

Si基板上Ge量子ドット太陽電池の開発

後藤和泰¹・大島隆治²・菅谷武芳²・坂田功²・松原浩司²・近藤道雄^{1,2}

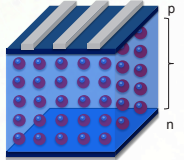
¹東京工業大学 大学院総合理工学研究科 物質科学創造専攻

²産業技術総合研究所

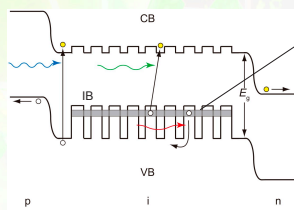
研究の目的

IV族半導体を用いた中間バンド型量子ドット太陽電池の原理検証

- 高エネルギーの光子 ($h\nu \geq E_g$) 価電子帯 (VB) と伝導帯 (CB) の光学遷移 (VB→CB)
- 低エネルギーの光子 ($h\nu < E_g$) 中間バンドを介した2段階の光学遷移 (VB→IB, IB→CB)



理論限界効率 $\leq 63\%$ (最大集光下)^[1]



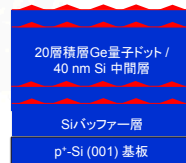
量子ドット超格子による中間バンド (IB) の形成^[2]

研究課題

- 量子ドットの高均一化, 高密度化
 - 量子ドットの配列制御
 - 発光再結合損失の低減
- ⇒ 間接遷移、タイプII型のヘテロ構造を有する Ge/Si量子ドットの高品質化

実験

固体ソース分子線エピタキシー (SS-MBE) 法



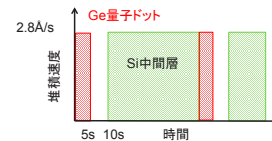
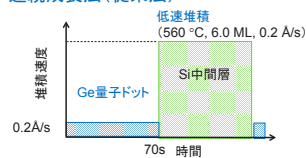
作製手順

- RCA洗浄
- 熱クリーニング (850 °C, 10分)
- Siバッファ層 (600 °C, 150nm)
- Ge量子ドット構造

Ge自己形成量子ドットの新規成長法を開発

パルス成長法^[3] 高速堆積 (2.8 A/s) + 成長中断 (5sec) (500 °C, 5.0 ML, 2.8 A/s)

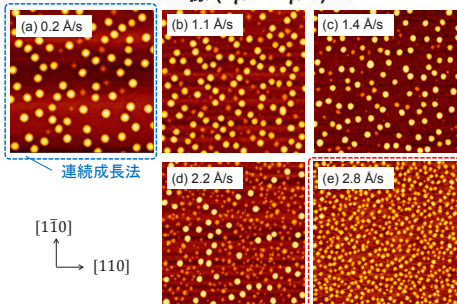
連続成長法 (従来法)



結果

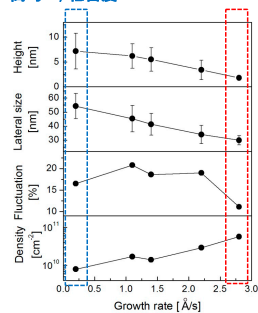
□ Ge量子ドットの堆積速度依存性

AFM像 (1μm×1μm)



量子ドットのパラメータ

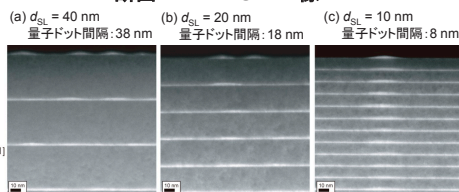
連続成長法: 高均一, 低密度
パルス成長法: 高均一, 高密度



- 1.4 A/s以下の低速領域 → ドーム型量子ドット
- 2.2 A/s以上の高速領域 → ピラミッド型の量子ドット
- 1.1 A/s ~ 2.2 A/sの中間領域では、ドーム型、ピラミッド型が混在し、大きなサイズ揺らぎ (20%)^[4]
- パルス成長法で作製した量子ドットは、最も高均一化 (11.1%), 高密度化 ($5.7 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$)

