

中間バンド型太陽電池に対するデバイスシミュレーション

デバイス特性の理解から 高効率動作実現へのカギを探る

1997年マドリッド工科大 Luque 教授らの報告^[1]により、中間バンド太陽電池(IBSC)は理想的な状態で63%もの変換効率を実現することが可能であると明らかになった。このアイデアに基づいて中間バンド型太陽電池を実際に作製し評価する研究がすすめられている。しかしながら、中間バンド型太陽電池の動作を、現実のデバイスで実現するためには、Luque 教授らによる理想的な状態での解析に加え、実際のデバイス内で生じる物理現象を理解することが不可欠となる。つまり、中間バンド型太陽電池をデバイスとして取り扱い、中間バンドが存在することによる影響を適切に取り込む必要がある。そこで、我々のグループでは中間バンド型太陽電池に対するデバイスシミュレータの構築を行い、デバイスとしての動作特性の理解を深めることで、高効率動作実現に向けた方向性を明らかにすることを目的として研究を行っている。

太陽電池は、太陽からの光エネルギーを電気エネルギーへと変換する“変換器”である。太陽電池の電力は電流と電圧の積によってあらわされる。しかしながら、半導体を用いる以上、各半導体材料が持つ固有のエネルギーギャップ(バンドギャップ)以下のエネルギーを持つ光を電気として取り出すことができない。また、得られる最大の電圧(開放電圧)は、このエネルギーギャップ以下となる制約が存在する。つまり、大きなエネルギーギャップを持つ材料では、大きな電圧が期待されるものの電流が小さく、他方で、小さなエネルギーギャップを持つ材料では大きな電流と小さな

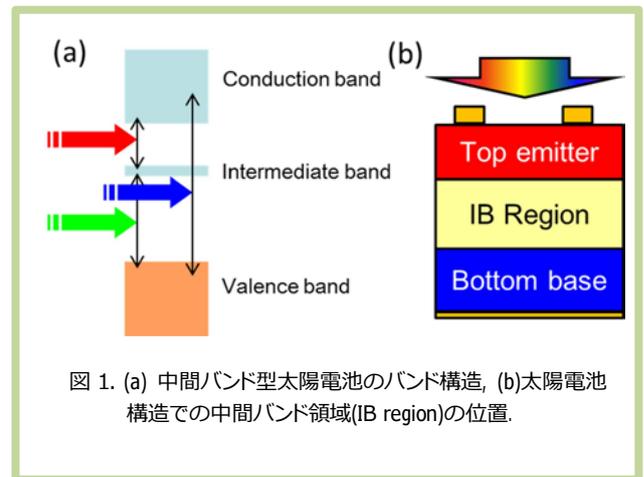


図 1. (a) 中間バンド型太陽電池のバンド構造, (b)太陽電池構造での中間バンド領域(IB region)の位置.

電圧が得られることになる。したがって、最適なエネルギーギャップは、ある程度大きな電流と大きな電圧が得られるようなものとなる。このような状況下での太陽電池の理論変換効率は最大で42%として知られている。

より高い変換効率を得るためには、先に述べたエネルギーギャップによる制約から解放される必要がある。図1に示すように、中間バンド太陽電池は、大きなバンドギャップを持つ材料のバンドギャップ内にバンドもしくは準位を導入し、これまで変換できなかったバンドギャップ以下の光をこの中間バンド(準位)を介して吸収しキャリア生成を行うことで、大きな電圧と、大きな電流を得ようとするものである。

理想状態を仮定した変換効率の見積もりと実際に作製される太陽電池との違いは、当然ながらデバイスの大きさやデザイン、材料が持つ固有の特性の存在である。理想状態での計算では考慮されなかった

