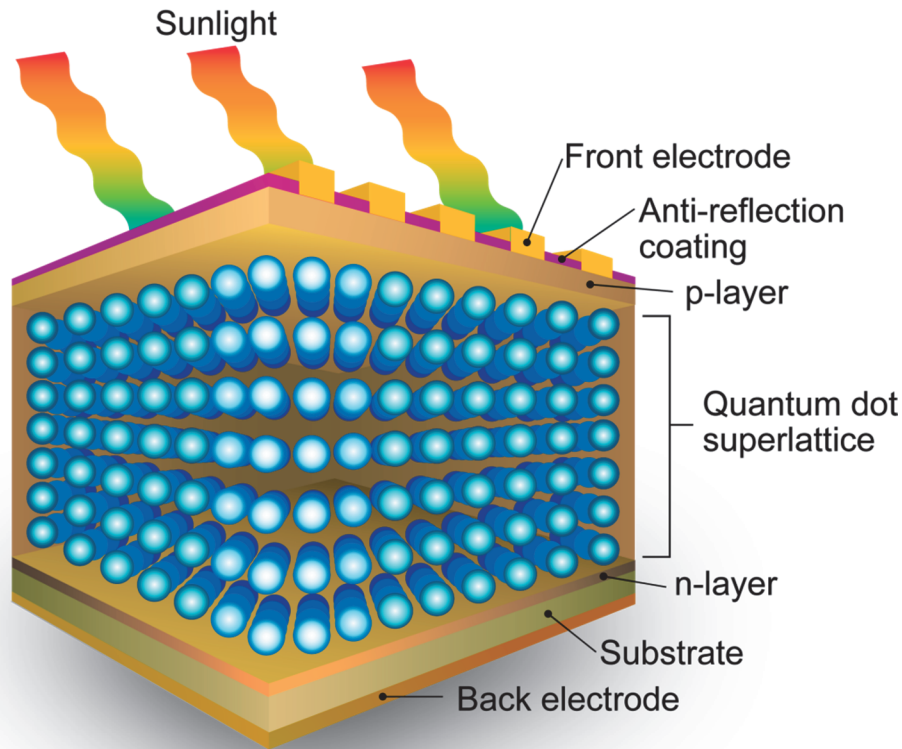


超多積層量子ドット太陽電池と トンネル効果

菅谷武芳

革新デバイスチーム

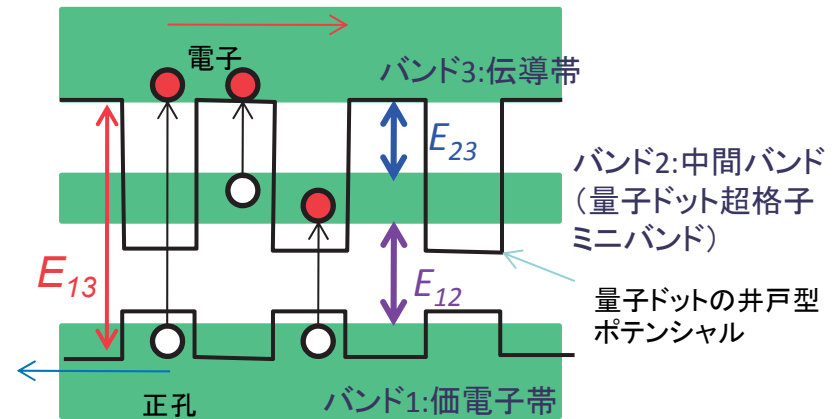
量子ドット太陽電池



量子ドット超格子太陽電池

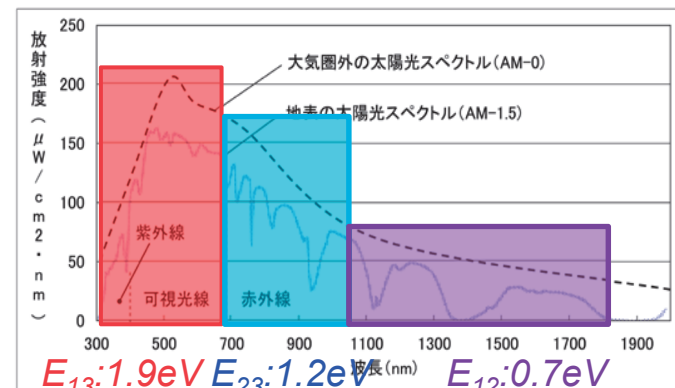
理論上: 変換効率60%以上(集光)

- A. Luque et al., Phys. Rev. Lett. **78** (1997) 5014.,
- B. A. Marti et al., Appl. Phys. Lett. **90** (2007) 233510.



量子ドット太陽電池のバンド図

図表7 大気圏外 (AM-0) および地表上 (AM-1.5) の太陽光のエネルギースペクトル



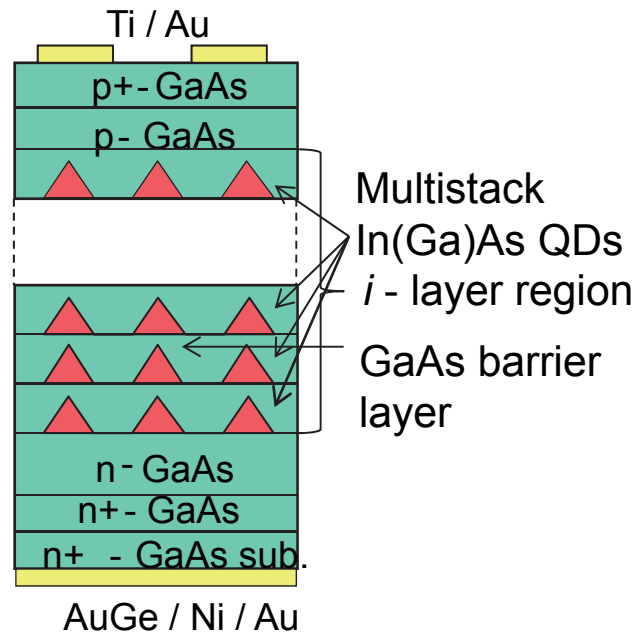
(AM (Air Mass): 太陽光が通過する空気量のこと。天頂から垂直に入射する通過空気量を AM-1 と表す)