□ 積層Ge量子ドットの近接化

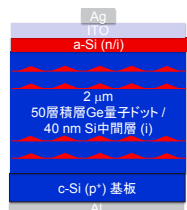
断面HAADF-STEM像



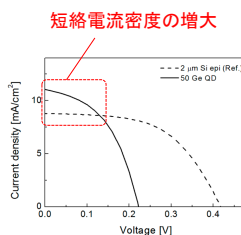
- 積層量子ドットを近接化 → 積層方向の配列性の向上
⇒ 中間層が薄い場合、下層の量子ドットの圧縮歪みが強く伝搬^[5,6]
- 量子ドット間隔を8 nmまで近接化させても転位は発生せず、高品質な積層量子ドット

□ 太陽電池特性

ヘテロ接合型Ge/Si量子ドット太陽電池構造

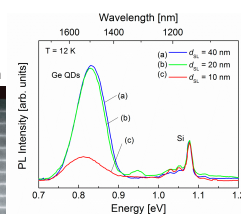


I-V特性



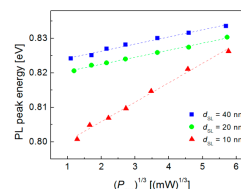
	J_{sc} [mA/cm ²]	V_{oc} [V]	FF	η [%]
50 Ge QD	11.06	0.222	0.466	1.14
2 μm Si epi	8.78	0.418	0.548	2.01

PLスペクトル



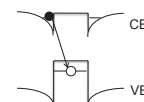
- 中間層膜厚 (d_{SL}) 10 nm → PL発光が顕著に弱化する
- 中間層を薄くするに従い、PLピーク位置が低エネルギー側にシフト

PL発光ピーク位置の励起光強度依存性



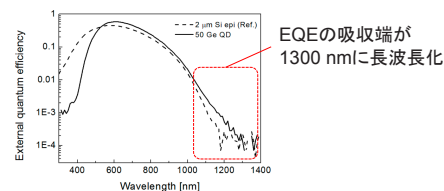
$$E_{peak} = b(P_{exc})^{1/3} \quad b \propto 1/\gamma$$

γ : 発光再結合係数



- 全ての試料で、PL発光位置は励起光強度の3乗根に比例
⇒ タイプII型ヘテロ構造の発光特性^[7]
- 中間層膜厚 (d_{SL}) 10 nmの近似線の傾き (b) が顕著に増大
⇒ 発光再結合係数 (γ) が減少
⇒ ミニバンドが形成し、トンネル効果などによりキャリアが抜けやすくなった可能性

外部量子効率



今後、Ge量子ドット層の光吸収過程の詳細な解析や、太陽電池構造、プロセスの改善による変換効率の向上を目指す。

結論

- SS-MBE法を用いてSi基板上に積層Ge自己形成量子ドットを作製した。
- パルス成長法 (堆積速度2.8 A/s, 成長中断5s) より、高均一 (~10%), かつ高密度 (~ $7 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$) なGe量子ドットが得られた。
- Ge/Si量子ドットのPL発光はタイプII型の発光特性を有し、中間層膜厚 (d_{SL}) = 10 nmの積層構造において、ミニバンドの形成が示唆されるPL特性が得られた。
- 50層積層Ge量子ドットを導入したヘテロ接合型太陽電池において、光吸収端が1300 nmに長波長化し、出力特性において短絡電流密度が増大した。

参考文献

- [1] A. Luque *et al.*, Phys. Rev. Lett. **78** (1997) 5014.
- [2] K. Yoshida *et al.*, J. Appl. Phys. **112** (2012) 084510.
- [3] K. Gotoh *et al.*, J. Cryst. Growth **378** (2013) 439.
- [4] K. Gotoh *et al.*, Thin Solid Films **557** (2014) 80.
- [5] J. Tersoff *et al.*, Phys. Rev. Lett. **76** (1996) 1675.
- [6] Vinh Le Thanh *et al.*, Phys. Rev. B **60** (1999) 5851.
- [7] N. N. Ledentsov *et al.*, Phys. Rev. B **52** (1995) 14058.