

温度変化I-V 測定によるAlGaAs/GaAs 単一量子井戸からのキャリア熱脱出過程の評価

著者	村上 匠, 倉留 弘憲, 杉本 泰士, 相原 健人, 福山 敦彦, 碓 哲雄
雑誌名	宮崎大学工学部紀要
巻	44
ページ	1-4
発行年	2015-07-31
URL	http://hdl.handle.net/10458/5553

温度変化 I - V 測定による AlGaAs/GaAs 単一量子井戸からの キャリア熱脱出過程の評価

村上 匠^{a)}・倉留 弘憲^{b)}・杉本 泰士^{a)}・相原 健人^{c)}・福山 敦彦^{d)}・碓 哲雄^{e)}

Study of Thermally Carrier Escape from an AlGaAs/GaAs Single Quantum Well Using Temperature-Dependent I - V Measurements

Takumi MURAKAMI, Hironori KURADOME, Taishi SUGIMOTO,
Taketo AIHARA, Atsuhiko FUKUYAMA, Tetsuo IKARI

Abstract

To investigate the thermally carrier escape from a quantum well (QW) and its transportation, the temperature-dependent current-voltage (I - V) measurements were adopted to the AlGaAs/GaAs single QW structure. Since the present QW structure was composed of thick i -AlGaAs barriers and i -GaAs well, the injected carriers should thermally escape from the QW. The I - V measurements with applied voltage of $-0.3\sim 0.4$ V were carried out at $100\sim 300$ K. The I - V curves showed the double-Schottky characteristics for all measured temperatures, and output currents increased with increasing the temperature. They well reflected the thermally carrier escapes from QW. Assuming the two processes of thermally carrier escape from the QW and recombination within QW, the activation energies for thermally carrier escapes could be estimated by fitting the Arrhenius equations. Estimated activation energies were corresponded to the calculated values between first electron subbands in QW and the top of AlGaAs potential barriers. It was confirmed that the injected carriers can thermally escape from the QW even the high potential barrier of a few hundreds of photon energy.

Keywords: Quantum well, Thermally carrier escape, Activation energy, I - V characteristic

1. はじめに

近年、化石燃料の枯渇や環境汚染などが問題となっており、再生可能且つクリーンなエネルギー源として太陽光発電が注目されている。なかでも、多接合太陽電池は高効率な太陽電池として注目されている¹⁾。実際に InGaP/InGaAs/Ge 三接合太陽電池が約 240 倍の集光動作で変換効率 40% を達成しており、更なる高効率化が期待されている²⁾。しかしながら、三接合太陽電池セルの問題として、ミドルセルが吸収する波長帯が最も狭いことから出力電流が他のトップおよびボトムセルに比べて小さく、結果的にセル全体の短絡電流がミドルセルの光電流に律速される電流不整合がある。そこで現在、ミドルセルとして量子井戸を挿入した量子井戸太陽電池が提案されている³⁾。量子井戸では、構成される井戸層幅や障壁高さを変えることで実質的な光吸収エネルギーを変化させることができる。これをミドルセルに挿入することで吸収領域を長波長

化させることができ、結果として短絡電流値の増加が期待できる。特に、Imperial College の研究グループが従来型の InGaP/GaAs 二接合タンデムセルにおいて、GaAs サブセル中に InGaAs/GaAsP 系の歪補償多重量子井戸構造を導入することで、変換効率 30.7% (AM 1.5, 54 倍集光)⁴⁾ を達成している。

量子井戸構造で形成された光励起キャリアを収集するには、井戸内から熱的に脱出させる必要がある。しかしながら、熱脱出したキャリアが隣接する量子井戸の離散化準位に捕獲されて再結合する過程も同時に発生し、これはキャリア損失となる。結果として開放端電圧や曲線因子が減少し、従来型のセルと比較して十分な特性改善が得られない場合が多く、量子井戸挿入の優位性を示すには至っていない。したがって、キャリアの熱励起過程についての知見を得ることは量子井戸太陽電池のセルデザインにおいて、非常に有益なことである。

