窒化インジウム系半導体太陽電池の最近の動向と課題*

山本 高勇^{*1,2}・ブイヤン アシュラフル G.^{*3}

Recent Progress and Challenges in InN-based Solar Cells

Akio YAMAMOTO^{*1,2} and Ashraful G. BHUIYAN^{*3}

^{*1}Graduate School of Engineering, University of Fukui, 3-9-1 Bunkyo, Fukui-shi, Fukui 910-8507, Japan

^{*2}JST-CREST, 7 Gobanchyo, Chiyoda-ku, Tokyo 102-0075, Japan

^{*3}Faculty of Electrical & Electronic Engineering, Khulna University of Engineering and Technology, Khulna-9203, Bangladesh

(Received May 7, 2012, Accepted September 26, 2012)

The revision of InN bandgap to a much narrower value (≈ 0.7 eV) has opened the new research on InN-based solar cell. For InN-based materials, multi-junction solar cell seems to be the most promising approach, because a wanted bandgap between 0.6 and 2.5 eV can be obtained by using the alloy materials. Many groups have reported homojunction-type or sandwich-type InGaN solar cells. The maximum In content in InGaN absorption layers employed is around 0.3 ($E_g \approx 2.3$ eV). The low In content is the main reason for the poor performance of the present single-junction devices under the solar irradiance. To realize a high efficiency multi-junction cell, many issues, especially, the growth of high quality alloy films with an In content of 0.4–1 and the control of p-type doping, should be solved.

1. はじめに

高効率太陽電池を実現するうえで最も有力な方法はタンデム構造の実現である。タンデム構造とは、バンドギャップの異なる太陽電池（以後、サブセルと呼ぶ）を複数用意し、光の入射側からバンドギャップの大きいサブセルの順に積層したものを言う。このような構造を形成することによって、太陽光スペクトル中のエネルギーの大きい光子から順に篩で選り分けるように利用することができ、多くの光子を利用できることのみならず、光子1個が持つエネルギーをより有効に利用することができる。すなわち、太陽光エネルギーの有効利用（変換効率の向上）が図られることになる。

最近、窒化インジウム（InN）系の窒化物半導体が新たなタンデム太陽電池用材料として注目されるようになってきた。それは、InNの禁止帯幅がこれまで長く信じられてきた約2 eVとは大きく異なる約0.7 eVであることが明らかとなった¹⁾ためである。

本稿では、タンデム太陽電池材料としてのInN系窒化物半導体の特徴とInN系太陽電池開発の現状と課題^{2,3)}について紹介する。

2. 太陽電池用材料としての窒化物半導体の特徴

Fig. 1は、代表的な半導体材料のバンドギャップと格子定数との関係²⁾を示したものである。タンデム太陽電池用材料としてはバンドギャップ0.6～2.5 eVの半導体材料が必要となる。Fig. 1に示すように、InNとGaNあるいはAlNとで形成される混晶InGaN, InAlNを用いて0.7～2.5 eVの間の任意のバンドギャップを実現できることが明らかとなっ

Fig. 1 Relationships between band-gap energy and lattice parameter for the conventional IV, III-V, and nitride semiconductors. Dashed area shows the region of band-gaps needed for tandem solar cells.

た。すなわち、組成の異なるInGaNやInAlNを用いてサブセルを多数形成することが可能となり、理想的なタンデム太陽電池の実現が期待されるようになった。

これまでに開発されているタンデム太陽電池の代表例はInGaP/GaAs/Ge系3接合太陽電池⁴⁾であり、非集光下で30%以上、集光下で40%以上という高効率がすでに実現されている。しかしながら、このタンデム太陽電池の課題は、各サブセル間の電流不整合が大きいことである。具体的には、Geボトムセルの発生電流がGaAsミドルセルの1.8倍も大きい。すなわち、サブセルが直列に接続されるこの構造では、3つのサブセルの発生電流のうち最少の発生電流がタンデムセルの発生電流となるため、Geボトムセルでの発生電流の約半分が使われないこととなる。従って、その改善策としては、ミドルセル材料のバンドギャップを小さくしてミドルセルでの発生電流を増大させるか、ボトムセル材料としてGe

* 平成23年11月25日 日本真空学会2011年11月研究例会で発表

^{*1} 福井大学大学院工学研究科(〒910-8507 福井市文京 3-9-1)

^{*2} 科学技術振興機構 戦略的創造研究推進事業(CREST)(〒102-0076 東京都千代田区五番町 7)

^{*3} クルナ工業技術大学電気電子工学部(クルナ-9203, バングラディッシュ)

