

行政院國家科學委員會專題研究計畫 成果報告

三五族多接面疊接太陽電池之研究 研究成果報告(完整版)

計畫類別：個別型
計畫編號：NSC 96-NU-7-002-003-
執行期間：96年01月01日至96年12月31日
執行單位：國立臺灣大學電子工程學研究所

計畫主持人：林浩雄

計畫參與人員：博士班研究生-兼任助理：馬大鈞、林衍廷
碩士班研究生-兼任助理：陳紀光、王尚平

處理方式：本計畫可公開查詢

中 華 民 國 97 年 03 月 31 日

行政院國家科學委員會補助專題研究計畫 ☒ 成果報告
☐ 期中進度報告

三五族多接面疊接太陽電池之研究

計畫類別：☒ 個別型計畫 ☐ 整合型計畫

計畫編號：NSC 96 — NU — 7 — 002 — 003 —

執行期間： 96 年 01 月 01 日至 96 年 12 月 31 日

計畫主持人：林浩雄

共同主持人：

計畫參與人員：馬大鈞、林衍廷、陳紀光、王尚平

成果報告類型(依經費核定清單規定繳交)：☐ 精簡報告 ☒ 完整報告

本成果報告包括以下應繳交之附件：

- ☐ 赴國外出差或研習心得報告一份
- ☐ 赴大陸地區出差或研習心得報告一份
- ☐ 出席國際學術會議心得報告及發表之論文各一份
- ☐ 國際合作研究計畫國外研究報告書一份

處理方式：除產學合作研究計畫、提升產業技術及人才培育研究計畫、
列管計畫及下列情形者外，得立即公開查詢

☐ 涉及專利或其他智慧財產權，☐ 一年☐ 二年後可公開查詢

執行單位：國立台灣大學電子工程學研究所

中 華 民 國 97 年 3 月 31 日

中文摘要

關鍵詞：氣態源分子束磊晶、低含氮化合物、氮砷銻化鎵、砷化鎵、熱退火、能隙藍移、多接面疊接太陽能電池

本計劃使用氣態源分子束磊晶技術於砷化鎵基板上成長氮砷銻化鎵四元材料。在 420、450 和 490°C 成長溫度樣品的變溫光激發螢光實驗結果，發現 420°C 所成長的樣品會有較佳的成分均勻度。從熱退火的特性研究中發現 GaAsSbN 樣品經過熱退火後會發生能隙藍移，原因以目前的研究結果將歸因於 N 之次鄰接原子，As 和 Sb 的交換所致。使用能隙為 1 eV 且具晶格匹配砷化鎵基板的 GaAsSbN 四元材料為異質接面太陽電池之主吸收層材料，在太陽光模擬光源 AM 1.5 (61.5 mW/cm^2 , less than 1 sun) 照射下的開路電壓為 0.27 伏特和短路電流密度為 13.20 mA/cm^2 ，轉換效率和填充因子分別為 4.2% 和 0.64。

Abstract

Keywords: Gas-source molecular beam epitaxy, dilute nitride, GaAsSbN, GaAs, thermal annealing, energy gap blue shift, tandem solar cell

We use GSMBE technique to grow GaAsSbN on GaAs substrate. From the temperature dependent PL results, we found that the composition uniformity of the sample grown at 420°C is better than the samples grown above 420°C. The origin of the energy gap blue shift due to thermal annealing treatment was investigated. We attribute to the second neighbor adatoms of N, As and Sb, were intermixing during RTA treatment. We applied the 1 eV GaAsSbN material which is lattice-matched to the GaAs substrate material in the hetero-junction structure solar cell. Under illumination of AM 1.5 (61.5 mW/cm^2 , less than 1 sun), the open loop voltage and short circuit current density is 0.27 V and 13.20 mA/cm^2 , respectively. The conversion efficiency and fill factor of the 1 eV solar cell is 4.2% and 0.64.

目錄

中文摘要	I
Abstract.....	I
目錄	II
附表索引	III
附圖索引	IV
前言	1
研究目的	1
文獻探討	2
研究方法	2
結果與討論	
成長溫度對 GaAsSbN 材料之成份均勻度探討	3
熱退火的特性研究	5
GaAsSbN 材料於 1 eV 太陽電池的應用	6
結論	7
參考文獻	8
計畫成果自評	9

