

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 17 日現在

機関番号：33924

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25289362

研究課題名(和文)次世代太陽電池への提案：量子井戸島による光アップコンバージョンと効率向上

研究課題名(英文)A proposal for next generation solar cells: photon upconversion by quantum well islands and its efficiency improvement

研究代表者

神谷 格 (Kamiya, Itaru)

豊田工業大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：10374018

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,700,000円

研究成果の概要(和文)：量子井戸島構造という新しい量子構造を用いた光アップコンバージョンについて検討を行った。予備研究によりその機構をAuger過程によるものと推察していたが、それを支持する一連の結果を得た。また、アップコンバージョンによる光電流の検出に成功し、複数光線励起を用い、光電流と蛍光計測とを組み合わせ、キャリアダイナミクスを明らかにした。また、赤外から可視への変換だけでなく、安定な中間準位としても量子井戸島構造が有効である可能性を示し、変換効率の向上全般に利用し得る事を示した。

研究成果の概要(英文)：Photon upconversion using a novel quantum structure which we call quantum well islands (QWIs) has been investigated. Data supporting our former speculation that Auger process being the dominant mechanism responsible for upconversion have been obtained. Upconverted carriers have also been successfully detected as photocurrents (PCs). In combination with photoluminescence (PL) measurements with multiple beam excitation, the carrier dynamics have been discussed. Further, it has been shown that QWI is not only effective for supplying an intermediate state for IR to visible conversion but also for supplying a stable state, which may help improving upconversion efficiency in various structures.

研究分野：応用物理学

キーワード：半導体 量子構造 電子物性 太陽電池 結晶成長

1. 研究開始当初の背景

(1) 太陽光発電の高効率化を目指し種々の工夫がなされてきているが、その一つとして長波長の光をアップコンバージョンにより短波長の光に変換して利用する事が挙げられている。この具体例として、エピタキシャル成長により得られる InAs 系量子ドット (QD) を利用した研究が進められてきた。

しかし、InAs 系 QD による光アップコンバージョンでは、得られる短波長光も赤外領域に留まり、応用の範囲が限定される事が一つの問題であった。

(2) 申請者らは本研究に先駆けて、QD ではなく量子井戸島 (QWI) と称する新たな構造体を用いる事で赤外光から可視光へのアップコンバージョンが可能である事を実証してきた。しかしながら、その変換効率は低く留まり、太陽光発電に限らず多くの実用を考える時、この発光効率の向上、そしてそのためのアップコンバージョン機構の解明が必要であった。

2. 研究の目的

1. に記載の状況に鑑み、InAs QWI による

- (1) アップコンバージョン機構の解明、
 - (2) 形状制御による変換効率の向上
 - (3) 中間準位の制御による内部変換効率向上、
 - (4) 光電変換の実証、
- を目的とした。

3. 研究の方法

分子線エピタキシー (MBE) を用いて、QWI を含んだアップコンバージョンを起こす試料を作製し、これらの光・電子計測により、

- (1) 光アップコンバージョン機構の解明 (仮説の検証)
 - (2) アップコンバージョン光電流の実証、
 - (3) 大きさ・高さ・密度・間隔等を制御した QWI による効率の向上、
 - (4) 中間準位の長寿命化・相互作用の促進による効率向上、
 - (5) 2 波長の光の混合励起によるアップコンバージョンの検討、
- という流れで行った。

4. 研究成果

(1) 本研究開始時、それまで得ていた結果から、QWI を介したアップコンバージョンは二励起子間の Auger 相互作用によるものと推察していた[]。これを確認するため、まず、蛍光 (PL)、光電流 (PC) の計測を行った[]。

