

令和 5 年 6 月 15 日現在

機関番号：82718

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K05254

研究課題名（和文）絶対値発光分光による次世代量子ナノ太陽電池の診断と設計

研究課題名（英文）Absolute photoluminescence spectroscopy for diagnosis and optimization of next-generation quantum nano solar cells

研究代表者

玉置 亮（Tamaki, Ryo）

地方独立行政法人神奈川県立産業技術総合研究所・戦略的研究シーズ育成プロジェクト・研究員(任期有)

研究者番号：10767742

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：量子ナノ構造太陽電池において、絶対値発光(PL)スペクトルの電圧バイアス依存性、温度依存性、集光度依存性を定量的に解析した。高倍集光による擬フェルミレベル分裂の増大に加え、ホットキャリア効果と組み合わせることで、さらなる電圧向上が見込まれることを明らかにした。光閉じ込め構造についてはFabry-Perot共振器に対して、積層方向に対する増強電場と量子ナノ構造の位置制御を行うことにより、10倍以上の光電場増強が得られる見込みを得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

次世代高効率太陽電池の候補である量子ドット中間バンド型太陽電池において、絶対値発光分光による擬フェルミレベル分裂（内部電圧に相当）の定量解析と、光閉じ込め構造の設計及びデバイス実装に取り組んだ。高効率化実現に向けた電圧維持の要件達成と中間バンド型動作の原理実証に向けたデバイス設計指針を見出し、革新的原理に基づく次世代高効率太陽電池の特性向上に資する知見を得た。

研究成果の概要（英文）：In quantum nanostructured solar cells, bias voltage, temperature, and light concentration dependences of absolute photoluminescence (PL) spectra were analyzed quantitatively. In addition to the increase in quasi-Fermi level splitting due to the light concentration, we found that voltage enhancement could be obtained by utilizing the hot carrier effect. As for the light confinement structure, Fabry-Perot cavity could be realized more than 10-fold enhancement of the optical field by controlling the position of the quantum nanostructure in the stacking direction.

研究分野：光物性

キーワード：中間バンド型太陽電池 量子ドット太陽電池 絶対値発光分光 光閉じ込め構造

1. 研究開始当初の背景

III-V 族化合物半導体量子ドットを用いた中間バンド型太陽電池は、従来の Si 太陽電池の 2 倍以上の変換効率を実現する次世代高効率太陽電池候補の一つである。中間バンドを介した 2 段階光吸収による「電流増大」を得つつ、中間バンドと伝導帯間の擬フェルミレベル分裂($\Delta\mu$)により「電圧維持」を達成することで、集光下 63%の変換効率が理論予測されている。高効率化の提案以降、近年の研究開発を通じて、高効率 2 段階光吸収を実現する必要条件として、(1)量子ドットを介した光吸収増大、(2)光キャリアの熱脱出抑制、(3)光キャリアの再結合過程の長寿命化が明らかになってきた。一方で実デバイスの効率は、理論限界はもとより従来型の単接合太陽電池と比較しても低い値に留まっている。この主な理由として、量子ドット導入によりわずかに電流が増える一方、非輻射過程によるキャリア捕獲や脱出が生じて再結合が増大し、結果として電圧が減少するため「出力電圧の維持」の要件を達成することができていないことが挙げられる。

これまで行われてきた中間バンド型太陽電池に関する研究の多くは、2 段階光吸収による「電流増大」に着目したものが主流であったが、太陽電池の出力が電流(I)×電圧(V)という形で得られる以上、「電圧維持」の要件達成に向けた取り組みが必須である。中間バンド型太陽電池の理論的な動作原理においては、中間バンドと価電子帯及び伝導帯は光学遷移(輻射過程)のみによってキャリアのやり取りがなされるが、実際の系では非輻射過程をいかに制御して低減させることができるかが最終的な変換効率向上につながる。しかしながら、従来の太陽電池研究で行われてきた電流電圧特性などのマクロなデバイス評価手法では、量子ドット層などの太陽電池内部のミクロな物理過程を直接観測することはできない。またデバイスプロセスなどの外的要因による特性への影響も避けられないため、エピタキシャル結晶やナノデバイス構造そのものが持つ物性評価も、原理実証から効率向上への試行錯誤の段階において重要である。

