

超高速HVPE成長による InGaP/GaAs 2接合セルの開発

¹産業技術総合研究所 太陽光発電研究センター
先進多接合デバイスチーム

²太陽日酸株式会社

大島 隆治¹、庄司 靖¹、牧田 紀久夫¹、
生方 映徳²、菅谷武芳¹

III-V族太陽電池

- 😊 高い変換効率^[1]
 - 単接合セル $\eta = 29.1\%$ (1sun)
 - 6接合セル $\eta = 39.2\%$ (1sun)
- 😞 高い製造コスト → 応用が限定的

現状

宇宙、集光型

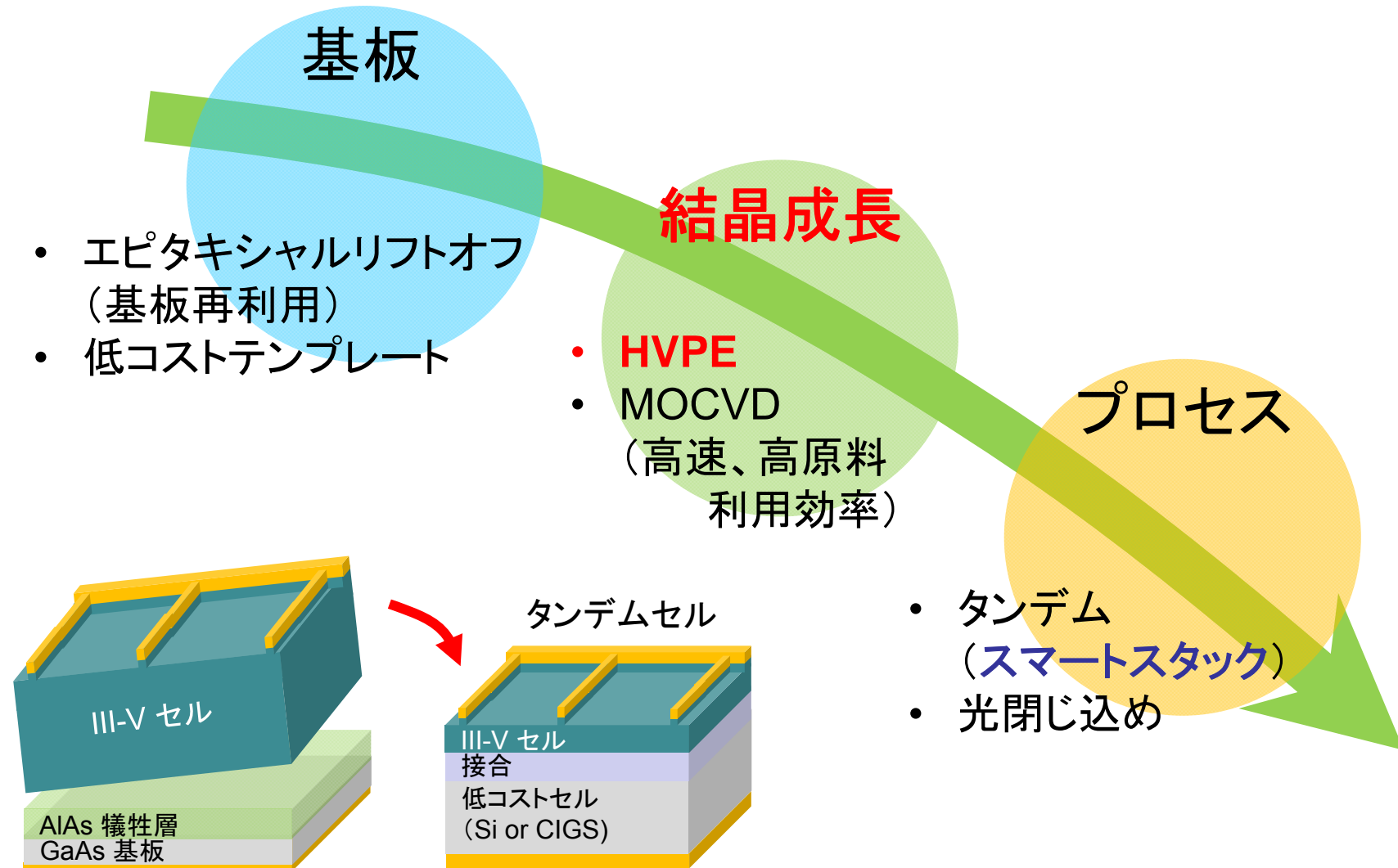
製造の低コスト化、生産能力の向上が課題

将来

無人航空機、車載PV など

[1] M. A. Green *et al.*, Prog. Photovolt.: Res. Appl., 27, 3 (2019).

