

Otimização de células solares de heteroestruturas III-V baseada em dados experimentais

Thales borrely dos santos ((IF-USP)) - thales.santos@usp.br

Andre Luis de Jesus Pereira (UFGD) - andreljpereira@gmail.com

Douglas M. G. Leite (Instituição - a informar) - leitedmg@gmail.com

da Silva Sobrinho, A. S. (Instituição - a informar) - argemirosss@gmail.com

Alain André Quivy (USP) - aquivy@if.usp.br

Resumo:

O objetivo deste trabalho é otimizar, através de simulações computacionais, uma célula solar de junção p-n simples de GaAs com janela de $\text{Al}_{0.82}\text{Ga}_{0.18}\text{As}$. Células solares reais foram produzidas e caracterizadas para que os resultados de sua caracterização servissem como inputs realísticos para as simulações. Filmes finos de SiO_2 , Al_2O_3 e TiO_2 também foram produzidos e caracterizados para que seus dados experimentais permitissem simulações realísticas de camadas antirreflexo. Os resultados mostraram que é possível alcançar eficiência de 16,5% sem revestimentos antirreflexo e de 21,7% com revestimento antirreflexo de camada única de Al_2O_3 .

Palavras-chave: *Célula Solar, Epitaxia, Revestimento Antirreflexo*

Área temática: *Conversão Fotovoltaica*

Subárea temática: *Materiais e Tecnologias de células para Conversão Fotovoltaica*

OTIMIZAÇÃO DE CÉLULAS SOLARES DE HETEROESTRUTURAS III-V BASEADA EM DADOS EXPERIMENTAIS

Thales Borrely – thales.santos@usp.br

Alain A. Quivy – aquivy@if.usp.br

Universidade de São Paulo, Instituto de Física, Rua do Matão 1371, 05508-090, São Paulo, SP, Brasil

André L. de Jesus Pereira – andreljpereira@gmail.com

Universidade Federal da Grande Dourados (UFGD), Faculdade de Ciências Exatas e Tecnologias (FACET) - Rodovia Dourados - Itahum, km 12, Cidade Universitária – 79804-970, Dourados, MS, Brasil

Argemiro S. da Silva Sobrinho – argemirosss@gmail.com

Douglas M. G. Leite – leitedmg@gmail.com

Laboratório de Plasmas e Processos - LPP, Instituto Tecnológico de Aeronáutica, 12228-900, São José dos Campos, SP, 12228-900, Brasil

Davi H. Starnini de Camargo – davi.camargo@lnnano.cnpem.br

Carlos C. Bof Bufon – cesar.bof@lnnano.cnpem.br

Laboratório Nacional de Nanotecnologia (LNNano), Centro Nacional de Pesquisa em Energia e Materiais (CNPem), 13083-970 Campinas, SP, Brasil

Resumo. O objetivo deste trabalho é otimizar, através de simulações computacionais, uma célula solar de junção p-n simples de GaAs com janela de $Al_{0.82}Ga_{0.18}As$. Células solares reais foram produzidas através da técnica de epitaxia por feixe molecular e caracterizadas através de medidas de corrente por voltagem sob radiação incidente com espectro AM1,5G para que os resultados de sua caracterização servissem como inputs realísticos para o processo de otimização computacional. Filmes finos de SiO_2 , Al_2O_3 e TiO_2 foram produzidos por atomic layer deposition e caracterizados por elipsometria espectroscópica para que seus dados experimentais permitissem simulações realísticas de revestimentos antirreflexo de camada única. As simulações do comportamento óptico das superfícies das células solares foram feitas através do software OpenFilters; as curvas características foram simuladas através do software SCAPS. Os resultados mostraram que é possível alcançar eficiência de 16,5% sem revestimento antirreflexo e de 21,7% com revestimento antirreflexo de camada única de Al_2O_3 .

Palavras-chave: Célula Solar, GaAs, Revestimento Antirreflexo.