出典: 参考文献^{10,11)}を基に科学技術動向研究センターにて作成

★ドット間隔はできるだけ小さく、3次的に整列した多積層量子ドットが必要。

量子ドット太陽電池

現状の開発状況

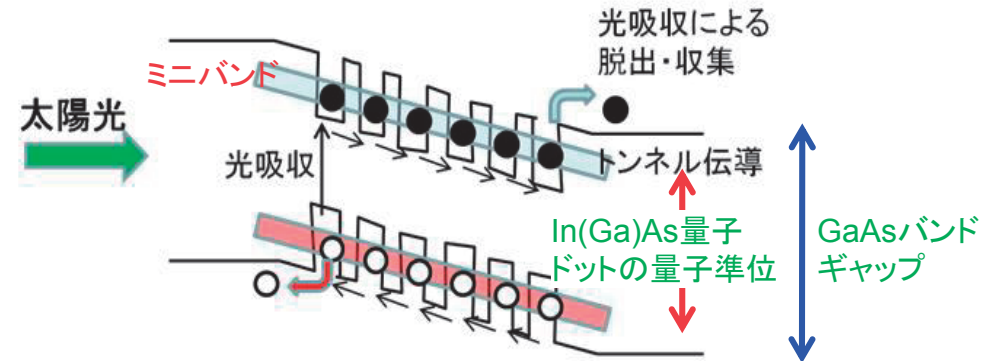


In(Ga)As/GaAs量子ドット太陽電池構造

化合物半導体量子ドット

分子線エピタキシー(MBE)等の結晶成長技術を用いた自己組織化形成を利用

InAs/GaAs系量子ドット: 最も研究が盛ん。
InAs量子ドットによりGaAsバンドギャップよりも長波長の太陽光を吸収。



量子ドット太陽電池のエネルギーバンド図

キャリアを効率よく収集するには
量子ドットミニバンド構造が必要。

多積層量子ドット成長の問題点

- ①自己形成InAs/GaAs量子ドット:最も研究が盛ん。InAs格子定数>GaAs格子定数
格子歪により、高品質多積層量子ドットが成長できない。

格子定数の小さいGaNAs層の挿入により格子歪を緩和:JAP, 106, 024306 (2009).

※バリア層の薄膜化に伴ってN組成を増加する必要があり、Vocが減少。

ミニバンド形成の報告はまだ無い。

※成長が難しい。ドット間隔が小さくできない。Nソースが新たに必要。

⇒歪補償層無しで成長したい。

★本研究ではGaAsに格子ミスマッチの少ないInGaAs量子ドットに着目

これまでの報告

- 1.歪補償技術を用いず、**As₂分子線、成長中断法の利用**により、**量子ドット多積層構造**の成長に成功。
JJAP, 49, 030211 (2010), J. Vac. Sci. Technol., B 28, C3C4 (2010).
2. **InGaAs量子ドット超格子のミニバンド形成** Appl. Phys. Lett., 97, 204311(2010).
3. **50層積層量子ドット太陽電池の作製**
Appl. Phys. Lett., 97, (2010) 183104, Sol. Energ. Mat. Sol. Cells, 95, 163 (2011).

本報告

- 1.歪補償技術を用いず、**400層のInGaAs量子ドット超多積層構造**の成長に成功。
2. **量子ドット超格子太陽電池のミニバンドを通したトンネル電流の確認**

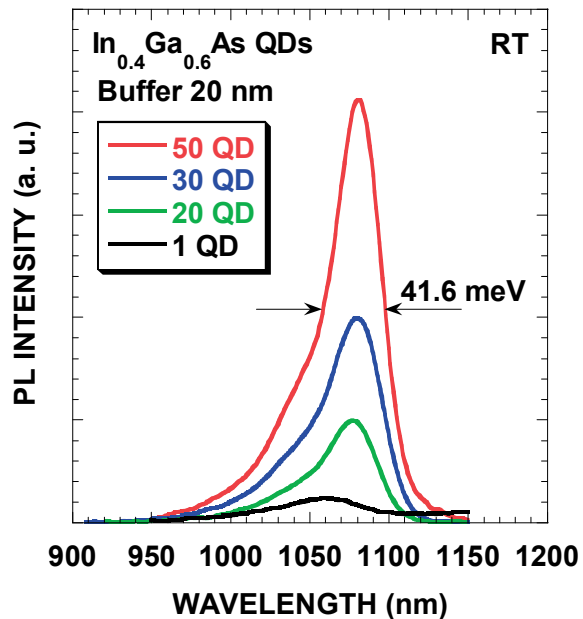
50層積層 $\text{In}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$ 量子ドット構造

歪補償技術無し

~~※~~MBE: As_2 source Jap. J. Appl. Phys., 49, 030211 (2010), J. Vac. Sci. Technol., B 28, C3C4 (2010).