そこで本研究では、障壁の高さが異なる AlGaAs/GaAs 単一量子井戸 (Single Quantum Well: SQW) に電流-電圧 (以後、 I - V) 測定を適用し、SQW からの熱脱出および輸送効率について評価した。さらにその温度依存性から熱脱出に必要な活性化エネルギーを算出し、キャリアが SQW の外へ脱出する過程について議論した。

a)応用物理学専攻大学院生

b)電気電子工学専攻大学院生

c)物質・情報工学専攻大学院生

d)電気物理工学科准教授

e)電子物理工学科教授

2. 実験

本研究で用いた試料は、*n*-GaAs 基板上に AlGaAs/GaAs SQW を形成し、その上に *n*-GaAs を成長させた *n-i-n* 構造である。そのため、量子井戸構造内に内部電場は存在しないフラットバンドとなっている。本研究では、表面側の AlGaAs 障壁層の Al 組成比を変化させることで障壁高さを変化させた 2 つの試料を用意した。両試料の伝導帯側のバンド構造図を図 1 に示す。1 つは Al 組成比 26.3% で障壁高さ 209 meV (以後、low-barrier 試料。図 1(a))、もう 1 つは 35.7% で 293 meV (high-barrier 試料。図 1(b)) で、共にその障壁幅は 30 nm と非常に厚く、キャリアのトンネル確率は極めて低い。一方、裏面側の障壁層の Al 組成比は両試料ともに 40% であり、その膜厚は 18 ML (約 5 nm) であるためキャリアはトンネル効果によって SQW から障壁外へ、あるいは障壁外から SQW へと移動することができる。本研究では実験結果と比較するために、SQW 内に形成される電子の第 1 離散化準位 (e1) のエネルギーを計算した。このとき、GaAs 井戸層と AlGaAs 障壁層の有効質量の違いも考慮した。えられた数値は図 1 に記載されている。

I-V 測定は、電流値をより正確に測定するためにソースメータ (KEITHLEY 社製 2611b) で -0.3 ~ 0.4 V の電圧を印加しそのときの電流値を四端子法で測定した。低温測定にはクライオスタット (OXFORD 社製 Optistat DN-V) を用いた。クライオスタット下部のコールドフィンガーに試料を取り付け、寒剤として液体窒素を注入し温度コントローラーで試料温度を制御した。*I-V* 測定は 100 ~ 300 K の試料温度範囲で行った。

3. 実験結果および考察

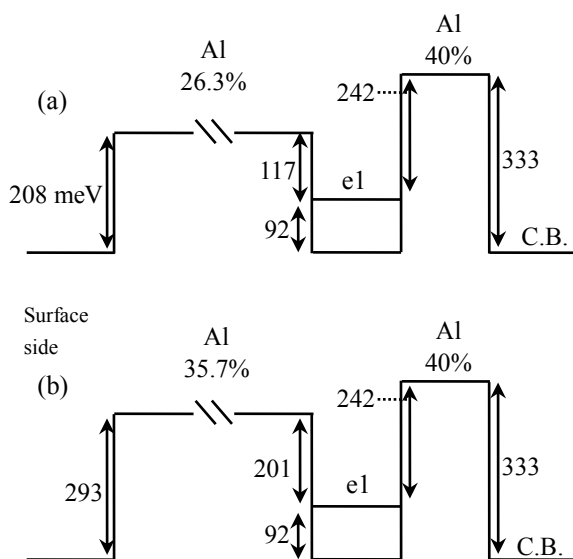


図 1. low-barrier 試料(a)と high-barrier 試料(b)の伝導帯の電子構造。

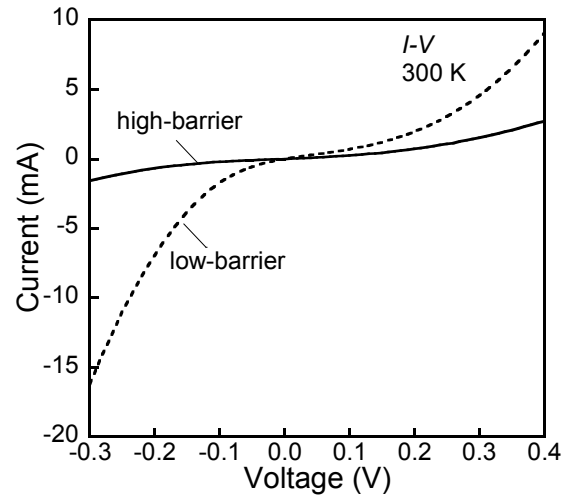


図 2. *I-V* 特性比較 (300 K).