1. INTRODUÇÃO

Células solares de materiais III-V crescidos epitaxialmente são objetos de interesse da comunidade científica há décadas (Frass, 2014). O alto custo destes materiais impede a aplicação deste tipo de dispositivo para consumo de massas. Por outro lado, algumas propriedades dos materiais III-V, em particular do GaAs, tais como alta mobilidade e valor de banda proibida, somadas à alta qualidade cristalina decorrente da epitaxia, permitem a produção de células solares muito eficientes (Nelson, 2003), que podem ser aplicadas em situações onde é necessária alta razão de potência gerada por metro quadrado, por exemplo, em satélites e estações espaciais. Ademais, técnicas de crescimento epitaxial são ambientes propícios para testar novos conceitos relacionados à terceira geração de células solares, tais como dispositivos de banda intermediária (Das *et al.*, 2018; Han *et al.*, 2016.; Okada *et al.*, 2015; Zheng *et al.*, 2016).

Este trabalho faz parte de um projeto de longo prazo do Laboratório de Novos Materiais Semicondutores (LNMS) do Instituto de Física da Universidade de São Paulo (IF-USP) cujo objetivo geral é desenvolver células solares de GaAs/ $Al_xGa_{1-x}As$ com pontos quânticos de InAs a partir da técnica de epitaxia por feixe molecular (em inglês, *molecular beam epitaxy*, MBE). Para tanto, são perseguidos três objetivos específicos: (1) otimizar as condições de crescimento dos pontos quânticos de InAs; (2) desenvolver uma heteroestrutura epitaxial de GaAs/ $Al_xGa_{1-x}As$ para abrigar os pontos quânticos de InAs; (3) otimizar uma heteroestrutura de GaAs/ $Al_xGa_{1-x}As$ convencional, isto é, sem pontos quânticos, que servirá de referência para avaliar o desempenho das células solares com pontos quânticos de InAs. O presente artigo trata exclusivamente do objetivo (3) do mencionado projeto. A otimização da heteroestrutura convencional aqui apresentada foi feita através de simulações computacionais; os *inputs* destas foram obtidos a partir da caracterização de células solares e camadas antirreflexo reais.

2. Métodos

O procedimento de otimização da heteroestrutura de GaAs/ $Al_xGa_{1-x}As$ foi feito através das seguintes etapas: (1) foram produzidos, por MBE, e caracterizados opticamente, por elipsometria, filmes finos de GaAs e $Al_{0.82}Ga_{0.18}As$; (2) foram produzidas, por MBE, e caracterizadas, por medidas de corrente por tensão (IxV) sob iluminação, duas células

solares de junção p-i-n; (3) com os dados ópticos da primeira etapa e os dados elétricos da segunda etapa, as curvas IxV iluminadas foram ajustadas através de simulações com os softwares OpenFilters e SCAPS, o que permitiu estimar parâmetros importantes dos dispositivos, tais como velocidade de recombinação de superfície (VRS) e resistência em série (R_s); (4) com os parâmetros obtidos na terceira etapa, com o intuito de estabelecer a estrutura otimizada da célula solar convencional de GaAs/ $Al_xGa_{1-x}As$, foram feitas simulações variando-se a espessura e a dopagem das camadas de uma célula solar de junção p-n; (5) foram produzidos filmes finos de TiO_2 , Al_2O_3 e SiO_2 . Suas constantes ópticas foram caracterizadas por elipsometria espectroscópica; (6) os dados ópticos desses óxidos foram utilizados para simular revestimentos antirreflexo (RAR) e calcular curvas de eficiência versus espessura do RAR, o que permitiu estabelecer a estrutura otimizada dos RAR.

Os filmes finos de GaAs e $Al_{0.82}Ga_{0.18}As$ foram produzidos no LNMS epitaxialmente sobre substratos de GaAs (100) através de um sistema MBE modelo GEN II da empresa Varian. Os filmes finos de Al_2O_3 e TiO_2 foram produzidos por *atomic layer deposition* (ALD) térmica e assistida por plasma, respectivamente, no Laboratório Nacional de Nanotecnologia (LNNano) do Centro Nacional de Pesquisa em Energia e Materiais (CNPEM). O SiO_2 foi produzido por *sputtering* no Laboratório de Plasmas e Processos (LPP) do Instituto Tecnológico de Aeronáutica (ITA). Todos os óxidos foram depositados sobre substratos de GaAs (100).