STEM

G. R. $1\mu\text{m}/\text{h}$
~1 hours for 50 stack

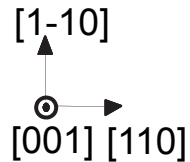


[001]
[1-10] [110]

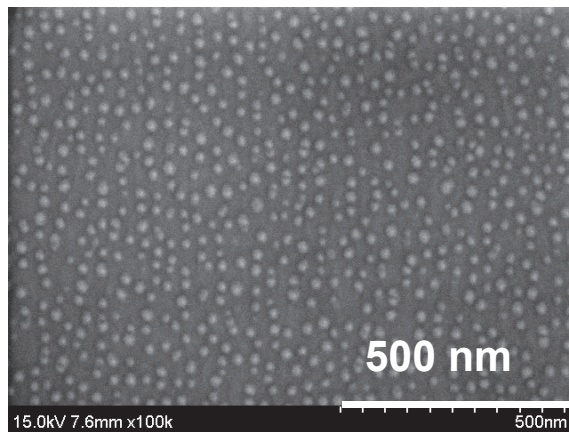
★ Well-aligned 50-stack InGaAsQD structure.

超多積層In_{0.4}Ga_{0.6}As量子ドット構造

—歪補償無しで何層まで積層できるのか?—



表面SEM 写真



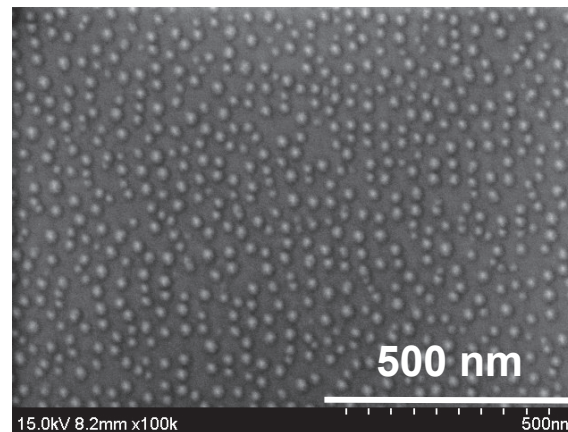
200 layers

G. I. ; 20 s

QD size: 20 – 30 nm

QD density: $6.5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$

Total: $1.3 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$



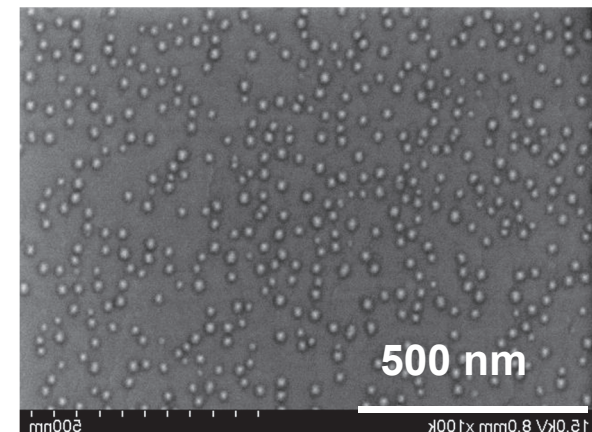
300 layers

G. I. ; 20 s

20 – 30 nm

$6.4 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$

$1.9 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$



400 layers

G. I. ; 5 s

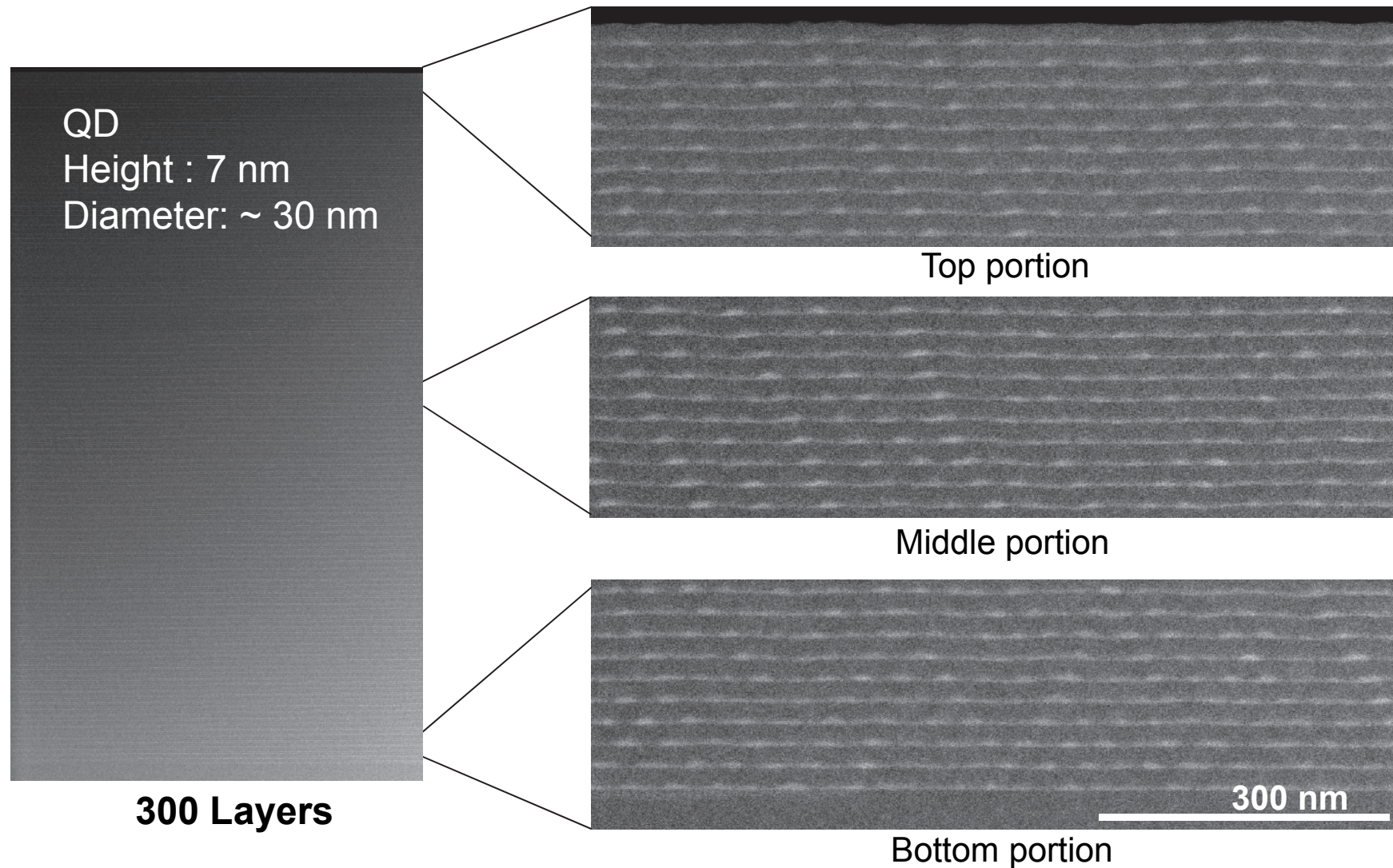
15 – 25 nm

$4.4 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$

$1.8 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$

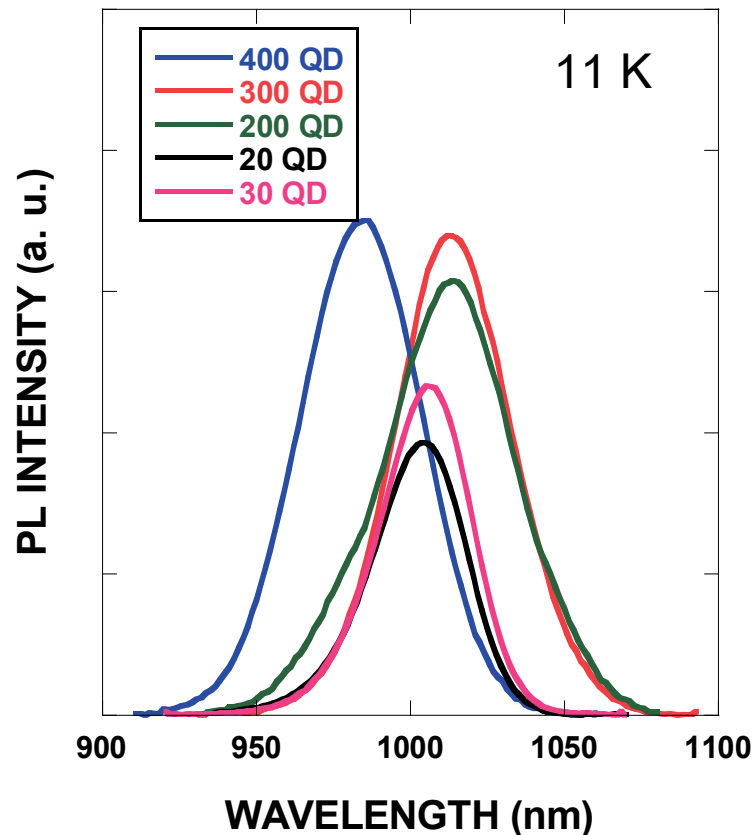
★*Ultra-high stack structures have good surface morphologies even after the stacking of 300 or 400 QD layers.*

300層 $\text{In}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$ 量子ドットの断面TEM



★欠陥や転位の無い、300層の量子ドット超多積層化に成功。

超多積層 $\text{In}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$ QD のPLスペクトル