2. 研究の目的

本研究では、量子ドット中間バンド型太陽電池の高効率化に向けて、「電圧維持」の要件達成のための最適設計を見出し、詳細平衡理論で予測されている中間バンド型動作に基づく高効率化に資することを目指す。2 段階光吸収による電流増大とともに、出力電圧の向上は次世代太陽電池の第一目標である Shockley-Queisser の単接合理論限界を超え、Si 太陽電池の 2 倍以上の変換効率達成に向けて必要不可欠である。出力電圧の向上には、その証左である中間バンドと伝導帯間の擬フェルミレベル分裂($\Delta\mu$)を直接的に観測することが重要であり、本研究では絶対値発光分光に基づく評価・解析と最適化設計により、中間バンド型太陽電池における「電圧維持」の要件達成に向けた知見を得ることを目指す。

3. 研究の方法

本研究では、絶対値校正した顕微分光系を構築するとともに、量子ナノ構造太陽電池の試作と光マネジメント構造の設計とデバイス実装を行った。試料は分子線エピタキシー(MBE)法を用いて、半導体基板上に III-V 族化合物半導体ヘテロ構造をエピタキシャル成長して作製した。分光計測と並行してデバイス設計とサンプル試作を行い、計測結果をフィードバックしつつ、最適化設計へとつなげていった。光マネジメント構造については、エピタキシャル成長した太陽電池セルから基板除去していない従来構造に対して、基板剥離による薄膜セル構造による Fabry-Pérot 共振器の 1 次元(z)方向の光閉じ込め構造から検討を行った。

太陽電池動作時の電圧を規定する擬フェルミレベル分裂($\Delta\mu$)を、一般化プランク輻射式より PL 強度の絶対値($\text{photons}/\text{cm}^2/\text{sec}$)から非侵襲・非接触に決定することができる。本研究では絶対値発光分光から量子ナノ構造における擬フェルミレベル分裂を直接評価・解析する手法を確立した。さらに、絶対値発光分光を顕微分光及び時間分解分光に拡張することで、デバイス特性を決定づけるために必要十分なサブピコ秒・マイクロメートル以下の時間・空間分解能で計測を行うことを目指した。従来行われてきた電流電圧特性などのマクロな電気的特性と異なり、デバイス内部のミクロな領域に対する時間・空間分解測定を適用した。絶対値発光分光による量子ナノ構造太陽電池における擬フェルミレベル分裂の直接計測により、「電圧維持」の要件達成と中間バンド型動作の原理実証に向けたデバイス設計指針を見出すことで、革新的原理に基づく次世代デバイスの特性向上に資する知見を得た。

4. 研究成果

多重積層 InAs/GaAs 量子ドット太陽電池において、室温集光下における絶対値発光(PL)スペクトルの電圧バイアス依存性を測定した(図 1)。擬フェルミレベル分裂($\Delta\mu$)を一般化プランク則により定量評価したところ、ホスト材料の GaAs バンド端については印可バイアス電圧によらずほぼ一定の値を示した。一方で InAs 量子ドット基底状態では、バイアス電圧を小さくする(短絡状態に近づく)につれ、非線形増大が起きる励起密度の閾値が増大した。この結果は、中間バンド-伝導帯間の非輻射緩和過程により伝導帯から量子ドットに捕獲される光キャリアと、量子ドットから伝導帯へと取り出される光電流との間の相反関係を表している。

