

平成 30 年 4 月 13 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2014～2017

課題番号：26246017

研究課題名(和文) 高密度自己組織化量子ドットアレイの作製と光電変換メカニズムの解明と制御

研究課題名(英文) Fabrication of high-density self-organized quantum dot array and control of photovoltaic conversion mechanism

研究代表者

岡田 至崇 (OKADA, YOSHITAKA)

東京大学・先端科学技術研究センター・教授

研究者番号：40224034

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 32,200,000円

研究成果の概要(和文)：従来のpn接合間の最適なエネルギー位置に新たにバンド構造を導入した中間バンド型太陽電池が実現できると、エネルギー変換効率の理論値は60%(集光時)を上回り、現在の単結晶Si太陽電池の2～3倍の発電量が得られる。このような太陽電池を実現する素子構造として、高密度、高均一で周期配列させた量子ドット超格子(ドット結晶)が挙げられる。本研究では価電子帯から中間バンドへ、また中間バンドから伝導帯への励起強度と時間遅れが光電流に及ぼす影響を網羅的に調べることにより、中間バンドの役割を明確にし、かつこのときの最適な集光条件を見出すことにより、電流整合の最適化及び高電圧化を図ることを目的とした研究を行った。

研究成果の概要(英文)：The intermediate band solar cell is one of the most promising candidates for the next generation of photovoltaic cells with a maximum theoretical efficiency of >60% under sunlight concentration, and quantum dot based solar cells gained intense research. In this work, type-II GaSb/AlGaAs quantum dot solar cells were investigated for application to intermediate band solar cells. Multi-stacked GaSb quantum dots were embedded in the i-region of host GaAs or AlGaAs single-junction solar cells. Fourier transform photocurrent spectroscopy with absolute intensity calibration revealed infrared external quantum efficiency spectra by two-step photon absorption. Thermionic emission of photo-carriers was suppressed efficiently in these device architectures, and significant photocurrent production via two-step photon absorption was confirmed at room temperature operation.

研究分野：量子ナノ構造

キーワード：量子ドット太陽電池 中間バンド太陽電池 自己組織化量子ドット 2段階光吸収過程 分子線エピタキシー

1. 研究開始当初の背景

Shockley-Queisser 理論限界を超える太陽電池の高効率化技術として、多接合型が広く研究されてきた。現在の III-V 族化合物半導体を用いた 3 接合セルにおいて、米 Spectrolab が 450 倍集光で 41.8%、また 2013 年 6 月にはシャープが 44.4% (200 倍集光) の世界最高効率を報告している。また米 Solar Junction は、格子整合系の InGaP/GaAs/GaInNAs の 3 接合セルを開発し、効率 44.0% (450 倍集光) を記録している。集光型太陽光発電システムでは、太陽光をレンズや反射ミラーを使って集めるため、1 つのセル面積が小さく、また全体の使用量を少なくできる。現在の市場標準の集光型発電システムの集光倍率は約 550 倍であり、これは 165mm 角のレンズに対して 1 つのセル面積は 7mm 角程度である。集光フレネルレンズは安価なプラスチック製が多く、材料費は結晶 Si 太陽電池の約 1/3 で済む。これは、使用する III-V 族化合物半導体の面積あたりのコストは結晶 Si より 2 桁程度高いものの、500~1000 倍に集光して使用すると、1W あたりの生産コストを安くできることによる。しかし、50%以上の高い変換効率を得るためには、4 接合セルが不可欠であり、太陽光スペクトルと整合した最適なバンドギャップ構成でかつ基板と格子整合する化合物材料、また各セル間をつなぐワイドギャップのトンネル接合材料等の重要な課題をまだ残している。

一方、従来の pn 接合間の最適なエネルギー位置に新たにバンド構造を導入した、中間バンド型太陽電池が実現できると、エネルギー変換効率の理論値は 60% (集光時) を上回り、現在の単結晶 Si 太陽電池の 2~3 倍の発電量が得られる。このような太陽電池を実現する素子構造として、高密度、高均一で周期配列させた量子ドット超格子 (ドット結晶) が挙げられる。

2. 研究の目的

中間バンドを用いた高効率化では、中間バンド内のレベルに光励起されたキャリアの寿命が十分長いこと、さらに中間バンド→伝導帯への光励起が効率良く生じることが必須である。この光励起と再結合レートとの競合関係、及び太陽光スペクトルとの整合性が太陽電池の特性を決定する。したがって、ある中間バンド構造をもった太陽電池がある変換効率を示すとき、効率の値を決めている過程が何かを知るためには、競合する個々の過程を個別に取り出して評価できる必要がある。