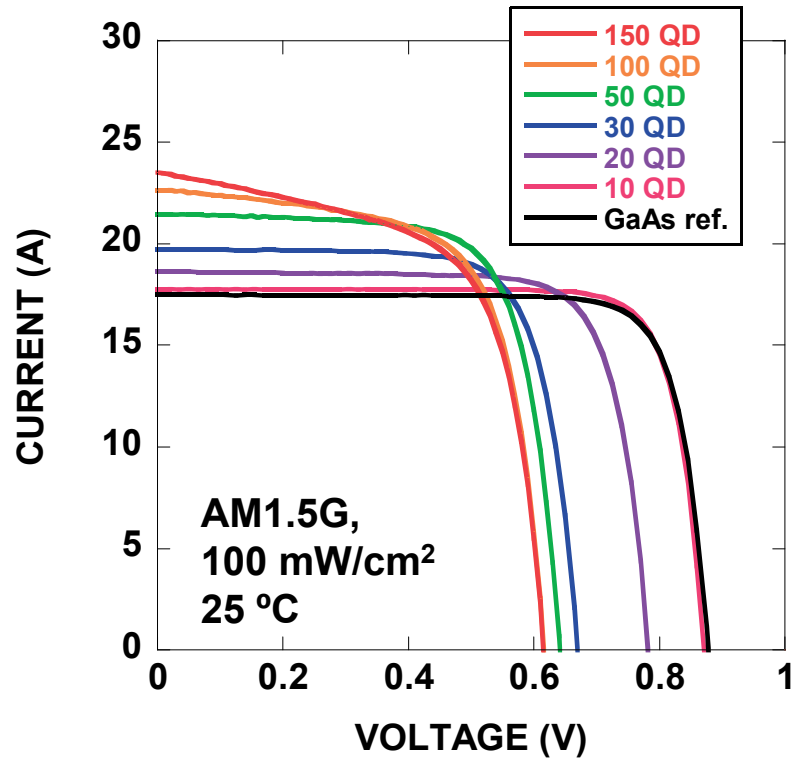
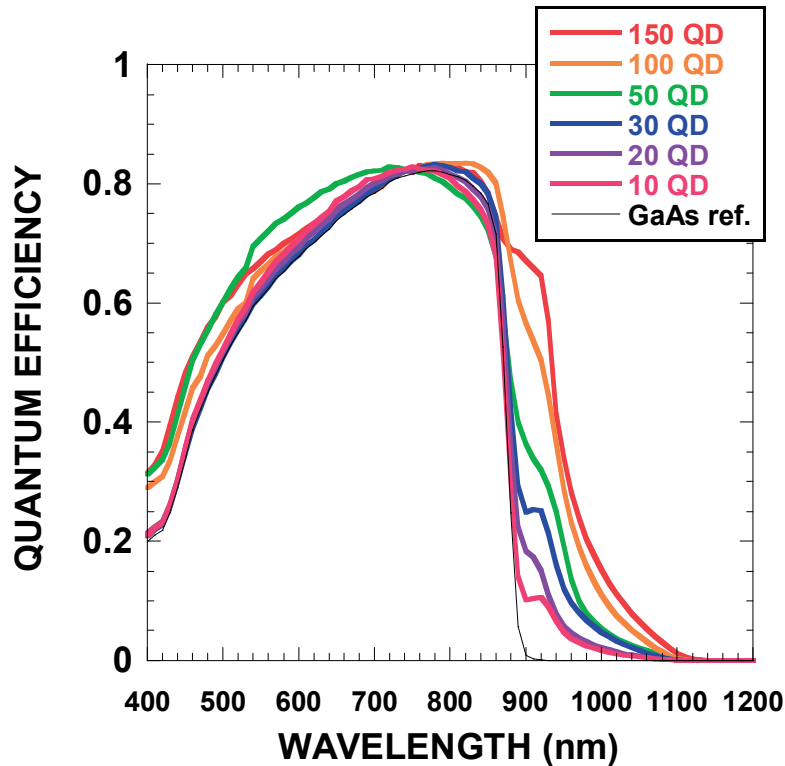
QD size:	400	< 20, 30	< 200, 300
Diameter :	20 nm	25 nm	25 nm
Height:		5 nm	7 nm

★400層の超多積層 InGaAs 量子ドット構造は、良好な光学特性を持つ。



300及び400層 $\text{In}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$ / GaAs 量子ドット構造は、臨界膜厚以内と考えられる。

超多積層InGaAs量子ドット太陽電池



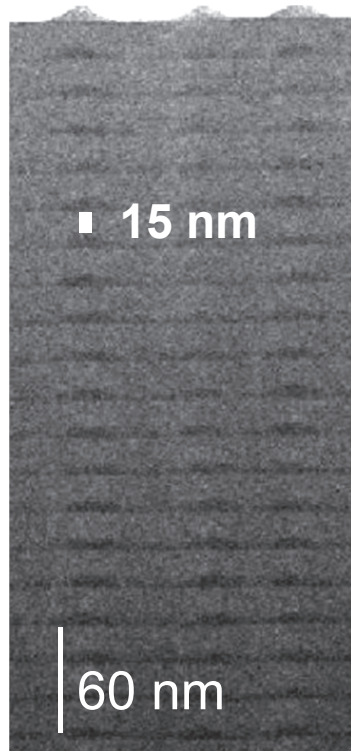
	10 QD	20 QD	30 QD	50 QD	100 QD	150 QD	GaAs ref.
Efficiency (%)	12.4	11.3	9.8	10.0	9.4	9.2	12.4
Voc: (V)	0.868	0.783	0.671	0.643	0.616	0.616	0.878
Jsc: (mA/cm ²)	17.7	18.7	19.7	21.5	22.7	23.6	17.5
FF:	0.805	0.774	0.743	0.724	0.670	0.630	0.809

Such good performance has not been reported for 100-stack QD solar cells.

In_{0.4}Ga_{0.6}As量子ドット超格子

–ミニバンドの形成–

Appl. Phys. Lett., 97, 204311(2010).

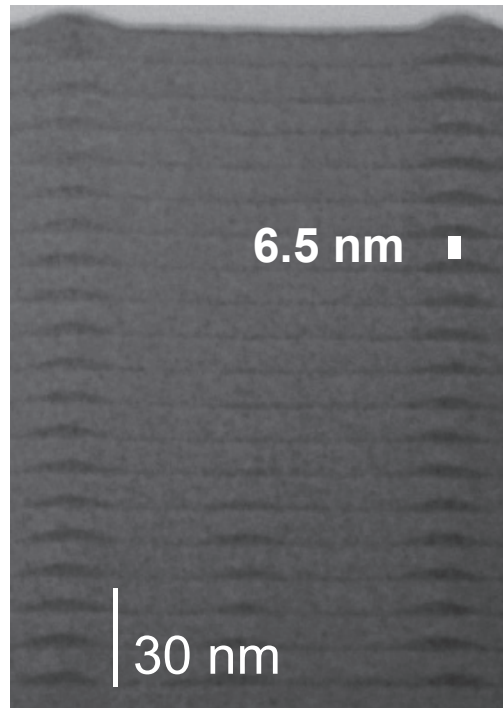


15 nm

60 nm

(a)