附表索引

表一 樣品的磊晶參數，EPMA 成分定量結果，Varshni 方程式擬合參數.. 4

附圖索引

- 圖一 經過 800°C 熱退火處理的 GaAsSbN 樣品之變溫光激發螢光峰值位置與溫度之關係圖，其中實線部份為 Varshni 擬合曲線..... 4
- 圖二 固定於基板溫度 390°C，AsH₃和N₂流量分別為 2.79 和 0.76 sccm，電漿源功率 300 瓦，改變銻分子束通量所成長之樣品的DXRD rocking curve量測結果..... 5
- 圖三 GaAsSbN 與 InGaAsN 材料的室溫吸收譜截止能量與室溫光激譜峰值能量與退火溫度的關係..... 6
- 圖四 利用 FTIR 量測 Ga-N 的振動模態與熱退火溫度之關係圖 6
- 圖五 以 1 eV GaAsSbN 為主吸收層材料之太陽電池結構圖 7
- 圖六 1 eV太陽電池之(a)外部量子效率頻譜，(b)太陽光模擬光源AM 1.5 (61.5 mW/cm², less than 1 sun)照射時之電流密度與電壓關係圖 ... 7

前言

近年來國際石油價格不斷攀升，且石化能源亦逐漸耗竭。而台灣的能源仰賴進口，佔98%，能源的自主性過低對國家安全影響甚大。在台灣的能源結構裡碳佔了約40%，燃燒碳所造成的溫室氣體排放無疑是加速地球暖化的幫兇。世界各先進國家無不積極提高潔淨能源的比重。潔淨能源種類很多，如風力、水力和太陽電池等...

在眾多的再生能源中，以太陽電池最為適合普遍地開發，以德國福萊堡市(Freiburger)為例，該地區面積僅台灣1/235，但是其太陽電池裝置累積容量卻是台灣的五倍之多。以台灣地處亞熱帶區，日照豐沛，且半導體產業技術成熟，極具發展半導體太陽電池優勢。由經濟部能源局所著之能源政策白皮書內的“再生能源發展”說明了政府欲提高自主能源和潔淨能源的比例。其中的太陽電池部份，希冀在2010年時太陽光電發電部分能夠有2.1萬瓩的規模。

新的能源技術的開發勢在必行。在多種能源技術中，太陽能電池光伏特技術是一個有希望的重要技術。目前太陽能電池技術的問題仍在於電池的成本。使用聚光型太陽電池技術可以降低電池的面積及其在整體模組成本中的比率。在這種條件下，使用高效率太陽能電池將具有優勢。目前具有最高效率的太陽能電池為多接面三五族半導體太陽能電池。基本上這是以GaAs相關材料為基礎的技術[1-2]，分別利用InGaP (1.85 eV)、GaAs (1.42 eV)與Ge (0.67 eV)三種具不同能隙的接面電池來吸收太陽光譜，其電池理想轉換效率在50%。然而以目前Spectrolab公司量產的三接面太陽電池轉換效率約為28.3%，該實驗室最佳值為41%的成績而言，三階面太陽電池的轉換效率提升仍為一極具挑戰的課題。要進一步提升此種太陽電池的效率可由其原理來瞭解[3]。基本上，使用單一材料製作太陽電池以轉換太陽光時，其損耗有三個部分，首先是材料能隙以下的太陽光子均無法吸收，其次是材料能隙以上的太陽光子，雖然能被吸收，但所產生的電子、電洞會從各自能帶的高能量能階，藉由散射耗損能量，分別落到導電帶與價電帶邊緣，再經由擴散或飄移成為光電流。在散射的過程中即造成能量損耗，其損耗即為光子與能隙的能量差。最後是元件在最高功率轉換效率下其電壓會比能隙除以單位電荷的值小，因而造成轉換效率的損耗。這個部分與元件的特性有關，基本上在最高功率轉換偏壓點之下，元件處於順偏狀態，若元件之順偏電流愈小、動態電阻愈大，則將有愈大的電壓。

對於前述第一與第二種損耗，我們可以利用多種材料分別吸收不同頻帶的太陽光。一方面可以延伸吸收的範圍，另一方面這種作法也可減小能隙與所吸收之光子能量差距，進一步降低第二種能量損耗。因此使用愈多的接面來吸收與能隙相近的光子，其損耗便愈小而轉換效率愈高。理論上若能做到36個接面，轉換效率將高達75% [4]。明顯地，在技術發展上，將逐步往多接面的方向前進。然而使用堆疊式結構來製作多接面太陽電池時，需要使各個材料所製成的各個太陽電池在相同電流之下達到最佳轉換效率，整體元件才能達到最高的轉換效率。若我們更進一步考慮未來的發展，在以GaAs基板為基礎的前提下，增加太陽電池的接面數目以繼續提升轉換效率。在能隙大於GaAs的部分，可以找到許多與GaAs晶格匹配適於太陽電池之用的材料，例如InGaAsP, InGaAlP, AlGaAs等合金材料。這些合金材料可以涵蓋相當大的能隙範圍，其成長技術並已為業界所熟悉。然而在GaAs與Ge的能隙之間或比Ge能隙更低的範圍，仍須開發可匹配於GaAs或Ge基板且品質適於太陽電池應用之厚層材料技術。含氮化合物半導體材料是一項有希望的選擇。