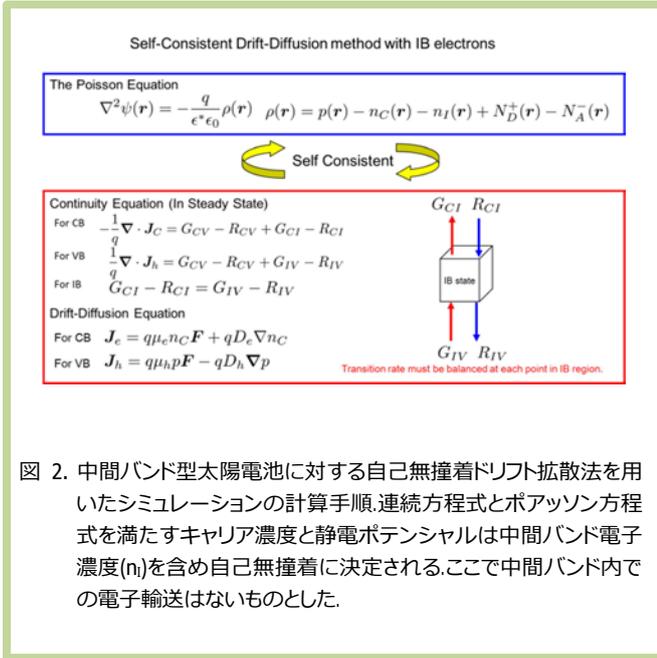


図 2. 中間バンド型太陽電池に対する自己無撞着ドリフト拡散法を用いたシミュレーションの計算手順. 連続方程式とポアソン方程式を満たすキャリア濃度と静電ポテンシャルは中間バンド電子濃度(n_i)を含め自己無撞着に決定される. ここで中間バンド内の電子輸送はないものとした.

要素がデバイス特性に大きく影響を与えるため、高効率太陽電池を実現するためには、デバイス特性の理解が重要となる。デバイス特性を理解することはすなわちキャリア輸送を理解することである。より具体的に言えば、太陽から入射した光によりどのようにキャリアが生成され、どのように電流として取り出されるかを理解することである。そこで、我々は、図2に示すように、ドリフト拡散法に中間バンドを介したキャリアの生成再結合並びに、中間バンドに存在するキャリアによる静電ポテンシャルへの影響を考慮した、中間バンド型太陽電池にたいするデバイスシミュレータを構築した^[2, 3]。中間バンドを介したキャリア生成では、価電子帯(VB)に存在する電子が中間バンド(IB)へ遷移し、さらに、中間バンドを占有する電子が光を吸収することで伝導帯(CB)へ遷移する過程となる。この結果、価電子帯と伝導帯にそれぞれキャリアとなる正孔と電子が生成され電流として取り出すことができる。この光吸収過程を記述する上で重要となるのが中間バンドの電子占有率の考慮である。VB-IB、IB-CB 間での光吸収過程は、前者では中間バンドの非占有率、後者では占有率に強く依存する遷移となる。また、キャリア生成過程が存在することは、その逆過程であるキャリア再結合もしくは緩和過程も存在することを意味する。これらの振る舞いを取り込んだキャリアの生

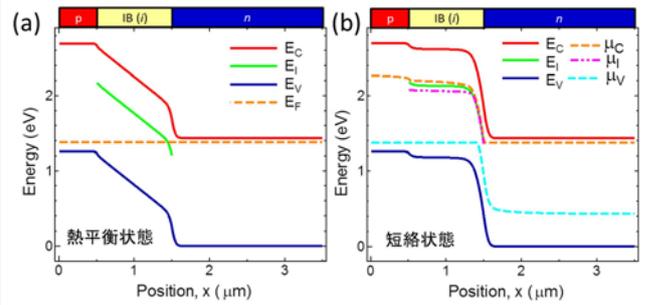


図 3. (a)熱平衡状態, (b)短絡状態(1 sun)における中間バンド型太陽電池のバンド図. 太陽光は p 層側から入射. E_C, E_i, E_V は CB, IB, VB のバンド端を, μ_C, μ_i, μ_V は各バンドの擬フェルミ準位, E_F はフェルミレベルを表す.