20 nm
15 nm

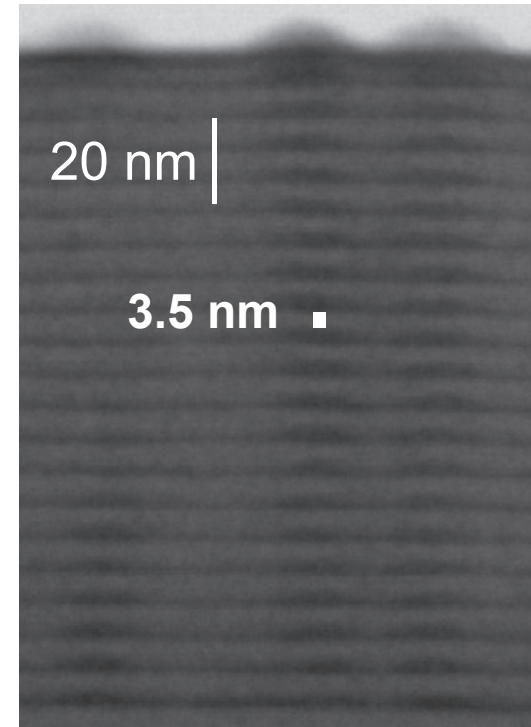


6.5 nm

30 nm

(b)

10 nm Barrier layer thickness
6.5 nm Interdot spacing



20 nm

3.5 nm

(c)