III-V族太陽電池の低コスト化



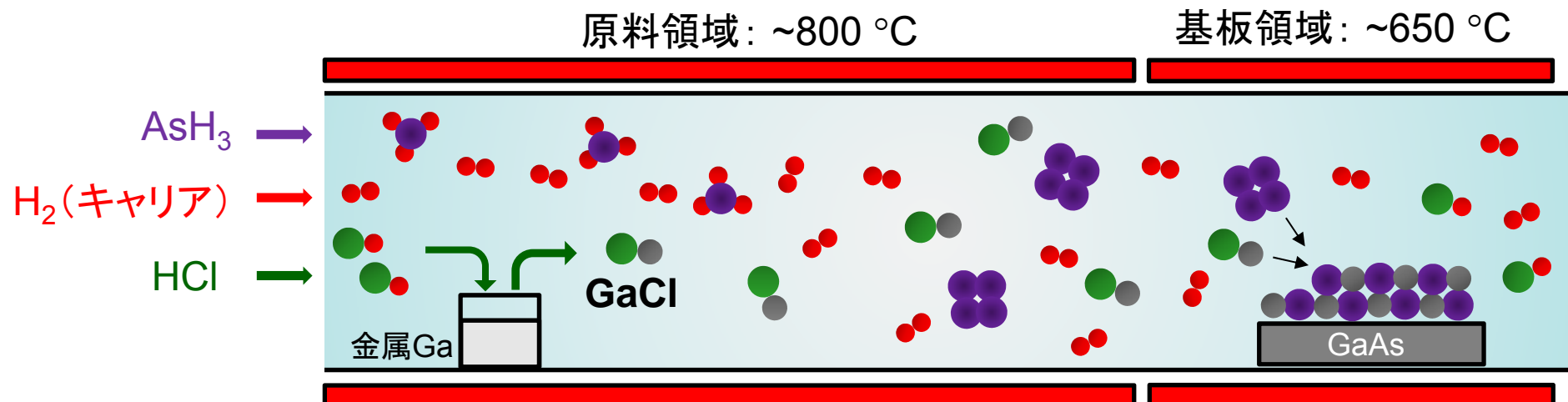
ハイドライド気相成長 (HVPE) 法

	MOVPE	HVPE
III族原料	有機金属	金属(塩化物)
V族原料	水素化物	水素化物
V/III 比	△ 20	◎ 2
原料利用効率	○ ~20%	◎ ~60%
成長速度	○ ~5 μm/h	◎ ~100 μm/h
界面制御	◎	?

従来 (MOVPE) と比較して;

原料コスト ~1/10

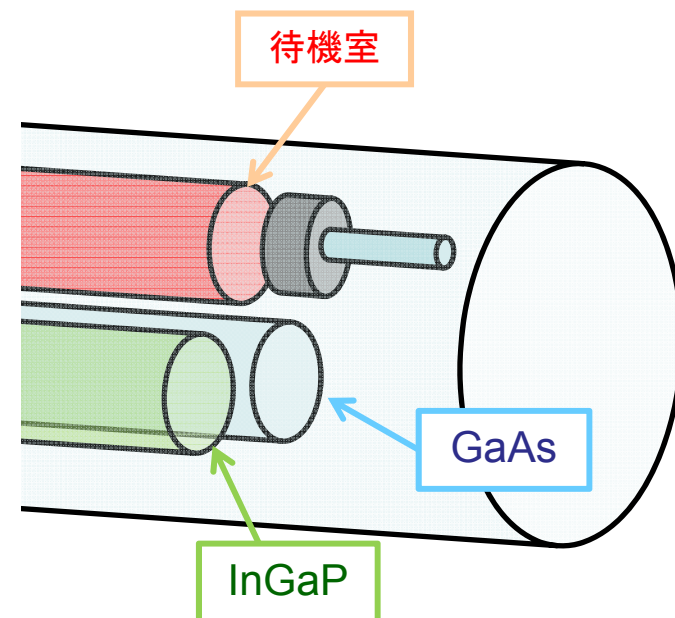
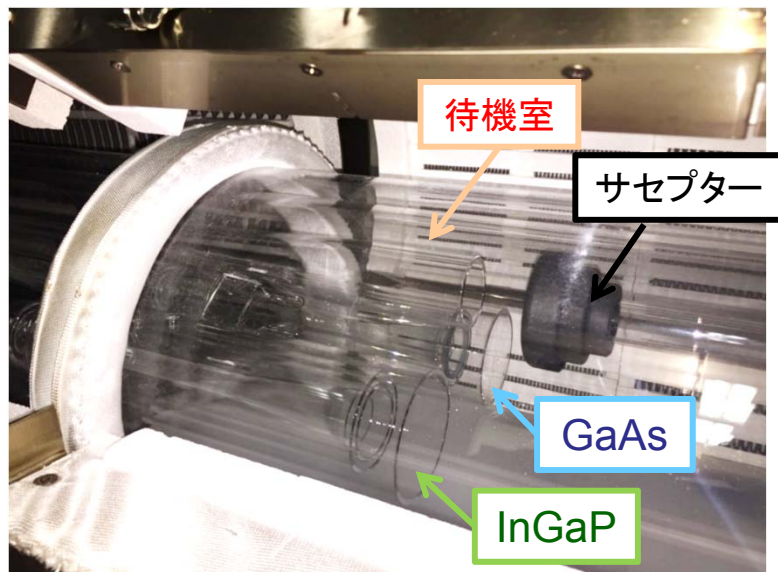
成長時間 ~1/20 (高スループット性)



HVPE装置開発

- 開発項目 (これまで) 1. ヘテロ界面を含んだ複雑なデバイスに対応
→ 3室構造のHVPE装置

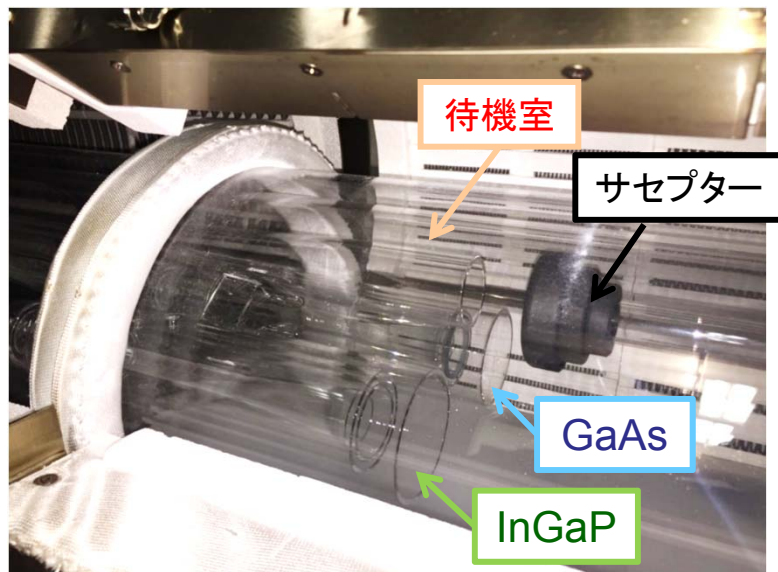
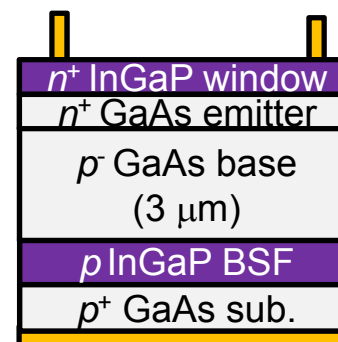
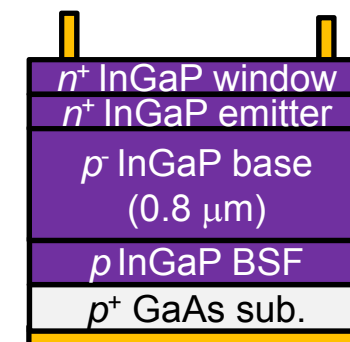
大陽日酸 H260