成再結合項を記述し、シミュレータへの反映を行っている。

具体的なシミュレーションの結果として、 $p-i-n$ 構造の i 層に中間バンド構造が導入された系での熱平衡状態、短絡状態のバンド図を図3に示す。この図に示すように、熱平衡状態と短絡状態ではバンド図が大きく異なることがわかる。このような違いは、中間バンドを占有する電子濃度が太陽光によるキャリア生成と、再結合により変化したことによるものであり、キャリア濃度と静電ポテンシャルの自己無撞着な取扱いが重要であることを示すものである。

短絡状態において、中間バンドを介した実効的なキャリア生成割合の位置依存性を図4に示す。この実効的なキャリア生成の割合は、

$$G_{IB}^* = G_{CI} - R_{CI} = G_{IV} - R_{IV}$$

として定義される。この定義より、再結合 R が無視できるのであれば、CB-IB, IB-VB 間の生成割合 G のうち小さいものが実効生成割合を決定し、再結合は実効生成割合が一致するように決定される。この直観的な理解と図3 (b)に示したバンド図がよく一致する。中間バンド領域においてトップエツミタ層近傍では中間バンド電子濃度が低い、つまり、IB-VB 間のキャリア生成が CB-IB 間に比べ大きい、また、ベース層近傍では中間バンド電子濃度がある程度高いため、

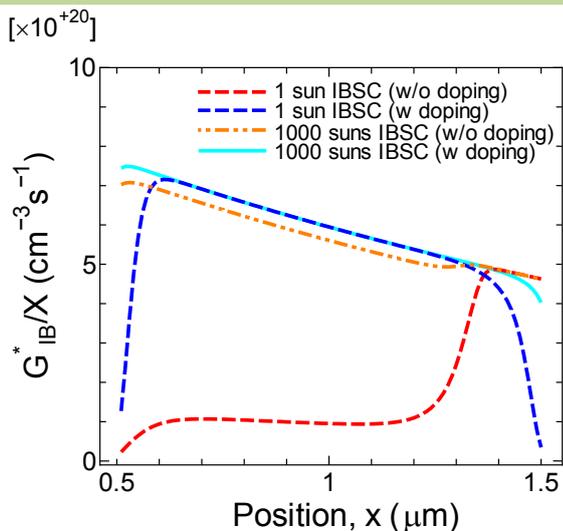


図 4. 中間バンドを介した短絡状態における実効キャリア生成割合の位置依存性. 実効生成割合は集光倍率 X を用いて規格化されている.

CB-IB, IB-VB 間のキャリア生成割合が等しくなり、実効的なキャリア生成割合 G^*_I が増加している。仮に中間バンド電子濃度が大きくなりすぎた場合、IB-VB 間でのキャリア生成が小さくなるため、実効生成割合は低下することが考えられる。

上記の内容が示唆することは、最適な中間バンド占有率の存在である。中間バンド占有率をコントロールする方法として、中間バンド領域へのドーピングと、高倍集光下での太陽電池動作がある。この場合、実効キャリア生成割合を図4に示した。中間バンド領域へドーピングを行うことにより、非集光下(1 sun)での実効生成割合が大幅に増加している。これは、ドーピングにより中間バンド占有率がよくコントロールされていることを示唆している。また、1000 倍集光を想定した場合、ドーピングによる依存性が低下し、中間バンド領域全体でのキャリア生成割合が増加している。このことから、中間バンド電子占有率が入射した太陽光にコントロールされ、中間バンドを介したキャリア生成割合が最大化するように中間バンド電子占有率が決定されていることがわかる。

中間バンド型太陽電池と同構造に中間バンドを導入していない単接合型太陽電池(GaAs control cell)の電流電圧特性を図5に示す。電流密度 J は集光倍率