よりもバンドギャップの大きな材料を使用し発生電流を減らす代わりに発生電圧を上げるという対策を講ずることである。これができれば、更なる高効率化が可能となる。そのような観点から、電流不整合を低減するために敢えて格子不整合を導入するという方向での検討が進んでいる。その結果、サブセル間には、1~2%の格子不整合^{5,6)}が存在している。このような格子不整合系の素子は未だ発展途上であるといえるが、すでに格子整合系を上回る43.5% (418倍集光下) という高変換効率を実現されている⁷⁾。この材料系において、上記の電流不整合の問題を解消するとともに、4接合化を狙う方法としてバンドギャップ1 eVのGaInAsNの利用が提案された⁸⁾が、GaInAsN薄膜の高品質化が難しく、未だ実現には至っていない。

InGaN, InAlNなどのInN系混晶半導体の特徴は0.7~3.4 eV, 0.7~6.2 eVの範囲で連続的に任意のバンドギャップが実現できることであり、タンデム太陽電池を形成する場合、サブセル間の電流整合が実現できるバンドギャップが容易に選択できることになる。そのような多接合太陽電池の出力特性を簡単に見積ることとする。ここでは、AM1.5の太陽光スペクトルを用いるとして、縦軸を光子数、横軸を光子エネルギーで表したAM1.5スペクトルを用意する。短絡電流密度 J_{sc} 、開放端電圧 V_{oc} を次のような方法で算出する。nサブセルから成るタンデム太陽電池を例にすると、太陽光スペクトルのうち0.7 eV以上のエネルギーを有する光子数を積算し、それがn等分される光エネルギーを求める。これによって電流整合が実現できる各サブセルの禁止帯幅 E_g が決定されることになる。次に、n等分された光子数に電子電荷量 q を乗じたものを各サブセルの理想的な J_{sc} と考える。これは、各サブセルに入射した光子のうち禁止帯幅以上のエネルギーを有するものはすべて光電流に寄与することを意味する。即ち、収集効率100%である。今回の計算では、実際に近い値を得るために、平均収集効率として0.9を乗じたものを J_{sc} とした。各サブセルの V_{oc} の算出には、よく知られた経験式、 $V_{oc} = E_g/q - 0.4$ (V)、を用いた。タンデム太陽電池の V_{oc} はn個のサブセルの V_{oc} の総和となる。加えて、ここでは計算結果をより実際的なものとするため、曲線因子FFとして0.85の値を用いて出力電力を求めた。このようにして求めたサブセル数10までのタンデム太陽電池の出力特性をFig. 2に示す。Fig. 2の結果からわかるように、6接合のタンデム太陽電池では約50%の変換効率と5 Vを超える開放端電圧が期待される²⁾。開放端電圧が高く短絡電流密度が小さいこの種の太陽電池は集光動作においてその特徴を発揮するものと考えられる。組成の異なるInGaN, InAlNを用いてタンデム太陽電池を作製する場合、各サブセル間には格子不整合が存在する。例えば、バンドギャップ0.7 eVと2.5 eVの材料を実現する場合、InGaN系では7.6%, InAlN系で4%の格子不整合が存在する。両者の間に中間の格子定数を有するサブセルを挿入し、5接合タンデム太陽電池を構成するならば、各サブセル間の格子不整合は、それぞれ、平均1.5%, 0.8%となり、InGaP/InGaAs/Ge系の例から考えて、これらは克服できない不整合率ではないと考えられる。さらにサブセル数を増加させれば格子不整合率はさらに減少する。従って、接合数の増加は太陽光スペクトルの利用効率の向上のみならず、サブセル間の格子不整合の低減にもつながるという利点がある。Fig. 3に、InGaNで10接合タンデム太陽電池を作製する場合の予想されるバンド図と各サブセル材料の組成を示す²⁾。サブセルの組成は、Fig. 2の計算で求められた禁止帯幅に基づき、InGaNのボーイングパラメータ1.43⁹⁾を仮定して決定した。このように、実際のタンデム太陽電池では窓層、Back surface field (BSF) 層やトンネル接合層が必要となり、構成としてはかなり複雑なものとなる。

一般に、単一接合の太陽電池に対する最適のバンドギャップが約1.5 eVであることはよく知られているが、InGaNなどの窒化物半導体を用いて単一接合太陽電池を開発することは得策とは言えない。何故ならば、バンドギャップが約1.5 eVの材料としてはGaAsやCdTeが存在し、これらの材料による高効率太陽電池がすでに開発されているからである。すなわち、単一接合太陽電池においては、InN系半導体太陽電池は混晶成長プロセスの複雑さや原料コストの面から、その優位性を発揮するのは難しいと考えられる。よって、窒化物半導体太陽電池の特徴がタンデム化であることは言うまでもないが、先行技術であるInGaP/InGaAs/Ge系3接合タンデム太陽電池の存在・現状を考えると、4接合以上のタン

デム太陽電池の存在・現状を考えると、4接合以上のタン

Fig. 2 Expected output performance for multi-junction tandem cells with a different number of sub-cells. A current generated in each sub-cell is assumed to be the same each other (the current matching is achieved).