HVPE装置開発

- 開発項目 (これまで)
1. ヘテロ界面を含んだ複雑なデバイスに対応
 - 3室構造のHVPE装置
 - GaAsセル(22.1%)^[1], InGaPセル(12.1%)^[2]
- (本開発)
2. GaAsの超高速成長
 3. InGaP/GaAs 2接合セル

大陽日酸 H260


 GaAs = 8 $\mu\text{m}/\text{h}$

 InGaP = 24 $\mu\text{m}/\text{h}$


[1] R. Oshima *et al.*, IEEE J. Photovolt. 9, 154 (2019).

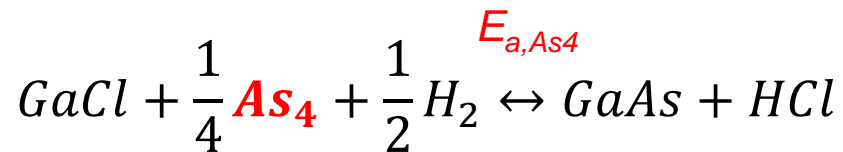
[2] Y. Shoji *et al.*, Appl. Phys. Exp. 12, 052004 (2019).

HVPEにおけるGaAs成長

□ V族原料の供給条件によって異なるGaAs反応過程

(AsH₃の分解温度~400°C)

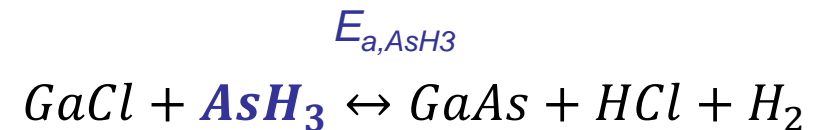
従来成長^[1]



- ✓ 基板到達前にAs_xに熱分解
- ✓ 反応障壁 ($E_{a,As4}$) = 200 kJ/mol^[1]

表面反応律速
反応速度: 遅

ハイドライド促進成長^[2]



- ✓ AsH₃のまま基板に到達
- ✓ 反応障壁 ($E_{a,AsH3}$) = 9 kJ/mol^[2]

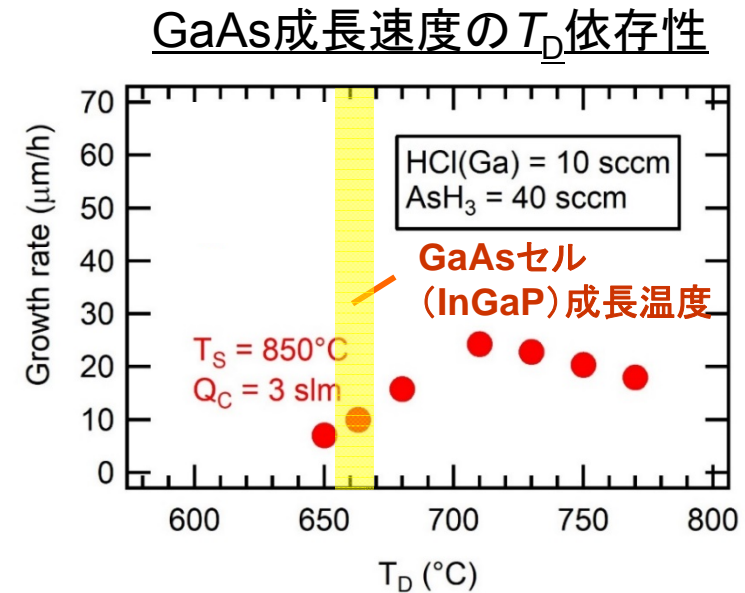
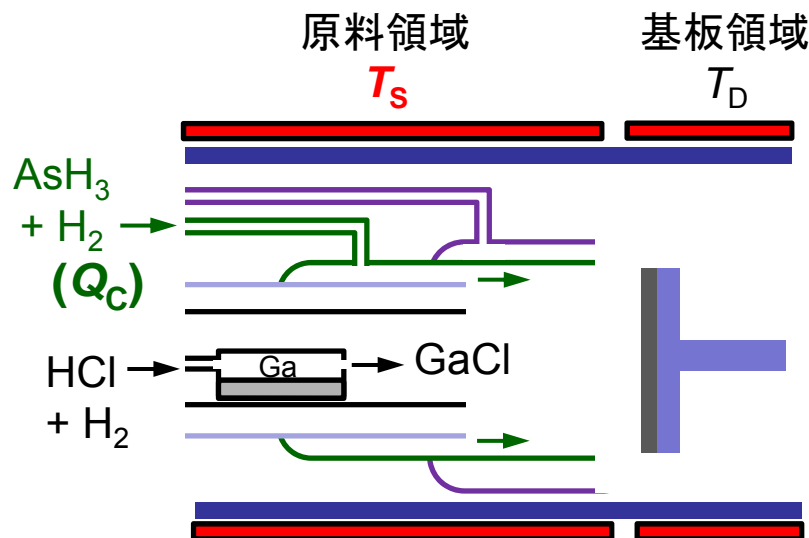
原料供給律速
反応速度: 速

[1] W. Seifert *et al.*, J. Crystal Growth **66**, 333 (1984). [2] K. L. Schulte *et al.*, Appl. Phys. Lett. **112**, 042101 (2018).