図2に、300 Kにおける両試料の*I-V*曲線を示す。本試料は*n-i-n*構造であるため*p-n*接合ダイオードの様な整流性は示さず、順方向および逆方向バイアスともにショットキー接合のような曲線を示した。これは図1から明らかのようにどちらのバイアス方向でもAlGaAs障壁層がショットキー障壁の役割を果たしているためであると考えられ、同時に、本測定結果は、SQWからのキャリア脱出過程を捉えているものと判断できる。low-barrier試料ではより大きな電流値が得られているが、これは試料表面側のAlGaAs障壁高さが低いため、効率的にキャリアSQWから熱脱出することに起因すると考えられる。

得られた*I-V*特性がSQWからのキャリア熱脱出を反映していることから、試料温度を変化させながら*I-V*特性測定を行った。結果を図3と4に示す。両試料ともに温度上昇により出力電流が増加した。つまり、温度上昇によりSQW内のキャリアが熱脱出する割合が増加したためと理解することができる。

これらの温度依存性から、SQWからのキャリア脱出過程を詳細に議論するために、任意の電圧を印加した際の出力電流値をピックアップして、SQW内のキャリア脱出に必要な活性化エネルギーを算出した。SQWに注入されたキャリアが、SQW外へ熱脱出する過程とSQW内で再結合する過程の2つを示すと仮定した場合、量子効率 η_{I-V} は次の式で表される。

$$\eta_{I-V}(T) = \frac{R_{th}(T)}{R_{th}(T) + R_{rc}} \quad (1)$$

ここで R_{th} と R_{rc} は、それぞれ熱脱出および再結合確率である。 R_{th} は絶対温度 T に依存し、次の式で表される⁵⁾。

$$R_{th}(T) = A \exp\left(-\frac{E_{es}}{k_B T}\right) \quad (2)$$

ここで、 A は任意定数、 E_{es} は熱脱出に必要な活性化エネルギー (eV)、 k_B はボルツマン定数である。任意の電圧を印加

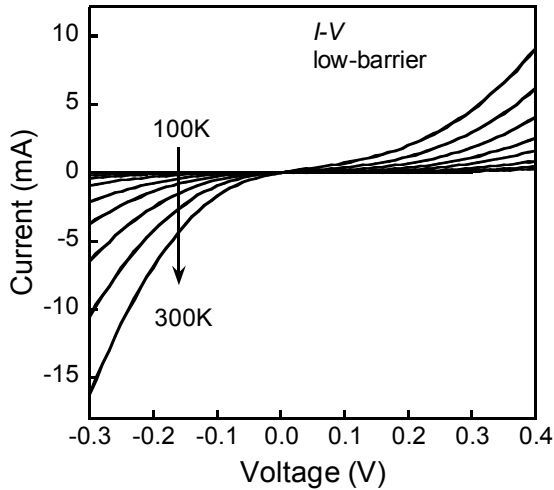


図 3. low-barrier 試料の I - V 特性.

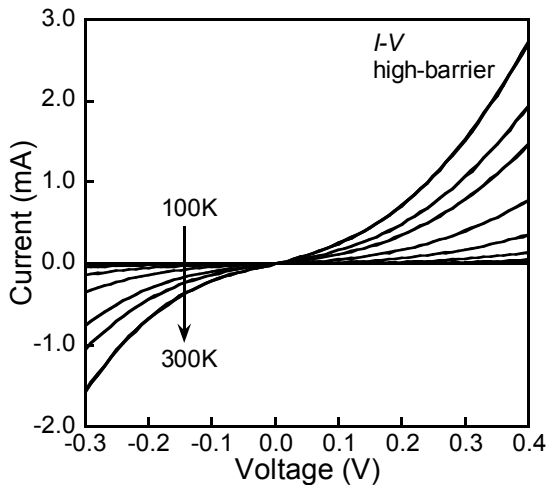


図 4. high-barrier 試料の I - V 特性.