Fig. 3 Band diagram of a 10-junction tandem solar cell designed using InGaN so that the photo-generated current for each sub-cell is matched. Each sub-cell has a window layer, a back-surface field layer and is connected using a tunnel junction.

デム太陽電池においてのみ、その存在意義を発揮できるものと考えられる。

3. InN 系窒化物半導体太陽電池開発の現状

3.1 InGaN, InAlN 薄膜の成長技術

タンデム太陽電池の作製に必要な0.6~2.5 eV のバンドギャップを実現するためには、In 組成 1~0.3 の InGaN, In 組成 1~0.5 の InAlN を作製する必要がある。これまでに、MOCVD 法を中心に、GaN については成膜技術や pn 接合技術が進んでいるが、三元混晶の成長、特に、中間組成域~In-rich の材料の検討例はかなり少ない。混晶成長において最初に懸念されるのは相分離の問題であるが、InGaN に関しては、成長温度等の最適化により相分離を抑制することができる^{10,11)}。Fig. 4 に MOVPE 法により成長させた InGaN 膜の X 線回折図形を示す¹¹⁾。この結果から、In 組成 0~0.8 の範囲に渡って相分離や金属 In の析出のない InGaN 膜が形成できていることがわかる。Fig. 5 は MOVPE 成長 InGaN の成長温度と In 組成との関係である¹¹⁾。In 組成 0.4 以下の InGaN に対しては成長温度によって、0.4 以上に対しては原

Fig. 4 X-ray diffraction $2\theta/\omega$ profiles for MOVPE-grown InGaN with a different In content.

Fig. 5 In composition in InGaN grown at a different temperature with a different TMI/(TMI+TEG) molar ratio.

料供給モル比 TMI/(TMI+TEG) を変化させることによって、成長膜の In 組成が制御されている。このように、InGaN についてはほぼ全組成域の混晶膜が得られる段階に至っている。

通常、InGaN 膜の成長にはサファイア基板が使用されるが、InGaN/Si2 接合タンデム太陽電池^{12,13)}への興味から、Si (111) 基板上への InGaN 成長も最近検討されるようになった。Fig. 6 は AlN 層を中間層として Si (111) 基板上への InGaN の MOVPE 成長を検討した結果¹⁴⁾である。この結果からわかるように、Si 基板上でもサファイア基板上と同様に単結晶 InGaN 膜が形成できている。Fig. 7 は GaN/α-Al₂O₃ (0001) テンプレート上および AlN/Si (111) 上に成長させた InGaN 膜の X 線ロッキングカーブ半値幅の In 組成依存性¹⁴⁾である。この結果からわかるように、InGaN 膜の

Fig. 6 X-ray diffraction $2\theta/\omega$ profiles for MOVPE InGaN grown on Si(111).

Fig. 7 FWHM of X-ray rocking curve (XRC) for the InGaN (0002) for samples grown on a different substrate with a different In composition.

結晶性は In 組成に大きく依存しており、基板の種類に対する依存性はあまり大きくない。すなわち、格子不整合や下地の結晶よりは InGaN 自体の性質が原因で In 組成 0.3 以上の中間組成で結晶性が顕著に低下していると考えられ、混晶成長の難しさを表しているものと考えられる。後述するように、現状では InGaN 系太陽電池としては In 組成約 0.3 までしか実現されていないが、その原因は In 組成 0.3 以上での結晶性の低下が主原因であると考えられる。

InGaN 系太陽電池の実現にとって、InGaN 膜成長の次の課題が p 型ドーピングである。Fig. 8 は、InGaN の MOVPE 成長において原料としてビスシクロペンタジエニルマグネシウム (Cp_2Mg) を用いて InGaN への Mg ドーピングを行った結果¹¹⁾である。この結果からわかるように、In 組成 0.4 近くまでの InGaN において p 型伝導が確認されているが、GaN の場合と同様、Mg の高濃度ドーピングを行うと再度 n 型化するという現象がみられる。また、 10^{18} cm^{-3} 以上の正孔濃度が得られているが、これには In 組成の増加とともに Mg アクセプターレベルが浅くなるという効果が寄与しているものと考えられる。

以上示したように、In 組成 0.4 近くまでの InGaN において p 型伝導が実現されているが、p 型伝導の再現性はもちろん、Mg 濃度、正孔濃度の制御性など、未確立の課題は多い。

