電池の分光感度特性を示

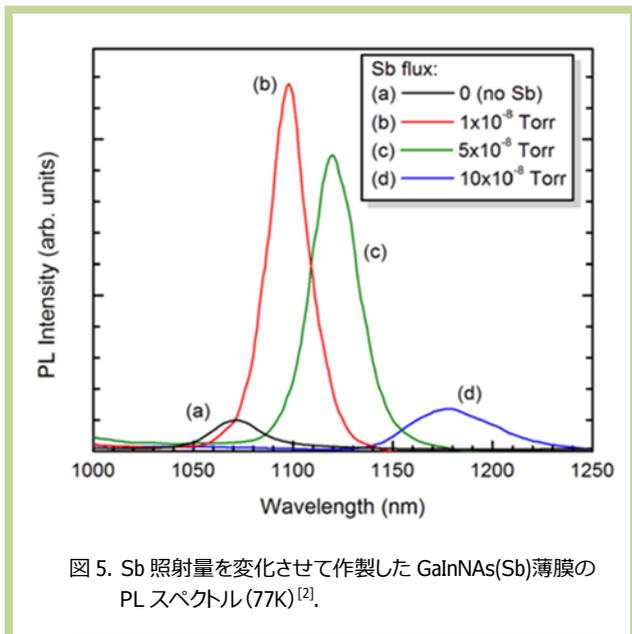


図 5. Sb 照射量を変化させて作製した GaInNAs(Sb) 薄膜の PL スペクトル (77K)^[2].

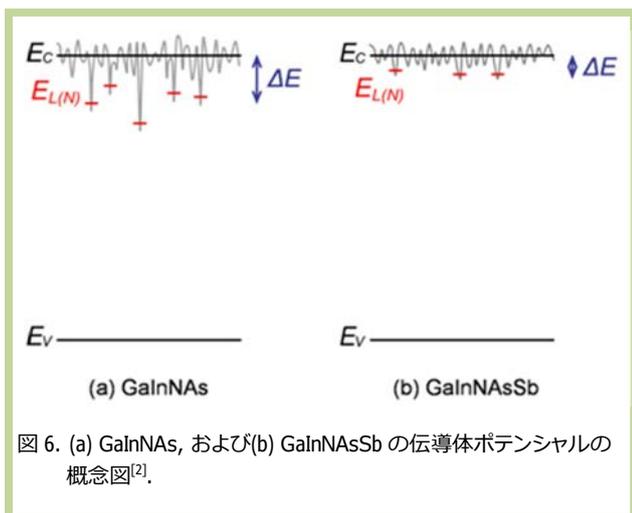


図 6. (a) GaInNAs, および (b) GaInNAsSb の伝導体ポテンシャルの概念図^[2].

す。ここで、870nm 以上の長波長域のシグナルが GaInNAs 層によるキャリア収成分である。GaInNAs では、結晶中の N の不均一分布や結晶欠陥等に起因して少数キャリア拡散長が非常に短くなってしまったため、(a)のような pn 接合構造では十分なキャリア収集が得られない。したがって、低キャリア濃度のアンドープ GaInNAs 層を導入することによって実効的な空乏層幅を拡大することが有効である。(b)pin 構造のように空乏層を拡大し、内蔵電界によってドリフト成分を増加させることで、量子効率を著しく増大させることが可能である。一方、1eV 帯に向けて GaInNAs の N 組成を増加させると、(c)のように量子効率の低下が起こってしまう。これは、N 組成の増加に伴い、N に起因して導入される結晶欠陥や、伝導体ポテンシャル揺らぎの影響が増加したためであると考えられる。

N 原子の均一な取り込みを実現するために、我々はアンチモン (Sb) をサーファクタントとして導入している。Sb 照射量を最適化することによって、図 5 に示すように、フォトルミネッセンス強度、および半値幅の改善が得られることが分かった^[2]。さらに詳細に調べることにより、Sb 照射が N 原子導入によって生じる伝導体のポテンシャル揺らぎを低減する効果があることを明らかにした (図 6)^[2]。これは、Sb のサーファクタント効果によってより均一な N 原子分布が実現されたためであると考えられる。

