

金光 義彦

京都大学 化学研究所
教授

集光型ヘテロ構造太陽電池における非輻射再結合損失の評価と制御

§ 1. 研究実施体制

(1)「金光」グループ

- ① 研究代表者： 金光 義彦（京都大学化学研究所、教授）
- ② 研究項目
 - ・非輻射再結合速度の計測評価システムの構築と非輻射再結合過程の解明
 - ・ナノ構造のマルチエキシトン生成とオージェ非輻射再結合
 - ・実用多接合太陽電池の非輻射再結合ロス解析

(2)「秋山」グループ

- ① 主たる共同研究者： 秋山 英文（東京大学物性研究所、准教授）
- ② 研究項目
 - ・非輻射再結合速度の計測評価システムの構築と非輻射再結合過程の解明
 - ・ナノ構造のマルチエキシトン生成とオージェ非輻射再結合
 - ・実用多接合太陽電池の非輻射再結合ロス解析

§ 2. 研究実施の概要

本研究では、多接合太陽電池の基本要素である様々なヘテロ構造・量子ナノ構造材料において効率低下の実際的な主原因となっている、非輻射キャリア再結合過程の解明を行う。また、マルチエキシトン生成、オージェ再結合、アップコンバージョン過程の解明など集光型ヘテロ構造太陽電池に関する重要な課題に明確な結論を導き、基礎物理の立場から高効率化のための設計指針の具体的な提示を行う。本年度では、(1)計測システムの開発・改良と新しい太陽電池材料のキャリアダイナミクスと非輻射再結合の評価、(2)ナノ構造太陽電池におけるマルチエキシトン生成とアップコンバージョン過程の研究、(3)詳細平衡原理による多接合太陽電池の設計指針の構築、を中心に研究を行った。以下に、主な成果をまとめた。

1. 非輻射再結合速度の計測評価システムの構築と非輻射再結合過程の解明

太陽電池材料の非輻射再結合損失を定量的に評価するために、過渡光電流、過渡発光、ならびに過渡吸収を評価・解析できるシステムの開発・改良を進めた。時間分解発光・過渡吸収・光電流の三つの異なる測定手法を用いることにより、新しい太陽電池材料である $\text{Cu}_2\text{ZnSnS}_4$ (CZTS)やペロブスカイト $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ のバンドギャップエネルギーを決定することに成功し、バンドギャップエネルギー近傍の光学特性を明らかにした。さらに多接合型ナノ構造太陽電池の実現のために重要となる赤外波長領域の太陽電池材料の光電変換過程の研究を行った。特に、赤外波長領域にバンドギャップエネルギーを持つ半導体カーボンナノチューブの光学特性を明らかにした。

2. ナノ構造太陽電池のマルチエキシトン生成とオージェ非輻射再結合

GaAs や AlGaAs 結晶中に InAs 量子ディスクならび量子ドットを作製し、GaAs のバンドギャップエネルギーより小さなフォトンエネルギーをもつ赤外光による光キャリア生成過程を研究した。InAs 量子ディスクおよび量子ドットからのアップコンバージョン発光および光電流を同時測定できる顕微分光システムを用いた。浅いエネルギー準位の量子ディスク構造ではオージェ再結合過程によりキャリア生成が起こりその効率は高いが、深い準位の量子ドット構造ではキャリア生成効率が低いことが分かった。また、多波長励起分光によりエネルギー準位の異なる量子構造間のキャリア移動が、光キャリア生成に重要であることを明らかにした。

3. 実用多接合太陽電池の非輻射再結合ロスの解析

非輻射再結合の評価結果を、太陽電池材料の開発さらには太陽電池構造へ設計に利用するには、詳細平衡原理に基づく理論計算が必要不可欠になる。多接合太陽電池の各層に非輻射再結合ロスが存在する場合に、それらがどの程度敏感に効率低下をもたらすかを、詳細平衡理論を拡張して定式化した。2層構造の太陽電池において、各層の半導体材料の品質(発光の内部量子効率)が全体の太陽電池エネルギー効率に及ぼす効果を、具体的に計算した。内部発光量子効率が100%に近い領域では、太陽電池エネルギー変換効率は、内部発光量子効率に強く依存することが分かった。非輻射再結合ロスが存在する現実の材料を用いた時の多接合太陽電池の設計指針を得ることができた。

3. 成果発表等

(3-1) 原著論文発表

論文詳細情報(国際)

