

高効率多接合太陽電池の超汎用化に向けた革新ボトムセルの開発

筑波大学数理物質系 准教授 都甲 薫

ユビキタス・エネルギー社会の実現には、高い変換効率をもちながらどこにでも設置できる新しい太陽電池の開発が求められます。バンドギャップの異なる材料を積層した多接合太陽電池は、太陽電池の最高効率を更新し続けています。しかし、単結晶基板やプロセスが高コストであり、用途は限られています。一方、軽くて丈夫なプラスチックを基材としたフレキシブル太陽電池は、効率で劣るものの高い汎用性を持ちます。そこで近年、これらのメリットを併せ持った「フレキシブル多接合太陽電池」の研究が活発化しています。

多接合太陽電池では、半導体材料を積層して太陽光を広い波長領域で吸収することで、高い変換効率を得ることができます。トップ／ミドルセルには多くの材料候補がある一方、長波長光(近赤外光)を吸収するための狭バンドギャップなボトムセル材料は限られており、主要な半導体の中ではゲルマニウム(Ge)とIII-V族化合物半導体しかありません。ガラスやプラスチックなどの非結晶な絶縁基板上に直接合成された半導体薄膜は、結晶粒界などの欠陥を多く含む「多結晶」となります。III-V族化合物半導体は直接遷移型の半導体なので、多結晶状態では太陽光発電に必要なキャリア寿命が著しく低下します。したがって、フレキシブル多接合太陽電池のボトムセルの候補としては、間接遷移型の狭ギャップ半導体であるGeのほぼ一択となります[1]。

そのような中、太陽電池用の多結晶Ge薄膜がNew South Wales大学やStanford大学等、世界的な研究機関で組織的に研究されてきました。しかし、従来の多結晶Ge薄膜では、太陽電池用薄膜としてのファーストステップである光励起キャリアの取り出し(分光感度の取得)に成功した例すらありませんでした。これは主に、「多結晶Ge薄膜の結晶粒が小さく欠陥(粒界)が多く存在すること」「Geに特有のアクセプタ欠陥により正孔密度が高いこと」の2つの要因により、光励起キャリアが消滅しやすいためです。また、多結晶Ge薄膜はアクセプタ欠陥により必ずp型半導体となることに加え、Ge中のn型ドーパントは固溶度や活性化率が低く、n型伝導制御も容易ではありませんでした。

私はこれまでに「固相成長」というシンプルな結晶化法に改良を加えることで、結晶粒径が大きくキャリア移動度の高いGe薄膜を低温形成し[2]、薄膜トランジスタのチャネル層や熱電変換素子へ応用してきました。本研究では、このシーズ技術を太陽電池に応用し、赤外光吸収層として未踏の光励起キャリアの取り出し(分光感度の取得)を目指しました。

研究開始当初の技術で形成したGe薄膜では分光感度を取得することができなかつたため、まずは結晶性および電気的特性のさらなる向上を目指しました。その結果、Ge薄膜と基板との間に酸化ゲルマニウム(GeO_2)層を設けることで、Ge薄膜の界面核発生が抑制され、結晶粒径の拡大およびアクセプタ欠陥密度の低減が可能となることが判りました[3]。プロセス温度は低温(≤ 500 °C)であるためプラスチック(ポリイミド)基板上にも形成可能であり、正孔移動度は $690 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ に達しました(図 1a)。また、不純物ドーピングによりn型伝導制御も可能であり[4]、最近では電子移動度 450

cm²/Vs が得られています。これらの移動度は、多結晶 Ge 薄膜として世界最高値になります。ガラス基板上に形成した TiN 導電膜上に薄い GeO₂ 層を設け、その上に大粒径 p 型 Ge 薄膜を形成することにより、世界に先駆けて多結晶 Ge 膜由来の分光感度取得に成功しました(図 1b)[5]。長波長領域の分光感度は未だ弱いものの、Ge 膜の厚さ(200 nm)が光吸収に不十分であることに起因しており、最近では Ge の厚膜化によって改善されることが判っています。

以上、低温多結晶 Ge 薄膜について p/n 型ともに最高キャリア移動度を達成し、光励起キャリアの取り出しに成功しました。新しい太陽電池の開発に向けた大きな一歩であると考えています。

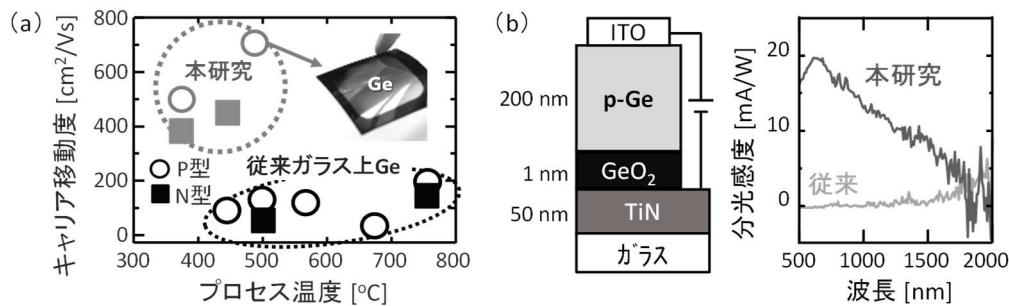


図 1. 研究成果の概要。(a) 多結晶Ge膜のキャリア移動度とプロセス温度における本研究の位置づけ。(b) 光学特性測定用試料の模式図と分光感度スペクトル。

- [1] 都甲薫「第 3 章 第 5 節 Ge の太陽電池応用と薄膜化への期待」(『次世代の太陽電池・太陽光発電—その発電効率向上、用途と市場の可能性—』, 技術情報協会) 2019 年
- [2] [K. Toko](#), R. Yoshimine, K. Moto, and T. Suemasu, “High-hole mobility polycrystalline Ge on an insulator formed by controlling precursor atomic density for solid-phase crystallization”, *Scientific Reports* 7, 16981 (2017). *応用物理学会シリコンテクノロジー分科会研究奨励賞*
- [3] T. Imajo, T. Ishiyama, N. Saitoh, N. Yoshizawa, T. Suemasu, and [K. Toko](#), “Record-High Hole Mobility Germanium on Flexible Plastic with Controlled Interfacial Reaction”, *ACS Applied Electronic Materials* 4, 269 (2022). *Journal Cover*
- [4] K. Nozawa, T. Nishida, T. Ishiyama, T. Suemasu, and [K. Toko](#), “n-Type Polycrystalline Germanium Layers Formed by Impurity-Doped Solid-Phase Growth”, *ACS Applied Electronic Materials* in press. *Journal Cover*
- [5] T. Mizoguchi, T. Imajo, K. Moto, T. Suemasu, and [K. Toko](#), “First demonstration of photoresponsivity in a polycrystalline Ge-based thin film”, 2021 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2021), K-6-04, Sep, 8, 2021. *SSDM Young Researcher Award*

【実用化が期待される分野】

太陽光発電ロードマップ(PV Challenge)には、2030 年までの技術課題として「多接合太陽電池用の狭バンドギャップ材料基板の製造」と「フレキシブル太陽電池の多接合化」が明記されています。低炭素社会への関心が年々高まる中、さまざまな研究開発が加速していますが、これらを達成する確かなアプローチはまだありません。本成果は、これらロードマップの 2 課題を同時に解決するポテンシャルがあります。「限られた面積・耐荷重で大きな発電量」の必要な機器、建築(家屋)などへの用途に加え、太陽光で充電できる携帯型端末や乗り物などへの応用が期待されます。