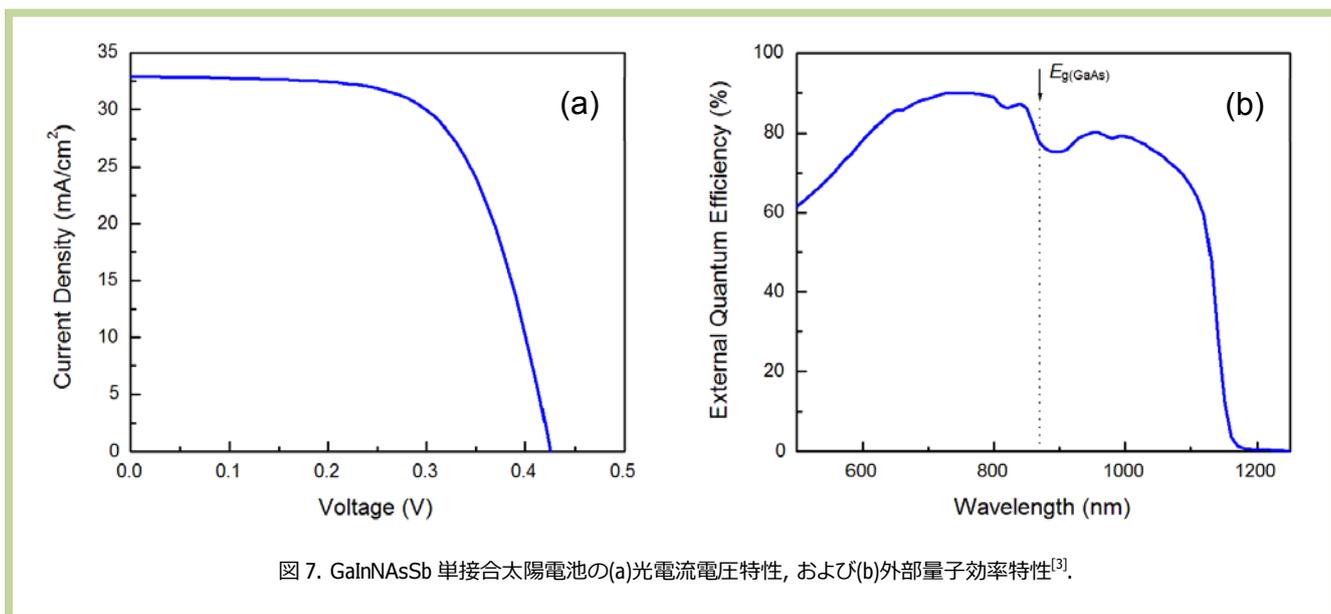


図 7. GaInNAsSb 単接合太陽電池の (a) 光電流電圧特性、および (b) 外部量子効率特性^[3].

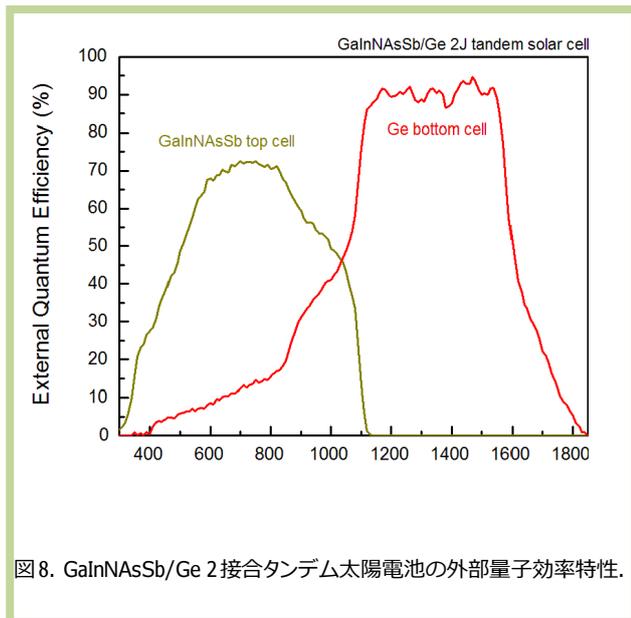


図8. GaInNAsSb/Ge 2 接合タンデム太陽電池の外部量子効率特性.

この結晶成長技術を用いて作製したバンドギャップ 1.08eV の GaInNAsSb 単接合太陽電池では変換効率 9.1%が得られ、また、GaInNAsSb の吸収波長領域における外部量子効率としては 80%を達成した(図 6)^[3]。この GaInNAsSb セルを 4 接合タンデム太陽電池に適用した場合を想定すると、GaInNAsSb サブセルから得られる短絡電流密度の値としては、 $10\text{mA}/\text{cm}^2$ が見積もられる。

さらに、我々は Ge サブセル上に GaInNAsSb サブセ

ルを配置した 2 接合タンデム太陽電池の開発も進めている。現状では、GaInNAsSb サブセルの量子効率は 50~70%程度が得られており、タンデム太陽電池として動作していることを確認している(図 8)。

前述のように、タンデム太陽電池全体に流れる電流はそれぞれのサブセル間で最も小さい値に律速される。4 接合構造では、AM-1.5 の太陽光スペクトルを想定すると、 $12\sim 14\text{mA}/\text{cm}^2$ 程度の電流が必要となる。したがって、今後の課題として Ge サブセル上の GaInNAsSb サブセルの品質改善だけでなく、バンド端の長波長化へのアプローチ、並びにデバイス構造の最適化が重要となる。

参考文献

- [1] M.A. Green, K. Emery, Y. Hishikawa, W. Warta, and E.D. Dunlop, "Solar cell efficiency table (version 41)," Prog. Photovolt.: Res. Appl., vol. 21, 1-11 (2013).
- [2] N. Miyashita, N. Ahsan, and Y. Okada, "Effect of antimony on uniform incorporation of nitrogen atoms in GaInNAs films for solar cell application," Sol. Energ. Mat. Sol. Cells, vol. 111, 127-132 (2013).
- [3] N. Miyashita, N. Ahsan, M.M. Islam, and Y. Okada, "Device Structure Engineering of GaInNAsSb/GaAs Hetero-junction Solar Cells," Proc. IEEE 39th Photovoltaic Specialists Conference (PVSC), Tampa, June 2013.