一方、InAlN に関しては、TMA と NH_3 のアダクト反応の問題¹⁵⁾もあって MOVPE 成長の検討例が少なく、良質な単結晶薄膜形成が実現されるまでには至っていない。Fig. 9 は MOVPE 法による InAlN 膜形成の結果の一例である¹⁶⁾。この結果からわかるように、X 線回折ピークはかなりブロードではあるが In 組成 1~0.2 の InAlN 膜が形成されていることがわかる。InAlN の p 型化については 1 例のみ報告例¹⁷⁾があるが、ほとんど未検討に近い状況である。

3.2 InGaN 系太陽電池の研究状況

InN のバンドギャップ値の見直しを受けて、2003 年に InN 系材料の太陽電池への応用に関する提案¹⁸⁾があり、それ

Fig. 8 Electron or hole concentration in Mg-doped InGaN as a function of $\text{Cp}_2\text{Mg}/(\text{TEG}+\text{TMI})$ molar ratio.

以後、太陽電池作製に関する報告が急激に増加した。これまでに検討されている窒化物半導体太陽電池は二種類に大別される。Fig. 10 にそれらを模式的に示した。第一の種類は通常のパネルあるいはヘテロ接合素子である。他のひとつは i-InGaN や InGaN/GaN の量子井戸 (QW)、超格子 (SL) 層等を GaN の pn 層で挟んだもの (Sandwich type) で、この種の太陽電池の報告がかなり多い。その理由は、このような素子構造は LED など発光素子の構造と基本的に同じであり、すでに基本技術が存在するからであると考えられる。また、この構造では基本的に光吸収層である InGaN へのドーピングが不要であるという利点もある。Table 1 にホモ接合型素子¹⁹⁻²⁸⁾、Table 2 に Sandwich type 素子²⁹⁻⁴⁶⁾の報告例を示す。両構造ともに MOVPE 法や MBE 法によって作製されているが、主流は MOVPE 法である。InGaN のホモ pn 接合素子の作製は、InGaN の厚膜化や p 型化が必要のために報告例は必ずしも多くはないが、In 組成約 0.3 までの InGaN について報告されている。Fig. 11 は $\text{In}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{N}$ 膜を用いて作製した n^+-p 接合構造素子の構造と電流密度-電圧特性²⁴⁾である。この場合、光照射は $n^+-\text{InGaN}$ 側から行われた。この結果から明らかなように、ダイオード特性、光起電力が確認されるが、変換効率は約 0.2% と低く、今後大幅

Fig. 9 X-ray diffraction $2\theta/\omega$ profiles for MOVPE-grown InAlN with a different In content.

Fig. 10 Device structure for nitride semiconductor solar cells ever studied.

Table 1 Reports on homojunction $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ solar cells.

Structure (Growth Method)	In content (Thickness)	Voc and Jsc (Excitation)	Year 1st author	Reference
p-n InGaN (MOVPE)	0.18 (320 nm)	0.43 V and 0.04 mA/cm ² (360 nm)	2007 Yang	[19]
p-n InGaN (MOVPE)	0.28 (100 nm)	2.1 V (Light enhanced with UV)	2007 Jani	[20]
p-i-n InGaN (MBE)	0~0.3 (800 nm)	2.5 V and 30 mA/cm ² (GaN) (325 nm; 200 mW/cm ²)	2008 Chen	[21]
p-n InGaN (MBE)	0.31 (700~1000 nm)	0.55 V and 0.24 mA/cm ² (AM0); 0.78 V and 1.99 mA/cm ² (3 suns AM0)	2008 Misra	[22]
p-n InGaN (MOVPE)	0.12 (300 nm)	1.5~2 V and 0.04 mA/cm ²	2008 Jani	[23]
p-n InGaN (MOVPE)	0.25 (700 nm)	1.5 V and 0.5 mA/cm ² (AM 1.5)	2008 Yamamoto	[24]
p-i-n InGaN (MOVPE)	0.02~0.15 (400 nm)	2.24~0.96 V and 1.4~1.87 mA/cm ² (Xe Lamp)	2009 Cai	[25] [26]
p-n InGaN (MOVPE)	0.148~0.168 (80 nm)	1.73 V and 0.91 mA/cm ² (AM0); 1.47 V and 0.26 mA/cm ² (AM1.5)	2010 Jampana	[27]
p-n InGaN (MBE)	0.14~0.33 (400~1000 nm)	1.8~0.2 V and 1~2.2 mA/cm ² (Xe Lamp)	2011 Boney	[28]

Table 2 Reports on sandwich-type $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ solar cells.

