

「太陽光を利用した独創的クリーンエネルギー生成技術の創出」
平成23年度採択研究代表者

H24 年度 実績報告

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

(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

§ 2. 研究実施内容

(文中に番号がある場合は(3-1)に対応する)

本研究では、時空間分解レーザー分光を駆使して、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。マルチエキシトン生成やオージェ再結合過程の解明など集光型ヘテロ接合太陽電池開発にとって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、太陽電池材料の主なエネルギー損失過程である(i)透過損失、(ii)熱損失、(iii)バルク非輻射再結合損失を評価するための計測システムの構築・改良を行った。さらに、多接合太陽電池の設計指針をより定量的に得ること目指し、理論的な考察も進めた。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を進め、半導体材料のキャリア寿命の精密評価を行った。システムの性能評価および代表的な太陽電池材料の光電特性を明らかにする目的で、 TiO_2 や GaAs などのバルク結晶の光キャリア寿命を測定した。半導体 TiO_2 には室温で安定な二つの結晶相(ルチル型・アナターゼ型)が存在する。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組み合わせることで、結晶構造の違いを反映した電子と正孔の寿命を決定することに成功した²⁾。フェムト秒時間領域で発光スペクトルおよび光電流スペクトルを測定できるシステムを構築し、 GaN 、 GaAs などの半導体に適用した。その信号の物理的解釈も含め解析を進めた。

非輻射再結合の評価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解析が必要不可欠になる。単接合太陽電池の詳細平衡限界理論を拡張し、非輻射再結合損失が存在する場合にそれがどの程度敏感に効率低下をもたらすか理論的検討を進めた。また、この効果を検証するための高品質単接合 GaAs 太陽電池試料を設計し、結晶成長を行った。

2. 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

ナノ構造半導体太陽電池は、バルク結晶にはない量子化された準位を利用して透過損失および熱損失を抑制できる特徴を有する。最適な単層太陽電池材料の一つである GaAs 薄膜中に 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。低温から室温までのアップコンバージョン発光および光電流の励起スペクトルを計測・評価するにより、キャリア多体効果により光電流に寄与できるキャリアが生成されることを明らかにした。

ナノ構造半導体では、バンドギャップエネルギーより非常に大きなエネルギーをもつフォトン

吸収することにより余剰エネルギーを持った光キャリアが生成される。この余剰エネルギーが熱に変換される前に新しいキャリア生成を行うキャリア増幅過程(一光子多電子変換)を利用したエネルギー変換効率の向上が期待されている。これまでの研究は、溶液中の半導体ナノ粒子に関する研究がほとんどであった。我々は、実用展開の観点から、Si および SiGe のナノ粒子固体薄膜におけるオージェ再結合過程およびその逆過程であるキャリア増幅過程の研究を開始した。ナノ粒子および混晶構造における波数保存則の緩和が効率向上に重要であることを明らかにした⁴⁾。また、ナノ粒子固体膜でも効率高く、キャリア増幅が起こることを実験的に示した。

多接合型太陽電池ならびに量子構造大量電池の実現のためには、赤外波長領域の太陽電池材料の開発と其中での光電変換過程の理解が重要となる。そこで、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材料の作製と評価を行った。光キャリア生成とその輸送特性に優れ、さらにキャリア多体効果の発現が期待できる一次元量子細線構造を取り上げその評価を行った¹⁾。

§3. 成果発表等

(3-1) 原著論文発表

●論文詳細情報

1. T. Nishihara, Y. Yamada, and Y. Kanemitsu, “Dynamics of exciton-hole recombination in hole-doped single-walled carbon nanotubes”, *Phys. Rev. B* 86, 075449, 2012 (DOI:10.1103/PhysRevB.86.075449)
2. Y. Yamada and Y. Kanemitsu, “Determination of electron and hole lifetimes of rutile and anatase TiO₂ single crystals”, *Appl. Phys. Lett.* 101, 133907, 2012 (DOI:10.1063/1.4754831)
3. T. Nishihara, Y. Segawa, K. Itami, and Y. Kanemitsu, “Excited states in cycloparaphenylenes: Dependence of optical properties on ring length”, *J. Phys. Chem. Lett.* 3, 3125–3128, 2012 (DOI: 10.1021/jz3014826).
4. K. Ueda, T. Tayagaki, M. Fukuda, M. Fujii, and Y. Kanemitsu, “Breakdown of the k-conservation rule in quantized Auger recombination in Si_{1-x}Ge_x nanocrystals”, *Phys. Rev. B.* 86, 155316, 2012 (DOI: 10.1103/PhysRevB.86.155316)
5. S. Chen, M. Okano, B. Zhang, M. Yoshita, H. Akiyama, and Y. Kanemitsu, “Blue 6-ps short-pulse generation in gain-switched InGaN vertical-cavity surface-emitting lasers via impulsive optical pumping”, *Appl. Phys. Lett.* 101, 191108, 2012 (DOI: 10.1063/1.4766290)
6. M. Yoshita, K. Kamide, H. Suzuura, and H. Akiyama, “Applicability of continuum absorption in semiconductor quantum wells to absolute absorption-strength

- standards”, *Appl. Phys. Lett.* 101, 032108, 2012 (DOI: 10.1063/1.4737900)
7. T. Tachikawa, M. Minohara, Y. Nakanishi, Y. Hikita, M. Yoshita, H. Akiyama, C. Bell, and H. Y. Hwang, “Metal-to-insulator transition in anatase TiO₂ thin films induced by growth rate modulation”, *Appl. Phys. Lett.* 101, 022104, 2012 (DOI: 10.1063/1.4733724)
 8. T. Mochizuki, M. Yoshita, S. Maruyama, C. Kim, K. Fukuda, H. Akiyama, L. N. Pfeiffer, K. W. West, “Waveguide two-point differential-excitation method for quantitative absorption measurements of nanostructures”, *Jpn. J. Appl. Phys.* 51, 106601, 2012 (DOI: 10.1143/JJAP.51.106601)
 9. M. Yoshita, T. Okada, H. Akiyama, M. Okano, T. Ihara, L. N. Pfeiffer, and K. W. West, “Quantitative absorption spectra of quantum wires measured by analysis of attenuated internal emissions”, *Appl. Phys. Lett.* 100, 112101, 2012 (DOI:10.1063 / 1.3693401)
 10. Y. Kanemitsu, “Multiple Exciton Generation and Recombination in Carbon Nanotubes and Nanocrystals”, *Acc. Chem. Res.*, 2013. (in press).