図 1 に示す様な試料 3 種を用意し、QD と QWI の寄与の識別、また電極を蒸着した試料 C により PC の検出を行った。

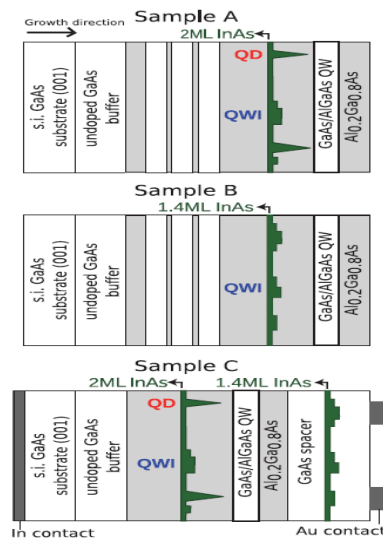


図 1. 用いた試料構造

試料 A と B を比較すると、

- ・ A : QWI が厚い、QD が多く存在
- ・ B : QWI が薄い、QD が少ない

という違いがある。これを反映して、PL を観察 ($E_{ex} = 1.49 \text{ eV}$, 1 W/cm^2) すると試料 A は QD による IR IR の弱いアップコンバージョンのピークと共に、3ML (~1.41 eV), 2ML (~1.46 eV) 厚の QWI に対応したピークが得られ、試料 B からは 2ML 厚のものが支配的である事が見て取れる (図 2)。

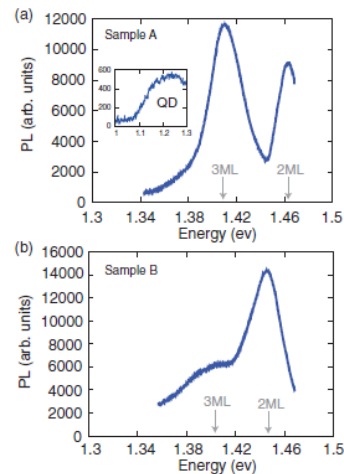


図 2. 試料 A, B の PL (4K)

一方、UPC の観察は、試料 C を用いて行った。この結果を図 3 に示す。図 1 に示す構造より、試料 C より電流を得るためには、光励起により形成されるキャリアが GaAs のバンドギャップ以上のエネルギー (~1.51 eV) 以上となる必要があるが、励起光のエネルギーが 0.8 ~ 1.45 eV の範囲にあっても実現している事が見て取れ、更に、QWI の準位に相当するエネルギーの光で励起した時、QD のそれよりも大きな電流が得られている事も分かる。

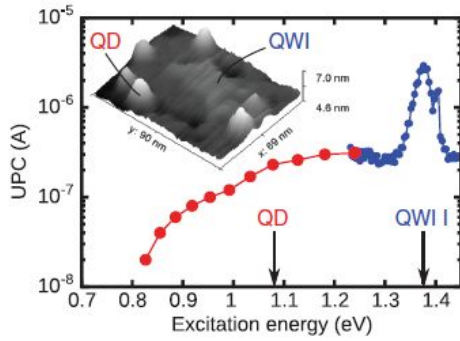


図3 . 試料 C の UPC

更に PL, PC の強度は共に励起光強度の自乗に比例するという計測結果が得られ、Auger 過程を支持するものとなった。

(2) QD に関しては、二段階二光子過程 (TS-TPA) が支配的とされてきているが、その効率は低い。これについて、2 光線、3 光線励起により試料 C を PC 計測し、機構を検討した。

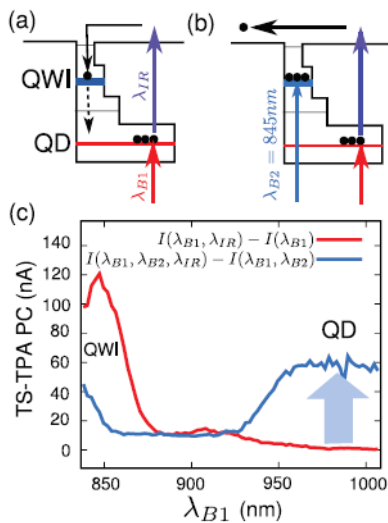


図4 . 試料 C の複数光線励起 PC とモデル

図4 に示すのはその結果とモデルであるが、QD から励起されたキャリアは QWI 準位が空いているとそこに緩和するが、電子が充満していると緩和を防ぎ、PC を向上させる事が分かる。この様に、QWI は QD によるアップコンバージョンにも寄与し得る事、また、複数光線により QD, QWI 共にアップコンバージョンが可能である事が示された []。