Structure (Growth Method)	In content (Thickness)	Voc and Jsc (Excitation)	Year 1st author	Reference
p-i-n GaN/InGaN/GaN (MOVPE)	0.04~0.05 (200 nm)	2.4 V (Light enhanced with UV)	2007 Jani	[29]
p-i-n GaN/InGaN/GaN (MOVPE)	0.12 (200 nm)	1.81 V and 4.2 mA/cm ² (concentrated AM 0)	2008 Neufeld	[30]
p-i-n GaN/InGaN/GaN (MOVPE)	0.1 (150 nm)	2.1 V and 0.46 mA/cm ² (AM 1.5)	2008 Zheng	[31]
p-GaN/InGaN-GaN MQW/n-GaN(MOVPE)	0.3 (24 nm)	2 V and 1.5 mA/cm ² (white light source)	2009 Dahal	[32]
p-In _{0.1} 9Ga _{0.8} 1nN/InGaN-GaN SL/n-GaN (MOVPE)	0.25 (84 nm)	1.4 V and 0.8 mA/cm ² (AM 1.5)	2009 Sheu	[33]
p-GaN/InGaN-GaN MQW/n-GaN (MOVPE)	0.2 (15 nm) 0.28 (15 nm)	2.2 V and 0.66 mA/cm ² 1.8 V and 1.09 mA/cm ² (AM1.5; 100 mW/cm ²)	2009 Jeng	[34]
p-i-n GaN/InGaN/GaN Thin-film (MOVPE)	0.1 (150 nm)	2.09 V and 0.52 mA/cm ² (AM 1.5)	2009 Horng	[35]
p-GaN/InGaN-GaN MQW/n-GaN (MOVPE)	0.3 (27 nm)	1.95 V and 0.83 mA/cm ² (AM1.5)	2010 Lai	[36]
p-i-n GaN/InGaN/GaN (MOVPE)	0.08 (150 nm)	1.8 V and 0.44 mA/cm ² (AM1.5; 100 mW/cm ²)	2010 Tsai	[37]
p-GaN/Al _{0.14} Ga _{0.86} N-In _{0.21} Ga _{0.79} N SL/n-GaN (MOVPE)	0.21 (42 nm)	2.1 V and 0.84 mA/cm ² (AM1.5)	2010 Yang	[38]
p-GaN/InGaN-GaN MQW/n-GaN (MOVPE)	0.35 (36 nm)	1.8 V and 2.56 mA/cm ² (AM1.5; ~100 mW/cm ²)	2010 Dahal	[39]
p-i-n GaN/InGaN/GaN (MOVPE)	0.1 (250 nm)	2.23 V and 1.59 mA/cm ² (AM1.5; 155 mW/cm ²)	2010 Kuwahara	[40]
GaN/InGaN/GaN SL of InGaN (MOVPE)	0.17/0.07 (240 nm)	1.78 V and 3.08 mA/cm ² (AM1.5; 155 mW/cm ²)	2011 Kuwahara	[41]
p-i-n GaN/InGaN/GaN (MOVPE)	0.12 (60 nm)	1.89 V and 1.06 mA/cm ² (AM1.5)	2011 Mاتيoli	[42]
p-i-n GaN/InGaN/GaN Single or Graded In-GaN layer (MOVPE)	0.0 to 0.11 (200 nm)	1.33 V and 0.59 mA/cm ² (AM1.5)	2011 Lee	[43]
p-i-n GaN/InGaN/GaN (MBE)	0.11 (90 nm)	1.75 V and 1.11 mA/cm ² (AM0)	2011 Lang	[44]
p-i-n GaN/InGaN/GaN (MOVPE)	0.108 (200 nm)	2.0 V and 0.83 mA/cm ² (AM1.5)	2011 Shim	[45]
p-GaN/InGaN-GaN MQW/n-GaN (MOVPE)	0.23 (25 nm)	2.05 V and 1.09 mA/cm ² (AM1.5)	2011 Lee	[46]

な改善が必要である．特に，Fig. 11からわかるように，この太陽電池では直列抵抗が大きいために，短絡電流，曲線因子が極端に小さくなっている．これは，p-GaNの抵抗が高いことが主要な原因である．なお，Fig. 11では遮光時と光照射時の電流密度-電圧特性が大きく異なるが，これはp-InGaNやp-GaNが光伝導性を有することを示しているものと考えられる．

Sandwich type 素子に関しても，現在，In 組成約0.3までのInGaNを用いた検討が進められており，この構造の太陽電池において窒化物半導体として最高の変換効率約3%が実現されている^{39,41)}．性能のさらなる向上のためにはIn 組成をさらに増大させる必要があるが，この構造では，InGaN層が格子緩和しないためにはその厚さを臨界膜厚以下にしなければならないという制約があり，光吸収層のIn 組成を増すほど，臨界膜厚が小さくなるため膜厚をより小さくしなければならないという矛盾が存在する．