GaAs成長の超高速化

- 原料領域温度 (T_S), H_2 キャリア流量 (Q_C) により、 AsH_3 分解率を制御^[1]

	T_S (°C)	Q_C (slm)
従来	850	3
本開発	700	5

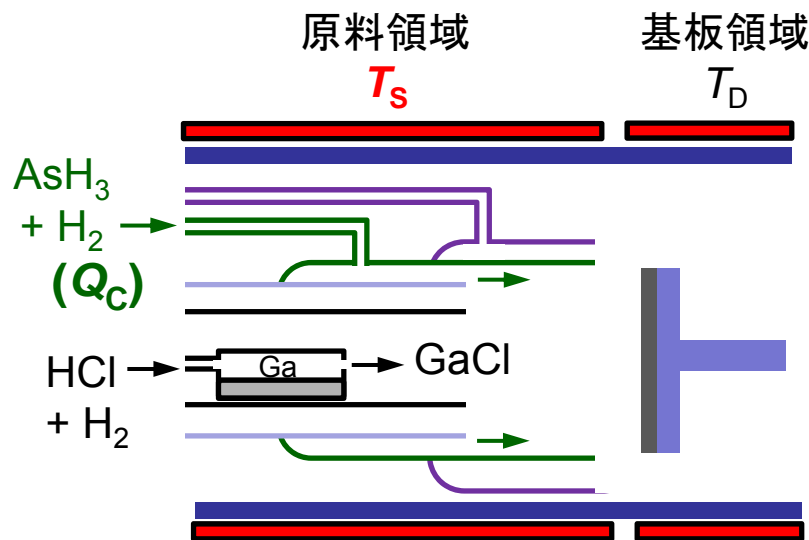


[1] R. Oshima *et al.*, ICCGE-19, Keystone, USA, 2019.

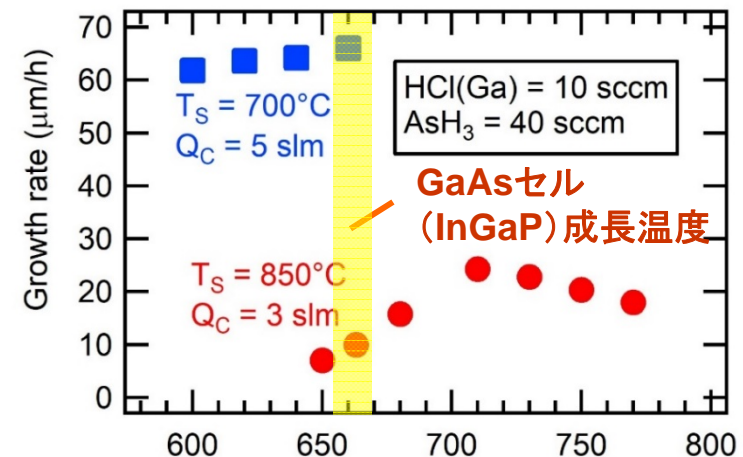
GaAs成長の超高速化

□ 原料領域温度 (T_S), H_2 キャリア流量 (Q_C) により、 AsH_3 分解率を制御^[1]