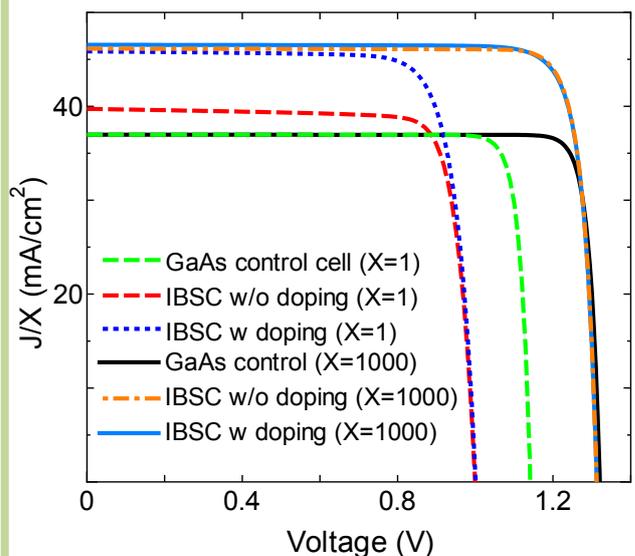


図 5. 各構造及び集光倍率における電流電圧特性. 電流密度は集光倍率を用いて規格化されている.

を用いて規格化されている。中間バンドを導入することで短絡電流が増加していることがわかる。また、この増加は図4において述べたとおり、中間バンドを介したキャリア生成割合によって決定されており、ドーピング並びに光による占有率コントロールを用いることで最大化が可能である。非集光下($X=1$)において、中間バンド型太陽電池はドーピングの有無にかかわらず、単接合型太陽電池に比べ著しく開放電圧が低下している。このことは、中間バンドを介したキャリア再結合が中間バンド型太陽電池の開放電圧を決定していることを意味している。1000 倍集光下では、開放電圧低下が抑えられ、単接合太陽電池に近い値を示すようになっている。

より詳細な集光倍率に対する中間バンド型太陽電池動作特性の依存性を図6に示す。単接合型太陽電池では、短絡電流が集光倍率に対して線形に増加し、この結果、開放電圧が増加することで変換効率が増加している。中間バンド型太陽電池では、短絡電流の増加が集光倍率に対して非線形となっている。また、光による中間バンド電子占有率コントロールの影響が大きい、ドーピングを中間バンド領域に行わない系で、変化が大きくなっている。

開放電圧の変化は、集光倍率が小さいうちは、中

間バンドを介した再結合による支配が大きいため、急激な開放電圧の増加を見せる。その後、開放電圧を決定する再結合が中間バンドから CB-VB 間再結合にシフトするため、単接合太陽電池と同様の、集光倍率に対する依存性を示すようになる。

非集光下において、中間バンド型太陽電池の変換効率は、著しい開放電圧の低下により、単接合型太陽電池よりも小さくなっている。しかし、この変換効率は集光倍率が増加することで逆転し、「単接合太陽電池に比べ短絡電流が増加し、開放電圧が低下しない」理想的な中間バンド型太陽電池動作が実現する。

中間バンド型太陽電池に対するデバイスシミュレータ構築により、デバイス内でのキャリアの挙動並びにデバイス構造依存性を明らかにすることが可能となった。このようにデバイス内部での物理現象を理解することで、実際のデバイス構造決定や実験へのフィードバックが可能となり、高効率太陽電池実現に向けた研究を進めることができる。また、今回は定性的な中間バンド型太陽電池のデバイス動作について紹介したが、シミュレータに実際の系に即したパラメータを用いることでエミッタ層膜厚と光吸収係数との関係や、シミュレータの三次元化により積層量子ドットを想定した系での複雑なキャリアの振る舞いについて検討することが可能である。

現状の中間バンド型太陽電池における課題は、ドーピングに対する依存性、集光倍率に応じた動作特性を明らかにすることにある。したがって、高効率動作へのカギはドーピングと高倍集光による中間バンド電子占有率のコントロールと、中間バンドを介したキャリア再結合の抑制にある。

