

氏名	なかむらかずひろ 中村和広
学位(専攻分野)	博士(工学)
学位記番号	工博第2010号
学位授与の日付	平成13年3月23日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
研究科・専攻	工学研究科電子物性工学専攻
学位論文題目	Heteroepitaxial Growth of InGaP and GaAsP on Si and Their Doping Characteristics for the Application to Tandem Solar Cells (タンデム太陽電池用 InGaP および GaAsP の Si 上へのヘテロエピタキシャル成長とドーピング特性)
論文調査委員	(主査) 教授 松波弘之 教授 松重和美 教授 野田進

論文内容の要旨

太陽電池は、太陽光エネルギーを電気エネルギーに直接変換する発電素子としてすでに実用が始まっているが、将来の主要電力供給源として活用するためには変換効率の大幅な向上が不可欠である。現用の太陽電池は、1種類の材料による単一のpn接合を用いるため、変換効率に限界がある。タンデム(縦接続)太陽電池は、異なる禁制帯幅をもつ2種類の半導体のpn接合を縦接続し、太陽光のスペクトルを広い範囲で有効に利用して、変換効率を飛躍的に向上させることを目指すものである。本研究は、大面積基板が比較的低コストで得られるSiを下層部太陽電池とし、上層部太陽電池には組成を変化させることによって禁制帯幅が変えられるⅢ-V族半導体、燐化インジウムガリウム($\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{P}$)、および砒化燐化ガリウム($\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x$)を用いるタンデム型太陽電池の実現を最終目的としている。SiとⅢ-V族半導体の間は、Siとほぼ格子定数が等しく、上層部半導体よりも禁制帯幅の広い燐化ガリウム(GaP)を緩衝層とする独特の構造をもつ。GaPのSi上への作製は比較的容易で、上層部半導体材料を通過した光は緩衝層を透過するため、厚膜の高品質GaPが利用できる。

本論文は、このタンデム太陽電池構造を実現するために、Si基板上への $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{P}$ および $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x$ の結晶成長と不純物添加、二つのpn接合を小さな抵抗で縦接続させるトンネル接合を実現するための研究成果をまとめたもので、6章からなる。

第1章は序論で、タンデム太陽電池開発の意義、問題点、および、本研究の目的・位置づけを明らかにしている。

第2章では、有機金属気相成長法を用いる $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{P}$ のSi基板上への成長と結晶性評価について述べている。Si基板上に緩衝層としてGaPを成長し、その結晶性と成長層内に残留する格子の歪みを、高分解能X線回折法とラマン分光法で測定し、それぞれの評価法から求めた歪みの大きさが同程度であることを見出している。GaP成長層は成長温度では歪んでいないが、冷却時にSi基板との熱膨張係数の差により2次元引っ張り応力を受けて歪む。ついで、このGaP層の上にタンデム太陽電池の上層部に用いる $\text{In}_{0.57}\text{Ga}_{0.43}\text{P}$ を低温・高温の2段階で成長し、この手法を用いない成長に比べて成長層の結晶性が良くなることを示している。

第3章では、タンデム太陽電池において最も重要なトンネル接合の検討とそれを実現する高濃度不純物添加について述べている。上層部と下層部を接続するトンネル接合の抵抗を理論的に計算し、低抵抗化のために必要なn型、p型不純物の添加濃度を推定して、添加する不純物の候補について独自の検討を行っている。ついで、有機金属気相成長法を用いて砒化ガリウム(GaAs)基板上に $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{P}$ の結晶成長を行い、成長層の結晶学的、電気的特性を評価している。n型不純物として錫(Sn)を添加し、 $1.3 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ というこれまでに報告のない高いキャリア濃度を得ている。p型不純物についても高濃度添加について検討している。

第4章では、有機金属分子線エピタキシー法を用いるSiおよびGaP基板上への $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x$ の成長と成長層の格子歪みを中心とした結晶性の評価を行っている。まず、高濃度の不純物添加のために、結晶成長の制御性がより優れた分子線エピタキシー法が有利であること、この方法で $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{P}$ を成長すると炭素の混入による高抵抗化という問題があるため、材料

として変換効率が同程度の $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x$ を選択した理由を論じている。ついで、 $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x$ を Si 基板上にヘテロ成長させ、高分解能 X 線回折法を用いて、成長層の縦方向と横方向の格子定数を精密に測定し、成長層の歪みを調べている。Si 基板上に成長した $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x$ が GaP 基板上に成長したものより歪みが大きいことを見だし、 $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x$ と Si の熱膨張係数の差が $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x$ と GaP の差より大きいためであるとしている。

第 5 章では、有機金属分子線エピタキシー法による $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x$ への不純物添加を行い、導電性制御と高濃度不純物添加について調べている。p 型、n 型の不純物にはそれぞれ亜鉛 (Zn)、錫 (Sn) を用い、Zn 添加の p 型 $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x$ では $5 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ 、Sn 添加の n 型 GaAsP では $2 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$ のキャリア濃度を得ている。また、Si 基板上に $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x$ の pn ダイオードを作製し、太陽電池に必要な整流性を確認している。タンデム太陽電池の上部と下部を接続するための低抵抗接合として高濃度ドーピングを試み、低抵抗化を実現している。

第 6 章は結論で、論文のまとめと将来の課題について述べている。

論文審査の結果の要旨

本論文は、シリコン (Si) を基板とする高効率太陽電池として期待されるタンデム太陽電池の実現を目指し、上層部の太陽電池材料である III-V 族半導体、燐化インジウムガリウム ($\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{P}$)、および砒化燐化ガリウム ($\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x$) の Si 基板上への結晶成長と導電性制御、および低抵抗トンネル接合実現のための高濃度不純物添加に関して研究した成果をまとめたものであり、得られた主な成果は以下のとおりである。

1. 有機金属気相成長法を用いて Si 基板と格子定数の大きく異なる $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{P}$ をヘテロエピタキシャル成長する際、緩衝層として Si と格子定数の近い GaP を活用することを検討し、成長後、両者の間に存在する歪みについて詳細に解析した。この上に $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{P}$ を低温・高温の 2 段階で成長し、2 段階成長法で結晶性の改善が図れることを明らかにした。
2. タンデム太陽電池の上部と下部を接続するトンネル接合形成に必要な添加不純物量を理論的に検討し、 $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{P}$ に錫 (Sn) を添加して $1.3 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ というこれまでに報告のない高いキャリア濃度を得た。また、高濃度 p 型形成のための不純物について考察した。
3. 有機金属分子線エピタキシー法を用いて GaP を緩衝層として Si 上への $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x$ のヘテロエピタキシャル成長を試みた。成長層の縦方向と横方向の格子定数を精密に測定して、引っ張り歪みの存在と、歪みの原因が熱膨張の差であることを定量的に明らかにした。
4. $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x$ への不純物添加を試み、p 型用の亜鉛 (Zn) 添加で $5 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ 、n 型用の Sn 添加で $2 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$ の高いキャリア濃度を得た。また、Si 基板上に太陽電池の本体となる $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x$ の pn ダイオードを作製し、整流性を確認した。

以上要するに、本論文は、Si を下層部太陽電池とし、その上層部に III-V 族半導体太陽電池を組み合わせ高効率のタンデム型を実現するための基礎研究で、得られた成果は学術上、実際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士 (工学) の学位論文として価値あるものと認める。また、平成 13 年 1 月 5 日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。