上記のように，InGaNではIn 組成0.4程度までの材料でp型化が実現され，一方，InAlNではp型化はかなり困難で

あることから，n-InAlN/p-InGaNヘテロ構造素子の作製を検討した例⁴⁷⁾がある．Fig. 12に作製された素子の構造と電流-電圧特性を示す．ここでは，n-In_{0.3}Al_{0.7}N/p-In_{0.2}Ga_{0.8}N構造素子が検討された．Fig. 12の結果からわかるように，ホモ接合素子²⁴⁾に比べて開放端電圧，短絡電流ともに劣っているが，一応，ヘテロ構造素子として初めて光応答が確認されている．特性の向上のためには，InGaN, InAlN 両膜の高品質化とともに，InGaN/InAlN 界面特性の改善が重要である．

Table 1, 2の結果からわかるように，従来の太陽電池と比較した場合，単一接合のInN系太陽電池技術の現状はかなり低いと言わざるを得ない．その原因としては，光吸収層であるInGaNのIn 組成が約0.3($E_g \approx 2.3$ eV)であるということである．そのために，発生電流も小さく，従って，変換効率も低い．In 組成0.3は10接合タンデム太陽電池 (Fig. 2)でのトップセルの材料にほぼ匹敵するもので，このサブセルのみで高効率化をねらうのは無理である．別の見方をすれば，現状はようやく10接合タンデム太陽電池のトップセルが実現されたという状況であって，今後，タンデム化のためにさらにIn 組成の高いサブセルの実現を図って行かなければならない．これまでのIn 組成0~0.3のInGaNセルの検討でも，In 組成の増加とともに開放端電圧や短絡電流密度の低下という問題がみられており，高In 組成のInGaNセル作製の前途は決して容易ではないと考えられる．従って，InN系タンデム太陽電池の実現には，In-rich InGaN, InNの薄膜成長に対するブレイクスルー技術の開発が不可欠のように思われる．

4. まとめおよび今後の課題

0.7~2.5 eVの間の任意のバンドギャップが実現できるとなったInGaN, InAlNが将来の高効率タンデム太陽電池材料として一躍注目されるようになった．これらInN系窒化物混晶半導体太陽電池の研究の現状は，In 組成0~0.3のInGaNを用いた太陽電池が実現されている段階であり，単一接合太陽電池として既存の太陽電池と競合できる段階ではない．現状は，謂わば，10接合タンデム太陽電池のトップセル1つが漸く実現できたといえる段階である．今後，In 組成0.3~1のInGaNのサブセルの作製を検討しそれらのタンデム化を検討する必要があるが，そのためには薄膜成長に対するブレイクスルー技術の開発が不可欠であろう．

謝辞

本研究の一部は，科学研究費補助金特定領域研究「窒化物光半導体のフロンティア—材料潜在能力の極限発現—」ならびにJST-CREST「太陽光を利用した独創的クリーンエネルギー生成技術の創出」の支援のもとに行われた．有益なご討論をいただいた福井大学大学院工学研究科 橋本明弘教授，福井大学産学官連携本部 杉田憲一博士研究員ならびに大阪市立大学大学院工学研究科 重川直輝教授に感謝致します．

Fig. 11 I-V characteristics and schematic cross-sectional view for a In_{0.25}Ga_{0.75}N homojunction device in the dark and under AM1.5, 100 mW/cm² illumination.

Fig. 12 Schematic cross-sectional view and I-V characteristics for a n-In_{0.3}Al_{0.7}N/p-In_{0.2}Ga_{0.8}N hetero-structure in the dark and under AM1.5, 100 mW/cm² illumination.