これまでの研究で、InGaAs/GaAsSb 系タイプ II 量子ドット太陽電池を取り上げ、17.3% (非集光時) の世界トップレベルの高効率を達成した。本研究では次の重要なステップとして、価電子帯→中間バンドへの励起強度、また中間バンド→伝導帯への励起強度と時間遅れが光電流に及ぼす影響を網羅的に

調べることによって、中間バンドの役割を明確にし、かつこのときの最適な集光条件を見出すことにより、電流整合の最適化及び高電圧化を図ることを目的とした。

3. 研究の方法

これまでに開発を進めてきた高均一で高密度の量子ドット超格子の作製技術の実績を基に、量子ドット超格子中に形成されるミニバンドを介した光電変換過程のメカニズムの解明とその制御法を確立し、高効率化に向けて素子構造の最適化を目指した。

具体的には、

(1) 電子と正孔の空間的分離を速やかに行うため、タイプ II 超格子の InAs/GaAsSb 量子ドットの自己組織化成長・多重積層技術を確立する。高密度で高均一に面内周期性に優れた量子ドット群が形成される(311)B 基板を用い、成長過程の制御法の構築を行った。

(2) InAs 量子ドット超格子中のミニバンドを介したキャリアダイナミクスを精密に評価し、制御因子を明らかにするため、2段階光吸収の評価技術を研究した。特に過飽和吸収の過渡応答を詳細に調べることによって、量子ドット太陽電池動作で重要となるミニバンド→伝導帯への光吸収係数に関して定量的な評価を行った。また、ホットキャリアのエネルギー緩和過程を明らかにすることによって、キャリア緩和過程に関わる制御因子を抽出し、ミニバンドからより効率の高いキャリアの引出を実現し、高開放電圧動作を確認することを試みた。

4. 研究成果

(1)高ギャップ材料で埋め込んだ量子ドット構造の作製

電界減衰型 InGaAs/AlGaAs 量子ドット太陽電池のキャリア収集効率を改善するために、高ギャップ材料の AlAsSb を用いて InGaAs 量子ドットを埋め込む構造を作製した。AlAsSb 層がバリアとなり InGaAs 量子ドットへのキャリアの捕獲が抑制され、明瞭に太陽電池特性が改善されることを実証した。

(2)2段階吸収メカニズム解明と高効率化に向けた最適セル設計

多重積層 In(Ga)As 量子ドット太陽電池について、異なるバリア層材料を用いて伝導帯バンドオフセットを系統的に制御し、フーリエ変換分光法を用いて 2段階光吸収による赤外光電流スペクトルの評価・解析を行った。その結果、2段階目の赤外光電流スペクトルの吸収端エネルギーと赤外光電流応答の閾値温度は普遍的な線形関係を示すことが分かり、また室温で十分高い 2段階光吸収による電流生成を得るために必要な光キャリア閉じ込めの最小値「0.46 eV 以上」を求めることができた。これに伴い、InGaAs/InGaP 量子ドットセルの検討を開始し、現時点で最高閾値温度 230 K を得た (図 1)。

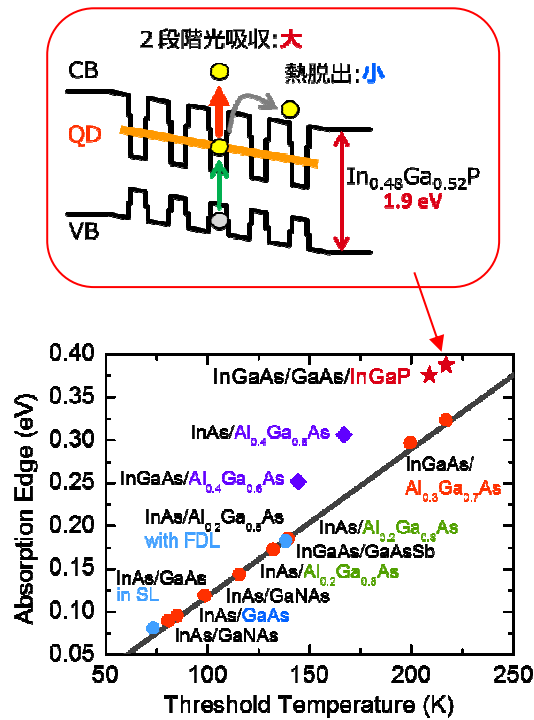


図1 量子ドットセルにおいて、異なるバリア層材料を用いて伝導帯バンドオフセットを系統的に制御し、フーリエ変換分光法を用いて2段階光吸収による赤外光電流スペクトルを評価した結果。2段階目の赤外光電流スペクトルの吸収端エネルギーと赤外光電流応答の閾値温度は普遍的な線形関係を示すことが分かった。