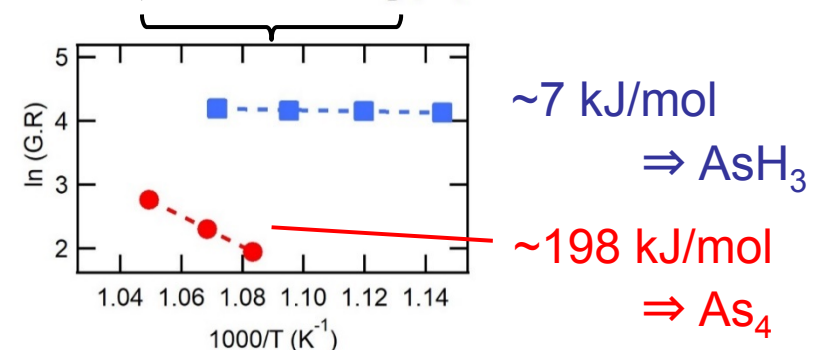
	T_S (°C)	Q_C (slm)
従来	850	3
本開発	700	5



GaAs成長速度の T_D 依存性

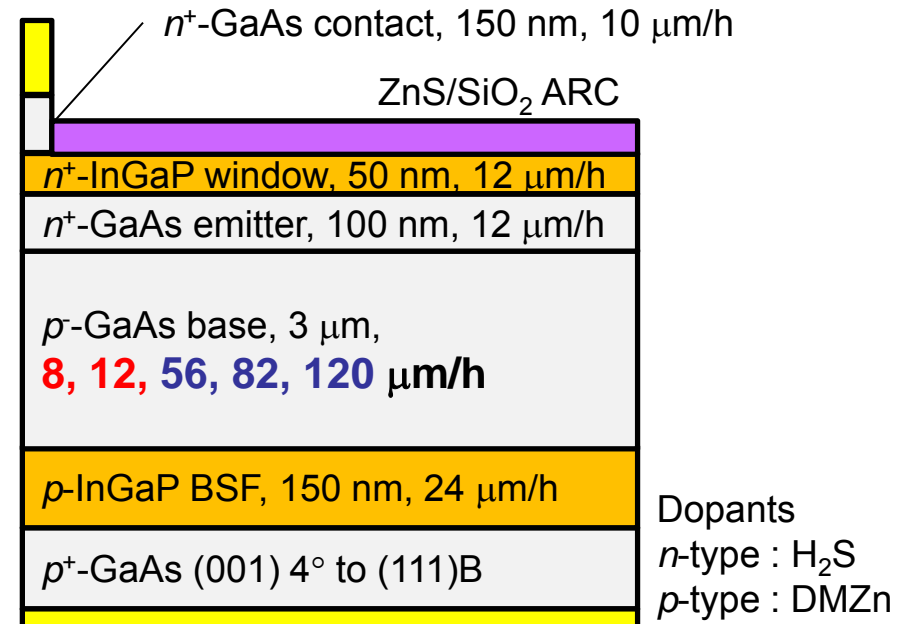
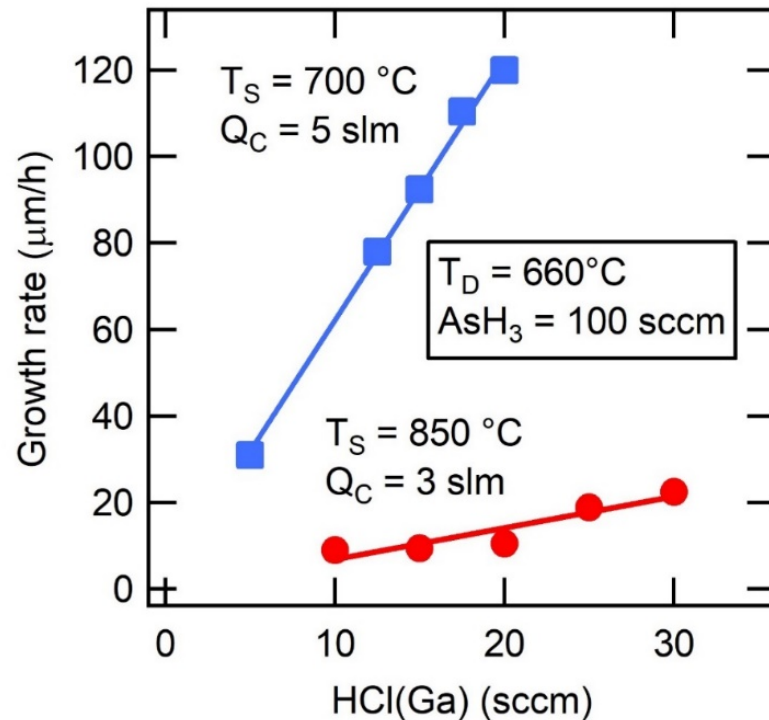


アレニウスプロット T_D (°C)



[1] R. Oshima *et al.*, ICCGE-19, Keystone, USA, 2019.

超高速GaAsセル

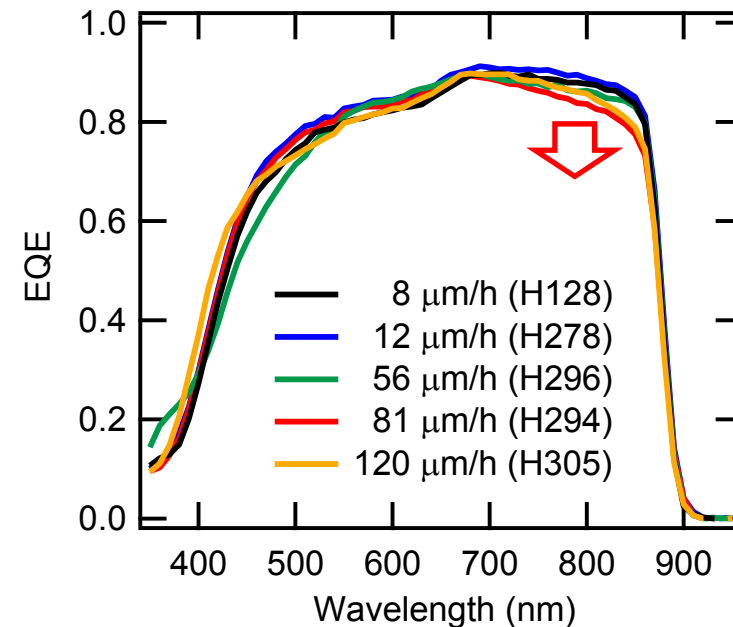
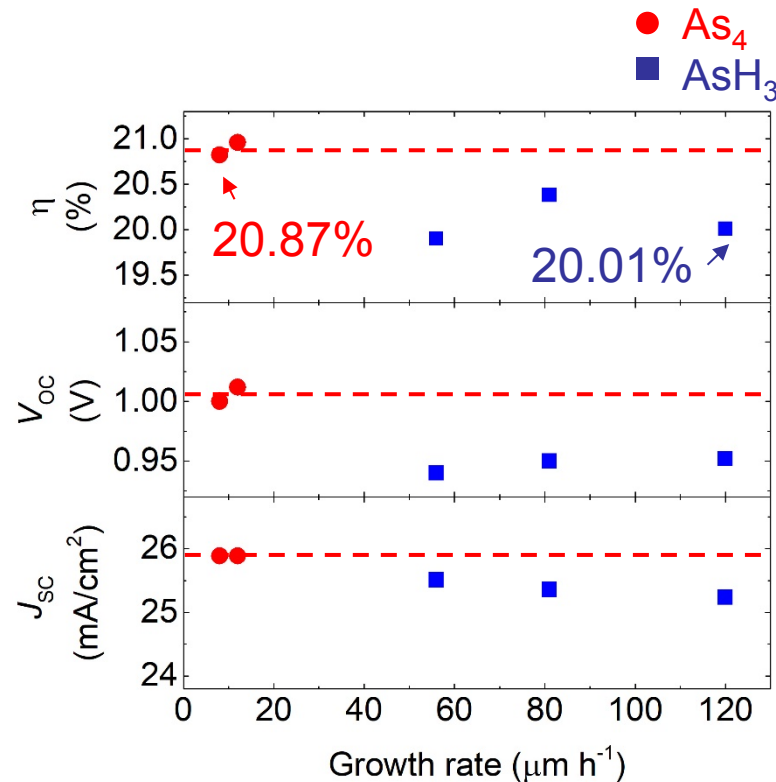