- 1) V. Yu. Davydov, A. A. Klochikhin, V. V. Emtsev, S. V. Ivanov, V. V. Vekshin, F. Bechstedt, J. Furthmüller, H. Harima, A. V. Mudryi, A. Hashimoto, A. Yamamoto, J. Aderhold, J. Graul and E. E. Haller: *Phys. Stat. Sol. (b)*, **230** (2002) R4.
- 2) A. Yamamoto, Md. R. Islam, T.-T. Kang and A. Hashimoto: *Phys. Stat. Sol. (c)*, **7** (2010) 1309.
- 3) A. G. Bhuiyan, K. Sugita, A. Hashimoto and A. Yamamoto: *IEEE J. Photovoltaics* **2** (2012) 276.
- 4) N. H. Karam, R. R. King, M. Haddad, J. H. Ermer, H. Yoon, H. L. Cotal, R. Sudharsanan, J. W. Eldredge, K. Edmondson, D. E. Joslin, D. D. Krut, M. Takahashi, W. Nishikawa, M. Gillanders, J. Granata, P. Hebert, B. T. Cavicchi and D. R. Lillington: *Sol. Energy Mater. Sol. Cells*, **66** (2001) 453.
- 5) A. Bett: *Abstracts of International Symposium on Innovative Solar Cells 2009*, Tokyo (2009) p. 36.
- 6) J. F. Geisz, S. Kurtz, M. W. Wanlass, J. S. Ward, A. Duda, D. J. Friedman, J. M. Olson, W. E. McMahon, T. E. Moriarty, J. T. Kiehl, M. J. Romero, A. G. Norman and K. M. Jones: *Proc. of 33rd IEEE PVSC*, San Diego (2008) No. 121.
- 7) M. A. Green, K. Emery, Y. Hishikawa, W. Warta and E. D. Dunlop: *Prog. Photovolt: Res. Appl.*, **19** (2011) 565.
- 8) D. J. Friedman, J. F. Geisz and J. M. Olsen: *J. Cryst. Growth*, **195** (1998) 409.
- 9) J. Wu, W. Walukiewicz, K. M. Yu, J. W. Ager III, E. E. Haller, H. Lu and W. J. Schaff: *Appl. Phys. Lett.*, **80** (2002) 4741.
- 10) M. Horie, K. Sugita, A. Hashimoto and A. Yamamoto: *Sol. Energy Mater. Sol. Cells*, **93** (2009) 1013.
- 11) K. Sasamoto, T. Hotta, K. Sugita, A. G. Bhuiyan, A. Hashimoto, A. Yamamoto, K. Kinoshita and Y. Kohji: *J. Cryst. Growth*, **318** (2011) 492.
- 12) J. W. Ager III, L. A. Reichertz, K. M. Yu, W. J. Schaff, T. L. Williamson, M. A. Hoffbauer, N. M. Haegel and W. Walukiewicz: *Proc. 33rd IEEE Photovoltaic Specialists Conference*, San Diego (2008) A1-31.
- 13) L. Hsu and W. Walukiewicz: *J. Appl. Phys.*, **104** (2008) 024507.
- 14) A. G. Bhuiyan, A. Mihara, K. Sugita, A. Hashimoto, A. Yamamoto, N. Watanabe, N. Shigekawa and H. Yokoyama: *21st Photovoltaic Science and Engineering Conference*, Fukuoka (2011) 2D-4P-20.
- 15) M. Tanaka, M. Yamamoto, T. T. Kang, A. Hashimoto and A. Yamamoto: *The 51st TMS Electronic Materials Conference*, Pennsylvania (2009) JJ3.
- 16) Y. Houchin, A. Hashimoto and A. Yamamoto: *Phys. Stat. Sol. (c)*, **5** (2008) 1571.
- 17) X. Chen, K. D. Matthews, D. Hao, W. J. Schaff, L. F. Eastman, W. Walukiewicz, J. W. Ager and K. M. Yu: *Proc. 33rd IEEE Photovoltaic Specialists Conference*, San Diego (2008) A7-34.
- 18) J. Wu, W. Walukiewicz, K. M. Yu, W. Shan, J. W. Ager, E. E. Haller, H. Lu, W. J. Schaff, W. K. Metzger and S. Kurtz: *J. Appl. Phys.*, **94** (2003) 6477.
- 19) C. Yang, X. Wang, H. Xiao, J. Ran, C. Wang, G. Hu, X. Wang, X. Zhang and J. Li: *Phys. Stat. Sol. (a)*, **204** (2007) 4288.
- 20) O. Jani, H. Yu, E. Trybus, B. Jampana, I. Ferguson, A. Doolittle and C. Honsberg: *Proc. 22nd European Photovoltaic Solar Energy Conference*, Milan (2007) p. 64.
- 21) X. Chen, K. D. Matthews, D. Hao, W. J. Schaff and L. F. Eastman: *Phys. Stat. Sol. (a)*, **205** (2008) 1103.
- 22) P. Misra, C. Boney, N. Medelci, D. Starikov, A. Freundlich and A. Bensaoula: *Proc. 33rd IEEE Photovoltaic Specialists Conference*, San Diego (2008) N12-342.