1. Y. Kimoto, M. Okano, and Y. Kanemitsu, "Observation of excited-state excitons and band-gap renormalization in hole-doped carbon nanotubes using photoluminescence excitation spectroscopy," *Phys. Rev. B* 87, 195416, 2013 (DOI:10.1103/PhysRevB.87.195416)
2. Y. Kanemitsu, "Multiple Exciton Generation and Recombination in Carbon Nanotubes and Nanocrystals," *Acc. Chem. Res.* 46, pp.1358-1366, 2013 (DOI:10.1021/ar300269z)
3. T. Mochizuki, T. Ihara, M. Yoshita, S. Maruyama, H. Akiyama, L. N. Pfeiffer, and K. W. West, "Fluorescent Radiation Thermometry at Cryogenic Temperatures Based on Detailed Balance Relation," *Appl. Phys. Express* 6, 056602, 2013 (DOI:10.7567/APEX.6.056602)
4. D. M. Tex, I. Kamiya, and Y. Kanemitsu, "Efficient Upconverted Photocurrent through an Auger Process in Disklike InAs Quantum Structures for Intermediate-Band Solar Cells," *Phys. Rev. B* 87, 245305, 2013 (DOI:10.1103/PhysRevB.87.245305)
5. T. Nishihara, Y. Yamada, M. Okano, and Y. Kanemitsu, "Trion Formation and Recombination Dynamics in Hole-Doped Single-Walled Carbon Nanotubes," *Appl. Phys. Lett.* 103, 023101, 2013 (DOI:10.1063/1.4813014)
6. Y. Yamada, H. K. Sato, Y. Hikita, H. Y. Hwang, and Y. Kanemitsu, "Measurement of the Femtosecond Optical Absorption of LaAlO₃/SrTiO₃ Heterostructures: Evidence for an Extremely Slow Electron Relaxation at the Interface," *Phys. Rev. Lett.* 111, 047403, 2013 (DOI:10.1103/PhysRevLett.111.047403)
7. K. Shinokita, H. Hirori, K. Tanaka, T. Mochizuki, C. Kim, H. Akiyama, L. N. Pfeiffer and K. W. West, "Terahertz-Induced Optical Emission of Photoexcited Undoped GaAs Quantum Wells," *Phys. Rev. Lett.* 111, 067401, 2013 (DOI: 10.1103/PhysRevLett.111.067401)
8. L. Q. Phuong, M. Okano, Y. Yamada, A. Nagaoka, K. Yoshino, and Y. Kanemitsu,

“Photocarrier localization and recombination dynamics in $\text{Cu}_2\text{ZnSnS}_4$ single crystals,” *Appl. Phys. Lett.* 103, 191902, 2013 (DOI:10.1063/1.4829063)

9. Y. Yamada, T. Nakamura, S. Yasui, H. Funakubo, and Y. Kanemitsu, “Measurement of transient photoabsorption and photocurrent of BiFeO_3 thin films: Evidence for long-lived trapped photocarriers,” *Phys. Rev. B* 89, 035133, 2014 (DOI:10.1103/PhysRevB.89.035133)

10. L. Zhu, C. Kim, M. Yoshita, S. Chen, S. Sato, T. Mochizuki, H. Akiyama, and Y. Kanemitsu, “Impact of sub-cell internal luminescence yields on energy conversion efficiencies of tandem solar cells: A design principle,” *Appl. Phys. Lett.* 104, 031118, 2014 (DOI:10.1063/1.4861464)

11. T. Nishihara, Y. Yamada, M. Okano, and Y. Kanemitsu, “Quantized exciton-exciton recombination in undoped and hole-doped single-walled carbon nanotubes,” *Jpn. J. Appl. Phys.* 53, 02BD10, 2014 (DOI:10.7567/JJAP.53.02BD10)

12. Y. Yamada, T. Nakamura, M. Endo, A. Wakamiya, and Y. Kanemitsu, “Near-band-edge optical responses of solution-processed organic-inorganic hybrid perovskite $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ on mesoporous TiO_2 electrodes,” *Appl. Phys. Express* 7, 032302, 2014 (DOI:10.7567/APEX.7.032302)

13. D. M. Tex, I. Kamiya, and Y. Kanemitsu, “Control of hot-carrier relaxation for realizing ideal quantum-dot intermediate-band solar cells,” *Sci. Rep.* 4, 4125, 2014 (DOI:10.1038/srep04125)

14. L. Q. Phuong, M. Okano, Y. Yamada, A. Nagaoka, K. Yoshino, and Y. Kanemitsu, “Temperature-dependent photocarrier recombination dynamics in $\text{Cu}_2\text{ZnSnS}_4$ single crystals,” *Appl. Phys. Lett.* 104, 081907, 2014 (DOI:10.1063/1.4866666)

15. D. M. Tex, T. Ihara, I. Kamiya, and Y. Kanemitsu, “Microscopic photoluminescence and photocurrent imaging spectroscopy of InAs nanostructures: Identification of photocarrier generation sites for intermediate-band solar cells,” *Phys. Rev. B* 89, 125301, 2014 (DOI:10.1103/PhysRevB.89.125301)

16. M. Okano, T. Nishihara, Y. Yamada, and Y. Kanemitsu, “Chemical doping-induced changes in optical properties of single-walled carbon nanotubes,” *Jpn. J. Appl. Phys.* 53,

05FD02, 2014 (DOI: 10.7567/JJAP.53.05FD02)