(3) また、 μ -PL 計測により QWI, QD の寄与について更に検討した。図5 に示すのは同じ領域で QWI, QD の PL と PC の分布を示したものである。(a), (b) の比較より、QWI が多い領域では PL, PC 共に信号は大きいが、(c), (d) を見ると、QD の分布する領域において、PL, PC は何れも信号は小さく(ス

ケールバーに注意) かつ QD の領域からは殆ど PC が得られていない事が分かる。

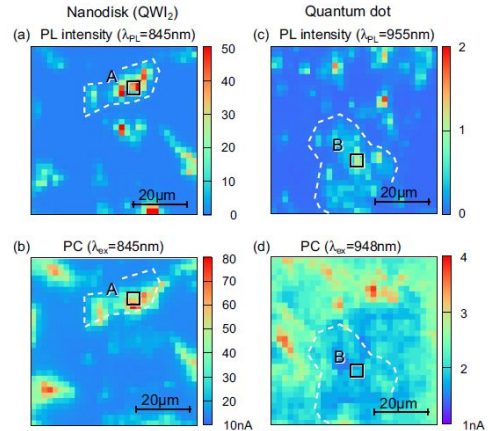


図5 . μ -PL/PC

(4) こうした検討を通じ、不純物の影響が極めて大きい事が分かり、その影響の除去や活用について検討を行った。特に Al の試用を一旦避ける事とした。そうした中、図6 に示す様な In, Ga, As のみを用いた2種の試料を作製し、PL の計測を行った。その結果、QD 含有試料では UPL は見られないが、QWI (QD 非含有) 試料では MQW, GaAs 両方で UPL が認められた。

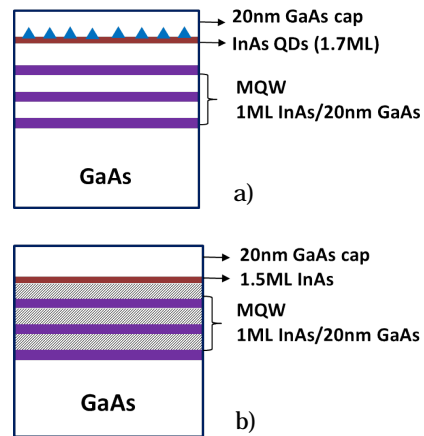


図6 . InGaAs のみの試料構造

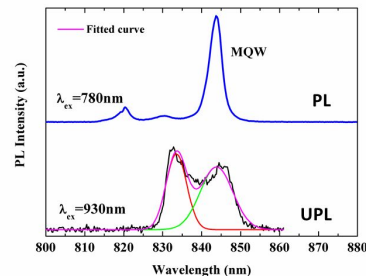


図7 . 図6 b) の構造の PL

これは QWI が単に IR vis のアップコンバージョンに必要というだけでなく、UPL 過程の途中に一旦キャリアを局在・保持する準位としても有効である事を示唆している。今後、こうした観点で中間準位の長寿命化を検討する必要がある事が明らかとなった。

<引用文献>

D. M. Tex and I. Kamiya, “Upconversion of infrared photons to visible luminescence using InAs based quantum structures,” Phys. Rev. B **83**, 081309R (2011).

D. M. Tex, I. Kamiya, and Y. Kanemitsu, “Efficient upconverted photocurrent through an Auger process in disklike InAs quantum structures for intermediate-band solar cells,” Phys. Rev. B **87**, 245305 (2013).

D. M. Tex, I. Kamiya, and Y. Kanemitsu, “Control of hot-carrier relaxation for realizing ideal quantum-dot intermediate-band solar cells,” Scientific Reports **4**, 4125 (2014).