研究目的

本計畫研究目的，是以氣態源分子束磊晶法成長GaAsSbN四元含氮化合物半導體材料，尋找較佳的磊晶條件。並研究GaAsSbN經過快速熱退火的製程步驟後的材料特性。由

熱退火的研究中發現 GaAsSbN 經過快速熱退火製程步驟後的特性會有巨大的改變，故元件結構勢必針對此特性做優化，此為本研究工作之一重要目的。由過去所累積之磊晶經驗，我們嘗試將材料應用在太陽電池結構中，替未來使用 GaAsSbN 材料於多接面疊接太陽電池做準備。

文獻探討

在傳統的半導體中例如 GaAs 或 InGaAs 中加入少量的氮，可藉由原來的半導體導電帶與氮原子交互作用產新的低能帶，達到能隙降低的目的。同時由於氮原子較小也可使晶格縮小，如果配以適當的銦或銻原子含量，可以達到與 GaAs 晶格匹配的條件。因而可以作為能隙介於 GaAs 與 Ge 之間的太陽能電池新材料。然而目前含氮材料仍有一些問題需要解決。氮是個尺寸相當小的原子，加入一般的半導體後容易導致局部晶格結構的改變，造成缺陷。這些缺陷包括 N-As 格隙缺陷(interstitials)、N-N 格隙缺陷、N 聚集(clusters)、N 與 Ga 空位(vacancy)所合成的複合缺陷(complexes)等[5]。這些缺陷會伴隨產生非放光復合中心，使得材料的光激螢光譜特性劣化，在氮的比例超過 3% 時尤其會急遽惡化[6]。為了改善材料的品質，通常必須使用熱退火技術。但經過熱退火過程，在 InGaAsN 材料中發現，會導致原本與氮鍵結的銻被銦取代。這種化學結構的改變，造成了能隙以及光激光譜的藍移，抵銷了原本要降低的能隙量[7]。除了退火效應外，電流的傳輸在低含氮半導體中也是相當重大的課題。除了非放光復合中心所造成的載子擴散長度劣化之外，氮的不均勻摻雜會造成導電帶能量的空間起伏，進而限制了電子的傳導[8]。因此在含氮材料所製的太陽電池中可以看到電子的擴散長度遠較電洞為小。為了提昇電池的量子效率，必須利用寬達微米的空乏區電場來改善電流的收集。由於電池必須被操作在正偏壓，這樣的結構有其困難度。此外材料缺陷也會使飽和電流過大、開路電壓不足，無法提供良好轉換效率。

GaAsSbN 材料於 1999 年由 G. Ungaro 等人所提出[9]，並且在近十年的研究報導中，有許多優於 InGaAsN 材料的特點被提出，如氮原子的嵌入率較高[10]、快速熱退火穩定度較好[11]、以及相同氮成分之下具晶格匹配的 GaAsSbN 材料能隙會比 InGaAsN 低[12]。許多文獻都顯示著 GaAsSbN 四元材料極具有應用於多接面太陽電池的潛力。

研究方法

本計畫使用 VG-V80H 氣態源分子束磊晶機台進行 GaAsSbN 含氮四元材料的磊晶成長。其中銻分子束由 EPI SUMO cell 所提供，透過離子真空計將銻分子束通量校準於 1 $\mu\text{m/hr}$ 的長晶速度。銻分子束由 EPI Sb cracker cell 提供，將 Sb₄ 的分子束經過溫度 1050°C 的裂解管裂解成 Sb 與 Sb₂，參與成長。砷分子束由高壓氣態裂解管將氣態源氫化砷於 1000°C 裂解，產生 As₂ 分子束。氮源則由 EPI uni bulb RF plasma cell 提供，利用射頻電漿將氮分子裂解產生具高活性的氮原子並參與成長，藉由調變氮氣流量和射頻電漿源功率可調整裂解效率。GaAsSbN 材料成長於半絕緣的砷化銻基板之上，磊晶層厚度固定於 1 μm 。成長流程如下，首先將晶片升溫至 600°C 以清除表面的氧化物，之後將溫度降到 595°C 成長 GaAs 緩衝層，使晶片表面的平整度達到原子尺寸層級。最後將基板溫度降到預定的溫度進行 1 μm 之 GaAsSbN 厚層成長。

完成的磊晶層進行下列的材料、結構與光電特性分析。對於材料的成分，我們透過台灣大學材料所貴儀中心以其 JEOL JXA-8200 型電子探測微分析儀(Electron Probe MicroAnalyzer, EPMA)進行量測。我們使用 GaAs、GaSb 基板以及 GaN 厚磊晶層作為標準片