As duas células solares de junção p-i-n produzidas e caracterizadas são de GaAs (onde p é o emissor dopado com C e n é a base dopada com Si). O único elemento que difere os dois dispositivos é a presença de uma camada janela de $Al_{0.82}Ga_{0.18}As$. As camadas p e n têm dopagem de $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. Ambas as células têm camada de campo retrodifusor traseiro (em inglês, *back surface field layer*, BSF) de GaAs com dopagem tipo n de $5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, camada de contato traseira de GaAs com dopagem tipo n de $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ e camada de contato dianteira com dopagem tipo p de $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Esta última é removida da superfície do dispositivo após a deposição dos contatos metálicos através de corrosão química aliada à litografia, de modo que os contatos metálicos (e a parcela da camada de contato de GaAs tipo p que está sob eles) fiquem protegidos durante esta remoção. A escolha da junção p-i-n em detrimento de uma junção p-n, estrutura mais simples, se deve ao objetivo final deste projeto de produzir células solares com pontos quânticos; a camada intrínseca é necessária para abrigar os pontos quânticos. As células solares foram caracterizadas por medidas de corrente por tensão sob irradiância incidente com espectro AM1,5G através de um simulador solar classe AAA da fabricante Abet Technologies.

As medidas de elipsometria foram realizadas no LPP com um elipsômetro espectroscópico modelo UVISEL2 da empresa Horiba. Para a obtenção das constantes ópticas do GaAs, foi utilizado a fórmula de dispersão de Forouhi-Bloomer. Para o $Al_{0.82}Ga_{0.18}As$, o Al_2O_3 e o TiO_2 , foi utilizada uma derivação da fórmula de Forouhi-Bloomer denominada New Amorphous e proposta pela própria Horiba. O SiO_2 foi analisado a partir da fórmula de dispersão de Conrady.

As simulações das curvas IxV iluminadas foram feitas através do software SCAPS (Nemegeers e Burgelman, 2007), um programa que resolve o sistema de três equações diferenciais acopladas constituído pela equação de Poisson e as duas equações de continuidade (dos elétrons e dos buracos). O SCAPS requer que o usuário defina os parâmetros de estado sólido das camadas que compõem a célula solar (banda proibida, eletroafinidade, mobilidade, etc.). A maioria destes parâmetros é fácil de ser encontrada na literatura, mas alguns deles – tais como VRS, R_s , concentração e características de defeitos cristalinos – são mais difíceis de estabelecer e dependem das particularidades da produção do dispositivo – por exemplo, condições de crescimento e composição dos contatos elétricos. Por esta razão, foram necessárias as etapas 1, 2 e 3 antes de realizar a otimização da estrutura.

O SCAPS não realiza cálculos do comportamento óptico (espectros de reflexão ou de transmissão) da superfície do dispositivo, mas permite que o usuário defina os espectros. Estes foram obtidos, neste trabalho, através do software OpenFilters (OF), um programa que calcula os coeficientes de reflexão, absorção e transmissão de estruturas compostas por múltiplas camadas através da solução do sistema de equações de condições de interface dos campos elétrico e magnético em forma matricial (Larouche e Martinu, 2008). Para tanto, o usuário deve definir as curvas de índice de refração e de coeficiente de extinção das camadas – que, neste trabalho, foram obtidas a partir da elipsometria –, e a espessura destas. Ademais, é necessário definir as condições do feixe incidente, mais especificamente, sua polarização e ângulo de incidência.

3. Análise e resultados

3.1 Parâmetros de células solares reais

As curvas das duas células solares de junção p-i-n estão na Fig. 1. O dispositivo sem janela (eficiência = 8,9 %) tem desempenho notoriamente pior do que o dispositivo com janela (eficiência = 14,3 %). Em particular, a corrente de curto-circuito do segundo ($20,0 \text{ mA/cm}^2$) é muito maior que a do primeiro ($13,3 \text{ mA/cm}^2$). Ajustando as duas curvas através do SCAPS, foi possível perceber que a diferença de desempenho entre os dispositivos, como era de se esperar, se deve à redução da velocidade de recombinação de superfície decorrente do campo repelidor de elétrons causado pela camada janela. A VRS foi estimada em $1 \times 10^8 \text{ cm/s}$ sem a presença da janela e $1 \times 10^5 \text{ cm/s}$ com ela. Note que esse ajuste só foi possível mediante o conhecimento do espectro de reflexão da superfície das células solares. Estes foram calculados a partir das constantes ópticas apresentadas na Fig. 2 e podem ser vistos na Fig. 3. Note como a reflexão da superfície é, na maior parte do espectro, menor com a presença da camada de $Al_{0.82}Ga_{0.18}As$. Isso significa que o aumento na corrente de curto-circuito não se deve somente à diminuição da VRS, mas também ao aumento de absorção