D. M. Tex, T. Ihara, I. Kamiya, and Y. Kanemitsu, “Microscopic photoluminescence and photocurrent imaging spectroscopy of InAs nanostructures: Identification of photocarrier generation sites for intermediate band solar cells,” Phys. Rev. B **89**, 125301 (2014).

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計7件)

Yasuhiro Yamada, David M. Tex, Itaru Kamiya, and Yoshihiko Kanemitsu, “Femtosecond upconverted photocurrent spectroscopy of InAs quantum nanostructures,” Appl. Phys. Lett. **107**, 013905 (2015) 査読有.

David M. Tex, Itaru Kamiya, and Yoshihiko Kanemitsu, “Identification of trap states for two-step two-photon-absorption processes in InAs quantum structures for intermediate-band solar cells,” Proceedings of the 40th IEEE Photovoltaics Specialists Conference, (2014).

David M. Tex, Toshiyuki Ihara, Itaru Kamiya, and Yoshihiko Kanemitsu, “Temperature and light-intensity dependence of upconverted photocurrent generation in shallow InAs quantum structures,” Jpn. J. Appl. Phys. **53**, 05FV01 (2014) 査読有.

David M. Tex, Toshiyuki Ihara, Itaru Kamiya, and Yoshihiko Kanemitsu, “Microscopic photoluminescence and photocurrent imaging spectroscopy of InAs nanostructures: Identification of photocarrier generation sites for intermediate band solar cells,” Phys. Rev. B **89**, 125301 (2014) 査読有.

David M. Tex, Itaru Kamiya, and Yoshihiko Kanemitsu, “Control of hot-carrier relaxation for realizing ideal quantum-dot intermediate-band solar cells,” Scientific Reports **4**, 4125 (2014) 査読有.

David M. Tex, Itaru Kamiya, and Yoshihiko Kanemitsu, “Efficient upconverted photocurrent through an Auger process in disklike InAs quantum structures for intermediate-band solar cells,” Phys. Rev. B **87**, 245305 (2013) 査読有.

Itaru Kamiya, David M. Tex, Kenichi Shimomura, Fumihiko Yamada, Ko Takabayashi, and Yoshihiko Kanemitsu, “InAs Quantum Well Islands – A Novel Structure For Photon Up-conversion From the Near IR To the Visible,” Proceedings of the 39th IEEE Photovoltaics Specialists Conference, pp. 3040-3044 (2013).

[学会発表](計16件)

Yuwei Zhang and Itaru Kamiya, “Up-converted photoluminescence in InAs QD-based structures with confined state,” 2016年春季第63回応用物理学関係連合講演会 20a-S011-4、東京工業大学(大岡山)、2016年3月20日(3/19-22)。

Itaru Kamiya (Invited), Epitaxial Growth of InAs-based Quantum Structures on GaAs, Collaborative Conference on Crystal Growth (3CG 2015), Eaton Hotel Kowloon, Hong Kong, China (Dec. 13 – 17, 2015).

Itaru Kamiya (Invited), Growth of InAs-based Quantum Structures and their Electronic Properties Controlled by Strain, SemiconNano 2015, Lakeshore Hotel, Hsinchu, Taiwan (Sep. 6 – 10, 2015).

D. M. Tex, T. Ihara, I. Kamiya, and Y. Kanemitsu, “Influence of trapping processes on photocurrent generation efficiencies in quantum-dot

intermediate-band solar cells,” The 6th World Conference on Photovoltaic Energy Conversion (WCPEC-6), November 23-27, 2014, Kyoto International Conference Center, Japan, 1WePo. 1.13.

Itaru Kamiya (Invited), “Understanding and Controlling Epitaxial Growth of Lattice Mismatched Materials Using InGaAs on GaAs,” Collaborative Conference on Crystal Growth (3CG 2014), Holiday Inn Resort, Phuket, Thailand (Nov. 4 – 7, 2014).

山田泰裕、David M. Tex、神谷格、金光義彦、「フェムト秒励起光電流分光による InAs 量子構造の光キャリアアップコンバージョン過程と電子・正孔寿命の決定」日本物理学会 2014 年秋季大会 9pAD-2、中部大学春日井キャンパス、2014 年 9 月 9 日 (9/7-10).