以進行ZAF校準。為了確認電子束的探測範圍，我們特地在InP基板上成長不同厚度的GaAsSbN磊晶層，藉著觀察In與P的信號以確認不同電子束加速電壓與探測深度的關係。最後我們使用 10kV的加速電壓與 1×10^{-7} Amp的電子束電流以確保電子束不致穿透磊晶層達到基板，造成量測上的誤差。

使用型號 BEDE D1，X 光雙晶體繞射儀進行量測，透過 rocking curve 中磊晶層和基板的繞射訊號角度差來估算磊晶層的垂直方向晶格匹配度。

對於磊晶層的光學特性，我們使用波長為 532 nm 的 DPSS 綠光雷射光源，激發出樣品的螢光經聚焦進入型號為 SPEX 500M 的分光儀，再由具有電致冷器的 InGaAs 光偵測器以標準鎖相技術經由 SR830 鎖相放大器獲得訊號。

材料能隙的分析部分由於 GaAsSbN 的能隙小於 GaAs 半絕緣基板，我們使用鹵素燈光源，穿透樣品後透過分光儀，並使用 InGaAs 光偵測器以上述的鎖相技術獲得穿透訊號。經由與相同厚度的基板標準片對比，獲得磊晶層吸收光譜，定吸收截止能量位置為材料能隙。

此外為了瞭解氮原子在晶格中的嵌入狀況，我們使用型號為 ThermoNicolet NEXUS470 之傅立葉轉紅外線光譜儀量測磊晶層 Ga-N 鍵結 local vibration mode 的吸收。

退火製程的部分，我們利用 MILA-3000 快速熱退火爐來進行樣品的退火處理。首先將樣本表面覆以 GaAs 或 Si 基板的光滑面。放在氮氣氛圍中進行加熱。快速退火爐以具有反射鏡面的燈管組加熱，升溫速率為 $250^{\circ}\text{C}/\text{min}$ ，到達預計退火溫度後，維持五分鐘，然後停止加熱，任其冷卻至室溫。

元件製程的部分，此研究所使用的元件成長於P型基板之上，：先利用標準的光罩幕定出元件的表面金屬電極圖案，再利用熱蒸鍍機在N型電極接觸層鍍上Au/Ge/Ni合金做為金屬接觸，然後以浮蝕法(lift-off)，去除光阻上面的金屬以定出金屬接觸圖案。其次我們再以光罩幕法定出光阻保護圖案，進行元件的平台蝕刻以分離元件。所使用的溶液為 $1 \text{ H}_2\text{SO}_4: 1 \text{ H}_2\text{O}_2: 8 \text{ H}_2\text{O}$ 。之後再以真空電子槍蒸鍍機於P型基板上鍍Ti/Pt/Ti/Au金屬電極。最後進行熱退火完成金屬與半導體間的歐姆接觸。元件的尺寸為 $0.1\text{cm} \times 0.1\text{cm}$ 。

元件特性以探針測試台及HP-4156 參數分析儀來量測其電壓電流特性。在量子效率頻譜的分析，我們以鹵素燈光源經過單光儀分散之後聚焦於光纖束，並引到探針測試台顯微鏡上的光學裝置，在元件表面形成約 50 微米直徑的光點。我們再將元件的光電流以鎖相放大器放大，經掃瞄後獲取光電流得頻譜。同時我們利用另一已校準之InGaAs光偵測器元件置於相同位置以確認光源的強度。由於光束直徑小於兩個元件的面積，經由比較兩者的光電流，可以獲得待測元件的量子效率頻譜。我們使用太陽光模擬光源AM 1.5 ($61.5 \text{ mW}/\text{cm}^2$, less than 1 sun)照射太陽電池元件，用以得到GaAsSbN太陽電池的轉換效率和填充因子。

結果與討論

我們利用變溫光激發螢光實驗根據低溫時的放光峰值能量位置與 Varshni 公式之差異分析了不同成長溫度對 GaAsSbN 合金材料成分不均勻的影響。研究 GaAsSbN 材料的熱退火特性與能隙藍移之原因。我們在元件的部分我們使用 PIN 結構成長出反應度截止能量接近 1eV 的 solar cell 元件並研究其特性。茲分述如下。

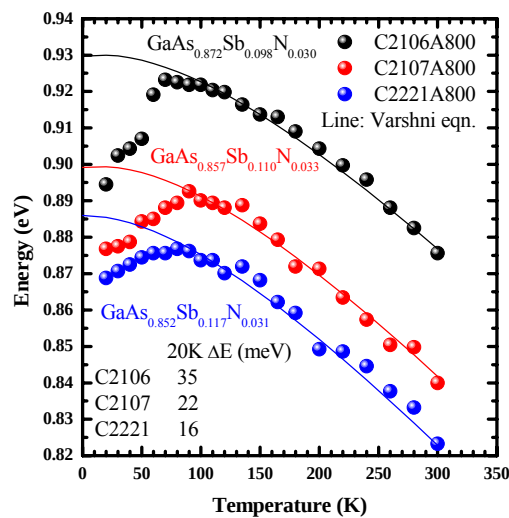
成長溫度對 GaAsSbN 材料之成份均勻度探討：

在三個不同成長溫度分別為 420°C 、 450°C 和 490°C 成長成份相似且晶閥匹配 GaAs 基板之 GaAsSbN 厚層材料。利用 EPMA 分別定出各個樣本的 As、Sb 與 N 的成分。將樣品經過 800°C 的快速熱退火處理後，透過變溫光激發螢光實驗取得發光峰值之能量位置與溫度之關係，並且擬合 Varshni 方程式，如圖一所示。擬合參數和樣品成長參數與成份列於表一。

