

氏名(本籍)	しょうじ やすし 庄司 靖(北海道)
学位の種類	博士(工学)
学位記番号	博甲第6397号
学位授与年月日	平成25年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
審査研究科	数理物質科学研究科
学位論文題目	量子ドット超格子の作製と中間バンド型太陽電池応用

主査	筑波大学教授	理学博士	秋本克洋
副査	筑波大学教授	博士(工学)	末益崇
副査	筑波大学教授	工学博士	上殿明良
副査	東京大学教授	工学博士	岡田至崇

論文の内容の要旨

本研究では、単接合太陽電池の限界効率 (Shockley-Queisser limit) を超える高効率太陽電池として期待されている中間バンド型太陽電池に向けて量子ドット超格子の最適構造の検討を行った。

中間バンド型量子ドット太陽電池では、量子ドット超格子を用いることによって伝導帯と価電子帯との間に中間バンドを形成し、中間バンドを介した2段階の光吸収を利用することで透過損失となっていた近赤外光を吸収することが可能となり、最大集光動作時の理論限界効率が63%に達する。しかしながら、これまで試作されてきた量子ドット太陽電池の変換効率はまだ低く、また室温動作における2段階光吸収の観測例はほとんどない。これは量子ドットによる光吸収量が少ないこと、量子ドット導入により再結合損失が増大すること、量子ドット内に生成されたキャリアが熱的に脱出してしまうことなどが理由として挙げられる。これらの課題に対し、本研究では分子線エピタキシー法を用いて、多重積層量子ドットの高速成長技術の開発、タイプIIヘテロ構造の導入、量子ドットの近接積層化、母体材料のワイドギャップ化を行った。

GaAs(311)B基板上のInGaAs量子ドットは面内で配列構造を形成するため、積層成長することで3次元超格子を形成することができる。このとき、量子ドット層の光吸収量が小さいため、中間バンドで十分に光吸収を行うには、通常百層以上の多重積層化が必要となる。しかしながら、量子ドットの成長速度は通常0.1 $\mu\text{m/h}$ 以下と遅く、多重積層化には非常に時間を要する。この課題に対して、本研究では、原料を1.0 $\mu\text{m/h}$ で高速供給した後、成長中断を行うことで供給原料をマイグレーションさせて量子ドットを形成できることを見出した。また、同技術を用いてInGaAs/GaAs積層量子ドット太陽電池を作製し、量子ドットを介した2段階の光吸収による光電流の生成を室温にて観測することに成功した。

量子ドット層における再結合損失を低下させるために量子構造の検討を行った。量子ドットの埋め込み層として、GaAsSb材料を用いることによって、電子と正孔が空間的に離れた場所に閉じ込められるタイプIIヘテロ構造を形成し、量子ドット太陽電池へ導入することを検討した。その結果、GaAsSb層を用いることによって量子ドットによる発光再結合を抑制することができ、また量子ドットを介した2段階光吸収量を増加させることに成功した。

量子ドットを用いて積層方向に中間バンドを形成するには量子ドット間を近接させて電子的に結合させる

必要がある。本研究では InGaAs/GaAs 積層量子ドットのキャリア寿命を時間分解 PL 測定から評価し、中間層膜厚 10 ~ 20 nm の領域で量子ドット間が電子的に結合することを明らかにした。また、同条件を用いて近接積層量子ドット太陽電池を作製し、2 段階光吸収のバイアス依存性を評価した。その結果 2 段階光吸収によるキャリア収集率が増加することを実証した。

量子ドット内のキャリアが熱励起によって脱出する過程を抑制するために、母体材料としてバンドギャップエネルギーの大きい AlGaAs を用いることを検討した。AlGaAs を母体材料とした量子ドット太陽電池では、波長 300 ~ 700 nm の領域において 2 段階光吸収が観測された。本波長領域における 2 段階光吸収は、一度、価電子帯から伝導帯に励起されたキャリアが量子ドット内にトラップされることで生じる過程ではあるが、その生成電流量は短絡電流値の 12.6 % を占めており、非常に高い値が得られた。

以上、本研究では世界的に実証例の少ない量子ドット太陽電池の 2 段階光吸収を観測し、また結晶成長法やバンド構造を変化させることで 2 段階光吸収による生成電流量を増加させることに成功した。本成果は、量子ドット太陽電池の高効率化に向けて、材料・ヘテロ構造の最適化に関して重要な知見になると考えられる。

審 査 の 結 果 の 要 旨

中間バンド型太陽電池は理論的予測だけが先行し、その可能性を示す実験的データが得られていなかった。本研究で、タイプ II ヘテロ構造を採用し、さらに材料選択の工夫により二段階光吸収量を増加させることに初めて成功した。この結果は中間バンド型太陽電池の可能性を明らかにし、今後の研究開発の方向性を示した重要な結果と位置づけられる。

平成 25 年 2 月 18 日、数理物質科学研究科学学位論文審査委員会において審査委員の全員出席のもと、著者に論文について説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって、合格と判定された。

上記の論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士（工学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。