

審査の結果の要旨

氏名 内藤 駿弥

本論文は、「InAs/GaAs 量子ドット太陽電池における中間バンドの占有率制御」と題し、多重積層量子ドットを用いた中間バンド型太陽電池の高効率化に向けて、中間バンドの電子占有率の効果と制御法に関し、理論計算及び実験による量子ドット太陽電池の作製評価について述べたものであり、全6章からなる。

第1章は序論であり、本研究の背景と目的を解説している。再生可能エネルギーとして太陽光発電の重要性を述べるとともに、太陽電池の高効率化の必要性を論じている。

第2章では高効率太陽電池として中間バンド型太陽電池を取り上げている。中間バンド型太陽電池は、半導体のバンドギャップ内に光吸収可能なエネルギー準位を設けることで、この準位を介したキャリア生成を行うことにより従来は利用できなかったバンドギャップ以下の光子を利用することで高効率動作が実現される。本論文では、中間バンドの電子占有率の制御を行うことで、変換効率の改善に必要な中間バンドを介した2段階光吸収による電流生成を増加させる最適構造をシミュレーション、実験の両面から検討することを目的としている。

第3章では、本研究で用いた分子線エピタキシー(MBE)法による単結晶薄膜成長装置、またフォトルミネッセンス装置等の評価法を述べている。

第4章では、InAs/GaAs 量子ドットに対する Si ドーピングの効果調べている。条件を変えて作製した10層積層 InAs 量子ドットの表面形状を観察し、成長ごとにドットの形状・密度に差が生じないことを確認した。また単層量子ドットのフォトルミネッセンス測定結果から、Si ドーピングによる発光波長のシフトが小さいことを観測した。したがって、Si ドーピングが InAs/GaAs 量子ドットの形状等へ与える影響は小さいと考えられる。次に、単層量子ドットサンプルに対して低温での時間分解フォトルミネッセンス測定を行い、Si ドーピングによって量子ドットの発光における短い時定数の減衰が抑制されることが示唆された。

第5章では、10層積層 InAs/GaAs 量子ドット太陽電池を作製し、Si ドーピングと集光が太陽電池の特性に与える影響を評価している。まず開放端電圧について、1 sun の擬似太陽光照射下で Si ドーピング濃度を増やすにしたがって開放端電圧の上昇が観測された。また集光によって量子ドット太陽電池の開放端電圧が上昇した場合においても、Si ドーピング濃度が高いセルの方が低いセルに比べ開放端電圧が高いが、その差は集光倍率が上昇するにしたがって小さくなった。これは Si ドーピングしたキャリアと光吸収によって生じたキャリアが同様に働いていることを示唆している。次に外部量子効率

(EQE)の測定において、Si ドーピングによって GaAs 吸収域の長波長領域のキャリア取り出し効率が低下することが分かった。このことは Si ドーピングによるバンド平坦化の効果によりキャリア取り出しが困難になっているためと考えられる。

次に、中間バンド伝導帯(IB-CB)の光吸収の向上は通常の電流-電圧測定や EQE 測定ではその確認が難しい。そこで本研究では低温での Δ EQE 測定と室温での Δ PPL 測定、赤外光集光実験を行っている。 Δ EQE 測定とは、EQE 測定において赤外バイアス光照射有無の差分をロックインアンプで検出したものであり、2段階光吸収による電流値に対応する。低温における Δ EQE は Si ドーピング濃度が上昇するにしたがって増加し、高濃度では飽和する傾向が見られた。これは Si ドーピングによって中間バンドの電子占有率が上昇し、2段階光吸収が増加したことを示唆している。さらに Δ EQE は低温では明瞭に観測されたが、室温では量子ドットからのキャリアの脱出が増え確認できなかった。そこで室温で Δ PPL を測定した。 Δ PPL は可視光レーザー照射条件と更に赤外光レーザーを加えて照射した条件での PL 光の差分である。量子ドットからの PL 光は赤外光レーザーの照射によって減少した。さらに Δ PPL と可視光の PL を比較することにより、Si ドーピングが2段階光吸収の価電子帯-中間バンド(VB-IB)間と IB-CB 間の吸収のバランスを改善させることが分かった。

一方、InAs/GaAs 系量子ドット太陽電池では InAs 量子ドットから電流は全体の 1~2% に過ぎないが、GaAs フィルターを通した赤外光を集光することで、InAs 量子ドット層で吸収された電流のみを計測することが可能になる。測定の結果、短絡電流が集光によって非線形に増加することを観測した。これは集光倍率が上がるにしたがって中間バンドの電子占有率が上昇し、2段階光吸収による電流が増加することで電流が非線形に増加していると考えられ、中間バンドの電子占有率が增大していることを示している。さらに Si ドープした量子ドット太陽電池では Si ドープ無しの太陽電池に比べ電流増加量が小さいことを明らかにした。

第6章は結論であって、本研究で得られた成果を総括するとともに、将来展望について述べている。中間バンドの電子占有率が中間バンドを介したキャリア生成割合に大きく影響し、中間バンドの占有率を制御することが高効率動作を実現するために重要な鍵となることを明らかにし、またキャリア占有率の制御法として、中間バンドへの Si ドーピングと集光動作が有効であることを示した。

以上、これを要するに、本論文は多重積層量子ドットを用いた中間バンド型太陽電池の高効率化に向けて、中間バンドの電子占有率の効果とその制御法に関し理論計算及び実験的研究を行い、効率向上のための重要な指針を示したものであり、量子ドットを用いた高効率太陽電池技術、また光エレクトロニクスデバイス応用に寄与するところが少なくない。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。