- 23) O. Jani, B. Jampana, M. Mehta, H. Yu, I. Ferguson, R. Opila and C. Honsberg: *Proc. 33rd IEEE Photovoltaic Specialists Conference*, San Diego (2008) C1-38.
- 24) A. Yamamoto, K. Sugita, M. Horie, Y. Ohmura, Md. R. Islam and A. Hashimoto: *Proc. 33rd IEEE Photovoltaic Specialists Conference*, San Diego (2008) G5-54.
- 25) X.-M. Cai, S.-W. Zeng and B.-P. Zhang: *Electron. Lett.*, **45** (2009) 1266.
- 26) X.-M. Cai, S.-W. Zeng and B.-P. Zhang: *Appl. Phys. Lett.*, **95** (2009) 173504.
- 27) B. R. Jampana, A. G. Melton, M. Jamil, N. N. Faleev, Robert L. Opila, I. T. Ferguson and C. B. Honsberg: *IEEE Electron Device Lett.*, **31** (2010) 32.
- 28) C. Boney, I. Hernandez, R. Pillai, D. Starikov, A. Bensaoula, M. Henini, M. Syperek, J. Misiewicz and R. Kudrawiec: *Phys. Stat. Sol. (c)*, **8** (2011) 2466.
- 29) O. Jani, I. Ferguson, C. Honsberg and S. Kurtz: *Appl. Phys. Lett.*, **91** (2007) 132117.
- 30) C. J. Neufeld, N. G. Toledo, S. C. Cruz, M. Iza, S. P. DenBaars and U. K. Mishra: *Appl. Phys. Lett.*, **93** (2008) 143502.
- 31) X. Zheng, R.-H. Horng, D.-S. Wu, M.-T. Chu, W.-Y. Liao, M.-H. Wu, R.-M. Lin and Y.-C. Lu: *Appl. Phys. Lett.*, **93** (2008) 261108.
- 32) R. Dahal, B. Pantha, J. Li, J. Y. Lin and H. X. Jiang: *Appl. Phys. Lett.*, **94** (2009) 063505.
- 33) J.-K. Sheu, C.-C. Yang, S.-J. Tu, K.-H. Chang, M.-L. Lee, W.-C. Lai and L.-C. Peng: *IEEE Electron Device Lett.*, **30** (2009) 225.
- 34) M.-J. Jeng, Y.-L. Lee and L.-B. Chang: *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **42** (2009) 105101.
- 35) R.-H. Horng, S.-T. Lin, Y.-L. Tsai, M.-T. Chu, W.-Y. Liao, M.-H. Wu, R.-M. Lin and Y.-C. Lu: *IEEE Electron Device Lett.*, **30** (2009) 724.
- 36) K. Y. Lai, G. J. Lin, Y.-L. Lai, Y. F. Chen and J. H. He: *Appl. Phys. Lett.*, **96** (2010) 081103.
- 37) C.-L. Tsai, G.-S. Liua, G.-C. Fana and Y.-S. Leea: *Solid-State Electron.*, **54** (2010) 541.
- 38) C. C. Yang, J. K. Sheu, X.-W. Liang, M.-S. Huang, M. L. Lee, K. H. Chang, S. J. Tu, F.-W. Huang and W. C. Lai: *Appl. Phys. Lett.*, **97** (2010) 021113.
- 39) R. Dahal, J. Li, K. Aryal, J. Y. Lin and H. X. Jiang: *Appl. Phys. Lett.*, **97** (2010) 073115.
- 40) Y. Kuwahara, T. Fujii, Y. Fujiyama, T. Sugiyama, M. Iwaya, T. Takeuchi, S. Kamiyama, I. Akasaki and H. Amano: *Appl. Phys. Express*, **3** (2010) 111001.
- 41) Y. Kuwahara, T. Fujii, T. Sugiyama, D. Iida, Y. Isobe, Y. Fujiyama, Y. Morita, M. Iwaya, T. Takeuchi, S. Kamiyama, I. Akasaki and H. Amano: *Appl. Phys. Express*, **4** (2011) 021001.
- 42) E. Matioli, C. Neufeld, M. Iza, S. C. Cruz, Ali A. Al-Heji, Xu Chen, Robert M. Farrell, S. Keller, S. DenBaars, U. Mishra, S. Nakamura, J. Speck and C. Weisbuch: *Appl. Phys. Lett.*, **98** (2011) 021102.
- 43) H. C. Lee, Y. K. Su, W. H. Lan, J. C. Lin, K. C. Huang, W. J. Lin, Y. C. Cheng and Y. H. Yeh: *IEEE Photonics Tech. Lett.*, **23** (2011) 347.
- 44) J. R. Lang, C. J. Neufeld, C. A. Hurni, S. C. Cruz, E. Matioli, U. K. Mishra and J. S. Speck: *Appl. Phys. Lett.*, **98** (2011) 131115.
- 45) J.-P. Shim, M. Choe, S.-R. Jeon, D. Seo, T. Lee and D.-S. Lee: *Appl. Phys. Express*, **4** (2011) 052302.
- 46) Y.-J. Lee, M. H. Lee, C.-M. Cheng and C.-H. Yang: *Appl. Phys. Lett.*, **98** (2011) 263504.
- 47) K. Sugita, T. Hotta, M. Tanaka, K. Sasamoto, A. G. Bhuiyan, A. Hashimoto and A. Yamamoto: *9th International Conference on Nitride Semiconductors*, Glasgow (2011) No. PD3.18.