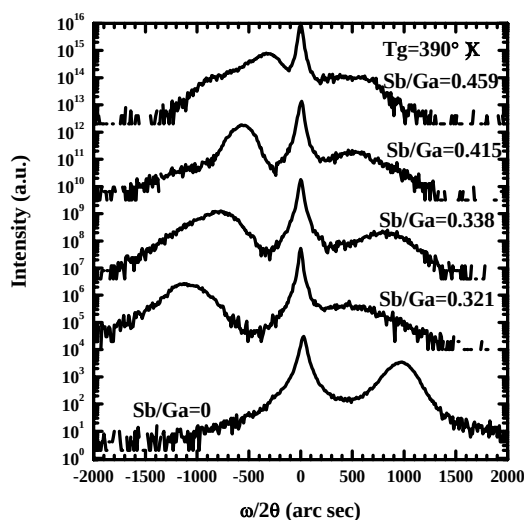
表一 樣品的磊晶參數，EPMA 成分定量結果，Varshni 方程式擬合參數。

Sample ID	Growth Temperature (°C)	N Rf Plasma condition		EPMA data		Eg (0) (eV)	α (eV/K)	β (K)
		Rf Power (Watt)	N ₂ flow rate(SCCM)	Sb (%)	N (%)			
C2065	490	200	0.76	7.0±0.1	2.1±0.3	1.036	4.2×10^{-4}	259
C2110	450	200	0.76	7.5±0.1	1.9±0.1	1.045	4.3×10^{-4}	262
C2106	490	300	0.76	9.8±0.1	3.0±0.1	0.930	4.2×10^{-4}	260
C2107	450	300	0.76	11.0±0.1	3.3±0.3	0.899	4.3×10^{-4}	250
C2221	420	300	0.76	11.7±0.1	3.1±0.3	0.886	4.0×10^{-4}	270

由圖一中清楚看到發光峰值之能量位置與溫度呈現S-shape關係，在約 100°K 的量測溫度以下之發光峰值能量會低於 Varshni 方程式計算出的能量值。一般文獻是認為此能量差別是在能隙之下的侷限態放光所致，而侷限態多半為成分不均勻造成[13]。在圖一中可明顯看到在 490°C 所成長的樣品其侷限態能量最大，表示在此溫度下成長的樣品成分不均勻程度最嚴重，隨著成長溫度下降，侷限態能量降低。但是當成長溫度降至 390°C 時，GaAsSbN 磊晶層會發生嚴重的相分離，如圖二 rocking curve 量測結果所示，此圖內之樣品的成長條件為固定於基板溫度 390°C，AsH₃ 和 N₂ 流量分別為 2.79 和 0.76 SCCM，電漿源功率 300 瓦，改變銻分子束通量。可觀察到 GaAsSbN 四元材料皆發生相分離，故在此部份認為 420°C 是一較佳的成長溫度。



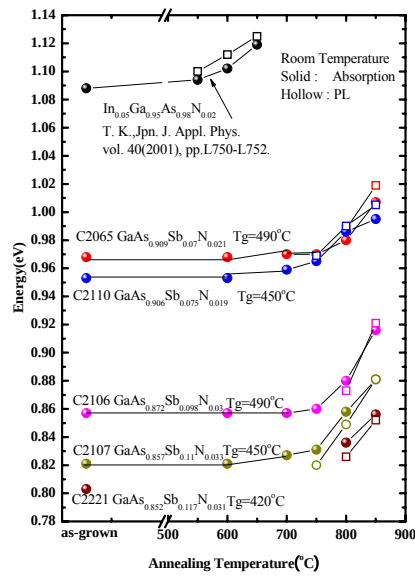
圖一 經過 800°C 熱退火處理的 GaAsSbN 樣品之變溫光激發螢光峰值位置與溫度之關係圖，其中實線部份為 Varshni 擬合曲線。