参考文献

[1] A. Luque, and A. Martí, "Increasing the Efficiency of Ideal Solar Cells by Photon Induced Transitions at Intermediate Levels," *Phy. Rev. Lett.*, vol. 78, 5014-5017 (1997).
 [2] K. Yoshida, Y. Okada and N. Sano, "Self-consistent simulation of intermediate band solar cells: Effect of occupation rates on device characteristics", *Appl. Phys. Lett.* 97, 133503 (2010).
 [3] K. Yoshida, Y. Okada and N. Sano, "Device simulation of

intermediate band solar cells: Effects of doping and concentration", *J. Appl. Phys.* 112, 0814510 (2012).

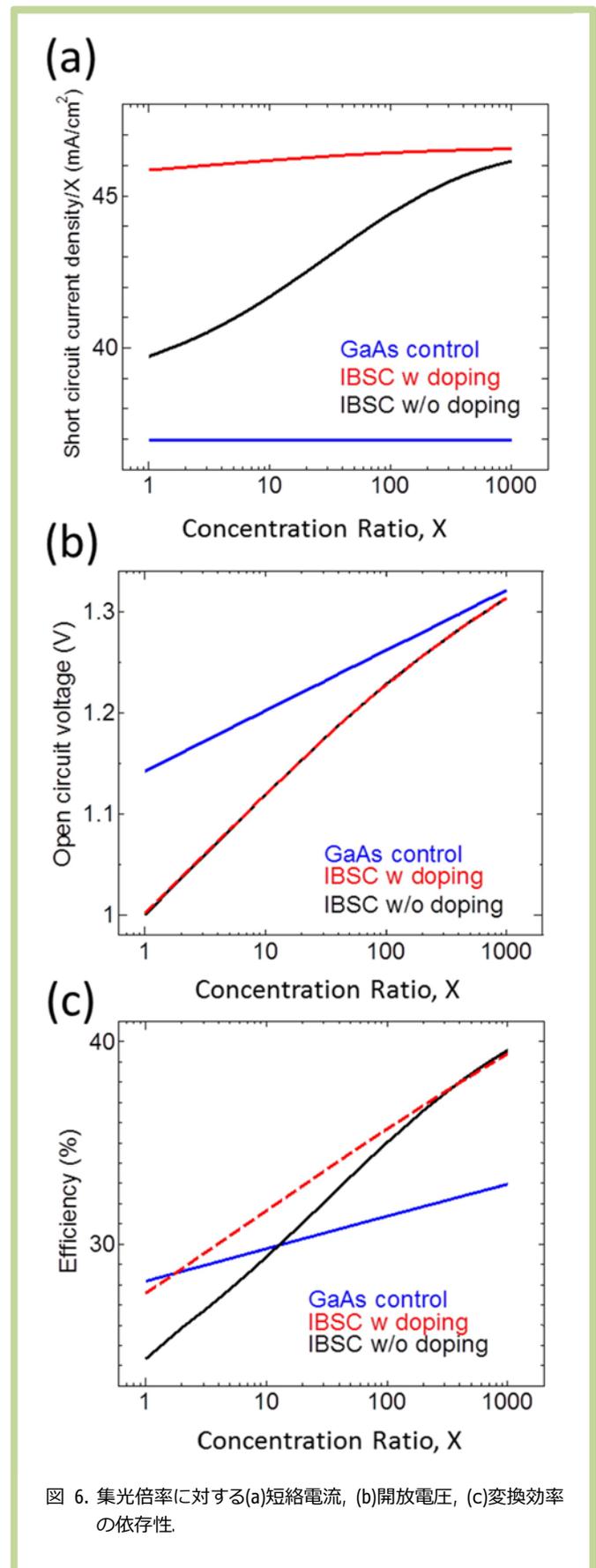


図 6. 集光倍率に対する(a)短絡電流, (b)開放電圧, (c)変換効率の依存性