次に、多重積層 InAs 量子ドット太陽電池において、フーリエ変換光電流分光法を用いて2段階光吸収過程の1段階目と2段階目を詳細にスペクトル分解した量子効率スペクトルマップを測定した。量子効率スペクトルマップと太陽光スペクトル(AM1.5D)との重なり積分から、2段階光吸収による光電流生成について定量的な解析を行い(図2)、高効率化に向けた定量的な設計指針を明らかにした。

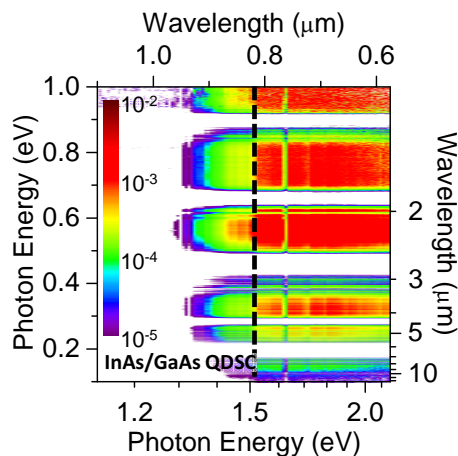


図2 InAs/Al_{0.2}Ga_{0.8}As 量子ドットセルの9 K における AM1.5D 下での光電流マッピング

(mA/cm²/eV)。破線:ホストのバンドギャップ。

(3) デバイスシミュレーションによる素子構造の最適化

量子ドットを用いた中間バンド型太陽電池を記述するデバイスシミュレータを開発した。その結果、(1)量子ドットの閉じ込め準位間での連続トンネル伝導を考慮した場合、トンネリングにより中間バンドを介した再結合が抑制され特性向上に寄与することを明らかにした。(2)フォトンラチェット機構を量子ドット中間バンド型太陽電池に導入したときの量子ドット準位とラチェット機構との依存性を明らかにし、高効率動作に向けた指針を得た。(3)実験で得られる光バイアス下での量子効率測定をデバイスシミュレーションにより解析を行うため、バイアス光を導入した量子効率計算プログラムを実装した。この実装により、2段階光吸収プロセスと競合するキャリア緩和、再結合過程の影響等の解析を行うことを可能とした。

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17件)

[1] T. Sogabe, Y. Shoji, M. Ohba, K. Yoshida, R. Tamaki, H-F. Hong, C-H. Wu, C-T. Kuo, S. Tomić, and Y. Okada, "Intermediate-band dynamics of quantum dots solar cell in concentrator photovoltaic modules", *Scientific Reports* **4**, 4792 (2014). 査読有

[2] Ryo Tamaki, Yasushi Shoji, Yoshitaka Okada, and Kenjiro Miyano, "Spectrally resolved intraband transitions on two-step photon absorption in InGaAs/GaAs quantum dot solar cell", *Applied Physics Letters* **105**, 073118 (2014). 査読有

[3] Tomah Sogabe, Yasushi Shoji, Peter Mulder, John Schermer, Efrain Tamayo, and Yoshitaka Okada, "Enhancement of current collection in epitaxial lift-off InAs/GaAs quantum dot thin film solar cell and concentrated photovoltaic study", *Applied Physics Letters* **105**, 113904 (2014). 査読有

[4] Y. Okada, N. J. Ekins-Daukes, T. Kita, R. Tamaki, M. Yoshida, A. Pusch, O. Hess, C. C. Phillips, D. J. Farrell, K. Yoshida, N. Ahsan, Y. Shoji, T. Sogabe, and J-F. Guillemoles, "Intermediate band solar cells: Recent progress and future directions", *Applied Physics Reviews* **2**, 021302 (2015). 査読有

[5] A. Datas, E. López, I. Ramiro, E. Antolín, A. Martí, A. Luque, R. Tamaki, Y. Shoji, T. Sogabe, and Y. Okada, "Intermediate band solar cell with extreme broadband spectrum quantum efficiency", *Physical Review Letters* **114**, 157701 (2015). 査読有