□ AsH₃を直接用いた成長において

- ✓ **120 μm/h**を実現
- ✓ 原料利用効率 **~60%**

成長速度 (μm/h)	T _S (°C)	Q _C (slm)	供給される V族種
8, 12	850	3	As₄
56, 82, 120	700	5	AsH₃

超高速GaAsセル特性



AsH_3 を直接用いた高速セル ($> 56 \mu\text{m/h}$) $\Rightarrow V_{oc}, J_{sc}$ がわずかに低下
 \Rightarrow EQE感度の低下 ($> 700 \text{ nm}$)

➔ 反応過程の違いが結晶性、ヘテロ界面に影響を与えた可能性

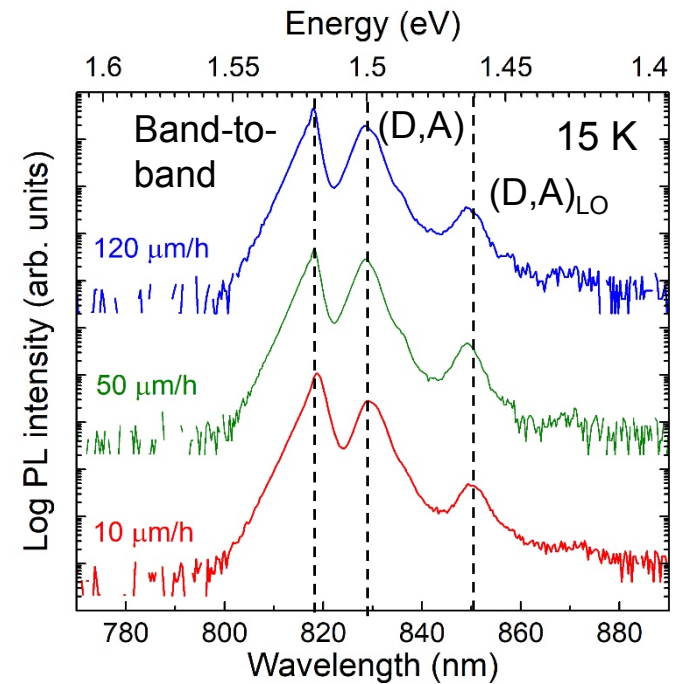
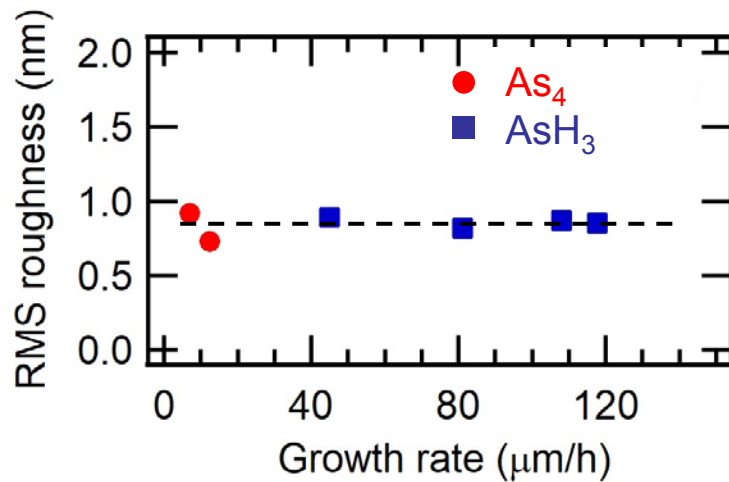
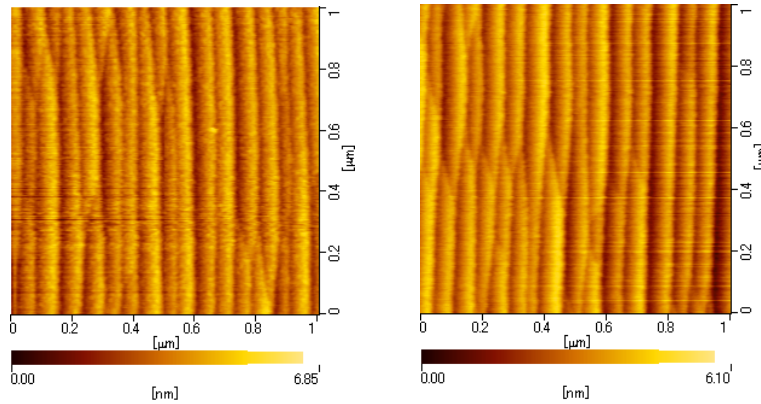
ハンドープGaAs薄膜の結晶性