de radiação decorrente da diminuição da reflexão superficial. A baixa reflexão para comprimentos de onda mais baixos se deve ao fato de que o $\text{Al}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{As}$ absorve nesta faixa do espectro. Isto é prejudicial ao desempenho do dispositivo, pois, idealmente, a camada janela deve ser totalmente transparente. Um aumento na proporção de Al na liga aumentaria sua banda proibida, deixando o material mais transparente. Contudo, optou-se por não ultrapassar esta proporção de Al para evitar que a liga fosse oxidada quando exposta à atmosfera (Valle e Alcaraz, 1997).

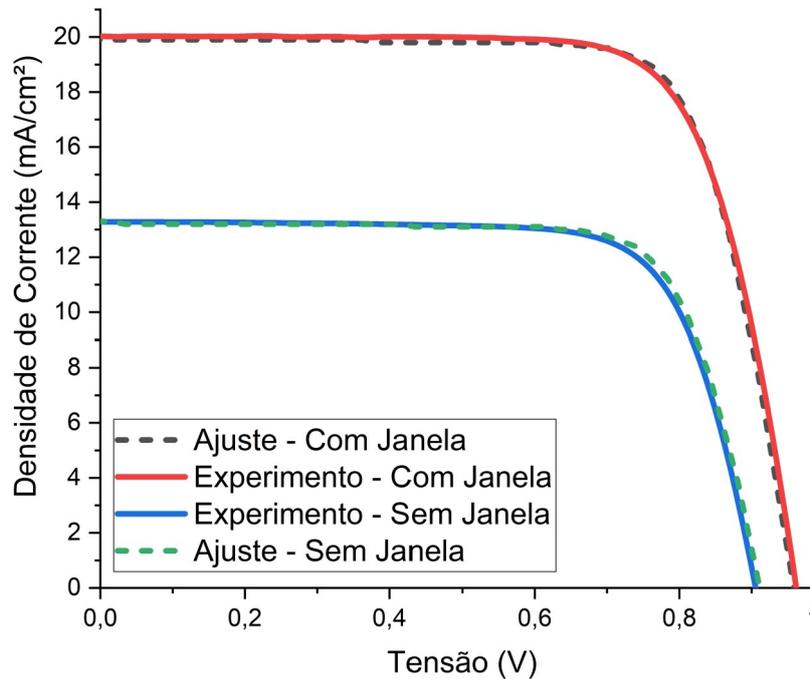


Figura 1 – curvas IxV iluminadas de duas células solares de junção p-i-n de GaAs que diferem pela presença de uma camada janela de $\text{Al}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{As}$. Ajustes das curvas feito com o SCAPS estão plotados com linhas tracejadas.