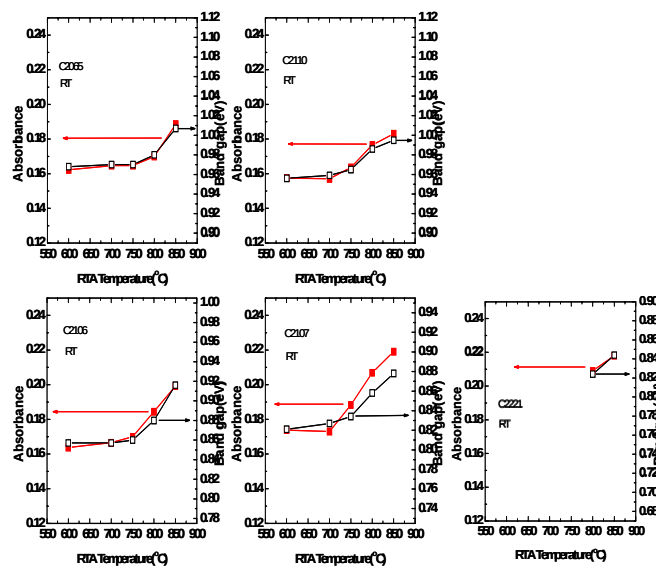
圖二 固定於基板溫度 390°C，AsH₃和N₂流量分別為 2.79 和 0.76 sccm，電漿源功率 300 瓦，改變銻分子束通量所成長之樣品的DXRD rocking curve量測結果。

熱退火的特性研究：

低含氮化合物半導體由磊晶方法合成後通常會需要使用熱退火的製程步驟修復在磊晶過程中所產生的缺陷，優化合金材料特性。而低含氮化合物半導體經過熱退火處理之後，大多都伴隨著能隙藍移的現象，在本計劃中針對能隙藍移原因探討。圖三為 GaAsSbN 材料的室溫吸收譜截止能量與室溫光激譜峰值能量與退火溫度的關係，其中我們一併比較了 InGaAsN 在文獻報導的結果。很明顯的可以看到 GaAsSbN 樣品的能隙藍移現象要高於 750 °C 才會開始發生，相較 InGaAsN 材料多了約 200 °C，很符合我們對 GaAsSbN 材料在熱穩定性較佳的預測。我們還可以看到 GaAsSbN 樣品的 PL 峰值逐漸由低於吸收能隙隨著退火溫度的提高而趨近吸收能隙甚至超過。這也顯露了另一個可能性，即退火改善了材料的成份的均勻性。在較低溫時，材料成份不均勻造成了一些 band tail states，其能態密度高到即使在室溫也可看低於吸收能隙的光激螢光放光。但隨著退火溫度的提高，材料成份的均勻性獲得改善，使得 PL 峰值逐漸升高到超過吸收能隙。當然此項成份均勻性的改善有可能是氮的分佈，在 GaAsN 的退火研究中，有一些研究出現藍移的現象，他們即歸因於 N 原子分佈均勻性的改善[14]。但是也有可能是次鄰接原子中 As/Sb 的比例分佈改變。我們從文獻上有關 GaAsSb/GaAs 量子井 intermixing 現象的研究[15]，可知道 750 °C 是發生 intermixing 的退火溫度。此外這些研究也發現 As/Sb 交換的活化能較 In/Ga 的值為低，因而我們推測在 GaAsSbN 所發生的藍移可能源自於 As/Sb 的元素交換。雖然氮的鄰接原子均為 Ga 不可能發生化學交換，但是次鄰接的十二個原子中 As/Sb 比例有可能發生改變，因此造成能隙藍移的現象。我們利用 FTIR 量測 Ga-N 的振動模態強度，並與熱退火溫度作比較，由圖四可發現，Ga-N 的振動模態強度隨著熱退火溫度升高而提升，這表示有越多的氮原子與鎵原子鍵結恢復，熱退火移除了許多缺陷並且使得氮原子次鄰接的砷和銻原子產生交換作用而產生能隙藍移。