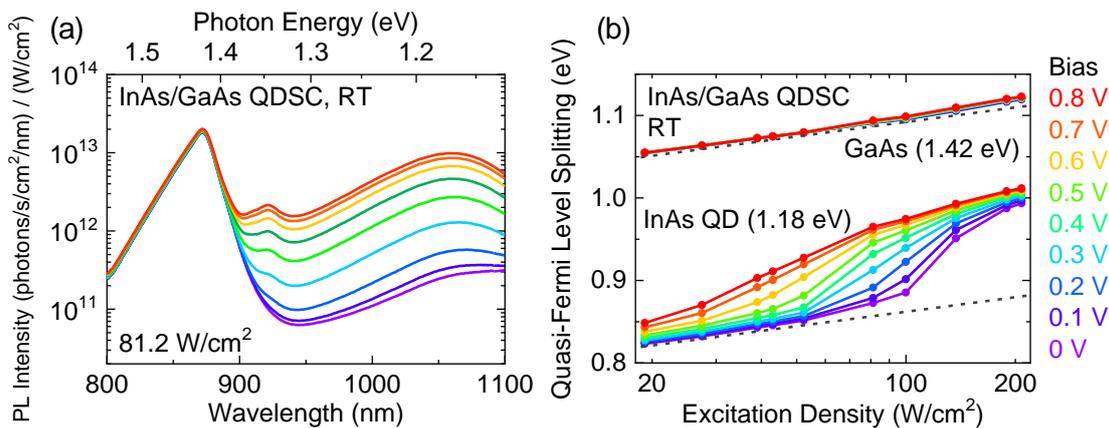


図1 InAs/GaAs 量子ドット太陽電池における(a)絶対値発光スペクトルと (b)擬フェルミレベル分裂($\Delta\mu$)の室温での電圧バイアス依存性

量子ナノ構造太陽電池において近赤外域の光吸収率を増大させるために、Fabry-Pérot 共振器による共鳴状態を転送行列法を用いて計算した。InAs 量子ドット基底状態において Fabry-Pérot 共鳴が生じる構造設計を行い、10 倍以上の光電場増強が得られる見積もりを得た。分子線エピタキシー法を用いて、数値計算で得られた最適構造に対応する多重積層 InAs/GaAs 量子ドット構造を作製した。GaAs 基板除去前後における PL 発光スペクトルの変化を観測したところ、基板除去後の薄膜試料において Fabry-Pérot 共鳴による明瞭なピーク構造を確認した。ピーク波長は転送行列法で求めた共鳴波長と一致しており、光閉じ込め構造による光電場増強を実証した。一方で、増大率は数値計算で見積もられた値よりも小さく、今後のプロセス最適化と裏面反射ミラーの高品質化による向上が見込まれる。

室温で観測された集光による電圧回復を示唆する効果をより詳細に理解するために、絶対値発光分光の低温での励起光強度依存性から、集光下での量子ドット基底状態における非線形増大の振舞いについて解析した (図2)。多重積層 InAs/GaAs 量子ドット太陽電池において、低温集光下における絶対値 PL スペクトルの測定を行った。一般化プランク則を用いて絶対値 PL スペクトルを解析し、InAs 量子ドット基底状態と GaAs バンド端それぞれについて、擬フェルミレベル分裂の励起密度依存性を定量評価した。GaAs バンド端発光については温度によらず、室温と同様にダイオード方程式から導かれる理論曲線とよく一致した。一方で InAs 量子ドット基底状態については、室温の方が非線形増大はより顕著であり、低温では非集光条件下から外挿した理論曲線と一致する傾向を示した。

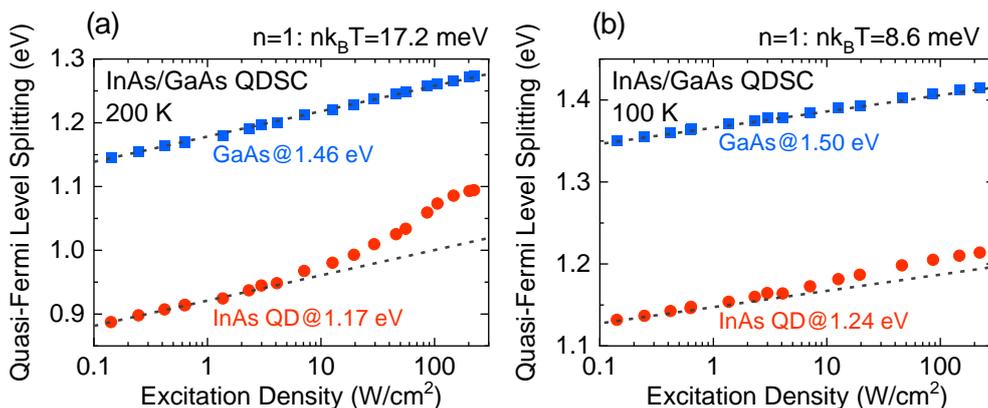


図2 InAs/GaAs 量子ドット太陽電池における低温下擬フェルミレベル分裂の励起密度依存性

高倍集光下における電圧回復効果として、量子ドット中間バンド型太陽電池におけるホットキャリア効果についても検討を行った。ワイドバンドギャップのバリア層を有する InAs/AlGaAs 量子ドット太陽電池において、絶対値 PL スペクトルに対して一般化プランク則を用いた定量評価を行う際に、キャリア温度についてもパラメータとして解析することで、高倍集光下における擬フェルミレベル分裂($\Delta\mu$)とキャリア温度を抽出した。その結果、集光による擬フェルミレベル分裂($\Delta\mu$)の増大に加え、ホットキャリア効果による電圧向上が期待される結果を得た。