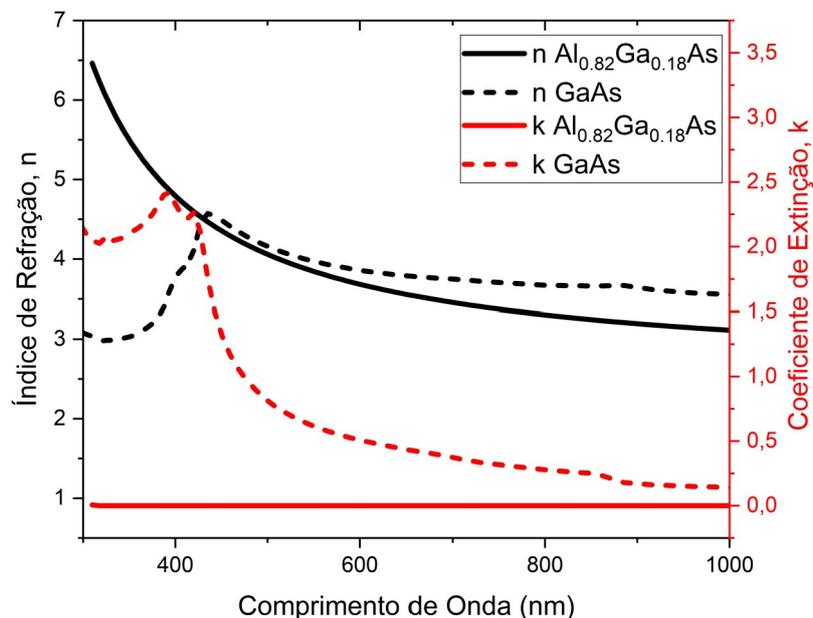


Figura 2 – Índice de refração (curvas pretas, eixo da esquerda) e coeficiente de extinção (curvas vermelhas, eixo da direita) dos filmes finos de GaAs e de $\text{Al}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{As}$ obtidos a partir da técnica de elipsometria espectroscópica.

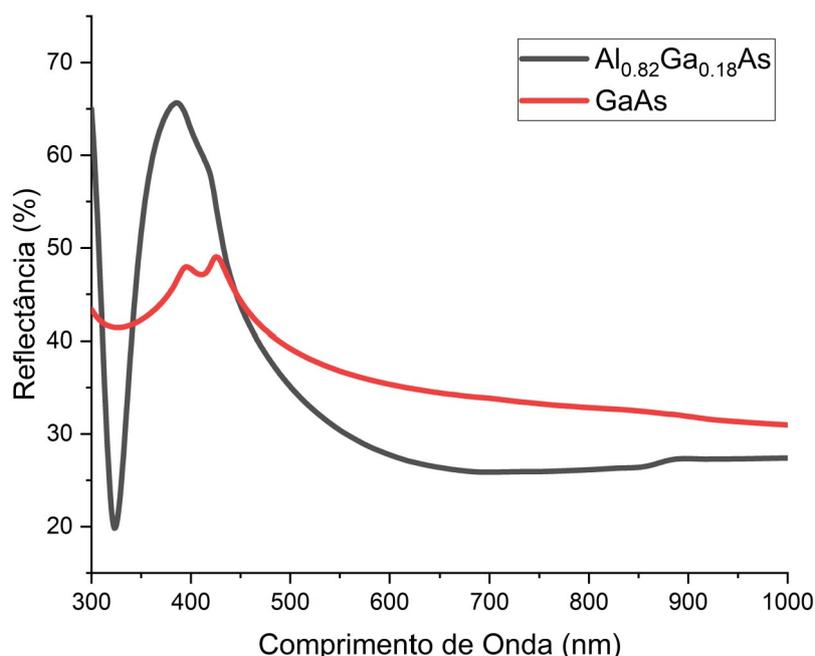


Figura 3 – Reflectância da superfície da célula solar sem janela (GaAs) e da célula solar com janela ($\text{Al}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{As}$ sobre GaAs).

3.2 Otimização da estrutura convencional (junção p-n)

A partir dos dados ajustados da Fig. 1, foi possível variar os parâmetros de uma célula solar de junção p-n de GaAs com BSF também de GaAs e janela de $\text{Al}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{As}$. As espessuras da janela e da BSF foram mantidas fixas em 30 nm e 500 nm, respectivamente. Suas dopagens também foram fixadas, em $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ e $5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, respectivamente. Os parâmetros variados nas simulações foram as espessuras das camadas p e n, e a concentração de dopantes em ambas as camadas. É importante notar que a mobilidade de portadores muda com a concentração de dopantes. Logo, a mobilidade deve acompanhar a variação da dopagem. Para tanto, foram utilizados dados de mobilidade obtidos por Sotoodeh *et al.* (2000). Evidentemente, não é possível apresentar o resultado desta otimização graficamente devido ao grande número de parâmetros variados. Na Tab. 1 estão indicados os intervalos utilizados nos cálculos e a melhor condição encontrada. A condição otimizada resulta em eficiência de 16,5%, corrente de curto-circuito de $20,4 \text{ mA/cm}^2$ e tensão de circuito aberto de 1,01 V.