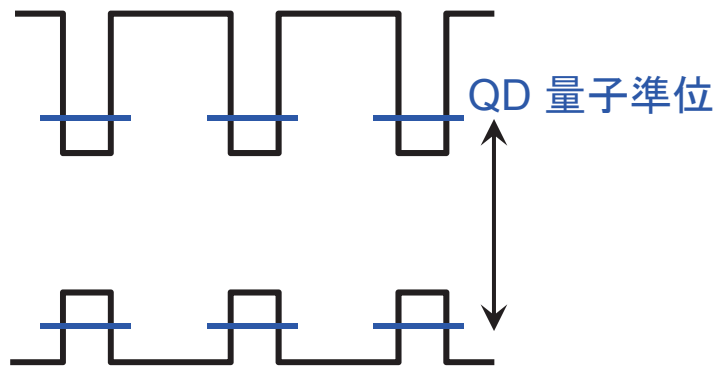
7 nm
3.5 nm

↓
ミニバンドの形成

量子ドット超格子のミニバンド形成確認

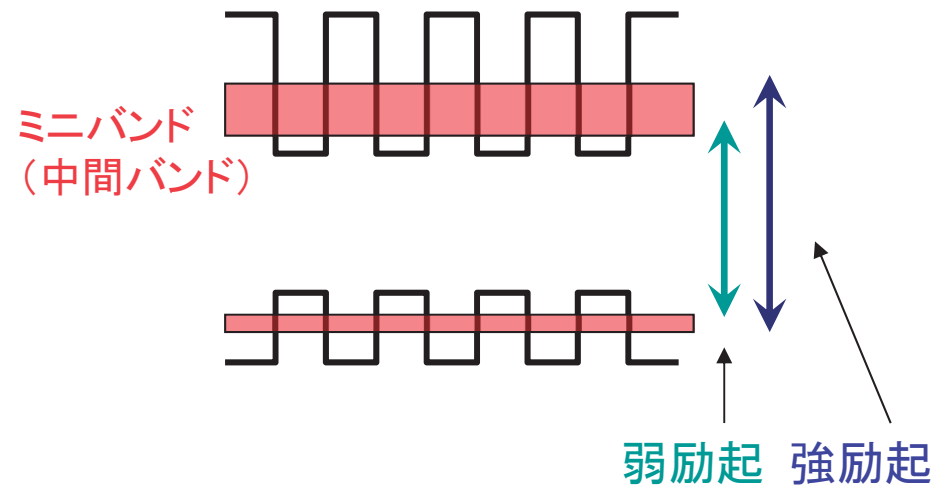
– PL励起強度依存性–

孤立量子ドット



量子ドットが孤立している場合、バンドの幅がないため励起強度によって発光波長は変化しない。

量子ドット超格子



PL励起強度依存性

高エネルギー側にバンドの幅を持つため、励起強度の増加に伴いPLピークがブルーシフトする。

バリア層厚(ドット間距離)を変化させ、PL励起強度依存性を調べる。

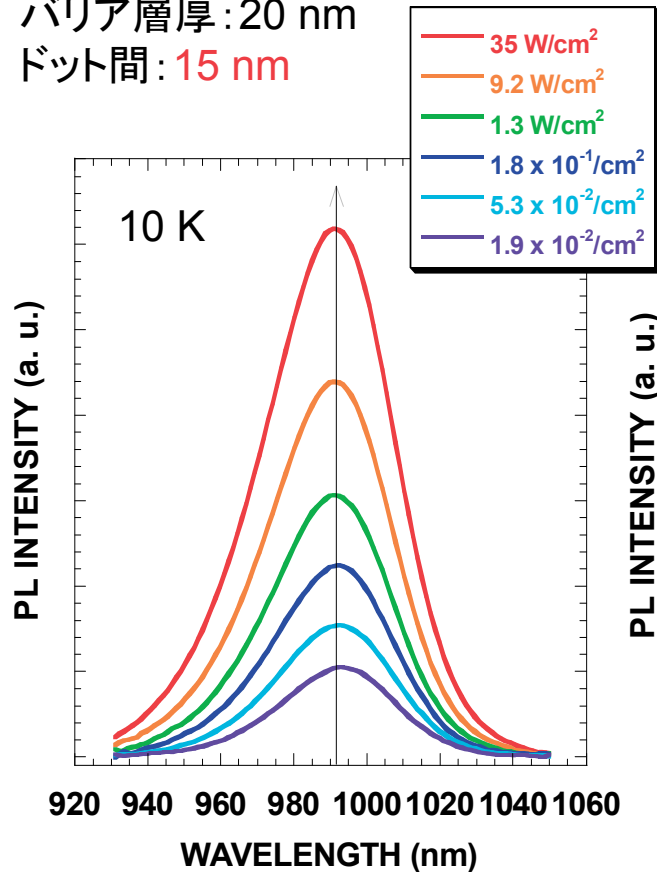
→ ドット間距離に依存してブルーシフトが変化する。