圖三 GaAsSbN 與 InGaAsN 材料的室溫吸收譜截止能量與室溫光激譜峰值能量與退火溫度的關係。



圖四 利用 FTIR 量測 Ga-N 的振動模態與熱退火溫度之關係圖。

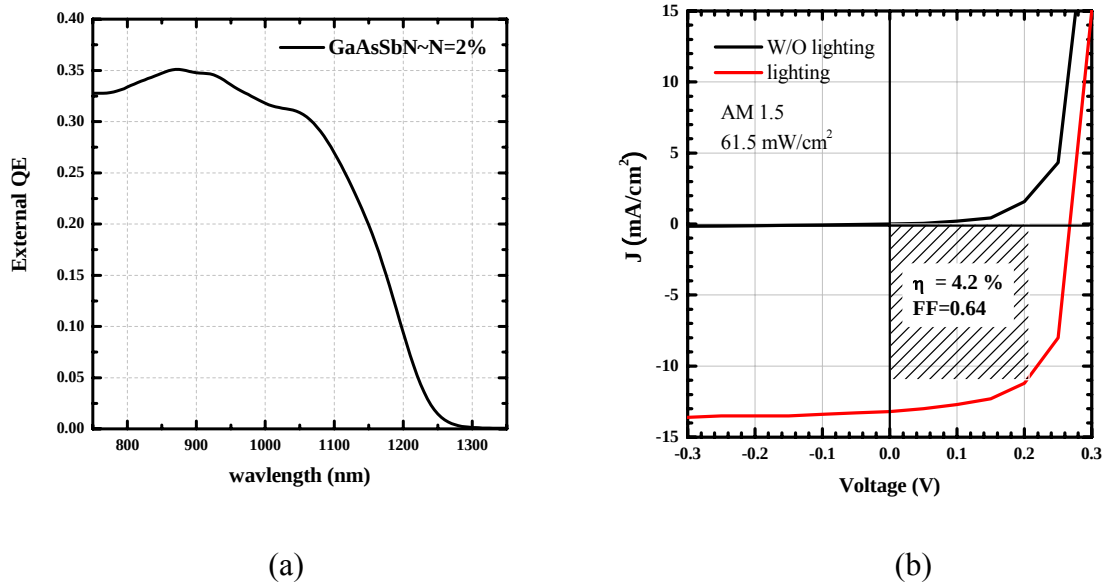
GaAsSbN 材料於 1 eV 太陽電池的應用：

我們使用P型砷化鎵為基板，於其上使用GaAsSbN材料於太陽電池主吸收層結構，元件使用異質接面結構如圖五所示，使用n+砷化鎵材料當作N型電極且為window layer，使用P+

砷化鎵材料當作BSF layer。主吸收層部分使用厚度為 1000nm，具晶格匹配砷化鎵基板且能隙為 1 eV的GaAsSbN材料，此層無額外摻雜，少數載子極性為n型，濃度約在 10^{14} cm^{-3} 。我們量測該元件的反應度，如圖六(a)所示，其外部量子效率最高約為 35%，截止波長約在 1.2 μm (~1 eV)處。該元件在太陽光模擬光源AM 1.5 (61.5 mW/cm^2 , less than 1 sun)照射時的開路電壓為 0.27 伏特和短路電流密度為 13.20 mA/cm^2 ，如圖六(b)所示，可計算出元件的轉換效率和填充因子分別為 4.2%和 0.64。

n+GaAs	90nm contact	, $n=2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$
n-GaAs	10nm cap	, $n=2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$
i-GaAsSbN	1000nm	
p+GaAs	100nm BSF	, $p=2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$
P type GaAs(100) substrate		

圖五 以 1 eV GaAsSbN 為主吸收層材料之太陽電池結構圖。



圖六 1 eV太陽電池之(a)外部量子效率頻譜，(b) 太陽光模擬光源AM 1.5 (61.5 mW/cm^2 , less than 1 sun)照射時之電流密度與電壓關係圖。

結論

在本年度計畫中，使用氣態源分子束磊晶技術在砷化鎵基板上成長了具晶格匹配之GaAsSbN四元材料，較佳的成長溫度範圍落在 420°C 附近。熱退火所造成的藍移原因以目前的研究結果將歸因於N之次鄰接原子，As和Sb的交換所致。在太陽電池部份，使用GaAsSbN為主吸收層材料，成功成長出 1 eV的太陽電池，在太陽光模擬光源AM 1.5 (61.5 mW/cm^2 , less than 1 sun) 照射下的開路電壓為 0.27 伏特和短路電流密度為 13.20 mA/cm^2 ，轉換效率和填充因子分別為 4.2%和 0.64。