Tabela 1 – Intervalos dos parâmetros utilizados na otimização e resultado da condição otimizada.

#	Espessura p (μm)	Espessura n (μm)	Concentração Aceitadores (cm^{-3})	Concentração de Doadores (cm^{-3})
Intervalo Simulado	0,1 – 1,0	1,0 – 4,0	$1 \times 10^{16} - 1 \times 10^{18}$	$1 \times 10^{16} - 1 \times 10^{18}$
Condição Otimizada	0,5	2,0	1×10^{17}	1×10^{17}

3.3 Otimização das camadas antirreflexo

Através do software OpenFilters, e utilizando os dados de elipsometria como *input*, foram calculados os espectros de reflexão de sistemas óxido/ $\text{Al}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{As}$ /GaAs para várias espessuras de óxido. A espessura do $\text{Al}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{As}$ foi fixada em 30 nm, enquanto a espessura do GaAs foi considerada infinita. Este cálculo foi feito para os três óxidos mencionados anteriormente: SiO_2 , Al_2O_3 e TiO_2 . Cada uma das curvas de reflexão foi utilizada como *input* no SCAPS para simular a curva IxV iluminada da célula solar otimizada na seção 3.2. A Fig. 4 mostra que a eficiência pode saltar de 16,5% sem camada antirreflexo para 21,7% com a presença de uma camada antirreflexo de Al_2O_3 com espessura de 90 nm. O óxido de alumínio se mostrou o mais apropriado entre os três óxidos estudados para produzir RAR sobre a célula solar de $\text{Al}_{0,82}\text{Ga}_{0,18}\text{As}$ /GaAs otimizada. Note, contudo, que este resultado é estritamente óptico. Na prática, é possível que o TiO_2 e o SiO_2 sejam mais eficazes em aumentar a eficiência se eles tiverem efeitos eletrônicos positivos sobre os dispositivos. Por exemplo, se eles atuarem como passivadores melhores que o Al_2O_3 , é possível que sua qualidade óptica ligeiramente mais baixa seja compensada.

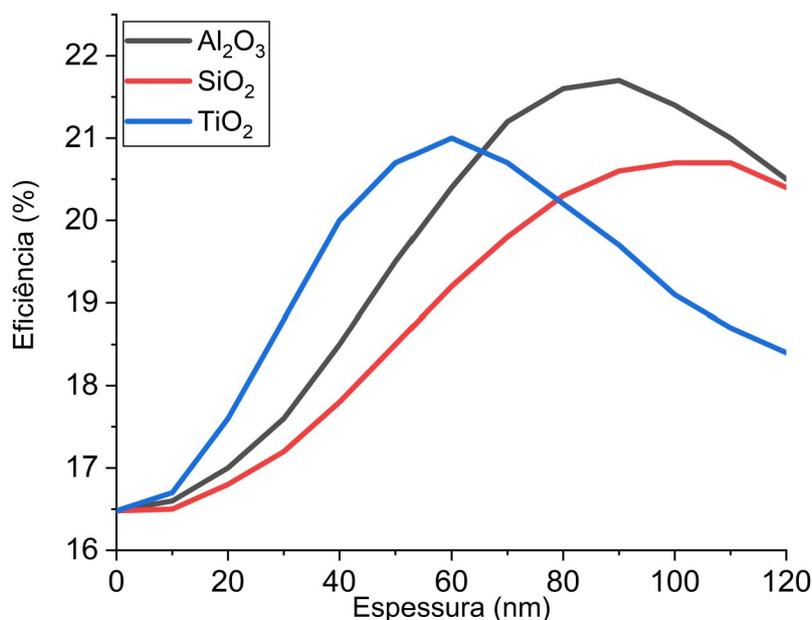


Figura 4 – Eficiência da célula solar de junção p-n simples otimizada em função da espessura de revestimentos antirreflexo de camada única de Al₂O₃, TiO₂ e SiO₂.