バリア層厚20, 10, 7 nm (ドット間15, 6.5, 3.5 nm)のサンプルを作製

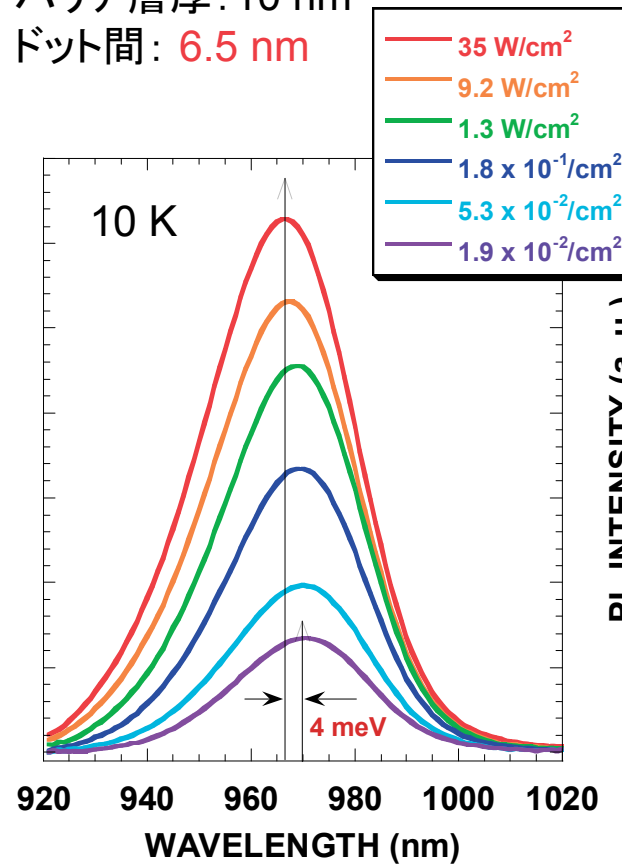
InGaAs量子ドットのPL励起強度依存性

量子ドット: 20層

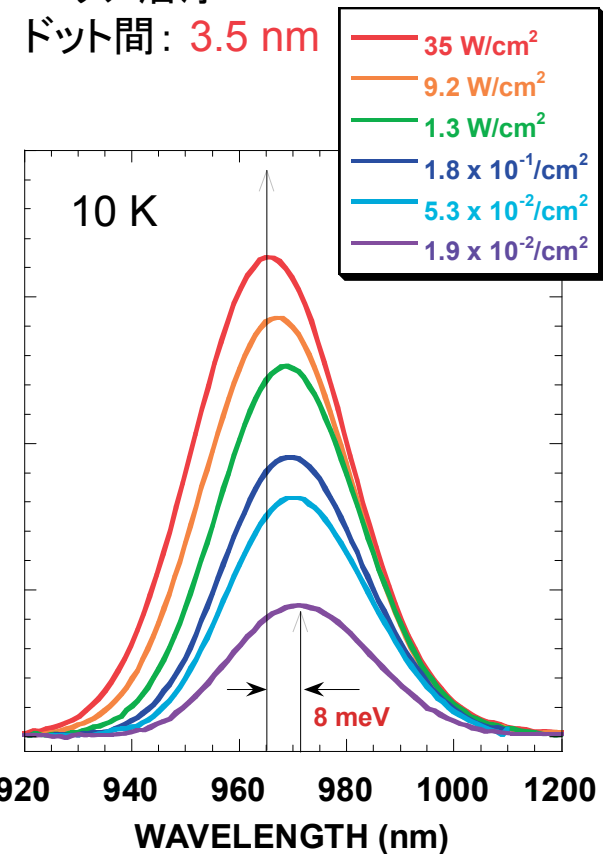
バリア層厚: 20 nm
ドット間: 15 nm



バリア層厚: 10 nm
ドット間: 6.5 nm



バリア層厚: 7 nm
ドット間: 3.5 nm

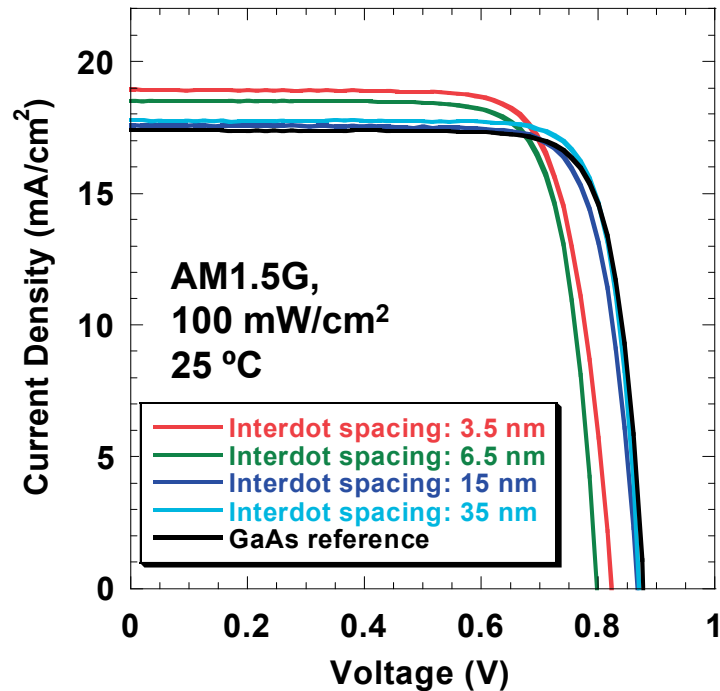


ドット間距離が小さくなると、ブルーシフト: 大

➡ 量子ドット超格子のミニバンド形成確認

Appl. Phys. Lett., 97, 204311(2010).