David M. Tex, Itaru Kamiya, and Yoshihiko Kanemitsu, “Identification of trap states for two-step two-photon-absorption processes in InAs quantum structures for intermediate-band solar cells,” 40th IEEE Photovoltaics Specialists Conference, June 8-13, 2014, Colorado Convention Center, Denver, CO, U.S.A., O.1028.

David M. Tex、神谷格、金光義彦、”Two-beam photocurrent mapping to determine the limiting factor of the two-step two-photon-absorption processes in InAs quantum dots,” 2014 年春季第 61 回応用物理学関係連合講演会 19p-D7-16、青山学院大学相模原キャンパス、2014 年 3 月 19 日 (3/17-20).

井原章之、David M. Tex、神谷格、金光義彦、「InAs/AlGaAs 量子構造からなる中間バンド型太陽電池の顕微光電流イメージング」2014 年春季第 61 回応用物理学関係連合講演会 19p-D7-15、青山学院大学相模原キャンパス、2014 年 3 月 19 日 (3/17-20).

山田泰裕、David M. Tex、神谷格、金光義彦、「InAs 量子構造を利用した中間バンド型太陽電池におけるフェムト秒時間分解光伝導測定」2014 年春季第 61 回応用物理学関係連合講演会 17p-E15-13、青山学院大学相模原キャンパス、2014 年 3 月 17 日 (3/17-20).

Yasuhiro Yamada, David M. Tex, Itaru Kamiya, and Yoshihiko Kanemitsu, “Femtosecond photocurrent dynamics in InAs quantum structures for intermediate-band solar cells,” 2013 Fall

Mat. Res. Soc. Symposium, December 1-6, 2013, Boston, MA, U.S.A., W4.05.

David M. Tex, Toshiyuki Ihara, Itaru Kamiya, and Yoshihiko Kanemitsu, “Spectroscopic Imaging of Efficient Photocurrent Generation Sites in InAs Intermediate Band Quantum Structures: Improved Design of Upconversion Layers Containing Nanodisks and Quantum Dots,” 2013 Fall Mat. Res. Soc. Symposium, December 1-6, 2013, Boston, MA, U.S.A., W4.04.

山田泰裕、David M. Tex、神谷格、金光義彦、「フェムト秒励起光伝導相関法による InAs 量子構造の光キャリアダイナミクス」日本物理学会 2013 年秋季大会、徳島大学常三島キャンパス、2013 年 9 月 26 日 (9/25-28).

Ko Takabayashi, David M. Tex, Kenichi Shimomura, Fumihiko Yamada, and Itaru Kamiya, 2013 Japan Society of Applied Physics – Materials Research Society Joint Symposia, September 16-20, 2013, Kyoto, Japan, 17a-M2-2.

Itaru Kamiya, David M. Tex, Kenichi Shimomura, Fumihiko Yamada, Ko Takabayashi, and Yoshihiko Kanemitsu, “InAs Quantum Well Islands – a Novel Structure For Photon Up-conversion From the Near IR To the Visible,” 39th IEEE Photovoltaics Specialists Conference, June 16-21, 2013, Tampa, FL, U.S.A.

David M. Tex, Itaru Kamiya, and Yoshihiko Kanemitsu, “Design concept for efficient intermediate band solar cells based on multicarrier Auger processes,” European Materials Research Society 2013 Spring Meeting, May 27-31, 2013, Strasbourg, France.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

神谷 格 (KAMIYA Itaru)

豊田工業大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号：10374018

(4) 研究協力者

テックス デイヴィッド (TEX David)

金光 義彦 (KANEMITSU Yoshihiko)

下村 憲一 (SHIMOMURA Kenichi)

高林 紘 (TAKABAYASHI Ko)

山田 郁彦 (YAMADA Fumihiko)
チャン ユウエイ (ZHANG Yuwei)