4. Conclusão

Foi relatada a produção de células solares de heteroestruturas epitaxiais de Al_{0,82}Ga_{0,18}As/GaAs. Até o momento, o melhor dispositivo produzido no LNMS, no contexto de seu projeto de desenvolvimento de células solares com pontos quânticos, consiste em uma junção p-i-n de GaAs com janela de Al_{0,82}Ga_{0,18}As. Sua eficiência é de 14,3% em condições de irradiação AM1,5G. A partir dos resultados desse dispositivo, foi otimizada, através de simulações computacionais, uma estrutura de junção p-n que, segundo os cálculos, pode alcançar eficiência de 16,5%. Em seguida, foram otimizadas, também através de simulações computacionais, as espessuras de camadas antirreflexo de Al₂O₃, TiO₂ e SiO₂. O óxido de alumínio apresentou resultados ligeiramente mais promissores que os demais. Os resultados mostram que uma eficiência de 21,7 % pode ser alcançada através da introdução de revestimentos antirreflexo de camada única.

Agradecimentos

Agradecemos ao Prof. Danilo Mustafa pelas medidas com o simulador solar (processo FAPESP 15/19210-0) assim como ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Tecnológico e Científico (CNPq) pelo financiamento parcial desta pesquisa (processos 443467/2014-5 e 311687/2017-2).

REFERÊNCIAS

- Das, D., *et al.*, 2018. Optimization of hybrid InAs stranski krastanov and submonolayer quantum dot heterostructures and its effect on photovoltaic energy conversion efficiency in near infrared region, *Solar Energy*, vol. 17, pp. 64-72.
- Fraas, L. M., 2014. *Low-Cost Solar Electric Power*, Springer.
- Han, I. S., *et al.*, 2016. Efficiency limit of InAs/GaAs quantum dot solar cells attributed to quantum dot size effects, *Solar Energy Materials & Solar Cells*, vol. 155, pp. 70-78.
- Larouche, S., Martinu, L., 2008. OpenFilters: open-source software for the design, optimization, and synthesis of optical filters, *Applied Optics*, vol. 47, pp. C219-C230.
- Nelson, J., 2003. *The Physics of Solar Cells*, Imperial College Press.
- Niemegeers, A., Burgelman, M., 2007. Numerical modelling of ac-characteristics of CdTe and CIS solar cells, *IEEE 25th PVSC*, pp. 901-904.
- Okada, Y., *et al.*, 2015. Intermediate band solar cells: Recent progress and future direction, *Applied Physics Reviews*, vol. 2, n. 021302.
- Sotoodeh, M., Khalid, A. H., Rezazadeh, A. A., 2000. Empirical low-field mobility for iii-v compounds applicable in device simulation codes. *Journal of Applied Physics*, vol. 87, n. 6.
- Valle, C. A., Alcaraz, M. F., 1997. Performance of Antireflecting Coating-AlGaAs Window Layer Coupling for Terrestrial Concentrator GaAs Solar Cells, *IEEE Transaction on Electron Devices*, vol. 44, n. 9.

Zheng, Z., *et al.*, 2016. Recent Progress Towards Quantum Dot Solar Cells with Enhanced Optical Absorption, *Nanoscale Research Letters*, vol. 11, n. 266.

OPTIMIZATION OF III-V HETEROSTRUCTURE SOLAR CELLS BASED ON EXPERIMENTAL DATA

Abstract. *The aim of this work is to optimize, by means of computational simulations, a GaAs single-p-n-junction solar cell. Real solar cells were produced by molecular beam epitaxy and characterized by current-voltage measurements (under AM1.5G condition) so that their results could serve as realistic inputs for the simulations. SiO₂, Al₂O₃ and TiO₂ thin films were produced by atomic layer deposition and characterized by spectroscopic ellipsometry in order to yield reliable data for single-layer-anti-reflective coating simulations/optimization. The optical behavior of the solar cell surfaces were simulated via OpenFilters software and the characteristic curves were simulated via SCAPS software. The results showed that 16.5 % efficiency can be achieved on a single-p-n-junction solar cell, while 21.7% can be achieved by adding a 90 nm thick Al₂O₃ anti-reflective coating.*

Key words: *Solar Cell, GaAs, Anti-reflective coating.*