InGaAs量子ドット超格子太陽電池



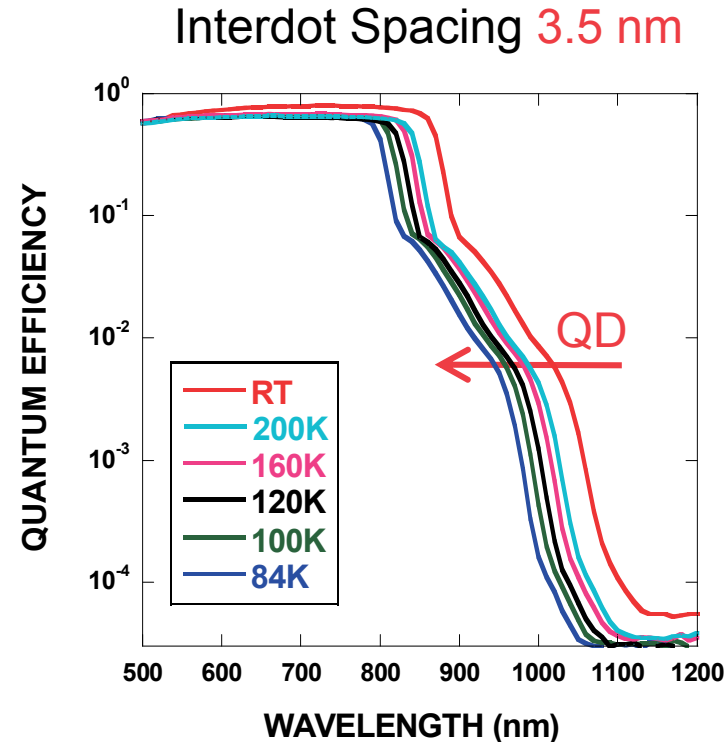
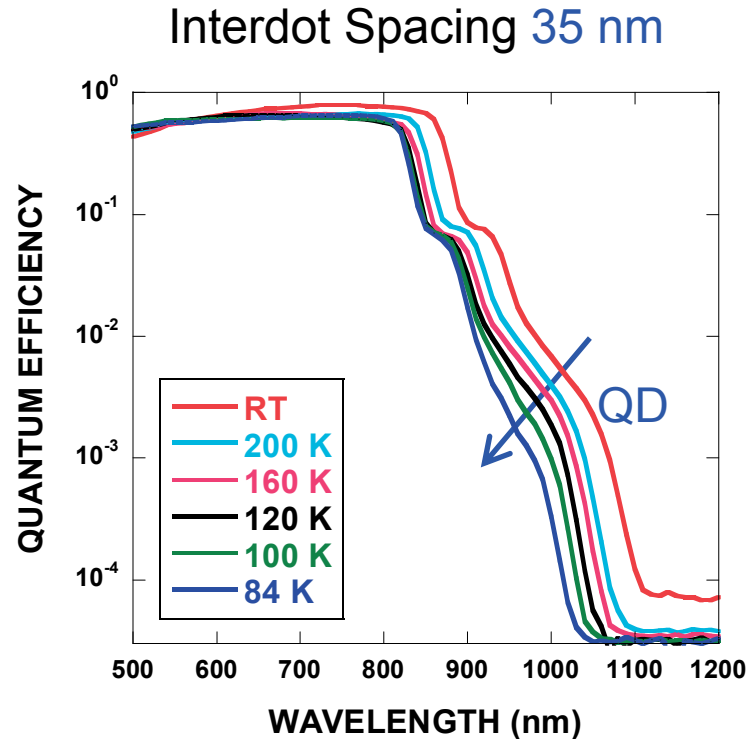
Interdot Spacing (nm)	35	15	6.5	3.5	GaAs ref.
Efficiency (%)	<u>12.6</u>	12.0	11.7	<u>12.2</u>	12.4
Voc: (V)	<u>0.871</u>	<u>0.868</u>	<u>0.798</u>	<u>0.823</u>	0.878
Jsc: (mA/cm ²)	17.8	17.5	<u>18.6</u>	<u>19.0</u>	17.4
FF:	0.813	0.790	0.785	0.780	0.809

★ドット間3.5nmにおいてもVocが高く、良好なセル特性。

★ドット間距離が小さくなるにつれてJscは増加。

EQEスペクトルの温度依存性

Sol. Energ. Mat. Sol. Cells, 95, 2920 (2011)



★QDによる光電流は**温度の低下とともに減少**。

キャリアは**熱的に励起**され、外部に取り出されている。

★QDによる光電流は**温度が低下しても減少せず**。

キャリアは**超格子中のミニバンド**をトンネルし、外部に取り出されている。

※ミニバンド中を流れるトンネル電流が、 J_{sc} の増加の寄与している。

まとめ

1. 歪補償技術を用いず、**400層の高品質超多積層量子ドット構造**の成長に成功した。
2. **150層の超多積層InGaAs量子ドット太陽電池**は優れた特性を示した。
150層においてもEQEスペクトルと J_{sc} の増加が観察された。
3. **量子ドット超格子太陽電池の J_{sc} はドット間隔が狭くなるほど増加した。**
EQEスペクトルの温度依存性から、**ミニバンド中を流れるトンネル電流が寄与していると考えられる。**