以上より、本研究では絶対値発光分光による量子ナノ構造太陽電池における擬フェルミレベル分裂の直接計測と光マネジメント構造のデバイス実装により、「電圧維持」の要件達成と中間バンド型動作の原理実証に向けたデバイス設計指針を見出し、革新的原理に基づく次世代高効率デバイスの特性向上に資する知見を得た。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Tamaki Ryo, Kasai Tatsuki, Asai Gaku, Hata Daiki, Kubo Hajime, Takigawa Yuichi, Takeda Jun, Katayama Ikufumi	4. 巻 30
2. 論文標題 Pulse-to-pulse detection of terahertz radiation emitted from the femtosecond laser ablation process	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 23622 ~ 23622
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.459588	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Yu Jeco-Espaldon Bernice Mae, Tamaki Ryo, Giteau Maxime, Xu Hao, Ahsan Nazmul, King Richard R., Okada Yoshitaka	4. 巻 249
2. 論文標題 Electrical passivation of III-V multijunction solar cells with luminescent coupling effect	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Solar Energy Materials and Solar Cells	6. 最初と最後の頁 112045 ~ 112045
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.solmat.2022.112045	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Giteau Maxime, Oteki Yusuke, Kitahara Kento, Miyashita Naoya, Tamaki Ryo, Okada Yoshitaka	4. 巻 12
2. 論文標題 Resonant absorption for multilayer quantum well and quantum dot solar cells	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Photonics for Energy	6. 最初と最後の頁 22203
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1117/1.JPE.12.022203	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 1件/うち国際学会 4件）

1. 発表者名 Ryo Tamaki, Masashi Suzuki, Jun Takeda, Ikufumi Katayama
2. 発表標題 Terahertz Time-Domain Spectroscopy using Chirped-Pulse Up-Conversion with Dispersion Compensation
3. 学会等名 15th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Ryo Tamaki, Masashi Suzuki, Jun Takeda, Ikufumi Katayama
2. 発表標題 Chirped-Pulse Up-Conversion Spectroscopy Applicable to Terahertz Waveform Detection in Time-Domain
3. 学会等名 International Conference on Ultrafast Phenomena (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Ryo Tamaki, Masashi Suzuki, Jun Takeda, Ikufumi Katayama
2. 発表標題 Chirped-pulse up-conversion spectroscopy with dispersion compensation using an Yb-doped fiber laser
3. 学会等名 The Third International Symposium on Frontiers in THz Technology (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Ikufumi Katayama, Ryo Tamaki
2. 発表標題 Singleshot and high-sensitivity detection of terahertz waveforms using phase-offset electro-optic sampling and an echelon mirror
3. 学会等名 SPIE Photonics West (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 玉置亮, 鈴木雅史, 武田淳, 片山郁文
2. 発表標題 分散補償チャープパルス分光法によるテラヘルツ時間波形計測
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 玉置亮, 鈴木雅史, 武田淳, 片山郁文
2. 発表標題 分散補償チャープパルス分光法によるシングルショットテラヘルツ時間領域分光
3. 学会等名 第41回電子材料シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 玉置 亮, 鈴木 雅史, 武田 淳, 片山 郁文
2. 発表標題 分散補償チャープパルスと周波分光法による高感度シングルショットテラヘルツ波形計測
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 玉置 亮、鈴木 雅史、武田 淳、片山 郁文
2. 発表標題 分散補償チャープパルス分光法によるシングルショット超高速応答計測
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 玉置亮、庄司靖、Jean-Francois Guillemoles、岡田至崇
2. 発表標題 InAs/GaAs量子ドット太陽電池における絶対値発光分光：電圧バイアス依存性
3. 学会等名 第39回電子材料シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 樽木悠亮、Maxime Giteau、福島啓、北原健渡、宮下直也、玉置亮、岡田至崇
2. 発表標題 Fabry-Perot共振を用いた量子ドット太陽電池の光吸収率増強
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------