AFM

PL

10 $\mu\text{m/h}$

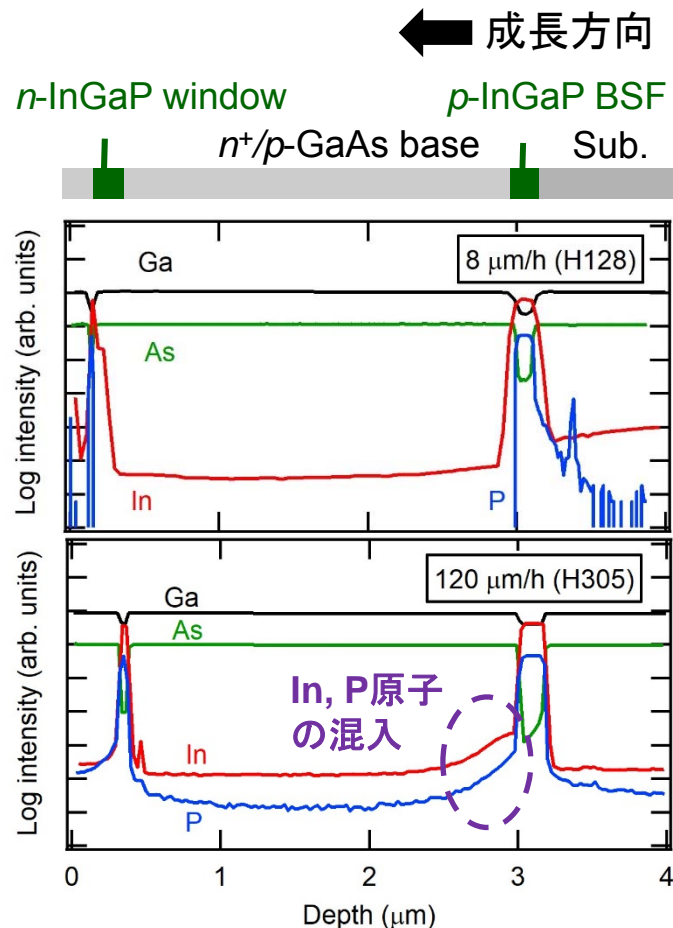
120 $\mu\text{m/h}$



□ GaAs結晶品質は成長速度、
V族種に依存せず同等

GaAsセルの深さプロファイル

SIMS



- G.R = 120 $\mu\text{m/h}$ で作製したGaAsセル
- ✓ GaAs base/InGaP BSFのヘテロ界面で、GaAs中にIn, P原子が検出

- セル成長時間 8 $\mu\text{m/h} \Rightarrow 24 \text{ min}$
 120 $\mu\text{m/h} \Rightarrow 3 \text{ min}$

\Rightarrow 内部拡散の可能性は低い

- 成長チャンバ一切替時のガスのクロスコンタミ

\Rightarrow 表面残留ガスの持込

\Rightarrow 速い反応速度 (AsH_3)

\Rightarrow 超高速成長下でのヘテロ界面の制御性に課題

トンネル接合開発

課題

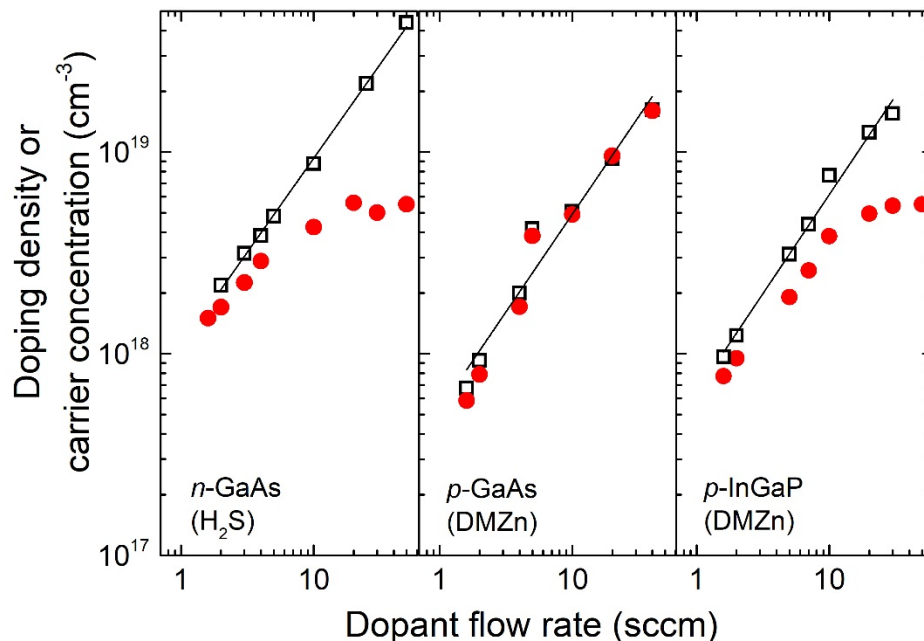
高濃度ドーピングの制御手法

セル構造 $\Rightarrow 10^{17} \sim 10^{18} \text{ cm}^{-3}$

トンネル構造 $\Rightarrow > 10^{19} \text{ cm}^{-3}$

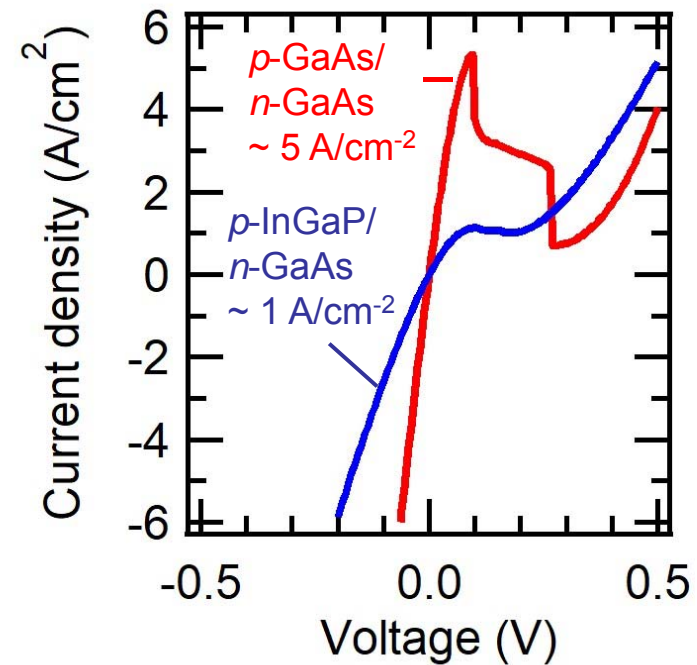
ドーパント n 型: H_2S
 p 型: DMZn

□ Doping density
 ● Free carrier conc.



