

研究課題名 ガラス上における高品質 Ge 層の化学気相成長

研究代表者名
筑波大学・数理物質系・都甲 薫

研究分担者名
筑波大学・数理物質科学研究科・沼田 諒平

1. はじめに

太陽電池の最高効率を更新し続けるタンデム型太陽電池の低コスト化に向け、高価なバルク単結晶 Ge 基板を、安価な Ge 薄膜/ガラス基板構造に置換する研究が行われています。報告者は「Al 誘起成長法」という手法を用い、ガラス基板上に(111)面配向(99%)した大粒径(~100 μm)の Ge 層(50 nm)を低温形成(325°C)する独自技術を保有しています[Appl. Phys. Lett. 101, 072106 (2012)]。本 Ge 層をテンプレートとして光吸収層(~2 μm)を化学気相成長すれば、タンデム型太陽電池の良好なボトム層となることが期待されます。

2. 研究経過

本研究では、Al 誘起成長条件の最適化(Ge-Al 混晶アイランド層の除去)を行った上で、実際に化学気相成長を行って Al 誘起成長 Ge 層のテンプレートとしての有効性を実証すると共に、太陽電池特性の評価に必須となる下部電極(下地導電膜)を形成する技術を研究しました。さらに、安価・軽量・フレキシブルなプラスチック(軟化温度: ~200 °C)基板への展開を目指し、Al 誘起成長温度の極低温化を検討しました。

3. 研究成果

(1) Al 誘起成長における Ge/Al 膜厚比の最適化[ESC J. Solid State Sci. Tech. 2, Q195 (2013)]、および成長 Ge 層の表面クリーニング(選択性ウェットエッチング)[Crystal Growth & Design, 13, 3908 (2013)]の技術を確立し、成長 Ge 層表面に残存する Ge-Al 混晶アイランド層を除去しました。

本 Al 誘起成長 Ge 層(50 nm)をテンプレートとすることで、光吸収 Ge 層(300 nm)を化学気相エピタキシャル成長することに成功しました[J. Crystal Growth 372, 189 (2013)]。これは、Al 誘起成長 Ge 層が極めて大きな結晶粒径(~100 μm)を有することに起因しており、バルク単結晶並の特性を薄膜で実現する可能性を示す成果です。

(2) ガラス基板を化学的に安定な導電膜(ITO, AZO, TiN)で被覆し、その上で Al 誘起成長を行った結果、成長 Ge 層の結晶性(粒径・方位)が下地導電膜の種類によって劇的に変化することが判明しました[Jpn. J. Appl. Phys. 53, 04EH01 (2014)]。本現象は、Ge の核発生が下地導電膜上で起きていることを示唆しています。

報告者は下地導電膜の結晶性に着眼し、適正化することによって、成長 Ge 層の(111)優先配向と大粒径化が可能となることを明らかにし、特に微結晶 TiN 導電膜を用いた際にガラス上と同等の結晶性が得られることを見出しました[CrystEngComm 16, 2578 (2014)]。

(3) Al 誘起成長は、①Ge 原子が AlO_x 界面層を通過し、Al 中に拡散する。②Ge 濃度が Al 中の固溶限界を超えて過飽和状態となる。③過剰な Ge 原子が結晶状態で析出する。との過程で誘起されます。報告者は「Al 中に Ge 原子をあらかじめドーピングしておき、過飽和になるまでの時間を短縮すること」および「界面層を Ge 拡散のより速い材料に変更すること」により、成長温度を低減することを検討しました。

その結果、Al 中への Ge 原子の初期ドーピングにより核発生時間を短縮できること[This Solid Films (in press)]、また Ge/Al 界面を GeO_x 層とすることで Ge の拡散、すなわち核発生と核成長の両方を向上できること[Jpn. J. Appl. Phys. 53, 04EH03 (2014)]を明らかにしました。両社の手法を重畳することによって、180 °C もの低温において、Ge 薄膜太陽電池として十分な結晶粒径(平均 12 μm)を有する(111)配向 Ge 層を形成しました[Appl. Phys. Lett. 104, 022106 (2014)]。成長温度、結晶粒径、配向性の観点から、従来の結晶成長手法を凌駕する成果であり、関連研究を数件の学会賞(2013 年秋 応物理学学会講演奨励賞、ASCO-NANOMAT Best Oral Presentation Award 等)に帰結しています。

4. まとめ

Al 誘起成長 Ge 層を基盤とした光吸収 Ge 層の光学特性評価に向け、成長条件の適正化、化学気相エピタキシャル成長の実証、下部電極上の Ge 形成等の基盤研究を構築すると共に、より安価なプラスチック基板への展開を推進しました。今後、プラスチックを基板としたタンデム型太陽電池との革新構造の実現を目指し、分光感度測定を中心とした光学的特性の評価を進めていきます。

本共同研究をご支援いただきました東北大学金属研究所の関係各位に深く感謝申し上げます。