

印刷で高品質なシリコンゲルマニウム半導体を実現 ～超高効率多接合太陽電池の飛躍的な低コスト化に貢献～

国立大学法人東海国立大学機構 名古屋大学大学院工学研究科の福田 啓介 博士 前期課程学生（研究当時）、宮本 聡 特任講師、宇佐美 徳隆 教授は、大阪大学大学院工学研究科・東洋アルミニウム半導体共同研究講座のダムリン マルワン 特任教授（東洋アルミニウム株式会社シニアスペシャリスト）、東北大学金属材料研究所の藤原 航三 教授、奈良先端科学技術大学院大学の浦岡 行治 教授らとの共同研究で、東洋アルミニウム株式会社の独自技術により作製される特殊なペーストをシリコン単結晶基板に印刷して熱処理を行うことで、高品質なシリコンゲルマニウム半導体^{注1}を非真空中で実現することに成功しました。

本研究成果は、超高効率多接合太陽電池^{注2}の低コスト化の貢献に期待できます。

宇宙用の超高効率多接合太陽電池では、ゲルマニウム基板の上に複数の化合物半導体薄膜太陽電池を重ねることで高いエネルギー変換効率を実現しています。しかし、ゲルマニウム基板が製造コストの50%以上を占めており、地上での利用に向けては安価な材料で代替することが課題となっていました。そこで本研究は、アルミニウムとゲルマニウムの合金を含む特殊なペーストをシリコン基板上に印刷し、わずか数分間の熱処理を行うことで、高品質なシリコンゲルマニウムの膜を実現しました。安価なシリコン基板上に作製されたシリコンゲルマニウム膜を、化合物半導体の基板として利用することで、超高効率多接合太陽電池の製造コストを1/10以下にすることが期待されます。

本研究成果は、2022年9月12日午後6時（日本時間）付イギリスのNature Research社が発行する自然科学誌「Scientific Reports」に掲載されました。

本研究は、日本学術振興会科学研究費補助金基盤研究（A）、東北大学金属材料研究所における共同研究のもとで行われたものです。

【ポイント】

- ・アルミニウムとゲルマニウムの合金を成分に含む特殊ペーストを用いて、高品質なシリコンゲルマニウム半導体の膜をシリコン基板上に実現。
- ・製造プロセスはペーストの印刷と数分程度の熱処理であり極めて簡便。
- ・超高効率太陽電池のコストの50%以上を占めるゲルマニウム基板を代替し、飛躍的な低コスト化に貢献する可能性。

【研究背景と内容】

脱炭素社会の実現のためには、暮らしや経済活動に必要なエネルギー源を、CO₂を排出する化石燃料から電力に置き換えるとともに、電力に占める再生可能エネルギーの比率を高めることが必要とされています。再生可能エネルギーの中でも、太陽光発電の主力電源化への期待が高まっており、高効率太陽電池を安価に製造可能な技術が求められています。

超高効率太陽電池として、複数の化合物半導体薄膜太陽電池を積み重ねる多接合太陽電池があり、30%を超える高いエネルギー変換効率を実現することが可能です。多接合太陽電池は宇宙用として実用化されていますが、製造コストが高いために、地上で電力用に利用することは現実的ではありません。特に、化合物半導体薄膜をエピタキシャル成長^{注3)}するための半導体基板として用いられるゲルマニウム基板は、製造コストの50%以上を占めており、安価な材料で代替することが課題となっています。

そこで本研究では、ゲルマニウム基板を代替することを目指し、安価なシリコン基板上に、シリコンとゲルマニウムが混ざった材料であるシリコンゲルマニウム膜を、低コスト技術により作製する技術開発に取り組みました。具体的には、東洋アルミニウム株式会社が、独自技術により製造するアルミニウムとゲルマニウムの合金を含むペーストを、シリコン基板上に印刷し、非真空下でわずか数分程度の熱処理を行うという、極めてシンプルな方法です。そのプロセスの模式図を図1に示します。熱処理を行うと、高温時にシリコン基板の表面とペーストが溶けることで、アルミニウム-ゲルマニウム-シリコンを成分とする溶液が形成されます。温度が降下する過程において、過飽和状態^{注4)}が形成されると、シリコンゲルマニウム膜がシリコン基板上にエピタキシャル成長します。表面に残留したペーストを化学処理によって除去することで、シリコン基板上に成長したシリコンゲルマニウム半導体の膜を得ることができます。

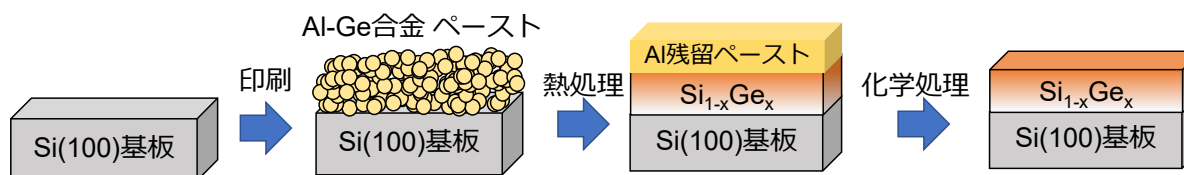


図1 本研究におけるシリコンゲルマニウム半導体膜の製造プロセス

図 2 に、アルミニウムとゲルマニウムの合金ペーストをシリコン基板上に印刷した試料と、900°Cで5分間の熱処理を行い、表面の残留ペーストを化学処理により除去した後の電子顕微鏡写真を比較して示します。熱処理後には、Si 基板上に厚さが10 マイクロメートルを超える膜が連続的に形成されていることがわかります。なお、アルミニウムとゲルマニウムを合金化することなく別々に混ぜて作製した混合ペーストでは、昇温時のペーストの溶融が不均一に起こることによって、残留ペーストの化学処理が困難という課題もありましたが、合金ペーストにより、そのような課題も解決することができました。