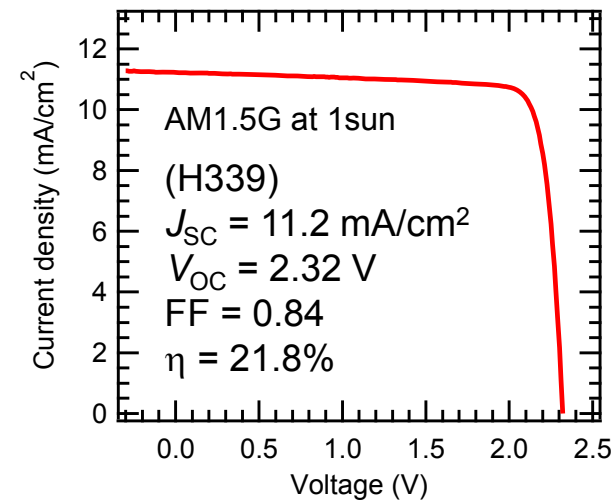
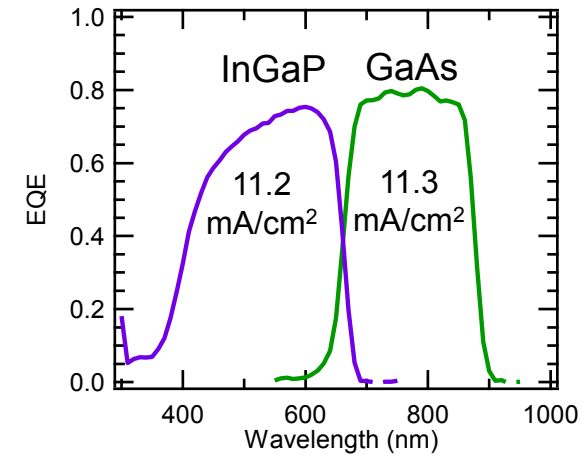
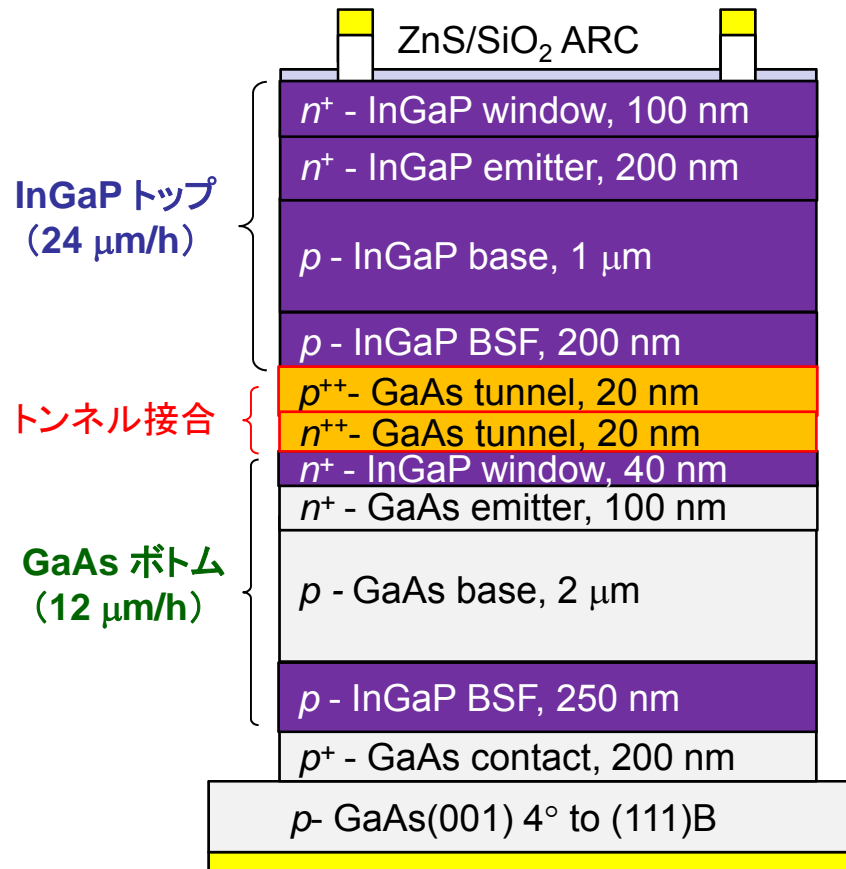
p^+ - GaAs, 40 nm	
p - InGaP, 200 nm	
p^{++} - tunnel, 40 nm	$2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$
n^{++} - tunnel, 40 nm	$4 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$
n - InGaP, 40 nm	
n - GaAs, 200 nm	
n - GaAs sub.	

ドーピング密度



R. Oshima et al., IEEE PVSC-46, Chicago, USA, 2019.

InGaP/GaAs 2接合セル



高 J_{sc} 化へのアプローチ

- InGaPトップセル ⇒ Al系ワイドギャップ窓層による表面再結合の低減
- GaAsボトムセル ⇒ ワイドギャップトンネル層による寄生吸収の低減

まとめ

低コストHVPE法を用いた超高速III-V族セルの開発

- AsH_3 の供給手法を検討することにより $120 \mu\text{m/h}$ の超高速GaAsセルを実現 ($\eta = 20.0\%$)。
- 高速GaAsセル ($>56 \mu\text{m/h}$)ではヘテロ界面での残留ガスのコンタミにより V_{OC} が 50 mV 減少。
- 極薄膜のトンネル接合を実現し、InGaP/GaAs 2接合セルを開発 ($\eta = 21.8\%$)。

謝辞 本研究は、国立研究開発法人NEDO「超高効率・低コストIII-V化合物太陽電池モジュールの研究開発」の委託の下で行われた。