

第 81 回応用物理学会秋季講演会

米田 涼真

Ryoma YONEDA

物質化学専攻修士課程 2年

1. はじめに

私は、2020年9月8日から9月11日にオンライン上で開催された第81回応用物理学会秋季講演会に参加した。この学会で私は、「Cu(Al, In)Se₂系固溶体の光学的性質と電子構造」というタイトルで口頭発表を行った。

2. 研究背景

エネルギー問題解決のため、再生可能エネルギーである太陽光を利用する太陽光発電が注目されている。変換効率を向上させるため近年注目されているのが、禁制帯幅の異なる光吸収層を複数積層させた多接合型太陽電池である。この多接合型太陽電池において広い禁制帯幅を有するワイドバンドギャップ材料の開発が望まれている。CuInSe₂系太陽電池では、CuInSe₂の禁制帯幅を変化させるために各種元素置換が行われている。私たちは第一原理計算と分子軌道ダイヤグラムを基礎にしてCuInSe₂の価電子帯(VBM)はCu 3dとSe 4pの反結合軌道、伝導帯(CBM)はIn 5sとSe 4pの反結合軌道からなることを示し、InをGaで置換するとVBMの準位がほとんど変化しないで、CBMが上昇することを報告した。TurcuらはCuGaSe₂のGaをAlで置換するとVBMが深くなるとともにCBMが上昇して禁制帯幅が広がると報告している。これは私たちの予測と異なる結果である。そこで本研究では、CuInSe₂のInをAlに置換したCu(Al, In)Se₂系固溶体を合成し、InのAl置換がCuInSe₂の光学特性や電子構造に与える影響について研究した。

3. 実験操作

Cu, In, Al, Seの元素粉末をCu(Al_xIn_{1-x})Se₂の比

率で秤量し、遊星ボールミルを用いてN₂中・1000 rpmで5時間混合・粉碎した。得られた混合粉末をN₂中・500℃で30分間焼成を行うことで試料を合成し、粉末X線回折(XRD)よりカルコパイライト相が合成されていることを確認した。得られた粉末の拡散反射スペクトルから禁制帯幅を決定した。そして、光電子収量分光法(PYS)によりイオン化エネルギーを測定し、VBMの準位を決定し、VBMの準位に禁制帯幅を加えることでCBMの準位を決定した。

4. 結果

図1にCu(Al_xIn_{1-x})Se₂系粉末のXRD図形を示す。CuInSe₂のInをAlで置換すると回折ピークが全体に高角側にシフトすることから、目的とする固溶体が得られたと判断した。不純物相は確認されなかった。

また、リートベルト解析より格子定数a, cはAl固溶量の増加に伴って減少する傾向を示した。

Cu(Al_xIn_{1-x})Se₂の拡散反射スペクトルは、Al固溶量の増加に伴って短波長側へシフトする傾向を示し、Taucプロットは高エネルギー側へシフトした。

図2にCu(Al_xIn_{1-x})Se₂系固溶体の算出した禁制帯幅を、Al固溶量の関数として示す。禁制帯幅はCuInSe₂(x=0.0)の1.00 eVからCuAlSe₂(x=1.0)の2.61 eVまでAlの固溶量の増加に伴って少しボーイングしながら単調に増大した。

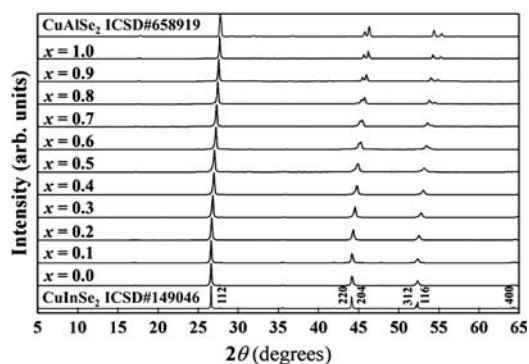


図1 Cu(Al_xIn_{1-x})Se₂のX線回折図形

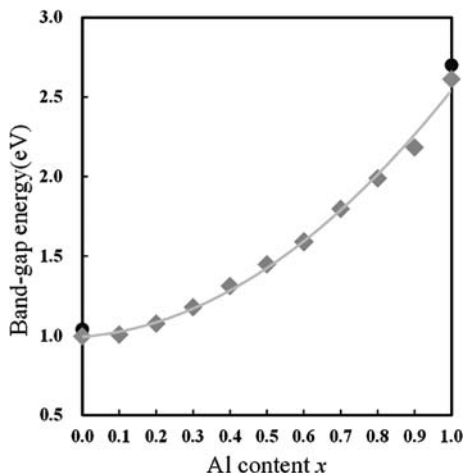


図2 Cu(Al_xIn_{1-x})Se₂の禁制帯幅

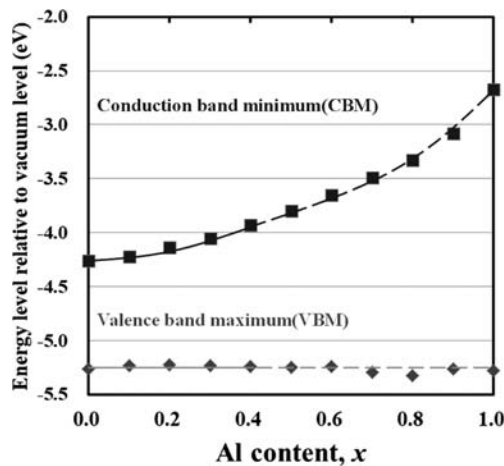


図3 Cu(Al_xIn_{1-x})Se₂系固溶体のVBMとCBMの準位

図3にCu(Al_xIn_{1-x})Se₂系固溶体のVBMとCBMの準位を示す。Cu(Al_xIn_{1-x})Se₂のVBMは、Alの固溶量(x)の変化によらずほぼ一定の値となった。一方、CBMはCuInSe₂(x=0.0)の-4.25 eVからCuAlSe₂(x=1.0)の-2.66 eVまで単調に上昇した。この結果は、私たちが予測した結果と一致しており、過去に報告されていたAlの固溶によってVBMが深くなるという傾向は見られなかった。CuInSe₂のInのAl置換は、Cu 3dとSe 4pから成るVBMの準位にほとんど変化を与えないで、CBMの上昇はIn 5sとSe 4pの反結合軌道がAl 3sとSe 4pの反結合軌道に変化することで上昇したと考えられる。

5. 学会を通じて

今回の学会は私にとって初の学会発表でした。コロナウイルスの影響でオンラインでの開催となり、戸惑いや不安も大きかったですが無事に終えることができ良かったと感じています。オンラインという形ではありましたが学会の雰囲気を感じることができました。また他大学の研究者の発表を聞くことにより刺激を受け、今後の自身の研究により精を出していきたいと思いました。

今回の学会への参加は非常に貴重な体験であり今後の研究活動にはもちろん、社会に出てからも生かしていける経験であったと感じています。

最後に、このような貴重な機会を与えてくださり、ご指導していただいた和田隆博教授や前田毅博士、研究室の皆様方に深く感謝致します。