した際の出力電流値の温度依存性を式(1)でフィッティングすることで活性化エネルギーが得られる。図5に low-barrier 試料に 0.3 V を印加した時の出力電流の温度依存性(白丸)と、式(1)を用いたフィッティング曲線(破線)を示す。図から明らかなように、非常によい一致が得られた。解析の結果、約 115 meV の E_{es} が得られた。この数値は、図 1(a) に示す、電子の第一離散化準位(e1)から表面側の障壁層の高さである 117 meV により一致を示した。つまり、試料への順バイアスによって、電子は試料裏側の AlGaAs 障壁をトンネリングにより SQW 内に注入され、試料表側の AlGaAs 障壁側へ熱脱出した結果が出力電流として検出されたと理解できる。

一方、low-barrier 試料に逆方向バイアス -0.3 V を印加した際の出力電流値の温度変化解析から算出した E_{es} は 119 meV であった。この場合、電子は試料表面側から裏面側へ流れる。図 1(a) より、表面側に存在する AlGaAs 障壁 (208 meV) か、一旦 SQW 内に捕獲されたキャリアが熱脱出する際の AlGaAs 障壁 (242 meV) のどちらかの障壁を反映する

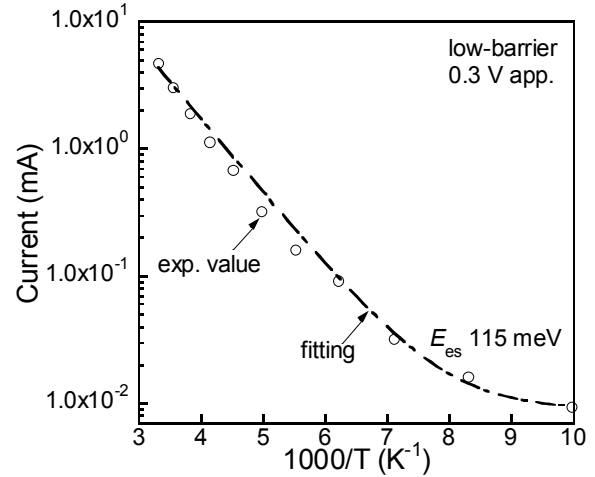


図 5. low-barrier 試料のフィッティング結果.

と考えられたが、結果としてどちらの値とも一致しなかった。一方、high-barrier 試料において順方向および逆方向バイアスで得られた E_{es} は 215 と 233 meV であり、それぞれ SQW の左側障壁高さ(図 1(b)、201 meV)、右側障壁高さ(同図、242 eV)に相当する値が得られた。

ここで low-barrier 試料の逆方向バイアス時に得られた E_{es} がどこの障壁を反映したものかについて考察する。SQW に電場が印加された場合の、ある離散化準位から障壁層上部までの有効障壁高さ ($\Delta E_{\text{barrier}}$) は次式のように表すことができる⁵⁾。

$$\Delta E_{\text{barrier}}(F) = \Delta E_c - E_n - q \frac{FW}{2} \quad (3)$$

ここで ΔE_c は SQW の伝導帯下端から障壁上端までの高さ、 E_n は電子の離散化準位エネルギー、 F は電界強度 (V/m)、そして W は井戸厚 (m) である。つまり、順方向および逆方向バイアスが増加すると $\Delta E_{\text{barrier}}$ は単調減少することを意味する。一方、SQW の外側に位置するエネルギー障壁、例

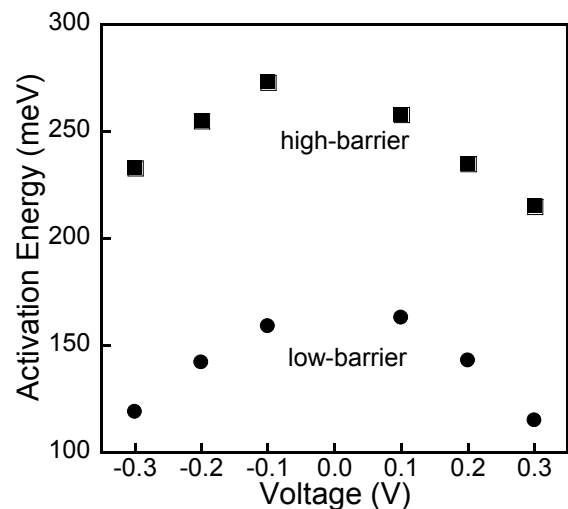


図 6. 活性化エネルギーの印加電圧依存性.