[6] Stanko Tomić, Tomah Sogabe, and Yoshitaka Okada, “In-plane coupling effect on absorption coefficients of InAs/GaAs quantum dots arrays for intermediate band solar cell”, *Progress in Photovoltaics: Research and Applications* **23**, 546 (2015). 査読有

[7] T. Kada, S. Asahi, T. Kaizu, Y. Harada, T. Kita, R. Tamaki, Y. Okada, and K. Miyano, “Two-step photon absorption in InAs/GaAs quantum-dot superlattice solar cells”, *Physical Review B* **91**, 201303 (2015). 査読有

[8] E. López, A. Datas, I. Ramiro, P.G. Linares, E. Antolín, I. Artacho, A. Martí, A. Luque, Y. Shoji, T. Sogabe, A. Ogura, and Y. Okada, “Demonstration of the operation principles of intermediate band solar cells at room temperature”, *Solar Energy Materials and Solar Cells* **149**, 15 (2016). 査読有

[9] Y. Shoji, R. Tamaki, and Y. Okada, “Multi-stacked GaSb/GaAs type-II quantum nanostructures for application to intermediate band solar cells”, *AIP Advances* **7**, 065305 (2017). 査読有

[10] Shunya Naito, Katsuhisa Yoshida, Naoya Miyashita, Ryo Tamaki, Takuya Hoshii, and Yoshitaka Okada, “Effect of Si doping and sunlight concentration on the performance of InAs/GaAs quantum dot solar cells”, *Journal of Photonics for Energy* **7**, 025505 (2017). 査読有

[11] T. Kada, S. Asahi, T. Kaizu, Y. Harada, R. Tamaki, Y. Okada, and T. Kita, “Efficient two-step photocarrier generation in bias-controlled InAs/GaAs quantum dot superlattice intermediate-band solar cells”, *Scientific Reports* **7**, 5865 (2017). 査読有

(他 6 件)

[学会発表] (計 1 9 件)

[1] Yoshitaka Okada (Invited), “Quantum Dot Superlattice for High-efficiency Intermediate Band Solar Cells”, OSA Congress on Optical Nanostructures and Advanced Materials for Photovoltaics, Canberra, Dec. 2014.

[2] Yoshitaka Okada (Invited), “Current Trends in High-Efficiency III-V Nanostructured Solar Cells”, Compound Semiconductor Week, Toyama, June 2016.

[3] Yoshitaka Okada (Invited), “Progress of Quantum Dot Intermediate-Band Solar Cells”, International Photovoltaic Science and Engineering Conference, Singapore, Oct. 2016.

[4] Ryo Tamaki, Yasushi Shoji, Takeyoshi Sugaya, and Yoshitaka Okada, “Universal Linear Relationship on Two-Step Photon Absorption Processes in In(Ga)As Quantum Dot Solar Cells”, 43rd IEEE Photovoltaic Specialists Conference, Portland, June 2016.

[5] Yoshitaka Okada, Yasushi Shoji, Ryo Tamaki (Invited), “Challenges and Progress on the Development of Quantum Dot Intermediate Band Solar Cells”, 2017 MRS Spring Meeting, Phoenix, April 2017.

(他 1 4 件)

[図書] (計 2 件)

[1] Yoshitaka Okada, Tomah Sogabe, and Yasushi Shoji, “Intermediate Band Solar Cells”, in *Advanced Concepts in Photovoltaics*, pp. 425-454, edited by A. J. Nozik, G. Conibeer, and M. C. Beard (2014, Royal Society of Chemistry, UK).

[2] 岡田至崇「第 7 章：次世代の太陽電池－マルチバンド型量子ドット太陽電池－」, 次世代の太陽電池・太陽光発電－その発電効率向上, 用途と市場の可能性－ (技術情報協会, 2018 年)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

<http://mbe.rcast.u-tokyo.ac.jp/>

<http://www.liapv.rcast.u-tokyo.ac.jp/NextPV/Home.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岡田 至崇 (OKADA YOSHITAKA)

東京大学・先端科学技術研究センター・教授

研究者番号：40224034

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者

(4) 研究協力者

玉置 亮 (TAMAKI RYO)

東京大学・先端科学技術研究センター・助教

庄司 靖 (SHOJI YASUSHI)

東京大学・先端科学技術研究センター・特任助教

吉田 勝尚 (YOSHIDA KATSUHISA)

東京大学・先端科学技術研究センター・特任研究員