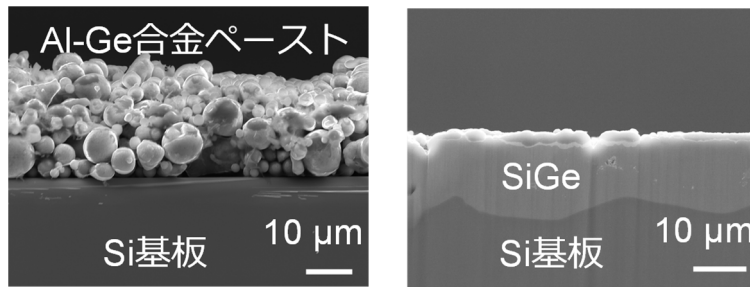


図 2 試料の電子顕微鏡写真（左）ペーストを印刷した後の様子（右）熱処理後に残留ペーストを除去した後の様子

図 3 は、エックス線回折装置を用いて、試料の逆格子空間^{注5)} マップ測定を行った結果です。右上がシリコン基板からの強い回折を示しており、左下に向かい連続的にエックス線が観測され幅広く分布していることがわかります。シリコンから左下に向かう直線は、シリコン基板上の膜が歪むことなくエピタキシャル成長した場合にエックス線が観測される位置を示しています。この直線上に連続的にエックス線が観測されることから、結晶の格子定数が連続的に変化していることが予測されます。別の測定と合わせることで、シリコン基板から表面に向かい、少しずつゲルマニウムの量が増えていることがわかりました。このような組成傾斜は、結晶中の原子の乱れを少なくする効果があります。最表面でのゲルマニウム組成は約 90%となっており、化合物半導体のエピタキシャル成長用基板としてゲルマニウムと同等の機能を持つことが予測されます。

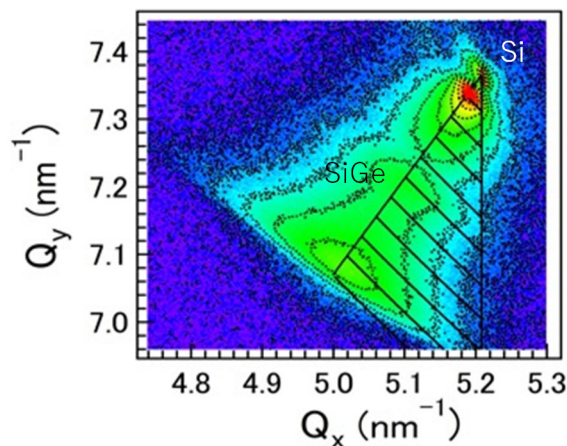


図 3 エックス線逆格子空間のマップ測定

【成果の意義】

シリコン基板は、地球で導入されている 90%以上の太陽電池で基板材料として用いられており、安全で安価な材料です。また、地球上に豊富に存在し、環境負荷の小さい材料です。日常生活で広く用いられているアルミニウムも同様の性質をもちます。本研究で開発した、印刷と熱処理からなる製造技術は、高価な真空装置が必要でなく、製造設備のコストも低くすることができます。このように安全で安価な材料を主として用い、低コスト製造技術で、高価なゲルマニウム基板と同等の機能を持つと考えられるシリコンゲルマニウム半導体の膜を、シリコン基板に作製できることを実証しました。今後は、大面積化や化合物半導体薄膜成長などへの展開が必要ですが、本研究の成果は、超高効率多接合太陽電池の飛躍的な低コスト化に貢献できる可能性を示したことに、大きな意義があります。

【用語説明】

注 1) シリコンゲルマニウム半導体：

シリコンとゲルマニウムが任意の比率で混ざった半導体であり、ダイヤモンドと同じ結晶構造を持つ。

注 2) 多接合太陽電池：

種類の異なる半導体を幅広い波長の光を吸収できるように直列に接続し高い効率を得ようとする太陽電池。宇宙用には、高価なゲルマニウム基板上にガリウムヒ素やインジウムガリウムリンなどの化合物半導体薄膜が作製されている。

注 3) エピタキシャル成長：

基板の結晶構造を継承して薄膜が成長すること。

注 4) 過飽和状態：

溶媒に対して、溶質が溶けることが可能な限界濃度である溶解度以上に溶けている状態。このような状態では、溶質が析出する。シリコンやゲルマニウムのアルミニウムに対する溶解度は温度とともに減少するため、高温溶液の温度を下げていくと、過飽和状態となりシリコンとゲルマニウムが溶けることができなくなり結晶となる。塩水から塩の結晶を得るのと同じ原理である。

注 5) 逆格子空間：

実空間の周期性を反映した空間であり、結晶からのエックス線回折の強度分布をこの空間で測定することで、基板と膜の組成や歪みの情報を得ることができる。

【論文情報】

雑誌名 : Scientific Reports

論文タイトル : Epitaxial growth of SiGe films by annealing Al-Ge alloyed pastes on Si substrate

著者 : Keisuke Fukuda, Satoru Miyamoto, Masahiro Nakahara, Shota Suzuki, Marwan Dhamrin, Kensaku Maeda, Kozo Fujiwara, Yukiharu Uraoka, and Noritaka Usami

DOI: 10. 1038/s41598-022-19122-7

URL: <https://www.nature.com/articles/s41598-022-19122-7>