えば図1(a)中の試料表面側障壁(208 meV)や裏面側障壁(333 meV)の場合は、その障壁高さは印加電圧に依らず一定である。したがって、 E_{es} が印加電圧に比例して変化すれば、SQW内からの熱脱出に関する活性化エネルギー、一定であればSQW外部の障壁高さのエネルギーを反映していることになる。

図6に両試料の E_{es} の印加電圧依存性を示す。両試料ともに順方向および逆方向バイアス印加電圧の増加によって E_{es} は単調に減少した。このことから、本測定で得られた E_{es} は全てSQW内からキャリアが熱脱出する際の活性化エネルギーを反映していると判断できる。式(3)より、 $F=0$ V時の値が真の活性化エネルギーとなる。図6の結果から、low-barrier試料で184、high-barrier試料で287 meVという値が得られた。これらの値は図1に示した障壁高さの理論計算値とは一致せず、いずれの試料も計算値よりも大きな値であった。この理由として、基板側の障壁が18 ML (約5 nm)と薄く電子がトンネリングしてしまうため、有効障壁高さが小さく見積もられた可能性がある。より厳密な活性化エネルギー解析は進行中であるが、本研究結果から、障壁高さが100から200 meVという、格子の持つ熱エネルギー($k_B T$)よりも非常に大きい場合でもキャリアがSQWから熱脱出することが確認された。

4. 結論

本研究では、 i 層に AlGaAs/GaAs SQW を挿入した $n-i-n$ 構造試料に対して試料温度を変化させた $I-V$ 測定を適用し、SQWからのキャリアの熱励起過程について議論した。出力電流値の温度変化からアレニウスの式を用いて活性化エネルギー E_{es} を算出し、計算で得られた障壁高さと比較した。その結果、SQWの障壁高さに近い値が得られ、SQW内のキャリアは熱励起によってQW外へと脱出することが示された。障壁高さが100から200 meVという、格子の持つ熱エネルギー($k_B T$)よりも非常に大きい場合でもキャリアがSQWから熱脱出するという事実は、今後の量子井戸太陽電池のセル設計において重要な知見であり、より詳細なキャリアの熱脱出ならびにその後の輸送過程を議論する必要がある。

参考文献

- 1) M. Yamaguchi, Aurangzeb Khan, Nethaji Dharmarasu: "Analysis for superior radiation resistance of InP-based solar cells", *Solar Energy Materials & Solar Cells*, Vol. 75, pp. 261-269, 2003.
- 2) R. R. King, D. C. Law, K. M. Edmondson, C. M. Fetzer, G. S. Kinsey, H. Yoon, R. A. Sherif and N. H. Karam: "40% efficient metamorphic GaInP/GaInAs/Ge multijunction solar cells", *Appl. Phys. Lett.* Vol. 90, pp. 183516-1-3, 2007.
- 3) K. W. J. Barnham, G. Duggan: "A new approach to high-efficiency multi-band-gap solar cell", *J. Appl. Phys.*, Vol. 67, pp. 3490-3493, 1990.
- 4) A. Ioannides, T.N.D. Tibbits, J. P. Connolly, D. B. Bushnell, K. W. J. Barham, C. Calder, G. Hill, J. S Roberts, G. Smekens, J. Van Begin: "Advance in strain Balanced Quantum Well Tandem Solar Cell", *Proc. 22nd European photovoltaic Solar Energy Conference (22nd EU-PVSEC)*, pp. 221-224, 2007.
- 5) A. Alemu, J. A. H. Coaquira, A. Fureundlich: "Dependence of device performance on carrier escape sequence in multi-quantum-well $p-i-n$ solar cells", *J. Appl. Phys.* Vol. 99, pp. 084506-1-5, 2006.