參考文獻

1. R. R. King et al, "Advances in high-efficiency multijunction terrestrial concentrator cells and receivers," NCPV and Solar Program Review Meeting 2003.
2. D.J. Friedman, J.F. Geisz, S.R. Kurtz, J.M. Olson, "1-eV solar cells with GaInNAs active layer," J. of Crystal Growth **195**, pp. 409 (1998).
3. S. M. Sze, Physics of Semiconductor Devices, 2nd Ed., pp. 798 (1981).
4. C. H. Henry, "Limiting efficiency of ideal single and multiple energy gap terrestrial solar cells," Appl. Phys. Lett. **51**, pp. 4494 (1980).
5. Wei Li, Markus Pessa, Tommy Ahlgren, and James Decker, "Origin of improved luminescence efficiency after annealing of GaInNAs materials grown by molecular beam epitaxy," Appl. Phys. Lett. **79**, pp. 1094 (2001).
6. P. J. Klar, H. Gruning, J. Koch, S. Schafer, K. Volz, W. Stolz, W. Heimbrod, A. M. Kamal Saadi, A. Lindsay, and E. P. O'Reill, "(Ga, In)(N, As)-fine structure of the band gap due to nearest-neighbor configurations of the isovalent nitrogen," Phys. Review B **64**, pp. 121203(R) (2001).
7. S. Kurtz, J. Webb, L. Gedvilas, D. Friedman, J. Geisz, and J. Olson, R. King, D. Joslin, and N. Karam "Structural changes during annealing of GaInAsN," Appl. Phys. Lett. **78**, pp. 748 (2001).
8. Steven R. Kurtz, A. A. Allerman, C. H. Seager, R. M. Sieg, and E. D. Jones, "Minority carrier diffusion, defects, and localization in InGaAsN, with 2% nitrogen," Appl. Phys. Lett. **77**, pp. 400 (2000).
9. G. Ungaro, G. Le Roux, R. Teissier, and J.C. Harmand, "GaAsSbN: a new low-bandgap material for GaAs substrates," Electronics Letters **35**, pp.1246-1248 (1999)
10. J. C. Harmand, G. Ungaro, L. Largeau, and G. Le Roux, "Comparison of nitrogen incorporation in molecular-beam epitaxy of GaAsN, GaInAsN, and GaAsSbN," Appl. Phys. Lett. **77**, pp. 2482 (2000).
11. Yang-Tin Lin, Ta-Chun Ma, Tsung-Yi Chen, and Hao-Hsiung Lin, "Origin of the annealing-induced blue-shift in GaAsSbN bulk layers," OPT (2007).
12. Yang-Tin Lin, Ta-Chun Ma, Tsung-Yi Chen, and Hao-Hsiung Lin, "Effect of Thermal Annealing on the Optical Properties of GaAsSbN," IEDMS (2007).
13. L.F. Bian,, D.S. Jiang, P.H. Tan, S.L. Lu, B.Q. Sun, L.H. Li, J.C. Harmand, "Photoluminescence characteristics of GaAsSbN/GaAs epilayers lattice-matched to GaAs substrates," Solid State Communications **132**, pp.707 (2004).
14. L. Grenouillet, C. Bru-Chevallier, G. Guillot, P. Gilet, P. Ballet, P. Duvaut, G. Rolland, and A. Million, "Rapid thermal annealing in GaN_xAs_{1-x}/GaAs structures: Effect of nitrogen reorganization on optical properties," J. Appl. Phys. **91**, pp. 5902 (2002).
15. O. M. Khreis, K. P. Homewood, W. P. Gillin, K. E. Singer, "Intermixing in GaAsSb/GaAs single quantum wells," J. Appl. Phys. **84**, pp. 4017 (1998).

計畫成果自評

本年度計畫已完成研究成長溫度對 GaAsSbN 材料成分均勻度的影響，此項結果可以提升 GaAsSbN 材料的品質。GaAsSbN 材料具有應用於砷化鎵基板之上且具晶格匹配，能隙藉於砷化鎵和鍺之間的材料，在此計畫內完成 GaAsSbN 材料的磊晶條件研究，可提供相關產業在開發此種材料應用上的參考。在 GaAsSbN 材料受熱退火所引發之能隙藍移的原因我們提出了合理的解釋，學術上大多探討 InGaAsN 因熱退火處理而引起的能隙藍移原因，故具學術價值。在本計畫年度內我們亦成功地將 GaAsSbN 應用在太陽電池結構中，對於未來將此材料應用在多接面疊接太陽電池結構非常有幫助，我們將以這些基礎持續研發 GaAsSbN 的長波長偵測器與太陽能電池。目前已經發表與被接受的論文如下：

1. T. A. Ma, Y. T. Lin, T. Y. Chen, L. C. Chou, and H. H. Lin “Incorporation behaviors of group V elements in GaAsSbN grown by gas source molecular beam epitaxy, ” International conference on InP and related material 2007, Matsu, Japan.
2. Ta-Chun Ma, Tsung-Yi Chen, Yang-Tin Lin, and Hao-Hsiung Lin, “Temperature dependence of the energy gaps of GaAsSbN epilayers on GaAs substrates,” MBE Taiwan 2007
3. Yang-Tin Lin, Ta-Chun Ma, Tsung-Yi Chen, and Hao-Hsiung Lin, “Origin of the annealing-induced blue-shift in GaAsSbN bulk layers,” OPT 2007.
4. Yang-Tin Lin, Ta-Chun Ma, Tsung-Yi Chen, and Hao-Hsiung Lin, “Effect of Thermal Annealing on the Optical Properties of GaAsSbN,” IEDMS 2007.
5. Chi-Kuang Chen, Ta-Chun Ma, Yan-Ying Lin, Hao-Hsiung Lin, “ Dilute Nitride GaAs_{0.852}Sb_{0.117}N_{0.031} / GaAs PIN Detectors with a Cut-off Wavelength > 1.5 μ m,” IEDMS 2007.